



# NiRe 合金触媒の還元及びメタン水蒸気改質中の In situ XAFS 測定

許亜<sup>1</sup> 張本敏子<sup>1</sup> 平野敏幸<sup>1</sup> 原悠太<sup>2</sup> 國枝洋尚<sup>2</sup> 宮田康史<sup>3</sup>

1 物質・材料研究機構 2 (株) 広島 3 名古屋工業技術研究所

キーワード：In situ XAFS, 水素製造, 合金触媒, メタン水蒸気改質

## 1. 背景と研究目的

金属ハニカム触媒は従来の粒状触媒に比べ、圧力損失が小さい、伝熱性が良いなどのメリットがあり、メタン水蒸気改質への応用が期待される。今迄、我々は純 Ni 箔を用いて、セル密度 2300cpsl のハニカム触媒を開発した<sup>[1]</sup>。さらに、その Ni ハニカム表面に NiRe 合金層を生成することにより触媒活性が著しく向上することを見出した<sup>[2]</sup>。本研究では、水素還元及びメタンの水蒸気改質反応過程における NiRe 合金触媒の Ni-k edge XAFS スペクトルを in-situ 測定することにより、その活性向上の要因の解明を図った。

## 2. 実験内容

In situ XAFS 測定用 NiRe 試料は、ハニカムに NiRe 合金の被覆と同じプロセスで調製した。Ni(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>・6H<sub>2</sub>O と NH<sub>4</sub>ReO<sub>4</sub> の水溶液を蒸発乾燥した後、空气中 773K 6 時間焼成して前駆体を作製した。これらの前駆体と窒化ホウ素粉末と所定の比例で混合し、乳鉢でよく研磨した後、XAFS 測定用の直径 7mm、厚さ 0.5mm のペレット試料を成形した。XAFS 測定はあいちシンクロトロン光センターの BL5S1 において行った。In situ XAFS フローセルを用いて、所定の温度で水素還元及びメタンの水蒸気改質過程において、Quick XAFS（透過法）により Ni-k edge スペクトルの変化を測定した。

## 3. 結果および考察

Fig.1 に、Ni と NiRe2（重量比）の試料について、703K で水素還元中、Ni の XAFS スペクトル変化を解析して得られた Ni の還元率の経時変化を示す。Ni の場合、水素導入して 2 分後で還元が始まり、6 分後に約 78% の還元率に達した。一方、NiRe2 の場合、水素導入 2 分後で 90% 以上の還元率に達し、それ以後ほぼ一定になった。Re の添加は Ni の還元プロセスを著しく促進することが明らかになった。この Re の Ni 還元促進効果は NiRe 合金の活性向上の要因と考えられる。

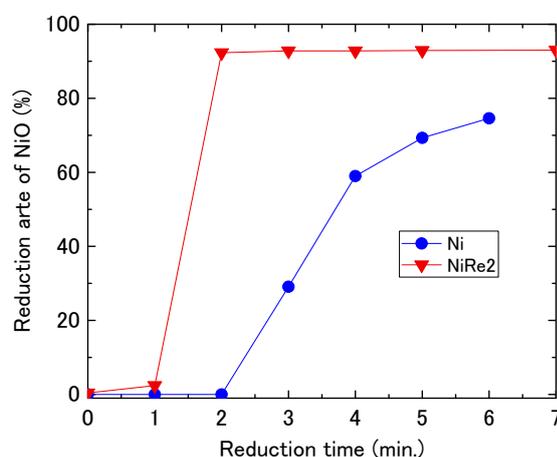


Fig.1 Ni と NiRe2 触媒の還元率の時間依存性（703 K, H<sub>2</sub> flow: 100 mL/min）

## 4. 参考文献

1. Y. Xu, T. Harimoto, L.S. Wang, T. Hirano, H. Kunieda, Y. Hara, Y. Miyata, *Chemical Engineering & Processing: Process Intensification* 129 (2018) 63-70.
2. 許亜、張本敏子、王林勝、平野敏幸、國枝洋尚、原悠太、2018 年金属学会春期講演大会予稿集 p.137.

謝辞：本研究は、知の拠点あいち重点研究プロジェクト補助金を受けて行われた。