

国内ラボ留学 報告書

東京科学大学 北野研究室

博士後期課程 1 年 仁井田海渡

博士後期課程 3 年 佐藤駿

期間:2025 年 10 月 9 日～13 日(5 日間)

受入者:京都大学 小坂谷貴典 准教授

当研究室では、窒素や水素のアニオン(H^- , N^{3-})を含む材料を用いたアンモニア合成触媒の開発を進めています。このような触媒では、触媒表面のアニオンやその空孔が窒素分子の解離や窒素種の水素化を促進すると考えられています。そのため、触媒表面でのアニオンの動きを観測することは、反応機構を解明するうえで重要になります。放射光を用いた硬 X 線光電子分光法(HAXPES)は、元素の内殻準位や価電子帯などの電子状態の観測から、表層領域でのアニオンやその空孔の濃度を評価することが可能な手法です。そのため、反応ガス雰囲気におけるオペランド HAXPES を実施することで、触媒表面でのアニオンの出入りを間接的に観測できると期待されます。

そこで、本ラボ留学では SPring-8 に 5 日間滞在し、HAXPES 測定に関する卓越した技術を有する京都大学の小坂谷貴典准教授にご協力いただき、当研究室で合成した材料について、BL46XU にて HAXPES 測定を実施しました。今回は、オペランド測定に向けて、事前に反応ガス雰囲気で加熱した試料と前処理前の試料において、各構成元素の内殻準位と価電子帯領域の HAXPES スペクトルを取得し、アニオン空孔の有無によるスペクトル形状の差異が確認できるか検証しました。

結果として、いくつかの材料でスペクトル形状の差が確認され、触媒表面でのアニオン空孔の形成を HAXPES 測定から追跡できる可能性が示唆されました。また、今回は測定チャンバー内の汚染が確認されていましたが、小坂谷先生からのご助言により、汚染の影響を抑えながら信頼性の高いデータを取得することができました。今後は、DFT 計算から予測された状態密度分布と、価電子帯領域の HAXPES スペクトルの比較から、スペクトル形状の差がアニオン空孔の形成に由来するものであることの裏付けを取ったのち、オペランド測定に進んでいきたいと考えています。

前回の国内ラボ留学での水素化物の $\text{H } 1s$ 状態の観測に引き続き、HAXPES 測定の機会と様々な知識を与えてくださいました小坂谷貴典准教授には、心より御礼申し上げます。

