

メソポーラスシリカチタニア複合環境浄化触媒の設計指針の提案

平田, 伸吾

<https://hdl.handle.net/2324/4784664>

出版情報 : Kyushu University, 2021, 博士 (工学), 課程博士
バージョン :
権利関係 :

氏 名 : 平田 伸吾

Name

論文名 : メソポーラスシリカチタニア複合環境浄化触媒の設計指針の提案

Title

区 分 : 甲

Category

論文内容の要旨

Thesis Summary

揮発性有機化合物 (VOC) はシックハウス症候群の原因の一つであり、低濃度でも環境や人体に有害な影響を与えるため、速やかな除去が望まれている。VOC 除去に用いられる吸着材としてゼオライト、シリカゲルや活性炭が挙げられるが、ゼオライトは吸着力が強く触媒再生には加熱が必要であり、分子選択性があるため特定の物質にしか利用できない、活性炭やシリカゲルは多様な物質を吸着できる反面、吸着力が弱い低濃度の VOC の除去には不向きであるという問題がある。本論文ではメソポーラスシリカ (MS) 材料に着目し、シリカネットワークへの Ti の組み込みによる固体酸点の形成と、その近傍への TiO_2 光触媒の配置をコンセプトとしたメソポーラスシリカチタニア (MST) 環境浄化触媒について研究を行っている。

吸着と光分解特性は一般的に市販の吸着材や光触媒との比較による定性的評価がなされており、光分解に対する吸着の影響は定量的に議論されていない。VOC の速やかな除去を達成する吸着・光触媒の開発のために、構造と機能を結びつける定量的な評価・解析手法が求められている。本研究では、吸着に着目した速度論モデルの提案により吸着・光触媒特性の定量化に取り組み、等量微分吸着熱測定による固体酸性の定量化に取り組んだ。

本論文では、MST 吸着・光触媒の速度解析による光触媒特性の定量化および水蒸気吸着熱測定による吸着能の定量化を行い、MST 構造と機能の影響を調査することによって、MST 環境浄化触媒の設計指針を提案することを目的とした。

第1章では、本研究の背景および目的を述べた。

第2章では、MST の吸着光触媒材料の触媒特性を定量化するため、吸着を考慮した3ステップモデルを提案した。反応速度解析の結果から、気相中の VOC を速やかに除去するためには吸着と直接光分解が重要であり、VOC を系から完全に除去するためには吸着光分解が重要であることを明らかにした。メソポーラスシリカに高結晶な TiO_2 ナノ粒子が高分散することが重要であるという触媒設計指針を提案した。

第3章では、光分解機能の向上を目指して、MST への WO_3 の複合を検討した。 TiO_2 光触媒に WO_3 を複合することで光生成キャリアの再結合を抑制し活性の向上につながる事が知られている。MST に WO_3 を複合することで光触媒能の向上を目指し、複合する WO_3 の微粒化の影響を調査した。TEM 観察より、大きな WO_3 の周りに小さな TiO_2 が配置した複合光触媒がシリカマトリックスに分散したことを確認した。第2章で取り組んだ3ステップ速度解析により吸着光触媒能を評価したところ、MS に TiO_2 と WO_3 をともに複合することで吸着光分解速度定数が増加し、微粒化により WO_3 の分散性を向上させることでさらに吸着光分解定数が増加することを定量的に示した。

第4章では、固体酸点の定量的解析手法の確立を目的として MST に対して水蒸気吸着測定を行い、等量微分吸着熱による MST 構造の固体酸性について議論した。水蒸気等量微分吸着熱はシリカネットワークに Ti が組み込まれた試料で高い値を示し、シリカネットワーク中の Ti が試料最表面だけではなく、多層吸着領域の吸着熱も向上させることを明らかにした。吸着材や光触媒の使用環境として想定される湿度領域で高い吸着熱を

示したことから、シリカネットワークに組み込まれた Ti が高い固体酸性を持つことを定量化できた。Ti/Si 比の影響を調査したところ、吸着熱はシリカネットワーク中の Ti の増加に伴って増大し、TiO₂ の析出には依存しないことを明らかにした。多層領域における吸着熱は酸性度とは相関しなかったが、VOC である CH₃CHO 吸着量とは相関を示し、VOC の吸着能を予測する指標となることを見出した。

第5章では、本研究で得た結果を総括し、MST 複合環境浄化触媒の設計指針を提案した。