

P303

金属担持触媒を用いたアンモニア分解による水素製造

(群大工) ○(学)熱海良輔、(産総研)高木英行、(群大工)野田玲治、中川伸好、辻口拓也 (産総研)倉本浩司*

1. 緒言

高い水素重量密度 (17.7wt%) を持つアンモニアは、分散型エネルギー利用における水素キャリアーとしての可能性がある。毒性と刺激臭を有するアンモニアを燃料として利用するためには、効果的にアンモニアを水素と窒素に分解する触媒とこれを効果的に利用したリアクターの開発が必要である。本研究ではアンモニアから高効率に水素を製造するプロセスの提案をめざし、まずアンモニア分解触媒の開発に着手した。流通式固定層反応器を用い、独自に作成した Ru または Ni 担持触媒によって、種々の条件下でアンモニア分解試験を行い、その性能を観察した。

2. 実験方法

含浸法を用いて、 SiO_2 (シリカゲル C-100、和光純薬工業社製、比表面積: $360\text{m}^2\text{g}^{-1}$ 、粒子径: $150\sim 425\ \mu\text{m}$) に、Ru または Ni を担持した触媒 (以下、Ru/ SiO_2 、Ni/ SiO_2 と表記) を調製した。Ru 担持量が 1 または 5wt% となるように所定量の RuCl_3 水溶液を調製し、 SiO_2 に加えて一晚攪拌した。Ni/ SiO_2 については、 $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2$ 水溶液を用い、Ru と同様に、担持量が 1 または 5wt% となるようにした。乾燥後、Ru/ SiO_2 触媒については 500°C にて 1h、Ni/ SiO_2 触媒は 500°C にて 2h で、窒素雰囲気下で、熱処理を施した。その後、 500°C にて 2h の条件で水素還元処理を行った。

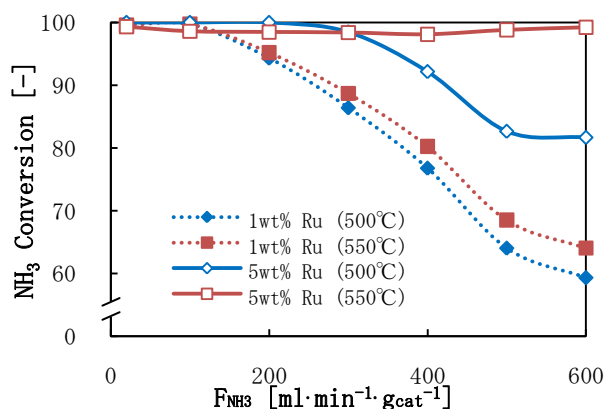
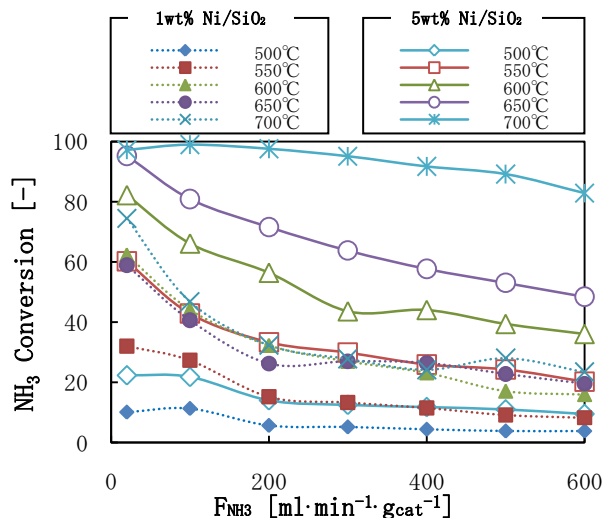
流通式固定層反応器を用いて、 $500\sim 700^\circ\text{C}$ の反応温度における触媒の活性を評価した。触媒 0.5g を石英製の反応管に充填し、分解反応と同じ温度で 1h の水素還元処理をした後、純アンモニアを供給量 $F_{\text{NH}_3} = 20\sim 600\text{ml}\cdot\text{min}^{-1}\cdot\text{g}_{\text{cat}}^{-1}$ で供給した。反応管内部の圧力は 101kPa にした。生成ガスは、自動サンプラーにより 12 分毎に採集し、TCD ガスクロマトグラフで分析した。

3. 結果と考察

図 1 および図 2 に、Ru/ SiO_2 または Ni/ SiO_2 触媒を利用したときの、純 NH_3 供給量 (F_{NH_3} [$\text{ml}\cdot\text{min}^{-1}\cdot\text{g}_{\text{cat}}^{-1}$]) に対する NH_3 転化率の変化を示した。

この結果から、 F_{NH_3} の増加に伴った転化率の減少がみられた。これは、触媒層中での NH_3 滞留時間が短くなるためと考えられる。

また、Ru/ SiO_2 の方が Ni/ SiO_2 よりも低温域で高い活性を示している。

図 1. Ru/ SiO_2 を用いたときの NH_3 供給量 (F_{NH_3}) と転化率の関係。図 2. Ni/ SiO_2 を用いたときの NH_3 供給量 (F_{NH_3}) と転化率の関係。

5wt% Ru/ SiO_2 触媒では、反応温度 550°C において、検討範囲内での F_{NH_3} に対して、ほぼ 100% の転化率を維持した。

5wt% Ni/ SiO_2 触媒については、反応温度 700°C において、 $F_{\text{NH}_3} = 200\text{ml}\cdot\text{min}^{-1}\cdot\text{g}_{\text{cat}}^{-1}$ までは、ほぼ 100% の転化率を維持した。

1wt% の Ru または Ni 触媒について、Ru では、 $F_{\text{NH}_3} = 100\text{ml}\cdot\text{min}^{-1}\cdot\text{g}_{\text{cat}}^{-1}$ までの範囲でしか転化率 100% を維持できなかった。Ni では、反応温度を 700°C まで上昇させても、検討範囲のなかで比較的供給量の少ない $F_{\text{NH}_3} = 20\text{ml}\cdot\text{min}^{-1}\cdot\text{g}_{\text{cat}}^{-1}$ で転化率 100% に到達しなかった。

以上の結果から、Ni/ SiO_2 よりも Ru/ SiO_2 の方が、ある操作条件において、低温域で高い流量のアンモニアをほぼ完全に分解できることが分かった。

*E-mail: koji-kuramoto@aist.go.jp