

# 担持ロジウム触媒の構造解析

荻原 仁志, 土田竜平 埼玉大学

キーワード: メタン、ドライリフォーミング、担持 Rh 触媒

### 1. 背景と研究目的

温室効果ガスである  $CO_2$  を化学資源に利用する試みが盛んであり、そのひとつとしてメタンのドライリフォーミング(DRM)反応が注目されている。DRM では、メタンと  $CO_2$  から化学工業における基幹原料である合成ガス( $H_2$ , CO)を得ることができる。

 $CH_4 + CO_2 \rightarrow 2H_2 + 2CO$ 

我々は DRM に対して高活性を示す担持 Rh 触媒を開発し、担体や金属構造が触媒活性に影響することを見出している。実験番号 202205071 にて、XAFS による担持 Rh 触媒の構造解析を行い、XAFS 測定の実験条件を最適化した。本研究では引き続き、X 線吸収スペクトルにより担持 Rh 触媒の構造解析を行い、その DRM 触媒活性の起源に迫ることを目的とした。

#### 2. 実験内容

含浸法により担持 Rh 触媒 (Rh: 0.05 wt%)を調製した。触媒を 500  $\mathbb{C}$ で空気焼成した後に、水素流通下、550  $\mathbb{C}$ で触媒を還元した。さらに DRM 反応を行った後の触媒も用意した。これら触媒をポリエチレンパックに封入し、あいちシンクロトロン BL11S2 にて蛍光法および透過法で XAFS 測定を行った。

#### 3. 結果および考察

Rh/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は高い DRM 活性を安定的に示したのに対して、Rh/SiO<sub>2</sub> は速やかに失活した。すなわち担持 Rh 触媒による DRM 反応においては、担体の種類が強い影響を与えた。そこで、Rh/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と Rh/SiO<sub>2</sub> の XAFS 測定を行い、Rh 触媒の構造解析を行った。その結果を Fig. 1 に示す。Rh/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> では Rh-O 結合が観測され、Rh-Rh 結合はほとんど生成していなかった。一方、Rh/SiO<sub>2</sub> では Rh-O 結合と Rh-Rh 結合が観測された。この結果は、Rh/SiO<sub>2</sub> には Rh 金属の粒子が存在しているのに対して、Rh/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は酸化物あるいはシングルサイトの Rh 種が存在していることを示唆している。反応条件を考慮すると、シングルサイトの Rh 種が安定した DRM 活性を示すと推測した。また、反応後の Rh/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> では Rh-O 結合が主であったが、反応前では見られなかった Rh-Rh 結合が少し現れた。これは DRM 中にシングルサイトの Rh 種が一部、凝集したことを示唆している。

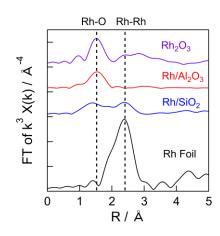


Fig. 1 Rh K-edge Fourier transforms (FT) of  $k^3$ -weighted EXAFS oscillations.

以上で得られた結果より、DRM 活性と触媒構造の相関が明らかとなった。今後、他のキャラクタリゼーションを組合せ、担持 Rh 触媒の DRM 活性の詳細を明らかにする。

## 4. 参考文献

なし