

論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 甲 第 12793 号
------	---------------

氏 名 植田 格弥

論文題目

Development of Noble-Metal-Free Three-Way Catalyst Using Spinel-Type Metal-Oxide Based on Reaction Mechanism Analysis
(反応機構解析を基にしたスピネル型金属酸化物による貴金属フリー自動車三元触媒の開発)

論文審査担当者

主査	名古屋大学	教授	薩摩 篤
委員	名古屋大学	講師	沢邊 恭一
委員	名古屋大学	教授	平澤 政廣
委員	名古屋大学	教授	小澤 正邦

論文審査の結果の要旨

植田格弥君提出の論文「Development of Noble-Metal-Free Three-Way Catalyst Using Spinel-Type Metal-Oxide Based on Reaction Mechanism Analysis (反応機構解析を基にしたスピネル型金属酸化物による貴金属フリー自動車三元触媒の開発)」は、貴金属を使用しない自動車排ガス浄化触媒の設計指針を明らかにしている。各章の概要は以下の通りである。

第1章では、General Introductionであり、新興国での自動車需要急増と先進国での環境性能向上要求から自動車三元触媒の活性成分である貴金属(Pt, Pd, Rh)が供給不足に陥る可能性、白金族フリー触媒の開発の必要性、窒素酸化物(NO)の窒素への実用レベルの還元活性を貴金属フリーで発揮させることの困難さを述べている。

第2章では、酸化鉄の活性-構造相関性に着目した高活性な触媒材料の探索について述べている。種々の結晶構造を有する酸化鉄の比較から、スピネル型の酸化鉄が他の結晶構造の酸化鉄と比して、5倍以上の極めて高いNO還元活性を示すことを明らかにした。また、スピネル型酸化鉄にニッケルを添加することで、2倍に活性が向上した。一連の研究で最も高活性であったニッケルフェライト触媒は、貴金属触媒にはまだまだ及ばないものの、貴金属フリー触媒の中では世界最高のNO還元活性を示した。

第3章では、その場観察赤外分光法により、ニッケルフェライト触媒上での触媒反応機構を解明している。反応中の触媒表面には炭化水素の部分酸化種(アセテート等)が触媒表面をほぼ覆いつくしており、この表面種がNOと反応し、CN種を経由して、NOが窒素まで還元されることを明らかにした。この反応機構は従来の白金系触媒とは全く異なっていた。ニッケルフェライト触媒のNO還元活性は炭化水素濃度が減少するほど向上し、むしろ炭化水素が存在しないNO-CO反応において最大の活性を示した。炭化水素部分酸化種はNOの還元剤ではあるが、同時に触媒表面に強く吸着してNOの吸着を阻害するため、高い反応性を示すはずのNO-CO反応が進行しないことを明らかにした。

第4章では、第3章の機構解析の結果をもとにした、タンデム型触媒開発について述べている。すなわち触媒の機能を二つに分け、前段触媒で炭化水素を酸素で選択的に燃焼させ、後段触媒では炭化水素による反応阻害を除去してNO-CO反応を進行させる触媒系の構築である。種々の触媒性能を調べたところ、前段には金属と酸素の結合強度が強い金属酸化物が、後段に金属と酸素の結合強度が弱い金属酸化物が適していることを明らかにしている。前段・後段それぞれの触媒の最適化を行ったところ、 $ZnCr_2O_4$ と $CuCo_2O_4$ が各々の反応において高い性能を示した。実際にタンデム型配列の触媒システムを試験したところ、そのNO還元活性は貴金属触媒で最もNO還元反応に優れるRh触媒と同等であった。また窒素収率に関しては低温域でRh触媒の2倍の値を示した。このタンデム触媒は貴金属触媒を上回るNO還元性能を有する卑金属触媒の最初の例となった。

第5章では、本研究の結論を与えている。

以上のように本論文では、タンデム型触媒のコンセプトを提案し、貴金属フリーで従来の貴金属触媒を上回る性能を示す自動車三元触媒を世界で初めて示した。これらの結果は、貴金属フリー自動車三元触媒を実現するために重要であり、工学の発展に寄与するところが大きいと判断できる。よって、本論文の提出者である植田格弥君は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格があると判断した。