

【緒言】

放電反応を用いたガス触媒は排気ガスの浄化をはじめとして古くから用いられており、現在でも研究が進められている。特に、高出力放電と触媒を組み合わせたガス反応はアンモニア合成等の有用な物質の合成について一定の成果が報告されている。しかしながら、高出力放電を用いたガス反応は、現在主流の熱反応と使用エネルギーが同等以上であるため、工業的には現在のシステムから変更するほどの優位性は無いとされている。我々は、エネルギー資源の課題を解決するにあたって、使用エネルギーが小さいコロナ放電とナノポーラス金属材料を組み合わせる新しいシステムの構築を試みている。ナノポーラス金属は、ナノサイズの微細構造を持つ一繋がり構造であり、高い電気伝導性を併せ持っている。また、コロナ放電は電極先端のような尖った箇所に電圧が集中することで発生するという特性を持つ。従って、微細構造を持つ金属を用いることでコロナ放電を誘発し、電気化学的に反応を促進できるのではないかと着想した。

本研究では、ナノポーラス金属に電圧を印加しコロナ放電を発生させ、CO 酸化反応及び乾式メタン転換反応(DRM)の転換率について調査した。

【実験方法】

触媒反応装置のガラス管内部に触媒を入れ、He ガスを 50 sccm 流し、オンライン接続しているガス分析装置(MicrotracBEL, BELmass SPF、以後 BEL mass)でガラス管内部の空気が排出されたことを確認した後に、He ガスの流入を停止して、反応ガスを流した。実験には CO/O₂ガスと CH₄/CO₂ガスの 2 種類の反応ガスを用いた。BEL mass で反応ガスの濃度が安定したことを確認した後、ガスクロマトグラフィー(GC)で反応ガスの濃度を測定した。その後、静電圧(Max :13 kV, 81.0μA)を触媒に印加し、GC で反応ガスの濃度を測定して転換率を計測した。本実験では、触媒として用いた物質、ガラス管径、流量の違いによる転換率の変化を調査した。

【結果】

10 種類の物質を用いた CO 酸化反応における反応効率を調べた実験では、導体であるナノポーラス金(以後 NPG)が 18.0%と最も高い CO 転換率を示し、次点でフェルト銅が 16.5%の CO 転換率を示した。電極のみの放電反応と、酸化銅を用いた場合の CO 転換率はどちらも 7.0%だったため、絶縁体は放電反応に影響を与えないことが分かった。同量のフェルト銅を用いた CO 酸化反応の実験では、反応ガスの進行方向に広く分布させたものが 16.5%、1 部分に敷き詰めるように入れたものが 12%の CO 転換率を示したことから、触媒の接触時間が反応効率に影響を与えることが判明した。触媒を入れずに内径 10 mm と 20 mm のガラス管に CO/O₂ガスを 20 sccm 流した際の CO 転換率はそれぞれ 10.5%、7.0%だった。その後、内径 10 mm のガラス管と NPG を用いて CO/O₂ガスを 20 sccm 流した際の CO 転換率は 33.6%だった。内径 20 mm のガラス管を用いた場合は CO 転換率が 18.0%だったため、内径 10 mm のガラス管を用いた方がガスと触媒の接触時間が長く、高い反応効率を示すことが分かった。内径 10 mm のガラス管を用いて CO/O₂ガスの流量を変えたとき、CO 転換率は 10 sccm、20 sccm、30 sccm でそれぞれ 42.0%、33.6%、19.9%だった。

また、CH₄/CO₂ガスの流量を 10 sccm とした場合の DRM 反応については、触媒量、触媒の種類に関わらず CH₄転換率は 12-15%、CO₂転換率は 10-12%とおおよそ一定の値を示した。