

Mist CVD 法で合成した酸化亜鉛薄膜の熱処理効果と光触媒特性への影響

1250078 笹尾 響 (光・エネルギー研究室)
(指導教員 李 朝陽 教授)

1. 目的

一般的に、光触媒として応用されている素材は酸化チタンである。しかし、コストが高くなる点や、大面積化が困難な点が課題となっている。同じく光触媒として利用可能な素材に酸化亜鉛があり、酸化チタンと比較して低コストでの開発が可能であり、大面積化が可能となっている。本実験では、真空や高エネルギーを必要とせず、比較的安価で成膜可能な点や、比較的低コストで大面積の薄膜成膜が可能な Mist CVD 法を用いて酸化亜鉛薄膜を作製し、その光触媒応用に向けて効果的な成膜条件の検討を行った。

2. 実験方法

MistCVD 法を用いてガラス基板上に ZnO 薄膜を 100nm、200nm、300nm で成膜した。次に、真空アニール装置を用いて 400°C で 1 時間、500°C で 1 時間の 2 条件で各膜厚の薄膜で熱処理を行った。その後、これらの薄膜をメチルレッド (MR) 溶液、メチレンブルー (MB) 溶液に、それぞれ 254nm の紫外線下で 5 時間浸し、溶液の吸光度の変化から光分解効果の測定を行った。

3. 実験結果

図 1 に、各膜厚におけるアニール温度 500°C の処理を施した ZnO 薄膜の SEM 像を示す。図 1 より、膜厚の増大に伴い表面での粒子サイズが大きくなることを確認でき、全ての膜厚で表面の粗さを確認できた。

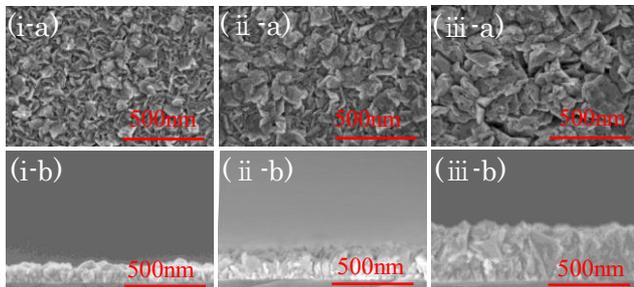


図 1. Mist-ZnO アニール温度 500°C の SEM 像
(i)100nm (ii)200nm (iii)300nm
(a)表面図 (b)断面図

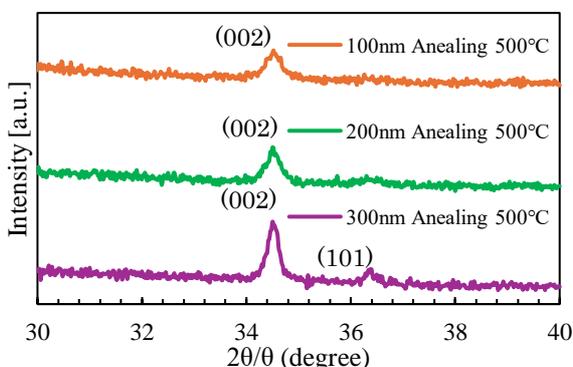


図 2. Mist-ZnO アニール温度 500°C の XRD $_{2\theta}$ パターン

図 2 に、アニール処理を施した 3 種類の膜厚における XRD $_{2\theta}$ パターンを示す。

図 2 より、全ての膜厚で(002) でのピークを確認できた。また、膜厚の増加に伴い、(002)でのピーク強度が高くなることを確認できた。

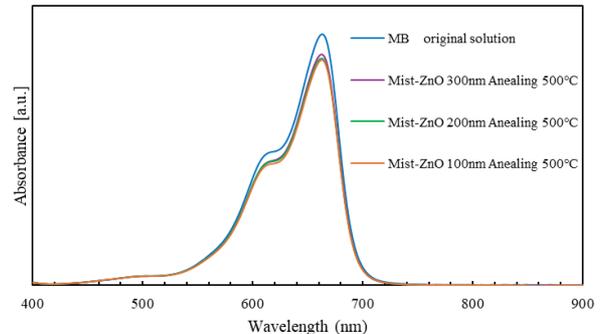


図 3. Mist-ZnO アニール温度 500°C の MB 溶液の光分解効果

図 3 にアニール温度 500°C での各膜厚での MB 溶液の光分解効果の測定結果を示す。図 3 よりすべての薄膜が元の溶液 (original solution) より低い吸光度であり、光分解効果を確認できた。そして、アニール温度 500°C の 100nm の薄膜が最も効果が高く、反応速度定数は 0.0033min^{-1} であった。また、熱処理前後での比較をすると、MB 溶液での吸光度において、すべての膜厚で熱処理前より熱処理後の方が低くなり、光分解効果の向上を確認できた。

4. まとめ

MistCVD 法により、100nm、200nm、300nm で ZnO 薄膜を合成し、膜厚の増加に伴い、表面の粒子サイズの増加と結晶性の向上を確認できた。

光分解効果の分析では、メチルレッド溶液とメチレンブルー溶液 2 種類の溶液で行った。MR 溶液においては、アニール前の吸光度よりアニール後の方が高くなり、光分解効果の向上を確認できなかった。一方で MB 溶液においては、いずれの条件においても光分解効果を確認でき、100nm の膜厚のアニール温度 500°C の効果が最も高いことを確認できた。また、光分解効果の向上については、膜厚が大きいくほど顕著なものとなった。

以上のことから、MistCVD 法で合成した ZnO 薄膜において、真空アニールを行うことで MB 溶液の光分解効果の向上を期待できるものと考えられる。また、MB 溶液においては光分解効果を確認できたものの、完全な分解には至っていないため、薄膜の合成の条件を最適化、更なる光分解効果の向上を目指す必要がある。一方で、MR 溶液においては、熱処理後の光分解効果の向上を確認できなかったため、今後今後は MR 溶液における光分解効果の原理を解明し、合成パラメータを検討することで、光分解効果の向上が期待できる条件を見つけることが課題となる。

参考文献

[1]川原村敏幸, “ミスト CVD 法とその酸化亜鉛薄膜成長への応用に関する研究,” “京都大学 2007 年度大学院博士課程博士学位論文, <https://doi.org/10.14989/doctor.k13825>, 平成 20 年 3 月.