○学 高橋 昌斉 (阪府大院) 学 中野 伸昭 (阪府大)
 正 黒木 智之 (阪府大) 正 大久保 雅章 (阪府大)
 正 山本 俊昭 (阪府大)

Masayoshi TAKAHASHI, Nobuaki NAKANO, Tomoyuki KUROKI, Masaaki OKUBO, Toshiaki YAMAMOTO
 Dept. Energy Systems Eng. Osaka Pref. Univ., 1-1 Gakuen-cho, Sakai, Osaka, 599-8531, JAPAN

Simultaneous removal of NO_x, SO_x and particles using a wet-type plasma-chemical hybrid reactor has been studied. NO is oxidized to NO₂ by the pulse corona plasma without producing reaction byproducts. NO₂ is effectively reduced to N₂ and Na₂SO₄ by Na₂SO₃, and SO₂ is reduced to Na₂SO₄ by NaOH. This hybrid process showed almost 100% of NO oxidation to NO₂ and over 95% of SO_x removal with less than 10 ppm of N₂O and CO. However, NO_x removal was 76% because of insufficient scrubbing. More than 88% of soot particles were removed.

Key-words: NO_x, SO_x, Soot particle, Plasma-chemical process, Simultaneous removal

1. 緒言

火力発電所や一般工場、ディーゼル車などから排出される窒素酸化物(NO_x)や硫黄酸化物(SO_x)は酸性雨や地球温暖化の原因物質となっており、その排出量の低減が求められている。また、同時に粒子状物質についても大気汚染の原因物質であるため排出量の低減が求められている。

既報^{(1),(2)}では、非平衡プラズマとケミカルプロセスを併用した2段階の処理を行うことでNO_xとSO_xの同時除去ができることが示されている。本研究では、パルスコロナプラズマプロセスとケミカルプロセスを湿式のプラズマ・ケミカルハイブリッドリアクタを用いることにより同時に行い、1段階の処理でNO_xとSO_x、さらに実際のディーゼルエンジンから排出される微粒子の同時除去を試みた。

2. 実験における反応

実験における主要な反応式を下記に示す。

NO_xに関する主な化学反応は、プラズマによって励起された空気から活性酸素(O)や活性窒素(N)が生じる。NOは、一部は式(1)のようにNOからN₂へと温度に関係なく還元されるが、大部分は式(2)のようにOによりNO₂へと酸化される。

ここでMは第三物質で空気中ではN₂+O₂を示す。一部のNO₂は式(3)や式(4)のようにNやOによりN₂OやNO₃⁻となる。

ここで、(2)の反応エネルギーが低いことに着目して、プラズマプロセスではNOの酸化反応を行い、安価で強力な還元剤である亜硫酸ナトリウム(Na₂SO₃)を利用して、NO₂をN₂とNa₂SO₄に還元するケミカルプロセスを併用したハイブリッド方式を使用した。

一方、SO_xに関する反応式は下記のとおりである。

この実験では、式(2)のようにNOからNO₂への酸化反応を行うプラズマプロセスと、式(5)～(10)のケミカルプロセスを湿式のプラズマリアクタで同時に行うことによりNO_xとSO_xの同時除去を試みた。

3. 実験装置

実験装置の概略図をFig. 1に、実験で用いたウェットタイププラズマリアクタをFig. 2に示す。実験装置は、プラズマリアクタ、ガス分析計、パルス電源、オシロスコープ、マスフローコントローラ、ヒーターからなる。プラズマリアクタは、内径20 mm、外形25 mmのパイレックスガラス製円筒に、直径2.0 mmのステンレス製放電線を通し、円筒外壁に銅製メッシュ(有効長260 mm)を巻いており、放電線を電源装置の正極に接続し、銅製メッシュを接地してこの間で高電圧を印加することによりプラズマを発生させた。また、リアクタ上部は還元剤水溶液(Na₂SO₃とNaOHの混合水溶液)を流し込める構造になっており、リアクタ壁面に還元剤水溶液を流すことができる。

実験では、NO、SO₂、乾燥空気をマスフローコントローラにより所定の流量、濃度に調整された模擬ガスを、ウェットタイププラズマリアクタに通して処理し、ヒーターを通すことによりオゾン除去した後、ガス分析計によってNO、NO_x、CO、N₂O、SO₂の濃度を測定した。リアクタの印加電圧、電流、消費電力はオシロスコープにより測定した。なお、パルス電源の周波数は210 Hz、ガス流量は4 L/min、NOとSO₂の初期濃度は共に200 ppmとした。

また、微粒子除去の実験では模擬ガスの代わりに発電用ディーゼルエンジンの排ガスをポンプにより吸引し、リア

クタ入口で排ガスをフィルタに 20 分間通したものと、リアクタ出口で排ガスを 20 分間通したもののそれぞれについて実験前後のフィルタの重量変化を測定して評価を行った。

4. 実験結果

最初に、 NO_x と SO_x の同時除去の実験結果を Fig.3 に示す。還元剤水溶液の濃度は Na_2SO_3 が 2.0 g/L、 NaOH が 0.7 g/L とした。 NO の濃度は初期濃度 201 ppm に対して、最大消費電力 2.9 W (印加電圧 24 kV) の時には 4.3 ppm とほぼ酸化されていることが分かる。これはリアクタ壁面に還元剤水溶液を流していない場合も同様に酸化されていることを確認している。一方、 NO_x 全体の濃度で見ると 226 ppm から 55 ppm に低下しており、約 76 % の除去効率を示している。一方、 SO_2 の濃度は 10 ppm 以下であり、 NaOH により 95 % 以上の効率で除去されていることがわかる。また、プラズマ発生の際に副生成物として発生する CO 、 N_2O については 10 ppm 以下でほとんど発生していないことが分かる。

次に、微粒子除去の実験結果を Fig. 4 に示す。Fig. 4 (a) はリアクタ入口で排ガスを 20 分間フィルタに通したものの、Fig. 4 (b) はリアクタ出口で排ガスを同じく 20 分間フィルタに通したものである。この時のリアクタの印加電圧は 24 kV、消費電力は 2.9 W である。実験前後の重量変化は Fig. 4 (a) が 0.505 mg に対して、Fig. 4 (b) が 0.059 mg であり、88 % の除去効率を示した。

5. 結言

今回の研究では、 SO_x については 95% 以上の除去効率を示したが NO_x については 76% の除去に止まっている。これについては NO_x の還元反応の際に還元剤水溶液とガスの接触が不十分であることが考えられる。また、微粒子除去については 88 % の除去効率を示した。以上のことより、湿式のハイブリッドプロセスによる NO_x 、 SO_x 、微粒子の 1 段階同時除去が可能であることを確認できた。

Fig. 1 Schematic diagram of experimental setup

Fig. 2 Wet-type plasma reactor

Fig. 3 Gaseous concentration by the wet-type plasma reactor (Simulated gas, $\text{NO}=200$ ppm, $\text{SO}_x=200$ ppm)

(a)inlet

(b)outlet

Fig. 4 Collected soot particles from the diesel exhaust with the wet-type plasma reactor

参考文献

- (1) 山本、静電気学会誌、19、4 (1995)、301
- (2) 山本、他 3 名、機論(B 編)66 巻 646 号(2000)