

Pr₆O₁₁系酸化物におけるディーゼルパーティキュレートの酸化特性(3)
 (九州大学大学院工学研究院応用化学部門) 濱元誠治・大石哲也・石原達己

現在、世界中で地球温暖化が問題となっており、自動車からのCO₂(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CO₂の生成量が少ないという利点があり、CO₂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問題となっている。PMの除去方法として、DPFと呼ばれるフィルターによりPMを捕集し、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。

我々の従来の研究において、Pr₆O₁₁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_{4.8}Bi_{1.2}O₁₁にCeO₂を担持した触媒が最も高い活性を示すことを見出した。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するとともに、種々の調製法で、CeO₂のナノサイズ粒子を作成し、粒経効果を検討した。

触媒活性は、触媒と混合した炭素の燃焼開始温度(T_i)により評価した。図1には、Pr_{4.8}Bi_{1.2}O₁₁上に担持したCeO₂の各粒径とT_iの関係を示している。担持したCeO₂の粒径が小さくなるにつれ、T_iは低温側にシフトし炭素がより低温で燃焼していることを見出した。とくに、粒径20nm以下での酸化活性の向上は、表面エネルギーが増加したことにより、反応性が向上したことが原因であると考えられる。XPSを用いた燃焼反応前後の酸素の状態、PrおよびCeの酸化還元反応の変化を検討したところ、反応には格子酸素の寄与が示唆され、Prは3価が増加するにもかかわらず、Ceは酸化数が変化しなかった。そこで、図2に示すように、CeO₂は助触媒的にPrの酸素の放出に関与し、Pr₆O₁₁のバルク酸素が放出され炭素の反応に関与していると考えている。CeO₂を微粒子化したことで、酸化開始温度は210°Cと低温化できることがわかった。

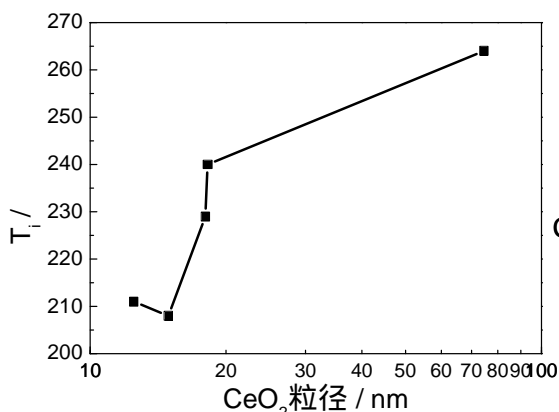


図1 燃焼活性のCeO₂粒径依存性

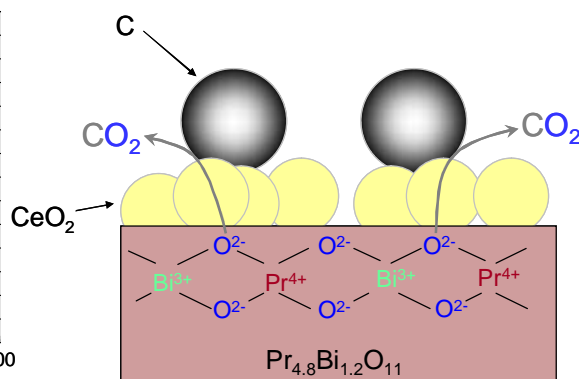


図2 触媒による炭素の燃焼イメージ