



## NH<sub>3</sub>-SCR 反応中における MFI 型ゼオライト中の Cu イオン交換サイトの特定

植田 格弥<sup>1</sup>, 大山 順也<sup>1,2</sup>, 薩摩 篤<sup>1,2</sup>  
<sup>1</sup>名古屋大学工学研究科, <sup>2</sup>京都大学 ESICB

キーワード：NH<sub>3</sub>-SCR, MFI 型ゼオライト, Cu イオン交換サイト, Rietveld 解析

### 1. 背景と研究目的

ディーゼル自動車や工場から排出される NO<sub>x</sub> を低減するシステムとして, Cu イオン交換ゼオライトを触媒として用いた NH<sub>3</sub>-SCR (Selective Catalytic Reduction) が広く普及している. 特に近年は, 排ガス規制の強化から, 低温域での触媒活性の向上が強く望まれている. SPring-8 BL14B2 での in-situ XAFS 測定から, MFI 型ゼオライト内の Cu には酸化されやすい種と酸化されにくい種が存在することが分かった<sup>1</sup>. ゼオライト骨格が Cu の反応性に与える影響を調べるために, XRD 回折パターンの Rietveld 解析により Cu イオン交換サイトの特定を試みた.

### 2. 実験内容

X 線回折測定は, BL5S2 にて, Debye-Scherrer 光学系および二次元半導体検出器(PILATUS 100K)を用いた. 測定試料は, H<sup>+</sup>-MFI および 50% Cu をイオン交換させた MFI である. 試料は, O<sub>2</sub> 流通下 500 °C で前処理した後に, キャピラリ (直径 0.5 mm) に入れて大気に曝さずに封止した.

Rietveld 解析は RIETAN-FP<sup>2</sup> を使用し, プロファイル関数には虎谷の分割擬 voigt 関数を用いた. Si あるいは Al を T とし, T-O, O-O の距離および角度 ∠OTO に制約を課して各パラメータの精密化を行った.

### 3. 結果および考察

Cu イオン交換前の H<sup>+</sup>-MFI について Rietveld 解析を行い, 格子定数, 各原子座標の最適化を行った ( $R_{wp}=4.75$ ). この構造を基に, 50%イオン交換した後の Cu-MFI を, Cu を含まないで Rietveld 解析を行い, 電子密度分布を計算した. さらに, VESTA により仮定したモデル (Cu を含まない MFI) と実際の構造 (Cu を含んだ MFI) の電子密度分布差 (差フーリエ合成) を可視化した. Fig. 1 に差フーリエ合成図を 010 面で切断したものを示した. 色が赤に近いほどモデルと実際の構造の電子密度差が大きいことを示している. 電子密度差が大きい部分が MFI 型ゼオライトの straight channel ではなく, sinusoidal channel ([100] 方向) に集まっており, この周辺に Cu イオンが存在することが示唆された. 今後は Cu イオンを含めた Rietveld 解析から Cu の占有率を算出し, 酸化されやすい Cu 種分布の定量的な解析を行う予定である.

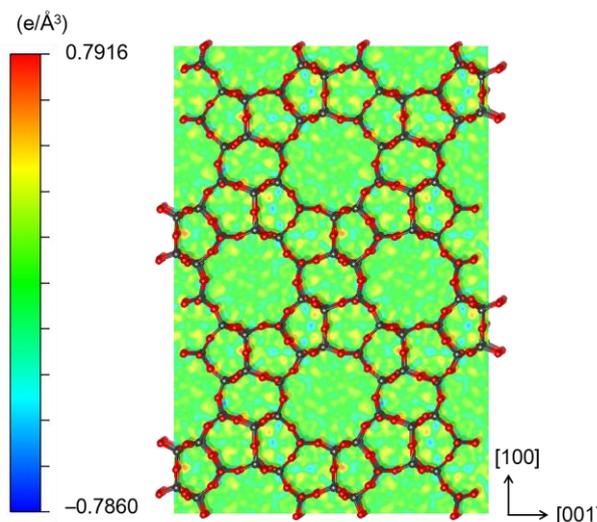


Fig. 1 Cu-MFI の差フーリエ合成図

### 4. 参考文献

1. K. Ueda, J. Ohyama and A. Satsuma, *Chem. Lett.*, 2017, **46**, 1390.
2. F. Izumi and K. Momma, *Solid State Phenom.*, 2007, **130**, 15.