

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Study on photoelectrocatalysis of structured p/n heterojunction electrode
著者(和文)	モハマドファイルスビンアマド
Author(English)	Mohd Fairus Bin Ahmad
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第10918号, 授与年月日:2018年6月30日, 学位の種別:課程博士, 審査員:長井 圭治,和田 裕之,北本 仁孝,原 亨和,北野 政明
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第10918号, Conferred date:2018/6/30, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

(博士課程)

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	Mohd Fairus bin Ahmad		
論文審査 審査員		氏名	職名		氏名	職名
	主査	長井圭治	准教授	審査員	北野政明	准教授
	審査員	和田裕之	准教授			
		原 亨和	教授			
北本仁孝		教授				

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、”Study on photoelectrocatalysis of structured p/n heterojunction electrode”と題し、英語にて執筆され、全4章から構成されている。有機半導体 p-n ヘテロ接合面の構造に依存した光電気化学触媒特性に関して述べたものである。特に蒸着時にマスクを用いて作製されたテラス状の接合面と、共蒸着によって作製されたバルクヘテロ接合について具体的に検討がなされている。前者ではこれまでに知られていなかったより貴な電位発生がテラス領域に局在化していることをケルビンプローブ顕微鏡 (SKPM)により明らかにするとともに、積極的にこの構造を与えて、光電気化学的にこれを酸化力の増大として抽出することに成功している。後者については、接合領域で近赤外領域の吸収と、近赤外吸収によるアノード電流の発生を検出し、従来の可視光照射による吸収帯と光アノード電流の速度論を、電荷移動錯体形成が起こるためと解釈している。

第1章”Introduction”では、有機半導体の p-n 接合体について、無機半導体との比較が概説され、大きく異なることが述べられている。また、有機半導体電極の光電気化学や有機半導体光触媒に関して、有機薄膜太陽電池と比較が述べられ、またケルビンプローブを用いた空間分解電位に関する先行研究例が概括されている。

第2章”Enhanced Oxidation Power as Photoelectrocatalysis Based on Micrometer-Localized Positive Potential in Terrace Hetero p/n Junction”では、無金属フタロシアニン(p型)とペリレン誘導体(n型)の蒸着単層及び二層電極に関して、SKPMによる表面電位差の測定、大気中光電子分光(PYSA)による最高被占軌道(HOMO)レベルの測定とその帰属がなされた上で、基板の種類や試料ロットの影響の議論がなされている。その上でマスクを用いて作製されたテラス状二層電極の境界部に関して SKPMによる表面電位差の測定がなされ、その空間に局在化した貴の電位が基板/n/pの場合に再現よくみられることを述べている。またこの理由について考察がなされている。これらの知見に基づいて、このテラス状ヘテロ接合部を多くした電極を作製して、それについて PYSA 測定と光電気化学測定を行い、マクロスコピックに HOMO レベルの深部へのシフトや、2-mercaptoethanol (ME)の光電気化学的酸化力の増大として抽出することに成功している。さらに、電極と接続せずに用いた際の光触媒作用についても検討を加え、量子収率の増大を実験的に確認している。

第3章”Photoelectrochemistry of Thiol Oxidation with Bilayer and Mixture of Perylene Derivative/Phthalocyanine Heterojunction Electrodes”では、無金属フタロシアニン(p型)とペリレン誘導体(n型)の界面が大きくなることを期待できる共蒸着電極と、これまでに詳しく研究されている蒸着二層電極の比較がなされ、近赤外領域の吸収の増大と、それに対応する光アノード電流の発生が起こっていることを確認し、電荷移動錯体形成が起こるためと解釈している。またシャッターを用いた光オン-オフ時の ME の光酸化電流のスパイク電流と定常電流に関して、ME濃度を変化させた実験とともに、MEの吸着平衡、光照射により生じるフタロシアニン内の正孔発生による ME の酸化速度に関して速度論的な議論が行われている。可視光に関する応答と、近赤外光に対する応答が異なっていることを初めて明らかにするとともに、共蒸着の場合は、二層電極よりも光アノード電流が小さくなった結果について、電解質溶液に接するフタロシアニンの減少と、電子—正孔の再結合速度の増加によるものと考察している。

第4章”Overall Summary”では、これらが総括されるとともに、展望が述べられている。

以上を要するに、本論文では、有機半導体 p-n 接合体の界面をナノからマイクロメートルサイズで変えた場合に関して、光電気化学的手法を中心に検討を行うとともに、SKPMによってナノサイズと表面電位の関係を明らかにするという先駆的な取り組みが述べられている。ここで得られた知見を用いて、新デザイン電極を作製し、それをもちいた光から電流への変換効率の向上、及び光触媒として用いた場合の光触媒反応の量子収率の向上を実験的に示している。また、分子レベルの接合として、電荷移動錯体形成に関して、二層膜と共蒸着膜の両方を作製して、可視光と近赤外光の吸収と光電気化学応答を検討し、電荷移動錯体形成が電荷分離速度の向上に寄与していることを示している。つまり、ナノからマイクロにわたる p-n 接合面の電位変化をマクロスコピックな電流や光触媒作用への取り出しに応用したもので、かつこれまでに知られていなかったものである。これらの知見は、有機材料を基盤とする光エネルギー変換系の構築とその機構解明について重要な知見を与えるものであり、光化学分野における学術的価値は高く、工学上貢献するところが大きい。よって、博士(工学)の学位論文として十分な価値があると認められる。

注意: 「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作製してください。