

# メチルメルカプタンおよびアンモニアに対する メソポーラスシリカ担持金属触媒の除去・分解機能

Removal and Decomposition of Methyl Mercaptan and Ammonia  
by Mesoporous Silica-Supported Metal Catalysts

蒋元姮<sup>1)</sup>

指導教員 原賢二<sup>2)</sup>, 研究協力者 矢野龍太郎<sup>1)</sup>, 平賀たくと<sup>2)</sup>

1) 東京工科大学 大学院工学研究科 サステイナブル工学専攻 触媒化学(原)研究室

2) 東京工科大学 工学部 応用化学科 触媒化学(原)研究室

キーワード：揮発性有機化合物、メソポーラスシリカ、ルテニウム、メチルメルカプタン、アンモニア

## 1. 緒言

我々の身の回りには、エチレン、アンモニア、メチルメルカプタンなど、さまざまな揮発性有機化合物(VOC)が存在しており、十分な換気が行えない場合、シックハウス症候群や化合物過敏症等が引き起こされる。

VOCを除去する手法として、光触媒またはオゾン酸化法が用いられている。しかし、光触媒を使うには光が必要であり、オゾン酸化法には、除去に時間を要する上に、オゾンが人体に悪影響を与えるという問題がある。このような背景から、暗所においてもVOCを効率的に除去する触媒の開発が望まれている。

そこで、2~50ナノメートルの規則的な細孔をもつシリカメソポーラスシリカに金属を担持した触媒が有するVOC除去能力を系統的に評価し、その除去機構を解明することにした。本研究では、メソポーラスシリカ担持金属触媒によるメチルメルカプタンおよびアンモニアの除去機能と分解生成物に関する知見を得る検討を行った。

## 2. 実験方法

メソポーラスシリカ(MPS)とアルミナを主原料とするペレット(岩尾磁器工業製)と塩化ルテニウム溶液をナスフラスコに加え、減圧加熱して溶媒を留去し、さらに終夜減圧加熱乾燥してルテニウ

ム塩担持ペレットを得た。得られたルテニウム塩担持ペレットを水素還元して1wt%ルテニウム担持MPS(Ru-MPS)を得た。

ステンレス管中に入れた触媒50mgに一定濃度のVOCガスを流通させ、検知管で計測した供給ガス濃度と出口ガス濃度の差からVOC除去性能を評価した(図1)。評価前に、触媒を150℃で2時間加熱処理を行って、水分を除いた。

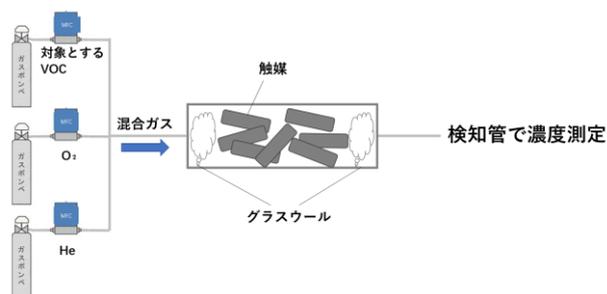


図1 VOC除去・分解評価試験の実験装置

メチルメルカプタンの除去・分解性能の評価では、メチルメルカプタン14ppm、酸素20%、ヘリウム80%の混合ガスを12.5 mL/minの流速で流通させた。アンモニアの除去・分解性能の評価では、アンモニア100ppm、酸素20%、ヘリウム80%の混合ガスを31 mL/minの流速で流通させた。

メチルメルカプタンの分解生成物の分析では、検知管(ガステックメチルメルカプタン71H)を使用して出口ガス中の二酸化硫黄濃度の測定を行

った。また、メチルメルカプタン流通後の触媒を水に浸漬することにより得た試料に対する、JIS K 8001 記載の手法により標定した水酸化ナトリウム水溶液を用いた中和滴定により、触媒に付着した酸の定量を行った。

アンモニアの分解生成物の分析では、検知管（ガステック アンモニア 3M、3La）を使用して出口ガス中の一酸化窒素（NO）および二酸化窒素（NO<sub>2</sub>）の濃度測定を行った。また、アンモニア流通後の触媒を水に浸漬することにより得た試料に対する褐色環反応により、触媒に付着した硝酸イオンと亜硝酸イオンの検出を行った。

### 3. 実験結果・考察

#### 1) メソポーラスシリカ担持ルテニウム触媒のメチルメルカプタン除去・分解機能

メソポーラス担持ルテニウム触媒が高いメチルメルカプタン除去性能を示すことを既に報告している<sup>[1]</sup>。

触媒流通後の二酸化硫黄濃度を検知管を用いて測定したところ、出口ガス中の二酸化硫黄は検出下限未満の濃度であり、二酸化硫黄に変換された割合は除去されたメチルメルカプタンの 1.4% 未満であることがわかった。

一方で、メチルメルカプタン流通後の触媒に付着した酸の量を定量したところ、触媒により除去されたメチルメルカプタンの約 10~40% が触媒に付着する酸に変換されたと見積もられた。

#### 2) メソポーラスシリカ担持ルテニウム触媒のアンモニア除去・分解機能

種々のメソポーラス担持金属触媒を用いて、アンモニアの除去性能を確認したところ、メソポーラス担持ルテニウム触媒が優れたアンモニア除去性能を示した。金属を担持していないメソポーラスシリカに比べて、ルテニウム担持メソポーラスシリカの方が出口濃度がより低いことが確認された（図 2）。担持されたルテニウム種がアンモニアの除去に機能していることを示す結果である。

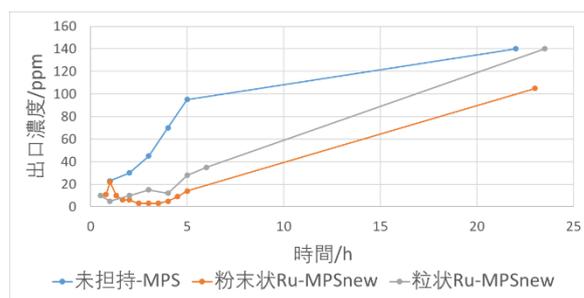


図 2 アンモニア流通後の出口濃度の経時変化

続いて、アンモニア除去能力への触媒形状の依存性を確認したところ、粉末状 Ru-MPS の方が粒状 Ru-MPS よりもアンモニア除去機能が高いことがわかった（図 2）。粉末の形状によって、アンモニアガスと接触する触媒の表面積がより大きいためにより高い除去機能が得られたと思われる。

次に、触媒流通後の一酸化窒素（NO）および二酸化窒素（NO<sub>2</sub>）の濃度を検知管を用いて測定したところ、出口ガス中のこれらのガスの濃度は検出下限未満であった。

さらに、アンモニア流通後の触媒に付着した硝酸イオンと亜硝酸イオンの検出を褐色環反応によって試みたところ、これらのイオンは検出されなかった。

### 4. 今後の予定

他の手法を用いてアンモニアの分解生成物の同定と定量を行う。また、各反応の速度論解析により、分解反応の機構を解明する。

VOC の除去・分解機構が解明できれば、今後の触媒の設計指針にフィードバックできると期待される。

### 5. 参考文献

- [1] 矢野龍太郎、平賀たくと、山崎将啓、原賢二、化学工学会第87年会（2022）。