$SrFeO_3$系複合酸化物の NO 直接分解活性に及ぼす添加物効果

(九州大学大学院工学研究院応用化学部門) 新名祐介・松本広重・石原達己

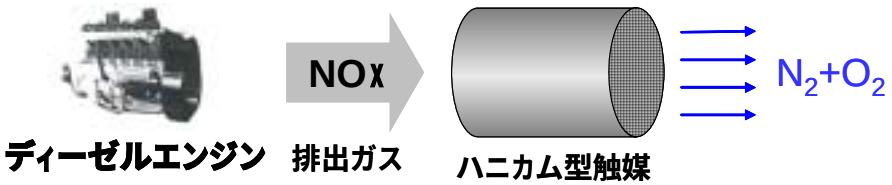
近年、地球規模の環境破壊が深刻化しており、とくに大都市圏での NOx による大気汚染は深刻な状況にある。とりわけ、ディーゼル機関からの NOx の発生量は増加の傾向にある。ディーゼル排ガス中には NOx とともに高濃度の酸素が共存することから現在の排ガス処理技術が適用できない。そこで現在、尿素を用いる選択的還元の応用も検討されてはいるが、尿素自体も環境に有害であり、さらに優れた脱 NOx 技術の確立が切望されている。

NO の直接分解は、NO から直接 N_2 と O_2 に分解する反応であり、とくに還元剤を用いないことから、経済性、環境性に優れる夢の NO 処理技術である。NO の直接分解反応は熱力学的には進行可能な反応ではあるが、生成する O_2 による被毒効果により、酸素及び H_2O の共存する雰囲気で、安定した活性を示す触媒が見出されていない。

我々は従来の研究より、温度は高くなるものの、実排ガスに近い条件下でも比較的高い NO の分解活性が得られるペロブスカイト型酸化物について、NO 分解反応を検討してきた。その結果、従来は NO の直接分解に低い活性しか示さないと言われていた $BaMnO_3$ が、Mn サイトへ Mg のような添加物を用いると高い NO 直接分解活性を示すことを報告した。しかし、Mn は環境に必ずしも調和してないことから、さらに触媒としても環境に調和した、Fe 系のペロブスカイトについて検討し、$SrFeO_3$ という Fe の異常原子価の 4 価を取る化合物が、NO の直接分解に高い活性を示すことを見出した。

表 1 には $SrFeO_3$ において添加物が NO の直接分解活性に及ぼす影響を検討した結果を示した。本来、$SrFeO_3$ は不安定で NO の直接分解活性は低いが、表に示すように添加物を用いて活性と安定性を向上でき、とくに Mg を添加した触媒で比較的高い NO の N_2 への分解活性が得られた。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して維持されることから、新しい脱硝技術になり得る触媒系である。本触媒に関しては今後さらに活性を向上させるための詳細な検討が必要ではあるが、Fe のように我々の身近にある元素を用いて比較的高い NO 分解活性を実現できたことは特筆すべきことであり、将来的にこの成果が環境保全技術の一翼を担えることを期待している。

Table.1 $SrFeO_3$におけるNO直接分解活性に及ぼす添加物効果

$SrFe_{0.7}M_{0.3}O_3$ におけるM	転化率(%) NO	収率(%) N_2	O_2	N_2O	NO_2
Mg	86.4	47.3	23.4	0.0	31.5
Sn	79.1	42.7	19.0	0.0	30.1
Ni	76.1	41.6	17.2	0.0	29.5
Ce	77.7	41.3	14.2	0.0	31.8
Mn	62.4	27.0	5.2	0.0	28.6
Ga	60.1	25.5	4.3	0.0	27.9
Co	48.2	17.3	2.6	0.0	22.8
Ru	29.6	13.2	1.7	0.0	14.0
Ir	26.1	11.1	1.6	0.0	12.3
Si	11.1	3.8	0.5	0.0	5.3
Ge	6.8	3.9	0.4	0.0	3.2

反応温度：850°C　NO：1%　W/F=3.0g.s.cm^{-3}