

塗布法による窒化炭素の薄膜作製と青色発光特性

Preparation of Thin Films of Carbon Nitride and their blue emissive properties

同志社大理工, [○](M2)永田 浩規, 大谷 直毅

Doshisha Univ., [○]Hiroki Nagata, Naoki Ohtani

E-mail: ctwf0338@mail4.doshisha.ac.jp

1.はじめに

近年、スマートフォンの普及や環境意識の高まりにより、安価かつ環境負荷の少ない発光素子が求められている。しかし、一般的な青色 LED は高価な材料、有毒ガス、高温下での製膜が必要であり、作製時の環境への負荷や高価であることが問題に挙げられる。そこで本研究では、安価で低環境負荷な発光素子の作製を目的とし、その達成のため窒化炭素という青色蛍光材料を用い、薄膜作製時にはスピコート法を用いることにした。窒化炭素はメラミンや尿素を焼成することで作製でき、青色 LED 材料である InGaN と比べ安価である。また、スピコート法はウェットプロセスであり、製膜時に高温、毒ガスの使用を避けることができる。

2.実験方法

スピコート法で製膜を行うには、窒化炭素を溶液に分散させる必要があるが、窒化炭素は高い化学安定性をもつ故に、様々な溶媒に対して難溶性・難分散性を示す。そこで、溶媒としてグリセリンを用いることにした。グリセリンは溶解度パラメータと表面自由エネルギーの値が窒化炭素に近いので、他の溶媒に比べ多量の窒化炭素の分散を可能にする。窒化炭素をグリセリンに対し 0.2wt% の割合で 3 時間超音波分散を行った。また、溶媒による影響で窒化炭素の物性が変化している可能性がある。そこで、PL と FTIR 測定を行い発光特性と構造の変化について調査した。次に、正孔輸送層に 3 酸化モリブデン、発光層に窒化炭素を用い、2 層構造での製膜を行った。まず、FTO 基板上に 3 酸化モリブデンの前駆体である AMT をスピコート法で製膜し、電気炉で焼成する。その後、窒化炭素をスピコート法で製膜した。

3. 実験結果と考察

グリセリンによる窒化炭素の影響を Fig. 1 と 2 に示す。Fig. 1 は PL 測定の結果である。Sample (窒化炭素粉末) に比べてグリセリンに分散させた窒化炭素の発光波長が 460nm から 445nm にブルーシフトしたことがわかる。Fig. 2 は FT-IR の結果であるが、グラフのピーク変化は見られないことより窒化炭素と同様の結合をもっていることがわかる。発光波長の変化から、構造の変化はあるが、FT-IR の結果から、窒化炭素特有のトリアジン骨格は維持していることがわかるので、連結基の C-N 結合が切れ、N-H 結合に変化していると考えられる。これはメレム構造に近づいているということであり、実際、メレムは窒化炭素よりも発光波長が短いことが分かっている[1]。以上のより、グリセリンによる影響は見られたが、窒化炭素構造が大きく変化していないこと、発光波長が変化したのが 445nm と青色の発光波長であったことより、青色発光素子への材料として問題なく使用可能であると判断した。次にスピコート法での製膜結果である。スピコートでは 1000rpm から 5000rpm での製膜を行った。回転数が少ないほど窒化炭素の堆積量は増加したが、膜の形成は確認できなかった。そこで、スピコートの試行回数を増加し積層させることで、窒化炭素堆積量の増加を試みた。Fig. 3 は 1000rpm で 10 回スピコートを繰り返した基板表面の観測結果である。窒化炭素の粒子が集まることで、膜を形成していることがわかる。隙間がみられるが、濃度や回転数の条件を変更していくことで平坦性の高い製膜が期待できる。

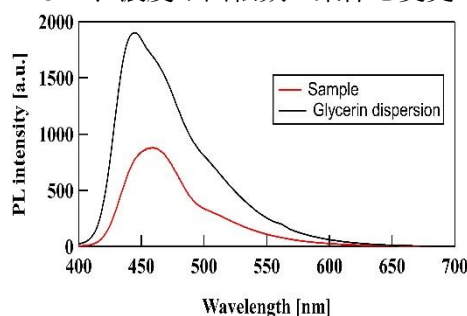


Fig. 1 PL spectra of C_3N_4 sample and glycerin dispersion.

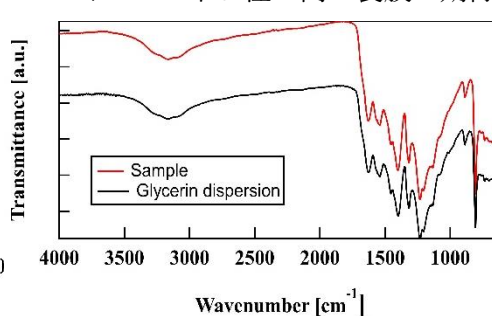


Fig. 2 FT-IR spectra of C_3N_4 sample and glycerin dispersion.

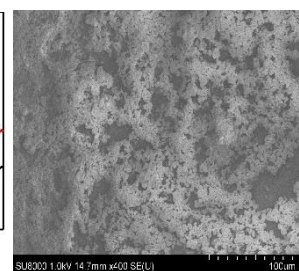


Fig. 3 SEM image of sample's surface prepared by spin coating with 10 times.

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