

博士學位論文審査要旨

学位申請者氏名	岩村 泰明
論文題目	チタン電極を用いた大気圧プラズマによるベンゼン分解の研究
審査委員 (職名・氏名・印)	
主査	教授 齋藤 洋司
審査委員	教授 瓜生 芳久
	教授 里川 重夫
論文審査結果 (合 否)	合 格
論文審査の要旨	<p>種々の産業において様々な化学物質が使用されているが、その中でも揮発性有機化合物(VOC: Volatile Organic Compounds)の大気への放出が環境汚染の恐れがあるとして問題になっている。これらの多くは人体に有害であり、排出が規制されているため、処理方法として、主に燃焼法、触媒法などの実用化がなされてきた。しかし、これらの方法は、特に低濃度の VOC 分解には不向きである。これまで、主に燃焼法が用いられているが、VOC の濃縮装置や補助燃料を必要とするためコストが高く、また、二酸化炭素の放出が増加する問題がある。また、触媒法では分解効率を向上するため高温にする必要があり、エネルギー消費量が大きい。これらの方法に替わる処理方法として、大気圧プラズマを用いた方法が提案されている。プラズマ法は、低濃度の VOC を高速かつ高効率で分解できる利点がある。さらに、近年ではより効率的な分解処理方法として、触媒を併用した方法も提案されている。しかし、反応容器に触媒ビーズを充填する方法では流入ガスの圧力損失が大きい欠点があり、触媒を塗布する方法では膜の剥離が生じ耐久性が劣る等の欠点がある。</p> <p>本論文では、低濃度 VOC を低消費エネルギーで効率良く分解することを目的とし、圧力損失の少ない大気圧プラズマ装置と耐久性の高い触媒を併用する新たな方法を提案し、実験を行った結果とその検討について記述している。</p> <p>本論文は 6 章よりなる。</p>

論文審査の要旨 (続)

第 1 章では、本研究の背景として、先ず、現在までの VOC 無害化の研究に関する知見を整理するとともに、特に大気圧プラズマを用いた VOC 分解法に関連する過去に発表された主な研究について記述している。さらに、これまでに主に提案されている大気圧プラズマと触媒を併用する方法について記述している。それらの問題点を提起するとともに、本研究では、大気圧プラズマとしてバリア放電を用いること、さらに、ロッド型内部電極として熱酸化膜を有する金属チタンを用いる方法を提案している。プラズマ中では紫外光が発生しており、チタンの酸化物に光触媒効果があれば、有機物分解が促進できると考えられる。また、チタンの熱酸化膜は容易に形成でき、かつ耐久性が大きい。

次に、本研究において被分解ガスとして、対象にベンゼンを選択した理由について記述している。

第 2 章では、大気圧プラズマの様々な発生方法とそのメカニズム、光触媒効果や大気圧プラズマを用いた有機物分解のメカニズムの概略について記述している。

第 3 章では、金属チタンの熱酸化により形成された酸化膜の構造および光触媒効果の評価について述べている。これまで、チタン酸化膜に関する報告はほとんどなされていない。

先ず、金属チタンを 450~650°C の範囲で、大気中または酸素中で 10~20 時間熱酸化を行った。表面に形成された酸化膜を X 線回折法で測定したところ、酸化温度 550°C 以上でルチル型結晶回折ピークが見られたが、500°C 以下では見られなかった。走査電子顕微鏡観察およびエネルギー分散型 X 線分析より、酸化膜の膜厚を推定できた。

次に、400°C~700°C の範囲で熱酸化したチタン板をメチレンブルー水溶液に浸した状態で紫外光を照射した。メチレンブルーの分解率を調べることで光触媒効果の評価を行った。その結果、450°C、10 時間、大気中で酸化処理したチタン板を用いた場合に最大のメチレンブルー分解率を得た。また、同じ酸化温度でも、メチレンブルー分解率はチタン板の酸化処理時間により変化した。酸化膜の紫外領域の反射率を調べたところ、反射率が低いほど分解率が高いことが分かった。よって、薄膜においては光吸収も光触媒効果に影響を与えると考えられる。以上より、最大の光触媒効果を得るには、チタンを大気中で 450°C、10 時間熱酸化すれば良いことを明らかにした。

第 4 章では、バリア放電を用いた大気圧プラズマによるベンゼン分解において、内部電極材料が分解効率に与える影響について検討した。

先ず、従来用いられているステンレス電極およびチタン電極を用いて、ベンゼンのプラズマ分解を行い、分解率を調べた。ステンレス電極に比べ、チタン電極を用いた方が高いベンゼン分解率を得た。これは、チタン電極表面にある自然酸化膜の光触媒効果によるものと考えられる。

次に、大気中 450℃～650℃の範囲で 10 時間熱酸化したチタン電極を用いて、同様な実験を行った。その結果、450℃で酸化処理したチタン電極を用いた場合に、最大のベンゼン分解率を得た。この結果は、第 3 章のメチレンブルー分解実験において 450℃で酸化処理した場合に最大の分解率を得た傾向と一致する。よって、大気圧プラズマによるベンゼン分解処理においても光触媒効果が反応を促進したと考えられる。また、ベンゼン分解に関するこれまでの報告と比較して、最も高いエネルギー効率を得た。

第 5 章では、チタン電極表面に機械加工を施し、電極の形状と放電の状態を明らかにし、ベンゼン分解率に与える影響を調べた。

機械加工としてサンドブラストによる電極表面の粗研磨、およびボルト型への切削加工を施し、酸化処理したチタン電極を大気圧プラズマ装置に組み込み、ベンゼン分解を行った。その結果、未加工のロッド型電極に比べて、ボルト型電極を用いた場合にベンゼン分解率が高くなることが分かった。特に、低い放電電力においてその傾向が顕著であり、ボルト型電極では、放電ストリーマがねじ山の間隔で密に発生するためと考えられる。一方、サンドブラストによる粗研磨を行った電極では、未加工の電極よりもベンゼン分解率が低くなった。微細な凹凸により表面積は増したが、凹部に十分酸化膜が形成されず、十分な光触媒効果が得られなかったためと考えられる。

最後に、第 6 章では結論として、本論文の研究成果を総括している。

本論文では、大気圧プラズマ VOC 分解装置において、初めて内部電極に酸化処理したチタンを用い、光触媒として利用することにより、VOC 分解のエネルギー効率の向上を実現した。また、チタン熱酸化膜の性質を初めて明らかにし、学術的な知見を与えた。本論文の主な内容は、査読付き論文 2 報、国際会議予稿 1 報として公表されている。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文に十分値するものと認める。