

ノート

空気気流中のベンゼン分解反応における無声放電リアクタと酸化チタンの複合効果

永長久寛*, 椋島一*, 二ヶ村森*

(2002年6月25日受付, 2002年9月4日受理)

Hybridization of Silent Discharge Reactor and Titanium Dioxide for Benzene Decomposition in Air

Hisahiro EINAGA, Hajime KABASHIMA, and Shigeru FUTAMURA

(Received June 25, 2002 ; Accepted September 4, 2002)

A silent discharge plasma reactor (SDR) combined with TiO_2 catalyst was used for benzene decomposition in air. Benzene conversion and CO_2 yield were improved by combining TiO_2 catalyst with SDR, while CO yield was almost unchanged. The carbon balance increased with increasing SED, however, the carbon balance was lowered by combining TiO_2 catalyst due to the formation of carbonaceous materials on the catalyst surface. The structure of carbonaceous materials was characterized by diffuse reflectance FTIR study.

1. はじめに

低温プラズマは揮発性有機化学物質 (VOCs) の分解方法として有効であるが, 実用的な排ガス処理システムを構築するためにはエネルギー効率の向上が望まれている。すでに我々は低温プラズマと触媒の複合作用について検討しており, 無声放電リアクタ (SDR) の後段に酸化マンガンを組み合わせることにより SDR から発生するオゾンが酸化剤として働き, 空気中ベンゼンの分解効率が向上することを報告している¹⁾。

空気中の無声放電場では可視から近紫外領域にかけて輝線が観測される。近紫外光により光触媒が活性化されるため, 低温プラズマと光触媒との複合化による VOCs 分解率の向上が期待されている²⁾。酸化チタンはベンゼン分解反応に有効な光触媒である³⁾。本研究では SDR を用いて空気中ベンゼンの分解反応を行い, 酸化チタンの添加がベンゼン分解効率, CO_x 生成に及ぼす効果, および反応前後の酸化チタン表面状態の変化について検討した。

2. 実験方法

本研究で用いた SDR を図 1 に示す。ステンレススチール製の軸に円筒状の銅ジャケットを取り付けたものを内部電極とし, 外部電極としてパイレックスガラス管にアルミホイルを巻き付けて用いた (リアクタの有効長さ: 10cm, 電極間距離 1.0 mm)。パイレックスガラス管の内側には摺ガラス処理を施しており, 酸化チタンの懸濁液をガラス管内部に塗布した後, 373K にて乾燥させた。コーティングした酸化チタン重量は 60 mg であった。

SDR の消費電力はデジタルパワーメーターにより測定し, この消費電力とガス流速の比により投入電力密度 (Specific energy density, SED, kJ/L) を算出した。

窒素で希釈したベンゼン, 窒素, および酸素をマスフローコントローラーにより制御して混合した後, リアクタに導入した。リアクタ内にてベンゼンの吸着平衡に達した後, 両電極間に 50 Hz の交流電圧を印加して反応を開始した。

ベンゼン, オゾン濃度および生成物の定性, 定量分析は光路長 2.4 m のガスセルおよび TGS 検出器を装填した赤外吸収分光光度計 (日本分光 FT/IR 480 Plus) により行った。反応前後の酸化チタンの拡散反射 FTIR スペクトルは, サンプルを反応器から取り出して拡散反射セル (日本分光 DR-81) に装填し, KBr を基準として測定した (分解能: 4 cm^{-1})。得られたデータは Kubelka-Munk 変換した。

キーワード: 無声放電リアクタ, 酸化チタン, ベンゼン, 分解反応

*産業技術総合研究所環境管理研究部門 (305-8569 茨城県つくば市小野川 16-1)

Institute for Environmental Management Technology,
National Institute of Advanced Industrial Science and
Technology, AIST Tsukuba West, 16-1 Onogawa, Tsukuba,
Ibaraki 305-8569, Japan

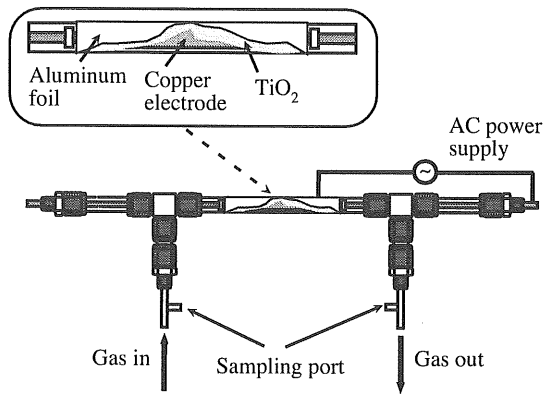


図1 SDR-酸化チタン複合反応器

Fig. 1 SDR-TiO₂ combined reactor.

3. 結果と考察

ベンゼンの分解反応に及ぼす酸化チタンの複合効果を図2に示す。反応はベンゼン濃度 100 ppm, 流量 100 ml/min の乾燥空気中にて行った。ベンゼン分解率および CO_x 生成量は反応が定常状態に達した後に求めた。SED の増加に伴いベンゼン分解率および CO_x 生成量は単調に増加している。酸化チタンを無声放電器内に装填することにより分解率は2倍程度向上し、CO₂ 生成量も増大したこれに対し、CO 生成量はほとんど変らなかった。なお、この際の炭素収支(ベンゼン分解量に対する CO_x の生成量)も SED の増加に伴い増大したが、酸化チタン無添加の場合において 75~95% と高い収支が得られたものの、酸化チタンを添加した際には 30~70% に低下した。

反応終了後、酸化チタンの色が白色から黄色に着色した。この着色した酸化チタンサンプルの拡散反射 FTIR スペクトルを図3に示す。反応前のサンプルでは、1620 cm⁻¹ および 2600~3650 cm⁻¹ の領域に酸化チタン表面の物理吸着水、3650~3700 cm⁻¹ の領域に表面水酸基に帰属されるバンドがそれぞれ観測されている(図3(a))。一方、ベンゼン分解反応後のサンプルでは、1200~1800 cm⁻¹ の領域に新しいバンドが生成しており、酸化チタン表面に炭素析出物が生成したことが分かった(図3(b))。酸化チタンの添加により炭素収支が低下したのはこれら炭素析出物の生成によるものと考えられる。-C=O 基 (1720 cm⁻¹)、-C-O- 基 (1430 cm⁻¹) が観測されていることから、炭素析出物には酸化分解生成物が含まれており、活性酸素種の付加反応が進行したものと考えられる。また、反応後のスペクトルでは 3650~3700 cm⁻¹ の表面水酸基が消失しており、これら表面水酸基が反応に関与したことが示唆される。なお、上記の反応条件では SDR より 800~1800ppm 程度の

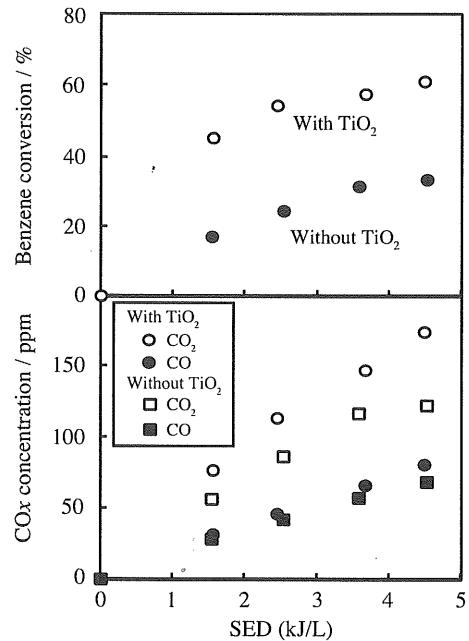


図2 ベンゼン分解反応における酸化チタン添加効果

Fig. 2 Effect of TiO₂ loading on benzene decomposition.

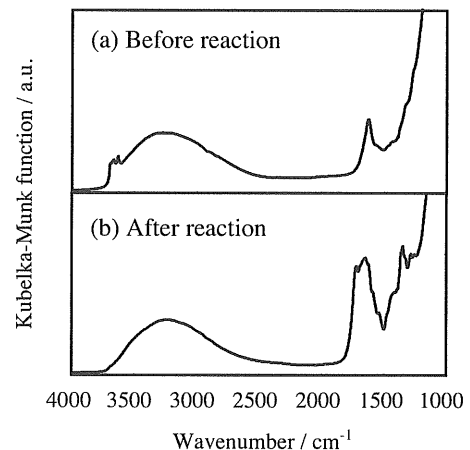


図3 酸化チタンの拡散反射 FTIR スペクトル

Fig. 3 Diffuse reflectance FTIR spectra of TiO₂.

オゾンが発生するが、酸化チタンを添加してもオゾン発生量にほとんど変化は見られなかった。

参考文献

- 1) H. Einaga, T. Ibusuki and S. Futamura: *IEEE Trans. Ind. Applicat.*, **37** (2001) 1476.
- 2) 木佐貫善行, 吉田雅弘, 高島和則, 桂進司, 水野彰, 李成華, 洪寧基, 姜光玉: *静電気学会誌*, **24** (2000) 153.
- 3) H. Einaga, S. Futamura, T. Ibusuki: *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **1** (1999) 4903.