



X線吸収分光によるアンモニア合成触媒の活性点構造解明(II)

永岡勝俊¹, 佐藤勝俊²

1 名古屋大学大学院工学研究科, 2 京都大学触媒・電池元素戦略研究拠点

キーワード：再生可能エネルギー, エネルギーキャリア, 非貴金属, コバルト

1. 背景と研究目的

近年, 再生可能エネルギーベースのカーボンニュートラルなアンモニアの製造に注目が集まっている。これにともない, 再生可能エネルギーの利用に適した温和な条件下でアンモニアを合成することが可能な高活性触媒の開発が期待されている。我々は非貴金属に注目した研究を行い, コバルト (Co) を希土類酸化物担体 (La_2O_3) に担持してアルカリ土類金属 (Ba) をドーブし, これを 700°C で還元処理した触媒が優れたアンモニア合成活性を示すことを見出している^[1]。本触媒では, アルカリ土類金属のドーブとともに高温で還元処理をすることが活性を発現させる重要なポイントである。そこで本実験では活性点である Co に対する, ドープおよび還元処理の影響を検討するため, Co K 吸収端の XAFS 測定を行い, Co の化学状態および局所構造に関する検討を行った。

2. 実験内容

触媒は既報の方法で調製した^[1]。各温度で還元処理した触媒をグローブボックス内で BN と混合し, 直径 10 mm のディスクに成形した。作成したディスクを不活性ガス雰囲気下でプラスチックバックに封入, 運搬し, 開封することなくあいち SR にて透過法による XAFS スペクトルを測定した。

3. 結果および考察

Fig. 1 に Co K 吸収端の XAFS スペクトルを示す。還元処理前の触媒の XANES および FT-EXAFS スペクトルを比較すると, Ba をドーブした触媒 ($\text{Co/Ba/La}_2\text{O}_3$) は Co_3O_4 , ドープのない触媒 ($\text{Co/La}_2\text{O}_3$) は CoO に類似したスペクトルを示した。Ba のドーブが Co の状態に影響を及ぼしていることが示唆された。一方, 還元処理後の触媒を比較すると XANES, FT-EXAFS とともに Co メタルに類似したスペクトルであり, 両者の間に有意な差は観測されなかった。この結果は還元後の触媒中における Co の化学状態や局所構造には大きな差が無いことを示唆している。よって, Co 自体の構造変化よりも, Ba による修飾効果が触媒の性能向上に強く影響しているものと考えられる。

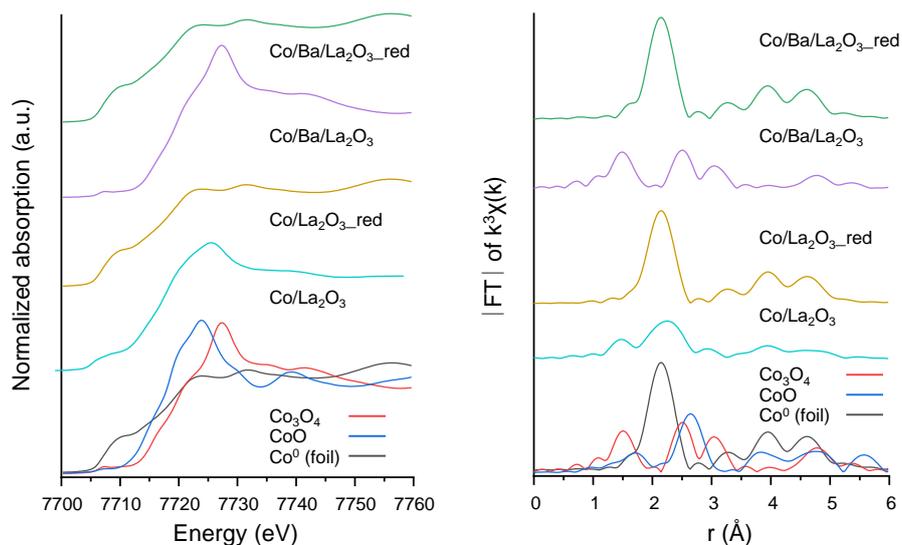


Fig. 1 Co/Ba/LaCeO_x の Co K 吸収端 XAFS スペクトル。

4. 参考文献

1. 辻丸ら, 第 39 回水素エネルギー協会大会 (2019) B08.