

担持 Au 触媒による H₂-D₂ 交換反応

(東京都立大学¹・水素エネルギー社会構築推進センター²) ○奥住 雄一郎¹・中川 拓海¹・三浦 大樹^{1,2}・宍戸哲也^{1,2}

H₂-D₂ exchange reaction over supported gold catalysts (¹*Tokyo Metropolitan university*, ²*Research center for Hydrogen Energy-based society*) ○ Yuichiro Okuzumi¹, Takumi Nakagawa¹, Hiroki Miura^{1,2}, Tetsuya Shishido^{1,2}

The catalytic conversion of CO₂ with green hydrogen to value-added products such as methanol and formic acid is an important technology to achieve a carbon-neutral society. Supported gold catalysts exhibit higher TOF values for methanol production by CO₂ hydrogenation at lower temperatures than conventional copper-based catalysts. Based on the kinetic analysis, we proposed that the rate-determining step in methanol synthesis is the hydrogenation of intermediates (HCOO- to CH₃O-). In this study, the H₂-D₂ exchange reaction was performed to evaluate the hydrogen activation ability of supported gold catalysts with different gold particle sizes, and the correlation between the hydrogen activation ability and the activity for the methanol synthesis was discussed.

The order of activities for the H₂-D₂ exchange by supported gold catalysts with different gold particle sizes on the same support was consistent with that for methanol synthesis. Moreover, these activities were correlated with the length of the perimeter between gold and support. This result strongly suggests that the perimeter interface between the gold and the support is the main active site for both the H₂-D₂ exchange and methanol synthesis.

Keywords : *Hydrogenation of carbon dioxide; H₂-D₂ exchange reaction ;Methanol, Supported gold catalyst*

カーボンニュートラル社会実現のために大気や排ガスから回収した CO₂ を再生可能エネルギー由来のグリーン水素と反応させメタノール(CH₃OH)等の有用化製品に転換する触媒技術は重要である。担持金触媒は、CO₂ 水素化による CH₃OH 合成反応に対して、工業的に用いられている銅系触媒より低温域でメタノール生成に対する高い TOF 値を示す。また、このとき CH₄ をほとんど生成しない^{1,2}。我々は、担持金触媒を用いた速度論的検討から、CH₃OH 合成反応での律速段階が中間体の水素化過程であると推定している。本研究では、水素重水素交換反応 (H₂-D₂ 交換反応) によって金粒子径を変化させた担持金触媒による水素の活性化能を評価し、水素の活性化能と CH₃OH 合成反応の活性との相関を考察した。

同一の担体で金粒子径が異なる担持金触媒による H₂-D₂ 交換反応、CH₃OH 合成反応の活性に対する活性の序列は一致しており、いずれの反応についても金と担体との接合界面の量に相関していた。この結果は、金と担体との接合界面がいずれの反応についても主な活性点であることを示唆している。

1)H. Sakurai et al., *Appl. Catal. A* **1993**, 102, 125 – 136.

2)中川, 三浦, 宍戸, 第 130 回触媒討論会 1G22.