

# Pr と La を添加した CeO<sub>2</sub> の格子酸素の反応性とディーゼルパティキュレート酸化活性

石原達己・大石哲也・濱元誠司

九州大学大学院工学研究院 〒819-0395 福岡市西区元岡 744

現在、地球温暖化が問題となっており、自動車からの CO<sub>2</sub> (二酸化炭素) の削減が強く望まれている。自動車の中でも、ディーゼル車はガソリン車と比べ、エネルギー効率がよく CO<sub>2</sub> の排出量が少ないという利点があり、CO<sub>2</sub> の放出量削減に期待がもたれている。しかし、ディーゼル車には PM (Particulate Matter) と呼ばれる炭素質微粒子を発生する課題があり、交通量の多い都市部では深刻な大気汚染問題となっている。PM の除去方法として、図 1 に示すような DPF と呼ばれるセラミックフィルターにより PM を捕集し、捕獲した PF を DPF に担持した触媒により酸化するという方法が検討されている。熱効率を考慮した場合、除去は排ガス温度 (250~300°C) 下で連続的に行うことが理想であり、低温での PM 除去可能な触媒の開発が望まれている。一方で、PM の酸化は固体と固体の反応であり、どこ酸素が使われるか反応機構が十分わかっていない。

我々の従来の研究において、Pr、La を添加した Pr<sub>6</sub>O<sub>11</sub> 系酸化物が比較的高い炭素の燃焼活性を示すことを見出し、とくに Bi を添加した Pr<sub>4.8</sub>Bi<sub>1.2</sub>O<sub>11</sub> に CeO<sub>2</sub> を担持した触媒が 250°C という従来に比べて低い温度でも酸化が可能なことを見出した。本研究ではバルク酸素の酸化反応への寄与について検討し、反応に活性な酸素の状態の分析を行なった。

この系では気相に酸素が無くても PM の酸化を進めることができ、格子の酸素の反応への関与が示唆された。図 2 には、Ce 系複合酸化物における気相 <sup>18</sup>O<sub>2</sub> と格子酸素 <sup>16</sup>O との交換速度係数の温度依存性を示した。CeO<sub>2</sub> では低温で格子酸素と気相酸素との交換反応はほとんど進行しなかったが、Pr 及び La を同時に添加すると低温でも格子酸素との交換反応が進行し始め、かつ交換反応の見かけの活性化エネルギーは大きく低下することがわかった。そこで、本触媒は格子酸素を用いて、低温から PM を酸化可能な興味ある反応機構で PM 酸化除去が可能な触媒になることが明確になった。

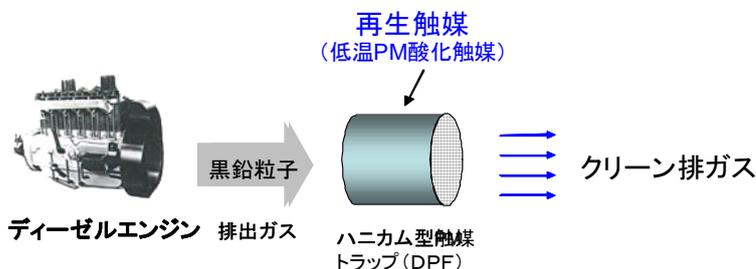


図 1 PM 酸化触媒の応用例

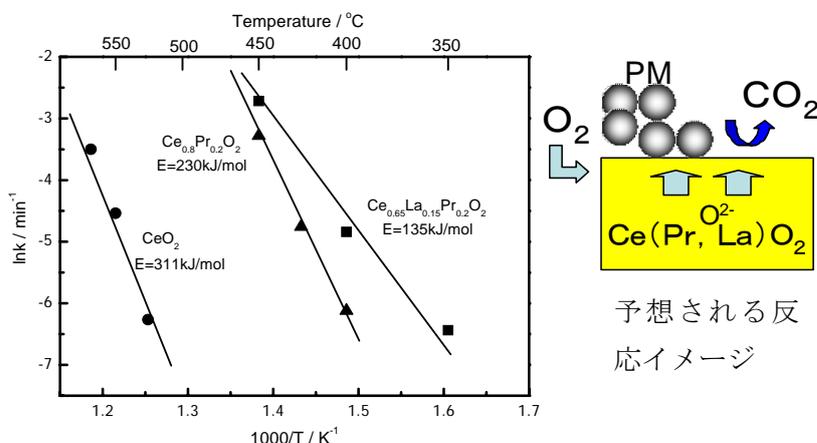


図 2 Ce 系複合酸化物の同位体交換反応における <sup>16</sup>O<sup>18</sup>O 生成のアレニウスプロットと反応イメージ