



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Multielement-Doped Tungstic Acids via Submerged Photosynthesis for Enhanced All-Solar Photoelectrochemical Responses
Author(s)	林, 學毅
Description	この博士論文の全文は利用可能日以降に公開されます。利用可能日以前の閲覧方法は https://www.lib.hokudai.ac.jp/dissertations/copy-guides/ をご参照ください。
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第16617号
Issue Date	2025-09-25
DOI	https://doi.org/10.14943/doctoral.k16617
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/98227
Type	doctoral thesis
File Information	LIN_HSUEH-I_review.pdf, 審査の要旨 https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/



学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称 博士 (工学) 氏名 林 學毅

審査担当者 主 査 教 授 渡辺 精一
 副 査 教 授 上田 幹人
 副 査 教 授 柴山 環樹
 副 査 准教授 張 麗華

学位論文題名

Multielement-Doped Tungstic Acids via Submerged Photosynthesis for Enhanced All-Solar Photoelectrochemical Responses

(全太陽光電気化学応答のためのマルチ元素タングステン酸の水中光合成)

本学位論文研究の目的は、水中結晶光合成法 (submerged photosynthesis of crystallites:SPsC) によって合成されたタングステン酸を用いた低コストな全太陽光利用を可能にすることにある。

太陽光エネルギーの利用は、再生可能エネルギーとして極めて有効であるが、太陽光は地球表面の広範囲に届いており、分散した地域の各家庭が個別に発電を行えるという点において、大規模集中型の発電所を建設するよりも重要性が高いと考えられる。しかしながら、太陽光発電の課題の一つは、太陽光照射の不安定さにある。そのため、太陽光エネルギーを安定的に貯蔵する手段の確立が求められている。

光電気化学エネルギー貯蔵材料は、発電と蓄電を同一材料内で実現可能とする点で、他の蓄電手法に比して効率的であり、コストおよび物理的設置スペースの大幅な削減が期待できる。しかしながら、このような材料は非常に稀であり、候補の一つであるタングステン酸もまた、可視光および赤外光領域における吸収効率の低さという課題を抱えている。これは、多くの太陽光エネルギー材料に共通する問題である。これを解決する一つ的手段として、マルチ元素ドーピングが提案されている。現状、既存のマルチ元素ドーピング手法は、高温を必要とし、かつ複雑あるいは有害な前駆体を用いることが多い。

一方、水中結晶光合成法は、新規の材料合成手法であり、光エネルギーを結晶化反応の駆動力として利用することにより、常温・常圧下の水溶液中でナノ粒子の合成を可能とする。しかし、本手法をマルチ元素ドーピングに応用した報告はない。そこで本研究では、低コストで太陽光エネルギー貯蔵を実現するため、水中結晶光合成法によりマルチ元素ドーピングの実現可能性を評価し、得られたマルチ元素タングステン酸の光電気化学的エネルギー貯蔵性能を分析評価した。

第1章では、太陽光エネルギーの利用および貯蔵の現状を概説し、種々の太陽光エネルギー貯蔵法、ナノ材料およびその製造プロセスを紹介する。加えて、水中結晶光合成法の開発経緯とその原理を説明し、本研究の目的を明確にした。

第2章では、紫外光照射下および暗所条件下で合成されたタングステン酸を比較した。その結果、粒径および結晶性の両面において、暗所で生成されたサンプルは紫外光照射下で得られたものよりも著しく劣っていた。この実験から、紫外光照射が合成プロセスにおいて必要不可欠であることを確認した。

第 3 章では、反応溶液に Mo 元素を導入し、その濃度の違いにより 3 種類の結晶相が形成されたことを確認した。その中でも Mo-W ナノ複合結晶相は、最も優れた光吸収特性および電気化学特性を示した。この組成は第 4 章における研究にも用いられた。

第 4 章では、Cu, Fe, Mn をドーピング元素として溶液に導入した。電子顕微鏡解析の結果、水中光合成結晶化法によってマルチ元素タングステン酸の合成が可能であることが確認された。吸光特性の分析では、太陽光吸収効率が 27% 向上した。ドーピングにより光励起キャリアが大幅に増加し、加えてドーピングによって誘起された平面欠陥の効果により、光キャパシタンスが 18.7 倍に増加した。これらの結果は、水中光合成結晶化法によるマルチ元素ドーピングが太陽光エネルギー貯蔵性能の向上に有効な手段であることを示している。

第 5 章では、本論文全体を総括し、今後の展望として、In situ 解析技術の導入、結晶配向の制御、基板上への成長技術の探究が、全太陽光利用の実現に向けて重要な課題であることを指摘した。

本研究により、室温下において紫外光照射を用いることで、マルチ元素ドーピングタングステン酸が合成可能であることが確認された。また、ドーピング元素の調整によって全太陽光利用が実現可能であることが示唆された。

これを要するに、本論文では、水中結晶光合成を用いた新しいマルチ元素複合化手法を考案し、各種の実験的試験によりその材料科学的特性について調査し、太陽光エネルギー貯蔵性能の向上に有効な手段であることを示した。本手法は、全太陽光利用の再生可能エネルギー工学進展に貢献するところ大なるものである。よって、著者は北海道大学博士 (工学) の学位を授与される資格あるものとして認める。