

7. 励起アンモニアインジェクションによる低温無触媒脱硝法の開発

(岐阜大) ○武山彰宏, 神原信志, 隈部和弘, 守富 寛 (アクトリー) 村田 豊,
増井 芽, (澤藤電機) 三浦友規, (ウシオ電機) 菱沼宣是

Development of low temperature SNCR by Activated Ammonia Injection

○Akihiro TAKEYAMA, Shinji KAMBARA, Kazuhiro KUMABE, Hiroshi MORITOMI
(Gifu University, ERES), Yutaka MURATA, Megumi MASUI (Actree Co., Ltd),
Tomonori MIURA (Sawafuji Electric Co., Ltd), Nobuyuki HISHINUMA (USHIO Inc)

SYNOPSIS

To broaden and lower the temperature window of the selective non catalytic reduction (SNCR) of nitric oxide (NO), the use of activated ammonia as the reduction agent was examined. A vacuum ultraviolet (VUV) or dielectric barrier discharge (DBD) was employed as the excitation source of molecular ammonia. The most of molecular ammonia was converted to molecular hydrogen at DBD reactor exit and VUV reactor exit. It considered that hydrogen was key chemical species for low temperature SNCR.

1. 緒言

環境問題に対する意識の高まりから、これまで窒素酸化物 (NO_x) の排出濃度規制値に余裕にあった中小規模の燃焼設備でも地域協定等で濃度規制がなされるようになってきており、脱硝設備の設置が必要となってきている。小規模ボイラや炭化炉または焼却炉では、設置面積や設備コストの面から、小型・安価・無触媒の脱硝法として、アンモニアを用いた選択的無触媒脱硝法 (SNCR) が求められている。しかし、SNCR の脱硝反応温度範囲は 800~1000°C (Temperature Window という) にあり、排ガス温度が 700~750°C の焼却炉には適用できない。SNCR を焼却炉に適用するためには Temperature Window を低温側に拡大する必要がある。

本研究では、励起アンモニアインジェクション法¹⁾としてアンモニアを大気圧プラズマ (誘電体バリア放電: DBD) あるいは 172nm 真空紫外線 (VUV) で励起し、励起したアンモニアを模擬排ガスに吹き込んだ時の脱硝率に及ぼす反応温度の影響を調べた。また、励起アンモニアの化学組成および反応場での脱硝メカニズムを検討した。

2. 実験装置および実験方法

Fig.1 に DBD 脱硝実験装置の概要を示す。実験装置は、アンモニアガス供給部と、DBD リアクター、模擬排ガス供給部、石英製ガス予熱管(温度は 500°C で一定)、石英製反応管(温度は 500-850°C に変化)、連続式ガス分析装置から成っている。

VUV 脱硝実験では、DBD リアクター (Fig.1) を Fig.2 に示す VUV リアクター(172 nm : 真空紫外光)

に置き換えた。

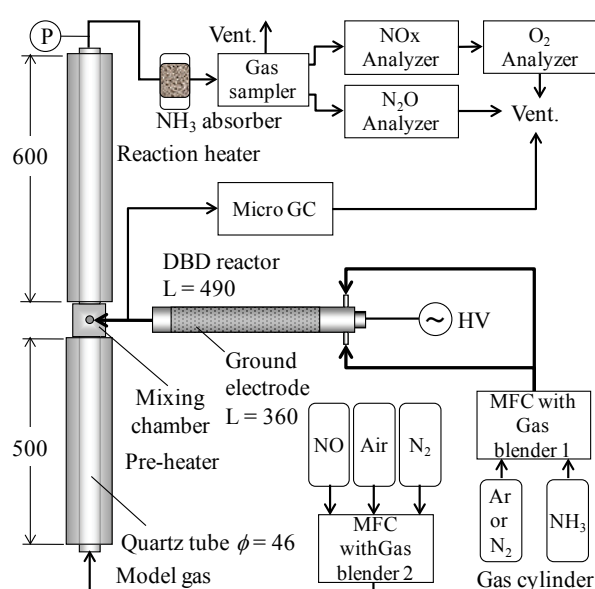


Fig.1 Schematic diagram of the experimental apparatus

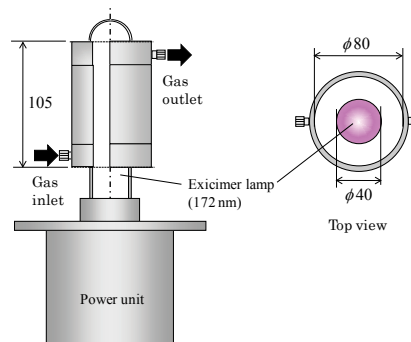


Fig. 2. Configuration of the photochemical reactor.

実験条件を Table1 に示す。まず、DBD および VUV 脱硝の反応温度に対する脱硝率の変化を調べた(Ex.1)。Ex.2 では、

流量と印可電圧を変化させ DBD リアクター出口の励起アンモニア化学組成を調べた。Ex3 では、アンモニア濃度と流量を変化させ VUV リアクター出口の励起アンモニア化学組成を調べた。

Table 1 Experimental conditions

	Ex.1:Baseline	Ex.2:DBD	Ex.3:VUV
NO (ppm)	500	-	-
O ₂ (ppm)	2.1	-	-
Model gas	balance gas	N ₂	-
Flow rate (L/min)	2.55	-	-
NH ₃ (ppm)	750	4900	2025-4900
Reactant	balance gas	Ar	Ar
Flow rate (L/min)	0.45	0.2-0.8	0.31-1.50
NH ₃ /NO rate (-)	1.5	-	-

3. 結果および考察

Fig.3 に、模擬排ガス流量 2.7 L/min, NH₃/Ar 流量 0.3 L/min とし, NO 初期濃度 500 ppm, O₂ 濃度 2.1%, NH₃/NO モル比 1.5 の時の脱硝率の変化を反応温度に対して示した。結果は、DBD 脱硝法(DBD), VUV 脱硝法(VUV), 熱的脱硝法(Thermal), 各々について比較した。

既知のとおり、熱的脱硝法では、800°C付近で急激に脱硝反応が開始した。VUV 法では 650°C程度から脱硝率が上昇し、800°Cまでの間、反応管温度の増加にともなって脱硝率は増加した。一方、DBD 法は、600°Cですでに脱硝率 11% を示し、VUV よりも若干ながら低温で脱硝反応が開始しているが、650°C以上では VUV 法と DBD 法は同等の脱硝率を示した。

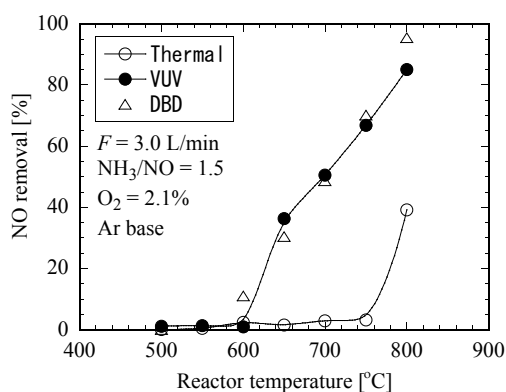


Fig.3 NO removal characteristics by VUV, DBD, and thermal de-NOx as a function of temperature.

Fig.4, Fig5 に、DBD リアクターおよび VUV リアクター出口の励起アンモニアを化学種別の組成割合を示した。DBD はガス流量 0.8 L/min のときの印加電圧ごと、VUV はアンモニア濃度(%)にリアクター内ガス滞留時間(s)をかけたものをアンモニアに寄与する光子エネルギーの指標とし、光子エネルギーごとの化学組成割合を

示した。

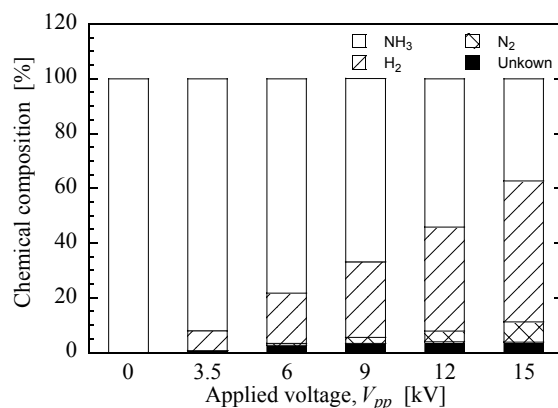


Fig.4 Chemical composition of activated ammonia at the DBD reactor exit for various voltages.

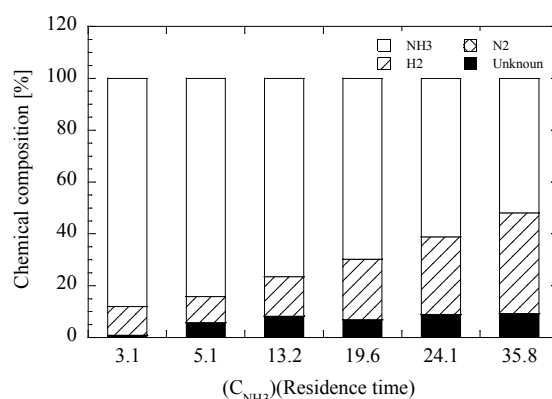


Fig.5 Chemical composition of excited ammonia at the VUV reactor exit.

DBD では印加電圧が高くなるほど、VUV では光子エネルギーが高くなるほどアンモニアが分解されており、両者ともにアンモニアに与えられるエネルギーが大きいほどアンモニア分解率は高くなった。また、分解されたアンモニアはその大部分が水素と窒素に転換することがわかった。

Lyon ら²⁾は、SNCR において H₂ を添加すると Temperature window が約 150°C 低温側にシフトすることを示した。また、Muzio ら³⁾も Lyon らと同様の結果を得ている。これより、励起アンモニアインジェクション法における脱硝温度の低温側への拡大には、DBD あるいは VUV によってアンモニアが分解されて生じた水素が寄与していると考えられる。

参考文献

- (1) S. Kambara, Y. Kumano, K. Yukimura, *IEEE Trans. Dielect. Elect. Ins.*, 16 (2009) 778.
- (2) Lyon, R. K., Hardy, J. E., *Ind. Eng. Chem. Fund.*, 25(1) (1986) 19.
- (9) Muzio L. J., Arand J. K., Teixeira D. P., 16th Symp. (Int.) on Combust. (1976) 199.