フラックス存在下での窒化により合成した LaTiO2N の水素生成活性

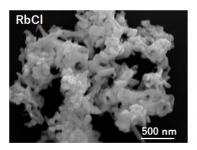
(信大工¹・信大先端材料研²・JST さきがけ³)○小野 絢加¹・久富 隆史 ²³・堂免 一成² Photocatalytic H₂ evolution activity of LaTiO₂N nitrided in the presence of a flux (¹Faculty of Engineering, Shinshu University, ²Research Initiative for Supra-Materials, Shinshu University, ³PRESTO, Japan Science and Technology Agency) ○Ayaka Ono,¹ Takashi Hisatomi,²₃³ Kazunari Domen²

LaTiO₂N, a perovskite-type oxynitride, has the absorption edge wavelength of 600 nm and has been widely investigated as a visible-light-responsive photocatalyst for water splitting. Recently, the hydrogen evolution activity of BaTaO₂N having the same perovskite-type structure was significantly improved by applying flux-assisted nitridation and by refining the loading method of hydrogen evolution cocatalysts. In this study, LaTiO₂N was synthesized by direct nitridation in the presence of a flux, and the H₂ generation activity was studied after loading Pt as a hydrogen evolution cocatalyst. The morphology of LaTiO₂N particles was found to be changed drastically by adding a small amount of CaCl₂ to the RbCl flux. Loading of the Pt cocatalyst via sequential impregnation and hydrogen reduction and photodeposition promoted the hydrogen evolution activity of the LaTiO₂N samples more effectivity than loading by only the impregnation and hydrogen reduction method.

Keywords : Cocatalyst / Perovskite-type structure / Oxynitride

ペロブスカイト型酸窒化物である $LaTiO_2N$ は吸収端波長が 600 nm であり、比較的安価な元素から構成されているため、可視光応答型の水分解用光触媒として広く研究されている。同じペロブスカイト型酸窒化物である $BaTaO_2N$ の場合、フラックス存在下での直接窒化により直方体状の粒子が育成可能であり 1)、適切な条件で水素生成助触媒を担持するとメタノール水溶液からの水素生成活性が大きく向上する。本研究では、フラックス存在下での直接窒化により合成した $LaTiO_2N$ の粒子径形態と水素生成活性を検討した。

フラックスとして RbClを用いると、楕円体状の凝集した微粒子が得られた。しかし、少量の CaCl₂を添加した RbCl-CaCl₂ フラックスを用いると、不溶性の副生成物を含むが球状ないし直方体状のよく分散した酸窒化物微粒子が得



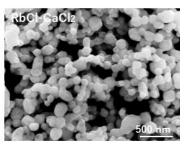


図 1 RbCl 及び RbCl-CaCl₂フラックスを用いて合成した LaTiO₂N の SEM 像

られることがわかった。得られた試料に Pt 助触媒を担持すると水素生成反応に活性を示した。助触媒担持条件を検討したところ、含浸・水素還元法で Pt を担持した後に、光電着法を用いて逐次的に担持することでより効果的に水素生成活性が向上することがわかった。

1) Luo et al., Cryst. Growth Des. 2020, 20, 255-261.