

パルス放電脱硝におけるラジカル濃度の測定と計算予測

茨木 広*, 荒木 拓人, 恩田 和夫 (豊橋技術科学大学)

Measurement and Calculation of Radical Concentration at Pulsed Discharge DeNOx Process

Hiroshi Ibaraki, Takuto Araki, Kazuo Onda (Toyohashi University of Technology)

1. はじめに

最近大気環境を更に改善するため、各種排ガスの規制が強化されつつある。その中で、排ガス中の有害成分の一つである NOx を効率良く、経済的に除去できる装置の開発が進められている。その一つの技術としてパルス放電脱硝法に期待が寄せられている。このパルス放電による脱硝法は種々な研究機関で実験的にその脱硝性能が確認されている。より効率的な放電プラズマの利用を進めるためには、生成されるラジカルの挙動をより正確に把握する必要がある。つまり、プラズマによるラジカルの生成過程や NOx との反応経路を明らかにし、印加電圧などの運転条件を最適化し、パルス放電脱硝法の実用化を目指す必要がある。

これまで我々は、電界の大きさ、パルス幅の影響、ガス組成、圧力、温度の影響を数値解析で調べ⁽¹⁾⁽²⁾、パルス放電下で低圧プラズマ中のラジカル濃度を出現質量分析法で計測し⁽³⁾、アンモニアなどの添加剤の効果を数値解析してきた⁽⁴⁾。本研究は、平行した線・平板電極間に低圧力のパルス放電を印加し、生成したラジカル濃度を出現質量分析法で測定し、ラジカル生成の数値解析と比較することを目的とする。なお、ここでは低圧放電場においてプローブにより電位分布を測定し、これを換算電界にして数値解析に用い、実験結果と比較した。また直流放電場でラジカル濃度を測定したので併せて報告する。

2. 実験構成・方法

実験構成を図 1 に示す。実際のパルス放電脱硝は大気圧下で行われるが、寿命の短いラジカルを質量分析計で計測するため、実際のパルス脱硝場の換算電界に合わせて低圧力場で実験した。模擬排ガス(N₂/O₂/CO₂/H₂O/NO/Ar =70.97/1/15/12/0.03/1%)を 0.3Torr(40Pa)程度に減圧した放電管内(円筒状:直径 5cm×長さ 40cm)に約 200Ncc/min 流し、放電管内の平行した線・平板電極(SUS 線径 1mm、SUS 平板:幅 2cm×長さ 20cm、電極間隔 2cm)に電圧を印加する。この電極形状がこれまでの我々の研究とは異なり、これまでより強い電界が得られるようになった。電極間にはガス吸引プローブ(石英ガラス製)が設置されており、パルス

放電により生成したラジカルを含むガスを質量分析計(QMS)内部に吸引する。吸引されたガスは電子シャワーによりイオン化され、四重極電極で特定の質量電荷比を持った化学種だけが分離・検出される。パルス放電時と非放電時の QMS 出力信号差と、Ar 濃度を基準としラジカルのイオン化断面積を用いて、出現質量分析法によりラジカル濃度を算出した。また、電極間の直流放電場でのプラズマ電位を測定するため、先端以外はガラスで絶縁された直径 100 μ m のタングステン線を電極間に挿入し、ラングミュアプローブ法により電位を測定し、換算電界を求めた。ただし、パルス放電場ではプラズマ電位がラングミュアプローブで測定できないため、浮遊電位を測定し、その電位差からパルス放電時の換算電界を推定した。

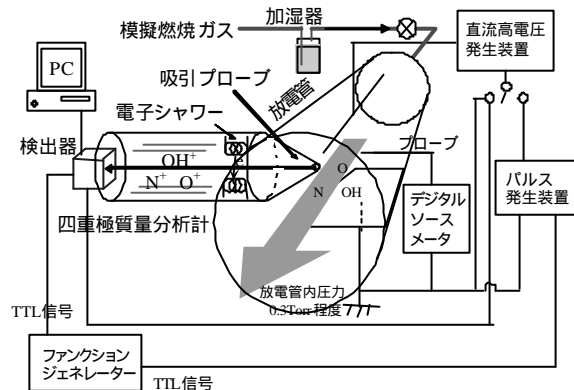


図 1 ラジカル濃度測定装置図

3. 数値解析方法

< 3. 1 > モデル 繰り返しパルス放電脱硝では、電子衝突過程などの早い反応と、化学反応過程などの遅い反応が交互に繰り返し行われる。また、放電容器内で放電は非一様に進展するため、これらすべてを考慮した解析は現状では明らかにされていない。そこで、本解析では、排ガスが方形波パルスに空間的に一様にさらされ、電子衝突と化学反応が空間に一様に進展すると仮定する。

電子衝突における反応速度 k_e は、ボルツマン方程式から

求まる電子のエネルギー分布関数と電子衝突断面積から算出される。だが、ボルツマン方程式の計算は計算負荷が膨大となるので、 k_e を換算電界のみに依存すると仮定し、本解析プログラム内で近似計算を行うようにした。また、本解析には電子衝突過程と化学反応過程を合わせて 1543 個の反応速度と化学種 169 種を考慮した。数値解析法は半陰解法を用いている。

< 3 . 2 > 解析条件 放電脱硝実験条件に準じてガスの初期状態を $N_2/O_2/CO_2/H_2O/NO/Ar = 71/1/15/12/0.03/1\%$ 、温度 $T=323K$ 、圧力 $P=40Pa$ と与え、初期電子数密度を 10^9 個/ m^3 とした。換算電界は実験より計算された値を用い、パルス幅は印加パルス幅に合わせて 150ns とした。

4 . 実験結果及び解析結果

図 2 に直流放電場及びパルス放電場の電位分布測定結果を示す。直流での実験及び解析は、直流放電の方がパルス放電に比べてラジカル濃度が測定しやすいこと、浮遊電位測定の傾向を見ることの両面から行った。測定は 1mm 間隔の 2 本のプローブを用いて電極間 1mm~19mm の範囲で行った。電極間の印加電圧は、直流では -600V、パルスでは -3kV とした。測定結果より、直流放電ではラングミュアプローブ法により求めたプラズマ電位と浮遊電位がよく一致した。またパルス放電でも同じような傾向を示した。この結果から得た換算電界を用いて数値解析を行った。図 3、図 4 に実測ラジカル濃度と数値解析による濃度を示す。ラジカル測定は線電極から 1cm の位置で行い、印加電圧は電位分布測定時と同じとした。直流放電解析は現在解析途中なので途中までの結果を示している。測定の結果、直流、パルスとも N ラジカルと O ラジカルが測定・計算できた。OH ラジカルは濃度が負になってしまい適正な値とはいえなかった。直流では、放電起源の N ラジカル O ラジカル平均濃度はそれぞれおよそ 353ppm、295ppm となり、パルス放電では N ラジカル O ラジカル平均濃度はそれぞれおよそ 555ppm、90ppm となった。

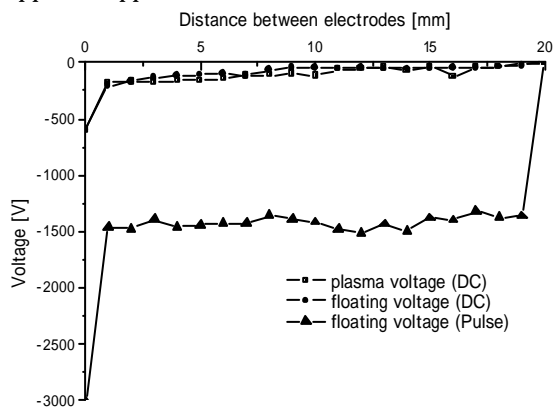


図 2 電位分布測定結果(直流、パルス)

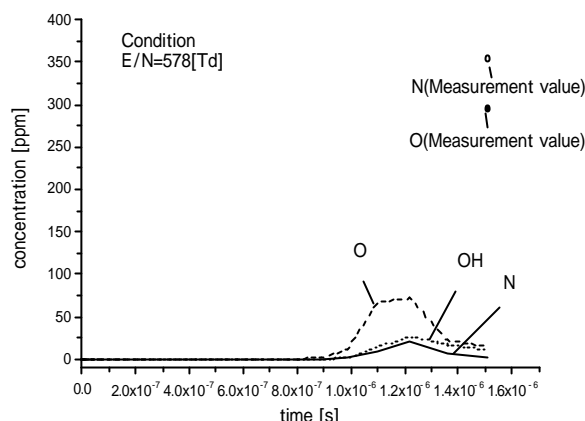


図 2 ラジカル濃度(DC)

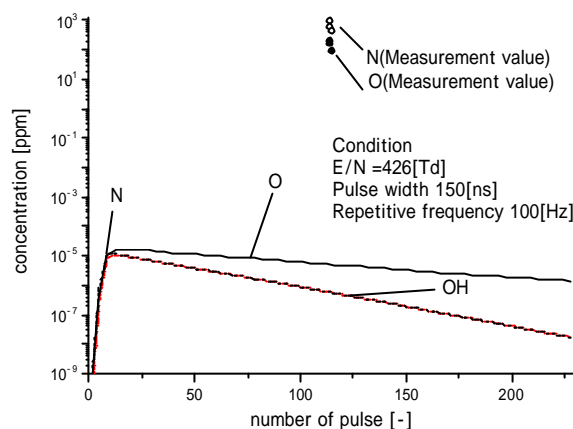


図 3 ラジカル濃度(パルス)

5 . まとめ

パルス放電により生成されるラジカル濃度の測定及び計算結果との比較を行った。解析に重要である換算電界を求めるためにラングミュアプローブによる電位測定を行った。直流放電でのプラズマ電位、浮遊電位は同じような傾向を示し、解析結果とも 1 桁から 2 桁の差であった。パルスの場合は浮遊電位を用いて換算電界を推定したが、実測値と計算値では大きく値が異なった。直流放電の場合では 1 桁から 2 桁の差であったのに対してパルスでは結果が大きく異なった。現在、パルス放電実験での換算電界をどのように考えれば、解析値に近い値が得られるか、また測定位置によるラジカル濃度の分布やラジカルの経時変化について実験を進めているところである。

文 献

- (1) 伊藤衡平、荻原勝幸、中浦裕之、恩田和夫、田中秀和、電気学会論文誌、Vol.120-A,No.11,pp.979-986, 2000
- (2) 伊藤衡平、荻原勝幸、中浦裕之、恩田和夫、田中秀和、電気学会論文誌、Vol.122-B,No.2,pp.216-222, 2002
- (3) 伊藤衡平、中浦裕之、漆畑正太、恩田和夫、電気学会論文誌、Vol.122-B,No.12,pp.1429-1435, 2002
- (4) 楠博敦、伊藤衡平、恩田和夫、電気学会論文誌、Vol.123-B,No.12,pp.1546-1553, 2003