



アルミナ担持金属ナノ粒子触媒の化学状態及び局所構造解析

薩摩 篤, 織田 晃, 村田 和優, 小野田 純也
名古屋大学

キーワード：金属ナノ粒子, 白金—スズ触媒, メチルシクロヘキサン脱水素, XAFS

1. 背景と研究目的

メチルシクロヘキサン (MCH) は水素を運ぶ水素キャリアとして注目されている^[1]. Pt 系触媒を用いた MCH 脱水素反応によって水素を取り出すことができるが, コークス析出や Pt ナノ粒子の凝集によって触媒活性が低下することが実用化に向けての課題となる. その中で, アルミナ (Al_2O_3) やシリカ (SiO_2) といった高比表面積をもつ酸化物に Pt と Sn などの第二金属を添加した触媒が有効だとされている. しかしながら, MCH 脱水素における Pt-Sn/ Al_2O_3 の Pt と Sn の最適な組成 (Sn/Pt 比) は, 十分に検討されていない. これまでに, 我々は Sn/Pt 比の最適化による MCH 脱水素用 Pt-Sn/ Al_2O_3 触媒の活性及び耐久性の向上を目指した. 本研究では XAFS 分光法を用いて, 異なる Sn/Pt 比をもつ Pt-Sn/ Al_2O_3 触媒の Sn 種の化学状態及び局所構造の解析を行った.

2. 実験内容

Pt-Sn/ Al_2O_3 触媒は含浸法によって調製した. H_2PtCl_6 及び SnCl_2 を用いて Al_2O_3 上に含浸担持し, 80°C で一晩乾燥させ, その後, 大気下で 500°C , 3 h 焼成した. Pt 担持量は 2wt% とし, 異なる Sn/Pt 比 = 1/3, 1, 2, 3 の 4 つを準備した. XAFS サンプルは Pt-Sn/ Al_2O_3 をプレス機でディスク成型した後に, 600°C , 30 min H_2 還元を行った. H_2 還元後, 大気に曝さずに N_2 下でポリエチレンシートに密閉した. Sn K 吸収端 XAFS 測定はあいちシンクロトロン光センター BL11S2 で Si(311)分光結晶を用いて透過法で行った.

3. 結果および考察

Fig. 1a に様々な Sn/Pt 比をもつ Pt-Sn/ Al_2O_3 触媒の Sn K 吸収端 XANES スペクトルを示す. すべての Pt-Sn/ Al_2O_3 触媒の XANES スペクトルは SnO の XANES スペクトルに類似していた. したがって, Pt-Sn/ Al_2O_3 触媒の平均の酸化状態は 2 価であることが明らかとなった. Fig. 2b と 2c に s EXAFS スペクトルを示す. Pt-Sn/ Al_2O_3 触媒は 1.5 \AA 付近に Sn-O 散乱ピークがみられた. このピーク位置は SnO ではなく, SnO_2 に似ていた. また, 2.5 \AA 以上の領域に Sn-Sn に由来する散乱ピークが観察されなかった. これは, Sn 種が長周期的な構造をもたないことを示しており, Al_2O_3 上に高分散もしくは非晶質 SnO_x 種が存在することが示唆された.

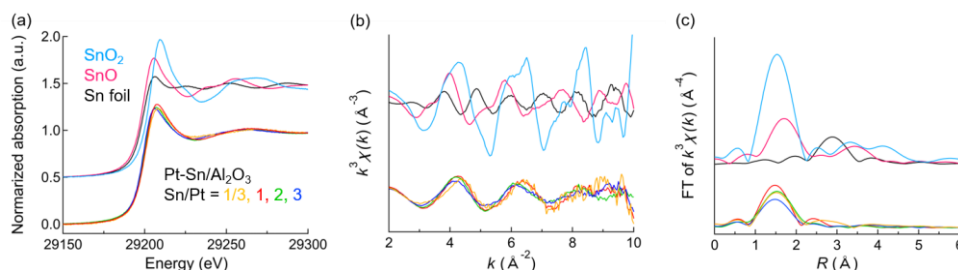


Fig.1 Sn K-edge (a) XANES, (b) k^3 -weighted EXAFS, and (c) Fourier transforms of EXAFS spectra of Pt-Sn/ Al_2O_3 catalysts with various Sn/Pt ratio, together with Sn foil, SnO, and SnO_2 references.

4. 参考文献

1. Y. Okada, E. Sasaki, E. Watanabe, S. Hyodo and H. Nishijima, *Int. J. Hydrogen Energy*, 2006, **31**, 1348–1356.