

ノート

放電プラズマによるベンゼン分解におけるナノサイズ エアロゾルの生成

金 賢夏^{*1}, 小原ひとみ^{*}, 尾形 敦^{*}, 二タ村 森^{*}

(2002年11月22日受付, 2003年1月10日受理)

Nano-Sized Aerosol Formation From Benzene Decomposition Using Non-Thermal Plasma

Hyun-Ha Kim, ^{*1} Hitomi Kobara, ^{*} Atsushi Ogata, ^{*} and Shigeru Futamura ^{*}

(Received November 22, 2002; Accepted January 10, 2003)

Nano-sized aerosols are formed in the decomposition of benzene using a barrier-type plasma reactor and a BaTiO₃ packed-bed plasma reactor. In the barrier-type plasma reactor, both of the size of aerosol and number concentration increased with the increase of specific input energy. Peak size and the corresponding number concentration reached 19 nm and 1.19×10⁵ particles/cm³ at 550 J/L, respectively. In packed-bed plasma reactor peak size was 14.3 nm at the same conditions. Number concentration at the peak size was 3.7×10³ particles/cm³, which was about 2 orders of magnitude lower than that of the barrier-type reactor.

1. はじめに

放電プラズマと電子ビームによる芳香族有機化合物の分解では、副生成物としてエアロゾルが生成すると報告されている^{1),2)}。これは、蒸気圧の低い有害ガスを粒子化させ捕集する新しい空気浄化法のみならず、超微粒子を用いる高機能材料開発などの観点からも非常に重要である。しかしプラズマ反応による粒子化の初期段階の情報を含んでいるナノサイズエアロゾルに関する研究報告は少ない。

本研究では、放電プラズマによるベンゼン分解からのナノサイズのエアロゾル生成について検討を行った。バリア放電プラズマ反応器における比投入エネルギーを変えた場合のエアロゾルの粒径分布を調べるとともに、バリア放電プラズマ反応器と誘電体(BaTiO₃)充填層プラズマ反応器におけるエアロゾル生成特性についても比較を行った。

キーワード : 放電プラズマ, エアロゾル, ベンゼン

^{*}産業技術総合研究所 (305-8569 茨城県つくば市小野川16-1 産総研西)

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

¹ hyun-ha.kim@aist.go.jp

2. 実験

本研究で使用したプラズマ反応器はバリア放電プラズマ反応器と誘電体(BaTiO₃)充填層反応器の二つである。バリア放電プラズマ反応器は、内径 9mm、長さ 130mm のガラス管の中にコイル状のステンレスワイヤーを挿入し、外側にアルミ箔を巻いた構造である。充填層反応器には粒径 2mm の BaTiO₃ ペレット (誘電率=5000) を充填したものをを用いた。ベンゼンはガスボンベを用い 133ppm の試料ガスを調製した。ガス流量は 0.6L/min、酸素濃度は 20% とした。エアロゾル分析には、走査型モビリティー粒径分析器 (SMPS, TSI-3934) と CPC (TSI-3022) を用い、10-100nm 範囲の粒径分布とエアロゾルの個数濃度を測定した。プラズマ反応器からエアロゾル分析器までの距離はおおよそ 70cm であり、配管は帯電によるロスが少ないタイゴンチューブを用いた。バリア放電における過酸化水素の同定は KI 法により行った。電源には 50Hz のネオントランスを用いた。バリア放電の放電電力は、1.0μF のコンデンサーを接地電極に直列に挿入して電荷量を測定し、V-Q リサーチ法により求めた。放電電流が無数のパルス状に流れる充填層反応器の場合は放電電力の計測が困難であるため、1次側で測定した入力電力によりバリア放電との比較を行った。

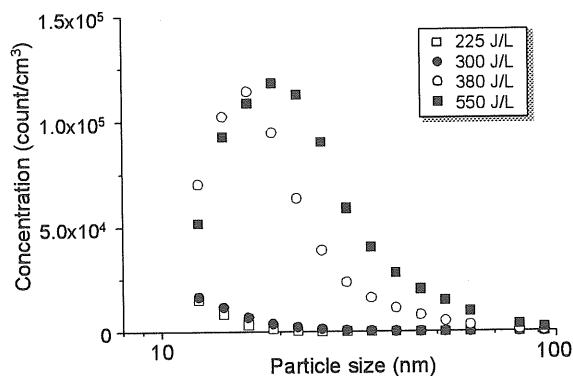


図1 バリア式反応器でのエアロゾルの生成に及ぼす比投入エネルギーの影響 ($[\text{H}_2\text{O}] = 0.5\text{v}\%$, $[\text{C}_6\text{H}_6] = 133\text{ppmv}$)

Fig.1 Effect of specific input energy on the aerosol formation in the barrier-type reactor. ($[\text{H}_2\text{O}] = 0.5\text{v}\%$, $[\text{C}_6\text{H}_6] = 133\text{ppmv}$)

3. 結果と考察

バリア放電プラズマ反応器における比投入エネルギーを変えた時のエアロゾルの生成特性を図1に示す。比投入エネルギー300J/L以下の場合、粒径10nm以上のエアロゾルは少なく、ピーク粒径も10nm以下であることが分かる。さらに、比投入エネルギーを増加させると粒径分布が大きいほうに移動し、380J/Lではピーク粒径が16.5nm、550J/Lでは19nmまで成長した。個数濃度も入力電力とともに増加し、550J/Lの条件ではピーク粒径の個数濃度は 1.19×10^5 個/cm³であった。箱田らによれば、数千ppmvの水分を含んだ空気に電子ビームを照射すると7nm付近にピークを持つ過酸化水素のエアロゾルが生成するとともに、ppbvオーダーのベンゼンを添加すると粒径は濃度に比例して7nmから大きくなる³⁾。バリア放電でも気相における過酸化水素の生成がKI法により確認されたことから、放電プラズマでも電子ビームと同様に過酸化水素エアロゾルがコアとなり、粒子が成長していると予想される。

バリア放電プラズマ反応器(a)と誘電体充填層反応器(b)におけるエアロゾルの生成特性を図2に示す。この場合、入力電力は10Wとした。ベンゼンを添加しない加湿空気において、バリア放電の場合には10nm以上のエアロゾル生成は認められないが、充填層反応器の場合には14.3nmにピークを持つ粒径分布を示した。充填層反応器におけるこのバックグラウンドエアロゾルは、BaTiO₃表面からスパッタリングにより生成していると考えられる¹⁾。一方、ベンゼン133ppmvを加えるとバックグラウンドに比べ粒径が大きくなるが、ピーク粒径は19nmと14.3nmでバリア放電反応器の方が大きい。エアロゾルの個数濃度もバリア放電反応器の方が2桁程度高いことが分かった。充填層反応器では、プラズマの生成やそれに伴う化学反応場が

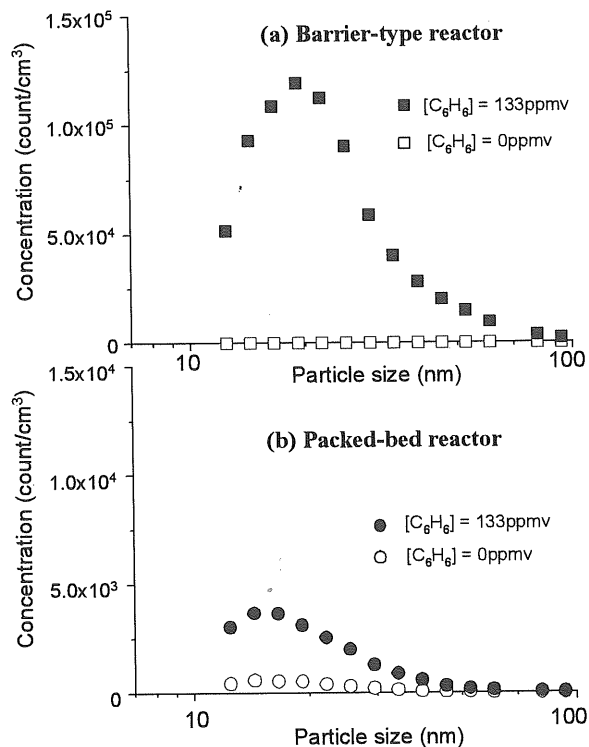


図2 バリア式反応器及び充填層反応器におけるエアロゾル生成特性の比較 (10W, $[\text{H}_2\text{O}] = 0.5\text{v}\%$)

Fig. 2 Comparison of aerosol formation in the barrier-type reactor and the packed-bed type reactor. (10W, $[\text{H}_2\text{O}] = 0.5\text{v}\%$)

BaTiO₃表面付近であることから、表面反応がエアロゾルの生成を抑制していると考えられる。

4. まとめ

放電プラズマによるベンゼン分解反応からナノサイズのエアロゾルの生成が認められた。バリア式プラズマ反応器の場合、比投入エネルギーの増加とともにエアロゾルの粒径及び個数濃度が増加することが分かった。充填層反応器はバリア式反応器に比べ粒子化は少なく、ピーク粒径の個数濃度はバリア式反応器に比べ2桁低い値を示した。

本研究を行うにあたり、日本原子力研究所の箱田照幸氏の有益な助言に深い謝意を表します。

参考文献

- 1) 山本俊昭: エアロゾル研究, 15 (2000) 102
- 2) C.Wu, T.Hakoda, K.Hirota and S.Hashimoto: エアロゾル研究, 12 (1997) 11
- 3) 箱田照幸, 小嶋拓治, 金賢夏, 奥山喜久夫: 第19回エアロゾル科学・技術研究討論会, 199 p (2002)