

平成 年 月 日

## 学位論文の審査要旨

学位論文申請者氏名：熱海 良輔

論文題目：Kinetic Study of Denitrification and Hydrogen Production from  $\text{NH}_3/\text{H}_2\text{O}$   
over Ni-loaded Catalysts

(Ni 担持触媒を用いた  $\text{NH}_3/\text{H}_2\text{O}$  からの脱窒・水素製造の速度論的研究)

### 論文の概要及び判定理由

本論文では、アンモニア分解への利用を目的とした安価な Ni 触媒における速度論解析と加湿アンモニア系への適用が研究された。これまで行われてきた流通式固定層を用いた速度論解析において、触媒層内温度分布や触媒粒子内拡散過程が見かけの反応速度に与える影響を考慮していなかった点を指摘した上で、種々の反応条件における層内温度分布を測定・推算し、また触媒粒子内部の拡散現象が速度論的パラメーターに与える影響を評価することで、層内温度分布と拡散抵抗が無視できるアンモニア分解試験条件を明確にした。これにより、精度の高いアンモニア分解反応速度を得た。より実用的な観点から、アンモニア分解用の低コスト Ni 触媒の排水処理への適用を目的として、加湿アンモニア系でのアンモニア分解試験を試みた。加湿による触媒失活が観察されたが、Ni 担持  $\text{SiO}_2$  触媒を用いることで、923K、 $1500 \text{ ml L}^{-1} \text{ min}^{-1}$  の条件におけるアンモニア完全分解を達成した。また、担持ナノ Ni 粒子の酸化による触媒失活が起きるとの従来予想に対して、種々の実験および熱力学平衡計算から Ni と担体粒子による複合酸化物の形成、Ni 表面における OH 基吸着による失活がより顕著であることを明らかにした。

以上の通り、本論文では Ni 触媒によるアンモニア分解反応において、熱移動・物質移動が無視できる実験条件を探索し、実用的な速度論的パラメーターを得たこと、この触媒を加湿アンモニア系に適用することで排水処理プロセスへ適用できることを示すなど、多くの新しい知見を得た。本論文で得られた知見は、アンモニアをエネルギーキャリアとする水素社会や、熱化学的排水処理プロセスの実現において極めて重要であると判断される。

このため、博士（工学）の学位に値するものと判定した。

審査年月日 平成 27 年 2 月 4 日

## 審査委員

主査	群馬大学学術研究院	教授	宝田 恭之	印
副査	群馬大学学術研究院	准教授	野田 玲治	印
副査	群馬大学学術研究院	教授	中川 紳好	印
副査	群馬大学学術研究院	教授	渡辺 智秀	印
副査	産業技術総合研究所	主任研究員	松岡 浩一	印

## 関連論文

- 1 著者名 熱海良輔、野田玲治、高木英行、Luigi Vecchione, Andrea Di Carlo, Zaccaria Del Prete, 倉本浩司

論文題目 Ammonia decomposition activity over Ni/SiO<sub>2</sub> catalysts with different pore diameter (種々の細孔径を持つ Ni/SiO<sub>2</sub> 触媒におけるアンモニア分解活性)

雑誌名 International Journal of Hydrogen Energy, 39, 13954-13961, 2014 年 7 月
- 2 著者名 熱海良輔、野田玲治、高木英行、Luigi Vecchione, Andrea Di Carlo, Zaccaria Del Prete, 倉本浩司

論文題目 Effects of steam on Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalysts for ammonia decomposition  
Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 触媒によるアンモニア分解反応における水蒸気の影響

雑誌名 Industrial & Engineering Chemistry Research, 53, 17894-17853, 2014 年 10 月