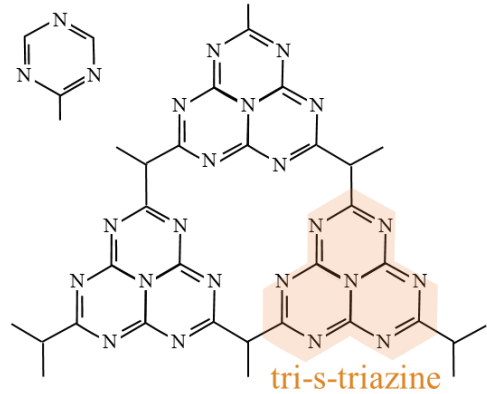


2024 年度カーボンニュートラル研究助成制度実施報告書

カーボンニュートラル推進特設部会 御中

以下のとおり研究実施報告書を提出します。

基 本 情 報	研究課題名：温室効果ガス排出量低減に向けた窒素含有黒鉛状炭素複合材料の合成と応用
	研究代表者 氏名： 谷口萌花
	【在籍者】 研究科・専攻・学年（学生証番号）：生命科学部 環境応用化学科 教務助手 【修了者等】 所属・職種：
	指導教員（所属・職・氏名）： （※在籍者のみ記入）
	共同研究者（所属・職・氏名）：法政大学 生命科学部 環境応用化学科 教授 緒方啓典 横浜市立大学 生命ナノシステム科学研究科 物質システム科学専攻 教授 橘勝
	その他 研究分担者：
	研究期間： 2024 年度
年 間 の 研 究 実 施 概 要	近年燃料電池に関する触媒として黒鉛状窒化炭素が着目されている。この材料は S-triazine 骨格から構成される化合物であり、黒鉛のような積層構造を取り、六員環の端に位置するピリジン型の窒素を豊富に含むことが特徴である。また C_3N_4 と C_4N_3 のように複数の化学組成を持ち、その組成により物性が大きく異なることが理論的に予測されている。中でも $g-C_3N_4$ は水素発生反応の光触媒として機能することが報告され、金属フリーの光触媒材料として期待されている。一方、$g-C_4N_3$ の合成報告例は少なく、以下の2報しかない。 1つは前駆体としてイオン液体を使用し、窒素雰囲気下で熱分解することにより窒素含有炭素材料を得ている。もう1つは、前駆体としてタンパク質由来物質溶液を使用し、ソルボサーマル法により作製した試料についての報告である。しかしながら、いずれの論文も、詳細な化学組成や結晶構造解析は行われていない。本研究では、これらの前駆体を用い、窒素含有炭素材料を合成し、その合成条件が局所構造に与える影響を明らかにすることを目的として、その作製条件と得られた試料の局所構造の関係を明らかにした。

図 1 $g-C_4N_3$ の構造模式図

合成方法として熱分解とソルボサーマル法に着目した。まず熱分解により得られた試料の解析結果を記載する。試料の構造を評価するため、粉末 X 線回折(XRD)、X 線光電子分光法(XPS)の測定を行った。XRD では黒鉛に由来するピークが確認され、黒鉛様構造を持つことが分かった。一方で各ピークがブロードであることから、面間隔に分布のある不均一な構造であると考えられる。また XPS から窒素の添加が確認でき、最も窒素を多く含む試料でもその組成は $C_4N_{1.55}$ であり、 C_4N_3 構造とは異なることが分かった。また XPS の $N1s$ スペクトルを解析したところ、窒素をグラファイト型、ピロリック型、ピリジン型、 $N=C-N$ 結合の窒素に分離することができた。

以上の結果から本研究でイオン液体から作製した試料は、均一な $g-C_4N_3$ 構造は出来ていないことが分かった。不均一かつ微小な黒鉛構造が形成されており、その一部が窒素に置換されていることも分かった。また、黒鉛構造である炭素の六員環の終端にダングリングボンドも存在している(図2)と考えられる。

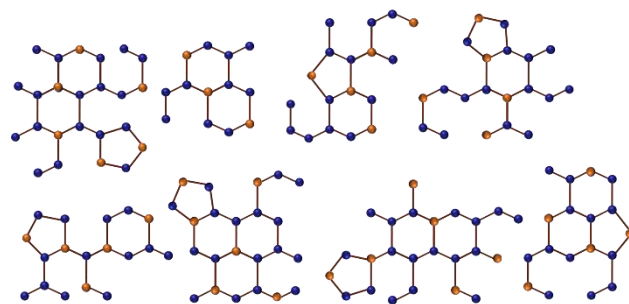


図2 本研究試料の構造概略図
(青：炭素、オレンジ：窒素)

同様にイオン液体を前駆体としてソルボサーマル法により試料の合成を行ったところ、窒素含有炭素材料が得られたものの、収率は低く、詳細な解析を行うことが困難であった。一方、タンパク質由来の前駆体を用いて作製した試料を同様に解析したところ、イオン液体から作製した試料と比較するとグラファイト型やピロリック型の窒素の含有率が多いことが分かった。本試料はこれら窒素種を容易に合成できる貴重な手法の一つである可能性があることが分かった。これらの試料も収率が極めて低く、詳細な構造解析および応用には合成条件のさらなる検討が必要である。

研 究 業 績	成果発表（学会・論文・研究会等）			
	学会・論文・研究会等の別		タイトル	発行または発表年月
	論文 Carbon Trends 16, 100375, 2024.		Structural and magnetic properties of nitrogen-doped carbon materials derived from an ionic liquid precursor	2024 年 6 月 28 日
	国際学会 A-COE 2024		Relationship between local structure and magnetic properties in N-doped graphitic carbon materials	2024 年 11 月 20 日
	国内学会 第 34 回日本 MRS 年次大会		Structural and magnetic properties of N-doped carbon materials prepared from different precursors	2024 年 12 月 17 日
	国内学会 第 67 回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム ※若手奨励賞受賞		Effect of synthesis methods on the structural and magnetic properties of N-doped graphitic carbon materials	2024 年 9 月 2 日
その他（アピールすることがあればご記入ください。）				
支 出 報 告	費目	計画時金額	実績額	備考
	設備備品費	175000		
	消耗品費	227000	281277	
	旅費	98000	107082	
	謝金等			
	その他 学会費		111641	
	合計	500000	500000	