

平面型 N₄ 配位子を有する卑金属単核錯体による高効率電気触媒化学的 CO₂還元反応

(新潟大院自然) ○成田 知帆・坪ノ内 優太・星野 哲久・Debraj Chandra・Zaki Zahran・八木 政行

Efficient electrocatalytic CO₂ reduction by base metal complexes with in-plane N₄ ligands. (Grad. School of Sci. and Tech., Niigata Univ.) ○Chiho Narita, Yuta Tsubonouchi, Norihisa Hoshino, Debraj Chandra, Zaki Zahran, Masayuki Yagi

Electrocatalytic CO₂ reduction is a key technology to utilize CO₂ as a carbon feedstock for production of useful fuels and chemicals. We previously reported that a mononuclear iron complex with an in-planar tetradentate ligand works efficiently and selectively for the electrocatalytic CO₂-to-CO conversion in homogeneous and heterogeneous systems.¹⁾ In this study, we synthesized a mononuclear nickel complex with the in-planar tetradentate ligand and investigated the electrocatalytic activity for CO₂ reduction.

Keywords : Carbon dioxide reduction catalysts; Molecular catalysts; Base metal complexes; Mononuclear complexes

昨今のエネルギー・環境問題を背景に、地球温暖化の主要因である CO₂を還元し、有用な炭素資源を生産する CO₂還元触媒の開発に期待が集まっている。当研究室は最近、平面型四座配位子 (H₂bpc = 4,5-dichloro-1,2-bis-(pyridine-2-carboximido)benzene) を有する鉄単核錯体 Fe(bpc)が優れた電気化学的な CO₂還元触媒として働くことを見出した¹⁾。さらに、Fe(bpc)修飾電極が水溶液中で CO₂を CO へと高選択的に変換することを実証した¹⁾。本研究では、中心金属をニッケルに置換した Ni(bpc)錯体を合成し、電気触媒化学的な CO₂還元触媒活性を評価した。

Ni(bpc)を担持した窒素ドーピンググラフェン (NG) 粉末 (Ni(bpc)/NG) をナフィオン溶液に分散させて、グラッシーカーボン (GC) 基板上に塗布することにより、錯体修飾電極 (Ni(bpc)/NG@GC) を作製した。水溶液中、CO₂下における Ni(bpc)/NG@GC のサイクリックボルタモグラム (CV) は、-1.2 V vs SCE 付近から CO₂還元由来する触媒電流の立ち上がりが観測され、-1.45 V における触媒電流密度は -5.50 mA cm⁻² に到達した (Fig 1)。この触媒電流密度は、Ar 下における値 (-3.32 mA cm⁻²) の 1.7 倍であり (Fig 1)、Ni(bpc)/NG@GC の CO₂還元触媒活性が示された。-1.25 V における Ni(bpc)/NG@GC の定電位電解実験では CO と H₂が検出され、ファラデー効率はそれぞれ 61.6%と 24.3%と見積もられた。

1) Eman A. Mohamed, Zaki N. Zahran, Yuta Tsubonouchi, Kenji Saito, Tatsuto Yui, and Masayuki Yagi, *ACS Appl. Energy Mater.* **2020**, 3, 4114–4120.

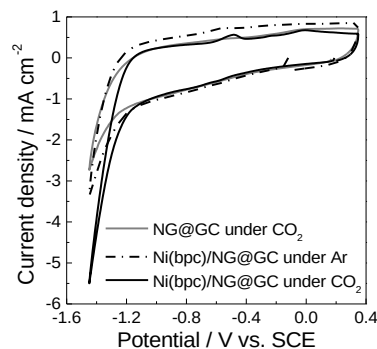


Fig 1. CVs of NG@GC (gray) and Ni(bpc)/NG@GC (black) in 0.5 M NaHCO₃ solution under Ar (dashed line) and under CO₂ (solid lines).