

未来社会創造事業 探索加速型
「地球規模課題である低炭素社会の実現」領域
年次報告書(探索研究期間)

令和3年度 研究開発年次報告書

令和3年度採択研究開発代表者

[研究開発代表者名：村越 敬]

[北海道大学大学院理学研究院化学部門・教授]

[研究開発課題名：階層構造規制型触媒電極による
革新的水電解プロセスの創出]

実施期間：令和3年10月1日～令和4年3月31日

§1. 研究開発実施体制

(1)「電気化学」グループ(北海道大学)

① 研究開発代表者:村越 敬 (北海道大学大学院理学研究院化学部門・教授)

② 研究項目

- ・階層構造電極触媒材料の探索と水素・酸素発生触媒電極能評価
- ・階層構造電極の反応中間体振動分光計測
- ・水素・酸素発生反応の速度論解析(量子化学グループと共同)

(2)「量子化学」グループ(北海道大学)

① 主たる共同研究者:武次徹也 (北海道大学大学院理学研究院化学部門・教授)

② 研究項目

- ・水電解反応における電極表面での反応中間体の量子化学計算
- ・機械学習による反応経路探索の検討(電気化学グループと共同)

§2. 研究開発成果の概要

革新的な水電解プロセス創出のために水素発生反応(HER)、酸素発生反応(OER)それぞれに特徴的な活性を有するナノ・マイクロ構造電極を作製した。まずそれらの電極触媒反応活性を電気化学計測パラメータを規定した統一的な電気化学計測によって明らかとした。さらに反応過程における効率と反応選択性について、電気化学質量分析法、ならびにラマン散乱振動分光法によってその特徴を明確化した。その結果、HER 活性電極においては電極構造導入によって特定の反応素過程が選択的に加速され、最適な触媒導入によって従来の貴金属触媒電極を上回る活性が発現することが示された。また、OER 活性電極においては、従来活性が低下する pH 領域において構造電極特有の活性向上が達成され、その際に非常に特徴的な分子プロセスが発現することが明らかとなった。これら特徴ある電極触媒の反応過程について、量子化学計算と反応速度論解析によって理論的に解析した。量子化学計算によって反応中間体の構造と熱力学的エネルギーの詳細が明らかとなり、反応を律速する中間体が予測された。また反応速度論解析では、各素過程の反応速度が定量的に明らかとなった。これらの HER/OER 反応機構の特徴と触媒電極の材料組成、ナノ・マイクロ構造依存性の相間を検証し、新たな電極設計にフィードバックするデータベースの構築を開始した。

【代表的な原著論文情報】

- (1) K. Suzuki, X. Li, T. Toda, F. Nagasawa, K. Murakoshi, "Plasmon-Accelerated Water Oxidation at Ni-Modified Au Nanodimers on TiO₂ Single Crystals", *ACS Energy Lett.* 6, 4374-4382 (2021); DOI: 10.1021/acseenergylett.1c02163.
- (2) N. Oyamada, H. Minamimoto, K. Murakoshi, "Room-Temperature Molecular Manipulation via Plasmonic Trapping at Electrified Interfaces", *J. Am. Chem. Soc.* 144, 2755 (2022); DOI: 10.1021/jacs.1c12213.
- (3) S. Oikawa, H. Minamimoto, K. Murakoshi, "Low-Temperature Annealing of Plasmonic Metal Arrays for Improved Light Confinement", *J. Phys. Chem. C* 126, 1188 (2022); Invited paper for the special issue "Marie-Paule Pileni Festschrift"; DOI: 10.1021/acs.jpcc.1c08931.