

静電塗布法によるナノアモルファス層状窒化炭素薄膜の作製

Preparation of nano-amorphous graphitic carbon nitride thin films by electrostatic spraying deposition method

同志社大理工¹, 岡山理大理² (M2) 渡辺貴大¹, 平井正明², 財部健一², 大谷直毅¹

Doshisha Univ.¹, Okayama University of Science.²

Takahiro Watanabe¹, Masaaki Hirai², Kenichi Takarabe², Naoki Ohtani¹

E-mail: ohtani@mail.doshisha.ac.jp

層状窒化炭素 ($g\text{-C}_3\text{N}_4$) は単層で約 2.7 eV のバンドギャップを持つ非金属半導体である。その特徴的なエネルギー準位のために、白色発光ダイオードや光検出器、光触媒の研究が進められている[1, 2]。InGaN 青色 LED はレアメタルであるインジウムを用いており、MOCVD による結晶成長では有毒ガスが必要となり、サファイア基板は 1000°C を超える加熱が必要となる。一方で、 $g\text{-C}_3\text{N}_4$ は窒素と炭素から合成されているため、低環境負荷で低コストでの生産が期待されている。しかしながら、デバイス作製に必要な平坦な薄膜の作製が困難である[2]。そこで本研究では、大気圧窒素プラズマ法で合成されたナノアモルファス層状窒化炭素 ($na\text{-g-C}_3\text{N}_4$) [1] を溶液に分散させ、静電塗布法で均一な $na\text{-g-C}_3\text{N}_4$ 薄膜の作製を目標とした。

静電噴霧可能な $na\text{-g-C}_3\text{N}_4$ 溶液を作製するために、様々な溶媒を用い 0.1wt% の割合で 6 時間超音波分散を行い、次に遠心分離を行い溶液を取り出す。現在、硝酸やメタンスルホン酸などの強酸やジメチルスルホキシド (DMSO) やγブチロラクトンの一部の有機溶媒に分散することが分かっている。どちらもコロイド溶液であり、強酸はプロトン化による層間剥離、DMSO などの有機溶媒に関しては $na\text{-g-C}_3\text{N}_4$ と溶媒の表面エネルギーが近い (ハンセンの溶解度パラメータ) ために層が剥離されたことで分散液が作製されたと考えられる。次に結晶構造に対する分散液の影響を調べた。Fig. 1 は溶液に分散させる前の試料、および硝酸と DMSO に分散させた試料の FT-IR スペクトルを表している。この結果より、溶液に分散した試料の約 1,700 から 1,400 cm^{-1} 付近にあるピークと約 800 cm^{-1} 付近のピークの減少が溶液の影響による結晶構造の変化を示唆しているが、ピークが残存しているため窒化炭素の構造はある程度保持していると考えられる。また、吸収スペクトルや PL スペクトルはどちらもブルーシフトした。

次に、作製した溶液を静電塗布法で製膜した。静電塗布法は溶液を充填したノズルに数 kV の高電圧を印加することで、液滴を帯電させ基板に噴霧する製膜技術である。この手法は溶液の誘電率が高いことや、基板間とノズル間の電界や電荷のコントロールが重要であり膜の平坦性を大きく左右する。本実験では、高誘電率かつ溶媒除去が比較的容易な DMSO を用いて製膜した。Fig. 2 は静電塗布で FTO 基板上に製膜した薄膜の SEM 像の一例である。スピコート法では $na\text{-g-C}_3\text{N}_4$ が周囲に飛び散り基板上に製膜ができなかったが、静電塗布法では均一に製膜することに成功した。今後この薄膜を用いてデバイス化を検討する。発表では、静電塗布法における電圧及びワークディスタンスの変化での平坦性の改善などについても議論する。

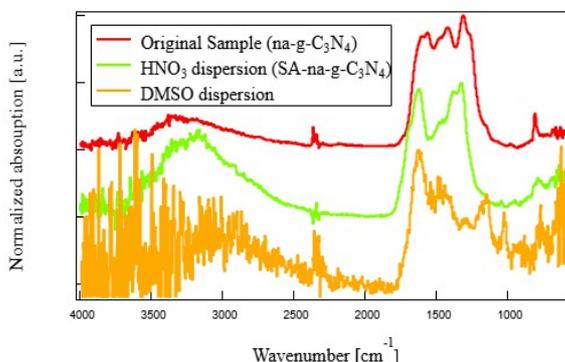


Fig. 1 FT-IR spectra of three samples

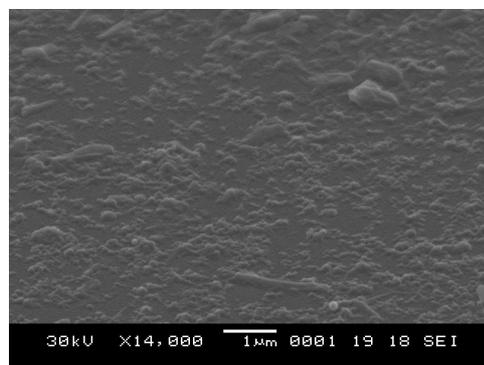


Fig. 2 SEM image of $na\text{-g-C}_3\text{N}_4$ thin film prepared by electrostatic spraying deposition method

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

[2] 渡辺、他、第79回応用物理学会学術講演会、20a-PB9-10 (2018).