



担持量を調整した 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

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未だ実現していない。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]。しかし、成長温度で一部の触媒粒子の凝集が進み、SWCNT の生成量が不均一であるなどの問題があった。本研究では、触媒粒子の凝集を抑制するため、Co 触媒の担持量を従来よりも約 1/10 に減らした試料を用意し、その場 XAFS 測定を試みた。

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・粉碎し、加圧により、その場 XAFS 測定用ペレットを作製した。ただし、酢酸 Co のモル比を従来の 1/10 にした。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 700°C まで加熱した。700°C に到達後、エタノールガスを導入し、SWCNT 成長を行った。10 分後、ethanol の供給を止め、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 に昇温中の Co K 吸収端の XAFS スペクトルから得られた動径構造関数 (RSF) を示す。昇温前には Co-O の結合距離の位置に強いピークが現れ、Co 触媒が酸化していることがわかる。400°C 付近から Co-O のピーク強度が減少し、Co 触媒が還元している様子がみられた。また、エタノール供給直前の 700°C の状態では、かなり金属状態の成分が多くなっていった。Co の担持量を減らしたため、Co 触媒の平均粒径が小さくなったため、触媒の還元がより進んだことが考えられる。

4. 参考文献

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

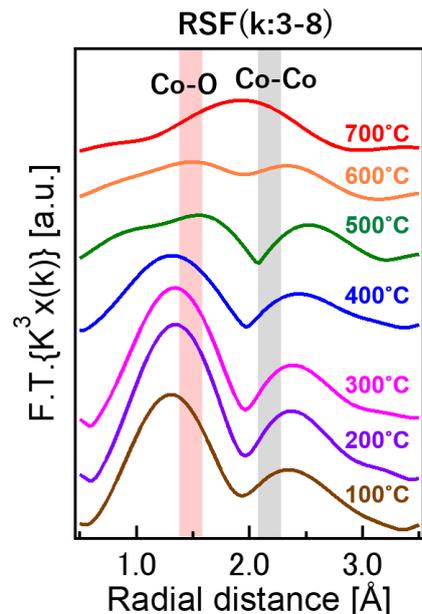


図 1 昇温中の Co/Al₂O₃ 触媒の Co K 吸収端その場 XAFS スペクトルから得られた RSF.