

審査の結果の要旨

論文題目 Development of photocatalysts for efficient Z-scheme water splitting using visible light
(可視光による高効率Z-スキーム水分解のための光触媒開発)

氏名 マ ス ス カイン

本論文は、高効率な水分解光触媒システムの実現を目指して、長波長側の光まで利用できることと期待されるZスキーム型水分解反応に適した光触媒を合成し、表面修飾や反応条件がその光触媒活性に与える影響を解明し、かつ光触媒活性を向上させることを目的として行われた研究結果をまとめたものである。本論文は英語で書かれており全部で7つの章から構成されている。

第1章では、太陽エネルギーを化学エネルギーに変換する手段としての光触媒による水分解の原理、特徴について述べ、既存の水分解用光触媒を引用しながら、本研究の目的と意義、本論文の構成について記述している。さらに、酸窒化物光触媒試料の合成や修飾法、活性の評価に関する実験方法の概要と原理、及び活性評価の指針についてまとめられている。

第2章では、 ZrO_2 修飾TaON光触媒の調製方法と可視光照射下での水素生成活性が検討されている。 ZrO_2 前駆体の種類に応じて ZrO_2 修飾TaONの物性が大きく変化することや、オキシ硝酸ジルコニウムを前駆体に用いることで ZrO_2 が高分散に担持され窒化中の欠陥の生成が抑制されること、その結果として水素生成活性が向上することが構造や発光特性の分析を通じて詳細に記述されている。

第3章では、 WO_3 への異なる2種類の助触媒の共担持法と可視光照射下での酸素生成活性の相関について述べられている。 PtO が担持された WO_3 に RuO_2 などの金属酸化物を極微量担持することで酸素生成活性が向上することを報告している。担持された各助触媒の機能は光触媒反応と光電気化学反応の両面において議論され、 PtO が IO_3^- のIへの還元を、 RuO_2 が水の酸化を促進していると結論されている。

第4章では、 Ta_3N_5 光触媒による酸素生成活性の向上を目的に酸素生成助触媒の担持効果について述べられている。助触媒担持条件を詳細に検討することで、

光触媒活性の顕著な向上が達成されている。

第5章では出発材料をアルカリ金属塩により修飾することで酸素生成反応に高活性な Ta_3N_5 光触媒を合成できることや、その理由について述べられている。窒化過程の詳細な観察をもとに結晶性や粒子の形状を議論し、アルカリ金属 tantalum 酸塩の核生成の結果、結晶性が高く光触媒活性の優れた Ta_3N_5 光触媒が得られていることを結論している。

第6章では、第2章から第5章で開発した光触媒を組み合わせた Z スキーム型水分解光触媒反応システムの構築について検討している。水素生成光触媒として ZrO_2 で修飾された TaON や Rh がドーピングされた SrTiO_3 を、酸素生成光触媒として WO_3 や Ta_3N_5 、 Na 添加 Ta_3N_5 などを使用している。特に、 Rh ドーピング SrTiO_3 と Ta_3N_5 を組み合わせた反応系ではレドックス対非存在下での水分解反応を詳細に検討し、助触媒の担持順序や種類、溶液の pH などの反応条件が粒子間電子移動に重要な影響を及ぼすことを見出している。

第7章では、各章に記述された成果が総括されている。さらに本論文の成果に基づいて、助触媒の担持や表面修飾、水分解用 Z スキームシステム構築における今後の課題やそれを解決するための研究指針が提案されている。

以上、本論文は高効率な Z スキーム型光触媒水分解反応システムの実現を目指した研究の結果が述べられている。 TaON や Ta_3N_5 の合成方法と光触媒活性の改良、 WO_3 の表面修飾法の改良を通じて、従来よりも長波長側の光まで利用できる Z スキーム型水分解反応系について十分な成果を報告している。一連の研究成果は太陽エネルギー変換システムの構築という社会的要求の高い研究分野に重要な知見を与え、その進展を促すものであると認定され、触媒工学および化学システム工学の進展に大いに貢献するものであると判断される。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。