

Zn ドープ  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  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<sup>1</sup>, 京都大学大学院工学研究科<sup>2</sup>,山口大学大学院理工学研究科<sup>3</sup>○寺村謙太郎<sup>1</sup>・常岡秀雄<sup>2</sup>・大山順也<sup>2</sup>・松田雄太<sup>3</sup>・酒多喜久<sup>3</sup>・今村速夫<sup>3</sup>・田中庸裕<sup>2</sup>

$\text{Ga}_2\text{O}_3$  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  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  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  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  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  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  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  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  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  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  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  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  及び  $\text{ZnGa}_2\text{O}_4$  を測定に用いた。Zn ドープ  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  光触媒は各種の  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  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  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  の Zn-K 殻吸収端 XANES スペクトルである。1.0 mol% Zn ドープ  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  の Zn-K 殻吸収端 XANES スペクトルは  $\text{ZnGa}_2\text{O}_4$  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  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  のスペクトルは  $\text{ZnGa}_2\text{O}_4$  のスペクトルと一致した。各担持量の Zn ドープ  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  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  $\text{ZnGa}_2\text{O}_4$  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  $\text{ZnGa}_2\text{O}_4$  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  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  上に担持された Zn 種は高温での焼成によって  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  と反応し,  $\text{ZnGa}_2\text{O}_4$  種が形成されると結論した。

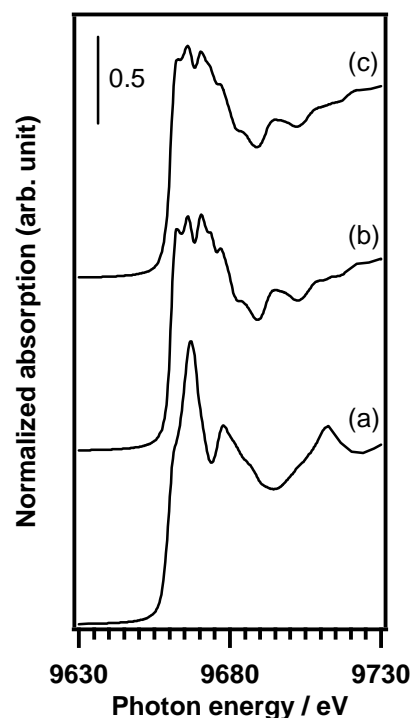


Fig. 1 XANES spectra at Zn K-edge of (a) ZnO, (b)  $\text{ZnGa}_2\text{O}_4$ , (c) 1.0 mol% Zn-doped  $\text{Ga}_2\text{O}_3$

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