

平成 21 年 5 月 8 日現在

研究種目：基盤研究（B）
研究期間：2006～2009
課題番号：18360390
研究課題名（和文） 電子励起された酸化物等の固体表面を用いた常温常圧触媒反応の研究
研究課題名（英文） Catalytic reaction over oxide catalysts with an electric field at ambient temperature and atmospheric pressure
研究代表者
関根 泰 (SEKINE, Yasushi)
早稲田大学・理工学術院・准教授
研究者番号：20302771

研究分野：触媒化学
科研費の分科・細目：複合化学・合成化学
キーワード：電場・非平衡・廃熱回収

1. 研究計画の概要

常温・低温かつ常圧で作動する触媒の新たな体系を作り、その学理の探求、及びこれらを用いた新規反応プロセスの開発といった新たな領域を開拓することが目的である。これまでの研究で、プラズマ場中の触媒とのシナジーについて、低温化、高活性化を可能にするなど、いくつかの新しい知見を得ることが出来た。また、一方で電場中で触媒が励起され反応するという全く新しい反応概念を提案することが出来た。これは、電場中での触媒作用を開拓する新しい試みである。現在これらをベースに、電場中での触媒がどのような学理によってその機能を発現しうるのかについて、さらなる詳細な研究を行っている。これによって、低温廃熱を巧く利用しながら高機能・高活性化触媒を実現することが出来れば、社会に与える影響も大きい。

2. 研究の進捗状況

研究開始当初は、非平衡放電を用いて酸化物触媒とのシナジーを検討してきた。その中で、研究成果[雑誌論文] に示す論文などで明らかにしたこととして、放電場中での触媒表面の格子酸素が電子によって励起され、気相のメタンなどと反応するということである。これらをさらに発展させて、より省エネルギーなプロセスを検討した結果、その後非平衡放電ではなく、静電場を印加することによっても、一部の酸化物触媒の活性が大幅に向上することを見いだした。そこでセリアやチタン酸ストロンチウムなどの電場によって活性化を受けやすい酸化物固体表面を用いて、電場中での触媒作用発現について詳細

な研究を行ってきた。酸化物としてセリアの他に各種ペロブスカイト型酸化物を用い、酸化物表面に活性金属種である白金や鉄などを担持し、これらを粉体ならびに薄いディスク状に成型し、反応器に充填し、反応器内部に数百 V の静電場を印加し、場の温度をサーモグラフィで観測しながら、原料となるガスを供給し出口ガス組成をガスクロマトグラフによって測定した。反応器内部に静電場を印加することで、印加しない場合に比べて活性が大きく向上することがわかった。この際に、エタノールの分解のみならず、エタノールの水蒸気改質、メタンの水蒸気改質といった各種吸熱反応のみならず、水性ガスシフトといった発熱反応まで低温化が可能となった。また選択率は平衡ガス組成となるものの、転化率は電場のアシストによって大幅に向上し非平衡な状態となっていることがわかった。

3. 現在までの達成度

当初の計画以上に進展している。
理由:当初、より高エネルギーな非平衡放電のみをターゲットとしていたが、静的な電場によってさらなる活性向上が見込まれたため。

4. 今後の研究の推進方策

現在、その画期的な低温化実現が可能になったため、その作動学理を追求している。具体的には、加圧成型した触媒を用いて、触媒の動力学的な反応機構を解明するとともに、充填層触媒を用いて、熱力学的な解析を行っている。メタンの水蒸気改質、エタノールの水蒸気改質、ジメチルエーテルの水蒸気改質、

水性ガスシフト、エタノールの分解をターゲットとし、気相反応に加えて液相反応も視野に入れた検討を行う。また今後、エネルギー効率の向上などにより、実用化に向けた具体化を進める。

5. 代表的な研究成果
(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計10件)

Y. Sekine, M. Tomioka, M. Matsukata, E. Kikuchi, Catalytic degradation of ethanol in an electric field, Catalysis Today, in press. doi:10.1016/j.cattod.2009.03.027, 査読有

Y. Sekine, H. Takamatsu, S. Aramaki, K. Ichishima, M. Takada, M. Matsukata, E. Kikuchi, Synergistic effect of Pt or Pd and perovskite oxide for water gas shift reaction, Applied Catalysis A:General, 352, 214-222, 2009. 査読有

Y. Sekine, M. Matsukata, E. Kikuchi, Effective Utilization of Electrical Discharges for Hydrogen Production, Int. J. Plasma Environmental Science and Technology, 2, 72-75, 2008. 査読有

Y. Sekine, J. Yamadera, S. Kado, M. Matsukata, E. Kikuchi, High-Efficiency Dry Reforming of Biomethane Directly Using Pulsed Electric Discharge at Ambient Condition, Energy&Fuels, 22, 693-694, 2008. 査読有

Y. Sekine, S. Asai, S. Kado, M. Matsukata, E. Kikuchi, Novel oxidation reaction at ambient temperature and atmospheric pressure with electric discharge and oxide surface, Chem.Eng.Sci. 63, 5056-5065, 2008. 査読有

〔学会発表〕(計7件)

Y. Sekine, Effective utilization of electrical field/discharges for hydrogen production, Int. Cong. Environ. Catal., 2008/9, Belfast, UK.

Y. Sekine, Simultaneous dry reforming and desulfurization of bio-methane with non equilibrium electric discharge at ambient temperature, Int. Symp. Chem. Reaction Eng., 2008/9, Kyoto, JPN.

Y. Sekine, Catalytic Reaction in Electric Field for Ethanol Decomposition, 2008/7, Post Int. Cong. Catal., Gyongjyu, KOREA.

Y. Sekine, Hydrogen production by catalytic reaction in electric field, 2008/7, Pre Int. Cong. Catal., Kyoto, JPN.

Y. Sekine, Effective utilization of electrical discharges for hydrogen production, 2008/4, 235th ACS meeting, New Orleans, USA.

〔図書〕(計2件)

関根 泰 (共著) メタン高度化学変換技

術集成、シーエムシー出版、p.197-207, 2008
関根 泰 (共著) 天然ガス資源とその応用技術、シーエムシー出版、p.201-207, 2008

〔産業財産権〕

出願状況(計5件)

燃料改質装置及び燃料改質ガスの製造方法、発明者関根 泰・羽賀史浩・赤間 弘、権利者関根 泰・カルロスゴーン、特許出願、特願2008-033053、2008/2/14、国内

燃料改質装置、発明者関根 泰・羽賀史浩、権利者関根 泰・日産自動車株式会社、特許出願、特開2007-137721、2007/6/7、国内

取得状況(計3件)

鎖式炭化水素のスチームリフォーミング方法及びそのための装置、発明者関根 泰・浦崎浩平・角 茂・藤元 薫、特許権利者関根 泰、特許、特許第4255201号、2009/2/6、国内

炭化水素、含酸素化合物の液相リフォーミング方法及び装置、発明者関根 泰・渡邊真人、特許権利者関根 泰、特許、特許第4068972号、2008/1/18、国内

Method for steam reforming of chain hydrocarbon, Inventors:Yasushi Sekine, Kouhei Urasaki, Shigeru Kado, Kaoru Fujimoto, Assignee:Yasushi Sekine, US Patent, US7285189, 2007/10/23, 米国特許

〔その他〕

本研究に関して石油学会奨励賞(2006)「新規非平衡放電を用いる炭化水素からの水素製造に関する研究」を受賞、また、触媒学会奨励賞(2008)「放電系と触媒反応系を組み合わせた水素製造システムに関する研究」を受賞した。

触媒学会にて2007年3月12日に「放電励起を用いた触媒反応による水素製造」早稲田大関根 泰ら、がプレス向け注目発表に取り上げられた。

