

審査の結果の要旨

論文題目 Development of photocatalyst sheets for Z-scheme water splitting under visible light irradiation
(Zスキーム型可視光水分解反応のための光触媒シートの開発)

氏名 潘 振 華

本論文は、 $\text{LaMg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3}\text{O}_2\text{N}$ を水素生成光触媒として用いる可視光照射下における水分解反応のための光触媒シートの開発や高活性化の手法について記述されている。本論文は英語で書かれており全部で5つの章から構成されている。

第1章では、本研究の意義、目的と論文の構成、半導体光触媒による水分解反応の原理、水分解反応に用いられる半導体材料や可視光応答性光触媒材料の設計、並びに本研究で用いる $\text{LaMg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3}\text{O}_2\text{N}$ 光触媒の合成法について記述している。

第2章では、 $\text{LaMg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3}\text{O}_2\text{N}$ を水素生成光触媒、ルチル型酸化チタンを酸素生成光触媒として用いるZスキーム型水分解反応について検討している。二種類の光触媒を粒子転写法によりAu薄膜に固定化した光触媒シートが、 $\text{LaMg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3}\text{O}_2\text{N}$ 単独、あるいはルチル型酸化チタンとの混合系を懸濁させた場合よりも紫外光照射下で高い水分解活性を示すことを見出している。また、 $\text{LaMg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3}\text{O}_2\text{N}$ 光触媒が水分解反応中に自己酸化するという問題に対し、光触媒シートの表面をアモルファス酸化チタン層で被覆することにより、水分解活性を低下させることなく自己酸化分解を抑制することができることを示している。一連の実験に基づき、Zスキーム型水分解反応の水素生成光触媒として $\text{LaMg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3}\text{O}_2\text{N}$ を応用することが可能であると結論している。

第3章では、 $\text{LaMg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3}\text{O}_2\text{N}$ を水素生成光触媒、Moドープ BiVO_4 を酸素生成光触媒として用いる可視光照射下で水を分解できる光触媒シートの開発を検討し、活性を向上させるための手法について記述している。まず、 $\text{LaMg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3}\text{O}_2\text{N}$ とMoドープ BiVO_4 がAu薄膜に固定化された光触媒シートが、それぞれの光触媒を単独、あるいは混合して水中に懸濁させた場合よりも水分解反応に高い活性を示すことを示している。さらに、電子ドナーやアクセプター存在下での水分解活性の評価結果に基づいて、水素生成過程が全体の水分解活性を制限しているとの考察を述べている。 $\text{LaMg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3}\text{O}_2\text{N}$ の水素生成活性を改善する手法として ZrO_2 微粒子による表面修飾を検討し、 $\text{LaMg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3}\text{O}_2\text{N}$ 表面の欠陥の濃度が低下することにより、水素生成活性のみでなく光触媒シートの水分解活性も向上

することを見出している。一連の結果に基づき、従来よりも長波長の可視光照射下で水分解が可能な光触媒シートが作製可能になったと結論している。

第4章では、 $\text{LaMg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3}\text{O}_2\text{N}$ 、Mo ドープ BiVO_4 、Au 薄膜から構成される光触媒シートに対し、還元型酸化グラフェンを添加する効果について検討した結果を記している。導電性を有する還元型酸化グラフェンを光触媒シートに加えることで水分解活性が向上することを見出し、光触媒シートの構造や還元型酸化グラフェンによる光触媒粒子間の電子伝達について議論している。光触媒シートに添加された酸化グラフェンは水分解反応中に光還元され、親水性と導電性を有する還元型酸化グラフェンに変化することをいくつかの分析手法により示している。光触媒シート上に厚く積層した光触媒粒子が還元型酸化グラフェンを通じて Au 薄膜と導通するようになるため、粒界抵抗の影響が緩和されて水分解反応に寄与できるようになったと考察している。さらに、分級により小粒子径の $\text{LaMg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3}\text{O}_2\text{N}$ 光触媒を用いることで、粒界抵抗の影響が一層低減されるため、水分解活性が向上することを見出している。一連の実験結果から、還元型酸化グラフェンの導入により光触媒シートの水分解活性を向上させることができると論じている。

第5章では、第2章から第4章までの研究成果を総括するとともに、今後の光触媒シート開発の課題や展望を述べ、長波長まで吸収できる光触媒材料の応用や、2種類の光触媒粒子間の導通の改善の必要性を指摘している。

以上のように、本論文は可視光照射下での水分解反応を目的とした光触媒シートの開発について述べられており、可視光応答性酸窒化物光触媒を水素生成光触媒として用いた光触媒シートの水分解活性並びに安定性の向上だけでなく、その反応機構の解析においても十分な成果を報告している。一連の研究成果は太陽エネルギー変換システムの構築という社会的要求の高い研究分野に重要な知見を与え、進展を促すものである。さらに、光触媒シートの構造や各成分の機能を明確にしつつ活性につながる知見を提示したという点で、化学システム工学の発展に大いに貢献すると認定される。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。