

プラズマ触媒作用を用いた CO₂ メタネーションにおける 振動回転励起 CO 分子の役割

The role of vibrationally and rotationally excited CO molecule in CO₂ methanation with plasma catalysis

阪大接合研¹, 九大シス情²

○都甲 将¹, 出口 雅志², 長谷川 大樹², 奥村 賢直², 鎌滝 晋礼²,

竹中 弘祐¹, 古閑 一憲², 白谷 正治², 節原 裕一¹

Osaka Univ.¹, Kyushu Univ.², °Susumu Toko¹, Masashi Ideguchi², Taiki Hasegawa²,

Takamasa Okumura², Kunihiro Kamataki², Kosuke Takenaka¹, Kazunori Koga²,

Masaharu Shiratani², Yuichi Setsuhara¹

E-mail: susumu.toko@jwri.osaka-u.ac.jp

持続安定な社会の実現に向けて、CO₂のメタネーション技術が世界中で注目されている。メタネーションには 250°C以上のプロセス条件で熱触媒作用を用いた反応が一般的であるが、本反応が発熱反応であるため、触媒の安定性や平衡状態の観点からより低温でのプロセス促進が望ましい。プラズマ触媒作用はプロセスの低温化を実現しうる、有望な手法である。様々なプラズマと触媒の相互作用により、熱触媒作用のプロセス条件と比べて 100°C以上低温でメタネーションを促進できる[1,2]。しかし、現状ではその相互作用の複雑さから、未解明な点が多い。本研究では、主な低温化の要因と考えられるプラズマによる振動回転励起 CO 分子の生成とメタン生成の関係について明らかにする。

実験は、平衡平板型容量結合プラズマ装置を用いて行った。電極間距離は 6 mm、電極の形状は直径 5 cm の円盤である。電極には触媒として Cu を用いた。ガス供給は H₂ を 6 sccm、CO₂ を 1 sccm で一定とし、圧力は 750 Pa、供給電力は 50 W~150 W の範囲で変化させた。ガス組成の測定には四重極質量分析計を使用し、プラズマ診断のため発光分光法を利用した。

CO₂ プラズマの発光スペクトルにおいて、450 ~ 550 nm の範囲に現れる CO Angstrom band は、CO B¹Σ⁺状態の電子励起 CO が CO A¹Π 状態へ遷移する際に発する光であり、その発光強度や波長は CO B¹Σ⁺の振動回転励起状態に依存する[3]。したがって、プラズマの発光スペクトルから振動回転温度を推定することが可能である。本研究では、供給電力の増加によって振動温度が増加するという結果が得られた。また、プラズマ生成後、回転温度が時間とともに増加するという結果も得られた。これらの結果は、四重極質量分析装置によって得られた、メタンの選択率が高電力密度ほど高くなり、また放電時間とともに増加していくという結果をよく説明できている。すなわち、振動温度増加によって反応種の量が、また回転温度の増加によってアレニウス則によりメタンに変換する確率が増加したと考えられる。詳細は講演にて。

[1] S. Toko, et al., Sci. Adv. Mater., **10** (2018) 655.

[2] R. Debek, et al., Renew. Sust. Energ. Rev., **116** (2019) 109427.

[3] S. Yamada, et al., JJAP, **60** (2021) 046005.