

サブテーマ名： I-1 制御された合成プロセスと大量合成装置開発 小テーマ名： I-1-2 カーボンナノコイル大量合成用触媒の開発
サブテーマリーダー： 大阪府立産業技術総合研究所 化学環境部 主任研究員 久米 秀樹 研究従事者： (財)大阪科学技術センター 雇用研究員 岡崎 信治・山中 祐
<p>研究の概要、新規性及び目標</p> <p>①研究の概要</p> <ol style="list-style-type: none"> 1 湿式微粒子合成法を用いたカーボンナノコイル (CNC) 合成用触媒の開発 CNCの形状制御および触媒粒子浮遊法によるCNC合成を行うための触媒の開発を行った。用いた湿式微粒子合成法は①ポリオール法、②水熱合成法、③論文 (Park, J., et al., <i>Nature Materials</i>, 3, 891-895, 2004.) に示された方法である。これらの微粒子合成法にて合成した触媒にて、CNC成長に最適な触媒構造に関する知見を得、CNC線径について数十 nmまで減少させることができた。 2 流動床CVD法によるCNC合成用触媒の触媒構造についての研究 流動床CVD法に用いるFe-In-Sn系CNC合成用触媒について、作製条件の最適化について検討した。その結果、触媒活性や生成物形状について、特に、Inおよび触媒焼成温度の影響が大きいことが分かった。また、作製条件の異なる触媒について、触媒構造の調査も行い、流動床CVD法によるCNC成長に最適である触媒構造についても分かった。 <p>②研究の独自性・新規性</p> <ol style="list-style-type: none"> 1 湿式微粒子合成法を用いたカーボンナノコイル (CNC) 合成用触媒の開発について 簡単な設備で粒子合成が行える湿式微粒子合成法をCNC合成用の触媒に適用し、触媒構造および微粒子径を制御することによりCNC形状制御を行うことができたことは独自性および新規性があることである。 2 流動床CVD法によるCNC合成用触媒の触媒構造について これまでの研究においても、触媒中のInやSn組成比、触媒焼成温度がCNC成長に影響があることは分かっていた。しかしながら、これまでは、このような作製条件パラメータがCNC成長に対してどのような影響があるかについては、詳細な調査がなされていなかった。今回、CVD中の炉内温度や触媒評価技術 (X線回折、TEM測定など) を用いて、触媒作製条件の影響について新たな知見が得られたことは新規性のあることである。 <p>③研究の目標</p> <p>フェーズ I</p> <ul style="list-style-type: none"> ・カーボンナノコイルの形状と触媒の構造や組成との関連性について実験的に調べる。 ・形状制御されたカーボンナノコイルの大量合成法を検討する。 ・平均粒径が 10 nm~100 nm の範囲で任意に制御された微粒子触媒の合成手法について検討し、形状制御された CNC の合成を行う。 <p>フェーズ II</p> <ul style="list-style-type: none"> ・流動床によるカーボンナノコイル合成 (カーボンナノコイル純度、合成量) を安定させるための触媒作製法の標準化を行い、触媒活性を 10 倍に向上させる。 <p>研究の進め方及び進捗状況 (目標と対比して)</p> <ol style="list-style-type: none"> 1 湿式微粒子合成法を用いたカーボンナノコイル (CNC) 合成用触媒の開発 形状が制御されたCNCを合成するためには、触媒粒径を制御した触媒を作製する必要があると考え、比較的、粒径制御が容易である湿式法による微粒子合成法をCNC合成用触媒に適用した。用いた微粒子合成法は、①ポリオール法、②水熱合成法、③論文 (Park, J., et al., <i>Nature Materials</i>, 3, 891-895, 2004.) に示された方法の三種類である。これらの合成法で、①や②は粒径が数十nm程度の大きな粒子の合成が可能であり、③では粒径が数nm程度の微粒子が凝集することなく合成できることが分かった。①や②で合成した触媒では従来見られていた線径：100 nm以上の「太いCNC」が成長でき、Snの周囲にFe粒子が存在、または、Feの周囲にSn粒子が存在するときにCNCがよく成長することが分かった。また、①の合成法による触媒では1本のCNCを1触媒単位から成長させることもできた。③の粒子では、コイル線径が数十nm程度の「細いCNC」を成長させることができた。また、Feのみで③の粒子を合成しSi基板に担持すると高配向CNTが成長することが分かり、③の方法はCNT合成用触媒の合成にも有用であることが分かった。 2 流動床CVD法によるCNC合成用触媒の触媒構造についての研究

流動床CVD法にてCNC合成を行うために最適な触媒構造について検討を行った。従来のアルミナ担持Fe-In-Sn触媒について、触媒組成比および焼成温度など触媒作製条件を変化させ触媒を作製し、これらの条件のCNC成長への影響について調べた。その結果、Inの無いFe-Sn触媒ではSn組成比を調整することで、担持体の特定部分にのみCNCが成長する。Fe-Sn触媒の最適組成比にInを含ませることで、生成物が担持体全体に成長するようになり、Inには触媒活性を向上させる影響があることが分かったが、適切でない組成比の場合にはCNC形状とはならず、直線的な生成物が成長することが分かった。また、直線的な生成物が成長するIn、Sn組成比の時に、焼成温度を高くすることでCNCが成長することも分かった。触媒構造をTEM観察およびX線回折測定を用いて調べた結果、Fe酸化物粒子が100 nm以上でSnまたはIn-Sn酸化物が粒子化したときにCNC成長していることが分かった。

主な成果
 具体的な成果内容：
 触媒粒径の制御によりCNC形状およびCNC成長に最適な触媒構造が分かった。
 流動床CVD法に用いる触媒についても、最適な触媒構造が分かった。
 特許件数：2件 論文数：1件 口頭発表件数：2件

研究成果に関する評価
 1 国内外における水準との対比
 CNC成長に最適な触媒についていくらかの報告があるが、これまで触媒についての詳細な調査を行いCNC成長に最適な触媒構造について検討した例はほとんどない。
 2 実用化に向けた波及効果
 CNC成長については現在まで未知の部分が多かったが、プロセスにおける検討と合わせて、CNC成長についての基礎データを収集しまとめることにより、CNC成長メカニズムの解明がほぼ出来た。これらの基礎データは将来さらなるCNC大量合成をする際には、条件最適化などを行う際に指針となると思われる。

残された課題と対応方針について
 現在はレアメタルであるInを含んだ触媒を用いているが、大阪府立大学や大阪大学の成果を活かして、他の組成の触媒の開発を進めることが必要である。その際にも本検討で得られた基礎データは活用可能であると思われる。また、さらなるCNC大量合成を行うには、触媒をkgオーダーで作製する必要もあると思うので、その方式についての検討も必要である。

	J S T 負担分 (千円)							地域負担分 (千円)							合 計
	16年度	17年度	18年度	19年度	20年度	21年度	小計	16年度	17年度	18年度	19年度	20年度	21年度	小計	
人件費	141	4,631	3,508	2,629	4,519	4,254	19,682	0	0	0	0	0	0	0	19,682
設備費	2,030	0	0	0	0	0	2,030	0	0	0	0	0	0	0	2,030
その他研究費 (消耗品費、 材料費等)	1,707	5,832	1,279	7,593	4,738	1,965	23,114	0	0	0	0	0	0	0	23,114
旅費	7	156	147	17	56	11	394	0	0	0	0	0	0	0	394
その他	11	217	211	284	225	211	1,159	0	0	0	0	0	0	0	1,159
小計	3,896	10,836	5,145	10,523	9,538	6,441	46,379	0	0	0	0	0	0	0	46,379

代表的な設備名と仕様 [既存 (事業開始前) の設備含む]
 J S T 負担による設備：ドラフトチャンパー
 地域負担による設備：

※複数の研究課題に共通した経費については按分してください。