

D218

担持 Pt 触媒上での炭化水素分解による

カーボンナノチューブの選択的合成

(九大院工) (学)井口敏行・(正)松根英樹・(正)竹中 壮・(正)岸田昌浩*

【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物理的、化学的性質を有しており、機能性材料への応用が期待されている。CNTを機能性材料に応用する際、CNTは高機能性を持った金属粒子と複合化することが必要とされる。通常CNTは、Fe、Co、Niに代表される遷移金属ナノ粒子に高温下で炭化水素を接触させることで、これらの遷移金属ナノ粒子を成長末端としたCNTが生成する。このため、元来CNT中には金属ナノ粒子が含まれており、これら遷移金属ナノ粒子の機能性を利用したCNTの応用が期待される。これら金属ナノ粒子とCNTから構成されるコンポジットの機能性は、金属の種類に強く依存するため、様々な金属ナノ粒子を用いた炭化水素分解によるCNT生成が望まれる。例えば、Ptは燃料電池の電極触媒等に利用されており、Ptナノ粒子から生成したCNTは、燃料電池用電極触媒としての利用が考えられる。しかし、Ptに代表される貴金属ナノ粒子上での炭化水素分解によるCNT生成の報告は少なく、その詳細については明らかではない。

本研究では、担持Pt触媒上でのエチレン分解によるCNT生成を試みた。さらにPtナノ粒子を厚さ数nmのシリカで被覆された触媒を利用することで、均一な直径のCNTが生成することを実証した。

【実験】CNT生成用触媒として含浸法により担持Pt触媒を調製した。触媒担体としてカーボンブラック(CB)、MgO、Al₂O₃、SiO₂を担体に用いた。シリカで被覆されたPt/CB触媒は、3-アミノプロピルトリエトキシシラン(APTS)とテトラエトキシシラン(TEOS)の加水分解を利用して調製した。これらの触媒を石英製の反応器に充填し、400℃で水素により還元した後、700℃で90分間エチレンと水素を接触させることでCNT生成を行った。

【結果と考察】図1a)には、エチレン分解後のPt/CB触媒のTEM像を示した。エチレン分解により多数のCNTが生成していることが確認できる。図1b)に示したようにCNTの先端にPt粒子が存在しており、このPt粒子がエチレンを分解しCNTを生成させたことが示唆される。本研究ではPt/CB以外に、Pt/SiO₂、Pt/MgOおよびPt/Al₂O₃を用いてエチレン分解を行ったところ、いずれの触媒上にもPt/CBを用いた場合同様にCNTが生成した。炭素収量は担体の種類に依存し、Pt/MgO(160 mol-C/mol-Pt) > Pt/SiO₂(57 mol-C/mol-Pt) > Pt/Al₂O₃(38 mol-C/mol-Pt) > Pt/CB

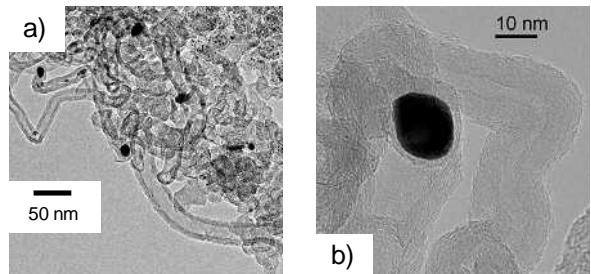


図1.Pt/CB触媒上に生成したCNTのTEM像。

(33 mol-C/mol-Pt)の序列となった。以上の結果より、金属Ptはエチレン分解に触媒活性を示し、CNTを生成することが分かった。

図1a)からも明らかなように、担持Pt触媒上に生成したCNTの直径は5-30 nmに広く分布した。一方、図には示していないが、エチレン分解前の触媒中のPt粒子は直径2-5 nm程度であったことから、Ptナノ粒子はエチレン分解中に激しくシンタリングし、様々な直径を有するCNTが生成したと考えられる。そこでエチレン分解中のPtナノ粒子のシンタリングを抑制するために、担持Pt触媒を厚さ数nmのシリカで被覆し、この触媒をエチレン分解に供した。図2にはシリカで被覆されたPt/CB触媒から生成したCNTのTEM像を示した。図2a)から明らかなように、シリカで被覆されたPt/CB上には、均一な直径(約7 nm)を有するCNTが生成していることが分かる。また炭素収率は、シリカで被覆することで、33 mol-C/mol-Ptから97 mol-C/mol-Ptまで向上した。シリカで触媒を被覆することで、Pt粒子のシンタリングが抑制されたため、生成したCNTの直径が均一となり、炭素収率が向上したと考えられる。また、図2b)には生成したCNTの先端のTEM像を示した。シリカで被覆されたPt/CB触媒上に生成したCNTの先端には、Pt粒子が存在しないことから、Ptナノ粒子は担体上に存在し、これらがエチレンを分解し、CNTを生成させたと考えられる。

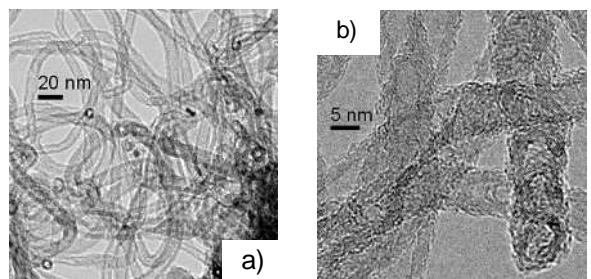


図2.シリカ被覆Pt/CB上に生成したCNTのTEM像。

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