

大気圧非平衡プラズマによるメタン変換

Conversion of methane by atmospheric-pressure non-equilibrium plasma

大阪ガス¹, 阪大工² ○小林 和伸¹, Sergei A. Kulinich², 伊藤 剛仁²Osaka Gas¹, Osaka Univ.², °Kazunobu Kobayashi¹, Sergei A. Kulinich², Tsuyohito Ito²

E-mail: kazu-kobayashi@osakagas.co.jp

メタン有効利用のための新規反応プロセスの構築を目的とし、大気圧非平衡プラズマを用いたメタン酸化プロセスの研究を進めている。

図 1 に反応装置概略図を示す。反応装置内電極には、金属メッシュ (100 mesh、ワイヤ径 100 μm) を用いた。触媒効果の有無を見るために、金属メッシュ電極として、ステンレス鋼、酸化銅、アルミニウムの 3 種の金属を用いた。ガス流量は、合計 15 sccm とし、Ar 中に、メタン : 1.87%、酸素 : 6.7% を混合したガスとした。放電体積が約 0.25 cm^3 (約 4 cm $\times$ 1 cm $\times$ 0.6 mm) であるので、放電中の滞在時間は約 1 秒である。周波数約 40 kHz の正弦波状電圧を印加することでマイカ (厚み : 0.52 mm) 越しに誘電体バリア放電を生成した。印加電圧および電流から見積もられた消費電力は 2-10 W 程度である。生成物の内、主に CO、CO₂、CH₄ の 3 種に対し、熱伝導度型検出器を用いたガスクロマトグラフ (島津 : GC-8A) を用いて定量分析を行った。

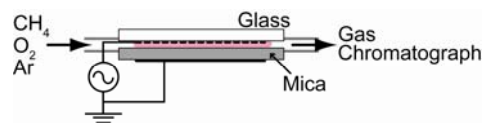


図 1 : 反応実験装置概略図

図 2 に、ステンレス鋼電極を用いた実験結果から、メタン変換率の放電電圧依存性を示す。放電の開始 (約 3.6 kV_{p-p}) とともに変換効率は急速に立ち上がり、約 5.5 kV_{p-p} の電圧時には、ほぼ 100% の変換効率が得られた。生成物としては、低電圧領域 (約 4 kV_{p-p}) で最大 15% 程度のメタンが CO に変換されるが、その後、電圧の増加とともに CO₂ への酸化が進み CO の生成量は減少する。一方、二酸化炭素の生成量は電圧の増加とともに増加していき、5.5 kV_{p-p} では約 9 割のメタンが CO₂ に酸化される結果となった。

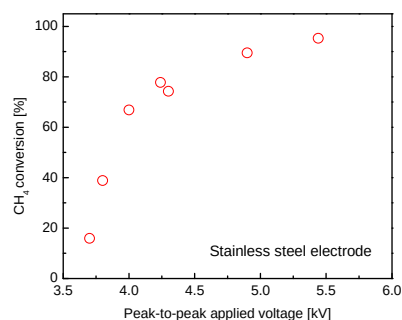


図 2 : メタン変換率の放電電圧依存性 : ステンレス鋼電極

一部サンプルに対しては、メタノールやエタノールに関する定量分析も行い、現在までに、低電圧領域にて、最大約 10% のメタンがメタノールもしくはエタノールに変換された結果が得られている。

変換効率や生成物における明確な電極依存性は見られず、プラズマによる反応促進効果に対し、金属表面における触媒効果は小さいと考えられる。事実、窒素を約 10% 混入して回転温度を測定したところ、触媒反応で用いられる温度[1]を大きく下回る約 500 K 程度であった。

講演では、より詳細な変換効率および生成物依存性などを含めて報告する。

[1] Y. Feng, P.M. Rao, D.R. Kim, X. Zheng, Proc. Comb. Inst. 33, 3169 (2011).