

令和 6 年 6 月 4 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：21H03635

研究課題名(和文) 低濃度汚染物質の吸着・濃縮と急速昇温分解を可能にするマイクロ波援用触媒プロセス

研究課題名(英文) Microwave-assisted catalytic process for adsorption/condensation and rapid thermal decomposition of low-concentration pollutants

研究代表者

永長 久寛 (Einaga, Hisahiro)

九州大学・総合理工学研究院・教授

研究者番号：90356593

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,500,000円

研究成果の概要(和文)：Cu-Mnスピネル酸化物を用いたベンゼンのマイクロ波不均一系触媒酸化について検討した。Cu-Mn酸化物によるマイクロ波吸収は主に誘電損失(誘電加熱)によって駆動され、単一酸化物よりも優れた活性を示し、通常の加熱下で得られる活性化エネルギーよりも低い見かけの活性化エネルギーを示した。マイクロ波照射によりベンゼン酸化に必要な反応温度は従来の加熱よりも低下した。Cu-Mn酸化物の高い反応性は、触媒表面の格子酸素の高い反応性に依存し、酸素種の反応性はマイクロ波加熱下で向上した。Cu-Mn酸化物とゼオライトを用いた吸着と触媒酸化プロセスの組み合わせは、低濃度のベンゼンを効率的に分解した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

工場、事業所から排出される低濃度の揮発性有機化合物(VOC)の処理の高効率化は環境保全の観点から喫緊の課題である。本研究では、複合酸化物触媒の高いマイクロ波加熱特性を生かし、VOCの吸脱着と濃縮、酸化分解過程を速やかに進行させる高効率汚染物質処理プロセスを開発し、その有効性について実証した。VOC吸着特性とマイクロ波照射下での昇温特性を両立するプロセスを構築し、高い昇温特性と酸化特性を有する酸化物触媒を開発し、これらの特性を生かすことで高効率VOC分解プロセスを構築した。この成果は、マイクロ波化学分野、触媒化学分野において重要な進歩であるとともに、環境技術への展開が見込まれる。

研究成果の概要(英文)：Microwave-assisted heterogeneous catalytic oxidation of benzene was investigated over Cu-Mn spinel oxides. Microwave absorption by the Cu-Mn oxide is mainly driven by dielectric losses. Cu-Mn oxide exhibited superior activity to single oxides under microwave heating, demonstrating a lower apparent activation energy than that obtained under conventional heating. Microwave irradiation lowered the reaction temperature required for benzene oxidation compared with conventional heating. Transient tests were used to investigate the reactivity of oxygen species in the catalytic reaction, and the high reactivity of Cu-Mn spinel oxides was related to the high reactivity of lattice oxygen on the catalyst surface. The reactivity of the oxygen species was enhanced under microwave heating, leading to an enhanced benzene oxidation reaction. The combination of adsorption and catalytic oxidation processes using Cu-Mn spinel oxides and zeolites efficiently decomposed benzene at low concentrations.

研究分野：触媒化学

キーワード：マイクロ波 複合酸化物 揮発性有機化合物

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

工場で発生する揮発性有機化合物 (VOC) への暴露は、工場労働者の健康に多くの悪影響を及ぼし、解決すべき深刻な問題である。触媒燃焼法は、工場から VOC を除去するための効果的な方法として実用化されている。触媒燃焼法では、貴金属を含有する触媒層を加熱し排ガスを導入するが、天然ガスの燃料を供給する場合も多い。触媒燃焼法は、排ガス流量の多い大規模プラントで一般的に使用されているが、エネルギー効率の観点から、特に VOC が低濃度で排出される場合、小規模排出源からの VOC 除去には適していない。

マイクロ波加熱触媒反応は、高いエネルギー効率が期待されており、将来的な化学反応プロセスとして有望視されている。マイクロ波加熱では誘電加熱プロセスと磁場加熱プロセスがあり、前者では、マイクロ波エネルギー、振動変化する電磁場中の永久双極子の運動による誘電損失を介して熱に変換される。磁場加熱は固体中の渦電流損失によっても生じており、このプロセスは優れたマイクロ波吸収特性を持つ材料を使用することで、従来の加熱 (対流、伝導、放射による熱輸送) と比較して、より効率的に材料を加熱することができる。マイクロ波加熱では、急速かつ、選択的に触媒材料を加熱し、不均一化学反応を促進することが知られている。さらに、マイクロ波加熱下でホットスポットが形成されると、触媒の実際の局所温度が測定された平均温度よりもはるかに高くなる。このような "ホットスポット" の存在は、周囲の粒子の温度よりもはるかに高く、表面触媒反応を促進する。この現象はマイクロスケール (90 ~ 1000 μm) で進行する。

電場と磁場のどちらを利用するかによって適する材料が変わる。一般的に、金属粉末のような導電率の高い試料を使用すると、磁場中での加熱速度がはるかに高くなる (磁気加熱)。金属酸化物のような導電率の低い誘電体材料では、電場中 (誘電加熱) の方がはるかに効率よく加熱できる。多くの触媒がマイクロ波触媒反応に利用されており、その中には高い誘電正接 ($\tan \delta = \epsilon'' / \epsilon'$)、ここで、 ϵ'' はエネルギー吸収能力を測定し、誘電損失係数 (ϵ'') は熱の形で電気エネルギーの散逸を測定する) を有し、炭素系材料、遷移金属酸化物、フェライト、硫化物や炭化物などもマイクロ波照射によって効率的に加熱することができる。遷移金属酸化物は、貴金属触媒の代替候補になりうると考えられている最も興味深い材料である。

2. 研究の目的

Cu-Mn 酸化物 (CuMnO_x) は、単一の酸化物よりも高い酸化還元特性を持つため、優れた酸化触媒である。触媒の観点からは、 CuMnO_x スピネル酸化物を使用する利点はいくつかある [25-30] : (1) 構造が明確で酸素貯蔵能が高い、(2) Cu と Mn のカチオン性サイトがサイト間の電荷移動 ($\text{Cu}^{2+} + \text{Mn}^{3+} \rightleftharpoons \text{Cu}^+ + \text{Mn}^{4+}$) により容易に価数変化するため、優れた酸化還元特性が得られる、(3) 熱的・触媒的安定性が高い、(4) コーク生成が起こらない、(5) マイクロ波吸収能が高いなどである。本研究では、水酸化テトラメチルアンモニウム (TMAH) を沈殿剤として Cu と Mn の硝酸塩を加水分解し、得られた Cu-Mn(OH)_n 沈殿物を焼成する方法 (共沈法) により Cu-Mn スピネル型酸化物を合成した。Cu-Mn 混合酸化物の特性、加熱挙動、マイクロ波加熱下での触媒特性、酸化促進の反応機構を詳細に調べた。

3. 研究の方法

3.1 触媒の調製

Cu-Mn スピネル型酸化物は、共沈法と焼成法によって調製した。典型的な調製手順では、適量 (総濃度 0.025 mol/L) の金属硝酸塩を脱イオン水に 1 時間攪拌しながら溶解し、よく混合した溶液を 10%-テトラメチルアンモニウムヒドロキシド (TMAH, 岸田化学) の過剰溶液に滴下添加した。攪拌せずに周囲温度で 24 時間熟成した後、得られたコロイド粒子を濾別し、水で数回洗浄し、次いで 100 で 24 時間乾燥し、400 および 650 で 5 時間、加熱速度 5 /分で焼成した。TMAH を使用することで、加水分解工程で NH_3 を使用した場合に通常起こる、溶液中の Cu^{2+} 種の溶解による $(\text{Cu}(\text{NH}_3)_4)^{2+}$ の生成を避けることができる。これは、Cu イオンと Mn イオンの相対的な比率を維持するのに適している。この方法では、合成溶液中の Cu イオンと Mn イオンは、TMAH による加水分解によって完全に沈殿した。さらに、比較のために同じ条件で Cu と Mn の単一酸化物も調製した。異なる温度で焼成した Cu/Mn モル比 1:2、1:1、2:1 の Cu-Mn 混合酸化物をそれぞれ Cu1Mn2-400/650、Cu1Mn1-400/650、Cu2Mn1-400/650 と表記する。

3.2 触媒の特性評価

試料の表面形態は、走査型電子顕微鏡 (SEM, Thermo Fisher Scientific Inc.) X 線回折 (XRD) パターンは、RIGAKU RINT 2200 回折計を用い、ステップサイズ 0.02°、走査速度 2°/分で Cu-K 線を照射して得た。N₂ 吸脱着等温線は、BELSORP-mini II 装置 (MicrotracBEL Corp. 温度プログラム還元 (H₂-TPR, BEL Japan, Inc) 測定は、Micromeritics AutoChem 装置を用いて行った。試料 50 ミリグラムを、60 分間の O₂ 前処理の後、5 vol.% の H₂-N₂ バランス混合ガスを用いて室温から 850 まで加熱した。XPS (AXIS-165, KRATOS, Japan) は、Mg K 線源 (1253.6 eV) を備えた Kratos ESCA-3400 スペクトロメーターを用いて、表面元素の状態および吸収種を評価し

た。拡張 X 線吸収微細構造 (EXAFS) および X 線吸収端近傍構造 (XANES) スペクトルは、九州大学シンクロトロン光研究センター (SAGA-LS) のビームライン (KU BL-06) で、蓄積リングを 1.4 GeV のエネルギーで動作させて得られた。すべてのスペクトルは常温で記録された。EXAFS シグナル (k - k) はデータから抽出され、その後 ATHENA [22, 31] によってプリエッジバックグラウンド減算、エッジ高さの正規化、エネルギー校正が行われた。k3 重み付け EXAFS は、Mn K 吸収端および Cu K 吸収端スペクトルについて、 k の範囲を 3.0-14 Å⁻¹ として R 空間にフーリエ変換された。詳細な解析方法は以前の論文 [23] で報告されている。

3.3 触媒反応プロセス

マイクロ波加熱下での触媒酸化反応の場合、0.1 g の試料を、導波管、電源、反射板から構成される Green Motif II システム (IDX Co. シングルモードのマイクロ波は電源から発生し、反射板で反射される。反射波は入射波と干渉して安定した定在波を形成し、電界と磁界の強度分布に 1/4 の位相差をもたらす。したがって、触媒の加熱性能は、最も強い電界 (誘電加熱) と磁界 (磁気加熱) の分布で測定された。触媒温度は、マイクロ波出力を調節して制御し、石英ガラス管内の光ファイバー温度計 (アンリツ計器株式会社製、AMOTH FL-2000, FS400) を用いて測定した。

触媒反応の前に、N₂-O₂ フローガス中、0-320 W のマイクロ波加熱下で試料の前処理を行い、その後、異なる出力で試料の加熱挙動を測定した。この触媒を用いて、固定床流動反応器でベンゼンの接触酸化反応を行った。反応条件は、ベンゼン (400 ppm, N₂ バランス) 20%、ガス流量 100 mL·min⁻¹、重量時空間速度 (WHSV) 60,000 mL·g⁻¹·h⁻¹ であった。反応物の変化はその場フーリエ変換赤外分光法で記録した。通常の加熱下での反応は、同じ反応器をマイクロ波加熱と同じ条件の外側加熱円筒炉に設置して行った。

4. 研究成果

4.1 マイクロ波加熱下における Cu-Mn 複合酸化物の触媒特性

Fig. 1 に Cu-Mn 混合酸化物の加熱挙動を示す。誘電加熱下での試料の定常温度は、磁気加熱下よりもはるかに高く、Cu-Mn 触媒の加熱挙動に影響を与える主な要因が誘電損失であることを示している。定在波の形成により、電界と磁界の強度分布はマイクロ波長 (約 30 mm) の 1/4 だけ異なる。触媒は、電界の強さが最も強く (Fig. S1) 磁界の強さが最小になる導波管の中心 A に位置する三重管リアクターにセットした。新鮮な試料では、温度は時間とともに上昇し、約 10 分間で定常状態に達した。低いマイクロ波出力 (50-250 W) では、定常状態の温度は出力が増加するにつれて上昇した。出力が 318 W に改善されると、温度は Cu1Mn1-400 で 350 °C まで劇的に上昇し、Cu1Mn1-650 では 180 °C を超えると突然上昇した。Cu-Mn 酸化物を同じマイクロ波出力で再度加熱すると、温度は最初の加熱時よりもわずかに上昇し、Cu-Mn 酸化物の加熱特性がマイクロ波照射によって改善されたことがわかる。試料の定常温度は、「照射前」処理後の 2 回目の照射で観察された温度と一致した。

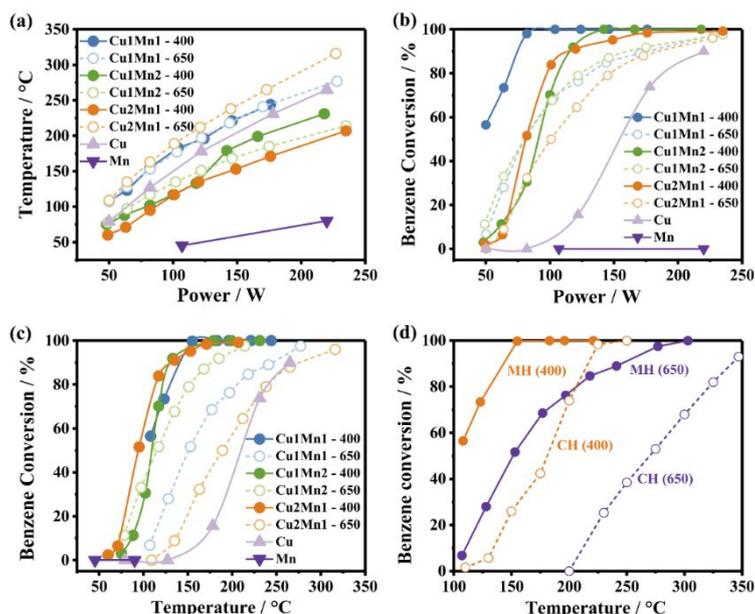


Fig. 1 Cu-Mn 複合酸化物のベンゼン酸化特性

触媒温度は、Cu2Mn1-650 > Cu1Mn1-400/650 ~ CuO > Cu1Mn2-400/650 ~ Cu2Mn1-400 >> MnOx の順に低下した。単一酸化物、特に Mn₂O₃ は混合酸化物よりも低い加熱温度を示し、Cu と Mn の組み合わせが触媒の反応温度を向上させることを示している。Cu1Mn1-400/650 および Cu1Mn2-400/650 では、Cu-Mn 酸化物の加熱挙動は結晶子サイズや比表面積に依存しなかった (表 1)。Fig. 1b は、Cu-Mn 触媒を用いたベンゼン酸化反応をマイクロ波出力の関数として示したものである。ベンゼンの転化率はマイクロ波出力とともに増加し、触媒活性は CuMn-400 > CuMn-650 > CuO >> MnOx の順に低下した。MnOx は、加熱能力が極めて低いため、試験出力範囲 (~ 300 W) ではほとんど活性を示さなかった。400 °C で焼成した触媒の中では、Cu1Mn1-400 がマイクロ波加熱下で他の触媒よりも高い触媒活性を示した。さらに、CuMnOx スピネル酸化物は、単

触媒温度は、Cu₂Mn₁-650 > Cu₁Mn₁-400/650 ~ CuO > Cu₁Mn₂-400/650 ~ Cu₂Mn₁-400 >> MnO_x の順に低下した。単一酸化物、特に Mn₂O₃ は混合酸化物よりも低い加熱温度を示し、Cu と Mn の組み合わせが触媒の反応温度を向上させることを示している。Cu₁Mn₁-400/650 および Cu₁Mn₂-400/650 では、Cu-Mn 酸化物の加熱挙動は結晶子サイズや比表面積に依存しなかった (表 1)。Fig. 1b は、Cu-Mn 触媒を用いたベンゼン酸化反応をマイクロ波出力の関数として示したものである。ベンゼンの転化率はマイクロ波出力とともに増加し、触媒活性は CuMn-400 > CuMn-650 > CuO >> MnO_x の順に低下した。MnO_x は、加熱能力が極めて低いため、試験出力範囲 (~ 300 W) ではほとんど活性を示さなかった。400 °C で焼成した触媒の中では、Cu₁Mn₁-400 がマイクロ波加熱下で他の触媒よりも高い触媒活性を示した。さらに、CuMnO_x スピネル酸化物は、単

一酸化物よりもはるかに高いベンゼン酸化活性を示した。Fig. 1c は、ベンゼン酸化性能と触媒温度の関係を比較したもので、400 °C で焼成した触媒は 200 °C 以下の温度で 100%の転化率を示した。特に、Cu1Mn1-400 は 155 °C で 100%転化率に達した。この触媒は、貴金属担持触媒であってもほとんどの触媒よりも優れたベンゼン酸化活性を示した。

Cu1Mn1-400/650 触媒のベンゼン酸化活性をマイクロ波加熱と通常加熱で比較すると、同じ転化率であれば、マイクロ波加熱の方が反応に必要な温度が低く、Cu1Mn1-400 触媒の ΔT_{90} は 75 °C、Cu1Mn1-650 触媒のそれは 135 °C 以上であった。マイクロ波照射下での触媒の安定性も最も重要な特性の一つである。さらに、反応前後のサンプルについて得られた XRD パターンを比較したが、構造変化は観察されなかった。このように、Cu-Mn 触媒はマイクロ波加熱下で高い安定性を示した。

4.3 表面酸素種の反応性

固体酸化物触媒によって促進される VOC の酸化は、Mars-Van-Krevelen または Langmuir-Hinshelwood メカニズムによって進行する。前者のメカニズムでは、触媒から供給される格子酸素種によって反応物が酸化され、還元された触媒は気体酸素によって再酸化される。一方、後者のメカニズムでは、気体酸素が触媒表面に吸着・活性化され、活性化された酸素が触媒表面に吸着した VOC を酸化する。ベンゼン酸化 Cu-Mn スピネル酸化物の反応経路を明らかにするため、Cu-Mn スピネル酸化物上の酸素種の反応性に着目した。酸素供給を停止すると、すべての触媒でベンゼン転化率が低下した。この挙動は、触媒の組成と構造によって異なる。Cu-Mn スピネル酸化物でのベンゼン転化率の低下速度は、他の 3 種類の酸化物よりも遅い。ベンゼン分解反応が完全に進行しなくなるまでに酸化されたベンゼンの量は、 5.0×10^{-5} mol と求められた。再び気体酸素を導入すると、ベンゼンの転化率は急速に回復し、100%に達した。この結果は、Cu-Mn によるベンゼンの酸化反応が、格子酸素の反応後に触媒が再酸化される Mars-van Krevelen メカニズムで進行し、触媒の再酸化過程が速いことを示している。

Cu-Mn 酸化物表面上の酸素種の反応性は、TPD によって調べることができる。触媒を N₂ 気流中、300 °C で前処理し、1 時間前のベンゼン吸着後、物理的に吸着したベンゼンを除去するために、系を 30 分間 N₂ でパージした。その後、触媒を N₂ 下で 5 °C/分の速度で 350 °C まで加熱した。低温領域ではベンゼンの脱離が支配的であるが、110 °C 以上ではベンゼンの酸化により CO₂ が生成し、CO₂ 濃度は温度の上昇とともに増加する。触媒表面の酸素種は吸着したベンゼンを酸化することがわかった。

マイクロ波加熱下で酸素供給のオン・オフを繰り返した場合のベンゼン酸化反応の時間経過プロファイルについて、酸素供給を停止すると、触媒の温度はまず上昇し、数分間定常状態に達した後、低下する。ベンゼンの酸化反応が完全に停止するまでに、 4.3×10^{-5} mol のベンゼンが分解され、 2.7×10^{-4} mol の CO₂ が生成した。気相中に酸素がない状態でもベンゼンの酸化反応が進行することから、触媒中の格子酸素種が反応に関与していることがわかる。触媒温度の低下は、格子酸素種の消費により生じた構造変化に起因すると考えられる。ベンゼンの酸化が完全に停止した後、酸素の供給を再び開始した。触媒温度とベンゼン転化率は急速に上昇し、還元触媒が速やかに再酸化されたことが示された。Cu と Mn の酸化還元反応は、表面サイトで起こる。これは酸素種の補給に不可欠であり、電子の連続的な移動（可逆的サイクル）を促進するため、ベンゼンの酸化反応が促進される。この転化率と温度の上昇は短時間（1~2 分）で進行することから、触媒の再酸化プロセスは非常に速く、律速段階ではないことがわかる。なお、この酸化還元反応を行った場合、ベンゼン転化率と触媒層温度は共に初期値より低下しており、マイクロ波照射が構造変化を促進していることが示唆された。酸素存在下での CuMnO_x によるベンゼンの酸化反応では、転化率と触媒床温度は変化せず、格子酸素による酸化反応よりも触媒の再酸化反応の方が遥かに速いことが確認された。

なお、2 サイクル目の反応においても、1 サイクル目と同じ傾向が観察され、それ以上の触媒特性の変化は観察されなかった。マイクロ波加熱、通常加熱のいずれにおいても、気体酸素（補足）の非存在下と存在下での反応後の触媒の表面形態に大きな違いは観察されなかった。しかし、相組成にはいくつかの変化が観察された。X 線回折プロファイル（Fig. S10）によると、通常の加熱では新しい相は生成せず、回折ピーク強度が増強されるだけであったが、マイクロ波照射では、反応後に元の組成（CuMn_{2.66}）に比べて酸素欠損の新しい CuMnO₂ 相が生成した。このことは、新しい相の形成がマイクロ波照射によって促進されることを意味しており、マイクロ波加熱が酸素種の反応性を高めることを示唆している。

図 10 に、触媒 CuMn-650 を用いたマイクロ波加熱と通常加熱によるベンゼンと CO の酸化反応における $\ln r$ 対 $1/T$ の典型的なアレニウス・プロットを示す。アレニウス式に基づき、 r 値は見かけの活性化エネルギー（ E_a ）と温度（ T ）に指数関数的な関係で依存する [56,57]。アレニウス式より見積もられた各反応の見かけの活性化エネルギー（ E_a ）を表 2 に示す。ベンゼンと CO の酸化反応の E_a 値はほぼ同じであるが、マイクロ波加熱下での反応の E_a は、ベンゼン

とCOの酸化反応の両方で、通常の加熱下での反応よりも低い。マイクロ波加熱法は、反応に必要なエネルギーを低減し、反応分子を活性化するのに適していることが実証された。上述したように、Cu-Mnスピネル酸化物の表面格子酸素がベンゼンの酸化に関与している。Cu-Mn酸化物の再酸化過程は非常に速く進行するため、表面格子酸素の活性化とベンゼンの酸化が律速段階であり、マイクロ波照射はこの過程の促進に寄与すると考えられる。したがって、マイクロ波照射はこの過程の促進に寄与すると考えられる。

4.4 低濃度のベンゼン除去へのマイクロ波援用触媒酸化の応用

異なる出力レベルでのベンゼン酸化のサイクル実験の結果を図11示す。時間経過プロファイルから、温度はマイクロ波照射中に急速に上昇し、マイクロ波照射を停止すると低下することがわかった。出力を上げると、温度上昇は一定になり、反応温度はマイクロ波出力に応じて容易に制御できた。ベンゼンはCO₂に分解され、ベンゼン変換率は出力によって変化した。これらの結果は、マイクロ波加熱が急速昇温に有効であること、ベンゼン濃度に応じてマイクロ波出力を変えることができることを示している。この現象を利用して、吸着-加熱酸化過程を調べた。まず、100ppmの低濃度のベンゼンをCu-Mn酸化物に吸着させた後、マイクロ波を照射した際の経時変化を図12aに示す。ベンゼンの吸着限界に達した後、85Wのマイクロ波を照射すると、触媒層の温度が急速に上昇し、ベンゼンとCO₂が生成した。

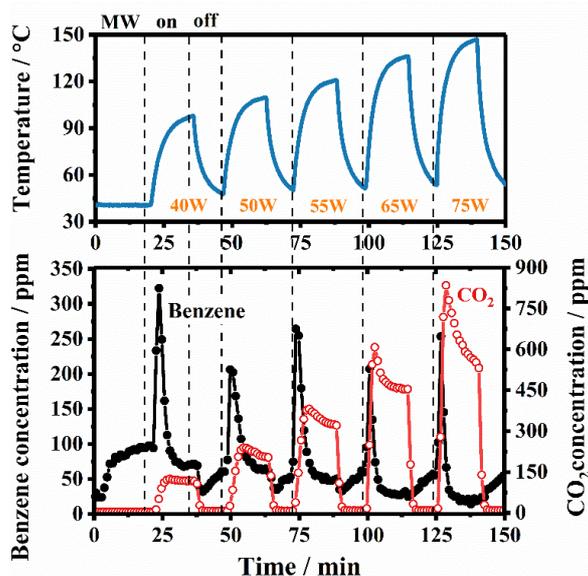


Fig. 2 ベンゼン酸化反応

このプロセスでは、ベンゼンとCO₂の生成量は、予め吸着されたベンゼンの量と一致する。このように、マイクロ波照射下での熱制御（急速加熱・冷却プロセス）が優れているため、室温でVOCを触媒に吸着させ、その後急速加熱により容易に分解することができた。

続いて、吸着剤として異なる種類のゼオライトZSM-5とY-ゼオライト（10 mg）を用い、触媒CuMn1-400（90 mg）と組み合わせた。ベンゼン酸化のための吸脱着プロセスを実施した。60分間の吸着後、マイクロ波照射下、ベンゼンを含まないN₂/O₂気流中で反応を進行させた。ベンゼンは直ちに放出され、続いてCO₂が生成した。酸化されたベンゼンの総量（1012 ppmと2063 ppm）は、それぞれCu-Mn酸化物/Y-ゼオライト触媒（6068 ppm）とCu-Mn酸化物/ZSM-5触媒（12382 ppm）で生成したCO₂の量とほぼ等しかった。Cu-Mn酸化物/ZSM-5触媒で酸化されたベンゼンの総量は、Y-ゼオライトと組み合わせた触媒で酸化された量の約2倍であり、Cu-Mnを単独で使用した場合（620 ppm）の3.3倍であった。これらの実験結果は、Cu-Mn触媒がまずマイクロ波による急速加熱で加熱され、その熱がゼオライトに伝達されることで、ベンゼンが触媒上で速やかに脱離し、CO₂に完全に分解されるというメカニズムを裏付けている。これらの結果は、Cu-Mn触媒へのベンゼンの予備吸着と触媒へのマイクロ波照射により、急速な温度上昇により低濃度のベンゼンを短時間で酸化することができ、ベンゼン分解効率の向上とプロセスの省エネルギー化につながることを示している。さらに、Cu-Mn酸化物とZSM-5の組み合わせは、Cu-Mn酸化物を単独で使用した場合と比較して、ベンゼンをより効率的に吸着し、完全に酸化することがわかった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 12件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 S. Shigenobu, T. Sugiyama, Hajime Hojo, H. Einaga	4. 巻 -
2. 論文標題 Enhanced Benzene Oxidation of Sintered Pd/ -Al ₂ O ₃ Catalysts by SO ₂ Treatment	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Catalysis Letters	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10562-022-04233-7	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Ying Ma, Lian Wang, Jinzhu Ma, Fudong Liu, Hisahiro Einaga, Hong He	4. 巻 56
2. 論文標題 Improved and Reduced Performance of Cu- and Ni-Substituted Co ₃ O ₄ Catalysts with Varying Co ⁰ /Co ²⁺ and Co ³⁺ /Co ²⁺ Ratios for the Complete Catalytic Oxidation of VOCs	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Environmental Science and Technology	6. 最初と最後の頁 9751-9761
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.est.2c02450	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 S. Ding, H. Hojo, H. Einaga	4. 巻 10
2. 論文標題 Microwave-assisted removal of benzene with high efficiency on cobalt modified copper-manganese spinel oxides	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Environmental Chemical Engineering	6. 最初と最後の頁 108212
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jece.2022.108212	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 S. Shigenobu, H. Hojo, H. Einaga	4. 巻 61
2. 論文標題 Catalytic Oxidation of CO to CO ₂ over CeO ₂ -Supported Pd-Cu Catalysts under Dilute O ₂ Conditions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Industrial and Engineering Chemistry Research	6. 最初と最後の頁 15856-15865
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.iecr.2c02199	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 S. Ding, C. Zhu, H. Hojo, H. Einaga	4. 巻 323
2. 論文標題 Effect of Cobalt Substitution into Copper-Manganese Oxides on Enhanced Benzene Oxidation Activity	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Catalysis B: Environmental	6. 最初と最後の頁 122099
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apcatb.2022.122099	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 H. Hojo, Y. Inohara, R. Ichitsubo, H. Einaga	4. 巻 410
2. 論文標題 Catalytic properties of LaNiO ₃ and Mn-modified LaNiO ₃ catalysts for oxidation of CO and benzene	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Catalysis Today	6. 最初と最後の頁 127-134
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cattod.2022.07.002	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 X. Liu, S. Ding, S. Shigenobu, H. Hojo, H. Einaga	4. 巻 376
2. 論文標題 Catalyst design of Pt/TiO ₂ microsphere for benzene oxidation under microwave irradiation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Catalysis Today	6. 最初と最後の頁 285-291
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cattod.2020.05.021	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 A. Doi, K. Obata, S. Matsushima, H. Hojo, and H. Einaga	4. 巻 47
2. 論文標題 Fabrication and characterization of La-added MgFe ₂ O ₄ as catalyst support for CO oxidation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Ceramics International	6. 最初と最後の頁 32786-32793
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ceramint.2021.08.175	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 S. Ding, C. Zhu, H. Hojo, H. Einaga	4. 巻 424
2. 論文標題 Enhanced Catalytic Performance of Spinel-type Cu-Mn Oxides for Benzene Oxidation under Microwave Irradiation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Hazardous Materials	6. 最初と最後の頁 127523
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jhazmat.2021.127523	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 永長久寛, 那須勇作, 小田学	4. 巻 5
2. 論文標題 LaMnO3ペロブスカイト型酸化物のマイクロ波加熱昇温特性を支配する因子についての考察	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 日本電磁波エネルギー学会誌	6. 最初と最後の頁 22-28
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hamashima Tatsuya, Sugiyama Takeharu, Hojo Hajime, Einaga Hisahiro	4. 巻 158
2. 論文標題 Microwave-assisted CO oxidation over LaNiO3 and Ce-promoted LaNiO3	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers	6. 最初と最後の頁 105041 ~ 105041
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jtice.2023.105041	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ding Siyu, Zhu Chen, Hojo Hajime, Einaga Hisahiro	4. 巻 323
2. 論文標題 Insights into the effect of cobalt substitution into copper-manganese oxides on enhanced benzene oxidation activity	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Catalysis B: Environmental	6. 最初と最後の頁 122099 ~ 122099
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apcatb.2022.122099	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 丁思宇、北條 元、 永長久寛
2. 発表標題 マイクロ波を援用した低濃度VOCの触媒酸化反応
3. 学会等名 第130回触媒討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hisahiro Einaga, Siyu Ding, Hajime Hojo
2. 発表標題 Catalytic properties of manganese-based mixed metal oxides under microwave heating for air pollution control
3. 学会等名 1st Japan-China Symposium on Catalysis (1stJCSC) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 永長久寛
2. 発表標題 マイクロ波を利用した触媒酸化反応
3. 学会等名 第61回触媒研究懇談会（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 濱島達也・重信咲季・北條元・永長久寛
2. 発表標題 マイクロ波照射下におけるLa-Ni-Ce系酸化物触媒の特性解明
3. 学会等名 第132回触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 重信咲季・濱島達也・北條元・永長久寛
2. 発表標題 マイクロ波援用NO直接分解反応のための触媒探索
3. 学会等名 第132回触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 伊藤健登・濱島達也・重信咲季・北條元・永長久寛
2. 発表標題 Ba-Mn系酸化物を触媒としたマイクロ波援用排ガス浄化プロセスの開発
3. 学会等名 第132回触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 濱島達也・渡邊賢・北條元・永長久寛
2. 発表標題 La-Ce-Ni 系酸化物触媒のマイクロ波加熱挙動の解析
3. 学会等名 第17回日本電磁波エネルギー応用学会シンポジウム
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	宮脇 仁 (Miyawaki Jin) (40505434)	九州大学・先端物質化学研究所・准教授 (17102)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------