

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「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」
研究課題「エネルギーキャリアとしてのアンモニアを
合成・分解するための特殊反応場の構築に関する
基盤技術の創成」

追加支援報告書

研究期間 2019年 4月～2020年 3月

研究代表者：永岡 勝俊
(名古屋大学大学院工学研究科 教授)

§ 1 研究実施の概要

(1) 実施概要

海外で再生可能エネルギーを用い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、消費地で再び水素を取り出し、これを高効率な分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 程度で簡単に液化でき、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、温和な条件でアンモニアを合成する触媒の開発に取り組んだ。

追加支援期間である R01 年度は、昨年度までに見出した Ru/Ba_{0.1}/La_{0.45}Ce_{0.45}O_{1.68} について、その作用機構や微細構造の解明、実用化を意識した種々の触媒性能の検討を通じて、基盤知財の強化につながるデータを取得することに注力した。また、期間後半では Ru/Ba_{0.1}/La_{0.45}Ce_{0.45}O_{1.68} の設計コンセプトを応用し、非貴金属系アンモニア合成触媒としては過去に例を見ない活性を有する Co/Ba_xLa_yO_z の開発に成功すると共に、Ba の作用機構についても検討をおこなった。

(2) 顕著な成果

<優れた基礎研究としての成果>

1.

概要:

酸化物担持 Ru 触媒として世界最高の性能を示すアンモニア合成触媒である、Ru/Ba_{0.1}La_{0.45}Ce_{0.45}O_x の開発に成功した。Ru/Pr₂O₃ および La_{0.5}Ce_{0.5}O_x の開発過程で獲得した知見をベースに、強塩基性の元素をドーピングしてこれを非常識なほどの高温で還元処理することで特殊な表面構造を構築し、担体から Ru への電子供与能を高めることで、優れたアンモニア合成活性を発現させることができた。

<科学技術イノベーションに大きく寄与する成果>

1.

概要:

世界最高レベルの高活性アンモニア合成触媒として、Ru/Ba_{0.1}La_{0.45}Ce_{0.45}O_x の開発に成功し、中間目標および最終目標値を上回るアンモニア合成速度を達成した。開発した触媒のコンセプトは汎用性が高く、アンモニア合成触媒のさらなる高活性化、バリエーションの拡大に寄与する可能性が明らかとなった。

<代表的な論文>

- ① K. Imamura, S. Miyahara, Y. Kawano, K. Sato, Y. Nakasaka, K. Nagaoka, Kinetics of ammonia synthesis over Ru/Pr₂O₃, *J. Taiwan Inst. Chem. Eng.*, 105 (2019) 50–56.
- ② K. Sato, S. Miyahara, Y. Ogura, K. Tsujimaru, Y. Wada, T. Toriyama, T. Yamamoto, S. Matsumura, K. Nagaoka, Surface Dynamics for Creating Highly Active Ru Sites for Ammonia Synthesis: Accumulation of a Low-Crystalline, Oxygen-Deficient Nanofraction, *ACS Sustainable Chem. Eng.*, 8 (2020) 2726–2734.
- ③ Y. Ogura, T. Asai, K. Sato, S. Miyahara, T. Toriyama, T. Yamamoto, S. Matsumura, K. Nagaoka, Effect of Calcination and Reduction Temperatures on the Catalytic Activity of Ru/La_{0.5}Ce_{0.5}O_{1.75} for Ammonia Synthesis under Mild Conditions, *Energy Technol.*, (2020). DOI: 10.1002/ente.202000264

§ 2 研究実施体制

(1) 研究チームの体制について

① 「永岡」グループ

研究代表者: 永岡 勝俊 (名古屋大学大学院工学研究科 教授)

研究項目

・新規アンモニア分解・合成反応場の構築

(2) 国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

領域内のアンモニア関連の研究者の連携と情報交換を引き続き行っており、今年度は各 T から参加者を募って、11 月に米国で実施される Ammonia Fuel Seminar (AIChE Annual Meeting のセッションとして開催)に参加する。また、西村 T 内の 1 部メンバーと共同研究を開始し、メンブレンリアクタを利用した高純度水素製造デバイスの開発を目的とした課題が、A-STEP 機能検証フェーズ試験研究タイプ(研究代表者;永岡勝俊)に採択された。

触媒の特性解析については、研究領域外・チーム外の研究者とも協働を行っている。高分解能電子顕微鏡を用いた触媒機能の解明においては、CREST(革新的触媒)の研究代表者である九州大学超顕微解析研究センターの松村教授らのグループと引き続き協働し、第 3 世代触媒 ($\text{Ru}/\text{Ba}_{0.1}\text{La}_{0.45}\text{Ce}_{0.45}\text{O}_x$) の解析を実施している。また、永岡 G が蓄積したアンモニア合成触媒に関する膨大な知見を活用した、機械学習による触媒設計を現在構想しており、理論、情報科学の研究者と連携に向けた意見交換を実施している。

アンモニア合成については、現在企業 2 社と共同研究を実施しており、並行して今後の大型資金獲得に向けた研究パートナーを探索中である。