



酸化物固定化金属錯体の XAFS 測定

池本 悟, 邨次 智, 唯 美津木

名古屋大学大学院理学研究科物質理学専攻(化学系)

キーワード : 金属錯体, 固定化金属触媒, XAFS

1. 背景と研究目的

金属錯体を酸化物表面上に固定化した固定化金属錯体は、金属種の凝集を抑制し耐久性を高めるだけでなく、金属—担体間の相互作用による活性や選択性の向上、新たな配位構造による物性や触媒活性の発現が知られているが、異種金属錯体を含む多核錯体の酸化物表面上への固定化では、複数の金属種の反応制御の難しさからその難易度は向上する。本研究では、Cu-Fe 結合を有する Cu-Fe 錯体前駆体 (1) を酸化物表面に固定化した固定化 Cu-Fe 金属錯体の調製を行い、その局所配位構造解析を試みた。

2. 実験内容

Cu-Fe 結合を有する Cu-Fe 錯体前駆体 (1)、およびそれを酸化物担体に固定化した固定化 Cu-Fe 錯体 (2) の Fe、Cu K 端 XAFS は、それぞれ 6.8 keV から 8.4 keV、8.7 keV から 10.3 keV の範囲で測定した。イオンチェンバー導入ガスは、Fe K 端では I_0 に He 20%, N_2 80%, I_1, I_2 に N_2 90%, Ar 10%、Cu K 端では I_0 に N_2 100%, I_1, I_2 に N_2 90%, Ar 10%とした。Fe K 端の測定では高次光除去ミラーを挿入した。試料は予め不活性雰囲気下必要量をセルに詰め封をしたのち、室温で透過法で測定を行った。

3. 結果および考察

Fig. 1 に Cu-Fe 錯体前駆体 (1)、および酸化物表面固定化 Cu-Fe 金属錯体 (2) の Fe、Cu K 端 XANES スペクトルを示す。固定化により、Fe の価数と対称性に大きな変化は見られないことから、Fe の価数と配位構造の変化は小さいことが示唆された。一方、Cu の価数も固定化前後では大きく変化していない一方で Pre-edge の強度が減少したことから、Cu 周りの対称性の変化が見られ、酸化物担体の表面水酸基との相互作用が推察された。

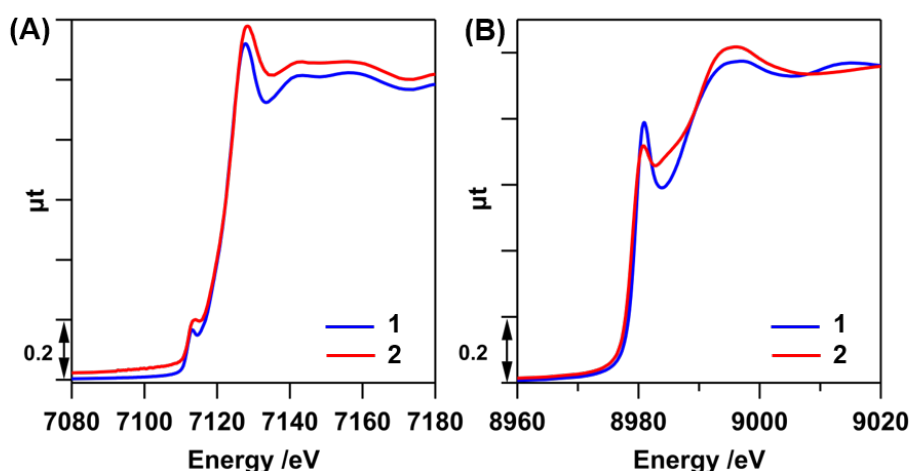


Fig.1 (A) Fe K-edge XANES and (B) Cu K-edge XANES spectra of Cu-Fe complex (1) and Cu-Fe/Oxide (2).