

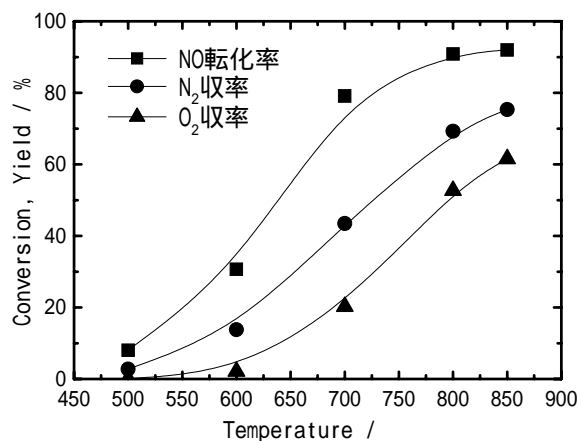
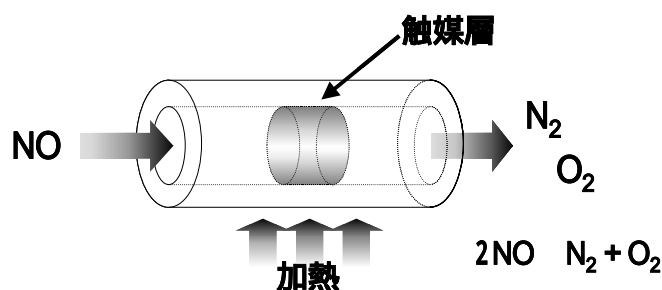
Ba(La)Mn(Mg)系複合酸化物を用いる NO の直接分解反応

(九州大学大学院工学研究院応用化学部門) 新名祐介・矢野宏明・松本広重・石原達己

人間活動における主要なエネルギー源は化石燃料といわれる石油、石炭、天然ガス等である。これらを燃焼し、電力等の二次エネルギーに変換する際には地球環境破壊の原因とされる二酸化炭素や窒素酸化物(NOx)の発生が避けられない。特に、NOx(NO、NO₂など)は人体に有害であり、光化学スモッグや酸性雨などの原因となっている。現行のNO削減技術としてはアンモニアを還元剤とした選択接触還元法(SCR: Selective Catalytic Reduction)が用いられている。この方法は非常に分解効率が高く、耐久性にも優れているが、アンモニアの危険性を考慮すると自動車排気ガス浄化プロセスへの適用は不可能である。一方、三元触媒は酸素共存下でのNO除去が行えない。

NOの直接分解とはNOから直接、環境に無害なN₂(窒素)とO₂(酸素)に分解する反応である。NOからN₂+O₂という直接分解は熱力学的に十分、進行可能な反応であり、SCR法のように還元剤の必要がないので最も理想的なNO除去法であると言える。しかし、現在までにH₂OとO₂が共存する実用的な条件でNOに対し良好な直接分解活性を示す触媒は見出されていない。NOの直接分解触媒としてCu-ZSM-5が有名であるが、Co系などのペロブスカイトも高温ではNOを直接分解可能な触媒として報告されている。本研究では従来NOの直接分解反応に活性が低いと言われているMn系ペロブスカイトに着目し、Mnとしては異常原子価に相当する4価のMnからなるBaMnO₃への添加物により、NOの直接分解活性の向上を検討した。

直接分解反応はNOガスを加熱した触媒層に送入して行った。反応は高温であるほど良く進行した。BaMnO₃のみではほとんどNOの直接分解活性を示さないが、Baサイト及びMnサイトへの添加物によってNOの直接分解活性は大きく変化し、特にMnサイトへMgを20mol%添加するとNOの直接分解に高活性になることを見出した。この触媒では図に示すようにNOの直接分解反応が600から進行し、850ではN₂への転化率は約80%となった。この触媒では作動温度が高いことから、O₂及びH₂Oが共存してもNOの転化率の低下は大きくなく、またSV=50000h⁻¹という実条件に近い反応条件下でも比較的高いN₂及びO₂の生成速度が得られた。本触媒は作動温度が高いものの、長時間にわたって高い活性が安定に維持されるので、新しいNO分解触媒として注目される。本触媒は現在深刻な課題となっているディーゼルエンジンのみでなく水素ロータリーなど未来型のエンジンへも適用が期待でき、今後注目される脱硝技術になると考えている。



Ba_{0.8}La_{0.2}Mn_{0.8}Mg_{0.2}O₃におけるNO直接分解反応の温度依存性 (1%NO, W/F=3.0 g s cm⁻³)