

層状窒化炭素化合物の NEXAFS スペクトル

Near edge X-ray absorption spectroscopic studies of graphitic Carbon Nitride materials

九州シンクロトロン光研究センター¹, 岡理大理²

○岡島 敏浩¹, 瀬戸山 寛之¹, 財部 健一²

Kyushu Synchrotron Light Research Center¹, Faculty of Science, Okayama Univ. of Science²

○Toshihiro Okajima¹, Hiroyuki Setoyama¹, Kenichi Takarabe²

E-mail: okajima@saga-ls.jp

炭素 (C) と窒素 (N) から構成される層状の窒化炭素 ($g\text{-C}_3\text{N}_4$) は、燃料電池の Pt 触媒との置き換えを想定した酸素還元能、水分解の光触媒作用、そして蛍光体としての特性が近年報告され、関心が拡がりつつある。 $g\text{-C}_3\text{N}_4$ の層構造として、同一平面上に C, N の六員環 3 個を単位とする s-heptazine が繋がった構造モデルが提案されており、その層が積み重なり層状窒化炭素が形成されると考えられている。今回このモデルの検証を行うことを目的として、大気圧プラズマ法を用いて作製した試料¹⁾と構造モデルの第一原理計算の利用から求めた NEXAFS スペクトルの比較を行った。

NEXAFS スペクトルの測定は SAGA-LS BL12 の軟 X 線ビームラインを用いて全電子収量法で行った。 NEXAFS スペクトルの計算は、平面波基底の密度汎関数理論を使用したプログラムパッケージ “CASTEP” を使用し、内殻空孔の効果をとりいれて行った。

図は、大気圧窒素プラズマ法を用いて作製した試料の N K-edge NEXAFS スペクトルと第一原理計算から求めたスペクトルの比較である。測定試料は作製後に熱処理を行っていない試料 (Sample-1) と、真空中で 300°C の熱処理を行った試料 (Sample-2) に対して行った。これらのスペクトルの間で大まかな形状の変化は見られない。いずれのスペクトルとも低エネルギー側の 399.5eV に鋭いピークが観察されている。計算との比較から、このピークは 2 つの C と結合している N (NC_2 構造) の寄与である。一方、計算結果から 3 つの C と結合している N (NC_3 構造) のスペクトルは s-heptazine 内の N と、s-heptazine 同士を繋げる N との間で異なっていることがわかった。試料中の分子が配向しているため、実験と計算とでスペクトルの形状が大きく違っていると考えられる。C K-edge 領域での結果と合わせ、大気圧プラズマ法を用いて作製した $g\text{-C}_3\text{N}_4$ の構造を議論する。

NEXAFS スペクトルの測定は SAGA-LS の実験課題 (1204034P, 1201136P) で行った。

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

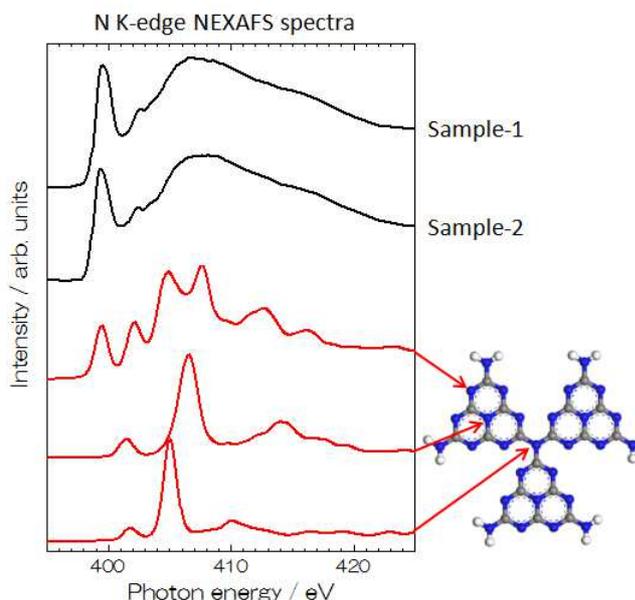


図 $g\text{-C}_3\text{N}_4$ 試料から得られた N K-edge NEXAFS スペクトル (黒実線) と、計算で求めた化学結合状態の違う N 原子の NEXAFS スペクトル (赤実線)。計算は配位環境の違う N に対して行っている。