



AichiSR

アルミナ担持Fe触媒からの単層カーボンナノチューブ成長過程の その場 XAFS 測定

丸山 隆浩, 水野 慎也, 堀内 順平, 才田 隆広
名城大学

キーワード：カーボンナノチューブ, CVD, Fe 触媒

1. 背景と研究目的

単層カーボンナノチューブ (SWCNT) の電子状態は、その構造 (直径・カイラリティ) に依存するが、構造を完全に制御した選択成長はまだ実現していない。触媒粒子の状態が生成する SWCNT の構造決定に影響を与えると考えられているが、ナノサイズの触媒粒子の化学結合状態を決定するためには、SWCNT の成長中の、その場測定が不可欠である。これまで我々のグループでは BN 粉末に Co や Fe 触媒を担持し、触媒粒子から SWCNT が生成する過程の触媒の化学状態を、その場 XAFS 測定により調べてきた[1]。本研究では、Fe 触媒に対し、SWCNT 作製において触媒担持層として一般に用いられる、アルミナを担持層に用いた場合の SWCNT 成長に対し、その場 XAFS 測定を行い、SWCNT 成長中の Fe 触媒の化学状態を調べた。

2. 実験内容

硝酸 Fe を水に溶解したのち、アルミナスラリーと混合し、焼成・粉碎し、加圧により、その場 XAFS 測定用ペレットを作製した。この試料を、BL11S2 に設置した XAFS 測定用セル内に取り付け、2 Pa 以下の圧力までスクロールポンプで排気した。その後、Ar/H₂ ガスを導入し、セル温度を 800°C まで加熱した。800°C に到達後、エタノールガスを導入し、SWCNT 成長を行った。10 分間エタノールガスを供給したのち、供給を止め、Ar/H₂ ガス雰囲気下で降温した。昇温中、成長中、冷却中の各過程に対し、Fe K 吸収端の XAFS スペクトルを、Quick XAFS モードで、約 1 分間ごとに XAFS 測定を行った。

3. 結果および考察

図 1 にエタノール供給開始後の Fe 触媒に対して測定した Fe K 吸収端の XAFS スペクトルを示す。比較のため、種々の Fe 化合物のスペクトルも図中に示してある。エタノール供給前には吸収端の高エネルギー側に明瞭なホワイトラインピークがみられ、触媒が酸化していることがわかる。エタノール供給開始とともに、ホワイトラインピークの強度が減少し、また、プリエッジピークが現れた。これは、Fe 触媒の還元が進んでいることを示している。さらに、動径構造関数 (RSF) の解析から、SWCNT 成長中、Fe 触媒はほぼ炭化された状態となっていることがわかった。

4. 参考文献

[1] S. Karasawa et al. Chem. Phys. Lett. 804 (2022) 139889.

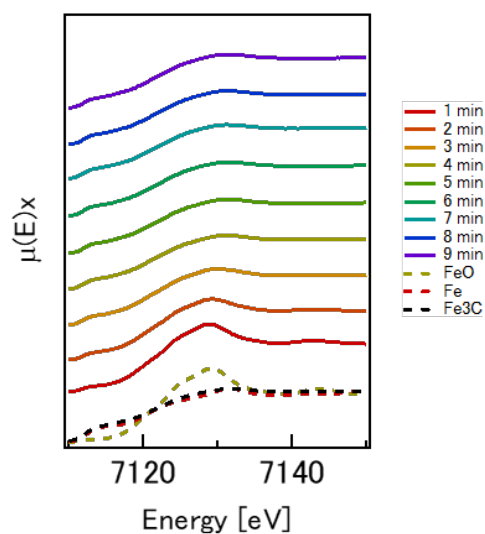


図 1 エタノール供給中の Fe/Al₂O₃ 触媒の Fe K 吸収端のその場 XAFS スペクトル。