

Cu 表面上の有機レイヤー成長に伴う CO₂還元性能向上のメカニズム

(広大理¹・広大院先進理工²)○磯部 淳貴¹・坂本 歩夢²・久保 和幸²・水田 勉²・久米 晶子²

Electrochemical CO₂ reduction using Cu can produce C₂₊ products such as ethylene or ethanol, however, there are still challenges in selectivity and energy efficiency. We recently reported organic modification of electrodeposited Cu₂O via click chemistry, which resulted in improvement in C₂₊ products selectivity. Here we report further electrochemical analysis of modified electrode, revealing that proton transport and mobility of CO intermediate are facilitated by the organic layer on Cu, thereby improving the selectivity of the C₂₊ product. Long-term deterioration of activity was also monitored, and the effect of the organic film on the copper atom reconstruction will be also discussed.

Keywords: CO₂ reduction, Cuprous oxide, Organic modification, Proton transport, Durability

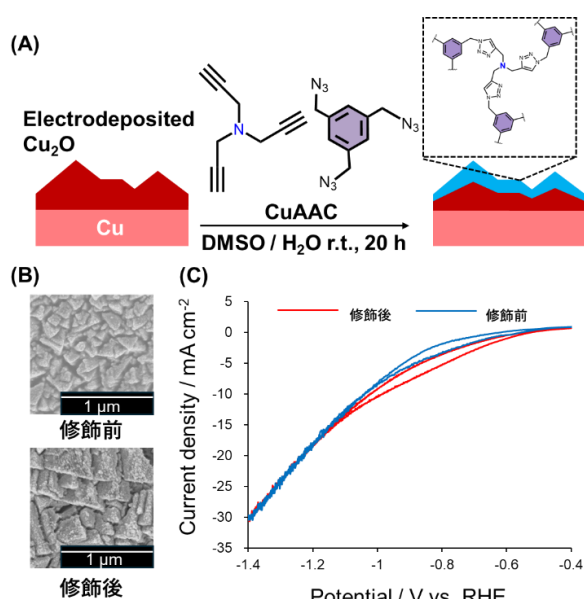


Figure (a) Modification procedure on Cu₂O. (b) SEM images of Cu surface after CO₂RR (18 h) at -1.4V vs. RHE. (c) Cyclic Voltammograms of Cu₂O electrodes in CO₂-saturated 0.1 M KHCO₃.

は、膜内の三級アミンがCu表面へのプロトン輸送を活性化し、また中間体であるCOの吸着が弱く、表面銅原子の触媒回転数が高いことを示唆しており、より負側の電位でC₂₊生成物の選択性が向上したことを説明する。また修飾による性能向上は約7時間持続しており、CO₂還元の継続に伴う銅粒子再構成と有機膜の影響についても報告する。(Fig. b)

Cu 電極触媒は CO₂ をエチレンやエタノール等の C₂₊化合物に還元できるが、選択性や過電圧に課題がある。これまで我々は銅基板に2次元状に電析したCu₂O結晶の表面でクリック反応を用いて有機膜を成長させると (Fig. a) 水素発生抑制および C₂₊化合物の生成が増加することを報告してきた。¹本研究では有機膜の CO₂還元における役割について、プロトン輸送および中間体の挙動を電気化学的に解析することで検討した。有機膜を修飾すると、CO₂下での LSV では -0.5 から -1V の領域で電流量が増大した (Fig. c)。この領域では H₂ および CO が発生しており、それらの生成量は有機膜修飾によって共に増大した。このこと

1. 坂本 歩夢 他、日本化学会第 102 春季年会(2022) A202-3am-09