

課題番号 :2023B-E02
利用課題名 (日本語) :In-situ XAFS による CO ガス環境下における Fe 添加貴金属触媒の H₂-O₂ 反応機構
解明研究
Program Title (English) :Elucidation of H₂-O₂ reaction mechanism of Fe added precious metal catalyst under
CO gas environment by in-situ XAFS
利用者名(日本語) :田中裕久¹⁾、青谷拓朗¹⁾、松村大樹²⁾、辻卓也²⁾、上垣伸弥¹⁾、中山智仁¹⁾、神処一樹¹⁾、
濱田翔太¹⁾
Username (English) :H. Tanaka¹⁾, T. Aotani¹⁾, D. Matsumura²⁾, T. Tsuji²⁾, S. Uegaki¹⁾, T. Nakayama¹⁾,
I. Jinjo¹⁾, S. Hamada¹⁾
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) 目的・用途・実施内容

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(MCCD)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 Fe 添加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、Fe 添加による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 Fe K-edge(7111.2 eV)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 Fe 箔の XAFS スペクトルを測定した。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 Fe 添加 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 Fe 添加 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、PtFe/CZY、PtFe/CZY-L において、O₂ 導入後の edge energy の変化がガス切り替えに対して観測されなかった。同様に O₂ 導入後の変化を PtFe/Al₂O₃ で見てみると、ガス切り替えの回数が増えるにつれ、変化が小さくなっていることが見て取れた。

O₂/H₂+CO 交互フローに着目すると、PtFe/CZY においては、O₂ 導入後の edge energy は少しではあるが観測された。また、PtFe/CZY-L においては O₂/CO 交互フロー時と同様に変化が見られなかった。一方、PtFe/Al₂O₃ では、O₂/CO 交互フロー時の結果を見ると、ガス切り替えの回数が増えても edge energy の変化量は変わらなかった。ラボの実験において、PtFe/CZY-L、PtFe/CZY、PtFe/Al₂O₃ の順に CO 共存下における水素酸化反応を促進するため、Fe は O₂ を供給する重要な成分であり、CO 酸化反応に必要な O₂ の供給源として有効であることと、Fe 添加により、触媒の活性点である貴金属粒子上への CO 吸着を軽減する効果があると考えられる。また、peak shift において正方向へのわずかなシフトが観察された。H₂ フローであるため、H₂ の吸着と考えられる。

4. その他・特記事項 (Others)

本研究は、JST SICORP、JPMJSC21C3 の支援を受けたものです。