大気圧窒素プラズマを用いた窒化炭素の合成、評価

Use of nitrogen atmospheric pressure plasma for synthesizing carbon nitride and

characterization

岡山理大 平井 正明、藤野 拓真、安井 望、⁰財部 健一

Okayama University of Science

Masaaki Hirai, Takuma Fujino, Nozomu Yasui, ^OKenichi 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、また、エネルギー準位が水の光分解に適しており、その点か ら光触媒のポテンシャル材料として研究が進められている[1]。また、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ている。ところで大気圧窒素プラズマ 法を用いるとナノアモルファス層状窒化炭素 na-g-C₃N₄H_xO_yが合成できる[2]。本合成による試料では炭素対窒素 組成が概ね 3:4 となる点が他の物理的合成法を比較すると面白いと思われるが、炭素や窒素の化学結合は理想的な 層状窒化炭素で期待されるものとは異なる結合を含む、また、水素と酸素を含む点も理想的 g-C₃N₄とは異なるな ど、本合成法で得られる試料を理想試料と比較したときの問題点は明確だが、まだそれを克服する方法の発見に までは至っていない。

Fig.1 に示すのは典型的合成試料のN*Is*のX線光 電子(XPS)スペクトルである。測定結果は半値幅(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。半値幅1.4 eV は XPS 装置分解能 0.7 eV の2倍である。その点を考慮すると、さらに多くの 成分を仮定したフィットも可能である。ここでは最 小数の成分でフィットを行っている。3成分に対応 する窒素の局所的化学結合は、ピリジン、3配位、 NH_xと、文献と複数の合成試料との比較から同定し ている。また、Fig.1 中に示した各成分の数値(%)は 窒素全体を 100% としたときの相対値である。 g-C₃N₄ のモデル結晶構造が提案されている[1]。それ は NH_x 終端構造のない2次元に広がった構造であ



Fig.1 合成した窒化炭素試料の N Is XPS スペクトル

る。また、ピリジンと3配位の窒素結合の比は 3:1 となる。Fig.1 からはその比は 3:4:1 である。理想構造からは 12%程度ピリジンが多い。また、フィットに用いたガウス波形の半値幅(1.4 eV)は装置分解能(0.7 eV)の2倍である。 NH_xはNH、NH₂と複数の化学結合を一つの波形としてフィットしているので半値幅が装置分解能よりも大きいこ とは当然である。同様の考えをピリジン、3配位窒素にも及した化学結合描像は考慮中である。講演では炭素の 化学結合にも触れる。

- [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).