

ナノアモルファス層状窒化炭素の光学的性質における非晶質性

Effects of structural disorder on optical properties of nano amorphous graphitic carbon nitrides

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)は光触媒作用を示し、またドーピングにより電子状態の制御が可能であることから、触媒や光学素子への応用が期待されている。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ナノアモルファス層状窒化炭素 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 heptazine(C₆N₇)構造を基本骨格とする乱層構造を持つことがすでに分かっている。本研究では na-g-C₃N₄H_xO_yについて、光吸収測定、発光(Photoluminescence, PL)測定、および発光の励起スペクトル測定を行い、その光学的性質を調べた。また、炭素原子に対する窒素原子の組成比(N/C比)とアニーリングが光学的性質に及ぼす影響についても調べた。

大気圧窒素プラズマ法を用いて作製された N/C比が異なる2つの As-grown 試料、およびそれらをアニーリングした3つの Annealed 試料、合計5つの試料(Table1)について、光吸収測定と発光測定を行った。光吸収測定の結果より、Fig.1のように Taucプロットを行い、その直線部分と吸収係数 $\alpha = 0$ の交点(青矢印)からアモルファス半導体のエネルギーギャップに相当する光学ギャップ(Optical gap)を決定した。N/C比が異なる As-grown 試料(ID1とID2)を比較したところ、N/C比が低いほど、光学ギャップが小さくなった。また、As-grown 試料と Annealed 試料を比較したところ、アニーリングにより光学ギャップが小さくなった。一般的に固体物質の基本的電子物性を決定しているのは、主として構成原子の短距離秩序であることから、アニーリングにより短距離秩序に変化が生じていることが考えられる。また、光学ギャップを反映して、PLスペクトルのピーク位置も各試料で異なることを確認した。当日は、Urbach領域の解析から得られた系の乱れに関する知見、発光の励起スペクトル測定で確認したサイト選択励起発光、および発光スペクトルの光照射依存性(酸素の効果)から、このナノアモルファス層状窒化炭素の局在電子状態の分布について議論する。現在、na-g-C₃N₄H_xO_yの高温高压処理により結晶性を高めた試料の作製を進めており、試料の非晶質性が関係する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).

Sample	Preparation condition (Annealing conditions)	Composition	CN _θ θ (= N/C)	Optical gap (eV)	PL peak position (eV)
ID1	As-grown	C ₃ N ₄ H _x O _y	1.33	2.58	2.79
ID3	Annealed ID1 (Vacuum, 300°C, 30 min)	C ₃ N _{4-z} H _x O _y	< 1.33	2.04	2.64
ID5	Annealed ID1 (N ₂ , 400°C, 1 h)	—	—	2.13	2.62
ID2	As-grown	C ₂ NH _x O _y	0.5	2.00	2.73
ID4	Annealed ID2 (Vacuum, 300°C, 30 min)	C ₃ N ₂ H _x O _y	0.67	1.72	2.59

Table 1 Preparation conditions, compositions, optical gaps and photoluminescence peak positions of samples studied in this work.

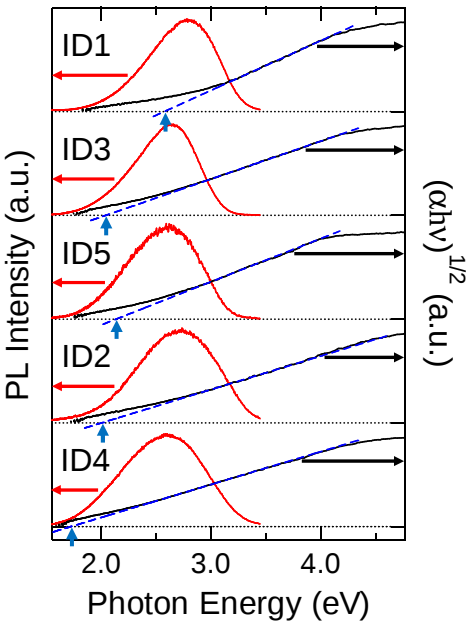


Fig. 1 Photoluminescence spectra and Tauc plots of nano amorphous graphitic carbon nitrides. The blue arrows indicate the optical gaps.