

ノート

ハロゲン系有害大気汚染物質の分解反応に及ぼす プラズマ発生法の影響

二村 森^{*1}, 張 愛華^{**2}, 永長久寛^{*}

(2000年4月22日受付, 2000年5月26日受理)

Effect of Plasma-generating Methods on the Decomposition of Halogenated HAPs

Shigeru FUTAMURA,^{*1} Aihua ZHANG,^{**2} and Hisahiro EINAGA^{*}

(Received April 22, 2000; Accepted May 26, 2000)

Performances of nonthermal plasma reactors such as ferroelectric packed-bed (FPB) and silent discharge (SDP) were compared in the decomposition of trichloroethylene ($\text{Cl}_2\text{C}=\text{CHCl}$, TCE), bromomethane (CH_3Br), and tetrafluoromethane (CF_4). In dry N_2 , comparable performances were observed for FPB and SDP in the conversions of the above HAPs. Humidity suppressed the decomposition of TCE with FPB and SDP. However, TCE conversions were higher in air rather than in N_2 only with SDP. $\text{O}(\text{P})$ is considered to accelerate the oxidative decomposition of TCE.

1. はじめに

有害大気汚染物質 [Hazardous Air Pollutants (HAPs)] の分解処理に低温プラズマ法を実用化するためには、プラズマ発生法が HAPs の分解特性に与える影響を知る必要がある。本報告では、パケットベッド型反応器 (FPB) と無声放電型反応器 (SDP) を用いた際に、トリクロロエチレン ($\text{Cl}_2\text{C}=\text{CHCl}$, TCE)、臭化メチル (CH_3Br)、テトラフルオロメタン (CF_4) といったハロゲン系 HAPs の分解挙動にプラズマ発生法が与える影響について述べる。

2. 実験

2.1 プラズマ反応装置

プラズマ反応器としては、 BaTiO_3 を充填した FPB と SDP を用いた¹⁾。HAPs の分解反応では FPB、SDP の

両電極間に 50Hz の交流電圧を印加した。

両者の一次側の消費電力をデジタルパワーメーターにより測定し、消費電力とガス流速の比により投入電力密度 [Specific energy density (SED) in kJ/L] を算出した。

2.2 HAPs のプラズマ分解反応

反応ガスはマスフローコントローラを並置したガス混合器を通して反応器に導入した。

各プラズマ反応器を用いた際、FPB と SDP のガス滞留時間はそれぞれ 3.0~8.9 s (1.5~0.5 L/min)、0.36~1.80 s (0.5~0.1 L/min) であった。

加湿実験の場合、水は反応ガスとの同伴蒸発により反応系に導入した。気流中の水分濃度は約 2% であった。

2.3 分析

副生成物は GC-MS により同定し、HAPs 分解率と副生成物収率は GC により算出した¹⁾。

副生オゾンの濃度は光度測定式オゾン計により行った。

3. 結果と考察

3.1 HAPs 分解で得られる副生成物

TCE と CH_3Br のプラズマ分解で得られる副生成物は既報に記載したとおりである^{2,3)}。 CF_4 の分解生成物について確認できたものは CO 、 CO_2 であり、 $\text{CF}_3\text{-CF}_3$ 等のフッ素系有機化合物の生成は確認できなかった。 N_2O の生成は FPB

キーワード: 低温プラズマ, HAPs, プラズマ発生法

*資源環境技術総合研究所大気圏環境保全部(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 ¹futamura@nire.go.jp

**資源環境技術総合研究所エネルギー資源部(305-8569 茨城県つくば市小野川 16-3)

Energy Resources Dept., National Institute for Resources and Environment, 16-3, Onogawa, Tsukuba, Ibaraki, 305-8569 Japan ²zhang@mail2.nire.go.jp

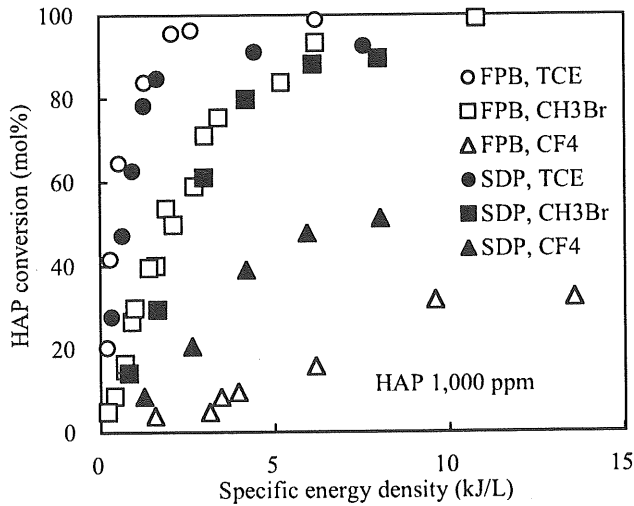


図 1 乾燥窒素中の TCE、CH₃Br、CF₄ 転化率に及ぼす反応器の影響

Fig. 1 Effect of plasma reactors on the conversions of TCE, CH₃Br, and CF₄ in dry N₂.

でのみ確認され、SDP 使用時、NO_x は微量だけ生成した。

3.2 乾燥窒素中における HAPs 分解率に及ぼす反応器の影響

乾燥窒素中における TCE、CH₃Br、CF₄ の分解率に及ぼす反応器の影響を図 1 に示す。定性的にはいずれの反応器を用いても反応性の序列は TCE > CH₃Br > CF₄ の順に減少した。TCE と CH₃Br について同じ SED で比較すると、FPB の方が SDP より高い分解率が得られた。これはガス滞留時間の差によるのであろう。

CF₄ の分解率については、SED が等しい条件下で SDP を用いたときの方が FPB のときより高い分解率を与えた。CF₄ の場合に TCE や CH₃Br の場合と異なる反応器依存性が現れたことについては、投入電力量や滞留時間の相違では説明がつかない。FPB の場合は、CF₄ の分解で生成するフッ素系ポリマー等の生成物による阻害要因が考えられる。

3.3 TCE 転化率に及ぼすバックグラウンドガスと加湿水の影響

FPB により TCE を分解すると乾燥窒素中と乾燥空気中でほぼ同程度の転化率が得られた。また、反応ガスを加湿すると転化率は抑制された。これに対して SDP を用いた場合には明らかに乾燥空気中の方が乾燥窒素中より高い転化率が得られた (図 2)。SDP を乾燥窒素中で用いた場合、TCE 分解率はガス滞留時間の影響を受けなかったが、空気中では、同じ SED でも滞留時間が長いほど TCE 分解率が高くなった。

SDP を反応器として用いると、空気から相当量のオゾン

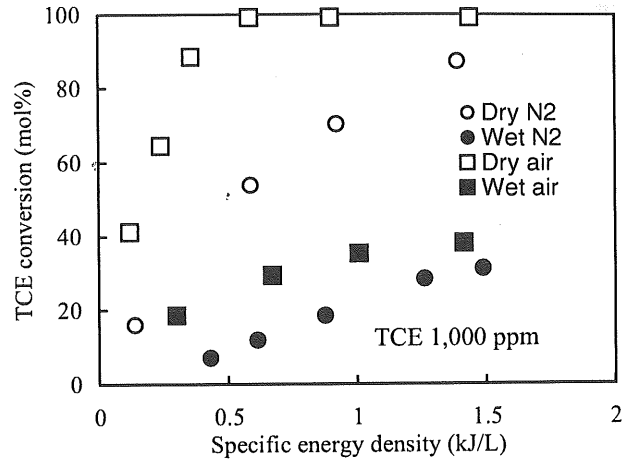


図 2 SDP による TCE 分解反応に及ぼすバックグラウンドガスと加湿水の影響

Fig. 2 Effect of background gas and humidity on TCE conversion with SDP.

が生成したが、副生オゾン濃度はガス滞留時間が長くなると減少し、最大流速 0.5 L/min では SED の増加につれて 300 ppm で飽和する傾向が認められた。プラズマ中でオゾンの分解が生成反応と拮抗していることが示唆される。また、空気のプラズマ反応で生成するオゾン濃度は TCE の有無によらず、同一反応条件下でほぼ同等であった。

TCE とオゾンの反応性が低いことは既に報告されている⁴⁾。酸素分子やオゾンの分解で生成する一重項酸素原子 [O(¹D)] の寿命が気相系で短いことを考慮すると、TCE の酸化分解を促進した活性酸素種は基底状態の三重項酸素原子 [O(³P)] であると考えられる。

4. まとめ

1) FPB と SDP の反応器特性の違いは酸素存在下におけるオゾンや酸素原子の発生効率の差にあり、SDP では、酸素原子による HAP の酸化分解が促進される。

2) CF₄ の分解では投入電力密度一定の条件下で SDP の方が FPB よりも高い分解特性を示した。FPB の方がフッ素系副生成物による反応阻害効果をより強く受けるものと考えられる。

参考文献

- 1) 二タ村 森、張 愛華: 静電気学会講演論文集 '99, p. 321, 静電気学会 (1999)
- 2) S. Futamura and T. Yamamoto: IEEE Trans. Ind. Applicat., 33 (1997) 447
- 3) A. Zhang, S. Futamura, and T. Yamamoto: J. Air & Waste Assoc. Manage., 49 (1999) 1442
- 4) R. Atkinson, D. L. Baulch, R. A. Cox, R. F. Hampson, Jr., J. A. Kerr, and J. Troe: J. Phys. Chem., Reference Data (1980-1992)