日本―中国 国際共同研究「環境エネルギー」 2019 年度 年次報告書		
研究課題名(和文)	吸着-触媒材料-低温プラズマ複合化による VOC 処理技術の 開発	
研究課題名(英文)	Research on adsorption-catalysis-nonthermal plasma for VOCs removal at low temperature	
日本側研究代表者氏名	永長 久寛	
所属・役職	九州大学大学院総合理工学研究院・教授	
研究期間	2019年 4月 1日 ~ 2022年 3月 31日	

1. 日本側の研究実施体制

氏名	所属機関・部局・役職	役割
永長 久寛	九州大学・総合理工学研究院・ 教授	触媒合成および触媒反応試験
北條 元	九州大学・総合理工学研究院・ 准教授	電子顕微鏡による触媒・吸着材の解析
杉山 武晴	九州大学・シンクロトロン光利 用研究センター・准教授	放射光による触媒・吸着材の解析

2. 日本側研究チームの研究目標及び計画概要

本年度はオゾンを酸化剤とした触媒酸化に有効な材料を開発する。細孔構造や Si/Al 比を変えたゼオライト、メソポーラスシリカおよび、これらを階層的にコンポジット化した Mn 担持多孔体材料を調製し、細孔構造や金属活性種についてキャラクタリゼーションを行うとともに各種 VOC の吸脱着特性について明らかにする。さらに、VOC のオゾン触媒分解特性について検討し、低温プラズマリアクタとの複合化により VOC 分解効率の向上を目指す。

3. 日本側研究チームの実施概要

本研究では、揮発性有機化合物(VOCs)の分解・除去反応のための低温プラズマ-吸着-触媒システムを開発する。申請者はこれまでに、低温プラズマ作動条件で発生するオゾンを酸化剤とした触媒酸化法(オゾン触媒酸化法)に着目し、酸化マンガンの構造と触媒活性の相関性について検討し、 SiO_2 系担体への高分散担持された Mn 種が特に有効な活性点として機能すること、特に、酸化マンガンを担持した Y 型ゼオライトを触媒とすることにより室温付近で芳香族炭化水素が速やかに酸化分解する触媒の開発に成功した。2019 年度は、これらの知見に基づき、 SiO_2 系高表面積・多孔体材料への活性成分担持によりオゾンを酸化剤とした VOC 触媒を開発した。

まず、Si/Al 比の異なる Y 型ゼオライトを担体とした Mn 担持触媒を調製し、ベンゼン酸化分解活性について比較検討した。Si/Al 比を変えることで、ベンゼン酸化分解特性に優れた触媒を得ることができた。。さらに、X 線吸収微細構造スペクトル解析より、高い活性を示す Mn 活性点構造について明らかにした。

続いて、メソポーラス SiO₂ 担体に Mn 酸化物を高分散担持した触媒について、ベンゼン酸化分解特性を評価した。ベンゼン酸化活性は担体の構造に依存し、比表面積が最大である触媒が最も高いベンゼン転化率を示した。また、細孔径の増大に従い単位表面積当たりの反応速度が増加しており、メソ細孔の大きさによって触媒のベンゼン酸化活性が変化することが明らかとなった。

以上の通り、担体の組成や細孔構造を緻密に制御することにより、VOC 分解活性を向上させることが可能であることを見出した。