

CeO_x表面に吸着した 2-cyanopyridine の吸着状態の研究

Study on adsorption state of 2-cyanopyridine adsorbed on CeO_x surface

市川理世¹, 伊勢川和久¹, 間瀬一彦^{2,3}, 富重圭一⁴, 近藤寛¹¹慶大理工, ²KEK 物構研, ³総研大, ⁴東北大工

液相中の固体触媒上に分子を吸着させて触媒とする方法は様々な活性サイトを生み出す可能性を持ち、触媒の合成戦略として期待されている。このような仕組みで働く触媒として CeO₂+2-cyanopyridine が報告された[1]。この触媒はメタノール中で acrylonitrile を hydromethoxy 化する強塩基触媒である。計算によれば、CeO₂(111)上に吸着した 2-cyanopyridine に強塩基点が生成するとされ、これが活性種として提案されている[2]。本研究では、モデル系である CeO₂(111)上に気相中で 2-cyanopyridine を吸着させ、XPS を用いて測定することにより、その吸着状態を分光学的に明らかにすることを目的とする。

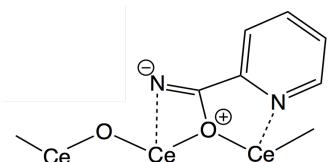


図1 2-Cyanopyridine の吸着

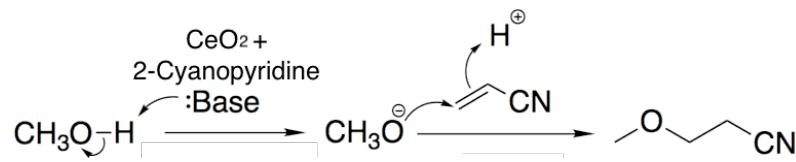


図2 反応スキーム

測定手法として、比較的高い圧力までガスを導入しながら XPS 測定が可能な準大気圧(NAP)-XPS を用いた。2-cyanopyridine を最高で 1×10^{-2} Torr のガスとして導入しながら、室温近傍の CeO₂(111)表面に吸着させ、その XPS スペクトルを得た。

Ce3d XPS スペクトルは 2-cyanopyridine が吸着した CeO₂ 表面では 3 値の Ce が増加し、吸着種から電子を受け取って還元されていることが示唆された。N1s XP スペクトルは少なくとも 2 つの化学状態の N 原子が存在することを示していて 398.5 eV と 400.4 eV の窒素はそれぞれ 2-cyanopyridine に含まれる 2 つの窒素に対応すると考えられる。吸着種の BE を比較して、2 つの窒素の電荷の偏りを見積もった。詳細は当日発表する。

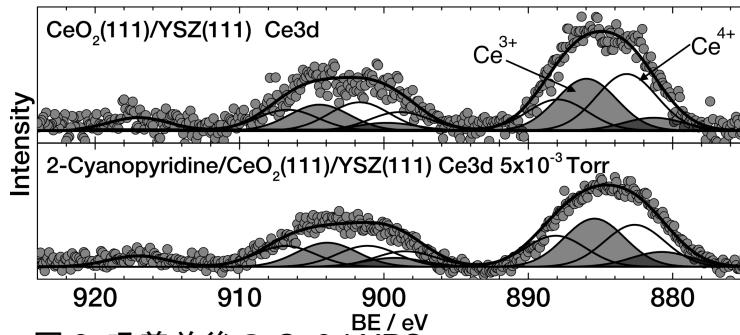
[1] M. Tamura et al., *Nature Commun.* **6**, 8580 (2015).[2] M. Tamura et al., *J. Am. Chem. Soc.* **139**, 11857 (2017).

図3 吸着前後の Ce3d XPS

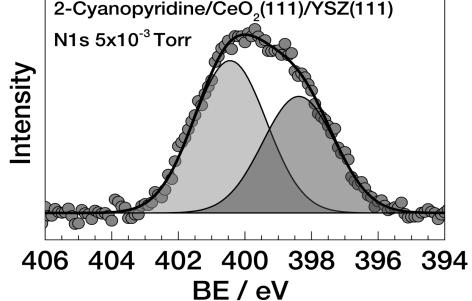


図4 吸着時の N1s XPS