

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	異元素及びキャリアドーピングを基盤とした水分解光触媒の開発
Title(English)	
著者(和文)	西岡駿太
Author(English)	Shunta Nishioka
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11076号, 授与年月日:2019年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:前田 和彦,石谷 治,伊原 学,小寺 哲夫,沖本 洋一
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11076号, Conferred date:2019/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

## 論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第		号	学位申請者氏名	西岡 駿太	
論文審査 審査員		氏名		職名	氏名	職名
	主査	前田 和彦		准教授	沖本 洋一	准教授
	審査員	石谷 治		教授		
		伊原 学		教授		
小寺 哲夫			准教授			

## 論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「異元素及びキャリアドーピングを基盤とした水分解光触媒の開発」と題し、次の6章からなっている。

第1章「序論」では、太陽光を利用した水素製造の重要性とその問題点、解決案を述べ、本研究の意義や立ち位置、概要について述べている。

第2章「酸素欠陥形成がもたらす光触媒活性への影響」では、酸素欠陥を定量的に導入した  $\text{SrTiO}_3$  を用い、酸素欠陥形成と光触媒活性の相関関係を調査している。 $\text{SrTiO}_3$  前駆体熱処理時の酸素分圧を正確に制御し、熱処理終了時に急冷することにより、酸素欠陥濃度を高温平衡状態で凍結した試料を合成している。合成した試料を用いて、光触媒半反応活性を評価することで、酸素欠陥濃度の上昇に伴って活性が向上することを明らかにしている。酸素欠陥形成に伴う電子濃度変化に着目し、光駆動状態のキャリアの存在確率を示す、擬フェルミ準位を用いた解釈により、光触媒活性の向上を電子濃度変化によって説明できることを見出している。また、作製したキャリアドープ半導体材料を用いた過渡吸収分光測定や、光増感金属錯体と複合化して過渡発光測定を行うことにより、キャリアトラップ構造を含むバンド構造を明らかにしている。

第3章「 $\text{TiO}_2:\text{Ta}_x\text{N}$  を目的材料とした水熱合成法による結晶構造制御とマイクロ波加熱合成検討」では、Ta と N の2種の異元素をドープすることにより、キャリアドープと可視光吸収能を同時に実現した  $\text{TiO}_2(\text{TiO}_2:\text{Ta}_x\text{N})$  を用い、水熱合成法・マイクロ波合成法の2種類のソフトプロセス合成法を検討している。低温で起こる相転移により合成が困難であった、アナターズ型及びブルッカイト型  $\text{TiO}_2:\text{Ta}_x\text{N}$  を、水溶性チタン錯体を出発物質とした水熱合成法により、単相で合成することに成功している。また、可視光応答性酸素生成光触媒として知られている、ルチル型  $\text{TiO}_2:\text{Ta}_x\text{N}$  のマイクロ波合成条件を検討することにより、今まで明らかにならなかった合成過程やマイクロ波の影響を詳細に調査している。

第4章「 $\text{BaTiO}_3:\text{Rh}$  水熱合成における Ba 過剰添加の光触媒活性への影響」では、可視光応答性水素生成光触媒として知られている、Rh をドープした  $\text{BaTiO}_3$  を用い、水熱合成法を検討している。水熱処理過程や空気中加熱処理時に形成される Ba 欠陥が活性を低下させる主要因だと明らかにし、欠陥形成を抑制することで活性の向上に成功している。

第5章「可視光応答性半導体光触媒を用いた Z スキーム水分解反応系の構築」では、可視光応答性酸素生成光触媒及び水素生成光触媒を組み合わせた、2段階光励起型水分解光触媒システムの構築に取り組んでいる。酸素生成光触媒には、第3章で検討したマイクロ波合成  $\text{TiO}_2:\text{Ta}_x\text{N}$  を用い、水素生成光触媒には、第4章で検討した水熱合成法を応用することで合成した Rh ドープ  $\text{SrTiO}_3$  を用いた。それぞれの光触媒を用いて、助触媒の種類や担持方法を検討することで、半反応活性を大幅に向上することに成功している。さらに、これらの2種の光触媒を組み合わせることで、疑似太陽光照射下での完全水分解における太陽エネルギー変換効率の向上を達成している。

第6章「結論」では、本研究の成果を総括し、今後の展望について述べている。

以上を要約すると、本論文では、これまでほとんど検討されてこなかった酸素欠陥濃度と光触媒活性の定量的な相関を明らかにするとともに、その知見を基に可視光駆動型高活性光触媒の合成検討を行っている。さらに、これら可視光応答性光触媒を組み合わせた Z スキーム水分解反応系を構築し、太陽エネルギー変換効率の向上に成功している。以上の成果は、理学的に貢献することが大きく、よって本論文は、博士(理学)論文として十分に価値あるものと認められる。