



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(Ⅲ)

永岡勝俊, 佐藤勝俊
名古屋大学大学院工学研究科

キーワード：再生可能エネルギー，エネルギーキャリア，カーボンニュートラル

1. 背景と研究目的

近年，エネルギーキャリアやカーボンフリーな燃料として，グリーンアンモニアに注目が集まっている．グリーンアンモニア実現のためには，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鍵となる．我々はアルカリ土類金属の一種であるバリウム (Ba) を酸化マグネシウム (MgO) にドーピングしてコバルト (Co) を担持し，これを 700°C という極めて高い温度で還元処理した触媒が非常に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]．本研究では触媒のさらなる高活性化を目指し，ドーパントとして有望な Ba 以外の塩基性元素を探索している，本実験では活性点である Co の K 吸収端 XAFS 測定を行い，塩基性元素のドーピングが Co に対して与える影響の検討を行った．

2. 実験内容

Ba および塩基性元素（ここでは X, Y とする）をドーピングした MgO 担持 Co 触媒は既報の方法に基づいて調製した^[1]．作成した触媒を 700°C で水素還元処理した後，大気中の酸素等の影響を避けるため，グローブボックス内で適量の窒化ホウ素と混合し，直径 10 mm のディスクに成形した．作成したディスクは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 (BL11S2) にて透過法により 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 XANES スペクトルを示す．還元処理前の触媒の XANES スペクトルは塩基性元素の種類に関わらず CoO に類似したスペクトルを示した．700°C還元処理後のサンプルのスペクトルを比較したところ，いずれのサンプルも Co メタルに類似したスペクトルを示した．したがって，処理後，触媒中大部分の Co は Co⁰の状態であると考えられる．一方で，還元後の触媒について Co⁰に特徴的な 7712 eV のプレッジ付近のピークを比較すると，Ba をドーピングした触媒が最も Co⁰に近い形状を示し，塩基性元素 X, Y をドーピングした触媒はドーピングなしの Co/MgO に近い形状であった．このことは塩基性元素のドーピングが，Co の還元のしやすさ，あるいは還元後の電子状態に影響を与える可能性を示唆している．

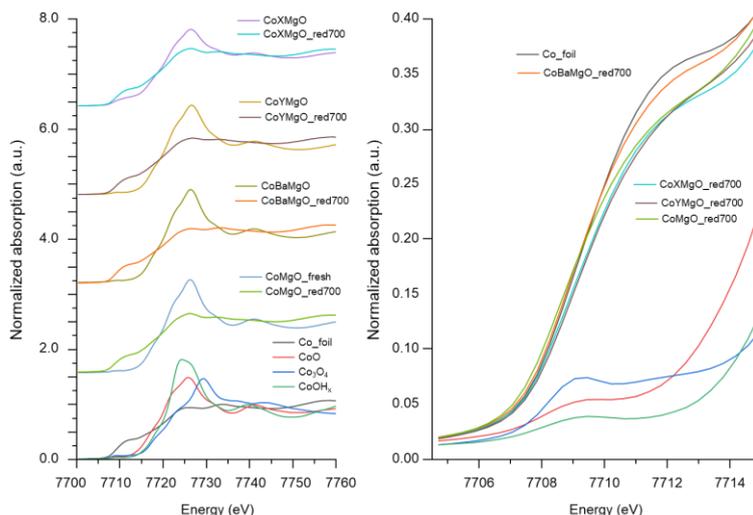


Fig. 1 塩基性元素をドーピングした Co/MgO と参照サンプルの Co K 吸収端 XANES スペクトル．

4. 参考文献

1. Sato, K et al, *ACS Catalysis* **2021**, *11* (21), 13050-13061.