

Title	自動車排気浄化触媒用セリアージルコニア系固溶体の合成およびその酸素貯蔵能に関する研究
Author(s)	須田, 明彦
Citation	大阪大学, 2005, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/45971">https://hdl.handle.net/11094/45971</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

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

Osaka University

氏名	須田 明彦
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 19103 号
学位授与年月日	平成 17 年 2 月 8 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 2 項該当
学位論文名	自動車排気浄化触媒用セリアージルコニア系固溶体の合成およびその酸素貯蔵能に関する研究
論文審査委員	(主査) 教授 新原 皓一  (副査) 教授 町田 憲一 教授 今中 信人 教授 桑畑 進 教授 甲斐 泰 教授 平尾 俊一 教授 小松 満男 教授 大島 巧 教授 宇山 浩 教授 田川 精一

### 論文内容の要旨

本研究の課題は、1990年代に入り、排ガス規制が一段と厳しくなった状況の下で、三元触媒の浄化性能をさらに高くすることであった。浄化効率を高く保つためには、貴金属からなる活性点周囲の空燃比を化学量論組成に保つ必要があった。そのため三元触媒には従来から、セリアヘジルコニアを約 20 mol% (従来の調製法の固溶限) まで固溶させた酸素貯蔵材料が使用されていた。本研究は、セリアへのジルコニアの固溶量を高めることにより酸素貯蔵能 (OSC) を高め、それにより浄化性能を向上させることを目的とした。本論文は、これらの一連の研究をまとめたもので、全 7 章から構成されている。論文の構成は以下の通りである。

第 1 章では、本研究の背景、目的および本論文の構成について記した。

第 2 章においては、触媒用高比表面積セリアに対して、メカニカルアロイング法と、錯体共沈法の二種類の合成方法により、従来の固溶限を超えてジルコニアを固溶させる方法を開発し、固溶体生成機構を考察した。

第 3 章においては、セリアに対してジルコニアを等モル付近まで固溶させた場合に OSC が従来の 3 倍に向上することを熱重量分析計 (TG) による OSC の評価方法で示した。さらに、OSC の評価方法を詳細に検討し、白金/セリアージルコニアの OSC に対する白金担持量、温度、比表面積の影響を明らかにした。

第 4 章においては、CZ を高温で還元処理したときに生成する結晶相と OSC とを関連付けて、セリアへのジルコニア固溶による OSC 向上作用を考察した。さらに、イットリウムで安定化したセリアージルコニア固溶体相の、1200°C 酸化還元による Ce イオンと Zr イオンの配列の規則-不規則変態と OSC の関係より、陽イオンの規則配列が OSC を向上させることを確認した。

第 5 章においては、CZ の耐熱性向上のための拡散障壁コンセプトを示し、それを具現化したアルミナ (A)-CZ 三元系複合酸化物 (ACZ) の耐熱性を評価した。

第 6 章においては、創製した CZ および ACZ を組み込んだ高性能三元触媒の応用例を記した。これらの材料は 1997、2001 にそれぞれ三元触媒として実用化された。

第 7 章では、本研究を総括し、主な成果をまとめた。

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、セリアへのジルコニアの固溶量を高めることにより酸素貯蔵能 (OSC) を高め、セリアージルコニア固溶体を用いることによる優れた浄化性能をもつ三元触媒の開発を目的とする研究成果をまとめたもので、以下に示す7章から構成されている。

第1章では、本研究の背景、目的および本論文の構成について記している。

第2章においては、触媒用高比表面積セリアに対して、メカニカルアロイング法と、錯体共沈法の二種類の合成方法により、従来の固溶限を超えてジルコニアを固溶させる方法を開発し、さらにこれらの方法による固溶体生成機構について考察している。

第3章においては、セリアに対してジルコニアを等モル付近まで固溶させた場合に OSC が従来の3倍に向上することを熱重量分析計 (TG) による OSC の評価方法で明らかにした。さらに、OSC の評価方法を詳細に検討し、白金/セリアージルコニアの OSC に対する白金担持量、温度、比表面積の影響を明らかにした。さらには、セリアージルコニア固溶体結晶表面と内部の酸素の寄与度を分離して評価し、ジルコニア固溶量 57%以上においては、OSC が比表面積の影響を受けないことを明らかにした。

第4章においては、CZ を高温で還元処理したときに生成する結晶相と OSC とを関連付けて、セリアへのジルコニア固溶による OSC 向上作用を考察した。さらに、イットリウムで安定化したセリアージルコニア固溶体相の、1200°C 酸化還元による Ce イオンと Zr イオンの配列の規則-不規則変態と OSC の関係より、陽イオンの規則配列が OSC を向上させることを確認した。

第5章においては、CZ の耐熱性向上のための拡散障壁コンセプトを示し、それを具現化したアルミナ (A)-CZ 三元系複合酸化物 (ACZ) の耐熱性を評価した。

第6章においては、創製した CZ および ACZ を組み込んだ高性能三元触媒の応用例を記した。これらの材料は 1997、2001 にそれぞれ三元触媒として実用化された。

第7章では、本研究を総括し、主な成果をまとめている。以上のように、本論文はセリアへのジルコニアの固溶量を高めることにより、高い OSC を実現したセリアージルコニア系固溶体からなる酸素貯蔵材料を提案するものであり、さらにそれを用いて優れた浄化性能をもつ三元触媒が開発できることを実証したものである。よって本論文は博士論文として価値のあるものと認める。