

課題番号 :2022B-E05
利用課題名 (日本語) :In-situ XAFS による CO ガス環境下における Pt 系触媒の H₂-O₂ 反応機構解明研究
Program Title (English) :Elucidation of H₂-O₂ reaction mechanism of Pt-based catalyst under CO gas environment by in-situ XAFS
利用者名(日本語) :田中裕久¹⁾、稲川康平¹⁾、松村大樹²⁾、辻卓也²⁾、岩田宗悟¹⁾、青谷拓朗¹⁾、浦野純乃介¹⁾、上垣伸弥¹⁾、上野竜聖¹⁾
Username (English) :H. Tanaka¹⁾, K. Inagawa¹⁾, D. Matsumura²⁾, T. Tsuji²⁾, S. Iwata¹⁾, T. Aotani¹⁾, J. Urano¹⁾, S. Uegaki¹⁾, R. Ueno¹⁾
所属名(日本語) :1) 関西学院大学大学院理工学研究科 2) 日本原子力研究開発機構
キーワード : Metal nanoparticle catalyst, Cerium oxide, hydrogen oxidation, CO poisoning, X-ray absorption spectroscopy

1. 概要 (Summary)

本研究では原子力安全の重要基盤技術における、シビアアクシデント時の溶融燃料とコンクリートとの相互作用(MCCI)によって発生する CO ガスによる触媒被毒に注目した。そこで、各種 Pt 触媒に対する担体による CO ガスの影響と反応メカニズムを解明するために「その場」XAFS 測定を行った。

2. 実験(目的,方法) (Experimental)

CO ガスの吸着と脱離のメカニズムを解明し、Pt 触媒の構造の違いが反応性の違いにどのように影響を与えているのかを明らかにし、被毒成分によって H₂-O₂ 反応が阻害されない適切な担体材料を探索する。Si(422)結晶を湾曲させたポリクロメーターを Laue 配置で Pt L III-edge(11.560 keV)近傍のエネルギーを持つ X 線を 250eV 程度の幅で検出する。検出器には蛍光体と CCD カメラを用い、蛍光体に白色 X 線が当たるように配置することで発生した可視光を CCD カメラにて記録した。測定に際しては、毎測定の最初に白色 X 線の強度と Pt 箔の XAFS スペクトルを測定した。実験では、乾燥雰囲気と湿潤雰囲気の比較を行い、湿潤条件の場合、測定ガスは露点発生器にて露点 30°C に制御することで、室温測定では相対湿度が 100%程度の環境を再現した。乾燥ガスと湿潤ガスでは配管の長さのためガスの検出にタイムラグがおおよそ 20 s~30 s 程度生じるため、時間補正を行った。測定を行う際には CO ガス共存下において水素ガスと酸素ガスをそれぞれ 100 秒間ずつ交互に試料に導入し、測定を行った。

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

ガス切り替えに対する Pt 触媒の XAFS スペクトル変化としての応答速度に着目すると、O₂/H₂ 交互フローにおいてはどの Pt 触媒でも XAFS スペクトルの変化の応答が速やかに行われているが、O₂/CO 交互フローの場合、Pt/Al₂O₃ 触媒において、O₂ 導入後の peak shift 及び peak intensity の変化がガス切り替えに対して大きく遅れていることが観測された。

Pt/Al₂O₃ における O₂/H₂ cyclic flow の結果を見ると peak shift において正方向へのわずかなシフトが観察された。O₂ 導入後、peak intensity が上がり続けている。O₂/CO cyclic flow では O₂ から CO への切り替え時に、peak shift の正のシフトが観察された。

また、200 s にて O₂ 導入後、peak intensity で変化が観察されないが、これは完全に還元前処理が行われなかったことを示している。

4. その他・特記事項 (Others)

(1)共同研究:日本原子力研究開発機構・松村大樹博士、辻卓也博士

(2)外部競争的研究資金:本研究は、JST SICORP、JPMJSC21C3 の支援を受けたものです。

(3)技術支援者への謝辞:

BL14B1 にて in-situ DXAFS ビームラインを構築していただき、これまで見ることはできなかった触媒上の吸着種を観察できるようになり、心から感謝申し上げます。

日本原子力研究開発機構 松村大樹さま、辻卓也さまのご尽力とご支援に感謝を申し上げます。併せていつも

研究室の学生たちをご指導いただき謹んで御礼申し上げます。