

平成19年 2月 28日

氏名 東 正信



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17年度リサーチ・アシスタント報告書

ふりがな 氏名	ヒガシ マサノブ	生 年 月 日
	東 正信	
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	
所在地	東京都文京区本郷7-3-1	
申請時点での 学 年	D2	
研究題目	非酸化物系光触媒を用いたZスキーム型可視光水分解反応系の構築	
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)

1. 緒 言

我々はこれまでに、2種類の可視光応答性光触媒とヨウ素酸・ヨウ化物レドックス対 (IO_3^-/I^-) を用いて2段階光励起可視光水分解が可能であることを見出し、また水素生成系としてオキシナイトライド TaON が有効であることも報告してきた。各種オキシナイトライドは、その価電子帯が酸素と窒素の混成軌道から構成されるため、可視光吸収と水素生成ポテンシャルの両立が可能であり、2段階励起水分解システムにおける水素生成系として有望と考えられる。そこで本研究においては、 TaON よりも長波長の可視光利用を目的として、複合型オキシナイトライドである ATaO_2N ($\text{A}=\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$) を合成し、水素生成系への適応を検討した。

2. 実 験

オキシナイトライド ATaO_2N ($\text{A}=\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$) は錯体重合法により調製した前駆体 ($\text{A}_2\text{Ta}_2\text{O}_7$) をアンモニア気流下 (100ml/min) で $850\sim 950^\circ\text{C}$ 、15~20時間窒化することによって得た。 WO_3 は市販品 (高純度化学) を用いた。各触媒への Pt 担持は、塩化白金酸の含浸・焼成によって行った。光触媒反応は閉鎖循環系を用い、L-42 カットオフフィルターを装着したキセノンランプによって光照射を行った。生成した気体はガスクロを用いて定性・定量を行った。

3. 結果と考察

調製したサンプルは紫外・可視吸収スペクトルから、 ATaO_2N ($\text{A}=\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$) の吸収端はそれぞれ 520、600、650nm となり、 TaON (520 nm) よりも長波長の可視光が吸収できることが分かった。これらに Pt を担持し、NaI 水溶液中に懸濁させて可視光照射を行うと、いずれの化合物においても水素生成が確認された。励起電子によって水が還元されて水素が生成し、正孔によってヨウ化物イオン (I^-) が酸化されてヨウ素酸イオン (IO_3^-) が生成したと考えられる。そこで、これらの触媒を酸素生成用の Pt- WO_3 と組み合わせることにより、可視光水分解を試みた。図1には一例として、Pt- BaTaO_2N と Pt- WO_3 をヨウ化ナトリウム水溶液中で混合して可視光照射を行った場合の気体生成を示す。反応初期から

水素と酸素が2:1の量論比で生成し、2段階励起によって可視光水分解が進行していることがわかる。 Ta_3N_5 を用いた場合には水の分解は進行しなかったことから、 BaTaO_2N が光触媒として機能していると考えられる。また SrTaO_2N 、 CaTaO_2N においても、Pt- WO_3 と組み合わせることにより水素と酸素の同時生成が確認された。以上のように、複合型オキシナイトライドを2段階可視光水分解の水素生成系へ適応することは、長波長利用の有効な手段であることが示された。

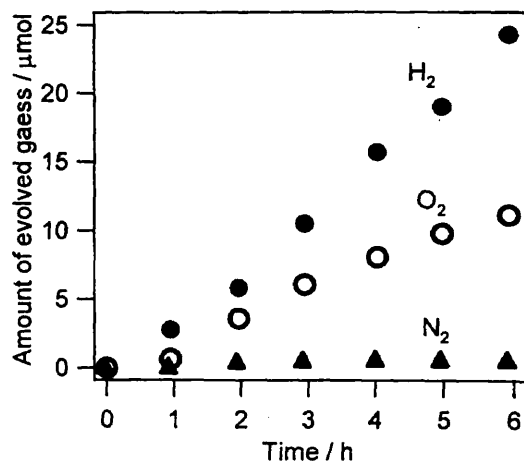


図1 Pt- BaTaO_2N · Pt- WO_3 光触媒におけるNaI水溶液からの気体生成

氏 名 東 正信

- 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)

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)

口頭発表

- ・東 正信、阿部 竜、寺村 謙太郎、高田 剛、堂免 一成
非酸化物系光触媒を用いたZスキーム型可視光水分解反応系の構築
第 86 春季年会 (習志野・2006 年 3 月)
- ・東 正信、阿部 竜、寺村 謙太郎、高田 剛、大谷 文章、堂免 一成
ATaO₂N (A = Ca, Sr, Ba)を用いた 2 段階可視光水分解
第 98 回触媒討論会 (富山・2006 年 9 月)

ポスター発表

- ・Masanobu Higashi, Ryu Abe, Kentarou Teramura, Tsuyoshi Takata, Bunsyo Ohtani,
Kazunari Domen
Photocatalytic overall water splitting under visible light by ATaO₂N (A = Ca, Sr, Ba) and WO₃
with an IO₃⁻/I⁻ shuttle redox mediator
4th Asia Pacific Congress on Catalysis (Singapore・2006 年 12 月)