

## 科学研究費助成事業(学術研究助成基金助成金)研究成果報告書

平成25年 5月16日現在

機関番号:	1550	1				
研究種目:	挑戦的萌	i芽研究				
研究期間:	2011~20	012				
課題番号:	23656242	2				
研究課題名	(和文)	アモルファスカーボンナノ微粒子を用いた電気化学反応制御と高感度				
		ガスセンサーの開発				
研究課題名	(英文)	Control of electrochemical reaction by amorphous carbon				
		nano-particles and development of high-sensitive gas sensor				
研究代表者						
本多 謙介 (HONDA KENSUKE)						
山口大学・大学院理工学研究科・准教授						
研究者番号	寻: 6033	34314				

研究成果の概要(和文):本研究課題では、化学組成とナノサイズの形状を制御したアモルファスカーボン(a-C)電極を創製し、電気化学活性の発現メカニズムの解明を通して、環境に有害な物質(AsH<sub>3</sub>や PH<sub>3</sub>など)の高感度検出が可能な電気化学センサーを実現することを目的とした。原料中のホウ酸トリメチルと n-ヘキサンの混合比変更により、キャリア密度が 10<sup>14</sup> cm<sup>-3</sup>から  $1.3 \times 10^{19}$  cm<sup>-3</sup>の範囲で可変な p型 a-C 半導体を実現した。ホウ素は水素発生の電気化学触媒として働く。ホウ素量の制限により水素発生の反応性抑制が可能であり、標準電位が低い Mn<sup>2+</sup>イオンを、排出基準(0.2 mM)以下の 0.02 mM の濃度で検出することに成功した。

研究成果の概要(英文): The objective of this study was to create a-C surface with higher electro-catalytic activity by controlling chemical compositions and sizes of amorphous carbon nano-particles, and to establish the electrochemical method to detect hazardous materials like AsH<sub>3</sub> and PH<sub>3</sub> quantitatively. The concentration of dopant atoms showing p type conductivity was tried to be controlled. Carrier concentration of p-type a-C could be successfully varied in the range from  $10^{14}$  cm<sup>-3</sup> to  $1.3 \times 10^{19}$  cm<sup>-3</sup> by changing the ratio of trimethyl borate and n-hexane used as source materials. Boron atoms were confirmed to serve as an electro-catalyst for hydrogen evolution. Since the reactivity to hydrogen evolution could be suppressed at a-C films doped with tiny amounts of boron, Mn<sup>2+</sup> ion could be efficiently reduced. It results that Mn<sup>2+</sup> ion at extremely lower concentration (0.02 mM) than discharge standard (0.2 mM) could be detected quantitatively.

交付決定額

			(金額単位:円)
	直接経費	間接経費	合 計
交付決定額	3, 000, 000	900, 000	3, 900, 000

研究分野:プラズマ材料、電気化学 科研費の分科・細目: 電気電子工学、電子デバイス・電子機器 キーワード:ダイヤモンドライクカーボン、半導体、センサー材料

1. 研究開始当初の背景

アモルファスカーボンはさまざまな基板 上に成膜可能であり、テフロン等の多孔質膜 表面へのコーティングにより気体透過性電 極を実現できる。この気体透過性 a-C 電極を 用いると、貴金属電極では不可能な有毒ガス を検出する電気化学センサーを実現できる。 電気化学的な原理を用いた毒性・可燃性ガ スの微量検出センサーは、半導体製造工場に おいて人体に有毒な半導体材料ガス(アルシ ン、ホスフィン、ジボラン)を検出する目的 で広く利用されている。電子部品・デバイス 製造に携わる事業所は全国で4000ヶ所にの ぼり、半導体製造現場には、ガス種に応じた ガスセンサーの設置が義務付けられている。 安全性基準の高度化へ対応し、生活空間をク リーンに保つ重要な技術分野である。

現在、半導体材料ガスセンサーのうち、ジ ボランセンサーは、貴金属電極と有機電解液 を組み合わせて実用化されている。このセン サーは環境測定のための連続モニタリング 中に、大気中の水分が混入するため安定性が 低く、定期的に電極(あるいは測定ユニット) の交換が必要である。申請者らは、a-C 微粒 そを堆積させた気体透過性電極と硫酸溶液 を組合せた電気化学ガスセンサーにより、 200 ppbのジボランの検出に成功した。この センサーは水溶液を用いているので、安定性 が非常に高い。

2. 研究の目的

**a-C**の平滑なバルク表面はジボラン応答性 を示さない。したがって、気体透過性 **a-C** 電 極のジボラン酸化活性には、**a-C** 微粒子サイ ズと化学組成(窒素密度、**sp**<sup>2</sup>/**sp**<sup>3</sup>炭素比)が 深く関与していると考えられる。

本研究課題では、化学組成とナノサイズの 形状を制御したアモルファスカーボン(a-C) 電極を創製し、その電気化学活性の評価を通 して、a-Cの示す特異的な電気化学活性の発 現メカニズムを解明するとともに、a-Cの化 学組成・形状により、種々の電気化学反応を 制御する手法を確立することを目指す。また、 有毒ガスであるアルシン(AsH<sub>3</sub>)やホスフィ ン(PH<sub>3</sub>)など、環境に有害な物質を高感度に 検出可能な電気化学センサーの実現を目的 とした。

 a-C 化学組成による反応制御法の確立 導電性 a-C のキャリア濃度制御目標: 10<sup>13</sup>~10<sup>21</sup>/cm<sup>3</sup>

sp<sup>2</sup>/sp<sup>3</sup>比制御目標:10/90~90/10 本研究では、a-C への導電性賦与に用いる不 純物原子(窒素原子)は、電気化学触媒反応 の活性点として機能する可能性がある。そこ で、以下のp・n型2つの様式における不純 物原子の種類、濃度を制御したa-Cを作成し、 電気化学反応性を検証する。

① n型不純物原子—窒素(N),リン(P)

② p型不純物原子—ホウ素(B)

キャリア密度は、Si 半導体の制御範囲と同レベルの、半導体から半金属領域に対応する 10<sup>13</sup>~10<sup>21</sup>/cm<sup>3</sup>に制御可能な成膜技術を構築 する。a-Cは、sp<sup>2</sup>炭素と sp<sup>3</sup>炭素を含むアモ ルファス材料である。 $sp^2/sp^3$ 炭素比は硬度や バンドギャップなどの物理特性、さらには電 位窓や二重層容量などの電気化学特性に強 く影響を及ぼす。そこで、 $sp^2/sp^3$ 炭素比を厳 密に制御した a-Cを作成し、ジボラン(B<sub>2</sub>H<sub>6</sub>)、 アルシン(AsH<sub>3</sub>)、ホスフィン(PH<sub>3</sub>)に対する 反応性など電気化学反応性の評価を行い、化 学組成による反応制御法を確立する。

 (2) 環境汚染物質を高感度に検出可能な電気 化学ガスセンサーの開発 環境汚染物質の検出限界濃度目標値:
 5 ppb (AsH<sub>3</sub>), 300 ppb (PH<sub>3</sub>),
 0.2 mM (Mn<sup>2+</sup>)

**a-C**の化学組成・形状による触媒活性制御 法を基盤として,最適化した化学組成・形状 で作製した高い触媒活性を示す**a-C**電極によ り、アルシン(AsH<sub>3</sub>)、ホスフィン(PH<sub>3</sub>)、マ ンガンイオンを、それぞれの排出基準値、5 ppb、300 ppb および 0.2 mM で選択検出可 能な a-C 電気化学センサーの実現を目指す。

3.研究の方法

(1) a-C 化学組成による反応制御法の確立 申請者は、a-C 薄膜に、窒素原子を添加す ることにより、窒素ドープ a-C 薄膜の作製に 成功している。また、炭素・ホウ素源として トリメトキシホウ素を用いて a-C 薄膜を成膜 すると、シート抵抗値 100 kΩ程度のホウ素ド ープ a-C 薄膜が得られることも確認している。
①p・n型 a-C キャリア密度制御法の確立 ホウ素(B)およびリン(P)を不純物原子と してキャリア密度を目標値である 10<sup>13</sup>~ 10<sup>21</sup>/cm<sup>3</sup>に制御するための a-C 成膜条件の 確立を図る。具体的には、a-C 成膜時の I.炭素源濃度、II 炭素源温度、 III. プラズマ出力、IV 基板温度

の4つの条件の最適を図り、ホウ素(リン) ドープ量制御手法の確立を図る。

②sp<sup>2</sup>/sp<sup>3</sup>炭素比制御手法の確立

現在作成可能な a-C は  $sp^2/sp^3$ 比が 60/40 と  $sp^2$ 成分の多い組成である。ノンドープ a-C では高温条件下(~300 °C)での成膜 において高硬度薄膜(低  $sp^2$ 成分比)を作製 可能である。そこで、 $sp^3$ 炭素比を上げた a-C の創製に向け、基板温度制御装置付の プラズマ CVD 装置により、

Ⅰ.300℃程度の高温基板条件での a-C
 成膜条件の最適化を図る。

 (2) a-Cを用いた電気化学センサーの開発 a-C における環境汚染物質(アルシン (AsH<sub>3</sub>)、ホスフィン(PH<sub>3</sub>)、マンガンイオン (Mn<sup>2+</sup>))に対する電気化学反応性を検証し、 それぞれの排出基準値、5 ppb、300 ppb お よび 0.2 mM で検出可能な感度を示す、高 い触媒活性を示す a-C 薄膜の実現に向け a-Cの化学組成・形状の最適化を図る。

4. 研究成果

(1) ボロンドープアモルファスカーボン(B-DLC)の作製

13.56 MHz の高周波(RF)自己バイアスシス テムを用いたプラズマ化学気相成長(chemical vapor deposition; CVD) 装置 (model BP-10, SAMCO Co., Ltd.)を使用して、 B-DLC 膜を 導電性 n-Si (1 1 1)基板(< 0.02 Ω cm, SUMCO Co., Ltd.)上に作製した。炭素源およびホウ素 源として n-hexane と trimethyl borate (B(OCH3)3, TMOB)の混合溶液を使用した。 原料ガスとして室温に保った n-hexane と TMOBの混合溶液(炭素・ホウ素源)の蒸気(5  $mLmin^{-1}$ をチャンバーに導入した。 a-C 膜中 のホウ素濃度は、 n-hexane と TMOB の混合 比で調節した。 成膜中に原料ガスと同時に Ar を導入した。 膜厚 0.68 µm の B-DLC 膜は、 Si 基板を設置したカソードに RF 出力 350 W を印加することによって成長させた。 B-DLC 中の sp<sup>2</sup>炭素量は, 基板温度により制 御した。 sp<sup>2</sup>炭素量 82 %の B-DLC 5 膜は基 板温度 300℃、sp<sup>2</sup>炭素量 75 %の B-DLC 4 膜 は基板温度 275℃において作製した。 成膜時 チャンバー圧力は40 Pa、成膜時間は40 min。

(2) ボロンドープアモルファスカーボンの電気特性

B-DLC 膜の電気特性を明らかにするため に、Hall 効果測定(Van der Pouw 法)を行った。 Table 1 に Hall 効果測定により得られた結果 と、XPS 測定により得られた sp<sup>2</sup>炭素量を示 す。Table 1のB-DLC1およびB-DLC4より、 Arの導入によって、 B-DLC 薄膜はn型伝導 からp型伝導に変化した。 さらに、 原料ガ ス中のホウ素濃度を 0.625 から 2.500 atom% に増加させた時、キャリア密度が 0.49×10<sup>18</sup> から 12.9×10<sup>18</sup> cm<sup>-3</sup> に増加させることに成功 した。このキャリア密度は、制御目標値の 10<sup>21</sup> cm<sup>-3</sup>には及ばないものの高レベルに制御 可能である。伝導型の変化とホウ素濃度の増 加に伴うキャリア密度の増加は、a-C 中のホ ウ素原子がアクセプタとして機能し、 キャ リアであるホールを供給していることを意 味する。 Ar 流量 100 sccm、 原料ガス中ホウ 素濃度が 2.500 atom%の時、B-DLC 4 の電気 抵抗率は 6.36×10<sup>-2</sup>Ω cm を示した。

Z.Q. Ma らは、1.2 atom%のホウ素原子を含 む DLC 膜の体積抵抗率を 10  $\Omega$  cm と報告し ている。この結果と比較すると、本研究の B-DLC 4 膜は、ホウ素濃度の値(B/C = 1.300 atom%)が近いにもかかわらず体積抵抗率 (6.36×10<sup>-2</sup>  $\Omega$  cm)が非常に小さい。 Z.Q. Ma らの報告した B-doped DLC 膜の sp<sup>2</sup>炭素量は、 Raman スペクトルの G-band の位置( $\omega$ G = 1521 cm<sup>-1</sup>)から、約46.7 atom%と推定される

 $(sp^2 \text{ content} = 1 - \{0.24 - 48.9 (\omega G - 0.158)\}$ り)。そのため、本研究の B-DLC 膜の高い導 電性には、高い sp<sup>2</sup>炭素量(約75 atom%)が寄 与していると考えられる。アモルファスカー ボン中における伝導機構は、伝導に関わる隣 接したサイト間でキャリアがホッピングす るホッピング伝導である。アモルファスカー ボン中の sp<sup>2</sup>炭素量が増加すると、キャリア のホッピング距離が短くなることが報告さ れている。ホッピング距離が短くなると、キ ャリア移動度は増加する。Table 1より、sp<sup>2</sup> 炭素量が 68.02 atom%の B-DLC 1 の体積抵抗 率は 5.93 Ω cm, sp<sup>2</sup>炭素量が 75.27 atom%の B-DLC 4 の体積抵抗率は 6.36×10<sup>-2</sup> Ω cm、sp<sup>2</sup> 炭素量が 82.15 atom%の B-DLC 5 の体積抵抗 率は 5.91×10<sup>-2</sup> Ω cm を示し、sp<sup>2</sup>炭素量の増加 に伴い導電性が増加した。sp<sup>2</sup>炭素量が 82.15 atom%の B-DLC 5 は、電極としての耐腐食性 が著しく低下する。そのため、膜の耐久性を 損なわない 75 atom%まで sp<sup>2</sup>炭素量を多くす ることによって移動度を高くし、高い導電性 を実現することが可能である。

Table 1. B-DLC の Hall 効果測定結果

Sample	of dopent	Ar flow rate	Carrier density	Mobility	Resistivity	Hall	Туре	$sp^2 / (sp^2 + sp^3)$ (atom%)	
	(atom %)	(seem)	$(10^{18} \mathrm{cm}^{-3})$	(cm <sup>2</sup> V <sup>1</sup> s <sup>-1</sup> )	$(\Omega \text{ cm})$	$(cm^3 C^{-1})$			
non-doped DLC	0	100	0.09	17.3	36.4	-64.29	n	75.47	
B-DLC	2.500	0	2.93	3.60	5.93	-21.30	n	68.02	
B-DLC	0.625	100	0.49	13.1	0.96	+12.68	р	74.63	
B-DLC	1.875	100	9.71	12.4	0.51	+0.64	p	75.74	
B-DLC	2.500	100	12.9	7.59	$6.36 \times 10^{-2}$	+0.48	р	75.27	
B-DLC*	2.500	100	21.6	4.83	5.91 × 10-2	-0.28	n	82.15	
N-DLC	50	0	0.57	7.52	1 4 4	-10.85	n	74 35	

(3) ボロンドープアモルファスカーボンの 電気化学特性~水素・酸素発生の過電圧~

B-DLC 電極の電気化学特性を明らかにす るために、水素・酸素発生に対する反応性の 評価を行った。 Fig. 1 に 0.1 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> 中にお ける各電極のサイクリックボルタモグラム を示す。本研究において、電流密度が+0.2、 -0.2 mA cm<sup>-2</sup>に達する電極電位を、それぞれ, 酸素発生電位および水素発生電位と定義し た。0.1 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>中におけるグラッシーカーボ ン(GC)電極の酸素発生電位は 1.55 V であっ た。N ドープ a-C (N-DLC), B-DLC 4 (B/C = 2.500 atom%)、ボロンドープダイヤモンド (BDD)電極の酸素発生電位は、それぞれ、1.94、 2.12、2.04 V であった。これら電極の酸素発 生に対する過電圧は、GC 電極と比較して約 500 mV 大きい。そのため、これらの電極を 使用することで、酸素発生に阻害されること なく、酸素発生電位(E<sub>0</sub>=1.23 V vs. SHE)より も高い標準電位を持つ電気化学活性種の検 出を行うことが可能である。O2発生反応は吸 着 OH 基のような表面吸着中間体を含む機構 で進行する。そのため、B-DLC 電極は、BDD 電極と同様に OH 基の吸着に必要な表面サイ トが少ないものと考えられる。

一方、N-DLC、B-DLC 4 (B/C = 2.500 atom%), BDD 電極の水素発生電位は、それぞれ, -1.75 V、-1.41 V、-0.83 V と大きく異なった。この 3 つの電極は、膜中のホウ素原子濃度が大き い電極ほど 水素発生に対する過電圧が低い。 Figure 1.0.1 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>中における B ドープ a-C のサイクリックボルタモグラム

水素発生の反応性がホウ素量に比例する 可能性を検証するために, B-DLC 中ホウ素量



を変化させ、水素・酸素発生に対する反応性 を検証した。Fig. 1 に示すように、B-DLC 膜 の成膜時の原料ガス中ホウ素濃度を B/C = 0.625 から 2.500 atom%に増加させることによ り、水素発生反応の開始電位が-1.61 から-1.41 V vs. Ag|AgCl へ貴電位側にシフトした。つま り、ホウ素濃度の増加に伴い、水素発生反応 に対する過電圧が約 200 mV 減少した。一方、 B/C = 0.625 から 2.500 atom%の原料ガス中の ホウ素濃度の増加において、酸素発生反応に 対する過電圧は僅か 30 mV しか減少しなか った。ホウ素の量は水素発生反応のみに強 く影響すると考えられる.

B-DLC 膜中のホウ素原子が、酸素・水素発 生反応の反応速度に与える影響を明らかに するために、1.0 M H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>中における過電圧と 電流値の対数から Tafel plot を作成した。 電 位走査速度は 50 mV min<sup>-1</sup>とした。本研究で は、H<sub>2</sub>発生における過電圧n = 0 を 0 V vs. SHE (2H+ + 2e<sup>-</sup> → H<sub>2</sub>の標準電位), O<sub>2</sub>発生に おける過電圧 $\eta = 0 \ge 1.23$  V vs. SHE (O<sub>2</sub> + 4H+ + 4e<sup>-</sup> → 2H<sub>2</sub>O の標準電位)と設定した。 Tafel plot の近似曲線より、水素・酸素発生に 関する交換電流密度 i<sub>0</sub>および移動係数αを算 出した。交換電流密度もは標準速度定数、移 動係数αはポテンシャルエネルギーの障壁の 対称性に関するパラメータである。Table 2 に Tafel plot の近似曲線より算出した交換電流 

酸素発生反応に関して、ホウ素量に対して 移動係数 $\alpha$ は 0.14 – 0.15 の値をとり、ほぼ一 定であった。また、交換電流密度  $i_0$ は、ホウ 素量の増加に対して 2.63×10<sup>-6</sup>から

Table 2. B-DLC 上での水素・酸素発生 における交換電流密度 *i*<sub>0</sub>と移動係数α

B/C ratio	H <sub>2</sub> e	volution		O2 e	O <sub>2</sub> evolution			
	B/C Tallo	io	slope <sup>-1</sup>	α	<i>i</i> o	slope <sup>-1</sup>	α	
	(atom %)	$(10^{-8} \mathrm{Acm^{-2}})$	(mV dec <sup>-1</sup> )		$(10^{-6} \mathrm{A}\mathrm{cm}^{-2})$	(mV dec <sup>-1</sup> )		
	0.625	1.47	336	0.18	2.63	415	0.14	
	1.875	2.14	339	0.17	3.53	405	0.15	
	2.500	37.0	413	0.14	5.08	418	0.14	

5.08×10<sup>-6</sup> A cm<sup>-2</sup>まで僅かに増加した。B-DLC 膜中のホウ素原子は酸素発生速度には、影響 を与えないことを意味する。一方、水素発生 反応に関して、膜中ホウ素量が 0.625 から 2.500 atom%へと増加に伴い移動係数は 0.18 から 0.14 へ僅かに減少し、交換電流密度  $i_0$ は 1.47×10<sup>-8</sup> から 3.70×10<sup>-7</sup> A cm<sup>-2</sup> へと一桁以 上増加した。この水素発生に対する交換電流 密度  $i_0$ の増加量は、酸素発生に対する交換電 流密度の増加量と比較して非常に大きい。こ れは、B-DLC 膜中のホウ素量の増加に伴って 水素発生の反応速度定数が大きく向上した ことを示す。

原料ガス中のホウ素濃度の増加に伴い.水 素発生に関する移動係数αはほとんど変化せ ず、交換電流密度らは大きく増加した。つま り、ホウ素量の増加により水素発生のポテン シャルエネルギーの対称性は変化せずに、反 応の活性化エネルギーが小さくなっている ことを意味する。つまり、ホウ素原子はプロ トンの還元反応に対して電気化学触媒とし て働いている。そのため、膜中ホウ素量の制 御により、B-DLC 電極の卑側の電位窓を拡張 することで、Mn<sup>2+/0</sup>などの低い標準電位を持 つ金属イオンの検出が可能である。B-DLC 2 電極は水素発生反応に対する過電圧が BDD 電極よりも 780 mV 高いため、BDD 電極では 測定できない標準電位の低い酸化還元種を 測定対象とすることができる。

(4) ストリッピングボルタンメトリー法による Mn<sup>2+</sup>の電気化学検出

B-DLC 電極は、膜中のホウ素量を変えるこ とで水素発生電位を制御することが可能で ある。その結果、原料ガス中ホウ素濃度が B/C = 0.625 atom%の B-DLC 2 電極の水素発生反 応に対する過電圧は、BDD 電極よりも 780 mV 大きい。そのため、B-DLC 2 電極は水素発 生反応の干渉を受けることなく、低い標準電 位を持つ電気化学活性種の検出が可能であ る。原料ガス中ホウ素濃度が B/C = 0.625 atom%の B-DLC 2 電極の、抵抗率と残余電流 値は、それぞれ、0.96  $\Omega$  cm、0.64  $\mu$ A cm<sup>-2</sup>であ った。これは、B-DLC 2 電極が、N-DLC 電極 と比較して低いオーム損、高い検出感度を示 す電極材料であることを意味する。

 $Mn^{2+/0}$ の標準電位は-1.18 V vs. SHE である。 そのため、Pt や GC 電極のような従来の電極 では、水素発生反応により $Mn^{2+/0}$ の反応を観 測することは不可能である。本研究において、 水溶液中の $Mn^{2+}$ イオンの検出はストリッピ ングボルタンメトリーを用いて行った。前電 解として電極電位を-4 V vs. Ag|AgCl で 1 min 保持し、溶液中の $Mn^{2+}$ を電極表面上に $Mn^0$ として析出させた後、走査速度 50 mV s<sup>-1</sup>で -1.25 から 0 V vs. Ag|AgCl まで走査を行った。



 Figure 2. (a) BDD,および,(b) B-DLC 2 電極 上における Mn<sup>2+/0</sup>のストリッヒ<sup>0</sup>ングボ ルタモク<sup>7</sup>ラム
 析出した Mn<sup>0</sup> が Mn<sup>2+</sup>へ酸化され溶出する際 の、ストリッピングピーク面積を記録した。
 Fig. 2 に(a) BDD 電極および(b) B-DLC 2 電極 上における各濃度の Mn<sup>2+</sup>のストリッピング
 ボルタモグラムを示す。

Figure 3. B-DLC 2 電極上におけるストリ ッピングピーク面積の Mn<sup>2+</sup>濃度依存性



BDD 電極では、 $Mn^{2+}$ イオン濃度が 0.2 mM 以下において、ストリッピングピークを 明瞭に観察することは不可能であった。その ため、BDD 電極は、排出基準(0.2 mM)以下の  $Mn^{2+}$ イオンをモニタリングするための電気 化学センサーに応用することは不可能であ る。一方、水素発生反応に対する過電圧が BDD 電極よりも 780 mV 大きい B-DLC 2 電極 は、水素発生反応の干渉が少ないため排出基 準以下の 0.02 mM まで検出可能であった。 B-DLC 2 電極のストリッピングピークの  $Mn^{2+}$ 濃度に対するピーク面積値を Fig. 3 に示 す。ピーク面積値が  $Mn^{2+}$ 濃度に比例する領域 は、0.02 から 2.5 mM であった(ダイナミック レンジ: 2 桁)。

膜中のホウ素量を制御することで廃水中の Mn<sup>2+</sup>イオンを高感度に定量することを可能とする、B-DLC 電極を用いた電気化学システムの開発に成功したと結論づけられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者に は下線)

〔雑誌論文〕(計 7 件)

- ①Kensuke Honda, Akira Nakahara, Hiroshi Naragino, Kohsuke Yoshinaga, Sakuya Tanaka, "High Sensitive Amperometric Detection of Glucose using Conductive DLC Electrode in Higher Potential Region" ECS transactions, 査読有, Vol. 50 (12), 377-383, (2012).
- ②Hiroshi Naragino, Kohsuke Yoshinaga, Seiji Tatsuta, <u>Kensuke Honda</u>, "Improvement of Conductivity by incorporation of Boron atoms in Hydrogenated Amorphous Carbon Films fabricated by Plasma CVD methods and its Electrochemical Properties", ECS transactions, 査読有, 41 (20), 59-68 (2012).
- ③Suzuko Yamazaki, Yuhei Fujiwara, Shinya Yabuno, Kenta Adachi, <u>Kensuke Honda</u>, "Synthesis of porous platinum-ion-doped titanium dioxide and the photocatalytic degradation of 4-chlorophenol under visible light irradiation", Applied Catalysis B: Environmental, 査読有, Vol. 121-122 (2012) pp.148-153.
- ④ Tomohisa HAYASHI, Ikuo SAKURADA, <u>Kensuke HONDA</u>, Shigeyasu
- MOTOHASHI and Kazuo UCHIKURA, "Electrochemical Detection of Sugar-related Compounds Using Boron-doped Diamond Electrodes" Analytical Sciences, 査読有, Vol. 28 (2012) No. 2 pp.127-133.
- ⑤ Kenta Adachi, Tomohiro Mita, Shohei Tanaka, <u>Kensuke Honda</u>, Suzuko Yamazaki, Masaharu Nakayama, Takeyosi Goto, Hiroshi Watarai, "Kinetic characteristics of enhanced photochromism in tungsten oxide nanocolloid adsorbed on cellulose substrates, studied by total internal reflection Raman Spectroscopy", RSC Advances, 查読有, 2, 2128-2136, (2012).
- ⑥Yoriko Tanaka, Hiroshi Naragino, Kohsuke Yoshinaga, Akira Nakahara, Takeshi Kondo, Akira Fujishima, <u>Kensuke Honda</u>, "Controllable Electrochemical Activities by Oxidative Treatment toward Inner Sphere Redox Systems at N-doped Hydrogenated Amorphous Carbon Films" International Journal of Electrochemistry, 査読有, Vol. 2012, Article ID 369130, 14 pages, 2012.
- (7) Kensuke Honda, Masayoshi Yoshimatsu, Koichi Kuriyama, Ryosuke Kuwabara,a Hiroshi Naragino, Kosuke Yoshinaga, Takeshi Kondo, Akira Fujishima, "Electrically-Switchable, Permselective Membranes Prepared from Nano-structured

N-doped DLC " Diamond and Related Materials, 査読有, 20, 1110-1120, (2011)

- Akira Nakahara, Hiroshi Naragino, Kousuke Yoshinaga, Sakuya Tanaka, <u>Kensuke Honda</u>, "Fabrication of N-Type Semiconductive Polycrystalline Diamond by incorprating Phosphorous Atoms" PRiME 2012 (10th October 2012, Honolulu, 米国) Abs. #2453.
- ② Hiroshi Naragino, Kohsuke Yoshinaga, Akira Nakahara, Sakuya Tanaka, <u>Kensuke Honda</u>, "Enhancement of Electrical Conductivity and Electrochemical Activity of Hydrogenated Amorphous Carbon by incorporating Boron Atoms" PRiME 2012 (10th October 2012, Honolulu, 米国) Abs. #3458,
- ③ <u>Kensuke Honda</u>, Hiroshi Naragino, Kohsuke Yoshinaga, Akira Nakahara, Sakuya Tanaka, "High Sensitive Amperometric Detection of Glucose using Conductive DLC Electrode in Higher Potential Region" PRiME 2012 (9th October 2012, Honolulu, 米国) Abs. #3875.
- ④ Kohsuke Yoshinaga, Hiroshi Naragino, Akira Nakahara, Sakuya Tanaka, <u>Kensuke Honda</u>, "Fabrication of Silicon and Carbon Based Wide-Gap Semiconductor Thin Films for High Conversion Efficiency" PRiME 2012 (9th October 2012, Honolulu, 米国) Abs. #2894.
- ⑤ Hiroshi Naragino, Kohsuke Yoshinaga, Akira Nakahara, Sakuya Tanaka, <u>Kensuke Honda</u>, "Enhancement of Electrical Conductivity and Electrochemical Activity of Hydrogenated Amorphous Carbon by incorporating Boron Atoms", The 11th APCPST and 25th SPSM (4th October 2012, 京都), 3-P66.
- ⑥ Akira Nakahara, Hiroshi Naragino, Kousuke Yoshinaga, Sakuya Tanaka, <u>Kensuke Honda</u>, "Fabrication of N-Type Semiconductive Polycrystalline Diamond by incorprating Phosphorous Atoms" The 11th APCPST and 25th SPSM (4th October 2012, 京都大学桂 キャンパス 京都), 3-P69.
- ⑦ Kohsuke Yoshinaga, Hiroshi Naragino, Akira Nakahara, Sakuya Tanaka, <u>Kensuke Honda</u>, "Fabrication of Silicon and Carbon Based Wide-Gap Semiconductor Thin Films for High Conversion Efficiency", The 11th APCPST and 25th SPSM (4th October 2012, 京都大学桂キャンパス 京都), 3-P70.
- 8 Kensuke Honda, Hiroshi Naragino, Kohsuke

Yoshinaga, Akira Nakahara, Sakuya Tanaka, "High Sensitive Amperometric Detection of Glucose using Conductive DLC Electrode in Higher Potential Region", The 11th APCPST and 25th SPSM (4th October 2012, 京都大 学桂キャンパス 京都), 3-P78.

- (9) 楢木野宏・吉永浩亮・中原亮・<u>本多謙介</u> "ホウ素ドープ diamond-like carbon 薄膜 のホウ素添加量に対する電気化学反応 性"日本化学会第92春季年会 2012 年 (26th, March 2012 慶應大学日吉キャン パス 横浜市) 2H4-44.
- ・ 中原亮・<u>本多謙介</u>・楢木野 宏・吉永浩亮
   "不純物原子添加による n 型半導体性多
   結晶ダイヤモンドの作製と物理デバイス
   への応用"日本化学会第92春季年会
   2012年(26th, March 2012 慶應大学日
   吉キャンパス 横浜市)2H4-46.
- <u>Kensuke Honda</u>, Hiroshi Naragino, Kosuke Yoshinaga, Seiji Tastuta, "Improvement of Conductivity by incorporation of Boron atoms in Hydrogenated Amorphous Carbon Films fabricated by Plasma CVD methods and Electrochemical Properties of the films", 220th Meeting of The Electrochemical Society (12th October 2011, Boston, 米国) Abs. #J2114.

```
[その他]
```

```
ホームページ等
```

http://www.honda-lab.sci.yamaguchi-u.ac.jp/top. html

6. 研究組織

(1)研究代表者
 本多 謙介(HONDA KENSUKE)
 山口大学・大学院理工学研究科・准教授
 研究者番号:6033431

(2)研究分担者 ( )

```
研究者番号:
```

```
(3)連携研究者
```

```
(
```

)

研究者番号:

<sup>〔</sup>学会発表〕(計 12 件)