

「再生可能エネルギーからのエネルギーキャリアの製造とその利用のための革新的基盤技術の創出」

平成 25 年度採択研究代表者

H27 年度 実績報告書

永岡 勝俊

国立大学法人 大分大学
准教授

エネルギーキャリアとしてのアンモニアを合成・分解する
特殊反応場の構築に関する基盤技術の創成

§ 1. 研究実施体制

(1) 永岡グループ

- ① 研究代表者: 永岡 勝俊 (大分大学工学部、准教授)
- ② 研究項目
 - ・アンモニア分解プロセスの創成
 - ・アンモニア合成プロセスの創成

(2) 杉本グループ

- ① 主たる共同研究者: 杉本 学 (熊本大学大学院自然科学研究科、准教授)
- ② 研究項目
 - ・アンモニア分解・合成触媒に関する理論解析と触媒設計

§ 2. 研究実施の概要

現在、海外で再生可能エネルギーによって生成した電力や水素を何らかの化学物質に蓄え、日本まで運搬した後に、消費地で分解して水素を取り出し、これを高効率な分散型電源である燃料電池による発電や、燃料として直接利用することが期待されている。そこで、本研究では、 20°C 、 0.8 MPa 程度で液化が可能であり、水素含有量やエネルギー密度が高くエネルギーキャリアとして有望なアンモニアを研究対象とし、非常に温和な条件

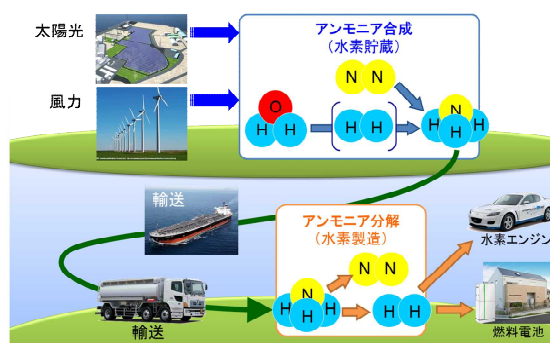


図. アンモニアをキャリアとするエネルギー貯蔵・輸送システム.

でアンモニアを分解し水素を取り出す革新的な技術の開発を核とし、温和な条件でアンモニアを合成する触媒の研究開発も行っている。H27 年度の研究成果は以下の通りである。

アンモニア分解プロセスの創成では、常温でアンモニア、酸素、不活性ガスの混合ガスを流すだけで、瞬時にアンモニアを分解し水素を製造する「アンモニア酸化分解の常温駆動プロセス」に用いる担持 Ru 触媒系について検討した。このプロセスでは反応ガス供給時に触媒が自己発熱し、このときの自己発熱温度が、アンモニアの酸化分解の反応開始温度まで到達することで、結果的にアンモニアの酸化分解が常温から駆動される。触媒の酸化による発熱を自己発熱に利用する触媒系では、Ru の担持量を 1wt% まで削減することに成功するとともに、Ru の役割として、Ru はアンモニア燃焼の活性点であるとともに、Ru の RuO_2 への酸化により触媒の発熱量の増加に寄与し、Ru から H 原子がスピルオーバーするため担体の還元も促進することが明らかとなった。一方、アンモニアの吸着熱を自己発熱に利用する触媒系では、高精度ガス吸着量測定装置と断熱型熱量計を組み合わせることで触媒の吸着量と吸着熱の同時測定が可能となり、アンモニア吸着量、吸着様式、触媒の発熱について重要な知見が得られた。

アンモニア合成プロセスの創成では、低温・低圧でアンモニア合成に対して高い活性を示す $\text{Ru/Pr}_6\text{O}_{11}$ について詳細に検討した。前年度までの研究で、この触媒では Ru の担持状態が、市販の Pr_6O_{11} や他の金属酸化物を担体とした場合と明らかに異なることがわかっているが、触媒調製段階でこのような特殊構造が生成していることが明らかとなった。さらに、*in-situ* XRD 測定によって、 Pr_6O_{11} は H_2 前処理時に塩基性の強い Pr_2O_3 へと還元されていることがわかり、これが触媒の高活性化に寄与したことが示唆された。

アンモニア分解・合成触媒に関する理論解析と触媒設計では、代表的な金属触媒である Ru 微粒子の表面への気体分子（アンモニア分子、窒素分子、水素分子）の吸着挙動を第一原理分子動力学計算によって調べた。最終的には担持金属触媒の開発を目指しているが、今年度は金属微粒子のみに注目した。計算機実験を繰り返し行った結果、気体分子の種類によって吸着挙動と表面の原子配列の間に明確な相関が見られ、その特徴に基づいて高活性化のための触媒設計指針を得ることができた。