

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2010年3月4日(04.03.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/024216 A1

- (51) 国際特許分類:
B01D 53/44 (2006.01) B01J 19/08 (2006.01)
B01D 53/04 (2006.01) H05H 1/24 (2006.01)
B01D 53/81 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/064719
- (22) 国際出願日: 2009年8月24日(24.08.2009)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2008-221589 2008年8月29日(29.08.2008) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 公立大学法人大阪府立大学(OSAKA PREFECTURE UNIVERSITY PUBLIC CORPORATION) [JP/JP]; 〒5998231 大阪府堺市中区学園町1-1 Osaka (JP). 株式会社 島川製作所 (Shimakawa Seisakusho Co., Ltd.) [JP/JP]; 〒5730128 大阪府枚方市津田山手2丁目9番3号 Osaka (JP).

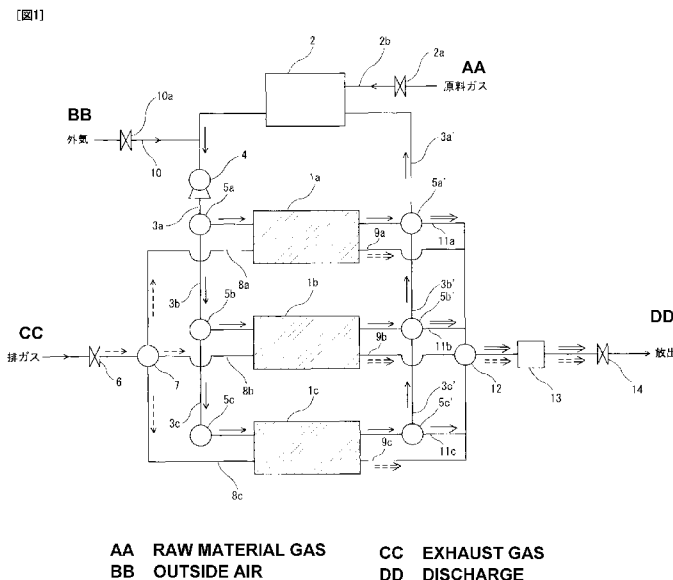
- 1 公立大学法人大阪府立大学内 Osaka (JP). 松岡 茂(MATSUOKA, Shigeru) [JP/JP]; 〒5730128 大阪府枚方市津田山手2丁目9番3号 株式会社 島川製作所内 Osaka (JP). 金鍾列(Kim Jong Youl) [KR/JP]; 〒5730128 大阪府枚方市津田山手2丁目9番3号 株式会社 島川製作所内 Osaka (JP).
- (74) 代理人: 野河 信太郎(NOGAWA, Shintaro); 〒5300047 大阪府大阪市北区西天満5丁目1-3 南森町パークビル 野河特許事務所 Osaka (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ

- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 黒木 智之(KUROKI, Tomoyuki) [JP/JP]; 〒5998231 大阪府堺市中区学園町1-1 公立大学法人大阪府立大学内 Osaka (JP). 大久保 雅章(OKUBO, Masaki) [JP/JP]; 〒5998231 大阪府堺市中区学園町1-

[続葉有]

(54) Title: METHOD AND APPARATUS FOR PROCESSING EXHAUST GAS

(54) 発明の名称: 排ガスの処理方法および処理装置



(57) Abstract: A method for processing an exhaust gas from factories and the like, which comprises (a) a step wherein the exhaust gas is brought into contact with an adsorbent in a part filled with the adsorbent, so that harmful contents in the exhaust gas are adsorbed on the adsorbent, and then the exhaust gas from which the harmful contents have been removed by adsorption is discharged; (b) a step wherein an active gas is generated from an atmospheric non-thermal plasma generator and the active gas is brought into contact with the harmful contents adsorbed on the adsorbent within the temperature range from normal temperature to 100°C, thereby decomposing the harmful contents and regenerating the adsorbent at the same time; and (c) a step wherein a processed gas after decomposition of the harmful contents is discharged.

(57) 要約: 工場などからの排ガスの処理方法において、(a) 排ガスを吸着剤充填部内の吸着剤と接触させて排ガス中の有害成分を吸着剤に吸着させ、有害成分が吸着除去された後の排ガスを排出する工程、(b) 大気圧非熱プラズマ発生装置により活性ガスを発生させ、該活性ガスを前記吸着剤に吸着された有害成分と常温~100°Cの温度範囲で接触させ、および(c) 有害成分分解処理後の処理

て、該有害成分を分解すると同時に該吸着剤を再生する工程、済みガスを排出する工程を含む、排ガスの処理方法。

WO 2010/024216 A1

(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 國際調查報告 (條約第 21 條(3))

明 細 書

発明の名称： 排ガスの処理方法および処理装置

技術分野

[0001] この発明は、排ガスの処理方法およびその方法で用いられる処理装置に関するものであり、さらに詳細には、工場などから排出される排ガス中の有害成分を吸着剤に吸着させ、大気圧非熱プラズマ発生装置により発生させた活性ガスで該有害成分を常温～100℃で分解するとともに、該吸着剤を再生することからなる排ガスの処理方法、およびこの処理方法で用いられる処理装置に関するものである。

背景技術

[0002] 工場などで溶剤として広く用いられているトルエン、キシレン、ベンゼンなどを含む排ガスは、そのまま排出されるとヒトの健康を害し、環境を破壊するため、大気中への放出前にかかる有害成分を除去する必要がある。

そのような除去方法としては、従来、例えば吸着剤による吸着法、直接燃焼法、触媒燃焼法、蓄熱燃焼法などが一般的な方法として知られている。

[0003] 近年、大気圧非熱プラズマを用いた有害ガス処理に関する研究が盛んに行われているが、プラズマだけでは有害成分を完全には分解できないことが多く、触媒や吸着剤を併用した処理方法が開発されている（例えば、特許文献1および2）。

また、揮発性の有機化合物（VOC）を含む空気を吸着放電素子に通してVOCを吸着させ、次いで吸着放電素子に高電圧を印加してバリア放電を発生させて、VOCを分解する吸着放電分解装置が提案されている（非特許文献1）。

[0004] さらに、ガス循環処理方式を含む類似技術として、吸着剤に被処理成分を吸着させた後、プラズマを吸着剤に印加して被処理成分を脱着させ、下流のプラズマリアクタで窒素プラズマにより被処理成分を除去する方法が開発されている（特許文献3）。

先行技術文献

特許文献

- [0005] 特許文献1：特開2005-230627号公報
特許文献2：特開2007-61712号公報
特許文献3：特開2007-000733号公報

非特許文献

- [0006] 非特許文献1：電学論A、127巻6号309～316頁（2007年）

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0007] しかしながら、上記のような従来一般的な方法では、イニシャルコストおよびランニングコストが高つくといった問題や、広大なスペースを必要とするといったような問題があり、必ずしも満足できるものではなかった。

- [0008] また、上記の特許文献1および2に記載の方法は、電極間に吸着剤を置き、吸着剤に吸着された被処理成分をプラズマによって分解するものであるが、吸着剤を切換えて使用する場合には、吸着剤の数と同数のプラズマ発生装置を用意しなければならないという問題があった。上記の非特許文献1に記載の装置でも同様の問題があった。

さらに、上記の特許文献3に記載の方法では、吸着された被処理成分を吸着剤から脱着させるためのプラズマ発生装置と、脱着した被処理成分を分解するためのプラズマ発生装置がそれぞれ必要であるという問題があった。

- [0009] 本発明者らは、上記の問題を解決すべく鋭意研究の結果、プラズマ発生装置で生成した活性ガスを被処理成分が吸着された吸着剤に通すことによって、吸着剤表面で被処理成分の分解反応が起き、さらにガス循環経路内でこれらの操作を行うことによって、吸着剤を完全に再生できることを見出し、本発明を完成した。

課題を解決するための手段

- [0010] 本発明の課題は、工場などから排出される排ガスの処理方法において、

(a) 排ガスを吸着剤充填部内の吸着剤と接触させて排ガス中の有害成分を吸着剤に吸着させるとともに、有害成分吸着除去後の排ガスを排出する工程、

(b) 大気圧非熱プラズマ発生装置により活性ガスを発生させ、該活性ガスを、前記吸着剤充填部および前記プラズマ発生装置を接続するガス循環経路内を循環させ、前記吸着剤に吸着された有害成分と常温～100℃の温度範囲で接触させて、該有害成分を吸着剤表面において分解するとともに、該吸着剤を再生する工程、および

(c) 有害成分分解処理後のガスを前記のガス循環経路から排出する工程を含む、排ガスの処理方法を提供することである。

[0011] 本発明のもう一つの課題は、上記の処理方法において、前記の吸着工程 (a) および前記の分解・再生工程 (b) が、ガス循環経路に設けられたバルブにより切替えることができるように並列的に配置された2つ以上の吸着剤充填部の間で、交互にあるいは順次行なわれる排ガスの処理方法を提供することである。

[0012] 本発明のもう一つの課題は、前記の処理方法を実施するに際して用いられる排ガスの処理装置を提供することであり、該処理装置は、

(イ) 排ガス中の有害成分を吸着する吸着剤を充填した吸着剤充填部、

(ロ) 活性ガスを発生させる大気圧非熱プラズマ発生装置、

(ハ) 前記の吸着剤充填部および前記のプラズマ発生装置を接続するガス循環経路、

(ニ) 前記の吸着剤充填部へ排ガスを取り入れる排ガス導入バルブ、および

(ホ) 有害成分吸着除去後の排ガスおよび有害成分分解処理後の処理済みガスを排出するガス排出バルブ

を備えた排ガス処理装置であって、

前記の活性ガスを吸着剤に吸着された有害成分と常温～100℃で接触させて、該有害成分を吸着剤表面で分解するとともに、該吸着剤を再生するようになされている。

[0013] そして、本発明のさらなる課題は、前記の処理方法を実施するに際して用いられるもう一つの形態の排ガス処理装置を提供することであり、この処理装置では、上記の処理装置におけるガス循環経路に接続された吸着剤充填部が、ガス循環経路に設けられたバルブにより切換えできるように、並列的に複数配置されている。

発明の効果

[0014] 本発明の処理方法によれば、常温～100℃という比較的低温で、有害成分の分解処理と同時に吸着剤を再生できるため、吸着剤の冷却時間をおかないで、再生された吸着剤を直ちに次の吸着処理に使用できるという利点がある。

[0015] また、活性ガスを循環させて有害成分の分解および吸着剤の再生を同時に行うので、有害成分の分解処理後に処理装置から排出される処理済みガスの量を少なくすることができ、したがって例えば未反応オゾンの処理も容易となる。

さらに、トルエン、キシレン、ベンゼンのような揮発性の炭素含有有機化合物をCO₂まで分解することができるため、分解過程での中間生成物が大気中に放出されるおそれがない。

[0016] その上、本発明の処理方法を2つ以上の吸着剤充填部を備えた処理装置で行えば、有害成分の吸着処理を一方の吸着剤充填部で行い、同時に他方の吸着剤充填部で有害成分分解処理・吸着剤再生処理を並行して行なうことができ、しかも第1段階の吸着処理と分解・再生処理の終了後、バルブの切替えにより、直ちに第2段階の分解・再生処理と吸着処理に移ることができるため、排ガスの処理を間断なく連続的に行うことが可能となる。

[0017] また、吸着剤充填部を2つ以上備えた本発明の処理装置によれば、複数の吸着剤充填部における有害成分の分解および吸着剤の再生処理を1つのプラズマ発生装置で兼用することができるため、処理装置の設置費用を低減できるとともに、装置を小型化できる。

図面の簡単な説明

[0018] [図1] 図 1 は本発明の排ガスの処理装置の一つの実施形態の構成を示す模式図である。

[図2] 図 2 は本発明の排ガスの処理装置のもう一つの実施形態の構成を示す模式図である。

[図3] 図 3 はプラズマ発生装置の模式断面図である。

[図4] 図 4 は吸着剤充填部の模式斜視図 (a) および模式断面図 (b) である。

[図5] 図 5 は実施例 1 において、循環処理時間に対するガス循環経路内の CO、CO₂、O₂ およびトルエンの各濃度を示すグラフである。

[図6] 図 6 は実施例 1 において、循環処理時間に対するトルエンから CO_x (CO + CO₂) への転化率を示すグラフである。

発明を実施するための形態

[0019] 本発明の処理装置は、

(イ) 排ガス中の有害成分を吸着する吸着剤を充填した吸着剤充填部、

(ロ) 活性ガスを発生させる大気圧非熱プラズマ発生装置、

(ハ) 前記の吸着剤充填部および前記のプラズマ発生装置を接続するガス循環経路、

(ニ) 前記の吸着剤充填部へ排ガスを取り入れる排ガス導入バルブ、および

(ホ) 有害成分吸着除去後の排ガスおよび有害成分分解処理後の処理済みガスを排出するガス排出バルブ

を備えた排ガス処理装置であって、

前記の活性ガスを吸着剤に吸着された有害成分と常温～100℃で接触させて、該有害成分を吸着剤表面で分解するとともに、該吸着剤を再生するようになされている。

[0020] 以下、本発明の処理装置を示す図面に基づいて説明する。

図 1 は、本発明の処理装置の 1 実施形態の模式図であり、吸着剤充填部を並列的に 3 つ配置した場合を示している。

[0021] 本発明の処理装置は、並列的に配置された 3 つの吸着剤充填部 (1 a)、

(1 b) および (1 c) ; 原料ガス導入バルブ (2 a) および原料ガス導入管 (2 b) を備えたプラズマ発生装置 (2) ; これらの吸着剤充填部 (1 a) 、 (1 b) および (1 c) の各々とプラズマ発生装置 (2) とを接続する活性ガス循環経路 (3 a) ・ (3 a') 、 (3 b) ・ (3 b') および (3 c) ・ (3 c') ; プラズマ発生装置 (2) で発生した活性ガスを吸着剤充填部 (1 a) 、 (1 b) または (1 c) を通ってプラズマ発生装置 (2) へ循環させる活性ガス循環ポンプ (4) ; 活性ガス循環切換バルブ (5 a) ・ (5 a') 、 (5 b) ・ (5 b') および (5 c) ・ (5 c') ; 排ガス導入バルブ (6) ; 排ガス導入切換バルブ (7) ; 排ガス導入管 (8 a) 、 (8 b) および (8 c) ; 排ガス排出管 (9 a) 、 (9 b) および (9 c) ; 外気導入バルブ (10 a) を備え、ガス循環経路 (3 a) に接続された外気導入管 (10) ; 処理済みガス排出管 (11 a) 、 (11 b) および (11 c) ; ガス排出切換バルブ (12) 、オゾン分解触媒 (13) 、ならびにガス排出バルブ (14) から、主に構成されている。

[0022] 図 1 において、破線の矢印は排ガスの流れを示し、実線の矢印は活性ガスの流れを示し、2重破線の矢印は有害成分吸着除去後の排ガスの流れを示し、2重実線の矢印は有害成分分解処理後の処理済みガスの流れを示している。

[0023] 吸着剤充填部 (1 a) 、 (1 b) および (1 c) に充填される吸着剤は、特に限定されず、本発明の処理対象となる排ガス中に含まれる有害成分を吸着し得るものであればよく、具体的には、活性炭、ゼオライト、疎水性ゼオライト、ガンマアルミナ、コージェライト、ポリエステル繊維、シリカゲルなどが好ましい吸着剤の例として挙げられる。

[0024] これらの吸着剤の形状は特に限定されないが、ペレット状または流動圧力損失を小さくできるハニカム状が好ましい。

また、吸着剤の充填量は、排ガス中に含まれる有害成分とそれに対する吸着剤の吸着能力、ならびに排ガスの単位時間当たりの流量などを考慮して、適宜定めることができる。

- [0025] なお、吸着剤充填部（１ a）、（１ b）および（１ c）の各々は、図４に示す模式断面図のように、吸着剤が充填される箇所の上をその前後の上面より高くし、かつステンレスメッシュ板（２ １）で複数の区分に分け、それぞれの区分内に吸着剤（２ ２）を密に充填すれば、ステンレスメッシュ板（２ １）や吸着剤（２ ２）が吸着剤充填部内で移動してガスの流路に無駄な隙間ができるのを防止でき、排ガス中の有害成分の吸着除去効率を高めることができ、好ましい。
- [0026] 工場などからの排ガスは、排ガス導入バルブ（６）、排ガス導入切換えバルブ（７）、および排ガス導入管（８ a）、（８ b）または（８ c）を通して、吸着剤充填部（１ a）、（１ b）または（１ c）へ導入され、排ガス中の有害成分が吸着剤充填部内の吸着剤表面に吸着される。
- [0027] 吸着剤充填部（１ a）、（１ b）または（１ c）を通して有害成分が吸着除去された後の排ガスは、排ガス排出管（９ a）、（９ b）または（９ c）、ガス排出切換えバルブ（１ ２）、オゾン分解触媒（１ ３）およびガス排出バルブ（１ ４）を通して、大気中に排出される。
- [0028] なお、吸着剤充填部（１ a）、（１ b）および（１ c）の下流側の排ガス排出管（９ a）、（９ b）および（９ c）上に有害成分検知センサー（図示略）を設けておけば、吸着剤の吸着限界を検知でき、有害成分を含んだままの排ガスが大気中に放出されるのを未然に防ぐことができる。
- [0029] プラズマ発生装置（２）としては、従来の装置をそのまま使用することができ、例えば沿面放電方式、パルスコロナ放電方式、無声放電方式、交流コロナ放電方式、直流コロナ放電方式または矩形波高電圧電源により稼働する、非熱プラズマ（低温プラズマ）反応器が好ましいものとして例示される。
- これらのプラズマ発生装置であれば、作動中に装置の温度を上昇させないので、熱による装置の損傷を抑制でき、しかも安全に操作できるという利点がある。
- [0030] 上記のプラズマ発生装置（２）の電極は、金属放電線対金属コイル円板、金属針対金属平板、あるいは金属放電線対金属円筒のいずれでもよい。

そして、これらの電極は、少なくとも一方が誘電体バリアで覆われた一対の板状金属であれば、誘電体バリアを用いない場合に比べて電解強度が大きくなり、活性ガスの生成に有利である。

[0031] このプラズマ発生装置（２）には、空気、酸素ガスなどの原料ガスを該装置に導入するための原料ガス導入バルブ（２ a）を備えた原料ガス導入管（２ b）が接続されている。

[0032] なお、プラズマ発生装置（２）の内部は、図３に示す模式断面図のように、各沿面放電素子（２ ３）の上流側直前に設けられた邪魔板（２ ４）のスリット（２ ５）を通して、空気、酸素ガスなどの原料ガスが放電素子（２ ３）の表面近傍を流れるようにすれば、オゾンのような活性ガスを効率よく発生させることができて好ましい。

[0033] 活性ガス循環ポンプ（４）は、プラズマ発生装置（２）で発生した活性ガスを、吸着剤充填部（１ a）、（１ b）および（１ c）のいずれかを通してプラズマ発生装置（２）へ循環させる。

[0034] 活性ガスが吸着剤充填部（１ a）を通して循環する場合、該活性ガスはガス循環経路（３ a）、切換えバルブ（５ a）、吸着剤充填部（１ a）、切換えバルブ（５ a'）、ガス循環経路（３ a'）およびプラズマ発生装置（２）を順次循環するように、活性ガス循環ポンプ（４）が駆動され、切換えバルブ（５ a）および（５ a'）が切り換えられる。

[0035] また、吸着剤充填部（１ b）を通して活性ガスが循環する場合には、活性ガスはガス循環経路（３ a）、切換えバルブ（５ a）、ガス循環経路（３ b）、切換えバルブ（５ b）、吸着剤充填部（１ b）、切換えバルブ（５ b'）、ガス循環経路（３ b'）、切換えバルブ（５ a'）、ガス循環経路（３ a'）およびプラズマ発生装置（２）を順次循環するように、活性ガス循環ポンプ（４）が駆動され、切換えバルブ（５ a）、（５ b）、（５ b'）および（５ a'）が切り換えられる。

[0036] さらに、吸着剤充填部（１ c）を通して活性ガスが循環する場合には、同様にして、活性ガスはガス循環経路（３ a）、切換えバルブ（５ a）、ガス

循環経路（3 b）、切換えバルブ（5 b）、ガス循環経路（3 c）、切換えバルブ（5 c）、吸着剤充填部（1 c）、切換えバルブ（5 c'）、ガス循環経路（3 c'）、切換えバルブ（5 b'）、ガス循環経路（3 b'）、切換えバルブ（5 a'）、ガス循環経路（3 a'）およびプラズマ発生装置（2）を順次循環するように、活性ガス循環ポンプ（4）が駆動され、切換えバルブ（5 a）、（5 b）、（5 c）、（5 c'）、（5 b'）および（5 a'）が切り換えられる。

[0037] 各吸着剤充填部（1 a）、（1 b）または（1 c）を通して、吸着剤表面に吸着された有害成分と接触して劣化した活性ガスは、プラズマ発生装置（2）へ戻され、ラジカルを多量に含む活性ガスに再生されて、再び各吸着剤充填部（1 a）、（1 b）または（1 c）を通して循環する。

[0038] 各吸着剤充填部（1 a）、（1 b）または（1 c）における有害成分の分解処理の終了後、プラズマ発生装置（2）の稼動を停止させるとともに、ポンプ（4）を駆動させて、外気導入管10から外気を取り入れ、それぞれのガス循環経路内およびそれぞれの吸着剤充填部内に残留する処理済みのガスが大気中へ放出される。

[0039] なお、ガス排出切換えバルブ（12）とガス排出バルブ（14）との間に、二酸化マンガンのようなオゾン分解触媒（13）を設置することにより、処理済みガス中のオゾンや未分解ガスを除去することができる。

[0040] 図2は、本発明における処理装置のもう一つの実施形態を示すものであり、図1と同じ部分には図1と同じ符号を付してある。

本発明の処理装置が吸着剤充填部を1つだけ、例えば（1 a）だけを備える場合には、図2に示すように、排ガスは排ガス導入バルブ（6）から排ガス導入管（8 a）を通して吸着剤充填部（1 a）へ導かれ、有害成分が吸着除去された後の排ガスは吸着剤充填部（1 a）から排ガス排出管（9 a）、オゾン分解触媒（13）およびガス排出バルブ（14）を通して大気中に放出される。

[0041] また、有害成分分解処理後の処理済みガスは吸着剤充填部（1 a）から排

ガス排出管（9 a）、オゾン分解触媒（13）およびガス排出バルブ（14）を通過して大気中に放出される。

[0042] したがって、本発明の処理装置が吸着剤充填部を1つだけ備える場合には、図2に示されるように、開閉バルブ（15）および（15'）をガス循環経路（3 a）および（3 a'）にそれぞれ設けることにより、排ガス導入切換バルブ（7）およびガス排出切換バルブ（12）を省略することができ、排ガス排出管（9 a）でもって処理済ガス排出管を兼ねることができる。

また、本発明の処理装置が吸着剤充填部を4つ以上備える場合には、上記で説明した吸着剤充填部が3つの場合に準じて、適宜増設することができる。

[0043] 次に、上記の図1の処理装置を用いる場合を例にして、本発明の排ガスの処理方法について説明する。

[0044] 本発明の処理方法は、

（a）排ガスを吸着剤充填部内の吸着剤と接触させて排ガス中の有害成分を吸着剤に吸着させるとともに、有害成分吸着除去後の排ガスを排出する工程、

（b）大気圧非熱プラズマ発生装置により活性ガスを発生させ、該活性ガスを、前記吸着剤充填部および前記プラズマ発生装置を接続するガス循環経路内を循環させ、前記吸着剤に吸着された有害成分と常温～100℃の温度範囲で接触させて、該有害成分を吸着剤表面において分解するとともに、該吸着剤を再生する工程、および

（c）有害成分が分解処理された後の処理済みガスを前記のガス循環経路から排出する工程
により行なわれる。

[0045] 本発明の処理方法で処理される排ガスは特に限定されないが、本発明の処理方法は、有害成分として例えばトルエン、キシレン、ベンゼン、エチレンオキサイド、トリクロロエチレンなどのような揮発性の有機化合物（VOC

）を1種以上含む排ガスが発生する工場などからの排ガスの処理に特に適している。

[0046] 図1に示す処理装置において、排ガス中の有害成分を例えば吸着剤充填部(1a)内の吸着剤に吸着させる場合の吸着処理は、排ガスを排ガス導入バルブ(6)、排ガス導入切換えバルブ(7)および排ガス導入管(8a)を介して吸着剤充填部(1a)へ導入し、排ガス中の有害成分を吸着剤と接触させることにより行なわれる。

[0047] 有害成分が吸着除去された後の排ガスは、吸着剤充填部(1a)から排ガス排出管(9a)、ガス排出切換えバルブ(12)、オゾン分解触媒(13)およびガス排出バルブ(14)を通して、大気中へ放出される。

[0048] 吸着工程の終了は、例えば排ガス排出管(9a)に有害成分検知センサー(図示略)を設けることにより検知することができるが、有害成分の吸着可能時間を予め測定しておき、その時間の範囲内で吸着工程を終了するようにしてもよい。

[0049] 吸着剤充填部(1a)における有害成分吸着工程が終了したならば、排ガス導入切換えバルブ(7)の切換えにより、有害成分を含む排ガスは吸着剤充填部(1b)へ導入され、そこで吸着工程が引き続いて行なわれる。

[0050] 一方、吸着剤充填部(1a)に吸着された有害成分は、プラズマ発生装置(2)を稼働させて活性ガスを発生させるとともに、ポンプ(4)を駆動させて該活性ガスを吸着剤充填部(1a)を通して循環させ、該有害成分と常温~100℃の温度範囲で接触させて、該有害成分を吸着剤表面で分解する。

[0051] プラズマ発生装置は、通常、温度:100℃以下、圧力:大気圧程度、相対湿度:60%以下、印加電圧:1~50kV、ピーク電流:1~100Aの範囲で操作される。

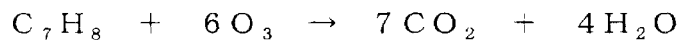
上記のプラズマ発生装置により活性ガスを発生させる原料ガスは、排ガス中に含まれる処理対象の有害成分により、空気、酸素ガスなどからなる群から適宜選択される。

[0052] これらの原料ガスから発生する活性ガスは、該原料ガスに由来するイオン化および（または）ラジカル化した活性種を含むガスであり、 O_3 、 OH 、 H_2O_2 、 O などの1種または2種以上を含む。

[0053] 有害成分がトルエン、キシレン、ベンゼン、エチレンオキサイドまたはトリクロロエチレンである場合、吸着剤の表面で起こるオゾンによる炭酸ガスと水への分解反応は、それぞれ次の反応式で示されるように進行しているものと想定される。

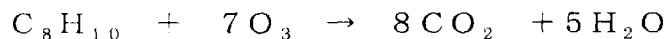
トルエンの場合：

[化1]



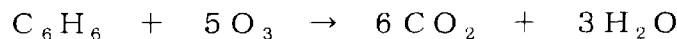
[0054] キシレンの場合：

[化2]



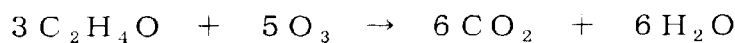
[0055] ベンゼンの場合：

[化3]



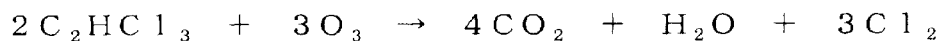
[0056] エチレンオキサイドの場合：

[化4]



[0057] トリクロロエチレンの場合：

[化5]



[0058] なお、活性ガス中のオゾンを分解してラジカルを生成させて、活性ガスによる有害成分の分解を促進するために、吸着剤充填部（1a）の上流側にオゾン分解触媒および／またはヒータ（図示略）を設けてもよい。

また、活性ガスによる有害成分の分解を促進するために、大気圧非熱プラ

ズマ発生装置により活性ガスを発生させる際に、過酸化水素水または水を添加してOHなどのラジカルの生成量を増加させてもよい。

[0059] 有害成分の分解終了は、循環経路内のCO_x (CO+CO₂) 濃度あるいは吸着剤における反応熱の有無により確認することができる。

有害成分の分解が終了したならば、次いで外気導入バルブ(10a)を開け、ポンプ(4)により外気を導入して、活性ガス循環経路(3a)および吸着剤充填部(1a)から、処理済みガス排出管(11a)およびガス排出切換えバルブ(12)、オゾン分解触媒(13)およびガス排出バルブ(14)を介して、処理済みガスを大気中に放出する。

この処理済みガスの排出が終わった段階で、吸着剤充填部(1a)内の吸着剤は再生されており、次の有害成分の吸着に備えられる。

[0060] 上記の吸着剤充填部(1a)における有害成分の分解工程および吸着剤充填部(1b)における有害成分の吸着工程が終了したならば、次いで同様の手順により、吸着剤充填部(1b)における有害成分の分解工程および吸着剤充填部(1c)における有害成分の吸着工程へ移る。

[0061] なお、上記の方法では、1つの吸着剤充填部で有害成分の吸着工程を行うと同時に、もう1つの吸着剤充填部で有害成分の分解工程を行なうようになっているが、有害成分の吸着工程に要する時間と有害成分の分解工程に要する時間、あるいは処理装置に含まれる吸着剤充填部の数、さらにはプラズマ発生装置の能力などに応じて、有害成分の吸着工程が行なわれる吸着剤充填部の数と有害成分の分解工程が行なわれる吸着剤充填部の数を適宜変更することもできる。

[0062] 例えば、図1の処理装置のように吸着剤充填部を3つ有する場合、有害成分の吸着工程が行なわれる吸着剤充填部の数を1つとし、有害成分の分解工程が行なわれる吸着剤充填部の数を2つとすることもできる。

実施例

[0063] 実施例1

試験装置の流路内に3mlのトルエンを注入し、循環ファン(ルーツフロ

ア) を用いて流量 7.12 L/分 で装置内のガスを循環させることにより、トルエンを気化させ、疎水性ゼオライト吸着剤 HiSiV1000 (充填体積 0.54L) に吸着させた。トルエンが完全に吸着されたことを確認した後、流量はそのまま で沿面放電リアクタの電源を ON にして、310~320W の条件で、プラズマを発生させた。

[0064] 沿面放電リアクタで発生したオゾン、および O 、 OH 、 HO_2 などのラジカルを上記の吸着剤に送り、吸着剤の表面に吸着されたトルエンと約 30°C で反応させ、トルエンを CO と CO_2 に分解した。吸着剤を通過したガスは再び沿面放電リアクタに循環させた。

[0065] 循環処理時間に対する装置内の CO 、 CO_2 、 O_2 およびトルエンの各濃度を図 5 に示す。

循環処理時間に伴って、 CO および CO_2 が増加し、 O_2 が減少していることが図 5 からわかる。また、 CO の増加に比べて、 CO_2 の増加が大きいことから、トルエンが効果的に CO_2 に分解されていることが分かる。

一方、トルエンについては、循環処理時間に関係なく、常に 0 ppm であり、吸着剤からのトルエンの脱着は行なわれていないことが確認された。

[0066] 図 6 は、循環処理時間に対する、トルエンから $\text{CO} \times (\text{CO} + \text{CO}_2)$ への転化率を表している。170 分付近で転化率 100% を達成していることが図 6 から分かる。

転化率は、その後も増加し続け、270 分で 139% となった。転化率が 100% を超えたのは、循環流路内にトルエンやトルエンの分解による反応生成物などが付着していたか、あるいは 1 度使用した吸着剤を再生して使用したため、この実施例で使用した吸着剤にトルエンが残留していたためと推測される。

符号の説明

[0067] 1 a、1 b、1 c : 吸着剤充填部
2 : プラズマ発生装置
2 a : 原料ガス導入バルブ

- 2 b : 原料ガス導入管
- 3 a、3 b、3 c、3 a'、3 b'、3 c' : 活性ガス循環経路
- 4 : 活性ガス循環ポンプ
- 5 a、5 b、5 c、5 a'、5 b'、5 c' : 活性ガス循環切換バルブ
- 6 : 排ガス導入バルブ
- 7 : 排ガス導入切換バルブ
- 8 a、8 b、8 c : 排ガス導入管
- 9 a、9 b、9 c : 排ガス排出管
- 10 a : 外気導入バルブ
- 10 : 外気導入管
- 11 a、11 b、11 c : 処理済みガス排出管
- 12 : ガス排出切換バルブ
- 13 : オゾン分解触媒
- 14 : ガス排出バルブ
- 15、15' : 開閉バルブ
- 21 : メッシュ板
- 22 : 吸着剤
- 23 : 放電素子
- 24 : 邪魔板
- 25 : スリット

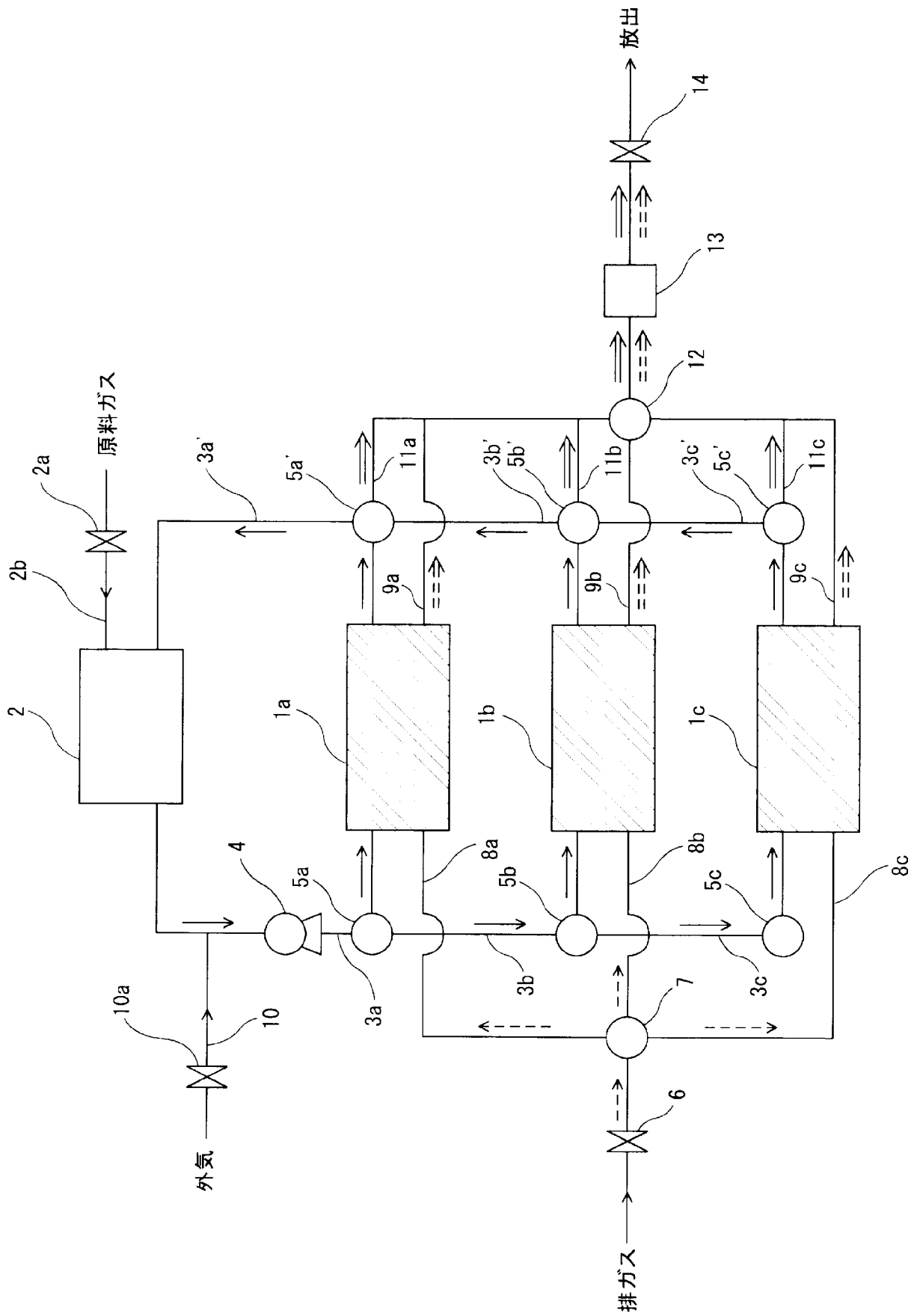
請求の範囲

- [請求項1] 工場などから排出される排ガスの処理方法において、
- (a) 排ガスを吸着剤充填部内の吸着剤と接触させて排ガス中の有害成分を吸着剤に吸着させ、有害成分が吸着除去された後の排ガスを排出する工程、
 - (b) 大気圧非熱プラズマ発生装置により活性ガスを発生させ、該活性ガスを、前記吸着剤充填部および前記プラズマ発生装置を接続するガス循環経路内を循環させ、前記吸着剤に吸着された有害成分と常温～100℃の温度範囲で接触させて、該有害成分を吸着剤表面において分解するとともに、該吸着剤を再生する工程、および
 - (c) 有害成分分解処理後の処理済みガスを前記のガス循環経路から排出する工程
- を含むことを特徴とする、排ガスの処理方法。
- [請求項2] 前記の吸着工程 (a) および前記の分解・再生工程 (b) が、前記ガス循環経路内に設けられたバルブにより切替えることができるように並列的に配置された2つ以上の吸着剤充填部の間で、交互にあるいは順次行なわれる、請求項1に記載の処理方法。
- [請求項3] 前記の分解・再生工程 (b) の終了後、外部の空気を前記のガス循環経路内へ導入して、有害成分分解処理後のガスをガス循環経路から排出することをさらに含む、請求項1または2に記載の処理方法。
- [請求項4] 前記の分解・再生工程 (b) において、分解・再生を行なうべき吸着剤充填部の上流側で、前記活性ガス中のオゾン分解してラジカルを生成させ、分解・再生を促進することをさらに含む、請求項1～3のいずれかに記載の処理方法。
- [請求項5] 前記の分解・再生工程 (b) において、大気圧非熱プラズマ発生装置により活性ガスを発生させる際に、過酸化水素水または水を添加してOHなどのラジカルの生成量を増加させ、分解・再生を促進することをさらに含む、請求項1～4のいずれかに記載の処理方法。

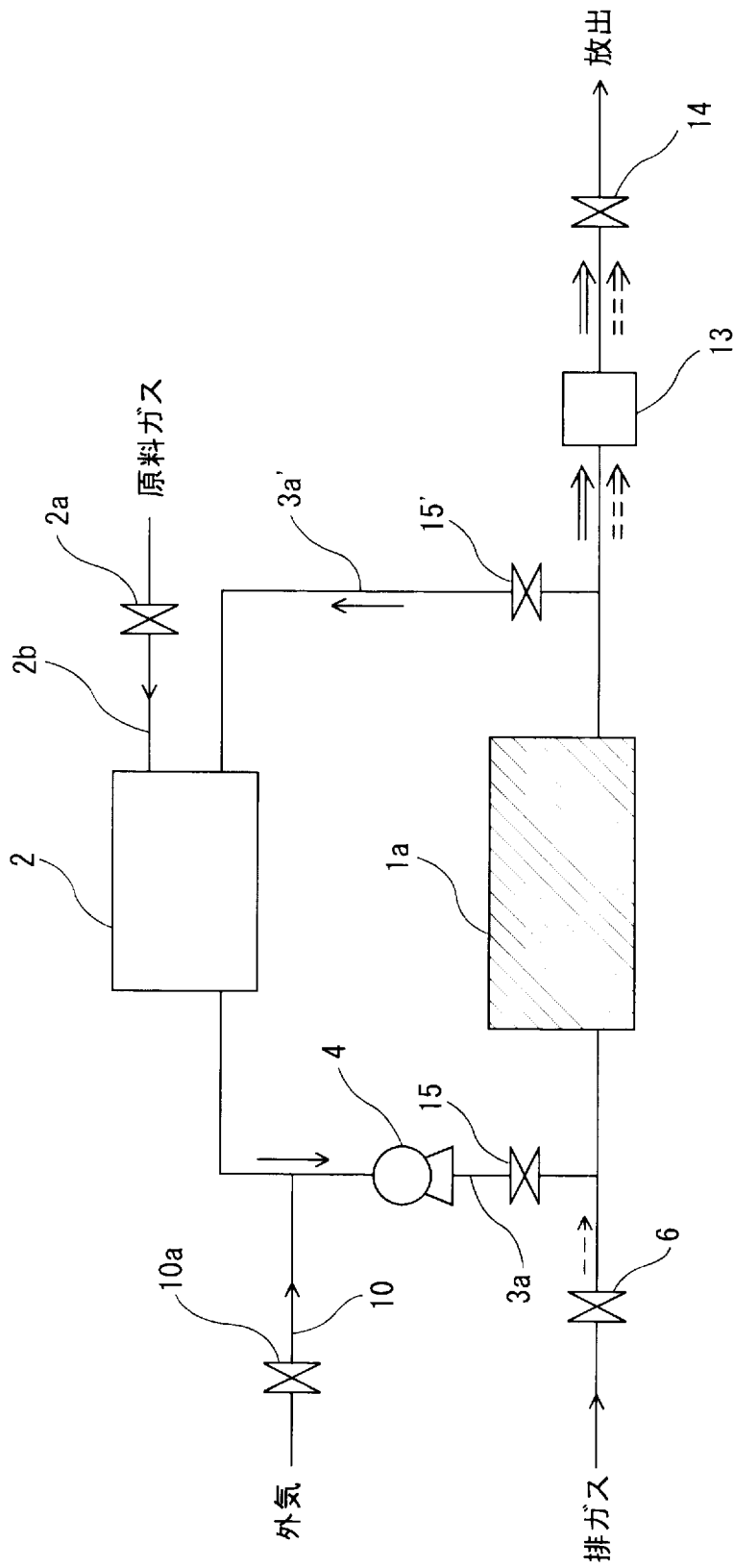
- [請求項6] 前記のガス循環経路から分解処理済みガスを排出する際に、二酸化マンガンを含む触媒により、処理済みガス中のオゾンおよび未分解ガスを除去することをさらに含む、請求項1～5のいずれかに記載の処理方法。
- [請求項7] 前記の排ガスが、トルエン、キシレン、ベンゼン、エチレンオキシドおよび（または）トリクロロエチレンなどの揮発性有機物質を含む、請求項1～6のいずれかに記載の処理方法。
- [請求項8] 前記の吸着剤が、活性炭、ゼオライト、疎水性ゼオライト、ガンマアルミナおよびシリカゲルからなる群から選択される、請求項1～7のいずれかに記載の処理方法。
- [請求項9] 前記の吸着剤が、ペレット形状またはハニカム形状である、請求項1～8のいずれかに記載の処理方法。
- [請求項10] (イ) 排ガス中の有害成分を吸着する吸着剤を充填した吸着剤充填部、
(ロ) 活性ガスを発生させる大気圧非熱プラズマ発生装置、
(ハ) 前記の吸着剤充填部および前記のプラズマ発生装置を接続するガス循環経路、
(ニ) 前記の吸着剤充填部へ排ガスを取り入れる排ガス導入バルブ、および
(ホ) 有害成分吸着除去後の排ガスおよび有害成分分解処理後の処理済みガスを排出するガス排出バルブを備えた排ガス処理装置であって、前記の活性ガスを吸着剤に吸着された有害成分と常温～100℃で接触させて、該有害成分を吸着剤表面で分解するとともに、該吸着剤を再生するようになされていることを特徴とする排ガス処理装置。
- [請求項11] 前記のガス循環経路に接続された吸着剤充填部が、ガス循環経路に設けられたバルブにより切換えできるように、並列的に複数配置されてなる、請求項10に記載の処理装置。

- [請求項12] 前記のガス循環経路に外部空気取り入れ口がさらに設けられている、請求項10または11に記載の処理装置。
- [請求項13] 前記の吸着剤充填部の上流側のガス循環経路内に、オゾンを分解してラジカルを生成する触媒がさらに配置されてなる、請求項10～12のいずれかに記載の処理装置。
- [請求項14] 前記の大気圧非熱プラズマ発生装置またはその上流部に、過酸化水素水または水を供給するラインを設けた、請求項10～13のいずれかに記載の処理装置。
- [請求項15] 前記のプラズマ発生装置が、沿面放電方式、パルスコロナ放電方式、無声放電方式、交流コロナ放電方式、直流コロナ放電方式または矩形波高電圧電源により稼動する、請求項10～14のいずれかに記載の処理装置。

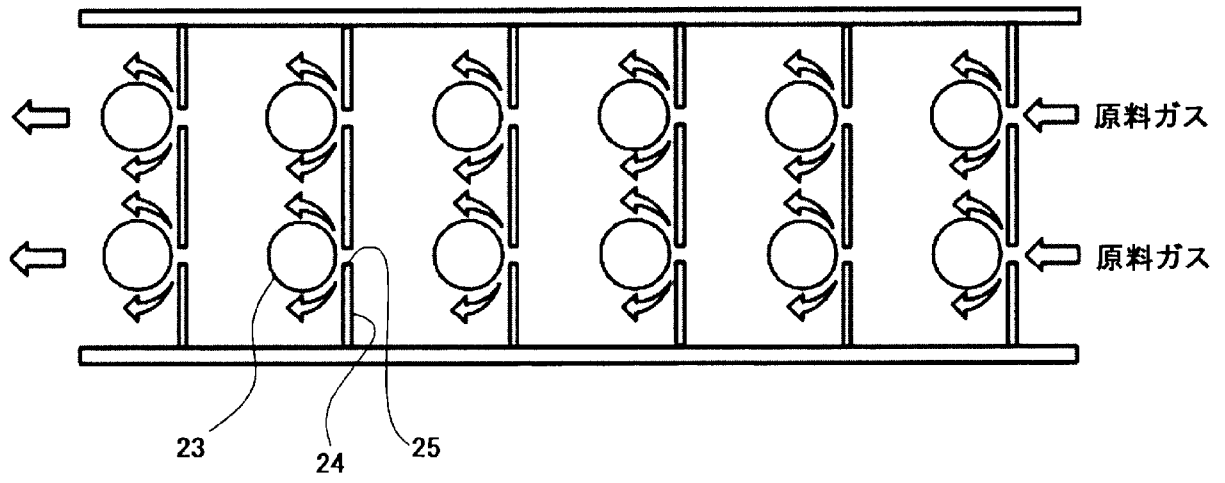
[図1]



[図2]

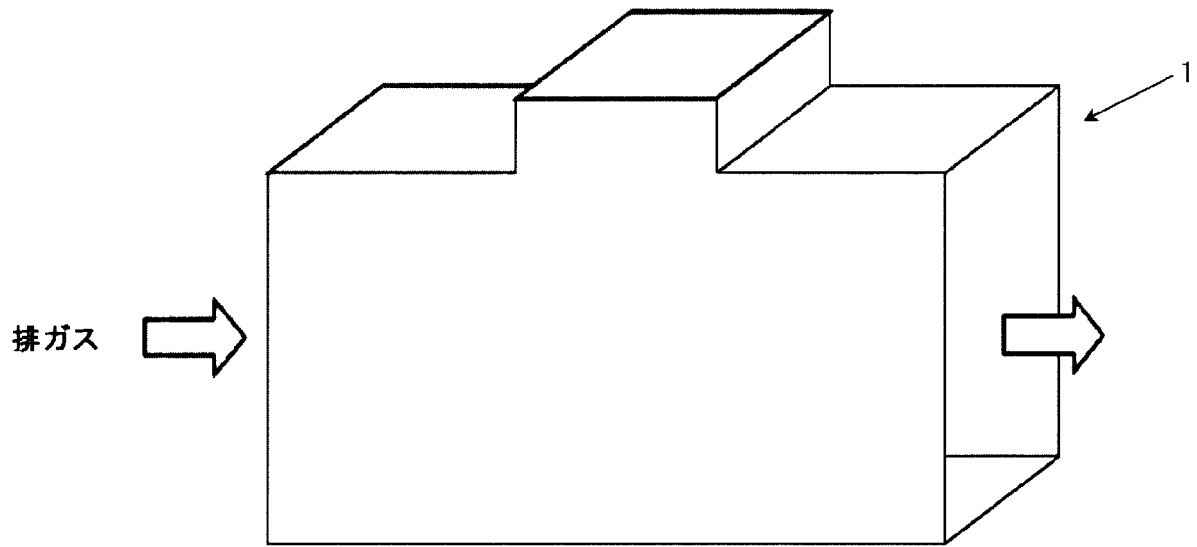


[図3]

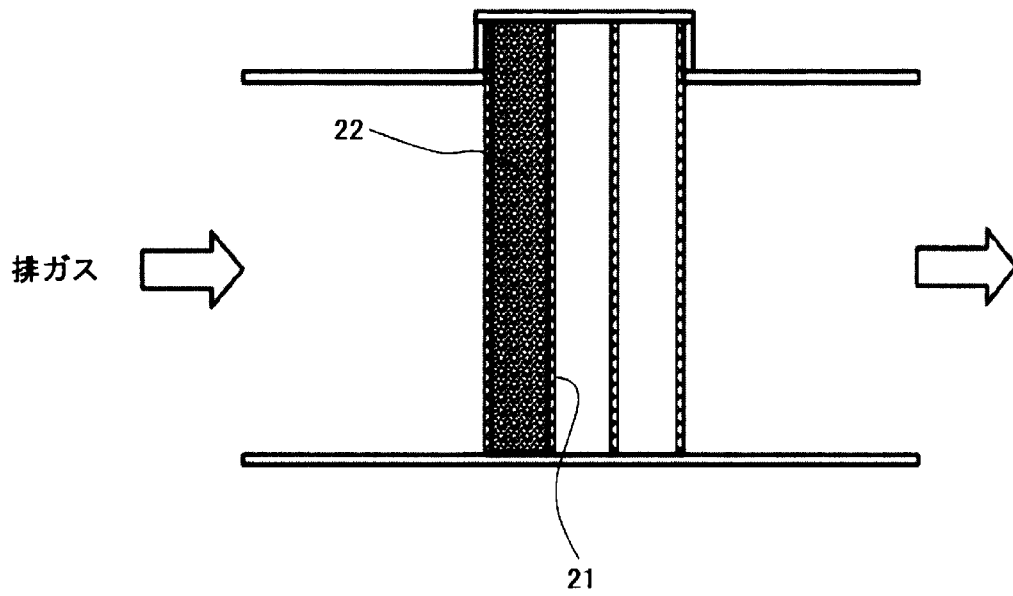


[図4]

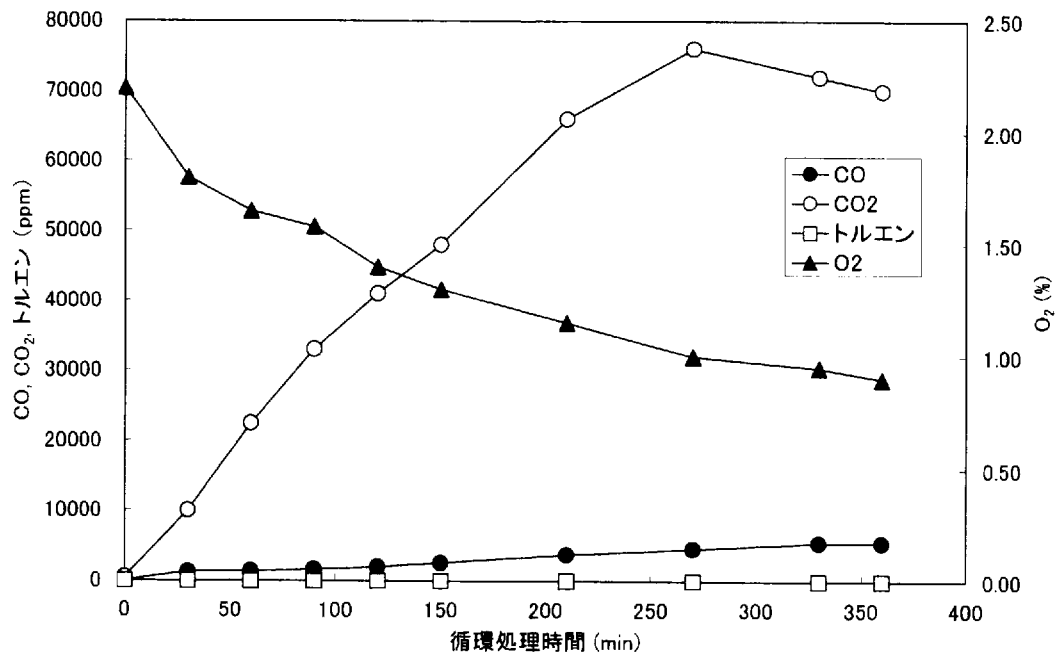
(a)



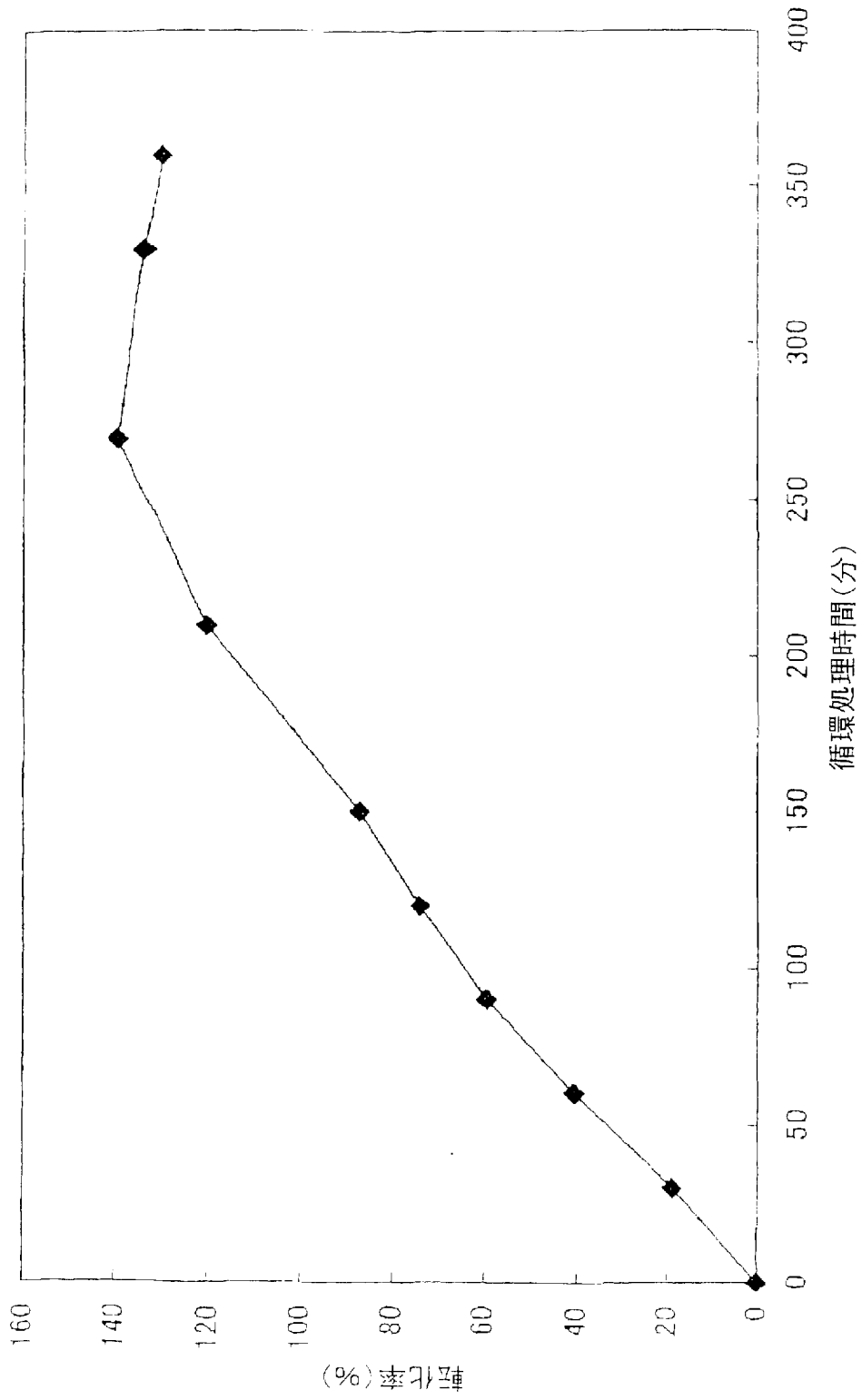
(b)



[図5]



[圖6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/064719

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER B01D53/44(2006.01)i, B01D53/04(2006.01)i, B01D53/81(2006.01)i, B01J19/08(2006.01)i, H05H1/24(2006.01)i		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) B01D53/34-53/96, B01D53/02-53/12, B01J19/08, H05H1/24, A61L9/00-9/22		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2009 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2009 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2009		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2007-61712 A (Seibu Giken Co., Ltd.), 15 March 2007 (15.03.2007), paragraphs [0024] to [0030], [0038] to [0040]; fig. 6 (Family: none)	1, 3, 4, 6-10, 12, 13, 15 2, 5, 11, 14
Y	JP 2005-230627 A (National Institute of Advanced Industrial Science and Technology), 02 September 2005 (02.09.2005), paragraph [0020]; fig. 5 (Family: none)	2, 11
Y	JP 2004-89708 A (Mitsubishi Electric Corp.), 25 March 2004 (25.03.2004), paragraphs [0016], [0053]; fig. 21 (Family: none)	5, 14
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 22 October, 2009 (22.10.09)		Date of mailing of the international search report 02 November, 2009 (02.11.09)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. B01D53/44(2006.01)i, B01D53/04(2006.01)i, B01D53/81(2006.01)i, B01J19/08(2006.01)i, H05H1/24(2006.01)i		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. B01D53/34-53/96, B01D53/02-53/12, B01J19/08, H05H1/24, A61L9/00-9/22		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2009年 日本国実用新案登録公報 1996-2009年 日本国登録実用新案公報 1994-2009年		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2007-61712 A (株式会社西部技研) 2007.03.15, 【0024】 - 【0030】, 【0038】 - 【0040】, 図6 (ファミリーなし)	1, 3, 4, 6-10, 12, 13, 15
Y		2, 5, 11, 14
Y	JP 2005-230627 A (独立行政法人産業技術総合研究所) 2005.09.02, 【0020】, 図5 (ファミリーなし)	2, 11
Y	JP 2004-89708 A (三菱電機株式会社) 2004.03.25, 【0016】, 【0053】, 図21 (ファミリーなし)	5, 14
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列举されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 22.10.2009	国際調査報告の発送日 02.11.2009	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 三崎 仁 電話番号 03-3581-1101 内線 3468	4Q 4435