

令和 2 年 6 月 2 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H01216

研究課題名(和文) 近赤外光応答光触媒電極開発とタンデム型反応系の構築

研究課題名(英文) Development of NIR-responsive photocatalytic electrode and construction of tandem-type reaction system

研究代表者

嶺岸 耕 (Minegishi, Tsutomu)

東京大学・先端科学技術研究センター・特任准教授

研究者番号：40512992

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 31,900,000円

研究成果の概要(和文)：Cu(In,Ga)Se₂、(ZnSe)_{0.85}(Cu(In,Ga)Se₂)_{0.15}、CdTeをはじめとした紫外～可視～近赤外光を有効に利用し得る近赤外光応答型光触媒電極を開発した。これらを用いて可視域に吸収端を有する酸素生成光触媒電極とタンデム型反応系を構築し、太陽エネルギー変換効率2%以上で水分解反応を進行、水素を生成することに成功した。また、反応系の高耐久化に有効な過酸化還元による安定化被膜形成法、およびイオン交換樹脂を用いた表面修飾を新規に見出した。さらに、高効率化・学理確立に必須な、反応進行中の光励起キャリアの振る舞いをフォトルミネッセンスから観察することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

光触媒やそれらからなる電極を用いた水分解反応は、簡便かつ安価に水から水素が得られる画期的手法として期待されています。一方、特に効率の観点で実用に不十分であることが最も大きな課題です。本研究では、上述の手法を用いて太陽光を有効に利用可能であることを実験的に示し、これまで知られていなかった課題を抽出すると同時にその解決策を提示することができました。さらに、光触媒材料が光を吸収した際に内部に生じる電子と正孔というプラスとマイナスの電荷がどういった経路をたどって水分解反応にたどり着くのか、また、その損失の原因は何なのかということまでの現象の理解につながる新しい計測手法を開発、一部観察に成功しました。

研究成果の概要(英文)：Near-Infrared responsive photocatalytic electrodes were newly developed. They were combined with visible light responsive photocatalytic electrodes in tandem-type configuration, and hydrogen was successfully produced through water splitting reaction with energy conversion efficiency of >2%.

研究分野：光電気化学・光触媒

キーワード：水素 人工光合成 半導体 触媒 表面修飾 カルコゲナイド 酸化物 酸窒化物

1. 研究開始当初の背景

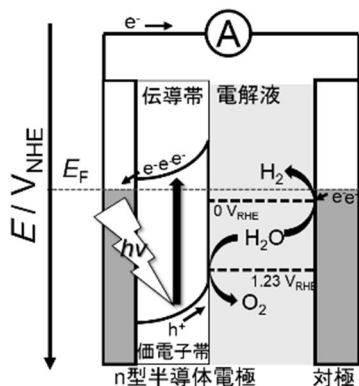


図 1 n 型半導体電極を用いた光電気化学的水分解の概要。

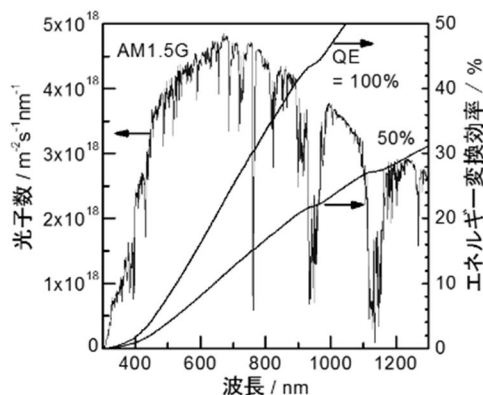


図 2 ソーラー水素製造における吸収端波長、量子効率とエネルギー変換効率の関係。

再生可能エネルギーの開発は持続可能な社会構築に必須であり、その重要性は年々高まっている。いわゆる“本多 藤嶋効果”が報告されて以来、半導体光電極や半導体光触媒を用いた水の直接分解は太陽光と水のみから水素を得る画期的手法として注目され、盛んに研究されてきた。半導体光電極および半導体光触媒における水分解反応の原理は、1) 半導体中に電子と正孔が光励起され、2) 電子は還元反応によって水素を、正孔は酸化反応によって酸素を生じる、というものである。半導体光電極においては特に固液界面を利用してマクロに電荷分離を行って水分解反応を行う。半導体は多数キャリアが電子であるか、正孔であるかによって n 型、p 型の 2 種類に分けることができる。n 型半導体が水と接触すると電荷移動が起こり、固液界面において空間電荷層が形成、結果として図 1 に示すようにバンドベンディングが生じる。この状態で半導体光電極中に光吸収によって電子と正孔が励起されると、少数キャリアである正孔は固液界面へと移動して水を酸化、酸素を生成し、多数キャリアである電子は対極へまわって水を還元、水素を生成する。p 型半導体光電極では n 型の場合とは逆向きのバンドベンディングが生じ、光照射下で水を還元、水素を生成する。これら n 型半導体光電極と p 型半導体光電極を電気的に接続することによりそれらの駆動力を足し合わせ、単独では水分解反応を進行することができない半導体光電極を用いることができる。

地球上には基準太陽光(AM1.5G)において 1 m² あたり約 1 kW の太陽エネルギーが降り注いでいるが、非常に広範囲な波長に分布しており、どれだけ広範囲の波長の光を利用できるかで太陽エネルギー変換効率の限界が決まってしまう。図 2 に、ある波長より短波長の光をある量子収率で分解反応に用いた場合のエネルギー変換効率を示す。太陽エネルギー変換効率 10% で水素生成を達成するには、量子収率 100% であれば約 530 nm までの光を、量子収率 50% であれば約 650 nm までの光を利用する必要があることがわかる。以上より、当然のことながらより長波長の光を利用可能な材料を用いればより高効率化が望めることになる。一方で長波長化によってバンドギャップが小さくなるため、価電子帯上端(VBM)と水の酸化電位、伝導帯下端(CBM)と水の還元電位の差が小さくなり、電子・正孔の還元・酸化力が低下、量子収率の極端な低下を招いてしまう。見方を変えると、たとえば SrTiO₃ や NaTiO₃ のような紫外光照射下で比較的高い量子収率で水分解反応を進行する光触媒は、水分解反応に必要な 1.23 eV と比較して 3 倍程度大きなバンドギャップを持ち、言い換えると光励起された電子・正孔のエネルギーの 1/3 程度しか化学エネルギーに変換されておらず、エネルギーのロスが大きいと言える。したがって、長波長の光に反応するバンドギャップの小さな光触媒材料を用いて大きな反応の駆動力を得ることが効率的な水分解反応系構築の本質的な課題であると言える。

上述の通り、吸収端が長波長化するに従いバンドギャップが狭小化、反応の駆動力が低下する傾向にある。また、太陽光には様々な波長の光が含まれ、換言すればエネルギーの大きい光子、小さな光子が含まれているが、光触媒材料に吸収された光子は電子・正孔を励起し、それらがバンド端まで緩和してから水分解反応に用いられる。このために光子のエネルギーの利用効率という観点では光触媒材料のバンドギャップと光子のエネルギー差が小さいほど緩和に伴うエネルギーのロスが小さいと言える。従って、短波長の光を比較的バンドギャップの大きい光触媒材料で利用し、その吸収端よりも長波長の、エネルギーの小さい光子を前述の近赤外光応答光触媒電極で利用する、タンデム型反応系が最も効率的な反応系構築に適していると考えられる。一方で、その技術的、学問的課題は多い。1 段目に用いられるのバンドギャップの大きい光触媒電極は、優れた光電気化学特性を示すばかりでなく、吸収端よりも長波長の光を透過させる必要がある。また、2 段目に用いられる光触媒電極は吸収端波長が可視域では全く不十分であり、近赤外域の光にまで有効に利用可能である必要がある。

2. 研究の目的

本研究においては太陽光を利用して水から効率的に水素を製造し得る反応系実現のため、1) 紫外～可視～近赤外域の光を効率的に利用できる近赤外光応答光触媒電極の開発、2) 近赤外光応答光触媒電極の低エネルギーロス化(高オンセットポテンシャル化)におけるキャリアダイナミクス解明と方法論の確立、3) 波長分割型タンデム型水分解システム構築に向けた半透明酸素生成光触媒電極の開発とその高性能化、4) システム的検討を通じた太陽エネルギー変換効率極大化、を行い、最終的に簡便な反応系で有意な太陽エネルギー変換効率、具体的には2%以上を得、本研究を通して得られた知見の有用性を示すとともに、エネルギー変換技術としてのポテンシャルを証明することを目的として設定した。

3. 研究の方法

上述のとおり、1) 紫外～可視～近赤外域の光を効率的に利用できる近赤外光応答光触媒電極の開発、2) 近赤外光応答光触媒電極の低エネルギーロス化(高オンセットポテンシャル化)におけるキャリアダイナミクス解明と方法論の確立、3) 波長分割型タンデム型水分解システム構築に向けた半透明酸素生成光触媒電極の開発とその高性能化、4) システム的検討を通じた太陽エネルギー変換効率極大化、を中心に検討した。1) においては主にカルコゲナイド材料に対して真空蒸着法あるいは近接昇華法、電着法等により薄膜状の光触媒電極を得る、あるいは固相反応法によって光触媒微粒子を調製し、粒子転写法によって導体上に固定することで光触媒電極を調製することにより材料開発を行った。2) においては1)において見出された光触媒電極に対して、主に多層構造化の手法と固液界面の電子状態を解析する手法を組み合わせることで反応の駆動力を引き出した。3) においては主に酸化物、酸窒化物、窒化物光触媒材料を検討した。また、後述の4)における検討を行いつつ酸素生成光触媒電極開発を行うことで反応系の耐久性向上も検討した。4) においては反応溶液の検討にはじまり、前述の耐久性改善のための分析、およびそれを受けての隔膜導入やイオン交換樹脂の導入といった検討を行った。

4. 研究成果

近赤外光応答光電極の開発では大きな進展が見られた。バンドギャップが1.4 eV(吸収端約900 nm)と小さいにもかかわらず約0.9 V vs. RHE(V_{RHE})と高オンセットポテンシャル(高反応駆動力)を示す $(ZnSe)_{0.85}(Cu(In,Ga)Se_2)_{0.15}$ の表面修飾による高効率化、および $(ZnSe)_{0.85}(Cu(In,Ga)Se_2)_{0.15}$ 光触媒微粒子を粒子転写法によってTi箔上に埋め込んだ光触媒電極を実現した。(DOI: 10.1039/c7cc06637f, DOI: 10.1039/c7ta06663e)また、多層構造化する際にCdSを電荷分離促進のための機能層として用いてきたが、その表面を In_2S_3 でごく薄く保護することで耐久性が格段に改善することを見出した。 $BiVO_4$ (吸収端約510 nm)からなる酸素生成光触媒電極と $(ZnSe)_{0.85}(Cu(In,Ga)Se_2)_{0.15}$ を用いてタンデム型水分解セルを構築、太陽エネルギー変換効率1.6%を得た。さらに、過酸化物を原料として RuO_2 で表面を保護すると強塩基条件をはじめとした過酷な条件下であっても長時間安定的に水素を生成することに成功した。多くの酸素生成光触媒電極は塩基性条件下で効率的に動作することから、強塩基条件での安定性は非常に重要である。(DOI: 10.1002/smt.201800018)

この他、CdTeはバンドギャップが1.5 eV(吸収端約830 nm)と小さいにも関わらず外部量子収率95%以上で水素生成反応を進行する水素生成光触媒電極となり得ることを見出した。(DOI: 10.1039/c7ta03761a)近接昇華法によってFTOコートガラス板上に厚さ数 μm のCdTe薄膜を形成し、光触媒電極として検討したが、この際、基材との界面にAu層を導入し、さらにCuをドーピングすることでシリーズ抵抗の低下および結晶性向上に成功した。また、 $CdCl_2$ を融剤として用いた再結晶処理によってCdTe内に残留していた異相を除去し、さらにPtおよびCdSで表面修飾することで上述の性能を達成した。また、同じくCdTeを用いているにもかかわらず、オンセット電位が約0.2 V_{RHE} と低電位を示す、反応の駆動力が非常に大きい新構造の酸素生成光電極も実現している。酸素生成系、水素生成系ともにCdTeを用いた場合でも水分解反応を進行することが確認できたが、これは近赤外光応答光触媒材料のみを用い、かつ疑似太陽光照射下において水分解反応を進行した世界で初めての例であると代表者は認識している。近赤外域に吸収端を持つ光触媒性材料を用いているにも関わらず、上述のような優れた特性が得られたことは、光電極・光触媒反応のポテンシャルを反映していると考えている。(DOI: 10.1002/anie.202000688, DOI: 10.1021/acs.jpcl.7b02526)

$Cu(In,Ga)Se_2$ (CIGS)は薄膜太陽電池材料としても知られる材料で、既に基準太陽光(AM 1.5G相当)照射下において 30 mA cm^{-2} という非常に大きな水素生成電流が得られる近赤外光応答光触媒電極となることが知られていた。一方、反応の駆動力が不十分であるがために、酸素生成光触媒電極との組み合わせでの水分解反応系の構築が困難であった。従来よりCIGSの表面修飾には固液界面に導入されるビルトインポテンシャルの変調のために機能層としてCdS、水素生成触媒としてPtを導入していた。ここで、従来用いられていた $CuIn_{0.7}Ga_{0.3}Se_2$ という組成のCIGS光触媒電極において、CIGSと比較してCdSは伝導体下端(CBM)が0.34 eVほど浅く、特に水素生成系が大きな駆動力を発揮する高電位においてはCdS層のCBMが光励起電子に対してバリアとして機能してしまい、水への電子注入の妨げとなっていることを明らかにした。この点を $CuIn_{0.5}Ga_{0.5}Se_2$ という組成のCIGSを用いることで解消、具体的にはバリア高さを0.2 eV程度まで小さくすることで0.5 V_{RHE} において12.5%という高い半セルでの太陽変換効率を得る事ができ

た。さらに酸素生成系として BiVO_4 を用いてタンデム型反応系を構築することで 2%を上回る高いエネルギー変換効率を得る事ができた。(DOI: 10.1039/c8ee01783b)

タンデム型反応系による水分解反応を行うと、主として水素生成系の効率が時間の経過とともに低下し、結果として全体の効率が低下することが観測された。この点を改善するべく、表面修飾手法を検討してきたが、反応後の水素生成光触媒電極表面を X 線光電子分光で分析したところ、酸素生成光触媒電極からの溶出物が析出していることが明らかになった。酸素生成光触媒電極の安定化のアプローチとして、反応液への金属イオン添加あるいは難溶化による金属イオンの飽和があるが、これらの手法を用いると水素生成系に金属種が析出して性能低下をもたらす場合があることを実験的に確認した。この問題を、反応溶液へのキレート樹脂ビーズ添加による金属イオンの補足、および、イオン交換樹脂によって酸素生成光触媒電極表面を修飾することによる金属イオン溶出の抑制により反応系の耐久性が大幅に改善することも見出した。(DOI: 10.1063/1.5052590)

上述のような直接的な高効率反応系構築に向けた検討に加え、反応中の光触媒材料中のキャリアの振る舞いを解明するべく、新規にフォトルミネッセンス(PL)測定系を開発した。この系ではポテンショスタットを用いて光電極あるいは光触媒シート化した光触媒材料の電位を制御しつつ PL をその場測定することにより、光励起キャリアの振る舞いに関する知見を得る事ができる。モデル電極として n 型の GaN 薄膜を用いた場合の印加電位を掃引しつつ測定した PL のマッピング結果を図 3 に示す。360 nm 近傍の発光はバンド端発光、560 nm あたりをピークとしたブロードな発光はイエローミネッセンス(YL)と呼ばれる深い準位に関連した発光である。バンド端発光、YL とともに高電位化とともに消光している。これはフラットバンド電位である $-0.5 \text{ V}_{\text{RHE}}$ 以上では固液界面のバンドベンディングが高電位化とともに増強、電荷分離が促進されたことにより光励起電子・正孔の再結合が妨げられたことによる。また、バンド端発光と YL の間の波長域にも微弱ながら発光があり、これは一連の実験から、固液界面に存在する界面準位を介した発光であると考えている。この発光と、PL マッピング測定と同時に計測していた光電流値との関係から、界面準位が効率的な水分解反応の妨げとなっていると結論した。また、雰囲気アルゴンから酸素に切り替えることで、電子が酸素に補足される様子が観察された。一方、助触媒を特に担持しない場合には光励起キャリアが深い準位を介して水を酸化、水分解反応が進行している様も初めて実験的に確認された。今後、様々な材料系・反応系へ展開するとともに、光触媒・光電気化学の学理確立に資していく計画である。

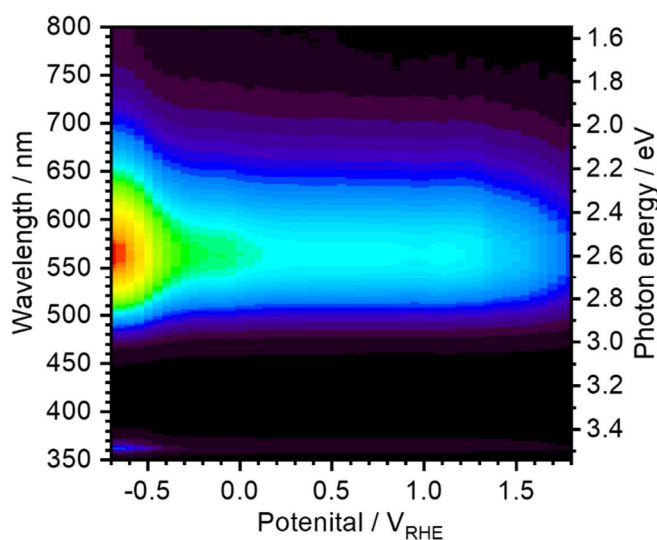


図 3 n 型 GaN モデル電極による光電気化学反応中の印加電位掃引 PL マッピング測定結果。電解液には NaOH 添加により pH を 10 に調整した 0.1 M Na_2SO_4 水溶液を用い、Ar 雰囲気下、室温で計測を行った。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計27件（うち査読付論文 27件/うち国際共著 5件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Su Jin, Hisatomi Takashi, Minegishi Tsutomu, Domen Kazunari	4. 巻 -
2. 論文標題 Enhanced Photoelectrochemical Water Oxidation from CdTe Photoanodes Annealed with CdCl ₂	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Angewandte Chemie International Edition	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/anie.202000688	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Pihosh Yuriy, Minegishi Tsutomu, Nandal Vikas, Higashi Tomohiro, Katayama Masao, Yamada Taro, Sasaki Yutaka, Seki Kazuhiko, Suzuki Yohichi, Nakabayashi Mamiko, Sugiyama Masakazu, Domen Kazunari	4. 巻 13
2. 論文標題 Ta ₃ N ₅ -Nanorods enabling highly efficient water oxidation via advantageous light harvesting and charge collection	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Energy & Environmental Science	6. 最初と最後の頁 1519-1530
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1039/D0EE00220H	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Minegishi Tsutomu, Ohnishi Atsushi, Pihosh Yuriy, Hatagami Kentaro, Higashi Tomohiro, Katayama Masao, Domen Kazunari, Sugiyama Masakazu	4. 巻 8
2. 論文標題 ZnTe-based photocathode for hydrogen evolution from water under sunlight	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 APL Materials	6. 最初と最後の頁 041101 ~ 041101
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） doi.org/10.1063/5.0002621	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Zhao Jiao, Minegishi Tsutomu, Ma Guijun, Zhong Miao, Hisatomi Takashi, Katayama Masao, Yamada Taro, Domen Kazunari	4. 巻 4
2. 論文標題 Efficient photoelectrochemical hydrogen production over CuInS ₂ photocathodes modified with amorphous Ni-MoS _x operating in a neutral electrolyte	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Sustainable Energy & Fuels	6. 最初と最後の頁 1607 ~ 1611
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1039/C9SE01173K	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Higashi Tomohiro, Nishiyama Hiroshi, Otsuka Yuki, Kawase Yudai, Sasaki Yutaka, Nakabayashi Mamiko, Katayama Masao, Minegishi Tsutomu, Shibata Naoya, Takanabe Kazuhiro, Yamada Taro, Domen Kazunari	4. 巻 13
2. 論文標題 Efficient Water Oxidation Using Ta ₃ N ₅ Thin Film Photoelectrodes Prepared on Insulating Transparent Substrates	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ChemSusChem	6. 最初と最後の頁 1974 ~ 1978
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cssc.202000397	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kageshima Yosuke, Minegishi Tsutomu, Goto Yosuke, Kaneko Hiroyuki, Domen Kazunari	4. 巻 2
2. 論文標題 Particulate photocathode composed of (ZnSe) _{0.85} (CuIn _{0.7} Ga _{0.3} Se ₂) _{0.15} synthesized with Na ₂ S for enhanced sunlight-driven hydrogen evolution	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Sustainable Energy & Fuels	6. 最初と最後の頁 1957 ~ 1965
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c8se00101d	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kageshima Yosuke, Minegishi Tsutomu, Sugisaki Sho, Goto Yosuke, Kaneko Hiroyuki, Nakabayashi Mamiko, Shibata Naoya, Domen Kazunari	4. 巻 10
2. 論文標題 Surface Protective and Catalytic Layer Consisting of RuO ₂ and Pt for Stable Production of Methylcyclohexane Using Solar Energy	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Applied Materials & Interfaces	6. 最初と最後の頁 44396 ~ 44402
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsami.8b14814	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kobayashi Hiroyuki, Sato Naotoshi, Orita Masahiro, Kuang Yongbo, Kaneko Hiroyuki, Minegishi Tsutomu, Yamada Taro, Domen Kazunari	4. 巻 11
2. 論文標題 Development of highly efficient CuIn _{0.5} Ga _{0.5} Se ₂ -based photocathode and application to overall solar driven water splitting	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Energy & Environmental Science	6. 最初と最後の頁 3003 ~ 3009
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c8ee01783b	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Seo Jeongsuk, Hisatomi Takashi, Nakabayashi Mamiko, Shibata Naoya, Minegishi Tsutomu, Katayama Masao, Domen Kazunari	4. 巻 8
2. 論文標題 Efficient Solar-Driven Water Oxidation over Perovskite-Type BaNbO ₂ N Photoanodes Absorbing Visible Light up to 740 nm	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Advanced Energy Materials	6. 最初と最後の頁 1800094 ~ 1800094
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/aenm.201800094	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Zhao Jiao, Minegishi Tsutomu, Kaneko Hiroyuki, Ma Guijun, Zhong Miao, Nakabayashi Mamiko, Hisatomi Takashi, Katayama Masao, Shibata Naoya, Yamada Taro, Domen Kazunari	4. 巻 55
2. 論文標題 Efficient hydrogen evolution on (CuInS ₂) _x (ZnS) _{1-x} solid solution-based photocathodes under simulated sunlight	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 470 ~ 473
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c8cc08623k	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Kaneko Hiroyuki, Minegishi Tsutomu, Kobayashi Hiroyuki, Kuang Yongbo, Domen Kazunari	4. 巻 150
2. 論文標題 Suppression of poisoning of photocathode catalysts in photoelectrochemical cells for highly stable sunlight-driven overall water splitting	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 041713 ~ 041713
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5052590	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kageshima Yosuke, Minegishi Tsutomu, Sugisaki Sho, Goto Yosuke, Kaneko Hiroyuki, Nakabayashi Mamiko, Shibata Naoya, Domen Kazunari	4. 巻 10
2. 論文標題 Surface Protective and Catalytic Layer Consisting of RuO ₂ and Pt for Stable Production of Methylcyclohexane Using Solar Energy	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Applied Materials & Interfaces	6. 最初と最後の頁 44396 ~ 44402
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsami.8b14814	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tzu Hsuan Chiang, Hao Lyu, Takashi Hisatomi, Yosuke Goto, Tsuyoshi Takata, MasaO Katayama, Tsutomu Minegishi, Kazunari Domen	4. 巻 8
2. 論文標題 Efficient Photocatalytic Water Splitting Using Al-Doped SrTiO ₃ Coloaded with Molybdenum Oxide and Rhodium-Chromium Oxide	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Catalysis	6. 最初と最後の頁 2782-2788
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.7b04264	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Yusuke Asakura, Tomohiro Higashi, Hiroshi Nishiyama, Hiroyuki Kobayashi, Mamiko Nakabayashi, Naoya Shibata, Tsutomu Minegishi, Takashi Hisatomi, Masao Katayama, Taro Yamada, Kazunari Domen	4. 巻 2
2. 論文標題 Activation of a particulate Ta ₃ N ₅ water-oxidation photoanode with a GaN hole-blocking layer	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Sustainable Energy and Fuels	6. 最初と最後の頁 73-78
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c7se00402h	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kaneko Hiroyuki, Minegishi Tsutomu, Domen Kazunari	4. 巻 23
2. 論文標題 Recent Progress in the Surface Modification of Photoelectrodes toward Efficient and Stable Overall Water Splitting	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Chemistry - A European Journal	6. 最初と最後の頁 1-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/chem.201703104	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Liu Jingyuan, Hisatomi Takashi, Katayama Masao, Minegishi Tsutomu, Domen Kazunari	4. 巻 2
2. 論文標題 Optimal Metal Oxide Deposition Conditions and Properties for the Enhancement of Hydrogen Evolution over Particulate La ₅ Ti ₂ Cu _{1-x} Ag _x S507 Photocathodes	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 ChemPhotoChem	6. 最初と最後の頁 234-239
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cptc.201700136	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Su Jin, Minegishi Tsutomu, Kageshima Yosuke, Kobayashi Hiroyuki, Hisatomi Takashi, Higashi Tomohiro, Katayama Masao, Domen Kazunari	4. 巻 8
2. 論文標題 CdTe-Based Photoanode for Oxygen Evolution from Water under Simulated Sunlight	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 5712-5717
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcllett.7b02526	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Sun Song, Hisatomi Takashi, Wang Qian, Chen Shanshan, Ma Guijun, Liu Jingyuan, Nandy Swarnava, Minegishi Tsutomu, Katayama Masao, Domen Kazunari	4. 巻 8
2. 論文標題 Efficient Redox-Mediator-Free Z-Scheme Water Splitting Employing Oxysulfide Photocatalysts under Visible Light	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Catalysis	6. 最初と最後の頁 1690-1696
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.7b03884	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Higashi Tomohiro, Kaneko Hiroyuki, Minegishi Tsutomu, Kobayashi Hiroyuki, Zhong Miao, Kuang Yongbo, Hisatomi Takashi, Katayama Masao, Takata Tsuyoshi, Nishiyama Hiroshi, Yamada Taro, Domen Kazunari	4. 巻 53
2. 論文標題 Overall water splitting by photoelectrochemical cells consisting of (ZnSe) _{0.85} (CuIn _{0.7} Ga _{0.3} Se ₂) _{0.15} photocathodes and BiVO ₄ photoanodes	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 11674-11677
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c7cc06637f	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kodera Masanori, Wang Jiarui, Nail Benjamin A., Liu Jingyuan, Urabe Haruki, Hisatomi Takashi, Katayama Masao, Minegishi Tsutomu, Osterloh Frank E., Domen Kazunari	4. 巻 683
2. 論文標題 Investigation of charge separation in particulate oxysulfide and oxynitride photoelectrodes by surface photovoltage spectroscopy	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Chemical Physics Letters	6. 最初と最後の頁 140-144
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cplett.2017.03.012	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Su Jin, Minegishi Tsutomu, Domen Kazunari	4. 巻 5
2. 論文標題 Efficient hydrogen evolution from water using CdTe photocathodes under simulated sunlight	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of Materials Chemistry A	6. 最初と最後の頁 13154-13160
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c7ta03761a	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nandy Swarnava, Goto Yosuke, Hisatomi Takashi, Moriya Yosuke, Minegishi Tsutomu, Katayama Masao, Domen Kazunari	4. 巻 1
2. 論文標題 Synthesis and Photocatalytic Activity of La ₅ Ti ₂ Cu(S _{1-x} Se _x) ₅₀₇ Solid Solutions for H ₂ Production under Visible Light Irradiation	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 ChemPhotoChem	6. 最初と最後の頁 265-272
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cptc.201700005	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Goto Yosuke, Minegishi Tsutomu, Kageshima Yosuke, Higashi Tomohiro, Kaneko Hiroyuki, Kuang Yongbo, Nakabayashi Mamiko, Shibata Naoya, Ishihara Hitoshi, Hayashi Toshio, Kudo Akihiko, Yamada Taro, Domen Kazunari	4. 巻 5
2. 論文標題 A particulate (ZnSe) _{0.85} (CuIn _{0.7} Ga _{0.3} Se ₂) _{0.15} photocathode modified with CdS and ZnS for sunlight-driven overall water splitting	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of Materials Chemistry A	6. 最初と最後の頁 21242-21248
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c7ta06663e	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ma Guijun, Kuang Yongbo, Murthy Dharmapura H. K., Hisatomi Takashi, Seo Jeongsuk, Chen Shanshan, Matsuzaki Hiroyuki, Suzuki Yohichi, Katayama Masao, Minegishi Tsutomu, Seki Kazuhiko, Furube Akihiro, Domen Kazunari	4. 巻 印刷中
2. 論文標題 Plate-like Sm ₂ Ti ₂ S ₂ O ₅ Particles Prepared by a Flux-Assisted One-Step Synthesis for the Evolution of O ₂ from Aqueous Solutions by Both Photocatalytic and Photoelectrochemical Reactions	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 印刷中
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.7b12087	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hiroyuki Kaneko, Tsutomu Minegishi, Tomohiro Higashi, Maniko Nakabayashi, Naoya Shibata, and Kazunari Domen	4. 巻 印刷中
2. 論文標題 Stable Photoelectrochemical Hydrogen Production from Water on an NIR-Responsive Photocathode under Harsh Conditions	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Small Methods	6. 最初と最後の頁 印刷中
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/smt.201800018	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Goto Yosuke, Hisatomi Takashi, Wang Qian, Higashi Tomohiro, Ishikiriyama Kohki, Maeda Tatsuya, Sakata Yoshihisa, Okunaka Sayuri, Tokudome Hiromasa, Katayama Masao, Akiyama Seiji, Nishiyama Hiroshi, Inoue Yasunobu, Takewaki Takahiko, Setoyama Tohru, Minegishi Tsutomu, Takata Tsuyoshi, Yamada Taro, Domen Kazunari	4. 巻 2
2. 論文標題 A Particulate Photocatalyst Water-Splitting Panel for Large-Scale Solar Hydrogen Generation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Joule	6. 最初と最後の頁 509-520
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.joule.2017.12.009	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tay Ying Fan, Kaneko Hiroyuki, Chiam Sing Yang, Lie Stener, Zheng Qiusha, Wu Bo, Hadke Shreyash Sudhakar, Su Zhenghua, Bassi Prince Saurabh, Bishop Douglas, Sum Tze Chien, Minegishi Tsutomu, Barber James, Domen Kazunari, Wong Lydia Helena	4. 巻 2
2. 論文標題 Solution-Processed Cd-Substituted CZTS Photocathode for Efficient Solar Hydrogen Evolution from Neutral Water	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Joule	6. 最初と最後の頁 537-548
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.joule.2018.01.012	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計13件 (うち招待講演 10件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 Tsutomu Minegishi, Kazunari Domen
2. 発表標題 Photoelectrochemical Production of Energy Carriers from Water Using Photoelectrodes
3. 学会等名 12th International Conference on Ceramic Materials and Components for Energy and Environmental Applications (CMCEE2018) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Tsutomu Minegishi, Jin Su, Kazunari Domen
2. 発表標題 CdTe based photocathodes and photoanodes for photoelectrochemical water splitting under sunlight
3. 学会等名 233rd Electrochemical Society (ECS) Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 嶺岸 耕
2. 発表標題 水分解光電極へのカルコパイライト半導体の適用
3. 学会等名 第66回 応用物理学会 春季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 嶺岸 耕
2. 発表標題 近赤外光応答光触媒材料の開発とエネルギーキャリア生成
3. 学会等名 触媒学会若手会「第29回フレッシュマンゼミナール」(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 嶺岸耕
2. 発表標題 非酸化物半導体電極の開発と人工光合成反応系の構築
3. 学会等名 第二回プレ戦略研究会「次世代物質・デバイス戦略開発拠点」、筑波大学 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 嶺岸耕、堂免一成
2. 発表標題 太陽光を利用してエネルギーキャリアを直接生成する近赤外光応答光電極の開発
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会、早稲田大学(新宿区) (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 嶺岸耕
2. 発表標題 非酸化物光電極によるエネルギーキャリア生成
3. 学会等名 日本化学会第98春季年会、日本大学(船橋市) (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Tsutomu Minegishi, Kazunari Domen
2. 発表標題 Hydrogen and Methylcyclohexane Production by Solar Water Splitting using Photoelectrochemical Cells
3. 学会等名 232nd Electrochemical society (ECS) meeting, National Harbor (MD, U. S. A.) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Tsutomu Minegishi, Kazunari Domen
2. 発表標題 Photoelectrochemical Hydrogen and Methylcyclohexane Production using Novel Photocathodes
3. 学会等名 9th International Conference on Materials for Advanced Technologies, シンガポール (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Tsutomu Minegishi, Kazunari Domen
2. 発表標題 Chalcogenide-based Photoelectrodes for Solar Fuel Production
3. 学会等名 The 15th International Conference on Advanced Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	杉山 正和 (Sugiyama Masakazu) (90323534)	東京大学・先端科学技術研究センター・教授 (12601)	