

水/有機溶媒混合溶液中ソリューションプラズマによる 金ナノ粒子高速合成

The rapid synthesis of gold nanoparticles by solution plasma in water/organic mixture

名大院工¹, 名大グリモ², 名大未来³, JST-CREST⁴

○ 篠 智仁¹, 上野 智永^{1,4}, 齋藤 永宏^{1,2,3,4}

Graduate School of Engineering, Nagoya Univ.¹, Green Mobility Collaborative Research Center,

Nagoya Univ.², Institute of Innovation for Future Society³, JST-CREST⁴

E-mail: hiro@rd.numse.nagoya-u.ac.jp

【緒言】金属ナノ粒子は触媒、導電材料等の応用分野で注目されている。様々な種類の金属ナノ粒子が合成されているが、実用面では、目的のサイズの粒子を精密かつ大量に合成することが高いハードルとなっている。ソリューションプラズマは、溶液中に生成されたグロー放電と定義される非平衡プラズマである。金属イオン前駆体とした合成を行い、シングルナノオーダーの粒径制御が可能となっている。さらに、これまでに、水にアルコールを添加することで、水溶液中合成に対し反応速度が20倍となることが明らかとなった。ソリューションプラズマは、溶液中に定常的に生成した気泡中にプラズマが生起される。このため、反応そのものは、溶媒の物性の影響を大きく受けると考えられる。しかしながら、その具体的な影響は分かっておらず、さらなる高速合成に向け、様々な溶液に対する体系的な理解が必要である。以上の観点から、本研究では、種々の水/有機溶媒混合溶液を用い、金ナノ粒子の合成を行った。

【実験方法】反応容器には、絶縁管で被覆した半径 0.8 mm のタングステンワイヤー電極対を挿入したガラス容器を用いた。種々の水/有機溶媒混合溶液にイオン濃度が 0.3 mM となるように塩化金酸を加えた。有機溶媒の濃度を 25 vol% とし、メタノール、エタノール、2-プロパノール、N,N-ジメチルホルムアミド (DMF)、アセトン (関東化学) を用いた。バイポーラーパルス電源 (MPP-HV02, Kurita Seisakusho Co. Ltd.) により、パルス幅 1.3 μ s、周波数 15 kHz の条件でプラズマを生成した。放電時間毎に溶液を 3 mL 回収し、KBr を添加することで、UV-vis により前駆体イオンの濃度減少速度を解析した。

【結果・考察】放電時間に伴い、前駆体イオンの減少が観察された (右図 a)。続いて、金イオンの還元剤として働くラジカル濃度を反応時間に対し一定と仮定し、還元反応に対する擬一次速度定数を算出した。すると、速度定数は有機溶媒の蒸気圧に比例して増加した (右図 b)。この結果は、ソリューションプラズマでは、溶媒の気化過程を制御し、プラズマ中のガス圧力を制御することで、反応速度の増加が可能となることを示唆した。

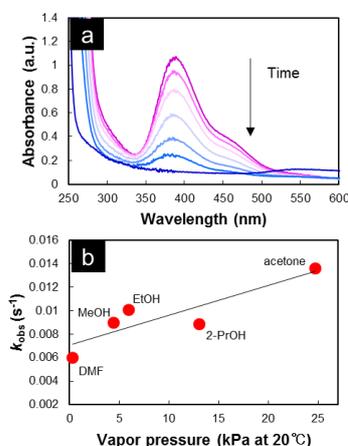


Figure 1. a: The time-dependent change of concentration of gold chloride ions exchanged with bromide ion. b: Linear relationship between rate constant and vapor pressure of organic solvent.