

白金触媒上における二酸化炭素の分子軌道法を用いた研究

○北川貴大、内田 希、白仁田沙代子、梅田 実

長岡技術科学大学（〒940-2188 新潟県長岡市上富岡町1603-1）

【緒言】

現在世界規模で二酸化炭素による地球温暖化が問題となっている。より温和な条件で二酸化炭素を有用物質へと改質する方法として、電解還元法が研究された。その代表的な研究として、平板電極による還元、微細な親水部と撥水部の反応層を用いた還元が報告されている。しかしながらこれらは、一度水溶液に溶解させた二酸化炭素を還元させるため過電圧が大きいという問題があった。

本校の梅田らにより、条件によっては水素/二酸化炭素電量電池は十分に発電可能であり、そして二酸化炭素還元反応の中間体もしくは反応物の一つがメタノールであることが示唆された。しかしながら、これらの反応の詳細は明らかになっていない。

本研究では半経験的分子軌道 **PM6** 法により、白金触媒上における二酸化炭素からメタノールへの還元反応のプロセスを解析することを最終的な目標とし、今回は二酸化炭素の白金表面への吸着構造及び、メタノールへの還元反応のできるだけ多くの存在しうるであろう中間体の構造を見つけ出し、可能なプロセス探し出すことを目的とした。

【方法】

計算手法は **PM6** (MOPAC2012) を用いる。白金の構造は基本的な(111),(100),(110)の 3 つの面を考え、それぞれ二層とし、白金原子は固定した。

また白金表面は清浄な面、水素が吸着した面、水が吸着した面を考えた。吸着物質として、単体の二酸化炭素、水和した二酸化炭素を用いた。

【結果】

清浄な表面には二酸化炭素は吸着しないが、水素や水と一緒にいる場合、白金表面に共吸着した。二酸化炭素からメタノールへの還元反応において、中間体の熱力学的安定性からみれば、二酸化炭素の白金表面への吸着から一酸化炭素の生成まではエネルギー的に下り坂で、それ以降のメタノールまでは上り坂となった。

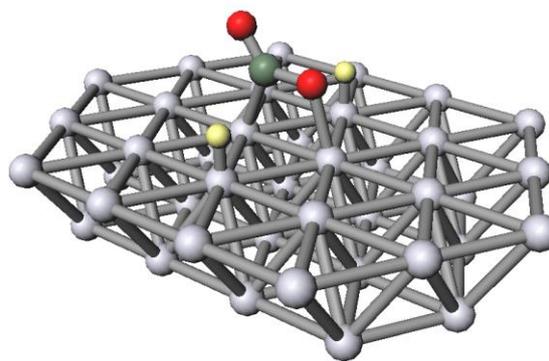


図. 二酸化炭素と水素の共吸着