

大気圧窒素プラズマ法で合成した窒化炭素の XPS 分析

XPS study of carbon nitride synthesized by using atmospheric pressure plasma

岡山理大 荻野 統行、鬼丸 良太郎、平井 正明、安井 望、[○]財部 健一

Okayama University of Science

Motoyuki Ogino, Ryotaro Onimaru, Masaaki Hirai, Nozomu Yasui, [○]Kenichi Takarabe

E-mail: takarabe@das.ous.ac.jp

層状窒化炭素、graphitic-C₃N₄ (g-C₃N₄)はバンドギャップが約 2.7 eV 程度の半導体である。単層の層状窒化炭素を仮定した光学的性質の理論計算によると、大きなエキシトン効果のために高い状態密度が期待でき、その点に注目すると、発光あるいは受光デバイスへの利用が期待される。エネルギー準位が水の光分解に適していることから水の光分解光触媒として研究が進められている[1]。半導体利用と直接にはリンクしないが、超硬質窒化炭素を合成するための出発材料としてのポテンシャルも考えられる。2種類の層状窒化炭素モデルが提案されている。水素を含まない層状窒化炭素は g-C₃N₄ と化学式で書くことができる。C は N と 3 配位、N は C と 2 配位、3 配位する。水素を含む層状窒化炭素のモデル構造として Melon C₆N₆(NH)(NH₂)あるいは C₆N₉H₃ が提案されている。

○水素のない g-C₃N₄ {構造単位を heptazine(C₆N₇)とする} では、2 配位と 3 配位の窒素の比が 3:1 なる。

○Melon では 2 配位と 3 配位の窒素の比が 6:1 となる。水素終端された C₂-NH、C-NH₂ の窒素まで 3 配位に含めると、6:3=2:1 となる。

大気圧窒素プラズマ法を用いると窒素含有量の多いナノアモルファス層状窒化炭素が合成できる[2]。本法により合成した試料で、酸素が 1%程度と少ない窒化炭素の N 1s の X 線光電子(XPS)スペクトルを Fig.1 に示す。半値幅(1.4 eV)を同じとする 3 成分のガウス波形でフィットが可能である。3 成分に対応する窒素の局所的化学結合は、2 配位窒素 (ピリジン)、3 配位窒素、NH_x と、文献との比較から同定している。

Fig.1 中に各窒素成分を示す。2 配位窒素と 3 配位窒素の比は以下の通りである。

○ 3.36:1

○ 2.85:1 (NH, NH₂を含む)

2:1(NH, NH₂を含む), 3:1, 6:1 の 3 区分でみると 3:1

に近い。他の試料では 2:1 に近いものもある。大気圧窒素プラズマ法で合成した窒化炭素 (全てアニール処理をしている) の 2 配位窒素と 3 配位窒素の比が合成バッチで変動することが分かった。引き続き検討を進めている。

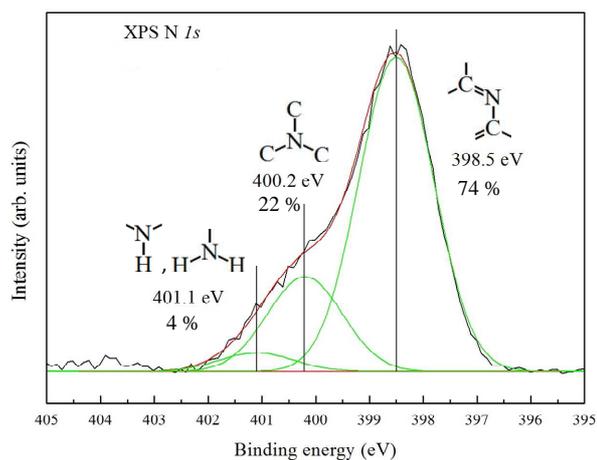


Fig.1 合成した窒化炭素試料の N 1s XPS スペクトル

[1] A. Thomas et al., *J. Mater. Chem.*, 2008, 18, 4893(2008). M. J. Bojdys et al, *Chem. Eur. J.* 14, 8177(2008); この論文は s-heptazine[C₆N₇]骨格モデルを提唱している。B. V. Lotsch et al., *Chem. Eur. J.*, 13, 4956,(2007); この論文は melon[C₆N₇(NH)(NH₂)]を提唱している。

[2] H. Tabuchi et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* 46, 1596 (2007).