

PdAgCr 三元系ナノ粒子触媒によるギ酸からの高効率水素生成反応

(阪大院工¹・京大 ESICB²) ○藤田 達也¹・森 浩亮^{1,2}・山下 弘巳^{1,2}

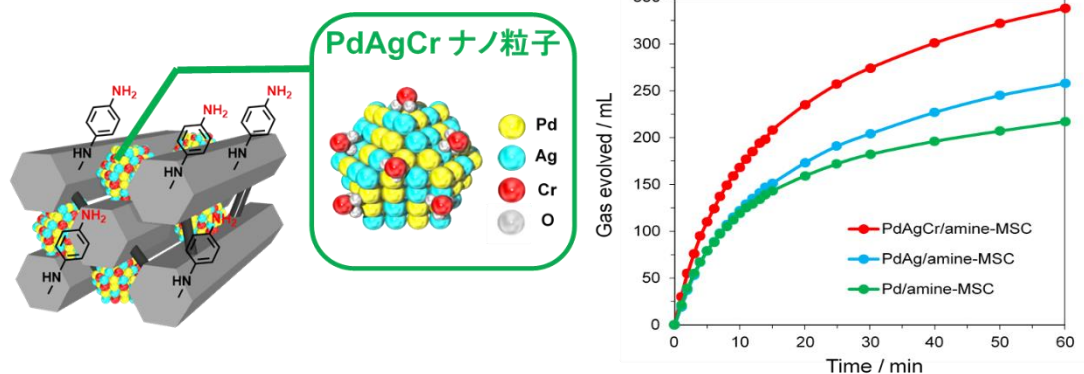
Efficient Hydrogen Production from Formic Acid by PdAgCr Ternary Nanoparticle Catalyst

(¹ Graduate School of Engineering, Osaka University, ²ESICB Kyoto University) ○Tatsuya Fujita,¹ Kohsuke Mori,^{1,2} Hiromi Yamashita^{1,2}

Formic acid (FA) is one of the most promising hydrogen storage materials because of its high H₂ content, low toxicity, and stable liquid at room temperature. We have reported that the PdAg nanoparticle (NPs) supported on amine functionalized mesoporous carbon catalyst showed excellent activity in the FA dehydrogenation.¹⁾ In this study, we aimed to further improve the activity by adding a third element. As a result, the modification of Cr oxide clusters on PdAg NPs improved the activity by a factor of 1.6. From various characterizations, we found that the generation of electron-rich Pd species and the amino functional group on the mesoporous carbon surface are the crucial factors for the enhanced activity. Kinetic analysis and DFT calculations suggested that the modification of Cr oxide on the PdAg alloy surface accelerated the C-H bond cleavage step of from formate intermediate and H₂ desorption step.

Keywords : formic acid; hydrogen; nanoparticle

ギ酸 (HCOOH) は、安価で爆発性がなく、常温で液体であるため水素エネルギーキャリアとして注目されている。我々は、PdAg ナノ粒子担持アミン修飾メソポーラスカーボン触媒がギ酸分解反応において優れた活性を示すことを報告している¹⁾。本研究では、PdAg 合金ナノ粒子への第3元素添加により、さらなる活性向上を目指した。その結果、Cr 酸化物クラスター修飾により活性は約 1.6 倍向上した。種々のキャラクタリゼーションより、電子リッチな Pd 種の生成と、メソポーラスカーボン担体のアミノ基修飾が活性向上の要因であることと見出した。また、速度論的解析および DFT 計算により、PdAg 合金表面に Cr 酸化物を修飾することで、C-H 結合開裂と H₂ 脱離の過程が促進されることが示唆された。



1) S. Masuda, K. Mori, Y. Futamura, H. Yamashita, *ACS Catal.* **2018**, 8, 2277