



BL11S2 における Pd/Al₂O₃ 触媒の Pd の酸化還元挙動の観察

角野健史、渡部秀俊

ジョンソン・マッセイ・ジャパン合同会社

キーワード : BL11S2, in-situ QXAFS, Pd K-edge, Pd/Al₂O₃, Redox

1. 背景と研究目的

担持パラジウム触媒は、水素化触媒、メタン燃焼触媒および自動車排気ガス浄化触媒といった多くの分野で重要な役割を担っており、いくつかの放射光施設において PdO と Pd 間の酸化還元挙動が観察することに成功している¹⁻³。本研究では、BL11S2 の測定エネルギー範囲が拡大されたことにより、Pd や Rh の吸収端の測定が可能となったため、Pd/Al₂O₃ 触媒を用いてビームラインの性能を検証した。

2. 実験内容

分光結晶は Si(311) を使用し、縦横 1x5 mm に制御されたビームを用いて透過法にて測定した。適切な厚みに錠剤成型した 0.5 wt% Pd/Al₂O₃ をガラス製の in-situ セルに充填し、疑似空気下 (O₂: 30 ml/min, N₂: 130 ml/min) にて昇温および降温中の XAFS スペクトルを測定した。XAFS スペクトルの測定は、24068.38 eV から 25458.38 eV の範囲を 60 秒かけて低エネルギー側から高エネルギー側に向けてモノクロメータを掃引した。温度制御は、室温から 500 °C までを 25 °C/min で昇温し、500-900 °C 間は 10 °C/min で昇温した。また、降温側も同様に 900-500 °C 間を -10 °C/min の設定とした。

3. 結果および考察

図 1(a) および (b) に、昇温過程と降温過程の規格化後の Pd K 吸収端 XANES スペクトルを示した。まず、昇温過程に注目すると、図 1(a) に示すように、800 °C から 900 °C の間に PdO から Pd に還元される様子が観察できた。一方、図 1(b) の降温過程では、700-600 °C 付近で Pd の酸化が始まり、600-500 °C 付近で PdO まで酸化された。昇温過程における PdO の還元過程と降温過程の Pd の酸化過程の温度域が異なっていることも文献³の結果を良く再現した。

今回の実験では、文献³の 1/8 の Pd 濃度のサンプルを用いたにも関わらず、良好な再現結果を得ることに成功しており、本ビームラインは実用触媒の解析が可能と思われる。一方で、Pd 濃度が低いこともあり、スペクトルの S/N 比が良いとは言えず、目的に応じて実験方法を工夫する必要があることを理解できた。

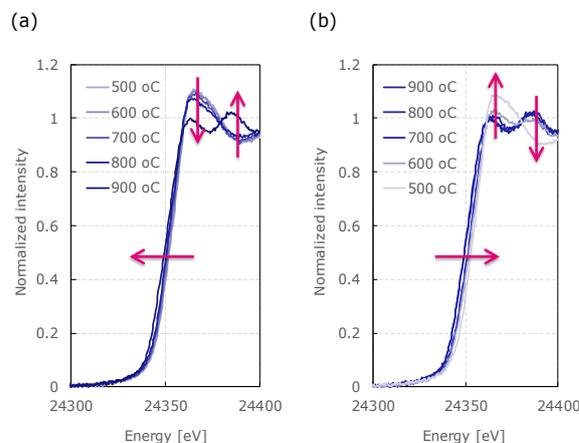


図 1 0.5 wt% Pd/Al₂O₃ の Pd K 吸収端 XANES スペクトル。(a)昇温過程、(b)降温過程

4. 参考文献

1. Sung June Cho and Sung Kyu Kang, *J. Phys. Chem. B* 2000, 104, 8124-8128.
2. Misaki Katayama, Keisuke Doi, Syohei Yamashita *et al.*, *Photon Factory Activity Report 2012* #30 (2013) B.
3. Jonathan Keating, Gopinathan Sankar, Timothy I. Hyde *et al.*, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2013, 15, 8555.