

I105

Ni-水酸アパタイト触媒の迅速熟成とメタン部分酸化特性との関係

(鹿大院理工) ○ (学) 賀屋 雅裕・(正) 中里 勉*・(学) 星野 哲也・(正) 甲斐 敬美

緒言

水酸アパタイト(HAp)を Ni と複合化させることにより、原料ガスで還元可能なメタン接触部分酸化触媒となることが知られている¹⁾。HApの合成においては前駆体懸濁液に加温やマイクロ波(MW)照射を施すことにより熟成が迅速に行われるため、Ni-HAp 複合化においても何らかの副次的効果が期待される。そこで本研究では、Ni-HAp 複合化触媒調製時の迅速熟成が及ぼすメタン部分酸化反応(POM)への影響を調べた。

実験

Ni-HAp 触媒前駆体懸濁液は、水酸化カルシウム、リン酸、硝酸ニッケルから調製した (0.65 Ca-mol/l)。調製された懸濁液は攪拌しながら任意の温度または任意のマイクロ波 (MW) 照射時間で迅速熟成を行い、乾燥後に 800 °C で焼成した。Ni 含有量は 5wt% とした。

POM 反応試験は内径 1.5 cm の石英ガラス製反応管に触媒 0.02 g と石英砂 1 g をよく混合した後に充填し、反応ガス(CH₄:O₂:Ar=0.16:0.08:0.76)を 100 ml/min で流通させながら 800→600 °C に降温させて行った。ただし実験開始前の 800 °C に昇温している間は Ar ガスのみを流通させ、800 °C に達したところで反応ガスを用いて還元処理を行った。

結果及び考察

図 1 に CH₄ 転化率に及ぼす MW 照射熟成時間 (80°C) の影響を示す。MW 照射なし (熟成なし) の触媒は最も CH₄ 転化率が高かった。10 min 照射の触媒も 740 °C までは高い活性を示すが、それより低温では活性が低下した。一方、1 min 照射の触媒は高温でも活性が低かった。マイクロ波照射は反応ガスによる還元活性化能の機能に影響を及ぼすようである。

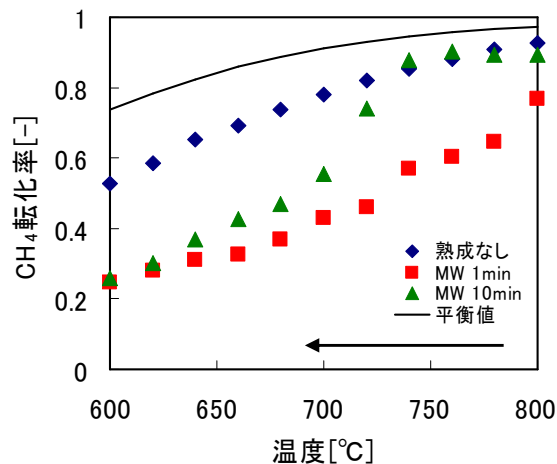


図 1 マイクロ波照射時間の触媒活性への影響(80 °C)

POM 反応前、反応後の触媒の XRD 分析結果をそれぞれ図 2, 3 に示す。図 2 より POM 反応前の触媒についてはどの触媒も差が見られず、触媒表面の構造はほぼ等しかった。一方、POM 反応後の図 3 では、活性の低い MW80°C, 1min 触媒のみ Ca₃(PO₄)₂ および Ni のピークを確認できなかった。ある一定のマイクロ波照射時間までは HAp の熱安定性が向上し、HAp 構造に Ni が取り込まれ、還元状態の Ni 金属を得られなかった可能性がある。マイクロ波照射の効果については今後明らかにしていく予定である。

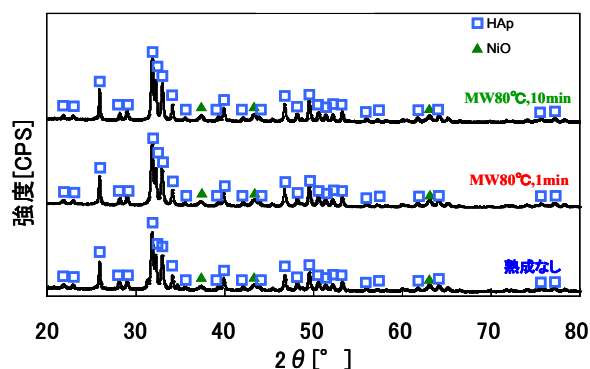


図 2 POM 反応前の触媒(5 wt%Ni)の XRD 分析結果

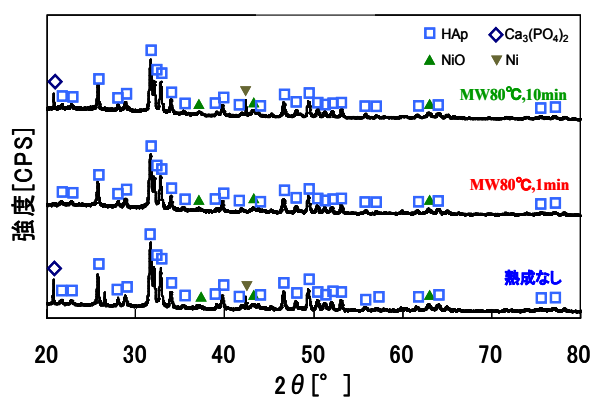


図 3 POM 反応後の触媒(5 wt%Ni)の XRD 分析結果

謝辞

本研究は JST 地域イノベーション創出総合支援事業の平成 21 年度シーズ発掘試験 A (発掘型) の支援を受けて行われた。

参考文献

1) Jun, J. H. et al., *J. Catal.*, **221**, 178 – 190 (2004)

* E-mail: nakazato@cen.kagoshima-u.ac.jp