

2005年1月13日

| | | | | |
|-----------|-------|--------|--------|---------------|
| エコロジー工学専攻 | 学籍番号 | 983811 | 指導教官氏名 | 水野 彰 |
| 申請者氏名 | 木下 洋平 | | | 桂 進司 田中 三郎 |

論文要旨 (博士)

| | |
|------|-----------------------|
| 論文題目 | 湿式放電プラズマを用いた環境浄化技術の開発 |
|------|-----------------------|

近年、工場や発電所などからは石炭や石油の燃焼にともなう硫黄酸化物(SO₂)や窒素酸化物(NO_x)が排出されている。これらの排気ガスは、酸性雨や光化学スモッグなどの原因となり大きな問題となっている。特に近年工業化を達成した国や地域においては、石炭や石油消費の増加をともなう産業の発展が進行しているにもかかわらず環境問題に対する不十分な認識やコストの問題により排気ガスや排水の無害化処理が十分であるとはいえない。そこで本研究では比較的低コストである水を使用して燃焼排気ガス中に含まれる SO₂ や NO_x に代表される有害ガスの処理に取り組んだ。本研究で用いた反応器の特徴は放電場に液膜を形成させたことであり、液体に対して放電を行うことによる気体と液体をあわせた新しいプラズマ化学反応を期待して環境浄化技術の開発を行った。

まず気相から液面に向かう放電を用いて液体内におけるプラズマ化学反応を検討した。放電対象液体に酸化されると脱色する青色染料のインディゴカルミン水溶液を用いて検討した結果、液面放電による脱色が確認された。これは液体内の酸化反応を示すものであり、気相放電による液体内の酸化反応の誘起が可能であることを示した。これは放電により発生した短寿命の活性種の働きによるものであり、オゾン(O₃)による脱色はわずかなものであった。

放電場に液膜を形成させた湿式放電反応器を用いた燃焼排気ガス処理を行う場合、大気汚染物質である SO₂ や NO_x の液体内への吸収により硫黄酸化物イオン(SO₃²⁻, SO₄²⁻)や窒素酸化物イオン(NO₂⁻, NO₃⁻)が生成される。このうち硫黄酸化物イオンについては硫酸イオン(SO₄²⁻)が主要成分であれば工業的用途の大きい硫酸生成につながると考えられる。そのため放電による亜硫酸イオン(SO₃²⁻)の酸化を検討し、SO₃²⁻から SO₄²⁻に酸化できることが確認された。このとき SO₃²⁻の酸化反応は NO_x ガスの吸収により生成される HNO₃ の共存や、それにとまなう酸性度の低下には影響を受けず、最大で 0.22mol-SO₃²⁻/kWh のエネルギー効率を示した。また NO_x ガスの液体内への溶解により生成される硝酸イオン(NO₃⁻)については還元処理を検討した。これまでに電気分解による NO₃⁻からのアンモニウムイオン(NH₄⁺)や窒素(N₂)の生成は報告されてきたが、本研究においては放電プラズマによる化学反応の可能性を検討した。その結果、液体内に二価鉄イオン(Fe²⁺)を添加することにより NO₃⁻は NH₄⁺に還元され、そのエネルギー効率は 0.70 mol-NH₄⁺/kWh を示した。また移動電荷量あたりの NH₄⁺生成量は、放電を用いた場合は電気分解による理論値(1.26×10⁻⁶ mol-NH₄⁺/C)の 1000 倍以上を示し、放電プラズマによる化学反応の優位性を示した。

放電場に液膜を形成させた湿式放電反応器を用いた SO₂ や NO_x の除去実験の結果、液体に水を用いることにより SO₂ や NO_x は液体内に効率よく吸収できることが判明した。また水の代わりに NH₃ 水溶液を用いた場合、SO₂ 吸収量の増加による除去率向上を示した。SO₂ はその高い溶解度より放電を行わないときも液体に吸収されるが、放電を印加することにより SO₂ 除去率は向上し、放電を行わなかった場合と比較して最大で 33%向上した。NO については気相において NO から NO₂ へ酸化され、液体への吸収量が増加し、液体内の NO₂ と NO₃⁻ の濃度が増加した。また液体に NH₃ 水溶液を用いることにより NO 酸化の促進と、液体内への NO_x 吸収量の増加が認められた。NO₃⁻還元については、HNO₃ に Fe²⁺を添加した液体への放電により液体内の Fe²⁺は Fe³⁺に酸化され、NO₃⁻は主に NH₄⁺に還元された。そのエネルギー効率は最大で 0.64 mol-NH₄⁺/kWh を示した。またこのとき少量の NO₃⁻は N₂に還元されたと考えられる結果が得られた。