

## B 9 0 3 タンタル系複合酸化物による高効率な水の完全光分解反応

(東京理科大学 理学部) ○工藤昭彦・加藤英樹

〔目的〕 今までに報告されている水の水素と酸素への完全分解のための光触媒材料は数限られており、その中でもチタン系酸化物がほとんどである。そこで、本研究では、高効率な水の分解のための新たな光触媒化合物群として、タンタルを構成元素とした光触媒材料を開発することを目的とした。

〔実験〕 触媒の調製は、固相法にて行った。光触媒反応は閉鎖循環系にて行い、石英製内部照射型反応管を使用した。触媒 1g を反応溶液 350-390ml に懸濁させ、400W 高圧水銀灯を用いて光照射した。生成した水素と酸素の定量にはガスクロを用いた。

〔結果と考察〕 タンタル酸アルカリ・アルカリ土類の純水の完全光分解反応に対する光触媒活性を調べた結果、 $\text{NaTaO}_3$ 、 $\text{Sr}_2\text{Ta}_2\text{O}_7$ 、 $\text{SrTa}_2\text{O}_6$ 、 $\text{BaTa}_2\text{O}_6$  が高い活性を示すことを初めて見いだした。これらの光触媒のバンドギャップはそれぞれ、4.0, 4.6, 4.1, 4.4 eV であった。これらのタンタル系光触媒では、助触媒を担持しなくても活性があること、および、NiO を助触媒に用いることにより活性が飛躍的に増加するところに特徴がある。タンタル系光触媒が高い活性を示すのは、主にその伝導帯が高いポテンシャルを持った Ta5d 軌道からなっているためであると考えられる。この中でもっとも高活性であった  $\text{NaTaO}_3$  光触媒に様々な希土類イオン (Ln) をドーブした結果、La, Pr, Nd, Sm, Gd, Tb, Dy をドーブした触媒で活性が著しく向上した。これらの中で La をドーブしたものが最も高い活性を示した。この光触媒系の最適条件を検討したところ、 $\text{NiO}(0.2 \text{ wt}\%)/\text{NaTaO}_3:\text{La}(1.5 \text{ atm}\%)$  を 1mmol/l の NaOH 水溶液中で反応させることにより、 $\text{H}_2$  が 16mmol/h の速度で定常的に生成した。これと同時に量論比に対応する酸素生成も観測された。このときの 270nm における量子収率は約 50% であった。Ln ドープによる活性向上の原因を明らかにするために電子顕微鏡観察を行った結果、未ドーブの  $\text{NaTaO}_3$  の粒径は 2-3 $\mu\text{m}$  であったのに対して、Ln ドープの  $\text{NaTaO}_3$  のそれは 0.1-0.7 $\mu\text{m}$  であった。また、未ドーブの  $\text{NaTaO}_3$  では触媒表面がフラットであったのに対して、La ドープの  $\text{NaTaO}_3$  では表面が多数のステップで形成されていた。Ln ドープによる小さな粒径と特徴的な表面構造が、高活性に寄与しているものと考えられている。

このように、紫外光照射下ではあるが、光触媒を用いた水の完全光分解において、高い効率が得られることが実際に可能であることが実証された。