課題番号　　:2018A-E03

利用課題名（日本語）　:その場雰囲気での分散型 X 線吸収分光実験による Pd_xRu_{1-x} 固溶型合金ナノ粒子の一酸化窒素浄化機構解明

Program Title (English)　:Nitrous oxide purification mechanism on Pd_xRu_{1-x} solid solution nanoparticle studied by in-situ XAFS using dispersive optics

利用者名（日本語）　:宋哲昊 [1)], 坂田修身 [1)]

Username (English)　:C. H. Song[1)], O. Sakata[1)]

所属名（日本語）　:1) **国立研究開発法人 物質・材料研究機構**

Affiliation (English)　:1) NIMS

キーワード： Pd_xRu_{1-x} 固溶型合金ナノ粒子, 一酸化窒素浄化, 分散型 X 線吸収分光

1. 概要（Summary）

ロジウム(Rh)は産業上重要な元素(貴金属)であり、自動車の排ガス浄化用触媒に大部分が使用されている。しかし、Rh は稀少で高価なため、Rh に匹敵する性能をもち、Rh と置き換える事の出来る代替材料の開発が要求されている。最近、京大の北川グループによって、ナノサイズ化と化学的還元の手法を駆使することで、Rh よりも資源量が豊富な Pd と Ru が原子レベルで混合した固溶体合金ナノ粒子が合成された。これに対して、自動車排ガスの主成分である窒素酸化物(NOx)の浄化に対する触媒活性を調べたところ、開発した Pd-Ru ナノ粒子が Rh をしのぐ触媒活性を持つことが見出された。更に、この原因について密度汎関数理論に基づき解析したところ、Pd0.5Ru0.5 固溶型合金が Rh に非常によく似た電子的特徴を持つこと(図 1)が明らかになった。しかし、Pd と Ru の成分比及び温度を変化させた際の排ガス浄化に関する触媒活性の起源は、単純な電子的特徴のみでは説明することができない。したがって、PdxRu1-x 固溶型合金ナノ粒子の表面吸着状態・価数変化を正確に探ることは、排ガス浄化に関する触媒活性を理解することにとって非常に重要である。
本研究においては、多様な成分比の PdxRu1-x 固溶型合金ナノ粒子に対してその場 X 線吸収分光(XAFS)実験を行い、一酸化窒素浄化機構と表面吸着状態・価数変化との相関を明らかにすることが目的である。

2. 実験（目的,方法）（Experimental）

時間分解X線吸収分光測定装置、及び、その場 XAFS 測定用セルを用いて下記の実験を行う。Pd_xRu_{1-x} (x=0, 0.1, 0.3, 0.5, 0.7, 0.9, 1)固溶型合金ナノ粒子のその場 X 線吸収分光(XAFS)実験を行う。粉末試料を事前に押し固めてペレット成型する。ペレットはその場 XAFS 測定用セルに設置する。

(実験 A) 温度固定: CO/NO 雰囲気変動下での Pd と Ru の電子状態その場観察の温度条件は 200, 240, 320, 400°C にする。CO/NO 雰囲気変動と共に、時間分解 XAFS 測定を行う。
(実験 B) NO・CO 濃度固定: 常温から 600° C まで変化(10° C /min)しながら Pd と Ru の電子状態その場観察の NO:CO ガス条件は、0.8:1, 1:0.8 にする。

3. 結果と考察（Results and Discussion）

CO/NO 雰囲気変動による XAFS プロファイルの変化が Pd はほとんどないことを確認した。逆に Ru は確たる XAFS プロファイルの変化が観察された。今後、測定温度と成分比によるプロファイルの変化について解析する予定である。

4. その他・特記事項（Others）

なし