

## 審査の結果の要旨

氏名 金沢 孝明

本論文は、「自動車排気ガスの吸着材、浄化触媒に関する研究」と題し、主にガソリンエンジンの排気ガス低減に関する研究成果をまとめたものであり、全5章から構成されている。

第1章は序論であり、本研究の背景、目的および論文の構成とその概要が述べられている。特に排気ガス規制の強化とそれに対する課題、必要な浄化触媒および技術について言及している。排気ガス規制の変遷に従い、その時代に必要な浄化技術として進歩を遂げてきたことを記述している。排気ガスは排出挙動から触媒暖機前と触媒暖機後とに分けて考えることが出来、その排出割合から炭化水素低減には触媒暖機前が重要であり、NO<sub>x</sub>低減には触媒暖機後の対策をするための研究開発を行うことが肝要であると述べている。

第2章では、炭化水素低減を目的に特にその排出割合が多いエンジン始動直後に着目し、炭化水素用吸着材のゼオライトの検討結果についてまとめている。各種炭化水素の吸着が排出ガス低減に不可欠であるが、車両から排出される水分共存に伴い、炭化水素の吸着量が減少する。一般的にはゼオライトの酸点に炭化水素が吸着するとの知見だが、室温水分共存下では、逆に酸点がない疎水性のゼオライトが良いこと、排出される炭化水素の分子径からMFIとY型の組み合わせ最適化によりC<sub>1</sub>,C<sub>2</sub>を除く全炭化水素を吸着可能であることを示している。またAgをイオン交換したフェリエライトも用いてC<sub>1</sub>を除く全炭化水素の吸着が可能であることを見出している。車両における吸着システムでの耐久性も確認し、最も厳しい規制に対応すべく2000年から実用化されていると述べている。

第3章では、NO<sub>x</sub>低減を目的に特にその排出割合が多い触媒暖機後に着目し、新規助触媒の開発結果について述べている。車両加速時の一時的な酸化雰囲気変動に伴い、NO<sub>x</sub>の還元が熱劣化した触媒では困難になってしまうことから、触媒における耐久後の酸素貯蔵能の重要性を考察し、その対応策として、助触媒であるCeO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub>固溶体の熱安定性をさらに向上する研究を

進めている。CeO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub> 固溶体の焼結を抑制するために、新たに Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-CeO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub> の複合酸化物を開発し、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の介在により CeO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub> 固溶体の焼結が抑制された結果、耐久後の酸素貯蔵能の確保と貴金属シタリングが抑制され、浄化性能向上に成功したと述べている。車両に搭載した試験で NO<sub>x</sub> エミッションは 20% 低減され、当時の全車両に展開されたと述べている。

第 4 章では、触媒活性低下の主原因である貴金属のシタリングを抑制する新手法に関する研究結果についてまとめている。MFI の結晶粒界に白金を介在させることにより、高温熱処理後も粒界間隔以上に白金がシタリングしない現象を見出し、機械的に白金の移動を抑制することでシタリング抑制が可能である事を実証している。それに伴い、触媒活性低下も抑制できたことを示している。さらに、この手法では結晶粒界に存在する白金に対してしか適応できない事に対する対策も考えている。テトラメキシシランが特に白金周りで加水分解する性質に着目し、テトラメキシシランを含浸することにより、結晶粒界以外の白金に対しても簡単に白金 1 粒子毎に SiO<sub>2</sub> をコート可能である事を見出している。この処理により TEM 像からは白金は閉塞状態にあるように観察されたが、実際には触媒活性低下が見られないことから、ガスの通過が可能な SiO<sub>2</sub> 膜であることを実証している。また SiO<sub>2</sub> をコートした触媒は、1000℃ においても活性低下が抑制されたと述べている。

第 5 章では、各章のまとめと本論文の成果を整理している。

以上のように本論文では、ガソリンエンジン用排気ガス低減技術に関する炭化水素と NO<sub>x</sub> 低減および貴金属シタリング抑制の成果について述べている。排気ガスに最適な吸着材を見だし、その吸着向上の原因について学術的知見を得ている。また NO<sub>x</sub> 低減に繋がる新規助触媒の研究と実用化、さらに触媒の熱劣化の主原因である貴金属のシタリング抑制の新規技術を提案している。ここで得られた研究成果は、ガソリンエンジン車用排気ガス吸着材、浄化触媒として世界的規模で実用化されたものであり、触媒工学上重要であるばかりでなく、材料化学、化学工学上も有意義な成果であると評価される。

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。