

日本—中国 国際共同研究「環境・エネルギー分野」 2021 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 ~ 2023 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・大学院総合理工学研究院・教授	研究統括
北條 元	九州大学・大学院総合理工学研究院・准教授	触媒材料の解析

2. 日本側研究チームの研究目標及び計画概要

本研究では、日本、中国両国で社会問題となっている大気汚染問題の解決に資する方法として、低温プラズマ技術を基盤として機能触媒材料と複合化することにより、低濃度で排出される多様な揮発性有機化合物（VOCs）を高効率で処理するシステムを開発する。

日本側研究者はオゾン酸化触媒触媒として Y 型ゼオライトを担体とした Mn 担持触媒を開発しており、同触媒のさらなる高機能化として 1) オゾン酸化触媒とメソ細孔材料との複合化、2) 階層制御型 TiO₂ の開発、3) コンポジット材料の開発、4) 吸着剤としての炭素系材料の有効性の検証を行う。

また、以上の材料について放電方式の異なる各種リアクタと複合化し、高効率 VOC 処理を達成するためのインテグレーション化を図る。各種機能材料との複合化のためには、電極と誘電体の構造や配置を変えることで低温プラズマの特性（消費エネルギー、オゾン生成量、発熱温度など）を緻密に制御すること、リアクタ内での触媒材料の配置を最適化する。

さらに、開発した低温プラズマ-触媒リアクタについて芳香族炭化水素、ジクロロメタン、ギ酸などの分解反応を行い、投入電力やプラズマ作動条件を変えた際の各種 VOC 分解効率、生成物分布、窒素酸化物などの生成抑制効果について検討する。これらの結果を低温プラズマリアクタの設計指針にフィードバックし、高い VOC 除去・完全無害化特性を示すリアクタシステムを開発する。

本研究の遂行により高いエネルギー効率で VOC を分解・無害化処理するための低温プラズマリアクタ、多孔体・触媒材料の設計指針が確立され、様々な VOC の分解挙動や除去効率など、実用フェーズに移行するための基礎的知見が得られる。

3. 日本側研究チームの実施概要

VOC による大気汚染は依然として東アジアにおいて深刻な状況であり、特に、北京や上海など中国大都市部での空気質の低下による疾病の発現は重要な社会問題となっている。

本研究では、低温プラズマリアクタの VOC 分解処理効率の向上を目指し、吸着-オゾン触媒酸化-プラズマを複合した次世代型システムを構築する。オゾン酸化剤として低濃度 VOC を効率良く酸化分解する触媒材料、VOC 吸着能に優れた高表面積酸化物、炭素材料と低温プラズマリアクタに装填し、電圧を投入した際の VOC 分解効率について検討を行い、実用フェーズに移行するための基礎的知見を得た。2021 年度に得られた成果を以下に示す。

①：Y 型ゼオライトを担体とした Mn 担持触媒の高機能化としての有効性の検証

本研究で開発する VOC 分解システムでは、触媒材料の開発が鍵となる。Si/Al 比の異なる Y 型ゼオライトを担体とした Mn、Cu-Mn 担持触媒について、担持量や調製方法を変えた際の活性点構造およびベンゼン酸化活性に及ぼす効果について検討し、ベンゼン酸化活性は Mn 分散性のみではなく Mn の局所構造や周囲の反応場にも影響を受けることを明らかにした。また、高い VOC 酸化特性を示す階層構造型触媒として、水熱法により調製した Pt 担持ウニ型 TiO₂ ミクロスフィアに Pt ナノ粒子を担持した触媒を調製し、同触媒がマイクロ波照射を施すと高いベンゼン酸化活性を示すことを見出した。

②：高効率 VOC 処理を達成するためのインテグレーション化

吸着材-触媒-低温プラズマリアクタでは、放電、オゾン酸化の繰り返しによる材料の劣化の抑制が不可欠である。低温プラズマ反応に使用した吸着材、触媒材料の構造変化をシンクロトロン放射光による X 線吸収微細構造スペクトルにより明らかにし、材料の劣化抑制および再活性化を図った。Mn 担持 Y 型触媒について、Mn K 吸収端 EXAFS によりオゾン流通下での Mn 酸化物の構造変化を明らかにし、加熱処理を施すと触媒が再生することを見出した。

③：高い VOC 除去・完全無害化特性を示すリアクタシステムの開発

①、②の結果に基づき、オゾン酸化触媒反応とマイクロ波加熱プロセスの複合化を試みた。Mn 担持 Y 型ゼオライト層を反応管上流に、Cu-Mn 系複合酸化物を下流に配置した触媒において、ベンゼン吸着-マイクロ波照射を行うことで、低濃度のベンゼンを効率良く除去できることがわかった。

以上の結果より、オゾン酸化分解プロセスとマイクロ波援用触媒酸化プロセスの融合が低濃度 VOC の酸化分解に有効であることを明らかにした。