

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5927074号
(P5927074)

(45) 発行日 平成28年5月25日(2016.5.25)

(24) 登録日 平成28年4月28日(2016.4.28)

(51) Int.Cl.		F I			
B O 1 D 53/56	(2006.01)	B O 1 D	53/56	4 0 0	
B O 1 D 53/32	(2006.01)	B O 1 D	53/32	Z A B	
F O 1 N 3/08	(2006.01)	F O 1 N	3/08		B
		F O 1 N	3/08		C

請求項の数 6 (全 15 頁)

(21) 出願番号	特願2012-163232 (P2012-163232)	(73) 特許権者	304019399 国立大学法人岐阜大学 岐阜県岐阜市柳戸1番1
(22) 出願日	平成24年7月24日(2012.7.24)	(73) 特許権者	000102212 ウシオ電機株式会社 東京都千代田区丸の内一丁目6番5号
(65) 公開番号	特開2014-18784 (P2014-18784A)	(73) 特許権者	392019857 株式会社アクトリー 石川県白山市水澄町375番地
(43) 公開日	平成26年2月3日(2014.2.3)	(74) 代理人	100078754 弁理士 大井 正彦
審査請求日	平成26年7月25日(2014.7.25)	(72) 発明者	神原 信志 岐阜県岐阜市柳戸1番1 国立大学法人岐阜大学内
前置審査			

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ガス処理方法およびガス処理装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

窒素酸化物を含有する被処理ガスを処理するガス処理方法であって、
前記被処理ガスにアンモニアが混合されてなる、温度が室温～350である混合ガス
に対して、波長172nmの紫外線を放射するキセノンエキシマランプよりの紫外線を照射
する工程を有し、

前記混合ガス中における一酸化窒素に対するアンモニアの割合が、モル比で1.5以上
であることを特徴とするガス処理方法。

【請求項2】

前記被処理ガスをアンモニア水溶液に接触させることによって、前記混合ガスを調製す
ることを特徴とする請求項1に記載のガス処理方法。

【請求項3】

前記混合ガスに対して紫外線を照射して得られる光照射処理済ガスを、アンモニア回収
用水に接触させることによって、当該光照射処理済ガス中のアンモニアを回収することを
特徴とする請求項1または請求項2に記載のガス処理方法。

【請求項4】

窒素酸化物を含有する被処理ガスを処理するガス処理装置であって、
アンモニアを供給するアンモニア供給部と、
前記被処理ガスに前記アンモニア供給部からのアンモニアが混合された、温度が室温～
350である混合ガスに対して、紫外線を照射する光照射処理部と、

10

20

前記混合ガス中における一酸化窒素に対するアンモニアの割合を、モル比で1.5以上となるよう調整するアンモニア濃度調整手段とを備えてなり、

前記光照射処理部は、前記混合ガスに紫外線を照射する紫外線光源として波長172nmの紫外線を放射するキセノンエキシマランプを有することを特徴とするガス処理装置。

【請求項5】

前記アンモニア供給部は、前記アンモニアをアンモニア水溶液の状態で供給するものであり、

前記被処理ガスを前記アンモニア供給部から供給されたアンモニア水溶液に接触させることにより、前記混合ガスを調製する混合ガス調製部を備えてなることを特徴とする請求項4に記載のガス処理装置。

10

【請求項6】

前記光照射処理部から排出される光照射処理済ガスをアンモニア回収用水に接触させることにより、当該光照射処理済ガス中のアンモニアを回収するアンモニア回収部を備えてなることを特徴とする請求項4または請求項5に記載のガス処理装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、窒素酸化物を含む被処理ガスを処理するガス処理方法およびガス処理装置に関する。

20

【背景技術】

【0002】

例えば焼却炉若しくは燃焼炉や、ディーゼルエンジン等の内燃機関においては、その使用時に、空気中の窒素と酸素とが反応することにより、或いは燃料等に含まれる窒素と酸素とが反応することにより、一酸化窒素(NO)や二酸化窒素(NO_2)等の窒素酸化物(NO_x)が生成されるため、焼却炉等や内燃機関などから排出される排ガス中には、一酸化窒素や二酸化窒素等の窒素酸化物が含まれている。このような窒素酸化物は、それ自体が人体に有害な物質であると共に、光化学スモッグや酸性雨を引き起こす大気汚染原因物質である。そのため、焼却炉等や内燃機関から排出される排ガスについては、それに含まれる窒素酸化物を処理することが行われている。焼却炉等や内燃機関から排出される窒素酸化物のほとんどは NO であり、それを還元処理することが行われている。

30

【0003】

従来、排ガス中の NO を還元処理する方法としては、アンモニアを用いる方法が知られており、このようなガス処理方法としては、 NO を含む被処理ガスに、当該被処理ガス中の窒素酸化物と同等の当量若しくは若干少ない当量のアンモニアを混合する方法が知られている。

また、 NO を含む被処理ガスに、当該被処理ガス中の NO と同等の当量若しくは若干少ない当量のアンモニアを混合し、還元触媒を用いる方法も知られている。

さらには、 NO を含む被処理ガスに、当該被処理ガス中の NO と同等の当量若しくは若干少ない当量のアンモニアを混合すると共に、得られた混合ガスに波長190~300nmの紫外線を照射することにより、生成したアンモニアラジカルと NO とを反応させる方法が提案されている(特許文献1等参照)。

40

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【特許文献1】特開平5-7732号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

50

しかしながら、上記のガス処理方法においては、被処理ガスを例えば900以上の高温で処理することが必要であり、900よりも相当に低い温度では、NOを高い脱硝率で還元処理することが困難である。このため、被処理ガスを加熱するための加熱装置を設けることが必要となることから、ガス処理装置全体が大型のものとなる。また、被処理ガスを加熱するための費用がかかることから、被処理ガスの処理コストが増大する、という問題がある。

【0006】

本発明は、以上のような事情に基づいてなされたものであって、その目的は、900よりも相当に低い温度の被処理ガス中のNOを、高い脱硝率で還元処理することができるガス処理方法およびガス処理装置を提供することにある。

10

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明のガス処理方法は、窒素酸化物を含有する被処理ガスを処理するガス処理方法であって、

前記被処理ガスにアンモニアが混合されてなる、温度が室温～350である混合ガスに対して、波長172nmの紫外線を放射するキセノンエキシマランプよりの紫外線を照射する工程を有し、

前記混合ガス中における一酸化窒素に対するアンモニアの割合が、モル比で1.5以上であることを特徴とする。

20

【0008】

本発明のガス処理方法においては、前記被処理ガスをアンモニア水溶液に接触させることによって、前記混合ガスを調製することが好ましい。

また、前記混合ガスに対して紫外線を照射して得られる光照射処理済ガスを、アンモニア回収用水に接触させることによって、当該光照射処理済ガス中のアンモニアを回収することが好ましい。

【0009】

本発明のガス処理装置は、窒素酸化物を含有する被処理ガスを処理するガス処理装置であって、

30

アンモニアを供給するアンモニア供給部と、

前記被処理ガスに前記アンモニア供給部からのアンモニアが混合された、温度が室温～350である混合ガスに対して、紫外線を照射する光照射処理部と、

前記混合ガス中における一酸化窒素に対するアンモニアの割合を、モル比で1.5以上となるよう調整するアンモニア濃度調整手段とを備えてなり、

前記光照射処理部は、前記混合ガスに紫外線を照射する紫外線光源として波長172nmの紫外線を放射するキセノンエキシマランプを有することを特徴とする。

【0010】

本発明のガス処理装置においては、前記アンモニア供給部は、前記アンモニアをアンモニア水溶液の状態で供給するものであり、

40

前記被処理ガスを前記アンモニア供給部から供給されたアンモニア水溶液に接触させることにより、前記混合ガスを調製する混合ガス調製部を備えてなることが好ましい。

また、前記光照射処理部から排出される光照射処理済ガスをアンモニア回収用水に接触させることにより、当該光照射処理済ガス中のアンモニアを回収するアンモニア回収部を備えてなることが好ましい。

【発明の効果】

【0011】

本発明によれば、被処理ガスに、当該被処理ガス中に含まれるNOに対してモル比で1

50

． 5 以上のアンモニアが混合された混合ガスを調製し、この混合ガスに、波長 172 nm の紫外線を放射するキセノンエキシマランプよりの紫外線を照射するため、低い温度の被処理ガス中の NO を、高い脱硝率で還元処理することができる。

また、被処理ガスをアンモニア水溶液に接触させることによって混合ガスを調製することにより、被処理ガス中に含まれるばい塵を除去することができる。

また、光照射処理済ガスをアンモニア回収用水に接触させることによって、当該光照射処理済ガス中のアンモニアを回収することにより、光照射処理済ガスからアンモニアを除去できると共に、回収したアンモニアを再利用することが可能となる。

【図面の簡単な説明】

【0012】

【図1】本発明のガス処理装置の一例における構成の概略を示す説明図である。

【図2】本発明のガス処理装置の他の例における構成の概略を示す説明図である。

【図3】実施例で使用した実験用ガス処理装置の構成の概略を示す説明図である。

【図4】図3に示す実験用ガス処理装置における光照射処理部の構成を一部を破断して示す説明図である。

【図5】実験例1～6および比較実験例1～4に係るガス処理方法において、NOに対するアンモニアのモル比と脱硝率との関係を示す図である。

【発明を実施するための形態】

【0013】

以下、本発明のガス処理方法およびガス処理装置の実施の形態について説明する。

図1は、本発明のガス処理装置の一例における構成の概略を示す説明図である。このガス処理装置は、窒素酸化物として主にNOを含有する低い温度の被処理ガスを処理するガス処理装置であって、アンモニアを供給するアンモニア供給部10と、被処理ガスにアンモニア供給部10からのアンモニアが混合された混合ガスに対して、紫外線を照射する光照射処理部20とを備えてなる。

【0014】

アンモニア供給部10は、アンモニアの供給源が貯蔵されたアンモニア貯蔵部11と、キャリアガスが貯蔵されたキャリアガス貯蔵部12と、アンモニアガス貯蔵部11およびキャリアガス貯蔵部12の各々に導管13, 14を介して接続された、アンモニアガスおよびキャリアガスが混合されてなる処理用ガスを調製する処理用ガス調製部15とにより構成されている。

【0015】

光照射処理部20は、被処理ガスおよび処理用ガスが導入される処理室Sを形成する処理室形成部21を有し、この処理室形成部21には、被処理ガスを導入する被処理ガス導入口21A、光照射処理済ガスを排出する処理済ガス排出口21B、および処理用ガスを導入する処理用ガス導入口21Cが形成されている。また、この処理室形成部21には、紫外線を透過する例えば石英ガラスよりなる板状の紫外線透過窓22が設けられている。紫外線透過窓22に対向する位置には、紫外線放射ランプ25が配置されている。被処理ガス導入口21Aには、被処理ガスの導入路を形成する導管26が接続され、処理済ガス排出口21Bには、光照射処理済ガスの排出路を形成する導管27が接続されている。また、処理用ガス導入口21Cは、処理用ガスの導入路を形成する導管16を介して、アンモニア供給部10における処理用ガス調製部15に接続されている。

【0016】

アンモニアガス貯蔵部11と処理用ガス調製部15とを接続する導管13には、アンモニアガス貯蔵部11からのアンモニアガスの流量を調整するアンモニアガス流量制御機構17が設けられ、被処理ガスの導入路を形成する導管26には、被処理ガスの流量を調整する被処理ガス流量制御機構28が設けられており、アンモニアガス流量制御機構17および被処理ガス流量制御機構28によって、後述する混合ガス中におけるNOに対するアンモニアの割合を調整するアンモニア濃度調整手段が構成されている。

【0017】

10

20

30

40

50

アンモニア供給部 10 において、アンモニア貯蔵部 11 に貯蔵されるアンモニアの供給源としては、アンモニアガス、液体アンモニアを用いることができるが、反応によってアンモニアを生成し得るもの、例えば尿素やヒドラジン等、アンモニアを生成する化合物との混合物なども用いることができる。

キャリアガス貯蔵部 12 から供給されるキャリアガスとしては、空気、窒素ガスなどを用いることができる。

【0018】

紫外線放射ランプ 25 としては、アンモニアにおける N - H 結合を切断し得るエネルギーを有する紫外線を放射するものであればよいが、効率よくアンモニアラジカルを生成させることができる点で、波長が 190 nm 以下の紫外線を放射するものであることが好ましい。

10

また、紫外線透過窓 22 を構成する材料として 120 nm より短い波長の紫外線を効率よく透過するものがなく、また、比較的安価な石英ガラスは 120 nm より短い紫外線によりダメージを受け、短時間に破損してしまうことから、紫外線放射ランプ 25 としては、波長が 120 nm 以上の紫外線を放射するものを用いることが好ましい。

このような紫外線を放射する紫外線放射ランプの具体例としては、重水素ランプ（波長 120 ~ 170 nm）、ArBr エキシマランプ（波長 165 nm）、Xe エキシマランプ（波長 172 nm）、ArCl エキシマランプ（波長 175 nm）、低圧水銀ランプ（波長 185 nm）などが挙げられる。

【0019】

20

上記のガス処理装置においては、被処理ガス（矢印 G1 で示す）が、焼却炉、燃焼炉または内燃機関などの被処理ガス発生源（図示省略）から導管 26 を介して光照射処理部 20 における処理室 S に導入される。

一方、アンモニア供給部 10 においては、アンモニアガス（矢印 g1 で示す）が、アンモニアガス貯蔵部 11 から導管 13 を介して処理用ガス調製部 15 に供給されると共に、キャリアガス（矢印 g2 で示す）が、キャリアガス貯蔵部 12 から導管 14 を介して処理用ガス調製部 15 に供給され、これにより、当該処理用ガス調製部 15 においてアンモニアガスとキャリアガスとが混合されて処理用ガスが調製される。このアンモニアガスを含む処理用ガス（矢印 g3 で示す）は、処理用ガス調製部 15 から導管 16 を介して光照射処理部 20 における処理室 S 内に導入される。

30

【0020】

光照射処理部 20 における処理室 S 内においては、被処理ガスとアンモニアガスを含む処理用ガスとが混合されることによって混合ガスが調製されると共に、紫外線放射ランプ 25 からの紫外線（矢印 L で示す）が、紫外線透過窓 22 を介して混合ガスに照射される。これにより、当該混合ガス中のアンモニアガスが下記反応式（1）～（2）に示すような光分解反応によってアンモニアラジカルが発生し、このアンモニアラジカルによって被処理ガス中の NO が下記反応式（3）～（5）に示す反応により還元処理される。ここで、アンモニアラジカルとは、アンモニアから生ずるラジカルおよびイオンを意味し、主に下記反応式（1）～（2）に示す NH₂ ラジカルおよび NH ラジカルであるが、その他 N ラジカル、N⁺ イオン、NH⁺ イオン、NH₂⁺ イオン、NH₃⁺ イオンなども含まれる。

40

さらには、アンモニアへの紫外線照射で生成した NH₂ ラジカルや NH ラジカルと NO とが還元反応することによって、下記反応式（3）および下記反応式（5）に示すように OH ラジカルが生成する。この OH ラジカルは、下記反応式（6）に示すようにアンモニアから NH₂ ラジカルを生成させ、下記反応式（3）に示す NO の還元反応に寄与する。これらの反応式（3）～反応式（6）の反応は連鎖反応であり、NO を効率良く還元する原理となっている。

その後、混合ガスに対して紫外線を照射して得られる光照射処理済ガス（矢印 G2 で示す）は、導管 27 を介して外部に排出される。

【0021】

反応式（1）：

50



反応式(2) :



反応式(3) :



反応式(4) :



反応式(5) :



反応式(6) :



[反応式(1)および反応式(2)において、「h」はプランク定数(6.63×10^{-34} [Js])であり、「 ν 」は照射される紫外線の振動数(光速/波長)である。

【0022】

以上において、光照射処理部20における処理室S内の混合ガスは、アンモニア濃度調整手段によって、当該混合ガス中におけるNOに対するアンモニアの割合がモル比で1.5以上、好ましくは1.5~3となるよう調整される。具体的には、被処理ガス流量制御機構28によって処理室Sに導入される被処理ガスの流量が制御されると共に、アンモニアガス流量制御機構17によって処理用ガス調製部15に供給されるアンモニアガスの流量が制御されることにより、混合ガス中におけるNOに対するアンモニアの割合が調整される。

混合ガス中におけるNOに対するアンモニアの割合がモル比で1.5未満である場合には、NOを高い脱硝率で還元処理することが困難となる。また、混合ガス中におけるNOに対するアンモニアの割合がモル比で3を超える場合には、光照射処理済ガス中に多量にアンモニアガスが残存するため、好ましくない。

【0023】

また、光照射処理部20における混合ガスに対する紫外線の照射条件としては、紫外線の光子数と混合ガス中に含まれるアンモニア分子数との比(光子数)/(アンモニア分子数)が0.50~0.85であることが好ましく、0.77が好適である。(光子数)/(アンモニア分子数)が0.50未満のときには、上記反応式(1)および上記反応式(2)で示す反応において、十分なNH₂ラジカルおよびNHラジカルが生成せず、高い脱硝率は得られないことがある。また、(光子数)/(アンモニア分子数)が0.85以上のときには、高い脱硝率が得られるもののエネルギー効率が低下するため、好ましくない。

【0024】

また、光照射処理部20における処理室S内の混合ガスの温度は、例えば室温~350のような低温であってもよく、被処理ガス発生源からの被処理ガスを、加熱することなしに光照射処理部20に導入すればよい。

また、アンモニアラジカルによるNOの還元処理時間、具体的には、光照射処理部20における混合ガスの滞留時間は、(光子数)/(アンモニア分子数)が0.50~0.85となる14.4~24.9秒間であることが好ましく、より好ましくは(光子数)/(アンモニア分子数)が0.77となる22.4秒間である。

【0025】

このようなガス処理装置およびガス処理方法によれば、被処理ガスに、当該被処理ガス中に含まれるNOに対してモル比で1.5以上のアンモニアが混合された混合ガスを調製し、この混合ガスに紫外線を照射するため、低い温度の被処理ガス中のNOを、高い脱硝率で還元処理することができる。従って、被処理ガス中のNOの還元処理において、加熱装置を設けることが不要となるため、ガス処理装置全体の小型化を図ることができると共に、被処理ガスの処理コストの低減化を図ることができる。

【0026】

10

20

30

40

50

図2は、本発明のガス処理装置の他の例における構成の概略を示す説明図である。このガス処理装置は、窒素酸化物を含有する被処理ガスを処理するガス処理装置であって、アンモニアをアンモニア水溶液の状態で供給するアンモニア供給部30と、被処理ガスをアンモニア供給部30から供給されたアンモニア水溶液に接触させることにより、被処理ガスにアンモニアが混合されてなる混合ガスを調製する混合ガス調製部35と、混合ガス調製部35からの混合ガスに対して、紫外線を照射する光照射処理部40と、光照射処理部40から排出される光照射処理済ガスをアンモニア回収用水に接触させることにより、当該光照射処理済ガス中のアンモニアを回収するアンモニア回収部50とを備えてなる。

【0027】

アンモニア供給部30から供給されるアンモニア水溶液としては、被処理ガスのNO濃度、温度および流量によって異なるが、アンモニアの濃度が例えば5～60質量%のものをを用いることができる。

【0028】

この例の混合ガス調製部35は、被処理ガスとアンモニア水溶液とを気液体混合することにより、被処理ガスにアンモニア水溶液から気化したアンモニアガスが混合されてなる混合ガスを調製するものである。この混合ガス調製部35には、被処理ガスを導入する被処理ガス導入口35A、調製された混合ガスを光照射処理部40に供給する混合ガス供給口35B、アンモニア供給部30からのアンモニア水溶液を導入する液体導入口35C、および混合ガス調製部35からアンモニア水溶液を排出する液体排出口35Dが形成されている。混合ガス調製部35におけるガス導入口35Aには、被処理ガスの導入路を形成する導管36が接続され、混合ガス供給口35Bには、混合ガスの導入路を形成する導管37が接続され、液体排出口35Dには、アンモニア水溶液の排出路を形成する導管38が接続されている。また、液体導入口35Cは、アンモニア水溶液の導入路を形成する導管31を介してアンモニア供給部30に接続されている。

このような混合ガス調製部35としては、ウェットスクラバーを利用することができる。

【0029】

光照射処理部40は、混合ガスが導入される処理室Sを形成する処理室形成部41を有し、この処理室形成部41には、混合ガスを導入する混合ガス導入口41Aおよび光照射処理済ガスを排出する処理済ガス排出口41Bが形成されている。また、この処理室形成部41には、紫外線を透過する例えば石英ガラスよりなる板状の紫外線透過窓42が設けられている。紫外線透過窓42に対向する位置には、紫外線放射ランプ45が配置されている。混合ガス導入口41Aには、混合ガスの導入路を形成する導管37が接続され、処理済ガス排出口41Bには、光照射処理済ガスの排出路を形成する導管43が接続されている。

紫外線放射ランプ45としては、図1に示すガス処理装置における紫外線放射ランプ25と同様のものをを用いることができる。

【0030】

アンモニア回収部50は、光照射処理済ガスとアンモニア回収用水とを気液混合処理することによって、アンモニア回収用水に、光照射処理済ガス中に含まれるアンモニアガスを溶解させ、これにより、アンモニアをアンモニア水溶液として回収するものである。このアンモニア回収部50は、アンモニア回収用水が貯蔵されたアンモニア回収用水貯蔵部51と、光照射処理部40から排出される光照射処理済ガスおよびアンモニア回収用水貯蔵部51から供給されるアンモニア回収用水を気液混合処理する気液混合処理部52と、気液混合処理部52において得られるアンモニア水溶液を回収する回収タンク53とを備えてなる。

【0031】

アンモニア回収用水としては、水道水、蒸留水などを用いることができるが、後述する循環路54によって回収タンク53内のアンモニア水溶液をアンモニア供給部30に導入しない場合には、海水や、塩酸または硫酸などの酸性水溶液などを用いることができる。

10

20

30

40

50

【 0 0 3 2 】

気液混合処理部 5 2 には、光照射処理済ガスを導入するガス導入口 5 2 A、気液混合処理された光照射処理済ガスを排出するガス排出口 5 2 B、アンモニア回収用水貯蔵部 5 1 からのアンモニア回収用水を導入する液体導入口 5 2 C、および気液混合処理によって得られるアンモニア水溶液を排出する液体排出口 5 2 D が形成されている。気液混合処理部 5 2 におけるガス導入口 5 2 A には導管 4 3 が接続され、ガス排出口 5 2 B には、光照射処理済ガスの排出路を形成する導管 5 5 が接続されている。また、液体導入口 5 2 C は、アンモニア回収用水の導入路を形成する導管 5 6 を介して、アンモニア回収用水貯蔵部 5 1 に接続され、液体排出口 5 2 D は、除塵フィルタ 5 8 を有する導管 5 7 を介して、回収タンク 5 3 に接続されている。

10

このような気液混合処理部 5 2 としては、ウェットスクラバーを利用することができる。

また、図示の例では、回収タンク 5 3 は、循環路 5 4 を介してアンモニア供給部 3 0 に接続されている。

【 0 0 3 3 】

アンモニア供給部 3 0 と混合ガス調製部 3 5 とを接続する導管 3 1 には、アンモニアガス供給部 3 0 からのアンモニア水溶液の流量を調整するアンモニア水溶液流量制御機構 3 2 が設けられ、被処理ガスの導入路を形成する導管 3 6 には、被処理ガスの流量を調整する被処理ガス流量制御機構 3 9 が設けられており、アンモニア水溶液流量制御機構 3 2 および被処理ガス流量制御機構 3 9 によって、後述する混合ガス中における N O に対するアンモニアの割合を調整するアンモニア濃度調整手段が構成されている。

20

【 0 0 3 4 】

上記のガス処理装置においては、被処理ガス（矢印 G 1 で示す）が、焼却炉、燃焼炉または内燃機関などの被処理ガス発生源（図示省略）から導管 3 6 を介して混合ガス調製部 3 5 に導入されると共に、アンモニア水溶液（矢印 L 1 で示す）が、アンモニア供給部 3 0 から導管 3 1 を介して混合ガス調製部 3 5 に供給される。

混合ガス調製部 3 5 においては、被処理ガスとアンモニア水溶液とが気液混合処理されることにより、被処理ガスにアンモニア水溶液から気化したアンモニアガスが混合される混合ガスを調製される。このとき、被処理ガス中に含まれるばい塵は、アンモニア水溶液と混合されることによって除去されるため、得られる混合ガスは、ばい塵の含有量が少ないものとなる。この混合ガス（矢印 G 3 で示す）は、混合ガス調製部 3 5 から導管 3 7 を介して光照射処理部 4 0 における処理室 S 内に導入される。一方、気液混合処理後のアンモニア水溶液（矢印 L 2 で示す）は、混合ガス調製部 3 5 から導管 3 8 を介して外部に排出される。

30

【 0 0 3 5 】

光照射処理部 4 0 における処理室 S 内においては、紫外線放射ランプ 4 5 からの紫外線（矢印 L で示す）が、紫外線透過窓 4 2 を介して処理室 S 内の混合ガスに照射される。これにより、当該混合ガス中のアンモニアガスが反応することによってアンモニアラジカルが発生し、このアンモニアラジカルによって被処理ガス中の窒素酸化物が還元処理される。

40

その後、混合ガスに対して紫外線を照射して得られる光照射処理済ガス（矢印 G 2 で示す）は、処理済ガス排出口 4 1 B および導管 4 3 を介してアンモニア回収部 5 0 における気液混合処理部 5 2 に導入される。

【 0 0 3 6 】

アンモニア回収部 5 0 においては、アンモニア回収用水（矢印 L 3 で示す）が、アンモニア回収用水貯蔵部 5 1 から導管 5 6 を介して気液混合処理部 5 2 に供給される。

気液混合処理部 5 2 においては、光照射処理済ガスとアンモニア回収用水とが気液混合処理されることにより、光照射処理済ガス中に含まれるアンモニアが、アンモニア回収用水に溶解することによってアンモニア水溶液として回収される。このアンモニア水溶液（矢印 L 4 で示す）は、導管 5 7 を介して回収タンク 5 3 に導入される。一方、気液混合処

50

理された光照射処理済ガス（矢印 G 4 で示す）は、導管 5 5 を介して外部に排出される。

【 0 0 3 7 】

以上において、光照射処理部 4 0 における処理室 S 内の混合ガスは、アンモニア濃度調整手段によって、当該混合ガス中における NO に対するアンモニアの割合がモル比で 1 . 5 以上、好ましくは 1 . 5 ~ 3 となるよう調整される。具体的には、被処理ガス流量制御機構 3 9 によって処理室 S に導入される被処理ガスの流量が制御されると共に、アンモニア水溶液流量制御機構 3 2 によって混合ガス調製部 3 5 に供給されるアンモニア水溶液の流量が制御されることにより、混合ガス中における NO に対するアンモニアの割合が調整される。

光照射処理部 4 0 における処理条件（紫外線照射条件、温度条件、還元処理時間）は、図 1 に示すガス処理装置における条件と同様である。

【 0 0 3 8 】

このようなガス処理装置およびガス処理方法によれば、被処理ガスに、当該被処理ガス中に含まれる NO に対してモル比で 1 . 5 以上のアンモニアが混合された混合ガスを調製し、この混合ガスに紫外線を照射するため、低い温度の被処理ガス中の NO を、高い脱硝率で還元処理することができる。従って、被処理ガス中の NO の還元処理において、加熱装置を設けることが不要となるため、ガス処理装置全体の小型化を図ることができると共に、被処理ガスの処理コストの低減化を図ることができる。

また、被処理ガスをアンモニア水溶液に接触させることによって混合ガスを調製することにより、被処理ガス中に含まれるばい塵を除去することができ、これにより、光照射処理部 4 0 における紫外線透過窓 4 2 が汚染することを抑制することができる。

また、光照射処理済ガスをアンモニア回収用水に接触させることによって、当該光照射処理済ガス中のアンモニアを回収することにより、光照射処理済ガスからアンモニアを除去することができる。また、回収タンク 5 3 に回収されたアンモニア水溶液を循環路 5 4 を介してアンモニア供給部 3 0 に導入することにより、還元処理に供されるアンモニアを再利用することができる。

【実施例】

【 0 0 3 9 】

図 3 に示す構成に従って、実験用ガス処理装置を作製した。この実験用ガス処理装置は、被処理ガスをアンモニア水溶液に接触させることにより、被処理ガスにアンモニアが混合されてなる混合ガスを調製する混合ガス調製部 3 5 と、混合ガス調製部 3 5 からの混合ガスに対して、紫外線を照射する光照射処理部 4 0 と、光照射処理部 4 0 から排出される光照射処理済ガスをアンモニア回収用水に接触させることにより、当該光照射処理済ガス中のアンモニアを回収するアンモニア回収部 5 0 とにより構成されている。

【 0 0 4 0 】

混合ガス調製部 3 5 内には、25 質量%のアンモニア水溶液 1000 cm^3 が貯蔵されており、被処理ガスを混合ガス調製部 3 5 内に導入する導管 3 6 が、その先端がアンモニア水溶液中に位置するよう設けられている。この導管 3 6 には、被処理ガスの温度を調整する加熱ヒータ H が設けられている。

【 0 0 4 1 】

光照射処理部 4 0 は、図 4 に示すように、処理室を包囲する外筒 4 1 E と、紫外線放射ランプ 4 5 を内部に配置するための石英ガラス管 4 1 S とよりなる二重管構造の処理室形成部 4 1 と、この処理室形成部 4 1 における石英ガラス管 4 1 S の内部に配置された紫外線放射ランプ 4 5 と、紫外線放射ランプ 4 5 を点灯するための電源部 4 6 とにより構成されている。石英ガラス管 4 1 S の内部は、空気中の酸素の吸収による紫外線の減衰を防止するために、紫外線に吸収されない不活性気体（例えば窒素等）で満たされている。処理室形成部 4 1 には、混合ガスを混合ガス調製部 3 5 から処理室形成部 4 1 内に導入する導管 3 7 が接続されている。この導管 3 7 には、混合ガス中の一酸化窒素（NO）および酸素（ O_2 ）の濃度を計測するガス濃度測定器 M 1、および混合ガス中のアンモニア（ NH_3 ）の濃度を計測するガス濃度測定器 M 2 が設けられ、ガス濃度測定器 M 1、M 2 には、

10

20

30

40

50

NOとNH₃とのモル比を演算するモル比演算器60が接続され、このモル比演算器60には、予め設定されたNOに対するNH₃のモル比と、モル比演算器60によって演算されたモル比との差を算出する比較器61が接続されており、比較器61は、加熱ヒータHを制御するヒータ制御器65に接続されている。

処理室形成部41内の処理室の寸法は、全長が100mm、処理室を包囲する外筒41Eの内径が80mm、紫外線放射ランプ45を内部に配置するための石英ガラス管41Sの外径が40mm、当該石英ガラス管41Sの肉厚が2mmである。また、紫外線放射ランプ45は、波長172nmの紫外線を放射するキセノンエキシマランプであり、その寸法は、発光長が100mm、外径が26.5mmである。

【0042】

アンモニア回収部50の気液混合処理部52内には、蒸留水1000cm³が貯蔵されており、光照射処理済ガスを処理室形成部41からアンモニア回収部50内に導入する導管43が、その先端が蒸留水中に位置するよう設けられている。また、アンモニア回収部50には、光照射処理済ガスを排出する導管55が接続されており、この導管55には、光照射処理済ガス中のNOおよびO₂の濃度を計測するガス濃度測定器M3、および光照射処理済ガス中のNH₃の濃度を計測するガス濃度測定器M4が設けられている。

【0043】

実験例1

上記の実験用ガス処理装置を用いて、酸素ガス、窒素ガスおよび一酸化窒素ガスよりなる被処理ガスのガス処理を行い、下記の条件により、被処理ガスにおける窒素酸化物の還元処理を行った。

【0044】

[被処理ガス]

混合ガス調製部35に供給される被処理ガスは、一酸化窒素ガスの濃度が500ppm、酸素ガスの濃度が8.3%のものであり、被処理ガスの流量は1.0L/min、初期温度は20である。

[混合ガス]

光照射処理部40に導入される混合ガスは、NOに対するアンモニアの割合が、モル比で1.5となるよう設定した。具体的には、モル比演算器60によって演算されたNOとNH₃とのモル比が1.5より小さい場合には、混合ガス調製部35に供給される被処理ガスの温度が上がるよう加熱ヒータHを制御し、モル比演算器60によって演算されたNOとNH₃とのモル比が1.5を超える場合には、混合ガス調製部35に供給される被処理ガスの温度が下がるよう加熱ヒータHを制御することにより、混合ガス中におけるNOに対するアンモニアの割合を調整した。

[紫外線照射条件]

紫外線放射ランプ45による紫外線の放射照度は、処理室形成部41の石英ガラス管41Sの表面において26mW/cm²である。

[還元処理時間]

光照射処理部40における混合ガスの滞留時間は、22.4秒間である。

【0045】

そして、ガス濃度測定器M3によって測定された光照射処理済ガス中のNO濃度に基づいて、下記式により、脱硝率を求めた。結果を図5に示す。

脱硝率(%) = (被処理ガス中のNO濃度 - 光照射処理済ガス中のNO濃度) / 被処理ガス中のNO濃度

【0046】

実験例2

光照射処理部40に導入される混合ガスを、NOに対するアンモニアの割合が、モル比で2.0となるよう設定したこと以外は、実験例1と同様の条件により、被処理ガスのガス処理を行い、処理済ガス中の窒素酸化物ガスの濃度を測定して脱硝率を求めた。結果を図5に示す。

10

20

30

40

50

【 0 0 4 7 】

実験例 3

光照射処理部 4 0 に導入される混合ガスを、NO に対するアンモニアの割合が、モル比で 3 . 0 となるよう設定したこと以外は、実験例 1 と同様の条件により、被処理ガスのガス処理を行い、脱硝率を求めた。結果を図 5 に示す。

【 0 0 4 8 】

比較実験例 1

被処理ガスをアンモニア水溶液と混合せずに光照射処理部 4 0 に導入したこと以外は、実験例 1 と同様の条件により、被処理ガスのガス処理を行い、脱硝率を求めた。結果を図 5 に示す。

【 0 0 4 9 】

比較実験例 2

光照射処理部 4 0 に導入される混合ガスを、NO に対するアンモニアの割合が、モル比で 1 . 0 となるよう設定したこと以外は、実験例 1 と同様の条件により、被処理ガスのガス処理を行い、脱硝率を求めた。結果を図 5 に示す。

【 0 0 5 0 】

実験例 4

紫外線放射ランプ 4 5 として、キセノンエキシマランプの代わりに波長 1 9 0 n m の紫外線を放射する蛍光ランプを用いたこと以外は、実験例 1 と同様の条件により、被処理ガスのガス処理を行い、脱硝率を求めた。結果を図 5 に示す。

上記の蛍光ランプは、Xe ガスを封入したエキシマランプの内表面に蛍光体層を設けたものである。蛍光体層に用いる蛍光体としては、Xe エキシマランプの発光波長 1 7 2 n m で励起され 1 9 0 n m に発光を有する蛍光体 (Y 1 - x , N d x) P O 4 (た だ し x = 0 . 0 1 ~ 0 . 1 1) である。蛍光体層は以下のように形成される。

軟質ガラスの粉末を適宜のバインダーと混合してスラリーを調製し、このスラリーを蛍光管の内表面に塗布して乾燥した後、約 6 0 0 ° で焼成して下地を形成する。得られた下地上に蛍光体スラリーを塗布して乾燥し、5 0 0 ~ 9 0 0 ° で焼成して蛍光体層が形成される。この蛍光体の塗布厚さは例えば、1 0 ~ 2 0 μ m である。

【 0 0 5 1 】

実験例 5

紫外線放射ランプ 4 5 として、キセノンエキシマランプの代わりに波長 1 9 0 n m の紫外線を放射する蛍光ランプを用い、光照射処理部 4 0 に導入される混合ガスを、NO に対するアンモニアの割合が、モル比で 2 . 0 となるよう設定したこと以外は、実験例 1 と同様の条件により、被処理ガスのガス処理を行い、処理済ガス中の窒素酸化物ガスの濃度を測定して脱硝率を求めた。結果を図 5 に示す。

【 0 0 5 2 】

実験例 6

紫外線放射ランプ 4 5 として、キセノンエキシマランプの代わりに波長 1 9 0 n m の紫外線を放射する蛍光ランプを用い、光照射処理部 4 0 に導入される混合ガスを、NO に対するアンモニアの割合が、モル比で 3 . 0 となるよう設定したこと以外は、実験例 1 と同様の条件により、被処理ガスのガス処理を行い、処理済ガス中の窒素酸化物ガスの濃度を測定して脱硝率を求めた。結果を図 5 に示す。

【 0 0 5 3 】

比較実験例 3

紫外線放射ランプ 4 5 として、キセノンエキシマランプの代わりに波長 1 9 0 n m の紫外線を放射する蛍光ランプを用い、被処理ガスをアンモニア水溶液と混合せずに光照射処理部 4 0 に導入したこと以外は、実験例 1 と同様の条件により、被処理ガスのガス処理を行い、脱硝率を求めた。結果を図 5 に示す。

【 0 0 5 4 】

比較実験例 4

紫外線放射ランプ45として、キセノンエキシマランプの代わりに波長190nmの紫外線を放射する蛍光ランプを用い、光照射処理部40に導入される混合ガスを、NOに対するアンモニアの割合が、モル比で1.0となるよう設定したこと以外は、実験例1と同様の条件により、被処理ガスのガス処理を行い、処理済ガス中の窒素酸化物ガスの濃度を測定して脱硝率を求めた。結果を図5に示す。

【0055】

図5の結果から明らかなように、実験例1～6に係るガス処理方法によれば、被処理ガス中の窒素酸化物を、低い温度でかつ高い効率で還元処理することができることが確認された。

【0056】

実験例7

被処理ガスにおける酸素の濃度を8.3ppmから2.1ppmに変更したこと以外は、実験例1と同様の条件により、被処理ガスのガス処理を行い、処理済ガス中の窒素酸化物ガスの濃度を測定して脱硝率を求めた。その結果、脱硝率は、79.4%であり、実験例1における脱硝率82.3%と大差はなかった。

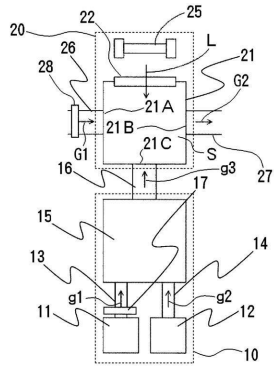
【符号の説明】

【0057】

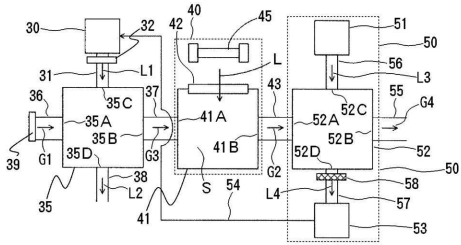
- | | | |
|------------|----------------|----|
| 10 | アンモニア供給部 | |
| 11 | アンモニア貯蔵部 | |
| 12 | キャリアガス貯蔵部 | 20 |
| 13, 14 | 導管 | |
| 15 | 処理用ガス調製部 | |
| 16 | 導管 | |
| 17 | アンモニアガス流量制御機構 | |
| 20 | 光照射処理部 | |
| 21 | 処理室形成部 | |
| 21A | 被処理ガス導入口 | |
| 21B | 処理済ガス排出口 | |
| 21C | 処理用ガス導入口 | |
| 22 | 紫外線透過窓 | 30 |
| 25 | 紫外線放射ランプ | |
| 26, 27 | 導管 | |
| 28 | 被処理ガス流量制御機構 | |
| 30 | アンモニア供給部 | |
| 31 | 導管 | |
| 32 | アンモニア水溶液流量制御機構 | |
| 35 | 混合ガス調製部 | |
| 35A | 被処理ガス導入口 | |
| 35B | 混合ガス供給口 | |
| 35C | 液体導入口 | 40 |
| 35D | 液体排出口 | |
| 36, 37, 38 | 導管 | |
| 39 | 被処理ガス流量制御機構 | |
| 40 | 光照射処理部 | |
| 41 | 処理室形成部 | |
| 41A | 混合ガス導入口 | |
| 41B | 処理済ガス排出口 | |
| 41E | 外筒 | |
| 41S | 石英ガラス管 | |
| 42 | 紫外線透過窓 | 50 |

4 3	導管	
4 5	紫外線放射ランプ	
4 6	電源部	
5 0	アンモニア回収部	
5 1	アンモニア回収用水貯蔵部	
5 2	気液混合処理部	
5 2 A	ガス導入口	
5 2 B	ガス排出口	
5 2 C	液体導入口	
5 2 D	液体排出口	10
5 3	回収タンク	
5 4	循環路	
5 5 , 5 6 , 5 7	導管	
5 8	除塵フィルタ	
6 0	モル比演算器	
6 1	比較器	
6 5	ヒータ制御器	
G 1	被処理ガス	
G 2	光照射処理済ガス	
G 3	混合ガス	20
G 4	光照射処理済ガス	
g 1	アンモニアガス	
g 2	キャリアガス	
g 3	処理用ガス	
H	加熱ヒータ	
L	紫外線	
L 1 , L 2	アンモニア水溶液	
L 3	アンモニア回収用水	
L 4	アンモニア水溶液	
M 1 , M 2 , M 3 , M 4	ガス濃度測定器	30

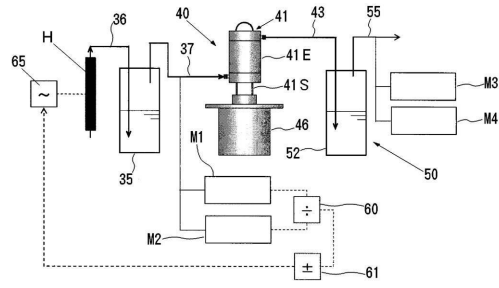
【図1】



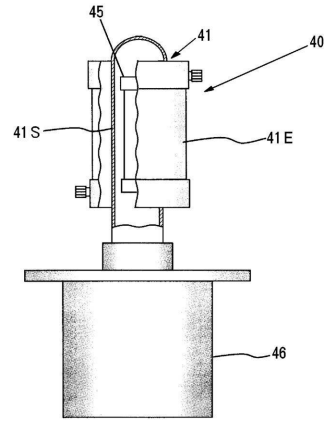
【図2】



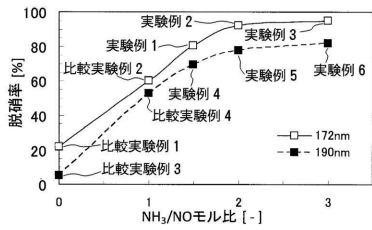
【図3】



【図4】



【図5】



フロントページの続き

- (72)発明者 菱沼 宣是
兵庫県姫路市別所町佐土 1 1 9 4 番地 ウシオ電機株式会社内
- (72)発明者 増井 芽
石川県白山市水澄町 3 7 5 番地 株式会社アクトリー内

審査官 金 公彦

- (56)参考文献 特開昭 5 7 - 0 5 0 5 2 9 (J P , A)
特開平 1 1 - 1 3 7 9 5 9 (J P , A)
特開昭 5 3 - 1 2 5 2 6 5 (J P , A)
特開昭 5 5 - 0 1 5 6 3 7 (J P , A)
特開 2 0 1 2 - 0 7 6 0 3 3 (J P , A)
実開昭 5 7 - 1 8 7 6 2 5 (J P , U)
特開 2 0 1 1 - 0 3 6 7 3 6 (J P , A)
武山彰宏ら，真空紫外線で励起したアンモニアによる無触媒脱硝法の開発，第 2 2 回環境工学総合シンポジウム2012講演論文集，日本，一般社団法人 日本機械学会，2 0 1 2 年 7 月 3 日，pp.202-204
神原信志ら，真空紫外光照射アンモニアガスによる無触媒脱硝特性，第48回燃焼シンポジウム講演論文集，日本，2 0 1 0 年 1 1 月 2 0 日，pp.584-585，E331，ISBN:978-4-931494-12-1
神原信志ら，172nm真空紫外光で励起したアンモニアガスの脱硝反応特性，電気学会研究会資料，日本，2 0 1 0 年 1 2 月 1 6 日，pp.29-32，PST-10-72 & PPT-10-92，2010IEEJapan

(58)調査した分野(Int.Cl.，DB名)

B 0 1 D 5 3 / 3 4 - 5 3 / 7 3
B 0 1 D 5 3 / 7 4 - 5 3 / 8 5
B 0 1 D 5 3 / 9 2
B 0 1 D 5 3 / 9 6
B 0 1 D 5 3 / 0 0
B 0 1 D 5 3 / 2 4
B 0 1 D 5 3 / 3 0 - 5 3 / 3 2
F 0 1 N 3 / 0 0
F 0 1 N 3 / 0 2
F 0 1 N 3 / 0 4 - 3 / 3 8
F 0 1 N 9 / 0 0 - 1 1 / 0 0