

 <b>MLF Experimental Report</b>	提出日(Date of Report) 2021年11月19日
課題番号(Project No.) 2018PM0015 実験課題名(Title of experiment) 可視光応答型水分解光触媒の開発 実験責任者名(Name of principal investigator) 中島光一 所属(Affiliation) 茨城大学	装置責任者(Name of responsible person) 石垣徹 装置名(Name of Instrument : BL No.) 茨城県材料構造解析装置 (iMATERIA) : BL20 実施日(Date of Experiment) 2018年12月10日～2019年2月23日

実験目的、試料、実験方法、利用の結果得られた主なデータ、考察、及び結論を記述して下さい。

実験結果などの内容をわかりやすくするため、適宜図表添付して下さい。

Please report experimental aim, samples, experimental method, results, discussion and conclusions. Please add figures and tables for better explanation.

1. 実験目的(Objectives of experiment)
<p>本研究の目的は、可視光応答型水分解光触媒を開発するために材料設計を行い、中性子回折測定を行って結晶構造解析を行うことである。対象はペロブスカイト型構造を有するチタン酸ストロンチウム (<math>\text{SrTiO}_3</math>) の光触媒である。また、比較対象のためにペロブスカイト型の結晶構造を有するチタン酸バリウム (<math>\text{BaTiO}_3</math>) の結晶構造を実施する。なお、大型放射光施設 (SPring-8) で実施した X 線結晶構造解析の結果とあわせて考察し、可視光応答型水分解光触媒の材料設計につなげる。</p>
2. 試料及び実験方法
Sample(s), chemical compositions and experimental procedure
2.1 試料 (sample(s))
<ul style="list-style-type: none"> <li>・チタン酸ストロンチウム (<math>\text{SrTiO}_3</math>) 粉末</li> <li>・チタン酸バリウム (<math>\text{BaTiO}_3</math>) 粉末</li> </ul>
2.2 実験方法 (Experimental procedure)
<p>ソルボサーマル法を用いてペロブスカイト型構造を有する <math>\text{SrTiO}_3</math> および <math>\text{BaTiO}_3</math> を合成した。得られた生成物をサンプル管に入れ、中性子回折測定を行った。その後、リートベルト解析を行い、結晶構造解析を実施した。</p>

### 3. 実験結果及び考察（実験がうまくいかなかった場合、その理由を記述してください。）

Experimental results and discussion. If you failed to conduct experiment as planned, please describe reasons.

本研究の目的は、ペロブスカイト型酸化物の中性子構造解析を実施し、可視光応答型水分解光触媒粒子を開発することである。中性子回折の最大の優位点は、軽元素の検出に強みを持っている点であり、本研究の対象であるペロブスカイト型酸化物中の酸素に関する情報を与えてくれることである。すなわち、X線回折で検出すること難しい酸素を、中性子回折では検出可能であり、酸素欠陥に関する情報を得ることが可能である。

本研究でソルボサーマル合成した  $\text{SrTiO}_3$  は、粒径が 50nm 以下で、形状は結晶面が露出したナノクリスタルである。ナノ粒子であるため、表面積が大きく、光触媒としての活性点が多いことが予想される。また、 $\text{BaTiO}_3$  もナノレベルの大きさを有したナノクリスタルである。 $\text{SrTiO}_3$  および  $\text{BaTiO}_3$  の双方とも粉末であるため、BL20 の iMATERIA を用いて中性子回折測定を行った。

中性子回折測定で得られたデータをリートベルト解析し、各元素の原子位置を特定し、結晶構造の視点から物性発現に起因する因子についての知見の取得を目指した。その結果、 $\text{SrTiO}_3$  の空間群は  $\text{Pm-}3\text{m}$  で、 $\text{BaTiO}_3$  の空間群は  $\text{P}4\text{mm}$  でそれぞれの格子定数を精密に算出することができた。 $\text{SrTiO}_3$  に関して、大型放射光施設（SPring-8）で X 線回折測定を実施しており、中性子回折測定で得られた結果と照らし合わせて多角的に考察をした結果、互いの知見を反映するデータが得られていることがわかった。

今後の検討項目として、 $\text{SrTiO}_3$  や  $\text{BaTiO}_3$  の粒子の大きさや形状が変化した際に結晶構造が変化するか検討する必要がある。また、中性子回折の最大の特徴である軽元素の検出（本研究では酸素の検出）に力点を置き、検討をしていく予定である。

### 4. 結論(Conclusions)

この度ははじめての粉末中性子回折測定を実施したが、ペロブスカイト型酸化物（ $\text{SrTiO}_3$ 、 $\text{BaTiO}_3$ ）の結晶構造解析に大変有益であることがわかった。とくにリートベルト解析によって精密な格子定数を与えられる点が本研究に推進に大いに役立った。今回の実験では、初期検討という意味合いが強かったが、来年度以降も課題申請を行い、採択された場合、継続して中性子回折に関する検討を実施する予定である。