

2024 年度年次報告書

地球環境と調和する物質変換の基盤科学の創成

2024 年度採択研究代表者

井口 翔之

京都大学 大学院工学研究科

特定准教授

窒素と炭素の資源循環を指向した硝酸態窒素からの尿素の電解合成

研究成果の概要

本研究では、未利用資源である硝酸イオン(NO_3^-)および二酸化炭素(CO_2)を出発原料とし、常温常圧条件における尿素の電解合成プロセスの開発に取り組んだ。Cu-14MR 錯体を固定した GDE カソードを用いて NO_3^- と CO_2 の共電解を行った結果、電解液中に痕跡程度ではあるが尿素が検出された。また、同時にアンモニア(NH_3)と H_2 の生成を確認した。この反応は、 CO_2 還元の間体である formate 種と NO_3^- 還元の間体である NH_2 種の不均化反応により尿素骨格が形成される機構を想定している。そのため、 CO_2 還元と NO_3^- 還元のそれぞれに関して電解活性の向上を試みた。低濃度 CO_2 の電解還元においては、Co-14MR 錯体を固定した GDE カソードにアニオン交換ポリマーのアイオノマーを添加したところ、濃度 5% CO_2 ガスの電解還元における一酸化炭素(CO)生成の Faradaic 効率 74%を達成した。このときの CO_2 変換率は 25%に達した。一方、 NO ガスを直接 NH_3 に還元する電解系の開発にも取り組んだ。CuFe 合金触媒を固定した GDE カソードを用いると、濃度 1% NO ガスの電解還元において、Faradaic 効率 71%で NH_3 が生成することを見出した。これにより、 NO_3^- だけでなく環境負荷物質である NO_x を窒素源として尿素を合成することも可能となった。今後は、 CO_2 電解還元、 NO_3^- 電解還元、 NO_x 電解還元の個別技術を統合し、電極触媒の複合化、および基質供給の最適化を進め、確かなレベルでの尿素生成を目指す。そのためには、HPLC による尿素定量分析の整備や電極触媒の作用解析が必要である。将来的には、高電流密度条件での尿素合成を目標とし、新しい尿素製造プロセスとして提案したい。また、領域内共同研究として、大型放射光施設を利用した電極触媒のオペランド分析を実施した。