



白金粒子とエタノールの反応過程の in-situ XAFS 測定

丸山隆浩, 小澤顕成, 才田隆広
名城大学理工

1. 背景と研究目的

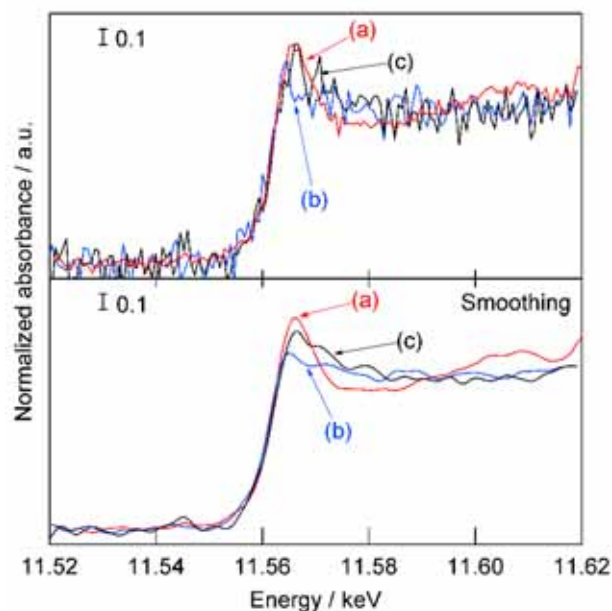
単層カーボンナノチューブ（SWCNT）は、優れた熱伝導性や機械的強度、特異な電気的特性をもつことから、次世代の集積回路（LSI）をはじめ、様々な用途への応用が期待されている。SWCNT の作製法として、現在、化学気相成長（CVD）法が主流であるが、触媒金属粒子と原料ガスとの反応過程には不明な点が多く[1]、カイラリティなどの構造パラメータの制御は実現できていない。そのため、エレクトロニクス分野への応用はほとんど進展していない。我々のグループは、これまで Pt を触媒として用いることで直径とカイラリティ分布の狭い SWCNT が成長することを報告してきた[2, 3]。本研究では、Pt 粒子と SWCNT 作製用の原料ガスとして用いられるエタノールとの反応に関する知見を得るため、エタノールガス雰囲気下での Pt 粒子の化学状態変化を調べる目的で、あいちシンクロトロン光センターBL5S1 の硬 X 線を用いた in situ XAFS 測定を行った。

2. 実験内容

Pt/SiO₂/Si 基板は、既報にしたがい SWCNT 成長用と同条件のものを作製した[3]。本基板を in situ XAFS 用セル内に設置し、BL5S1 にて Pt L_{III} 端の in situ XAFS 測定を行なった。蛍光 X 線の検出には、19 素子 Ge 検出器（SSD）を用いた。セル内部を室温下で真空排気したのち、700℃まで加熱してエタノールを 1 時間照射した。その後、エタノールの供給を止め、室温まで降温した。In situ XAFS 測定は、昇温過程、加熱しながらのエタノール照射時、そして、降温過程の全ての過程において行ない、エタノール照射時には、6 min/spectrum の間隔で 1 時間測定した。また、照射時のエタノール圧力は 10 Pa で実験を行った。

3. 結果および考察

XANES スペクトルを Fig. 1 に示す。XANES スペクトルの生データは、Fig. 1 上図に示すようにノイズを多分に含んでいるため詳細な議論を行なうことが困難であった。そこで、エタノールガス照射時の Pt 粒子の化学状態をおおまかに把握するため、XANES スペクトルのスムージング処理を行なった(Fig. 1 下図)。スペクトル形状の変化から、Pt 触媒粒子は、真空排気直後は酸化状態にあったが、エタノール照射後、還元され、また、降温過程では若干酸化した状態であることが示唆された。これは、SWCNT 成長の際、炭素原子は Pt 粒子内部に溶解することなく、粒子の表面付近に存在し、六員環を形成することを示唆している。また、降温過程では Pt 粒子表面に炭素種が吸着したのではないかと推測している。



4. 参考文献

1. V. Jourdain and C. Bichara, *Carbon* **58** (2013) 2.
2. T. Maruyama, et al. *Mater. Express*, **1** (2011) 267.
3. T. Maruyama et al. *Carbon* **96** (2016) 6.

Fig. 1. Pt L_{III} 端付近における(a)昇温過程、(b)エタノール照射時、および(c)降温過程における XANES スペクトル。上図：スムージング前、下図：スムージング後