

化学量論組成が窒素過剰な層状窒化炭素薄膜の作製

Fabrication of layered carbon nitride thin films with nitrogen-rich stoichiometry

信州大工¹, 信州大 先鋭材料研² ○佐々木脩人¹, 浦上法之^{1,2}, 橋本佳男^{1,2}

Shinshu Univ.¹, Shinshu Univ. RISM² ○Haruto Sasaki¹, Noriyuki Urakami^{1,2}, Yoshio Hashimoto^{1,2}

E-mail: urakami@shinshu-u.ac.jp

窒素と炭素によって構成され層状構造を持つグラファイト状窒化炭素(g-C₃N₄)は、有害元素を含まない電子材料として注目されている。3つのヘプタジンユニットによって構成される g-C₃N₄ はバンドギャップエネルギー(E_g)が 2.8eV であり、我々はこれまでにメラミン(C₃H₆N₆)を前駆体とした化学気相法により高配向性薄膜の作製に成功している[1]。他方、層状窒化炭素における窒素組成の増加が共役ネットワークを拡張して価電子帯内の電子密度が増加することで E_g は減少する[2]。本報告では、ヘプタジンユニットがアゾ基(-N=N-)によって架橋されている結晶構造の窒化炭素(C₃N₅)に着目し薄膜を作製した。

試料の作製には、図1に示すような CVD 装置を用いた。前駆体である 3-アミノ-1,2,4-トリアゾール(3-AT)および塩化アンモニウム(NH₄Cl)を c 面サファイア基板と共に石英管内に設置し、石英管内の雰囲気窒素を窒素で充満した。成長温度を 450~550 °C、成長時間は 3 時間として窒素組成が過剰な窒化炭素(C₃N₅)膜を成長させた。

図2に、g-C₃N₄ 膜および C₃N₅ 膜の透過率および反射率から推定した光吸収係数の光子エネルギー依存性をそれぞれ示す。g-C₃N₄ 膜は光子エネルギーが 2.8eV 付近から高エネルギー側に向かって光吸収係数が増加したのに対して、C₃N₅ 膜のそれは 2.0eV 付近から増加した。図3に、g-C₃N₄ 膜および C₃N₅ 膜の室温フォトルミネッセンス(RT-PL)スペクトルを示す。g-C₃N₄ 膜の発光スペクトルに対し C₃N₅ 膜のそれは、低いエネルギー側に得られた。これらの結果は、従来の g-C₃N₄ 膜と比較して C₃N₅ 膜の光吸収端および移動度端が小さいことを示唆しており、窒化炭素のナローギャップ化を期待し得る。

[謝辞] 本研究の一部は、科研費(21K14194)、マツダ財団(21KK-206)および池谷科学技術振興財団(0351081-A)の援助を受けて行われた。

[参考文献] [1] N. Urakami et al., Jpn. J. Appl. Phys. **58**, 010907 (2019).

[2] P. Kumar et al., J. Am. Chem. Soc. **141**, 5415 (2019).

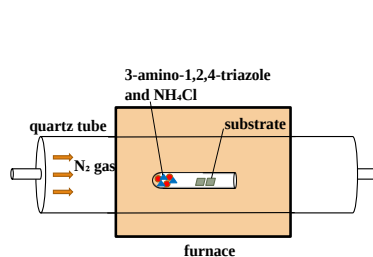


Fig.1 Schematic diagram of CVD equipment for the deposition of the C₃N₅ film.

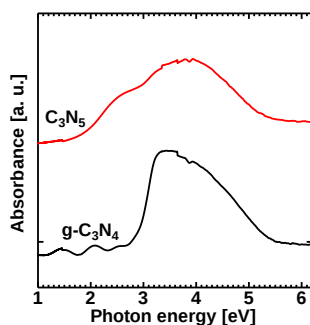


Fig.2 Normalized absorbance spectra of g-C₃N₄ and C₃N₅ films.

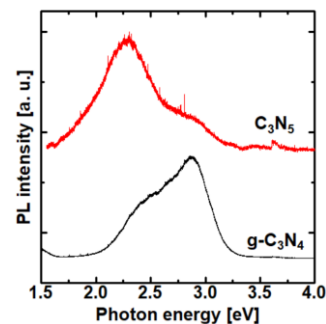


Fig.3 RT-PL spectra of g-C₃N₄ and C₃N₅ films.