

一次元ヘテロ構造光電変換デバイス

	研究代表者	東京大学・大学院工学系研究科 (工学部)・教授 丸山 茂夫 (まるやま しげお)	研究者番号:90209700
	研究課題情報	課題番号: 23H05443 キーワード: ヘテロナノチューブ、光電変換素子、超高分解能電子顕微鏡、カーボンナノチューブ	研究期間: 2023年度~2027年度

なぜこの研究を行おうと思ったのか (研究の背景・目的)

● 研究の全体像

単層カーボンナノチューブ (CNT) に異元素からなるナノチューブを同心積層した一次元ヘテロ構造について、成長機構解明と原子層層の拡張、さらに光学・輸送特性の評価を実現してきた。特定の一次元ヘテロ構造において、数層の絶縁層を介して内外にある異なる半導体層が電子的に結合し、ナノチューブ間に層間励起子が存在する。それにより、光吸収が増大し、電子・正孔分離に優れ、各半導体層内でのキャリア輸送も容易になることから、本研究では一次元ヘテロ構造光電変換素子に着目する。構造制御されたCNTから出発し、一次元ヘテロ構造の合成制御、光物性評価、デバイス特性評価を通じて、これらの集合体である薄膜を用いた新奇太陽電池を提案する。

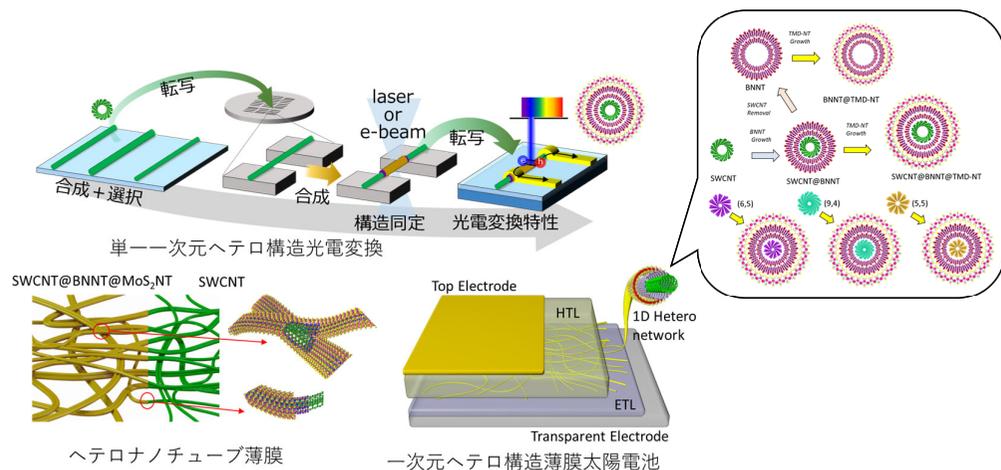


図1 単一ヘテロナノチューブおよびヘテロナノチューブ薄膜を用いた光電変換デバイスのイメージ図。カイラリティ制御SWCNTから出発して、様々な組み合わせ構造を持つ一次元ヘテロ構造を用いる。

● 研究の背景と目的

グラフェン、ヘキサゴナル窒化ホウ素 (h-BN)、遷移金属ダイカルコゲナイド (TMD) などの二次元原子層物質は、層内で共有結合が閉じていることから、ファンデルワールス (vdW) 力による積層に基づくヘテロ構造を構築可能である。実際、グラフェンやTMDの高性能デバイスは多層h-BNの間に積層することで実現されてきている。さらに、二次元原子層物質においては、非共有結合的なvdW力によるヘテロ構造は無限の組み合わせ自由度を持つ。異なる原子層の積層順序や各原子層の配向角度に基づき、単一の二次元物質とは異なる新たな物性が発現するなど、二次元vdWヘテロ構造の研究が大きく進展してきた。ここで、グラフェンがカーボンナノチューブ (CNT) に対応するように、原子層物質をチューブ状に丸めた一次元的構造のナノチューブ物質が存在し得る。CNTと並行して様々なナノチューブが盛んに研究されてきたが、異種のナノチューブを複合化したヘテロ構造はほとんど実現していなかった。これは、機械剥離法を用いることで二次元物質が小面積であれば簡易に得られるのに対して、ナノチューブにはそのような方法が存在しないことが原因である。

私たちは2020年に、単層カーボンナノチューブ (SWCNT) をテンプレートに用いて異種原子層の同心積層合成を化学気相成長 (CVD) 法で実現することで、vdWヘテロ構造の概念を一次元に拡張した「一次元ヘテロナノ構造」の構築に成功した。例えば、SWCNTの外側に窒化ホウ素ナノチューブ (BNNT)、さらにその外側にMoS₂などの遷移金属ダイカルコゲナイドナノチューブ (TMD-NT) を有するヘテロナノチューブ (SWCNT@BNNT@TMD-NT) が実現可能となった (図2)。

同心構造における多彩な原子層組み合わせを実現するとともに、その物性の理解に基づいた機能設計を行うことで、一次元ヘテロ構造による革新的な電子・光・光電・熱デバイスなどの実現が待望されている。本研究課題においては、最内層のSWCNTと最外層のTMD-NTとの層間励起子の存在に着目して、優れた光電変換素子としての一次元ヘテロ構造を実証する。さらに半導体SWCNT薄膜やカイラリティ制御SWCNT薄膜をベースにした一次元ヘテロ構造のネットワーク構造によって、一次元ヘテロ構造を活性物質とした革新的な薄膜太陽電池系の提案を目指す。

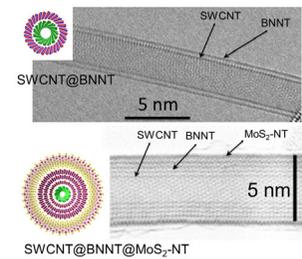


図2 SWCNTの周囲にBNNTを形成した一次元vdWヘテロ構造 (上) およびさらにMoS₂-NTを形成した3層ヘテロ構造 (下)

この研究によって何をどこまで明らかにしようとしているのか

● 研究の進め方

カイラリティ一定のSWCNT、BNNT、様々なTMD等から成る一次元ヘテロ構造光電変換デバイスの実現のために、SWCNTテンプレート作成、ヘテロ構造合成、その原子構造、電子状態、励起子の特性を解明する。さらに、一次元ヘテロ構造の異種材料ナノチューブ同士の干渉による物性変調と層間励起子、光電変換特性を評価する。これらの知見に基づき、最適なカイラリティ分布の高純度SWCNT薄膜によるヘテロ構造薄膜を用いて太陽電池の活性層としての可能性を検討する。具体的な研究項目としては、(1) 一次元ヘテロ構造の合成制御・評価、(2) 一次元ヘテロ構造の物性評価、(3) 一次元ヘテロ構造の光電変換デバイス形成と評価、を並行して実施する。

● 期待される成果と意義

遷移金属ダイカルコゲナイドなどの二次元材料のvdWヘテロ構造の研究が世界的に展開されているところであるが、私たちが提案した一次元vdWヘテロ構造の研究も世界中での期待と急速な展開が進んでいる。一次元vdWヘテロ構造の特徴的な物性として、構造によってバンドギャップが大きく異なるSWCNTと特定のカイラリティの整合のないトンネル層BNNTを介して、外層のTMD-NTとが電子的に強く結合していることを示唆する光学特性がある。同様の物質からなる二次元材料については、ナノチューブ構造となることでバンド構造の変調を受けることになるが、典型的な単層MoS₂-NTの場合には内層のSWCNTと強く結合しチューブ間励起子 (inter-tube exciton) も観察される。これまでの一次元ヘテロ構造の集合体においては、SWCNTのバンドル構造やヘテロ構造の不均質性により、観察できる光学物性と物理機構解明には限界があった。本研究では、私たちが得意とするSWCNTの合成制御やハンドリングにおいて、孤立架橋SWCNTやカイラリティ選択SWCNT超薄膜をベースとすることで、高分解電子顕微鏡と光学計測を同期させ、また第一原理計算や各種の光学分光法を駆使することで、一次元vdWヘテロ構造の特異な光物性の解明が目指せる。

● 研究体制

研究体制と役割分担は図3の通りである。私たちはこれまでも様々な形での共同研究を進めてきており、それぞれの専門分野の技術を生かしつつ、互いに連携を取りながら研究を遂行していく。

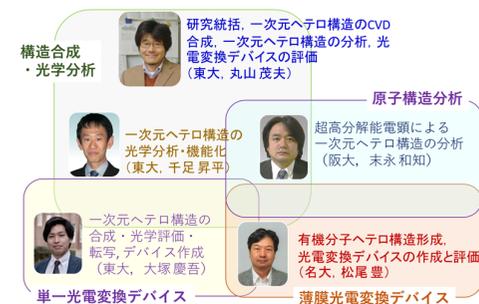


図3 研究体制