

課題番号 : 2023A-E08
利用課題名 (日本語) : 表面 X 線散乱による二元系硝酸還元電極触媒におけるスズの状態解明 4
Program Title (English) : Analysis of Tin in Alloy Electrocatalysts for Nitrate Reduction by Surface X-ray Scattering 4
利用者名 (日本語) : 八木一三^{1,2)}, 岡 紗雪²⁾, 西山仁人²⁾, 保田 諭³⁾, 田村和久³⁾
Username (English) : I. Yagi¹⁾, S. Oka, Y. Nishiyama, S. Yasuda, K. Tamura²⁾
所属名 (日本語) : 1) 北海道大学大学院地球環境科学研究院, 2) 北海道大学大学院環境科学院,
3) 日本原子力研究開発機構

キーワード : 電極触媒, 硝酸還元, 亜酸化窒素還元, 温室効果ガス削減

1. 概要 (Summary) 目的・用途・実施内容

地下水中の硝酸イオンや大気中の亜酸化窒素(N₂O)は増加の一途を辿っている。我々はこれらを常温かつマイルドな条件で還元できる電極触媒の探索をおこなっている。これまで Pt(111), Pd(111)および Pd(100)単結晶電極をスズ修飾溶液に浸漬する時間を制御することで、スズの表面被覆率を制御できること、スズ被覆率が高ければ高いほど、さらには事前にスズ修飾電極に負電位を印加することで、硝酸還元能が高まることを見出している。実際のスズ吸着構造については情報が無いことから、SPring-8 BL-22XU の κ 型 X 線回折計を用いた SXS 法、特に表面の面内原子配列に敏感な表面 X 線回折(SXRD)法と表面垂直方向の構造に敏感な CTR 法を組み合わせ、スズ被覆率と保持電位を変化させながら、測定を実施することを目的とした。

2. 実験(目的,方法) (Experimental)

今回、試料として準備していた Pd(111)と Pd(100)単結晶が送付直前のアニール処理の段階で融解してしまい、実験自体が実施できない事態となった。そこで、急遽、今後の研究に使用するために準備していた二層グラフェン(Gr/Gr)被覆 Au(111)単結晶と同じく Gr/Pt(111) 単結晶を用いた電気化学 SXS 実験を進めることとした。

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

Pd 単結晶電極が使用不可能になったため、急遽 Gr/Gr/Au(111)電極と Gr/Pt(111)電極を調製し、硫酸水溶液中での電位依存性を測定した。Gr/Gr/Au(111)単結

晶は、化学気相成長(CVD)で成膜した単層 Gr/Au(111)表面に、別の基板の上に調製した単層 Gr を転写することで調製した。これは Gr/Au(111)上にピレン分子をファン・デル・ワールス力で修飾した場合の表面と比較するためのモデルとなる。CTR を測定すると、二層 Gr が Au(111)表面に存在することを示す形状の曲線が得られた。また、面内 XRD を測定すると、Gr/Au(111)と同様、Au(111)表面が再構成した状態のままであることがわかった。ただし、電位依存性を測定すると、再構成が若干解け、(1x1)ピークが変化の様子が観察された。これは単層 Gr/Au(111)では観測されなかった挙動である。これについては再検証の必要がある。一方、Gr/Pt(111)では、水素吸着領域で CTR の顕著な変化が観測された。これらについては 2023B 期の実験で再現性を確認する。

4. その他・特記事項 (Others)

なし