

逆水性ガスシフト反応における Pd/SrTi_{1-x}Mn_xO₃ 触媒への第二金属添加効果

(京大院工¹・京大 ESICB²・京大福井センター³) ○後藤 啓太¹・小林 みのり¹・浪花 晋平¹・井口 翔之¹・田中 庸裕^{1,2,3}・寺村 謙太郎^{1,2,3}

Effect of secondary metal addition to Pd/SrTi_{1-x}Mn_xO₃ catalysts for reverse water gas shift reaction (¹*Graduate School of Engineering, Kyoto University*, ²*ESICB, Kyoto University*, ³*Fukui Institute for Fundamental Chemistry, Kyoto University*) ○Keita Goto,¹ Minori Kobayashi,¹ Shimpei Naniwa,¹ Shoji Iguchi,¹ Tsunehiro Tanaka,^{1,2,3} Kentaro Teramura^{1,2,3}

The reverse water gas shift (RWGS) reaction, which produces CO and H₂O from CO₂ and H₂, is a promising technology to synthesize various chemical products such as synthetic fuels. We previously reported that SrTi_{1-x}Mn_xO₃, in which Mn substituted a part of Ti sites in SrTiO₃, exhibited high activity for the RWGS.¹⁾ The reaction over this material proceeded through the reverse Mars-van Krevelen mechanism, in which H₂ reduced lattice oxygen to form oxygen vacancies and the vacancies dissociate CO₂ into CO. Although the loading of Pd on SrTi_{1-x}Mn_xO₃ promoted the formation of oxygen vacancies and thus enhanced the activity for the RWGS, it also promoted the formation of CH₄ as a side reaction. In the present study, we found that the addition of Ag to Pd-loaded SrTi_{1-x}Mn_xO₃ (Pd/SrTi_{1-x}Mn_xO₃) enhanced the selectivity toward CO evolution. When the reaction test was performed at 873 K with Pd/SrTi_{0.8}Mn_{0.2}O₃, both CO and CH₄ were formed with 52% and 11% yields, respectively, leading to 83% selectivity toward the formation of CO. In contrast, the reaction over SrTi_{0.8}Mn_{0.2}O₃ co-loaded with Pd and Ag afforded CO with 62% yields and 98% selectivity.

Keywords: *Catalyst; Reverse Water Gas shift; oxygen vacancy*

CO₂ と H₂ から CO と H₂O を生成する逆水性ガスシフト反応 (RWGS) は、大気中の CO₂ を合成燃料など様々な化学製品に変換することができる有用な反応である。我々はこれまでに、ペロブスカイト型酸化物である SrTiO₃ の一部の Ti を Mn で置換した SrTi_{1-x}Mn_xO₃ が、RWGS に高い活性を示すことを報告した¹⁾。SrTi_{1-x}Mn_xO₃ 触媒では、H₂ が格子酸素を引き抜いて生成する酸素空孔が CO₂ を CO に解離する逆 Mars-van Krevelen 機構で反応が進行した。SrTi_{1-x}Mn_xO₃ に Pd を添加するとさらに活性は向上したが、副生成物として CH₄ が生成したことが問題である。本研究では、Pd 添加 SrTi_{1-x}Mn_xO₃ (Pd/SrTi_{1-x}Mn_xO₃) に Ag を添加すると、RWGS が選択的に進行することを見出した。873 K において 5wt% の Pd を添加した Pd/SrTi_{0.8}Mn_{0.2}O₃ を用いた場合、CO と CH₄ が 52% と 11% の収率で生成し、CO への選択率は 83% であった。一方 Pd と Ag を添加した試料を用いると、CO が 62% の収率で生成し、選択率は 98% であった。

- 1) H. Matsuo, M. Kobayashi, S. Naniwa, S. Iguchi, S. Kikkawa, H. Asakura, S. Hosokawa, T. Tanaka, and K. Teramura, *J. Phys. Chem. C*, **2023**, 127, 19, 8946–8952.