

大気圧窒素プラズマ法を用いて作製された層状窒化炭素の光学的性質 における非晶質性と局在状態

Effects of structural disorder on optical properties of graphitic carbon nitrides
fabricated by using nitrogen atmospheric pressure plasma

筑波大数物¹、岡山理大² ○山本 淳司¹、平井 正明²、安井 望²、財部 健一²、松石 清人¹

Institute of Materials Science, University of Tsukuba¹, Okayama University of Science²

○Atsushi Yamamoto¹, Masaaki Hirai², Nozomu Yasui², Kenichi Takarabe², Kiyoto Matsuishi¹

E-mail: yamamoto@bunko2.bk.tsukuba.ac.jp

graphitic-C₃N₄ (g-C₃N₄)は heptazine(C₆N₇)骨格からなる 2 次元構造がファンデルワールス力により積層してできた、グラファイトのような 3 次元構造を持つ物質である。2007 年に岡山理科大学の財部らは大気圧窒素プラズマ法を用いた層状窒化炭素 na-g-C₃N₄H_xO_y の合成に成功した[1]。彼らが作製した na-g-C₃N₄H_xO_y は化学的手法で作製された g-C₃N₄ に較べて、より構造的に乱れた非晶質性を有しているのが特徴である。g-C₃N₄ や na-g-C₃N₄H_xO_y は光触媒や光学素子、超硬質物質合成の出発材料として注目されている。本研究では na-g-C₃N₄H_xO_y について、光吸収測定、および発光(Photoluminescence, PL)測定を行い、その光学的性質を調べた。

Fig.1 に na-g-C₃N₄H_xO_y の吸収係数の Tauc プロットと発光スペクトルを示す。Tauc プロットより、光学ギャップは 2.58 eV であることが分かった。また、発光スペクトルのピークエネルギーは 2.79 eV であった。さらに、光吸収スペクトルの Urbach 領域の解析より、構造の乱れに関する知見を得た。na-g-C₃N₄H_xO_y をアニーリングした試料、および na-g-C₃N₄H_xO_y よりも N/C 比が小さい na-g-C₂NH_xO_y についても同様の測定を行ったところ、アニーリングにより光学ギャップが小さくなり、N/C 比が小さいほど光学ギャップが小さくなることが示唆された。

Fig.2 には発光スペクトルのピークエネルギーの He-Cd レーザ光(3.82 eV)の照射時間依存性を示す。空气中で 6 時間にわたって、He-Cd レーザ光を試料に照射しつづけたまま発光測定を行ったところ、発光強度が約 30 倍に増加し、発光スペクトルのピークエネルギーが 2.46 eV から 2.85 eV までブルーシフトした。一方、真空中で同様の測定を行ったところ、発光強度はほとんど変わらないままピークエネルギーは 2.37 eV から 2.29 eV までわずかにレッドシフトした。これは He-Cd レーザ光照射を受けて、酸素が関係する局在電子状態の分布が変化するためであると考えている。具体的には、試料表面にエポキシ結合 C-(O)-C などの発光中心が形成したことが考えられる。

現在、na-g-C₃N₄H_xO_y の高温高压焼結処理により、結晶性を高めた試料の作製を進めている。試料の非晶質性及び光学的性質について、議論をより深めていきたいと考えている。

[1] H. Tabuchi et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **46**, 1596 (2007).

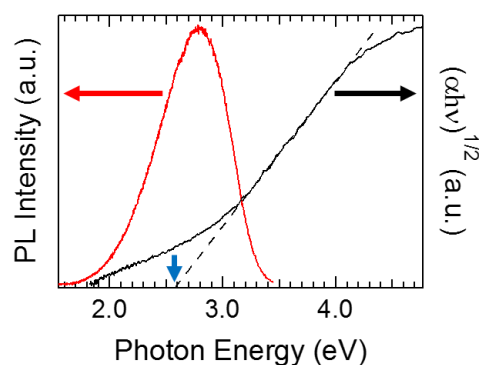


Fig. 1 Photoluminescence spectra and Tauc plots of absorption coefficients of na-g-C₃N₄H_xO_y. The blue arrow indicates the optical gap.

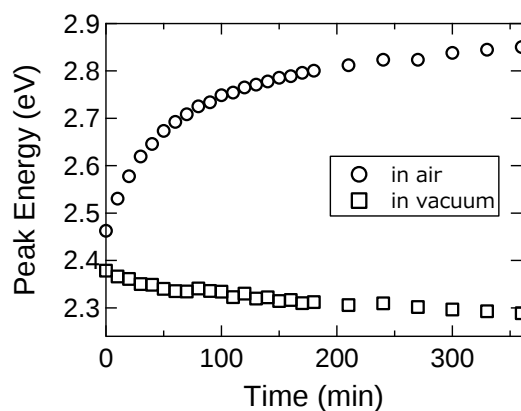


Fig. 2 Light irradiation time dependence of photoluminescence peak energy. The light irradiation was carried out with a He-Cd laser (3.82 eV).