

Strain effects induced by metal distribution on photocatalytic activity to water splitting

金, 潤永

<https://hdl.handle.net/2324/4060246>

出版情報 : Kyushu University, 2019, 博士 (工学) , 課程博士
バージョン :

権利関係 : Public access to the fulltext file is restricted for unavoidable reason (3)



氏 名	金 潤永			
論 文 名	Strain Effects induced by metal distribution on photocatalytic activity to water splitting (水の完全分解への光触媒活性に及ぼす金属分散により導入した歪効果)			
論文調査委員	主 査	九州大学	教授	石原達己
	副 査	九州大学	教授	岡田重人
	副 査	九州大学	教授	田中敬二

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

光触媒による水の分解反応は、太陽光エネルギーを直接化学エネルギーに変換可能な方法であり、水から水素を安価に得る方法として期待されている。現在までに、種々の酸化物やオキシ窒化物半導体などの検討が行われてきたが、エネルギー変換効率は依然として低く、高活性化が望まれている。本論文は従来のドーパントや助触媒による触媒の開発手法に対して、新規な設計手法として金属を分散して導入した歪みを用いて、格子欠陥や相変化を発生させ、光触媒活性の向上を試みたもので、主な成果は以下のとおりである。

(1) 従来から広く光触媒として検討されてきた TiO_2 におけるAuナノ粒子分散による応力歪効果について検討し、 TiO_2 はアナタース型とルチル型の結晶構造を有するが、Auを分散後、焼結すると低温相であるアナタース型結晶構造が安定化されることを示している。またAu/アナタース型 TiO_2 /ルチル型 TiO_2 というユニークな構造体が出現することを見出している。このようなユニークな構造中では、応力緩和の過程で Ti^{3+} が生成し、 TiO_2 のLUMO準位が高くなるとともに、禁制帯エネルギーが狭くなることを実験的、および量子計算で明らかにしている。このような電子構造の変化により水の光分解による水素と酸素の生成速度が向上することを示している。

(2) 同様な応力歪効果の検討を SrTiO_3 について行っている。助触媒としても機能するPtを新たに SrTiO_3 中に分散して、焼結を行ったところ、 SrTiO_3 は異なる結晶相を有さないので、Pt分散によりXRDピークはわずかに低角度側にシフトし、より大きな引っ張り応力を導入できることを明確にしている。Pt分散系では、Ptの分散により TiO_2 の場合と同様に水の光分散活性が向上することを示している。また単純なPtの担持系に比べても、水素生成速度が大きいことから、Pt/ SrTiO_3 との界面の影響ではなく、歪み効果が顕著に表れていることを示している。

(3) Ptの代わりにAuを分散した SrTiO_3 の光触媒活性に及ぼす歪効果についても検討している。AuはPtに比べると、水の光分解における助触媒効果が少なく、 SrTiO_3 との熱膨張係数の違いが大きいことから、Auの分散によるXRDピークのシフトがより顕著に観測され、大きな引っ張り応力を導入することが可能であることを示している。この結果、LUMOおよびHOMOの準位がともに高エネルギー側にシフトし、より高い電位まで電子を励起することが可能となり、顕著な水の光分解活性の向上が行える。これは従来、助触媒の触媒効果が反応活性に顕著に表れ

るという結果に対して、バルクへの格子歪の顕著な効果を示す結果として注目され、新しい光触媒の設計指針になることを示す結果である。

以上、要するに本論文は、応力歪効果が電荷分離効率に及ぼす影響および水分解における光触媒活性について検討したものであり、引っ張り応力の導入が、活性の向上に有用であることを示しており、触媒化学の分野で寄与するところが大きい。よって、本論文は博士（工学）の学位論文に値すると認められる。

最終試験

本論文に関して調査委員から、1) TiO_2 と SrTiO_3 に注目した理由、2) 現在のシステムの変換効率、3) 分散と置換の効果の違いとデータの再現性、4) Au の分散で引っ張り応力が最大となる濃度がある理由などについて種々の質問があったが、いずれも著者の説明により、理解が得られた。また、公聴会においても多数の出席者があり、多くの質問が寄せられたが、著者の説明により質問者の理解が得られた。

以上の結果により、著者は最終試験に合格したものと認める。