



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

丸山 隆浩¹, 水野 慎也¹, 堀内 順平¹, 才田 隆広¹

¹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 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、Co 触媒に対し、新たに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 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、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 にエタノール供給開始後の 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。エタノール供給前には吸収端の高エネルギー側に強い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は低エネルギー側にシフトし、また、供給時間が 5 分を超えると、強度が弱くなつた。これはエタノールによる Co 触媒の還元が進んだためと考えられる。さらに、動径構造関数 (RSF) の解析から、SWCNT 成長中、Co 触媒は炭化状態と金属状態の混合した状態となつ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.

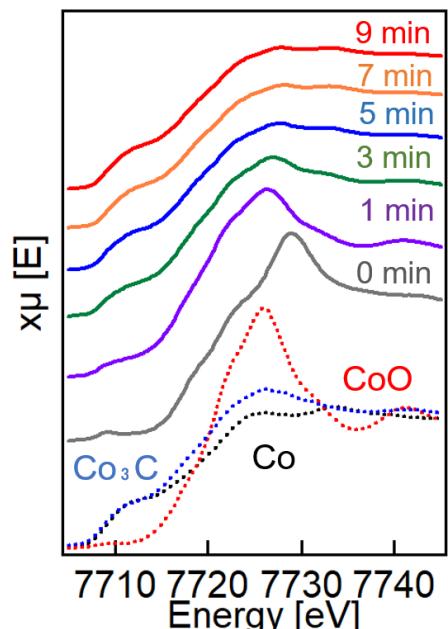


図 1 昇温中の C/MgO 触媒の Co K 吸収端のその場 XAFS スペクトル。