

大気圧放電による CO₂ 処理

馬場 剛・吉田裕志・見市知昭・林 信哉・猪原 哲・山部長兵衛

Treatment of Carbon Dioxide using Atmospheric Discharges

By

Tsuyoshi BABA, Hiroshi YOSHIDA, Tomoaki MIICHI,
Nobuya HAYASHI, Satoshi IHARA and Chobei YAMABE

Abstract: The nonthermal plasma produced by atmospheric discharge was adopted to the treatment of carbon dioxide. The suitable discharge for the treatment of carbon dioxide was determined varying discharge modes. The maximum decomposition rate of 38.8% was achieved using the combined discharge.

Key words: Combined discharge , Carbon dioxide , By-product , FTIR

1. はじめに

近年、人間活動の拡大による石油、石炭などの化石燃料の消費に伴い二酸化炭素の発生が増加している。産業革命以前には大気中の二酸化炭素濃度は 280ppm 程度であったが、1986 年には 345ppm 程度に増加し、現在では 360ppm ほどまでに増加している。二酸化炭素は温室効果ガスの一つであり、近年、二酸化炭素など「温室効果ガス」の増加による地球温暖化が深刻な問題となってきた。地球の温暖化を防ぐため、二酸化炭素の排出抑制、固定化に関する技術開発が緊急の課題となってきた。回収した大量の二酸化炭素を固定・有効利用する技術としては、まず二酸化炭素を排ガスの中から分離・回収し、深海や地中などに貯蔵する方法、海洋あるいは陸上の生物を利用する方法と、水素と反応させて有機化合物を生産するなどの化学的方法がある。本研究では、複合放電を用いた放電プラズマにより二酸化炭素を無害な物質に効率良く分解処理することを目的とする。

2. 実験装置及び実験方法

図 1 に複合放電型リアクタの概略図を示す。リアクタは長さ 100mm、直径 20mm の円筒型

である。リアクタはセラミックシリンダの内側に内部誘導電極を装着しており、セラミックシリンダの外側に放電電極であるステンレス線を巻き、高電圧電源により放電電極に高電圧を印加し沿面放電を発生し、その外側でセラミックシリンダと外部誘導電極を介して無声放電を発生させる。放電部分のギャップ長は 1mm である。この二つの放電を重畳させる複合放電プラズマを用いて CO₂ の分解を試みた。電源は高周波電源(7kHz)を使用した。

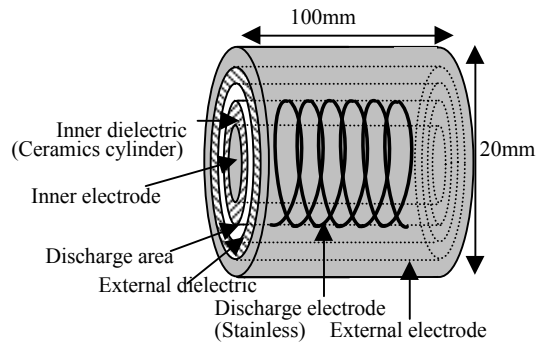


Fig.1 Schematic of discharge electrode system

サンプルガスとして CO₂ と Air, N₂, Ar 等の混合ガスを混合比及び流量を変化させてリアクタ内に流入し、CO₂ の分解率への影響を調べた。また放電処理後のガスは FTIR (JASCO,

FT/IR-430)を用いて測定し、副生成物の特定、及び二酸化炭素の分解率を調べた。

3. 実験結果

図2及び図3に典型的な FTIR スペクトルを示す。図2には CO₂ の吸光スペクトルを、図3には副生成物の吸光スペクトルを示す。サンプルガスとして Air 80%, CO₂ 20%の混合ガスを使用した。図2において、波数 2350cm⁻¹ の付近にピークは CO₂ の吸光スペクトルを表している。実線が放電を発生させる前のスペクトルであり、破線が放電処理後のスペクトルを表している。CO₂ の吸光スペクトルに注目してみると放電後のスペクトルが減少していることが分かる。このことから複合放電により CO₂ を分解できることが明らかとなった。

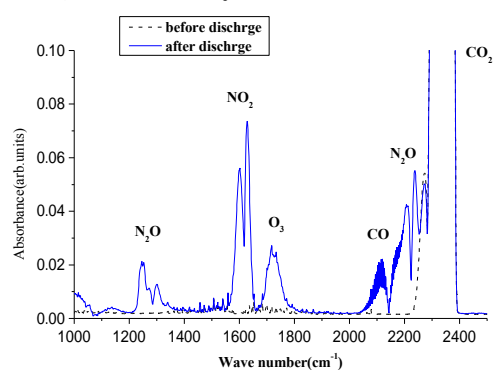


Fig.2 FTIR spectra of CO₂ before and after discharge

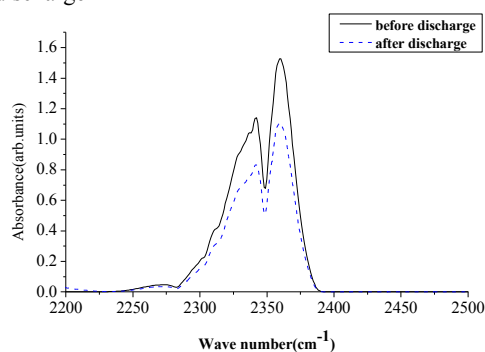


Fig. 3 FTIR spectra of by-product before and after discharge

また図3の吸光スペクトルを見ると、放電処理後のスペクトルにおいて波数 1270cm⁻¹, 1600cm⁻¹, 1750cm⁻¹, 2150cm⁻¹, 2250cm⁻¹ 付近に放電前には見られなかったスペクトルが現れている。これは順に N₂O, NO₂, O₃, CO, N₂O のスペクトルである、このことにより混合ガスに Air

を用いると副生成物として NO₂, O₃, CO, N₂O が現れることが分かった。また混合ガスに N₂, Ar を用いると CO のみが現れることが確認された。このことにより CO₂ はプラズマにより分解されて CO に変化する事が分かった。

図4に混合ガスを Ar, Air, N₂ と変化させたときの CO₂ 分解率を示す。混合ガスに Air を用いた場合、最も分解率が低く、最大で 10.3%であった。これは Air 中の酸素にプラズマ中の電子が付着し放電維持が困難となりプラズマ密度が低下するためだと思われる。また前述の副生成物の発生に放電エネルギーを消費した可能性も考えられる。混合ガスに N₂ を用いると Air よりもやや分解率は向上し最大で 14.9%となった。混合ガスに Ar を用いた時、最も分解率が高く最大で 38.8%分解することを確認した。

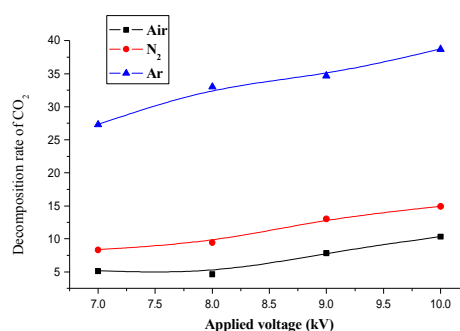


Fig. 4 The decomposition rate of CO₂ changing the mixing gas

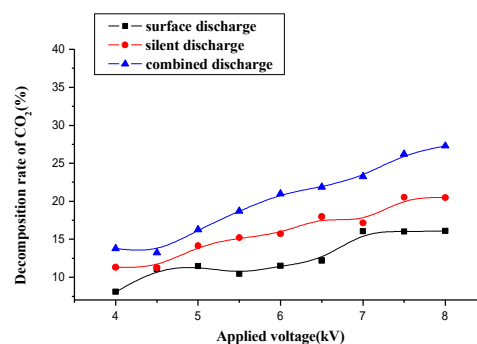


Fig. 5 The decomposition rate of CO₂ varying the discharge modes

図5に沿面放電のみ、無声放電のみ及び複合放電を用いた時の CO₂ 分解率を示す。サンプルガスとして Ar 96%, CO₂ 4%の混合ガスを使用した。どの放電形態でも印加電圧の上昇とともに CO₂ の分解率が増加した。また沿面放電を用いた時、分解率が最も低下した。これは沿面放電の場合、電子エネルギーは無声放電より高いが

放電領域が放電電極の周りに局在し、サンプルガスのほとんどが放電領域外を通過するためである。無声放電単独ではリアクタ内にプラズマが一樣に生成されるが、電子エネルギーが沿面放電ほど高くないために分解率は上昇しなかったと考えられる。複合放電は沿面放電の高い電子エネルギーと無声放電の広い放電領域を利用できるために分解率は最も高い結果になったと推察される。複合放電を用いた時、分解率は印加電圧 8 kV のとき最大で 27.3% であった。

図 6 にサンプルガスである CO₂ の濃度を一定 (Ar 98% ,CO₂ 2%) とし流量を変化させた時の CO₂ 分解率を示す。サンプルガスの流量を 0.5l/min , 1.0l/min および 2.0l/min の場合で実験を行った。電圧が低い時は CO₂ の分解率に変化はほとんど見られないが、電圧の上昇とともに差が拡大し、流量を 0.5l/min から 2.0l/min に変えると分解率に最大約 15% の差が見られた。また流量の増加とともに CO₂ の分解率は減少する結果となった。これは、流量を増加させることにより、サンプルガスの流速が早くなり CO₂ 分子と電子との衝突頻度が低下するためである。

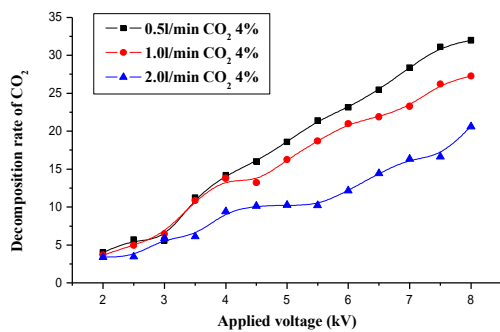


Fig. 6 The decomposition rate of CO₂ changing CO₂ flow rate

また図 7 に流量を 1.0l/min で一定とし CO₂ の濃度を变化させた時の CO₂ 分解率を示す。サンプルガスとして Ar99% , CO₂ 1% の混合ガス , Ar98% ,CO₂ 2% の混合ガス及び Ar 96% ,CO₂ 4% の混合ガスを使用した。電圧の上昇とともに差が大きくなり、印加電圧が 6.5 kV の時 CO₂ の濃度が 1% の時と CO₂ の濃度が 4% の時とでは分解率に最大の差が見られ、その差は約 32% ほどであった。これは、CO₂ は放電の困難なガスであるため、CO₂ の量が増えることにより放電が生じ難くなり電子密度が減少するため分解率に差が現れたのではないかと考えられる。

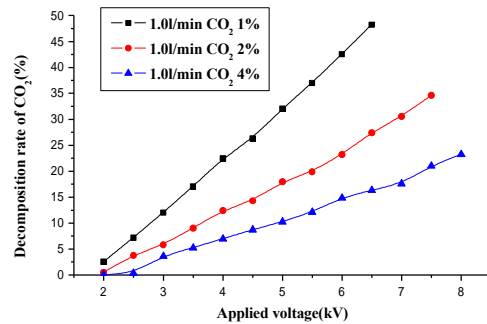


Fig. 7 The decomposition rate of CO₂ changing the concentration of CO₂

4. まとめ

1. 沿面放電のみ、無声放電のみ及び複合放電により CO₂ を分解することが可能であることが分かった。
2. CO₂ の分解率はサンプルガスとして Ar 96% , CO₂ 4% 流量 1.0l/min の混合ガスを使用したとき沿面放電単独で 16.1% , 無声放電単独で 20.5% , 複合放電で最大 27.3% となった。
3. 希釈ガスによって CO₂ の分解率に影響があることが分かった。Ar を用いた時最大で 38.7% , N₂ を用いた時最大で 14.9% , Air を用いた時最大で 10.3% であった。
4. 副生成物は Ar, N₂ を用いた時 CO が、Air を用いた時 CO, NO₂, N₂O 及び O₃ が確認された。
5. サンプルガスの流量または濃度を増加していくにつれ CO₂ 分解率は減少する傾向があることがわかった。

参考文献

- (1) 田隅 三生：“FT-IR の基礎と実際(第 2 版)” (1994) (株)東京化学同人
- (2) 社会法人 電気学会 1998 放電ハンドブック上巻
- (3) T.Tanaka, S.Baba, S.Ihara, N.Hayashi, S.Sato and C.Yamabe: “Fundamental studies on NO_x-less Ozonizer” RECORD OF 2001 JOINT CONFERENCE OF ELECTRICAL AND ELECTRONICS ENGINEERS IN KYUSYU pp.276 (2001.10) .
- (4) 田中 剛, 馬場 誠二, 猪原 哲, 林 信哉, 佐藤 三郎, 山部 長兵衛「NO_x less Ozonizer に関する基礎研究」平成 13 年度電気関係学会九州支部連合大会講演論文集 pp.267 (2001.10) .