



# 省貴金属触媒の反応場の局所構造解析

織田晃

名古屋大学大学院工学研究科

キーワード：原子層触媒, エピタキシャル成長, 金属酸化物-担体間相互作用

## 1. 背景と研究目的

高価な貴金属を担体表面に 100%露出させる触媒設計学の開拓が求められている。反応に関与する表面に完全に貴金属を露出させることで、貴金属の無駄をなくせる。更に、3次元の粒子とは異なる電子状態に由来した特異な触媒機能創出が期待される。しかし、この理想表面のエネルギーは高いため、容易ではない。我々はエピタキシャル成長に着目した。エピタキシャル成長は基盤の原子配列に沿って原子が配列する現象である。基盤の表面自由エネルギーと界面自由エネルギー、成長させる表面の自由エネルギーの大小関係で成長機構が決定される。エピタキシャル成長の化学は真空系で発展した。不均一な表面構造をとりやすい粉体の系に適用された例はほとんどない。我々は、担持金属酸化物をモデル系として、エピタキシャル成長機構の制御に基づいた原子層触媒開発に挑戦している。具体的には、担体と担持酸化物それぞれの表面自由エネルギーを焼成温度で簡易制御し、界面自由エネルギーを担持金属酸化物と担体の格子整合性で制御している。本研究では、その過程で  $\text{IrO}_x$  原子層触媒の設計に成功した。本研究では、この  $\text{ZrO}_2$  担持  $\text{IrO}_x$  原子層触媒の構造を Ir  $L_{III}$  端 XAFS により解析した。

## 2. 実験内容

5, 20 wt%相当の Ir を  $\text{ZrO}_2$  担体に含浸し、大気下で焼成した。  $\text{Ir}(\text{NO}_3)_3$  を Ir 原料として用いた。 HAADF-STEM で  $\text{IrO}_x$  原子層の生成を確認した。調製した触媒をそれぞれ Ir(5)/m- $\text{ZrO}_2$ , Ir(20)/m- $\text{ZrO}_2$  と称する。 Ir  $L_{III}$ -edge を測定対象とし、Si(111) モノクロメーターを用いた。extu 条件下で測定を行った。Ir 近傍の軽元素 (Zr, O) の存在を確認するため、 $k^3\chi(k)$ 関数を  $3 < k < 14$  ( $\text{\AA}^{-1}$ ) の範囲でウェーブレット変換 EXAFS を得た (WT-EXAFS)。

## 3. 結果および考察

Fig. 1 に Ir(5)/ $\text{ZrO}_2$  及び Ir(20)/ $\text{ZrO}_2$  の WT-EXAFS を示す。どちらの触媒においても Ir-O-Zr 後方散乱由来のローブが  $R=2.8$   $\text{\AA}$ ,  $k=6\sim7$   $\text{\AA}^{-1}$  に、Ir-O-Ir 由来のローブは  $R=3.6$   $\text{\AA}$ ,  $k=8\sim10$   $\text{\AA}^{-1}$  に Ir-O-Ir 後方散乱が観測された。これらにより、Ir-O-Zr 界面の割合が高い、アスペクト比の高い  $\text{IrO}_x$  層の存在が支持された。

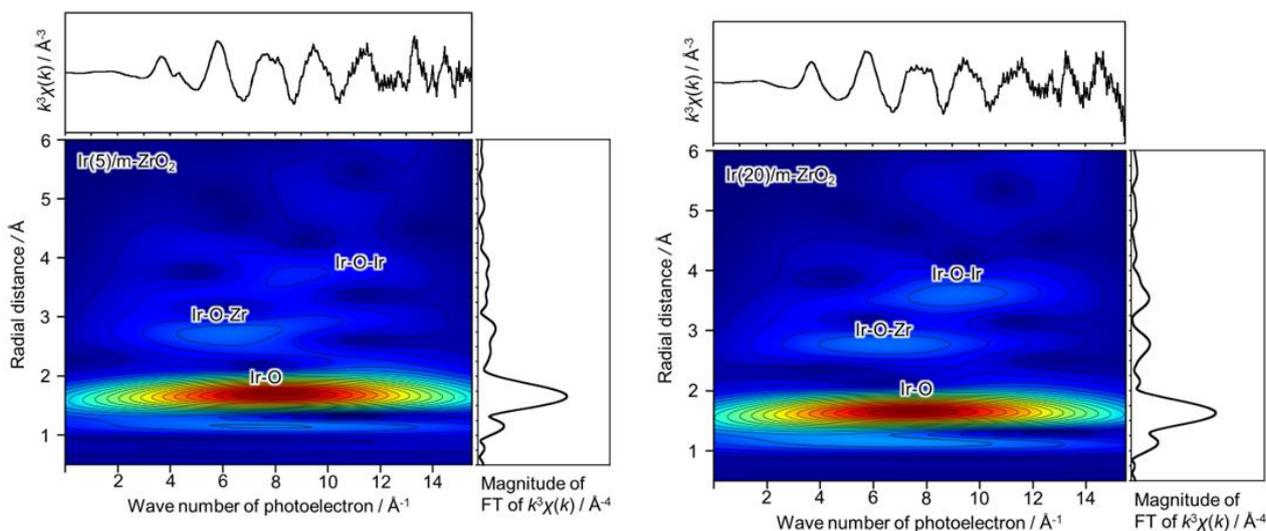


Fig. 1 Ir  $L_{III}$ -edge WT-EXAFS.