

# 多層カーボンナノチューブと多層カーボンナノコイルの合成のための 触媒担持材の検討

## Investigation of catalytic supporter for synthesis of multi-walled carbon nanotubes and multi-walled carbon nanocoils

豊橋技術科学大学<sup>1</sup>, 東海カーボン<sup>2</sup>, 湘南合成樹脂製作所<sup>3</sup>, 東邦ガス<sup>4</sup>

○飯田 哲生<sup>1</sup>, 須田 善行<sup>1</sup>, 滝川 浩史<sup>1</sup>, 植 仁志<sup>2</sup>, 清水 一樹<sup>3</sup>, 梅田 良人<sup>4</sup>

Toyohashi Univ. of Technol.<sup>1</sup>, Tokai Carbon Co., Ltd.<sup>2</sup>,

Shonan Plastic Mfg. Co., Ltd.<sup>3</sup>, Toho Gas Co., Ltd.<sup>4</sup>

○Tetsuo Iida<sup>1</sup>, Yoshiyuki Suda<sup>1</sup>, Hirofumi Takikawa<sup>1</sup>,

Hitoshi Ue<sup>2</sup>, Kazuki Shimizu<sup>3</sup>, Yoshito Umeda<sup>4</sup>

E-mail: iida.tetsuo@pes.ee.tut.ac.jp

### 1. はじめに

多層カーボンナノコイル (MWCNC : multi-walled carbon nanocoil) は, 螺旋状に巻かれた多層カーボンナノチューブ (MWCNT : multi-walled carbon nanotube) であり, CVD 法によって合成できる。これらファイバ状のナノカーボン材料は電界電子放出素子や電磁波吸収材への応用が期待されている。従来の研究では, 多孔質材料であるゼオライトに Fe および Sn 触媒を担持することで MWCNC を合成することができた<sup>(1)(2)</sup>。合成された MWCNC には触媒粒子が内包されていたが, TEM-EDS により Sn は検出されなかった<sup>(2)</sup>。そこで今回は, 触媒に Fe のみを, 担持材にはゼオライト以外の多孔質材料も用いて CVD 合成を行い, MWCNC の割合の向上および担持材と MWCNC の繊維径との関係について検討した。

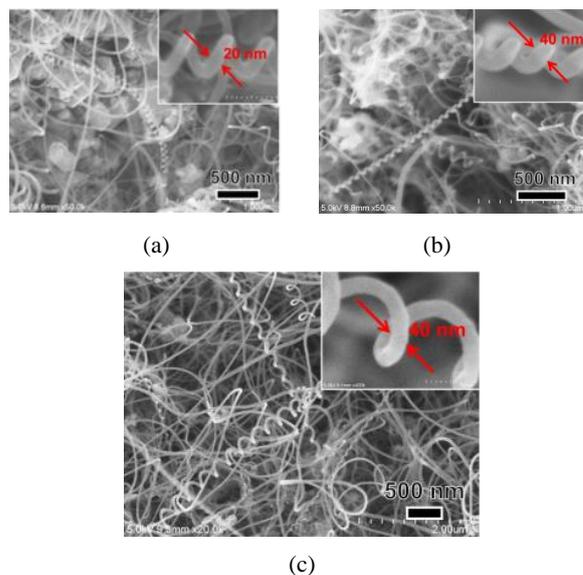
### 2. 実験装置および条件

Si 基板を用い, 基板の上に Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粉末と多孔質材料を混ぜた触媒溶液を 20 μl 滴下し, ホットプレートを用いて大気中で 80°C で加熱した。担持材にはゼオライトと Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO を用いた。CVD 合成条件として, 石英管の中に基板を設置し N<sub>2</sub> ガス (流量 : 1000 ml/min) を供給しながら合成温度まで昇温した。その後 C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> を 10 分間供給することで合成を行った。C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> 流量比 0.03~0.10, 合成温度 660~850°C と変化させた。合成物は, 走査型電子顕微鏡 (SEM), 透過型電子顕微鏡 (TEM), ラマン分光を用いて評価した。

### 3. 実験結果

本実験で最適化した MWCNC の合成条件は, 温度 740°C, C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> 流量比 0.05 であった。図 1 はこの条件において担持材を変えて合成した MWCNT および MWCNC の SEM 像である。図 1(a) は従来の研究と同様にゼオライトを用いて合成したものであり, 平均繊維径が約 20 nm であった。また, MWCNC の割合は約 1% であった。図 1(b) の担持材に Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を用いた合成物

は平均繊維径が約 40 nm とより太い繊維径であった。また, 図 1(c) は担持材にゼオライトと Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の 2 種類の担持材を用いた合成物であり, MWCNC の割合が約 10% と最も高くなった。このとき平均繊維径は約 40 nm であり, 担持材に Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> のみを用いたときとほぼ一致した。担持材によって触媒である Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の保持される粒子サイズが異なったためであると考えられる。



(a) Synthesized by Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-zeolite catalysts

(b) Synthesized by Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalysts

(c) Synthesized by Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-zeolite-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalysts

Fig.1 Synthesized MWCNTs and MWCNCs

### 謝辞

本研究の一部は, 豊橋技術科学大学 EIIRIS プロジェクト, JSPS 科研費 24360108, 25630110 を受けて行なわれた。

### 文献

- (1) M. Yokota, et al: J. Nanosci. Nanotechnol., 11 (3) (2011), 2344-2348
- (2) S. L. Lim, et al: Jpn. J. Appl. Phys., 52 (2013), 11NL04