

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 6月 5日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011 ～ 2012

課題番号：23656060

研究課題名（和文）

カーボンナノチューブの磁場中自励振動現象の解明とナノセンシングへの応用

研究課題名（英文） Elucidation of self-vibration phenomenon of carbon nanotubes in magnetic field and its application to nano-sensing

研究代表者

齋藤 弥八 (SAITO YAHACHI)

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：90144203

研究成果の概要（和文）：

カーボンナノチューブ(CNT)電界エミッタの大振幅自励振動の原因を明らかにするため、透過電子顕微鏡(TEM)および走査電子顕微鏡(SEM)による電界放出(FE)最中のCNTの挙動を調べた。TEM内では、振動開始条件は電流にも電圧には依存しなく、むしろCNTエミッタの対向電極に対する相対的な角度が重要であることが分かった。つまり、CNTが電界の作用により50°以上屈曲する場合に限り、CNTの自励振動現象が観察された。また、振動したCNTエミッタにおいては、振動開始電圧とCNTの直径には比例関係は見出されたが、CNTの長さの効果は見られなかった。他方、磁場強度の弱いSEMの試料ステージに置かれたCNTエミッタにおいては、TEM中とは異なり、CNTを50°以上に屈曲させても、自励振動は観察されなかった。これは、CNTのFE中の自励振動には磁界が深く係わり、CNTを流れる電流と静磁場によるローレンツ力が振動の原因の一つであることを示唆する。

研究成果の概要（英文）：

In-situ transmission electron microscopy (TEM) and scanning electron microscopy (SEM) of carbon nanotube (CNT) field electron emitters have been carried out in order to clarify the origin of spontaneous vibration with large amplitude. In TEM, neither field emission current nor applied voltage were decisive factors for the onset of the spontaneous vibration. Instead, it was found that the orientation of the CNT against the counter electrode was important, i.e., the spontaneous vibration was observed only when the CNT bent more than 50° by the applied electric field. For CNTs which showed spontaneous vibration, a correlation between the onset voltages for vibration and the diameter of CNTs are clearly found, but the length of CNTs showed no effect on the onset voltage. In SEM, on the other hand, even CNT emitters which bent more than 50° did not show any spontaneous vibration at all. Since the magnetic field at the SEM sample stage is much smaller than that at TEM sample stage, the difference in the CNT behavior between TEM and SEM indicates the role of the magnetic field in the induction of the spontaneous vibration; i.e., the Lorentz force between the electric current through the CNT and the magnetic field is the origin of the induction of large-amplitude vibration.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：結晶物理，応用物性，ナノスケール材料工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎，応用物理学一般

キーワード：カーボンナノチューブ，電子放出，振動，電子顕微鏡，電界，磁界，ローレンツ力

1. 研究開始当初の背景

カーボンナノチューブ (CNT) の共鳴振動は、CNT 自身の微細性、軽量性、高剛性から、高振動数と高いQ値 (Quality factor) が期待され、高感度の微小質量計測、位置センシング用の振動子への利用を目指した研究が行われている。これらの先行研究では、CNT への振動の励起は、外部からの機械振動、交流電界により行われている。これに対して、我々は CNT からの電子の電界放出を透過電子顕微鏡 (TEM) によりその場観察している最中に、CNT が外部励振装置なしで自励振動することを見出した。さらに、その振動も振幅の大きさにより、2種類に分けられることが分かった。1つは電界放出電流が低い領域での小振幅振動、2つ目は放出電流が高い領域での極めて大きな振幅での振動である。放出電流を上げることにより、小振幅振動から大振幅振動への遷移は突然に起こる。TEM 中で起こるこの予測困難な CNT の巨大振動は、これまで観察されていない新しい現象である。この振動には、TEM 対物レンズの磁場が関与していると推測している。この特異な自励振動現象の起源を解明し、極微量質量計測、磁場センサーへの利用可能性を探ることを目指し、研究を立案した。

2. 研究の目的

CNT の電界電子放出中における自励振動は、放出電流が低い領域での小振幅振動から放出電流が高い領域での極めて大きな振幅をもつ振動へと突然にカタストロフィックな遷移を起こす。この予測困難な CNT の巨大振動の原因を究明し、磁場が関与する CNT ナノ振動子の特性を明らかにすることを目的とする。このために、CNT からの電界放出電流の大きさ、磁場の有無、CNT の幾何学形状 (長さ、太さ) の関係を分析する。さらにこの研究を発展させ、共振周波数の測定と極微小質量 (zg オーダー) の検出への応用に向けた要素技術の蓄積も目的とする。

3. 研究の方法

(1) 透過電子顕微鏡 (TEM) 中での片持ち CNT の振動の観察と測定

CNT 振動子を陰極、対向電極を陽極として、TEM 中において電圧印加により電子放出を行う。電界放出電流の測定と同時に CNT 振動子

の挙動の観察とビデオ記録を行う。CNT の張出し部分の長さ、CNT 自身の直径、印加電圧、放出電流の大きさが、大振幅振動への遷移に及ぼす効果を詳細に調べ、CNT の大振幅振動の原因とカオス性を明らかにする。

(2) CNT からの放出電流と振動振幅の相関関係の調査

TEM においては、CNT は対物レンズの磁場中に置かれているため、電子放出中に CNT を流れる電流がローレンツ力を受ける。それが CNT 励振に関与していると推測される。そこで、長さの異なる CNT 振動子に対して、電界放出電流と振動振幅を測定し、ローレンツ力の関与についての上記の仮説を実証する。

(3) 走査電子顕微鏡 (SEM) 中での片持ち CNT の振動測定

SEM では、一般に、対物レンズの外に試料を置いて観察するので、レンズ磁場は TEM の場合に比べれば無視できる。SEM 試料チャンバーに設置する CNT 振動観察・電気測定装置を作製し、自励現象の閾値電流、小振幅-大振幅遷移の有無の測定を無磁場で行う。

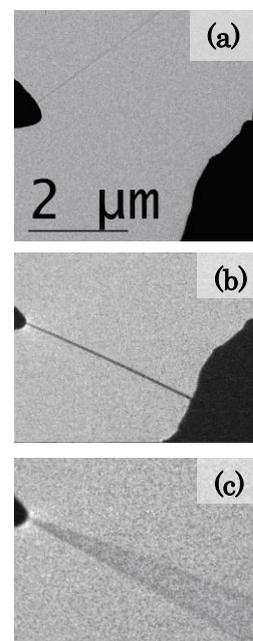


図 1

4. 研究成果

(1) FE 中の CNT 自己振動の TEM 観察と放出電流

CNT 電界エミッタの TEM 内での電界放出実験の一例を図 1 に示す。図 1 a は電圧印加前、図 1 b では CNT に 80V 印加されているが、振

動は起きていない。このCNTの場合は、99.4V以上の電圧を印加することにより、振動が発生した(図1c)。なお、図1の写真ではCNTが接触しているように見えるが、CNTと対向電極先端の高さが違うので、接触はしていない。

自己振動しているCNTエミッタからの放出電流は、振動していない場合に比べて、電流変動が大きい。この様子を図2のFowler-Nordheim (F-N) プロット、すなわち $\ln(I/V^2)$ 対 $1/V$ で示す。ここで、 I は放出電流、 V は印加電圧である。振動前を青色、振動中を青色の点で示してある。振動前では、F-N プロットは期待されるようにほぼ直線であるが、振動中は印加電圧を上げてても放出電流は増加せず、ランダムな電流変動が大きいことが分かる。振動中のエミッタからの放出電流が増加しない理由は、エミッタ先端と対向電極との距離が振動により広がるためと考えられる。

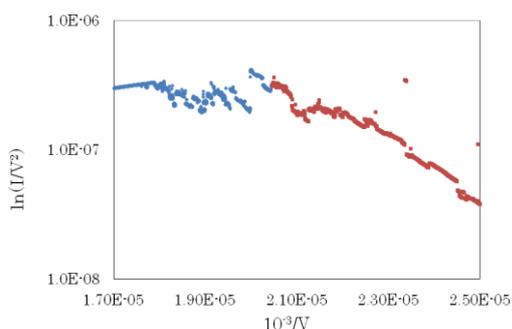


図 2

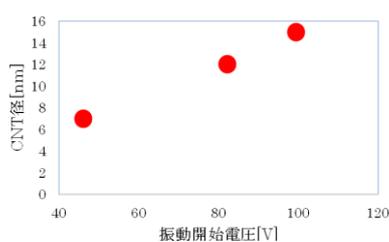


図 3

(2) CNT 自己振動の印加電圧および放出電流依存性

33本のCNTエミッタのうち自己振動を起こしたのはわずか3本であった。自己振動の発生と放出電流あるいは印加電圧との相関関係を調べたところ、振動開始条件は電流にも電圧にも依存しないことが分かった。振動したCNTエミッタにおいては、振動開始電圧とCNTの直径には比例関係は見出された(図3)。

他方、CNTの長さの効果は見られなかった。

(3) CNT 自己振動の対向電極との角度依存性
振動励起に及ぼすCNTエミッタの対向電極に対する向きの効果を調べた結果、電圧印加により、すなわち静電気力を加える事により、CNTが約 50° 以上偏向する場合にFEした状態で振動することが分かった(図4)。

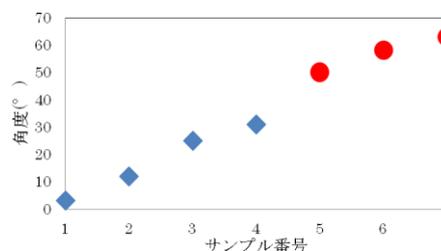


図 4

(4) FE 無しでも起こる CNT 自己振動

20-30V程度の低い印加電圧でFE無しの状態でもCNTの振動が起こることを観察した。この振動は、同一のCNTにおいては、ある特定の印加電圧で再現性よく発生し、電極間距離を縮めると電圧が低くなることを確認した。また、電圧の極性を逆にしても、ほぼ同じ電圧で発生することも確認した。このFE無しでの自己振動の起こる電圧範囲は0.2-2Vと狭く、共鳴的である。電圧を掃引すると、振動の起こる電圧が2回、3回と発生することが観察された。

(5) CNTの円錐振動(すりこ木運動)の観察

これまでCNTの振動は平面内で起こっているものと考えられていたが、実は、円錐運動する場合もあることを見出した。電圧印加によるCNTの振動現象は非常に複雑であることを示している。

(6) SEM中での電界放出と自己振動の関係

TEM中での実験において、CNTエミッタと対向電極の間の角度が重要であるという結果を踏まえ、SEM中にCNT電子放出のその場観察実験を行った。TEMにおいては、観察試料であるCNTエミッタは静磁場を持つ対物レンズ内に入れられるのに対して、SEMにおいては、試料は対物レンズの外に置かれていることから、TEMに比べて、磁場の影響を大幅に低減できるという特徴がある。磁場強度の弱いSEMにおいては、電界印加によってCNTを 50° 以上に屈曲させても、TEM中での実験とは異なり、CNTの自励振動は観察されなかった。これらの結果の比較からCNTのFE中

の自励振動には磁界が深く係わり、CNT を流れる電流と静磁場によるローレンツ力が振動の原因の一つであることが示唆される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

- ① Yahachi Saito, Carbon Nanotube Field Emitters: Fundamental Properties and Applications, ECS Transactions, 2012, 187-196、査読なし

[学会発表] (計 0 件)

[図書] (計 2 件)

- ① 齋藤弥八, コロナ社, カーボンナノチューブ・グラフェンハンドブック, 2011, pp. 221-229, 査読なし
② 齋藤弥八, 安坂幸師, 化学同人, 炭素学, 2011, pp. 367-372, 査読なし

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://www.surf.nuqe.nagoya-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

齋藤 弥八 (SAITO YAHACHI)
名古屋大学・工学研究科・教授
研究者番号：90144203

(2) 研究分担者

安坂 幸師 (ASAKA KOJI)
名古屋大学・工学研究科・講師
研究者番号：50361316

(3) 連携研究者 なし