実験番号：202006106（1 シフト）

BL1N2

窒化ホウ素系薄膜の X 線吸収分析

且井宏和
国立研究開発法人産業技術総合研究所

キーワード：炭窒化ホウ素，化学気相析出，フォトルミネッセンス，BCNO, XAFS

1. 背景と研究目的

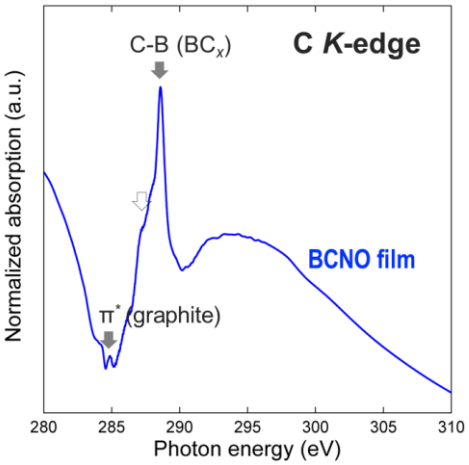
ホウ素、炭素、窒素および酸素の軽元素で構成される BCNO 蛍光体は、紫外励起により可視帯域の蛍光特性を示し、環境や人体に対して低負荷で希土類フリーな蛍光材料である。これまで BCNO 蛍光体は主に粉体合成法により作製され、六方晶窒化ホウ素（h-BN）の積層構造が無秩序化された乱層構造（t-BN）であることや、B–C–N–O 組成が蛍光特性に著しく影響することが報告されている[1]。しかしながら、BCNO の組成や微細構造と蛍光特性の相関や発光機構には不明な点が多いのが現状である。我々は化学気相成長（CVD）法により BCN を成膜し、酸化雰囲気での熱処理により BCNO 薄膜蛍光体が形成されることを報告した[2]。この場合、BCNO は BCN 膜表面から酸化挙動に影響されるため、均質な組成や微細構造を持つ BCNO 薄膜を得ることは困難であった。本研究では、アルキルアミノ化合物原料と酸化ガスを用いた CVD により均質な BCNO 薄膜を作製し、得られた BCNO 薄膜に対し X 線吸収分光法（XAFS）により薄膜中の各構成元素の化学状態を明らかにすることを目的とした。前回までに、BCNO 薄膜の B や N の XAFS 測定から、h-BN に類似した配位構造を持つことが示唆された。今回は C K edge の XAFS 測定を行った。

2. 実験内容

BCNO の成膜には縦型のコールドウォール式レーザーCVD 装置を用いた。アルキルアミノ化合物原料をバブリング式の原料容器内で加熱し、その蒸気を Ar キャリアガスにより CVD 反応炉に輸送した。また、酸化ガスを別配管から反応炉に輸送した。反応炉内の加熱ステージに Si (100)基板を設置し、Nd:YAG レーザー照射下において成膜した。成膜中の炉内圧力は 200 Pa とし、成膜時間は 900 s とした。得られた BCNO 膜の化学結合状態を X 線吸収微細構造解析（XAFS，あいちシンクロトロン光センター, BL1N2）により調べた。

3. 結果および考察

成膜温度 1323 K および酸素分圧 27 Pa で作製した BCNO 薄膜における C K-edge の全電子収量軟 X 線吸収スペクトル（TEY-XAS）を Fig. 1 に示す。BCNO 薄膜の C K-edge には 288.8 eV に強い吸収ピークがあらわれた。これは BCNO 薄膜中の炭素は C–B 結合が支配的であることを示唆する[3]。この吸収ピークの低エネルギー側における収量増加（286.9 eV）は C=N 結合に由来するものと考えられる。285.0 eV の吸収ピークはグラファイト様の sp2 結合に対応し、ピーク強度は低かった。BNCO 薄膜中の炭素の存在状態はグラファイト構造のものとは異なり、BCNO 特有のものであると考えられる。



薄膜における C K-edge の TEY-XAS

4. 参考文献

[1] T. Ogi, Y. Kaihatsu, F. Iskandar, W. Wang, K. Okuyama, Adv. Mater. 20 (2008) 3235–3238
[2] H. Katsui, K. Harada, N. Kondo, M. Hotta, Surf. Coat. Technol., 394 (2020) 125851.
[3] R.C. Ray et al., J. Appl. Phys., 96 (2004) 208.