

## 論文の内容の要旨

### 論文題目

Study of Diesel Automotive Exhaust Catalyst System

- Development of Diesel Oxidation Catalyst and HC Selective Catalytic Reduction System

ディーゼル車排気ガス浄化触媒システムの研究

- ディーゼル酸化触媒および炭化水素選択還元型触媒システムについて

氏名 渡邊佳英

本論文は触媒コンバーターを用いたディーゼル車排気ガス浄化に関する実験的および数値的な研究成果をまとめたものである。ディーゼル車排出規制は数年ごとに強化されており、それに伴い触媒による浄化技術も著しく変化を遂げている。このような状況下では実験および数値計算の両面から、最も適切な方法を局面ごとに選択しながら排ガス触媒システムの研究開発を行うことが肝要である。

排気規制の変遷に従い、ディーゼル車用触媒およびその使用技術に関する試みにより、その時代に必要な浄化技術が進歩を遂げてきた。

ディーゼル車の排出物低減技術は、初期の段階ではエンジン燃焼の制御技術を中心に達成された。しかし、ディーゼル車排出規制がますます強化されるにつれて、最初に CO、HC Hydrocarbon: 炭化水素)、SOF (Soluble Organic Fractions: 可溶性有機成分) および PAH (Polycyclic Aromatic Hydrocarbon; 多環芳香族炭化水素) の浄化を目的としたディーゼル酸化触媒が用いられるようになった。この酸化触媒はディーゼル車排出物低減の基礎であり、今なお重要な役割を果たしている。

次に NOx の規制が強化されると、選択還元型触媒 (Selective catalytic reduction : SCR) が注目された。この SCR システムは添加する還元剤の種類によって大きく 2 つに分けられる。ひとつは炭化水素を用いるもの (HC-SCR)、もう一つは尿素 (あるいはアンモニア) を用いるもの (Urea-SCR) である。HC-SCR システムは Urea-SCR システムと比べて、還元剤インフラの観点でより利便性に優れている。HC-

SCR システムでは、軽油を還元剤として用いることで新たなインフラを必要としないのに対して、Urea-SCR システムでは尿素の供給方法の確保と尿素タンクを装備する必要がある。こうしたことから、乗用車には HC-SCR、重量車には Urea-SCR システムが最適な方法と考えられた。

現在では、NOx と PM (Particulate Matter: 粒子状物質) を中心にますます規制が強化されている。いくつかの種類のディーゼル排出低減技術が開発されている。PM の低減手法として、DPF (Diesel Particulate Filter: パティキュレートフィルター)、CRT (Continuous Regenerating Trap: 連続再生型トラップ) および CSF (Catalyzed Soot Filter: 触媒付フィルター)、また PM と NOx の同時低減手法として DPNR (Diesel Particulate-NOx Reduction System) が開発されている。これらの手法は今なお発展途上のものも多く、本論文では詳細には触れない。

本論文は、ディーゼル車排気ガス規制の変遷に対応したディーゼル車用触媒技術の研究開発に関するものであり、4 章から構成される。

第 1 章では、排気規制の変遷、それに伴ったディーゼル車用浄化技術に関する進展を概観する。

第 2 章では、ディーゼル用酸化触媒について、新規な Pt/Fe 熱処理セピオライト触媒の開発と解析結果についてまとめた。

熱処理セピオライト触媒は炭化水素 (HC) に対して高い完全酸化活性を示す。HC および SOF に対する高い完全酸化活性はディーゼル車排出低減に不可欠なものである。ただし、硫黄分を含有する軽油のエンジンでの燃焼に伴い、SO<sub>2</sub> が生成するという問題が伴う。一般的な触媒上では、この SO<sub>2</sub> がさらに SO<sub>3</sub> に酸化され、Soot と結びついて PM が増加する。そのため、HC や SOF に対しては高い酸化活性を示し、同時に SO<sub>2</sub> 酸化に対しては低活性であることが触媒に求められる。また同時に高い対 SO<sub>x</sub> 被毒性も要求される。

本章では Pt/熱処理セピオライトにさらに Fe を担持することにより、高い HC 酸化活性を示し、かつ SO<sub>2</sub> 酸化を抑制することを見出した。

第 3 章では、HC-SCR 触媒の数値計算モデルの構築および HC 添加システムの最適化に関する研究結果についてまとめた。

ディーゼル車の NOx 低減技術である HC-SCR システムでは変動運転状況下での添加 HC 量の制御が不可欠である。また、NOx 処理率向上のためには、吸着 HC の有効利用と温度ウインドウ保持が重要な鍵となる。そのため、吸脱着を考慮した NOx 選択還元用触媒数値計算モデルを構築し、それを排気規制モードのような過渡条件下でも適用可能なことを示した。

さらに本モデルを利用して、進化的プログラミングの手法により HC 添加制御マップを最適化し、浄化性能を向上させることに成功した。

第 4 章では、ディーゼル車用排気ガス浄化技術について整理し、本研究の意義と今後の展開につ

いて総括している。

以上、本論文は触媒コンバーターを用いたディーゼル車用排気ガス浄化に関する実験的および数値的な研究に関して記したものである。新規な Pt/Fe 热処理セピオライト触媒を見いだし、またこれについて新規な学術的知見を得た。さらには、HC-SCR 触媒の性能を向上させる数値的方法を提案した。