

層状酸化物を出発原料とする LaTiO_2N の合成と光触媒活性の検討

(信大工¹・信大先鋭材料研²・JST さきがけ³) ○柏木紀穂¹・久富隆史^{2,3}・堂免一成³
 Study on synthesis and photocatalytic activity of LaTiO_2N prepared from layered oxides (¹Engineering, Shinshu University, ²Research Initiative for Supra-Materials, Shinshu University, PRESTO, JST) ○Kiho Kashiwagi,¹ Takashi Hisatomi,^{2,3} Kazunari Domen³

LaTiO_2N , a perovskite-type oxynitride with an absorption edge at approximately 600 nm, has been studied as a photocatalyst for water splitting. LaTiO_2N can be synthesized by heating $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ in ammonia stream, but Ti^{4+} is easily reduced during the prolonged nitridation. In this work, LaTiO_2N was synthesized from KLaTiO_4 with various treatments. Nitridation of $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ resulted in broad absorption at longer wavelengths than the absorption edge, regardless of the nitridation time or pulverization treatment. In contrast, LaTiO_2N with a clear absorption edge was obtained from KLaTiO_4 after nitridation for a short time. In addition, LaTiO_2N was obtained from pulverized KLaTiO_4 in a shorter time, indicating that the smaller particles size of the raw material was effective in promoting the nitridation. However, the hydrogen production activity was not improved. The control of photocatalyst composition and the construction of active sites are still considered to be problematic.

Keywords : layered compound / perovskite / pulverization / nitridation

ペロブスカイト型酸窒化物である LaTiO_2N は約 600 nm に吸収端を持つ水分解用光触媒として研究されている。 LaTiO_2N は $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ をアンモニア気流中で加熱して合成できるが、長時間の窒化中に Ti^{4+} が還元されやすい。そこで、本研究では各種処理を施した KLaTiO_4 を出発原料とする LaTiO_2N の合成を検討した。

La_2O_3 、 TiO_2 、 KOH を空气中で加熱し、洗浄して KLaTiO_4 を調製した。 KLaTiO_4 をアンモニア気流中で窒化し LaTiO_2N 試料を得た。一部の KLaTiO_4 はボールミル粉碎を行った。また、比較のためフラックス法で合成した $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ も同様の手順で LaTiO_2N 試料を得た。

図 1 に各種出発原料から合成した LaTiO_2N の拡散反射スペクトルを示す。 $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ を窒化すると窒化時間や粉碎処理の有無によらず、吸収端よりも長波長域にブロードな吸収が見られた。これに対し、 KLaTiO_4 からは短時間の窒化で比較的明瞭な吸収端を示す

LaTiO_2N が得られた。さらに粉碎した KLaTiO_4 からはより短時間で LaTiO_2N が得られ、小径化が窒化促進に効果があることがわかった。しかし、水素生成活性は向上せず、組成の制御や活性サイトの構築が課題と考えられる。

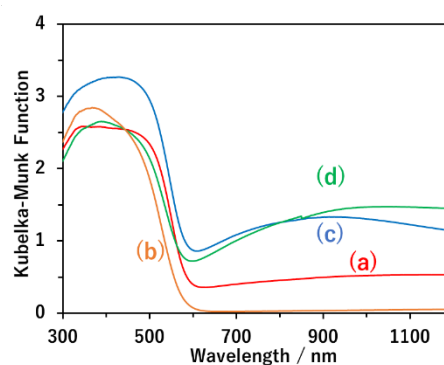


図 1 LaTiO_2N の拡散反射スペクトル。出発原料:
 (a) KLaTiO_4 、(b) 粉碎した KLaTiO_4 、(c) $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ 、
 (d) 粉碎した $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ 。