29p-G14-16

Fe₃O₄@SiO₂型コア-シェル粒子を触媒とした垂直配向CNTの合成 Synthesis of vertical aligned carbon nanotubes using Fe₃O₄@SiO₂ type core-shell particles as catalysts 千葉大院工 ⁰川崎浩平, 菅原丈博, 大橋正明, 串田正人 Graduate School of Engineering Chiba Univ. Kohei Kawasaki, Takehiro Sugawara, Masaaki Ohashi, Masahito Kushida E-mail: kushida@faculty.chiba-u.jp

【緒言】固体高分子形燃料電池(PEFC)の新規電極材料として垂直配向 CNT(VA-CNT)の利用 が提案されている¹⁾. 既存の電極材料であるカーボンブラックと比較して, VA-CNT は CNT の径や本数密度によって電極構造の制御が可能となる特徴を有する.上記構造の制御には 径の揃った CNT 成長用触媒 (Fe⁺)粒子)を狙いの間隔で配列する必要があるが,従来の触 媒形成法ではスパッタ等による Fe 薄膜の作製後, 熱凝集により Fe⁺ノ粒子を得るため,上 記の制御が困難である.上記課題を受けて, 我々は Fe⁺ノ粒子をシリカで被覆したコアシ ェル型粒子を CNT 成長用触媒として用いる方法を提案している²⁾⁻⁴⁾.シリカは耐熱層とし て Fe⁺ノ粒子同士の熱凝集を防止するだけでなく,その厚さにより Fe⁺ノ粒子同士の間隔 制御を可能にする.前回応物³⁾では,熱 CVD 前後のコアシェル粒子構造を比較することで CNT の成長モデルを考察した.その結果,加熱によりシリカ内部から表面近傍に移動した Fe ナノ粒子が CNT 成長に寄与していることが明らかになった.今回は,上記の知見を踏まえ て熱 CVD 条件を最適化することで垂直配向 CNT の合成に成功したので報告する.

【実験】平均粒子径16 nmのFe₃O₄をコアに用いて逆ミセル法⁴⁾によりFe₃O₄@SiO₂型コア-シェル粒子作製した.作製した粒子はLangmuir-Blodgett法によりSi基板上に成膜した.得たコア-シェル粒子膜をAr雰囲気中,750°Cで2時間アニールした後,熱CVD法によりCNTを合成した.CNT原料ガスにはC₃H₂を用いた.

【結果・考察】Figure 1 にコア-シェル粒子膜を 所定の時間アニールした 後に合成したCNT断面の SEM観察像を示す.アニー ル時間(a)0hにおいては CNTの配向はランダムで スパゲッティ状となった.

一方, CNTアニール時間(b)2 h の試料では垂直配向を確認した.



Figure 1 前処理としてアニールを(a)0 h, (b)2 h 施した後に合成した CNT 断面の SEM 像

アニール処理を施すことでシリカ表面に移動しCNT成長に寄与するFeナノ粒子の割合が増加したためと考える

【参考文献】1) T. Hatanaka, et al., ECSTransactions, vol.3, pp.277-284 (2006), 2)鴨宮宗近他, 2011 年秋季 第72 回応物学術講演会 31p-ZF-3, 3) 川崎浩平他, 2012 年秋季 第73 回応物学術講演会 13p-C1-11., 4) T. Sugawara, et al., 10th ICNME, PW04(2012). 5) Doh C. Lee, et al., J. Phys. Chem. B, vol. 110, pp. 11160-11166(2006).