

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Selective catalytic reduction of nitrogen oxide by hydrocarbon over Cu/zeolite catalysts
著者(和文)	LeeKyungseok
Author(English)	Kyungseok Lee
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11227号, 授与年月日:2019年6月30日, 学位の種別:課程博士, 審査員:佐藤 進,花村 克悟,小酒 英範,店橋 護,野崎 智洋
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11227号, Conferred date:2019/6/30, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

(博士課程)

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	Kyungseok Lee		
論文審査 審査員		氏名	職名		氏名	職名
	主査	佐藤 進	准教授	審査員	野崎 智洋	教授
	審査員	花村 克悟	教授			
		小酒 英範	教授			
	店橋 護	教授				

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は“Selective catalytic reduction of nitrogen oxide by hydrocarbon over Cu/zeolite catalysts” (Cu ゼオライト触媒を用いた炭化水素による窒素酸化物の選択的触媒還元) と題し、以下の 6 章より構成される。

第 1 章 “Introduction” (緒論) では、強化される排出ガス規制に対して、ディーゼル自動車に搭載される排気後処理技術の NOx 還元率向上の重要性を示した上で、これまでの排気後処理技術について概論するとともに、本論文の目的を述べている。すなわち、ディーゼル自動車用排気後処理技術として多く用いられる LNT (Lean NOx Trap), Urea-SCR (Urea Selective Catalytic Reduction) には、それぞれ燃費悪化、尿素水タンク追加による車載スペース減少といった課題があり、それらを解決し得る後処理技術の開発が必要であることを指摘している。その解決策の一つとして本論文では HC-SCR (Hydrocarbon Selective Catalytic Reduction) に着目し、排気管に追加した噴射装置を用いて燃料を還元剤として供給する Active 型 HC-SCR ではなく、エンジン排気中の炭化水素成分を還元剤とする Passive 型 HC-SCR について、低温触媒活性を持つ Cu ゼオライト触媒と組み合わせた Passive 型 HC-SCR の有用性を示すために、ゼオライト種、Cu 担持量、還元剤種、ガス成分濃度が HC-SCR の NOx 還元特性に及ぼす影響を明らかにすることが本論文の目的であると述べている。

第 2 章 “Textual Characterization of Prepared Catalysts” (調製した触媒の表面組織特性評価) では、本論文で NOx 還元特性を評価する 3 種類のゼオライト (SSZ-13, ZSM-5, BETA) の仕様を決定し、含浸法を用いて 1~10 wt% の範囲において Cu を担持して調製した後に、実排気を模擬した環境下での NOx 還元特性試験に資する Cu ゼオライト触媒の基本特性を明らかにしている。すなわち、UV-vis DRS, FE-SEM といった手法を用いて調製した Cu ゼオライト触媒の表面組織特性を分析した結果、Cu 担持量の増加は BET 比表面積を減少させゼオライト表面上の細孔を塞いでしまうこと、また Cu 粒径分布がゼオライト種により異なることを明らかにしている。

第 3 章 “Catalytic Performance of C₃H₆-SCR” (C₃H₆-SCR の触媒性能) では、第 2 章で調製した Cu ゼオライト触媒について、O₂, CO, CO₂, H₂O が共存する条件下で C₃H₆ を還元剤とする触媒性能試験を行い、HC/NOx 比率が NOx 還元特性に及ぼす影響を明らかにしている。すなわち、3 種類の Cu ゼオライト触媒のうち、C₃H₆ 分子を吸着可能な細孔径を持つ Cu/ZSM-5 を用い Cu 担持量 2 wt% とした場合に、触媒入口温度 360 °C の条件において NOx 還元率が最も高い 68.5 % を示すこと、またゼオライト種に関わらず HC/NOx 比率と NOx 還元率が比例関係にあることを明らかにしている。

第 4 章 “Catalytic Performance of C₄H₁₀-SCR” (C₄H₁₀-SCR の触媒性能) では、第 3 章と同じ 3 種類の Cu ゼオライト触媒と試験装置を用い、同条件において n-C₄H₁₀ を還元剤とする触媒性能試験を行い、HC/NOx 比率が NOx 還元特性に及ぼす影響を明らかにし、還元剤の違いによる触媒性能の差を論じている。すなわち、C₃H₆ を還元剤として用いた場合と同様に、Cu 担持量 2 wt% の Cu/ZSM-5 を用いた場合に触媒入口温度 465 °C の条件において NOx 還元率が最も高い 74 % を示すものの、細孔径が n-C₄H₁₀ 分子より小さい Cu/SSZ-13 の場合には NOx 還元が得られないことを明らかにしている。

第 5 章 “Effects of Coexistent Gases and Hydrothermal Aging” (共存ガスおよび水熱劣化の影響) では、O₂, CO₂ の濃度が HC-SCR 反応に及ぼす影響を明らかにしている。すなわち、これまで行った実験条件を基に、O₂ 濃度、CO₂ 濃度を変化させた触媒性能試験を行った結果、C₃H₆, n-C₄H₁₀, いずれの還元剤を用いた場合にも、NOx 還元率は変化しないものの、O₂ 濃度が増加した場合には NOx 還元反応活性温度が低下し、一方で、CO₂ 濃度が増加した場合には上昇することを明らかにしている。また実機における触媒の熱劣化を検討するため、一定濃度の H₂O を含有する高温気体に長時間曝露することで Cu ゼオライト触媒を水熱劣化させ、その触媒性能試験を行った結果、劣化前と比較して NOx 還元率が著しく低下すること、水熱劣化によりゼオライト細孔構造の崩壊、ゼオライトの結晶化度低下が起こることを明らかにしている。

第 6 章 “Conclusions” (結論) では、各章で得られた結論を総括している。
以上要するに、本論文は Cu ゼオライト触媒を用いた HC-SCR の NOx 還元特性を明らかにし、ディーゼル自動車用排気後処理技術としての Passive 型 HC-SCR の有用性と課題を示したものであり、工学上、工業上貢献するところが大きい。よって本論文は博士 (工学) の学位論文として十分な価値があるものと認められる。

注意: 「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。