
酸素存在下における NOx の CO による 選択還元

(13650841)

平成13年度～平成14年度科学研究費補助金
基盤研究(C)(2) 研究成果報告書

平成15年6月

研究代表者 田中庸裕

(京都大学大学院工学研究科助教授)

京都大学図書



9810059187

附属図書館

科研

2002

315

はしがき

本報告書は、一酸化炭素を還元剤として酸素存在下 NO_x を還元する銅触媒を開発し、その還元の機構ならびに、金属酸化物表面上での銅の挙動について研究を行ったものをまとめたものである。結果として、アルミナに高分散担持された原子状の銅種が銅反応に有効であることが見いだされた。この銅種は、一酸化炭素、水素などにより金属状態にまで還元されることがなく、さらに、高温排気のみで二価から一価に還元される、いわゆる、自動還元が起こることが見いだされた。一価から二価の価数変化により、酸化窒素を還元し、二価から一価への価数変化に伴い一酸化炭素を酸化することがわかった。本研究に対し、平成13年度と平成14年度に科学研究費補助金が交付された。

研究課題 酸素存在下における NO_x の CO による選択還元

研究組織

研究代表者：田中庸裕（京都大学大学院工学研究科助教授）

研究分担者：船引卓三（京都大学大学院工学研究科教授）

研究分担者：人見 穰（京都大学大学院工学研究科助手）

交付決定額

（金額単位：千円）

	直接経費	間接経費	合計
平成13年度	2,200	0	2,200
平成14年度	1,300	0	1,300
総計	3,500	0	3,500

研究発表

(1) 学会誌等

- 1) Hirofumi Aritani, Hiroyuki Yamada, Takashi Yamamoto, Tsunehiro Tanaka and Seiichiro Imamura
XANES Study of Li-MgO and Li-La₂O₃-MgO Catalysts for Oxidative Coupling of Methane
J. Synchr. Rad., 2001, **8**, 593 - 595.
- 2) Yasutaka Nagai, Takashi Yamamoto, Tsunehiro Tanaka, Satohiro Yoshida, Takamasa Nonaka, Tokuhiko Okamoto, Akihiko Suda, Masahiro Sugiura
Local Structure Analysis of Ce_{0.5}Zr_{0.5}O₂ Mixed Oxides by XAFS
J. Synchrotron Radiat., 2001, **8**, 616 - 618.
- 3) Takashi Yamamoto, Tsunehiro Tanaka, Takahiro Matsuyama, Takuzo Funabiki and Satohiro Yoshida
Structural Analysis of La/Al₂O₃ Catalysts by La K-edge XAFS
J. Synchr. Rad., 2001, **8**, 634 - 636.
- 4) Takao Masuda, Naohiro Fukumoto, Masahiro Kitamura, Shin R. Mukai, Kenji Hashimoto, Tsunehiro Tanaka and Takuzo Funabiki
Modification of Pore Size of MFI-type Zeolite by Catalytic Cracking of Sillane and Application to Preparation of H₂-Separating Zeolite Membrane
Micropor. Mesopor. Mater., 2001, **48**, 239 - 245.
- 5) Takashi Yamamoto, Tsunehiro Tanaka, Takahiro Matsuyama, Takuzo Funabiki, Satohiro Yoshida
Alumina-Supported Rare-Earth Oxides Characterized by Acid-Catalyzed Reactions and Spectroscopic Methods
J. Phys. Chem. B, 2001, **105**, 1908 - 1916.
- 6) Tomohiro Ishizuka, Takashi Yamamoto, Takeshi Murayama, Tsunehiro Tanaka and Hideshi Hattori
Effect of Calcium Sulfate Addition on the Activity of the Absorbent for Dry Flue Gas Desulfurization
Energy & Fuels, 2001, **15**, 438 - 443.

- 6) Hirofumi Aritani, Shuichi Nishimura, Masato Tamai, Takashi Yamamoto, Tsunehiro Tanaka and Atsushi Nakahira
Local Structure of Framework Iron in Fe-Substituted Al-Mordenites by Fe K Edge XAFS
Chem. Mater., 2002, **14**, 562-567.
- 7) Takashi Yamamoto, Tsunehiro Tanaka, Sosuke Suzuki, Ryoji Kuma, Kentaro Teramura, Yuan Kou, Takuzo Funabiki, Satohiro Yoshida
NO Reduction with CO in the Presence of O₂ over Cu/Al₂O₃ (3) —Structural Analysis of Active Species by Means of XAFS and UV/VIS/NIR Spectroscopies —
Topic. Catal., 2002, **18**, 113-118.
- 8) Yasutaka Nagai, Takashi Yamamoto, Tsunehiro Tanaka, Satohiro Yoshida, Takamasa Nonaka, Tokuhiko Okamoto, Akihiko Suda, Masahiro Sugiura
X-ray absorption fine structure analysis of local structure of CeO₂ — ZrO₂ mixed oxides with the same composition ratio (Ce/Zr = 1)
Catal. Today, 2002, **74**, 225-234.
- 9) Takashi Yamamoto, Tsunehiro Tanaka, Ryoji Kuma, Sosuke Suzuki, Fumiaki Amano, Yutaka Shimooka, Yoshiumi Kohno, Takuzo Funabiki, and Satohiro Yoshida
NO Reduction with CO in the Presence of O₂ over Al₂O₃-supported and Cu-based Catalysts
Phys. Chem. Chem. Phys., 2002, **4**, 2449 - 2458.
- 10) Yoshiteru Yazawa, Nobuyuki Takagi, Hisao Yoshida, Shin-ichi Komai, Atsushi Satsuma, Tsunehiro Tanaka, Satohiro Yoshida and Tadashi Hattori
The support effect on propane combustion over platinum catalyst: control of the oxidation-resistance of platinum by the acid strength of support materials
Appl. Catal. A:General, 2002, **233**, 103-112.
- 11) Israel E. Wach, Yongsheng Chen, Jih-Mirn-Jehng, Laura E. Briand and Tsunehiro Tanaka
Molecular structure and reactivity of the Group V metal oxides
Catal. Today, 2003, **78**,13-24.
- 12) Yongsheng Chen, Jose J. G. Fierro, Tsunehiro Tanaka and Israel E. Wachs
Molecular structure and reactivity of the Group V metal oxides
J. Phys. Chem. B, 2003, in press.

(2) 口頭発表等

- 1) 天野史章, 鈴木崇介, 山本 孝, 田中庸裕, 船引卓三
Al₂O₃上に高分散担持されたCu種のキャラクタリゼーション
第88回触媒討論会(別府市, 2001年10月11日)
- 2) 山本 孝, 森 樹久, 田中庸裕, 船引卓三
メソポーラスシリカFSM-16の固体酸性質における細孔径依存性
第88回触媒討論会(別府市, 2001年10月12日)
- 3) 田中庸裕, 寺村謙太郎, 可児正也, 船引卓三
アルミナ担持バナジウム酸化物光触媒上でのシクロヘキサンの液相酸化
日本化学会第81回春季年会(東京, 2002年3月29日)
- 4) Tsunehiro Tanaka, Takuzo Funabiki and Israel E. Wachs
Structure of Supported Tantalum Oxide Species at a Low Loading Studied by XANES
4th International Symposium on Group Five Compounds
(トレド市, 2002年4月9日)
- 5) 織田明博, 山本 孝, 田中庸裕, 船引卓三
WO_x-ZrO₂触媒の構造と超強酸性の発現
第90回触媒討論会(浜松市, 2002年9月20日)
- 6) 天野史章, 山本 孝, 田中庸裕, 船引卓三
Al₂O₃上に高分散担持されたCu種の自動還元
第90回触媒討論会(浜松市, 2002年9月20日)
- 7) 田中庸裕, 織田明博, 山本 孝, 船引卓三
WO_x-ジルコニア触媒の酸性発現についての充分条件
触媒学会「ナノ粒子研究会」第一回研究発表会
(吹田市, 2002年11月18日)
- 8) Fumiaki Amano, Tsunehiro Tanaka and Takuzo Funabiki
Reducibility of atomically dispersed Cu species supported on Al₂O₃
The Third International Workshop on Oxide Surface
(札幌市, 2003年1月30日)

9) 天野史章、田中庸裕、船引卓三
酸素存在下におけるCOによるNO還元反応ミアルミナ上担持Cu²⁺触媒の活性銅種
日本化学会第83春季年会（東京，2003年3月20日）

10) 天野史章、田中庸裕、船引卓三
Al₂O₃上に高分散担持された自動還元性Cu種とNOおよびO₂との相互作用
第91回触媒討論会（横浜市，2003年3月27日）

NO Reduction with CO in the Presence of Cu²⁺ on Alumina
Analysis of Active Species of Cu²⁺ on Alumina by XPS
Topic Catal. 2002, 14, 113 (東京，2002年10月10日） 触媒討論会

Yasuda, Naoki, Takahashi, Yumiko, Yamamoto, Shirohiko, and Shimada, Kenji
NO Reduction by CO on Cu²⁺ Species on Alumina
Key-Word: NO, CO, Cu²⁺, Alumina, XPS, IR, TPD
Topic Catal. 2002, 14, 113 (東京，2002年10月10日） 触媒討論会

Structure of supported lanthanum oxide species at a low loading studied by XPS
Topic Catal. 2002, 14, 113 (東京，2002年10月10日） 触媒討論会

Yasuda, Naoki, Takahashi, Yumiko, Yamamoto, Shirohiko, and Shimada, Kenji
NO Reduction by CO on Cu²⁺ Species on Alumina
Key-Word: NO, CO, Cu²⁺, Alumina, XPS, IR, TPD
Topic Catal. 2002, 14, 113 (東京，2002年10月10日） 触媒討論会

NO Reduction by CO on Cu²⁺ Species on Alumina
Key-Word: NO, CO, Cu²⁺, Alumina, XPS, IR, TPD
Topic Catal. 2002, 14, 113 (東京，2002年10月10日） 触媒討論会

Yoshizumi, Yasuhiro, Nonaka, Masahiko, and Shimada, Kenji
The support effect on propane oxidation by Cu²⁺ species on Al₂O₃
Key-Word: Propane, Cu²⁺, Al₂O₃, XPS, IR, TPD
Appl. Catal. A: General 2002, 22, 13-24 (横浜市，2002年9月9日） 触媒討論会

Israel, E. Wachs, Yongchang Chen, and J. G. Ferry
Molecular structure and reactivity of Cu²⁺ species on Al₂O₃
Key-Word: Cu²⁺, Al₂O₃, XPS, IR, TPD
Catal. Today 2002, 76, 13-24 (横浜市，2002年11月18日） 触媒討論会

Yongchang Chen, Jose J. G. Ferris, Takahiro Tanaka, and Israel E. Wachs
Molecular structure and reactivity of Cu²⁺ species on Al₂O₃
Key-Word: Cu²⁺, Al₂O₃, XPS, IR, TPD
J. Phys. Chem. B 2002, 106, 11333-11341 (横浜市，2002年11月18日） 触媒討論会