

# 大気圧における間欠誘電体バリア放電によって生成した NH<sub>3</sub> ラジカルによる NO<sub>x</sub> 処理

西田 充孝、行村 建  
(同志社大学)

神原 信志  
(出光興産(株)石炭研究所)

丸山 敏朗  
(京都大学)

2000年5月25日

社団法人電気学会  
東京都千代田区五番町6-2



# 大気圧における間欠誘電体バリア放電によって生成した NH<sub>3</sub> ラジカルによる NO<sub>x</sub> 処理

西田 充孝、行村 建 (同志社大学)、神原 信志 (出光興産(株)石炭研究所)、丸山 敏朗 (京都大学)

## NO<sub>x</sub> removal using NH<sub>3</sub> radical prepared by intermittent dielectric barrier discharge in atmospheric pressure

Mitsunori NISHIDA, Ken YUKIMURA (Doshisha University), Shinji KAMBARA (Idemitsu Kosan Co.), Toshiro MARUYAMA (Kyoto University)

### Abstract

The NO<sub>x</sub> removal was made by using NH<sub>3</sub> radicals which were produced by dielectric barrier discharge with a one-cycle sinusoidal-wave power source. The discharge was intermittently made between coaxial cylindrical electrodes with a space of 1.5 mm at an applied peak-to-peak voltage of 10-45 kV. The radicals of NH<sub>3</sub> were efficiently produced by the dielectric barrier discharge, and at the mixing zone in the reaction chamber the spectrum of NH radical was observed at 336.7 nm. The radicals were introduced to a reaction chamber 5 cm in diameter and 130 cm in length, and were mixed with NO<sub>x</sub> gas at a temperature of 900°C. The NO<sub>x</sub> reduction increased with the applied source voltage, which increased the electric power input into the dielectric barrier discharge. The NH<sub>3</sub> radicals were made by flowing NH<sub>3</sub> gas diluted with N<sub>2</sub> or Ar gas and by flowing pure N<sub>2</sub> gas. The maximum reduction was 98% at applied voltage of 35 KV for flowing NH<sub>3</sub> gas diluted with Ar gas.

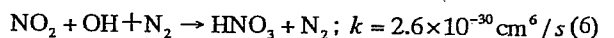
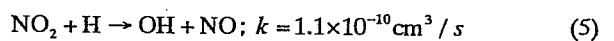
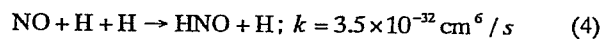
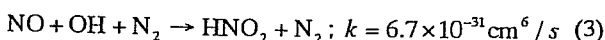
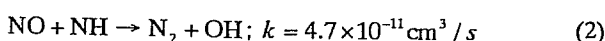
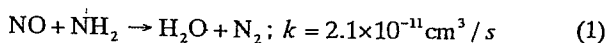
キーワード : 誘電体バリア放電、NO<sub>x</sub> 処理、NH<sub>3</sub> ラジカル  
 Keywords: Dielectric barrier discharge, Nox removal, NH<sub>3</sub> radical

### 1. はじめに

大気汚染の原因物質の一つに、火力発電所や自動車等から排出される窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>) がある。NO<sub>x</sub> は酸性雨や温室効果の主要な原因物質であり、我が国ではその排出規制が行われ規制はさらに強化される動向にあり、一層の高効率脱硝方法の開発が望まれている。

脱硝については、これまで多くの研究が行われ、その反応メカニズムも解明されつつある。アンモニアを含むプラズマを利用した脱硝反応において、NH や NH<sub>2</sub>、OH、H などのラジカル (反応中間体) が重要な役割を果たしていることは良く知られている[\*1]。ここで生じる脱硝反応の主要な化学反応プロセスを Fig.1 に示す。NO<sub>x</sub> を分解して OH ラジカルを生成したときに、NH<sub>3</sub> は OH ラジカルとの反応により主に NH<sub>2</sub>、NH、N に分解される。

例えば、つぎのような反応が脱硝に有効に作用する[\*2]。ここでは反応速度定数が重要であり、2 体反応では 10<sup>-11</sup> ~ 10<sup>-10</sup> cm<sup>3</sup>/s、3 体反応では 10<sup>-32</sup> ~ 10<sup>-30</sup> cm<sup>6</sup>/s が選択されている[\*1]。



プラズマにより NH、NH<sub>2</sub> ラジカルを生成することで、

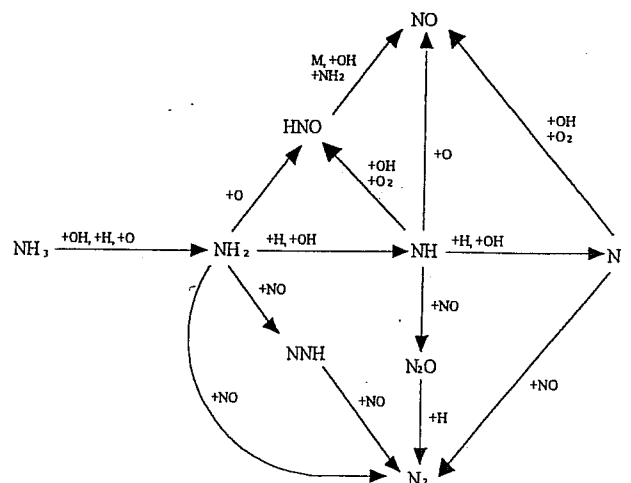


図.1 NO 分解の化学反応図

Fig.1 Diagram of chemical reactions in NO reduction

NO<sub>x</sub> が分解されて OH ラジカルを生成し、OH との熱反応によりさらに NH、NH<sub>2</sub> ラジカルが生成するといった連鎖的な反応が発生して NO<sub>x</sub> を高効率で除去するとされている。

従来の実験室系でのプラズマ/熱併用型脱硝のほとんどは NO<sub>x</sub> に NH<sub>3</sub> を混合したものをプラズマ化している[\*3][\*4]。しかし、実用機における NH<sub>3</sub> と NO<sub>x</sub> ガスの混合ガスのプラズマ化については放電体積が大きくなるという問題を生じる。したがって、放電部と処理室を分けてプラズマの発生をコンパクト化し、生じたラジカルを処理室へ輸送するほうが現実的な処置と考えられる。ラジカルを生成する方法としては、誘電体バリア放電(無声放電)、パルスコロナ放電、沿面放電などの大気圧非平衡プラズマによる生成法があげられる[\*5]。大気圧における処理の利点は、真空排気系が不要なことで装置コストの低減が図れること、粒子数が多いため効率の良いラジカル生成が期待される。しかし、誘電体バリア放電以外の方法では金属電極が NO<sub>x</sub> ガスおよび NH<sub>3</sub> ガスにさらされるためプラズマ装置の寿命が短くなる問題がある。これに対し誘電体バリア放電は絶縁体を介するプラズマであり、絶縁体を NH<sub>3</sub> および NO<sub>x</sub> に対して反応が起らない材料を選択すればプラズマ装置の寿命は半永久的となり、他の方法と比べて有利と考えられる。本研究では誘電体バリア放電方式で、かつプラズマ室と処理室を分離した。NH<sub>3</sub> のみをプラズマ化し、生成されたラジカルを NO<sub>x</sub> が流れている処理容器へと導く方式を採用した。これは将来的に汎用性の高い装置を目的とするためである。

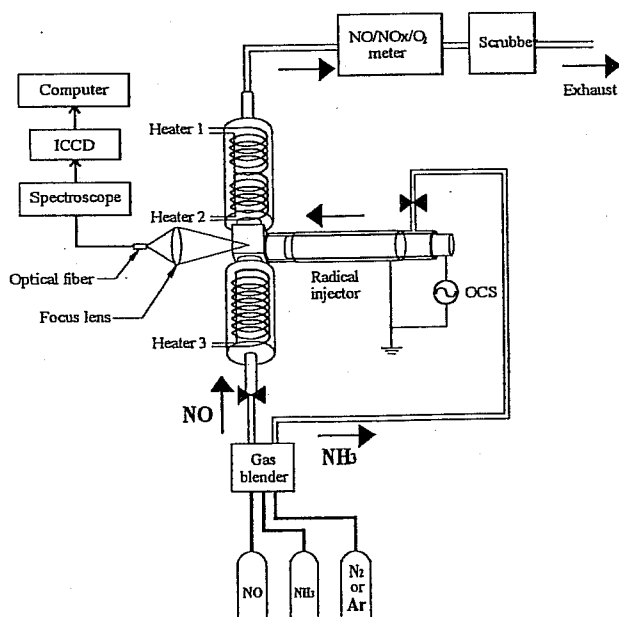


図2. 実験装置概略図

Fig.2 Schematic diagram of experimental apparatus.

また、実際の排気ガスは高温であり、800~1100 °C程度の値を有しているため、本研究では実際の排ガスへの温度を模擬し、NO<sub>x</sub> ガスを 1000 °C弱に加熱した。ここでは、将来大規模な排ガス処理を行なうための高効率脱硝ラジカルインジェクター装置を開発するための基本的な特性を研究した。まずはNH<sub>3</sub>をラジカル剤として用い、それを含むガス中で誘電体バリア放電を発生させ、NO<sub>x</sub>を含む模擬ガスに注入して脱硝実験を行った。

## 2. 実験方法

### 2-1 実験装置

実験装置の概略図を Fig.2 に示す。NO ガスは N<sub>2</sub> 希釈で 1000 ppm のものを用いた。また、NH<sub>3</sub> ガスは N<sub>2</sub> 希釈 1040 ppm のものと Ar 希釈 3% のものを用いた。これらのガスと純 Ar ガス、純 N<sub>2</sub> ガスをガスブレンダーにより混合し、NO ガス、NH<sub>3</sub> ガスの流量、濃度をそれぞれ調整した。調整された NO ガスは反応管側に流し、NH<sub>3</sub> ガスは放電管(ラジカルインジェクター)を通してラジカル化して反応管内に注入した。ここで加熱式反応管は直径 50 mm、長さ 1300 mm のものを用いた。そこで反応管に流した NO ガスの濃度の変化を反応管排気側に設置した NO<sub>x</sub>-O<sub>2</sub> 測定装置(島津製作所製 NOA-7000 型)により NO ガスの濃度を調べることで NO の除去率を測定した。NO<sub>x</sub> 計では NO、NO<sub>x</sub> (NO+NO<sub>2</sub>)、O<sub>2</sub> 濃度を測定した。また、反応管からの排気ガス中に含まれる NH<sub>3</sub>

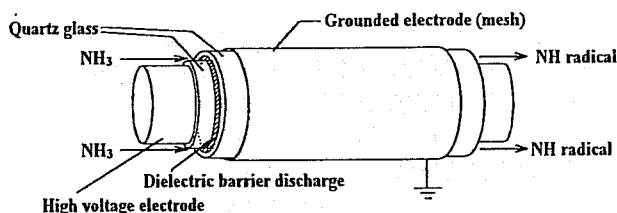


図3. ラジカルインジェクター構造  
Fig.3 Structure of radical injector.

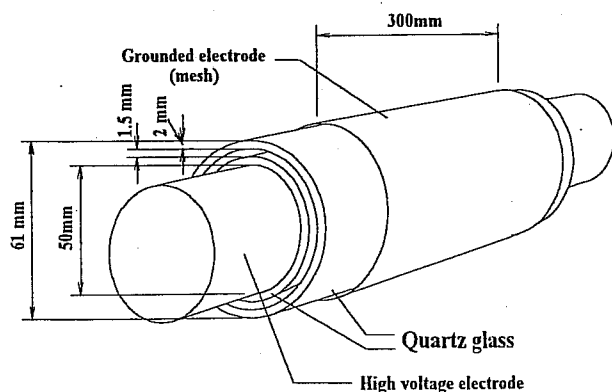


図4. ラジカルインジェクターのスケール  
Fig.4 Scale of radical injector.

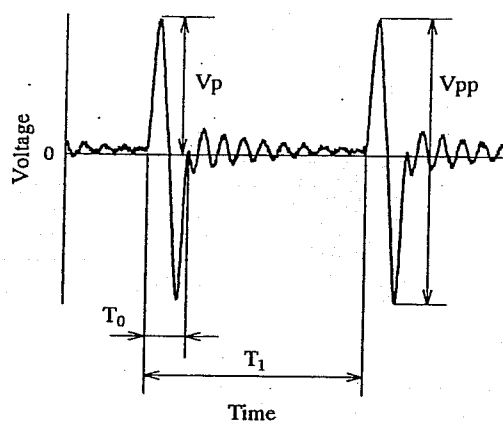


図 5. OCS 電源電圧波形

Fig.5 Waveform of voltage supplied from OCS power source.

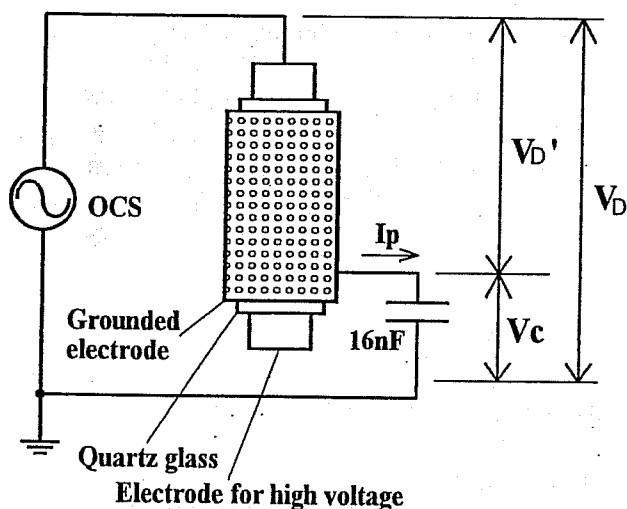


図 6. 放電電力測定回路

Fig.6 Circuit for measurement of discharge power.

ガスは測定後水シャワーによるスクラバーを通して除去した。また、実際のボイラー内の環境に近づけるため、反応管を 800~950 °C に加熱した。

### 2-2 ラジカルインジェクター

ラジカルインジェクター (ラジカル生成装置) として Fig.3, 4 に示すような放電管を用いた。電極は同軸型であり、用いた誘電体(絶縁体)は同心円状で、外径 61 mm(厚さ 2 mm)の外筒と内径 50 mm(厚さ 2 mm)の内筒からなっている。ギャップ長は 1.5 mm であり、その間に誘電体バリア放電を発生させた。外筒の外側には鉄製のメッシュ電極、内筒の内側には直径 50 mm の SUS304 製の円筒電極を内筒の内側に密着させて設置した。内筒電極に高

電圧パルスを印加し、メッシュ状の外筒電極 (長さ 300 mm) を接地した。高周波電源には正弦波 2 波からなるインパルス型高周波電源 (ハイデン研究所製 PHF-2K-2V 型) を用い、Fig.5 に示すような正弦波のパルス電圧 (1 周期  $T_0=12.6 \mu\text{s}$ ) を一定の繰り返し周期  $T_1$  で印加した。 $T_1$  の逆数は周波数に相当する繰り返し数  $R_R$  として定義した。また、印加電圧の基準値は、正弦波パルス電圧の最大値と最小値の差である  $V_{pp}$  を用いた。

### 2-3 電気的特性の測定回路

$\text{NH}_3$  ガスの放電エネルギーを測定するために Fig.6 に示す放電電流  $I_p$ 、移動電荷による電圧  $V_c$ 、放電電圧  $V_d$  を測定した。実験装置の測定回路を Fig.7 に示す。図中

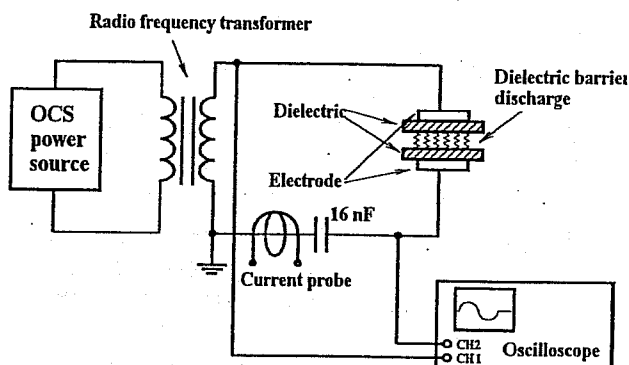


図 7. 電気的特性測定回路

Fig.7 Circuit for measurement circuit of electric characteristic.

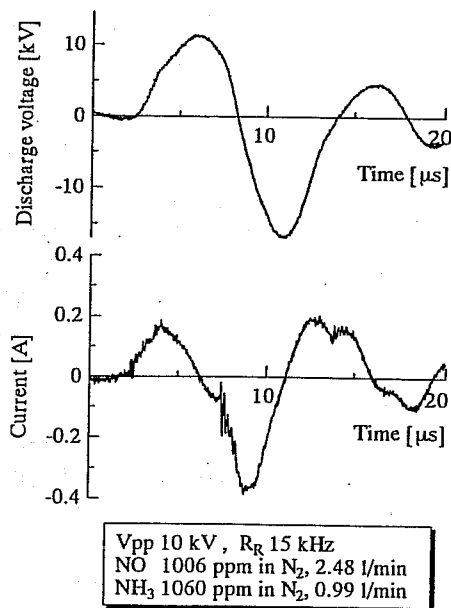


図 8. 電圧電流各波形

Fig.8 Waveforms of voltage and current.

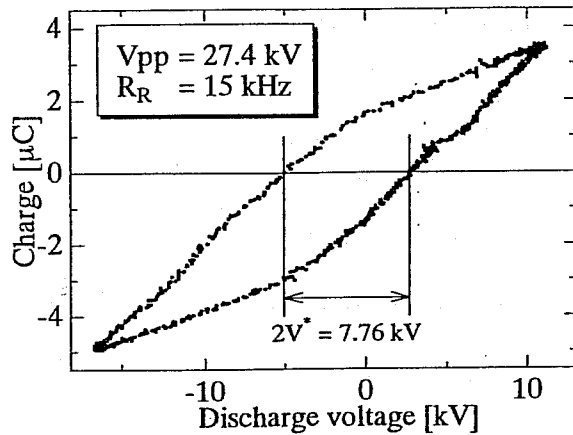


図9. V-Q リサージュ図

Fig.9 Lissajous figure for OCS source.

の 16 nF のキャパシタは移動電荷量測定のためのものである。Ip、Vc、Vd はそれぞれ電流プローブ（ソニーテクトロニクス社製 P-6021 型）、電圧プローブ（ソニーテクトロニクス社製 P-5100）、高電圧プローブ（岩通製 HV-P30 型）を用いて、4 現象デジタルオシロスコープ（ソニーテクトロニクス社製 TDS654C 型）で波形観測を行った。

放電時の放電電圧 Vd と放電電流 Ip の観測波形を Fig.8 に示す。電流波形は放電電圧波形に比べて、キャパシタ成分を含んでいるために 90° 位相が進んでおり、また、電流波形には誘電体バリア放電の発生にともなうスパイク状の電流が見られる。

一般に、一回の放電による投入されるエネルギー ΔE は、式(7)により印加電圧と一回の誘電体バリア放電の発生による電荷の変分 Δq から求められる。

$$\Delta E = 2V^* \Delta q \quad (7)$$

ここで、V\* は放電維持電圧を示す。一周あたり放電エネルギーは印加電圧 V と電荷測定用キャパシタによって求めた一周あたり流れる電荷量 q より Fig.9 に示されるような V-Q Lissajous 図を作成して、その面積から求めた[\*6]。この放電エネルギーに周波数を乗じて投入電力を算定した。

#### 2-4 分光観測

Fig.2 に示すように、ラジカルインジェクターの出口において上方から分光観測を行った。すなわち出口においてプラズマ光が直接入射しない方向から NH ラジカルを確認した。

分光観測はイメージンシファイヤーつき、ゲート CCD カメラ（ANDOR Technology 製 DH510-18F-01、最小ゲート時間 5ns）を用いて行った。ラジカルインジェクター出口で発光した光を集光し、光ファイバーによ

表 1. 実験条件

Table 1 Experimental conditions.

#### 1. N2 希釈 NH3 ガス

		印加電圧変化		繰り返し数変化	
N2 希釈 NO	流量 (l/min)	1.49		1.49	
	濃度 (ppm)	1002		1002	
N2 希釈 NH3	流量 (l/min)	0.99		0.99	
	濃度 (ppm)	1040		1040	
電源条件	印加電圧	22~45 kV	25 kV	40 kV	
	繰り返し数	6.3 kHz	3~16 kHz	3~12 kHz	

#### 2. Ar 希釈 NH3 ガス

		印加電圧変化	
N2 希釈 NO	流量 (l/min)	1.49	
	濃度 (ppm)	999	
Ar 希釈 NH3	流量 (l/min)	0.99	
	濃度 (%)	3	
電源条件	印加電圧	10~35 kV	
	繰り返し数	10 kHz	

り受光した。それを分光器（DRIEL INSTRUMENTS 製 MS257 型）の回折格子（Grating 1800 gr/mm）に入射し、イメージンシファイヤーにより光増倍したものを CCD 素子で検出、デジタル信号へ変換の後、計算機にとりこんだ。電源の正弦波パルス電圧との同期をパルスジェネレーター（ヒューレットパッカード社 214B 型）によって調整し、パルス印加後の CCD カメラのゲート時間を制御した。電源電圧によるラジカル強度の変化について測定した。

#### 3. 実験条件

実験条件の一覧表を表 1 に示す。

##### 3-1 N2 希釈 NH3 ガスを用いた NOx 処理

NO ガスは N2 希釈で 1002 ppm、NH3 ガスは N2 希釈で 1040 ppm のものを用いた。

印加電圧と繰り返し数に対する依存性を明らかにするため、反応管を 900°C に加熱し流量 1.49 l/min 一定の NO ガスを流し、放電管側には N2 ガスと NH3 ガスをそれぞれ流量 0.99 l/min で流した。印加電圧は、繰り返し数 6.3 kHz 一定のもとで Vpp を 22 kV から 45 kV まで変化してパルス一周あたり投入エネルギー、放電電力、NO 除去率を測定した。また、繰り返し数変化では印加電圧 Vpp が 25 kV、40 kV それぞれ一定のもとで、繰り返し数をそれぞれ 3~16 kHz、3~12 kHz に変化させた。

ラジカルインジェクター出口において、印加電圧変化時の NH スペクトルの分光観測を行った。N2 希釈 1040 ppm の NH3 ガスを流量 0.99 l/min で、RR = 10 kHz において印加電圧 Vpp を 25~40 kV に変化させた。また、純 N2 ガスを同じ条件で流して分光波形の比較を行なった。

##### 3-2 Ar 希釈 NH3 ガスを用いた NOx 処理

NH3 を希釈するガスを N2 からより電離しやすい希ガスの Ar にし、NO 除去実験を行なった。Ar の電離エネ

ルギーは 15.755 eV であり、 $N_2$  は解離エネルギーが約 20 eV、電離エネルギーが 14.53 eV であることから、 $N_2$  で希釈したときよりも Ar のほうが電子を多く供給するため、プラズマ中で  $NH_3$  のラジカル化を促進するものと思われる[\*7]。

NO ガスは  $N_2$  希釈で 999 ppm、 $NH_3$  ガスは Ar 希釈で 3% のものを用いた。

反応管を 950°C に加熱し流量 1.49 l/min 一定の NO ガスを流し、放電管側には Ar ガスで希釈した 3% の  $NH_3$  ガスを流量 0.99 l/min で流して、パルス正弦波電圧一周期あたりの投入エネルギーの変化、放電電力、NO 除去率を測定した。

#### 4. 実験結果

##### 4-1 $N_2$ 希釈 $NH_3$ ガスを用いた $NO_x$ 処理

###### 4-1-1 電気的特性

###### (a) 印加電圧依存性

$N_2$  ガス、 $NH_3$  ガスそれぞれについて、パルス一周期あたりにプラズマに投入されるエネルギー、放電電力を Fig.10 に印加電圧  $V_{pp}$  に対して示す。投入エネルギー、放電電力は 20 kV あたりから印加電圧に対しほぼ直線的に増加する。これは、印加電圧の増加に伴って各周期における放電回数が増えるためである。プラズマ抵抗が印加電圧によらず常に一定であることを示しており、印加電圧が増加しても放電管内の放電フィラメント一本あたりのエネルギーは変化せず、電圧の増加とともに放電回数が増加し、プラズマ内に投入されるエネルギーが大きくなるのがわかる。また、 $N_2$  ガスと  $NH_3/N_2$  混合ガスとの間でエネルギーの差が見られない。これは、後述の Ar ガス希釈と異なり、 $NH_3$  を希釈するのに用いている  $N_2$  ガスの励起エネルギーが高いために、プラズマ内に電子の放出量が少なく、電子衝突による  $NH_3$  のラジカル化が促進されていないものと考えられる。

###### (b) 繰り返し数依存性

Fig.11 にパルス一周期あたりの投入エネルギーの変化を印加電圧の繰り返し数に対して示す。繰り返し数を増加しても、放電管内には正弦波パルス一周期ごとにほぼ一定のエネルギーが放電管内に投入されている。したがって、この投入エネルギーに繰り返し数を乗じた単位時間あたりの放電電力は繰り返し数に比例して増加する。

##### 4-1-2 NO 除去率特性

###### (a) 印加電圧依存性

Fig.12 に  $N_2$  ガスと  $N_2$  希釈  $NH_3$  ガスそれぞれについての、NO 除去率を印加電圧に対して示す。 $NH_3$  を 1040 ppm 含むときは  $V_{pp}$  に対して直線的に NO 除去率が増加し、45 kV 印加時において  $N_2$  ガスのみにおける除去率とほぼ同じ 35% にまで増加する。 $N_2$  ガスのみを流したときは 25 kV あたりで NO 除去率が増加しはじめ、約 35 kV 以

上で除去率約 35% で NO 除去率は飽和する。 $NH_3$  の場合は直線的に増加するのに対し、 $N_2$  では除去率は緩やかな増加の後、急速に大きくなりその後飽和する傾向が見られ、 $NH_3$  の場合と異なる結果となる。急速な除去率の増加の結果、30-45 kV の範囲では  $N_2$  ガスのみをラジカル化した方が高い除去率が得られた。

$NH_3$  をラジカル化することによる NO 除去反応は Fig.1 で示したが、 $N_2$  ガスのみのラジカル注入による除去では次のような反応が考えられる。反応自身にはプラズマ中の電子衝突による影響も考えられるが、反応管内では電子は反応していないと考えられる。

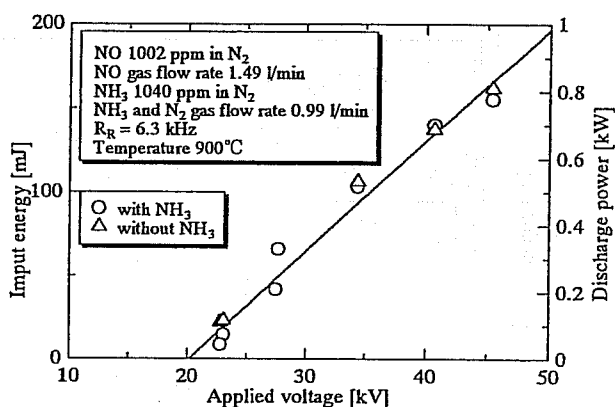


図 10. 印加電圧  $V_{pp}$  変化時の一周期あたりの投入エネルギーと放電電力 ( $N_2$  ガス、 $N_2 + NH_3$  ガス)

Fig.10 Discharge power and input energy at one-period as a function of applied voltage  $V_{pp}$ . ( $N_2$  with and without  $NH_3$ )

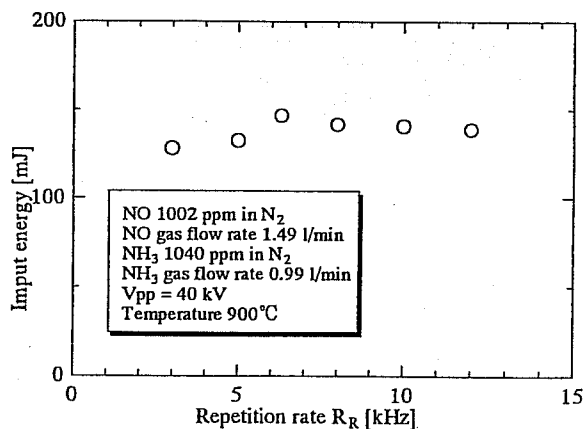
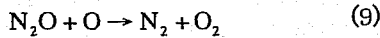
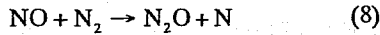


図 11. 繰り返し数  $R_R$  を変化したときの投入エネルギー

Fig.11 Input energy at one period as a function of repetition rate  $R_R$ .



N<sub>2</sub> ガスのみをラジカル化して注入した場合においても、35%の除去効果が得られた。N<sub>2</sub>ガスは無害であることから、低濃度のNO<sub>x</sub>処理における利用が期待される。

(b) 繰り返し数依存性

Fig.13 に、N<sub>2</sub>ガス、N<sub>2</sub>希釈 1040 ppm のNH<sub>3</sub>ガスを用いたときのNO除去率を繰り返し数に対して示す。25 kV

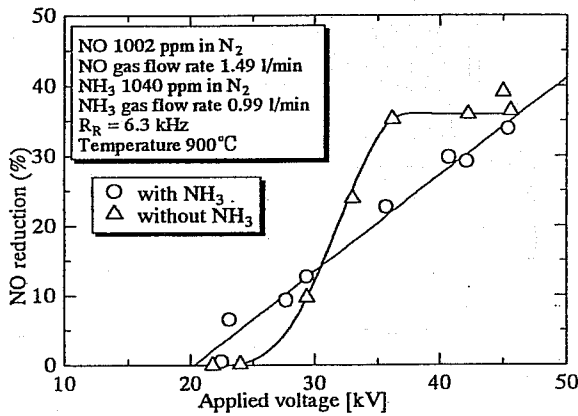


図 12. 印加電圧 V<sub>pp</sub> を変化したときの NO 除去率 (N<sub>2</sub> ガス、N<sub>2</sub> + NH<sub>3</sub> ガス)

Fig.12 NO reduction as a function of applied voltage V<sub>pp</sub>.(N<sub>2</sub> with and without NH<sub>3</sub>)

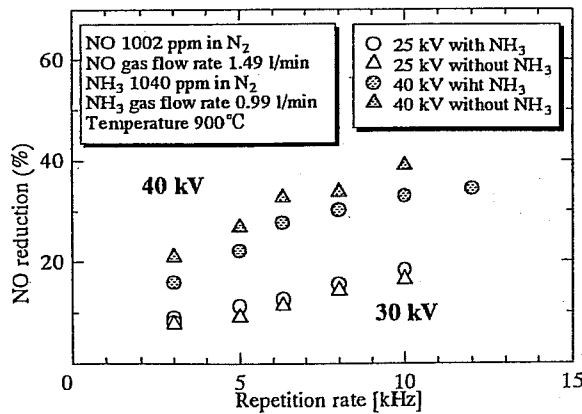


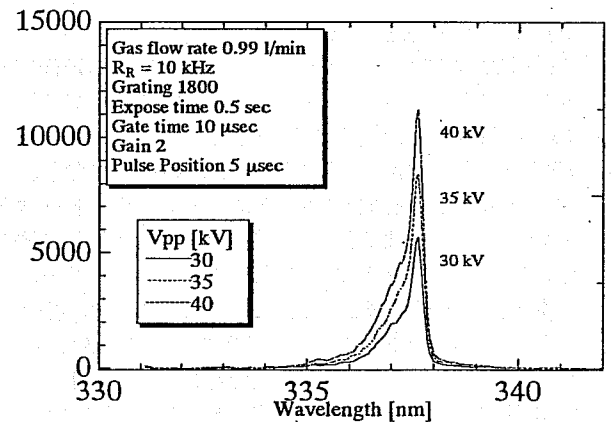
図 13. 繰り返し数を変化したときの NO 除去率 (N<sub>2</sub>ガス、N<sub>2</sub> + NH<sub>3</sub> ガス)

Fig.13 NO reduction as a function of repetition rate R<sub>R</sub>. (N<sub>2</sub> with and without NH<sub>3</sub>)

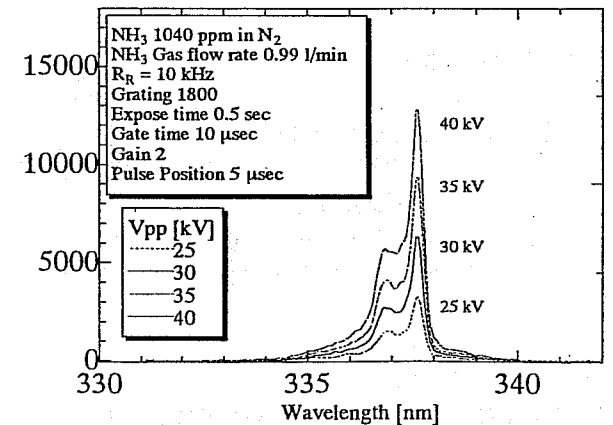
印加のNO除去率はN<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub>ガスともに繰り返し数に比例して増加しているが、40 kV印加ではN<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub>ガスともに除去率が繰り返し数に対して飽和する傾向にある。これは Fig.11 に示されるように一周あたりの正弦波パルスでの投入エネルギーが繰り返し数によらず一定であるため、一周あたりの投入エネルギーで分解される窒素、アンモニア分子の数は一定であり、繰り返し数が増加するにつれて分解量は増加する。しかし、電圧 40 kV印加では 25 kV印加よりも一周あたりの分解量が多くなるため、繰り返し数増加により総分解量が飽和しNO除去率も飽和するものと考えられる。

4-1-3 分光波形

N<sub>2</sub>ガス、N<sub>2</sub>希釈 NH<sub>3</sub>ガスをラジカルインジェクターを通すことにより励起して、インジェクター出口でそれぞれ分光観測したそれぞれの分光波形を Fig.14(a)、(b) に示す。NHのラジカルのは、336-337 nm に強い



(a) N2 gas



(b) 3% NH<sub>3</sub> in N<sub>2</sub>

図 14. 印加電圧 V<sub>pp</sub> を変化したときの分光観測波形 Fig. 14 Absorption spectrum of NH and N<sub>2</sub> as a function of applied voltage V<sub>pp</sub>.(N<sub>2</sub> with and without NH<sub>3</sub>)



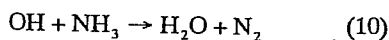
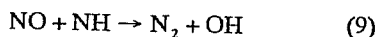
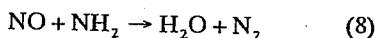
ピークがあらわれることが知られている[\*8]。N<sub>2</sub> ガスのみを流した時の分光波形 (a) では、窒素イオンを示す 337.8 nm に強いピークが現れている。N<sub>2</sub> 中に 1000 ppm の NH<sub>3</sub> を含むガスを流した時の分光波形 (b) では、336.7 nm と 337.8 nm に強いピークが見られる。N<sub>2</sub> のみでの観測では見られない 336.7 nm のピークは NH ラジカルに起因するピークと考えられる。

Fig.14(b)の分光波形の 336.7 nm と 337.8 nm のピークは印加電圧に対して直線的に増大している。つまり、2 つのピークが示す NH ラジカル、窒素イオンが印加電圧に対し直線的に増加している。この結果を印加電圧変化時の放電電力の変化(Fig.10)と NO 除去率の変化(Fig.12)に対比すると、ラジカル生成量の増加にともない NO 除去率が増加しており、生成したラジカルが NO 分解に有効に働いていると考えられる。

#### 4-2 Ar 希釈 NH<sub>3</sub> ガスを用いた NO<sub>x</sub> 処理

Fig.15 に Ar 希釈 3% の NH<sub>3</sub> ガスを流した場合の、放電電力と NO 除去率を印加電圧 V<sub>pp</sub> に対して示す。放電電力は印加電圧 10 kV 付近から電圧に比例して増加し、20 kV においてその傾きが変化する。これは、20 kV 以下の電圧では Ar の電離のみにエネルギーが消費されている一方、20 kV を超える電圧を印加すると、Ar 電離によりプラズマ中に発生した電子との衝突により NH<sub>3</sub> が分解しはじめるため、放電電力が増加するものと考えられる。

NO 除去率は、印加電圧 V<sub>pp</sub> 増加にともなって 25 kV まで徐々に上昇し約 20 % となった後、25~27 kV において急上昇し 90 % 程度に達し、さらに 35 kV において 98 % に至る。放電電力の変化から、25 kV までは主に Ar が NO 除去に貢献しており、25 kV 以上では分解されはじめた NH<sub>3</sub> により NO が分解されはじめ、急激に除去率が増加していると考えられる。この NH<sub>x</sub> ラジカルによる反応として以下の反応が考えられ、



NH ラジカルにより NO を分解することで連鎖的に反応が進むため、いったん NH<sub>3</sub> が分解しはじめると急激に NO が分解が進む。N<sub>2</sub> ガスで希釈した NH<sub>3</sub> を用いた場合、放電電力にこのような変化は認められず、NO 除去率も 35 % 程度であることから、N<sub>2</sub> 希釈の場合プラズマのエネルギーは N<sub>2</sub> の励起、イオン化にのみ寄与しているものと考えられる。Ar 希釈の場合は、Ar が電離しやすいために、多くの電子が放電管内で加速され、NH<sub>3</sub> の分解、ラジカル化が容易に進むものと推測される。

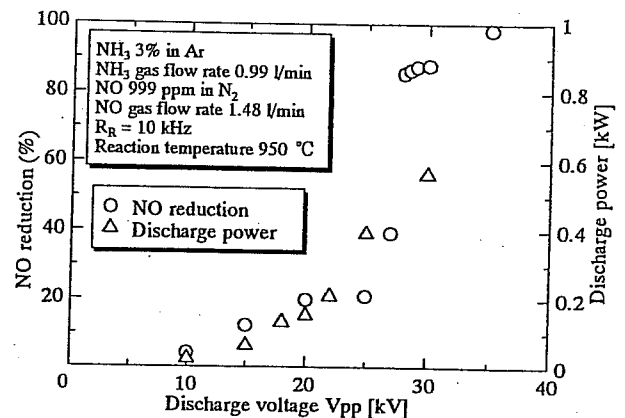


図 15. 印加電圧 V<sub>pp</sub> 変化時の一周あたり NO 除去率、放電電力 (Ar + NH<sub>3</sub> ガス)

Fig.15 NO reduction and discharge power as a function of applied voltage V<sub>pp</sub>. (Ar with NH<sub>3</sub>)

#### 5. まとめ

誘電体バリア放電を用いたラジカルインジェクターを用いて、NO<sub>x</sub> ガスの除去実験を行なった。ラジカルインジェクターにより注入するガスとしては大きく分けて、N<sub>2</sub> 希釈の NH<sub>3</sub> ガス、Ar 希釈の NH<sub>3</sub> ガスの二種類を用いた。本研究で提案した方法によれば、加熱温度 800~950 °C と、比較的低温度にて処理され低減を図ることができ、実機に近い処理温度で効率的な NO<sub>x</sub> 処理ができる。それぞれのガスについての結果をまとめると、

##### (1) N<sub>2</sub> 希釈の NH<sub>3</sub> を用いた NO<sub>x</sub> 処理

ラジカルインジェクターに純 N<sub>2</sub> ガスのみを流して NO<sub>x</sub> 処理を行なったとき、印加電圧、繰り返し数の増加に対して本研究条件の範囲では NO 除去率は約 35 % で飽和した。

一方 NH<sub>3</sub> を 1040 ppm で流したときは、NO 除去率は印加電圧に対し 35 % まで直線的に増加した。

放電電力は印加電圧に対し直線的に増加し、0.8 kW で N<sub>2</sub> ガスと NH<sub>3</sub> ガスともに最大の除去率 35 % を得た。

インジェクター出口の分光観測により、印加電圧の増加にともない NH ラジカルが増加することがわかった。

##### (2) Ar 希釈を用いた NH<sub>3</sub> を用いた NO<sub>x</sub> 処理

印加電圧を増加したとき V<sub>pp</sub> = 20 kV 以上で放電電力が急増した。NO 除去率は印加電圧を増加すると V<sub>pp</sub> = 26~27 kV を閾値として急激に上昇し 80 % 以上の NO 除去率を示し、最大の除去率は印加電圧 35 kV において 98 % であった。

Ar ガス混合の場合のプラズマ電力は N<sub>2</sub> 混合の場合に比べ低くなることがわかった。これより、Ar などの励起エネルギーの低いガスを混合すれば、より低電力でラジカルを生成できることが推測される。

