

LaFeO₃型ペロブスカイトによるNO_x吸蔵-還元反応

○上田 厚*1・山田 裕介*1・勝木 将利*2・氏原 ゆう子*2・

藤井 秀治*2・田浦 昌純*2・栗山 信宏*1

*1：(独)産業技術総合研究所 ユビキタスエネルギー研究部門

*2：三菱重工業(株) 先進技術研究センター

連絡先：a-ueda@aist.go.jp (上田 厚)

本研究では、Pd 含有 LaFeO₃型ペロブスカイト (“intelligent”触媒¹⁾ の一種) を NO_x 吸蔵-還元反応²⁾ に適用する (NO_x 吸蔵還元型触媒に変える) ことを試みた。“intelligent”触媒 (2004 年 ダイハツ工業(株)) と NO_x 吸蔵還元型三元触媒 (1994 年 トヨタ自動車(株)) は自動車からの排ガスを浄化するために開発された触媒で、「日本の自動車技術 240 選」にも選定されている ((社)自動車技術会 <http://www.jsae.or.jp/>)。Pd 含有 LaFeO₃型ペロブスカイトによる NO_x 吸蔵-還元反応が実現できれば、触媒に必要な貴金属使用量の削減 (省貴金属化) と燃料消費量の低減 (低燃費化) が期待できる。

LaFeO₃型ペロブスカイト構造 (図 1) の(1)A サイトを La³⁺→Ba²⁺で一部置換する、(2) B サイトを Fe³⁺→Nb⁵⁺で一部置換することにより、NO_x 吸蔵還元型触媒として優れた機能を発現することを見出した。NO_x 吸蔵-還元反応に有効な触媒の設計概念²⁾は、Pt/Al₂O₃系触媒に塩基性金属 (例えば Ba 等) 添加して NO_x 吸蔵能を持たせることである。ペロブスカイト結晶構造(ABO₃)の A サイトと B サイトに導入できる元素には、そのイオン半径値による制限がある。A サイトに La, Ba, B サイトに Fe, 添加元素 (V, Nb, Ta) および Pd を含む触媒群について検討した結果、Nb が添加元素として有効であることを見出した。La_{0.7}Ba_{0.3}Fe_{0.97}Pd_{0.03}O₃ および LaFe_{0.97}Pd_{0.03}O₃は、本リーン-リッチ切替 (酸化-還元雰囲気) 条件下では NO_x 吸蔵-還元に対して活性に乏しいが、(La_{0.7}Ba_{0.3})(Fe_{0.776}Nb_{0.194}Pd_{0.03})O₃ 上では NO_x 除去率は大きく向上した (図 2、NO_x 除去率 41~47%、反応温度 250~300°C)。Nb 添加によりリーンからリッチ切替直後に見られる吸着 NO_x の吐き出しが抑制されたことから、Nb の役割は La³⁺→Ba²⁺により生じた電荷不足を Fe³⁺→Nb⁵⁺により補償することで B サイト金属イオンの redox (酸化-還元) 能を回復させ、吸着 NO_x と還元剤(CO)との反応速度を増加させたと推定している。更なる研究により触媒性能の向上を図り、本触媒の実用化を目指したい。

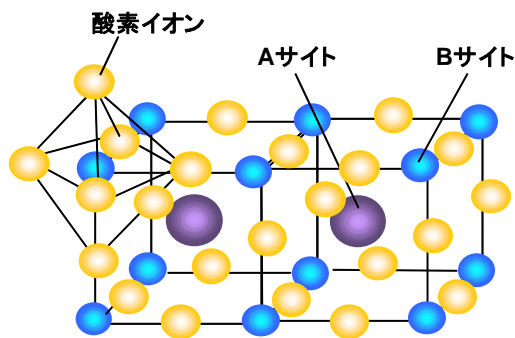


図 1 LaFeO₃型ペロブスカイトの構造

A サイトは La³⁺, Ba²⁺, B サイトは Fe³⁺, Nb⁵⁺, Pd²⁺

本研究は、経済産業省 地球環境保全等試験研究に基づく委託研究「粗悪燃料を用いる船用および固定発生源からの大気汚染物質除去」により得られた成果である。

References

1) Y. Nishihata et al., *Nature* **418** (2002) 164

2) N. Takahashi et al., *Catalysis Today* **27** (1996) 63

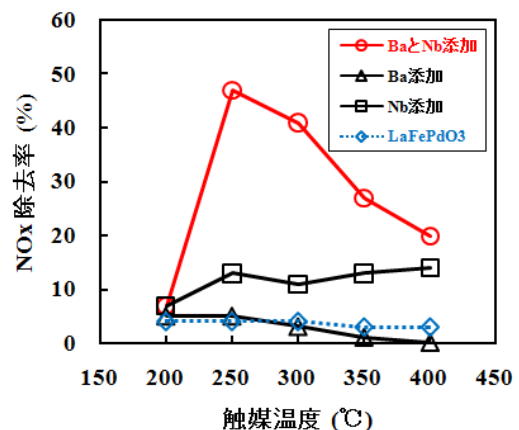


図 2 (La_{0.7}Ba_{0.3})(Fe_{0.776}Nb_{0.194}Pd_{0.03})O₃ の脱硝性能

(○) (La_{0.7}Ba_{0.3})(Fe_{0.776}Nb_{0.194}Pd_{0.03})O₃,

(△) (La_{0.7}Ba_{0.3})(Fe_{0.97}Pd_{0.03})O₃,

(□) (La)(Fe_{0.776}Nb_{0.194}Pd_{0.03})O₃,

(◇) (La)(Fe_{0.97}Pd_{0.03})O₃,

リーンガス(54 秒間)-リッチガス(6 秒間)の切替,

空間速度は $6 \times 10^4 \text{ cm}^3 \text{ h}^{-1} \text{ g-catalyst}^{-1}$