

令和 4 年 6 月 23 日現在

機関番号：34506

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02822

研究課題名(和文) シングルクリスタルを利用した化合物半導体光電極の開発 - CuGaSe<sub>2</sub>を例として -研究課題名(英文) Development of a single crystalline CuGaSe<sub>2</sub>-based photocathode

研究代表者

池田 茂 (Ikeda, Shigeru)

甲南大学・理工学部・教授

研究者番号：40312417

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：太陽エネルギーの化学エネルギーへの変換反応における高機能光電極の設計指針を得るため、バルク物性の制御や評価が行える単結晶試料をベースとするp型半導体光電極について、CuGaSe<sub>2</sub>化合物をモデルとして作製し、これを使った水分解水素発生を実証した。さらに、いくつかの異なる露出結晶面をもつCuGaSe<sub>2</sub>単結晶電極の特性評価から、結晶面によってその表面にCu不足層が形成され、そのことが光電極特性を向上させるという結果を得た。これを踏まえて、CuGaSe<sub>2</sub>薄膜光電極についてCDLを導入する効果を検討した結果、CDLによって水分解水素発生特性が大きく向上することを実証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

太陽光を使った水分解水素製造は、化石資源を用いない水素製造法として注目される。我々が現在活用できる技術は、太陽光発電と水電解(PV+PEC)を組み合わせた方式であるが、設備等のコストに大きな課題がある。光電極による水分解は、一段で太陽光と水から水素を製造する技術であり、コスト面でPV+PECに比べて圧倒的に有利である。本研究では、そのような光電極の水素発生機能を向上させるための電極設計指針を提案し、また、実際に高機能光電極が得られることも実証した。水分解水素製造技術とするには、酸素発生側の電極との接合が必要であるため、現在電極特性のさらなる向上と合わせて継続的に研究を進めている。

研究成果の概要(英文)：To improve device properties based on wide-gap chalcopyrite CuGaSe<sub>2</sub> (CGS) for photoelectrochemical (PEC) water splitting, a high-quality single crystal was prepared. PEC hydrogen production was successfully demonstrated by applying appropriate post treatments to the wafer based on the thus-obtained CuGaSe<sub>2</sub> single crystal. Moreover, we found influences of cutting directions of the single crystalline ingot on properties of PEC water reduction. Analyses of the single crystalline wafers indicated that formation of a copper deficient layer (CDL) was effective for induction of efficient PEC functions. Based on this finding, PEC activity for water reduction over a CuGaSe<sub>2</sub> thin film was evaluated with focusing on the impact of a CDL intentionally loaded on the top of the CuGaSe<sub>2</sub> film. As a result, the CDL with an appropriate thickness was found to be effective for achieving a large current flow and relatively positive photocurrent onset.

研究分野：光電気化学

キーワード：半導体光電極 太陽エネルギー変換 水分解水素製造 化合物半導体 バルクおよび表面修飾

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 太陽エネルギーの化学エネルギーあるいは化学物質への変換反応は、植物の光合成に倣った「人工光合成」として、近年活発に研究されている。とくに、光触媒および光電気化学セルなどの半導体を用いた系は、わが国で最初に見出された基本原理である酸化チタン光電極による光電極効果[1]が、現在まで独自に展開されてきている点においても重要なテーマである。そのような反応系において、太陽エネルギーを効率よく利用するには、バンドギャップが可視光領域の多くをカバーするような半導体材料を用いることが求められる。単独の光触媒や光電極でこれを実現するには、対象となる反応の酸化還元電位に対応し(熱力学的な要請)、かつ、酸化および還元反応の活性化エネルギーが十分に低い表面の触媒機能を満足する(速度論的な要請)半導体材料が必要である。これまでに開発された材料のなかでは、酸化亜鉛(ZnO)と窒化ガリウム(GaN)からなる固溶体が、可視光領域(波長約500 nm以下)の光を利用した水の分解による水素および酸素の発生を進行できる材料として報告されている[2]。しかし、研究代表者らが行なったバンド構造解析から得られた結果によれば、この固溶体のバンドギャップは紫外光領域にあり、可視光吸収はGaN結晶中のGaがZnに置換することによって形成される不純物準位(アクセプター準位)に起因する[3]。不純物準位を利用する系では、このほかSrTiO<sub>3</sub>をベースとするドープ型材料も報告されている[4]が、これら不純物準位が関与する光吸収を利用する反応系では、可視光の広い波長領域の利用を実現するには限界がある。1972年の基本原理に関する報告から40年以上経った現在も、可視光領域の光吸収に対応するバンドギャップをもつ、太陽エネルギー-化学エネルギー変換に有効な光触媒・光電極材料は見出されていないといえる。

(2) ナロウギャップ半導体を利用するためのコンセプトとして、還元反応と酸化反応とを別々の半導体上で行わせる反応系が提案されている[5]。おもに水の分解反応で広く研究されているこの系では、水素を発生させる半導体側に残る正孔と酸素発生側の半導体側に残る電子を適当な酸化還元対や電極を介して再結合させることで、双方の反応が完結する。言い換えると、二つの半導体による2段階の光励起を使うことで過電圧を含む水の分解に必要な電圧を獲得し、それによって水の分解が進行する。一つの電子(あるいは正孔)が移動するのに二つの光子が必要となる点で、一つの半導体のみを利用する系よりも不利であるが、太陽光スペクトルに対応するバンドギャップをもつ半導体を利用できる点で大きな利点がある。実際、光電極系の太陽エネルギー変換効率に関する最近の計算によれば、ひとつの半導体を使った水の分解で得られる最大の変換効率が13%程度に止まるのに対して、このような2段階の光励起を利用すれば、その値は21%を超える[6]。研究代表者らは、電気めっき製膜、スプレー製膜などの簡便な製膜手法によって得たレアメタルフリーナロウギャップp型半導体であるCu<sub>2</sub>ZnSnS<sub>4</sub>薄膜とn型半導体であるBiVO<sub>4</sub>薄膜を組み合わせた太陽光による水分解水素発生を達成した[7]。この系では、Cu<sub>2</sub>ZnSnS<sub>4</sub>薄膜で生成した電子が水を還元して水素を発生し、BiVO<sub>4</sub>薄膜で生成した正孔が水を酸化して酸素を発生する。2段階の光励起を利用することで、余分な外部バイアスなしで水分解が進行するユニークな系であるが、現在(申請時)の太陽エネルギー変換効率は1%程度[8]であり、さらなる高効率化が求められる。

(3) 半導体材料におけるバルク物性の精密な制御は、結晶内で生成したキャリアを効率よく表面に到達させるために必須である。そのため、表面での触媒プロセスを考える前に、キャリア拡散長が十分に大きい半導体材料を得ることが第一に重要である。太陽電池の光吸収層として実用化されているCuInSe<sub>2</sub>系p型化合物半導体薄膜では、比較的低温度(500℃前後)での非熱平衡条件における成膜でもグレイン成長した高結晶性の薄膜が得られるが、例えば、おなじカルコパイト化合物であるGa置換体(CuGaSe<sub>2</sub>)では、同様の条件で成膜すると、グレインの小さい結晶性の低い薄膜しか得られない。薄膜クオリティの異なる両者を比較しても、それらのバルク特性の優劣を決めることはできないことは明らかであり、より積極的なバルク物性の制御が、所望の反応に最適な半導体光電極材料を開発するうえで必要である。また、非熱平衡条件での成膜で得られる薄膜は多結晶であるうえ、グレイン成長や結晶面方位などを任意に制御することができない。光電極への応用として、例えば水素発生光電極として利用する場合には、表面をn型半導体層で被覆してpn接合を形成させ、さらに水素発生サイトなる触媒ナノ粒子を担持する必要があるが、これまでの多くの研究では、そのような十分に構造制御されているとは言い難い多結晶の化合物半導体薄膜をベースとしているため、最適な界面構造を明らかにすることが難しかった。

## 2. 研究の目的

(1) 半導体内に深い準位をつくる欠陥が存在すると、それがキャリア再結合の頻度を増大させてキャリア拡散長を短くするため、表面に到達できるキャリアの数が減少する。そのため、おなじ化合物半導体を合成する場合でも、条件によって形成される欠陥の種類や量が変化し、光電極と

して利用する際の活性に大きな影響を与える。一般に、多元素からなる化合物半導体では、構成するカチオンとアニオンの化学量論比からのずれ(不定比性)が欠陥の種類や量を決定するため、光電極として高機能化するには、これらの欠陥を定量的に制御することが必要である。そのような背景から、本研究では、バルク物性の評価が詳細に検討し得る  $\text{CuGaSe}_2$  化合物単結晶を合成、利用することを目指す。光電極の作製においては、得られた単結晶をさまざまな面方位でスライス、薄膜化することで、露出面方位を制御する。これらを用いて、ターゲットとなる反応(ここではおもに水分解水素発生)に必要な表面修飾を行い、その光電気化学特性を評価、検証する。また、さまざまな構造・電気的特性・光学特性評価法を利用して、バルクおよび界面の物性を詳細に評価する。

(2) 上記の  $\text{CuGaSe}_2$  化合物単結晶で得られた知見を元にして、化合物半導体薄膜に適当なバルクおよび表面制御を行うことで、既存の p 型化合物半導体における光電極機能を凌駕する高機能光電極を合成する。

### 3. 研究の方法

(1)  $\text{CuGaSe}_2$  単結晶は移動ヒータを用いた一方向凝固 (Bridgman 法) を用いて合成した。所定量の  $\text{Cu}(4\text{N})$ 、 $\text{Ga}(6\text{N})$ 、 $\text{Se}(5\text{N})$  を真空封入した石英アンプルを Bridgman 炉に入れて、2 週間かけて結晶育成した。得られたロッド状インゴットの下部の一部をロッドに対して垂直方向にスライスし、断面を研磨して薄片化 (~ 厚さ  $800\ \mu\text{m}$ ) した。さらに、薄片試料を、 $\text{Se}$  ( $50\ \text{mg}$ ) とともに真空封入し  $750\ ^\circ\text{C}$  で熱処理した試料を準備し、光電極機能の評価に用いた。 $\text{Mo}$  を薄片の片面にスパッタリング成膜 (膜厚約  $300\ \text{nm}$ ) し、 $300\ ^\circ\text{C}$  で 5 分間アニーリングした後、FTO/ガラス基板に、銀ペーストを介して固定した。さらに、この電極表面に  $\text{CdS}$  層 (膜厚約  $50\ \text{nm}$ ) および  $\text{Pt}$  微粒子を堆積させて光電極を得、リン酸緩衝液中での光電気化学水素発生を評価した。

(2) ロッド状インゴットの下部の一部を垂直方向にスライスする ”輪切り” に加えて、“斜め切り”、ロッドに対して水平方向にスライスした “縦切り” と、3 種類のサンプルを用意した。さらに上記(1)と同様に研磨 (薄片化) し、 $\text{Se}$  処理を施した後、 $\text{Mo}$  層を介して FTO/ガラス基板し光電極とした。

(3)  $\text{Cu}$ 、 $\text{Ga}$ 、 $\text{Se}$  の各単体を原料とする多元蒸着法にて  $\text{Mo}$  コートガラス基板上に成膜した  $\text{CuGaSe}_2$  薄膜を作製した[9]。成膜の最終段階で  $\text{Ga}$  および  $\text{Se}$  のみを時間を変えて供給することで、膜厚の異なる表面に  $\text{Cu}$  不足層 (CDL : copper deficient layer) を形成させた。得られた薄膜の表面に  $\text{CdS}$  層および  $\text{Pt}$  微粒子を堆積させて光電極とし、リン酸緩衝液中での光電気化学水素発生を評価した。なお、 $\text{CdS}$  層の厚みについても 2 種類 ( $60\ \text{nm}$  および  $90\ \text{nm}$ ) を用意し、比較した。

### 4. 研究成果

(1) 得られたロッド状インゴットの下部およびその切断面には目視で確認できる粒界は見られなかった。また、薄片の XRD 測定では回折線が見られなかったのに対して、粉末化した試料は異相のない  $\text{CuGaSe}_2$  の XRD パターンを示し、ラマン分光測定でも  $\text{CuGaSe}_2$  に帰属されるピークのみが観察された。以上から、 $\text{CuGaSe}_2$  の単結晶が得られたと判断した。組成分析の結果、単結晶中の  $\text{Se}$  含有率が化学量論組成よりも少ない傾向が見られた。電気特性の評価から、キャリアタイプが p 型であることが判定されたが、得られたキャリア濃度や移動度はそれほど大きくなく、これが、ドナー性のアニオン空孔 ( $V_{\text{Se}}$ ) に起因するものと考えられた。そこで、薄片化した単結晶試料に対して  $\text{Se}$  蒸気中でのポストアニーリングを行なったところ、期待どおり、 $V_{\text{Se}}$  の補償によると考えられる p 型電気特性の改善が見られた。 $\text{Se}$  処理後の試料について、 $\text{CdS}$  被覆と  $\text{Pt}$  微粒子の担持を施し、リン酸緩衝液中での間欠照射条件での光電気化学測定を行なった結果、水素発生に伴う光電流が観察された。 $0\ \text{V}_{\text{RHE}}$  で  $\text{Xe}$  ランプ光を連続照射すると、定常的な水素発生が確認され (図 1)、単位面積当たり ( $1\ \text{cm}^2$ ) の水素生成速度として  $23.0\ \mu\text{mol}/\text{h}$  が得られた。既報の薄膜光電極系[10]と比較するとこの値は一桁以上小さいが、カルコパイライト「単結晶」電極で水素発生を実証した初めての結果である。

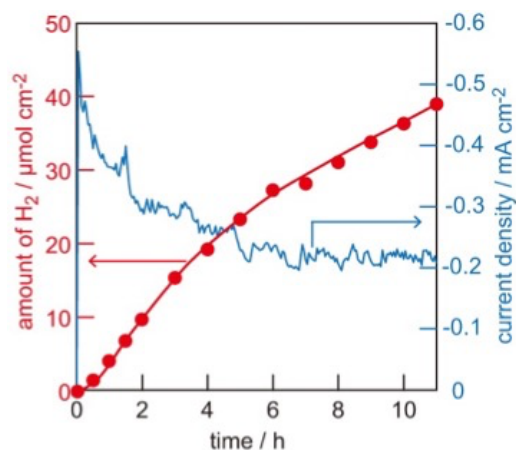


図 1  $\text{CuGaSe}_2$  単結晶からなる光電極による水分解水素発生

(2) ロッド状インゴットの切り出し方向を、輪切り、斜め切り、縦切りの3種類に変えたウェハサンプルについてXRD測定を行った結果、輪切りのサンプルでは321面、斜め切りでは312面、縦切りでは112面に対応する回折線が観察された。VESTA[11]によって相互の結晶面がなす角度を求めたところ、切り出し方向とのよい対応が見られた(図2)。この結果は、得られたインゴットの単結晶性を表していることと、露出面方位の異なるウェハ、すなわち薄片状光電極が作製できることを示している。実際に、これらの3つの試料を使って電極を作製し、その光電気化学測定を行った結果、縦方向(112面)以外の2つの試料で比較的大きな水素発生電流が得られた。各試料について、光電子収量分光測定とホール効果測定の結果、結晶構造を描画し各面方位が直行する際の角度を求めたところ、特性の良好であった輪切り(321面)および斜め切り(312面)試料では、Cu不足層(CDL: copper deficient layer)が自発的に形成されることが示唆された。CDL層は生成されたキャリアのうち正孔を選択的にブロックする層となることで薄膜太陽電池における検討から知られており、ここでの特性の向上がそのようなキャリア分離効果によると考えられた。

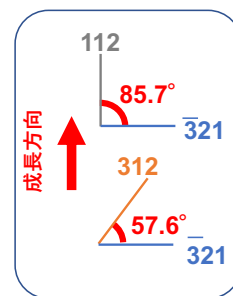


図2 CuGaSe<sub>2</sub>単結晶の露出面

(3) 上記(2)での結果を踏まえて、意図的にCDL層を導入したCuGaSe<sub>2</sub>薄膜作製し、その水分解水素発生特性を検討した。図3は、CDLなし(type A)、および膜厚の異なるCDLを表面に導入したCuGaSe<sub>2</sub>薄膜(type B: <50 nm, type C: 50 nm, type D: 200 nm)をベースとする光電極における単位面積あたりの水素発生速度と水素発生電流のオンセット電位のプロットである。明らかに顕著なCDL導入効果が観察され、3極系での仮想的な太陽エネルギー変換効率(HC-STH: half-cell solar to hydrogen conversion efficiency)はtype C薄膜を用いた場合において最大(>6%)となった。また、光電流オンセットは、ここでのCDLのもっとも厚いtype D薄膜を用いた光電極において最大(>0.9 V vs RHE)となった。さらに、HC-STH、光電流オンセットのいずれもCdS層を厚くすることでさらなる向上が見られた。CDL層は、表面CdS層への正孔注入を抑制すること、CdSを厚くすることでキャリアの空間的な距離が広がったことで、これらの高機能化が達成されたと考えられる。

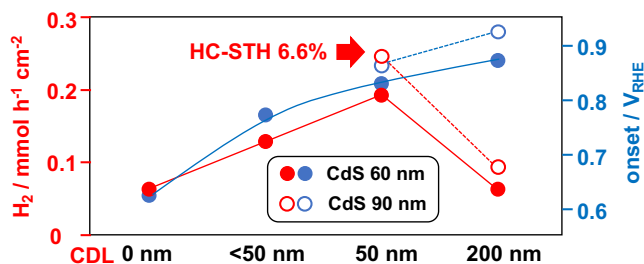


図3 CuGaSe<sub>2</sub>薄膜光電極への表面CDL効果

<引用文献>

- [1] A. Fujishima, K. Honda, *Nature*, **238**, 37 (1972).
- [2] K. Domen et al., *Nature*, **440**, 295 (2006).
- [3] T. Hirai et al., *J. Phys. Chem. C*, **111**, 18853 (2007).
- [4] A. Kudo et al., *J. Am. Chem. Soc.*, **133**, 13272 (2011).
- [5] K. Sayama et al., *Chem. Commun.*, 2416 (2001).
- [6] M. S. Prévot et al., *J. Phys. Chem. C*, **177**, 17879 (2013).
- [7] S. Ikeda et al., *J. Am. Chem. Soc.*, **137**, 13691 (2015).
- [8] F. Jiang et al., *ACS Energy Lett.*, **3**, 1875 (2018).
- [9] S. Ishizuka, *Appl. Phys. Lett.*, **118**, 133901 (2021).
- [10] K. Domen et al., *J. Am. Chem. Soc.*, **135**, 3733 (2013).
- [11] K. Momma, F. Izumi, *J. Appl. Crystallogr.*, **44**, 1272 (2011).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計15件（うち査読付論文 15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 Ikeda Shigeru	4. 巻 40
2. 論文標題 Copper-based kesterite thin films for photoelectrochemical water splitting	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 High Temperature Materials and Processes	6. 最初と最後の頁 446~460
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1515/htmp-2021-0050	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 Ikeda Shigeru, Nguyen Thi Hiep, Okamoto Riku, Remeika Mikas, Abdellaoui Imane, Muhammad Islam M., Harada Takashi, Abe Ryu, Sakurai Takeaki	4. 巻 24
2. 論文標題 Effects of incorporation of Ag into a kesterite Cu <sub>2</sub> ZnSnS <sub>4</sub> thin film on its photoelectrochemical properties for water reduction	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 468~476
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1CP04075H	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 Ikeda Shigeru, Okamoto Riku, Ishizuka Shogo	4. 巻 119
2. 論文標題 Enhancement of the photoelectrochemical properties of a CuGaSe <sub>2</sub> -based photocathode for water reduction induced by loading of a Cu-deficient layer at the p-n heterointerface	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 083902-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0060494	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 Jiaqi, Kazuya Tajima, Abdellaoui Imane, Islam Muhammad M., Ikeda Shigeru, Sakurai Takeaki	4. 巻 14
2. 論文標題 Effect of radio-frequency power on the composition of BiVO <sub>4</sub> thin-film photoanodes sputtered from a single target	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Energies	6. 最初と最後の頁 2122-1~10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/en14082122	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 Abdellaoui Imane, Islam Muhammad M., Remeika Mikas, Kanno Sorai, Okamoto Riku, Kazuya Tajima, Ng Yun Hau, Budich Christian, Maeda Tsuyoshi, Wada Takahiro, Ikeda Shigeru, Sakurai Takeaki	4. 巻 125
2. 論文標題 Mechanism of incorporation of zirconium into BiVO <sub>4</sub> visible-light photocatalyst	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 3320~3326
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.1c00339	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 Harada Takashi, Yagi En, Ikeda Shigeru	4. 巻 10
2. 論文標題 Synthesis of nano-sized tungsten oxide particles encapsulated in a hollow silica sphere and their photocatalytic properties for decomposition of acetic acid using Pt as a co-catalyst	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 15360 ~ 15365
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0RA01988G	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 Kameyama Tatsuya, Yamauchi Hiroki, Yamamoto Takahisa, Mizumaki Toshiki, Yukawa Hiroshi, Yamamoto Masahiro, Ikeda Shigeru, Uematsu Taro, Baba Yoshinobu, Kuwabata Susumu, Torimoto Tsukasa	4. 巻 3
2. 論文標題 Tailored Photoluminescence Properties of Ag(In,Ga)Se <sub>2</sub> Quantum Dots for Near-Infrared In Vivo Imaging	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Applied Nano Materials	6. 最初と最後の頁 3275 ~ 3287
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnm.9b02608	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 Feng Kuang, Huang Dingwang, Li Lintao, Wang Kang, Li Jingbo, Harada Takashi, Ikeda Shigeru, Jiang Feng	4. 巻 268
2. 論文標題 MoS <sub>x</sub> -CdS/Cu <sub>2</sub> ZnSnS <sub>4</sub> -based thin film photocathode for solar hydrogen evolution from water	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Catalysis B: Environmental	6. 最初と最後の頁 118438 ~ 118438
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apcatb.2019.118438	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 Ikeda Shigeru, Fujita Wakaba, Okamoto Riku, Nose Yoshitaro, Katsube Ryoji, Yoshino Kenji, Harada Takashi	4. 巻 10
2. 論文標題 Preparation of a CuGaSe <sub>2</sub> single crystal and its photocathodic properties	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 40310 ~ 40315
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0RA07904A	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 該当する

1. 著者名 Huang Dingwang, Wang Kang, Li Lintao, Feng Kuang, An Na, Ikeda Shigeru, Kuang Yongbo, Ng Yunhau, Jiang Feng	4. 巻 14
2. 論文標題 3.17% efficient Cu <sub>2</sub> ZnSnS <sub>4</sub> -BiVO <sub>4</sub> integrated tandem cell for standalone overall solar water splitting	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Energy & Environmental Science	6. 最初と最後の頁 1480 ~ 1489
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0EE03892J	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 Abdellaoui Imane, Islam Muhammad M., Remeika Mikas, Kanno Sorai, Okamoto Riku, Tajima Kazuya, Pawar Sachin A., Ng Yun Hau, Budich Christian, Maeda Tsuyoshi, Wada Takahiro, Ikeda Shigeru, Sakurai Takeaki	4. 巻 125
2. 論文標題 Mechanism of Incorporation of Zirconium into BiVO <sub>4</sub> Visible-Light Photocatalyst	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 3320 ~ 3326
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.1c00339	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 Ikeda Shigeru, Fujikawa Shotaro, Harada Takashi, Nguyen Thi Hiep, Nakanishi Shuji, Takayama Tomoaki, Iwase Akihide, Kudo Akihiko	4. 巻 2
2. 論文標題 Photocathode Characteristics of a Spray-Deposited Cu <sub>2</sub> ZnGeS <sub>4</sub> Thin Film for CO <sub>2</sub> Reduction in a CO <sub>2</sub> -Saturated Aqueous Solution	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Applied Energy Materials	6. 最初と最後の頁 6911 ~ 6918
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsaem.9b01418	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 Ishibashi Tomoya, Higashi Masanobu, Ikeda Shigeru, Amai Yutaka	4. 巻 11
2. 論文標題 Photoelectrochemical CO2 Reduction to Formate with the Sacrificial Reagent Free System of Semiconductor Photocatalysts and Formate Dehydrogenase	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ChemCatChem	6. 最初と最後の頁 6227 ~ 6235
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cctc.201901563	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 Abdellaoui Imane, Islam Muhammad M., Remeika Mikas, Higuchi Yui, Kawaguchi Takato, Harada Takashi, Budich Christian, Maeda Tsuyoshi, Wada Takahiro, Ikeda Shigeru, Sakurai Takeaki	4. 巻 124
2. 論文標題 Photocatalytic Recombination Dynamics in BiVO4 for Visible Light-Driven Water Oxidation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 3962 ~ 3972
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.9b10621	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 Feng Kuang, Huang Dingwang, Li Lintao, Wang Kang, Li Jingbo, Harada Takashi, Ikeda Shigeru, Jiang Feng	4. 巻 268
2. 論文標題 MoSx-CdS/Cu2ZnSnS4-based thin film photocathode for solar hydrogen evolution from water	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Catalysis B: Environmental	6. 最初と最後の頁 118438 ~ 118438
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apcatb.2019.118438	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17件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 S. Ikeda
2. 発表標題 Photoelectrochemical Applications of Chalcopyrite and Kesterite Compound Thin Films
3. 学会等名 The 4th Energy Future Conference (EF4) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年



1. 発表者名 岡本 陸, 池田 茂, 木村 昭, 富澤亮太, 増田泰造, 奥村健一
2. 発表標題 高活性SrTiO <sub>3</sub> 水分解光触媒の合成: 希土類酸化物の添加効果
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 上園波輝, カキ リュウ, シュクル ゴフロブ, イスラム ムハマド モニルル, 池田 茂, 櫻井 岳暁
2. 発表標題 スパッタリング法による正方晶ジルコン型BiVO <sub>4</sub> 光電極の作製
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 堤 龍介, 吉永智大, 齊藤勝彦, 郭 其新, 池田 茂, 田中 徹
2. 発表標題 分子線エピタキシー成長による ZnTe光電極を用いた水の還元反応の評価
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 堤 龍介, 吉永智大, 齊藤勝彦, 郭 其新, 池田 茂, 田中 徹
2. 発表標題 分子線エピタキシー法による光触媒応用を目指した ZnTe 薄膜の成長と光電気化学特性の評価
3. 学会等名 2021年(令和3年度)応用物理学会九州支部学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 J. Liu, 上園波輝, 田島和哉, S.A Pawar, M. M. Islam, 池田 茂, 櫻井岳暁
2. 発表標題 自己フラックス法を用いたスパッタリングによるBiVO <sub>4</sub> 薄膜の光電気化学特性向上
3. 学会等名 2021年度応用物理学会多元系化合物・太陽電池研究会 年末講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 池田 茂
2. 発表標題 水分解光触媒の現状
3. 学会等名 2021年度応用物理学会多元系化合物・太陽電池研究会 年末講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 豊留拓弥, 藤田わかば, 池田 茂, 吉野賢二, 天尾 豊
2. 発表標題 焼結体形成によるCuベースとしたカルコパイライト化合物光電極の作製
3. 学会等名 第50回石油・石油化学討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 藤田わかば, 勝部涼司, 野瀬嘉太郎, 吉野賢二, 池田 茂
2. 発表標題 CuGaSe <sub>2</sub> 単結晶を用いた光電極での水の光電気化学的還元反応
3. 学会等名 第9回JACI/GSCシンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 藤田わかば, 吉野賢二, 勝部涼司, 野瀬嘉太郎, 原田隆史, 池田 茂
2. 発表標題 CuGaSe <sub>2</sub> 単結晶光電極による水の還元反応
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 池田 茂
2. 発表標題 光触媒および光電気化学的手法による水分解
3. 学会等名 宮崎大学農工学総合研究科農工定期セミナー特別講演会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 S. Ikeda, W. Fujita, Y. Nose, R. Katsube, K. Yoshino, T. Harada
2. 発表標題 Electric and Photoelectrochemical Properties of CuGaSe <sub>2</sub> Single Crystal
3. 学会等名 Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid-state Science (PRIME 2020)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 藤田わかば, 勝部涼司, 野瀬嘉太郎, 吉野賢二, 池田 茂
2. 発表標題 Cu(InGa)Se <sub>2</sub> バルク結晶のオフストイキオメトリー制御と物性
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1 . 発表者名 I. Abdellaoui, K. Tajima, T. Kawaguchi, S. Ikeda, M. M. Islam, T. Sakurai
2 . 発表標題 Recombination mechanism in BiVO <sub>4</sub> photocatalyst studied by photoluminescence
3 . 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 W. Fujita, T. Wada, K. Yoshino, Y. Nose, T. Harada, S. Ikeda
2 . 発表標題 Preparation of a CuGaSe <sub>2</sub> bulk crystal and its photoelectrochemical properties
3 . 学会等名 International Conference on Artificial Photosynthesis-2019 (ICARP2019)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 K. Mizutani, S. Fujikawa, T. Harada, S. Nakanishi, T. Takayama, A. Iwase, A. Kudo, S. Ikeda
2 . 発表標題 Photoelectrochemical CO <sub>2</sub> reduction over a spray-deposited Cu <sub>2</sub> ZnGeS <sub>4</sub> thin film photocathode
3 . 学会等名 International Conference on Artificial Photosynthesis-2019 (ICARP2019)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 H. Yui, I. Abdellaoui, M. M. Islam, T. Sakurai, S. Ikeda
2 . 発表標題 Highly active Zr-doped BiVO <sub>4</sub> photocatalyst for O <sub>2</sub> evolution obtained by a solution route
3 . 学会等名 International Conference on Artificial Photosynthesis-2019 (ICARP2019)
4 . 発表年 2019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	櫻井 岳暁  (Sakurai Takeaki)  (00344870)	筑波大学・数理物質系・准教授   (12102)	
研究分担者	野瀬 嘉太郎  (Yoshitaro Nose)  (00375106)	京都大学・工学研究科・准教授   (14301)	
研究分担者	和田 隆博  (Takahiro Wada)  (20309115)	龍谷大学・先端理工学部・教授   (34316)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------