

Ni-Cu 触媒を用いたマリモカーボンの成長機構解明の試み

Transmission Electron Microscopic Study of the Growth Mechanism of Marimo Carbon Using Ni-Cu Catalyst

東洋大院理工¹, 東洋大理工², 関西大環境都市工³, 物材機構⁴

○白石 美佳¹, 白石理沙¹, 安藤佳祐¹, 松本遥², 中川清晴³, 安藤寿浩⁴, 蒲生西谷美香²

Toyo Univ. Grad. Sch.¹, Toyo Univ.², Kansai Univ.³, NIMS⁴, Mika Shiraishi¹, Risa Shiraishi¹,

Keisuke Ando¹, Haruka Matsumoto², Kiyoharu Nakagawa³, Toshihiro Ando⁴, Mikka Nishitani-Gamo²

E-mail: mngamo@toyo.jp

1. 緒言

マリモカーボンはダイヤモンド粉末を担体とし、その表面に遷移金属微粒子を担持させ、炭化水素ガスとの接触反応によって合成したダイヤモンド-繊維状ナノ炭素(Carbon Nanofilament: CNF)複合体である¹⁾。マリモに似た球状構造を持つためマリモカーボンと名付けられた。マリモカーボンを構成するCNFの形態および微細構造は、触媒金属の種類および物理化学状態、反応ガスの種類および組成、反応温度といった合成条件に依存することが報告されている²⁾。我々はNi触媒へ、Cuを添加することで、CNFの形態に枝分かれ状の構造を生じさせることを見出している。本研究では、反応時間を変えて合成したマリモカーボンの成長過程を観察し、成長機構の考察を試みた。

2. 実験

触媒担体として酸化ダイヤモンド粉体を用い、含浸法により触媒調製を行った。触媒前駆体に硝酸Ni六水和物及び硝酸Cu(II)三水和物を用いた。触媒の担持量は、担体重量に対して5%とし、Cu比率は20%とした。反応温度は400~700℃、反応時間は0~60minとした。反応ガスにはCH₄を用い、ガス流量は30 sccmとした。マリモカーボンの合成は、固定床流通式反応装置を用いた。得られた生成物の形態及び微細構造は、透過型電子顕微鏡(TEM)を用いて調べた。

3. 結果

Fig.1にマリモカーボンのTEM像を示す。(a)反応時間0minでは、触媒粒子の大きさは数nmから40nm程だった。(b)10minでは一つの触媒粒子から1本または2本のCNFが成長し、触媒粒子に角張った形状の物が見られるようになった。炭素層は触媒粒子の形にそった、Vもしくはハの字型のカップスタックだった。(c)30minでは、3本以上の枝分かれが観察できた。CNFの炭素層の向きはカップスタックもしくは繊維軸に対して垂直なコイン積層型だった。

反応時間が増加すると、枝分かれの本数が増え、炭素層の向きは繊維軸に対して垂直になった。

4. 参考文献

- 1) K. Nakagawa et al. ; J. Mater Sci., 44, 221(2009).
- 2) N. M. Rodriguez ; J. Mater Res., 8, 3233(1993).

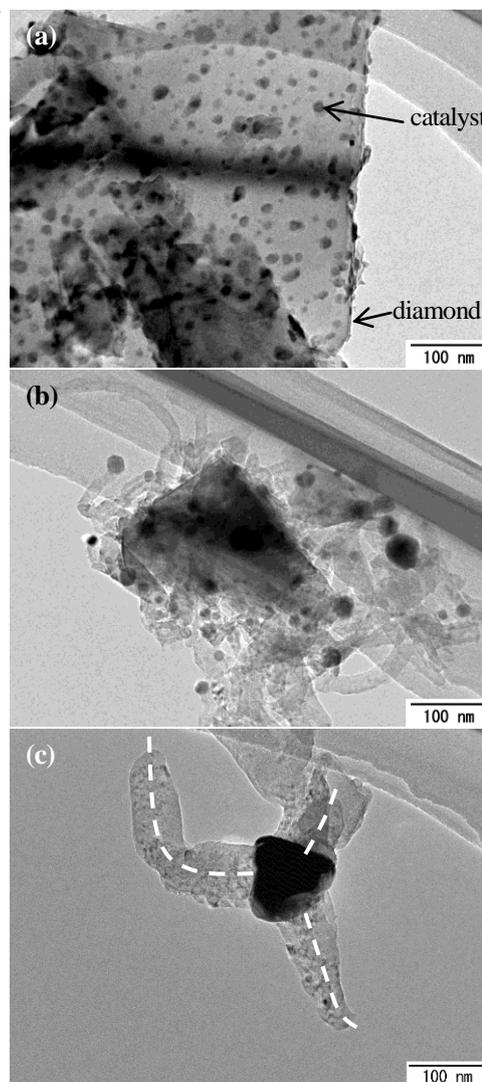


Fig. 1 TEM images of marimo carbon reaction time (a) 0 min, (b) 10 min, (c) 30 min.