ギ酸を還元剤とし Pd-Ag 触媒を用いた硝酸イオン還元における 触媒調製条件の影響

(東海大院理) 武田 徹也・○三上 一行

Effect of Catalyst Preparation Conditions on Nitrate Reduction Using Formic Acid as a Reducing Agent over Pd-Ag Catalysts (*Graduate School of Science, Tokai University*) Tetsuya Takeda, Olkko Mikami

Nitrate is detrimental to human health and contributes to eutrophication; therefore, wastewater standards have been established to regulate its levels. Our research has focused on the catalytic treatment of nitrate in wastewater, and we have previously found that using formic acid as a reducing agent with a Pd-Ag catalyst enables rapid nitrate reduction. Aiming to convert nitrate into ammonia for resource recovery, this study investigated the effects of Pd-Ag catalyst composition and preparation conditions on nitrate reduction characteristics.

The catalyst prepared by sequentially loading Ag and Pd onto alumina (Pd-Ag/Al₂O₃) exhibited higher ammonia selectivity compared to the catalyst prepared in the reverse order (Ag-Pd/Al₂O₃). Even at higher nitrate concentrations, the catalyst selectively produced ammonium ions. These observations suggest that exposing more Pd sites on the catalyst surface enhances formic acid decomposition, increasing the proportion of hydrogen species on the catalyst. The proportion of decomposed formic acid utilized for nitrate reduction was higher with the Pd-Ag/Al₂O₃ catalyst.

Keywords: Nitrate; Ammonium ion; Formic acid; Catalyst; Water treatment

硝酸塩は、人体に有害であり、富栄養化の原因となるため排水基準が設定されている。本研究室では、硝酸イオンを含む排水の処理について研究しており、これまでに還元剤をギ酸とし Pd-Ag 触媒を用いた系で高速で処理できることを見出している。硝酸イオンをアンモニアに変換することによる資源化を目指し、本研究では Pd-Ag 触媒の組成や調製条件が硝酸イオン還元特性に与える影響について pH6 一定条件下で検討した。

アルミナに Ag、Pd の順で担持した触媒(Pd- Ag/Al_2O_3)はその逆の順で担持した触媒(Ag- Pd/Al_2O_3)に比べ、高アンモニア選択的になった。また、Pd- Ag/Al_2O_3 では主な副生成物が亜酸化窒素から窒素に変わり、亜酸化窒素の生成を大幅に減らした。さらに、Pd- Ag/Al_2O_3 では高硝酸イオン濃度でもアンモニウムイオンをより選択的に得ることができた。これらのことは、触媒の表面上に Pd サイトを多く露出させることで、ギ酸分解性能が向上し、触媒上の水素種の割合が増えたためと考えられる。分解したギ酸が硝酸イオン還元に利用された割合も Pd- Ag/Al_2O_3 の方が高く、これは水素種が Pd サイトから Ag サイトへより円滑に供給されて硝酸イオン還元に使われていることを示唆する。

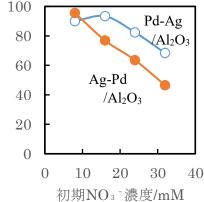


図 1 担持順序が NH4⁺選 択率に与える影響