

Cu-Al-Ox系COシフト反応用触媒における水蒸気処理の影響の検討

(北陸先端大*1・京都大*2)○西村俊*1・海老谷幸喜*1・穴戸哲也*2・田中庸裕*2

固体高分子型燃料電池（PEFC）は水素と酸素を燃料に動く発電システムで、従来の大規模発電システムよりも高いエネルギー変換効率（理論効率 83%）を有し、有害な排気ガス等も出ないことから、コージェネレーションシステムなどへの利用が期待されている。燃料となる酸素は空気中から、水素は都市ガスや灯油といった炭化水素類から（例えば $2\text{CH}_4 + \text{O}_2 \rightarrow 4\text{H}_2 + 2\text{CO}$ など）、必要な時にそれぞれ取り出す方法が検討されている。しかし、炭化水素類から水素を取り出す場合、水素と同時に生じる一酸化炭素（CO）が燃料電池の白金電極を汚染し、燃料電池の性能を低下させてしまうことが問題となっている。また、家庭などの小規模発電源に利用する場合、頻繁な起動停止により使用する触媒に大きな負担が掛かり、その触媒性能が著しく低下してしまうという新たな課題も生じている。

我々は、優れたCO低減法の一つであるCOシフト反応（ $\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2 + \text{CO}_2$ ）用の触媒として、様々なCu-Al-Ox系酸化物触媒を調製し、模擬的な起動停止処理に対する触媒性能の変化を検討してきた⁽¹⁾。その結果、CuとAlが均一に混ざり合った複合体を焼成したCu-Al-Ox酸化物触媒が、模擬的な起動停止に対して優れた耐久性を有することを発見した（図1）（実証試験においても起動停止処理1000回以上の耐久性を示した）。これは現在主流となっているCu/ZnO/Al₂O₃系酸化物触媒の耐久性を凌ぐ性能であり、燃料電池システムの諸問題を解決できる新規触媒系として期待される。

これまでの検討から、Cu-Al-Ox触媒が優れた耐久性を示す要因として、触媒中に均質にあるAl種が水蒸気によって非結晶（アモルファス）から針状構造へ変化することで（図2）、主な活性サイトであるCu種の周囲に網目のような構造を作り、Cu種の凝集や優れた酸化還元特性の低下を抑制する効果が発現していると考えている。現在、SPring-8（BL01B1）等を用いたその場観察測定により、活性種である銅の状態変化について更なる検討を進めている。

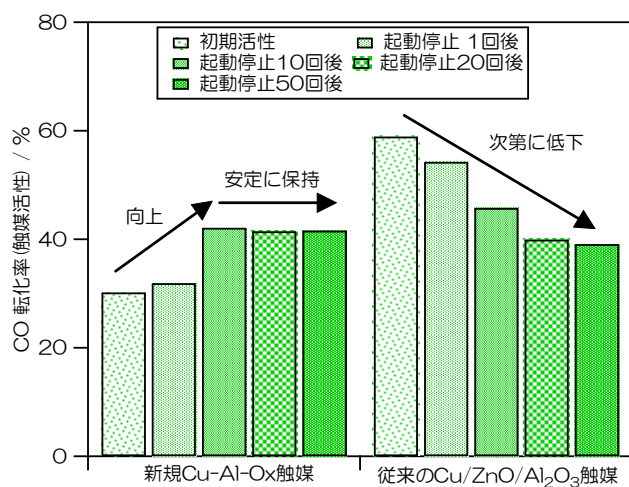


図1 起動停止処理に対する触媒活性の変化

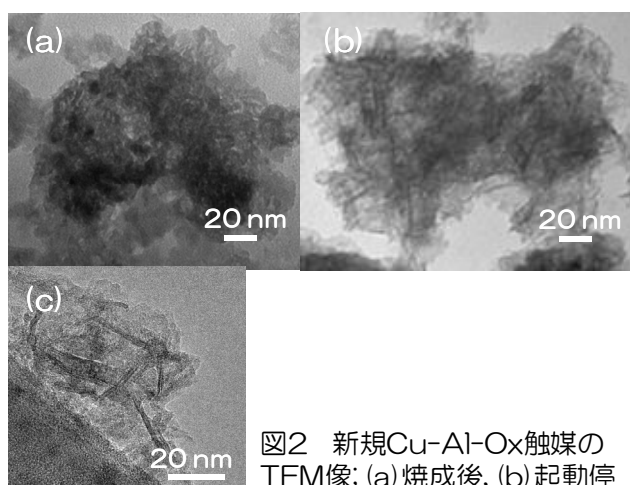


図2 新規Cu-Al-Ox触媒のTEM像; (a)焼成後, (b)起動停止50回後, (c) 像(b)の拡大図

(1) T. SHISHIDO, S. NISHIMURA, Y. YOSHINAGA, K. EBITANI, K. TERAMURA, T. TANAKA, *Catalysis Commun.*, **2009**, 10, 1057.