

亀山 達矢

名古屋大学大学院工学研究科
助教

量子分割によるヘテロ接合ナノ粒子光触媒の超高効率化

§ 1. 研究成果の概要

“量子ドット”と呼ばれる直径数ナノメートルの半導体微粒子では、一般的なサイズの材料とは異なる光励起キャリアの緩和過程により、バンドギャップの2倍よりもエネルギーの大きな光から、ひとつの粒子内に複数の励起子を生成する過程が起こりやすくなる。本研究では、量子分割とも呼ばれる、このような非線形現象を化学反応に利用し、光触媒の超高効率化を目指す。

初期検討では、研究対象として、近赤外光応答可能な ZnTe-AgInTe_2 (ZAITE) 固溶体量子ドットの可能性を調査した。ZAITE 量子ドット固定化電極に波長の異なる光を照射した際に、バンドギャップ (E_g) の2.5倍以上のエネルギーをもつ光照射 ($E_g/h\nu \geq 2.5$) により、光電流生成効率が向上することを観測した。一方で、高速分光測定からは、 $E_g/h\nu = 2.5$ の光励起では量子分割の挙動が観測されなかった。単色光照射下での光電流-電位特性から、光電流生成の増強が量子分割ではなく、高励起状態からの電極へのキャリア移動に起因するものであることが示唆された。

2019年度はこれらの現象の更なる理解のための検討を進めた。まず、 $E_g/h\nu \geq 2.8$ のエネルギー光励起下での発光寿命測定を行ったところ、サブナノ秒以下の速い領域で量子分割に起因する発光減衰が観測された。すなわち、ZAITE 量子ドットでも、十分に高いエネルギーの光照射では、量子分割を初めて確認できた。一方で、高励起状態のホットキャリアの取り出しについての知見を深めるべく、電子受容体であるメチルビオロゲン (MV) を ZAITE 量子ドット表面に配位させ、その過渡吸収スペクトルを測定した。MV の有無による吸収減衰挙動の差を解析することで、最大 75% の高い効率で ZAITE の高励起状態から MV への電子移動が起きていることが示唆された。量子分割とホットキャリア移動は相反する過程であり、量子ドット中に生成する高励起状態のキャリアを量子分割により利用するには、効率的に起こるホットキャリアを抑える工夫が必要である。