

Title	Studies on Novel Catalysts Based on SnO ₂ or ZnO doped CeO ₂ -ZrO ₂ for Complete Oxidation of Toluene
Author(s)	金, 瑛瑛
Citation	大阪大学, 2014, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/34410
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

論文内容の要旨

氏名 (Min Yeong Kim)

論文題名

Studies on Novel Catalysts Based on SnO₂ or ZnO doped CeO₂-ZrO₂ for Complete Oxidation of Toluene
(酸化スズまたは酸化亜鉛が固溶したセリウム-ジルコニウム複合酸化物を用いた新しいトルエン浄化触媒に関する研究)

論文内容の要旨

本研究では、可能な限り低温においてトルエンを完全燃焼する触媒、及び1000°C以上の温度にさらされてもトルエンの完全燃焼活性が失われない高温耐久性に優れる触媒のそれぞれについて、Ptの使用量を極力抑えた、あるいはPtを全く使用しない触媒の開発を目指した。得られた知見を総括すると以下のようになる。

第1章では、Ptの使用量を極力低減したトルエン完全燃焼触媒の開発を目指し、従来のPt/γ-Al₂O₃触媒に格子内部から酸素を供給可能なCeO₂-ZrO₂-SnO₂複合酸化物を助触媒として導入するとともに、Ptよりも安価であり、なおかつ自身が還元されやすい特性を持つことから炭化水素類の酸化に対して高い活性を示すことが知られているCo₃O₄を追加導入した新しい触媒を設計した。その結果、従来のPt(5wt%)/γ-Al₂O₃触媒よりも高いトルエン燃焼活性を有し、かつ、Pt量を1/5に低減した触媒の開発に成功した。

第2章では、第1章で得られた高いトルエン燃焼活性を可能な限り保持しつつ、Ptを全く使用しない新規な触媒の開発を目指し、Co₃O₄とCe_{0.68}Zr_{0.17}Sn_{0.15}O_{2.0}のみで構成される触媒を調製した。その結果、Co₃O₄を担持したCe_{0.68}Zr_{0.17}Sn_{0.15}O_{2.0}触媒はCo₃O₄の担持量を最適化することにより、Ptを使用しないにも関わらず、トルエンを比較的低温(260°C)で完全燃焼できることが明らかとなった。さらに、本触媒は水蒸気共存下でも失活することなく、高い耐水性を有することがわかった。

第3章では、高温耐久性を有する新規なトルエン燃焼触媒の開発を目指し、格子内から酸素を供給可能な複合酸化物として、SnO₂の代わりにZnOをCeO₂-ZrO₂複合酸化物に固溶させたCeO₂-ZrO₂-ZnO複合酸化物に極微量のPt(0.4wt%)を担持した0.4wt%Pt/Ce_{0.76}Zr_{0.19}Zn_{0.05}O_{2.0}触媒を調製した。その結果、本触媒は1000°Cで繰り返し焼成しても失活することなく、360°Cでトルエンを完全燃焼可能であることが明らかとなった。

第4章では、高温耐久性を有するだけでなく、貴金属を全く使用しない新しいトルエン完全燃焼触媒の開発を目指し、高い耐熱性を有するCeO₂-ZrO₂-ZnO及び(La,Ca)CoO_{3-δ}複合酸化物を組み合わせた新しい触媒を調製した。触媒組成を最適化した結果、17wt%La_{0.9}Ca_{0.1}CoO_{2.95}/Ce_{0.76}Zr_{0.19}Zn_{0.05}O_{1.95}触媒において最も高い活性が得られ、トルエンは320°Cで完全燃焼することがわかった。この触媒は1400°Cまでの高温耐久性を有していることから、トルエン完全燃焼温度と焼成温度の温度差ΔTが1080°Cという、これまでに類のない高温耐久性を示すことがわかった。

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (Min Yeong Kim)	
論文審査担当者	(職) 氏 名
	主 査 教授 今中 信人
	副 査 教授 桑畑 進
	副 査 教授 安藤 陽一
	副 査 教授 町田 憲一
	副 査 教授 井上 豪
	副 査 教授 林 高史
	副 査 教授 南方 聖司
	副 査 教授 宇山 浩
	副 査 教授 平尾 俊一
副 査 教授 古澤 孝弘	
論文審査の結果の要旨	
<p>申請者は可能な限り低温においてトルエンを完全燃焼する触媒、及び 1000°C 以上の温度にさらされてもトルエンの完全燃焼活性が失われない高温耐久性に優れる触媒のそれぞれについて、Pt の使用量を極力抑えた、あるいは Pt を全く使用しない触媒の開発に成功している。</p> <p>申請者の論文の第 1 章では、Pt の使用量を極力低減したトルエン完全燃焼触媒の開発を目指し、格子内部から酸素を供給可能な $CeO_2-ZrO_2-SnO_2$ 複合酸化物を助触媒として導入するとともに、Pt よりも安価であり、なおかつ自身が還元されやすい特性を持つことから炭化水素類の酸化に対して高い活性を示すことが知られている Co_3O_4 を追加導入した新しい触媒を設計し、従来の Pt (5wt%)/$\gamma-Al_2O_3$ 触媒よりも高いトルエン燃焼活性を有し、かつ、Pt 量を 1/5 に低減した触媒の開発に成功している。</p> <p>第 2 章では、第 1 章で得られた高いトルエン燃焼活性を可能な限り保持しつつ、Pt を全く使用しない新規な触媒の開発を目指し、Co_3O_4 と $Ce_{0.68}Zr_{0.17}Sn_{0.15}O_{2.0}$ のみで構成される触媒の開発に成功している。特に Co_3O_4 を担持した $Ce_{0.68}Zr_{0.17}Sn_{0.15}O_{2.0}$ 触媒は Co_3O_4 の担持量を最適化することにより、Pt を使用しないにも関わらず、トルエンを比較的低温 (260°C) で完全燃焼できることを明らかにしている。さらに、申請者は水蒸気共存下でも失活することなく、高い耐水性を有する触媒の開発に成功している。</p> <p>第 3 章では、高温耐久性を有する新規なトルエン燃焼触媒の開発を目指し、格子内から酸素を供給可能な複合酸化物として、SnO_2 の代わりに ZnO を CeO_2-ZrO_2 複合酸化物に固溶させた CeO_2-ZrO_2-ZnO 複合酸化物に極微量の Pt (0.4wt%) を担持した 0.4wt%Pt/$Ce_{0.76}Zr_{0.19}Zn_{0.05}O_{2.0}$ 触媒の開発し、同触媒が 1000°C で繰り返し焼成しても失活することなく、360°C でトルエンを完全燃焼可能であることを明らかにしている。</p> <p>第 4 章では、高温耐久性を有するだけでなく、貴金属を全く使用しない新しいトルエン完全燃焼触媒の開発を目指し、高い耐熱性を有する CeO_2-ZrO_2-ZnO 及び $(La, Ca)CoO_{3-\delta}$ 複合酸化物を組み合わせた新しい触媒を開発し、中でも 17wt%$La_{0.9}Ca_{0.1}CoO_{2.95}/Ce_{0.76}Zr_{0.19}Zn_{0.05}O_{1.95}$ 触媒がトルエンを 320°C で完全燃焼することを明らかにしている。この触媒は 1400°C までの高温耐久性を有していることから、トルエン完全燃焼温度と焼成温度の温度差 ΔT が 1080°C という、これまでに類のない高温耐久性を有することを明らかにしている。</p> <p>本論文で見出された触媒の設計指針は今後の新規な触媒の開発において、一つの重要な指標となり得るものであり、触媒開発の発展に大きく寄与するものであると考えられる。</p> <p>よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。</p>	