

Zn ドープ Ga_2O_3 光触媒の XAFS による局所構造解析京都大学次世代開拓研究ユニット¹, 京都大学大学院工学研究科²,山口大学大学院理工学研究科³○寺村謙太郎¹・常岡秀雄²・大山順也²・松田雄太³・酒多喜久³・今村速夫³・田中庸裕²

Ga_2O_3 は水の完全分解反応に活性を示す光触媒として知られている。我々はこれまでに Ga_2O_3 に少量の金属をドープすると水の完全分解反応における水素及び酸素の生成速度が無ドープの Ga_2O_3 に比べて著しく向上することを見出した[1]。様々な金属に関して添加効果を調べたところ, Zn を加えたときが最も高い活性を示した。これまでに Zn ドープ Ga_2O_3 の X 線回折パターンにおいて酸化ガリウムの(111)面に帰属されるピークが Zn のドープ量が増加すると共に低角度側へとシフトする様子が観察されており, これは Zn 種が Ga_2O_3 中に拡散されていることを示唆している。しかし, Zn 種がどのような状態で酸化ガリウム内に拡散しているかは現在のところ全く分かっていない。本研究においては, Zn ドープ Ga_2O_3 の Zn 原子周辺の構造に関して, X 線吸収微細構造(XAFS)を用いた局所構造解析を行い, Zn 種の同定を行った。

XAFS 測定は PF の BL-7C, 9A, 12C (分光結晶 Si(111)) で行った。参照試料として Ga_2O_3 及び ZnGa_2O_4 を測定に用いた。Zn ドープ Ga_2O_3 光触媒は各種の Ga_2O_3 に前駆体として $\text{Zn}(\text{NO}_3)_2$ を含浸法にて担持し, 高温で焼成することによって得た。解析は REX2000 Ver. 2.5.9(Rigaku)を用いて行った。

図 1 は Zn ドープ Ga_2O_3 の Zn-K 殻吸収端 XANES スペクトルである。1.0 mol% Zn ドープ Ga_2O_3 の Zn-K 殻吸収端 XANES スペクトルは ZnGa_2O_4 の Zn-K 殻吸収端 XANES スペクトルとほぼ一致した。さらにフーリエ変換後の EXAFS スペクトルも Zn ドープ Ga_2O_3 のスペクトルは ZnGa_2O_4 のスペクトルと一致した。各担持量の Zn ドープ Ga_2O_3 の XANES スペクトル及びフーリエ変換後の EXAFS スペクトルも同様に ZnGa_2O_4 のそれぞれのスペクトルと一致した。これまでに XRD 及び Raman スペクトルからドープ量を 3 mol% 以上において表面上に ZnGa_2O_4 が形成されることを見出している。しかし, それ以下のドープ量においても Ga_2O_3 上に担持された Zn 種は高温での焼成によって Ga_2O_3 と反応し, ZnGa_2O_4 種が形成されると結論した。

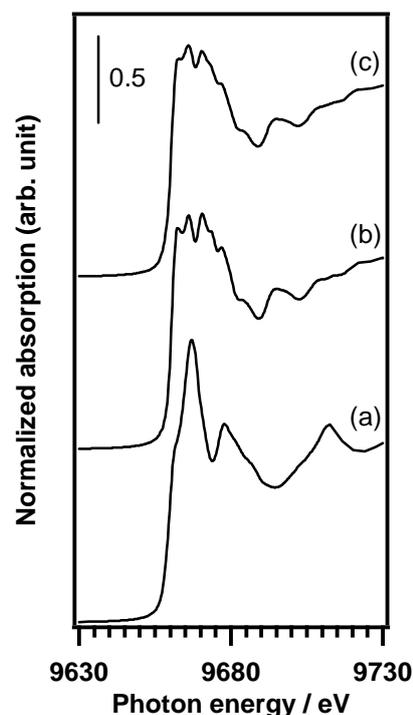


Fig. 1 XANES spectra at Zn K-edge of (a) ZnO, (b) ZnGa_2O_4 , (c) 1.0 mol% Zn-doped Ga_2O_3

[1] Sakata, Y.; Matsuda, Y.; Yanagida, T.; Hirata, K.; Imamura, H.; Teramura, K., *Catal. Lett.*, **2008**, *125*, 22-26.