

Development of N₂O Decomposition by An Atmospheric Plasma

○学 早川 幸男 (岐阜大) 正 神原 信志 (岐阜大)
正 佐々木 統一郎 (メタウォーター) 正 隈部 和弘 (岐阜大)
正 守富 寛 (岐阜大)

Tomonori OKUDA, Gifu University, Graduate School, 1-1 Yanagido, Gifu.
Shinji KAMBARA, Gifu University, Graduate School, 1-1 Yanagido, Gifu.
Toichiro SASAKI, METAWATER Co., Ltd.
Kazuhiro KUMABE, Gifu University, 1-1 Yanagido, Gifu.
Hiroshi MORITOMI, Gifu University, 1-1 Yanagido, Gifu.

Fundamental characteristics of N₂O decomposition and formation by atmospheric non-equilibrium plasma were investigated under room temperature without catalysts. A pulsed dielectric barrier discharge (DBD) with a one-cycle sinusoidal-wave power source was employed. In N₂O—N₂ system, an N₂O concentration of 40 ppm was completely decomposed at an applied voltage of 18 kV. In N₂O—O₂—N₂ system, N₂O was produced by elemental reaction in the DBD reactor by contribution of O and N radicals. O₂ concentration was determined to decompose 40 ppm N₂O by the DBD reactor.

Key Words: Nitrous oxide, Non-equilibrium plasma, Decomposition, DBD

1. 緒言

N₂Oは石炭や廃棄物、下水汚泥の流動層燃焼や下水処理プロセスばっ気槽排出ガス、医療用麻酔の余剰ガス等が排出源である。N₂Oの除去技術としては、ガス温度が1000℃以上となるよう再燃焼する技術¹⁾やゼオライト系触媒により300℃付近で70%程度分解する技術²⁾などがあり、主に燃焼プロセスに適用されている。しかし、ばっ気槽排出ガスや麻酔余剰ガスのように、N₂Oが含まれる排ガスが大気温度付近の場合、適当な分解処理法はない。

本研究は、大気温度付近の排ガスに含まれるN₂Oの分解処理法を開発することを目的としている。大気圧非平衡プラズマ(Dielectric Barrier Discharge: DBD)は、大きな電子エネルギーを容易に得ることができるため、大気温度付近のN₂O分解処理に適用できそうである。前報³⁾では、プラズマ条件(印加電圧)、ガス組成(N₂O/O₂/N₂/Ar)、ガス流量(ガス滞留時間)を変化させて、N₂Oの分解特性を調べた。本報では、N₂O初期濃度と酸素濃度に着目し、N₂O分解・生成特性を詳細に調べた。

2. 実験装置および実験方法

Fig.1に実験装置の概要を示す。実験装置は、モデルガス(N₂O/O₂/N₂)供給部、DBD反応器、高電圧パルス電源、NO_x/N₂O/O₂測定装置よりなっている。

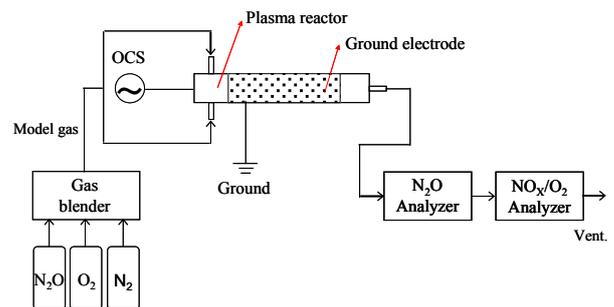


Fig.1 Schematic diagrams of experimental apparatus.

DBD反応器は、直径48mm、厚さ2.0mm、長さ600mmの石英製円筒管と直径6mmのガス流路を内蔵した高電圧電極で構成されている。高電圧電極と石英管はOリングによってモデルガス流路(ギャップ長2.0mm)がつくられている。石英管外周には、接地電極(SUS製、厚さ0.2mm、長さ500mm、パンチングメタル)を巻き付けた。プラズマは、ギャップ部に接地電極の長さで発生する。

モデルガスは、総流量、O₂濃度、N₂O濃度を変化させ、石英管2方向ガス供給口に供給した。DBDは高周波電源(ハイデン研究所製PHF-2K)を用いて発生させた。ガス組成の変化は、N₂O分析計(HORIBA, VIA510)およびNO_x(NO+NO₂)/O₂分析計(SHIMAZU NOA-7000)で連続測定した。

N₂O分解率%は次式で定義した。

$$([N_2O]_0 - [N_2O]_1) / [N_2O]_0 \times 100 \quad (1)$$

$[N_2O]_0$ はモデルガス中の N_2O 初期濃度 ppmv, dry, $[N_2O]$ は DBD 反応器出口ガス中の N_2O 濃度 ppmv, dry である。

3. 実験結果および考察

3.1 $N_2O-O_2-N_2$ 系における N_2O の分解挙動

Fig. 2 に, $N_2O-O_2-N_2$ 系における N_2O 分解・生成挙動を O_2 濃度をパラメータとして示す。この系でのプラズマ点灯電圧は 14 kV であった。

$O_2=0\%$ の場合は, $V_{pp}=18$ kV で約 100% の分解率が得られたが, O_2 存在下では O_2 濃度が高くなるほど N_2O が生成する結果となった。これは, N_2 の存在により以下の反応で N_2O が生成されるものと考えられる。



ここで O ラジカルは, プラズマの電子エネルギーによる酸素および N_2O の解離またはオゾン生成により生じると考えられる。

尚, NO_x ($NO + NO_2$) は検知されなかった。

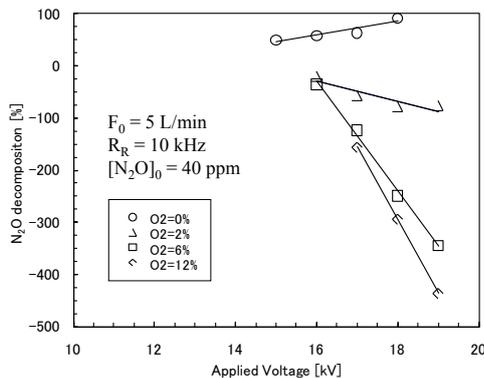


Fig. 2. Effects of O_2 concentration and applied voltages on N_2O decomposition by DBD direct treatment in $N_2O-O_2-N_2$ system.

3.2 O_2-N_2 系での N_2O 生成挙動

O_2 存在下における N_2O 生成が, (2)式による N_2 起源によるものかを確認するため, O_2-N_2 系における N_2O 生成挙動を酸素濃度を 4–21% に変化させて調べた (Fig. 3)。印加電圧の増加および酸素濃度の増加にしたがって N_2O 生成濃度は増加した。

ここで, Fig. 2 および Fig. 3 で酸素濃度 12%, 印加電圧 19 kV に注目する。Fig. 2 での N_2O 分解率は -450% であり, これを濃度換算すると N_2O 生成濃度は 220 ppm となる。一方, Fig. 3 では N_2O 生成濃度は 120 ppm であることから, $N_2O-O_2-N_2$ 系では, O_2-N_2 系よりも多く (100 ppm) の N_2O が生成したことになる。したがって, $N_2O-O_2-N_2$ 系では, N_2O が存在することによって, さらに N_2O が生成したことにな

る。 $N_2O-O_2-N_2$ 系では NO が生成されなかったことから, 例えば, 以下の反応が考えられる。



これらの結果から, N_2O をプラズマで分解するには, O_2 または N_2 の濃度を極力下げる必要があることがわかった。

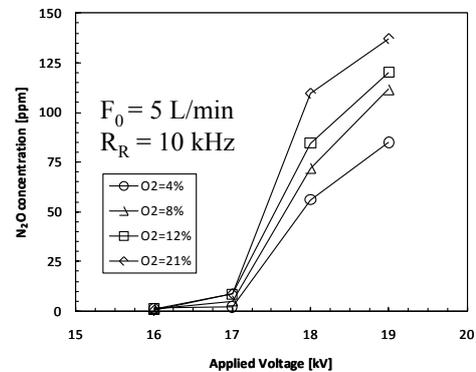


Fig. 3. N_2O formation in O_2-N_2 system by DBD direct treatment.

3.3 N_2O 分解可能な許容酸素濃度の検討

次に, N_2O が分解可能な許容酸素濃度を調べるために, 酸素濃度を徐々に減少させて N_2O 分解率 (生成率) の変化を調べた。Fig. 4 は, $V_{pp}=18$ kV, N_2O 初期濃度 40 ppm, モデルガス流量 5.0 L/min 一定としたときの酸素濃度に対する N_2O 分解率である。酸素濃度の減少にともなって N_2O 分解率は増加し (生成率は減少し), $O_2=1.0\%$ 以下で N_2O の分解が見られた。 $O_2=0.5\%$ で N_2O 分解率は 60% であったことから, 80% 程度の N_2O 分解率が得られる許容酸素濃度は 0.3% 程度となる。

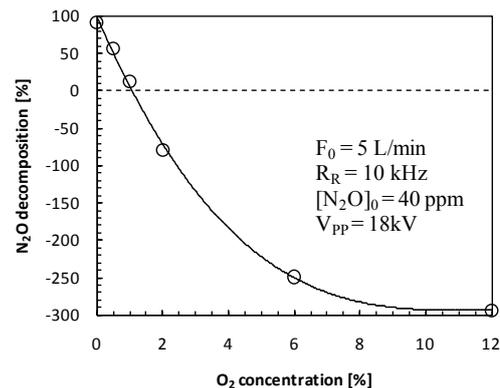


Fig. 4. Effect of O_2 concentration on N_2O decomposition by DBD direct treatment in $N_2O-O_2-N_2$ system.

参考文献

- 1) 三菱重工株式会社, 特許公報第 2744666 号 (1998).
- 2) 三菱重工株式会社, 特許公報第 2895245 号 (1999).
- 3) 神原, 阿部, 古谷野, 環境総合工学シンポジウム 2009 講演論文集 308, (2009)