

課題番号 : 2018B-E16
利用課題名 (日本語) : グラファイトに吸着添加された窒素原子が電子状態に与える影響
Program Title (English) : Influence of Nitrogen Atoms Adsorbed to Graphite on the Electronic States
利用者名 (日本語) : 徳永智春¹⁾, 久野孝平¹⁾, 杵本岳史¹⁾, 河上 匠¹⁾, 吉越章隆²⁾
Username (English) : T. Tokunaga¹⁾, K. Kuno¹⁾, T. Irimoto¹⁾, T. Kawakami¹⁾, A. Yoshigoe²⁾
所属名 (日本語) : 1) 名古屋大学, 2) 日本原子力研究開発機構
Affiliation (English) : 1) Nagoya University, 2) Japan Atomic Energy Agency

キーワード :

1. 概要 (Summary)

炭素触媒と NO_x との反応に関する研究において, 炭素触媒の"どこで", "どのような"反応が進行しているかは未だ明らかにされていない. 特に NO_x の中でも NO₂ は毒性が強く, この NO₂ を無毒化することが NO_x 除去に必要な要件である. グラファイトを NO₂ と反応させた試料の操作型及び透過型電子顕微鏡 (S/TEM) による微細構造観察及び, 電子エネルギー損失分光法による元素分析を行い炭素触媒の反応サイトを調査した結果, 反応前の試料からは窒素や酸素のエネルギー損失吸収端微細構造は得られなかったのに対し, 反応後の試料からは検出された. 更に, 窒素や酸素の検出強度はエッジより基底面において大きいことが明らかになったことから, グラファイトを NO₂ と反応させることにより, N がグラファイトに吸着あるいは添加されていることが判明している. S/TEM 観察により, グラファイト中において N がどこに吸着添加されているかを明らかにすることが可能であるが, N が吸着や添加されることにより, グラファイトの電子構造にどのような影響を与えるかは未知であり, これを明らかにすることで, グラファイトと NO₂ の反応過程を明らかにすることができると共に, 吸着や添加された場合の電子構造がどのように変化するかを調査した.

2. 実験 (目的, 方法) (Experimental)

試料にはグラファイトを使用した. グラファイトは主に基底面と端面が存在することから, 基底面から垂直に切断した端面試料を用意し, 大気圧の Ar+NO₂ ガス雰囲気中で 1 時間反応させた試料も用意した.

測定は Spring-8 BL23SU ビームラインにおいて C1s (280eV) および N1s(400eV)と価電子帯に着目して測定を行った. 比較としてガスと未反応のグラファイト

試料を測定し, 測定は室温で実施した.

反応前後の静的な測定結果を基に反応時間と共に電子状態がどのように変化するかを NO₂ ガス存在下でのリアルタイム XPS 測定を行った.

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

入射光に対し, 端面及び基底面の角度を調整することで, 各面における最表面及び, 最表面を含む数ナノメートル深い試料内部からのシグナルを取得した. 得られた N1s 及びそのサテライトシグナルから, 両面ともに最表面に窒素が存在することが明らかになった

が, 数ナノメートル深い所から窒素を検出することができたのは端面のみであった. この結果は, グラファイト表面で反応した窒素が, 基底面から内部に拡散したことを示している. またサテライトシグナルの解析の結果, 深い箇所が存在する窒素はパイ結合を形成していることから, C₃N 構造が形成されていることが示唆され, グラファイトの六員環中に, がグラファイトの六員環に組み込まれることが示唆された. 名古屋大学において得られたガスクロマトグラフの結果では, ガスとの応後数時間経過すると,

4. その他・特記事項 (Others)

なし.