

MERIT 長期海外派遣報告書

工学系研究科 化学システム工学専攻 博士課程 2 年 MERIT9 期生

高鍋研究室 河瀬侑大

派遣先：Helmholtz Zentrum Berlin, Germany

派遣期間：2022 年 10 月 1 日 – 2022 年 12 月 30 日

研究課題名：光電極材料中の異なる時間スケールにおける荷電粒子の動力学

■ 研究内容

今回の滞在におけるわたしの研究目的は、時間分解分光法を用いた光電極材料中の異なる時間スケールにおける荷電粒子の動力学の解明であった。触媒によって表面を修飾された光電極材料は、太陽光エネルギーを水素などの化学エネルギーに直接変換するシステムとして期待されている。しかしながら太陽光の大部分を占める可視光を利用できる材料でかつ材料内部で光励起されたキャリアを表面反応に 100%の効率で輸送できるものはほとんどない。その原因はキャリア輸送中に起こる再結合過程である。再結合過程はバンド間再結合から Shockley-



Figure 1. Helmholtz Zentrum Berlin の正門

Read-Hall 過程、Auger 再結合、表面欠陥を介したもので多種にわたり、サブピコ秒からミリ秒という幅広い時間スケールで起こる。これら異なる時間スケールで生じる再結合の光電極性能へのインパクトはいまだ不明瞭である。そこで、サブピコ秒からナノ秒を得意とする時間分解テラヘルツ分光法、ナノ秒からマイクロ秒までを得意とする時間分解マイクロ波伝導率測定、マイクロ秒からミリ秒までを見ることができ強度変調型光電流分光法の三手法を組み合わせることで各時間スケールにおけるキャリアのダイナミクスを定量評価し、光電極材料の高効率化の戦略を立てることを着想した。

上記の三手法が全て揃っている研究室は世界的にも珍しい。私の先行研究では光電極材料の表面に注目しており、化学的な側面からの材料開発を行っていた。一方で今回訪問した Helmholtz Zentrum Berlin (HZB, Figure 1)は物理的側面の研究を得意としている。貴重な分析手法の習得に加え、異なる研究分野を得意とする研究者がいる環境で学んでみたいという理由から HZB への訪問を決めた。

滞在中は単結晶と蒸着法で作製した光電極の 2 種類を用意して各種分光法を行った。単結晶はモデル反応である Na_2SO_3 の酸化反応であれば吸収した光子をほぼ 100%表面反応に使用することができる一方、蒸着した光電極は 50–60%程度の効率しか発揮できない。この理由を、分光法によって得られるキャリア寿命・移動度・拡散長といったキャリアダイナミクスを特徴づける物理量から明らかにすることを試みた。準備していた単結晶の厚みが分光法に適しておらず、前半は挑戦と失敗を繰り返しなかなかデータが得られず苦しんだ。比較的容易にデータが得られた強度変調型光電流分光法からデータを集め、他の分光法に関しては指導教官や担当の博士学生と議論を繰り返して、最終的には当初予定していた実験計画を完了することができた。現在解析を進めており追加の実験結果と合わせて、これまで不明瞭であっ

たどの時間スケールのキャリア再結合が光電極性能向上に向けて大きな課題であるのかを体系的に議論する予定である。今後の展開として、私が得意とする表面修飾によって再結合問題の解決を目指す。

(a)

(b)

■ベルリンでの生活

ベルリン中心部は背の高い新しい建物が多く立ち並ぶ。もちろん首都であるためでもあるが、先の大戦による被害が甚大だったことが大きな原因のようだ。日本でも広く知られているベルリンの壁 (Figure 2a) ・ポツダム宣言 (の舞台となったツェツリエンホーフ宮殿、Figure 2b) など歴史的遺産



Figure 2. (a) ベルリンの壁と (b) ツェツリエンホーフ宮殿

が多く残る。終戦後の東西分断の時代などは非常に困難な生活だったことが博物館や数々の世界遺産から読み取れた。また日本への原子爆弾投下に関しても大きく取り上げられていた。

公共交通機関は比較的時刻表通りであった。ベルリン市交通局 (BVG) が運営するバス・電車・トラムはほぼ時刻表通りに運行していた一方で、ドイツ鉄道 (DB) が運営する高速鉄道は頻繁に遅延があった。日本の新幹線の平均遅延時間は 30 秒ほどであるそうなので、その偉大さを実感するとともに享受していた幸せは当たり前ではないのだと悟った。街中の人は非常に優しい。アパートの隣人はすれ違うと笑顔で挨拶してくれるし、交通機関や店頭での接客は優しく丁寧に返答してくれる。英語を扱わない人が散見されるのも日本と近い。少なからずドイツ語も習得できたのは良い経験である。

冬は非常に寒い。11 月中旬から急激に冷え込み積雪も数回あった。ニュースなどで気温を視認してしまうと不確定性が失われ、我慢できなくなると感じたので正確な気温は確認していないが、後で友人に聞いたところ $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$ ほどだったようだ。食生活は慣れるまで時間がかかった。ドイツ料理は、豚肉とじゃがいも、ソーセージがメインで多くのレストランで伝統的な料理が楽しめた。残念ながら私はそこまで好きになれず、後半はアジア人向けのスーパーマーケットで日本の食材を購入し自分で料理していた。ドイツのビールは非常に美味しく種類も豊富であったため飲み比べをして楽しんだ。

研究室の同僚はドイツ、オランダ、トルコ、インド、インドネシア、フィリピンなど数多くの国や地域出身の人がおり、会話が楽しかった。研究内容から年末年始の文化、家庭料理、流行りの音楽の話まで、ランチを食べながら色々な話ができた。今回の滞在ではドイツをはじめ他国の興味深い文化や特色を知ることができたとともに、日本の素晴らしさを再認識できた気がした。

■謝辞

今回、長期海外派遣の機会を与えてくださった指導教員の高鍋和広教授、副指導教員の近藤高志教授、統合マテリアル科学キャリア接続型フェローシッププログラムにお礼を申し上げます。また、訪問を快諾してくださった HZB のスタッフの方々にこの場をお借りしてお礼申し上げます。特に Fatwa Firdaus Abdi 副グループリーダーには大変お世話になりました。私の研究計画が杜撰なために多大なるご迷惑をおかけしましたが、毎週ディスカッションしていただき、結果的に数多くの貴重な分析手法を習得する

ことができました。また博士学生・博士研究員である Markus Schleuning、Erwin Fernandez、Sven Schneider の三名には日々のディスカッションから、実験の指導、そしてうまく進まないときの愚痴の聞き役までしていただき特に温かく接していただきました。深くお礼申し上げます。最後に、派遣期間中は日本学術振興会に経済的支援をいただきました。併せて感謝申し上げます。