

担持白金触媒上での PROX 反応におけるメソポーラスシリカの促進効果

おしおただし きむらじゅんいち さかもと ゆずる いちかわ まさる ふくおか あつし
置塩直史¹・木村潤一¹・坂本 謙¹・市川 勝²・福岡 淳^{2,*}

¹北海道大学大学院理学研究科 ²北海道大学触媒化学研究センター

*連絡先：fukuoka@cat.hokudai.ac.jp, 電話・FAX 011-706-9160

要旨:本研究では、燃料電池用水素を精製するための新触媒を開発し、反応機構を解明しました。

メソポーラスシリカは 1990 年代に日本と米国のグループがそれぞれ独立に開発したもので、2-10 ナノメートル (nm) 直径の細孔が規則的に配列したものです(図 1)。これまで触媒担体として利用した多くの研究がありますが、通常のシリカに比べて大表面積であること以外に、担体としての効果については未解明のままです。今回、我々は、燃料電池用水素に含まれる微量一酸化炭素 (CO) を二酸化炭素 (CO₂) として酸化除去する反応 (通称 PROX 反応) において、白金ナノ粒子 / メソポーラスシリカが 80 以下の低温で高活性・高選択性を示すことを見つけるとともに、その担体効果を解明しました。

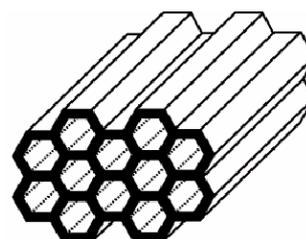


図 1. メソポーラスシリカ

触媒はメソポーラスシリカ FSM-16 (細孔径 2.7nm) の細孔内で、白金ナノ粒子 (粒子径 2.5nm) を合成したものです(図 2)。この白金ナノ粒子/FSM-16 触媒を用いて PROX 反応を行うと、40~80 度でも CO を 100%除去できることが分かりました(図 3 青線)。図 3 で現行法を含む他の触媒では CO 転化率 20%以下なので、本触媒が高活性であることが明確に示されています。さらに、この触媒では CO 酸化の選択率が 100%であるので、反応ガス中の水素を消費することはありません。PROX 反応で転化率・選択率ともに 100%を示す数少ない触媒の一つで

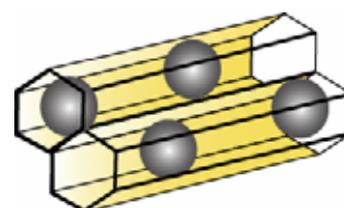


図 2. 白金ナノ粒子 / FSM-16 触媒

す。また PEM 燃料電池の作動温度 80 度で PROX 反応を行うことが可能となるので、冷却プロセスの数を減らせるという工業的な利点もあります。

通常のシリカ担持白金は低活性なのに、同じ化学組成でも FSM-16 担持白金は高活性なので、活性向上の要因は規則的細孔構造です。そこで、CO、水素、酸素の同位体を用いた赤外分光法により、反応機構を検討しました。その結果、酸素は FSM-16 担体上に吸着し、格子酸素が移動して CO₂ に取り込まれることを確認しました。この格子酸素の移動により触媒活性が向上する反応機構を明らかにしました。シリカは安定で不活性な担体として知られていますが、規則的細孔構造をとると、室温でも格子酸素の移動が起こります。メソポーラスシリカの触媒担体としての促進効果を分子レベルで解明した初めての報告です。今後の選択酸化反応の触媒設計指針になると考えます。

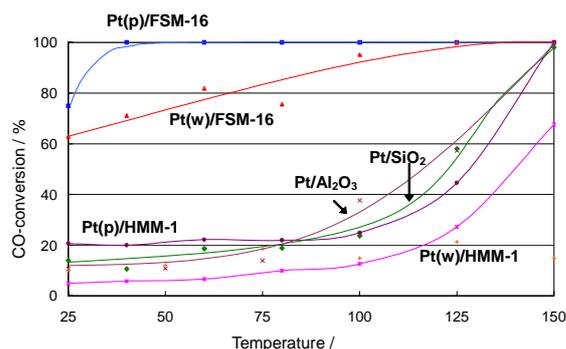


図 3. 担持白金触媒による PROX 反応における CO 転化率の温度依存性

参考文献：A. Fukuoka, J. Kimura, T. Oshio, et al., 投稿中。