



固定化金属錯体・金属ナノ粒子触媒の XAFS 測定

Chaoqi Chen, 白井 そら, 邨次 智, 唯 美津木
名古屋大学大学院理学研究科理学専攻 物質・生命化学領域

キーワード：固定化金属ナノ粒子, 固定化金属錯体, XAFS

1. 背景と研究目的

(1) これまでに、Cr と Rh を含むセリア系複合酸化物触媒^[1]のアナロジーで調製した Cu と Ru を含むセリア系酸化物触媒は、低温での可逆なレドックス特性が可能であることを見出した。^[2] 本課題では新たに Ni と Ru を複合したセリア系酸化物触媒を調製し、レドックスに伴う各金属種の価数変化について、XAFS 測定により詳細に評価することを目的とした。(2) シリカ固定化希土類金属錯体について、温度可変 XAFS 測定にて価数および局所配位構造の違いについて測定した。

2. 実験内容

(1) Ni と Ru を含むセリア系酸化物触媒 (A) 及びその水素還元体 (A_red) の Ni K 端、Ru K 端、及び Ce L_{III} 端 XAFS を測定した。Ni K 端、Ce L_{III} 端は分光結晶 Si(111)を用い、Ni K 端は 11.4 keV から 14.2 keV の範囲で、Ce L_{III} 端は 5.6 keV から 5.9 keV の範囲で、Ru K 端は分光結晶 Si(311)を用い、21.7 keV から 23.8 keV の範囲で測定した。Ce L_{III} 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。(2) シリカ固定化 Tb 錯体 (1) の Tb L_{III} 端 XAFS を測定した。Tb L_{III} 端は分光結晶 Si(111)を用い、Tb L_{III} 端は Co K 端でエネルギー校正を行った。試料はクライオスタットで冷却し、20 K, 100 K, 200 K, 300 K で測定した。

3. 結果および考察

(1) Fig. 1 に Ni と Ru を含むセリア系酸化物触媒 (A)、その水素還元体 (A_red) 及びその酸素酸化体 (A_ox) の Ni K 端、Ce L_{III} 端、Ru K 端 XANES スペクトルを示す。調製直後は酸化物とほぼ同じ価数を示したが、水素還元により、全ての金属元素が還元応答することが分かった。

(2) シリカ固定化 Tb 錯体 (1) の Tb L_{III} 端 XANES スペクトルは温度を変えてもほぼ形状に変化はなかったこと (図は略) から、価数への温度の影響は小さいことが示唆された。今後 EXAFS 領域についても解析を試みる。

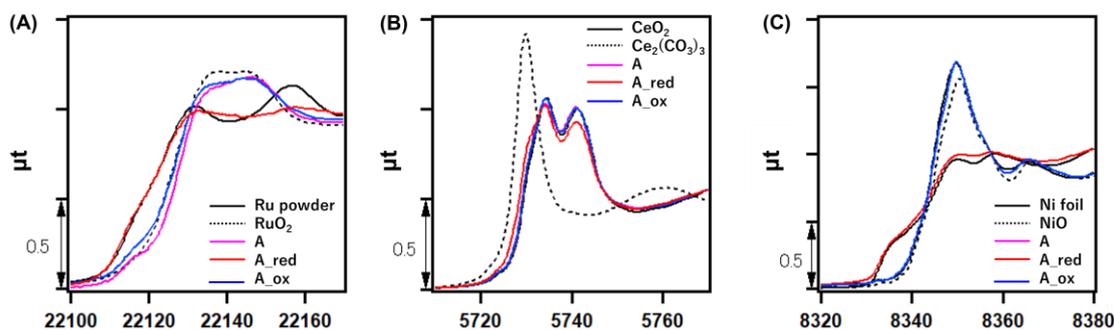


Fig.1 (A) Ru K-edge, (B) Ce L_{III}-edge and (C) Ni K-edge, XANES spectra of Ni and Ru-incorporated ceria and its reduced species.

4. 参考文献

1. S. Ikemoto, et al. *Phys. Chem., Chem. Phys.*, **2019**, *21*, 20868-20877.
2. C. Chen, et al. *Phys. Chem., Chem. Phys.*, Accepted.