

チタニアナノ粒子によるカーボンナノチューブの被覆

(九大院工)○(学)有家 隆文, (正)竹中 壮, (正)松根 英樹, (正)岸田 昌浩*

1. 緒言

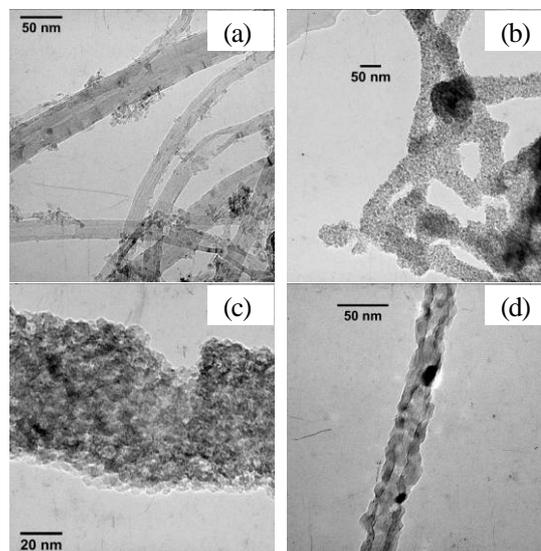
カーボンナノチューブ(CNT)は、その構造に由来する特異な性質を有しており、触媒化学等への応用が検討されている。CNT を触媒に応用するには、CNT を金属や金属酸化物により高機能化する必要がある。我々はCNT 担持金属触媒をナノスケールのシリカ層で被覆することにより、金属粒子のシンタリング耐性を向上させることに成功している。本研究ではCNTをTiO₂により被覆し、この試料の光触媒反応への応用を検討した。TiO₂の光触媒活性は光照射による励起電子とホール生成に由来するが、これらは容易に再結合するため、その光触媒の反応効率率は低い。そこでTiO₂とCNTを複合化すれば、励起電子はCNT中に移動し、これにより電子とホールの再結合が抑制されるため、TiO₂の光触媒活性が向上すると考えた。本研究では、CNT 共存下、チタニウムテトライソプロポキシド(TIPT)の加水分解中に尿素を添加すると、効率よくCNT表面がTiO₂ナノ粒子で被覆されることを見出したので、その結果を報告する。

2. 実験

TiO₂ 被覆 CNT(TiO₂/CNT)は従来のゾルゲル法を改良して調製した。2-プロパノール溶液にTIPTを加えた後、塩酸を加えてTIPTを加水分解した。その溶液中にCNTを分散し、尿素を加え50°Cで1h攪拌した。ここで得られた試料を空气中330°Cで焼成した。

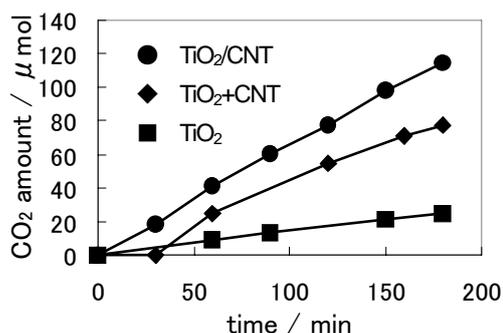
3. 結果と考察

図1(a)には尿素を添加せずにTIPTを加水分解することで調製した試料のTEM像を示した。TEM像中にCNTが確認され、それらの表面にTiO₂粒子が存在しているように見えるが、それらの粒子数は少なく、むき出しのCNT表面が多く確認できる。また図中には示していないが、CNT上に担持されていないTiO₂粒子を多数確認した。これはTIPTの加水分解中に生成したTiO₂ゾルとCNT間の化学的な相互作用が弱いためと考えられる。図1(b)(c)には尿素を添加して調製した試料のTEM像を示した。これらのTEM像では露出したCNT表面は見られず、CNT表面がTiO₂粒子で密に被覆されていることが分かる。さらに800°C、空气中で焼成した後の試料のTEM像(図1d)から、CNTが燃焼除去され、これにより中空構造を有するTiO₂構造体が生成していることが確認できる。この結果はTiO₂/CNT中のCNTはTiO₂粒子で被覆されていたことを示す。以上の結果より、尿素存在下でTIPTを加水分解することにより、CNTをTiO₂ナノ粒子で被覆できることが分かった。尿素のNH₂基とC=O基を通じてCNT表面とTiO₂ナノ粒子が強く相互作

図1. 異なる条件で調製したTiO₂/CNTのTEM像。

用したために、尿素添加時にTiO₂被覆CNTが生成したと考えられる。

次にTiO₂/CNTの光触媒活性を評価する目的で、酢酸の光酸化を行った。図2には主生成物であるCO₂生成量の経時変化を示した。また比較のため、TiO₂のみ、TiO₂とCNTを物理混合した試料(TiO₂+CNT)も触媒として用いた。これらの反応では、反応器内のTiO₂量が同量になるようにした。図2より、TiO₂のみに比較して、TiO₂/CNTの光触媒活性が高いことが分かる。TiO₂とCNTを物理混合しただけでもTiO₂の光触媒活性は向上しているが、TiO₂/CNTの活性は物理混合触媒よりも高かった。TiO₂とCNTが共存することで、TiO₂中のホールと励起電子の寿命が長くなったため、TiO₂の光触媒活性が高くなったと考えられる。またCNT上にTiO₂を担持することで、これらが強く相互作用したために、励起電子が効率よくCNT上に移動した結果、TiO₂の光触媒活性向上に繋がったと思われる。

図2. 各TiO₂触媒上での酢酸の光酸化。

*kishida@chem-eng.kyushu-u.ac.jp