



# ゼオライト触媒の活性点の局所構造解析

織田晃

名古屋大学大学院工学研究科

キーワード : ゼオライト, 骨格 Al 原子, Wavelet transform EXAFS

## 1. 背景と研究目的

ゼオライトのイオン交換サイト( $\text{AlO}_4$  部位)上に金属イオンを配置することで、ゼオライトの触媒性能をチューニングできる。イオン交換金属の原子数と電荷の制御を的確に行えば、夢の反応として知られるメタン部分酸化までもが可能になりつつある。しかし、イオン交換サイト上に固定化されている金属イオンの状態解析は難しいばかりか、イオン交換されているかどうかを直接的に検証する技術がほとんど確立していない。本研究では Al K-edge XAFS 測定を行い、イオン交換サイト ( $\text{AlO}_4$ ) からイオン交換金属種を直接捉えることに挑戦した。イオン交換サイト周りには  $\text{SiO}_4$  部位が存在するので、骨格  $\text{AlO}_4$  部位の Al の第二配位圏の元素解析は難しいが、Wavelet Transform EXAFS (WT-EXAFS) によってイオン交換金属種の存在の明白化と定量に挑戦した。

## 2. 実験内容

Cu イオン交換ゼオライト (Cu/AEI) を 7φ のディスクに成形した。これを試料ホルダーにカーボンテープを介して固定した。前日からチャンバー内で真空脱気し、Al K-edge XAFS 測定に用いた。1.500 keV ~ 1.806 keV の範囲を蛍光法で測定した。比較として、Cu イオン交換前の母体ゼオライト、 $\text{H}^+$ イオン交換ゼオライト (H/AEI), についても同様の実験を行った。

## 3. 結果および考察

Cu/AEI と H/AEI の Al K-edge XANES スペクトルを比較した結果、White line 近傍でわずかながら差異が観測された。この微細な構造変化を捉えるために、 $k^2\chi(k)$ 関数をウェーブレット変換し、 $R$ - $k$  空間を解析した。即ち、Al 視点でサブナノサイズのゼオライト反応場の可視化を目指した。残念ながら、カウンターカチオン由来のシグナルやカチオン依存のゼオライト構造を明白に捉えることができなかった (Fig. 1)。わずかにローブの形状が異なる箇所も見受けられるが、ノイズの可能性が高い。要因として EXAFS 振動スペクトルの S/N が低いことがあげられる。次回は、In シートに触媒を直接塗布し、全電子収量法で測定を行うことで S/N を向上させ、ゼオライト空間の WT-EXAFS 描写を実現させたい。

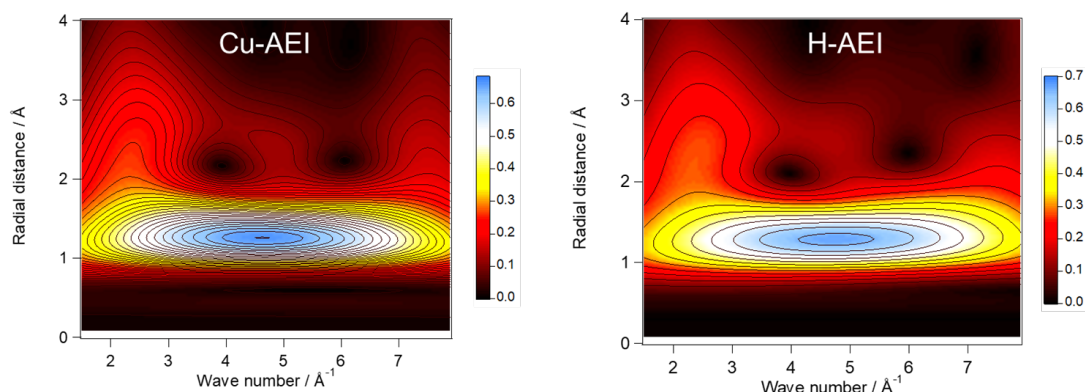


Fig. 1. (A) Cu/AEI, (B) H/AEI の WT EXAFS ( $1.5 < k < 7.9 \text{ \AA}^{-1}$ ,  $0 < R < 4 \text{ \AA}$ ). WT パラメーターとして  $\kappa=5$ ,  $\sigma=1$  を用いた。