高効率に酸素生成反応を駆動する SrTaO2N 光触媒の開発

(信大工 ¹・信大院工 ²・信大先鋭材料研 ³・JST さきがけ ⁴) ○平子秋生 ¹・大槻丈碩 ²・久富隆史 ^{3,4}・堂免一成 ³

Development of SrTaO₂N Photocatalyst Efficiently Driving the Oxygen Evolution Reaction (¹Faculty of Engineering, Shinshu University, ²Graduate School of Engineering, Shinshu University, ³Research Initiative for Supra-Materials, Shinshu University, ⁴PRESTO, Japan Science and Technology Agency) ○ Akio Hirako¹, Takehiro Otsuki², Takashi Hisatomi³, Kazunari Domen³

SrTaO₂N, a perovskite-type oxynitride, is a promising visible-light-driven photocatalyst for water splitting owing to the intense visible light absorption up to 590 nm. However, SrTaO₂N capable of overall water splitting has not been reported, and the half-reaction activity from aqueous solutions containing sacrificial reagents is also not very high. In this work, cocatalyst loading for SrTaO₂N was studied to upgrade the oxygen evolution activity. The oxygen evolution activity of SrTaO₂N became higher with increasing the heating temperature when CoO_x was loaded by impregnation and following heating in NH₃ flow, and the apparent quantum efficiency reached 15% at 420 nm. SrTaO₂N could be activated for both hydrogen and oxygen evolution half-reactions through coloading of cocatalysts although the activity in each half-reaction was lowered.

Keywords: Oxynitride, cocatalyst, flux

 $SrTaO_2N$ はペロブスカイト構造をもつ酸窒化物であり、波長 590 nm 付近までの可視光を吸収することができるため水分解用の光触媒材料として研究されている。しかし、これまでに $SrTaO_2N$ による水の完全分解の報告はされておらず、犠牲試薬を含む水溶液からの半反応の活性もそれほど高くない $^{1)}$ 。本研究では $SrTaO_2N$ の酸素生成活性の向上を目的に助触媒の担持条件を検討した。また助触媒の共担持が半反応の活性に及ぼす影響について調べた。

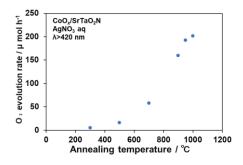


図 1 CoO_x/SrTaO₂NのNH₃気流中での加熱温度と酸素生成活性の関係

フラックス法で合成した $SrTaO_2N$ を Co 塩水溶 の加熱温度と酸素生成活性の関係 液に含浸し、様々な条件で焼成して CoO_x を担持した。この $SrTaO_2N$ に対して可視光 を照射し、硝酸銀水溶液中での酸素生成活性を評価した。また水素生成助触媒を共担持した試料についてはメタノール水溶液中で水素生成活性を評価した。

含浸後の NH_3 気流中における加熱温度が高い程、酸素生成活性も向上した(図 1)。 担持条件や反応条件を最適化すると、波長 $420\,\mathrm{nm}$ における外部量子効率は $15\,\mathrm{%}$ に達した。また、 CoO_x と Rh を共担持することで酸素生成活性、水素生成活性両方に活性を持つ $SrTaO_2N$ の調製に成功したが、それぞれの半反応の活性は低下した。

1) J. Fu et al., Angew. Chem. Int. Ed., 2017, 56 14169.