


(様式 5)

指導教員 承認印	
-------------	---

平成 27 年 12 月 5 日

## 学位（博士）論文の和文要旨

論文提出者	工学府博士後期課程 応用化学 専攻 平成 25 年度入学 学籍番号 13832303 氏名 賈璐 
主指導教員 氏 名	細見 正明
論文題目	遷移金属酸化物を用いた VOC 酸化浄化用触媒の開発に関する研究
論文要旨（2000 字程度） <p>化石燃料燃焼プロセスや工業プロセスから放出される VOCs ガスは大気汚染物質であり、光化学スモッグやオゾンの発生など多くの環境問題に関連する。低濃度の VOCs ガスでも人間の健康には大きな脅威となるので、大気中に排出する VOCs ガスの削減緊急に取り組む必要がある。白金、パラジウム、金、銀のような高い酸化活性を持つ貴金属が VOCs 排ガス処理用の触媒として工業プロセスで使用されるのが良く知られている。しかし、中小規模企業で工業応用ならば、これらの貴金属が高いコストのほかに、揮発性、焼結、および中毒傾向などのいくつかの欠点もある。これらの課題を解決には、本研究は、貴金属を代替する遷移金属を用い、通電加熱アルマイトプレート触媒の開発を行った。最後に、共同研究内容として、自動車排ガス浄化触媒開発グループと共同でホルムアルデヒド酸化浄化カーボン触媒を開発した。</p> <p>本研究は主に以下の 4 点の新規性がある。</p> <p>I. 炭酸ナトリウムを沈殿剤として、銅-コバルト、銅-マンガンバルク触媒を調製し、より高表面積が得られ、VOCs ガス浄化特性を明らかに向上した。</p> <p>II. 触媒キャラクターゼーションより、銅-X 系触媒の活性要因、反応メカニズムを明らかにした。</p> <p>III. 銅-X 系触媒の最適触媒種及び最適組成を明らかにした。</p> <p>IV. 粉末触媒の調製方法と異なったアルマイトプレートに最適触媒組成の担持方法を確立した。</p> <p>第 1 章「緒論」では、本件研究の特徴、および研究の主要な目的となる環境と資源の問題及び既往の VOCs 処理技術について説明する。本章では調査結果とその考察を目的、新規</p>	

性、論文の構成、研究背景、本研究の概要および方針のような構成で示す。背景の中では、VOCs 排出ガスに関する環境規制、VOCs 排出ガスを浄化する技術、VOCs 浄化用触媒、近年の貴金属の課題、および本研究のきっかけとなる貴金属を使用しない銅-X 触媒について説明する。

第2章「通電加熱アルマイトプレート担体への触媒種の選択と VOCs ガス浄化特性」では、通電加熱アルマイトプレート触媒上に担持する触媒種及び担持条件、組成について議論する。実験結果より、銅、マンガン、コバルト、セリウムが多数遷移金属の中で比較的良好的な触媒性能を発見しており、さらに二成分系の銅-X 系触媒の最適組成及び調製条件を検討した。二成分系触媒の中で、銅-マンガン触媒が最も高い活性を持ち、225°Cでトルエンを完全に燃焼させ、市販白金触媒と同じ性能を持つのを明らかにした。更に酢酸エチルの燃焼試験においては、200°Cで酢酸エチルを完全燃焼させ、市販白金触媒のより遥かに高い性能を持つのを明らかにした。これらの結果より、通電加熱アルマイトプレート触媒機能への関与している可能性が示唆された。これらの結果に、特に Cu-Mn 触媒が非常に優れた活性を示し、その触媒のキャラクタリゼーションより、活性要因および反応メカニズムを明らかにした。

第3章「複合遷移金属触媒のキャラクタリゼーションおよび活性向上要因の解明」では、第1章の結果に基づき、特に Cu-Mn 触媒が非常に優れた活性を示し、その触媒のキャラクタリゼーションより、活性要因および反応メカニズムを明らかにした。複合金属酸化物触媒は単成分触媒より良い活性を示し、そして触媒種 Mn (or Co) 添加量の変化に連れて、Cu-Mn (or Co-Cu) 複合酸化物触媒の燃焼活性が山のような特徴がある。Mn の添加量の変化に連れて、T50、T90、粒子径、TPR 低温還元温度および BET 比表面積がすべて谷のような変化軌跡を示し、しかも谷底の位置も一致している。これらの結果は、触媒粒子の結晶度または高分散、触媒の可還元性、表面酸素濃度、触媒比表面積のようなたくさんの要因が触媒活性に影響していることが示唆された。根本的な原因は Cu 金属種と Mn 金属種との強い相互作用であると結論した。

第4章「通電加熱アルマイトプレートへ担持した銅-X 系触媒 VOCs ガス浄化特性概要」では、第2章で得られた知見を用い、通電加熱アルマイトプレート上に触媒を担持し、各担持条件について議論する。同じく、触媒評価には環式炭化水素 VOCs ガスの代表物トルエンと鎖式炭化水素酢酸エチルを用いた。実験結果より、アルマイトプレート触媒が粉末上での性能に及ばなかったが、250°C (白金触媒では 225°C) でトルエンを完全燃焼させることができた。一方、酢酸エチルの燃焼試験においては、225°Cで酢酸エチルを完全燃焼させ、市販白金触媒の 350°Cより遥かに高い性能を持つのを明らかにした。また、工業的な応用を図るあたり、混合 VOCs に関しての触媒性能も行われた。

第5章「結言」では、以上をまとめて、本研究で得られた成果と今後に残された課題と方向性について考察する。また、この論文の成果、各章に関連して掲載された論文の一覧と関係する学会発表について述べる。