



第210回触媒化学研究センター談話会

演 題：新機能をもった PROX 触媒の開発

講演者：田中虔一 教授 (埼玉工業大学)

日 時：2006年11月14日 (火)

14:30-15:30

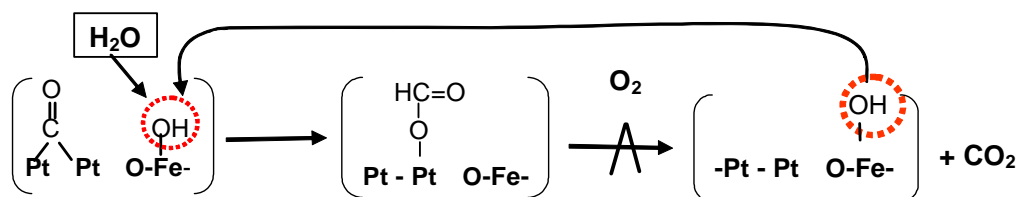
会 場：北海道大学創成科学研究棟

4階 セミナー室 04-213・214号室

要 旨：

Langmuir がCO 酸化反応について二つの反応機構、(i) $O(a) + CO(g)$, (ii) $O(a) + CO(a)$ を詳細に検討し、(i) が妥当な機構 (今日 Rideal-Eley 機構と呼ばれている) である (Trans. Faraday Soc., **17** (1921) 621) として以来、理論計算はもとより、実用触媒であれ well defined surface であれ、現象説明の基本はこの概念である。即ち、選択性は「競争吸着」か「競争反応」と言うことになる。PROX反応のような単純な反応でも、その基本となる素反応を考えると如何に触媒作用が分かっているかが分かる。

Auは微粒子になると活性になるが「活性とは何か」を本質的に説明しているわけではない。しかし、微粒子が触媒機能の本質であるとする話がいろいろ提案され、殆どの研究はそのことのくり返しである。我々は粒径の大きなAu/OxideやPt/Oxide を多量の FeOxで覆うとことでCOの酸化反応が室温でも起きるようになることを発見し、水素中の微量のCOを選択的に酸化する新PROX 触媒を開発した。DRIFT 赤外分光法による反応中間体のダイナミクス、同位体効果からFeOxで覆うと活性が飛躍的に向上する特異な触媒機能が明らかになった。その一つは、FeOx で覆うとLinear COが減少し反応性の高いBridge COが主吸着種となること、in-situ IRからCOの吸着は十分に速く、多量のFeOx を被せても吸着の阻害は起きない。この不思議な現象についてはprecursor 状態の寄与を示唆する。しかし、最も重要な特性はCOの酸化反応が H_2 , H_2O により著しく促進されることであり、In-situ DRIFT IR による中間体のダイナミクスから H_2O の存在によりformate を中間体とする新しい反応経路での CO_2 が生成優先することが分かった。しかし、shift 反応 ($H_2O + CO \rightarrow CO_2 + H_2$) は全く起きないことからshift 反応は異なる中間体を経て起きると考えられ、これまでの混乱が理解できる。提案した反応機構では H_2O 分子が formate の生成と分解を促進するmolecular Catalyst として働いていることが分かる。



《連絡先》触媒化学研究センター 機能材料設計分野 (上田)・機能性錯体分野 (福岡)
(TEL: 011-706-9164, 9160)

主催：触媒化学研究センター