

回分式有機ハイドライド脱水素反応における 炭素担持 Pt 触媒のシリカ被覆効果

(徳島大*1・九州大*2) ○中川敬三*1・谷本裕亮*1・外輪健一郎*1・杉山 茂*1・竹中 壮*2・岸田昌浩*2

水素貯蔵媒体として有機ハイドライドが注目されており、有機ハイドライドの脱水素反応により水素を供給することが可能となる。この反応は吸熱反応であるため高温ほど有利となるが、高温反応下では一般的に用いられる炭素担持 Pt 触媒上の Pt 粒子がシンタリングしてしまうため、活性の低下が問題となる。近年シリカ層で被覆した金属触媒が優れた耐久性を示すことが報告されており、このシリカ層の細孔径や表面特性を制御することが出来れば、さらなる触媒機能の発現が期待できる。本研究では、シクロヘキサン脱水素反応に官能基を含むシリカ層で被覆した触媒を用いて、高温処理下においても高い水素発生効率を保持することに成功した。

官能基を含まないシリカ層で被覆した触媒ではほとんど活性が得られなかったのに対し、メチルトリエトキシシラン(MTES)を用いてメチル基を含むシリカ層で被覆したカーボンブラック担持 Pt 触媒 (SiO₂(MTES)/Pt/CB) では約 60%の水素発生効率を得られた。シリカ層にメチル基を付与したことによりシリカ層にマイクロ孔が形成され、シクロヘキサンの拡散性が向上したことが考えられる。

シクロヘキサン脱水素反応

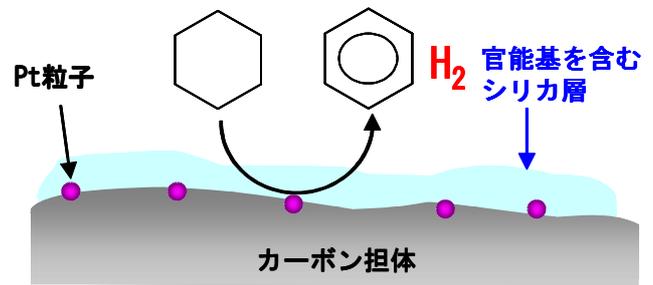


図 1 に異なる条件で加熱処理した触媒を用いた時の 150 分後の水素発生効率を示した。加熱処理をより厳しい条件にした場合、シリカ層で被覆されていない Pt/CB では 700°C10h で大幅に効率が減少した。一方、SiO₂(MTES)/Pt/CB では 700°C10h の加熱処理後においても約 55%の活性が保持され、Pt/CB を大きく上回る結果となった。加熱処理後の TEM 像において、Pt/CB では Pt 粒子のシンタリングが見られたのに対し、SiO₂(MTES)/Pt/CB では大きな変化が見られなかった。つまりこの結果から、Pt 粒子がシリカ層で被覆されるとシンタリングが抑制され、さらにシリカ層内のメチル基により形成されたマイクロ孔も保持されるため、高い活性を示したと考えられる。

このように有機ハイドライド脱水素反応においてメチル基を含むシリカ層で被覆した炭素担持 Pt 触媒は高温処理後においても高い水素発生効率を得られ、安定な水素供給が可能であることが示された。

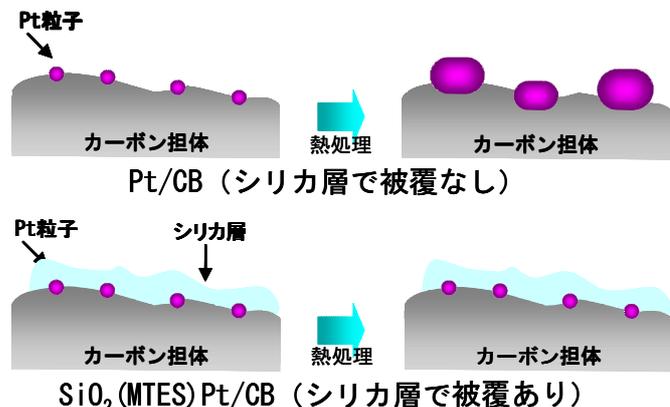
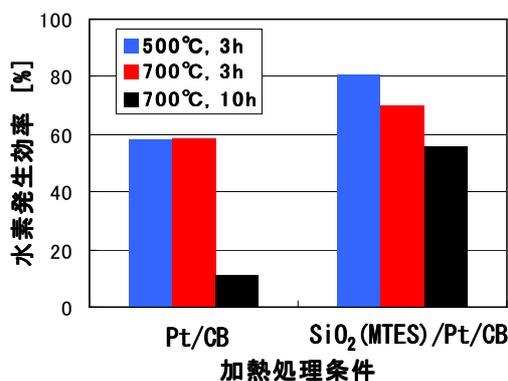


図 1. 加熱処理条件を変化させた Pt/CB 及び SiO₂(MTES)Pt/CB の触媒活性とシリカ被覆によるシンタリング抑制効果のイメージ図