

Influence of gas mixing on DeNOx reaction in an ammonia radical injection system

○学 寅本 信之介 (岐阜大) 正 義家 亮 (岐阜大) 正 神原 信志 (岐阜大)

Shinnosuke TORAMOTO, Gifu University, Graduate School, 1-1 Yanagido, Gifu, Japan

Ryo YOSHIIE, Gifu University

Shinji KAMBARA, Gifu University

We have been developed a unique De-NOx system by direct ammonia radical injection using an intermittent dielectric barrier discharge (DBD) with a one-cycle sinusoidal-wave power source. Energy efficiency of De-NOx in this system is 120 g-NO/kWh, which is the higher efficiency than other De-NOx systems using different plasma techniques. However, more improvements of energy efficiency are needed for practical use. In this study, effects of gas mixing between ammonia radicals and model gas (NO/N₂) in a reaction chamber on the energy efficiency are investigated. It is found that an increasing of the gas mixing contribute to a substantial increase of the energy efficiency. Three dimension computational fluid dynamics (3D-CFD) simulation coupled with De-NOx mechanisms was carried out to analyze effects of gas mixing. Gas mixing conditions for complete De-NOx reaction were estimated by 3D-CFD simulation with elemental reactions in H-N-O system.

Key Words : Radical, NOx, 3D-CFD, elemental reactions

1. 緒言

我々はこれまでラジカル連鎖反応を利用したラジカルインジェクション脱硝装置の開発を行ってきた¹⁻⁴⁾。アンモニアラジカルインジェクション法とは、NH₃を大気圧アルゴンプラズマで分解し、NOの除去に有効なアンモニアラジカル(NH₂)を生成させ、それを燃焼プロセスに吹き込むことにより高効率脱硝を行うものである。このラジカルインジェクション法は、従来のプラズマ利用脱硝装置のように排ガス全体を励起するのではなく脱硝剤のみを励起するため、電力消費量は極めて少なくなることに加え、装置が小型で単純な構造、冷却水を必要としないことなどの利点を有する。従って、本装置は内陸地にある焼却炉やディーゼル発電プロセス、移動体である大型船舶にも適用可能である。

ラジカルインジェクション場での脱硝反応機構は、ラジカル連鎖反応が支配的と考えられ、これまでガス混合(NOを含むガスと脱硝剤との混合)は、脱硝反応に大きく寄与しないとこれまで考えてきたが、本実験からガス混合は脱硝反応に大きく影響し、ガス混合を促進するほど脱硝率およびエネルギー効率向上することがわかった。ガス混合は、ラジカルインジェクション脱硝装置の最適設計およびスケールアップに影響を及ぼすため、この影響を定量的に把握する必要

がある。本報ではガス混合が脱硝反応に及ぼす影響を、実験および理論解析により把握した。理論解析には、H-N-O系の脱硝素反応式を組み込んだ3次元熱流体素反応シミュレーションを用いた。

2. 脱硝実験

2.1 実験装置および実験方法

Fig.1にラジカルインジェクション脱硝実験装置の概略図を示す。実験装置は、モデルガス(NO+N₂+O₂)供給部、ゴールドファーネス反応管、ラジカルインジェクター、高電圧パルス電源、NOx/N₂O/O₂測定装置よりなっている。燃焼プロセスの排ガスのモデルガスとして、NO、O₂およびN₂をガスブレンダーで混合し、所定の濃度と流量に調節して反応管に供給した。ガス温度はゴールドファーネスで制御した。インジェクターに供給する脱硝剤は、ガスブレンダーでNH₃とArを混合し、所定の濃度と流量を調節して供給した。実験条件をTable 1に示す。脱硝剤流量を1-5 l/minに変化させ、モデルガスと脱硝剤の混合を変化させた。

インジェクター部では、パルス電源(3-15kV, 10kHz)で誘電体バリア放電(DBD)によりアルゴンプラズマを生成し、ここにアンモニアを通過させることによりアンモニアラジ

カル(NH)が生成させる。NHをモデルガスに吹き込むことにより、脱硝反応がおこる。脱硝前後のNOx濃度を反応管排気側に設置したNOx-N₂O分析装置により測定し、脱硝率やエネルギー効率を算出した。

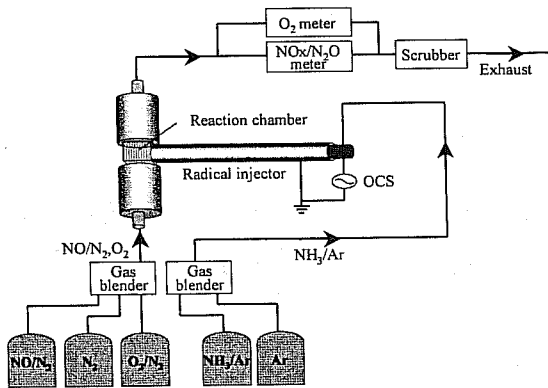


Fig.1 Schematic diagrams of experimental apparatus.

Table 1 Experimental condition.

反応温度 [°C]	360
モデルガス流量 [l/min]	2
脱硝剤流量 [l/min]	1, 2, 3, 5
脱硝剤流速 [m/s]	0.064, 0.127, 0.191, 0.319
酸素濃度 [%]	1, 2, 3
NH ₃ /NOモル比	1.0, 1.2, 1.5
印加電圧 [kV]	3, 4, 5, 7, 10, 13, 15

2.2 実験結果

Fig.2 に反応温度 360°C, NH₃/NO モル比 1.0, モデルガス NO 濃度 1000 ppm, 酸素濃度 1.0%における印加電圧と脱硝率の関係は脱硝剤流量をパラメータとして示す。いずれの流量においても印加電圧 7kV 付近で脱硝率は最大となり、以降次第に減少していく。これは印加電圧により生成するラジカル種やその濃度が変化し、7kV 付近では脱硝に有効な NH₂ ラジカルが多く生成するものと考えており、以降印加電圧の増加に伴い NH₂ ラジカルは脱硝性能が劣る NH ラジカル、N ラジカルへと分解されるものと考えている。

脱硝剤流量（混合）の影響をみると、6 kV 以下の低電圧の領域および 9 kV 以上の高電圧の領域において脱硝剤流量が多いほど脱硝率が高くなっており、ガス混合は脱硝率に影響することがわかる。特に、これまでは電圧の大きいところでの脱硝率の低下が電圧の制御上問題であったが、ガス混合を促進することによって、この問題は解決された。

Fig.3 には NH₃/NO モル比を増加させ 1.5 とし、酸素濃度を 2.0%とした時の脱硝率の変化を Fig.2 と同様に示す。脱硝剤流量が 2.0 l/min になるとわずか 4 kV で脱硝率は 100%を示し、ガス混合の影響は顕著になる。

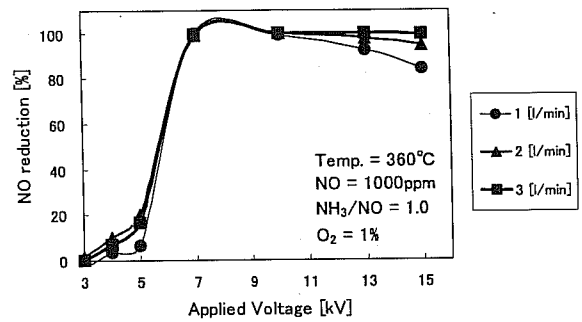


Fig.2 Effect of gas mixing and applied voltage on NO reduction.

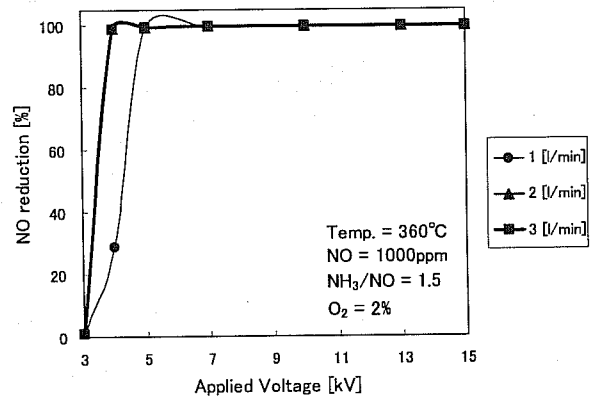


Fig.3 Variation of NO reduction under enough mole ratios.

Fig.4 には Fig.2 の関係をプラズマのエネルギー密度 [$J \cdot cm^{-3}$] と脱硝エネルギー効率 [$g \cdot NO \cdot kWh^{-1}$] の関係として示した。この図がガス混合の影響を明確に示す。同じエネルギー密度で比較すると、脱硝剤の流量が多いほど、すなわちガス混合が促進されるほどエネルギー効率は飛躍的に高くなるのがわかる。また、この実験において印加電圧 4kV, 酸素濃度 2.0%, 脱硝剤流量 3.0 l/min の時、最大脱硝エネルギー効率 102g-NO/kWh を得た。

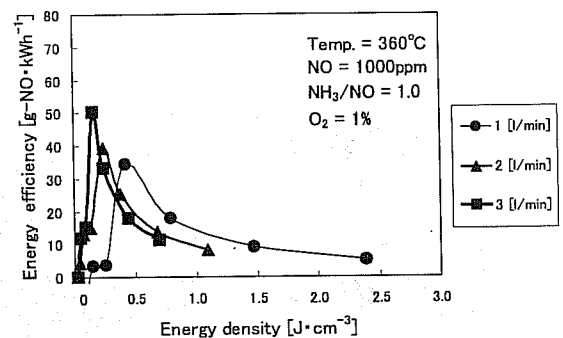


Fig.4 Variation of energy efficiency with flow rate of agent gas.