

Fe₃O₄@SiO₂ 型コアシェル粒子を触媒に用いた カーボンナノチューブの直径評価

Diameter evaluation of carbon nanotubes grown from

Fe₃O₄@SiO₂ core-shell nanoparticles

千葉大院工 °大橋 正明, 菅原 文博, 金杉 治, 高際 翔太, 串田 正人

Department of Applied Chemistry and Biotechnology, Graduate school of engineering, Chiba Univ.

°Masaaki Ohashi, Takehiro Sugawara, Osamu Kanasugi, Shota Takagiwa, 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カーボンナノチューブ(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 成長用触媒を狙いの間隔で配列する必要がある. そこで我々は CNT 成長用触媒である Fe₃O₄ ナノ粒子をシリカ(SiO₂)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する. SiO₂ は耐熱層として Fe₃O₄ ナ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 Fe₃O₄ ナノ粒子同士の間隔制御を可能にする. しかし, コアシェル粒子は耐熱層の存在により触媒活性が低下してしまう問題があった. この課題に対して我々はコアシェル粒子に還元処理とアニール処理を施すことで触媒活性を向上させ, 垂直配向 CNT の合成に成功した. 本報告では, コアシェル粒子のシェル厚さや原料ガス導入前のアニール処理時間による CNT 直径への影響について述べる.

【実験】Doh C. Leeらの手法[2]を参考に, Fe₃O₄@SiO₂型コアシェル粒子の合成を試みた. 粒子径 15 nmのFe₃O₄ナノ粒子分散液に界面活性剤としてIgepal CO-520 (Sigma Aldrich)を加えて攪拌した. 続いてFe₃O₄ナノ粒子分散液にテトラエトキシシラン(TEOS)とNH₃水溶液を加えて攪拌した. この時, 攪拌時間を変える事でシェル厚さの異なるコアシェル粒子を合成した. 得られたコアシェル粒子を熱酸化膜付きSi基板上に担持し[3], 熱CVD法によりCNTを合成した[4]. この時, あらかじめ試料にアニール処理(熱処理)を行い, その後CNT原料ガスを導入した. なお, CNT原料ガスにはC₂H₂を用いた. 作製した試料は透過型電子顕微鏡(TEM)によって観察した.

【結果と考察】Figure 1 に 1 h, 2 h アニール処理した後に合成した CNT の直径分布を示す. 塗りつぶしがアニール時間 1 h の試料の分布, 網掛けが 2 h の試料の分布である. 平均直径はアニールが 2 h の試料の方が小さくなった.

アニール時間と CNT 直径の関係やシェル厚さの影響についての詳細は当日議論する.

【参考文献】

- [1] T. Hatanaka, *et al.*, ECS Transactions, **3**, pp.277-284 (2006).
- [2] D. Lee, *et al.*, J. Phys. Chem. B, **110**, pp.11160-11166 (2006).
- [3] M. Kushida, *et al.*, Thin Solid Films, **537**, pp. 252-255 (2013).
- [4] M. Ohashi, *et al.*, to be published in JJAP (2014).

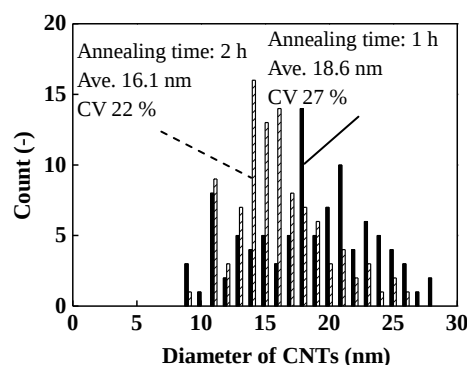


Fig. 1. Diameter histogram of CNTs.