

# CO<sub>2</sub>還元による C<sub>2</sub>,C<sub>3</sub> 化合物合成のための表面構造規制光触媒の創成

## Development of surface structure-controlled CO<sub>2</sub> reduction

### photocatalysts for the synthesis of C<sub>2</sub>,C<sub>3</sub> compounds

山口大学院創成科学<sup>1</sup>, <sup>○(M1)</sup>増原 悠人<sup>1</sup>, 本多 謙介<sup>1</sup>

Grad. Sch. Sci. Technol. Innov.<sup>1</sup>, Yamaguchi Univ., <sup>○</sup>Yuto Masuhara, Kensuke Honda

E-mail: khonda@yamaguchi-u.ac.jp

#### 緒言

地球温暖化やエネルギー問題を解決する技術として、光エネルギーを使用して二酸化炭素を有用物質へと変換するCO<sub>2</sub>還元光触媒が注目されている。しかし、CO<sub>2</sub>の還元電位はH<sub>2</sub>生成反応の標準電位より負電位側であり、CO<sub>2</sub>を水溶液中で還元することは困難なため、現状の光触媒反応系において、CO<sub>2</sub>を直接C<sub>2</sub>,C<sub>3</sub>化合物へ変換することは不可能であり、標準電位を下げる助触媒を必要とする。先行研究において、我々はN-doped a-SiC電極に対し、NH<sub>3</sub>プラズマ処理を行うことで、C<sub>2</sub>化合物(シュウ酸および酢酸)を生成可能なCO<sub>2</sub>還元光触媒の作製に成功した。しかし、生成物は複数となることから、官能基の役割の解明や生成物の単一化には至らなかった。本研究では、単一の表面官能基が存在する表面を作製し、その表面を用いて生成物を検証することで、表面官能基の生成物への影響を調べ、表面構造の役割と反応機構の解明により生成物の単一化することを目的とした。

#### 実験

N-doped a-SiC 薄膜は、高周波プラズマ化学気相成長装置(SAMCO Co., Ltd. Model BPD-1)を用いて導電性 Si 基板上に成膜を行った。作製した N-doped a-SiC 電極に対して、水素(H<sub>2</sub>)プラズマおよびアンモニア(NH<sub>3</sub>)プラズマ処理による表面処理を行った。光触媒反応によるCO<sub>2</sub>還元活性評価においては、CO<sub>2</sub>の溶存した水溶液中でサンプルに365nmの紫外光を照射して、CO<sub>2</sub>を光還元し、処理溶液と溶液の蒸気をHPLC、およびガスクロマトグラフィー(GC)により分析した。

#### 結果及び考察

水素終端表面では、CO<sub>2</sub>光還元においてギ酸が主生成物であったが、窒素終端化することで、シュウ酸、および酢酸が水溶液中で生成可能となった(Fig.1)。シュウ酸を同じ窒素終端表面で光還元した場合酢酸が生成しないことから、酢酸生成は逐次還元ではない。また、窒素終端表面においては、メタンが生成することが判明した (Fig.2)ことから、表面にアミノ基を導入することで、CO<sub>2</sub>をメチル基まで還元できており、生成するメチルラジカルがCO<sub>2</sub>・<sup>-</sup>と反応して酢酸が生成しているものと推測される。現状では、単一生成物化および官能基の役割の特定には至らなかったため、これらの明確化を図る予定である。

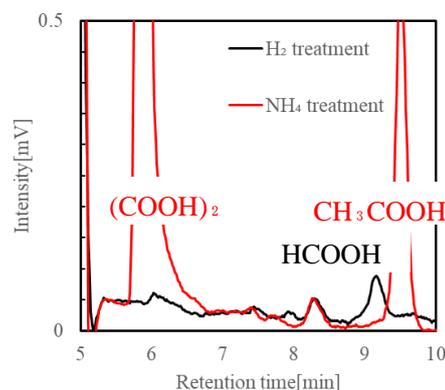


Fig.1. HPLC chromatograms of water treated by CO<sub>2</sub> reduction photocatalysts.

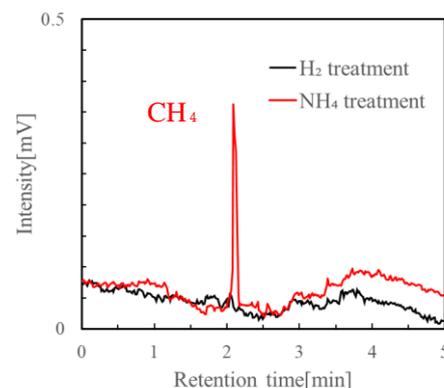


Fig.2. Gas chromatograms of gas components after photocatalytic treatment of CO<sub>2</sub> reduction.