n 型 GaN 光電気化学水酸化反応における半導体－電解液界面のキャリア移動モデルとその物理

Carrier Transfer Model and Physics of Semiconductor-Electrolyte Interface at Water Oxidation using n-type GaN Single Crystal

北九大環境研 [1]，東大工 [2]，理研 [3]　○藤井 克司 [1,2,3]，小池　佳代 [2]，後藤　武生 [3]

Univ. Kitakyushu[1], School of Eng., Univ. Tokyo[2], RIKEN [3],　°Katsushi Fujii[1,2,3], Kayo Koike[2], Takenari Goto[3]

E-mail: k-fujii@kitakyu-u.ac.jp

光電気化学反応における半導体―電解液界面におけるキャリア移動や反応機構は未解明な部分が多い。特に、n 型半導体を用いた光電気化学反応による水の酸化反応は、半導体の表面に存在する界面準位が関係しているといわれているが[1]、その物性評価はほとんど行われていない。ここでは、この水の酸化反応に関与していると考えられる中間準位について n 型 GaN を例に、半導体側の性質を中心にフォトルミネッセンス（PL）の手法を用いて調べた結果を議論する。

ここで取り上げる n 型 GaN にはバンド端付近の発光（XL）とともに 2.2 eV 付近にピークを持つブロードな発光（黄色領域にピークがあるためここでは YL と呼ぶ。）が低温だけでなく室温においても観察される[2]。この YL は浅いドナーと深いアクセプターによるドナー－アクセプター対による発光（DAP 発光）であるといわれている。この YL は、キャリア濃度が低いほどその励起されたキャリアの寿命が長く、その値は ms オーダーに達することや、かなり低い閾値から励起光強度に対する発光強度依存性が比例関係からずれ、励起光強度の 1/3 に比例することなどが観察される興味深い特性を持つ。また、いくつかのキャリア濃度が異なる n 型 GaN を用いて光電気化学反応による水の酸化反応をアルカリ側の水溶液である 1.0 mol/L NaOH 中で行ったところ、光誘起電流が大きいほど、YL のキャリア寿命が長く、XL/YL の値が大きくなることが観察されている。これらのことは、この YL に関与するアクセプターが水の酸化反応に関与していると考えられ、そのエネルギー位置を水の酸素発生に関与する酸化還元準位に対してプロットすると、図 1 に示すようになった。キャリアがトンネル現象で移動すると考えた場合、YL は水の酸化反応を起こすのに適した位置に存在することを示している。

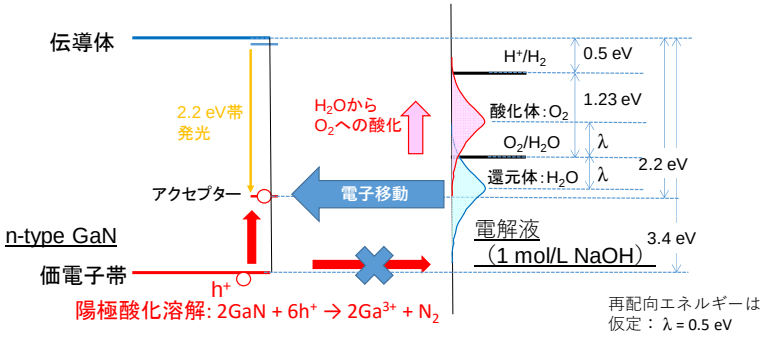

図 1　n 型 GaN のバンドと水の酸化還元準位の模式図。GaN のフラットバンド準位の関係を用いてプロットしている。

[1] R. Memming, “Semiconductor Electrochemistry (2nd Ed.)”, Chap. 7 pp. 169 – 266 (Wiley-VCH, 2015).

[2] M. A. Reshchikov and H. Morkoc, J. Appl. Phys. 97 (2005) 061301.

© 2016年 応用物理学会