

- ①実施課題番号:2006A0219
- ②実施課題名:XAFS による燃料電池向け水素製造用触媒の劣化機構解明
- ③実験責任者所属機関および氏名:新日本石油(株) 岩波睦修
- ④使用ビームライン:BL01B1
- ⑤実験結果:以下に示すとおりである。

[目的および実験結果の概要]

燃料電池は、エネルギー効率と環境性に優れるため、早期の普及が望まれているが、耐久性の向上が重要な課題として残っている。耐久性の向上は特に定置式燃料電池システムでは重要であり、少なくとも5年(4万時間)を担保することが望まれている。

定置式燃料電池は一般に、天然ガスや灯油などの原燃料から水素を製造する水素製造装置およびその水素を用いて発電を行う燃料電池本体から構成される。本研究は、この水素製造装置に用いる触媒の改良をさらに進める指針を得るために、触媒の劣化原因究明の一環として行った。

燃料電池用水素製造装置に用いる改質触媒のうちCO選択酸化触媒(Ru系触媒)についてin-situXAFS測定を行い触媒の構造解析を実施した。その結果、RuはH₂還元前において主に酸化物であったのに対して、H₂還元後、混合ガス流通時およびCO選択酸化反応時においては主に金属状態として存在することがわかった。

[実験方法および実験の結果得られた主なデータ]

BL01B1ステーションにおいてin-situ条件下で錠剤成形した試料についてRu K吸収端のXAFS測定を行った。測定試料およびXAFS測定条件を以下に示した。

測定試料: (1)Ru系触媒(担体アルミナ)

- ①H₂還元前、②H₂還元後、③混合ガス(CO₂ 25%、CO 0.5%、H₂ バランス)流通時
- ④CO選択酸化反応(air+CO流通)時

(2)標準試料

- ①金属Ru、②RuO₂

XAFS測定条件:分光結晶=Si(111)、測定法=透過法、測定エネルギー範囲=21.9~23.2keV

温度 H₂還元前=室温、H₂還元後=100℃、混合ガス流通時=80℃、CO選択酸化時=80℃

得られたXAFSスペクトルを解析プログラムREX2000(リガク製)を用いて解析した。

H₂還元前触媒のRuは、XANESスペクトルがRuO₂と吸収端の位置が一致していること(図1)、またEXAFSのフーリエ変換結果において(図2)、担体であるアルミナ表面のOとRuの結合と考えられるRu-OピークとRuO₂由来のRu-Oピークの間触媒のピークが認められることから、主に酸化物であると推定された。一方、H₂還元後、混合ガス流通

時およびCO選択酸化反応時の触媒のRuは、XANESスペクトルの吸収端位置が金属Ruに近く、またEXAFSのフーリエ変換結果より金属RuによるRu-Ruのピーク強度が高いことから、主に金属状態であると推定された。

以上の結果より、今回の条件ではH₂還元後に触媒をCO選択酸化反応させてもRuは金属状態を保持していることがわかった。

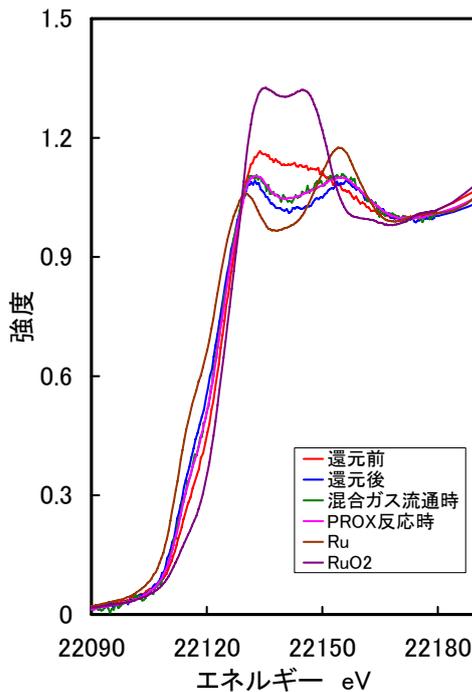


図1 Ru K 吸収端 XANES スペクトル

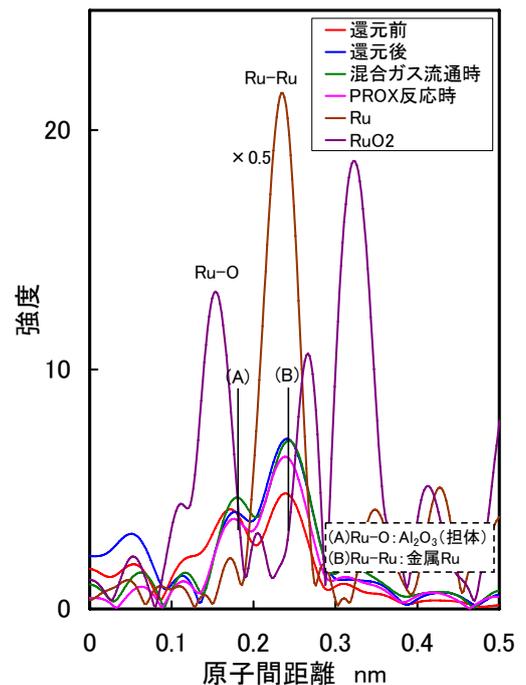


図2 Ru K 吸収端 EXAFS のフーリエ変換