グラファイト状窒化炭素から成る二次元ナノシートの化学的剥離

Chemical exfoliation of two-dimensional nano-sheets made from graphitic carbon nitrides

慶應大・理工　○岡本大矢，野田　啓

Keio Univ., °Daiya Okamoto, Kei Noda

E-mail: daiya1995@keio.jp

【背景と目的】高分子半導体にも分類されるグラファイト状窒化炭素（g-C_3N_4）は、可視域のバンドギャップエネルギー（約 2.7 eV）を有することや、窒素と炭素のみから構成されることから、金属フリーの有機光触媒材料や光電変換材料分野への応用が期待されている。特に、少数の層から成る g-C_3N_4 のナノシートは、バルク状態と比較してより高い比表面積を有し、より良好な触媒作用を有すると期待されている。そのため、グラフェンや他の二次元材料等と同様、単層や数層のナノシート状試料の作製が試みられているが、その手法は未だ確立されていないのが現状である。そこで本研究では、バルク状 g-C_3N_4 の化学的剥離による g-C_3N_4 の二次元ナノシートの作製を試み、得られた試料の構造評価を実施した。

【実験】グアニジン炭酸塩を大気中、550℃の条件で加熱し、バルク状 g-C_3N_4 を得た。その後、得られたバルク試料を濃硫酸に浸し、数時間攪拌した後、蒸留水で洗浄・ろ過し、得られた固体をイソプロパノール中で超音波洗浄した。その後、試料を十分に乾燥させ、エタノール中で更に数時間超音波洗浄した後、遠心分離を行った。得られた上澄み液を、親水化させた SiO_2/Si 基板表面上に滴下し、自然乾燥させた試料の表面形状を、原子間力顕微鏡（AFM）を用いて観察した。

【結果】濃硫酸で処理した後に得られた粉末の赤外吸収スペクトルを測定した結果、既報の g-C_3N_4 と同様の吸収が観測され、g-C_3N_4 の生成が確認された。また、遠心分離で得られた上澄み液を SiO_2/Si 基板に滴下した後に取得した AFM 像の一例を図 1 に示す。図 1 では大きさが数百 nm 程度で、高さが 2.2nm、及び 0.85nm の平面状物質の存在が確認された。単層 g-C_3N_4 に関する文献値から、これらはそれぞれ 6~7 層、及び 2~3 層の g-C_3N_4 ナノシートであると推察される。また AFM 像を統計的に取得したところ、おおよそ 2~10 層 の g-C_3N_4 が形成される結果となった。中には数 μm 程度の比較的な大きなサイズの数層グレインも確認できた。単層剥離が確認できなかった理由として、自然乾燥の際にナノシート同士が凝集してしまったこと、濃硫酸処理時に g-C_3N_4 層間の水素結合切断が十分でなかったこと、などが考えられる。

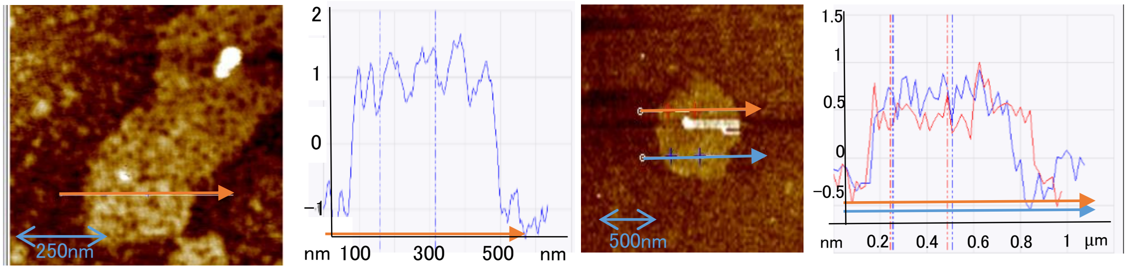

図 1. SiO_2 表面に堆積させた g-C_3N_4 ナノシートの AFM 像と断面プロファイル.