

背景、及び概要

水分解系の光触媒材料において、さらなる変換効率向上のために材料・システムが探索されている。このような背景の中、水素(H_2)発生光触媒と酸素(O_2)発生光触媒を接合させた二段階励起型の水分解系が提唱されるが、作製が困難とされており報告例は殆ど無い。しかしながら半導体ヘテロ接合構造は、光電変換デバイスにおいて効率的な光吸収、光励起キャリアの分離を可能にして高効率の太陽電池を実現しており、光触媒材料においてもヘテロ接合構造による変換効率の向上が期待できる。我々はこれまでに気相成長法を用いて、ルチル型の TiO_2 粉末表面に鉄シリサイド($\beta\text{-FeSi}_2$)半導体粒子が分散した複合粒子を合成し、光触媒効果による水分解から H_2 、及び O_2 発生を報告した。本発表では窒化タンタル(Ta_3N_5)を担体とし、その表面に $\beta\text{-FeSi}_2$ ナノ結晶粒を合成した複合粒子作製を報告する。

実験方法、及び結果

タンタル(Ta)粉末に炭酸ナトリウム(Na_2CO_3)フラックスをコートした後、に 850°C のアンモニア(NH_3)雰囲気中で窒化合成した Ta_3N_5 粉末（粒子径：約 $30\mu\text{m}$ ）に、塩化金酸4水和物($HAuCl_4 \cdot 4H_2O$)溶液中に浸漬し超音波法にて仕込み量3wt%の金(Au)を担持させる前処理を行った。この Ta_3N_5 粉末表面にスパッタ法にて Fe と Si の堆積を行った。スパッタ法での作製は Ar と H_2 の雰囲気下で合成温度 750°C において約 180 nm 堆積を行った。

X線回折法による θ - 2θ スキャンプロファイルにおいて、 Ta_3N_5 粉末上の試料から担持した Au の回折ピークと共に、スパッタ法で気相合成した $\beta\text{-FeSi}_2$ 相の $202/220$ 面からの回折ピークが観察された。また図2に示すSEM像から Ta_3N_5 粒子表面に粒子径 $300\sim 1000\text{ nm}$ の島状 $\beta\text{-FeSi}_2$ 結晶が確認された。水中での可視光照射により、光触媒効果による水分解による H_2 、及び O_2 発生が観察された。

成果の特徴や優位性

水素発生光触媒と酸素発生光触媒を接合した可視光域まで応答可能な二段階励起型の水分解系・光触媒システムは、粉末系での作製が困難とされ報告例が少ない。

これに対して本研究では半導体プロセスの気相成長法を用いて、禁制帯幅の異なる半導体のヘテロ接合構造を持つ半導体複合粒子による二段階励起型の水分解光触媒反応システムを実現した。

今後の展望・展開

還元反応を担う光触媒材料と酸化反応を担う光触媒材料とが接合した二段階励起型の反応システムは、水分解反応による H_2 獲得だけでなく、二酸化炭素(CO_2)の還元による工業的有用な反応生成物獲得技術としても期待できる。

大気中の CO_2 削減は世界的な課題となっており、 CO_2 を H_2O で還元することで資源化する光触媒反応システムが人工光合成の研究として注目されている。

図1. 鉄シリサイド半導体と窒化タンタルからなる複合粒子の模式図。

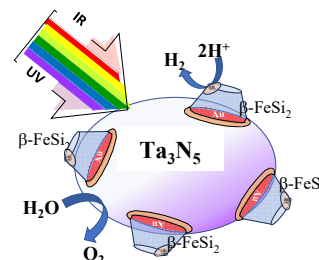


図2. 鉄シリサイド半導体と窒化タンタルからなる複合粒子のSEM像。

