



アルミナ担持 Co 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

AichiSR

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, Co 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エタノールを炭素源に用いた場合の Co や Fe 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, Co 触媒を用い, 担持材をアルミナとしてアセチレンを原料に用いた場合の SWCNT 成長に対し, その場 XAFS 測定を行い, SWCNT 成長中の Co 触媒の化学状態を調べた。

2. 実験内容

酢酸 Co を水に溶解したのち, アルミナスラリーと混合し, 焼成・粉砕し, 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/O₂ ガスを導入し, セル温度を 700°C まで加熱した。700°C に到達後, Ar で希釈したアセチレンガスを導入し, SWCNT 成長を行った。10 分間アセチレンガスを供給したのち, 供給を止め, Ar 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, Co 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 にアセチレン供給開始後 Co 触媒に対して測定した Co K 吸収端の XAFS スペクトルを示す。比較のため, 種々の Co 化合物のスペクトルも図中に示してある。アセチレン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。アセチレン供給開始とともに, 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, Co 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, Co 触媒の一部は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.

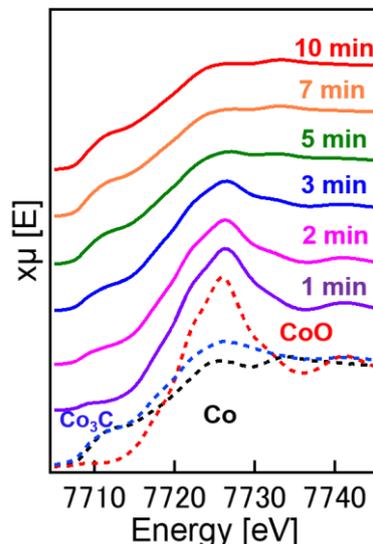


図 1 アセチレン供給中の Co/Al₂O₃ 触媒の Co K 吸収端のその場 XAFS スペクトル.