

Environment Research and Technology Development Fund

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

1RF-1903 グリーン冷媒アンモニア用on-site触媒浄化装置の開発
(JPMEERF20191R03)
令和元年度～令和3年度

Development of on-site System for Ammonia as Green Refrigerant

<研究代表機関>

国立研究開発法人産業技術総合研究所

令和4年5月

目次

I. 成果の概要	1
1. はじめに（研究背景等）	
2. 研究開発目的	
3. 研究目標	
4. 研究開発内容	
5. 研究成果	
5-1. 成果の概要	
5-2. 環境政策等への貢献	
5-3. 研究目標の達成状況	
6. 研究成果の発表状況	
6-1. 査読付き論文	
6-2. 知的財産権	
6-3. その他発表件数	
7. 国際共同研究等の状況	
8. 研究者略歴	
II. 成果の詳細	
II-1 グリーン冷媒アンモニア用on-site触媒浄化装置の開発 （国立研究開発法人産業技術総合研究所）	17
要旨	
1. 研究開発目的	
2. 研究目標	
3. 研究開発内容	
4. 結果及び考察	
5. 研究目標の達成状況	
6. 引用文献	
III. 研究成果の発表状況の詳細	25
IV. 英文Abstract	27

I. 成果の概要

課題名 1RF-1903 グリーン冷媒アンモニア用on-site触媒浄化装置の開発

課題代表者名 日隈 聡士 (国立研究開発法人産業技術総合研究所 材料・化学領域 主任研究員)

重点課題 主：【重点課題⑦】 気候変動への適応策に係る研究・技術開発

副：【重点課題③】 環境問題の解決に資する新たな技術シーズの発掘・活用

行政要請研究テーマ (行政ニーズ) (1-5) 災害廃棄物のリサイクルシステムの強靱化に関する研究

研究実施期間 令和元年度～令和3年度

研究経費

15,060千円 (合計額)

(各年度の内訳：2019年度：5,450千円、2020年度：5,340千円、2021年度：4,270千円)

研究体制

他のサブテーマはない。

研究協力機関

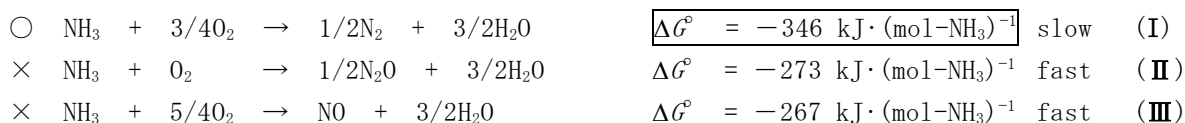
研究協力機関はない。

本研究のキーワード グリーン冷媒、アンモニア、on-site、オンサイト、触媒浄化

1. はじめに（研究背景等）

近年、環境負荷の少ないグリーン(自然)冷媒として『アンモニア(NH₃)』が注目されており、それを用いた冷凍冷蔵・空調機器の製品化が進められている。しかしながら、NH₃は毒性が強く、燃焼性も有するため機器の廃棄・交換の際にはNH₃冷媒を回収して無害化(浄化)する必要がある。現状、NH₃冷媒の回収・浄化処理は『全国で数カ所の専門施設に委託(事前登録→詳細手続き→回収→運搬→工場浄化)[日本水処理工業 大阪 等]』するしかなく、長い時間と高い費用がかかっている。『遠方・離島』等へNH₃冷媒使用機器の設置を考えると、その回収・浄化工程が律速(ボトルネック)になると予想される。そのため、NH₃冷媒の新たな『現地(on-site)』でできる安全・低環境負荷な回収・浄化方法』を開発できれば、NH₃冷媒機器の導入が促進され地球温暖化防止に繋がる。

本研究では、NH₃冷媒を酸素(O₂)と反応させ、有害ガスのN₂O/NOの生成を抑えてN₂とH₂Oのみ生成する触媒燃焼浄化装置を開発する。NH₃とO₂の反応では次に示すように、熱力学的にはN₂の生成反応が優位であるが(I)、速度的には有害ガスのN₂O/NO生成が有利である(II, III)。



しかしながら、これまで申請者は高N₂(低N₂O/NO)選択性を示すNH₃燃焼触媒の開発に成功しており、本研究ではそれらを用いて高性能ハニカム触媒を調製する。すなわち、これまで、NH₃の問題点を解決する高性能な燃焼触媒を開発できており、本申請はそれらの技術と経験に基づくものである。

2. 研究開発目的

実用化されているNH₃浄化装置には、『触媒燃焼式』は工場等から排出される高濃度NH₃を浄化する大型で設置型の装置がある。一方、触媒を使用しない『ガス分解式』は、設備サイズは小さいが700℃以上の高温が必要となる。すなわち、本申請のNH₃触媒燃焼浄化装置に類似する研究開発は検討されていない。加えて、これまで申請者が開発した高性能触媒は、安価で従来型の含浸担持法で大量生産できる。グリーン冷媒NH₃を広く普及させるためにも、新たなNH₃触媒燃焼浄化装置の開発が望まれる。そこで本研究では『高性能なNH₃触媒燃焼浄化装置を開発する』ことで、グリーン冷媒アンモニアをon-siteで触媒浄化の可能性を示すことを目的とする。

3. 研究目標

全体目標	高性能なNH ₃ 触媒燃焼浄化装置を開発する（グリーン冷媒アンモニア用on-site触媒浄化装置の開発）。
サブテーマ1	グリーン冷媒アンモニア用on-site触媒浄化装置の開発
サブテーマリーダー/所属機関	日隈 聡士/国立研究開発法人産業技術総合研究所
目標	<p>本研究の最終目標は『高性能なNH₃触媒燃焼浄化装置を開発する』ことである。本目標を達成するために、以下の3項目を各年度の目標として研究開発を進める。特に高濃度のNH₃を浄化可能な触媒装置開発に取り組む。</p> <p>【① 触媒開発】高性能・耐久性ハニカム触媒の調製と浄化試験</p> <p>これまで開発した触媒を使用して、高い熱伝導性を有するハニカム構造化し、</p>

②で試作した装置に設置する。NH₃をN₂へと高効率に浄化するため、触媒重量・サイズ・反応温度・ガス流量等を最適化する。これまで知見と技術に基づき開発してきた触媒をハニカム構造化し、1年目で試作した燃焼器と組み合わせる。NH₃をN₂へと浄化するため、触媒重量・サイズ・反応温度・ガス流量等の条件を最適化する。浄化特性は再現性と耐久性を確認するため、長時間(≧ 100 h)反応試験を実施する。研究協力者にはNH₃冷媒機器の関連企業に本研究を紹介するとともに今後の動向を確認してもらう。

【② 装置試作】 軽量・小型(コンパクト)な触媒燃焼浄化装置の試作

軽量・小型(コンパクト)なNH₃浄化触媒燃焼装置を試作するため、反応管・配管・温度調節器・ヒーター等の部品と材料を選定して組み合わせる。装置は全国各所で使用できるように『AC 100V』電源にする。軽量(総重量 ≦ 5 kg)・小型(サイズ ≦ 30 L)・精密温度制御(誤差 ≦ ± 5 °C)・安全(NH₃漏洩 ≦ 1 ppm)なポータブル装置を開発するため、反応管・配管・温度調節器・ヒーター等の部品と材料の候補を選定する(現在の候補は、耐腐食性ステンレス製・スウェージロック規格品・セラミックヒーター等)。

【③ 反応試験】 実用を想定した浄化試験と低N₂O/NO排出の実現

試作した触媒燃焼浄化装置にNH₃/N₂O/NO濃度分析装置を接続し、実用を想定したNH₃冷媒の浄化試験を実施して生成物選択性を評価する。工場規模のNH₃/N₂O/NO排出規制濃度『10 ppm以下』を目標とする。試作した装置に現有のガス濃度分析装置を接続して排出ガス組成を定量する。300 °C以下のNH₃低温浄化ならびにNH₃/N₂O/NO生成濃度の10 ppm以下を目標とする。以上の目標を右上の表3.1にまとめる。

表3.1 本研究の①～③の『研究内容・手法』と『数値目標』.

【①触媒開発】	
研究内容・手法	数値目標
触媒調製・評価	
<ul style="list-style-type: none"> > 粉末触媒調製 > ハニカム構造化 > 浄化特性評価 	企業動向確認 条件最適化 再現性検討 耐久性 ≧ 100 h
【②装置試作】	
研究内容・手法	数値目標
浄化装置試作	
<ul style="list-style-type: none"> > 材料・部品選定 > 図面設計 > 試作器構築 	配管仕様調査 総重量 ≦ 5 kg サイズ ≦ 30 L NH ₃ 漏洩 ≦ 1ppm
【③反応試験】	
研究内容・手法	数値目標
NH ₃ 浄化実証試験	
<ul style="list-style-type: none"> > 各種ガス定量 > 改善事項明確化 > 反応特性統合 	需要・制度調査 NH ₃ 転化 ≦ 300°C NH ₃ /N ₂ O/NO 排出 ≦ 10 ppm

4. 研究開発内容

＜高性能・耐久性ハニカム触媒の調製と浄化試験＞

これまでの研究で、主な遷移金属酸化物のNH₃燃焼活性を貴金属の中でも高活性であったPt/Al₂O₃と比較すると、Ag₂O > MnO₂ > Co₃O₄ > Pt/Al₂O₃ > CuO > Fe₂O₃ ≈ V₂O₅ > NiOの序列を示した。得られたNH₃転化率が10%に達する温度(T₁₀)を、金属酸化物(M_xO_y)から酸素(O)を1mol放出する際のエンタルピー変化(ΔH° : M_xO_y → M_xO_{y-1} + 1/2O₂)に対してプロットした(図4.1)。その結果、高活性を示した金属酸化物ほどΔH°は低い傾向にあったことから、NH₃燃焼活性は金属-酸素間結合強度に依存すると推定される。すなわち、NH₃触媒燃焼はCH₄燃焼と同様、Mars-van Krevelen機構として進行する可能性が示唆される。酸素過剰条件(λ = 24)においても、類似の相関が認められた。一方、生成物選択性については、金属酸化物とPt/Al₂O₃触媒のいずれの場合でも、熱力学的予測(N₂生成反応)に反してNOの生成が認められた。しかしながら、酸化銅(CuO_x)のNO選択率は金属酸化物の中で最も低い値を示した(図4.1)。

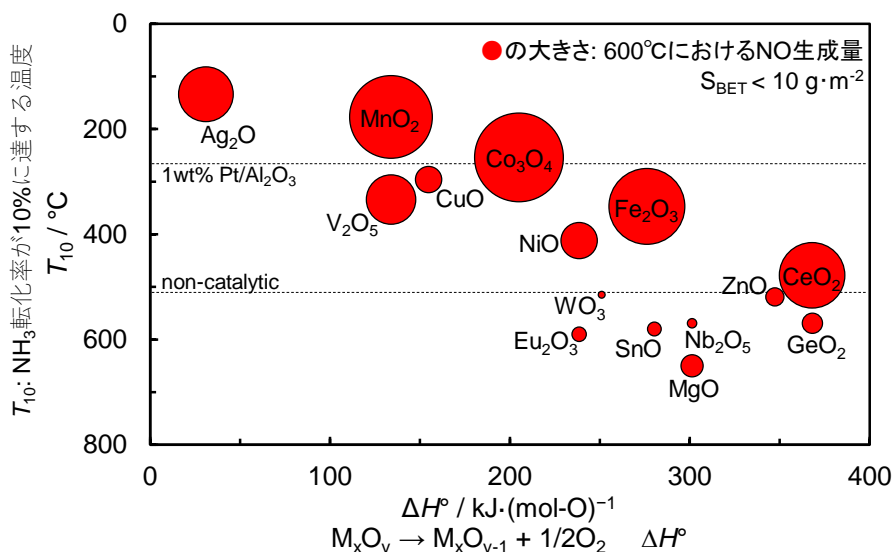


図4.1 金属酸化物のNH₃燃焼活性 (T_{10}) とその酸化物 (M_xO_y) から酸素 (O) を 1 mol 放出する際のエンタルピー変化 ($\Delta H^\circ : M_xO_y \rightarrow M_xO_{y-1} + 1/2O_2$) の相関。

表4.1 種々の担持CuO_x触媒のNH₃燃焼反応特性

Support	T_{10} ^a / °C	Selectivity at T_{90} ^a / %			S_{BET} / $m^2 \cdot g^{-1}$	Red. temp. ^b / °C	D_{Cu} ^c / %	Cu particle size	
		N ₂	N ₂ O	NO				^c / nm	^d / nm
MgO	360	83	1	16	33	212	29	3.6	4.0 ± 2.3
Al ₂ O ₃	303	92	6	2	149	185	43	2.4	-
10A2B ^e	307	97	2	1	77	210	27	3.9	-
AlPO ₄	351	95	3	2	64	222	12	8.6	-
SiO ₂	334	97	1	2	177	220	11	9.4	10 ± 21
TiO ₂	340	73	4	23	9	220	19	5.3	-
ZrO ₂	306	84	2	14	11	210	25	4.1	-
La ₂ O ₃	290	57	6	37	13	162	30	3.4	-
CeO ₂	301	88	1	11	137	172	42	2.5	-

^a NH₃転化率が10%および90%に達する温度. ^b H₂-TPRより求めた還元温度. ^c H₂-TPRより求めたCuの分散度と粒子径. ^d TEM像から算出したCuの平均粒子径.

そこで以降では、比較的高い活性と高N₂選択性を示したCuO_xに着目し、様々な担持CuO_x触媒を調製してそのNH₃燃焼特性を評価した。表4.1に用いた担体、種々の触媒の T_{10} 、NH₃転化率が90%を示す温度におけるN₂、N₂OおよびNO選択率、比表面積、触媒の還元温度、Cu粒子径を示す。燃焼活性を表す T_{10} の序列を、触媒の還元温度と比較したところおおよそ一致していたことから、担持CuO_x触媒のNH₃燃焼活性とCuO_xの還元性に相関があることが分かった。そして、還元性の高い触媒ほどCu粒子が微細な傾向があることも認められ、高分散CuO_x粒子がNH₃燃焼活性を示すと推察された。一方、N₂選択性については、酸化アルミニウムホウ酸塩 (Al₂₀B₄O₃₆、10Al₂O₃・2B₂O₃ : 10A2B) を担体として用いた担持CuO_x触媒が最も高い値を示した。この他、CuO_x/Al₂O₃に銀Agを組み合わせたCuO_x/Ag/Al₂O₃、白金Ptを組み合わせたCuO_x/Pt/Al₂O₃が高性能を示したため、本項の『高性能・耐久性ハニカム触媒の調製と浄化試験』ではそれらの触媒について検討した。

触媒担体調製: NH₃燃焼触媒として高性能を示す担体の酸化アルミニウムホウ酸塩 (Al₂₀B₄O₃₆、10Al₂O₃・2B₂O₃ : 10A2B) を逆共沈法で調製した。Al : B = 5 : 1のモル比のAl(NO₃)₃およびH₃BO₃ (Wako Pure Chemicals) を含む水溶液を攪拌しながら、(NH₄)₂CO₃ (Wako Pure Chemicals) の3 mol・L⁻¹溶液にpHが7に達するまでで滴下した。形成された沈殿物を空气中で500° Cで3時間、最後に1000° Cで5時間焼成した。酸化アルミニ

ウム (γ -Al₂O₃; 日本触媒学会JRC-ALO-8) も担体として使用した。

粉末(粒状, granule)触媒調製: 得られた担体に酸化銅CuO_x (6wt% CuO)、銀Ag (10wt% Ag)、および白金Pt (2 wt% Pt) の単一および二元系を担持した。Cu(NO₃)₂ (Wako Pure Chemicals)、AgNO₃ (Wako Pure Chemicals) および[Pt(NH₃)₂(NO₂)₂] (Tanaka Kikinzoku Kogyo) の水溶液を含浸させた後、乾燥させたのちに600° Cで3時間、空气中で焼成することにより担持触媒を得た。触媒の熱安定性を評価するために、調製した触媒を空气中で800° Cあるいは900° Cで100時間熱劣化させた。

ハニカム(honeycomb)触媒調製: ハニカム触媒はコーディエライトハニカム (600 cpsi, 3 cell × 4 cell × 15 mmおよびφ1 inch × 15 mm)をスラリーに浸漬することで調製した(図4.2)。スラリーは粉末触媒、Al₂O₃バインダーおよび純水を混合した水溶液をボールミルすることで均一化した。その後、ハニカム触媒は110° Cで12時間乾燥し、空气中600° Cで3時間焼成した。コーディエライトハニカムに50 mgの粉末触媒を塗布することで、CuOの充填量を約15 g・L⁻¹とした。粉末触媒同様、ハニカム触媒も空气中で800° Cあるいは900° Cで100時間熱処理し、表5.1に示す触媒を得た。

得られた粉末触媒は粉末X線回折(XRD; Multiflex, Rigaku) を使用して構造解析し、蛍光X線 (XRF; EDXL-300, Rigaku) を用いて化学組成を定量した。コーティングされたハニカム触媒内の空間分布は、波長分散型X線分析 (WDX; Shimadzu EP-MA-1720H) によってマッピングした。密度近似 (DFT) 計算をTURBOMOLEに実装されたdef-SV (P) 基底関数セットを使用して、M06レベルでNH₃/Ag₂₀に対して実行した。Ag₂₀のモデル粒子(クラスター) は、4つの(111)面を持つ四面体(T_d)ジオメトリをもっていると想定されている。NH₃-Ag₂₀の3つのタイプ(atop, edge, vertex)の初期形状で考慮した。Ag₂₀へのNH₃の吸着エネルギーは、 $E_{ads} = E_{tot}(\text{NH}_3) + E_{tot}(\text{Ag}_{20}) - E_{tot}(\text{NH}_3\text{-Ag}_{20})$ と推定され、ここでE_{tot}は合計エネルギーになる。

粒状あるいはハニカム触媒のNH₃燃焼反応特性は、固定床流通反応装置を用いて評価した。粒状(10-20 mesh, < 0.3 mm thickness, 50 mg) あるいはハニカム(600 cpsi)触媒を石英管に充填し、それぞれ両端に石英ウールを使用して固定した。触媒活性および生成物選択性の温度依存性は、8% NH₃-92% 空気 (18.6% O₂) あるいは30% NH₃-70% 空気 (14% O₂) を含むガス混合物中で10° C min⁻¹の一定速度で室温から600° Cまで触媒床を加熱することにより評価した。NH₃の爆発範囲は15~28%であり本反応は範囲外である。NH₃/N₂O/NOガスの濃度は、非分散型赤外線 (NDIR) ガス分析 (VA-3011, Horiba) を使用して分析した。

<軽量・小型(コンパクト)な触媒燃焼浄化装置の試作の検討>

装置の図面設計については、国内外の研究者と議論しながら進める。特にProf. Chakraborty (デンマーク工科大学, DTU)などは彼らはDTUからベンチャー(企業名: RenCat)を起業しており、NH₃燃料利用装置を開発している。それはNH₃からH₂を製造して燃料電池に供給するための装置であるが、下流側で未反応のNH₃を触媒で浄化している(SAO: Selective Ammonia Oxidation, 選択的NH₃酸化浄化という意味)。サイズは50 L以下で、本申請装置では上流部分(NH₃分解H₂製造)は不要であるため、更なる小型・軽量化が見込める。そこで本項の『軽量・小型(コンパクト)な触媒燃焼浄化装置の試作の検討』では、軽量(総重量 ≤ 5 kg)・小型(サイズ ≤ 30L)・精密温度制御(誤差 ≤ ±5 °C)・安全(NH₃漏洩 ≤ 1 ppm)なポータブル装置を開発するため、反応管・配管・温度調節器・ヒーター等の部品と材料の候補を選定した(耐腐食性ステンレス製・スウェージロック規格品・セラミックヒーター等)。特にNH₃漏洩については問題視されるため、配管仕様調査内容を慎重に行った。

5. 研究成果

5-1. 成果の概要

<高性能・耐久性ハニカム触媒の調製と浄化試験>

粉末触媒のXRDパターンを分析すると(図5.1)、 $\text{CuO}_x/\text{Al}_2\text{O}_3$ (900°C)、 $\text{CuO}_x/10\text{A}2\text{B}$ (900°C)、 $\text{CuO}_x/\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (800°C)、 $\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (900°C)の $\text{CuO}_x/\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (900°C)は、それぞれ CuAl_2O_4 、金属Ag、金属Ptの回折ピークが認められた。800°C以上の熱処理温度の Al_2O_3 担持触媒の場合 Al_2O_3 は γ 相から α 相に転移が確認された。一方、調製後の $\text{CuO}_x/\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$ の回折ピークではAg- Al_2O_3 界面に存在する推定される AgAlO_2 が認められ、これによりAg-O-Al相互作用の形成によって固定された高分散なAgナノ粒子を析出させることができると考えらえる。

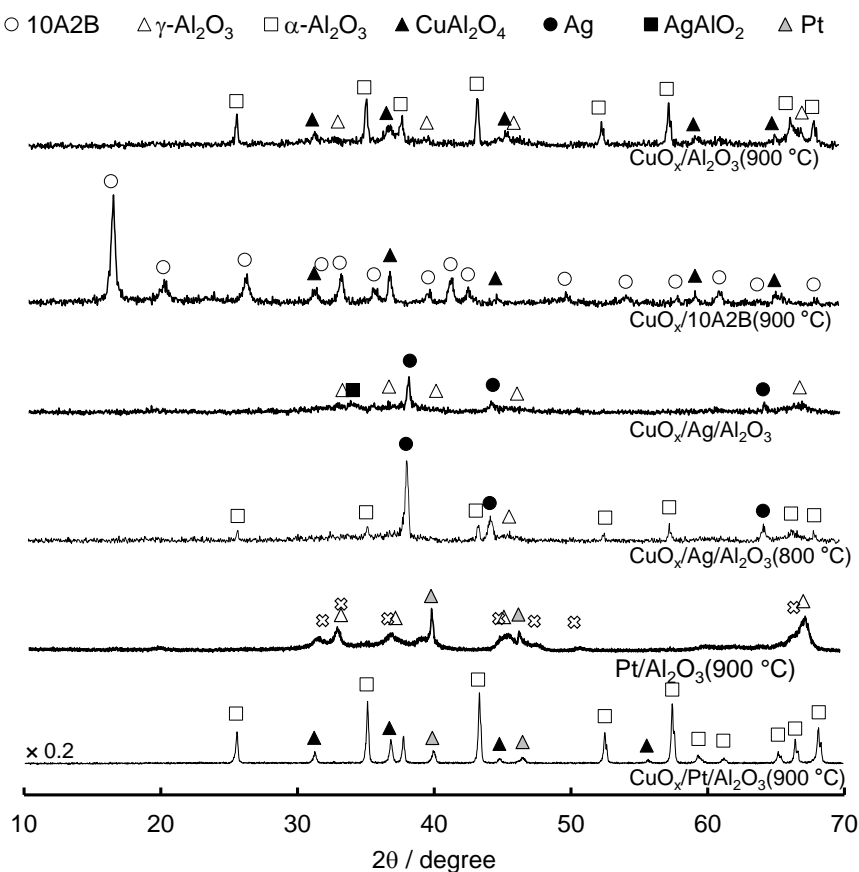


図5.1 種々の粉末触媒のXRDパターン。

図5.2 ~ 図5.4に得られたハニカム触媒の後方散乱

電子 (BSE: back scattered electron) 像およびエネルギー分散型X線分光法 (WDX: energy dispersive X-ray spectrometry) マッピング像を示す。いずれのハニカム触媒についても、コーディエライトハニカム基材の表面に粉末触媒の層(厚さ:約100 μm)が密接に接触し、塗布されていた。 Cu-K 蛍光線のマッピング像から、 $\text{CuO}_x/\text{Al}_2\text{O}_3$ (900°C)の CuO_x は Al_2O_3 およびバインダー上に均一に分散しており、 $\text{CuO}_x/10\text{A}2\text{B}$ (900°C)の CuO_x は不均一に分散していた。これらの状態は、以前の報告した $\text{CuO}_x/\text{Al}_2\text{O}_3$ (900°C)および $\text{CuO}_x/10\text{A}2\text{B}$ (900°C)のCuナノ粒子サイズの順序と一致した。一方、 Ag-L 蛍光線のマッピング像では、調製後の $\text{CuO}_x/\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$ は高分散したAgナノ粒子が観察され、 $\text{CuO}_x/\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (800°C)はコート層の表面にAgが凝集していた。すなわち、Agの凝集は空气中800°Cでの熱処理によって引き起こされたと示唆された。これに対して、 Pt-M 蛍光線のマッピング像では二元系の $\text{CuO}_x/\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (900°C)のPtは高分散していたが、単一の $\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (900°C)のPtは僅かに凝集していた。

一方、触媒層の亀裂や空孔はすべての触媒で観察され、 $\text{CuO}_x/\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (900°C)は特徴的であった(図5.4)。亀裂と空孔は熱処理前後の触媒のBrunauer-Emmett-Teller (BET) 表面積 (S_{BET}) の減

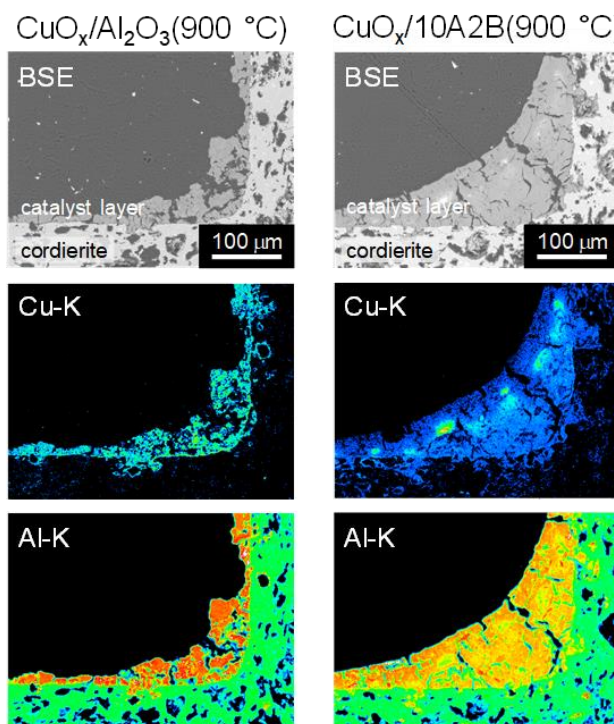


図5.2 $\text{CuO}_x/\text{Al}_2\text{O}_3$ (900°C) および $\text{CuO}_x/10\text{A}2\text{B}$ (900°C)のハニカム触媒のBSE像とWDXマッピング像。

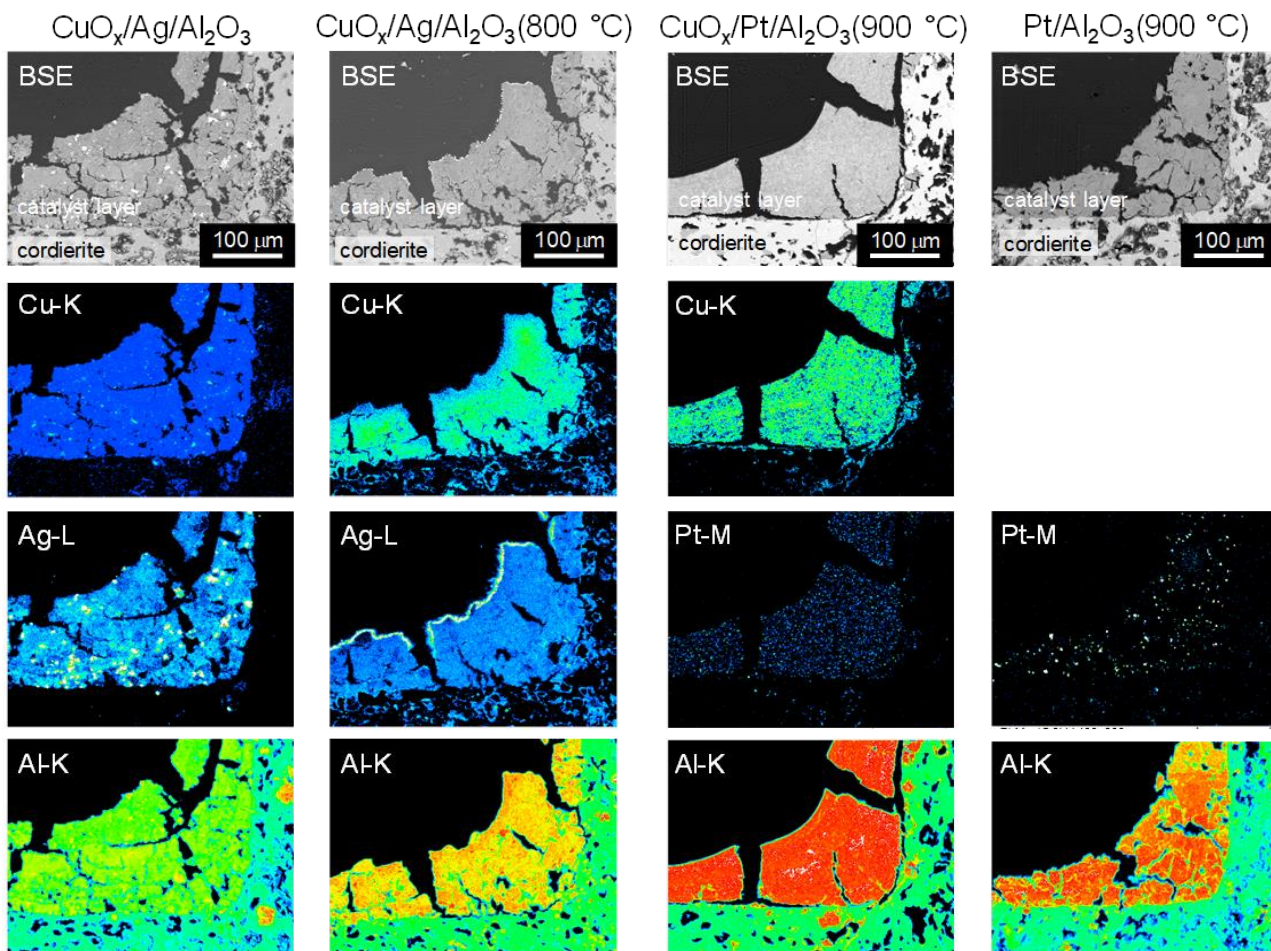


図5.3 CuO_x/Ag/Al₂O₃およびCuO_x/Ag/Al₂O₃(800° C) のハニカム触媒のBSE像とWDXマッピング像.

図5.4 CuO_x/Pt/Al₂O₃ (900° C) およびPt/Al₂O₃ (900° C) のハニカム触媒のBSE像とWDXマッピング像.

少と、 γ -から α -Al₂O₃への相転移によって引き起こされたと考えられる。900° Cでの同じ熱処理にもかかわらず、 S_{BET} の大幅な減少は、他の触媒と比較してCuO_x/Pt/Al₂O₃ (900° C) で確認され (139 → 14 m²·g⁻¹)、XRDパターンから得られた γ -から α -Al₂O₃への相転移と一致する (図5.1)。したがって、 S_{BET} の大幅な減少は、 γ -から α -Al₂O₃への相転移によるものと考えられる。添加剤を含まない γ -Al₂O₃の場合、約1200° Cで α -Al₂O₃への相転移が観察されると報告がある [Busca, G., *Catal. Today*, **226**, 2 (2014).]。しかしながら、

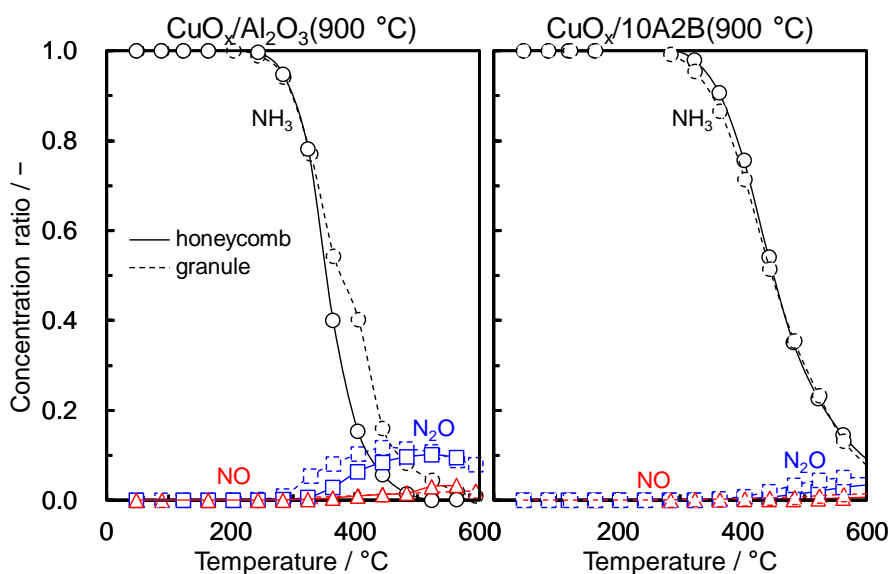


図5.5 CuO_x/Al₂O₃ (900° C) およびCuO_x/10A2B (900° C) のハニカム触媒と粒状触媒のNH₃転化率およびN₂O/NO選択率の反応温度依存性。反応条件: 8% NH₃-92% 空気 (18.6% O₂) .

Al_2O_3 の相転移に対する2価カチオン添加剤の影響についても以前に報告されており、 CuO_x の Cu^{2+} の共存により 1200°C より低温で γ -から α - Al_2O_3 への遷移が促進される[Okada, K., Hattori, A., Taniguchi, T., Nukui A., Das, R., *J. Am. Ceram. Soc.*, **83**, 928 (2000).].

さらに、Ptの共存が CuAl_2O_4 の形成と $\gamma \rightarrow \alpha$ - Al_2O_3 の転移、ならびに S_{BET} の減少を促進することも示唆されている。同様の挙動は、 1000°C での熱劣化後のCu-Al-0およびCu-Pt-Al-0系触媒でも見られた[Ferrandon, M., Ferrand, B., Bjornbom, E., Klingstedt, F., Neyestanaki, A., Karhu, H., Vayrynen, I., *J. Catal.*, **202**, 354 (2001).]. 以上よりハニカム型触媒の $\text{CuO}_x/\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (900°C)の触媒層では、 S_{BET} の減少と γ -から α -への相転移のために、コーディエライトと Al_2O_3 の間に大きな亀裂と空孔が形成されたと考えられる。

図5.5 ~ 図5.7に粒状およびハニカム触媒の NH_3 燃焼反応の活性と生成物選択性の温度依存性を比較した結果を示す。加えて、表5.1にその NH_3 触媒反応特性のまとめを示す。触媒活性は NH_3 転化率が10%と90%に達する温度(T_{10} , T_{90})、選択性は NH_3 転化率が90%に達する温度(T_{90})における N_2O および NO の選択率でそれぞれ比較した。 $\text{CuO}_x/\text{Al}_2\text{O}_3$ (900°C) および $\text{CuO}_x/10\text{A}2\text{B}$ (900°C) の場合、ハニカム触媒の NH_3 転化率曲線と $\text{N}_2\text{O}/\text{NO}$ 選択率のプロファイルは、粒状触媒のそれらとほとんど同じであった。さらに、 $\text{CuO}_x/\text{Al}_2\text{O}_3$ (900°C) のハニカム触媒は $\text{CuO}_x/10\text{A}2\text{B}$ (900°C) のそれに比べ、 NH_3 のlight-offカーブの温度が低く(高活性)で高 N_2O 選択性を示した。これらは以前報告した粒状触媒の序列と一致するため、ハニカム触媒でも再現性が得られたと考えられる。

NH_3 燃焼反応後の上流から下流の部分のハニカム触媒の表面酸化状態を調べるために、XPSスペクトルを測定した。図5.8に $\text{CuO}_x/10\text{A}2\text{B}$ (900°C) のハニカム触媒の反応器の上流、中央、下流部分の $\text{Cu}2\text{p}$ XPSスペクトルを示す。いずれの場所の触媒

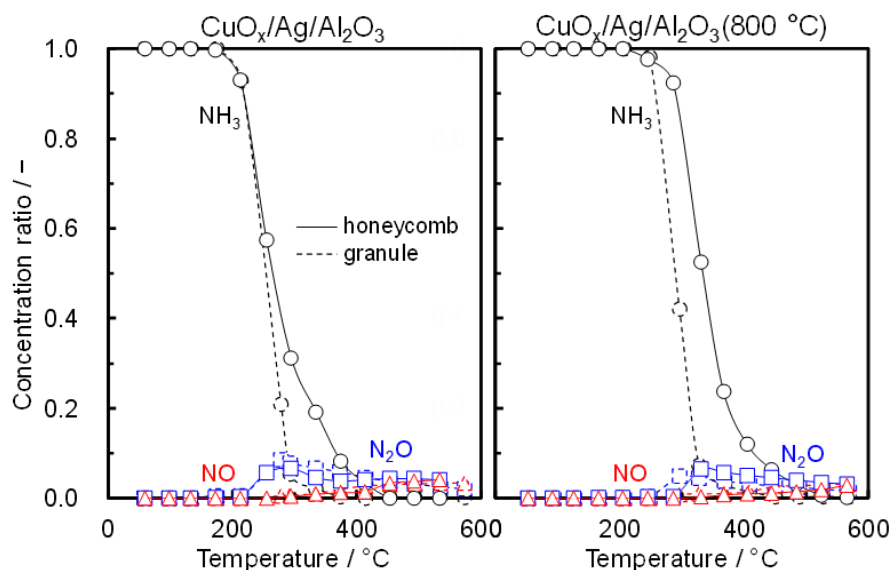


図5.6 $\text{CuO}_x/\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$ および $\text{CuO}_x/\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (800°C) のハニカム触媒と粒状触媒の NH_3 転化率および $\text{N}_2\text{O}/\text{NO}$ 選択率の反応温度依存性. 反応条件: 8% NH_3 -92% 空気 (18.6% O_2).

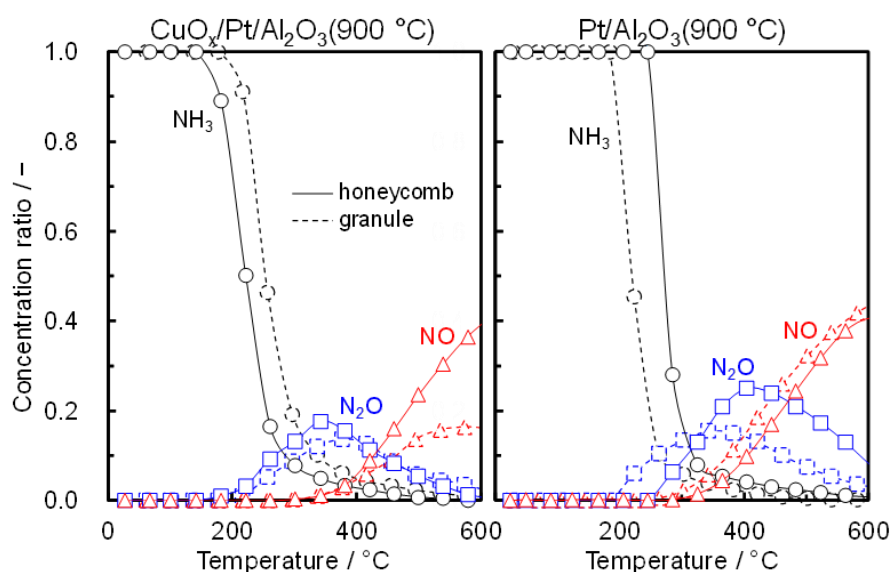


図5.7 $\text{CuO}_x/\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (900°C) および $\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (900°C) のハニカム触媒と粒状触媒の NH_3 転化率および $\text{N}_2\text{O}/\text{NO}$ 選択率の反応温度依存性. 反応条件: 8% NH_3 -92% 空気 (18.6% O_2).

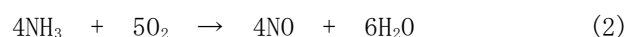
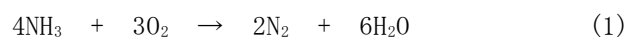
CuO_x/10A2B (900° C) でもCu⁺、Cu²⁺ならびにCu²⁺由来の satellite ピークが認められた。カーブフィッティングにより、CuO_x/10A2B (900° C) のハニカム触媒のCu²⁺の割合は、上流位置inlet (Cu⁺: 60%、Cu²⁺: 40%) < 中間位置middle (Cu⁺: 39%、Cu²⁺: 61%) < 下流位置outlet (Cu⁺: 28%、Cu²⁺: 72%) の順で増加することが分かった。同様の挙動は、Doronkinら等のNH₃酸化反応 (0.1% NH₃-10% O₂) のマイクロリアクター内のCu-SAPO-34触媒の空間分解Cu K-edge XANESスペクトルからも報告されており [Doronkin, D. E., Casapu, M., Günter, T., Müller, O., Frahm, R., Grunwaldt, J. D., *J. Phys. Chem. C*, **118**, 10204 (2014).]、本結果と一致した。すなわち、NH₃燃焼反応中の下流位置のCuO_x/10A2B (900° C) もより高い割合のCu²⁺を含むと推定される。

調製後のCuO_x/Ag/Al₂O₃およびCuO_x/Ag/Al₂O₃ (800° C) についても、ハニカム触媒のNH₃転化率曲線とN₂O/NO選択率のプロファイルは、粒状触媒のそれらとほとんど同じであった。加えて、CuO_x/Ag/Al₂O₃のハニカム触媒はCuO_x/Ag/Al₂O₃ (800° C) のそれより高活性を示した。これまで粉末触媒でも、空気中800° Cでの熱処理によってCuO_x/Ag/Al₂O₃の活性の低下が確認されており、その要因はAl₂O₃に担持されたAgナノ粒子の凝集によるものと考えられた。今回のハニカム触媒についても、図5.3のAg-L蛍光線のマッピング像からAg粒子の凝集が確認されたため、それが要因となって活性低下を示したと考えられる。

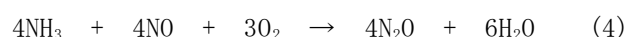
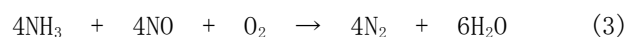
Agナノ粒子と活性の相関を確認するために、4つの (111) 面のAg₂₀クラスターへのNH₃の吸着エネルギー (Ag-N結合エネルギー, E_{ads}) を、異なる構成のDFT計算で検討した (図5.9と表5.2)。3つのタイプの初期形状のAg-N E_{ads} は、atop < edge < vertexの順序で増加する傾向があり、NH₃が不飽和のAgサイトに吸着することを示唆した。さらに、vertexに吸着したNH₃のN-Hの結合長は、atopおよびedgeよりも長かった。すなわち、高分散したAgナノ粒子がN-H結合解離に対して高活性を示すことが示唆された。

一方、Pt/Al₂O₃ (900° C) およびCuO_x/Pt/Al₂O₃ (900° C) の場合、ハニカム触媒は比較的高い反応温度でのNO選択性が粒状触媒よりも高い結果となった。NH₃からN₂への触媒酸化と燃焼反応について、その反応メカニズムは次の2つのステップで進行していると考えられている。

1 step:



2 step:



この2ステップ反応において、粒状触媒の場合NO選択性は触媒と反応ガスと接触時間が減少とともに増加する傾向がある。粒状触媒と比較して、ハニカム触媒はセルに空孔と反応管とにデッドスペースを有するため、上記同様反応ガスと触媒との接触頻度が低下すると考えられ、今回のPt/Al₂O₃ (900° C) およびCuO_x/Pt/Al₂O₃ (900° C) のハニカム触媒のNO選択性は、粒状触媒のNO選択性よりも高くなったと考えら

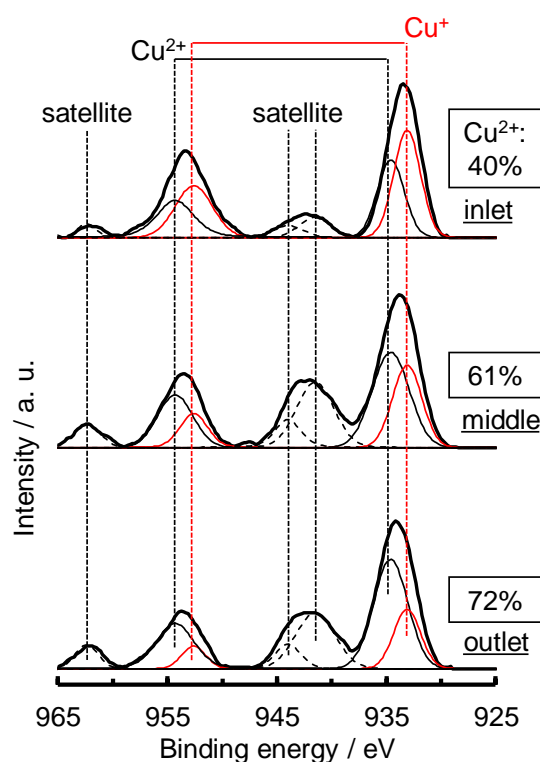


図5.8 CuO_x/10A2B (900° C) のハニカム触媒の反応器の上流(inlet)、中央(middle)、下流(outlet)部分のCu2p XPSスペクトル。

れる。

表5.1 種々の触媒のNH₃燃焼反応特性

Catalyst	Shape	Phase ^a	T ₁₀ b/°C	T ₉₀ b/°C	Selectivity at T ₉₀ ^b / %	
					N ₂ O	NO
CuO _x /Al ₂ O ₃ (900 °C)	honeycomb	-	302	423	8	1
	granular	CuAl ₂ O ₄ /α, γ-Al ₂ O ₃	302	471	13	2
CuO _x /10A2B(900 °C)	honeycomb	-	369	594	4	1
	granular	CuAl ₂ O ₄ /10A2B	354	583	5	1
CuO _x /Ag/Al ₂ O ₃	honeycomb	-	222	368	4	1
	granular	CuAl ₂ O ₄ /Ag/γ-Al ₂ O ₃	236	272	10	<1
CuO _x /Ag/Al ₂ O ₃ (800 °C)	honeycomb	-	295	416	6	1
	granular	CuAl ₂ O ₄ /Ag/α, γ-Al ₂ O ₃	284	320	5	<1
CuO _x /Pt/Al ₂ O ₃ (900 °C)	honeycomb	-	181	286	12	<1
	granular	CuAl ₂ O ₄ /Pt/α-Al ₂ O ₃	220	339	13	1
Pt/Al ₂ O ₃ (900 °C)	honeycomb	-	262	315	13	1
	granular	Pt/γ, θ-Al ₂ O ₃	213	266	12	<1

^a XRDより明らかになった構造. ^b NH₃転化率が10%および90%に達する温度.

しかしながら、高性能なCuO_x/Ag/Al₂O₃などの触媒でも低温域でN₂Oならびに高温域でNOの生成が認められ、NH₃の過剰な酸化が起こっている。そこでNH₃燃焼反応における空気(O₂)濃度を下げた条件での特性評価を行った。図5.10に他の触媒より安価で大量製造可能なCuO_x/Al₂O₃(900 °C)のハニカム触媒と粒状触媒の、反応条件30% NH₃-70% 空気(14% O₂)のNH₃燃焼反応特性を示す。図5.5同様、ハニカム触媒と粒状触媒のNH₃転化率曲線

とN₂O/NO選択率のプロファイルはほぼ一致しており、反応特性は触媒の形状に依存することなく、種々の触媒材料の特性を反映していると推察された。加えて、いずれの反応温度でもN₂OとNOの生成はほぼ認められず、N₂O/NO生成濃度はほぼ『10 ppm以下』を示した。すなわち、②の目標の『高性能・耐久性ハニカム触媒の調製と浄化試験』をほぼ達成し、③の目標である工場規模のNH₃/N₂O/NO排出規制濃度『10 ppm以下』の一部を達成した。

<軽量・小型(コンパクト)な触媒燃焼浄化装置の試作の検討>

試作については、触媒燃焼型VOC(volatile organic compounds, 揮発性有機化合物)処理実証装置の資料をいただいた。これまで、始動、定常運転、異常加熱における警告点灯など、実用機として必要な

表5.2 NH₃とAg₂₀クラスター(Ag-N E_{ads})間の吸着エネルギー、およびDFT計算によって取得されたAg₂₀に吸着されたNH₃のN-Hの結合長

Entry	Ag-N E _{ads} / eV	Bond lengths of N-H / Å
atop	0.626	1.0242, 1.0246, 1.0247
edge	0.642	1.0242, 1.0242, 1.0244
vertex	0.860	1.0244, 1.0247, 1.0249

基本的動作を自動化した触媒燃焼型VOC処理実証装置を試作しおり、本研究装置開発についても議論し参考にした。本反応器の流路構造は、反応ガスを2等分し、それらを互いに熱交換構造をもつ反応器内で向流させるとともに、反応器内の両流路の中央部に酸化反応のための触媒層を設置することを特徴としている。これにより、2等分された一方の流路の処理ガス下流（触媒層から出た高温の生成ガス）から、もう一方の流路の処理ガス上流（触媒層に入る前の低温の反応ガス）に熱が移動し、処理ガスを予熱することができる。1つの流体の下流と上流との間で熱交換した場合と同様の熱回収効果を発揮させることができる。往復流路型反応器と比べ流路長と流量がともに半分になることにより、圧力損失が大幅に小さくなる。以上のように、分割向流型の熱交換/触媒一体型反応器となる。

参考ならびに検討後に図5.11示す軽量・小型（コンパクト）な触媒燃焼浄化装置の設計を終えた。冷媒のNH₃ならびに空気導入口を配管し、それぞれの流量をマスフローコントローラーとブローで制御するシステムにした。それらはパソコンと通信することで自動制御可能な仕様とした。流量制御後の反応ガスはハニカム触媒の設置を予定している石英反応管（内径：1 inch）に挿入され、それらは100V AC電源で最大700 °Cまで温度制御可能な浄化反応器と組み合わせることとした。設計を進めるとともに現在の試作の状況を図5.12に示す。100V AC電源で運転可能な触媒反応炉とバルブ制御ユニットをステンレス板に固定し、軽量で強固な反応システムとしている。加えて、ガス（NH₃、空気）流量、圧力・温度調節機器もコンパクト仕様に組み上げ、現状は手動での操作が可能とした。NH₃用耐腐食性のマスフローコントローラーを選定し、配管継手を構築してリークチェックなど施した。。

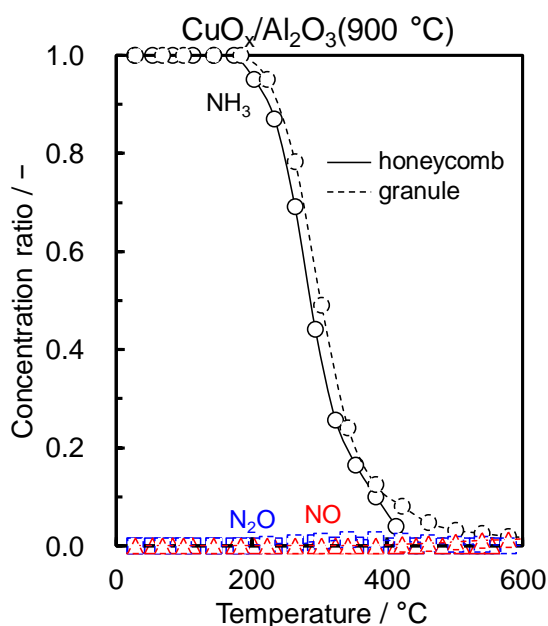


図5.10 CuO_x/Al₂O₃ (900 ° C) のハニカム触媒と粒状触媒のNH₃転化率およびN₂O/NO選択率の反応温度依存性. 反応条件: 30% NH₃-70% 空気 (14% O₂) .

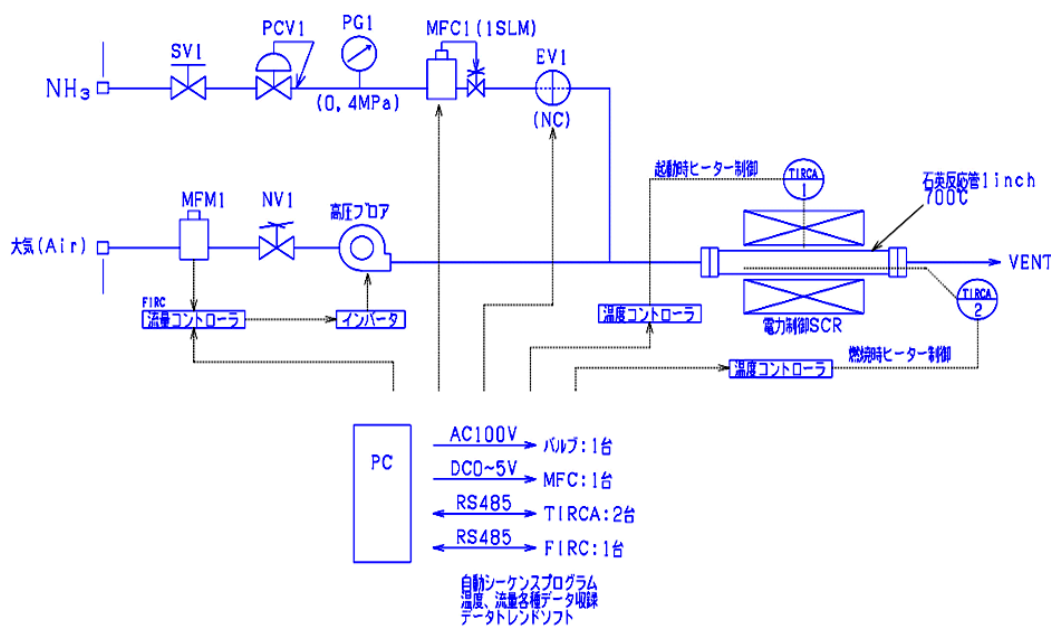


図5.11 軽量・小型（コンパクト）な触媒燃焼浄化装置の設計.

実際に作成した作成したオンサイト (on-site) 触媒浄化装置のプロトタイプを図5.12に示す。装置のサイズは52 cm × 45 cm × 35 cmになり、上部に触媒浄化反応炉、下部に電源 (ランプ)、温度調節器、圧力計、圧力調節、バルブなどを配置した。触媒浄化反応炉には開発した有望な $\text{CuO}_x/\text{Al}_2\text{O}_3$ (サイズ: $\Phi 15 \times 5$ cm)を設置し、 NH_3 燃焼浄化を行える状態とした。反応時間・温度・バルブ・マスフロー (流量) は、LANケーブルに接続したノートパソコン (PC) のソフトウェアで制御を可能とした。ネットワークに繋ぐことで遠隔で操作が可能となり、 NH_3 冷媒利用機器に近づくことなく燃焼浄化ができる可能性を示唆した。

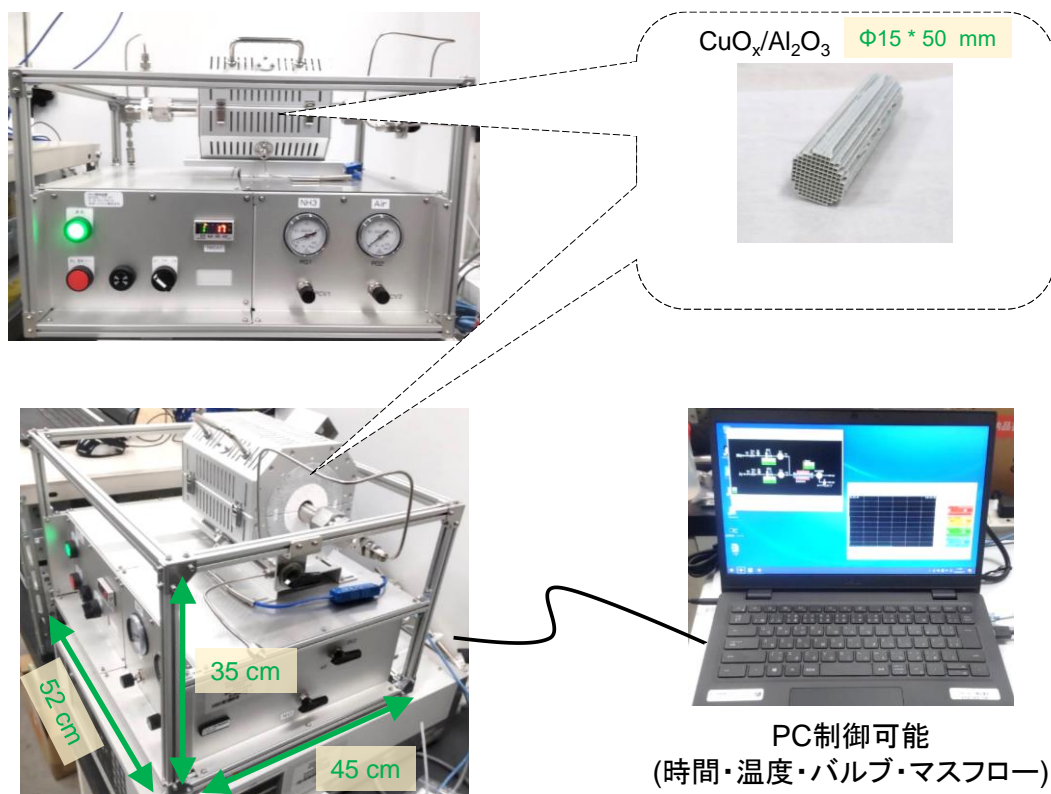


図5.12 作成したオンサイト (on-site) 触媒浄化装置のプロトタイプ。

図5.13に実用を想定した長時間 NH_3 燃焼浄化反応試験の結果を示す。反応条件は図5.10の30% NH_3 -70% 空気 (14% O_2) と統一し、反応温度はほぼ NH_3 燃焼浄化している 700°C とした。ノートPCソフトウェアで反応温度: 700°C 、昇温時間: 10 hを入力し、PV (process variable) とSV (set point variable) を記録した。昇温後PVとSVの数 $^\circ\text{C}$ の誤差は認められるものの、10 h後には設定の 700°C に到達した。到達後、ノートPCソフトウェアで30% NH_3 -70% 空気 (14% O_2) の混合ガスを触媒反応器に供給し、ガス濃度プロファイルの変化を記録した。供給後、 $\text{NH}_3/\text{N}_2\text{O}/\text{NO}$ ガス濃度プロファイルは10 ppm 以下を示し、そのプロファイルは約70 hも持続した。長時間 NH_3 燃焼浄化反応試験で高性能を示したと考えられた。その後、空気 (air) で配管ならびに反応器をパージし、安全に降温した。配管継手の解除の際に一時は最大約70 ppmの NH_3 プロファイルが認められ、今後の考察対象となった。しかしながら、実用を想定した長時間 NH_3 燃焼浄化反応試験でも、作成したオンサイト (on-site) 触媒浄化装置のプロトタイプは十分な性能を示したと示唆され、高性能・耐久性ハニカム触媒の調製と浄化試験と、軽量・小型 (コンパクト) な触媒燃焼浄化装置の試作の検討を目的とした、グリーン冷媒アンモニア用 on-site 触媒浄化装置を開発できたと考えられる。

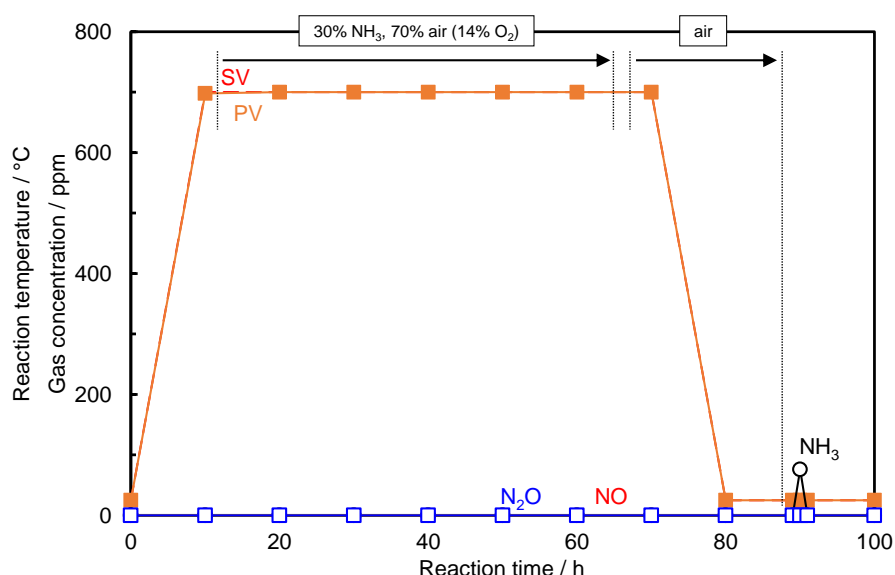


図5.13 実用を想定した長時間NH₃燃焼浄化反応試験.

加えて、関連する研究成果として、NH₃冷媒機器の製造と導入を進めているメーカーならびに技術者と交流し、意見交換会を実施してNH₃冷媒の国際導入状況について議論した。N₂O分解触媒に関して2021年度にエネルギー系の民間企業とMTA・NDA終結後、2022年度から共同研究を進める予定となった。

5-2. 環境政策等への貢献

<行政等が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政等が活用することが見込まれる成果>

国際機関が出した2020年の報告書「TheDrawdownReview-2020- (Editor-in-Chief: Dr. Katharine Wilkinson) [https://drawdown.org/sites/default/files/pdfs/TheDrawdownReview%E2%80%932020%E2%80%932020.pdf]」によるとCO₂を含む地球温暖化対策として、Alternative Refrigerants (代替冷媒) (7位)、Refrigerant Management (冷媒管理) (4位)が高い評価で記載されている。アンモニアを含む自然冷媒が今後世界へ導入されることは明確であるため、本研究のアンモニア冷媒の回収・浄化・安全対策は行政等が活用することが見込まれる成果になる。加えて、経済財政運営と改革の基本方針2018『グリーン冷媒技術の開発・導入・国際展開』に活用することが見込まれる成果もなる。

5-3. 研究目標の達成状況

研究目標の達成状況をそれぞれ分けて記述し、表5.3に本研究目標の達成状況としてまとめる。

<高性能・耐久性ハニカム触媒の調製と浄化試験>

いずれのhoneycomb触媒のNH₃燃焼浄化反応特性は、granule触媒と類似していたことから、反応特性は触媒の形状に依存することなく、種々の触媒材料の特性を反映していると推察された。

安価なCuO_x/Al₂O₃のhoneycomb触媒を用いた安全なNH₃浄化反応で、NH₃の転化を300 °C以下で開始させ、N₂OとNOの生成はほぼ認められず生成濃度は10 ppm以下であった。

触媒メーカーとNDA終結後に実用サイズの触媒を作成した。CuO_x/Al₂O₃の触媒特性の再現性を含めた実

用を想定した長時間反応試験を検証した。

＜軽量・小型(コンパクト)な触媒燃焼浄化装置の試作の検討＞

提供資料を参考にして触媒浄化装置の設計をほぼ完了させ、NH₃用耐腐食性部品調達など装置開発に着手した。

100V AC電源で運転可能な実用を想定したオンサイト(on-site)触媒浄化装置を作成した。操作PCをネットワークに接続すれば遠隔操作でNH₃を浄化可能になる。

表5.3 本研究目標の達成状況（黄色蛍光箇所は達成した項目）

【①触媒開発】 研究内容・手法	90%以上達成 数値目標	【②装置試作】 研究内容・手法	80%以上達成 数値目標	【③反応試験】 研究内容・手法	90%以上達成 数値目標
触媒調製・評価		浄化装置試作		NH ₃ 浄化実証試験	
<ul style="list-style-type: none"> ➢ 粉末触媒調製 ➢ ハニカム構造化 ➢ 浄化特性評価 	企業動向確認 条件最適化 再現性検討 耐久性 ≧ 100 h	<ul style="list-style-type: none"> ➢ 材料・部品選定 ➢ 図面設計 ➢ 試作器構築 	配管仕様調査 総重量 ≦ 5 kg サイズ ≦ 30 L NH ₃ 漏洩 ≦ 1ppm	<ul style="list-style-type: none"> ➢ 各種ガス定量 ➢ 改善事項明確化 ➢ 反応特性統合 	需要・制度調査 NH ₃ 転化 ≦ 300°C NH ₃ /N ₂ O/NO 排出 ≦ 10 ppm

6. 研究成果の発表状況

6-1. 査読付き論文

<件数>

4件

<主な査読付き論文>

1) S. HINOKUMA, T. IWASA, K. ARAKI, Y. KAWABATA, S. MATSUKI, T. SATO, Y. KON, T. TAKETSUGU, K. SATO, M. MACHIDA: Journal of the Japan Petroleum Institute, 63, 5 (vol, issue), 274-281 (2020) (IF : 0.8) Ammonia Combustion Properties of Copper Oxides-based Honeycomb and Granular Catalysts

2) S. HINOKUMA, T. IWASA, Y. KON, T. TAKETSUGU, K. SATO: Scientific Reports, 10:21605, (2020) (IF : 4.4) N₂O Decomposition Properties of Ru Catalysts Supported on Various Oxide Materials and SnO₂

3) S. HINOKUMA, T. IWASA, Y. KON, T. TAKETSUGU, K. SATO: Catalysis Communications, 149, 106208, (2021) (IF : 3.6) Effects of support materials and Ir loading on catalytic N₂O decomposition properties

4) S. HINOKUMA, K. SATO: Chemistry Letters, Vol. 50 Commemorative Highlight Review, 50, 4 (vol, issue), 752-759 (2021) (IF : 1.3) Ammonia Combustion Catalysts

6-2. 知的財産権

1) 日隈聡士: 国立研究開発法人産業技術総合研究所; 「一酸化二窒素分解触媒」、特願2020-212506、令和2年12月22日

6-3. その他発表件数

査読付き論文に準ずる成果発表	4件
その他誌上発表 (査読なし)	2件
口頭発表 (学会等)	7件
「国民との科学・技術対話」の実施	2件
マスコミ等への公表・報道等	0件
本研究に関連する受賞	0件

7. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

8. 研究者略歴

研究代表者

日隈 聡士

熊本大学工学部卒業、博士 (工学)、現在、国立研究開発法人産業技術総合研究所 主任研

究員

研究分担者

特に記載すべき事項はない。

II. 成果の詳細

II-1 グリーン冷媒アンモニア用on-site触媒浄化装置の開発

国立研究開発法人産業技術総合研究所

材料・化学領域 触媒化学融合研究センター

日隈 聡士

[要旨]

グリーン冷媒としての『アンモニア(NH₃)』を冷凍冷蔵・空調機器が存在する場所(on-site)で回収・浄化できる『触媒燃焼装置』のプロトタイプを開発する。これまでに開発したNH₃燃焼特性に高活性・低N₂O/NO選択性を示すCuO_x/Al₂O₃, CuO_x/10Al₂O₃·2B₂O₃, CuO_x/Ag/Al₂O₃, CuO_x/Pt/Al₂O₃等の粉末状の酸化銅系触媒をコーディライトハニカムにウォッシュコートした担持触媒を調製し、粒状触媒との触媒性能を比較検討した。調製したハニカム触媒のWDX-mapping観察より、触媒コート層の厚みは約100 nmで、Agは熱処理により凝集が確認されたが、CuO_xおよびPtは比較的高分散状態を維持していた。ハニカム触媒と粒状触媒のNH₃燃焼特性を比較すると、いずれの組み合わせもNH₃燃焼活性ならびにN₂O/NO選択性が類似することから、NH₃燃焼特性は触媒の形状より、むしろ触媒の材料特性に依存すると推定された。加えて、『副生したN₂O/NOを後流側でNH₃と再度反応させてN₂へと浄化する触媒を置く』多段反応装置への改良を検討した。特に温室効果ガスのN₂Oについては、本研究のNH₃燃焼特性を進める過程で副生することが分かったため、N₂O分解触媒の開発を進めた。NH₃燃焼浄化の下流にN₂O分解触媒を設置することは装置サイズが大きくなると懸念されるが、最終目標達成のための有力な検討事項となった。

1. 研究開発目的

サブテーマ1	グリーン冷媒アンモニア用on-site触媒浄化装置の開発
サブテーマリーダー/所属機関	日隈 聡士/国立研究開発法人産業技術総合研究所
目標	<p>実用化されているNH₃浄化装置には、『触媒燃焼式』は工場等から排出される高濃度NH₃を浄化する大型で設置型の装置がある。一方、触媒を使用しない『ガス分解式』は、設備サイズは小さいが700℃以上の高温が必要となる。すなわち、本申請のNH₃触媒燃焼浄化装置に類似する研究開発は検討されていない。加えて、これまで申請者が開発した高性能触媒は、安価で従来型の含浸担持法で大量生産できる。グリーン冷媒NH₃を広く普及させるためにも、新たなNH₃触媒燃焼浄化装置の開発が望まれる。そこで本研究では『高性能なNH₃触媒燃焼浄化装置を開発する』ことで、グリーン冷媒アンモニアをon-siteで触媒浄化の可能性を示すことを目的とする。</p>

2. 研究目標

【① 触媒開発】高性能・耐久性ハニカム触媒の調製と浄化試験

これまで開発した触媒を使用して、高い熱伝導性を有するハニカム構造化し、②で試作した装置に設置する。NH₃をN₂へと高効率に浄化するため、触媒重量・サイズ・反応温度・ガス流量等を最適化する。これまで知見と技術に基づき開発してきた触媒をハニカム構造化し、1年目で試作した燃焼器と組み合わせ

る。NH₃をN₂へと浄化するため、触媒重量・サイズ・反応温度・ガス流量等の条件を最適化する。浄化特性は再現性と耐久性を確認するため、長時間(≧ 100 h)反応試験を実施する。研究協力者にはNH₃冷媒機器の関連企業に本研究を紹介するとともに今後の動向を確認してもらう。

【② 装置試作】軽量・小型(コンパクト)な触媒燃焼浄化装置の試作

軽量・小型(コンパクト)なNH₃浄化触媒燃焼装置を試作するため、反応管・配管・温度調節器・ヒーター等の部品と材料を選定して組み合わせる。装置は全国各所で使用できるように『AC 100V』電源にする。軽量(総重量 ≦ 5 kg)・小型(サイズ ≦ 30 L)・精密温度制御(誤差 ≦ ±5 °C)・安全(NH₃漏洩 ≦ 1 ppm)なポータブル装置を開発するため、反応管・配管・温度調節器・ヒーター等の部品と材料の候補を選定する(現在の候補は、耐腐食性ステンレス製・スウェージロック規格品・セラミックヒーター等)。

【③ 反応試験】実用を想定した浄化試験と低N₂O/NO排出の実現

試作した触媒燃焼浄化装置にNH₃/N₂O/NO濃度分析装置を接続し、実用を想定したNH₃冷媒の浄化試験を実施して生成物選択性を評価する。工場規模のNH₃/N₂O/NO排出規制濃度『10 ppm以下』を目標とする。試作した装置に現有のガス濃度分析装置を接続して排出ガス組成を定量する。300 °C以下のNH₃低温浄化ならびにNH₃/N₂O/NO生成濃度の10 ppm以下を目標とする。以上の目標を右上の表Ⅱ.2.1にまとめる。

表Ⅱ.2.1 本研究の①～③の『研究内容・手法』と『数値目標』。

【①触媒開発】	
研究内容・手法	数値目標
触媒調製・評価	
<ul style="list-style-type: none"> ➤ 粉末触媒調製 ➤ ハニカム構造化 ➤ 浄化特性評価 	企業動向確認 条件最適化 再現性検討 耐久性 ≧ 100 h
【②装置試作】	
研究内容・手法	数値目標
浄化装置試作	
<ul style="list-style-type: none"> ➤ 材料・部品選定 ➤ 図面設計 ➤ 試作器構築 	配管仕様調査 総重量 ≦ 5 kg サイズ ≦ 30 L NH ₃ 漏洩 ≦ 1ppm
【③反応試験】	
研究内容・手法	数値目標
NH ₃ 浄化実証試験	
<ul style="list-style-type: none"> ➤ 各種ガス定量 ➤ 改善事項明確化 ➤ 反応特性統合 	需要・制度調査 NH ₃ 転化 ≦ 300°C NH ₃ /N ₂ O/NO 排出 ≦ 10 ppm

3. 研究開発内容

触媒調製: 多様な市販の金属酸化物、Al₂O₃ (JRC-AL0-8、日本触媒学会)、CeO₂ (JRC-CE0-5、日本触媒学会)、TiO₂、Nb₂O₅、ZrO₂、Ta₂O₅、WO₃、SnO₂ (Kojundo Chemical)、N₂O分解に活性を示すRuの担体材料として使用した。支持された5wt% Ruサンプルは、RuCl₃ (富士フイルム和光純薬株式会社)の水溶液の含浸、続いて乾燥および空気中で600 °C、3時間の焼成によって調製した。RuのN₂Oの分解特性を調べるために、N₂O分解で高い性能を示す0.5～20 wt%のRu/SnO₂触媒を、比較のために同様の方法で調製した。

触媒分析: X線回折 (XRD) 測定は、Cu K α 放射線 (40 kV、15 mA、MiniFlex600、Rigaku) を使用した。サンプルの化学組成は、蛍光X線測定 (XRF、MESA-500W、堀場製作所) により決定した。X線光電子分光法 (XPS) からのスペクトルは、Al K α (PHI 5000-VersaProbe、Ulvac-Phi) を使用して取得した。STEM-EDXマッピングは、JEM-ARM200CF顕微鏡 (Jeol) を使用した。N₂吸着等温線をASAP2020 (Micromeritics) 用いて比表面積を測定した。H₂-TPR測定は、フローシステム (5%H₂/Ar) で、10° C・min⁻¹の一定速度で実行した (Bel-cat、Microtrac-Bel)。触媒のNH₃/NO吸着性もTPDにより調べた。Ruの金属分散度は、パルスCO化学吸着 (Bel-metal、Microtrac-Bel) によって調べた。金属分散は、Ru : COの化学吸着化学量論が1 : 1であると仮定して、化学吸着されたCOとRuのモル比から計算した。

触媒反応: N_2O 分解触媒反応は、大気圧のフローリアクターで実行した。触媒を触媒床の両端に石英ウールを備えた石英管(外径: 6 mm、内径: 4 mm)に固定しました。触媒活性の温度依存性は、触媒床を室温から $600^\circ C$ まで $10^\circ C \cdot min^{-1}$ の一定速度で加熱することによって評価した。 $100 cm^3 \cdot min^{-1}$ で供給(200 ppm of N_2O , 10% O_2 , $W/F = 5.0 \times 10^{-4} g \cdot min \cdot cm^{-3}$)。高性能を示した触媒については、反応を繰り返し、触媒の安定性と結果の再現性を評価した。 N_2O 分解反応に対する水蒸気(10% H_2O)の影響も評価した。NDIRアナライザー(VA-3011, Horiba)を使用して、 N_2O , NO およびガスの濃度を分析した。In-situ FTIRスペクトルは、FT/IR-6600分光計(Jasco)を用いて測定した。触媒の温度を $200^\circ C$ に設定し、200ppm N_2O/N_2 ガスを充填し、FTIRスペクトルを記録した。

4. 結果及び考察

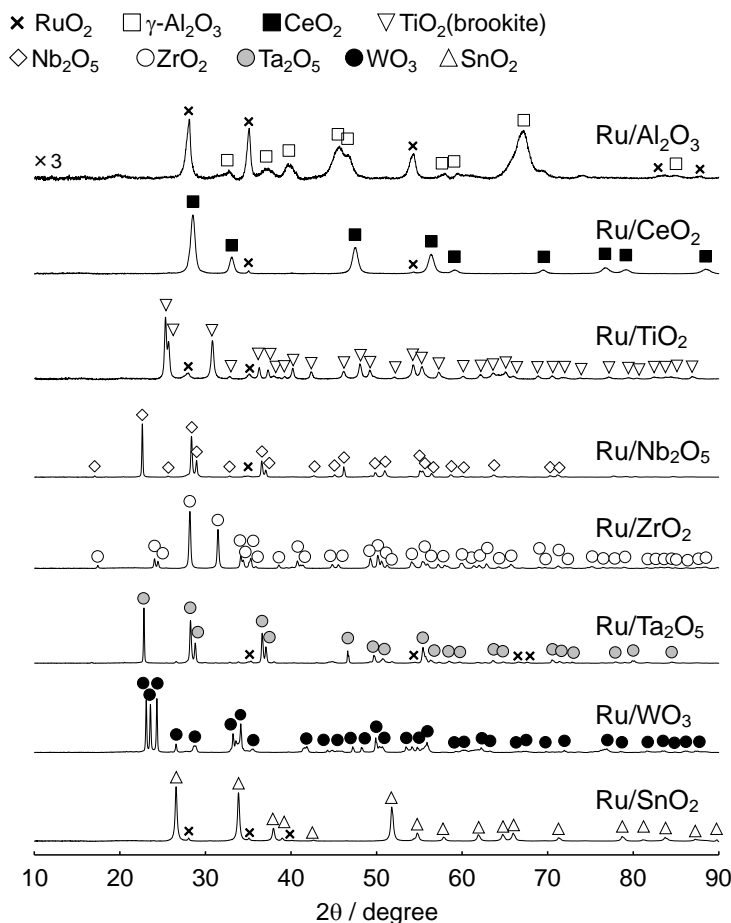
図II. 4. 1にさまざまな金属酸化物材料に担持されたRuのXRDパターンを示す。

担持触媒すべてのRuの回折ピークを RuO_2 に割り当てることができ、 Ru/Al_2O_3 の Al_2O_3 と Ru/TiO_2 の TiO_2 をそれぞれ γ 相とbrookite構造に帰属された。他の担体材料もそれぞれの組成式をもっていたため、 RuO_2 と担体材料の固相反応は観察されなかった。

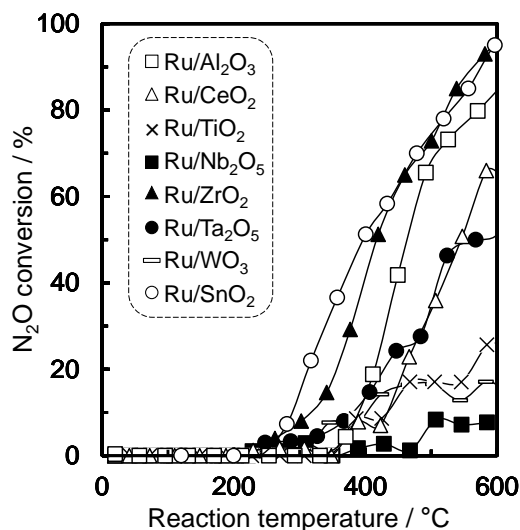
図II. 4. 2にさまざまな担持Ru触媒の N_2O 分解の温度依存性の比較を示す。非分散型赤外線(NDIR)分光法で検出されたように、いずれの触媒も NO 生成を示さなかったため、 N_2O が N_2 と O_2 に分解したと推定された。 Ru/SnO_2 および Ru/ZrO_2 の場合、 N_2O のlight-off曲線は約 $200^\circ C$ で得られた。一方で、 Ru/Nb_2O_5 の場合、ほとんど活性を示さなかった。

表II. 4. 1にさまざまな触媒の N_2O 分解特性をまとめ、活性は N_2O の50%転化が達成された反応温度(T_{50})で比較した。 T_{50} 値は、 $SnO_2 < ZrO_2 < Al_2O_3 < CeO_2 < Ta_2O_5 < TiO_2 \approx WO_3 \approx Nb_2O_5$ の順に増加した。この序列は触媒の比表面積(S_{BET})

値とは関係は認められなかった。一方、 T_{50} 値の順序は H_2 -TPR実験で観察された還元温度の順序($Al_2O_3 < SnO_2 < ZrO_2 < CeO_2 < Ta_2O_5 < TiO_2 < WO_3 < Nb_2O_5$)とほぼ一致した。すなわち、低い反応温度でのRu(RuO_2)の酸化還元特性が N_2O 分解活性と関連していることを示唆した。また、還元温度の低い担持Ru触媒は金属分散度が高い(粒度が小さい)傾向にあった。金属分散度の高い弘文さんなRu(RuO_2)粒子が N_2O 分解反応の活性触媒として作用すると考えられた。あまり活性を示していない Ru/CeO_2 は高い金属分散度(18%)であった。この要因として CeO_2 担持触媒の場合、COは炭酸塩種として CeO_2 担体に吸着されるため、金属分散度の過大評価が以前に報告された。したがって、 Ru/CeO_2 の金属分散度と活性の関係は低



図II. 4. 1 担持Ru触媒のXRDパターン。



図II. 4. 2 担持Ru触媒の N_2O 分解特性。

いと考えられる。さまざまな金属酸化物担体に担持された5.0wt% Ru触媒のRu3d XPSスペクトルを得た。Ru3d XPSスペクトルを分析すると、すべての触媒のRu3d 5/2ピークの結合エネルギーは、Ru⁴⁺の酸化状態(約280.4 eV)に割り当てることができ、これはXRDパターンのRuO₂の帰属と一致した。さらに、Ru/SnO₂のRu3d 5/2ピーク面積は、他の触媒と比較してわずかに高く、これはRu/SnO₂のRu表面濃度がCO吸着によって推定される高いRu金属分散と一致して高いことを示唆した。

表 II. 4. 1 担持Ru触媒のN₂O分解反応特性

^a N₂O転化率が50%に達する温度. ^b H₂-TPRより求めた還元温度. ^c Ruの金属分散度. ^d NH₃およびNO脱離量.

担持Ru触媒の酸および塩基特性を調べるためNH₃およびNO-TPDを行い、表 II. 4. 1にまとめた。Ru/Al₂O₃およびRu/TiO₂は高いNH₃脱離特性を示したが、Ru/CeO₂は比較的高いS_{BET}値であるが低い特性を示した。他の触媒もRu/Al₂O₃よりも低い酸性度を示した。しかしながら、NO脱離特性が高い担持Ru触媒は高いN₂O分解活性を示す傾向があることも示唆され、塩基特性とN₂O触媒分解活性との間に相関関係があると示唆された。

さまざまな担持Ru触媒上のN₂O吸着種を確認するために、N₂O触媒分解が開始する温度200° Cでin-situ FTIRスペクトルを記録した(図 II. 4. 3)。これまでの報告によると、2238 cm⁻¹および2208 cm⁻¹の2つの

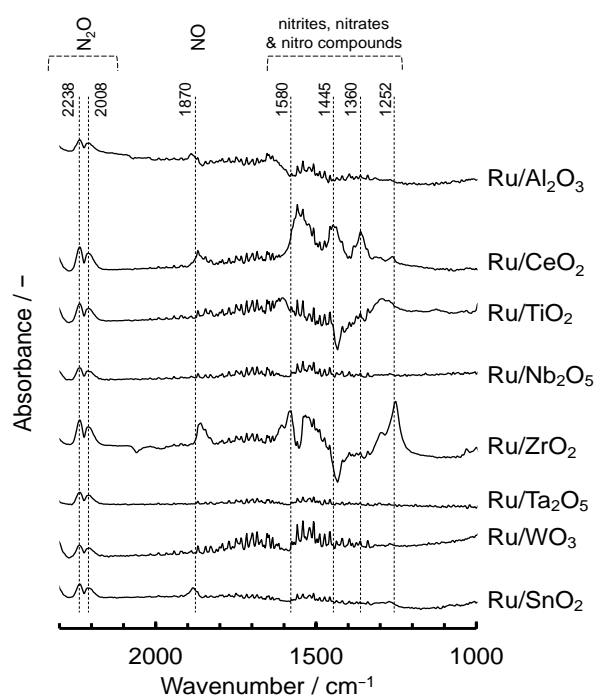


図 II. 4. 3 In-situ FTIR スペクトル, 200ppm N₂O.

Catalyst	Phase	T ₅₀ ^[a] /°C	S _{BET} /m ² g ⁻¹	T _{red.} ^[b] /°C	Metal dispersion [c]/%	Desorbed gas [d]/mmol g ⁻¹	
						NH ₃	NO
Ru/Al ₂ O ₃	RuO ₂ /γ-Al ₂ O ₃	454	137	70	12	0.264	0.040
Ru/CeO ₂	RuO ₂ /CeO ₂	531	64	156	18	0.017	0.031
Ru/TiO ₂	RuO ₂ /TiO ₂ (brookite)	-	41	191	2	0.173	0.040
Ru/Nb ₂ O ₅	RuO ₂ /Nb ₂ O ₅	-	10	237	1	0.028	0.016
Ru/ZrO ₂	RuO ₂ /ZrO ₂	420	11	128	9	0.044	0.037
Ru/Ta ₂ O ₅	RuO ₂ /Ta ₂ O ₅	577	4	160	3	0.014	0.024
Ru/WO ₃	RuO ₂ /WO ₃	-	10	194	2	0.066	0.019
Ru/SnO ₂	RuO ₂ /SnO ₂	395	14	102	7	0.033	0.029

バンドが吸着N₂Oに起因し、それらはすべての担持Ru触媒で観察された。一方、1000~1700 cm⁻¹の範囲でいくつかのバンドも観察された、触媒上に吸着したnitrites, nitratesおよびnitro化学種に起因する。これらのバンドはRu/CeO₂およびRu/ZrO₂で明確に現れ、300° C~600° Cの範囲での高いNO吸着性(塩基性)と一致した。また、Ru/Al₂O₃、Ru/CeO₂、Ru/ZrO₂、Ru/SnO₂ではNOの吸着に起因する約1870cm⁻¹のバンドが観察され、N₂O分解活性が比較的高いことが分かった。したがって、NO種に起因するこのバンドは活性化されたN₂Oに属すると考えられる。

Ru/SnO₂触媒が高いN₂O分解活性を示したため、Ruの最適用量やその局所構造および触媒特性を包括的に調べた。Ruの担持量が異なる触媒のXRDパターンでは、すべての触媒でSnO₂の回折ピークが観察されたが、RuO₂の回折ピークは5.0wt%を超えるRu担持量の触媒で認められた。さらに、RuO₂の回折ピークの強度は、Ru担持量の増加に伴って

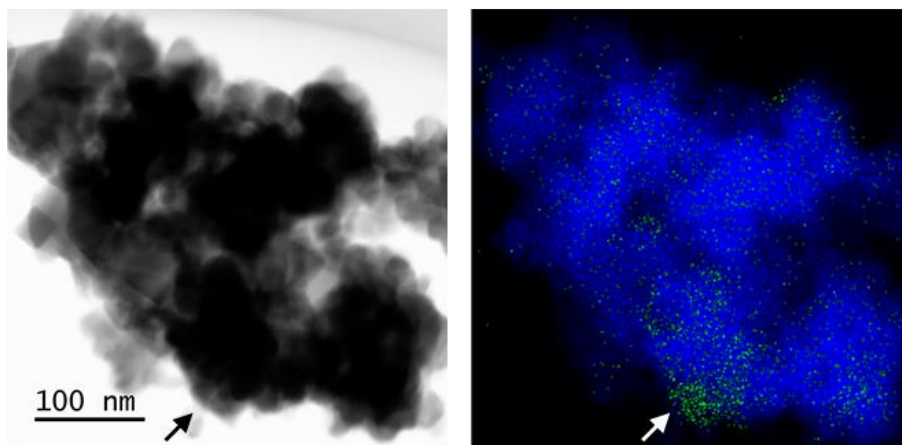


図 II. 4. 4 5.0wt% Ru/SnO₂の(左)STEM像と(右)EDX) マッピング。

増加した。これはRuO₂の増加に伴う結晶化度および粒子サイズの増加を示唆していると考えられる。Ru担持量が異なる触媒の S_{BET} 値に関して、SnO₂の比率が低く、Ru担持量が増加すると値が減少することが観察された。5.0wt% Ru/SnO₂触媒の局所構造を、走査型透過電子顕微鏡法とエネルギー分散型X線マッピング(STEM-EDX)マッピングを使用して調べた(図II.4.4)。明視野STEM画像は、サンプル中に約10~100 nmのサイズのSnO₂粒子が存在することを示した。EDXマッピングのオーバーレイ画像から、Sn-L(青)とRu-K(緑)の蛍光線を観察できた。すなわち、これらとXRDの結果に基づく、矢印で示すように約50 nmのRuO₂粒子がSnO₂担体上に分散していると示唆された。

図II.4.5にRu担持量の異なる0.5~20wt% Ru/SnO₂のN₂O触媒分解特性の温度依存性を比較する。0.5および1.0 wt% Ru/SnO₂はN₂O触媒分解の活性が低いのに対し、5.0~20wt% Ru/SnO₂はN₂Oおよび T_{50} でほぼ同じlight-offプロファイルを示すことが分かった。すなわち、SnO₂でサポートされる最適なRu担持量は約5.0 wt%であると想定された。

5.0 wt% Ru/SnO₂触媒の安定性と再現性を評価するために、N₂O分解反応を複数回繰り返した(図II.4.6)。触媒サイクルを繰り返すと、light-off温度と T_{50} がわずかに上昇する傾向にあった。N₂O分解反応後の5.0 wt% Ru/SnO₂のXRDパターンとRu3d XPSスペクトルを測定すると、XRDパターンの場合、反応後のRu/SnO₂の回折ピークはRuO₂とSnO₂に帰属された。調製後の触媒(反応前)と比較すると、回折ピークだけでなく反応後の5.0 wt% Ru/SnO₂のRu3d XPSスペクトルもほとんど変化がなかった。600°CのN₂O分解反応後の5.0wt% Ru/SnO₂のRu金属分散度も測定すると6%を示した。調製後の5.0wt% Ru/SnO₂(7%)の分散度と比較すると、わずかに低くなった。すなわち、Ru(RuO₂)の焼結は600°CでのN₂O分解反応によってわずかに進行したと考えられる。しかしながら、600°Cではすべての触媒で90%の転化率が達成されるlight-off温度にほぼ達した。5.0wt% Ru/SnO₂の安定性と再現性が確認された。

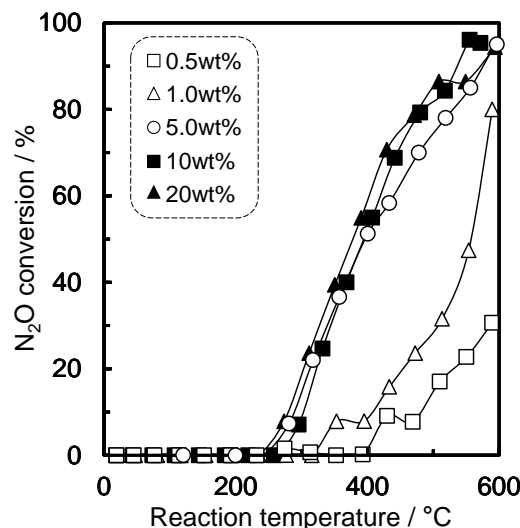


図 II. 4. 5 Ru/SnO₂のN₂O分解特性。

調製後の5.0wt% Ru/SnO₂でのN₂O分解反応に対する水蒸気 (10% H₂O) の影響も評価した (図 II. 4. 6)。10% H₂Oを使用した反応のN₂O分解のlight-offプロファイルは、10% H₂Oを使用しない場合よりも高温側にシフトした。10% H₂Oの非存在下で実行されたN₂O分解反応のT₅₀値と比較すると、10% H₂Oの存在下で実行されたT₅₀値は約50° C高かった。すなわち、5.0wt% Ru/SnO₂の不活性化および/または5.0wt% Ru/SnO₂へのN₂O吸着の阻害は、10% H₂Oの存在によって誘発されたと推定された。

加えて、担持Ir触媒のN₂O分解特性についても検討し、高性能なIr (IrO₂)/ZrO₂を開発した (図 II 4. 7)。N₂O触媒分解後のN₂O排出濃度も10 ppm以下を示し、多段反応装置になるが図5. 5 ~ 図5. 7で認められた副生N₂Oを、後流側でこれらのN₂O触媒分解によって浄化できる可能性を示すことができた。

一方、図5. 10に示すようにCu_x/Al₂O₃ (900° C) の反応条件 (30% NH₃-70% 空気) の場合、N₂Oの副生も認められなかったため多段反応装置の設置は必要なく、一段階の反応器でNH₃触媒燃焼浄化が可能である結果が得られた。図 II. 4. 8にCu_x/Al₂O₃ (900° C) のハニカム触媒のNH₃の長時間NH₃燃焼浄化特性を示す。こちらも同様に8% NH₃-92% 空気 (18.6% O₂) の反応条件であると、10 ppm以上のN₂O/N₂Oの副生が認められた。しかしながら、30% NH₃-70% 空気 (14% O₂) の反応条件であるとN₂O/N₂Oの副生は10 ppm以下となり、高性能なNH₃触媒浄化特性を示した。国際機関が出した2020年の報告書「TheDrawdownReview-2020-」によるとCO₂を含む地球温暖化対策として、Alternative Refrigerants (代替冷媒) (7位)、Refrigerant Management (冷媒管理) (4位) が高い評価で記載されている[1]。アンモニアを含む自然冷媒が今後世界へ導入されることは明確であるため、アンモニア冷媒の回収・浄化・安全対策は行政等が活用することが見込まれる成果になる。

作成したNH₃用オンサイト (on-site) 触媒浄化装置のプ

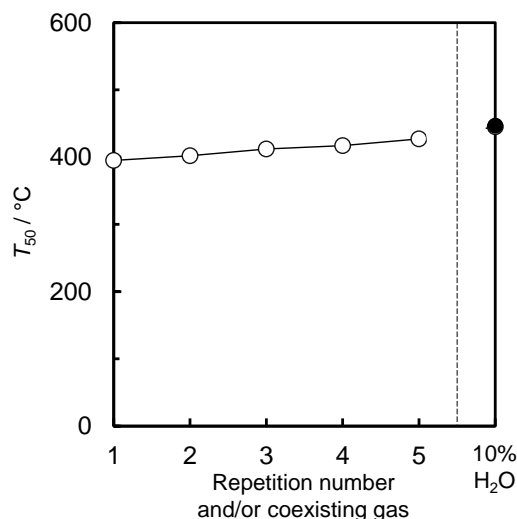


図 II. 4. 6 Ru/SnO₂のサイクル反応と10% H₂Oの影響の検討。

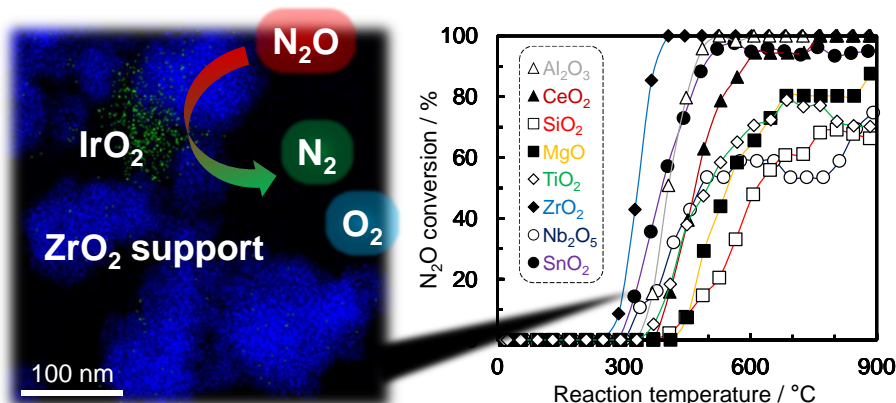


図 II. 4. 7 担持Ir触媒のN₂O分解とIr (IrO₂)/ZrO₂のEDXマッピング。

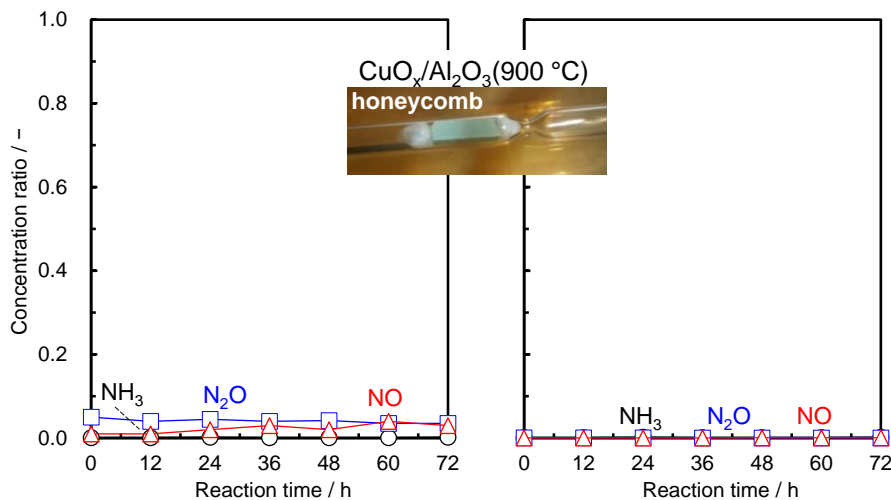
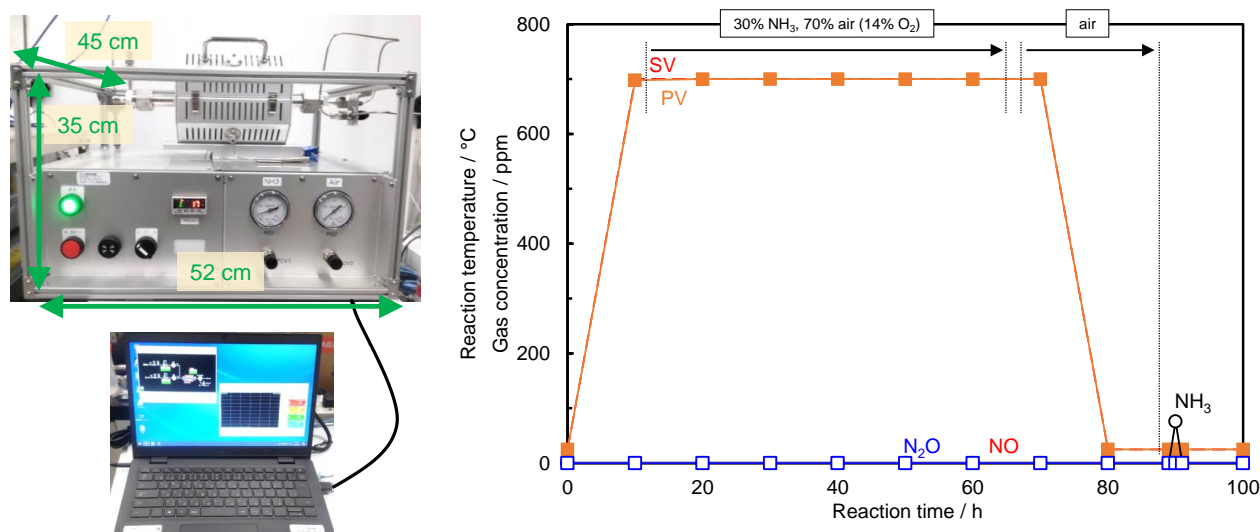


図 II. 4. 8 Cu_x/Al₂O₃ (900° C) のハニカム触媒のNH₃の長時間NH₃燃焼浄化特性. 反応条件: (左)8% NH₃-92% 空気 (18.6% O₂), 600° C (右) 30% NH₃-70% 空気 (14% O₂), 600° C.

ロタイプ、実用を想定した長時間NH₃燃焼浄化反応試験の結果を図Ⅱ.4.9に示す。装置のサイズは52 cm × 45 cm × 35 cmになった。触媒浄化反応炉には開発した有望なCuO_x/Al₂O₃ (サイズ: Φ15 × 5 cm) を設置し、NH₃燃焼浄化を行える状態とした。バルブ・マスフロー (流量) はノートパソコン (PC) のソフトウェアで制御を可能とした。ノートPCソフトウェアで反応温度: 700° C、昇温時間: 10 hを入力し、PV (process variable) とSV (set point variable) を記録した。10 h後には設定の700° Cに到達した。到達後、ノートPCソフトウェアで30% NH₃-70% 空気 (14% O₂) の混合ガスを触媒反応器に供給し、ガス濃度プロファイルの変化を記録した。供給後、NH₃/N₂O/NOガス濃度プロファイルは10 ppm 以下を示し、そのプロファイルは約70 hも持続した。長時間NH₃燃焼浄化反応試験で高性能を示したと考えられた。その後、空気 (air) で配管ならびに反応器をパージし、安全に降温した。配管継手の解除の際に一時は最大約70 ppmのNH₃プロファイルが認められたが、実用を想定した長時間NH₃燃焼浄化反応試験でも、作成したオンサイト (on-site) 触媒浄化装置のプロトタイプは十分な性能を示したと示唆され、高性能・耐久性ハニカム触媒の調製と浄化試験と、軽量・小型 (コンパクト) な触媒燃焼浄化装置の試作の検討を目的とした、グリーン冷媒アンモニア用 on-site 触媒浄化装置を開発できたと考えられる。



図Ⅱ.4.9 (左)NH₃用オンサイト (on-site) 触媒浄化装置のプロトタイプ、(右)実用を想定した長時間NH₃燃焼浄化反応試験の結果。

5. 研究目標の達成状況

研究目標の達成状況をそれぞれ分けて記述し、表Ⅱ.5.1に本研究目標の達成状況としてまとめる。

<高性能・耐久性ハニカム触媒の調製と浄化試験>

いずれのhoneycomb触媒のNH₃燃焼浄化反応特性は、granule触媒と類似していたことから、反応特性は触媒の形状に依存することなく、種々の触媒材料の特性を反映していると推察された。

安価なCuO_x/Al₂O₃のhoneycomb触媒を用いた安全なNH₃浄化反応で、NH₃の転化を300 °C以下で開始させ、N₂OとNOの生成はほぼ認められず生成濃度は10 ppm以下であった[11頁図5.10、22頁図Ⅱ.4.8参照]。

触媒メーカーとNDA終結後に実用サイズの触媒を作成した。CuO_x/Al₂O₃の触媒特性の再現性を含めた実用を想定した長時間反応試験を検証した[12頁図5.12、23頁図Ⅱ.4.9参照]。

<軽量・小型 (コンパクト) な触媒燃焼浄化装置の試作の検討>

提供資料を参考にして触媒浄化装置の設計をほぼ完了させ、NH₃用耐腐食性部品調達など装置開発に着手した。

100V AC電源で運転可能な実用を想定したオンサイト (on-site) 触媒浄化装置を作成した。操作PCをネットワークに接続すれば遠隔操作でNH₃を浄化可能になる[12頁図5.12]。

表Ⅱ.5.1 本研究目標の達成状況（黄色蛍光箇所は達成した項目）

【①触媒開発】 研究内容・手法	90%以上達成 数値目標	【②装置試作】 研究内容・手法	80%以上達成 数値目標	【③反応試験】 研究内容・手法	90%以上達成 数値目標
触媒調製・評価 ➤ 粉末触媒調製 ➤ ハニカム構造化 ➤ 浄化特性評価	企業動向確認 条件最適化 再現性検討 耐久性 ≥ 100 h	浄化装置試作 ➤ 材料・部品選定 ➤ 図面設計 ➤ 試作器構築	配管仕様調査 総重量 ≤ 5 kg サイズ ≤ 30 L NH ₃ 漏洩 ≤ 1ppm	NH ₃ 浄化実証試験 ➤ 各種ガス定量 ➤ 改善事項明確化 ➤ 反応特性統合	需要・制度調査 NH ₃ 転化 ≤ 300°C NH ₃ /N ₂ O/NO 排出 ≤ 10 ppm

※ 企業動向確認[13頁図5.13下参照]、条件最適化[22頁図Ⅱ.4.8参照]、耐久性 ≥ 100 h[5頁触媒調製、23頁図Ⅱ.4.9参照]、サイズ ≤ 30L[12頁図5.12参照]、需要・制度調査[13頁図5.13下参照]

加えて、関連する研究成果として、NH₃冷媒機器の製造と導入を進めているメーカーならびに技術者と交流し、意見交換会を実施してNH₃冷媒の国際導入状況について議論した。N₂O分解触媒に関して2021年度にエネルギー系の民間企業とMTA・NDA終結後、2022年度から共同研究を進める予定となった。

6. 引用文献

1) K. WILKINSON et al.: 「TheDrawdownReview-2020-」

<https://drawdown.org/sites/default/files/pdfs/TheDrawdownReview%E2%80%932020%E2%80%93Download.pdf>

Ⅲ. 研究成果の発表状況の詳細

(1) 誌上発表

<査読付き論文>

【サブテーマ1】

1) S. HINOKUMA, T. IWASA, K. ARAKI, Y. KAWABATA, S. MATSUKI, T. SATO, Y. KON, T. TAKETSUGU, K. SATO, M. MACHIDA: Journal of the Japan Petroleum Institute, 63, 5 (vol, issue), 274-281 (2020) (IF : 0.8) Ammonia Combustion Properties of Copper Oxides-based Honeycomb and Granular Catalysts

2) S. HINOKUMA, T. IWASA, Y. KON, T. TAKETSUGU, K. SATO: Scientific Reports, 10:21605, (2020) (IF : 4.4) N₂O Decomposition Properties of Ru Catalysts Supported on Various Oxide Materials and SnO₂

3) S. HINOKUMA, T. IWASA, Y. KON, T. TAKETSUGU, K. SATO: Catalysis Communications, 149, 106208, (2021) (IF : 3.6) Effects of support materials and Ir loading on catalytic N₂O decomposition properties

4) S. HINOKUMA, K. SATO: Chemistry Letters, Vol. 50 Commemorative Highlight Review, 50, 4 (vol, issue), 752-759 (2021) (IF : 1.3) Ammonia Combustion Catalysts

<査読付論文に準ずる成果発表>

【サブテーマ1】

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表(査読なし)>

【サブテーマ1】

1) 日隈聡士：日本燃焼学会誌5月号 特集記事『表面とその近傍における燃焼』, 63, 204, 133-140 (2021)

「表面とその近傍におけるアンモニア触媒燃焼の特性解明」

2) 日隈聡士：日本セラミックス協会誌2020年4月号『アンモニアによるエネルギー分野への新たな展開』, 55, 294-297 (2020)

「Cu_{0.5}/ムライト触媒のアンモニア燃焼反応特性」

(2) 口頭発表(学会等)

【サブテーマ1】

1) 佐藤一彦、日隈聡士：(依頼講演) 独立行政法人日本学術振興会 創造機能化学第116委員会 「第1・第2・第3合同分科会」(6月期)(2019年)

「固体触媒を用いるアンモニアの選択的酸化反応」

2) 日隈聡士：(招待講演) 第2回日本表面真空学会若手部会研究会 (2019)

「ゼロエミッションを志向したアンモニア燃焼触媒の開発」

3) 日隈聡士：(招待講演) 早稲田大学アーリーバードプログラム (2020)

「日隈聡士のこれまでの科学(アカデミックキャリア)」

4) 日隈聡士：(招待講演) 第9回SPRING-8グリーンサステナブルケミストリー研究会 (2020)

「雰囲気制御型XAFS法による固体材料の構造変化の解明」

5) 日隈聡士、今喜裕、浅川真澄、佐藤一彦：第49回石油・石油化学討論会 (2019)

「耐熱性アンモニア燃焼触媒の合成と反応特性解明」

- 6) 日隈聡士、今喜裕、佐藤一彦：第57回燃焼シンポジウム（2019）
「担持触媒のアンモニアリッチ条件の燃焼反応特性」
- 7) S. HINOKUMA, Y. KON, K. SATO: 18th Japan-Korea Symposium on Catalysis (18JKSC),
Osaka (Virtual), Japan, 2021
“Effects of support materials on catalytic N₂O decomposition properties”

（3）「国民との科学・技術対話」の実施

【サブテーマ1】

- 1) 産総研・経済産業省・NEDO技術交流会「NH₃とN₂Oの選択的触媒変換技術とその応用」（2021年1月14日、参加者約40名）にて登壇し成果を紹介
- 2) TSUKUBA CONNECT 産総研Night～技術を社会へ！研究機関発ディープテックの挑戦～「研究者×職員によるイノベーターズトーク - 変革する力、巻き込む力」（2021年1月22日、参加者約150名）にて登壇し成果を紹介

（4）マスコミ等への公表・報道等＞

【サブテーマ1】

特に記載すべき事項はない。

（5）本研究費の研究成果による受賞

【サブテーマ1】

特に記載すべき事項はない。

IV. 英文Abstract

Development of on-site System for Ammonia as Green Refrigerant

Principal Investigator: Satoshi Hinokuma

Institution: Interdisciplinary Research Center for Catalytic Chemistry,
National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
(AIST), Central 5-2, 1-1-1 Higashi, Tsukuba, Ibaraki 305-8565,
JAPAN
Tel: +81-29-849-1698 / Fax: +81-29-861-4441
E-mail: hinokuma-s@aist.go.jp

[Abstract]

Key Words: Green refrigerants, Ammonia, On-site, Local, Catalytic conversion

In recent years, ammonia has been attracting attention as a green as well as natural refrigerant with a low environmental load, and commercialization of freezing, refrigerating, air-conditioning equipment using it has been promoted. However, since ammonia is highly toxic and combustible, it is necessary to recover the ammonia refrigerant and detoxify it when disposing or replacing the equipment. The recovery and purification treatment of ammonia refrigerant must be outsourced to several specialized facilities nationwide, for example: pre-registration, detailed procedure, recovery, transportation, and factory purification), which takes a long time and costs. Considering the installation of equipment using ammonia refrigerant in far and/or islands, it is expected that the recovery and/or purification process will be the rate-determining. Therefore, in this study, a new safe and low environmental load recovery and/or purification method that can be done on-site for ammonia refrigerant can be developed, and the introduction of ammonia refrigerant equipment will be promoted, and it will lead to the prevention of global warming.