

研究成果報告書

研究テーマ (和文) AB		光触媒と電解液界面の幾何構造と電子構造の関係の解明			
研究テーマ (欧文) AZ		Investigation of the relation between the geometric and electronic structure of the photocatalyst/electrolyte interface			
研究氏 代 表 名 者	カナ CC	姓)サトウ	名)マサヒロ	研究期間 B	2018 ~ 2019 年
	漢字 CB	佐藤	正寛	報告年度 YR	2019 年
	ローマ字 CZ	Sato	Masahiro	研究機関名	東京大学
研究代表者 CD 所属機関・職名		東京大学先端科学技術研究センター・助教			
<p>概要 EA (600字~800字程度にまとめてください。)</p> <p>持続可能なエネルギー社会を実現する鍵の一つとして水素エネルギーが注目されている。そこで、本研究では、水分解に関する in situ(光電気化学反応が起きる環境における)光触媒/電解液界面の幾何構造および、電子構造を AP-XPS(雰囲気 X 線光電子分光)法によって測定し、得られた結果を第一原理計算の結果を用いて解析し、さらには第一原理計算の結果との比較を通じて、ミクロレベルでの光触媒性能の評価方法を確立することを目的としている。なお、ここでいう界面幾何構造は半導体表面における電解液の分子原子の吸着・配向状態を、電子構造は半導体側と電解液側の電子準位の接続状態・界面準位の状態密度を指す。</p> <p>本研究ではいたずらに表面構造を複雑にしないため、解析が行いやすい GaN 結晶を用いた。第一原理計算によって計算される種々の表面モデルに関するバインディングエネルギーをもとに測定によって得られる XPS スペクトルの帰属を行うことで表面吸着種やその量を評価することができることがわかった。それにとどまらず表面に吸着する水分子の水素結合によって吸着の安定性がどのように変化するか、あるいは XPS のバインディングエネルギーがどのように変化するかも第一原理計算によって明らかにすることができた。</p> <p>さらに加え、第一原理計算をもとに表面の水の量に応じて表面幾何構造がどのように変化するか、またそのとき界面の電子準位接続がどのように変化するか「予想」した。AP-XPS 実験によって表面の水分子の量を変化させながら表面幾何構造や電子準位接続を測定したところ、第一原理計算の予測が正しいことを確認することができた。これは同時に、表面の幾何構造と電子準位接続がどのように結びついているかも第一原理的に予想できることを示したものである。第一原理計算による固体/液体界面の幾何・電子構造予測という先駆的な試みは成功したといえる。</p>					
キーワード FA	第一原理	水分解	AP-XPS	オペランド	

(以下は記入しないでください。)

助成財団コード TA					研究課題番号 AA								
研究機関番号 AC					シート番号								

発表文献（この研究を発表した雑誌・図書について記入してください。）									
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>	Atomistic-Level Description of GaN/Water Interface by a Combined Spectroscopic and First-Principles Computational Approach							
	著者名 <sup>GA</sup>	M. Sato et al.	雑誌名 <sup>GC</sup>	The Journal of Physical Chemistry C					
	ページ <sup>GF</sup>	12466~12475	発行年 <sup>GE</sup>	2	0	2	0	巻号 <sup>GD</sup>	124
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>								
	著者名 <sup>GA</sup>		雑誌名 <sup>GC</sup>						
	ページ <sup>GF</sup>	~	発行年 <sup>GE</sup>					巻号 <sup>GD</sup>	
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>								
	著者名 <sup>GA</sup>		雑誌名 <sup>GC</sup>						
	ページ <sup>GF</sup>	~	発行年 <sup>GE</sup>					巻号 <sup>GD</sup>	
図書	著者名 <sup>HA</sup>								
	書名 <sup>HC</sup>								
	出版者 <sup>HB</sup>		発行年 <sup>HD</sup>					総ページ <sup>HE</sup>	
図書	著者名 <sup>HA</sup>								
	書名 <sup>HC</sup>								
	出版者 <sup>HB</sup>		発行年 <sup>HD</sup>					総ページ <sup>HE</sup>	

欧文概要<sup>EZ</sup>

Photocatalytic water splitting takes place at the semiconductor/electrolyte interface. Although the reactions are strongly affected by the subtle changes in the interface structure, little is known about the interface from an atomistic point of view. In this study, we investigate the GaN(0001)/water interface structure by combining first-principles calculation and ambient pressure X-ray photoelectron spectroscopy (AP-XPS). In particular, the relationship between the geometric and electronic structure of the interface is revealed.

First, the evolution of the GaN/water interface structure upon water adsorption is predicted from first-principles calculations. AP-XPS measurements were carried out for the water coverage ranging from submonolayer (low coverage) to several monolayers (high coverage). The core-level binding energies calculated from first-principles were used successfully to assign the adsorbate species to experimental 0 1s peaks. Both the electronic and geometric structures predicted by the first-principles calculation explain well the experimental spectra obtained by the AP-XPS measurements. The results demonstrate that the combined spectroscopic and first-principles computational approach offers a detailed atomic level understanding of the solid/liquid interface structures. We expect that the combined spectroscopic and first-principles computational approach will provide insights into the increasingly complex interfaces.