

# Dispersive XAFS によるアルミナ担持パラジウムの酸化還元機構の動的観察

木村正雄<sup>1</sup>・上村賢一<sup>1</sup>・永井 徹<sup>1</sup>・丹羽尉博<sup>2</sup>・稲田康宏<sup>2</sup>・野村昌治<sup>2</sup>

<sup>1</sup>新日本製鐵株式会社 先端技術研究所

<sup>2</sup>高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 フォトンファクトリー

yasuhiro.niwa@kek.jp

Pdは自動車の排ガス浄化やメタン改質などの触媒として広く用いられる金属である。触媒の効率や特性は触媒反応中の金属化学種の酸化還元状態と密接な関わりがあるため、担体上の金属の酸化還元反応を理解することは非常に重要である。本研究ではPdの酸化還元反応における基礎的な知見を得るため、還元反応に水素およびCOを、酸化反応に酸素を使用し酸化および還元反応下でのPd化学種の挙動をDXAFS<sup>1,2)</sup>を用いて研究した。

試料にはアルミナ担持 Pd (Pd 担持量 3 wt%) を用いた。真空排気されたセル内に反応ガスを迅速に導入し、反応の過程をPF-AR NW2AにおいてPdのK吸収端近傍でDXAFS測定した。673 Kでの酸化反応ではPd(0)からPdOへ(図1)、還元反応ではPdOからPd(0)へ定量的に変化した。酸化過程では吸光度が時間に対して指数関数的に変化することから、酸化反応はPdに関して一次反応であることが明らかになった。酸化過程における吸光度の時間変化を指数関数によってフィッティングすることにより速度定数を決定した。様々な温度での速度定数の圧力と温度に対する依存性を図2に示す。酸化過程の速度定数は酸素圧の増大とともに速度定数が一定値へ収束する傾向が見られた。図2の結果から、アルミナ上のPdの酸化反応では、Pdと酸素の吸着化学種が生成する前平衡を経て二価のPdに酸化されていることが明らかになった。

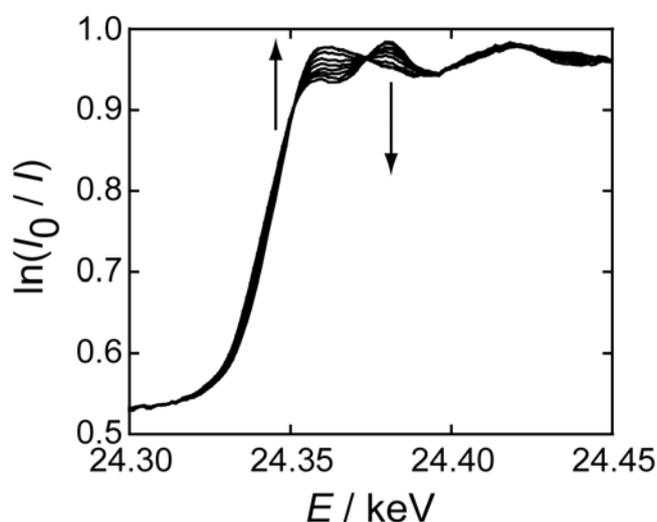


図1 CO還元後の酸化過程におけるPdのXANESスペクトル変化(673 K)

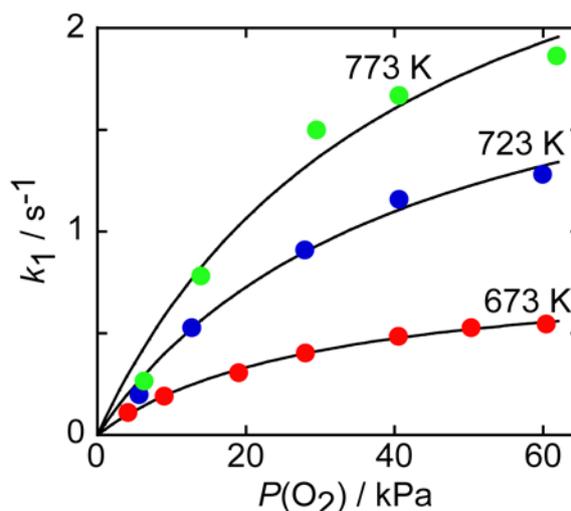


図2 CO還元後の酸化反応速度定数の圧力-温度依存性

## 参考文献

- 1) T. Matsushita and R. P. Phizackerley: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **20**, 2223 (1981).
- 2) 稲田康宏, 丹羽尉博, 野村昌治: *放射光*, **20(4)**, 242 (2007).