

解禁時間(テレビ、ラジオ、WEB):令和2年8月7日(金)午後1時(日本時間)
(新聞) :令和2年8月7日(金)付夕刊



令和2年8月5日

中央大学
Tel:03-3817-1603(担当部署)

科学技術振興機構(JST)
Tel:03-5214-8404(広報課)

光触媒材料中の見えない光生成キャリアを可視化する方法を開発 ～AIによる顕微画像からの情報抽出～

ポイント

- 光触媒として用いられる無機半導体粒子で構成される薄膜材料の通常「見えない」光生成キャリアを「見える」化した。
- ナノ秒時間分解の位相差顕微鏡と画像回復やデータ同化手法により光生成キャリアの可視化及び物性値マッピングを可能にした。
- 太陽光水分解、光触媒、太陽電池材料の高効率化につながる。

JST 戦略的創造研究推進事業において、中央大学の片山建二は、ナノ秒の時間分解能をもつ位相差顕微鏡^{注1)}を開発し、統計的データ解析手法である画像回復の方法と組み合わせることで、光触媒^{注2)}などに頻繁に用いられる無機系半導体微粒子で構成する薄膜材料中の光生成キャリア(電子やホール)を可視化することに成功しました。

光触媒・太陽電池などの太陽光デバイスでは、界面での反応を用いるため、表面積の大きいナノ・マイクロサイズの多孔質の半導体基板材料が用いられます。これらのデバイスでは、光生成キャリアを有効に利用する必要がありますが、反応が速く、また、検出しやすい発光などを伴わないために検出が難しい問題がありました。

本研究グループは、ナノ秒の時間分解能をもつ位相差顕微鏡を開発して、酸化チタンなどの光触媒粒子薄膜材料に適用して、光生成キャリアによる屈折率変化を画像化しました。その際に、微小な屈折率変化を画像化するために、特定の空間パターンでキャリアを生成して、情報解析技術を用いて画像回復することで、可視化に成功しました。さらに、データ同化^{注3)}の情報解析技術を用いて、構造中の物性値を推定し、マッピングすることにも成功しました。

今後、同様の半導体粒子材料が用いられている、光触媒・太陽光水分解・太陽電池材料に適用されることで、デバイス材料の高効率化につながるものと期待されます。

本研究成果は、2020年8月7日米国物理学協会発行の科学誌「Journal of Chemical Physics」のオンライン版で公開されます。

本成果は、以下の事業・研究領域・研究課題によって得られました。

戦略的創造研究推進事業 個人型研究(さきがけ)

研究領域:「計測技術と高度情報処理の融合によるインテリジェント計測・解析手法の開発と応用」

(研究総括:雨宮 慶幸 高輝度光科学研究センター 理事長)

研究課題名:「変調光誘起位相差顕微鏡による光生成キャリア寿命・移動物性評価法」

研究者:片山 建二(中央大学 理工学部 教授)

研究実施場所:中央大学

研究期間:平成28年10月～令和2年3月

<研究の背景と経緯>

エネルギー需要の拡大の観点から、太陽光を使った太陽光デバイスへの期待は極めて高い。太陽光デバイスとしては、光エネルギーを電気エネルギーに変換する太陽電池デバイス、化学反応のエネルギーを用いる光触媒デバイスがある。光触媒では、有害物質を分解する用途や水から水素と酸素を取り出す太陽光水分解デバイスがある。多くの太陽光デバイスでは、無機系の半導体材料が用いられ、基板に塗布して用いる場合、比表面積の大きい多孔性の基板であることが多い。太陽光水分解が最初に報告された酸化チタン、地球上に大量に存在する酸化鉄などが代表的な物質で、最近では反応効率の高い酸化物の混合物が使われることも多い。

これらの太陽光デバイスは、いずれの場合も光照射によって生成された光励起キャリア(電子・ホール)が界面を通して酸化・還元反応に用いられ、キャリアが外部に電流として取り出されることで動作する。そのため、これらの光励起キャリアをいかに失活させずに反応に用いたり、外部回路に取り出せるかが重要である。その失活過程としては、電子とホールがペアとなって消滅する再結合過程や表面・界面において欠陥にトラップされるトラップ過程があげられる。シリコン太陽電池のような「きれいな」材料と異なり、半導体微粒子で構成される半導体粒子膜は界面や欠陥が多く存在する「きたない」材料であり、様々なキャリアの失活過程を観測し、制御する必要がある。これまで、材料全体の平均的なキャリアの挙動は調べられてきたが、このような半導体微粒子膜では局所的な構造欠陥を含むため、「どこで」キャリアが失活しているかを明らかにする必要がある。

<研究の内容>

我々の研究グループは、太陽光デバイスに用いられる半導体光励起キャリアの時空間変化を可視化するために、独自に開発した位相差顕微鏡に励起光(光励起キャリア生成用)と照明光(顕微鏡の照明用)に5ナノ秒のパルスレーザー光源を用いて、両者を精密に制御することで高時間分解能イメージングを可能にした。さらに励起光をデジタルマイクロミラー^{注4)}を用いることで空間パターンをもつ照射を行い、励起キャリアの失活過程を画像変化としてとらえた。(図1)このように画像にパターンを持たせることで、主成分分析^{注5)}や周波数成分のスプース性^{注6)}を利用して、微弱な屈折率画像を回復する方法を開発した。さらに、この「見える化」したキャリアの時間応答を天気・大気予測などでもよく用いられるデータ同化の手法を転用し、局所のキャリアの動きをモデル化することで拡散係数や寿命といった物性値に変換してキャリアの物性値マッピングを可能にした。(図2:全体構想)

光触媒材料である酸化チタンのナノ粒子で構成された薄膜に適用した例を図3に示す。ドット状に光生成したキャリアがナノ秒からマイクロ秒にかけて生成・緩和していく様子が示されている。本開発装置では、屈折率変化を利用して半導体中のキャリアの動的挙動を可視化した。同様のキャリア可視化手法には、キャリアの発光や色変化を利用するものがあるが、多くのキャリアはそのどちらとも伴わない場合が多い。本開発装置は、このような「見えなかった」キャリアを「見える化」した初めての例である。このことは、もともと変化の小さい屈折率変化画像を、近年AIの進展で開発が加速された画像回復手法を用いることで可能になった。

＜今後の展開＞

本研究では、これまで「見る」ことのできなかつた太陽光デバイス材料内のキャリアが「見える」顕微鏡を開発した。太陽光デバイスに用いられる材料全般に利用できる方法であり、今後、光触媒・太陽光水分解・太陽電池などの材料中のキャリア物性のよい・悪い箇所の判定に用いることが可能であり、高効率太陽光デバイス開発につながるものと期待される。

<参考図>

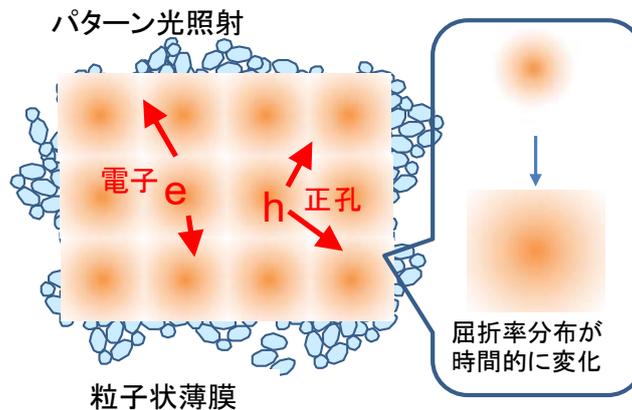


図1 半導体粒子薄膜にパターン状の光を照射してキャリアを生成する模式図
 光生成キャリアによってわずかに屈折率が変化する。その屈折率変化は、キャリアの空間的な移動にともなって徐々にパターンが変化する。

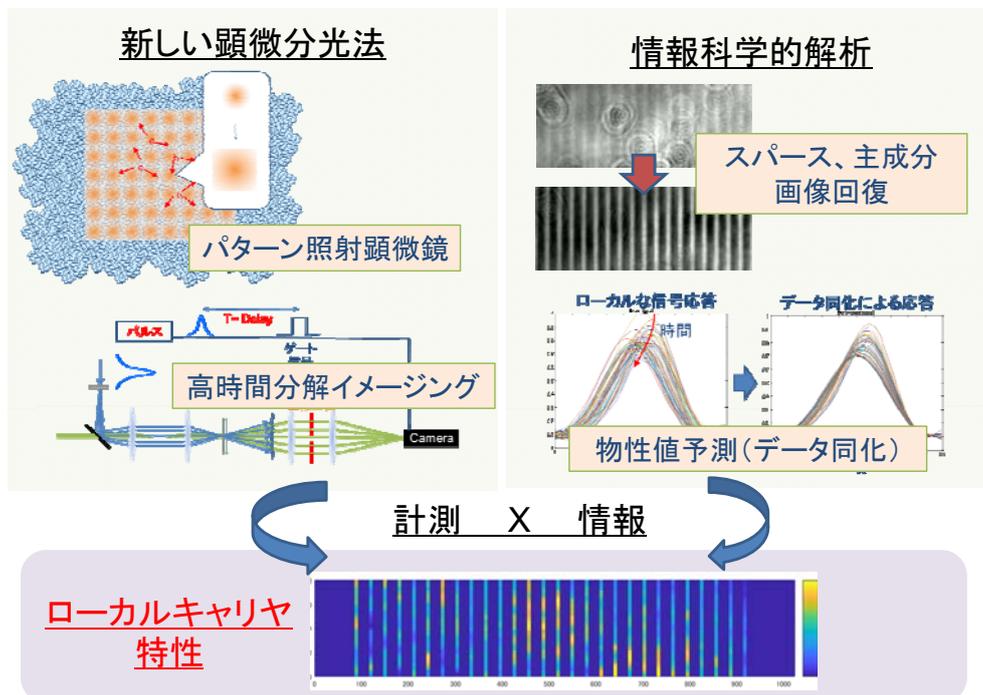


図2 本研究の全体戦略

計測面では、パターン状の光照射と高時間分解能を組み合わせた位相差顕微鏡の開発を行い、その測定画像データの特徴に合わせて情報科学的処理として画像回復処理やデータ同化（物性値解析）を統合して、ローカルなキャリア物性をイメージングする。

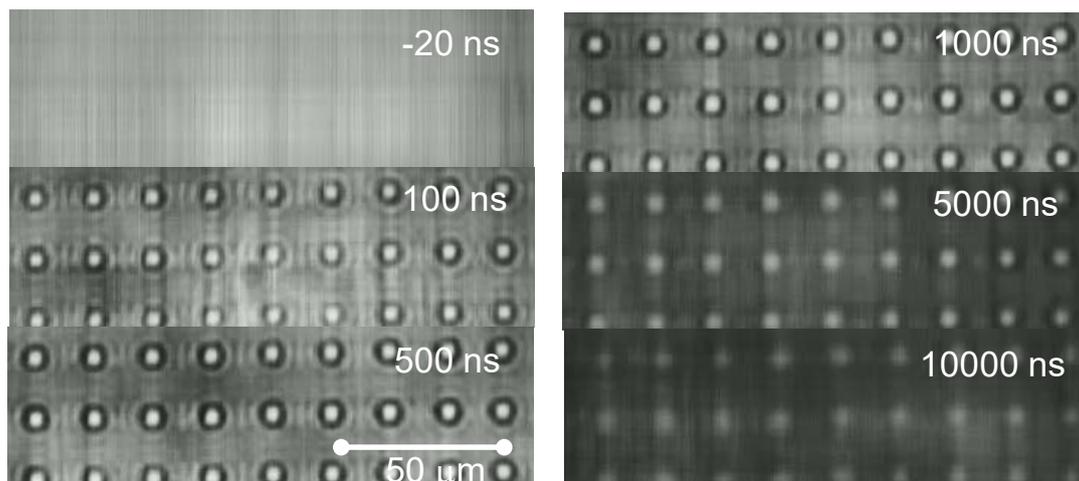


図3 パターン光を照射した時間分解変化測定例

酸化チタンナノ粒子で構成された薄膜において点状パターンの光照射により光生成キャリアが生成され、緩和していく様子を画像化したものを表す。

<用語解説>

注1) 位相差顕微鏡

屈折率の変化を光強度の変化に変換して画像化する顕微鏡技術の一つをさす。通常、物体に照明された光と別に位相を変化させた光を干渉させて光強度の変化に画像化する。

注2) 光触媒反応

無機系半導体試料に光を照射すると、材料の表面で酸化反応や還元反応が促進される反応のことをさす。主なものは、表面の有害物質を分解する光触媒分解反応、水を水素と酸素に分解する太陽光水分解反応が代表的な反応である。

注3) データ同化

時間とともに変動する測定データに対して、シミュレーションモデルに実際の観測データを統合することによって、より高精度のシミュレーションを実現したり、シミュレーションモデルを改良したりする方法である。ここでは、シミュレーションモデルに含まれる物性値パラメータも同時に推定されることを利用して物性値を得ている。

注4) デジタルマイクロミラー

微細加工技術によって作成された微小ミラー群で構成されるミラーのことをさす。個々のミラーが電子的に制御されるため、任意のパターン状の光を高速に反射することができる。

注5) 主成分分析による画像回復

1枚の画像中に含まれる主成分（典型的な縦・横方向のパターン）と不連続に発生するノイズ成分を分離しながら、主成分画像を回復する方法をさす。

注6) 周波数のスパース性による画像回復

画像中に特定の空間周波数成分が含まれていることが事前にわかっている場合に、その周波数成分が強調されるように画像回復する方法のことをさす。

<論文タイトル>

“Photo-excited charge carrier imaging by time-resolved pattern illumination phase microscopy”

(パターン光照射位相差顕微鏡を用いた光励起キャリアのイメージング)

doi : 10.1063/5.0009312

<お問い合わせ先>

<研究に関すること>

片山建二 (カタヤマケンジ)

中央大学 理工学部 応用化学科 教授
〒112-8551
東京都文京区春日 1-13-27
Tel : 03-3817-1913 Fax : 03-3817-1895
E-mail : kkata@kc.chuo-u.ac.jp

< J S T の事業に関すること >

嶋林 ゆう子(シマバヤシ ユウコ)

科学技術振興機構 戦略研究推進部 グリーンイノベーション・グループ
〒102-0076 東京都千代田区五番町7 K's 五番町
Tel:03-3512-3531 Fax:03-3222-2066
E-mail:presto@jst.go.jp

< 報道担当 >

中央大学研究支援室
〒112-8551
東京都文京区春日 1-13-27
Tel : 03-3817-1603 Fax : 03-2817-1677
kkouhou-grp@g.chuo-u.ac.jp

科学技術振興機構 広報課
〒102-8666 東京都千代田区四番町5番地3
Tel : 03-5214-8404 Fax : 03-5214-8432
E-mail : jstkoho@jst.go.jp