

2005年 2月 18日

環境生命工学専攻	学籍番号	983834	指導教官氏名	水野 彰 教授
申請者氏名	松井 良彦			桂 進司 助教授
				田中 三郎 教授

論文要旨 (博士)

論文題目	非平衡プラズマと触媒併用技術を用いた燃焼排ガス浄化
------	---------------------------

ディーゼル内燃機関は耐久性、熱効率等で他の内燃機関よりも優れておりその有用性が認められている。一方で、ディーゼル排ガス中に含まれる窒素酸化物（以下 NO_x ）や微粒子（以下PM）による大気汚染が深刻であり、その浄化技術の開発が急務である。ディーゼルエンジンはガソリンエンジンに比べ、排ガス中の酸素濃度が高いこと、燃焼排ガス温度が低いことから、ガソリンエンジン排ガスに有効な NO_x 除去触媒を利用することが難しい。今後、環境問題などの観点より、内燃機関の熱効率は向上せざるを得ない方向に進むことは確実であり、燃焼排ガス温度はますます低下することが予想できる。ガス温の低下により熱励起を必要とする従来触媒の使用は極めて困難となる。また、熱効率を向上させるため排ガスは酸素リッチとなることが予想され、従来の排ガス処理触媒では対応が難しいことがあげられる。よって、本研究では熱励起に替わる触媒活性化手法として非平衡プラズマを提案する。非平衡プラズマと触媒の併用による排ガス処理を目的とし、低温、酸素リッチ条件下における排ガス処理試験を行った。模擬排ガス及び実排ガスを用いてPMの捕集及び酸化除去、さらに NO_x とPMの同時除去について実験を行った。

温度条件 150°C では活性を持たない白金触媒をペレット充填 PDC 反応器に充填し、模擬ガス、 C_2H_4 添加を用い、高電圧を印加することで NO_x 除去性能が飛躍的に向上し、SIE 値 45J/L において 62% の NO_x 除去率が得られた。この白金触媒の活性化原因を探るため 150°C の処理試験において、放電で生成する O_3 、アルデヒド類を添加剤として用い試験を行った結果、白金触媒を活性化させる主要因ではないことが分かった。温度条件 150°C において、 $\text{Pt/Al}_2\text{O}_3$ 、 TiO_2 、 $\text{Ag/Al}_2\text{O}_3$ 、 Ag/TiO_2 、 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ ペレット触媒と放電反応器の併用試験の結果、 NO_x 除去活性は $[\text{Pt/Al}_2\text{O}_3, \text{TiO}_2] \gg [\text{Ag/Al}_2\text{O}_3, \text{Al}_2\text{O}_3] > [\text{Ag/TiO}_2]$ の順となった。

放電反応器の粒子捕集性能を評価するため、DC、AC、もしくはパルス高電圧を用い試験を行った結果、ペレット充填型反応器を用いた室内微粒子捕集試験では、DC とパルス放電が SIE 値 $10\text{J/L} \sim 20\text{J/L}$ にて 95% の高い捕集率を得た。さらにアルミナ充填 PDC 反応器では、PM のほとんどを捕集できることを示し、SIE 値 50J/L （電気出力の 5% ）以下のエネルギーにおいて捕集した PM を CO_2 へ酸化除去できることを発見した。このときの圧力損失は 500Pa 以下であり、エンジンの燃焼に影響はないものと考えられる。

白金触媒充填 PDC 反応器に C_2H_4 を添加剤として用い実験を行ったところ、白金触媒では実排ガス除去に対する高い活性が得られない低温条件（ 150°C ）においても、高電圧を印加することで NO_x から N_2 や N_2O への還元反応が起こることを発見した。同時に、カーボンマスを検討し、排ガス中のPM、CO、HCが CO_2 、 H_2O へ酸化されていることを確認した。またナノパーティクルと呼ばれる直径 50nm 程度の微粒子の捕集効果も確認した。この時の投入エネルギーは発電機電気出力の $3\% \sim 7\%$ 程度となった。

プロセスの高効率化及びハニカム触媒への適用を考慮し、触媒全面及び内部に放電を形成する手法について検討を行った。セラミックスプレートと直流及び交流高電圧を用いて実験を行った結果、セラミックス表面、内部の至る所において放電を発生させ全面放電が起こることを見出した。また $10\mu\text{m} \sim 100\mu\text{m}$ 程度の空隙内において放電が可能であることを発見した。

触媒調製法の一つである含浸法の乾燥、焼結プロセスにおいて電界を付加する新たな調製法を試みた。この触媒が従来の含浸法のもの比べ、プラズマと触媒によるガス処理に対して差異が出ることを発見した。さらにペレット触媒、フィルタ触媒を同様の方法で作成したところ、電界付加によって触媒物質分布に偏りが起こることを発見した。