

平成 19 年 1 月 22 日

氏名 前田 和彦



## 21世紀COEプログラム

拠点：大学院工学系研究科  
応用化学専攻、化学システム工学専攻、  
化学生命工学専攻、マテリアル工学専攻

“化学を基盤とするヒューマンマテリアル創成”

平成18年度リサーチ・アシスタント報告書

ふりがな 氏名	まえだ かずひこ	生 年 月 日
	前田 和彦	
所属機関名	東京大学大学院工学系研究科化学システム工学専攻堂免研究室	
所在地	東京都文京区本郷 7-3-1 東京大学工学部 5号館 721	
申請時点での 学 年	博士後期課程 2 年	
研究題目	水の光分解反応に指向した新規可視光応答型光触媒の研究開発	
指導教員の所属・氏名	東京大学大学院工学系研究科化学システム工学専攻 堂免 一成	

## I 研究の成果 (1000 字程度)

(図表も含めて分かりやすく記入のこと)

窒化ガリウム(GaN)と酸化亜鉛(ZnO)からなる固溶体( $(\text{Ga}_{1-x}\text{Zn}_x)(\text{N}_{1-x}\text{O}_x)$ と表記)に助触媒として  $\text{RuO}_2$  を担持すると、可視光照射下で水の完全分解を達成できる安定な光触媒となることは去年度の成果報告書に記した通りである。しかしその量子収率(光触媒が吸収した光子数に対する反応に使用された電子数の割合)は約 0.2%と低いため、本研究では  $(\text{Ga}_{1-x}\text{Zn}_x)(\text{N}_{1-x}\text{O}_x)$  の高活性化を試みた。

$(\text{Ga}_{1-x}\text{Zn}_x)(\text{N}_{1-x}\text{O}_x)$  はそれ自身では水の分解には活性を示さず、純水中に懸濁させて可視光を照射しても水素と酸素の生成は観測されない。水の分解に対して活性となるためには、 $\text{RuO}_2$  などの助触媒微粒子を  $(\text{Ga}_{1-x}\text{Zn}_x)(\text{N}_{1-x}\text{O}_x)$  表面に導入することが不可欠である。つまり、 $(\text{Ga}_{1-x}\text{Zn}_x)(\text{N}_{1-x}\text{O}_x)$  による水の分解反応に対する活性は、担持されている助触媒の種類に大きく依存すると考えられる。これまで、固体光触媒による水の分解反応の助触媒としては、 $\text{NiO}$  や  $\text{RuO}_2$  などの単純酸化物のナノ粒子が頻繁

に用いられてきたが、複合酸化物が水分解の助触媒として利用された例はほとんどない。そこで、複合酸化物に着目して助触媒の探索を行った。その結果、Cr を含む複合酸化物が  $(\text{Ga}_{1-x}\text{Zn}_x)(\text{N}_{1-x}\text{O}_x)$  による水の分解に有効な助触媒となることを見出した。中でも Rh と Cr の複合酸化物からなるナノ粒子を担持した場合、図 1 に示すように可視光照射下で長時間安定に水を分解することができた。このときの量子収率は、可視光照射下において約 3%に達した。これは従来の  $\text{RuO}_2$  助触媒を担持した場合の値(約 0.2%)よりも一桁高く、これまでに報告されている固体光触媒系の中でも最も高い値である。この Rh-Cr 複合酸化物助触媒は、従来知られている金属酸化物光触媒や  $\text{Ge}_3\text{N}_4$  などの非酸化物系光触媒に対しても有効であり、その汎用性が確かめられた。

一般に、光触媒活性はその構造によって大きく変化するため、Rh-Cr 複合酸化物担持  $(\text{Ga}_{1-x}\text{Zn}_x)(\text{N}_{1-x}\text{O}_x)$  光触媒の構造解析を、走査型・透過型電子顕微鏡、エックス線吸収分光法、エックス線光電子分光法により行った。その結果、導入された Rh と Cr が 3 価の複合酸化物となって高分散担持された際に高活性が得られることを明らかとした。また、pH や圧力などの反応条件が活性に及ぼす影響を調べた結果、この光触媒は pH4.5 で最も安定で高活性となり、その活性は気相の圧力や気体の種類に依存しないことを明らかにした。

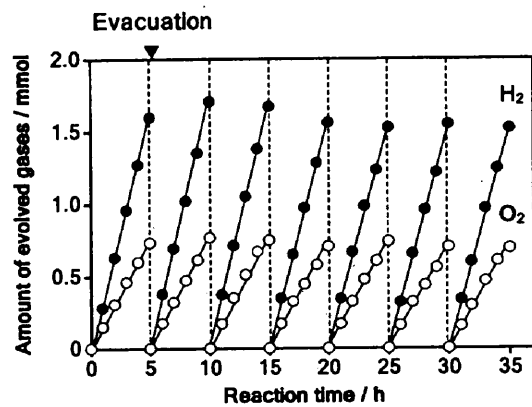


図 1. Rh-Cr 複合酸化物担持  $(\text{Ga}_{1-x}\text{Zn}_x)(\text{N}_{1-x}\text{O}_x)$  による可視光照射下での水の完全分解反応。  
触媒量: 0.3 g, 照射波長:  $\lambda > 400 \text{ nm}$ .

II (1) 学術雑誌等に発表した論文A (掲載を決定されたものを含む.)

共著の場合、申請者の役割を記載すること。

(著者、題名、掲載誌名、年月、巻号、頁を記入)

1. **Kazuhiko Maeda**, Kentaro Teramura, Daling Lu, Tsuyoshi Takata, Nobuo Saito, Yasunobu Inoue, Kazunari Domen, "Photocatalyst Releasing Hydrogen from Water - Enhancing Catalytic Performance Holds Promise for Hydrogen Production by Water Splitting in Sunlight" *Nature*, **2006**, *440*, 295. (役割：透過型電子顕微鏡観察以外の一連の実験全て)
2. **Kazuhiko Maeda**, Kentaro Teramura, Hideaki Masuda, Tsuyoshi Takata, Nobuo Saito, Yasunobu Inoue, Kazunari Domen, "Efficient Overall Water Splitting under Visible Light Irradiation on  $(\text{Ga}_{1-x}\text{Zn}_x)(\text{N}_{1-x}\text{O}_x)$  Dispersed with Rh-Cr Mixed-Oxide Nanoparticles: Effect of Reaction Conditions on the Photocatalytic Activity" *The Journal of Physical Chemistry B*, **2006**, *110*, 13107-13112. (役割：一連の実験全て)
3. **Kazuhiko Maeda**, Kentaro Teramura, Daling Lu, Tsuyoshi Takata, Nobuo Saito, Yasunobu Inoue, Kazunari Domen, "Characterization of Rh-Cr Mixed-Oxide Nanoparticles Dispersed on  $(\text{Ga}_{1-x}\text{Zn}_x)(\text{N}_{1-x}\text{O}_x)$  as a Cocatalyst for Visible-Light-Driven Overall Water Splitting" *The Journal of Physical Chemistry B*, **2006**, *110*, 13753-13758. (役割：透過型電子顕微鏡観察以外の一連の実験全て)
4. **Kazuhiko Maeda**, Kentaro Teramura, Tsuyoshi Takata, Nobuo Saito, Yasunobu Inoue, Kazunari Domen, "Improvement of Photocatalytic Activity of  $(\text{Ga}_{1-x}\text{Zn}_x)(\text{N}_{1-x}\text{O}_x)$  Solid Solution Modified with Various Transition Metals for Overall Water Splitting by Coloaded of Chromium" *Journal of Catalysis*, **2006**, *243*, 303-308. (役割：一連の実験全て)
5. **Kazuhiko Maeda**, Kentaro Teramura, Daling Lu, Nobuo Saito, Yasunobu Inoue, Kazunari Domen, "Noble-Metal/ $\text{Cr}_2\text{O}_3$  Core/Shell Nanoparticle as a Cocatalyst for Photocatalytic Overall Water Splitting" *Angewandte Chemie International Edition*, **2006**, *45*, 7806-7809. (役割：透過型電子顕微鏡観察以外の一連の実験全て)
6. **Kazuhiko Maeda**, Kentaro Teramura, Nobuo Saito, Yasunobu Inoue, Kazunari Domen, "Photocatalytic Overall Water Splitting on Gallium Nitride Powder" *Bulletin Chemical Society of Japan*, **2007**, in press. (役割：一連の実験全て)

氏 名 前田 和彦

II (2) 学会において申請者が口頭発表もしくはポスター発表した論文

(共同研究者 (全員の氏名)、題名、発表した学会名、場所、年月を記載)

1. ○前田 和彦, 寺村 謙太郎, 高田 剛, 斉藤 信雄, 井上 泰宣, 堂免 一成, “Cr 共担持による $(\text{Ga}_{1-x}\text{Zn}_x)(\text{N}_{1-x}\text{O}_x)$ 固溶体光触媒の活性向上”, 第97回触媒討論会 (2006年3月, 早稲田大学西早稲田キャンパス).
  2. ○前田 和彦, 寺村 謙太郎, 高田 剛, 斉藤 信雄, 井上 泰宣, 堂免 一成, “窒化ガリウム-酸化亜鉛固溶体を光触媒とした水の可視光完全分解反応”, 第98回触媒討論会 (2006年9月, 富山国際会議場).
  3. ○Kazuhiko Maeda, “Visible-Light-Induced Hydrogen Production from Water on a GaN-ZnO Solid Solution Photocatalyst”, 4th COE 21 International Symposium on Human-Friendly Materials Based on Chemistry (October, 2006, The University of Tokyo).
- Kazuhiko Maeda, Kentaro Teramura, Nobuo Saito, Yasunobu Inoue, Kazunari Domen, “Efficient Overall Water Splitting on  $(\text{Ga}_{1-x}\text{Zn}_x)(\text{N}_{1-x}\text{O}_x)$  Solid Solution Photocatalyst under Visible Light”, 4th Asia Pacific Congress on Catalysis (December 2006, Nanyang Technological University, Singapore).