

平成19年 3月27日

機能材料工学専攻	
申請者氏名	佐々木 基

紹介教員氏名	角田 範義
--------	-------

論文要旨(博士)

論文題目	酸素雰囲気中で機能する触媒による窒素酸化物低減に関する研究
------	-------------------------------

(要旨 1,200字程度)

ディーゼル排ガスなど高濃度の酸素を含有する排ガス中の窒素酸化物を低減するために、さまざまな方式の触媒による除去技術が検討されている。本博士論文は種々の方式の窒素酸化物除去触媒について、新規触媒の開発および反応機構や触媒活性サイトについての解析に関連する一連の研究成果を構成したものである。

第1章は、本研究の背景やこれまでの窒素酸化物除去触媒研究の経緯について述べるとともに、本研究の内容・目的および構成について記載した。

第2章では、NO直接分解反応について酸化物触媒を中心に検討し、活性を有する酸化コバルト触媒に銀を担持することにより低温活性が向上することを見出した。次に、薄膜触媒を用い本反応と同様にN-Oの開裂を伴うN<sub>2</sub>O分解反応をモデルとし、本触媒の活性サイトの検討を行ったところ、触媒活性の発現には銀と酸化コバルトが表面に共存することが必須であり、このとき銀担持により酸化コバルトの電子状態が変化してN<sub>2</sub>O分解活性が発現したものと推定された。さらに、NO直接分解反応において特異的に高い活性を示すCu-ZSM-5触媒について、ニューラルネットワーク情報処理システムを利用することにより少数の活性データから任意の組成のCu-ZSM-5触媒の任意の反応条件におけるNO分解活性を予測するシステムを検討した。その結果、触媒反応の解析に本法が有用であり、理論に基づく予備処理や仮説なしに活性の予測ができることを示した。

第3章では、炭化水素によるNO選択還元反応をとりあげ、炭化水素の酸素酸化反応やNOの酸化反応との関係を詳細に検討し、触媒種によるNO選択還元反応機構の相違について論じた。H型ゼオライトやアルミナなど酸素活性化能を有しない触媒では触媒の酸量と酸化活性の間に強い相関があり、酸量が多い触媒でNO選択還元が起こりやすいこと、NOの共存によって炭化水素酸化率が向上することなどから、最初にNOがNO<sub>2</sub>に酸化された後、NO<sub>2</sub>と触媒上で活性化された炭化水素が反応して含酸素活性中間体が生成し、NO還元が進む機構を推定した。一方、酸素活性化能の高い遷移金属を含むCu-ZSM-5やPd/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒では、活性化された酸素により炭化水素が酸化され、その部分酸化体とNOとの反応によりNO還元が進行し、NO還元は完全酸化と競争的であるため選択性が前者の触媒系よりも低くなるものと考えられた。

第4章ではCOによるNO選択還元反応について検討した。粉体触媒による基礎検討で活性を示したIr/SiO<sub>2</sub>触媒およびタングステンやバリウムを添加した改良触媒をハニカム支持し、温度昇降を伴う長期活性評価を行い共存するSO<sub>2</sub>の影響や寿命等について論じた。Ir/SiO<sub>2</sub>触媒ではSO<sub>2</sub>の共存が活性発現に必須であり、SO<sub>2</sub>はイリジウムを活性な還元状態に維持する働きがあると考えられた。一方、Ir/WO<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>触媒はSO<sub>2</sub>非共存下でも高い活性を示したが、これはIrとWO<sub>3</sub>の界面が新たな活性点となったためと考えられた。さらに、Ba/Ir/WO<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>触媒は最も高活性かつ高い耐久性を示したが、バリウム添加は活性点の維持に寄与していることが推定された。

第5章は総括として、本研究をまとめるとともに今後の展望を記載した