



酸化グラフェンをテンプレートとした酸化ガリウム 光触媒作製の試み

吉田 朋子

大阪公立大学 人工光合成研究センター

キーワード：Ga K-edge XANES 測定，酸化ガリウム光触媒

1. 背景と研究目的

酸化ガリウム (Ga_2O_3) は、Ag 助触媒を担持することで CO_2 還元反応を進行させる半導体光触媒である。しかし、光触媒活性が低く、さらなる高活性化が求められる。先行研究を基に、 Ga_2O_3 の結晶性を制御し、かつ微粒化及びシート化することができれば、光触媒活性の向上が期待できる。そこで、酸化グラフェン (GO) をテンプレートとして用いることで、微粒子が平面状に配列した構造を有する Ga_2O_3 光触媒の作製を試みた。本研究では、酸化ガリウム前駆体を酸化グラフェン上に固定化した試料について Ga K-edge EXAFS スペクトルを測定し解析することで、その局所構造を調べた。

2. 実験内容

シクロヘキサン超脱水に GO とガリウムブトキシドを加え攪拌後、遠心分離および洗浄を行い、453 K で6時間オートクレーブすることで Ga_2O_3 前駆体と還元型 GO (rGO) の複合体 ($\text{Ga}_2\text{O}_3/\text{rGO}$) を得た。得られた複合体の Ga K-edge XAFS スペクトルを、AichiSR BL5S1 にて透過法により測定した。

3. 結果および考察

Ga_2O_3 前駆体/rGO 複合体における Ga_2O_3 前駆体の構造を調べるため、参照試料と共に EXAFS 測定を行い、得られた EXAFS 振動に対してフーリエ変換し動径構造関数を得た (Fig.1)。Fig.1(c)における 1-2 Å 付近及び 2.5-3 Å 付近のピークは、EXAFS カーブフィッティングにより Ga-O または Ga-C 結合に帰属された。 Ga_2O_3 前駆体/rGO 複合体は $\text{Ga}(\text{O}i\text{Bu})_3/\text{GO}$ 複合体のオートクレーブ後に得られたものであるため、 $\text{Ga}(\text{O}i\text{Bu})_3$ の局所構造が残っている可能性があると考え、ジガリウムアルコキシド二量体の分子モデル[1]と比較した。ジガリウムアルコキシド二量体の第一配位圏に存在する Ga-O 結合の結合距離は 1.95 Å 又は 2.02 Å、Ga-C 結合の結合距離は 1.96 Å、第二配位圏に存在する Ga-C 結合の結合距離は 3.05 Å である。この結果を Ga_2O_3 前駆体/rGO 複合体の EXAFS の測定結果と比較すると、 Ga_2O_3 前駆体/rGO 複合体の第一配位圏に存在する Ga-O 結合及び Ga-C 結合の結合距離はジガリウムアルコキシド二量体の第一配位圏に存在する Ga-O 結合及び Ga-C 結合と同程度であり、 $\text{Ga}(\text{O}i\text{Bu})_3$ の局所構造を保持していると考えられる。また、 Ga_2O_3 前駆体/rGO 複合体の第二配位圏に存在する Ga-C 結合 (3.12 Å) の方がジガリウムアルコキシドの第二配位圏に存在する Ga-C 結合よりも長いことから、 Ga_2O_3 前駆体/rGO 複合体の第二配位圏の炭素は rGO を構成する炭素と考えられる。焼成前の Ga_2O_3 前駆体/rGO では、Ga-(O)-Ga 結合が見られないことから、Ga 原子は高分散されていることが分かった。

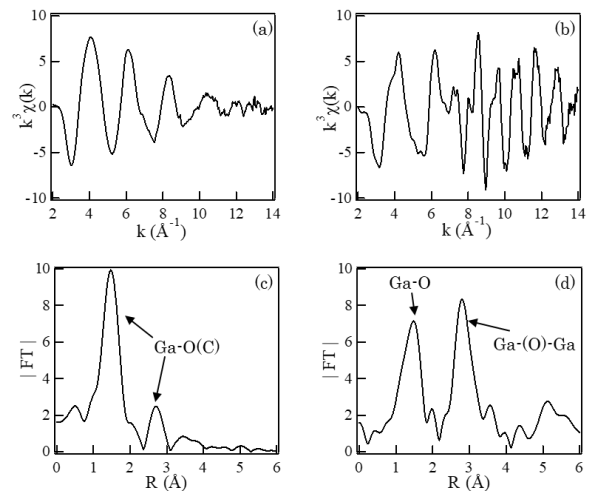


Fig.1 (a) Ga_2O_3 前駆体/rGO 複合体 Ga K-edge EXAFS 振動, (b) $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ の Ga K-edge EXAFS 振動, (c) Ga_2O_3 前駆体/rGO 複合体 Ga K-edge EXAFS 振動をフーリエ変換して得た動径構造関数, (d) $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ の Ga K-edge EXAFS 振動をフーリエ変換して得た動径構造関数

4. 参考文献

1) P. Horeglad, *et al. Polym. Chem.*, 7, 2022—2036 (2016).