

その場 XAFS 測定による単層カーボンナノチューブ成長中の鉄族金属触媒の化学状態の解明

Elucidation of chemical states of iron-group metal catalysts during growth of SWCNT by *in situ* XAFS measurement

名城大理工¹, 名城大ナノマテ研² °柄澤 周作¹, カマル プラサド サラマ²,
才田 隆広^{1,2}, 成塚 重弥¹, 丸山 隆浩^{1,2}

Meijo Univ.¹, Meijo Nanomaterial Res. Center²,

°Shusaku Karasawa¹, Kamal P Sharma², Takahiro Saida^{1,2}, Shigeya Naritsuka¹,
Takahiro Maruyama^{1,2}

E-mail: takamaru@meijo-u.ac.jp

はじめに

単層カーボンナノチューブ(SWCNT)の成長メカニズムを知ることは、構造制御のために重要であり、特に SWCNT 生成時の触媒の状態を決定するにはその場測定が必須である。我々はこれまで、その場 X 線吸収微細構造(XAFS)測定により、SWCNT 成長中の Co 触媒の化学状態について議論してきた[1]。今回、Co 触媒と同様に SWCNT 成長に適しているとされる鉄族金属の Fe 触媒と Ni 触媒について、その場 XAFS 測定により SWCNT 成長中の触媒の化学状態と成長メカニズムの解明を目的とした。

実験方法

その場 XAFS 測定は、あいちシンクロトロン光センターNL11S2 において実施した。窒化ホウ素 (BN) 粉末、BN スラリーと酢酸コバルト、硝酸鉄もしくは硝酸ニッケルを混合、焼成したのちペレット成型し、XAFS 測定用試料とした。本試料をホットウォール型 CVD 装置に導入し、成長時間 10 分、成長温度 800°Cとし、Co 触媒の場合、キャリアガス Ar/O₂ 1000 sccm 供給下でエタノールガスを 25 sccm、Fe 触媒と Ni 触媒ではキャリアガス Ar/H₂ 1000 sccm 供給下でエタノールガスを 100 sccm 導入し SWCNT 成長を行った。成長実験中に各触媒金属の K 吸収端 XAFS 測定を行い、得られたスペクトルを解析した。また、XAFS 測定後の試料を Raman, TEM, および SEM を用いて評価を行った。

結果と考察

XAFS 測定後の試料の Raman 分光測定および TEM, SEM 観察から、どの触媒においても SWCNT の成長が確認された。SWCNT 成長中の XAFS スペクトルの EXAFS 領域に対するフーリエ変換により得られた動径分布関数(RSF)を Fig. 1 に示す。SWCNT 成長中、Co 触媒は化学状態が変化し、Co-Co の結合が増加した。Fe 触媒はほとんどが Fe-O と Fe-C の結合から成り、金属的な成分は少なかった。これに対し、Ni 触媒は成長開始から成長終了まで金属的な状態を維持していた。以上から、同じ鉄族元素であっても、SWCNT 成長中の化学状態が大きく異なっていることが明らかとなった。当日はより詳細な解析結果を元に議論を行う。

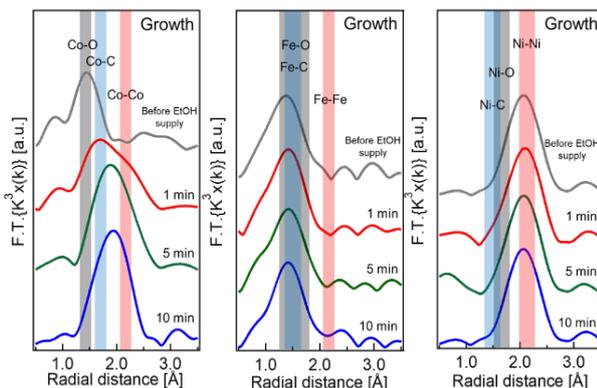


Fig. 1 RSFs of (a)Co, (b)Fe and (c)Ni catalysts during SWCNT growth.

謝辞

本研究の一部は、科研費基盤研究 (B) 19H02563, 名城大学ナノマテリアル研究センター, および分子科学研究所の実施する文科省マテリアル先端リサーチインフラ事業の支援を受けて行なった。

参考文献

[1] S. Karasawa et al. Chem. Phys. Lett. 808 (2022) 140135.