

イットリア含有金属酸化物担持ルテニウム触媒上でのアンモニア合成

(沼津高専) ○吉村 和也・稲津 晃司

Ammonia synthesis over ruthenium catalyst supported on yttria-based metal oxide (Department of Chemistry and Biochemistry, National Institute of Technology (KOSEN), Numazu College) ○Kazuya Yoshimura, Koji Inazu

Yttria-based metal oxides as support material for ruthenium ammonia synthesis catalyst are examined in order to evaluate the performance of yttria, that is one of non-lanthanide rare-earth oxides and has been hardly investigated as support material for ammonia synthesis catalyst so far. The ammonia synthesis rate over ruthenium catalysts supported on yttria and yttria-based zirconia increased with an increase in activation temperature under hydrogen suggesting the partial reduction of yttria resulted in enhancement of promoting effect of yttria for ammonia synthesis over the ruthenium.

Keywords : catalytic ammonia synthesis, ruthenium, yttria

アンモニアは、水素エネルギーキャリアやCO₂フリー燃料になるため、一層の利活用への期待が大きい。再生可能エネルギーで発電し、水電解で得る水素を用いたNH₃製造では、現行の高圧で安定した水素供給を前提としたプロセスは適用できず、低圧かつ変動ある条件で必要量のアンモニアを得なければならない。このため、低圧でも高く、安定した活性を期待できる担持ルテニウム (Ru) 触媒が複合希土類酸化物担持触媒など、精力的に検討されている。本研究では、希土類酸化物のRu触媒用担体としての可能性を見出すことを目的とし、イットリア含有金属酸化物に担持したRu触媒の活性挙動を検討した。イットリアとジルコニアの混合酸化物 (Y₂O₃-ZrO₂) をクエン酸塩法により異なる Y₂O₃/ZrO₂ 比で調製し、担体に用いた。いずれの Y₂O₃/ZrO₂ 比の担体も粉末X線回折パターンは Y₂O₃ のパターンと同じであり、ZrO₂ に帰属できるピークが観測されず、ZrO₂ と Y₂O₃ の結晶子サイズが異なり、ZrO₂ が微結晶となっていた。反応全圧 1.0 MPa 下、400 °C での 1 wt% Ru/Y₂O₃-ZrO₂ 触媒のアンモニア合成活性は、Y₂O₃/ZrO₂ 比と還元活性化温度に依存し、いずれの Y₂O₃/ZrO₂ 比のものも 550 °C の水素還元処理で活性が高くなり、Y₂O₃/ZrO₂ 比 1/1 のとき、最も高い活性となった。

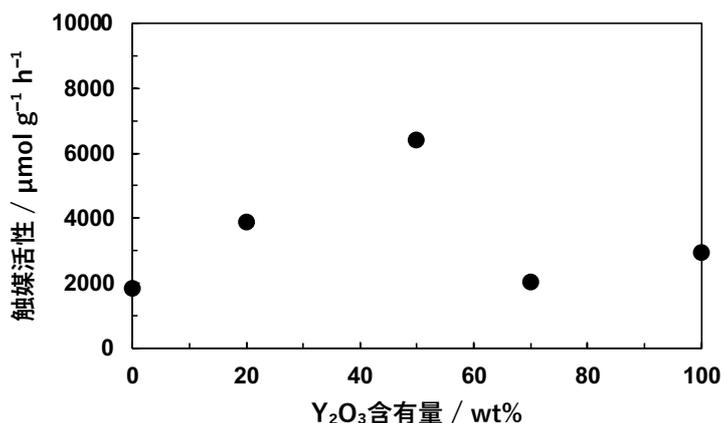


図1. イットリア-ジルコニア担持ルテニウム触媒の活性.

還元処理温度 500 °C, 反応温度 400 °C, 全圧 1.0 MPa,

$p_{\text{H}_2}/p_{\text{N}_2} = 3$, WHSV 18000 mL g⁻¹ h⁻¹.