

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公 開 特 許 公 報(A)

(11)特許出願公開番号

特開2022-79888

(P2022-79888A)

(43)公開日

令和4年5月27日(2022. 5. 27)

(51)Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
<i>B 0 1 J 37/02 (2006. 01)</i>	B 0 1 J 37/02 1 0 1 C	4 G 1 6 9
<i>B 0 1 J 29/12 (2006. 01)</i>	B 0 1 J 29/12 M	
<i>B 0 1 J 29/08 (2006. 01)</i>	B 0 1 J 37/02 1 0 1 D	
<i>C 0 1 B 3/04 (2006. 01)</i>	B 0 1 J 29/08 M	
	C 0 1 B 3/04 B	
審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 11 頁)		

(21)出願番号 特願2020-190750(P2020-190750)

(22)出願日 令和2年11月17日(2020. 11. 17)

(71)出願人 504139662

国立大学法人東海国立大学機構  
愛知県名古屋市千種区不老町 1 番

(71)出願人 000253075

澤藤電機株式会社  
群馬県太田市新田早川町 3 番地

(74)代理人 110000659

特許業務法人広江アソシエイツ特許事務所

(72)発明者 神原 信志

岐阜県岐阜市柳戸 1 番 1 国立大学法人東  
海国立大学機構内

(72)発明者 早川 幸男

岐阜県岐阜市柳戸 1 番 1 国立大学法人東  
海国立大学機構内

最終頁に続く

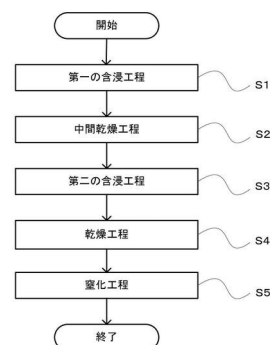
(54)【発明の名称】 アンモニア分解触媒の製造方法及びアンモニア分解触媒

## (57)【要約】

【課題】容易にアンモニア分解触媒を製造することのできる製造方法を提供する。

【解決手段】本発明のアンモニア製造方法は、ルテニウムとリチウムのいずれか一方若しくは両方を触媒として担体に含浸させる担持工程と、触媒を担持させた担体を乾燥させる乾燥工程と、乾燥させた担体を窒化する窒化工程と、を備えている。担体は、A型またはX型の結晶構造を有しており、細孔径が0.3nm以上0.9nm以下のアルミノケイ酸塩である。本発明はまた、アンモニア分解触媒を提供する。

【選択図】図1



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

ルテニウムとリチウムのいずれか一方若しくは両方を触媒として担体に含浸させる担持工程と、

前記触媒を担持させた前記担体を乾燥させる乾燥工程と、

乾燥させた前記担体を窒化する窒化工程と、

を備えており、

前記担体は、A型またはX型の結晶構造を有しており、細孔径が0.3 nm以上0.9 nm以下のアルミノケイ酸塩であることを特徴とする、アンモニア分解触媒の製造方法。

## 【請求項 2】

前記担持工程が、ルテニウムとリチウムとを前記担体に含浸させる工程であり、

前記担体が、X型の結晶構造を有しており、二酸化ケイ素( $\text{SiO}_2$ )と酸化アルミニウム( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )のモル比( $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ )が2.0以上2.5以下であることを特徴とする、請求項1記載のアンモニア分解触媒の製造方法。

## 【請求項 3】

前記担持工程が、前記担体に3塩化ルテニウム及び水酸化リチウムの水溶液を含浸させることで、担体100 gに対して、ルテニウム2.5～12.5 gとリチウム2.5～7.5 gを担持させる工程であることを特徴とする請求項1記載のアンモニア分解触媒の製造方法。

## 【請求項 4】

前記担持工程が、前記担体に水酸化リチウムの水溶液を含浸させる第一の含浸工程と、水酸化リチウムを担持した前記担体に、さらに3塩化ルテニウムを含む水溶液を含浸させる第二の含浸工程と、

を備えていることを特徴とする請求項3記載のアンモニア分解触媒の製造方法。

## 【請求項 5】

前記担持工程が、前記担体に水酸化リチウムと3塩化ルテニウムの両方を含む水溶液を含浸させる工程であることを特徴とする請求項3記載のアンモニア分解触媒の製造方法。

## 【請求項 6】

ルテニウムと、リチウムを担持した、アルミノケイ酸塩からなるアンモニア分解触媒であって、前記アルミノケイ酸塩がX型の結晶構造を有しており、且つ前記アルミノケイ酸塩の化学式が、 $\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot x\text{SiO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ であり、ここで、 $x = 2.0 \sim 2.5$ 、 $y$ が0以上の数値であることを特徴とするアンモニア分解触媒。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、アンモニア分解触媒とその製造方法に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

二酸化炭素の排出量を削減するための一つの手段として、水素をエネルギー源として用いるシステムが構築されつつある。水素は、空気よりも軽く燃焼範囲が広いという特性から、気体の状態で輸送し貯蔵するにはコストがかかる。このため、水素キャリアとして、アンモニアを利用する技術が検討されている。水素の消費地までアンモニアを輸送し、必要量に応じてアンモニアを水素と窒素に分解し、水素を分離して使用することで、従来よりも水素の供給を効率よく行うことができる。

## 【0003】

アンモニアを分解して水素を生成するために触媒を用いる技術が、従来から知られている。たとえば、特許文献1には、ルテニウムとアルカリ金属とを、アルミナ、シリカ、シリカ・アルミナ、活性炭、チタニア、マグネシア等の担体に担持させ、水素またはアンモニアによって還元性熱ガス処理を行ったアンモニア分解触媒が開示されている。特許文献1のアンモニア分解触媒は、ステンレス鋼などの光輝焼鈍工程やろう付工程の雰囲気ガス

10

20

30

40

50

に用いる、水素と窒素との3 : 1 混合ガスを得ることを目的とした触媒である。特許文献1の触媒を用いて、反応温度500、空間速度5000 h<sup>-1</sup>の条件でアンモニアを分解した場合の、水素の収率は99.76%となっている(実施例1)。

#### 【0004】

また、特許文献2には、ルテニウムを酸化マグネシウム担体に担持させたアンモニア分解触媒と、その製造方法が開示されている。特許文献2のアンモニア分解触媒は、生成した水素を燃料電池の燃料として使用することを想定している。このため、アンモニアの分解率を向上させることが可能な、より高い触媒活性を持つアンモニア分解触媒の提供を目的としている。特許文献2に開示されているアンモニア分解触媒の製造方法は、マグネシウム化合物とルテニウム化合物を、水溶液中でアルカリ金属炭酸塩により沈殿させた後、乾燥、焼成、還元を行う方法である。特許文献2では、ルテニウムを担体にできるだけ均一に分散させ、かつ比表面積を大きくするために、沈殿工程を行うことによって、触媒の粒子径をマイクロメートルサイズとしている。特許文献2の触媒を用いて、反応温度400~600、空間速度15000 h<sup>-1</sup>でアンモニアを分解した場合の、水素の収率は62~99.9%となっている(実施例1~4)。

#### 【0005】

従来は、活性の高い触媒を得るために複雑な製造工程が必要となっており、その改善が求められていた。

#### 【0006】

発明者らは、プラズマ放電を利用してアンモニアから水素を生成する装置を発明し、特許文献3に開示した。特許文献3の水素生成装置は、常温常圧の条件下で、水素含有率100%の純水素を生成することができる。しかしながら、特許文献3の水素生成装置においては、原料ガスをプラズマ反応器内で均一にプラズマ化することが好ましいため、大型の反応器を用いた場合に、エネルギー効率が悪くなることがあった。

#### 【0007】

プラズマ放電を利用して純水素を大量に生産するためには、原料ガスとしてアンモニアを使用するよりも、水素と窒素とアンモニアの混合ガスを用いた方が、効率的である。そこで発明者らは、原料ガスであるアンモニアを触媒で部分的に分解して水素と窒素とアンモニアの混合ガスを製造し、混合ガスをプラズマ化することによってアンモニアを完全分解し、得られた水素だけを水素分離膜によって分離する、新規な水素生成装置を開発して特許文献4に開示した。特許文献4の装置では、触媒として、ニッケルやルテニウムなどの触媒金属を酸化マグネシウムまたはアルミナに担持したアンモニア分解触媒を開示しているが、その最適化な特性は、これまで得られていなかった。

#### 【先行技術文献】

#### 【特許文献】

#### 【0008】

【特許文献1】特開平10-85601号公報

【特許文献2】特開2016-159209号公報

【特許文献3】特開2014-070012号公報

【特許文献4】特許第6241804号公報

#### 【発明の概要】

#### 【発明が解決しようとする課題】

#### 【0009】

本発明はかかる現状に鑑みてなされものであって、低コストで容易かつ安全に製造できる、アンモニア分解触媒の製造方法の提供を、解決すべき課題としている。さらに本発明は、この製造方法によって製造することが可能な、反応器に収容した状態で原料ガスを通過させた時の圧力損失が小さいアンモニア分解触媒の提供を、解決すべき課題としている。

#### 【0010】

本発明によって得られるアンモニア分解触媒は、特に、プラズマ反応による純水素製造

10

20

30

40

50

用の原料ガスを得るために最適化された触媒である。

【課題を解決するための手段】

【0011】

本発明のアンモニア分解触媒の製造方法は、  
ルテニウムとリチウムのいずれか一方若しくは両方を触媒として担体に含浸させる担持工程と、

触媒を担持させた担体を乾燥させる乾燥工程と、

乾燥させた担体を窒化する窒化工程と、

を備えており、

担体が、A型またはX型の結晶構造を有しており、且つ細孔径が0.3nm以上0.9nm以下のアルミノケイ酸塩であることを特徴とする。

10

【0012】

本発明のアンモニア分解触媒の製造方法は、担持工程が、ルテニウムとリチウムの両方を担体に含浸させる工程であることが好ましい。また、担体が、X型の結晶構造を有しており、二酸化ケイ素( $\text{SiO}_2$ )と酸化アルミニウム( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )のモル比( $\text{SiO}_2 / \text{Al}_2\text{O}_3$ )が2.0以上2.5以下であることが好ましい。

【0013】

本発明の担持工程は、担体に3塩化ルテニウム及び水酸化リチウムの水溶液を含浸させることで、担体100gに対して、ルテニウム2.5~12.5gとリチウム2.5~7.5gを担持させる工程であることが好ましい。

20

【0014】

本発明の担持工程を、担体に水酸化リチウムの水溶液を含浸させる第一の含浸工程と、

水酸化リチウムを担持した担体に、さらに3塩化ルテニウムを含む水溶液を含浸させる第二の含浸工程と、を備える工程とすることができる。

【0015】

本発明の担持工程を、前記担体を水酸化リチウムと3塩化ルテニウムの両方を含む水溶液に含浸させる工程とすることができる。

【0016】

本発明はまた、アンモニア分解触媒を提供する。本発明のアンモニア分解触媒は、ルテニウムと、リチウムを担持した、アルミノケイ酸塩からなるアンモニア分解触媒であって、アルミノケイ酸塩がX型の結晶構造を有しており、且つアルミノケイ酸塩の化学式が、 $\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot x\text{SiO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ であり、ここで、 $x = 2.0 \sim 2.5$ 、 $y$ が0以上の数値であることを特徴とする。

30

【発明の効果】

【0017】

本発明のアンモニア分解触媒の製造方法は、アンモニア分解触媒に最適な担体の特性である結晶構造と細孔径を特定したことにより、アンモニアを供給したときの圧力損失の小さいアンモニア分解触媒を製造することができる。

【0018】

本発明のアンモニア分解触媒の製造方法は、含浸によって担体に最適な触媒を担持させることで、低コストで容易かつ安全に触媒を製造することができる。本発明のアンモニア分解触媒の製造方法は、活性化のための工程で水素を使用しないため、従来よりも安全に触媒を製造することができる。

40

【0019】

本発明の製造方法によって得られるアンモニア分解触媒は、低温で高活性な触媒を得ることができる。

【0020】

本発明のアンモニア分解触媒を、プラズマ反応によってアンモニアを分解して水素を生成する水素生成装置と組み合わせることによって、アンモニアから純水素を大量生産することが可能となる。

50

## 【図面の簡単な説明】

## 【0021】

【図1】図1は、実施例1のアンモニア分解触媒の製造方法のフローチャートである。

【図2】図2は、実施例2のアンモニア分解触媒の製造方法のフローチャートである。

【図3】図3(a)は、実施例1の方法で製造したアンモニア分解触媒の図面代用写真であり、図3(b)は、実施例2の方法で製造したアンモニア分解触媒の図面代用写真である。

【図4】図4は、担持工程の異なるアンモニア分解触媒のアンモニア分解率を示すグラフである。

【図5】図5は、触媒の担持量と、アンモニア分解率との関係を示すグラフである。

10

## 【発明を実施するための形態】

## 【0022】

本発明のアンモニア分解触媒に使用可能な担体は、A型またはX型の結晶構造を有しており、且つ細孔径が0.3nm以上0.9nm以下のアルミノケイ酸塩である。アンモニア分子の大きさ0.28nm(2.8オングストローム)であり、アンモニアを吸着させる担体として、この細孔径の範囲が好ましい。担体の最も好ましい結晶構造は、X型である。担体の組成は、二酸化ケイ素( $\text{SiO}_2$ )と酸化アルミニウム( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )のモル比( $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ )が2.0以上2.5以下であることが、好ましい。

## 【0023】

本発明のアンモニア分解触媒によって製造される水素含有ガスは、プラズマ反応器に導入して純水素を大量生産するための原料ガスとして、最適化することができる。プラズマ反応器に導入する水素含有ガスに求められる要件は、アンモニア分解率が99.5%、導入温度500以下、空間速度3000~5000 $\text{h}^{-1}$ である。

20

## 【0024】

空間速度(以下、SVとも略称する)は充填体積( $\text{m}^3$ )当りの通風量( $\text{m}^3/\text{h}$ )で定義される値であって、一般に、通ガス量が多くなると空間速度は大きくなる。空間速度が小さくなるほどアンモニア分解率は高くなるが、圧力損失の大きな触媒の場合、空間速度を小さく制御することが困難になる。固体粒子の充填層の圧力損失は、コゼニー・カルマン(Kozeny Carman)の式に従って計算することができる。たとえば、従来技術のように30 $\mu\text{m}$ の粒径の粒子を10cmの層となるように充填した場合の圧力損失は4000Paとなる。圧力損失が大きい場合には、空間速度を小さくすることが困難になる。しかしながら、本発明のアンモニア分解触媒は、適切な粒径の担体を用いることで、空間速度を容易に小さくできるので、プラズマ反応器への原料ガスの導入量を適切に制御することができる。本願のように、1.5mmの粒子を10cmの充填層とした場合の圧力損失は0.2Paであり、30 $\mu\text{m}$ の粒径の充填層とした場合の20000分の1の値となる。

30

## 【0025】

本発明のアンモニア分解触媒は、担体の平均粒径を1.5~3.0mmとすることによって、制御可能な空間速度の範囲を広げている。担体は、粒径がミリメートルサイズとすることで、形状に拘わらず通ガス時の圧力損失を小さくすることができ、結果として、空間速度の制御が容易になる。

40

## 【0026】

本発明のアンモニア分解触媒に使用可能な触媒は、ルテニウムとリチウムであり、ルテニウムとリチウムの両方を用いることが好ましい。

## 【実施例】

## 【0027】

以下、本発明を具現化した、アンモニア分解触媒の製造方法と、アンモニア分解触媒について、説明する。

## 【0028】

## [実施例1]

図1に、実施例1におけるアンモニア分解触媒の製造方法のフローチャートを示す。本

50

実施例の製造方法は、担体に触媒を担持させる担持工程と、乾燥工程と、窒化工程と、を備えている。

【0029】

本実施例で用いる担体は、化学式が  $\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot x\text{SiO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$  であり、ここで、 $x = 2.0 \sim 2.5$ 、 $y$  が 0 以上の数値である、アルミノケイ酸塩である。このアルミノケイ酸塩は、X 型の結晶構造を有しており、二酸化ケイ素 ( $\text{SiO}_2$ ) と酸化アルミニウム ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) のモル比 ( $\text{SiO}_2 / \text{Al}_2\text{O}_3$ ) が、実質的に 2.0 以上 2.5 以下となっている。担体の平均粒径は 1.5 mm であり、細孔径は、0.9 nm (9) である。このような特性のアルミノケイ酸塩は、合成ゼオライト (ゼオラム (登録商標)、SA-600A、東ソー株式会社製) として入手可能である。

10

【0030】

本実施例で用いる触媒は、ルテニウムとリチウムである。

【0031】

本実施例の担持工程は、担体に、水酸化リチウムの水溶液を含浸させる第一の含浸工程 (S1) と、第一の含浸工程の後に、3 塩化ルテニウムを含む水溶液を含浸させる第二の含浸工程 (S3) と、を備えている。

【0032】

第一の含浸工程 (S1) は、担体に水酸化リチウムの水溶液を含浸させて、担体 100 g に対してリチウム 2.5 ~ 7.5 g を担持させる工程である。第一の含浸工程 (S1) の後に、担体を 100 以上で乾燥して水分を除去する中間乾燥工程 (S2) が行われる。第二の含浸工程 (S3) は、リチウムを担持した担体に 3 塩化ルテニウムを含む水溶液を含浸させて、担体 100 g に対して、さらにルテニウム 2.5 ~ 12.5 g を担持させる工程である。

20

【0033】

第二の含浸工程 (S3) のあと、担体を 100 以上で 10 ~ 12 時間乾燥して水分を除去する乾燥工程 (S4) が行われる。乾燥した担体は、500 で 5 ~ 7 時間、窒素雰囲気またはアンモニア雰囲気に曝される窒化工程 (S5) を行って、活性化される。本実施例の製造方法は、水素の還元処理を行うことなく、アンモニア分解触媒を製造することができる。

【0034】

図 3 (a) に、本実施例の製造方法によって得られたアンモニア分解触媒の表面を、エネルギー分散型 X 線分光法 (SEM-EDX 法) によって 10000 倍で撮像した画像を示す。図 3 (a) に示すように、担体表面に、触媒が均一に分散して担持されていることが確認された。

30

【0035】

[実施例 2]

図 2 に、実施例 2 におけるアンモニア分解触媒の製造方法のフローチャートを示す。本実施例の製造方法は、担持工程 (S11) と、乾燥工程 (S12) と、窒化工程 (S13) と、を備えている。

【0036】

本実施例では、担体として、実施例 1 と同様の、化学式が  $\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot x\text{SiO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$  であり、ここで、 $x = 2.0 \sim 2.5$ 、 $y$  が 0 以上の数値であるアルミノケイ酸塩 (合成ゼオライト) を使用することができる。

40

【0037】

本実施例で用いる触媒は、実施例 1 と同一のルテニウムとリチウムであるが、担持工程が、実施例 1 と異なっている。本実施例の担持工程 (S11) は、担体に、水酸化リチウムと 3 塩化ルテニウムの両方を含む水溶液を含浸させることによって、担体に、同時に、ルテニウム 2.5 ~ 12.5 g とリチウム 2.5 ~ 7.5 g を担持させている。

【0038】

担持工程 (S11) のあとは、実施例 1 と同様に、担体を 100 以上 10 ~ 12 時間

50

乾燥させる乾燥工程（S12）と、乾燥した担体を500で5～7時間窒素雰囲気またはアンモニア雰囲気に曝す窒化工程（S13）を行う。本実施例の製造方法もまた、水素の還元処理を行うことなく、アンモニア分解触媒を製造することができる。

#### 【0039】

図3（b）に、本実施例の製造方法によって得られたアンモニア分解触媒の表面を、エネルギー分散型X線分光法（SEM-EDX法）によって10000倍で撮像した画像を示す。図3（b）に示すように、担体表面に、触媒が均一に分散して担持されていることが確認された。また、実施例1の製造方法で得られるアンモニア分解触媒と、本実施例の製造方法によって得られるアンモニア分解触媒の間に、表面状態の違いは認められなかった。

10

#### 【0040】

##### [実施例3]

本実施例のアンモニア分解触媒の製造方法は、担持工程と、乾燥工程と、窒化工程を備えている。本実施例では、担体として、化学式が $\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot x\text{SiO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ であり、ここで、 $x = 2.0 \sim 2.5$ 、 $y$ が0以上の数値であるアルミノケイ酸塩（合成ゼオライト）を使用することができる。これに加えて、本実施例では、担体として、A型の結晶構造を有しており、平均粒径3.0mm、細孔径0.3nm（3）で、化学式が $\text{K}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot x\text{SiO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ であり、ここで $x = 2.0 \sim 2.5$ 、 $y$ が0以上の数値であるアルミノケイ酸塩を使用することも可能である。このアルミノケイ酸塩は、合成ゼオライト（ゼオラム（登録商標）、CGS、東ソー株式会社製）として入手可能である。

20

#### 【0041】

本実施例では、触媒として、ルテニウムとリチウムのいずれか一方のみを担持させる。すなわち、本実施例の担持工程は、担体に、水酸化リチウムの水溶液か、3塩化ルテニウムの水溶液のいずれか一方を含浸させることによって、担体に、ルテニウムまたはリチウムを担持させる。担持工程以降の工程については、実施例1と同一であり、重複説明を割愛する。

#### 【0042】

##### [比較例]

比較例として、実施例1と同一の担体に、最初に3塩化ルテニウムを含む水溶液を含浸させ、中間乾燥工程を行った後に、水酸化リチウムの水溶液を含浸させたアンモニア分解触媒を製造した。

30

#### 【0043】

##### [担持工程の違いによる触媒の特性評価結果]

実施例1と、実施例2と、比較例のそれぞれの製造方法に従って、担体100gあたりリチウム4.3g、ルテニウム12.5gを担持させたアンモニア分解触媒を製造した。そして、それぞれのアンモニア分解触媒について、アンモニア分解率を評価した。評価方法は、以下の通りである。

#### 【0044】

アンモニア分解触媒20cm<sup>3</sup>を、内径16mmの反応容器に充填し、アンモニアガスを空間速度3000h<sup>-1</sup>で供給して通過させつつ、反応容器を加熱して、容器内温度を徐々に昇温させた。そして、反応容器の出口から排出される出口ガスに含まれる水素濃度を水素センサで測定した。得られた水素濃度を用いて、以下の式（1）で、アンモニア分解率を計算した。

40

$$\text{アンモニア分解率} [\%] = \text{H}_2\text{out} / \text{H}_2\text{max} \cdots (1)$$

ここで、

H<sub>2</sub>out： 反応容器の出口水素濃度 [L/min]

H<sub>2</sub>max： アンモニアの全量が分解した場合の水素量

$$= 3/2 \times \text{アンモニアガスの導入量} [\text{L/min}]$$

#### 【0045】

50

それぞれのアンモニア分解触媒についての、反応温度とアンモニア分解率の関係を図 4 に示す。実施例 1 の製造方法によるアンモニア分解触媒は反応温度 510 で、アンモニア分解率 99.7% を達成した。また、実施例 2 の製造方法によるアンモニア分解触媒も反応温度 510 で、アンモニア分解率 99.6% を達成した。一方、比較例の製造方法によるアンモニア分解触媒は、反応温度 510 のアンモニア分解率が 98.8% であり、分解率が有意に低くなることが確認された。

#### 【0046】

[ 触媒の含有量とアンモニア分解率の関係 ]

さらに、担体に含浸させる触媒の量をそれぞれ 3 水準ずつ変化させ、実施例 2 の製造方法に従って、9 種類のアンモニア分解触媒を製造した。

#### 【0047】

表 1 は、担体 100 g あたりのリチウム担持量を 2.5 g、4.3 g、12.5 g の 3 通りに設定し、ルテニウム担持量を 2.5 g、7.5 g、12.5 g の 3 通りに設定して製造したアンモニア分解触媒について、反応温度ごとのアンモニア分解率 (%) を測定した結果である。

#### 【0048】

【表 1】

Li (g)	Ru (g)	反応温度 (°C)								
		450	490	500	540	550	560	590	600	610
2.5	2.5	19.8	N.A.	45.2	N.A.	77.1	N.A.	94.9	N.A.	97.6
2.5	7.5	41.7	N.A.	89.2	99.5	N.A.	99.9	N.A.	99.8	N.A.
2.5	12.5	27.8	N.A.	67.8	N.A.	97.2	N.A.	99.8	N.A.	99.9
4.3	2.5	50.0	N.A.	88.5	98.0	N.A.	99.6	N.A.	99.7	N.A.
4.3	7.5	74.6	N.A.	90.8	99.5	N.A.	99.8	N.A.	99.6	N.A.
4.3	12.5	81.0	99.2	N.A.	N.A.	99.7	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.
7.5	2.5	60.8	N.A.	89.4	99.1	N.A.	99.8	N.A.	99.9	N.A.
7.5	7.5	46.5	N.A.	84.3	99.4	N.A.	99.9	N.A.	99.7	N.A.
7.5	12.5	91.4	99.9	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	N.A.	99.9

#### 【0049】

図 5 (a) は、担体 100 g に対して、リチウムを 2.5 g 担持させ、且つルテニウムを 2.5 g、7.5 g、12.5 g のいずれかの量で担持させたアンモニア分解触媒について、反応温度とアンモニア分解率 (%) の関係を示している。図 5 (b) は、担体 100 g に対して、リチウムを 4.3 g 担持させ、且つルテニウムを 2.5 g、7.5 g、12.5 g のいずれかの量で担持させたアンモニア分解触媒について、反応温度とアンモニア分解率 (%) の関係を示している。図 5 (c) は、担体 100 g に対して、リチウムを 7.5 g 担持させ、且つルテニウムを 2.5 g、7.5 g、12.5 g のいずれかの量で担持させたアンモニア分解触媒について、反応温度とアンモニア分解率 (%) の関係を示している。

#### 【0050】

測定を行ったアンモニア分解触媒の中では、担体 100 g あたり、リチウム 7.5 g、ルテニウム 12.5 g を担持した実施例のアンモニア分解触媒の活性が最も高く、空間速度  $3000 \text{ h}^{-1}$ 、反応温度 490 で、アンモニア分解率 99.9% を達成した。

#### 【0051】

[ 担体の物性とアンモニア分解率の関係 ]

物性値の異なるアルミノケイ酸塩に、ルテニウムを 3.0 重量% 担持させた場合の、アンモニア分解率を、以下の表 2 に示す。



【 0 0 5 2 】

【 表 2 】

結晶構造	細孔径 (nm)	アンモニア分解率 (%)	
		460℃	540℃
X	0.9	72.7	99.9
A	0.3	71.1	98.5

【 0 0 5 3 】

10

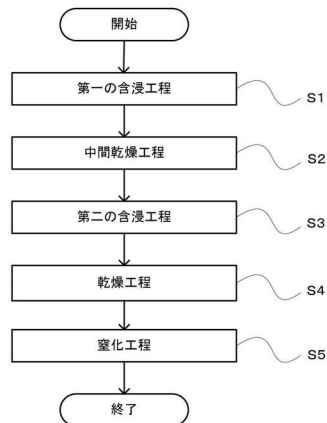
表 2 に示したとおり、A 型または X 型の結晶構造を有しており、細孔径が 0.3 nm 以上 0.9 nm 以下のアルミノケイ酸塩にルテニウムを担持させたアンモニア分解触媒は、高いアンモニアの分解率を示す。また、これらのアルミノケイ酸塩にニッケルやリチウムを担持された場合も、高いアンモニア分解率を示すことが確認されている。

【 0 0 5 4 】

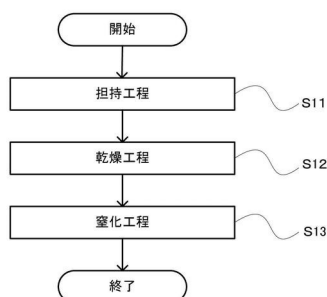
実施例で説明したアンモニア分解触媒の製造方法は、適宜変更が可能である。たとえば、担体に担持させるルテニウムとリチウムの量は、担体 100 g に対して、ルテニウム 2.5 ~ 12.5 g、リチウム 2.5 ~ 7.5 g の範囲でそれぞれ任意の量を選択することができる。また、乾燥工程、窒化工程の温度と時間も、適宜設定することができる。原料のアルミノケイ酸塩についても、自由に選択することが可能である。

20

【 図 1 】

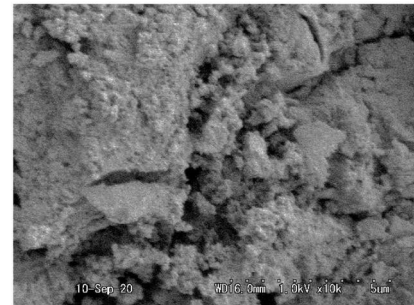


【 図 2 】

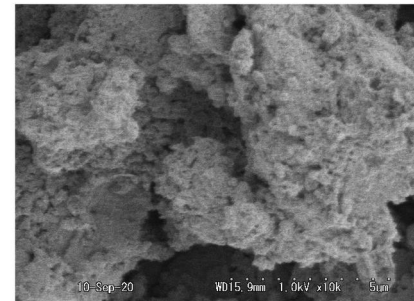


【 図 3 】

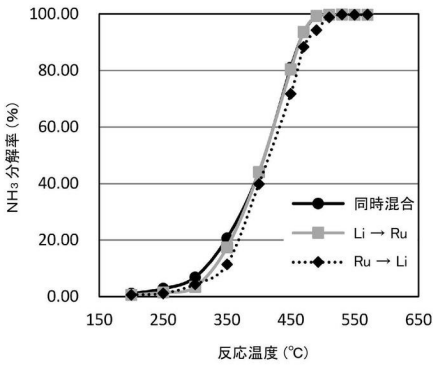
(a)



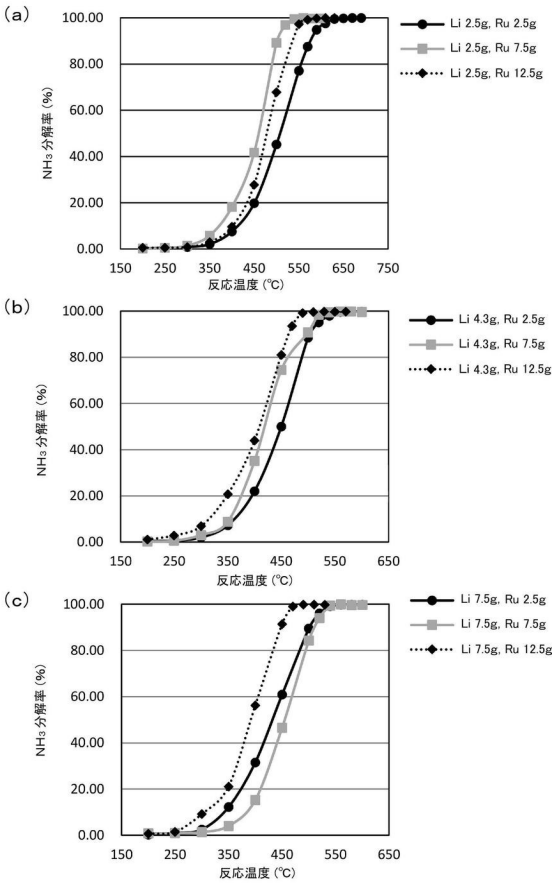
(b)



【 図 4 】



【 図 5 】



---

フロントページの続き

(72)発明者 三浦 友規

群馬県太田市新田早川町 3 番地 澤藤電機株式会社内

(72)発明者 田中 裕弥

群馬県太田市新田早川町 3 番地 澤藤電機株式会社内

(72)発明者 池田 達也

群馬県太田市新田早川町 3 番地 澤藤電機株式会社内

F ターム(参考) 4G169 AA03 AA08 AA09 BA07A BB02A BB02B BB05C BB08C BC04A BC04B BC70A BC70B BD12C CB81  
EC11X EC11Y EC12X EC12Y EC27 FA02 FB13 FB19 FB57 FB80 FC08 ZA02A ZA02B ZA03A  
ZA03B ZC04 ZC06 ZC07