

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

H29 年度 実績報告書

永岡 勝俊

大分大学工学部
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

(3)「中坂」グループ

- ① 主たる共同研究者:中坂 佑太 (北海道大学大学院工学研究院、助教)
- ② 研究項目
 - ・アンモニア合成プロセスに関するモデリング

§ 2. 研究実施の概要

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。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、カーボンフリーな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。H29 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、触媒の自己発熱を利用することで、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」に用いる非 Ru 系触媒について検討した。なお、H28 年度までは Ru 触媒を用いていたが、実用プロセスを想定した場合、高温酸化雰囲気中で Ru が揮発性の RuO₄ を生成する恐れがあるため、非 Ru 系触媒に移行した。主に貴金属系触媒について触媒のスクリーニングを実施したところ、少なくとも 5 サイクルまでの常温駆動の繰り返しが可能なた触媒系を見出すことができた。

アンモニア合成プロセスの創成では、H28 年度までは単一希土類の酸化物に Ru を担持した触媒系について検討していたが、H29 年度には複合希土類酸化物を担体として用いることにした。その結果、希土類の複合酸化物である La_{0.5}Ce_{0.5}O_{1.75} に Ru を担持した触媒を用い、これを従来知られている最適値(500°C)よりも高温の 650°C で還元すると、非常に高いアンモニア合成活性を示すことを見出した。この触媒は従来型の Ru 触媒で問題となっていた水素の被毒を受けにくく、1.0 MPa 程度の高圧雰囲気にするだけでアンモニア合成活性が飛躍的に向上し、既報の酸化物担持 Ru 触媒の中で最も高い活性を示すことを明らかにした (*Chem. Sci.*, 2018, 9, 2230)。さらに、Ru/La_{0.5}Ce_{0.5}O_{1.75} に関連する触媒モデルを計算機上で作成し、H₂、N₂、および両者の混合ガスを反応させる第一原理分子動力学計算を行うことで、この触媒での活性制御因子について重要な知見を得るにいたった。

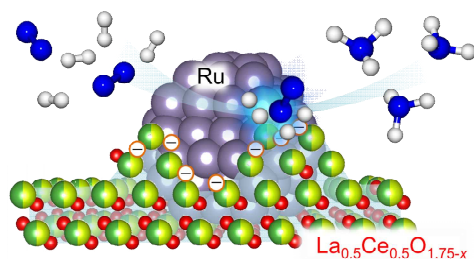


図. 開発した高活性担持 Ru 触媒 (Ru/La_{0.5}Ce_{0.5}O_{1.75}) の模式図

また、H28 年度までの検討で見出した Ru/Pr₂O₃ について、そのアンモニア合成反応の結果からアンモニア合成反応の速度解析を実施し、各反応温度での反応速度定数、平衡定数を得た。Ru/Pr₂O₃ 触媒を充填したラボスケールの固定床型反応器のモデル構築を目的とし、反応器内の物質収支式、熱収支式を立式した。反応速度解析により得られた反応速度式を本モデルに用い、シミュレーションを実施したところラボスケールの実験結果を良く表現できることを確認した。