

多元化合物薄膜による光電気化学水分解

Photoelectrochemical Water Splitting by Multinary Compound-Based Thin-Films

宮崎大学テニュアトラック推進室 東 智弘

Institute for Tenure Track Promotion, Univ. of Miyazaki, Tomohiro Higashi

E-mail: t_higashi@cc.miyazaki-u.ac.jp

【緒言】 太陽光エネルギーを輸送と貯蔵が可能な化学エネルギーへ変換する手法の一つとして、タンデム型の光電気化学 (PEC) セルを用いた水の水分解反応が検討されている^{1,2}。水分解用のタンデム型 PEC セルは、高い光透過率を有する可視光応答型の透明光電極と、透明光電極からの透過光を吸収して水の分解反応を駆動できる二段組の電極で構成されている。PEC 水分解を高い効率で進行させるためには、一段目に配置する酸素生成用の透明光電極および二段目に配置する水素生成用ナローバンドギャップ光電極材料の開発と高性能化が求められる。

本研究は、窒化タンタル (Ta_3N_5) 薄膜をベースとする可視光応答型の透明光電極を高性能化し、水素生成用の CuInSe_2 (CIS) 薄膜系カソードと組み合わせたタンデム型セルの構築を目的とする。タンデム型セルの開発状況および太陽光-水素エネルギー変換効率 (STH) について報告する。

【実験】 高周波マグネトロンスパッタリング法によって、n 型窒化ガリウム薄膜を被覆した両面研磨サファイア ($\text{GaN}/\text{Al}_2\text{O}_3$) 基板の上に 600 nm 厚の Ta 薄膜を成膜した^{2,3}。Ta 薄膜を NH_3 ガス雰囲気下で焼成することで窒化し、赤色透明な $\text{Ta}_3\text{N}_5/\text{GaN}/\text{Al}_2\text{O}_3$ を得た。酸素生成用電極触媒 NiFeO_x を Ta_3N_5 表面に担持した⁴。Pt/Ni を接続した二直列 CuInSe_2 (Pt/Ni/dual-CIS) を水素生成用カソードに用いた¹。Ag/AgCl/sat'd KCl を参照極、Pt 線を対極にそれぞれ用い、Ar ガス雰囲気下で疑似太陽光 (AM 1.5G) を照射して PEC 測定をおこなった。

【結果と考察】 NiFeO_x を担持した $\text{Ta}_3\text{N}_5/\text{GaN}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 透明光アノードは、1.23 V vs. 可逆水素電極 (RHE) で 7.4 mA cm^{-2} の光電流を生成した。この光電流値は、疑似太陽光照射下における Ta_3N_5 理論電流値の 60% に相当する。酸素生成反応の開始電位は 0.65 V vs. RHE であった。

$\text{NiFeO}_x/\text{Ta}_3\text{N}_5/\text{GaN}/\text{Al}_2\text{O}_3$ を一段目に、Pt/Ni/dual-CIS を二段目に有するタンデム型 PEC セルを構築した。このタンデム型セルは、疑似太陽光の照射開始から 10 分間に渡って 6% 以上の STH を示した (図 1)。STH 値の経時的な低下は、 Ta_3N_5 の光自己酸化による性能劣化を示唆する。

適切な表面コーティング法の導入によるタンデム型セルの長期耐久性向上が課題である。

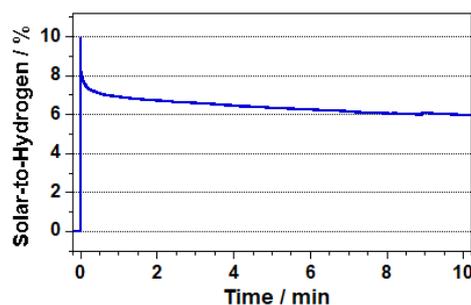


図 1. $\text{NiFeO}_x/\text{Ta}_3\text{N}_5/\text{GaN}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 透明光アノードと Pt/Ni/dual-CIS カソードからなるタンデム型セルを用いた水分解における STH の経時変化。電解液には 1 M リン酸カリウム水溶液 (pH = 13.7) を用いた。

- (1) T. Higashi *et al.*, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2019**, 58, 2300. (2) T. Higashi *et al.*, *ChemSusChem* **2020**, 13, 1974. (3) Y. Kawase *et al.*, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2021**, 13, 14. (4) T. Higashi *et al.*, *Catalyst* **2021**, 11, 584.