



# 原子スケール触媒の設計と XAFS による活性点の構造解析

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, 合金, メタン選択酸化

## 1. 背景と研究目的

埋蔵量が豊富かつ安価なメタンを高付加価値な化合物へ変換するプロセス、特にメタン選択酸化を介したメタノール合成プロセスの開拓が望まれている。我々は Pt 及び Cu 元素をゼオライトの細孔内に PtCu 合金ナノ粒子として閉じ込め、これを反応場として利用することで、メタンを高選択的かつ高効率にメタノールへ変換できることを最近見出した。本研究では、Pt がより希薄な PtCu 合金触媒の設計に向け、合成条件を最適化し、その触媒の構造を XAFS により解析した。

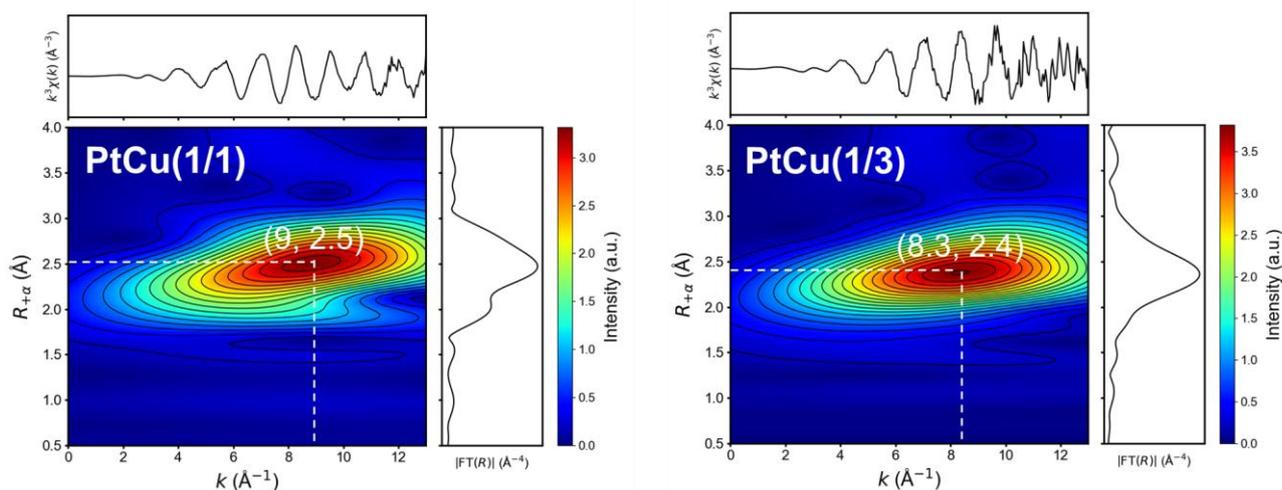
## 2. 実験内容

Pt と Cu の錯体をゼオライト原料と混合し、水熱合成後、水素還元することで、PtCu 合金が内包されたゼオライトを合成した。本研究では、錯体の Pt/Cu モル比を 1/1 から 1/3 へ小さくすることで、Pt がより希釈された PtCu 合金ナノ粒子の設計を試みた。以後、上記触媒を PtCu(1/3) 及び PtCu(1/1) と称する。

構造を確認するために、大気被暴露下でディスクをフィルムに密閉し、*ex situ* 条件下で XAFS スペクトルを収集した。Pt L<sub>III</sub>-edge を測定対象とし、Si(111) モノクロメーターを用いた。スペクトルの解析には Athena ソフトウェアを用いた。k<sup>3</sup>χ(k)関数を 3 < k < 13 (Å<sup>-1</sup>) の範囲でフーリエ/ウェーブレット変換し、FT/WT-EXAFS を得た。

## 3. 結果および考察

PtCu(1/3) 及び PtCu(1/1) の Pt L<sub>III</sub>-edge XANES スペクトルの Whiteline 強度は Pt-foil のそれと同程度であり、還元状態で内包されていることが示された。Fig. 1 に Pt L<sub>III</sub>-edge FT/WT-EXAFS を示す。PtCu(1/1) では Pt-Cu/Pt 後方散乱が k=9 Å<sup>-1</sup>, R=2.5 Å 近傍に観測された。一方、PtCu(1/3) では、Pt-Cu/Pt 後方散乱はより短距離側かつ低エネルギー側に観測されており、Pt-Cu 結合成分の寄与が大きくなっていることが示された。これはカーブフィッティング解析や CO をプローブ分子として用いた FTIR 分光によっても支持されている。上述の結果から、水熱合成時の Pt と Cu の錯体の混合比によって、Pt 濃度の低い PtCu 合金ナノ粒子をゼオライト細孔内に設計できることが明らかになった。

Fig. 1 Pt L<sub>III</sub>-edge FT/WT-EXAFS.