

第4章 総括

本研究では、地球温暖化物質である亜酸化窒素 (N_2O) の分解反応における高性能触媒を探求してきた結果、次のような知見が得られた。

1. N_2O 単独分解反応

① N_2O 分解反応は、

- ・使用する担体の種類やその予備焼成温度
- ・触媒活性金属として用いたロジウムの前駆体溶液の種類や添加金属の種類
- ・触媒の調製法（イオン交換法および含浸法）
- ・反応直前の最終的な前処理条件（処理ガスの種類や処理温度）

などの諸条件により、その様相が極端に変わり得る非常に敏感な反応であることが明らかとなった。

② 分解活性の序列は、



(Rh/NaY 以外の触媒はすべて含浸法による調製)

であり、Rh1 原子当たりの分解能力を示す TOF を比較した場合の序列もこれとほぼ同じであった。

特に、Rh/USY, Rh/Al₂O₃ については、現在までに報告されている高活性触媒と同等あるいはそれ以上の性能を有することが明らかとなった。

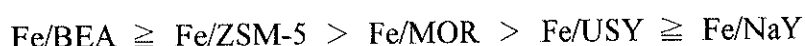
③ 上記触媒の Rh 分散度を比較した場合、Rh が高分散している触媒は分解活性も高いという傾向はあるものの、活性序列と Rh 分散度の序列は必ずしも一致してはいなかった。このことから、 N_2O 分解活性は Rh 分散度のみに依存するわけではなく、金属と担体との相互作用による金属微粒子の構造変化や電子状態変化、さらには金属と担体の界面の働きなどによる影響を受けていると考えられる。

ただし、同一担体から成る触媒群で比較した場合には、活性序列と Rh 分散度の序列との間に相関が見られた。

2. 共存ガス効果

イオン交換法により調製された Fe/ZSM-5(IE)触媒上では、酸素過剰下でも C₃H₆ 供給により N₂O 分解活性が向上した。このとき、不飽和 C_xH_y (3133 cm⁻¹) および部分酸化物 C_xH_yO_z とみなされる吸着種が生成しており、その生成挙動と活性向上との間に相関が見られることから、これら吸着種が活性向上の主要因（反応中間体）である可能性が高いと考えられる。

さらに、イオン交換により調製されたその他の触媒においても、C₃H₆ 供給による活性の向上が確認されており、その活性序列は、



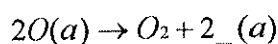
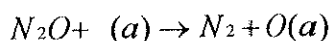
であった。そして、いずれの触媒においても、反応中に不飽和 C_xH_y の吸着が確認されており、その吸着量の序列が活性序列と一致することから、この不飽和 C_xH_y が最も注目すべき重要な吸着種であると考えられる。

N₂O 分解活性の共存ガスによる過渡応答実験の結果、Fe/ZSM-5(IE)は、耐水性および耐 SO₂ 性も有していることがわかった。NO の供給により活性が低下するものの、供給を切れれば再び活性が回復することもわかった。また、Fe/ZSM-5(IE), Fe/BEA(IE)は、酸素過剰下での N₂O 分解反応において、C₃H₆ 以外の還元剤 (CH₄, C₃H₈, CO) を用いた場合でも、N₂O 分解活性を向上させることがわかった。

これらのことから、イオン交換法により調製した Fe 触媒は、実用上、N₂O 分解除去能力ならびに耐久性のある有望な触媒になる可能性を秘めていると考えられる。

3. N₂O 分解メカニズム

酸化ロジウム (Rh₂O₃)、Rh/USY 上の N₂O 分解反応における酸素の脱離機構は、Langmuir-Hinshelwood 機構であることが明らかとなった。



反応熱が酸素の脱離を促進していると考えられる。