

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 榎本 啓士

修士(工学)榎本啓士提出の論文は、「微小重力場を利用した白金触媒反応の機構解明」と題し、5章から成っている。

触媒燃焼法は希薄混合気の燃焼が容易なために燃焼効率の向上がはかられることと、低温での燃焼が可能であるので窒素酸化物などの環境汚染物質の排出量が低減されることから、有力な燃焼方法として近年注目を浴びている。そのため、その反応機構を基礎的に解明することが大いに期待されている。今までなされている触媒研究の中でも、特に白金を触媒として用いた水素-酸素混合気の反応機構は、基礎的な観点からだけでなく白金の強い触媒性能を利用する応用的な観点からも、多くの研究者が研究対象として選んでおり、様々な実験的研究、数理解析および大型計算機を用いた数値シミュレーションがなされている。これらの過去の実験は、いずれの場合も低速の流れ場を利用して行われている。一方、触媒近傍には温度勾配、すなわち密度勾配が存在する。この密度勾配と、重力が存在することで自然対流が起り、触媒表面近傍の重要な場は非常に複雑なものになっている。この自然対流の影響を定量化することは一般に困難であり、実験結果の解析には多くの仮定が含まれる場合が多い。そこで、本研究ではこの自然対流の影響を無視しうる微小重力環境を利用して、表面反応による発熱量および表面点火温度の燃料割合依存性を検討し、触媒の反応機構を明らかにしようと試みている。

第1章は、序論であり本研究の背景を述べ、関連する研究の成果とその問題点を検討し、研究の意義と目的を明確にしている。

第2章は、実験装置と測定法について述べている。まず、触媒燃焼装置の説明、および実験に用いた触媒について説明をしている。さらに、微小重力環境を実現した方法およびその残留加速度が実験結果に及ぼす影響について説明している。

第3章では、数値解析に用いた計算スキームについて述べている。まず、支配方程式、輸送係数の評価についての説明があり、気相における化学反応モデル、表面における触媒反応モデルおよび境界・初期条件について説明している。

第4章は、通常重力場および微小重力場において得られた実験結果とともに、気相で輸送されている反応化学種と反応量の関係、および触媒表面への化学種の吸着・離脱速度と表面点火温度との関係について考察している。その結果として、気相での化学種輸送速度は表面反応速度よりも遅く、よって輸送過程が表面反応による化学種の反応量を支配していること、また表面点火温度は化学種の吸着速度および離脱速度に大きく影響されていることを明らかにしている。さらに、従来の研究では燃料割合が大きくなると、表面点火温度が単調に増加する実験結果が得られている。しかし、本研究においては、ある燃料割合で表面点火温度が極小値を取ることが実験的に示されている。この事実は過去の研究から得られている反応モデルでは説明できない現象であり、特に化学種の吸着・離脱モデルについて更なる研究が必要であることを示唆している。

第5章は結論であり、本研究において得られた結果を要約している。

以上要するに、本論文は、触媒表面反応の反応速度が気相における化学種輸送速度に大きく依存していること、表面点火温度は化学種の吸着速度および離脱速度に依存していることを明らかにし、触媒表面反応の支配的機構の特定を行ったという点で燃焼学および表面科学上貢献するところが大きい。

よって、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。