

酸窒化物担持 Ni 触媒によるアンモニア分解反応の反応機構

(東京工業大¹・東北大²) ○宮下 和聡¹・小笠原 気八¹・宮崎 雅義¹・加藤 英樹²・細野 秀雄¹・北野 政明¹

Reaction mechanism of ammonia decomposition reaction on oxynitride supported Ni catalyst (¹Tokyo Institute of Technology, ²Tohoku University) ○Kazuki Miyashita,¹ Kiya Ogasawara,¹ Masayoshi Miyazaki,¹ Hideki Kato,² Hideo Hosono,¹ Masaaki Kitano¹

Ni is studied as an alternative catalyst to Ru, but it requires high reaction temperature to achieve high conversion in the ammonia decomposition. Recently, we have found that CaNH significantly promotes the activity of supported Ni catalyst at low reaction temperature. However, the CaNH is highly sensitive toward air and water. In this study, we investigated air stable oxynitrides as catalyst supports of Ni catalyst.

Oxynitride supported Ni catalysts exhibited 3-18 times higher activity for ammonia decomposition at 500°C than oxide supported Ni catalysts (Figure 1). Among them, Ni/BaTiO_{3-x}N_y catalyst has best catalytic performance, which is comparable to Ni/CaNH catalyst. TPD profile and DFT calculation suggests that the catalytic activity correlates with the desorption temperature of N₂ from oxynitride support and ammonia is activated at N vacancies on the oxynitride.

Keywords : Ammonia decomposition; Oxynitride; Supported Ni Catalyst

Ni はアンモニア分解において Ru 代替触媒として研究されているが、高い転化率を得るために高い反応温度が必要であった。最近、我々は CaNH が低温で担持 Ni 触媒上でのアンモニア分解を大きく促進することを見いだしている¹⁾。しかしながら、CaNH は大気や水に対して不安定である。本研究では、大気安定な酸窒化物を Ni 触媒の担体として調べた。

酸窒化物担持 Ni 触媒は、酸化物担持 Ni 触媒と比較して、500°C の反応温度で 3-18 倍程度の高いアンモニア転化率を示した(Fig. 1)。その中でも Ni/BaTiO_{3-x}N_y 触媒が最も高い活性を示し、Ni/CaNH に匹敵する性能を示した。TPD 測定および DFT 計算により、担体格子中の窒素の脱離温度が反応活性と強く相関しており、酸窒化物担体上の窒素欠陥でアンモニアが活性化されることが示唆された。

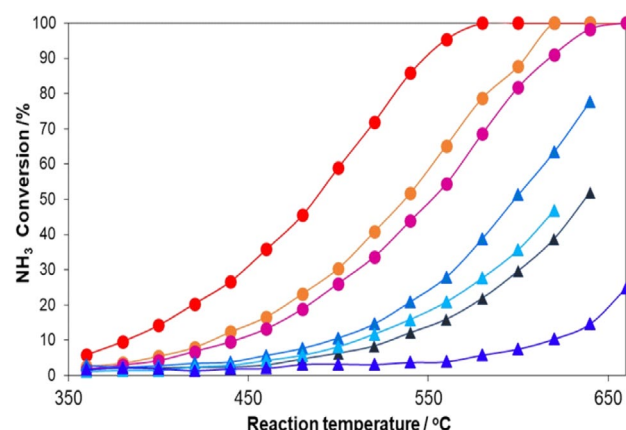


Fig. 1 Temperature dependence of NH₃ conversion by various Ni catalysts
Ni/h-BaTiO_{3-x}N_y (●), Ni/BaTaO₂N (●), Ni/LaTiO₂N (●),
Ni/BaTiO₃ (▲), Ni/h-BaTiO_{3-x} (▲), Ni/Ba₃Ta₄O₁₅ (▲), Ni/La₂Ti₂O₇ (▲)

1) K. Ogasawara, T. Nakao, K. Kishida, T. N. Ye, Y. Lu, H. Abe, Y. Niwa, M. Sasase, M. Kitano, H. Hosono, *ACS Catal.* **2021**, *11*, 11005.