

未来社会創造事業 探索加速型  
「地球規模課題である低炭素社会の実現」領域  
年次報告書(探索研究)

H30 年度 研究開発年次報告書
---------------------

平成29年度採択研究開発代表者

[研究開発代表者名：関根 泰]

[早稲田大学先進理工学研究科・教授]

[研究開発課題名：電場中での低温オンデマンド省エネルギーアンモニア合成]

実施期間：平成30年4月1日～平成31年3月31日

## §1. 研究開発実施体制

### 【記載例】

(1)「早大関根」グループ(早稲田大学先進理工学研究科)

① 研究開発代表者:関根 泰 (早稲田大学先進理工学研究科、教授)

② 研究項目

- ・電場アンモニア合成のための Ru 系触媒の高性能化と消費電力の低減
- ・電場アンモニア合成のための非貴金属系触媒の開発
- ・電場加圧反応器の開発
- ・電場反応メカニズムの解明

(2)「日本触媒山崎」グループ(日本触媒)

① 主たる共同研究者:山崎 勇英 (日本触媒研究センター グループリーダー)

② 研究項目

- ・電場加圧反応器の開発
- ・加圧小型反応器(SUS 製反応器)の製作・立ち上げ
- ・アンモニア製造のプロセス設計と構成要素ごとの電力原単位見積もり

(3)「日揮甲斐」グループ(日揮)

① 主たる共同研究者:推進 太郎 (技術イノベーションセンター・副主任)

② 研究項目

- ・アンモニア製造のプロセス設計における構成要素ごとの電力原単位見積もり

## §2. 研究開発実施の概要

電場印加反応による低温アンモニア合成においては、表面プロトニクスによって $H^+$ が窒素に衝突し、 $N_2H^+$ という中間体を介して $N_2$ の三重結合を解離する新しいメカニズムにて反応が進行する。この際に、Ruのみならず、非貴金属担持触媒を用いても電場印加反応場においてはアンモニア合成活性を示す。そこで本年度はRu触媒の高性能化・長期性能評価、小型加圧反応器のオペレーションとプロセス目標の設定、ならびに非貴金属系触媒に関する検討を行った。

早大グループでは、熱による触媒反応でのアンモニア合成活性と電場触媒反応を用いたアンモニア合成活性を比較したところ、金属ごとの活性の序列が大きく異なった。低温域における電場触媒反応によるアンモニア合成ではFeやNiといった比較的安価な材料を用いた担持触媒が高い活性を示した。また、Feを担持した触媒について、液相還元法によってFeナノ粒子を担持した触媒を調製し、高い活性を示すことがわかったが、反応・還元によって凝

集し劣化することがわかった。そこで、5wt%Fe/Ce<sub>0.5</sub>Zr<sub>0.5</sub>O<sub>2</sub>の表面に微量のAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を添加するとアンモニア合成活性が大幅に向上し、微細な鉄の粒子が維持され凝集を抑えることができた。

日本触媒グループでは、電場アンモニア合成のアンモニア生成電力原単位の低減を検討した。その結果、新たに開発したRuを担持した複合酸化物系触媒を使用した場合、296°Cでアンモニア生成電力原単位が31 kWh/kgであった。前年度設計した加圧小型反応器（SUS製反応器）の製作を行い、当該反応器でのアンモニア合成を運転し、0.9 MPa加圧下、アンモニア電場合成が可能であることを確認した。これらの成果により、電場アンモニア合成法のエネルギー効率の改善とスケールアップの基礎となる技術の確立を達成した。

日揮グループでは、目標とする合成反応条件を想定してアンモニア合成プロセスを構築し、構成要素ごとの電力原単位を試算した。その試算結果に基づき、合計の消費エネルギーが最小となる条件を特定し、その時の電場アンモニア合成部での電力原単位目標を設定した。

Kota Murakami, Yuta Tanaka, Ryuya Sakai, Kenta Toko, Kazuharu Ito, Atsushi Ishikawa, Takuma Higo, Tomohiro Yabe, Shuhei Ogo, Masatoshi Ikeda, Hideaki Tsuneki, Hiromi Nakai, Yasushi Sekine, The important role of N<sub>2</sub>H formation energy for low-temperature ammonia synthesis in an electric field,

*Catalysis Today*, in press. doi: 10.1016/j.cattod.2018.10.055

Ami Gondo, Ryo Manabe, Ryuya Sakai, Kota Murakami, Tomohiro Yabe, Shuhei Ogo, Masatoshi Ikeda, Hideaki Tsuneki, Yasushi Sekine,

Ammonia Synthesis Over Co Catalyst in an Electric Field

*Catalysis Letters*, 148(7), 1929-1938, 2018. doi:10.1007/s10562-018-2404-6

Kota Murakami, Ryo Manabe, Hideaki Nakatsubo, Tomohiro Yabe, Shuhei Ogo, Yasushi Sekine, Elucidation of the role of electric field on low temperature ammonia synthesis using isotopes,

*Catal. Today*, 303, 271-275, 2018. doi: 10.1016/j.cattod.2017.08.008