

鉄シリサイド/炭化シリコン半導体複合微粒子の創生と 光触媒反応による水素生成

化学技術部 新エネルギーグループ 秋山 賢輔
高橋 亮
企画情報連携部 連携広報課 松本 佳久

鉄シリサイド半導体のもつ化学ポテンシャルにおいて、その伝導帯の対水素標準電極電位が水からの水素発生電位よりも負電位側に位置していることに着目した。本報告では、炭化シリコン粉末の表面に鉄シリサイド半導体のナノ結晶粒を分散させた複合粒子構造を作製し、その光触媒効果による水の半分解反応からの水素生成を報告する。

キーワード：鉄シリサイド、半導体複合粒子、光触媒、水素生成

1 はじめに

鉄(Fe)とシリコン(Si)からなるシリサイド半導体の鉄シリサイド(β -FeSi₂)は、0.8eV のエネルギーバンドギャップを有し、1.3 μ m 以下の光に対する光吸収係数が 10^5cm^{-1} 以上と大きいことからこれまで光電変換材料としての応用が検討されてきた。

我々は、 β -FeSi₂ のもつ化学ポテンシャルにおいて、その伝導帯の対水素標準電極電位が約-0.7eV と水からの水素発生電位よりも負電位側に位置していることから、光触媒作用での水素発生への可能性に着目した。本発表では炭化シリコン (SiC) を担体として、その表面に β -FeSi₂ ナノ結晶粒を合成した複合粒子の作製を検討し、その光触媒効果による水素発生を報告する。

2 実験方法

2. 1 SiC 粉末表面への複合粒子構造

前処理として平均の粒子径が 45nm の 3C-SiC 粉末をセミコクリーン 23 (フルウチ化学)、及びバップアド弗酸で洗浄、純水でリンスした。その後、塩化金酸 4 水和物 ($\text{HAuCl}_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$) 溶液中に浸漬し超音波法にて仕込み量 4.7wt%の金 (Au) を表面に担持させた。

この Au/3C-SiC 粉末表面にモノシラン(SiH_4)及び鉄カルボニル化合物 $[\text{Fe}(\text{CO})_5]$ を出発原料に用いた有機金属化学気層成長 (MOCVD) 法にて β -FeSi₂ 結晶の合成を行った。装置の概略図を図 1 に示す。作製条件はこれまでの報告¹⁾と同一であるが、合成温度 750°Cにて約 80nm 相当の堆積量の合成を行った。

2. 2 光触媒効果による水素生成評価

作製した粉末試料 20mg を 12wt%メタノール水溶液 10ml と共にパイレックス製の反応セルに封入し、室温にて攪拌させながら Ar ガス雰囲気中で LED による可視光 (420-650nm) 照射を行った。

この反応セルを内包した閉鎖循環系よりサンプリングしたガスをガスクロマトグラフィー分析により発生水素の定量評価を行った。

3 実験結果

図 2 に示すように MOCVD 法にて作製した試料の X 線回折法による θ 2 θ スキャン・プロファイルから、3C-SiC と共に担持した Au、及び MOCVD 合成した β -FeSi₂ 相の

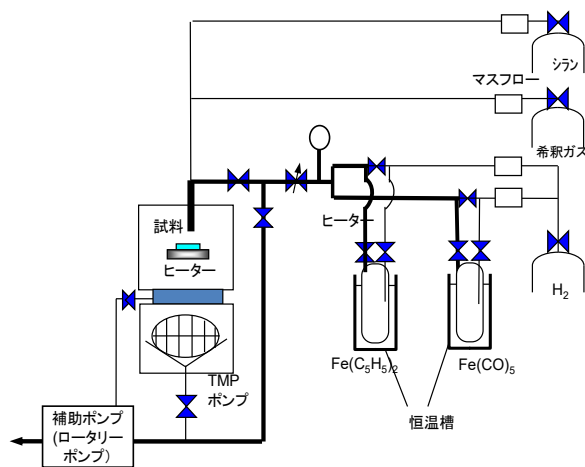


図 1 MOCVD 装置の概略図

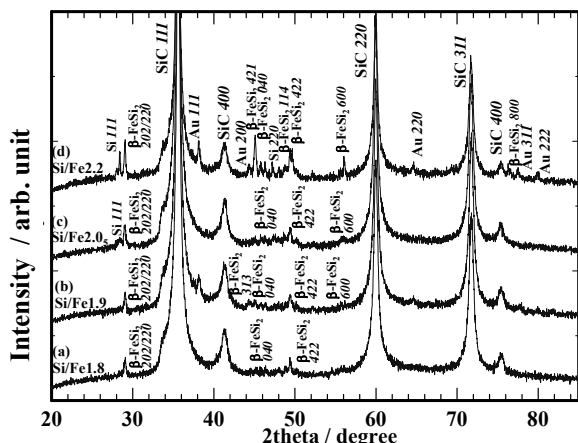


図2 MOCVD法にて異なるガス組成で、炭化シリコン粉末表面に合成した β -FeSi₂粒子のX線回折プロファイル²⁾。

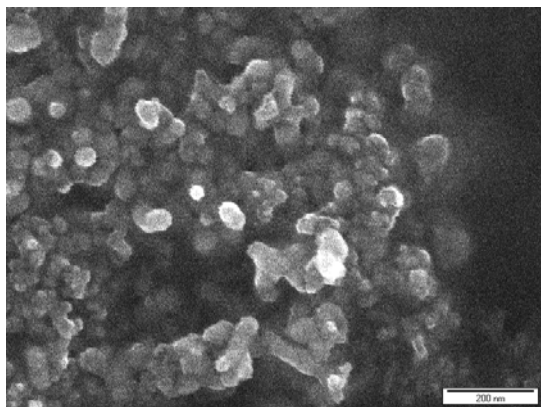


図3 MOCVD法で炭化シリコン粉末表面に合成した β -FeSi₂粒子の表面SEM像²⁾。

202/220面及び422面からの回折ピークが観察され、3C-SiC粒子表面への β -FeSi₂合成が確認された²⁾。

図3に示すように、SEM観察からSiC表面に30~60nmの粒径をもつ β -FeSi₂粒子の形成が確認された²⁾。

図4に示すように、反応セルを内包した閉鎖循環系よりサンプリングしたガスをガスクロマトグラフ分析から、水素に起因したピークが観察され照射による水素の生成が確認された²⁾。

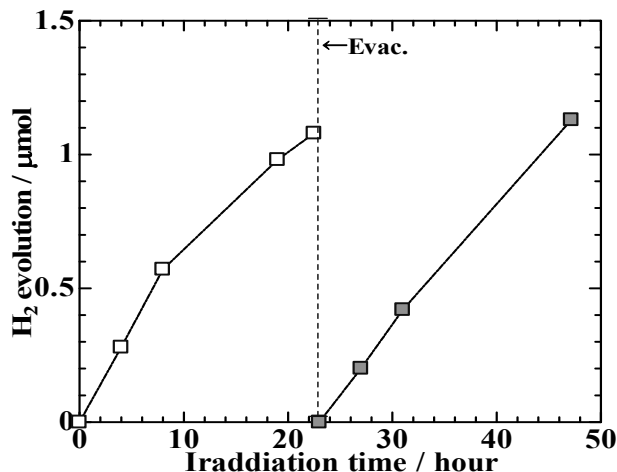


図4 酸化犠牲試薬であるメタノール(12wt%)水溶液に β -FeSi₂/3C-SiC半導体複合粒子の粉末20mgを投入しLED光(420-650nm)の照射時間に対する光触媒効果による水分解からの発生水素量の変化。

文献

- 1) K. Akiyama, S. Ohya and H. Funakubo, "Preparation of β -FeSi₂ thin film by metal organic chemical vapor deposition from iron-carbonyl and mono-silane", Thin Solid Films 461, 40 (2004).
- 2) K. Akiyama, Y. Motoizumi, T. Okuda, H. Funakubo, H. Irie and Y. Matsumoto, "Synthesis and Photocatalytic Properties of Iron Disilicide/SiC Composite Powder", MRS Adv. 2, 471 (2017).