

日本—V4 国際共同研究「先端材料」 2021 年度 年次報告書	
研究課題名（和文）	新常態社会に資する原子レベルで構造デザインしたカーボン系材料の開発
研究課題名（英文）	Atomic design of carbon-based materials for new normal society
日本側研究代表者氏名	西原 洋知
所属・役職	東北大学 材料科学高等研究所・教授
研究期間	2021 年 11 月 1 日 ～ 2024 年 10 月 31 日

1. 日本側の研究実施体制

氏名	所属機関・部局・役職	役割
西原 洋知	東北大学・材料科学高等研究所・教授	研究の総括
吉井 丈晴	東北大学・多元物質科学研究所・助教	カーボン材料の分析
潘 鄭澤	東北大学・材料科学高等研究所・助教	ハニカム調製
余 唯	東北大学・材料科学高等研究所・特任助教	エネルギー貯蔵
Kritin Pirabul	東北大学・多元物質科学研究所・博士課程 2 年生	グラフェン被覆
刘 宏宇	東北大学・多元物質科学研究所・博士課程 1 年生	多孔体の調製
千田 晃生	東北大学・多元物質科学研究所・修士課程 2 年生	カーボン材料の触媒応用

2. 日本側研究チームの研究目標及び計画概要

2021 年度は各国のチームとウェブ会議を重ねて綿密な計画を立てると共に、一部のサンプル交換も開始する。日本チームにおいては、単層グラフェンから成る 3D のヘテロ原子含

有カーボンの合成達成と高精度元素分析の検討開始、ナノ多孔体と単層グラフェン複合体の調製達成、持続可能な資源を利用したハニカム材の試作を目標とする。

2021 年度は以下の 4 つの実施項目、並びに他グループとの連携を行う。

T1.1 原子レベルで構造デザインしたヘテロ原子ドーブカーボンの合成

ヘテロ原子を含む有機化合物を高温でアルミナ等の無機ナノ粒子に接触させて、グラフェンシートにヘテロ原子が組み込まれたポーラスカーボンを合成する。従来のカーボンに組み込まれたヘテロ原子の検出感度は 0.1 wt%程度が限界であったが、これを上回る高感度での定量・定性分析が可能な新しい分析手法の開発も行う。

T1.2 原子レベルで構造デザインした機能性複合材料の合成

ナノ多孔性シリカ (SiO₂) の表面はアルミナや MgO と異なり、高温でグラフェンを成長させる触媒作用が殆ど無い。しかし一方で、シリカはナノ構造制御が最も進んだ金属酸化物であり、モルフォロジーの多様性・緻密な制御性は 3D グラフェン成長の基材として大きな魅力である。そこでシリカ表面を様々な手法で活性化し、原子レベルで構造制御したグラフェンを成長させる技術を開発する。

T1.3 先端カーボン系材料の持続可能な合成ルートの開拓

植物由来セルロースナノファイバーの水分散液にポリマーやグラフェン等を混合し、一方凍結により微小開口ハニカムモノリスを調製する。特に、セルロースナノファイバーの特性による影響に注力し、分散状態と氷晶の自己組織化との関係を探求し、目的の材料を達成する。また、セルロースナノファイバーを利用したカーボンハニカム材の調製も試みる。

T1.4 原子レベルで構造デザインしたグラフェン類似物質の合成

チェコのグループと連携し、鋳型法を利用することで比表面積の大きい g-C₃N₄ 材料の調製を行うための情報交換やサンプル交換を行う。

他グループとの連携

チェコのグループには単層グラフェンナノ多孔体を提供し、複合材料の調製を行う予定である。ハンガリーには単層グラフェンナノ多孔体を提供し、各種溶媒の分散安定性を検討してもらう予定である。また、種々の鋳型カーボン材を提供し、先端の分析手法を駆使した、包括的なカーボン材の官能基分析法を開発する計画である。ポーランドのグループには単層グラフェンナノ多孔体を提供し、固体高分子電解質を利用した柔軟キャパシタへの展開をしてもらう予定である。2021 年度はそのための研究打合せを行う。

3. 日本側研究チームの実施概要

2021 年度は各国のチームとウェブ会議を重ねて綿密な計画を立てると共に、一部のサンプル交換も開始した。日本チームにおいては、単層グラフェンから成る 3D のヘテロ原子含有カーボンの合成をほぼ完成させた。さらに、高精度元素分析技術に関しても改良を重ねほぼ完成の域に達した。ナノ多孔体と単層グラフェン複合体の調製も達成した。さらに、持続可能な資源を利用したハニカム材の試作も行った。コロナウイルスや戦争の影響で若干の遅れが生じたテーマもあったが、全体としてはほぼ計画通り順調に進行している。

2021 年度は以下の 4 つの実施項目、並びに他グループとの連携を行った。

T1.1 原子レベルで構造デザインしたヘテロ原子ドーブカーボンの合成

窒素を含有する原料を利用した化学気相蒸着を無機ナノ粒子に行うことで、グラフェン約 1 層から形成される 3D の N ドーブカーボンを合成した。また、合成後のカーボンを熱処理

することで、窒素の含有量やエッジサイトの量を変化させることができた。さらに、従来の窒素ドープカーボンの分析手法として一般的であった CHN 分析や X 線光電子分光の分析精度を大幅に回る、超高感度昇温脱離（TPD）を利用した新しい分析手法の開発を行った。スロバキアチームとの連携で、窒素が脱離する化学反応の理論的検討も行った。

T1.2 原子レベルで構造デザインした機能性複合材料の合成

シリカ系多孔体に比較的結晶性の高いグラフェンを組み込んだ新しいタイプの複合材料の調製を行った。調製した材料は高比表面積を有しており、またメソ孔容積が大きいため、酵素など巨大分子の吸着や担体としての利用が期待できる。

T1.3 先端カーボン系材料の持続可能な合成ルートの開拓

植物由来セルロースナノファイバーの水分散液にポリマー等を混合し、一方向凍結により微小開口ハニカムモノリスを調製した。セルロースナノファイバーの長さや分散性が、一方向凍結の際に氷晶の自己組織化で形成される形状に与える影響に関し、詳細な検討を行った。その結果、繊維の凝集状態や長さ、濃度と形成される構造との関係が明らかとなった。

T1.4 原子レベルで構造デザインしたグラフェン類似物質の合成

チェコチームにおいて、単層グラフェンナノ多孔体へ $g\text{-C}_3\text{N}_4$ を複合化させる検討を開始した。試作した材料に関し、X 線回折法（XRD）や N_2 吸着による分析を行った結果、狙い通りの材料が作製できていることが示唆された。

他国チームの研究への貢献

チェコ、ハンガリー、ポーランドの各チームとはそれぞれ個別にウェブ会議を行い、連携の詳細に関する議論を深めている。チェコチームにおいては、単層グラフェンナノ多孔体と無機材料との複合材料の調製の検討を開始した。ハンガリーチームにおいては、単層グラフェンナノ多孔体の溶媒分散性の検討を開始した。ポーランドチームにおいては、単層グラフェンナノ多孔体と固体電解質を組み合わせたキャパシタの構築を開始した。また、スロバキアチームとは昇温脱離による N 種の分析ならびに単層グラフェン多孔体のラマンスペクトルに関する連携を開始している。