

PJ303

## アンモニアのプラズマ分解に及ぼす接地電極の影響

## Effect of ground electrode configuration on ammonia clacking by plasma

○学 川口 元頌<sup>\*1</sup>, 正 早川 幸男<sup>\*1</sup>  
 正 神原 信志<sup>\*1</sup>, 三浦 友規<sup>\*2</sup>  
 Motonobu KAWAGUCHI<sup>\*1</sup>, Yukio HAYAKAWA<sup>\*1</sup>,  
 Shinji KAMBARA<sup>\*1</sup> and Tomonori MIURA<sup>\*2</sup>

<sup>\*1</sup> 岐阜大学 Gifu University

<sup>\*2</sup> 澤藤電機 Sawafuji Electric Corporation

Effect of the length of ground electrode and the configuration on the ammonia decomposition was investigated to increase the hydrogen production rate. An original pulsed plasma reactor with a hydrogen separation membrane was used for efficient hydrogen production, and its hydrogen separation performance was examined using different length of the ground electrode and the different configuration. 50 mm, 150 mm, and 300 mm electrodes were used. The configuration was changed at the inlet side, center of the reactor, and the outlet side. The hydrogen permeation rate was proportionally increased with an increase in the electrode length. The 300 mm electrode indicated the best hydrogen permeation rate. However, the hydrogen permeation rate per the power consumption was the highest for the 50 mm electrode.

**Key Words** : Hydrogen, Ammonia, Atmospheric plasma, Hydrogen separation membrane, Ground electrode

## 1. 結 言

環境負荷低減のために、水素エネルギー社会の構築が求められているが、水素の製造、貯蔵輸送におけるエネルギーロスが課題である。これを解決するために、水素キャリアで貯蔵・輸送し、水素を利用する際に水素キャリアから水素を製造するシステムが提案されている<sup>1)</sup>。特にアンモニアは、分子中に水素を 17.8%含み、カーボンフリーでありという利点があり、水素キャリアとして注目されている<sup>2)</sup>。本研究は、アンモニアから高効率に水素を製造するデバイスの開発を目的としている。

これまで大気圧プラズマを用いてプラズマ中の電子エネルギーによってアンモニアを分解し、水素製造を試みてきた<sup>3)</sup>。しかし、供給ガス流量が増加するとガス滞留時間が減少するため、プラズマ点灯状態を安定して維持することが難しい。そこで本研究では、プラズマ点灯状態の最適化を目的として接地電極の影響を調べた。

## 2. 実験装置および実験装置

実験装置は、試料ガス供給系、高電圧パルス電源、プラズマメンブレンリアクター (PMR)、ガス分析計で構成されている (図 1)。PMR の構造は外径 38mm (厚さ  $t = 2$  mm)、長さ 400 mm の石英管内に水素分離膜を搭載した高電圧電極が挿入された円筒型構造となっている。接地電極は長さ 300 mm であり、PMR の外筒周囲に巻き付けた。プラズマは接地電極と高電圧電極の間で発生する。石英管と電極間のギャップ長は 4.0 mm であり、そこに東ソー株式会社製ゼオラム SA-600A ペレット (X 型ゼオライト, 1.5 mm  $\phi$ ) を充填した。ギャップ間には 1 方向から試料ガスを供給する構造となっている。澤藤電機製高電圧パルス電源を用いて、誘電体バリア放電 (DBD) により大気圧プラズマを発生させた。

試料ガスには  $H_2$  ガスおよび  $NH_3$  ガスを用いた。ガス供給系はマスフローメーター (ALICAT MS シリーズ) で流量を調節し、PMR 内のギャップ部および、閉鎖系管内に充填させた。また、 $NH_3$  ガスを用いた  $H_2$  の製造実験では、触媒反応器 (10% Ni/ $Al_2O_3$ ) を用いて  $NH_3$  分解を行った。また、 $H_2$  透過側ガス圧力 ( $P_{out}$ ) を調節するこ

とで  $H_2$  ガスの透過を行った。分析計は  $H_2$  測定用として熱伝導式ガス濃度計（株式会社チノー）を用いており、透過したガスが  $H_2$  であることを確認した。実験時の反応器内条件および、水素透過実験、水素製造実験の条件表を表 1 から表 3 に示す。

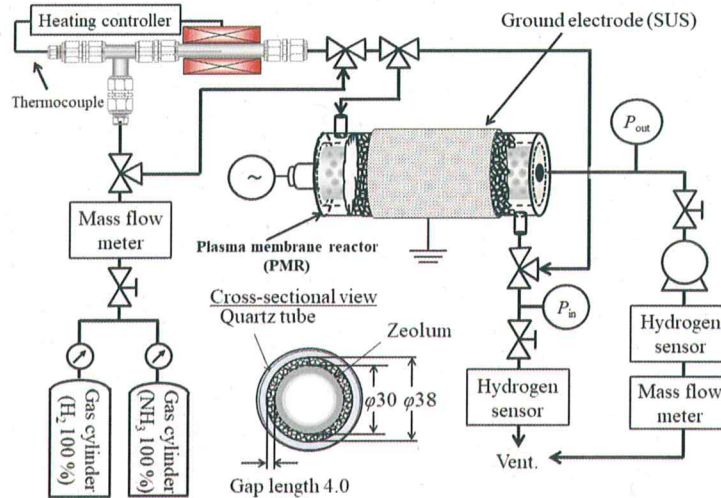


Fig. 1 Experimental setup for hydrogen production.

Table 1 Plasma conditions.

Repetition rate, $R_R$	[kHz]	10
Applied voltage, $V_{pp}$	[kV]	10—20
Plasma firing time	[min.]	0—30
Pressure of permeable, $P_{out}$	[kPa(G)]	-80

Table 2  $H_2$  permeation experimental conditions.

$H_2$ conc.	[%]	100
Gas flow rate	[L/min]	5.0

Table 3  $H_2$  production experimental conditions.

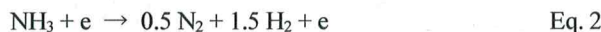
Catalyst	[-]	10% Ni/ $Al_2O_3$
Internal diameter	[mm]	16
Catalyst layer length	[mm]	60
Reaction temp.	[°C]	700
$NH_3$ conc.	[%]	100
Gas flow rate	[L/min]	2.5
Space velocity	[/h]	12500

### 3. 実験結果および考察

#### 3・1 接地電極の位置による水素透過特性の違い

図 2 はプラズマ点灯時間に対する、接地電極の位置を変化させた時の水素の透過率をまとめた図である。水素透過率  $Y_{H_2}$  [%] は次式 (式 1) より算出した。

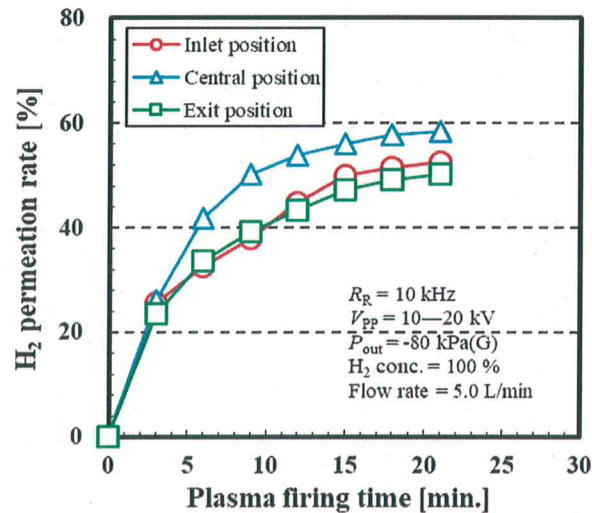
$$Y_{H_2} [\%] = [H_2]_{out} / [H_2]_{sto} \times 100 \quad \text{Eq. 1}$$



ここで  $[H_2]_{out}$  は出口水素濃度 [%],  $[H_2]_{sto}$  は式 2 の当量反応における水素濃度 [%] を示す。  $NH_3$  濃度が 100% の時、  $[H_2]_{sto}$  は 75% である。

供給水素流量は 5.0 L/min であり、接地電極を本来の長さ (300 mm) の半分の 150 mm に変更し、接地電極の位置を PMR 反応部のガス入口側、中央部、出口側に変えて水素透過実験を行った。

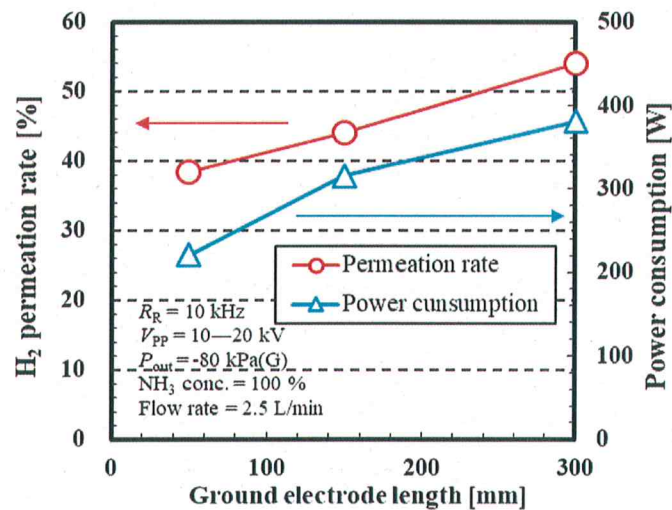
図 2 より、プラズマ点灯時間 21 min.、接地電極の位置が中央部のときに水素透過率は 58 % となり、入口側、出口側の場合に比べ、5—8 % 増加した。これは、入口側、出口側ではガスの出入りがあり、膜表面への H ラジカル吸着と膜内透過に影響を与えたためだと考えられる。

Fig. 2 H<sub>2</sub> permeation rate of the PMR for each ground electrode position.

### 3・2 接地電極の長さによる水素製造特性の違い

図3は接地電極の長さに対する、水素透過率と消費電力をまとめた図である。

図3より、プラズマ点灯時間 24 min. , 接地電極が 300 mm のとき、水素透過率、消費電力はそれぞれ 54 % , 380 W となり、接地電極の長さの増加に伴い、水素透過率、消費電力が増加することが確認できた。このことから、プラズマの点灯面積が大きく、プラズマ発生領域でのガス滞留時間が長いほど水素透過は起こり、消費電力は高くなると考えられる。

Fig.3 H<sub>2</sub> permeation rate and power consumption of the PMR for each ground electrode length.

また、消費電力当たりの水素透過流量を調べると、プラズマ点灯時間 18 min. , 接地電極が 50 mm のとき、0.111 L/kJ となり、これは他の長さの接地電極の場合の中でも、最大であった。分離膜は気体分子の膜への溶解と膜内の拡散によって透過するとされている<sup>4)</sup>。そのため、接地電極を短くすることで温度が上昇しやすくなり、溶解と拡散が起こりやすくなったために消費電力当たりの透過水素流量が多くなったと考えられる。

#### 4. 結 語

水素エネルギー社会の実現のために、プラズマメンブレンリアクターの最適化を目的とし、アンモニアからの水素製造に及ぼす接地電極の影響を調べた。

接地電極の長さの増加に伴い、水素透過率、消費電力が増加することが判明した。また、接地電極を短くすることで、反応部の温度が上がりやすくなり、分離膜への水素透過が促進されたために、消費電力当たりの透過水素流量が増加した。

#### 文 献

- 1) G. Strickland, "Ammonia as a hydrogen energy storage medium", Proc. 5th annual thermal storage meeting, Paper 8010555-2, 10th October 1980, McLean, VA, USA.
- 2) 戦略的イノベーション創造プログラム(SIP)エネルギーキャリア (新しいエネルギー社会の実現に向けて), 2016.
- 3) 神原信志, 早川幸男, 増井 芽, 三浦友規, 隈部和弘, 守富 寛, 日本機械学会論文集 B 編, 78(789), pp.1038-1042, 2012.
- 4) Ohya H, Hydrogen Energy Systems Society of Japan Vol. 26, No.1 (2001) :大矢靖彦