

令和 5 年 6 月 8 日現在

機関番号：34419

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05674

研究課題名(和文) 金ナノ粒子-TiO₂-SnO₂三元系プラズモニック光触媒による過酸化水素合成研究課題名(英文) Hydrogen peroxide synthesis by Au nanoparticle-TiO₂-SnO₂ plasmonic photocatalyst

研究代表者

多田 弘明 (Tada, Hiroaki)

近畿大学・理工学部・教授

研究者番号：60298990

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、過酸化水素合成用の可視光応答型光触媒として、金ナノ粒子-TiO₂-SnO₂からなる新奇三元系プラズモニック光触媒(本光触媒)をデザインした。以下に、主な研究成果をまとめる。1.水熱法-析出沈殿法を用いて、目的の本光触媒を合成した。2.本光触媒を固定した電極が可視光全域で応答することを確認した。3.本光触媒が、酸素二電子還元による過酸化水素生成に対して極めて高い光触媒活性を有することを示した。4.本光触媒の高い光触媒活性が、効率的な電荷分離、Auナノ粒子の電極触媒活性、さらにSnO₂の過酸化水素分解に対する低い触媒活性からなる複合効果に起因することを解明した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

過酸化水素は、クリーンな酸化剤としてのみならず、燃料電池用の燃料としても有望であることから、今後その重要性が一層増すものと予想される。現在、安全かつ環境に優しいion-site合成法の開発が強く望まれている。その有望な方法の一つが、酸素二電子還元による過酸化水素光触媒合成である。本研究では、太陽光を有効に利用して酸素から過酸化水素を合成することのできる新奇プラズモニック光触媒の開発に成功した。

研究成果の概要(英文)：As a visible-light-responsive photocatalyst for hydrogen peroxide (H₂O₂) synthesis, I designed a novel ternary plasmonic photocatalyst consisting of Au nanoparticles-TiO₂-SnO₂ (this photocatalyst). The main research results are summarized below. 1. The desired photocatalyst was synthesized using a two-step method involving hydrothermal synthesis of the TiO₂-SnO₂ hybrid and deposition-precipitation of Au nanoparticles (NPs). 2. Irradiation of this photocatalyst-fixed FTO electrode provides current in the whole visible light region. 3. This photocatalyst exhibits high photocatalytic activity for hydrogen peroxide generation via two-electron oxygen reduction reaction (2e⁻ ORR). 4. The high photocatalytic activity can stem from a combined effect of effective charge separation, electrocatalytic activity of Au NPs for 2e⁻ ORR, and low activity of SnO₂ for H₂O₂ decomposition.

研究分野：光触媒

キーワード：光触媒 過酸化水素

様式 C-19, F-19-1, Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

過酸化水素は、クリーンな酸化剤としてのみならず、燃料電池用の燃料としても有望であることから、今後その重要性が一層増すものと予想される。過酸化水素の大半は、アントラキノン法を用いて工業的に生産されている。しかしながら、この方法は、大量のエネルギー、水素と有機溶媒を消費する多段階プロセスであることから、現在、安全かつ環境に優しい on-site 合成法の開発が強く望まれている。その有望な方法の一つが、酸素二電子還元による過酸化水素光触媒合成である。2010年、私たちは、空気飽和エタノール水溶液中で、Au ナノ粒子担持 TiO₂(Au/TiO₂)光触媒に紫外光を照射することにより、酸素二電子還元により過酸化水素が生成することを見出した。しかしながら、Au/TiO₂ 光触媒は、紫外光にしか応答しないため、反応の駆動力として太陽光を有効に利用することができないという問題があった。

2. 研究の目的

本研究では、太陽光を有効に利用して酸素から過酸化水素を安定に合成することのできる可視光応答型光触媒を開発すると共に、その作動原理を明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

過酸化水素合成用光触媒には、高い活性に加えて過酷な条件下における長時間の耐久性が要求されることから、化学的に安定な無機材料(金、酸化チタン、酸化スズ)から構成される新奇プラズモニック光触媒を設計した。

4. 研究成果

本研究では、金ナノ粒子-TiO₂-SnO₂ からなる新奇三元系プラズモニック光触媒(本光触媒)の合成、光応答波長の調査、可視光照射下における酸素二電子還元に対する活性評価、その作用機構の解明について検討を行った。主な研究成果を以下の通りである。1. 水熱法-析出沈殿法を用いて、目的の本光触媒を合成した。2. 本光触媒を固定した電極が可視光全域で応答することを確認した。3. 本光触媒が、酸素二電子還元による過酸化水素生成に対して極めて高い光触媒活性を有することを示した。4. 本光触媒の高い光触媒活性が、効率的な電荷分離、Au ナノ粒子の電極触媒活性、さらに SnO₂ の過酸化水素分解に対する低い触媒活性からなる複合効果に起因することを解明した。一連の研究成果を論文にまとめて公表した。詳細については、以下の論文を参照されたい。

1. Kenta Awa, Shin-ichi Naya, Musashi Fujishima, Hiroaki Tada, A Three-Component Plasmonic Photocatalyst Consisting of Gold Nanoparticle and TiO₂-SnO₂ Nanohybrid with Heteroepitaxial Junction: Hydrogen Peroxide Synthesis.

J. Phys. Chem. C 2020, 124, 7797-7802 (Supplementary Journal Cover).

2. Shin-ichi Naya, Haruya Suzuki, Hisayoshi Kobayashi, Hiroaki Tada, Highly Active and Renewable Catalytic Electrode for Two-Electron Oxygen Reduction Reaction.

Langmuir 2022, 38, 4785-4792.

3. M. Teranishi, S. Naya, Y. Yan, T. Soejima, H. Kobayashi, H. Tada, A biomimetic all-inorganic photocatalyst for the artificial photosynthesis of hydrogen peroxide.

Catal. Sci. Technol. 2022, 12, 6062-6068 (Front Cover).

4. Hiroaki Tada, Miwako Teranishi, Shin-ichi Naya, Hydrogen Peroxide Production by Inorganic Photocatalysts Consisting of Gold Nanoparticle and Metal Oxide towards Oxygen Cycle Chemistry.

J. Phys. Chem. C **2023**, *127*, 5199-5209.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 0件）

| | |
|---|---------------------------|
| 1. 著者名 Naya Shin-ichi, Suzuki Haruya, Kobayashi Hisayoshi, Tada Hiroaki | 4. 巻 38 |
| 2. 論文標題 Highly Active and Renewable Catalytic Electrodes for Two-Electron Oxygen Reduction Reaction | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Langmuir | 6. 最初と最後の頁 4785 ~ 4792 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.2c00659 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |
| 1. 著者名 Kenta Awa, Shin-ichi Naya, Musashi Fujishima, Hiroaki Tada | 4. 巻 124 |
| 2. 論文標題 A Three-Component Plasmonic Photocatalyst Consisting of Gold Nanoparticle and TiO ₂ -SnO ₂ Nanohybrid with Heteroepitaxial Junction: Hydrogen Peroxide Synthesis | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C | 6. 最初と最後の頁 7797-7802 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.9b11875 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |
| 1. 著者名 Teranishi Miwako, Naya Shin-ichi, Yan Yaozong, Soejima Tetsuro, Kobayashi Hisayoshi, Tada Hiroaki | 4. 巻 12 |
| 2. 論文標題 A biomimetic all-inorganic photocatalyst for the artificial photosynthesis of hydrogen peroxide | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Catalysis Science & Technology | 6. 最初と最後の頁 6062 ~ 6068 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2CY01089E | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |
| 1. 著者名 Tada Hiroaki, Teranishi Miwako, Naya Shin-ichi | 4. 巻 127 |
| 2. 論文標題 Hydrogen Peroxide Production by Inorganic Photocatalysts Consisting of Gold Nanoparticle and Metal Oxide toward Oxygen Cycle Chemistry | 5. 発行年 2023年 |
| 3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C | 6. 最初と最後の頁 5199 ~ 5209 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c09066 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|--|---------------------------|-----------------------|----|
|--|---------------------------|-----------------------|----|

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|