## 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、<sup>○</sup>財部 健一

Okayama University of Science

Masaaki Hirai, Takuma Fujino, Nozomu Yasui, <sup>O</sup>Kenichi Takarabe

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

層状窒化炭素、graphitic- $C_3N_4$  (g- $C_3N_4$ )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  $na-g-C_3N_4H_xO_y$  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  $g-C_3N_4$  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 $_{\rm X}$  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- $C_3N_4$  のモデル結晶構造として、heptazine( $C_6N_7$ )を基本骨格とする結晶構造が提案されている[1]。それは  $NH_{\rm X}$  終端構造のない 2 次元に広がった構造であ

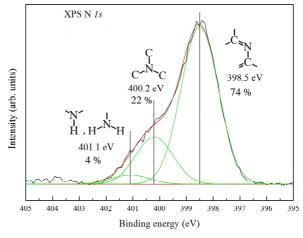


Fig.1 合成した窒化炭素試料の N Is XPS スペクトル

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  $NH_x$  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[ $C_6N_7$ ] 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[ $C_6N_7$ (NH)(NH $_2$ )]を提唱している。
- [2] H. Tabuchi et al., Jpn. J. Appl. Phys. 46, 1596 (2007).