

欠陥導入に伴う窒化タンタル結晶の構造変化

(明大院理工) ○加藤 麻穂・渡邊 友亮・深澤 倫子

Effects of defects on structure of Ta₃N₅ crystal (*Department of Applied Chemistry, Meiji University*) ○Maho Kato, Tomoaki Watanabe, Tomoko Ikeda-Fukazawa

Tantalum nitride (Ta₃N₅) crystal is a visible-light responsive photocatalyst. The catalytic activity of the crystal is affected by defects formed during synthesis of the crystal. To investigate the effects of defects on the structure of the crystal, the molecular dynamics calculations of the tantalum nitride including oxygen defects have been performed. From the results, the mechanisms of the structural changes are discussed.

Keywords : Photocatalyst, Tantalum Nitride, Molecular Dynamics Calculations

窒化タンタル (Ta₃N₅) 結晶は、可視光を吸収することにより高効率に水を分解することが可能な可視光応答性光触媒として注目されている¹⁾。窒化タンタル結晶の合成法としては、タンタル酸化物 (Ta₂O₅) をアンモニア気流化で加熱するアンモニアガス還元窒化法が主流である。この合成の過程で残留した酸素や格子欠陥が Ta₃N₅ 結晶の水素生成活性の向上に効果をおよぼすことが指摘されている²⁾。合成時の残留酸素の影響により結晶の密度が変化することが示されているが、構造変化のメカニズムについては明らかではない³⁾。本研究では、欠陥の導入に伴う構造変化のメカニズムを明らかにするため、分子動力学法を用いた研究を進めている。今回は特に、酸素置換率の変化に伴う密度変化の解析結果について報告する。

分子動力学計算は MXDORTO プログラム⁴⁾ を用いて行った。原子間ポテンシャルパラメーターには、結晶の密度および熱膨張率、体積弾性率の実測値を再現するように最適化した値を用いた。計算には 96Ta₃N_{5-x}O_x から構成される空間群 *Cmcm* の系を使用し、三次元周期境界条件を適用した。x は 0 から 5 の範囲で変化させ、酸素置換率の変化に伴う構造変化を解析した。計算条件は NTP アンサンブルとし、温度は 300 K、圧力は 0.1 MPa とした。

計算の結果、酸素置換率に依存して密度および格子定数が変化することが確認された。Ta₃N₅ 結晶における窒素原子は、対称性により *c* サイトと 3 配位の *f* サイト、4 配位の *f* サイトの三種類に 1:2:2 の比で分類される。本研究の結果、酸素置換サイトに依存して局所構造が変化することが明らかになった。本研究の結果は、Ta₃N₅ 結晶内に残存した酸素が、極微量であっても結晶全体の構造を変化させ、触媒機能に影響を及ぼす可能性を示唆する。

1) G. Hotoki, A. Ishikawa, T. Takata, J. N. Kondo, M. Hara, K. Domen, *Chem. Lett.* **31** (2002) 736.

2) K. Kishida, T. Watanabe, *J. Ceram. Soc. Jpn* **122** (2013) 156.

3) S. J. Henderson, A. L. Hector, *J. Solid State Chem.* **179** (2006) 3518.

4) K. Kawamura, MXDORTO, *Japan Chemistry Program Exchange*, #029 (1996).