

三元触媒からの N_2O 生成に及ぼす HC の影響

前橋工科大学 学生員 伊藤 鉦一郎○

正員 滝川 哲夫

1. はじめに

N_2O は、オゾン層破壊及び地球温暖化に寄与し、その防止対策が注目されている。近年、三元触媒車が N_2O の新しい発生源として注目されているが、三元触媒車における N_2O 発生過程は極めて複雑であり、その発生機構はいまだにほとんど解明されていない。ガソリンエンジンの排気ガス中には NO_x 、 CO 、 H_2 、 HC 、 O_2 等ガスが共存し、三元触媒からの N_2O 生成に関与すると指摘されている。その中、 HC は CH_4 等 80 個以上の成分から構成されており、三元触媒におけるこれらの成分の反応挙動は他の共存ガスと異なると言える。そこで、本研究は、ガソリン車用三元触媒を固定した石英ガラス製反応器を用い、車排ガス中の NO_x 、 O_2 及び HC を模擬し、反応温度、ガス組成を種々変化させ、高温触媒反応実験を行い、炭化水素が N_2O 生成におよぼす影響を検討した。

2. 実験装置および方法

図1は本研究に用いた実験装置の概略を示す。反応器は、反応部と予熱部から構成されており、反応が

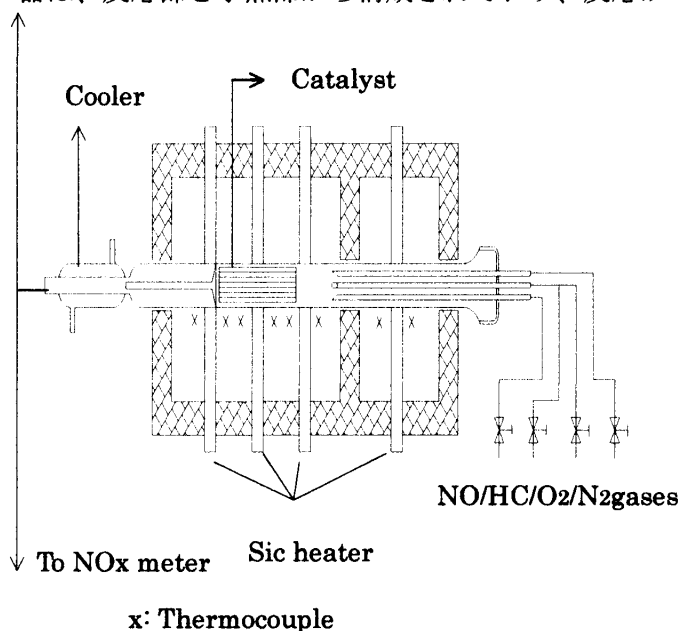


図1. 実験装置

できる限り等温で起こるように、輻射加熱方式を工夫すると共に反応管外周は、耐火及び保温レンガにより二重断熱した。反応管は、石英ガラス製であり、反応部に新品の三元触媒（直径 18mm、長さ 15 mm）を固定した。反応管出口での反応を停止させるため、

反応部より下流の部分には、急冷却部を設置した。

予熱段階で反応が生じるのを避けるため、反応ガスはそれぞれ反応管予熱部に挿入した異なる余熱管を通して一定の温度に余熱され、反応部に導入された。実験は入口ガス組成、反応温度を種々変化させることにより行った。実験の際、各反応管入口濃度が設定値になるように個々のコントロールバルブにて流量を調整し、さらに反応部の温度が定常になった後、 N_2O 、 NO 、 CH_4 、 C_2H_6 、 C_2H_4 、 C_3H_8 、及び C_3H_6 の反応管出口濃度を測定した。その中、 N_2O はガスクロマトグラフ（ECD）、 CH_4 、 C_2H_6 、 C_2H_4 、 C_3H_8 、及び C_3H_6 はガスクロマトグラフ（FID）、 NO は NO_x メーターにてそれぞれ測定し、反応ガスの温度は、K 熱電対により測定した。

実験は表1に示した条件のもとで行った。

表1. 実験条件

NO_x :600ppm	O_2 :0.45~0.7%
CH_4 :400ppm	C_2H_6 :400ppm
C_2H_4 :400ppm	C_3H_8 :400ppm
C_3H_6 :800	SV :30000h ⁻¹
温度: 100~600℃	

キーワード：三元触媒、反応温度、 N_2O

連絡先：群馬県前橋市小相木町626-1 第一ひいらぎマンション306号

（電話：027-252-5428、FAX：027-265-3837）

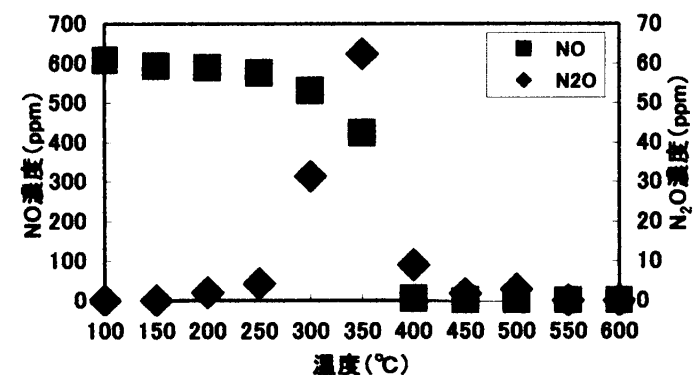


図2 HC/NO/O₂/N₂系においてN₂O生成に及ぼす温度の影響

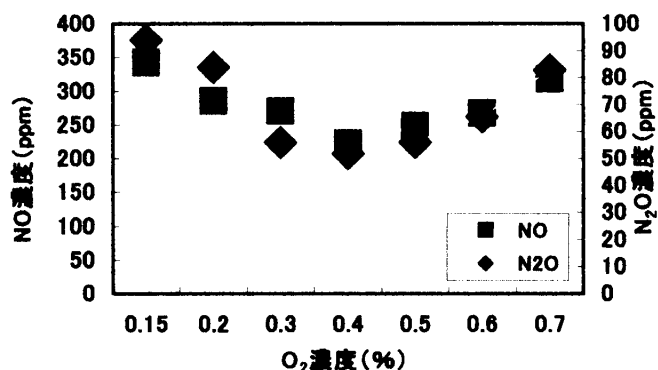


図3 HC/NO/O₂/N₂系においてN₂O生成に及ぼすO₂濃度の影響

3. 実験結果及び考察

図2は表1に示した実験条件中、O₂濃度を約0.45%に固定し、反応温度を100～600℃の範囲で段階的变化させ、高温触媒反応実験を行った実験結果である。図に示したように、NO濃度は温度300℃以下ではほぼ一定値を示した。300℃以上では温度の上昇と共に低下し、400℃以上ではほぼ完全に分解された。また、NOの分解と共にN₂Oが生成された。その濃度は350℃において最大濃度65ppmに達し、350℃以上では逆に温度の上昇と共に低下した。C₂H₄、C₂H₆、C₃H₆及びC₃H₈濃度もNO濃度変化と同じ傾向を示したが、CH₄濃度はほぼ一定の値を示した。また、各成分の分解速度順はC₃H₆>C₂H₄>C₃H₈>C₂H₆>CH₄であった。以上の結果からHCはNOの分解を促進し、分解されたNOの一部がN₂Oへ変換され、N₂Oが生成しやすい温度範囲が存在することが分かった。

図3は表1に示した実験条件中、反応温度を350℃に固定し、O₂濃度を0.15～0.7%の範囲で段階的に変化させ、高温触媒反応実験を行った結果である。

図に示したように、O₂濃度変化に対して、NO及びN₂O濃度変化は同じ傾向を示している。即ち、NO及びN₂O濃度はO₂濃度0.4%以下では、O₂濃度の増加と共に低下したが、O₂濃度0.4%以上では逆にO₂濃度の増加と共に増加した。また、C₂H₄及びC₃H₆濃度は、O₂濃度の増加とともに大きく減少したが、それ以外の炭化水素の濃度の変化は小さかった。以上の結果から、アルケン（C₂H₄、C₃H₆）がアルカン（CH₄、C₂H₆、C₃H₈）よりN₂Oの生成に寄与し、N₂Oが生成しやすいO₂濃度範囲が存在することが分かった。

4. まとめ

三元触媒からのN₂O生成に及ぼすHCの影響を検討した。HCはNO分解を促進するが、その一部がN₂Oに変換される。また、NOからのN₂O生成は反応温度及びO₂濃度に影響され、N₂Oが生成されやすい反応温度及びO₂濃度範囲が存在する。