

元素置換された GaN:ZnO 固溶体の真空封管合成と光触媒活性の検討

(信大院総合理工¹・信大院総合医理工²・信大先鋭材料研³・JST さきがけ⁴)

○阿部慎太郎¹・岩佐捺伽²・久富隆史^{3,4}・堂免一成³

Study on the Synthesis of GaN:ZnO Solid Solutions with Elemental Substitution in Sealed Evacuated Tubes and their Photocatalytic Activity (¹ Department of Engineering, Shinshu University, Shinshu University, ² Department of Science and Technology, Shinshu University, ³ Research Initiative for Supra-Materials, Interdisciplinary Cluster for Cutting Edge Research, Shinshu University, ⁴ PRESTO, Japan Science and Technology Agency)

○Shintaro Abe¹, Natsutogi Iwasa², Takashi Hisatomi^{3,4}, Kazunari Domen³

GaN:ZnO having a higher ZnO content and elementally substituted was synthesized in sealed evacuated tubes to extend the absorption edge, and the water splitting activity was studied. GaN:ZnO was obtained, although impurities such as AlN, AlOCl and In were included due probably to reaction with flux and thermal decomposition. In the case of the co-catalyst was loaded on unsubstituted GaN:ZnO by microwave heating in water, the overall water splitting activity was effectively improved if the CoO_x co-catalyst was additionally loaded.

Keywords : Oxynitride; Doping; Visible light

GaN:ZnO は、ウルツ鉱型の GaN と ZnO の固溶体であり、ZnO 濃度が高くなるにつれて吸収端が長波長化する。従来のアンモニア気流下での加熱窒化で得られる GaN:ZnO は吸収端が 460 nm 程度であった。一方、真空封管法で合成される GaN:ZnO は、ZnO 濃度を高く維持することができるため、より長波長域 (約 540 nm) までの可視光を吸収する。しかし、その水分解活性は従来よりも一桁以上低い¹⁾。そこで、本研究では、元素置換による GaN:ZnO の吸収端の制御や水分解活性の改善を試みた。

出発原料に In 添加 Ga₂O₃ を用いた場合、主相の GaN:ZnO の他に単体 In を含む混合物が得られた (図 1d)。加熱温度が高く、窒化されて生じた InN が単体 In と窒素に熱分解したと考えられる。一方、Al 添加 Ga₂O₃ を用いた場合、GaN:ZnO、AlN、AlOCl の混合物が得られた (図 1c)。GaN:ZnO 中に AlN が固溶できず Al 成分が原料中の塩化物と反応したと考えられる。したがって、真空封管法では、GaN:ZnO 中の Ga を Al や In に置換するのは Ge の場合²⁾とは異なり困難なことが分かった。そこで、未置換の GaN:ZnO に対し、各種助触媒を担持して水分解活性を検討した。助触媒担持工程に水溶液中でのマイクロ波加熱を含む場合に、CoO_x 助触媒を追加担持した際に効果的に水分解活性が向上することが分かった。

1) Maeda *et al.* *J. Am. Chem. Soc.*, **2005**, 127, 8286.

2) 阿部ら, 第 130 回触媒討論会, **2022**, 1F03.

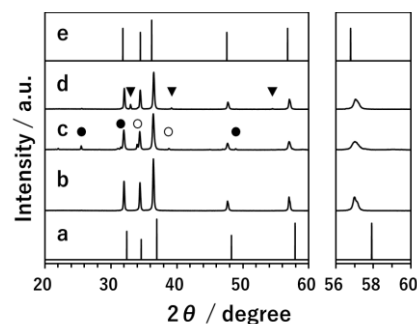


図 1 粉末 X 線回折パターン : (a) GaN (ref), (b) GaN:ZnO (未置換), (c) GaN:ZnO (Al 10 mol% 置換), (d) GaN:ZnO (In 10 mol% 置換), (e) ZnO (ref), ● : AlOCl, ○ : AlN, ▼ : In.