

L102

フェノール系樹脂を用いた高単分散性炭素微粒子の合成

(関西大工) ○ (正) 田中 俊輔* · 向井 武範 · 片山 悠吾 · (正) 三宅 義和

1. 緒言

界面活性剤など鋳型を用いて材料のメソ構造を制御する研究が活発に行われている昨今、均一に形態制御した粒子を配列させることによりメソスケールの構造を制御する着想¹⁾に着目し、フェノール類/アルデヒド類の共重合反応において生成するカーボン粒子の形態制御に取り組んだ。

レゾルシノール系ナノカーボンについては、界面活性剤²⁾あるいはアミノ酸³⁾を用いた球状カーボン粒子の生成が報告されている。これに対して、本研究で調製したフェノール系球状粒子の合成プロセスは、アルデヒド類との縮合重合を Stöber 法⁴⁾ 類似条件下で行うものであり、合成条件の調整が容易で、拡張性・発展性に優れた手法であると考えられる。本研究では、高単分散で二次凝集がなく、容易に固液分離が可能なフェノール樹脂球状硬化粒子の調製を試みたので報告する。

2. 実験

フェノール類として、フェノール、レゾルシノール、ピロガロールを、アルデヒド類としてホルムアルデヒド、フルフラールを用いた。フェノール類を水、エタノールに加えて溶解させた後、フェノール類の2倍等量のアルデヒド類を加えて攪拌した。触媒として10wt%アンモニア水を添加し、所定の温度で静置した。前駆溶液のモル比は 5×10^{-3} Phenols : 10×10^{-3} Aldehydes : 7.5×10^{-3} – 4.4×10^{-2} NH_3 : 0–2.8 Water : 0 – 1.1×10^{-2} Ethanol とした。48 時間後、生成した固体粒子を遠心分離によって回収し、空気雰囲気下で 30 分間乾燥した後、炭化処理を行った。炭化処理は窒素雰囲気下 800°C で 1 時間行った。

3. 結果と考察

種々のフェノール類、アルデヒド類の組み合わせで調製を試みた。フェノールを用いた場合には、溶液は白濁せず粒子は生成しなかった。これに対して、レゾルシノール/ホルムアルデヒド、レゾルシノール/フルフラール、ピロガロール/ホルムアルデヒドでは球状粒子を調製することができた。レゾルシノール/ホルムアルデヒドにおいて、粒子径および分散度(標準偏差/平均粒子径)ともに最小となった (Fig. 1)。

レゾルシノール/ホルムアルデヒドからなる粒子の粒子径制御について検討した。溶媒のエタノール濃度を変化させて粒子を調製した。エタノール濃度が 0–80vol% においては、粒子径はエタノール濃度の増加

に伴い、400–1100 nm と増加した。また、溶媒がエタノールのみの場合では単分散な粒子が得られず、粒子同士が凝集することがわかった。アンモニアの濃度を变化させて粒子の調製を行ったところ、アンモニア濃度の増加に伴い、粒子径は 800–250 nm と減少した。アルコール濃度およびアンモニア濃度を变化させることで、フェノール系オリゴマーの溶解度および縮合重合速度の制御が可能であると示唆される。

フェノール系樹脂粒子は、熱処理時において凝集せず、粒子径の均一性を維持したまま、高単分散なカーボン球状粒子に転換することができる。

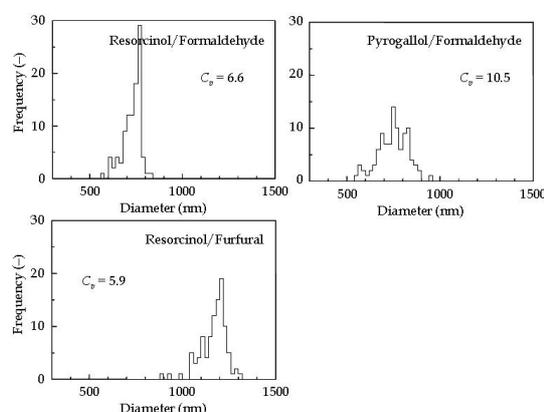


Fig. 1 Particle size distribution of the phenolic resin spheres. (EtOH conc. = 40 vol%, NH_3 conc. = 0.15 M)

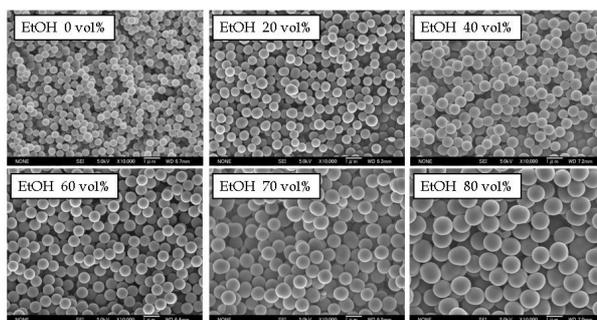


Fig. 2 SEM images of the phenolic resin spheres. (NH_3 conc. = 0.15 M)

- 1) T. Yokoi et al., *J. Am. Chem. Soc.* 128 (2006) 13664.
- 2) N. Nishiyama et al., *Carbon* 43 (2005) 269, T. Kijima et al., *Carbon* 45 (2007) 1289
- 3) N. Nishiyama et al., *Ind. Eng. Chem. Res.* 47 (2008) 6344.
- 4) W. Stöber et al., *J. Colloid Interface Sci.* 26 (1968) 62.

*田中俊輔 TEL : 06-6368-0851

E-mail : shun_tnk@ipcku.kansai-u.ac.jp