

産業応用分野;化学工業、自動車、 研究分野;触媒、 中性子手法;非弾性散乱
利用BL; BL01 4次元空間中性子探査装置 (四季); 4D-Space Access Neutron Spectrometer(4SEASONS)
Used Beam Time; 3.0日 / Allocated Beam Time; 3.0日 / Requested Beam Time; 4.0 日
課題番号;2013B0093

課題名	中性子分光測定による担持金属触媒表面における水素の吸着状態の研究 Analysis of Adsorbed Hydrogen on a Supported Metal Catalysis by Neutron Spectroscopy	
実験代表者;山添誠司	所属;東京大学大学院	共同実験機関;京都大学

背景;担持金属触媒は有機合成反応や排気ガス浄化に用いられており、担体及び金属のサイズに活性が依存していることが経験的には知られている。しかし、触媒活性に対するこれら構造の役割は明らかになっておらず、経験的に実験が行われているのが現状である。赤外分光やラマン分光による解析も試みられているが、これらの分光実験に適した試料形状の制約等のため実用触媒に近い試料での本質的物性が議論できるデータの報告は無い。

中性子実験の必要性;担体や金属の粒径により水素の吸着状態がどのように変化するかを調べ、担体や金属のサイズによる水素の状態変化を明らかにするには、中性子非弾性散乱測定が有効である。さらに、担持金属に水素が解離吸着した状態を理論計算し、測定結果と比較することで、担体効果や金属サイズ効果を物理化学的に解明出来ると期待される。

担持金属触媒試料の調製; ① 5wt%Pt/Al₂O₃及び② 5wt%Pt/活性炭(AC)の試料を含浸法により合成した。Pt(NH₃)₂(NO(NO₂))₂を純水に溶かした後、担体であるAl₂O₃もしくはACを所定量入れて攪拌後、水を蒸発させることで担持Pt触媒の前駆体を得た。このPt担持試料を空气中673Kで5時間焼成後、水素気流中623Kで5時間還元処理を施すことで5wt%Pt/Al₂O₃及び5wt%Pt/ACを調整した。
触媒への水素吸着と中性子線非弾性散乱測定; 担持Pt触媒を5%アルミ製の容器中で水素気流中で473 Kでの表面処理により水素を吸着させ、室温まで冷却後、封じ切った。このアルミ製の容器に封じ込めた状態でJ-PARCに持ち込み、BL01で測定した。測定は1サンプル約15 hで行った。

実験結果;

①水素を解離吸着させた5wt%Pt/ACの中性子線の非弾性散乱測定結果;

本研究では、J-PARCのBL01で担持金属に吸着した水素の中性子線非弾性散乱スペクトルを分解能よく測定できるかどうかを調べるのが最大の目的である。そこで、すでに報告があるPt/ACについて吸着した水素の非弾性散乱スペクトルの測定を行った。担体のACに吸着したC-H結合に由来するピークが800-1000 cm⁻¹に観察された。また、600 cm⁻¹付近に見られるブロードなピークはPt-Hに由来するピークである。これらの結果はすでに論文(J. Phys. Chem. B 2003, 107, 6838, Langmuir 2004, 20 8254)で報告された結果と良く一致しており、BL01でも精度よく測定できることが確認された。

②水素を解離吸着させた5wt%Pt/Al₂O₃の中性子線非弾性散乱測定結果;

Pt/Al₂O₃は有機合成反応の触媒として良く用いられている。本研究では5wt%Pt/Al₂O₃についても非弾性散乱スペクトルを測定し、吸着した水素の状態について調べた。Pt/ACとは異なり、200-400 cm⁻¹及び400-800 cm⁻¹にブロードなピークが観測された。また、800-1000 cm⁻¹にもピークが見られた。200-400及び800-1000 cm⁻¹はPt-OHもしくはAl-OH等の水酸基に帰属されるピークであることが示唆された。一方、400-800 cm⁻¹に観測されたピークはPt-Hに由来するものと考えられる。

今後の予定;現在、Ptを担持していないAl₂O₃に水素を導入したものについても解析を行っている。この結果と5wt%Pt/Al₂O₃を比較することでAl₂O₃上のPt-Hに由来するピークを特定し、5wt%Pt/ACと比較することで担体が担持Ptに与える担体効果を明らかにする予定である。