

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6650771号  
(P6650771)

(45) 発行日 令和2年2月19日 (2020.2.19)

(24) 登録日 令和2年1月23日 (2020.1.23)

(51) Int.Cl. F I  
CO 1 B 32/16 (2017.01) CO 1 B 32/16

請求項の数 18 外国語出願 (全 23 頁)

|                    |                               |           |  |
|--------------------|-------------------------------|-----------|--|
| (21) 出願番号          | 特願2016-16989 (P2016-16989)    | (73) 特許権者 | 500520743                              |
| (22) 出願日           | 平成28年2月1日 (2016.2.1)          |           | ザ・ボーイング・カンパニー                          |
| (65) 公開番号          | 特開2016-185900 (P2016-185900A) |           | The Boeing Company                     |
| (43) 公開日           | 平成28年10月27日 (2016.10.27)      |           | アメリカ合衆国、60606-2016                     |
| 審査請求日              | 平成31年2月1日 (2019.2.1)          |           | イリノイ州、シカゴ、ノース・リバーサイド・プラザ、100           |
| (31) 優先権主張番号       | 14/611, 734                   | (74) 代理人  | 110002077                              |
| (32) 優先日           | 平成27年2月2日 (2015.2.2)          |           | 園田・小林特許業務法人                            |
| (33) 優先権主張国・地域又は機関 | 米国 (US)                       | (72) 発明者  | ハムフェルド, キース ディー,                       |
| 早期審査対象出願           |                               |           | アメリカ合衆国 ワシントン 98108                    |
|                    |                               |           | , タックウィラ, イースト マージナル ウェイ サウス 9725, メール |
|                    |                               |           | コード: 42-32                             |
|                    |                               | 審査官       | 廣野 知子                                  |
|                    |                               |           | 最終頁に続く                                 |

(54) 【発明の名称】 カーボンナノチューブを製造し精製する方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

半導体性単層カーボンナノチューブを製造する方法であって、

( $n$ 、 $m$ ) ナノチューブシード及び非( $n$ 、 $m$ ) ナノチューブシードを含む複数の半導体性ナノチューブシードに、第1の波長を有する第1のレーザービーム及び前記第1の波長とは異なる第2の波長を有する第2のレーザービームを照射することにより、

前記( $n$ 、 $m$ ) ナノチューブシードを、それ以上でカーボンナノチューブ成長が生じ、又はそれ以上でカーボンナノチューブ成長が増加された速度で進行するところの温度以上、かつそれ以上でカーボンナノチューブが欠陥を形成し又はナノチューブへと成長しないところの温度未満の範囲へと選択的に加熱することを含み、

前記第1の波長は( $n$ 、 $m$ ) カーボンナノチューブの吸収極大に対応し、

前記第2の波長は前記( $n$ 、 $m$ ) カーボンナノチューブのフォトルミネッセンス発光周波数に対応する、方法。

【請求項 2】

前記非( $n$ 、 $m$ ) ナノチューブシードは、それ以上でカーボンナノチューブ成長が生じ、又はそれ以上でカーボンナノチューブ成長が増加された速度で進行するところの温度以上、かつそれ以上でカーボンナノチューブが欠陥を形成し又はナノチューブへと成長しないところの温度未満の範囲へと加熱されない、請求項1に記載の方法。

【請求項 3】

前記( $n$ 、 $m$ ) ナノチューブシードは、少なくとも摂氏50度だけ、前記( $n$ 、 $m$ ) ナ

10

20

ノチューブシードの温度を増加させるように選択的に加熱される、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 4】

前記 (n、m) ナノチューブシードから複数の (n、m) カーボンナノチューブを形成することを更に含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 5】

前記 (n、m) カーボンナノチューブは、前記方法によって形成された前記カーボンナノチューブの質量の少なくとも 90% を占める、請求項 4 に記載の方法。

【請求項 6】

前記 (n、m) カーボンナノチューブは、前記方法によって形成された前記カーボンナノチューブの質量の少なくとも 95% を占める、請求項 4 に記載の方法。

【請求項 7】

前記非 (n、m) ナノチューブシードから前記 (n、m) カーボンナノチューブを分離させることを更に含む、請求項 4 に記載の方法。

【請求項 8】

半導体性単層カーボンナノチューブを製造する方法であって、

(n、m) ナノチューブシード及び非 (n、m) ナノチューブシードを含む複数の半導体性ナノチューブシードに、第 1 の波長を有する第 1 のレーザービーム及び前記第 1 の波長とは異なる第 2 の波長を有する第 2 のレーザービームを照射することにより、

前記 (n、m) ナノチューブシードから複数の (n、m) カーボンナノチューブを形成することと、

前記非 (n、m) ナノチューブシードから複数の非 (n、m) カーボンナノチューブを形成することと、

前記複数の (n、m) カーボンナノチューブと前記複数の非 (n、m) カーボンナノチューブに、第 3 の波長を有する第 3 のレーザービーム及び前記第 3 の波長とは異なる第 4 の波長を有する第 4 のレーザービームを照射することにより、

前記非 (n、m) カーボンナノチューブを、それ以上でカーボンナノチューブが欠陥を形成し、劣化し、及び/又は分解するところの温度以上へと選択的に加熱することを含み、

前記第 1 の波長は (n、m) カーボンナノチューブの吸収極大に対応し、

前記第 2 の波長は前記 (n、m) カーボンナノチューブのフォトルミネッセンス発光周波数に対応し、

前記第 3 の波長は前記非 (n、m) カーボンナノチューブの吸収極大に対応し、

前記第 4 の波長は前記非 (n、m) カーボンナノチューブのフォトルミネッセンス発光周波数に対応する、方法。

【請求項 9】

前記非 (n、m) カーボンナノチューブから、及び/又は欠陥が形成され、劣化し、及び/又は分解された前記非 (n、m) カーボンナノチューブの 1 以上から、前記 (n、m) カーボンナノチューブを分離させることを更に含む、請求項 8 に記載の方法。

【請求項 10】

半導体性単層カーボンナノチューブを製造する方法であって、

(n、m) ナノチューブシード及び非 (n、m) ナノチューブシードを含む複数の半導体性ナノチューブシードに、第 1 の波長を有する第 1 のレーザービーム及び前記第 1 の波長とは異なる第 2 の波長を有する第 2 のレーザービームを照射することにより、

前記 (n、m) ナノチューブシードを、それ以上でカーボンナノチューブが欠陥を形成し又はナノチューブへと成長しないところの温度より高い温度に選択的に加熱することと、

前記非 (n、m) ナノチューブシードから複数の非 (n、m) カーボンナノチューブを、それ以上で非 (n、m) カーボンナノチューブ成長が生じ、又はそれ以上で非 (n、m) カーボンナノチューブ成長が増加された速度で進行するところの温度以上、かつそれ以

10

20

30

40

50

上で非 (n、m) カーボンナノチューブが欠陥を形成し又は非 (n、m) ナノチューブへと成長しないところの温度未満の範囲内で成長させることを含み、

前記第 1 の波長は (n、m) カーボンナノチューブの吸収極大に対応し、

前記第 2 の波長は前記 (n、m) カーボンナノチューブのフォトルミネッセンス発光周波数に対応し、

前記非 (n、m) ナノチューブシードは、前記それ以上でカーボンナノチューブが欠陥を形成し又はナノチューブへと成長しないところの温度より高い温度へと加熱されない、方法。

#### 【請求項 11】

カーボンナノチューブの集団を精製する方法であって、

半導体性 (n、m) カーボンナノチューブ及び非 (n、m) カーボンナノチューブを含むカーボンナノチューブの集団に、第 1 の波長を有する第 1 のレーザービーム及び前記第 1 の波長とは異なる第 2 の波長を有する第 2 のレーザービームを照射することにより、

前記 (n、m) カーボンナノチューブを、それ以上でカーボンナノチューブが欠陥を形成し、劣化し、及び/又は分解するところの温度以上へと選択的に加熱することと、

前記非 (n、m) カーボンナノチューブをそれ以上でカーボンナノチューブ成長が生じ、又はそれ以上でカーボンナノチューブ成長が増加された速度で進行するところの温度以上、かつそれ以上でカーボンナノチューブが欠陥を形成し又はナノチューブへと成長しないところの温度未満の範囲で成長させることを含み、

前記カーボンナノチューブは、カーボンナノチューブシードから成長されたものであり

前記第 1 の波長は前記 (n、m) カーボンナノチューブの吸収極大に対応し、

前記第 2 の波長は前記 (n、m) カーボンナノチューブのフォトルミネッセンス発光周波数に対応し、

前記非 (n、m) カーボンナノチューブは、それ以上でカーボンナノチューブが欠陥を形成し、劣化し、及び/又は分解するところの温度以上へと加熱されないが、代わりにそれ以上でカーボンナノチューブ成長が生じ、又はそれ以上でカーボンナノチューブ成長が増加された速度で進行するところの温度以上、かつそれ以上でカーボンナノチューブが欠陥を形成し又はナノチューブへと成長しないところの温度未満の範囲に収まる、方法。

#### 【請求項 12】

前記 (n、m) カーボンナノチューブは、少なくとも摂氏 50 度だけ、前記 (n、m) カーボンナノチューブの温度を増加させるように選択的に加熱される、請求項 11 に記載の方法。

#### 【請求項 13】

前記 (n、m) カーボンナノチューブの質量の少なくとも 60 % が、劣化され又は分解される、請求項 11 に記載の方法。

#### 【請求項 14】

前記 (n、m) カーボンナノチューブの質量の少なくとも 75 % が、劣化され又は分解される、請求項 11 に記載の方法。

#### 【請求項 15】

前記 (n、m) カーボンナノチューブから、及び/又は欠陥が形成され、劣化し、及び/又は分解された前記 (n、m) カーボンナノチューブの 1 以上から、前記非 (n、m) カーボンナノチューブを分離させることを更に含む、請求項 11 から 14 のいずれか一項に記載の方法。

#### 【請求項 16】

前記フォトルミネッセンス発光周波数が、フォトルミネッセンス発光ピークを有する、請求項 11 に記載の方法。

#### 【請求項 17】

前記選択的に加熱することの後に、前記 (n、m) カーボンナノチューブから、残余 (n、m) カーボンナノチューブを分離させることを更に含む、請求項 11 に記載の方法。

## 【請求項 18】

カーボンナノチューブの集団を精製する方法であって、

半導体性の第1の $(n, m)$ カーボンナノチューブ、第2の $(n, m)$ カーボンナノチューブ及び非 $(n, m)$ カーボンナノチューブを含むカーボンナノチューブの集団に、第1の波長を有する第1のレーザービーム、第2の波長を有する第2のレーザービーム、第3の波長を有する第3のレーザービーム、及び第4の波長を有する第4のレーザービームを照射することにより、

前記第1の $(n, m)$ カーボンナノチューブを、カーボンナノチューブが欠陥を形成し、劣化し、及び/又は分解するところの温度へと選択的に加熱することと、

前記非 $(n, m)$ カーボンナノチューブをそれ以上でカーボンナノチューブ成長が生じ、又はそれ以上でカーボンナノチューブ成長が増加された速度で進行するところの温度以上、かつそれ以上でカーボンナノチューブが欠陥を形成し又はナノチューブへと成長しないところの温度未満の範囲で成長させることを含み、

前記カーボンナノチューブは、カーボンナノチューブシードから成長されたものであり、

前記第1の $(n, m)$ カーボンナノチューブと前記第2の $(n, m)$ カーボンナノチューブは、異なる $(n, m)$ 値のセットを有し、

前記第1の波長は前記第1の $(n, m)$ カーボンナノチューブの吸収極大に対応し、

前記第2の波長は前記第1の $(n, m)$ カーボンナノチューブのフォトルミネッセンス発光周波数に対応し、

前記第2の波長は、前記第1の波長と異なり、

前記第3の波長は前記第2の $(n, m)$ カーボンナノチューブの吸収極大に対応し、

前記第4の波長は前記第2の $(n, m)$ カーボンナノチューブのフォトルミネッセンス発光周波数に対応し、

前記第4の波長は、前記第3の波長と異なり、

前記非 $(n, m)$ カーボンナノチューブは、それ以上でカーボンナノチューブが欠陥を形成し、劣化し、及び/又は分解するところの温度以上へと加熱されないが、代わりにそれ以上でカーボンナノチューブ成長が生じ、又はそれ以上でカーボンナノチューブ成長が増加された速度で進行するところの温度以上、かつそれ以上でカーボンナノチューブが欠陥を形成し又はナノチューブへと成長しないところの温度未満の範囲に収まる、方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本開示は、カーボンナノチューブを製造し及び/又は精製する方法に関し、特に、1以上の所定の又は予め選択されたキラリティ(chirality)を有するカーボンナノチューブ内で濃縮され及び/又は消尽されたナノチューブの連続体又は集団(population)を提供するための、フォトルミネッセンス(photoluminescent)単層カーボンナノチューブ(SWCNT)などの半導体性単層カーボンナノチューブの選択的な成長及び/又は劣化に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

単層カーボンナノチューブの特性は、その幾何学的構造に強く依存する。この構造は、しばしば、カイラル指数 $(n, m)$ の特定及び列挙によって特徴付けられる。整数 $n$ 及び $m$ は、グラフェンのハニカム結晶格子内の2つの方向に沿った単位ベクトルの数を意味する。これらの指数は、ナノチューブが金属( $n = m$ )、半金属( $n - m$ が3の倍数)、又は半導体性( $n - m$ の他の値)であるか否かなどの、ナノチューブの重要なパラメータを決定するために使用され得る。 $m = 0$ の値を有するナノチューブは、概して、ジグザグナノチューブと呼ばれ、 $n = m$ の値を有するナノチューブは、概して、アームチェアナノチューブと呼ばれる。ジグザグ及びアームチェアナノチューブとは異なる $n$ 及び/又は $m$ の値を有するナノチューブは、概して、キラルナノチューブと呼ばれている。

## 【 0 0 0 3 】

単層カーボンナノチューブを製造するために、様々な成長技術が開発されてきた。各々の技術は、概して、 $(n, m)$  指数の分布を有するナノチューブの集団を生み出す。多くのこれらの技術が、1以上の予め選択されたキラリティー内で濃縮されたSWCNTの連続体を提供することに集中してきた一方で、ほとんど又は全ての先行する方法が多くの欠陥を有する。例えば、連続体内のキラリティーの分布は、しばしば、成長条件に依存し、したがって、同じ方法の範囲内であってさえも大きな変化を示し得る。更に、ある先行する方法は、連続体内で望ましいキラリティーの高い比率を提供することができなかった。これらの欠陥を克服するために、成長後のステップで1つのキラリティー又は別の1つのキラリティーを有するSWCNTを除去することによって、SWCNTのサンプルを精製する多くの技術が考案されてきた。残念なことに、そのようなアプローチは、概して、処理時間を増大させ、処理費用を増加し、及び/又は精製されていない連続体のサイズと比較して望ましいキラリティーのナノチューブの相対的に低い収率をもたらす。更に、そのような精製技術は、わずか1つ又は2つの望ましいキラリティー内で濃縮された連続体などの、少ない数の望ましいキラリティー内で濃縮された連続体を提供することができない。したがって、半導体性単層カーボンナノチューブを製造し及び/又は精製するための改良された方法が必要である。

10

## 【 発 明 の 概 要 】

## 【 0 0 0 4 】

フォトルミネッセンスカーボンナノチューブなどの半導体性単層カーボンナノチューブの連続体又は集団を製造し及び/又は精製する方法が、本明細書で説明される。本明細書で説明される方法は、半導体性単層カーボンナノチューブ又はナノチューブシードを、選択的に、加熱し、成長させ、及び/又は劣化させ若しくは分解させるために使用され得ることが、理解されるべきである。例えば、本明細書中で以下に更に説明されるある実施態様では、本明細書で説明される方法が、所定の又は予め選択されたものとは異なるキラリティーを有するナノチューブシードと同様に、所定の又は予め選択されたキラリティーを有するナノチューブシードを含む複数の半導体性ナノチューブシードを提供することを含む。ある場合では、そのような複数の半導体性ナノチューブシードが、選択されたナノチューブシード及び/又はそのようなナノチューブシードから形成され得る任意のナノチューブの、選択的な加熱、成長、及び/又は劣化をもたらすために、予め選択された又は所定の波長を有する複数のレーザービームで発光され得る。ある例では、レーザービームが、同時に又は実質的に同時に、ナノチューブ及び/又はナノチューブシードに向けられ得る。更に、ある場合では、複数のナノチューブシードの発光が、選択的に、望ましいキラリティーを有するナノチューブシードを、カーボンナノチューブ成長様式へと加熱し得る。そのような選択的な加熱は、予め選択された又は所定のものとは異なるキラリティーを有するカーボンナノチューブシードが、カーボンナノチューブ成長様式へと加熱されない、それ故、成長しない、又は所定の若しくは予め選択されたキラリティーを有するナノチューブに対して低減された速度で成長するようなやり方で実行され得る。このやり方では、本明細書で説明される方法が、単数の予め選択されたキラリティー又は複数の予め選択されたキラリティーを有するナノチューブの集団を成長させるために使用され得る。代替的に、他の実施態様では、選択的な加熱が、所定の又は予め選択されたキラリティーを有するナノチューブシードが、カーボンナノチューブ成長様式から出て、成長しない様式へと加熱されるようなやり方で実行され得、一方、所定の又は予め選択されたキラリティーとは異なるキラリティーを有する残りのナノチューブシードは、カーボンナノチューブの成長様式内に残る。このやり方では、本明細書で説明される方法が、単数の予め選択されたキラリティー又は複数の予め選択されたキラリティー内で消尽され又は実質的に消尽された、ナノチューブの集団を成長させるために使用され得る。

20

30

40

## 【 0 0 0 5 】

更に、ある場合では、以前に成長したカーボンナノチューブの集団が、1以上の予め選択された又は所定のキラリティーを有するナノチューブから、選択的に消尽され得る。例

50

えば、ある実施態様では、カーボンナノチューブの集団が、予め選択された又は所定のキラリティーのナノチューブの選択的な加熱及び／又は劣化をもたらすために、予め選択された又は所定の波長を有する複数のレーザービームで発光され得る。したがって、ある場合では、本明細書で説明される方法が、単一の所定の若しくは予め選択されたキラリティーのナノチューブ又は複数の所定の若しくは予め選択されたキラリティーを有するナノチューブを選択的に劣化させることによって、半導体性単層カーボンナノチューブの集団を精製するために使用され得る。

【 0 0 0 6 】

ある例では、半導体性単層カーボンナノチューブを製造する方法が、(n、m)ナノチューブシード及び非(n、m)ナノチューブシードを含む複数の半導体性ナノチューブシードを形成すること、並びに第1の波長を有する第1のレーザービーム及び第1の波長とは異なる第2の波長を有する第2のレーザービームで複数のナノチューブシードを発光させることを含む。ある実施態様では、第1の波長が、(n、m)カーボンナノチューブの吸収極大に対応する。更に、ある場合では、第2の波長が、ピーク放射周波数などの(n、m)カーボンナノチューブのフォトルミネッセンス発光周波数(photoluminescence emission frequency)に対応する。

10

【 0 0 0 7 】

更に、本明細書で説明される方法は、(n、m)ナノチューブシードを選択的に加熱することを更に含み得る。ある実施態様では、(n、m)ナノチューブシードが、非成長又は成長しない様式からカーボンナノチューブ成長様式へと選択的に加熱される。特定の例では、(n、m)ナノチューブシードを選択的に加熱することが、少なくとも摂氏50度だけ、(n、m)ナノチューブシードの温度を増加させ得る。更に、ある場合では、本明細書で説明される方法が、(n、m)ナノチューブシードから複数の(n、m)カーボンナノチューブを形成することを更に含む。そのような実施態様では、方法によって形成された(n、m)カーボンナノチューブが、質量で、形成されたカーボンナノチューブの全体量の少なくとも90%、少なくとも95%、又は少なくとも99%を占める。

20

【 0 0 0 8 】

他の実施態様では、本明細書で説明される方法が、(n、m)ナノチューブシードを、上側成長閾値温度より高い温度にカーボンナノチューブ非成長様式へと選択的に加熱することを含む。ある例では、このやり方で(n、m)ナノチューブシードを選択的に加熱することは、少なくとも摂氏50度だけ、(n、m)ナノチューブシードの温度を増加させ得る。更に、そのような場合では、非(n、m)ナノチューブシードが、非成長様式へと加熱されず、代わりに成長様式内に維持される。更に、ある実施態様では、本明細書で説明される方法が、非(n、m)ナノチューブシードから複数の非(n、m)カーボンナノチューブを形成することを更に含む。そのような実施態様では、本方法によって形成された非(n、m)カーボンナノチューブが、質量で、形成されたカーボンナノチューブの全体量の少なくとも90%、少なくとも95%、又は少なくとも99%を占める。

30

【 0 0 0 9 】

別の1つの側面では、半導体性SWCNTの集団などのカーボンナノチューブの集団を精製する方法が、本明細書で説明される。ある実施態様では、本明細書で説明される方法が、半導体性(n、m)カーボンナノチューブ及び非(n、m)カーボンナノチューブを含む、カーボンナノチューブの集団を提供することを含む。本方法は、第1の波長を有する第1のレーザービーム及び第1の波長とは異なる第2の波長を有する第2のレーザービームで、カーボンナノチューブの集団を発光させることを更に含む。ある実施態様では、第1の波長が、(n、m)カーボンナノチューブの1以上に対する吸収極大に対応する。更に、ある場合では、第2の波長が、1以上の(n、m)カーボンナノチューブに対するフォトルミネッセンス発光周波数に対応する。

40

【 0 0 1 0 】

更に、ある場合では、カーボンナノチューブの集団を精製する方法が、(n、m)カーボンナノチューブを、カーボンナノチューブ劣化様式へと選択的に加熱することを更に含

50

む。そのような実施態様では、非 (n、m) カーボンナノチューブは、カーボンナノチューブ劣化様式へと加熱されない。特定の場合では、(n、m) ナノチューブは、少なくとも摂氏50度だけ、(n、m) ナノチューブの温度を増加させるように選択的に加熱される。更に、ある例では、カーボンナノチューブの集団を精製する方法が、質量で、集団内に存在する(n、m) カーボンナノチューブの少なくとも50%、少なくとも60%、又は少なくとも75%を劣化させる。

#### 【0011】

更に別の1つの側面では、組成が本明細書で説明される。ある実施態様では、本明細書で説明される組成が、1以上の所定の又は予め選択されたキラリティーを有する半導体性SWCNT内で濃縮されるか又は実質的に濃縮される。例えば、本明細書で説明される組成が、ある場合では、質量で、1以上の所定の又は予め選択されたキラリティーを有する半導体性SWCNTの少なくとも90%、少なくとも95%、少なくとも99%、又は少なくとも99.9%を占め又は含むことができる。サンプルが濃縮され得る1以上の所定の又は予め選択されたキラリティーを有するナノチューブは、(10、3)、(9、4)、(8、6)、(12、1)、(11、3)、(8、7)、(10、5)、(9、7)、(13、2)、(12、4)、(11、4)、(10、6)、(9、8)、(11、6)、(14、1)、(13、3)、(12、5)、(11、7)、(10、8)、(15、1)、(14、3)、(13、5)、(10、9)、(12、7)、(16、2)、(15、4)、(15、2)、(14、4)、(13、6)、(12、8)、(11、9)、(14、6)、(17、1)、(16、3)、(15、5)、(14、7)、(11、10)、(13、8)、及び(13、9)から成るグループから選択された(n、m)値を有するナノチューブから選択され得る。

#### 【0012】

更に、ある実施態様では、本明細書で説明される組成が、1以上の所定の又は予め選択されたキラリティーを有するナノチューブ内で消尽されるか又は実質的に消尽される。例えば、本明細書で説明される組成は、ある場合では、質量で、1以上の所定の又は予め選択されたキラリティーを有するSWCNTの50%未満、40%未満、30%未満、15%未満、10%未満、5%未満、1%未満、又は0.01%未満を占め又は含むことができる。サンプルが消尽され得る1以上の所定の又は予め選択されたキラリティーを有するナノチューブは、(10、3)、(9、4)、(8、6)、(12、1)、(11、3)、(8、7)、(10、5)、(9、7)、(13、2)、(12、4)、(11、4)、(10、6)、(9、8)、(11、6)、(14、1)、(13、3)、(12、5)、(11、7)、(10、8)、(15、1)、(14、3)、(13、5)、(10、9)、(12、7)、(16、2)、(15、4)、(15、2)、(14、4)、(13、6)、(12、8)、(11、9)、(14、6)、(17、1)、(16、3)、(15、5)、(14、7)、(11、10)、(13、8)、及び(13、9)から成るグループから選択された(n、m)値を有するナノチューブから選択され得る。

#### 【0013】

これらの及び他の実施態様は、以下の詳細な説明でより詳細に説明される。

#### 【図面の簡単な説明】

#### 【0014】

【図1】単層カーボンナノチューブのフォトルミネッセンスマップを示す。

【図2A】温度の関数としてカーボンナノチューブシード成長及び非成長様式のチャートを示す。

【図2B】温度の関数としてカーボンナノチューブ安定及び劣化様式のチャートを示す。

【図3A】本明細書で説明される方法のある実施態様での使用に対して適切な装置の概略表現を示す。

【図3B】本明細書で説明される方法のある実施態様での使用に対して適切な装置の概略表現を示す。

#### 【発明を実施するための形態】

## 【 0 0 1 5 】

本明細書で説明される実施態様は、以下の詳細な説明、実施例、及び図面を参照することによって、より容易に理解することができる。しかしながら、本明細書で説明される要素、装置、及び方法は、詳細な説明、実施例、及び図面で示される特定の実施態様に限定されない。これらの実施態様は、本開示の原理の単なる例示であることが、理解されるべきである。当業者であれば、本発明の実施形態の範囲及び精神から逸脱することなく、多数の修正及び変更を容易に理解することができるだろう。

## 【 0 0 1 6 】

更に、本開示で説明される全ての範囲は、それに含まれるありとあらゆる部分的範囲を包含することが、理解されるべきである。例えば、「1.0 から 10.0 まで」という範囲の記載は、最小値の 1.0 以上から始まり、最大値の 10.0 以下で終わるありとあらゆる部分的範囲、例えば、1.0 から 5.3 まで、又は 4.7 から 10.0 まで、又は 3.6 から 7.9 までを含むものと考えられるべきである。

10

## 【 0 0 1 7 】

本明細書で開示された全ての範囲は、明確に記載されていなければ、範囲の端点をもた含むものと考えられるべきである。例えば、「5 及び 10 の間」という範囲は、概して、端点 5 及び 10 を含むものと考えられるべきである。

## 【 0 0 1 8 】

更に、「～まで」というフレーズが額又は量との関連で使用される場合に、その量は少なくとも検出可能な額又は量であることが理解されるべきである。例えば、特定の量「までの」量で存在する材料は、検出可能な量から特定の量を含むその特定の量までの量で存在し得る。

20

## 【 0 0 1 9 】

I. 半導体性単層カーボンナノチューブを製造する方法

## A. 概論

1つの側面では、半導体性単層カーボンナノチューブ (SWCNT) を製造する方法が、本明細書で説明される。ある実施態様では、半導体性 SWCNT を製造する方法が、(n, m) ナノチューブシード及び非 (n, m) ナノチューブシードを含む複数の半導体性ナノチューブシードを形成し又は提供することを含む。本明細書で参照する目的において、「(n, m) ナノチューブ」又は「(n, m) ナノチューブシード」は、それぞれ、n 及び m に対して所定の又は予め選択された整数値を有する半導体性ナノチューブ又は半導体性ナノチューブシードである。更に、(n, m) ナノチューブは、それぞれ、n 及び m の同じ値を有する (n, m) ナノチューブシードから形成されたナノチューブであり得る。したがって、本明細書で使用されるように、「(n, m) ナノチューブ」又は「(n, m) ナノチューブシード」という用語は、(n, m) 値の特定のセットを特定することが企図されるが、特定の (n, m) 値は任意の望ましい半導体性 SWCNT 又は SWCNT シードに対応することが、理解されるべきである。同様に、本明細書で参照する目的において、「非 (n, m) ナノチューブ」又は「非 (n, m) ナノチューブシード」は、n 又は m のうちの少なくとも1つの整数値が、(n, m) ナノチューブ又は (n, m) ナノチューブシードに対応するように選択された n 及び m の整数値とは異なる、(n, m) キラリティーを有するナノチューブ又はナノチューブシードである。

30

40

## 【 0 0 2 0 】

更に、本開示の目的と矛盾しない任意のナノチューブシードが使用され得る。例えば、ナノチューブシードは、半導体性 SWCNT がその上に又はそこから形成され得るところのグラフェンの又は管状のフラレン構造を有する分子又は粒子などの、分子又は粒子を含む炭化水素を備え又は含み得る。ある実施態様では、例えば、ナノチューブシードは、約 20 : 1 以下、約 15 : 1 以下、又は約 10 : 1 以下のアスペクト比を有する管状又はオブラートフラレンナノ粒子であり得る。更に、ナノチューブシードは、約 20 nm 以下、約 15 nm 以下、又は約 10 nm 以下の長さを有する管状フラレンナノ粒子であり得る。更に、ある場合では、ナノチューブシードは、SWCNT がそこから形成され得る

50



ところのテンプレート又はシード分子を含み又はそれらから成り得る。そのようなシード又はテンプレート分子は、Sanchez Valencianaの「Controlled synthesis of single chirality carbon nanotubes」ネイチャー512(2014)、61~64によって提供された説明と一貫したやり方で、提供され又は形成され得る。より一般的には、複数のナノチューブシードが、本開示の目的と矛盾しない任意の装置を使用して、及び/又は本開示の目的と矛盾しない任意の手段若しくは方法によって形成され得る。例えば、ある実施態様では、複数の半導体性ナノチューブシードが、触媒支援型化学気相堆積(CVD)、高圧一酸化炭素ガス分解、アーク放電、レーザー切断、及び直接噴射熱分解合成から成るグループから選択された少なくとも1つの技術から形成される。

10

#### 【0021】

本明細書で説明される方法は、第1の波長を有する第1のレーザービーム及び第1の波長とは異なる第2の波長を有する第2のレーザービームで、複数のナノチューブシードを発光させることを更に含む。ある実施態様では、レーザービームの波長が、望ましい及び/又は予め選択された若しくは所定のカーボンナノチューブの1以上の光学的特性に対応して選択される。例えば、ある実施態様では、第1の波長が、(n、m)カーボンナノチューブの吸収極大に対応する。更に、ある実施態様では、第2の波長が、フォトルミネッセンス発光ピークなどの(n、m)カーボンナノチューブに対するフォトルミネッセンス発光周波数に対応する。理論的に限定することを意図しないが、そのような波長の使用は、カーボンナノチューブ又はナノチューブシード内の2以上のエネルギー状態の間の共鳴を生成し得ることが信じられている。例えば、共鳴は、吸収極大又はピークに対応するエネルギー状態と、カーボンナノチューブ又はカーボンナノチューブシードのフォトルミネッセンス発光ピークに対応するエネルギー状態との間で生成され得る。再び理論的に限定することを意図しないが、所定の又は予め選択された(n、m)カーボンナノチューブ又は(n、m)ナノチューブシードの選択的な加熱は、このやり方で達成され得ることが信じられている。

20

#### 【0022】

ある実施態様では、吸収極大及び/又はフォトルミネッセンス発光周波数が、フォトルミネッセンスマップから得られ又は決定され得る。図1は、本明細書で説明される方法のある実施態様での使用に対して適切であり得る1つのそのようなマップの一実施例を示す。ある実施態様では、本開示と一貫したフォトルミネッセンスマップが、Iakoubovskiiの「IR extended photoluminescence mapping of single wall and double wall carbon nanotubes」Journal of Physical Chemistry B100(2006)、17420~17424で議論されたものと一貫した方法で準備又は生成され得る。前述したことと一貫したフォトルミネッセンスマップでは、ナノチューブのフォトルミネッセンス波長に対する、所与のキラリティーを有するナノチューブの吸収極大に対する励起波長のプロットに対応するデータ点が提供される。図1では、特定のフォトルミネッセンス発光周波数及び吸収極大に関連付けられたn及びm値が、そのキラリティーに対する対応するデータ点の下に示されている。

30

40

#### 【0023】

更に、本明細書で以下に更に説明されるように、同時の又は連続的なやり方を含んで、2以上の(n、m)値を有するナノチューブを選択的に加熱することもまた可能である。複数の(n、m)カーボンナノチューブ又は(n、m)ナノチューブシードが選択的な成長及び/又は加熱に対して予め選択されるそのような実施態様では、種々の波長を有する更なるレーザービームが使用され得る。例えば、2つの(n、m)カーボンナノチューブ又は(n、m)ナノチューブシードが、発光のためのレーザービームの波長に対応するように予め選択されるイベントでは、第3の波長を有する第3のレーザービーム及び第3の波長とは異なる第4の波長を有する第4のレーザービームが使用され得る。ある実施態様では、第3の波長が、第2の(n、m)カーボンナノチューブに対する吸収極大に対応す

50

る。更に、ある場合では、第4の波長が、第2の $(n, m)$ カーボンナノチューブに対するフォトルミネッセンス発光周波数に対応する。更に、 $(n, m)$ 値の3以上の異なるセットを有するカーボンナノチューブを選択的に加熱することもまた可能である。例えば、3以上の $(n, m)$ ナノチューブ又は $(n, m)$ ナノチューブシードが予め選択される実施態様では、レーザービームの更なるペアが、各々の加えられた $(n, m)$ ナノチューブ又は $(n, m)$ ナノチューブシードに対して使用され得る。そのような実施態様では、更なるレーザービームの各々の個別の波長が、望ましい又は予め選択された $(n, m)$ カーボンナノチューブの吸収極大又はフォトルミネッセンス発光周波数に対応し得る。記述されていなければ、 $2 \times$ のレーザービームが使用され得、ここで、 $x$ は予め選択されたキラリティーの数に対する整数値を表す。

10

#### 【0024】

本明細書で説明される方法によるカーボンナノチューブ及び/又はカーボンナノチューブシードを発光させるために使用されるレーザービームは、任意のタイプのレーザービームを含み得、本開示の目的と矛盾しない任意の出力及び線幅を有し得る。例えば、ある場合では、レーザービームは、約1から $10 \text{ W/mm}^2$ まで、約1から $8 \text{ W/mm}^2$ まで、約1から $5 \text{ W/mm}^2$ まで、約1から $4 \text{ W/mm}^2$ まで、約2から $8 \text{ W/mm}^2$ まで、又は約2から $5 \text{ W/mm}^2$ までの出力を有する。更に、ある実施態様では、本明細書で説明されるレーザービームが、約 $10 \text{ nm}$ 以下、約 $5 \text{ nm}$ 以下、又は約 $1 \text{ nm}$ 以下の半値全幅(FWHM)を有する連続波(CW)又はパルス状レーザービームを含む。更に、本明細書で説明されるレーザービームの平均波長は、本明細書で上述されたカーボンナノチューブ又はカーボンナノチューブシードの光学的特徴に正確に対応するかもしれないし又は対応しないかもしれない。例えば、ある場合では、カーボンナノチューブの吸収極大に対応するように選択されたレーザービームの平均波長が、吸収極大の約 $5 \text{ nm}$ 内、約 $10 \text{ nm}$ 内、又は約 $20 \text{ nm}$ 内であり得る。

20

#### 【0025】

本明細書のセクションI.B.及びI.C.で以下に更に説明されるように、本明細書で説明される方法は、1以上の望ましい又は予め選択されたキラリティーのカーボンナノチューブ内で選択的に濃縮又は選択的に消尽される、カーボンナノチューブの集団を製造するために使用され得る。

#### 【0026】

B. $(n, m)$ ナノチューブで選択的に濃縮される半導体性SWCNTの集団を製造する方法

30

ある場合では、本明細書で説明される方法が、 $(n, m)$ ナノチューブで選択的に濃縮される半導体性SWCNTの集団を製造するために使用され得る。ある実施態様では、そのような方法が、上述のセクションI.A.で説明された $(n, m)$ ナノチューブシードから複数の $(n, m)$ カーボンナノチューブを形成することを含む。 $(n, m)$ カーボンナノチューブの形成は、本開示の目的と矛盾しない任意の方法によって又は任意の装置を利用して実行され得る。例えば、ある実施態様では、複数の $(n, m)$ カーボンナノチューブを形成することは、 $(n, m)$ ナノチューブシードを、カーボンナノチューブ成長様式へと選択的に加熱することによって実行される。図2Aは、温度の関数としてカーボンナノチューブシード成長及び非成長様式のチャートを示す。図2Aと一貫して、ある実施態様では、カーボンナノチューブ成長様式は、下側成長閾値温度( $T_1$ )以上かつ上側成長閾値温度( $T_2$ )以下の温度を含み又はそれらから成る。下側成長閾値温度( $T_1$ )は、それ以上で(実験条件の所与のセットに対して)カーボンナノチューブ成長が生じ、又はそれ以上でカーボンナノチューブ成長が増加された速度で進行するところの温度であり得る。例えば、ある場合では、 $T_1$ 以上のカーボンナノチューブが、 $T_1$ 未満又は $T_2$ より上でのカーボンナノチューブの成長速度よりも、 $1000$ 倍まで速く、 $100$ 倍まで速く、 $50$ 倍まで速く、 $20$ 倍まで速く、 $10$ 倍まで速く、又は $5$ 倍まで速く成長し得る。したがって、 $T_1$ 未満では、カーボンナノチューブ成長が、グラフェンの材料が「非成長」又は低減された成長様式内にあるように、実質的に低減され又は除外され得る。上側成

40

50

長閾値温度 ( $T_2$ ) は、それ以上でカーボンナノチューブが欠陥を形成し又は(再び、実験条件の所与のセットに対して)ナノチューブへと成長しないところの温度であり得る。例えば、ある場合では、( $n$ 、 $m$ )カーボンナノチューブシードの100%まで、90%まで、80%まで、70%まで、60%まで、又は50%までが、 $T_2$ 以上の温度に晒された場合に、カーボンナノチューブへと成長しない。ある実施態様では、 $T_1$ は、摂氏約350度及び摂氏約450度の間、又は摂氏約550度及び摂氏約650度の間の温度であり得る。ある例では、 $T_2$ は、摂氏約500度及び摂氏約600度の間、又は摂氏約700度及び摂氏約800度の間の温度であり得る。しかしながら、当業者によって理解されるように、カーボンナノチューブ又はカーボンナノチューブシードの特定の集団が、特定の速度で成長し得る又はし得ない温度は、使用される実験条件に依存し得る。

10

#### 【0027】

本明細書で説明されるある実施態様では、( $n$ 、 $m$ )ナノチューブシードを選択的に加熱することは、少なくとも摂氏約40度だけ、少なくとも摂氏約50度だけ、又は少なくとも摂氏約60度だけ、( $n$ 、 $m$ )ナノチューブシードの温度を増加させることを含む。ある場合では、( $n$ 、 $m$ )ナノチューブシードの温度が、摂氏約40~150度だけ、摂氏約50~100度だけ、摂氏約50~90度だけ、又は摂氏約50~80度だけ増加される。更に、ある実施態様では、本明細書で説明されるやり方で( $n$ 、 $m$ )ナノチューブシードを選択的に加熱する前に、方法が、 $T_1$ などの上述した成長閾値温度未満へ( $n$ 、 $m$ )ナノチューブシードの温度を低減させることを含む。例えば、ある例では、( $n$ 、 $m$ )ナノチューブシード及び非( $n$ 、 $m$ )ナノチューブシードを含む複数の半導体性ナノチューブシードが形成され、続いて、( $n$ 、 $m$ )ナノチューブシードをカーボンナノチューブ成長様式などへと選択的に加熱する前に、( $n$ 、 $m$ )ナノチューブシード及び非( $n$ 、 $m$ )ナノチューブシードの温度が、成長閾値温度未満へ低減される。そのような実施態様では、例えば、方法を実行するために使用される反応室及び/又はシードガスが、( $n$ 、 $m$ )ナノチューブシードが成長様式へと選択的に加熱されるように、一方、非( $n$ 、 $m$ )ナノチューブシードがカーボンナノチューブ成長様式へと加熱されないように、下側成長閾値( $T_1$ )未満の温度で維持され得る。このやり方で選択的な加熱及び/又は成長を完了させるや否や、本明細書で説明される方法の特定の実施態様が、( $n$ 、 $m$ )カーボンナノチューブ及び非( $n$ 、 $m$ )ナノチューブシードを含む連続体をもたらし得る。例えば、ある場合では、連続体が、本方法で形成されるカーボンナノチューブの全質量に基づいて、質量で、少なくとも60%、少なくとも70%、少なくとも80%、少なくとも90%、少なくとも95%、又は少なくとも99%の( $n$ 、 $m$ )カーボンナノチューブを含む。

20

30

#### 【0028】

ある例では、本明細書で説明される方法によって、連続体を更に精製することもまた可能である。例えば、ある実施態様では、本明細書で説明される方法が、非( $n$ 、 $m$ )ナノチューブシードから( $n$ 、 $m$ )カーボンナノチューブを分離させる1以上のステップを実行することを更に含む。そのような分離は、本開示の目的と矛盾しない任意の手段、方法、又は装置によって実行され得る。例えば、ある実施態様では、分離が、Picconattoらの「Toward the Bulk, Chiral Separation of Carbon Nanotubes: Experimental Confirmation of Nanotube Substrate Registration Effects」Mitre(2008年9月)によって説明されるような、ナノチューブ基板レジストレーション効果(nanotube substrate registration effects)を利用して実行され得る。特定の他の実施態様では、分離が、Tanakaらの「From metal/semiconductor separation to single chirality separation of single wall carbon nanotubes using gel」Physica Status Solidi(RRL) Rapid Research Letters 5(2011)、301~306で説明されるような、ゲルクロマトグラフィーによって実行され得る。他の分離方法もまた使用され得る。

40

50

## 【 0 0 2 9 】

本明細書で説明されるように、本開示による方法は、 $(n, m)$  値の望ましいセットを有する SWCNT を選択的に成長させるために使用され得る。しかしながら、ある例では、非 $(n, m)$  ナノチューブシードの全てが非成長様式に限定される訳ではないという可能性がある。したがって、ある場合では、本明細書で説明される方法が、非 $(n, m)$  ナノチューブシードから複数の非 $(n, m)$  カーボンナノチューブを形成することを更に含む。そのような実施態様では、非 $(n, m)$  ナノチューブを消尽し、還元し、又は除去することが望ましいだろう。そのような例では、本明細書で説明される方法が、第3の波長を有する第3のレーザービーム及び第3の波長とは異なる第4の波長を有する第4のレーザービームで、複数のナノチューブシードを発光させることを更に含む。ある実施態様では、第3の波長は、非 $(n, m)$  カーボンナノチューブに対する吸収極大に対応し、第4の波長は、非 $(n, m)$  カーボンナノチューブに対するフォトルミネッセンス発光周波数に対応する。複数のナノチューブの発光のために利用される波長は、本開示の目的と矛盾しない任意の手段によって又は任意のやり方で選択され得る。例えば、波長は、複数のナノチューブシードの発光のための波長の選択に関する上述の開示と一貫して選択され得る。更に、非 $(n, m)$  カーボンナノチューブなどの特定のナノチューブを選択的に還元又は劣化させる目的で、複数のナノチューブを発光させるために、「第3のレーザービーム」及び「第4のレーザービーム」を利用することは、上で参照された「第3のレーザービーム」及び「第4のレーザービーム」を複数のナノチューブシードの発光において使用することとは区別されるべきであり、本開示の目的と矛盾しない任意の数のレーザービームが使用され得るということが、理解されるべきである。例えば、ある実施態様は、 $(n, m)$  値の2つの異なるセットを有するカーボンナノチューブを選択的に成長させるための  $y = 4$  などの  $y$  個のレーザービームで、ナノチューブシードを発光させることを含み得る。したがって、望ましくないカーボンナノチューブを選択的に劣化又は分解させるためにも、そのような方法は、全部で少なくとも  $y + 2$  個のレーザービームを使用することを含み得る。

## 【 0 0 3 0 】

したがって、ある実施態様では、複数の非 $(n, m)$  カーボンナノチューブの形成を含む方法は、非 $(n, m)$  カーボンナノチューブを、カーボンナノチューブ劣化様式へと選択的に加熱することを更に含み得る。図2Bは、温度の関数としてカーボンナノチューブの安定様式及び劣化様式を示す。図2Bは、これらの様式を分割する劣化閾値温度 ( $T_3$ ) をもまた示す。劣化閾値温度 ( $T_3$ ) は、(再び、実験条件の所与のセットに対して) それ以上でカーボンナノチューブが欠陥を形成し、劣化し、及び/又は分解するところの温度であり得る。例えば、ある場合では、5秒まで、10秒まで、30秒まで、1分まで、又は5分までを含んだ期間において、 $T_3$  以上の温度に晒された場合に、カーボンナノチューブの100%まで、90%まで、80%まで、70%まで、60%まで、又は50%までが分解し得る。それ故、安定様式は、カーボンナノチューブが実質的に欠陥、劣化、及び/又は分解から免れ得る (free) ところの  $T_3$  未満の温度である。例えば、ある場合では、カーボンナノチューブの約40%未満、約30%未満、約20%未満、約10%未満、又は約5%未満などの、カーボンナノチューブの50%未満が、 $T_3$  未満で欠陥を形成し、劣化し、及び/又は分解する。ある場合では、安定様式は、カーボンナノチューブ成長様式及び/又はカーボンナノチューブ非成長様式を含み得る。例えば、ある例では、安定様式は、図2Aから温度  $T_1$  及び  $T_2$  を含み得る。更に、ある実施態様では、 $T_3$  は、摂氏約400度及び摂氏約500度の間の温度であり得る。しかしながら、当業者によって理解されるように、カーボンナノチューブ又はカーボンナノチューブシードの特定の集団が欠陥を形成し、劣化し、及び/又は分解するところの温度は、使用される環境及び/又は実験条件に依存し得る。更に、ある実施態様では、環境又は実験条件が、カーボンナノチューブ劣化様式への選択的な加熱の前に、変更され得る。例えば、酸素がない又は実質的に酸素がない雰囲気内で成長が生じる実施態様では、劣化様式への選択的な加熱が、空気、又は比較的低い温度でのカーボンナノチューブの劣化につながる酸素若し

くは何らかの他の化学的に活性な雰囲気を含む雰囲気内で実行され得る。

【0031】

ある場合では、非(n、m)カーボンナノチューブを選択的に加熱することが、少なくとも摂氏約40度、少なくとも摂氏約50度、又は少なくとも摂氏約60度だけ、非(n、m)カーボンナノチューブの温度を増加させる。ある場合では、非(n、m)カーボンナノチューブの温度が、摂氏約40～150度、摂氏約50～100度、摂氏約50～90度、又は摂氏約50～80度だけ増加される。特定の場合では、非(n、m)カーボンナノチューブを選択的に加熱することが、非(n、m)カーボンナノチューブの実質的な一部分を劣化又は分解させるために実行され得る。非(n、m)カーボンナノチューブの実質的な一部分の還元は、非(n、m)カーボンナノチューブの質量の少なくとも50%、非(n、m)カーボンナノチューブの質量の少なくとも60%、又は非(n、m)カーボンナノチューブの質量の少なくとも75%の劣化又は分解を備え又は含み得る。ある例では、非(n、m)カーボンナノチューブの質量の約50～100%、約50～99%、約50～90%、約60～95%、約60～90%、約60～80%、約70～99%、約70～90%、約80～99%、又は約90～100%が、劣化又は分解される。更に、非(n、m)カーボンナノチューブの選択的な加熱は、任意の数の所定の又は予め選択された非(n、m)キラリティーを有するカーボンナノチューブを還元又は消尽させるために実行され得、そのような還元又は消尽は、更なるレーザービームを利用することによって、及び/又は所定の若しくは予め選択された数の非(n、m)キラリティーを有するカーボンナノチューブの選択的な加熱によって実行され得ることが、理解されるべきである。

10

20

【0032】

ある実施態様では、本明細書で説明される方法が、したがって、高度に精製されたカーボンナノチューブの集団を提供し得る。しかしながら、ある場合では、更なる分離又は精製が望ましいだろう。それ故、ある例では、本明細書で説明される方法が、非(n、m)カーボンナノチューブ、非(n、m)カーボンナノチューブシード、及び/又は非(n、m)カーボンナノチューブの1以上の分解生成物から、(n、m)カーボンナノチューブを分離させることを含む。そのような分離は、本開示の目的と矛盾しない任意の方法によって又は任意の手段によって実行され得る。例えば、ある場合では、ゲル浸透クロマトグラフィー及び/又はナノチューブ基板レジストレーション効果が、非(n、m)カーボンナノチューブ、非(n、m)ナノチューブシード、及び/又は非(n、m)カーボンナノチューブの1以上の分解生成物から、(n、m)カーボンナノチューブを分離させるために使用され得る。

30

【0033】

C. (n、m)ナノチューブ内で選択的に消尽されたカーボンナノチューブの集団を製造する方法

代替的に、ある場合では、本明細書で説明される方法が、(n、m)ナノチューブ内で選択的に消尽された半導体性SWCNTの集団を製造するために使用され得る。ある実施態様では、そのような方法が、上述のセクションI. A. で説明された非(n、m)ナノチューブシードから複数の非(n、m)カーボンナノチューブを形成することを含む。非(n、m)カーボンナノチューブの形成は、本開示の目的と矛盾しない任意の方法によって、又は任意の装置を利用して実行され得る。例えば、ある実施態様では、非(n、m)ナノチューブシード及び/又はナノチューブが、カーボンナノチューブ成長様式内で加熱又は維持され得る。更に、カーボンナノチューブの選択的に消尽された集団を提供するために、方法は、セクションI. A. で説明された(n、m)ナノチューブシードを、上側成長閾値温度より高い温度まで加熱し、カーボンナノチューブ非成長様式へと選択的に加熱することを含み得る。このやり方では、(n、m)ナノチューブ内で選択的に消尽された半導体性SWCNTの集団が得られ得る。ある実施態様では、(n、m)カーボンナノチューブシードを非成長様式へと選択的に加熱することが、非(n、m)ナノチューブシードを成長様式へと加熱することと同時に生じる。特定の他の実施態様では、そのような

40

50

選択的な加熱が、非 (n、m) ナノチューブシードを成長様式へと加熱した後で又は加熱する前に生じ得る。図 2 A は、温度の関数としてカーボンナノチューブシード成長及び非成長様式のチャートを示す。上述されたように、上側成長閾値温度 (T<sub>2</sub>) は、それ以上で (再び、実験条件の所与のセットに対して) カーボンナノチューブが欠陥を形成し又はナノチューブへと成長しないところの温度であり得る。例えば、ある場合では、(n、m) カーボンナノチューブシードの 100% まで、90% まで、80% まで、70% まで、60% まで、又は 50% までが、T<sub>2</sub> 以上の温度に晒された場合に、カーボンナノチューブへと成長しない。ある例では、T<sub>2</sub> は、摂氏約 500 度及び摂氏約 600 度の間、又は摂氏約 700 度及び摂氏約 800 度の間の温度であり得る。しかしながら、当業者によって理解されるように、カーボンナノチューブ又はカーボンナノチューブシードの特定の集団が、特定の速度で成長し得る又はし得ない温度は、使用される実験条件に依存し得る。

10

#### 【0034】

このやり方で選択的な加熱及び/又は成長を完了させるや否や、本明細書で説明される方法の特定の実施態様が、非 (n、m) カーボンナノチューブ及び (n、m) ナノチューブシードを含む連続体をもたらし得る。例えば、ある場合では、連続体が、本方法で形成されるカーボンナノチューブ又はグラフェンの材料の全質量に基づいて、質量で、少なくとも 60%、少なくとも 70%、少なくとも 80%、少なくとも 90%、少なくとも 95%、又は少なくとも 99% の非 (n、m) カーボンナノチューブを含む。

#### 【0035】

ある例では、本明細書で説明される方法によって、連続体を更に精製することもまた可能である。例えば、ある実施態様では、本明細書で説明される方法が、(n、m) ナノチューブシードから非 (n、m) カーボンナノチューブを分離させる 1 以上のステップを実行することを更に含む。そのような分離は、本開示の目的と矛盾しない任意の手段、方法、又は装置によって実行され得る。例えば、ある実施態様では、分離が、ナノチューブ基板レジストレーション効果及び/又はゲルクロマトグラフィーなどの、セクション I . B . の上述の説明と一貫して実行され得る。

20

#### 【0036】

本明細書で説明されるように、本開示による方法は、(n、m) 値の望ましいセットを有するナノチューブ内で消尽された SWCNT の集団を選択的に成長させるために使用され得る。しかしながら、ある例では、(n、m) ナノチューブシードの全てが非成長様式に限定される訳ではないという可能性がある。したがって、ある場合では、本明細書で説明される方法が、(n、m) ナノチューブシードから複数の (n、m) カーボンナノチューブを形成することを更に含む。そのような実施態様では、(n、m) ナノチューブを消尽し、還元し、又は除去することが望ましいだろう。そのような例では、本明細書で説明される方法が、(n、m) カーボンナノチューブを、上述のセクション I . B . の劣化様式の前述の説明と一貫したカーボンナノチューブ劣化様式へと選択的に加熱することを更に含む。ある場合では、(n、m) カーボンナノチューブを選択的に加熱することが、少なくとも摂氏約 40 度、少なくとも摂氏約 50 度、又は少なくとも摂氏約 60 度だけ、(n、m) カーボンナノチューブの温度を増加させる。ある例では、(n、m) カーボンナノチューブの温度が、摂氏約 40 ~ 150 度、摂氏約 50 ~ 100 度、摂氏約 50 ~ 90 度、又は摂氏約 50 ~ 80 度だけ増加される。特定の場合では、(n、m) カーボンナノチューブを選択的に加熱することが、(n、m) カーボンナノチューブの実質的な一部分を劣化又は分解させるために実行され得る。(n、m) カーボンナノチューブの実質的な一部分の還元は、(n、m) カーボンナノチューブの質量の少なくとも 50%、(n、m) カーボンナノチューブの質量の少なくとも 60%、又は (n、m) カーボンナノチューブの質量の少なくとも 75% の劣化又は分解を占め又は含み得る。ある例では、(n、m) カーボンナノチューブの質量の約 50 ~ 100%、約 50 ~ 99%、約 50 ~ 90%、約 60 ~ 95%、約 60 ~ 90%、約 60 ~ 80%、約 70 ~ 99%、約 70 ~ 90%、約 80 ~ 99%、又は約 90 ~ 100% が、劣化又は分解される。更に、(n、m) カーボンナノチューブの選択的な加熱は、任意の数の所定の又は予め選択された (n、m) キ

30

40

50

ラリティーを有するカーボンナノチューブを還元又は消尽させるために実行され得、そのような還元又は消尽は、更なるレーザービームを利用することによって、及び/又は所定の若しくは予め選択された数の(n、m)キラリティーを有するカーボンナノチューブの選択的な加熱によって実行され得ることが、理解されるべきである。

#### 【0037】

ある実施態様では、本明細書で説明される方法が、したがって、高度に精製されたカーボンナノチューブの集団を提供し得る。しかしながら、ある場合では、更なる分離又は精製が望ましいだろう。それ故、ある例では、本明細書で説明される方法が、(n、m)カーボンナノチューブ、(n、m)ナノチューブシード、及び/又は(n、m)カーボンナノチューブの1以上の分解生成物から、非(n、m)カーボンナノチューブを分離させることを含む。そのような分離は、本開示の目的と矛盾しない任意の方法によって又は任意の手段によって実行され得る。例えば、ある場合では、ゲル浸透クロマトグラフィー及び/又はナノチューブ基板レジストレーション効果が、(n、m)カーボンナノチューブ、(n、m)ナノチューブシード、及び/又は(n、m)カーボンナノチューブの1以上の分解生成物から、非(n、m)カーボンナノチューブを分離させるために使用され得る。

#### 【0038】

##### D．半導体性SWCNTを製造する方法で使用可能な装置

本明細書で説明される半導体性及び/又はフォトルミネッセンスSWCNTを製造する方法は、本開示の目的と矛盾しない任意の装置を使用して実行され得る。そのような方法で使用可能な装置の2つの非限定的な実施例が、図3A及び図3Bで概略的に示されている。図3A及び図3Bを参照すると、装置(100)は、SWCNTが形成され得る、反応槽、反応室、又は石英管などの反応管(102)を備える。当業者によって理解されるように、反応槽(102)は、1以上のシードガス、反応ガス、及び/又は搬送ガスが、槽(102)の一方の端部から槽(102)の他方の端部へ流され得るように適合され又は配置され得る。例えば、シードガス又は反応ガス(112)は、反応槽(102)を通過して流され得る。シードガス又は反応ガス(112)は、本開示の目的と矛盾しない任意の材料又は物質を含み又はそれらから成り得る。例えば、シードガス又は反応ガス(112)は、1以上の炭化水素ガス、及び/又は触媒材料を含み又はそれらから成り得る。一旦、反応槽(102)を通過して流されると、搬送ガス及び/又は任意の残余の未反応若しくは未消費ガス若しくは材料を含んだ排気ガス(114)が、反応槽(102)を出て行き得る、

#### 【0039】

更に、反応槽(102)は、銅管又は加熱炉などの1以上の加熱要素(104)によって、取り囲まれ又は実質的に封じられ得る。加熱要素は、シードガス(112)及び/又は反応槽(102)の望ましい温度を達成し又は維持するために使用され得る。本明細書で上述されたように、望ましい温度でシードガス(112)を供給することによって、反応槽(102)及び/又は反応槽(102)内の1以上の材料の温度を少なくとも部分的に制御することもまた可能である。

#### 【0040】

更に、1以上の窓(105)が、槽(102)内に提供され得、槽(102)の内装に光が入ることを許容する。図3A及び図3Bで示されるように、反応槽(102)は2つの窓(105)を含む。しかしながら、他の数の窓もまた使用され得る。更に、窓(105)は、(ガラスなどの)光学的に透明な材料によって、又は加熱要素(104)内のギャップによって形成され得るが、条件として、窓(105)は、複数のレーザー(108、110)によって生み出される複数のレーザービーム(109、111)などの、望ましい波長の光が反応槽(102)の内装へ送信されることを許容する。更に、図3A及び図3Bで示されるように、窓(105)は、反応槽(102)内に配置されたサンプル基板(106)の発光を可能にするように配置される。サンプル基板(106)は、本開示の目的と矛盾しない任意の材料から形成され得る。例えば、ある実施態様では、サンプル基板(106)は、触媒材料を含み又は触媒材料から形成される。

## 【0041】

図3Aで示される実施態様では、そこに配置された複数のナノチューブシード又はナノチューブを有し得るサンプル基板(106)が、第1のレーザー(108)によって放出された第1のレーザービーム(109)、及び第2のレーザー(110)によって放出された第2のレーザービーム(111)によって発光され得る。図3Bによって示される実施態様では、サンプル基板(106)が、第1のレーザー(108a)によって放出された第1のレーザービーム(109a)、第2のレーザー(110a)によって放出された第2のレーザービーム(111a)、第3のレーザー(108b)によって放出された第3のレーザービーム(109b)、及び第4のレーザー(110b)によって放出された第4のレーザービーム(111b)によって発光され得る。他の装置もまた、本明細書で説明される方法を実行するために使用され得る。

10

## 【0042】

## II. 半導体性SWCNTの集団を精製する方法

別の一側面では、カーボンナノチューブの集団を精製する方法が、本明細書で説明される。ある実施態様では、本明細書で説明される方法が、(n、m)カーボンナノチューブ及び非(n、m)カーボンナノチューブを含む、半導体性又はフォトルミネッセンスSWCNTの集団などの、カーボンナノチューブの集団を提供することを含む。本方法は、第1の波長を有する第1のレーザービーム及び第1の波長とは異なる第2の波長を有する第2のレーザービームで、カーボンナノチューブの集団を発光させることを更に含む。第1の波長は、(n、m)カーボンナノチューブの吸収極大に対応し、第2の波長は、(n、m)カーボンナノチューブのフォトルミネッセンス発光周波数に対応する。更に、ある場合では、カーボンナノチューブの集団を精製する方法が、(n、m)カーボンナノチューブを、カーボンナノチューブ劣化様式へと選択的に加熱することを更に含む。そのような実施態様では、非(n、m)カーボンナノチューブは、カーボンナノチューブ劣化様式へと加熱されない。更に、ある場合では、本明細書で説明されるカーボンナノチューブの集団を精製する方法が、(n、m)カーボンナノチューブの全重量に基づいて、質量で、存在する(n、m)カーボンナノチューブの少なくとも約50%、少なくとも約60%、又は少なくとも約75%を、劣化又は分解させる。ある例では、本明細書で説明される方法が、(n、m)カーボンナノチューブの質量の約50~100%、約50~99%、約50~90%、約60~95%、約60~90%、約60~80%、約70~99%、約70~90%、約80~99%、又は約90~100%を、劣化又は分解させる。

20

30

## 【0043】

今度は本明細書で説明される方法の特定のステップに戻ると、半導体性又はフォトルミネッセンスSWCNTなどのカーボンナノチューブの集団を精製することは、カーボンナノチューブの集団を提供することを含む。カーボンナノチューブの集団は、本開示の目的と矛盾しない任意の手段又は任意の方法によって提供され又は形成され得る。例えば、ある実施態様では、カーボンナノチューブの集団が、本明細書で上述したセクションIで説明された方法によって提供され又は形成される。更に、ある場合では、カーボンナノチューブの集団が、触媒支援型化学気相堆積(CVD)、高圧一酸化炭素ガス分解、アーク放電、レーザー切断、及び直接噴射熱分解合成から成るグループから選択された少なくとも1つの方法から提供され又は形成され得る。

40

## 【0044】

本明細書で説明される方法は、第1の波長を有する第1のレーザービーム及び第2の波長を有する第2のレーザービームで、カーボンナノチューブの集団を発光させることもまた含み、第1の波長は(n、m)カーボンナノチューブの吸収極大に対応し、第2の波長は(n、m)カーボンナノチューブのフォトルミネッセンス発光周波数に対応する。吸収極大、及び/又はピーク発光周波数などのフォトルミネッセンス発光周波数は、本開示の目的と矛盾しない任意の手段によって選択され又は決定され得る。例えば、ある実施態様では、本明細書のセクションIで上述したフォトルミネッセンスマップが使用され得る。更に、本明細書のセクションIで上述したように、複数の(n、m)カーボンナノチュー

50



ブが、本明細書で説明される方法にしたがって、カーボンナノチューブの集団から選択的に消尽され得る。そのような例では、種々の波長を有する更なるレーザービームが、カーボンナノチューブの集団を発光させるために使用され得る。例えば、 $(n, m)$  値の異なるセットを有する2つのタイプの $(n, m)$  カーボンナノチューブが消尽のために予め選択されるイベントでは、第3の波長を有する第3のレーザービーム及び第3の波長とは異なる第4の波長を有する第4のレーザービームもまた使用され得る。第3の波長は、第2の $(n, m)$  カーボンナノチューブに対する吸収極大に対応し、第4の波長は、第2の $(n, m)$  カーボンナノチューブに対するフォトルミネッセンス発光周波数に対応する。更に、同じ原理が、3以上の異なるタイプの $(n, m)$  カーボンナノチューブのカーボンナノチューブの集団を選択的に消尽させるために使用され得る。概して、 $x$  個の異なるタイプの $(n, m)$  カーボンナノチューブのカーボンナノチューブの集団を選択的に消尽させるために、上述されたやり方で選択された波長を有するレーザービームの $x$  個のペアが使用され得る。

10

#### 【0045】

更に、本明細書で説明される方法は、 $(n, m)$  カーボンナノチューブを、カーボンナノチューブ劣化様式へと選択的に加熱することを更に含み得る。再び理論的に限定することを意図せずに、本明細書のセクションIで説明されたように、そのような加熱は、予め選択されたカーボンナノチューブのエネルギー状態の間で共鳴を生成することによって達成され得ることが信じられている。更に、ある場合では、 $(n, m)$  カーボンナノチューブは、少なくとも摂氏約40度、少なくとも摂氏約50度、又は少なくとも摂氏約60度だけ、 $(n, m)$  カーボンナノチューブの温度を増加させるように選択的に加熱される。ある場合では、 $(n, m)$  カーボンナノチューブの温度は、摂氏約40~150度、摂氏約50~100度、摂氏約50~90度、又は摂氏約50~80度だけ増加される。更に、 $(n, m)$  カーボンナノチューブを選択的に加熱することが、非 $(n, m)$  カーボンナノチューブをカーボンナノチューブ劣化様式へと加熱するようなやり方で実行され得る。そのような場合では、非 $(n, m)$  カーボンナノチューブによって吸収され又は非 $(n, m)$  カーボンナノチューブに適用される任意の残余熱が、非 $(n, m)$  カーボンナノチューブをカーボンナノチューブ劣化様式へと温度上昇させるために不十分であるべきである。例えば、非 $(n, m)$  カーボンナノチューブは、摂氏50度未満の温度増加を呈し得る。

20

30

#### 【0046】

本明細書で上述されたように、カーボンナノチューブの集団を精製する方法は、1以上の予め選択された $(n, m)$  値を有するナノチューブ内で高度に消尽されるカーボンナノチューブの集団を提供し得る。しかしながら、更なる精製又は分離が望ましいイベントでは、本明細書で説明される方法が、選択的な加熱の後で、存在し得る非 $(n, m)$  カーボンナノチューブなどのカーボンナノチューブの集団の残りから、残余の $(n, m)$  カーボンナノチューブを分離させることを更に含み得る。そのような分離は、本明細書のセクションIで上述された方法などの、本開示の目的と矛盾しない任意の手段又は任意の方法によって実行され得る。

#### 【0047】

更に、半導体性SWCNTなどのカーボンナノチューブの集団を精製する方法は、本開示の目的と矛盾しない任意の装置内で又は任意の装置を利用して実行され得る。例えば、本明細書のセクションIで説明された装置が使用され得る。

40

#### 【0048】

##### III. 組成

別の一側面では、組成が本明細書で説明される。ある場合では、本明細書で説明される組成が、本明細書のセクションI及び/又はセクションIIで説明された方法によって製造され得る。それ故、ある実施態様では、本明細書で説明される組成が、1以上の所定の又は予め選択されたキラリティーを有する半導体性SWCNT内で濃縮されるか又は実質的に濃縮される。例えば、ある場合では、本明細書で説明される組成が、1以上の所定の

50

又は予め選択されたキラリティーを有する半導体性SWCNTの質量の少なくとも90%、少なくとも95%、少なくとも99%、又は少なくとも99.9%を占め又は含むことができる。ある例では、組成は、1以上の所定の又は予め選択されたキラリティーを有する半導体性SWCNTの質量の約50~100%、約50~90%、約60~100%、約60~99%、約60~90%、約70~100%、約70~99%、約70~90%、約75~100%、約75~95%、約80~100%、約80~99%、約80~90%、約90~100%、又は約90~99%を占め又は含む。サンプルが濃縮され得る1以上の所定の又は予め選択されたキラリティーを有するナノチューブは、(10、3)、(9、4)、(8、6)、(12、1)、(11、3)、(8、7)、(10、5)、(9、7)、(13、2)、(12、4)、(11、4)、(10、6)、(9、8)、(11、6)、(14、1)、(13、3)、(12、5)、(11、7)、(10、8)、(15、1)、(14、3)、(13、5)、(10、9)、(12、7)、(16、2)、(15、4)、(15、2)、(14、4)、(13、6)、(12、8)、(11、9)、(14、6)、(17、1)、(16、3)、(15、5)、(14、7)、(11、10)、(13、8)、及び(13、9)から成るグループから選択された(n、m)値を有するナノチューブから選択され得る。更に、ある例では、組成が、本明細書のセクションIで更に説明されたように、上述の(n、m)値のうちの1以上を有するナノチューブ内で濃縮され得る。本明細書で説明される組成は、したがって、予め選択された(n、m)値を有するカーボンナノチューブの多くのユニークな組成を含み得る。更に、そのような組成は、個別に製造されたカーボンナノチューブを組み合わせることによって提供されるのとは異なり、単一の反応槽又は反応室から導かれ得る。

#### 【0049】

加えて、他の実施態様では、本明細書で説明される組成が、1以上の所定の又は予め選択されたキラリティーを有するナノチューブ内で消尽されるか又は実質的に消尽され得る。例えば、ある場合では、本明細書で説明される組成が、1以上の所定の又は予め選択されたキラリティーを有するSWCNTの質量の50%未満、40%未満、30%未満、15%未満、10%未満、5%未満、1%未満、又は0.01%未満を占め又は含むことができる。サンプルが消尽され得る1以上の所定の又は予め選択されたキラリティーを有するナノチューブは、(10、3)、(9、4)、(8、6)、(12、1)、(11、3)、(8、7)、(10、5)、(9、7)、(13、2)、(12、4)、(11、4)、(10、6)、(9、8)、(11、6)、(14、1)、(13、3)、(12、5)、(11、7)、(10、8)、(15、1)、(14、3)、(13、5)、(10、9)、(12、7)、(16、2)、(15、4)、(15、2)、(14、4)、(13、6)、(12、8)、(11、9)、(14、6)、(17、1)、(16、3)、(15、5)、(14、7)、(11、10)、(13、8)、及び(13、9)から成るグループから選択された(n、m)値を有するナノチューブから選択され得る。更に、ある例では、本明細書のセクションI及びセクションIIで更に説明されたように、組成が、上述の(n、m)値のうちの1以上を有するナノチューブ内で消尽され得る。

#### 【0050】

更に、ある実施態様では、本明細書で説明される組成が、前述のナノチューブの1以上内で濃縮され又は実質的に濃縮され、前述のナノチューブの1以上内で消尽され又は実質的に消尽される。組成は、本開示の目的と矛盾しない任意の本明細書で説明されたカーボンナノチューブの任意の組み合わせで濃縮され又は消尽され得る。

#### 【0051】

加えて、本明細書で説明される組成は、本開示の目的と矛盾しない任意の手段、方法、又は装置によって形成され得る。例えば、ある実施態様では、本明細書で説明される濃縮され若しくは実質的に濃縮された及び/又は消尽され若しくは実質的に消尽された組成が、本明細書のセクションI及び/又はセクションIIで説明された方法によって、形成され又は提供され得る。

#### 【0052】

更に、本開示は、以下の条項による実施形態を含む。

【0053】

条項 1

半導体性単層カーボンナノチューブを製造する方法であって、(n、m)ナノチューブシード及び非(n、m)ナノチューブシードを含む複数の半導体性ナノチューブシードを、第1の波長を有する第1のレーザービーム及び前記第1の波長とは異なる第2の波長を有する第2のレーザービームで、発光させることを含み、前記第1の波長は(n、m)カーボンナノチューブの吸収極大に対応し、前記第2の波長は前記(n、m)カーボンナノチューブのフォトルミネッセンス発光周波数に対応する、方法。

【0054】

条項 2

前記(n、m)ナノチューブシードを、カーボンナノチューブ成長様式へと選択的に加熱することを更に含む、条項1に記載の方法。

【0055】

条項 3

前記非(n、m)ナノチューブシードは、カーボンナノチューブ成長様式へと加熱されない、条項1又は2に記載の方法。

【0056】

条項 4

前記(n、m)ナノチューブシードは、少なくとも摂氏50度だけ、前記(n、m)ナノチューブシードの温度を増加させるように選択的に加熱される、条項1から3のいずれか一項に記載の方法。

【0057】

条項 5

前記(n、m)ナノチューブシードから複数の(n、m)カーボンナノチューブを形成することを更に含む、条項1から4のいずれか一項に記載の方法。

【0058】

条項 6

前記(n、m)カーボンナノチューブは、前記方法によって形成された前記カーボンナノチューブの質量の少なくとも90%を占める、条項1から5のいずれか一項に記載の方法。

【0059】

条項 7

前記(n、m)カーボンナノチューブは、前記方法によって形成された前記カーボンナノチューブの質量の少なくとも95%を占める、条項1から6のいずれか一項に記載の方法。

【0060】

条項 8

前記非(n、m)ナノチューブシードから前記(n、m)カーボンナノチューブを分離させることを更に含む、条項1から7のいずれか一項に記載の方法。

【0061】

条項 9

前記非(n、m)ナノチューブシードから複数の非(n、m)カーボンナノチューブを形成すること、前記複数のナノチューブを、第3の波長を有する第3のレーザービーム及び前記第3の波長とは異なる第4の波長を有する第4のレーザービームで、発光させること、並びに前記非(n、m)カーボンナノチューブを、カーボンナノチューブ劣化様式へと選択的に加熱することを更に含み、前記第3の波長は前記非(n、m)カーボンナノチューブの吸収極大に対応し、前記第4の波長は前記非(n、m)カーボンナノチューブのフォトルミネッセンス発光周波数に対応する、条項1から8のいずれか一項に記載の方法。

。

10

20

30

40

50

## 【 0 0 6 2 】

## 条項 1 0

前記非 (  $n$  、  $m$  ) カーボンナノチューブから、及び / 又は前記非 (  $n$  、  $m$  ) カーボンナノチューブの 1 以上の分解生成物から、前記 (  $n$  、  $m$  ) カーボンナノチューブを分離させることを更に含む、条項 1 から 9 のいずれか一項に記載の方法。

## 【 0 0 6 3 】

## 条項 1 1

半導体性単層カーボンナノチューブを製造する方法であって、(  $n$  、  $m$  ) ナノチューブシード及び非 (  $n$  、  $m$  ) ナノチューブシードを含む複数の半導体性ナノチューブシードを、第 1 の波長を有する第 1 のレーザービーム及び前記第 1 の波長とは異なる第 2 の波長を有する第 2 のレーザービームで、発光させること、並びに前記 (  $n$  、  $m$  ) ナノチューブシードを、上側成長閾値温度より高い温度に非成長様式へと選択的に加熱することを含み、前記第 1 の波長は (  $n$  、  $m$  ) カーボンナノチューブの吸収極大に対応し、前記第 2 の波長は前記 (  $n$  、  $m$  ) カーボンナノチューブのフォトルミネッセンス発光周波数に対応する、方法。

10

## 【 0 0 6 4 】

## 条項 1 2

前記非 (  $n$  、  $m$  ) ナノチューブシードは、前記上側成長閾値温度より高い温度へと加熱されない、条項 1 1 に記載の方法。

## 【 0 0 6 5 】

20

## 条項 1 3

前記非 (  $n$  、  $m$  ) ナノチューブシードから複数の非 (  $n$  、  $m$  ) カーボンナノチューブを形成することを更に含む、条項 1 1 又は 1 2 に記載の方法。

## 【 0 0 6 6 】

## 条項 1 4

カーボンナノチューブの集団を精製する方法であって、半導体性 (  $n$  、  $m$  ) カーボンナノチューブ及び非 (  $n$  、  $m$  ) カーボンナノチューブを含むカーボンナノチューブの集団を、第 1 の波長を有する第 1 のレーザービーム及び前記第 1 の波長とは異なる第 2 の波長を有する第 2 のレーザービームで、発光させることを含み、前記第 1 の波長は前記 (  $n$  、  $m$  ) カーボンナノチューブの吸収極大に対応し、前記第 2 の波長は前記 (  $n$  、  $m$  ) カーボンナノチューブのフォトルミネッセンス発光周波数に対応する、方法。

30

## 【 0 0 6 7 】

## 条項 1 5

前記 (  $n$  、  $m$  ) カーボンナノチューブを、カーボンナノチューブ劣化様式へと選択的に加熱することを更に含む、条項 1 4 に記載の方法。

## 【 0 0 6 8 】

## 条項 1 6

前記非 (  $n$  、  $m$  ) カーボンナノチューブは、カーボンナノチューブ劣化様式へと加熱されない、条項 1 4 又は 1 5 に記載の方法。

## 【 0 0 6 9 】

40

## 条項 1 7

前記 (  $n$  、  $m$  ) カーボンナノチューブは、少なくとも摂氏 5 0 度だけ、前記 (  $n$  、  $m$  ) カーボンナノチューブの温度を増加させるように選択的に加熱される、条項 1 4 から 1 6 のいずれか一項に記載の方法。

## 【 0 0 7 0 】

## 条項 1 8

前記 (  $n$  、  $m$  ) カーボンナノチューブの質量の少なくとも 6 0 % が、劣化され又は分解される、条項 1 4 から 1 7 のいずれか一項に記載の方法。

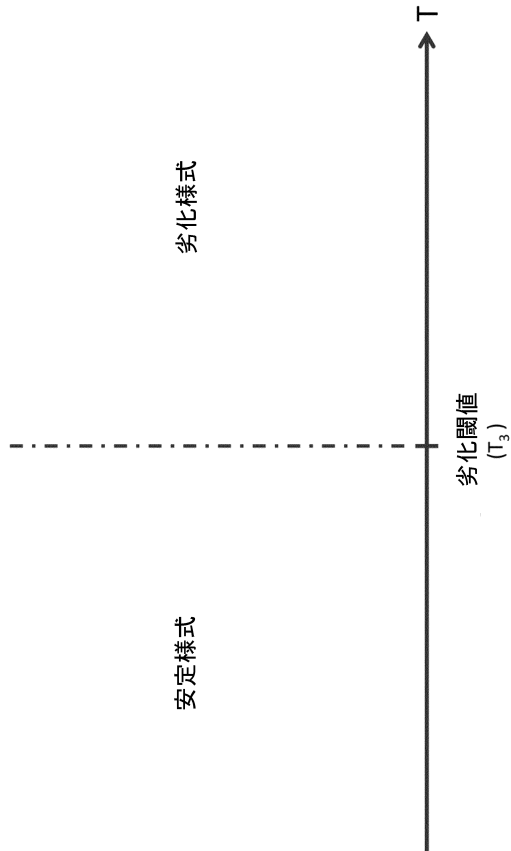
## 【 0 0 7 1 】

## 条項 1 9

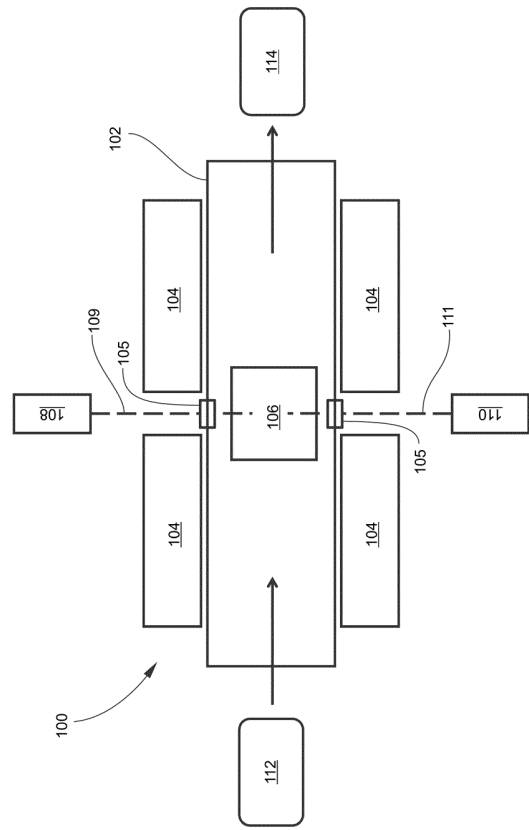
50



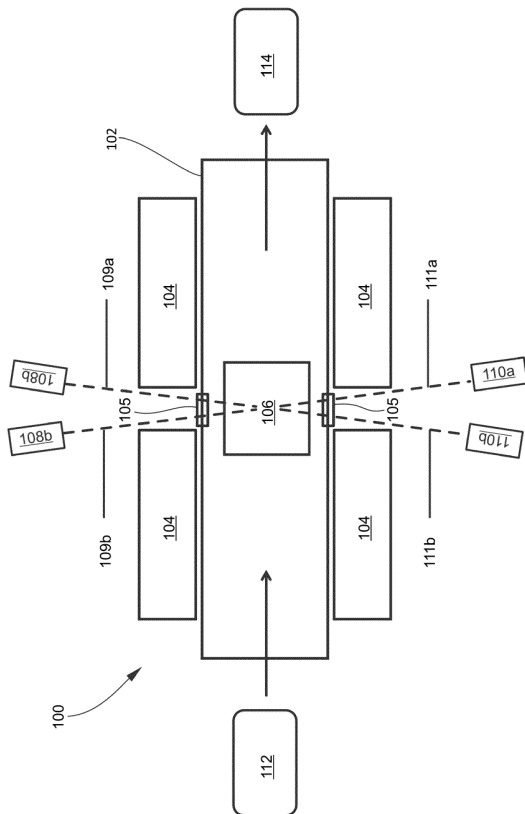
【図 2 B】



【図 3 A】



【図 3 B】



---

フロントページの続き

(56)参考文献 特開2010-275168(JP,A)  
国際公開第2006/025393(WO,A1)  
特開2007-031239(JP,A)  
特開2005-074557(JP,A)  
国際公開第2006/121155(WO,A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)  
C01B 32/00-32/991  
JSTPlus(JDreamIII)  
JST7580(JDreamIII)  
JSTChina(JDreamIII)