

## 二国間交流事業 共同研究報告書

平成23年 4月 1日

独立行政法人日本学術振興会理事長 殿

共同研究代表者所属・部局 東北大学・多元物質科学研究所

職・氏名 (ふりがな) 教授・京谷 隆 きょうたに たかし

1. 事業名 相手国 (スペイン) との共同研究 振興会対応機関 (CSIC)

2. 研究課題名 負のガウス曲率をもつグラファイト曲面からなる規則性ナノカーボンの鋳型合成

3. 全採用期間

平成 21 年 4 月 1 日 ~ 平成 23 年 3 月 31 日 ( 2 年        ヶ月)

4. 経費総額

(1) 本事業により執行した研究経費総額 3,850,000 円

初年度経費 1,850,000 円、 2年度経費 2,000,000 円

(2) 本事業経費以外の国内における研究経費総額            円

## 5. 研究組織

### (1) 日本側参加者（代表者は除く）

氏名 <small>(ふりがな)</small>	所属・職名	研究協力テーマ
西原 洋知	東北大学・助教	規則性ナノカーボンの鋳型合成
干川 康人	東北大学・助教	規則性ナノカーボンの構造解析
糸井 弘行	東北大学大学院・博士課程後期学生	規則性ナノカーボンの化学修飾
岩村 振一郎	東北大学大学院・博士課程後期学生	規則性ナノカーボンの電池特性測定
N, Khanin	東北大学大学院・博士課程前期学生	負のガウス曲率をもつグラフェン合成
山本 健太郎	東北大学大学院・博士課程前期学生	ナノカーボンの圧縮による細孔径制御

### (2) 相手国側研究代表者

所属・職名・氏名

Consejo Superior de Investigaciones Cientificas, Instituto Nacional del Carbon • Research Professor • Diez Tascon Juan Manuel

### (3) 相手国参加者（代表者は除く）

氏名	所属・職名（国名）	研究協力テーマ
Amelia Martínez-Alonso	科学研究高等会議・研究員	規則性ナノカーボンの XRD 測定
Juan Ignacio Paredes Nachon	科学研究高等会議・研究員	規則性ナノカーボンの表面形状解析
Fabian Suarez Garcia Alberto Castro	科学研究高等会議・研究員	酸素プラズマによるカーボンエッチング
Muniz Pablo Solis	科学研究高等会議・研究員	規則性ナノカーボンの XPS 測定
Fernandez Maria Beatriz	科学研究高等会議・大学院生	計算科学による最適構造の決定
Vazquez Santos	科学研究高等会議・大学院生	規則性ナノカーボンの吸着特性測定

6. 研究実績概要（全期間を通じた研究の目的・研究計画の実施状況・成果等の概要を簡潔に記載してください。）

【研究の目的】本研究は、負のグラフェン曲面からなる3次元規則性カーボンナノネットワーク構造体（Carbon Schwarzite）を合成することを主目的として、本共同研究事業により現在支援を受け平成19年度から行っている。この間の研究でY型ゼオライトを鋳型として利用すれば3次元規則性をもつ多孔質カーボンを合成できることを実証するとともに、その分子構造を明らかにすることができた。本年度までの研究で合成できたカーボンの構造は完璧な Schwarzite 構造ではないが、それに近い構造を得ることができた。さらに本研究を進めることで、最終目標である Carbon Schwarzite 構造を合成することが目的である。そのため、Y型ゼオライトの規則的かつ複雑な曲面からなる細孔内壁にカーボン1層を均一に堆積させ、その後ゼオライトのみを除去することで、ゼオライト細孔の曲面を反映した負の曲面をもつカーボンナノネットワーク構造体を合成する。

【内容】カーボンを鋳型となるゼオライトの空洞にできるだけ大量に導入するために、次のような2つの方法を行った。まず、孔径が大きいY型ゼオライトと分子径が小さい炭素前駆体 CVD ガスを用いる。そのため、従来までの Na タイプではなく、H タイプのY型ゼオライトを用い、CVD ガスもアセチレンとする。さらに、CVD を減圧下で行いしかもパルス状に CVD ガスを供給することで、ゼオライトの空洞に効率的にカーボンを堆積させる。

【成果の概要】アセチレンをカーボン前駆体ガスとして利用し、Y型ゼオライト上でパルス CVD を行った。まず、600℃でアセチレンを1s流し、その後すぐに60s間真空排気を行った。この操作を何度も繰り返した後、さらに温度を700℃にして同様のパルス CVD を行った。これによりゼオライトナノチャンネル中におよそ37wt%のカーボンが充填された。この量はY型ゼオライトのスーパーケージ当たり72個の炭素原子が導入されたことに相当する。そこで、市販のモデリングソフトを用いて上記実験結果に合うようにゼオライトナノチャンネル中でカーボンの構造を構築した。この際、炭素原子は全てsp<sup>2</sup>である、半経験的分子軌道法で構造安定化できることな

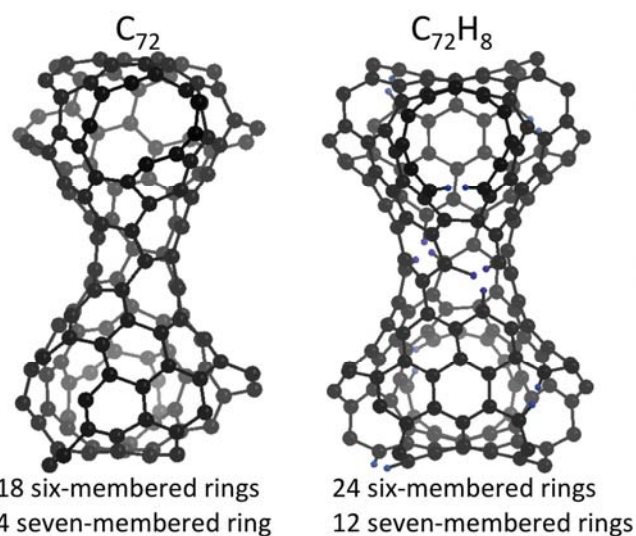


図1: Y型ゼオライトのナノチャンネルで生成したカーボンの構造モデル

どの条件を課した。その結果、図1に示すような2つの可能な構造が推定できた。これらの構造はスーパーケージ当たりそれぞれC<sub>72</sub>、C<sub>72</sub>H<sub>8</sub>の分子構造をもっており、重量割合を計算するとそれぞれ37.5wt%および37.8wt%となり実測値に近い。さらに表面積はそれぞれ2100 m<sup>2</sup>/g、1840 m<sup>2</sup>/gと計算でき、これも実測値の1900 m<sup>2</sup>/gに近い。これらの構造は負の曲面をもつ閉じた構造のグラフェンネットワークと言え、パルス CVD 法によりこのようなユニークな構造が生成した可能性がある。