

課題番号 : F-14-HK-0059
利用形態 : 機器利用
利用課題名(日本語) : プラズモニック光電気化学触媒を用いた窒素の固定化
Program Title (English) : Nitrogen fixation using plasmonic photoelectrochemical catalyst
利用者名(日本語) : 押切 友也
Username (English) : T. Oshikiri
所属名(日本語) : 北海道大学電子科学研究所
Affiliation (English) : RIES-Hokkaido University

1. 概要(Summary)

近年、アンモニアは燃料電池の水素担体、すなわち化学エネルギーとして大きな注目を集めている。既存のハーバー・ボッシュ法によるアンモニア合成は超高温・高圧反応であり膨大なエネルギーを消費するため、低環境負荷の代替プロセスの開発が求められている。本研究では、チタン酸ストロンチウム (SrTiO_3) を半導体光触媒として用い、 SrTiO_3 と金ナノ粒子 (Au-NPs) 及びルテニウム (Ru) からなる電極の構築とそれを用いて窒素の光固定によるアンモニアの合成に成功した。

2. 実験(Experimental)

・利用した主な装置

ヘリコンスパッタリング装置、電子ビーム蒸着装置

・実験方法

単結晶 SrTiO_3 基板 (0.05 wt% Nb-doped) 上にヘリコンスパッタリング装置により 2, 3, 4 nm の金を成膜後、窒素雰囲気下で加熱することにより基板上に Au-NPs 構造を作製した。次いで、Au-NPs 成膜面の背面に電子ビーム蒸着法を用いて助触媒として Ru を成膜し、Au-NPs/ SrTiO_3 /Ru 電極を作製した。作製した電極をアノードとカソードを分断するように反応セル中に設置した。Au-NPs が接する側がアノード側、Ru が接する側がカソード側である。アノード側の反応槽には 0.1 mol/dm^3 水酸化ナトリウム水/エタノール溶液 (EtOH:10 vol%) を充填し、カソード側の反応槽には水蒸気飽和窒素 (25°C , 0.1 MPa) を充填後、 0.01 mol/dm^3 塩酸水溶液 $15 \mu\text{L}$ を注入し、アノード側から光を照射して光電気化学反応を行った。

3. 結果と考察(Results and Discussion)

作製した、金ナノ粒の粒径が異なる Au-NPs/ SrTiO_3 /Ru 電極を用い、任意の波長を透過する光学フィルターを用いて窒素雰囲気下で光を照射し、アン

モニア生成能の波長依存性について検討した(Fig. 1)。アンモニア生成量の各照射波長における作用スペクトルは、全ての電極で Au-NPs 構造由来のプラズモン共鳴スペクトルと良い一致を示した。これらのことから、プラズモン誘起による電荷分離を介した可視光照射による光電気化学反応的アンモニアの合成に成功したことが示された。さらに、金ナノ粒子の粒径増大に伴い、プラズモン共鳴スペクトル、アンモニア生成の作用スペクトル共に長波長シフトを示したことから、光アンテナである金属ナノ構造のサイズによって、光触媒反応の応答波長を任意に制御することに成功した。

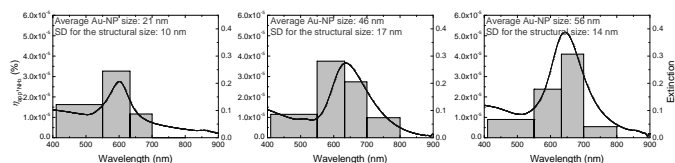


Fig. 1. Histograms of the action spectra of the apparent quantum efficiency of NH_3 formation for several wavelength regions and LSPR bands of Nb- SrTiO_3 loaded with Ru and Au-NPs prepared by annealing Au thin films with thicknesses of 2 nm (a), 3 nm (b) and 4 nm (c). Inserted texts represent average Au-NP size and standard deviation (SD) for the structures.

4. その他・特記事項(Others)

・科学研究費補助金 (スタート支援) 「プラズモニック光電気化学触媒を用いた窒素の固定化」(代表)

5. 論文・学会発表(Publication/Presentation)

なし。

6. 関連特許(Patent)

特許出願済