

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2017-189719

(P2017-189719A)

(43) 公開日 平成29年10月19日(2017.10.19)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
BO1J 29/24 (2006.01)	BO1J 29/24 ZABA	3G091
BO1J 29/46 (2006.01)	BO1J 29/46 A	4D148
BO1J 37/30 (2006.01)	BO1J 37/30	4G169
BO1D 53/86 (2006.01)	BO1D 53/86 228	
FO1N 3/10 (2006.01)	FO1N 3/10 A	

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 11 頁)

(21) 出願番号 特願2016-78687 (P2016-78687)
 (22) 出願日 平成28年4月11日 (2016.4.11)

(出願人による申告) 平成26年度 国立研究開発法人
 科学技術振興機構、戦略的イノベーション創造プログラム「エネルギーキャリア」委託研究、産業技術力強化法
 第19条の適用を受ける特許出願

(71) 出願人 504132272
 国立大学法人京都大学
 京都府京都市左京区吉田本町36番地1
 (74) 代理人 110000796
 特許業務法人三枝国際特許事務所
 (72) 発明者 江口 浩一
 京都府京都市左京区吉田本町36番地1
 国立大学法人京都大学内
 (72) 発明者 松井 敏明
 京都府京都市左京区吉田本町36番地1
 国立大学法人京都大学内
 (72) 発明者 室山 広樹
 京都府京都市左京区吉田本町36番地1
 国立大学法人京都大学内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 アンモニア燃焼触媒

(57) 【要約】

【課題】 従来よりも、より高濃度のアンモニアを、より高温で燃焼させてもNO_xの発生を抑制することが可能なアンモニア燃焼触媒を提供すること。

【解決手段】 ゼオライトにパラジウム及び銅を担持したアンモニア燃焼触媒。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

ゼオライトにパラジウム及び銅を担持したアンモニア燃焼触媒。

【請求項 2】

前記パラジウム及び前記銅の担持量は、モル比でパラジウム / 銅 = 1 / 50 ~ 1 / 1 である請求項 1 に記載のアンモニア燃焼触媒。

【請求項 3】

前記パラジウム及び前記銅の担持量は、モル比でパラジウム / 銅 = 1 / 25 ~ 1 / 5 である請求項 1 に記載のアンモニア燃焼触媒。

【請求項 4】

前記ゼオライトはプロトン型ゼオライトである、請求項 1 ~ 3 の何れか 1 項に記載のアンモニア燃焼触媒。

【請求項 5】

前記プロトン型ゼオライトにおけるプロトンの少なくとも一部が銅イオン交換されている、請求項 4 に記載のアンモニア燃焼触媒。

【請求項 6】

前記パラジウムは、アンモニア燃焼触媒全体に対して 0.1 ~ 10 質量% 含まれる請求項 1 ~ 5 の何れか 1 項に記載のアンモニア燃焼触媒。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、アンモニア燃焼触媒に関する。

【背景技術】

【0002】

従来より、ディーゼルエンジン搭載車はガソリンエンジン搭載車に比べて (CO_2) 排出量が少なく、地球温暖化の抑制に寄与し得る存在として認められてきた。その一方でディーゼルエンジンはその燃焼過程において、人体の粘膜への刺激が強く気管支炎等の発症を引き起こす要因となったり酸性雨の原因になったりする窒素酸化物 (NO_x) を多く排出するという欠点を有しており、排ガスを如何に浄化するかというのが長年の課題であった。

【0003】

ディーゼルエンジン由来の排ガスを浄化する方法として、例えば尿素 SCR システムのような、アンモニアを還元剤として使用し、 NO_x を窒素と水に変換する方法が採用されている。しかしこの場合、余剰の未反応アンモニアを、例えば窒素や水等の無害な成分へと効率的に変換する必要があった。そしてこのための方法の一つとして、例えばアンモニア酸化触媒を利用したアンモニア燃焼反応が注目を浴びている。

【0004】

一方、特に近年エネルギー問題が活発に議論されるようになってきた中で、燃料電池が注目を浴びている。燃料電池は水素などの燃焼反応を電気化学的に行うことにより外部回路に電力を得るものであり、水から酸素と水素を得る電気分解の逆の反応を利用し、燃料の持つ自由エネルギーを直接電気エネルギーに交換するものである。中でも固体酸化物形燃料電池 (Solid Oxide Fuel Cell / 以下、単に SOFC という。) は、約 700 ~ 1000 という高い発電温度から、各燃料電池の中でも、特に高い効率が達成されると期待されており、活発に研究がすすめられている。一方で水素の取り扱いには、安全面における懸念もあった。

【0005】

こうした懸念を払拭するため、水素を含む化合物を水素のキャリアとして利用する試みがなされている。例えば、アンモニアは常温・常圧では気体であるが、加圧による液化が容易であり、単位体積当たりの水素含有量が非常に多いという特徴を有している。また肥料の原料として大量に製造されているため、新たな設備投資が不要であり、大量に備蓄し

10

20

30

40

50

ても在庫リスクが少ない。さらにはSOFCの発電温度とアンモニア分解反応温度は近い。そこでアンモニアを分解させることにより得た水素から、電力を得ることができることに鑑みれば、SOFCにアンモニアの分解反応を組み合わせたシステムを構築することにより、効率的に電力を得ることが可能になると考えられる。このような場合においても、未反応のアンモニアが排ガス中に含まれるため、無害な成分への変換が必要となる。そのため、より優れたアンモニア燃焼触媒を利用したアンモニア燃焼反応を介することにより、環境に優しく、より効率的に電力を供給することの可能なシステムを提供することが可能になると考えられる。

【0006】

アンモニア燃焼触媒に求められる性質として、アンモニアを燃焼させた際に副生する NO_x を極力抑制できることがあげられる。上述の通り NO_x は人体や環境に悪影響を及ぼすため、アンモニアの燃焼に際し、 NO_x の発生を極力抑制する必要がある。つまりアンモニアを燃焼した結果、 NO_x よりもより高比率で窒素に変換できる、つまり窒素選択性の高いアンモニア燃焼触媒が求められている。

10

【0007】

このような性質を有するアンモニア燃焼触媒として、例えば特許文献1では、ゼオライト、貴金属、及び卑金属化合物を含有するアンモニア燃焼触媒が開示されている。しかし特許文献1に記載されているアンモニア酸化触媒は、その明細書段落[0031]、[0032]に記載されているように、約5~20ppmという低濃度のアンモニアを、約200~450という温度で燃焼させている。これでは、例えばディーゼルエンジンに適用される尿素SCRシステムにより排出されるアンモニアの除去には適用可能でも、より高濃度のアンモニアをより高温で処理する、アンモニアを燃料としたSOFCの排ガス浄化に適用することはできなかった。そこで、より高濃度のアンモニアを、より高温で燃焼させても NO_x の発生を抑制することが可能なアンモニア燃焼触媒の開発が望まれていた。

20

【先行技術文献】

【特許文献】

【0008】

【特許文献1】特表2010-540230号公報

【発明の概要】

30

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

上記のような事情に鑑み、本発明の目的とするところは、従来よりも、より高濃度のアンモニアを、より高温で燃焼させても NO_x の発生を抑制することが可能なアンモニア燃焼触媒を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0010】

本発明者らは上記目的を解決すべく鋭意研究を重ねた結果、アンモニア燃焼触媒において、ゼオライトにパラジウム及び銅を担持させることで、従来品よりも高濃度のアンモニアであっても、より高温で、なおかつ NO_x の発生を抑制しながら燃焼させることが可能なアンモニア燃焼触媒を提供できることを見出し、本発明を完成するに至った。

40

【0011】

即ち、本発明は、

- 〔1〕ゼオライトにパラジウム及び銅を担持したアンモニア燃焼触媒、
- 〔2〕前記パラジウム及び前記銅の担持量は、モル比でパラジウム/銅 = 1/50 ~ 1/1である前記〔1〕に記載のアンモニア燃焼触媒、
- 〔3〕前記パラジウム及び前記銅の担持量は、モル比でパラジウム/銅 = 1/25 ~ 1/5である前記〔1〕に記載のアンモニア燃焼触媒、
- 〔4〕前記ゼオライトはプロトン型ゼオライトである、前記〔1〕~〔3〕の何れかに記載のアンモニア燃焼触媒、

50

〔 5 〕前記プロトン型ゼオライトにおけるプロトンの少なくとも一部が銅イオン交換されている、前記〔 4 〕に記載のアンモニア燃焼触媒、

〔 6 〕前記パラジウムは、アンモニア燃焼触媒全体に対して 0 . 1 ~ 1 0 質量%含まれる前記〔 1 〕 ~ 〔 5 〕の何れかに記載のアンモニア燃焼触媒、
に関する。

【発明の効果】

【 0 0 1 2 】

以上にしてなる本発明に係るアンモニア燃焼触媒によれば、従来よりも、より高濃度のアンモニアを、より高温で燃焼させても NO_x の発生を抑制することが可能なアンモニア燃焼触媒を提供することができる。

10

【図面の簡単な説明】

【 0 0 1 3 】

【図 1】固定床常圧流通式反応装置の概略図。

【図 2】アンモニア転化率測定結果。

【図 3】比較例 1 の生成ガス濃度。

【図 4】実施例 1 の生成ガス濃度。

【図 5】実施例 2 の生成ガス濃度。

【図 6】実施例 3 の生成ガス濃度。

【図 7】実施例 4 の生成ガス濃度。

【図 8】実施例 5 の生成ガス濃度。

20

【図 9】実施例 6 の生成ガス濃度。

【図 1 0】実施例 7 の生成ガス濃度。

【図 1 1】実施例 8 の生成ガス濃度。

【発明を実施するための形態】

【 0 0 1 4 】

(アンモニア燃焼触媒)

本発明に係るアンモニア燃焼触媒は、例えばアンモニアを燃料とした SOFC や、ディーゼルエンジンにおける尿素 SCR システムの下流でアンモニアの除去を行うためのアンモニア燃焼反応に使用することが可能であり、ゼオライトにパラジウム及び銅を担持させて構成される。

30

【 0 0 1 5 】

使用するゼオライトとしては、公知の種類 of ゼオライトを広く採用することができる。例えば、国際ゼオライト協会の構造委員会により定義された ABW、ACO、AEI、AEN、AET、AFG、AFI、AFN、AFO、AFR、AFS、AFT、AFX、AFY、AHT、ANA、APC、APD、AST、ASV、ATN、ATO、ATS、ATT、ATV、AWO、AWW、BCT、BEA、BEC、BIK、BOF、BOG、BPH、BRE、BSV、CAN、CAS、CDO、CFI、CGF、CGS、CHA、-CHI、-CLO、CON、CZP、DAC、DDR、DFO、DFT、DOH、DON、EAB、EDI、EMT、EON、EPI、ERI、ESV、ETR、EUO、EZT、FAR、FAU、FER、FRA、GIS、GIU、GME、GON、GOO、HEU、IFR、IHW、IMF、ISV、ITE、ITH、ITR、ITW、IWR、IWS、IWV、IWW、JBW、JRY、KFI、LAU、LEV、LIO、-LIT、LOS、LOV、LTA、LTF、LTL、LTN、MAR、MAZ、MEI、MEL、MEP、MER、MFI、MFS、MON、MOR、MOZ、MRE、MSE、MOS、MTF、MTN、MTT、MTW、MWW、NAB、NAT、NES、NON、NPO、NSI、OBW、OFF、OSI、OSO、OWE、-PAR、PAU、PHI、PON、RHO、-RON、RRO、RSN、RTE、RTH、RUT、RWR、RWY、SAO、SAS、SAT、SAV、SBE、SBN、SBS、SBT、SFE、SFF、SFG、SFH、SFN、SFO、SFS、SGT、SIV、SOD、SOF、SOS、SSF、SSY、STF、STI、STO、STT、STW、-SVR、SZR、TER、THO

40

50

、TOL、TON、TSC、TUN、UEI、UOS、UOZ、USI、UTL、VET、VFI、VNI、VSV、WEI、-WEN、YUG、ZONといった中から単独または2種以上を併せて使用することが可能であり、特にこれらに限定されない。また日本触媒学会の参照触媒としては、例えばJRC-Z5-90H、JRC-Z5-90NA、JRC-Z-HM20、JRC-Z-HM90、JRC-Z-HY5.5等を使用することができ、勿論これらに限定されるわけではない。また、これらの中でもプロトン型のゼオライトを採用することにより、 NO_x ではなく窒素への変換率の高い、つまり窒素選択性の高いアンモニア燃焼触媒を得ることができる。

【0016】

アンモニア燃焼触媒中のゼオライトの量は、ゼオライトの種類により適宜決定すればよいが、金属成分の粒径が大きくなならない程度のゼオライトが必要である。

10

【0017】

パラジウムの担持量としては、アンモニア燃焼触媒全体に対して、0.1~10.0質量%とするのが好ましく、0.1~3.0質量%とするのがより好ましい。パラジウムの担持量を0.1質量%以上とすることにより、アンモニア燃焼時における良好な燃焼活性を獲得することができる。逆に10質量%よりパラジウムを多量に担持させても、それ以上に良好な燃焼活性は期待できない。よってコスト面から、パラジウムの担持量は10.0質量%以下とするのが好ましい。

【0018】

尚、上述のごとく、含浸により、ゼオライトにパラジウムや銅を担持させる方法を採用する場合には、パラジウムを担持させるための溶液と銅を担持させるための溶液を混合した混合液を用意し、その後ゼオライトに該混合液を含浸し、適宜蒸発乾固させ、焼成することによりアンモニア燃焼触媒を得てもよいし、上述の方法に基づき、ゼオライトにパラジウムを担持させる工程と、ゼオライトに銅を担持させる工程とを別途に設けてもよい。この際の両工程は、いずれが先であっても問題はない。それ以外では、パラジウムを担持させるための溶液に銅塩やその水和物を併せて溶解し、ゼオライトに含浸し、蒸発乾固、焼成することによりアンモニア燃焼触媒を得てもよく、勿論これらに限定されるわけではない。

20

【0019】

銅の担持量としては、モル比でパラジウム/銅=1/50~1/1が好ましく、1/25~1/5がより好ましく、1/20~1/10がさらに好ましい。銅に対するパラジウムの相対的な担持量がこれらの範囲内とすることにより、窒素選択性の高いアンモニア燃焼触媒を得ることができる。また、銅を担持させたことにより、特にプロトン型のゼオライトにおいては、ゼオライト中のプロトンの少なくとも一部が銅イオン交換されているものと考えられる。

30

【0020】

以上にしてなる本発明に係るアンモニア燃焼触媒は、300 付近の低温領域においても十分なアンモニア転化率と窒素選択性を示すだけでなく、500 以上の高温領域においても優れた窒素選択性を示す。つまり、500~800 という高温領域も含む300~800 での使用が可能である。

40

【0021】

(アンモニア燃焼触媒の製造方法)

本発明のアンモニア燃焼触媒を製造する方法としては特に限定されず、例えば、パラジウムや銅を含有する溶液をゼオライトに含浸する工程1、及び前記溶液に含浸させたゼオライトを焼成する工程2を含む製造方法があげられる。

【0022】

工程1は、パラジウムや銅を含有する溶液をゼオライトに含浸する工程である。

【0023】

パラジウムを含有する溶液としては特に限定はないが、例えばパラジウム源としてPd(NO_2)₂(NH_3)₂、PdCl₂、Pd(CH_3COO)₂等を、それらが可溶な

50

水、メタノール、エタノール等の溶媒に溶解した溶液を使用することが考えられる。溶液中のパラジウム濃度は、使用するパラジウム源や溶媒に応じて適宜決定すればよい。

【0024】

銅を含有する溶液としても特に限定はなく、例えば銅塩やその水和物、より具体的には $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ 、 CuCl_2 、 CuSO_4 、 $\text{Cu}(\text{CH}_3\text{COO})_2$ を、それらが可溶性の水、メタノール、エタノール等の溶媒に溶解した溶液を使用することが考えられる。溶液中の銅濃度は、使用する銅源や溶媒に応じて適宜決定することができる。

【0025】

上記したパラジウムや銅を含有する溶液は、別途に調整してもよいし、双方の溶媒として同一の溶媒を使用可能な場合には、同一の溶媒にパラジウム及び銅を溶解してもよく、特に限定はない。これらの溶液を調製した後、該溶液をゼオライトに含浸する。パラジウムを含有する溶液と銅を含有する溶液を別途に調製した際には、各溶液を別途にゼオライトに含浸してよいし、各溶液の混合液をゼオライトに含浸してもよい。含浸時間は、ゼオライトの種類や溶液の種類に応じ、適宜決定すればよい。

10

【0026】

工程2は、上記のように溶液に含浸したゼオライトを焼成する工程である。焼成温度としては、前駆体の分解や金属成分の凝集という観点から、400～600 が好ましい。焼成時間としては、同様の観点から、30分～1時間が好ましい。

【0027】

また、工程1と工程2の間に、溶媒を蒸発乾固させる工程を有していてもよい。蒸発乾固させる際の温度としては、60～150 が好ましい。蒸発乾固させる時間は、その設定温度に応じ、適宜設定すればよい。蒸発乾固させるための方法としては、公知の方法を広く採用することができ、例えばスチームバス、ウォーターバス、オイルバス等を利用して行うことが可能である。

20

【0028】

また、工程1においてパラジウムを含有する溶液と銅を含有する溶液とを別途に調製した際には、各溶液を混合してゼオライトに含浸し、工程2において焼成してもよいし、各溶液の何れか一方をゼオライトに含浸してから工程2において焼成し、その後もう一方の溶液を含浸してさらに工程2において焼成してもよく、特に限定はない。もちろんこの際には、何れの溶液を先にゼオライトに含浸してもよい。

30

【0029】

以上、本発明の実施形態について説明したが、本発明はこうした例に何ら限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲において種々なる形態で実施し得ることは勿論である。

【実施例】

【0030】

以下、実施例に基づき、本発明の実施形態をより具体的に説明するが、本発明がこれらに限定されるものではない。

【0031】

40

(実施例1)

田中貴金属工業株式会社製 $\text{Pd}(\text{NH}_3)_2(\text{NO}_2)_2$ の硝酸溶液に、和光純薬工業株式会社製 $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ を、 $\text{Pd}(\text{NH}_3)_2(\text{NO}_2)_2 : \text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ のモル比が1:3となるように添加して得られた溶液を、東ソー株式会社製のプロトン型ゼオライト JRC-Z-HM20(5) に含浸した。尚、溶液は、そこに含有される Pd の量が、最終目的物であるアンモニア燃焼触媒の1重量%となる量を調製し、使用した。その後、80 のスチームバス上で蒸発乾固し、さらに空气中400、1時間焼成し、アンモニア燃焼触媒を得た。

【0032】

50

(実施例2)

$\text{Pd}(\text{NH}_3)_2(\text{NO}_2)_2 : \text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ のモル比を 1 : 5 とした
 以外は、実施例 1 と同様にしてアンモニア燃焼触媒を得た。

【0033】

(実施例 3)

$\text{Pd}(\text{NH}_3)_2(\text{NO}_2)_2 : \text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ のモル比を 1 : 10 とした
 以外は、実施例 1 と同様にしてアンモニア燃焼触媒を得た。

【0034】

(実施例 4)

$\text{Pd}(\text{NH}_3)_2(\text{NO}_2)_2 : \text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ のモル比を 1 : 20 とした
 以外は、実施例 1 と同様にしてアンモニア燃焼触媒を得た。

10

【0035】

(実施例 5)

$\text{Pd}(\text{NH}_3)_2(\text{NO}_2)_2 : \text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ のモル比を 1 : 30 とした
 以外は、実施例 1 と同様にしてアンモニア燃焼触媒を得た。

【0036】

(実施例 6)

$\text{Pd}(\text{NH}_3)_2(\text{NO}_2)_2 : \text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ のモル比を 1 : 40 とした
 以外は、実施例 1 と同様にしてアンモニア燃焼触媒を得た。

【0037】

(実施例 7)

東ソー株式会社製のプロトン型ゼオライト JRC-Z-HM20(5) の代わりに日産
 ズードヘミー触媒株式会社製のプロトン型ゼオライト JRC-Z5-90H を使用し、
 $\text{Pd}(\text{NH}_3)_2(\text{NO}_2)_2 : \text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ のモル比を 1 : 10 とした以
 外は実施例 1 と同様にしてアンモニア燃焼触媒を得た。

20

【0038】

(実施例 8)

東ソー株式会社製のプロトン型ゼオライト JRC-Z-HM20(5) の代わりに日産
 ズードヘミー触媒株式会社製のナトリウム型ゼオライト JRC-Z5-90NA を使用し
 、 $\text{Pd}(\text{NH}_3)_2(\text{NO}_2)_2 : \text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ のモル比を 1 : 10 とした
 以外は実施例 1 と同様にしてアンモニア燃焼触媒を得た。

30

【0039】

(比較例 1)

$\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ を全く添加しなかった以外は実施例 1 と同様にして、アン
 モニア燃焼触媒を得た。

【0040】

上記実施例及び比較例の概略を、下記表 1 に示す。

【0041】

【表 1】

	ゼオライト	Pd添加量	Pd : Cu
実施例 1	プロトン型 JRC-Z-HM20(5)	1w%	1 : 3
実施例 2	プロトン型 JRC-Z-HM20(5)	1w%	1 : 5
実施例 3	プロトン型 JRC-Z-HM20(5)	1w%	1 : 10
実施例 4	プロトン型 JRC-Z-HM20(5)	1w%	1 : 20
実施例 5	プロトン型 JRC-Z-HM20(5)	1w%	1 : 30
実施例 6	プロトン型 JRC-Z-HM20(5)	1w%	1 : 40
実施例 7	プロトン型 JRC-Z5-90H	1w%	1 : 10
実施例 8	ナトリウム型 JRC-Z5-90NA	1w%	1 : 10
比較例 1	プロトン型 JRC-Z-HM20(5)	1w%	Cu 無添加

40

【0042】

(アンモニア酸化反応活性試験)

50

図1に示すような固定床常圧流通式反応装置を用いてアンモニア酸化反応活性試験を行った。20 MPaで整形圧縮後、12～20メッシュに整粒した各実施例及び比較例の触媒100 mgを石英反応管に充填し、石英ウールを用いて反応管の中央に固定し反応装置内の電気炉に設置した。前処理として400℃で15分間、50% H₂/N₂により還元処理を施した(空間速度: 30,000 L/kg·h)。昇温は3.3℃/minで行い、所定の測定温度に達した後、同温度で15分以上保持した上で、アンモニア2.0%、酸素3.0%、アルゴン95.0%の組成のガスを100 mL/minで流通させ、出口ガスの分析を行った。出口ガスの分析は、アンモニア濃度と窒素濃度についてはガスクロマトグラフ(株式会社島津製作所製、GC-8A)を、窒素酸化物濃度については赤外分光式ガス分析装置(TEOMET社製、DX-4000L)を使用して行った。尚、ガスクロマトグラフには並列分流カラムを用い、充填剤の組成は以下の通りとした。

カラム1: ShimaliteQ(100-180メッシュ)+2%PEG2000+2%KOH
カラム2: Mg(ClO₄)₂+Molecular Sieve 5A(60-80メッシュ)

【0043】

アンモニア酸化反応活性試験に際して、アンモニア転化率は、下記式に基づき、算出した。

【0044】

【数1】

$$\text{アンモニア転化率(\%)} = 100 \times (1 - A_{\text{NH}_3} / A_{\text{NH}_3, \text{blank}})$$

(ここで、A_{NH₃}は昇温測定時のガスクロマトグラフのNH₃ピーク面積、A_{NH₃, blank}は石英反応管に触媒を充填せずに室温で反応ガスを流通した際の面積である。)

【0045】

(アンモニア転化率結果)

図2に示すように、各実施例及び比較例において、約150℃から300℃の温度領域において、アンモニアの酸化が進行することが確認できた。

【0046】

(生成ガス濃度率測定結果)

比較例1及び各実施例の生成ガス濃度の測定結果を図3～11に示した。触媒に銅を添加していない比較例1においては、各種窒素酸化物の顕著な発生が、200～400℃の比較的低い温度領域と500℃以上の比較的高い温度領域の双方において確認された。これに対し、パラジウムと銅の双方を担持させた全ての実施例において、窒素酸化物の発生が抑制されることが確認できた。中でも、パラジウムと銅を、モル比でパラジウム/銅=1/10で担持させた実施例3と、同モル比1/20で担持させた実施例4において、200～400℃の低温領域における窒素酸化物の発生を顕著に抑制できただけでなく、500℃以上の高温領域においても窒素酸化物の発生を抑制できることが確認できた。さらに、プロトン型ゼオライトを使用した実施例7と、ナトリウム型のゼオライトを使用した実施例8との対比では、プロトン型のゼオライトを使用した実施例7において、低温領域、高温領域共に窒素酸化物の発生を抑制できることが確認できた。

【符号の説明】

【0047】

- 1 アンモニア燃焼触媒
- 2 電気炉

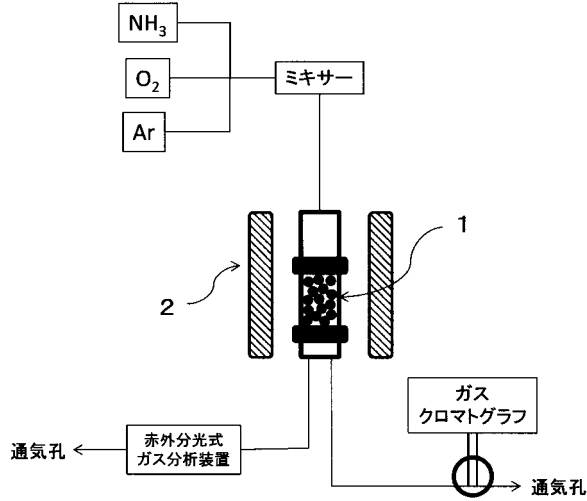
10

20

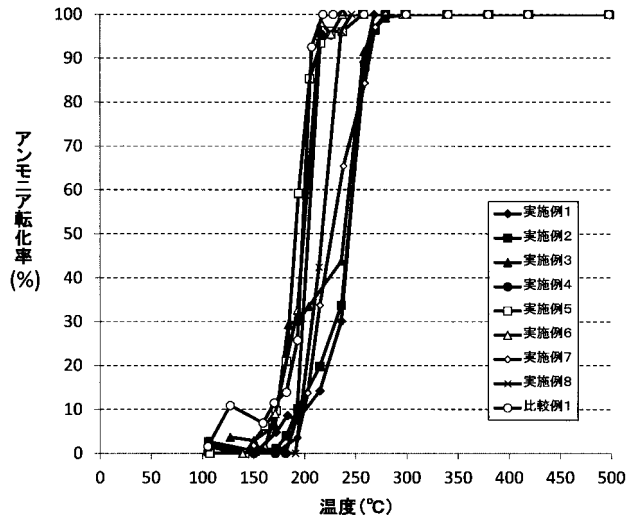
30

40

【 図 1 】

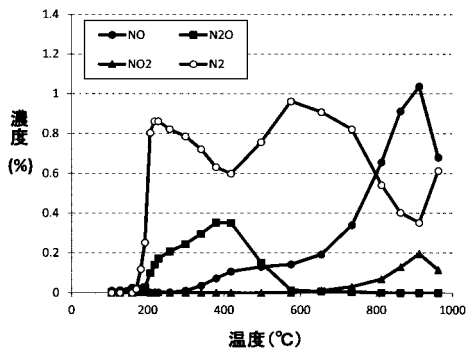


【 図 2 】



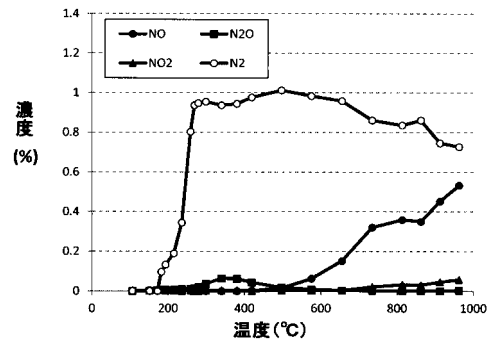
【 図 3 】

生成ガス濃度(比較例1)



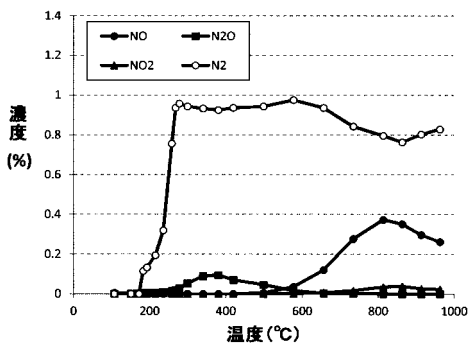
【 図 5 】

生成ガス濃度(実施例2)



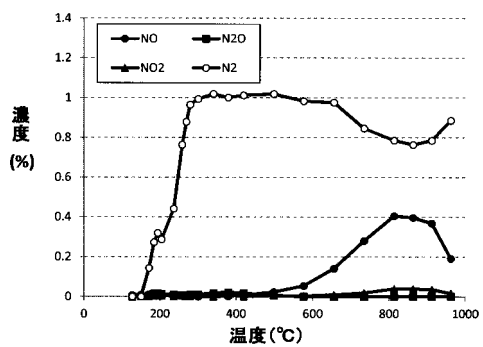
【 図 4 】

生成ガス濃度(実施例1)



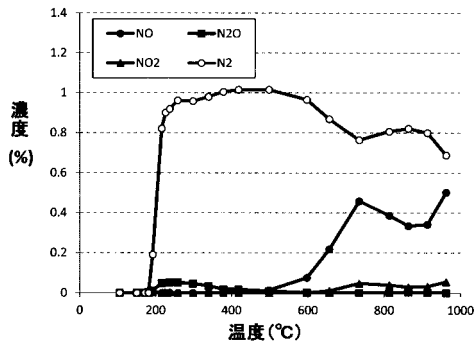
【 図 6 】

生成ガス濃度(実施例3)



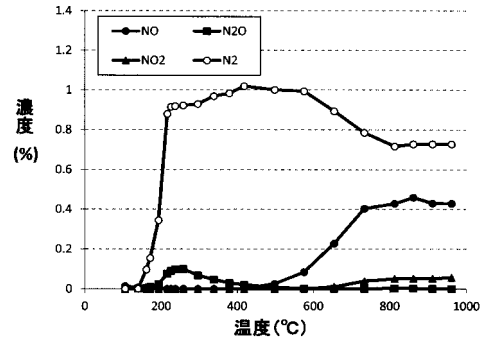
【 図 7 】

生成ガス濃度(実施例4)



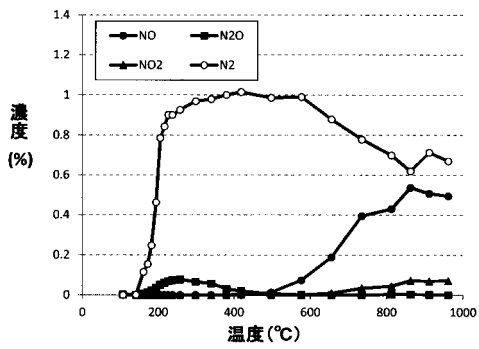
【 図 9 】

生成ガス濃度(実施例6)



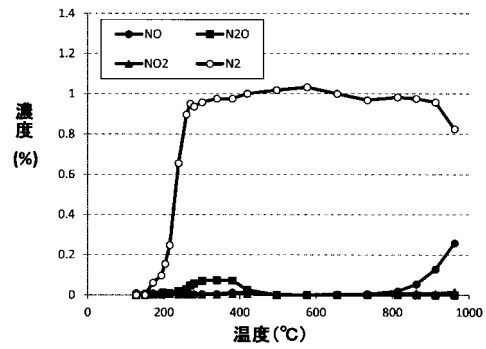
【 図 8 】

生成ガス濃度(実施例5)



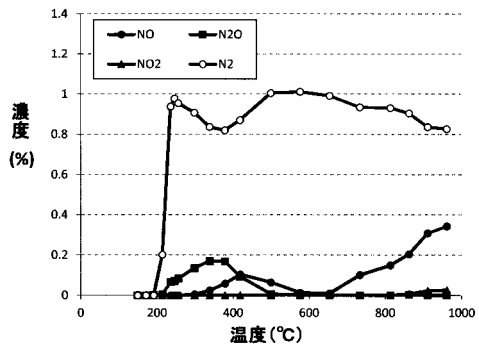
【 図 10 】

生成ガス濃度(実施例7)



【 図 11 】

生成ガス濃度(実施例8)



フロントページの続き

(72)発明者 岡西 岳太

京都府京都市左京区吉田本町3番地1 国立大学法人京都大学内

(72)発明者 竹内 亮

京都府京都市左京区吉田本町3番地1 国立大学法人京都大学内

Fターム(参考) 3G091 AA18 AB02 AB05 BA14 BA20 BA39 GB01W GB07W GB09W

4D148 AA08 AB01 BA11X BA31X BA35X BB01 CA01

4G169 AA03 BA07A BA07B BC31A BC31B BC72A BC72B CA03 CA04 CA06

CA07 CA11 DA06 EA02Y ZA06B ZA11B ZD01 ZD06