フラックス法により調製した SrTaO2N 光触媒の水素生成活性

(信大工 ¹・信大先鋭材料研 ²・JST さきがけ ³) 〇大槻 丈碩 ¹・久富 隆史 2,3 ・堂免 一成 2

H₂ evolution reaction activity of SrTaO₂N photocatalyst by flux method (¹Faculty of Engineering, Shinshu University, ²Research Initiative for Supra-Materials, Shinshu University, ³PRESTO, Japan Science and Technology Agency) ○Takehiro Otsuki,¹Takashi Hisatomi,²,³ Kazunari Domen,²

SrTaO₂N is a promising visible-light-driven photocatalyst for water splitting with the absorption edge wavelength of 580 nm. Conventionally, SrTaO₂N was synthesized by nitriding a precursor oxide as is, but the hydrogen evolution activity from aqueous solutions containing sacrificial reagents tended to be low. It is considered that there is a problem in the crystal growth process during the nitridation. In this study, SrTaO₂N was synthesized by nitridation in the presence of flux to improve the crystal growth, and the physical properties of the products and the hydrogen evolution activity after loading of Pt cocatalysts were investigated. Single-phase SrTaO₂N was obtained regardless of the flux species, although the morphology and hydrogen evolution activity were different.

Keywords: Visible light; Oxynitride; Water splitting reaction; Co-catalyst

SrTaO₂N は吸収端波長を 580 nm に有し、可視光応答型の水分解用光触媒として有望視されている。従来、SrTaO₂N は酸化物前駆体をそのまま窒化して合成されていたが、犠牲試薬を含む水溶液からの水素生成反応の活性は低く、窒化時における結晶育成法に問題があったと考えられる。本研究では、結晶育成の改善を目的に、出発物質をフラックス存在下で窒化して SrTaO₂N の合成し、その物性と Pt 助触媒担持時の水素生成活性を検討した。

出発物質の $SrCO_3$ と Ta_2O_5 に対し、NaC1、KC1、RbC1 等のアルカリ金属塩化物をフラックスとして $SrTaO_2N$ 濃度が 10 mol%相当となるように加えて混合した。これを 1223 K で 8 時間、アンモニア気流中で加熱窒化して試料を合成した。得られた試料に水素生成助触媒として Pt を含侵・水素還元および光電着法を用いて担持し、メタノール水溶液からの可視光 $(\lambda > 420 \, \text{nm})$ 水素生成活性を評価した。

いずれのアルカリ金属塩化物をフラックスに用いても、単相で凝集のない SrTaO₂N 粒子が得られた。NaCl を用いた場合には専ら粒形が 300 nm 程度の立方体状の粒子が、KCl, RbCl を用いた場合にはやや小径の歪な球状の粒子が得られた(図1)。 水素生成活性は RbCl をフラックスとして用いた場合に比較的高くなり、小径の粒子の方が好ましいことが示唆された。



図1. 合成した SrTaO2N の SEM 像。フラックス: (a) NaCl, (b) KCl, (c) RbCl