

長波長の可視光に応答する GaN-ZnO 固溶体光触媒の合成と光触媒活性の検討

(信大院総合理工¹・JST さきがけ²・上海科技大³) ○岩佐 捺伽¹・藤 鎮遠¹・久富 隆史^{1,2}・馬 貴軍³・堂免 一成¹

Synthesis of Long-wavelength-responsive GaN-ZnO Solid Solutions and Their Photocatalytic Activity (Shinshu University¹, JST PRESTO², ShanghaiTech University³) ○Nastutogi Iwasa¹, Zhenyuan Teng¹, Takashi Hisatomi^{1,2}, Guijun Ma³, Kazunari Domen¹

The absorption edge of solid solutions of GaN and ZnO (GaN:ZnO) shifts toward longer wavelengths with increasing the ZnO content. However, it is challenging to achieve both the high ZnO content and high crystallinity in the conventional synthesis under NH₃ flow because of the volatilization of ZnO. In this study, GaN:ZnO that has an absorption edge beyond 500 nm was obtained by using Zn₃N₂ as a solid nitrogen source in a sealed evacuated tube. The obtained GaN:ZnO achieved overall water splitting when being loaded with hydrogen evolution and oxygen evolution cocatalysts.

Keywords : oxynitride; visible light response; sealed evacuated tube

GaN-ZnO 固溶体(GaN:ZnO)は初めて可視光を用いて水分解を達成した材料の 1 つであり、その吸収端は ZnO の含有量に応じて長波長化することが知られている²⁾。しかし、従来のアンモニア気流下での合成では ZnO が揮発しやすいため、高 ZnO 含有量と高結晶性の両立は困難であった。最近、真空封管中で窒化物を合成した例が報告されている³⁾。本研究では、真空封管中で固体窒素源として窒化亜鉛を用いることで高 ZnO 濃度の GaN:ZnO を合成することを試みた。

出発原料として窒化亜鉛、酸化ガリウム、ヨウ化亜鉛を混合し、真空封管中で加熱することで GaN:ZnO が単相で得られた。十分量のヨウ化亜鉛が存在しないと単相の GaN:ZnO が得られなかったことから、ヨウ化亜鉛が反応を促進するフラックスとして機能したと推測される。各種後処理後の GaN:ZnO の拡散反射スペクトル (DRS) を図 1 に示す。アンモニア気流下での窒化で得られる従来の GaN:ZnO と比較し、本手法で合成した GaN:ZnO は可視光を長波長域まで吸収した。得られた GaN:ZnO に酸素生成助触媒、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を示した。さらに酸化クロムを担持することで水分解反応にも活性を示すことが確認された。

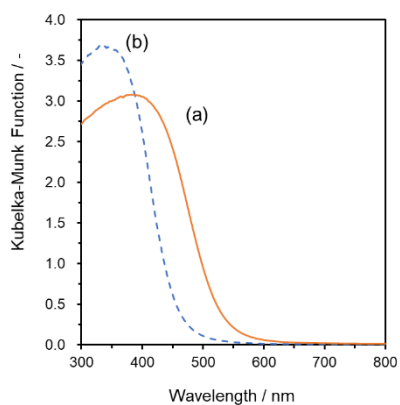


図 1 合成法の異なる GaN:ZnO の DRS。(a) 真空封管法、(b) アンモニア熱窒化法。

1) Maeda *et al.*, *Nature*, **2006**, 440, 295.

2) Dharmagunawardhane *et al.*, *RSC Adv.*, **2018**, 8, 8976-8982.

3) Xiang *et al.*, *Chem. Commun.* **2020**, 56, 11843-11846.