

日本—EU 国際共同研究「高度バイオ燃料と代替再生可能燃料」 2023 年度 年次報告書	
研究課題名（和文）	代替再生可能燃料としてのアンモニアの新合成ルートと新触媒
研究課題名（英文）	Novel routes and catalysts for synthesis of ammonia as alternative renewable fuel
日本側研究代表者氏名	丸山 純
所属・役職	大阪産業技術研究所 環境技術研究部 先進炭素材料研究長
研究期間	2021 年 5 月 1 日 ～ 2025 年 3 月 31 日

1. 日本側の研究実施体制

氏名	所属機関・部局・役職	役割
丸山 純	大阪産業技術研究所（ORIST） 環境技術研究部 先進炭素材料 研究室長	NH ₃ 電解合成陽極触媒開発
丸山 翔平	大阪産業技術研究所（ORIST） 環境技術研究部 主任研究員	触媒物性評価
澁谷 節子	大阪産業技術研究所（ORIST） 環境技術研究部 派遣研究員	触媒作製・電気化学特性評価
城間 純	産業技術総合研究所（AIST） エネルギー・環境領域 電池技術 研究部門 研究グループ長	触媒反応解析・電解セル作製
村井 嘉子	産業技術総合研究所（AIST） エネルギー・環境領域 電池技術 研究部門 契約職員	セル組み立て・データ取得・データ整理

2. 日本側研究チームの研究目標及び計画概要

電解窒素固定化法において、濃厚電解液（water-in-salt electrolyte, WIS）を適用すること

で陰極における競争反応である H_2 発生反応を抑え、 N_2 還元反応電流効率向上を図る。その際に予想される高い陽極過電圧を低減するため、通常の水溶液系において極低過電圧 O_2 発生 (OER) が可能なステップエッジ富化触媒の適用を試みる。本年度は、系統的に選択した WIS における極低過電圧 OER 現象の基礎的解析を実施し、WIS 中の OER 反応機構を解明することを目標とする。

3. 日本側研究チームの実施概要

2022 年度において、カーボンナノチューブ(CNT)表面をナノエッチングした上で鉄フタロシアニン(FePc)の昇華、析出、熱分解により FePc 由来炭素薄膜を被覆することにより、低過電圧酸素発生触媒を作製することに成功している。本年度、EU 側オーフス大において、 N_2 還元触媒作製のための Mn 析出セルの陽極として使用したところ、オーフス大において用いていた Pt/C 触媒より過電圧が低減することがわかった。

ORIST も関与した最新の関連研究において、 MnO_2 ナノシートの周縁がステップエッジとして、黒鉛担体と相互作用して OER 触媒能を示すことが明らかとなったことに基づき、FePc 由来炭素薄膜と MnO_2 との複合化により OER 触媒活性のさらなる向上を試みた。CNT に FePc 由来炭素薄膜を被覆し、さらに、水熱合成により MnO_2 を担持した。その結果、 MnO_2 との複合化によりさらに OER 活性が向上することが分かった。また、FePc 由来炭素薄膜を被覆せずに MnO_2 と複合化した場合には主に高電位領域に効果が限られるのに対し、CFePc と MnO_2 と複合化した場合には低過電圧でも OER 電流の増加が見られたことから、CFePc と MnO_2 との相乗効果による活性向上が図られたと考えられる。この高い OER 触媒能は、WIS 中でも発揮された。このほか、CNT 間の空隙に 3 次元規則ナノ多孔質構造を有する黒鉛質炭素材料の作製にも成功した。

欧州側の計画において、OER と N_2 還元反応(NRR)の組み合わせで運転するセルの形式に変更があったことと、代替的な反応経路によるアンモニア合成のためのセルの形式が定まったため、これらに対応する形で、分担内容である対極反応用の電極の作製を行った。

2022 年度に考案した、電気化学インピーダンス(EIS)挙動を分類する新しい指標 (電極反応解析手法) を実データに適用する上での有用性を高めるため、元データに含まれるノイズを、本指標の算出に特化して効果的に除去するアルゴリズムを開発した。