

錯体重合法で調製した鉄系触媒のアンモニア合成活性

(沼津高専¹) ○高畑 知夏¹・稲津 晃司¹

Ammonia Synthesis activity of Iron-based Catalysts Prepared by Complex Polymerization Method (¹National Inst. Technol. Numazu College) ○Chinatsu Takahata¹, Inazu Koji¹

Demand for ammonia is expected to increase due to the growing world population and the potential use as a CO₂-free fuel. Catalysts for ammonia synthesis are important for improving the energy efficiency and reducing CO₂ emissions in the production. Iron-cobalt catalysts prepared with mixed metal oxide precursors are highly active precious metal-free catalysts for ammonia synthesis. The activity of the catalysts is enhanced by complex polymerization with organic acids rather than by physical mixing or co-precipitation of the corresponding metal oxides. In this study, the effects of the type of organic acid on the precursor oxides and catalysts and their activity are examined. The catalysts prepared with succinic or citric acid exhibit the highest activity among the investigated ones despite their low specific surface area and small iron crystallites in these catalysts are likely to be responsible for the high activity (Fig.1).

Keywords : Ammonia Synthesis, Iron-based Catalyst, Sol-gel Method, Organic Acids

年間約2億トンの生産量であるアンモニアには、世界人口の増加とCO₂フリー燃料としての期待による一層の需要が見込まれる。アンモニア合成触媒は、製造時のエネルギー効率向上とCO₂排出量低減に資する重要な技術要素である。我々はこれまでに、混合金属酸化物を前駆体とする鉄-コバルト系触媒が高いアンモニア合成活性を示す貴金属フリー触媒であることを見出している。この触媒の活性は、前駆体の混合金属酸化物を物理混合や共沈法で調製するより有機酸を用いる錯体重合法で調製することで向上した。さらに、用いる有機酸の種類が、前駆体酸化物と触媒、およびその活性へ及ぼす影響を検討した結果、コハク酸あるいはクエン酸を用いて調製した触媒は低比表面積であるにもかかわらず、高活性を示し、これは鉄結晶子径が小さいことなどによると考えられた(図1)。

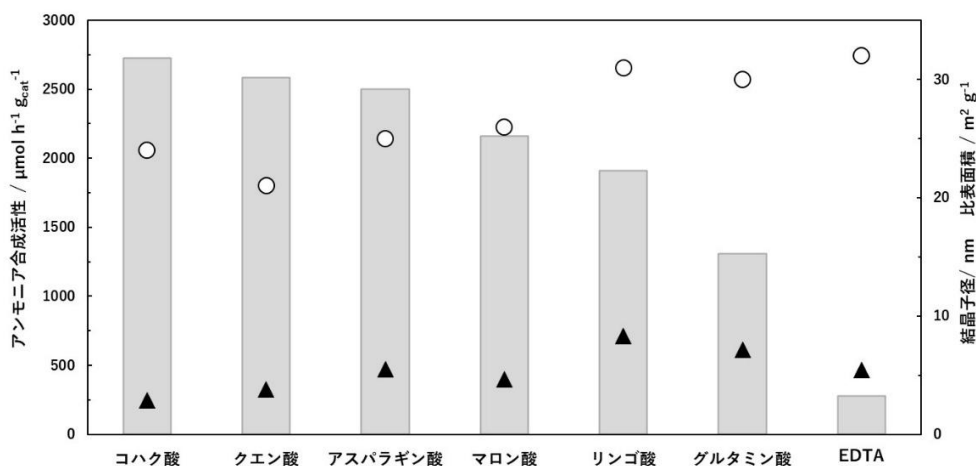


図1 錯体重合法で調製した鉄-コバルト-マグネシア触媒のアンモニア合成活性および結晶子径(○)と比表面積(▲), 400 °C, 大気圧, $p_{\text{H}_2}/p_{\text{N}_2}=3.0$, WHSV 18000 mL h⁻¹ g⁻¹, $n_{\text{Fe}}/n_{\text{Co}}/n_{\text{Mg}}=0.75/0.21/0.040$.