

尿素加熱による高分散性窒化炭素青色蛍光粉末の作製と 青色発光素子への応用

Preparation of Carbon Nitride Powder with High Dispersibility by Heating Urea for Blue Light-Emitting Devices

同志社大学¹, [○](M2) 湊 祥太¹, 渡辺 貴大¹, 和田 克也¹, 大谷 直毅¹

Doshisha Univ.¹, [○]Shota Minato¹, Takahiro Watanabe¹, Katsuya Wada¹, Naoki Ohtani¹

E-mail: ctwc0339@mail4.doshisha.ac.jp

グラファイト状窒化炭素(g-C₃N₄)は大気中で安定であり、青色蛍光を示す物質である。これを発光材料に用いることで、InGaN 青色 LED に変わる、低コストで安全な青色発光デバイスの作製を目指している。グラファイト状窒化炭素の粉末はメラミンの焼成によって作製される¹⁾。発光素子として利用するためには材料を薄膜にする必要があるが、蒸着を用いることで基板上に簡単に成膜できる。しかしこの方法では、基板を 400 °C 以上の高温で加熱する必要があった。そこで予め焼成により作製した窒化炭素粉末を用いて、真空蒸着による成膜を試みたが、基板上で重合反応が起きず、材料粉末と比べて短波長側の紫色に近い蛍光が見られる結果となった²⁾。

そこで新たな成膜方法を検討するにあたり、加熱材料を尿素やグアニジン炭酸塩に変更し、窒化炭素の粉末作製を試みたところ、尿素加熱による窒化炭素が、他の作製手法によるものと比べて、硬度の小さい材料となることがわかった。そこで新たに加熱条件を検討し、尿素による窒化炭素粉末作製を行うと、紫色より青色に近い蛍光を示し、かつアルコールへの分散性の良い焼成粉末を作製できた。よって本報告では、材料粉末の変更が物性に与える影響を測定した結果と、液体に分散した結果を改めて報告する。

まず、材料粉末と加熱条件を数種類用意して窒化炭素粉末の作製を行い、赤外吸収スペクトルを測定した。結果を Fig. 1(a)に示す。メラミンの焼成粉末のスペクトル(melamine, 450 °C、500 °C、550 °C)をみると、melamine, 450 °Cのメレム(C₆H₆N₁₀)に特徴的なスペクトル(1600 cm⁻¹, 1450 cm⁻¹付近に現れる 2 本のスペクトル)から、melamine, 550 °Cのグラファイト状窒化炭素のスペクトル(1700 cm⁻¹ から 1200 cm⁻¹ にかけて現れる複雑なピーク)へ変化する様子がわかる³⁾。一方で、メラミンとグアニジン炭酸塩の焼成粉末のスペクトル(melamine, guanidine carbonate, 500 °C)を比較すれば、melamine, 500 °Cがメレムに近いピークを示しているのに対し、guanidine carbonate, 500 °Cは、melamine, 550 °Cや guanidine carbonate 550 °Cのようなグラファイト窒化炭素に近いピークを示している。よって、これらの材料を同様の温度に加熱しても同じ構造になるとは限らないとわかる。特に、尿素の焼成粉末(urea, 520 °C)は他の物質とは違い、メレムとグラファイト状窒化炭素との中間のようなスペクトルを示した。次に蛍光スペクトルを Fig. 1(b)に示す。尿素の焼成粉末(urea, 520 °C)はメレム(melamine, 450 °C)よりも長波長側で蛍光し、より青色に近い発光をみせた。さらにこの粉末(urea, 520 °C)の分散性を評価するため、メタノールに超音波分散させ、4 日間放置した結果が Fig. 1(c)の左である。他の窒化炭素(例として写真右側の urea, 620 °Cやグアニジン炭酸塩 550 °C)と比較して高い安定性を持ち、分散質量の多い分散液を作製できた。

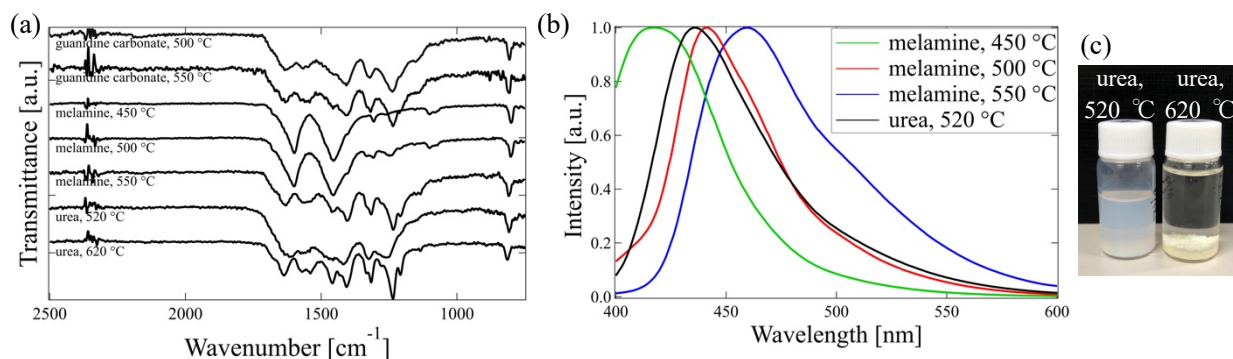


Fig. 1 (a) FT-IR spectra of CN powders prepared by heating guanidine carbonate, melamine, and urea. (b) Normalized PL spectra at room temperature. (c) CN dispersed in methanol left for 4 days.

1) K. Wada and N. Ohtani, Phys. Stat. Sol. (b), **256**, 1800521 (2019).

2) S. Minato, K. Wada, and N. Ohtani, International Workshop on Nitride Semiconductors, TuP-GR-35 (Nov. 2018).

3) B. Jürgens, et al., J. Am. Chem. Soc. **125**, pp. 10288-10300 (2003).