

マイクロ波分光による水素化酸化モリブデン光熱変換・触媒材料の電荷ダイナミクス解明 Elucidation of Photothermal Conversion Mechanism in H_xMoO_{3-y} Based on Trapped Charges and Their Dielectric Interactions

阪大院工¹, 阪大 ICS-OTRI², JST さきがけ³ °西久保 綾佑^{1,2}, 桑原 泰隆^{1,2,3}, 内藤 眞太郎¹,
楠 和樹¹, 佐伯 昭紀^{1,2}

Osaka Univ.¹, ICS-OTRI Osaka Univ.², JST-PRESTO³ °Ryosuke Nishikubo^{1,2}, Yasutaka
Kuwahara^{1,2,3}, Shintaro Naito¹, Kazuki Kusu¹, Akinori Saeki^{1,2}

E-mail: nishikubo@chem.eng.osaka-u.ac.jp

水素化酸化金属は近年、光熱変換や触媒、光触媒として注目されている物質である。その中でも水素化酸化モリブデン H_xMoO_{3-y} は、光熱変換材料および光熱触媒として高い性能を示しており、期待を寄せられている。^[1,2] しかしながら、その光熱変換の過程において重要な電荷ダイナミクスやトラッピング・再結合の機構は不明であった。電荷ダイナミクス評価において従来は時間分解発光測定や過渡吸収を用いるのが一般的だが、 H_xMoO_{3-y} は非発光性であるため発光の評価は不可能である。過渡吸収では複数の成分がオーバーラップするため解析が難しく、またキャリア-格子間の相互作用など観測できない要素もある。そこで、本研究では時間分解マイクロ波伝導度法(TRMC 法)による複素過渡伝導度の測定を行った。この手法では光励起されたキャリアをマイクロ波によりプローブすることで、電荷の動きを直接観測でき、かつ過渡伝導度虚部の信号から電荷のトラップ状態やキャリア-格子間相互作用を評価できる。

本研究では、Pt を MoO_3 に担持させ、これを水素ガス中で熱処理することで、 Pt/H_xMoO_{3-y} コンポジットを得た。水素還元前後の TRMC 信号を比較すると、水素還元後 (Pt/H_xMoO_{3-y}) では信号寿命が大きく下がっており、再結合による熱生成が加速されたことが分かる。さらに、 Pt/H_xMoO_{3-y} は還元温度によって負の伝導度信号が現れることが明らかとなった(図 1)。このような負の伝導度信号は、トラップされた電荷キャリアにより周囲のイオンが引き付けられ、固定されることで得られる。これは一種のポーラロン形成であり、カウンター電荷から電気的に遮蔽されるため、再結合には不利である。最終的に、200 °Cで水素還元を行った Pt/H_xMoO_{3-y} が 100 °C、300 °C還元に比べ高い光熱変換性能を示した。当日はそれらの機構について TRMC 複素伝導度測定の結果をもとに議論を行う。

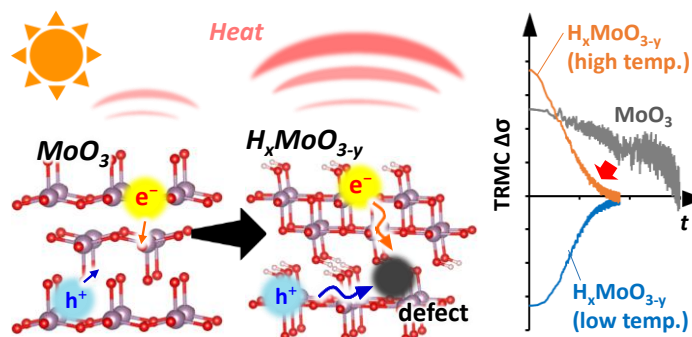


図 1. H_xMoO_{3-y} の結晶構造と負の TRMC 伝導度信号。

[1] Q. Zhu, et al. *J. Phys. Chem. Lett.* **2020**, *11*, 2502–2509.

[2] Y. Kuwahara, et al. *J. Am. Chem. Soc.* **2018**, *140*, 9203–9210.