

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

前田和彦^{*1}・寺村謙太郎^{*1}・高田剛^{*1}・斉藤信雄^{*2}・井上泰宣^{*2}・小林久芳^{*3}・堂免一成^{*1,*4}

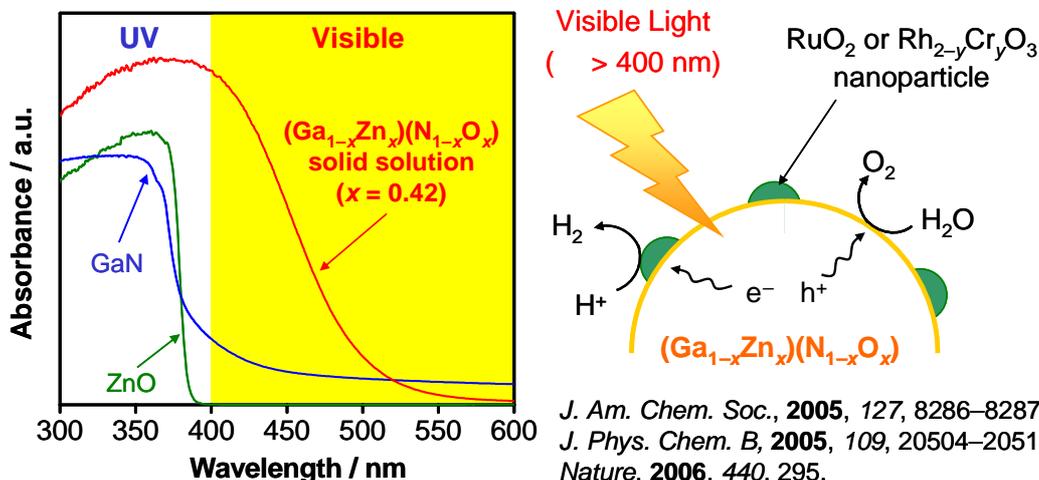
^{*1}東京大学大学院工学研究科, ^{*2}長岡技術科学大学工学部, ^{*3}京都工芸繊維大学工学部, ^{*4}SORST/JST

太陽エネルギーと半導体粉末光触媒を利用した水の分解反応は、クリーンで再生可能な水素エネルギーの大規模生産を可能とする究極の反応として注目され、近年では可視光で駆動する光触媒材料の開発が盛んに行われている。その中でも、金属酸化物の酸素の一部または全てを窒素で置換した(オキシ)ナイトライドは、可視光で水を分解する安定な光触媒として有望な材料群である。

本研究では、窒化ガリウム(GaN)と酸化亜鉛(ZnO)からなる新規(オキシ)ナイトライド型固溶体 $(\text{Ga}_{1-x}\text{Zn}_x)(\text{N}_{1-x}\text{O}_x)$ に着目し、その合成と可視光で水を分解する光触媒としての利用を検討した。GaNとZnOはともに発光ダイオードなどの光機能性材料としての応用研究が盛んに行われている材料であり、両者ともにウルツ鉱型の結晶構造をもつ。GaNとZnOの固溶体 $(\text{Ga}_{1-x}\text{Zn}_x)(\text{N}_{1-x}\text{O}_x)$ は、 Ga_2O_3 とZnOの混合粉末を高温のアンモニア気流中で加熱することによって得られ、焼成温度と時間を制御することでその組成を制御できた。ICP発光分析と粉末X線回折測定の結果から、得られた材料中におけるN/Ga比とO/Zn比はほぼ1であり、得られた材料はGaN、ZnOと同じウルツ鉱型構造をもつ新規な固溶体材料であることが明らかとなった。

GaNもZnOもバンドギャップが大きく、可視光を吸収することはできない。しかし、この両者が固溶体を形成すると、500 nm程度までの可視光を吸収できるようになった。この材料に水素生成の活性点として働く酸化ルテニウム(RuO_2)のナノ粒子を担持すると、可視光照射下で水を水素と酸素に完全分解する安定な光触媒として機能した。また、RhとCrからなる複合酸化物($\text{Rh}_{2-y}\text{Cr}_y\text{O}_3$)のナノ粒子を助触媒として担持した場合、水の光分解の活性は著しく向上し、そのときの量子収率は、最大で2-3%(420-440 nm)に達した。

これまでに、水を分解することのできる光触媒材料は金属酸化物に限られていたが、 $(\text{Ga}_{1-x}\text{Zn}_x)(\text{N}_{1-x}\text{O}_x)$ のような非酸化物系の材料でも確かに水を分解できることが実証された。現在のところ、その有効波長は500 nm程度であるが、今後より長波長の光を使って高い量子収率で水を分解できるようになれば、近い将来太陽光と水からクリーンな水素を大量に作り出せる光触媒反応系が構築できると期待される。



J. Am. Chem. Soc., **2005**, 127, 8286–8287.

J. Phys. Chem. B, **2005**, 109, 20504–20510.

Nature, **2006**, 440, 295.