

家電製品搭載用のPt担持系ゼオライト触媒の局所構造解析

松岡雅也¹(3827)、飯野 潔²(1179)、野村孝生³¹大阪府立大学大学院工学研究科物質系専攻応用化学分野, ²(財)高輝度光科学研究センター(JASRI),³松下電器産業株式会社松下ホームアプライアンス社技術本部電化住設研究所(三国)

1. 緒言

近年、住環境の改善の必要性が高まる中、室内の空気に含まれる微量のホルムアルデヒドやCOなどの有害物質を常温で効率よく環境調和的に酸化分解除去する触媒系の構築が望まれている。本研究では、低温で高効率に機能する家電製品搭載用の酸化触媒を開発する目的で、イオン交換法でPtをZSM-5ゼオライト上に固定化担持し、273KでのCOおよびメタノールの酸化反応における触媒活性とそれに及ぼす前処理条件の影響について検討した。また、ZSM-5ゼオライト中のPt種の価数と局所構造についてXAFS測定により検討した。

2. 実験

Pt/ZSM-5はNH₄/ZSM-5をPt(NH₃)₄Cl₂水溶液でイオン交換することにより調製した。触媒の前処理として、各温度(RT, 573, 673, 773, 973 K)で1時間空気中で焼成後、同温度で1時間真空排気処理を行った。反応は273 Kで1時間行い、反応生成物はガスクロで分析した。触媒のキャラクタリゼーションは拡散反射UV-Vis吸収、XAFS、FT-IR測定により行った。XAFS測定はBL19B2においてSi(111)分光結晶面を用い、透過法により行った。

3. 結果および考察

図1に各温度で真空排気処理したPt/ZSM-5のPt LIII-edge XANESおよびEXAFSのフーリエ変換を示す。573 K以下での温度領域で真空排気したPt/ZSM-5はXANES領域にPt²⁺イオンやPtイオンクラスターに基づく強いwhite line吸収を示す。また、EXAFSのフーリエ変換において、573 K以下で排気処理を行った試料では、1.7 Å付近にPt-O結合に基づくピークが観測されるが、773 K以上の温度領域で排気処理を行った試料では、2.7 Å付近にPt-Pt結合に基づくピークが観測される。この様に、排気処理温度を高くするにつれ、Pt²⁺がPt⁰クラスターへと還元されることがわかった。実際、高温で真空排気しきりたPt/ZSM-5触媒上にCOを導入すると2100 cm⁻¹付近にPt⁰-CO吸着種に帰属するピークが観測された。

図2にN₂OによるCOの酸化反応およびO₂によるメタノールの酸化反応における触媒活性の前処理温度依存性を示す。触媒活性は度の上昇とともに高くなり、その挙動はPt⁰-CO吸着種に基づくFT-IRピーク強度の前処理温度依存性と良い一致を示した。これらの結果から、N₂OによるCOの酸化反応とO₂によるメタノールの酸化反応ではPt⁰クラスターが反応活性種として重要な役割をなしていることがわかった。また、これらの反応はPt black上では進行しないことから、ZSM-5細孔内に担持された高分散状態のPt⁰クラスター上

で反応が進行することが示唆された。

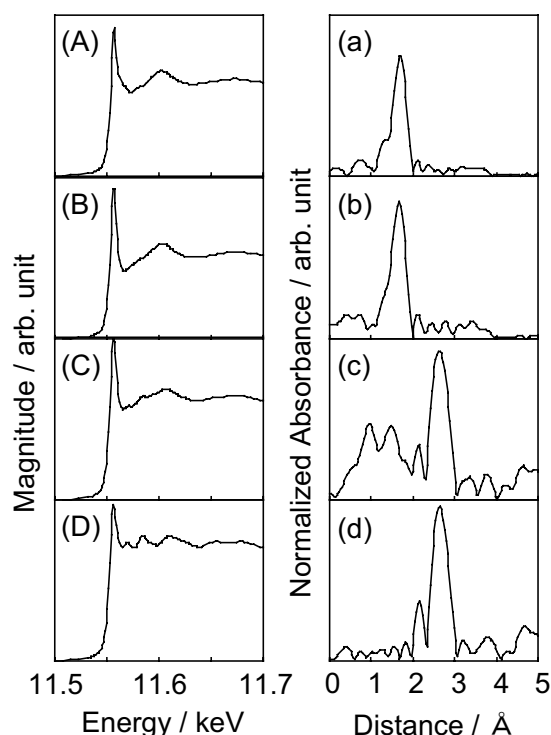


図1. 各温度で真空排気処理したPt/ZSM-5のPt LIII-edge XANESおよびEXAFSのフーリエ変換
排気温度 (K): (A, a) 273, (B, b) 573, (C, c) 773, (D, d) 973.

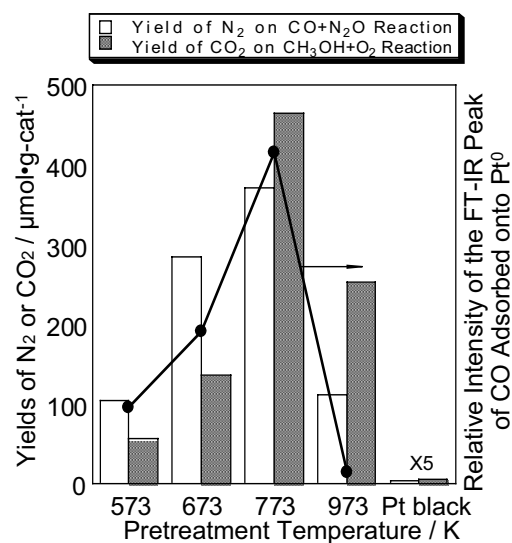


図2. Pt/ZSM-5上でのCOのN₂Oによる酸化反応とメタノールのO₂による酸化反応の収率とPt⁰-CO吸着種に基づくピーク強度に及ぼす前処理温度の影響。(反応温度: 273 K)