

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号
特許第5027224号
(P5027224)

(45) 発行日 平成24年9月19日(2012.9.19)

(24) 登録日 平成24年6月29日(2012.6.29)

(51) Int.Cl.

C O 1 B 21/082 (2006.01)

F I

C O 1 B 21/082

K

請求項の数 14 (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願2009-518909 (P2009-518909)	(73) 特許権者	509011374
(86) (22) 出願日	平成19年7月13日 (2007.7.13)		カルボデオン リミテッド オサケユイチ
(65) 公表番号	特表2009-542574 (P2009-542574A)		ア
(43) 公表日	平成21年12月3日 (2009.12.3)		フィンランド国, エフイー-00120
(86) 国際出願番号	PCT/FI2007/000192		ヘルシンキ, プールバルディ 2 アー
(87) 国際公開番号	W02008/006935	(74) 代理人	100099759
(87) 国際公開日	平成20年1月17日 (2008.1.17)		弁理士 青木 篤
審査請求日	平成21年11月19日 (2009.11.19)	(74) 代理人	100077517
(31) 優先権主張番号	20060682		弁理士 石田 敬
(32) 優先日	平成18年7月13日 (2006.7.13)	(74) 代理人	100087413
(33) 優先権主張国	フィンランド (FI)		弁理士 古賀 哲次
		(74) 代理人	100111903
			弁理士 永坂 友康
		(74) 代理人	100102990
			弁理士 小林 良博

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 窒化炭素の製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

非金属ロダン化合物が熱分解されて窒化炭素材料を与えることを特徴とする、窒化炭素材料の製造方法。

【請求項 2】

非金属ロダン化合物はロダン化アンモニウムであることを特徴とする、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

熱分解は真空化条件で行われることを特徴とする、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 4】

圧力は $1.0^{-1} \sim 1.0^{-9}$ mmHg であることを特徴とする、請求項 3 に記載の方法。

【請求項 5】

熱分解は不活性ガス雰囲気下で行われることを特徴とする、請求項 3 に記載の方法。

【請求項 6】

不活性ガス雰囲気は窒素を含むことを特徴とする、請求項 5 に記載の方法。

【請求項 7】

不活性ガス雰囲気はアルゴンを含むことを特徴とする、請求項 5 に記載の方法。

【請求項 8】

熱分解は T_{max} 850、 T_{min} 周囲温度の勾配で行われることを特徴とする、請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 9】

熱分解は $T_{\max}$ 650、 $T_{\min}$ 周囲温度の勾配で行われることを特徴とする、請求項 1～8 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 10】

熱分解は $T_{\max}$ 500、 $T_{\min}$ 周囲温度の勾配で行われることを特徴とする、請求項 1～9 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 11】

窒化炭素材料は C_3N_4 の化学式を有することを特徴とする、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 12】

窒化炭素材料は黒鉛状構造を有することを特徴とする、請求項 1 又は 11 に記載の方法 10

【請求項 13】

窒化炭素材料は、製造される窒化炭素材料が痕跡量のイオウを含まない方法で製造されることを特徴とする、請求項 1～12 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 14】

窒化炭素材料は、製造される窒化炭素材料が、炭素、窒素、及び水素以外の他の元素を含まない方法で製造されることを特徴とする、請求項 1～13 のいずれか 1 項に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

20

【0001】

本発明は、非金属ロダン化物を簡便で経済的に可能な方法で熱分解することにより、炭素対窒素のモル比が約 3：4 の黒鉛状窒化炭素材料を製造する方法に関する。製造された窒化炭素材料は優れた性質を有し、例えば摩耗及び腐食に耐性のコーティング、エレクトロニクス、光学的コーティング、及び種々の複合材料のような用途で使用する事ができる。

【背景技術】

【0002】

β - C_3N_4 (β - Si_3N_4 と類似の窒化炭素材料) はダイヤモンドに匹敵する硬度を有するはずであると Cohen と共同研究者が提唱して以来、窒化炭素材料は多くの実験的及び 30
理論的関心の的になっている。以後の計算により、他の結晶性 C_3N_4 が β - C_3N_4 と同等又はそれ以上の安定性を有すること、及びこれらの構造体の多くは本質的に硬いことが証明された。 C_3N_4 構造体には、 α -、 β -、立方-、擬似立方-、及び黒鉛状窒化炭素がある。さらに、 C_2N_2 も、異なる化学構造を有するが、窒化炭素と呼ばれる。

【0003】

超硬度及び高密度の可能性のある C_3N_4 構造体を低密度でより軟らかい材料から区別する局所構造的性質は、炭素の配位である。硬い材料は C_3N_4 ネットワーク中で 4 面体すなわち sp^3 結合炭素を必要とし、一方 sp^2 結合炭素ははるかに軟らかい材料を導くであろう。硬い窒化炭素中で sp^3 結合炭素を有することの必要性は、無定形のダイヤモンドラ 40
イクカーボン (DLC) と完全に同じである (Hu et al., Physical Review B., vol 57, 1997, number 6, pages 3185-3188, 「窒化炭素材料中の窒素による sp^3 から sp^2 への変化」)。

【0004】

種々のダイヤモンドコーティングのように、窒化炭素コーティングもまた優れた耐摩耗性及び耐ひっかき性を有する。さらに、窒化炭素材料は耐腐食性であり、電気絶縁体、光学的コーティングとして作用することができ、特にこれらの材料は、対応する DLC コーティングで得られるものよりはるかに優れた耐熱性を有する。

【0005】

種々のコーティング/薄膜用途で非晶質 CN_x 構造を用いたときに良好な結果が得られているが、薄膜/コーティング構造中で窒素含量、従って窒化炭素中の結晶性が実現され 50

ると、性質が大幅に増強される。

【 0 0 0 6 】

一般に、この工業生産される窒化炭素コーティング / 薄膜は、窒素含量が 5 0 % 未満、すなわち C_3N_4 構造ではない、で非晶質である。

【 0 0 0 7 】

入手が容易なために、非晶質 CN_x 材料はすでに広く応用されている。この材料は、例えば、ハードディスクの保護膜で最も広く使用されている材料である (Widlow et al., Brazilian Journal of Physics, 2000, vol. 30, no. 3, 「非晶質及び結晶性窒化炭素コーティングの合成と性状解析における最近の進歩」)。かかる薄膜は一般に、純粋な窒素中で黒鉛を融除することにより種々の薄膜沈着法により製造され、非晶質窒化炭素からなる得られる膜は既存のコーティングより数倍優れた耐摩耗性を有する。

10

【 0 0 0 8 】

窒化炭素コーティング / 薄膜を製造するための他の試みは、レーザーアブレーション (融除)、誘導結合プラズマ化学蒸着、ソルボサーマル法、ならびに有機液体からの電子沈着により行われている。非晶質 CN_x 固体薄膜の核形成と成長が起きる多くの報告がある。一般にこれらの研究で製造される物質は非晶質であり、窒素含量は 5 0 % 未満、すなわち C_3N_4 構造ではない。

【 0 0 0 9 】

上記の薄膜沈着法により窒化炭素膜の窒素含量と結晶性とを上昇させるために、窒素含量の多い窒化炭素物質を粉末の形態で製造する多くの試みが行われている。好ましくは、かかる前駆物質は当然、一般に炭素：窒素比が 3 : 4 で、炭素 - 窒素結合が C_3N_4 窒化炭素材料に似ているであろう。

20

【 0 0 1 0 】

現在、化学物質又は混合物の熱化学分解 (熱分解) による窒化炭素の製造法が実際に関心をもたれている。

【 0 0 1 1 】

これはメラミン (C_3N_3) (NH_2)₃ と塩化シアヌール (C_3N_3) Cl_3 を反応槽に入れ、さらに加熱して最終生成物 C_3N_4 を生成させるような C_3N_4 の公知の製造法がある。

【 0 0 1 2 】

(上記した方法の) 欠点は、この方法では副産物としての H_2 と HCN の生成を防ぐことができないことである。このため、この方法の爆発性と毒性が上昇する [Montigaud H., Tanguy B., Demazeau G., Alves I., Courjault S. 「 C_3N_4 : 夢か現実か? C_3N_4 黒鉛型の肉眼的試料としてのソルボサーマル合成」、J. of Materials Science. 2000, V. 35, pages 2547-2552]。

30

【 0 0 1 3 】

窒化炭素 C_3N_4 の公知の合成法もある [米国特許第 6 4 2 8 7 6 2 号]。塩化シアヌール (C_3N_3) Cl_3 の粉末を窒化リチウム Li_3N の粉末と混合し、次に混合物を反応槽に入れ密封する。窒素流を反応槽に入れる。内容物を 3 0 0 ~ 4 0 0 に加熱し、ある時間インキュベートする。副産物を除去するために、製造された窒化炭素を冷却し洗浄する。

【 0 0 1 4 】

上記した方法の欠点は、次の通りである：このプロセスは、多段階であり、コストが高く、最終生成物 C_3N_4 の収率が低い。

40

【 0 0 1 5 】

C_3N_4 の公知の製造法もあり、ここではプロトタイプと見なす。[Dale R. Miller, Jianjun Wang, Edward G., 「窒素含量の高い窒化炭素粉末の迅速で容易な合成」、J. Mater. Chem. 2002, V. 12, P. 2463-2469]。この方法は、トリクロロメタン (C_3N_3) ($NHCl$)₃ を反応チャンパーに入れ、次に N_2 又は Ar の連続流により不活性条件を確保し、このガス流環境下で $T = 5 0 0$ までの加熱を行う。 (C_3N_3) ($NHCl$)₃ $\rightarrow$ $C_3N_{4+X} + 3 HCl + (2 - X) / 2 N_2$ の分解が起き、 C_3N_{4+X} (ここで、 $0.5 \leq X \leq 0.8$) が生成される。ガス状副産物である HCl と N_2 は、(反応) チャンパー中で不活

50

性ガスの流れとともに除去される。次にチャンバーは10分間冷却され、最終生成物はアセトンで洗浄され、次に $T = 130$ で乾燥される。この方法は、化学量論組成の C_3N_4 の入手を可能にせず、さらに、微量の水素、塩素、及び酸素を窒化炭素から完全に除去することは不可能である。

【0016】

窒素源としてのナトリウムアミドのようなアルカリ金属アミドを、炭素源としての塩化アルキル（例えばクロロホルム）と反応させることにより、窒化炭素のターゲットを製造するために、UV光支援合成が使用されている；Tien-Rong Lu, Cheng-Tzu Kuo, Teng-Ming Chen, Thin Solid Films 308-309 (1997) 126-129。この反応は、一連のポンプ及び過方法と、塩化アルカリ副産物を除去するための面倒な方法により、未反応の出発物質を分解する工程を含む。次に粉末物質は800 で焼結されて、窒素対炭素の比がまだわずかに0.23であるC、N、及びHを含むターゲット物質が得られる。

10

【0017】

Lappalainenらによる出願であるRU2005104194及びPCT/FI2006/000040は、制御された方法でアルカリ金属ロダン化物を熱分解することにより窒化炭素(C_3N_4)材料を製造する現実的な方法を記載する。しかしこの方法は、アルカリ金属由来の出発物質にのみ限定され、従って非金属ロダン化物（例えばロダン化アンモニウム）は除外される。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

20

【0018】

公知の製造法の大きな欠点は、これらの方法がしばしばいくつかの反応系列を含む高価で危険なプロセスで、最終生成物の収率が低く、炭素：窒素比が所望の比の3：4とは異なるかに異なるプロセスであることである。さらに、副産物を除去することが困難であり、洗浄方法は非効率的で時間がかかる。例えば窒化炭素材料の製造でアルカリ金属ロダン化物を使用するとき、窒化炭素生成物そのものの中に残りやすい種々のアルカリ金属塩の生成が発生する。かかる不純物は一般に、生成物の用途に負の影響を与える。

【0019】

ここで適当な出発物質は、範囲が極めて限定されている。

【課題を解決するための手段】

30

【0020】

ところで、本発明は、上記した問題を解決するものである。

【0021】

本発明は、非金属ロダン化物を簡便で経済的に可能な方法で熱分解することにより、炭素対窒素の比が約3：4の窒化炭素材料を与えることにより、窒化炭素材料を製造する方法に関する。この方法は、特に限定されないが、 α -、 β -、立方-、擬似立方-、黒鉛状（グラファイト）-、及び非晶質型（無定形）の C_3N_4 を含む異なる化学及び構造型の窒化炭素材料を製造するためにさらに使用することができる黒鉛状窒化炭素材料を製造する。

【0022】

40

窒化炭素材料は優れた性質を有し、例えば耐摩耗性及び耐腐食性のコーティング、エレクトロニクス、光学的コーティングのようなさまざまな用途で、また、例えば金属-、ガラス-、及びポリマー-由来の製品の性質を改良するための種々の複合材料で使うことができる。窒化炭素材料は、添加剤として、例えば金属、合金、異なる種類のポリマー製品ならびにガラス製品における複合体として使用することができる。これらの材料は、エレクトロニクス及び半導体の製造、家庭用機器及び医療機器、穿孔、粉碎、及び研磨製品の製造、青色発光体の製造、コンピューターハードディスクのスプレーコーティング、金属加工で使われる頑丈な器具の製造、太陽電池材料などとして使用することができる。さらに、黒鉛状窒化炭素は、燃料電池材料として、及び異なる条件における潤滑剤として使用することができる。窒化炭素は熱的及び化学的に非常に安定な物質であるので、多

50

量に入手できるなら、多くの新しい用途、例えば、化学プロセス装置のコーティング、クリープ強化、及び異なる目的の異なる金属グレードの摩耗及び/又は硬度を改良するためなどに利用されるであろう。1つの代表的な問題は、例えば何千年という時間枠で核廃棄物を保存する時の銅物質のクリーピングである。

【0023】

驚くべきことに、本発明者らは、例えばロダン化アンモニウムのような非金属ロダン化物が、単に該ロダン化物を熱分解することにより、窒化炭素の製造において効率的かつ経済的な方法で使用できることを見いだした。アルカリ金属ロダン化物の熱分解と比較しても、収率は上昇し製造コストはさらに低下する。この反応でアルカリ金属も微量金属も生成されないため、副産物を除去するために面倒な一連の洗浄工程を伴わずに生成物を得ることができる。

10

【0024】

存在する場合、かかる副産物は、製品の用途に重大な悪影響を与えるであろう。

【0025】

比較的安価な原料を使用し、既知の最終生成物の収率を上げることにより、多くの公知の製造法と比較して、製品コストを10～20倍低下させることができるであろう。粒子状の窒化炭素材料の定量的生産のための実際の製造法が提供される。

【0026】

アルカリ金属ロダン化物のように、式： $4MeCN \rightarrow 2Me_2S + C_3N_4 + CS_2$ に従って有機金属ロダン化物を使用すると、化学量論的組成と不純物（これは毒性のHCNを含有しない）をもった窒化炭素 C_3N_4 が生成し、温度勾配が、炉投入物の完全な分解と CS_2 の凝縮を確実にする。この反応プロセスで同時に生産される有機硫化物は、水に充分溶解されて、純粋な黒鉛状窒化炭素材料の製造を確実にする。温度変化速度と炉投入物の浸漬もしくはアニーリング時間を変化させることにより、種々の組成の黒鉛状窒化炭素材料を得ることができることがわかった。 C_3N_4 ポリマー構造の全体のサイズが大きくなると、水素含量が低下し、C:N比が3:4に近づく。

20

【0027】

熱分解は、少なくとも2つの連結し密封された形の容器でできた反応チャンパー中で有利に行われる。このような特徴は、閉じられた容積中で反応プロセスを行うことを可能にし、そして全プロセスを環境にやさしいものにし、高純度と副産物の迅速な除去、及び C_3N_4 製造コストの低減を確実にする。このプロセスはスケールアップが容易であり、比較的無害な化学物質のために、いくつかの異なる反応物質を製造装置中で使用することができる。このことは次に、全体の製造コストをさらに低減させる。

30

【図面の簡単な説明】

【0028】

添付の図面は、窒化炭素材料を製造するためのいくつかの反応器構成の可能性を示すものである。

【図1a】窒化炭素材料を製造するための反応器構成の可能な実施態様を示す模式図である。

【図1b】窒化炭素材料を製造するための反応器構成の可能な実施態様を示す模式図である。

40

【発明を実施するための形態】

【0029】

本発明は、有機ロダン化物が熱分解されて窒化炭素材料を与える形の、窒化炭素材料を製造する方法に関する。ここで、「熱分解」とは、熱による化合物の分解又は変換を意味する。ここで、「ロダン化物」とは、チオシアネート/イソチオシアネート(SCN ; CNS)化合物を意味する。ここで、「窒化炭素材料」とは、異なる CN_x 、 C_2N_2 、そして特に C_3N_4 物質を意味する。ここで、「有機」とは、非金属化合物で、また分子骨格中に炭素を含有しないあらゆるものを意味する。ここで、「金属」とは、アルカリ金属を含むあらゆる種類の金属を意味する。

50

【0030】

本発明の方法は、窒化炭素材料の製造においてすべての種類の非金属ロダン化物の使用を可能にする。特に好適な非金属ロダン化物はロダン化アンモニウム (NH_4SCN) である。ロダン化物は単独又は混合物として使用することができる。製造速度を上昇させ及び/又は生成物の構造組成を微調整するために、反応は適切な触媒を用いて触媒され得る。非限定例は、亜鉛由来の触媒、例えば塩化亜鉛である。

【0031】

熱分解は、好ましくは酸素及び/又は水素の実質的な不存在下で行われる。最も好ましくは、熱分解は酸素及び/又は水素の完全な不存在下で行われる。酸素の存在は生成物の収率を劇的に低下させ、水素は爆発の危険を上昇させる。

10

【0032】

本発明のある好適な実施態様において、かかる条件は真空条件で熱分解を行うことにより達成され得る。真空条件で熱分解を行う場合、圧力は、 $10^{-1} \sim 10^{-9} \text{ mmHg}$ 、好ましくは $10^{-3} \sim 10^{-7} \text{ mmHg}$ 、最も好ましくは $10^{-4} \sim 10^{-6} \text{ mmHg}$ であることができ、ガス状不純物を除去するために不活性ガスの流れを使用可能である。

【0033】

本発明の別の好適な実施態様において、有機ロダン化物の熱分解は、高純度の不活性ガス雰囲気中で行われる。好ましくは、かかる不活性雰囲気は、窒素、ヘリウム、又はアルゴンを含む。

【0034】

20

本発明のある好適な実施態様において、熱分解は、 $T_{\text{max}} \quad 850$ 、 T_{min} 周囲温度の勾配で行われる。本発明の第2の好適な実施態様において、熱分解は、 $T_{\text{max}} \quad 650$ 、 T_{min} 周囲温度の勾配で行われる。さらに別の本発明の好適な実施態様において、熱分解は、 $T_{\text{max}} \quad 500$ 、 T_{min} 周囲温度の勾配で行われる。温度を 500 以上に上げると、 C_3N_4 の部分的分解が起きて生成物の収率を低下させるため、好ましくない場合がある。異なる出発物質は作用が異なり、異なる温度は典型的には異なる構造の窒化炭素材料を与えることがある。ポリマーサイズ、従って正確な水素含量及び生成物化合物の C : N 比は、異なる温度を用いることにより調整することができる。従って、本発明の範囲は、上記の該温度勾配に限定されるものではない。

【0035】

30

本発明のある好適な実施態様において、温度勾配は、本質的にチャンバーの全体を通じて生成される。ここで、「チャンバー」は、熱分解が行われる反応器を意味する。本発明の好適な実施態様において、生成される CS_2 及び揮発性不純物は、反応器の窒化炭素材料を本質的に含まない部分で凝縮される。生成される有機硫化物、例えば亜硫酸アンモニウム (ロダン化アンモニウムを使用する場合) は、好ましくは最終生成物 C_3N_4 から水で洗い流すことができる。反応器の形又は材料は限定されず、異なる金属グレード、ガラス、セラミクスなどから形成することができる。2つの実験室スケールの石英チューブ反応器の候補が図1a及び図1bに示される。

【0036】

本発明は、所望の分子比の黒鉛状構造を含む窒化炭素材料の製造を達成する。好ましくは、かかる窒化炭素材料は、約 3 : 4 の炭素対窒素の原子比を有する。

40

【0037】

窒化炭素材料は粒子の形態で製造されるが、加工して粉末、フレーク、膜、ファイバー、発泡体、箔、マイクロ箔、顆粒、絶縁ワイヤ、ハニカム構造体、分散物、ラミネート、塊、メッシュ、金属化膜、不織布、単繊維、ロッド、シート、単結晶、球体、チューブ、ワイヤ、そして例えばスパッタリング/パルス化プラズマアーク放電/レーザーアブレーション (融除) のターゲットとすることができる。製造時、通常の粉末加工法、例えば混合、タブレット化、焼結技法を使用することができる。

【実施例】

【0038】

50

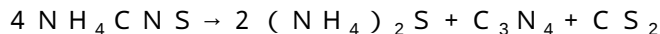
窒化炭素材料を製造するための本発明の方法を以下に記載するが、本発明は下記の実施例に限定されるものではない。合成窒化炭素材料は、X線粉末回折、赤外線吸収、及びキャリアガス（ヘリウム）流中で還元溶解して次にクロマトグラフィー分離を行うことにより同定した。元素分析は、パーキンエルマー社製のシリーズII CHNS/O Analyzer2400を使用して行った。

【0039】

実施例 1

窒化炭素 C_3N_4 を得るために、10.00 g 量のロダン化アンモニウムを取り、これを反応チャンバー（石英ガラス製で、2つの連結容器の形をしている）に入れた。チャンバーを $10^{-4} \sim 10^{-5}$ mmHg の圧力まで真空化し、密封した。チャンバーをオープン（カーボライト社製）に入れ、 $T = 600$ に加熱し、容器中で温度勾配 $T_{max} = 600$ 、 T_{min} = 周囲温度を維持した。下記の反応を12時間行った。

【0040】



【0041】

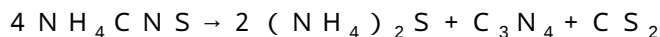
生成した CS_2 と揮発性不純物は、温度勾配の存在のために1つの容器の中で凝縮した。この容器を取り出した。硫化アンモニウム $(NH_4)_2S$ は容易に水に溶解し、従って単に洗浄するだけで容易に除去された。その結果、黒鉛状窒化炭素 C_3N_4 が淡褐色粉末として得られ、その収率は20%であった。X線解析では、窒化炭素材料は、この分野で報告されていると同様の炭素 - 窒化物結合と構造を有した。元素分析は以下の生成物組成を証明した： $C_3N_{4.5}H_{0.9}$ 。痕跡量のイオウも他の元素も存在しなかった。

【0042】

実施例 2

窒化炭素 C_3N_4 を得るために、10.00 g 量のロダン化アンモニウムを取り、これを反応チャンバー（石英ガラス製で、2つの連結容器の形をしている）に入れた。チャンバーを $10^{-3} \sim 10^{-4}$ mmHg の圧力まで真空化し、密封した。チャンバーをオープン（カーボライト社製）に入れ、 $T = 650$ に加熱し、容器中で温度勾配 $T_{max} = 650$ 、 T_{min} = 周囲温度を維持した。下記の反応を12時間行った。

【0043】



【0044】

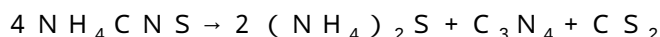
生成した CS_2 と揮発性不純物は、温度勾配の存在のために1つの容器の中で凝縮した。この容器を取り出した。硫化アンモニウム $(NH_4)_2S$ は容易に水に溶解し、従って単に洗浄するだけで容易に除去された。その結果、黒鉛状窒化炭素 C_3N_4 が淡褐色粉末として得られ、その収率は17%であった。X線解析では、窒化炭素材料は、この分野で報告されていると同様の炭素 - 窒化物結合と構造を有した。元素分析は以下の生成物組成を証明した： $C_3N_{4.33}H_{0.87}$ 。痕跡量のイオウも他の元素も存在しなかった。

【0045】

実施例 3

窒化炭素 C_3N_4 を得るために、10.00 g 量のロダン化アンモニウムを取り、これを反応チャンバー（石英ガラス製で、2つの連結容器の形をしている）に入れた。チャンバーを $10^{-4} \sim 10^{-5}$ mmHg の圧力まで真空化し、密封した。チャンバーをオープン（カーボライト社製）に入れ、 $T = 500$ に加熱し、容器中で温度勾配 $T_{max} = 500$ 、 T_{min} = 周囲温度を維持した。下記の反応を12時間行った。

【0046】



【0047】

生成した CS_2 と揮発性不純物は、温度勾配の存在のために1つの容器の中で凝縮した。この容器を取り出した。硫化アンモニウム $(NH_4)_2S$ は容易に水に溶解し、従って単に洗浄するだけで容易に除去された。その結果、黒鉛状窒化炭素 C_3N_4 が淡褐色粉末とし

て得られ、その収率は 14 %であった。X線解析では、窒化炭素材料は、この分野で報告されていると同様の炭素 - 窒化物結合と構造を有した。元素分析は以下の生成物組成を証明した： $C_3N_{4.45}H_{0.9}$ 。痕跡量のイオウも他の元素も存在しなかった。

【図 1 a】

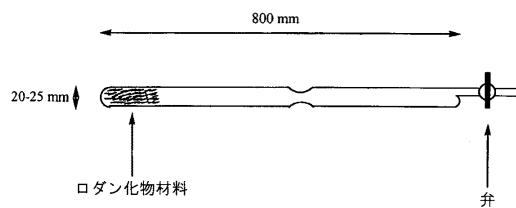


Figure 1a

【図 1 b】

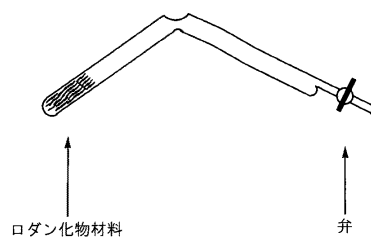


Figure 1b

フロントページの続き

(74)代理人 100093665

弁理士 蛭谷 厚志

(72)発明者 ママケール, モハンマド アレフ ハサン

デンマーク国, デーコー - 8 4 6 4 ガルテン, フェオスト, スコーレバッケン 1 7

(72)発明者 フィリップフ, セルゲイ ニコラエビッチ

ロシア国, 1 9 3 2 0 0, ピーターズブルク ストリート, クリレンコ シュトラーセ 1 9 - 1
- 7 1

(72)発明者 ラパライネン, レイヨ

フィンランド国, エフィー - 7 0 8 7 0 ヒルトゥランラーティ, ハッポゼナホンティエ 2 4

審査官 廣野 知子

(56)参考文献 特開 2 0 0 4 - 2 8 4 9 1 0 (J P , A)

特開 2 0 0 4 - 3 2 3 3 1 6 (J P , A)

特表 2 0 0 1 - 5 2 6 6 1 8 (J P , A)

特開 2 0 0 6 - 1 2 4 2 5 0 (J P , A)

(58)調査した分野(Int.Cl., D B 名)

C01B 21/082

C04B 35/00-35/22

C01B 3/00-6/34

JSTPlus/JST7580(JDreamII)