

# 液中通電法を用いた Au ナノ粒子作成に対する水溶液の依存性

## Electrolytic Solution Dependence of Au Nano-particles Preparation Using Electric Current Application in Liquid

中津川 博<sup>1</sup>、仁村 剣也<sup>1</sup>、岡本 庸一<sup>2,3</sup> (1. 横国大理工、2. 防衛大材料、3. NIMS)

Hiroshi Nakatsugawa<sup>1</sup>, Kenya Nimura<sup>1</sup>, Yoichi Okamoto<sup>2,3</sup>

(1. Yokohama Natl. Univ., 2. Natl. Def. Acad., 3. NIMS)

E-mail: naka@ynu.ac.jp

### 【はじめに】

近年、ナノテクノロジーが注目されるとともに、ナノ材料の開発が進んでいる。ナノ粒子の新しい作成方法として、岡本等<sup>1)</sup>は、ナノ結晶の原料を含まない  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  水溶液中に Au 電極を用いた液中(直流)通電法を用いて、Au ナノ粒子が作成されることを初めて報告した。今回は、水溶液と電圧反転時間の依存性に関して報告する。

### 【実験方法】

図1に示す通り、ガラスビーカーに 1L の水溶液を入れ、その中に電極を長さ 25 mm、中心間隔 10 mm で配置した。水溶液は、 $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  水溶液(約 pH13)、 $\text{Na}_2\text{CO}_3$  水溶液(約 pH13)、 $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$  水溶液(約 pH2) を濃度 1 mol/L で使用し、電極は、Au ( $\phi 1.0$  mm) を使用した。駆動電流は定電流駆動で、直流 2 A を通電した。約 2 分毎、或いは、約 10 秒毎に電流の向きを反転させて、総計 20~30 分通電した。その後、24 時間以上静置し、ビーカーの底に沈殿した Au ナノ粒子を回収した。回収した Au ナノ粒子は蒸留水で洗浄し、更に 24 時間以上静置して沈殿させた。この工程を 3 回繰り返した後に最終的に蒸発させて回収した Au ナノ粒子の XRD 測定、Sherrer の式を用いた粒径の算出、及び、TEM 画像を用いて粒子形状と粒径分布の観察を行った。

### 【結果と考察】

Au 電極と  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  水溶液を用いた場合、通電開始から最初の約 10 分間は水の電気分解が起きるだけでナノ粒子の生成はなかったが、その後、徐々に陰極側に黒色のナノ粒子が生成した。電流の向きを反転の繰り返しによってナノ粒子を電極から引き剥がした。図2に示す通り、XRD 測定の結果、回収されたナノ粒子は Au 単相である事が示され、Sherrer の式より、粒径は約 31nm と算出された。図3に示す通り、TEM 画像から粒径は 40nm 未満で、球状の様々なナノ粒子が生成している事が明らかとなった。

一方、Au 電極と  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  水溶液を用いた場合、実験開始直後から赤

茶色の物質が陽極側に大量に生成し、黒色の物質が陰極側にわずかに生成した。後者が Au ナノ粒子であると推測される。図2に示す通り、XRD 測定の結果、Au 単相である事は示されたが、回折強度は弱く、アモルファス like のハローピークも観測された。この Au(111)ピークから、粒径は約 24nm と算出された。また、図2に示す通り、電流の向きを反転するタイミングを約 2 分から 10 秒毎へ変更すると、よりシャープな Au の回折ピークが測定された。この条件での粒径は 19nm と算出された。講演では TEM 画像による考察も行う予定である。

更に、 $\text{Na}_2\text{CO}_3$  水溶液を用いて電流の向きを反転せずに通電する実験を 2 回行った。その結果、電極重量は陰極では平均 0.037%、陽極では平均 4.2% 消費していた。この電極重量の減少より、Au ナノ粒子の起源は、陽極から生成されると結論付けられる。講演では、 $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$  水溶液を用いた場合についても議論する予定である。

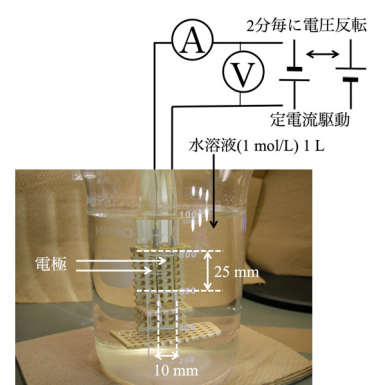


図1 実験装置模式図

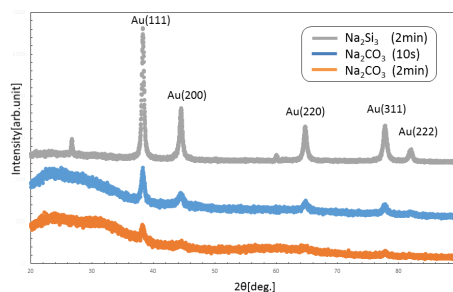


図2 XRD (Philips; X'pert MRD) 測定

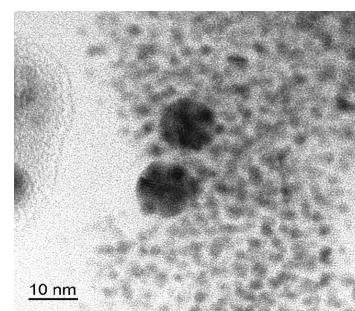


図3 TEM (Joel; JEM-2100F) 観察

1) 岡本 庸一、土志田 研治、山本 聖治、守本 純、第 76 回応用物理学会秋季学術講演会講演予稿集 (2015) 15a-PB1-15.