

ノート

ベンゼンのプラズマ分解反応に与えるリアクタの影響

尾形 敦^{*1}, 宮前景子^{**}, 水野光一^{*}, 櫛山 晓^{*}, 手塚 還^{**}

(1999年12月28日受付, 2000年2月19日受理)

Effect of Reactor Structure on Nonthermal Plasma Reaction of Benzene

Atsushi OGATA^{*1}, Keiko MIYAMAE^{**}, Koichi MIZUNO^{*}, Satoshi KUSHIYAMA^{*}

and Meguru TEZUKA^{**}

(Received December 28, 1999; Accepted February 19, 2000)

The reaction behavior of benzene oxidation was compared in two types of plasma reactors packed with the BaTiO₃ pellets: one had two electrodes made of stainless steel (SUS-reactor) and the other had glass layer between two concentric electrodes (GL-reactor). It was found that the benzene conversion and the suppression of N₂O, NO_x, and C₂H₂ formation in the GL-reactor were greater than those in the SUS-reactor. On the contrary, the suppression of O₃ formation in the SUS-reactor was superior to that in the GL-reactor.

1. はじめに

これまでに我々は、パックトベッドプラズマリアクタを用いて低濃度ベンゼンの分解反応を行い、充填材料等のプラズマ操作因子が分解性能及び生成物に与える影響を明らかにしてきた¹⁾。しかし、この放電方式では N₂O や NO_x の発生を抑制することが困難である。一方、空気中での放電現象が種々のリアクタで報告されており²⁻⁴⁾、生成物の種類、濃度、生成する割合等はそれぞれに異なっている。本研究では、2種類の異なる構造のプラズマリアクタでベンゼン分解反応を行い、分解性能並びに生成物の比較・検討から、両リアクタの特徴を明らかにした。

2. 実験方法

2.1 プラズマリアクタシステム

用いたプラズマリアクタは、いずれも電極を同軸に配した構造を持ち BaTiO₃ ペレット ($\epsilon=4,000$, 粒径 2mm) を充填したものである。一方は両電極の材質が共にステン

レス製 (SUS, ギャップ長 : 10mm) であり、他方は同軸の中心電極にステンレス製のものを用い外側電極の内側に石英管 (GL, ギャップ長 : 6.5mm) を挟み込んでいる。これら 2種類のリアクタには同量(26mL)の BaTiO₃ を充填し、反応ガス流速と滞留時間の関係が両リアクタで等しくなるようにした。反応実験では 0.5% の水蒸気 (H₂O) を含む空気バランスの 200 ppm ベンゼンを流速 200 cm³/min(滞留時間 2.3sec) でリアクタへ導入し、両極に交流高電圧を印加した。

2.2 分析・計測器

生成物はオンラインで自動サンプリングを行い、ガスクロマトグラフ、化学発光式 NO_x 計、オゾンモニタ及び赤外分光光度計(FT-IR)を用い定量を行った。リアクタの放電電力は、オシロスコープに取り込んだアンプの電圧、電流値から求めた。

3. 結果と考察

3.1 電極の違いが分解効率及び生成物に与える影響

図 1 に、両リアクタに 50Hz の正弦波の交流高電圧を印加したときの放電電力に対するベンゼンの転化率を示す。図中白抜きは SUS リアクタでの結果を、黒印は GL リアクタでの結果を示す。これより、同じパックトベッド方式でも GL リアクタでは SUS リアクタよりもベンゼン除去効率が高くなることが明らかになった。

いずれの場合も酸化生成物のほとんどは CO と CO₂ であり、SUS リアクタではこれまで報告してきたように

キーワード: 低温プラズマ, O₃, NO_x, 電極材料

*資源環境技術総合研究所大気圈環境保全部(305-8569
茨城県つくば市小野川 16-3)

Atmospheric Environmental Protection Dept., National Institute for Resources and Environment, 16-3 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8569, Japan ¹ogata@nire.go.jp
**埼玉工業大学工学部環境工学科(369-0293 埼玉県岡部町普済寺 1690)

Department of Environmental Engineering, Saitama Institute of Technology, 1690 Okabe-machi, Osato-gun, Saitama 369-0293, Japan

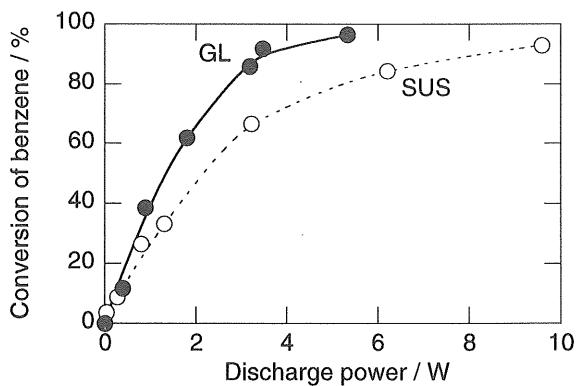
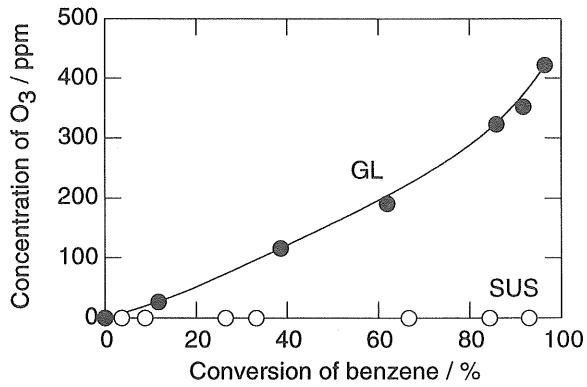


図 1 SUS 及び GL リアクタにおけるベンゼンの転化率

Fig.1 Conversion of benzene on the SUS and GL reactors.

図 2 ベンゼンの転化率に対する O_3 発生挙動Fig.2 Behavior of O_3 formation as a function of benzene conversion.

炭素の物質収支([生成した CO と CO_2]/[反応したベンゼンの C 量])が良く、ほぼ 100%に近い^①。しかし、GL リアクタでは物質収支が悪く(60%以下)，これまでにいくつかの反応系で報告されているような粒子状物質の生成や炭素析出が生じるものと考えられた^⑤。また、生成していく CO と CO_2 の割合も、SUS リアクタよりも GL リアクタの方が CO_2 選択率が高いことが明らかになった。

3.2 副生成物の発生挙動

図 2 にベンゼン転化率に対する O_3 の生成挙動を示す。

SUS リアクタでは O_3 は観測されなかったが、GL リアクタではベンゼン転化率 95%で最大 400 ppm の O_3 が認められた。これまでに低い誘電率のセラミック($\epsilon < 330$)を充填した SUS リアクタでは、 O_3 が発生すること(< 300 ppm)がわかっている^①。GL リアクタは電極間に誘電率の低い石英管($\epsilon \approx 4$)を挟みこんだ構造をしており、これが O_3 発生に重要な役割を果たしていると考えられた。

一方、NOx 計で検出される NOx は、図 3 に示す様に SUS リアクタではベンゼンの転化率とともに増加するが、GL リアクタではほとんど観測されなかった。しかし、反応ガスを FT-IR で分析したところ、GL リアクタでのみ

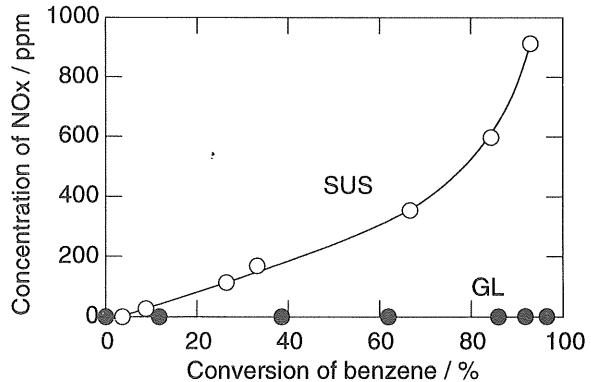


図 3 ベンゼンの転化率に対する NOx 発生挙動

Fig.3 Behavior of NOx formation as a function of benzene conversion.

微量の HNO_3 が認められた。これは、生成した NOx と O_3 及び H_2O との反応に起因するものと考えられるが、これを考慮したとしても全窒素酸化物量($NO_x + HNO_3$)は GL リアクタでは SUS リアクタの約 1/10 と少ない。両リアクタの大きな違いは、 $BaTiO_3$ ペレットが接するリアクタ壁の材質であることから、NOx の発生は主に金属電極近傍で起こっている可能性が示唆される。

また、その他の微量生成物として、両リアクタとも N_2O と C_2H_2 の発生が観測されたが、その発生量は GL リアクタの方が SUS リアクタよりも小さいことが明らかになった。

4. まとめ

化学物質のプラズマ分解で問題となる有害副生成物の発生抑制を目指し、構造の異なるリアクタを用いて反応を行い、その特徴を明らかにした。その結果、ベンゼン転化率、NOx、 N_2O 、 C_2H_2 の発生抑制、及び酸化生成物中の CO_2 選択率に関しては GL リアクタが優れていること、逆に O_3 の発生抑制に関しては SUS リアクタが優れていることが明らかになった。本研究により、プラズマリアクタの材質を変えることによってベンゼン転化率及び生成物をコントロールできる可能性が示された。

参考文献

- 1) A. Ogata, N. Shintani, K. Mizuno, S. Kushiyama and T. Yamamoto: IEEE Trans. Ind. Appl., 35(1999)753
- 2) B. Eliasson and U. Kogelschatz: J. Chim. Phys., 83(1986)279
- 3) D. K. Brandovold, P. Martinez and D. Dogruel: Atmos. Environ., 23(1989) 1881
- 4) K. G. Donhole, F. H. Shair and O. R. Wulf: Ind. Eng. Chem. Fundam., 27(1988)1264
- 5) T. Yamamoto, P. A. Lawless, M. K. Owen, D. S. Ensor and C. Boss: NATO ASI Series, G34 PartB(1993)223