

論 文

非平衡プラズマによる NO_x 除去に及ぼす磁場の効果

大久保 雅章^{*,1}, 秦 誠彦^{*}, 黒木 智之^{*,2}, 山本 俊昭^{*,3}

(2002年5月23日受付; 2002年8月2日受理)

Effect of Magnetic Field on NO_x Removal using Nonequilibrium Plasma

Masaaki OKUBO^{*,1}, Masahiko HATA^{*}, Tomoyuki KUROKI^{*,2}
and Toshiaki YAMAMOTO^{*,3}

(Received May 23, 2002; Accepted August 2, 2002)

In order to increase the efficiency in conversion of NO to NO₂ using nonequilibrium plasma process, either transverse ($B=1.03$ T) or axial ($B=0.10$ T) magnetic field was applied to AC, pulse and DC corona plasma reactors. The application of the magnetic field may induce the cyclotron and drift motions of electrons making the residual time longer and chemical reactions more active inside the plasma reactors. In the present experiments, we could not confirm the effect of the magnetic fields on the removal or oxidation of NO using the nonequilibrium plasma. The effect of the magnetic field would become significant if the strong plasma with high ionization degree and the stronger magnetic field were used.

1. はじめに

火力発電所, 工場, ディーゼル自動車などから排出される有害大気汚染物質の一つである窒素酸化物(NO_x = NO + NO₂)の除去法として, 著者らは, 大気圧非平衡プラズマプロセスを用いて NO を NO₂ に 100%酸化反応させ, 還元剤 Na₂SO₃ を用いたケミカルプロセスによって NO₂ を完全除去するという二段階のハイブリッド処理方法を提案し, 低コストなシステムが成立可能であることを報告^{1,2)}している。

本研究では, この非平衡プラズマプロセスにおける NO の NO₂ へのより効果的な変換を目的として, 交流(AC), パルスおよび直流(DC)コロナプラズマリアクタに横方向または軸方向磁場を印加し, 電子の分子への衝突周波数を増加させることによる処理効率向上の可能性を検討した。従来, 円筒・放電線型 DC コロナリアクタ (内径 26 mm, 長さ 200 mm) に強さ $B = 0.09$ T の軸方向磁場を印加し, SO₂

と CO の除去効率が 12~45%程度向上し, オゾン濃度が 10~20%程度上昇した実験結果が報告されている³⁾。これは磁場による電子のサイクロトロンおよびドリフト運動により, プラズマリアクタ内での滞留時間が増加することで, 分子への衝突周波数が増加し⁴⁾, 化学反応が促進されたためであると説明されている³⁾。関連する研究として, 磁場を用いた放電プラズマの安定化⁵⁾, 磁場による有害ガスの吸着剤に対する吸着・脱着⁶⁾なども報告されている。

これらの結果を踏まえ, 本研究では, リアクタの中心軸に平行で, 文献³⁾と同程度の強度($B = 0.10$ T)の軸方向磁場, およびリアクタの中心軸に垂直で 10 倍程度強い横方向磁場($B = 1.03$ T)を種々の非平衡プラズマリアクタに印加し, NO の除去特性の差を調べ, さらに除去率が磁場により変化するか否かの実験を行った。

2. 実験装置と実験方法

2.1 実験装置概略

本実験で用いた実験装置の概略図を図 1 に示す。コンプレッサにより供給され, フィルタ(孔径 0.3 μm)および乾燥器で清浄化された乾燥空気(相対湿度 4%)と, ボンベ内の窒素希釈 2%の NO をマスフローコントローラを介して混合し, 所定の濃度および流量の模擬排ガス (NO ガス) を作成した。NO ガスをプラズマリアクタに流し, 高電圧を印加することにより非平衡プラズマを発生させ, NO を NO₂

キーワード: 非平衡プラズマ, 磁場, NO_x, 環境保全
* 大阪府立大学大学院工学研究科エネルギー機械工学分野 (599-8531 堺市学園町 1-1)
Department of Energy Systems Engineering, Osaka Prefecture University, 1-1 Gakuen-cho, Sakai, Osaka 599-8531, Japan

¹ mokubo@energy.osakafu-u.ac.jp

² kuroki@energy.osakafu-u.ac.jp

³ yamamoto@energy.osakafu-u.ac.jp

に酸化して除去する。高压電源への入力電圧はデジタル電力計(Yokogawa Co., WT110E)により測定した。電磁石またはソレノイドコイルにより直流磁場を発生させ、リアクタに印加した。磁場による測定器への影響は小さく、無視できた。リアクタの電圧の測定には高電圧プローブ(Sony Tektronix P6015A)とオシロスコープ(Sony Tektronix, TDS380P-2GS/s)を用いた。測定器に損傷を与えるオゾン除去するためにリアクタ下流のガスを 300°C の管状炉ヒータ(ISUZU Co., AT-58)に通した後、ガス分析計(Horiba Ltd., PG-235)により NO 濃度の測定を行った。

2.2 プラズマリアクタ

実験で用いたリアクタは、(a)円筒型バリア式非平衡プラズマリアクタ、(b)流れに垂直な電極をもつ二平板式非平衡プラズマリアクタ、(c)円筒・放電線型 DC コロナ放電リアクタの 3 種類である。それぞれ図 2(a)~(c)に示す。(a),(b)は AC またはパルス電源により駆動されるが、(c)は DC により駆動される。

(a)は内径 20 mm、外径 24 mm のパイレックスガラス円筒に直径 1.5 mm のステンレス放電線を通し、円筒外壁には薄い銅網(幅 260 mm)を巻き、電極としたものである。内部に誘電体として BaTiO₃ 球形粒子(直径 1.7~2.0 mm)を幅 260 mm で充てんした場合としない場合を試験した。(b)は(a)と同じパイレックスガラス円筒の両端から直径 1.5 mm のステンレス放電線を通し、ワイヤの先端には薄い円形銅網電極(直径 19.5 mm)をつけたリアクタである。電極間の距離は 50 mm に固定した。電極間に BaTiO₃(直径 1.7~2.0 mm)を充てんした場合としない場合を試験した。(c)は内径 20 mm のステンレス円筒に直径 1.5 mm のステンレス放電線を通し、両者を電極として直流高電圧で駆動される DC コロナリアクタであり、文献 3)で用いられたものと同様のものである。

2.3 高压電源および電磁石

実験で用いた高压電源は、AC 60Hz 高压電源(ネオントランス、最大 peak to peak 印加電圧 $V_{p-p}=52$ kV)、パルス高压電源(ロータリースパークギャップ、最大印加電圧 $V_{p-0}=22$ kV、周波数=210 Hz、パルス幅=1.2 ms、パルス立ち上がり時間 70 ns)、DC 高压電源(Glassman high voltage, Inc., 最大印加電圧 $V_{DC}=15$ kV)の 3 種類である。

直流磁場印加のための電磁石は、以下の二種類を用いた。ひとつは図 1 に示した横方向磁場発生用電磁石(Tamakawa Seisakusyo Co., TM-YSF52.510C-102)で、水冷式、円形磁極直径 50 mm、磁極間隔 25 mm であり、磁極間ではほぼ一様な最大磁束密度 $B=1.03$ T (励磁電流 20A)の直流磁場をリアクタ中心軸に対し垂直方向に印加できる。もう一つの軸方向磁場発生用電磁石は内径 25 mm、長

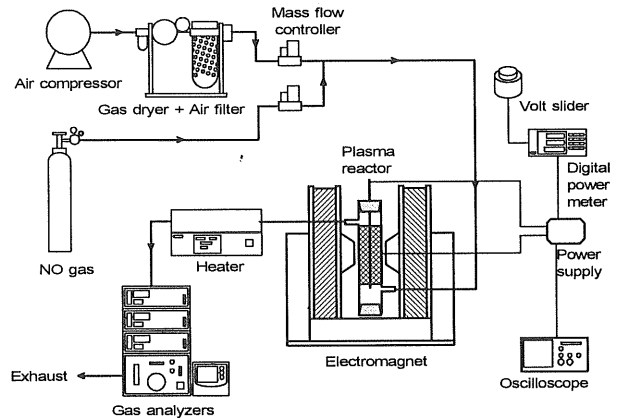


図 1 磁場効果を調べるための実験装置概略
Fig.1 Experimental setup for investigating the effect of magnetic field.

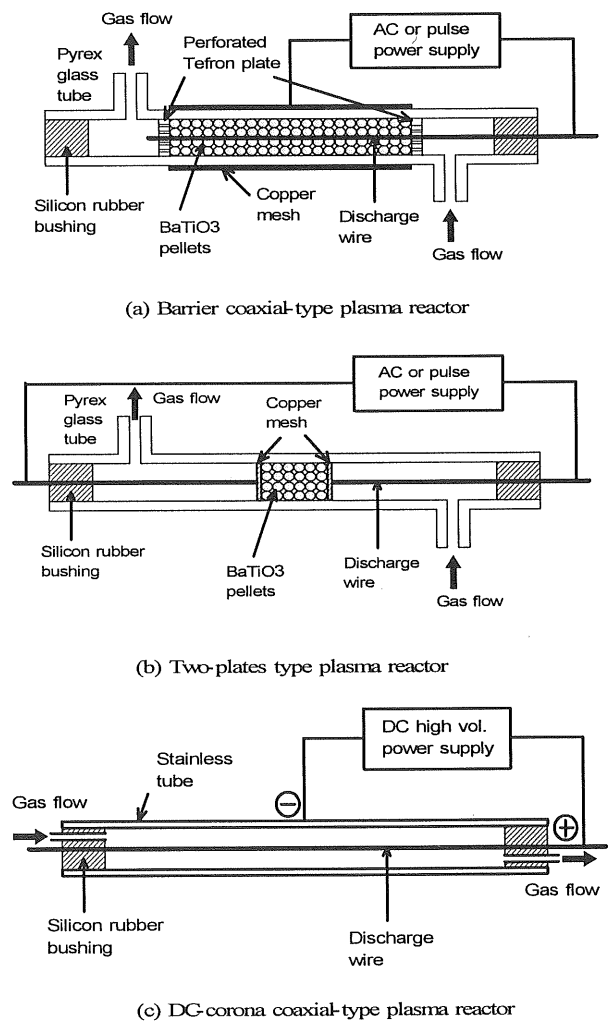


図 2 使用したプラズマリアクタ
Fig.2 Plasma reactors used for the experiment.

さ 200 mm の水冷式空心ソレノイドコイルで、磁束密度 $B=0.10$ T (励磁電流 20A) の磁場をリアクタ中心軸に対し平行方向に印加できる。いずれの磁場もリアクタの中心が最

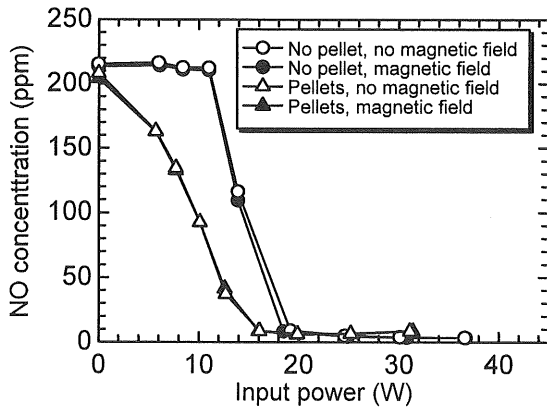
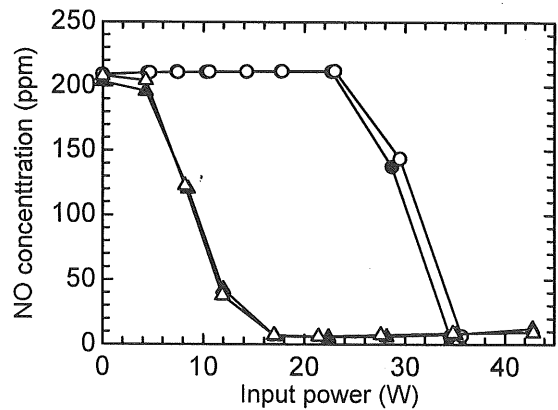
(a) AC 電源を用いた場合(Max. $V_{p-p}=48$ kV)(a) With AC power supply (Max. $V_{p-p}=48$ kV)(b) パルス電源を用いた場合 (Max. $V_{p-0}=22$ kV)(b) With pulse power supply (Max. $V_{p-0}=22$ kV)

図3 バリア式リアクタを用いた場合のNO除去に関する横方向磁場効果の実験結果
(ガス流量 $Q=2.0$ L/min, 印加磁束密度 $B=1.03$ T)

Fig.3 Effect of the transverse magnetic field on NO removal.

(gas flow rate, $Q=2.0$ L/min, applied magnetic flux density, $B=1.03$ T).

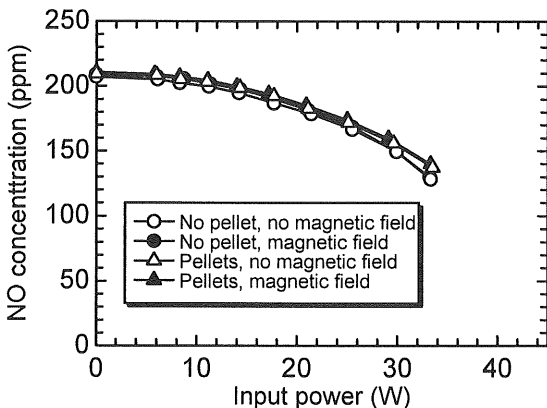
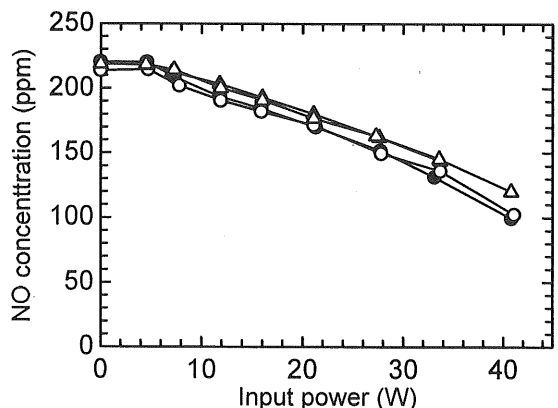
(a) AC 電源を用いた場合 (Max. $V_{p-p}=52$ kV)(a) With AC power supply (Max. $V_{p-p}=52$ kV)(b) パルス電源を用いた場合 (Max. $V_{p-0}=22$ kV)(b) With pulse power supply (Max. $V_{p-0}=22$ kV)

図4 二平板式リアクタを用いた場合のNO除去に関する横方向磁場効果の実験結果
(極板間隔=5cm, $Q=2.0$ L/min, $B=1.03$ T)

Fig.4 Effect of the transverse magnetic field on NO removal.

(electrode distance = 5 cm, $Q=2.0$ L/min, $B=1.03$ T).

大磁場位置となるように印加した。なお本実験では都合上、大きな消費電力を要する常伝導磁石を用いているが、永久磁石または超伝導磁石を使用すれば、消費電力は0または小さく押さえることができる。

3. 実験結果と考察

3.1 バリア式リアクタに横方向磁場を印加した場合

初めに図2(a)のバリア式リアクタを用いて、ペレットを充填している場合としない場合についてAC 60Hz電源またはパルス電源を用いて横方向磁場($B=1.03$ T)を印加した実験を行った。ガス流量は $Q=2.0$ L/min, NOの初期濃度

を約200 ppmとした。結果を図3(a), (b)に示す。グラフの横軸は電源への入力電圧で、縦軸はリアクタ下流でのNO濃度である。なお、リアクタ自体の消費電力は、条件にもよるが入力電力のおよそ10~15%程度であった。

図3(a)のAC 60Hz電源を用いた場合の結果を見てみると、磁場なしと磁場ありの曲線はペレット有りの場合、無しの各場合共、ほぼ重なった。複数の実験を試みたが、磁場の影響と考えられる違いはみられなかった。ペレット無しの場合にはNO濃度は11 Wまでほとんど減少せず、そこから電力を上げると急激に減少している。それに対してペレット有りの場合には電力投入に伴ってNO濃度は徐々

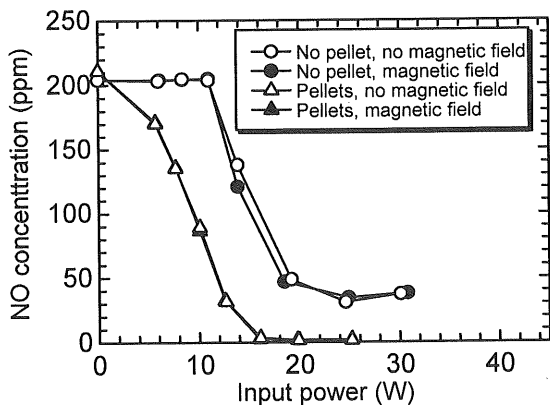


図5 バリア式リアクタを用いた場合のNO除去に関する軸方向磁場効果の実験結果 (AC電源を使用, $Q=2.0$ L/min, $B=0.1$ T, Max. $V_{p-p}=42$ kV)

Fig.5 Effect of the axial magnetic field on NO removal (AC high voltage, $Q=2.0$ L/min, $B=0.1$ T, Max. $V_{p-p}=42$ kV).

に減少している。どちらの場合でも20 W程度でNOはほぼすべて除去・酸化されている。

次に同様にパルス電源を用いた場合の結果を図3(b)に示す。図3(a)と同様に磁場なしと磁場ありのグラフはほぼ重なっている。ペレットがない場合はNO濃度は23 Wまでほとんど変化せず、そこから急減し、35 Wでほぼすべて酸化されている。それに対しペレットがある場合には、徐々にNOの減少が始まり、17 Wでほぼすべて酸化されている。すなわちパルス電源を用いると、ペレットの効果がより顕著となり、より低い電力でNOの除去が進むことが分かった。しかし、ペレットを使用した場合、AC電源

とパルス電源を比較すると、効率に大差はなかった。

3.2 二平板式リアクタに横方向磁場を印加した場合

次に図2(b)に示す、流れに垂直な電極をもつ二平板式リアクタを用いて同様な実験を行った。結果を図4(a), (b)に示す。パルス電源を用いた図4(b)の結果では、ペレットが存在する場合に磁場の印加によって最大1割程度NO除去率が増加する傾向が見られる。しかしながら、測定時のNOx濃度の変動や初期濃度の差も大きく、繰り返し実験で磁場による効率の向上の確証は得られなかった。その他の場合も、磁場の影響と思われる現象は観察されなかった。

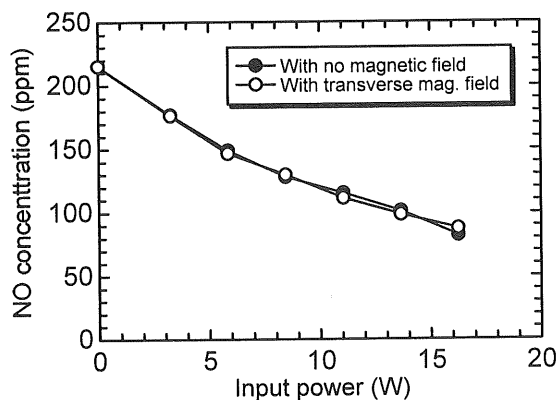
3.3 バリア式リアクタに軸方向磁場を印加した場合

バリア式リアクタを用いて、ペレットを充填している場合としていない場合について、軸方向磁場($B=0.10$ T)を印加した実験を行った。リアクタ駆動電源としてはAC 60Hz電源を用いた。結果を図5に示す。磁場の影響と思われる現象は確認できなかった。

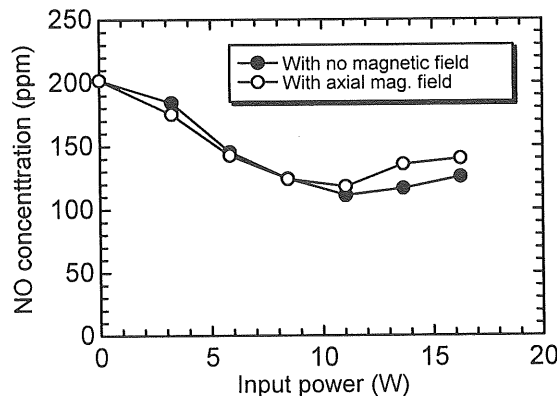
3.4 DC コロナリアクタに横方向磁場または軸方向磁場を印加した場合

Moon³⁾らの実験と同じく、DCコロナリアクタに横方向または軸方向磁場を印加する実験を行った。横方向磁場を印加した場合の結果を図6(a)に、軸方向磁場を印加した場合の結果を図6(b)に示す。図6(a)においては、磁場のあるなしで結果にはほとんど差がなかった。図6(b)においては磁場の印加により逆に効率が若干低下しているが、その割合は大きくはない。

このように、磁場がガス分解非平衡プラズマに及ぼす影響は非常に複雑かつ微妙で、統一的に理解、説明することは現時点では難しい。なお、除去されたNOの大半は少量



(a) 横方向磁場($B=1.03$ T)の効果
(a) Effect of transverse magnetic field ($B=1.03$ T)



(b) 軸方向磁場($B=0.10$ T)の効果
(b) Effect of axial magnetic field ($B=0.10$ T)

図6 DCコロナリアクタを用いた場合のNO除去に関する磁場効果の実験結果 ($Q=2.0$ L/min, Max. $V_{DC}=15$ kV)
Fig.6 Effect of the magnetic fields on NO removal using the DC corona reactor ($Q=2.0$ L/min, Max. $V_{DC}=15$ kV).

の反応副生成物と共に NO₂ に酸化され、生じた NO₂ は Na₂SO₃ 水溶液により効果的に除去されることは確認されている^{1,2)}。

4. おわりに

本研究では軸方向磁場($B = 0.10$ T)あるいは横方向磁場($B = 1.03$ T)を種々の非平衡プラズマリアクタあるいはコロナリアクタに印加し、NO の除去特性の差を調べ、さらに除去率が磁場により変化するかどうか調べた。実験範囲では非平衡プラズマによるNOの除去・酸化において、磁場による効率向上の効果が完全に確証できる結果は得られなかった。電離度の高い、より強力なプラズマあるいはより強い磁場を用いれば、磁場の効果が顕著になるのは明

らかなので、今後、別のプラズマリアクタあるいは高性能な電磁石を用いた実験を進める必要がある。

参考文献

- 1) 山本俊昭, 大久保雅章, 早川邦彦, 北浦浩一: 静電気学会誌, **22** (2000) 208
- 2) T. Yamamoto, M. Okubo, K. Hayakawa and K. Kitaura: IEEE Trans. Ind. Appl., **37** (2001) 1492
- 3) J. D. Moon, G.-T. Lee and S. H. Chung: IEEE Trans. Ind. Appl., **35** (1999) 1198
- 4) M. Hara, J. Suehiro and T. Wakiyama: IEEE Trans. Plasma Sci., **27** (1992) 1179
- 5) J. Y. Park, G. H. Kim, H. S. Koh and D. C. Lee: Comb. Sci. & Tech., **133** (1998) 65
- 6) 宮本淳一, 松原良子, 倉島 太, 田崎貴之, 小関寿美男: 日本金属学会誌, **61** (1997) 1300