

液中プラズマ法による金属炭化物ナノ粒子の合成

(岐阜大工) ○伊西拓弥・伴隆幸・大矢豊

【諸言】タングステンカーバイドやモリブデンカーバイド等の金属炭化物は燃料電池の白金触媒の代替材料として注目されている。従来、このような金属炭化物は金属粉末等と炭素とを混合し、還元雰囲気下で高温に加熱し炭化することにより製造されるため、製造条件を整えるためのコストや効率などの点で課題が多い。これまでの研究で、液中プラズマ法を用いて常温・常圧条件、少ないステップで通常は合成されることの少ない立方晶岩塩構造の炭化酸化タングステンやその他の金属炭化物ナノ粒子を合成できることを見出した。しかし、ナノ粒子形成のメカニズムはまだ分からない点が多い。そこで本研究では、プラズマ電源装置の放電条件を変化させたときの粒子への影響からナノ粒子形成のメカニズムを検討した。

【実験方法】1-ブタノールにテトラメチルアンモニウムヒドロキシドを 10 mM 加え溶液を調製した。その後、作成した溶液中でタングステン電極に約 1500 V でパルス幅 0.5, 1, 2, 3 μs のバイポーラパルスをそれぞれ印加し、グロー放電でプラズマ処理を行った。得られた粉末は XRD、TEM を用いて評価を行った。

【結果と考察】XRD 結果から、全てのパルス幅の条件で炭化酸化タングステンが生成することが分かった。Fig.1 に生成物の TEM 観察結果を示す。全ての条件で粒径 10 nm 前後の炭化酸化タングステンが生成していることが確認できた。また、生成した粒子の粒径を調べたところ、Table 1 に示すようにパルス幅が小さくなるにつれ平均粒径が小さくなることが分かった。

これらの結果をもとに粒子の生成メカニズムを検討した。プラズマは電極の先端で発生する気泡の中で極めて短い時間に発生と消滅を繰り返している。パルス幅の大きさはプラズマの発生時間に相当する。パルス幅が大きいほど 1 つのパルスで気泡中により多くの生成物の前駆体が生成する。その後、プラズマが消滅した瞬間に前駆体は互いに衝突し合う。この時に気泡内に存在する前駆体の量が多いため、より多くの前駆体が衝突し合い、より大きな炭化酸化タングステンナノ粒子に成長すると考えられる。

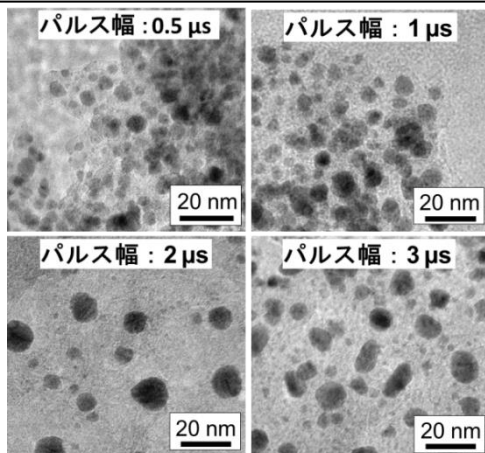


Fig.1 各パルス幅の条件下において生成した粒子の TEM

Table 1 各条件において生成した粒子の平均粒径

パルス幅 (μs)	平均粒径 (nm)
0.5	5.0
1	4.9
2	8.3
3	9.3