

Untersuchungen zur photokatalytischen Wasserspaltung an La-dotierten NaTaO₃ Partikeln

Irina Ivanova*, Tarek Kandiel und Detlef Bahnemann

Institut für Technische Chemie, Callinstr. 5, 30167 Hannover, Deutschland

*Laboratorium für Nano- und Quantenengineering, Schneiderberg 39, 30167 Hannover, Deutschland

Die photoinduzierte Spaltung von Wasser bietet die Möglichkeit, mit Hilfe von Sonnenlicht direkt den Brennstoff Wasserstoff zu erzeugen. Dies stellt einen eleganten Weg dar, regenerative Energie zu erzeugen, zu speichern und transportabel zu machen. Die photokatalytische Wasserspaltung erfolgt in drei wichtigen Schritten (siehe Abb. 1). Im ersten Schritt absorbiert der Halbleiter Licht mit einer Energie, die gleich oder größer als die Energie der Bandlücke des halbleitenden Photokatalysators ist. Dadurch werden Ladungsträger (Elektronen und Löcher) erzeugt, die im zweiten Schritt an die Oberfläche des Halbleiterteilchens wandern. Im dritten Schritt können die gebildeten Ladungsträger an der Grenzfläche zwischen den Halbleiterteilchen und der umgehenden wässrigen Phase Redoxreaktionen eingehen, wodurch aus Wasser molekularer H₂ und O₂ gebildet wird.

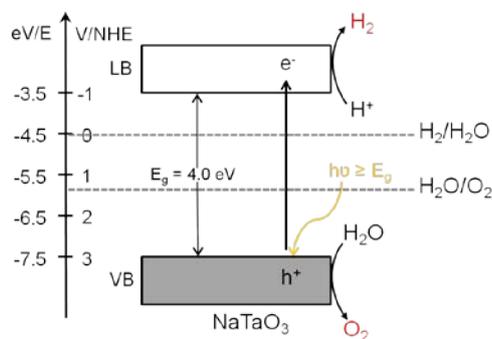


Abb. 1: Schematische Darstellung der grundlegenden Prinzipien der photokatalytischen Wasserspaltung an NaTaO₃.

Um Wasser in die Elemente zu spalten, ist es zwingend erforderlich, dass das Potential der Elektronen im Leitungsband negativer als das Reduktionspotential der Protonen zu molekularem H₂ (0 V vs. NHE bei pH 0) und das Potential der Löcher im Valenzband positiver als das Oxidationspotential von Wasser zu molekularem O₂ (+1,23 V vs. NHE bei pH 0) ist.

Die photokatalytische Wasserspaltung wurde an La-dotiertem Natriumtantalat untersucht. Die elektronenmikroskopischen (REM) Aufnahmen zeigen, dass eine La-Dotierung zu einer Partikelgrößenverkleinerung führt (siehe Abb. 2).

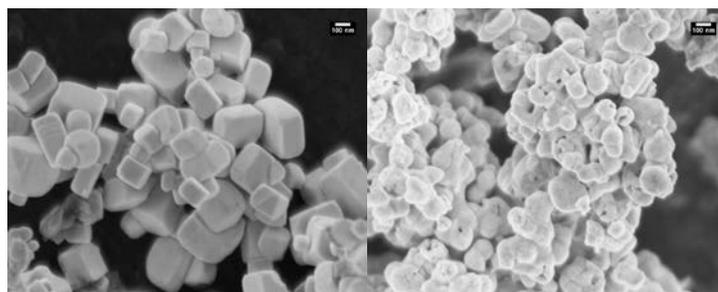


Abb. 2: REM-Aufnahmen von reinem (links) und La-dotiertem NaTaO₃ (rechts).

Die Produktion von H₂ und O₂ wird in wässrigen Halbleiter-Suspensionen untersucht. Die photokatalytischen Testreaktionen werden in einem Quarzglasreaktor unter kontinuierlichem Argon-Fluss als Trägergas durchgeführt (Abb. 3). Die während der photokatalytischen Reaktion entstandenen Gase werden mittels Quadrupol-Massenspektrometer detektiert und analysiert. Als Bestrahlungseinheit wird eine Xe-Lampe verwendet.

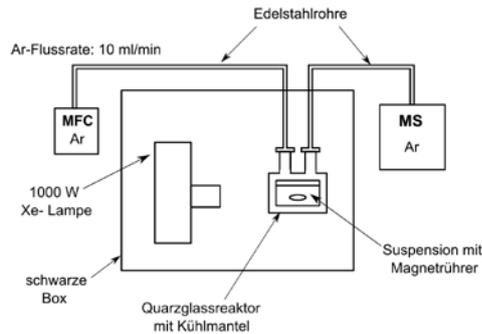


Abb. 3: Experimenteller Aufbau für die Durchführung von photokatalytischen Testreaktionen.

Die Aktivität zur Wasserspaltung kann durch Aufbringen von Cokatalysatoren (z.B. Pt, NiO) deutlich gesteigert bzw. überhaupt erst ermöglicht werden. Abbildung 4 illustriert den Einfluss verschiedener Cokatalysatoren auf die photokatalytische Bildung von H_2 an La-dotiertem $NaTaO_3$ in reinem Wasser. Dabei wird ersichtlich, dass durch den Einsatz von RuO_2 sowie von CuO die höchsten Quantenausbeuten zur H_2 Produktion erzielt werden. Bei keinem der in reinem Wasser durchgeführten photokatalytischen Tests wurde O_2 detektiert. Dies lässt sich entweder auf eine hohe Löslichkeit des gebildeten Sauerstoffs in der wässrigen Suspension oder auf die Bildung von Peroxid-Spezies zurückführen.

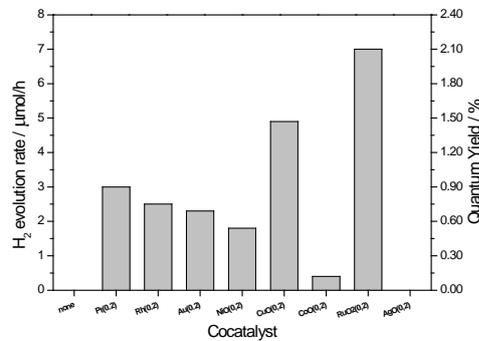


Abb. 4: Effekt verschiedener Cokatalysatoren auf die photokatalytische Wasserstoffherzeugung an La-dotiertem $NaTaO_3$ (0,87 wt%La) in reinem Wasser. Katalysatorkonzentration: 1 g/L, 10 Vol % alkoholische Lösung und 0.2 wt% Pt als Cokatalysator in einem Reaktorvolumen von 50 ml. Bestrahlung erfolgt mit einer 1000 W Xe-Lampe.

Die Abbildung 5 zeigt den Einfluss der Art des als Elektronendonator eingesetzten Alkohols auf die photokatalytische Aktivität zur H_2 -Produktion. Dabei wird ersichtlich, dass durch die Verwendung wässriger alkoholischer Lösungen die photokatalytische Aktivität der H_2 -Produktion von La-dotiertem $NaTaO_3$ erheblich erhöht werden kann. Methanol und 2-Propanol weisen die höchsten photokatalytischen Aktivitäten zur H_2 -Produktion auf, während der Zusatz von Butanol die geringsten Aktivitäten zeigt.

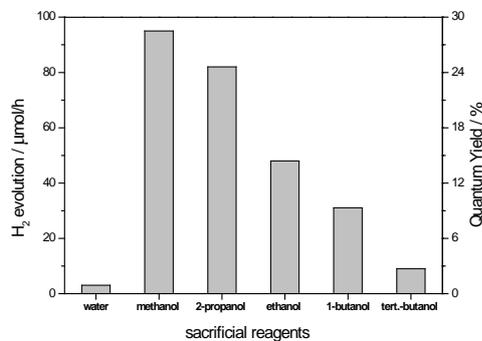


Abb. 5: Photokatalytische Wasserstoffherzeugung an La-dotiertem $NaTaO_3$ (0,87 wt%La) in reinem Wasser und in verschiedenen alkoholischen Lösungen. Katalysatorkonzentration: 1 g/L, 10 Vol % alkoholische Lösung und 0.2 wt% Pt als Cokatalysator in einem Reaktorvolumen von 50 ml. Bestrahlung erfolgt mit einer 1000 W Xe-Lampe.