The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Studies on Novel Catalysts for Methane and Toluene Combustion by using Ceria-Zirconia Based Solid Solutions as a Promoter
Author(s)	Jeong, Minchan
Citation	大阪大学, 2018, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/69551
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　Jeong Minchan　）	
論文題名	Studies on Novel Catalysts for Methane and Toluene Combustion by using Ceria-Zrconia Based Solid Solutions as a Promoter （セリア−ジルコニア系固溶体を助触媒として用いた新規なメタンおよびトルエン燃焼触媒に関する研究）

論文内容の要旨

本研究では、メタン及びトルエンを従来よりも低温で分解できる高活性触媒を創成するため、低温でも優れた酸素貯蔵放出特性を有する助触媒の創成及び、助触媒の酸化物イオン伝導性、酸化還元能が酸素貯蔵放出特性及び触媒活性に与える影響の解明を行った。本研究で得られた主な成果を以下に記す。

第1章では、低温におけるメタンの完全燃焼を目指し、これまで報告されている PdO/CeO_2-ZrO_2-Bi_2O_3/γ-Al_2O_3のBi_2O_3の代わりにFe_2O_3及びNiOを固溶させたところ、助触媒の酸素貯蔵放出特性が向上し、PdO/CeO_2-ZrO_2-Fe_2O_3/γ-Al_2O_3及びPdO/CeO_2-ZrO_2-NiO/γ-Al_2O_3触媒において、それぞれメタンを280°C及び300°Cという低温で完全燃焼できることがわかった。特に、PdO/CeO_2-ZrO_2-Fe_2O_3/γ-Al_2O_3におけるメタン完全燃焼温度は、これまで報告された触媒の中で最も低温であった。

第2章では、助触媒の酸素貯蔵放出特性に影響を与える要因、及び酸素貯蔵放出特性と触媒活性の相関関係を明確にするため、様々なイオンを導入したCeO_2-ZrO_2-MO_x（M = Bi, Sn, Ni, Fe）複合酸化物について比較を行った。酸素放出温度には、電子伝導性（酸化還元能）の方が酸化物イオン伝導性よりも強く、また、酸素貯蔵量には、酸化物イオン伝導性の方が電子伝導性（酸化還元能）よりも強く影響することがわかった。さらに、触媒活性には酸素放出温度及び酸素貯蔵量がともに影響していることが明らかになった。

第3章では、高い酸素貯蔵放出特性を有するCeO_2-ZrO_2-NiO複合酸化物をPtとともにγ-Al_2O_3に担持した Pt/CeO_2-ZrO_2-NiO/γ-Al_2O_3触媒を創成し、トルエン燃焼活性評価を行った。Pt/CeO_2-ZrO_2-NiO/γ-Al_2O_3触媒は、従来触媒よりも高い活性を示し、これまで報告された触媒の中で最も低温である100°Cでのトルエン完全燃焼を実現した。

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　Jeong Minchan　）			
論文審査担当者		（職）	氏　名
	主 査	教授	今中　信人
	副 査	教授	町田　憲一
	副 査	教授	能木　雅也
	副 査	教授	古澤　孝弘
	副 査	教授	桑畑　進
	副 査	教授	井上　豪
	副 査	教授	櫻井　英博
	副 査	教授	林　高史
	副 査	教授	南方　聖司
	副 査	教授	宇山　浩

論文審査の結果の要旨

申請者はメタン及びトルエンをできる限り低温で分解できる高活性触媒を創成することを目指し、格子内から効率的に酸素を供給できる材料を助触媒として用いることで、従来の触媒よりも高い活性を有する触媒の創成に成功している。ここで申請者は、自動車排ガス用助触媒に用いられているCeO_2–ZrO_2に第3成分としてFe_2O_3やNiOを導入することで、低価数イオン（$Fe^{3+/2+}$, $Ni^{3+/2+}$）導入に伴う酸化物イオン欠陥形成による酸化物イオン伝導性の向上、および$Fe^{3+/2+}$や$Ni^{3+/2+}$の価数変化による酸化還元特性の向上により、低温で効率的に酸素を供給できることを見出している。これらを助触媒とし、酸化活性を示すPdOとともに高比表面積のγ-Al_2O_3に担持したPdO/CeO_2–ZrO_2–Fe_2O_3/γ-Al_2O_3およびPdO/CeO_2–ZrO_2–NiO/γ-Al_2O_3触媒を創成することにより、従来の触媒(Pd/CeO_2–ZrO_2 : 550°Cで完全燃焼)より低温の280°C及び300°Cでのメタンの完全燃焼を実現している。

また申請者は、助触媒の酸素貯蔵放出特性に影響を与える要因、及び酸素貯蔵放出特性と触媒活性の相関関係を明確にするため、様々なイオンを導入したCeO_2–ZrO_2–MO_x（M = Bi, Sn, Ni, Fe）複合酸化物について比較を行った。その結果、酸素放出温度には、電子伝導性（酸化還元能）の方が酸化物イオン伝導性よりも強く、また、酸素貯蔵量には、酸化物イオン伝導性の方が電子伝導性（酸化還元能）よりも強く影響することを明らかにしている。さらに、触媒活性には酸素放出温度及び酸素貯蔵量がともに影響していることを明確にしている。

さらに申請者は、低温におけるトルエンの完全燃焼を目指し、高い酸素貯蔵放出特性を有するCeO_2–ZrO_2–NiO複合酸化物をPtとともにγ-Al_2O_3に担持したPt/CeO_2–ZrO_2–NiO/γ-Al_2O_3触媒を創成したところ、これまで報告された触媒(Pt/CeO_2–ZrO_2/γ-Al_2O_3 : 140°Cで完全燃焼)の中で最も低温である100°Cでトルエンを完全燃焼できることを見出している。

以上のように本論文では、高い酸素貯蔵放出特性を有する助触媒を創成することにより、これまで報告された触媒の中で最も低温である280°Cでメタンを、100°Cでトルエンを完全燃焼することができる触媒の創成に成功している。低温での完全燃焼は消費電力低減の観点から実用化に向けての必須課題であることから、本論文は産業的な観点においても非常に有意義な研究成果である。また、助触媒の伝導性、酸素貯蔵放出特性、および触媒活性の相関関係について体系的にまとめた本論文は、触媒分野での先駆的な研究と位置づけることができ、その学術的な意義は極めて高いと判断する。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。