

課題番号 : 2019A-E04
利用課題名 (日本語) : 放射線 X 線吸収分光によるメタノール合成触媒反応機構の研究
Program Title (English) : Structure of the methanol synthesis catalyst determined by in situ XAFS
利用者名 (日本語) : 久古陽一¹⁾, 田沢勝¹⁾, 清水甫¹⁾, 荻野英明¹⁾, 岩崎晃聖¹⁾, 堀井力城¹⁾, 松村大樹²⁾, 辻卓也²⁾
Username (English) : Y. Kyuuko¹⁾, M. Tazawa¹⁾, H. Shimizu¹⁾, H. Ogino¹⁾, K. Iwasaki¹⁾, R. Horii¹⁾, D. Matsumura²⁾, T. Tsuzi²⁾
所属名 (日本語) : 1) 三菱ガス化学株式会社, 2) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
Affiliation (English) : 1) Mitsubishi Gas Chemical, Co. Ltd., 2) Japan Atomic Energy Agency
キーワード :

1. 概要 (Summary)

SPRING-8 内 JAEA ビームライン BL14B1 において、銅系メタノール合成触媒(CuO-ZnO-Al₂O₃)中の触媒金属の局所構造及び電子状態について放射光 X 線吸収スペクトル微細構造(XAFS)測定を実施する。種々のガス雰囲気及び温度条件を制御した「その場」測定により、触媒反応メカニズムを解明する。今回は触媒の構成成分の一つである ZnO が他の主成分である CuO に及ぼす影響について調査した。

2. 実験(目的,方法) (Experimental)

測定試料は調製した CuO-ZnO-Al₂O₃ のスラリーに SiO₂ を添加し、乾燥・焼成を行った CuO-ZnO-Al₂O₃-SiO₂ 触媒とした。ZnO の影響を見るために、比較として ZnO 抜きで調製を行った CuO-Al₂O₃-SiO₂ 触媒についても測定を行った。

各粉末状触媒を KBr で希釈し、ペレット状に圧縮成形し、装置に導入した。測定温度は 250°C とし、He, 10%H₂/He, 100%CO₂ の各種ガス雰囲気下で「その場」XAFS 測定を実施した。

利用装置 :

Spring-8 内 JAEA ビームライン BL14B1

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

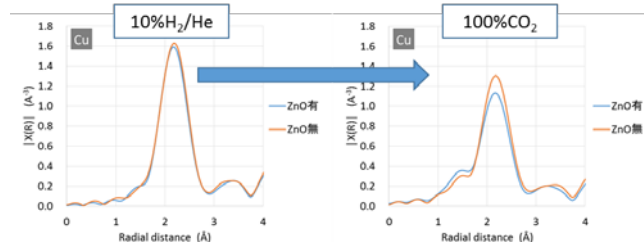
Fig. 1 に 10%H₂/He 導入時及び、100%CO₂ 雰囲気にて切り替えて測定した Cu-K 端の EXAFS 振幅を示す。

10%H₂/He 導入時、いずれの試料も 2.2 Å 付近に 0 価の Cu に由来のピークを観測。いずれの試料も Cu が還元状態で存在することが分かる。CO₂ 導入により

2.2 Å のピーク強度が減少、新たに 1.5 Å 付近にショルダーピークが観測された。このショルダーピークは Cu-O 結合に由来するものであり、CO₂ 導入により Cu が酸化されたことが分かる。スペクトルの変化量は ZnO 有の試料の方が大きく、ZnO により Cu が酸化しやすくなっていることが明らかとなった。

ZnO がメタノール合成反応の主活性種である Cu の酸化特性に影響を及ぼすことが明らかとなった。メタノール合成活性との相関性については今後検討予定。

Fig. 1 Cu-K 端フーリエ変換 EXAFS 振幅



4. その他・特記事項 (Others)

なし