

26aD56P

多孔質シリカを担体とした水 - 水素化学交換反应用触媒の調製

Preparation of Catalyst with Porous Silica Supports for Water-Hydrogen Chemical Exchange

杉山貴彦, 森田洋平

Takahiko Sugiyama, Yohei Morita

名古屋大学大学院工学研究科

Graduate School of Engineering, Nagoya University

1. 諸言 水 - 水素化学交換法に用いる触媒として、疎水化した多孔質シリカに白金を担持させたものが開発されている[1]. 液相化学交換法にこの触媒を用いる場合、特に高い疎水性が必要とされるが、疎水化度と触媒活性との関係は十分に良くわかっていない. 本研究は、直鎖アルキル基の炭素数の異なるシランカップリング剤を用いて疎水化度の異なる触媒を複数調製し、疎水化度と触媒活性との関係を、トリチウム水を用いた水素同位体交換実験により調べることが目的とした.

2. 実験 担体には多孔質シリカ (CARiACT Q-50, 富士シリシア化学製) を用いた. この担体 20 g を、直鎖アルキル基を構造に含むシランカップリング剤 (信越化学工業製または東京化成製) 10 g と蒸留水 20 g, エタノール 180 g の混合溶液に 20 時間浸漬し、その後 120°C で 20 時間乾燥させることで疎水化した. 白金前駆体としてヘキサクロロ白金(IV)酸六水和物 (和光純薬, 特級) を用い、含浸、蒸発乾固、水素還元により、白金を担持した. 調製した触媒について、大気圧下 70°C の条件で、約 4 MBq/kg のトリチウム水を用いて、水素ガスと水蒸気間で水素同位体交換実験を行った.

3. 結果 調製した触媒を粉砕した後、王水で溶解し、溶液中の白金量を ICP-AES 法により定量したところ、いずれの触媒でも、触媒 1 g あたり約 5 mg であった. また、白金微粒子の粒子径を XRD 測定により求めたところ、いずれの触媒でも約 9 nm であった. 水素同位体交換実験の結果より、式(1)に示す触媒層の反応効率 η を求めた.

$$\eta = (y_{in} - y_{out}) / (y_{in} - y_{eq}) \quad (1)$$

ここで、 y は水蒸気中の HTO のモル分率、添え字の in, out, eq はそれぞれ触媒層入口、触媒層出口、平衡到達時を示す. 反応効率 η は、実験開始

後 30 時間にわたり一定値を維持し、飽和湿潤条件化で触媒活性が持続することを確認した. 次に、水素と水蒸気の混合ガスの流量を変えて行った水素同位体交換実験の結果から、式(2)に含まれる反応速度定数を評価した.

$$1 - \eta = \exp(-kt_0) \quad (2)$$

ここで、 t_0 は混合ガスが触媒層を通過する際の平均滞留時間である. 結果を図 1 に示す. 反応速度定数は、直鎖アルキル基の炭素数が 16 までの範囲において、炭素数とともに単調に増加する

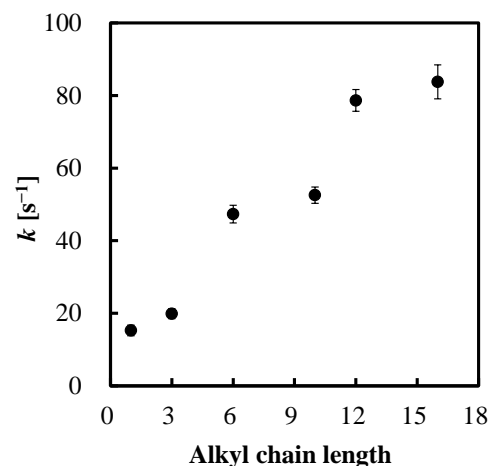


図 1 直鎖アルキル基の炭素数と反応速度定数の関係

ことが明らかとなった.

4. 結言 疎水化した多孔質シリカを担体として水 - 水素化学交換反应用の白金触媒を調整した. 担体の疎水化に用いるシランカップリング剤の直鎖アルキル基の炭素数の増加に伴い、触媒の水素同位体交換性能が向上することが明らかになった.

謝辞 本研究の一部は核融合科学研究所共同研究 (NIFS13K0BA029) の援助を受けて行った.

[1] 岩井保則他, 化学, 70, 35 (2015).