

平成 30 年 6 月 1 日現在

機関番号：12101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05927

研究課題名(和文) 電力回生によるパルスパワー浄水処理の省エネルギー化

研究課題名(英文) Energy saving of pulsed power water purification treatment by power regeneration circuit

研究代表者

柳平 丈志 (Yanagidaira, Takeshi)

茨城大学・工学部・教授

研究者番号：10323213

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：生活排水や工場排水に含まれる難生分解性の有害物質を除去するため、酸化力の高い10Hラジカルの水中での直接的発生法について検討した。まず、省エネ化および多数の半導体の同期運転のための回路構成を検討し反応電極の駆動に十分な電気出力を得た。これを用いて、高速回転する水中電極にて沿面放電させ、酸化分解処理を行った。

微生物への影響を調べた結果、適度な放電を行えば有害物質は細菌により分解されやすい状態に変化して、細菌が増殖することが分かった。一つの処理槽において、高電圧の処理に引き続いて微生物の助けが得られれば、コンパクトで電力消費の少ない排水処理法を構成しうることが示唆された。

研究成果の概要(英文)：Decomposition of refractory chemicals using advanced oxidation process was investigated using a high voltage pulse generating circuit and a creeping discharge reactor immersed in water. The circuit configuration was examined for energy saving and synchronous operation of many semiconductors, and got a sufficient electric output and sufficient oxidative decomposition with low average power consumption.

The performance of the system is examined considering the influence on the microbes in the reaction vessel so as to convert waste water into biologically safe water. Using discharges of peak power of 600 kW and average power of 90 W for 5 to 30 minutes, the methylene blue pigment oxidatively decomposed to a substance that can be biodegraded by microbes. The number of heterotrophic bacteria during the discharge treatment did not decrease greatly when the treatment time was within 20 minutes, and the viable cell count increased by two orders of magnitude in 5 days after the treatment.

研究分野：パルスパワー工学

キーワード：排水処理 難生分解性物質 微生物 有害物質 省エネルギー

1. 研究開始当初の背景

生活排水や工業排水として様々な化学物質が排出されている。排水の多くは排水処理施設や下水道等を経由しているが、これらで分解・除去できないものは自然環境中に放出されることになる。自然の浄化作用により分解されない難分解性有機物や、内分泌攪乱作用がある化学物質の存在が明らかになるにつれ、河川や湖沼、地下水等への影響、とりわけ生物多様性への影響が懸念されている。

上水道についても、その原水である河川水に含まれる有害化学物質の一部は従来の浄水処理やオゾンを用いた高度浄水処理では十分に除去できないことから、これら有害化学物質の除去に対応できる新しい技術として酸化力の極めて高い OH ラジカルの適用が期待されている。これをエネルギー効率良く発生させる手段としては瞬間的なストリーマ放電が有力であるが、メガワット級の瞬時大電力を扱うことになるので、実用化には回路方式や電力の伝送方式、および放電方式、省エネルギー化など多くの課題がある。

2. 研究の目的

水中に含まれる有害物質を無害化する分解処理装置について、本研究では省エネルギーな処理の実現のための高効率の電源回路方式および放電処理方式を開発することを目的とする。

3. 研究の方法

試作機の設計および動作検証から、実用スケールに拡張するための方策および省エネ化の指針を得る。その上で実験規模を拡大して難分解性化学物質の分解処理を試みる。さらに、生物処理との組み合わせの可能性を探る。

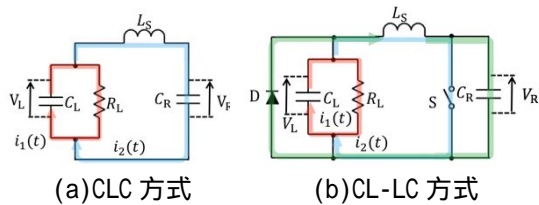
4. 研究成果

(1) 主回路の方式

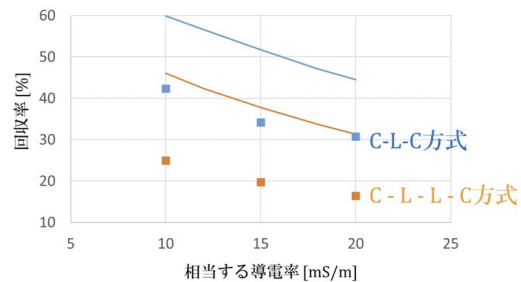
小規模機を設計および試作した結果、メガワット級電源を実現する上で最も重要な主回路の出力電圧の立ち上がり時間を制約している要素としては、巻線を用いたパルストランスの漏れインダクタンスが主因となることが明らかになった。これを考慮することでパルス出力特性を理論的に予測することが可能になった。このパルストランスの巻線構造の違いによる漏れインダクタンスや、特に容量性負荷に対して早い立ち上がりを実現する条件について調べ、1次巻線のターン数や巻線回路構成などによる特性の違いを予測して、試作機でこれを実証した。また、省エネ化のための電力回生を行うインバータ回路方式については、水の静電容量や高圧ケーブルなどの負荷の静電容量に蓄えられたエネルギーを回収容量に直接的に回収する回路トポロジー (CLC 方式) と、負荷容量

からインダクタンスにエネルギーを一旦転送し、そのエネルギーを回収容量に回収する回路トポロジー (CL-LC 方式) の2種類の回収方式 (図1) を検討した結果、前者に比べて後者は負荷静電容量の変動に強いが、水の導電率を考慮すると能力は劣ることが明らかになった (図2)。また後者のインバータ装置の占有体積や経済性を考慮しても前者に比した優位性を認めるに至らなかった。

一方、高出力の電源とするためには多数のパワー素子を高い周波数で同時運転する必要がある。素子の並列部の電流分担のためには巻線を用いた伝送線路トランスを使用した。負荷である水中放電のインピーダンス変化が大きいため、例えば開放・短絡などの極端な場合には電力伝送系にサージ電流、サージ電圧が発生することで半導体素子の耐圧を超えるような予期せぬ電圧が素子に加わり、一部の素子がアバランシェ状態になることが想定される。そのような実用機で想定される電流分担状況についても実験を含めて必要な検討をおこなった結果、アバランシェ状態など極端な動作状況でも伝送線路トランスは電流均衡化の作用を失わないことを明らかにした。



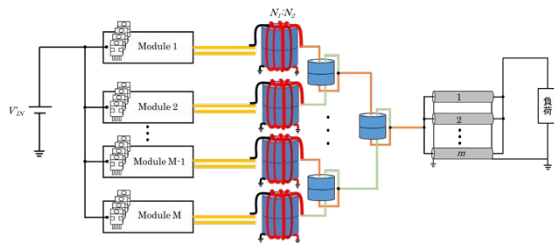
(図1) エネルギーを回収する回路のトポロジー (V_L : 負荷電圧、 V_R : 回収電圧、 R_L : 負荷抵抗、 C_L : 負荷容量、 C_R : 回収容量、 L_S : インダクタンス) 赤線はエネルギーを回収せずエネルギーが失われる場合の電流経路、青線 (次いで緑線) は回収する場合の電流経路。



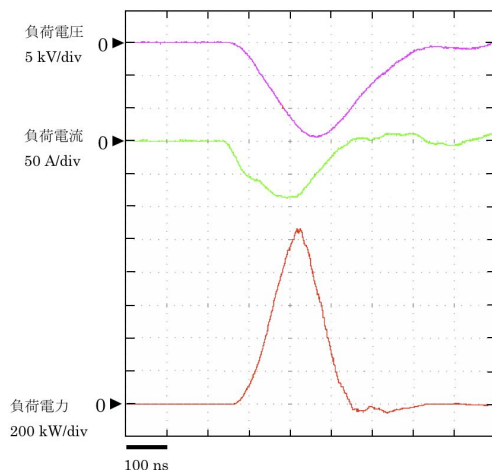
(図2) エネルギーの回収率。実使用条件に近い高電圧ケーブルの長さや、現時点で市販されている SiC 素子による実験およびシミュレーションを行った。青四角は CLC 方式、橙四角は CL-LC 方式での実測値であり、実線は計算値である。実測ではスイッチ素子での寄生振動による損失が加わるため計算値より回収率は悪化した。CLC 方式が優位であることが分かった。

(2) モジュール式電源

これらを踏まえて、SiC-MOSFET を 8 並列した 500 kW クラスのモジュールを製作した。抵抗負荷では出力電圧は理論値と一致した。容量性負荷の場合、トランスのコアの飽和の関係上、電圧が最大振幅に達するよりも前に SiC 素子のゲートをオフしたため理論値よりも低い電圧となった。設計上の最大定格出力は 1 モジュール当たり 700 kW であるが、定格出力の 90 % に相当する 14 kV、44 A を最高周波数 2 kHz で安定して供給することが出来た。さらにモジュールを並列運転する方式について詳細に検討した結果では、図 3 に示すように 1 段で昇圧する方式が最も優れていることが分かった。そこでモジュールを 2 基同期運転することで、容量性負荷に対して 1 MW の出力が安定に得られた (図 4)。しかし、この高出力状態では SiC 素子の動作速度が低下したため、有効な電力回生は行えなかった。主回路については無故障で動作を継続しており、今後 GaN 素子との併用などにより高速化することでメガワット級の小型電源の実現へ道筋がついた。



(図 3) モジュールの並列運転方式 (1 段で昇圧し、伝送線路トランスを適用する方法)

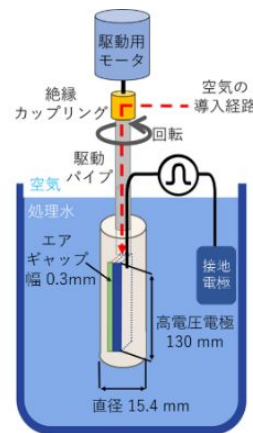


(図 4) 定格試験時の出力波形の例 (負荷 200 500pF) (上から負荷電圧、負荷電流、負荷電力)

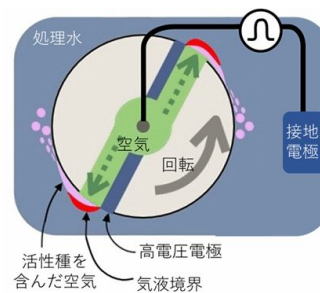
(3) 放電処理装置(リアクタ)

リアクタの形式については、まず処理水の表面近くに設けた電極から処理水に向かうコロナ放電および水面の沿面放電を同時に発生させ、この時に生じる化学活性種を有害物質の酸化促進に利用する形式とし、処理水の電極に対する流速と処理効率との関係を調べた。その結果、流速の増加による処理効

率の増加が認められた。そこで、処理水を噴流として平板にほぼ垂直に衝突させた壁噴流とすることでいっそう高速の流れになることを利用、効率の増加を図った。しかし良い効率を得るに十分な流速と、実用規模の流量とを両立することが容易でないことがわかった。このため、実用上の点から「処理能力を発揮するために十分な流速が得られること」「夾雑物の付着を防ぐため、処理水が通過する部分に突起が無いこと」「化学活性種の原料となる空気が自然に供給されること」「絶縁部を長寿命とするために動作電圧ができる限り低いこと」を主眼として新たに構造を検討した結果、水中に設けた円柱体を水上のモータにより高速回転させ、回転軸上に設けた空気導入経路に沿って空気を導入し、これに隣接した水中電極の表面と空気との境界面で沿面放電させる形式 (図 5、6) とした。



(図 5) 回転電極による投げ込み式リアクタ

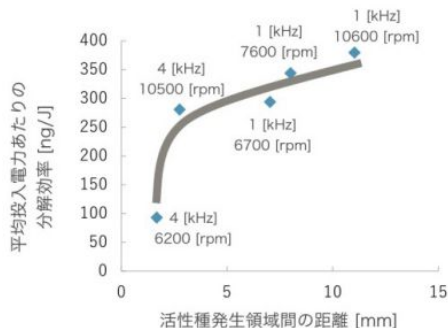


(図 6) 断面図

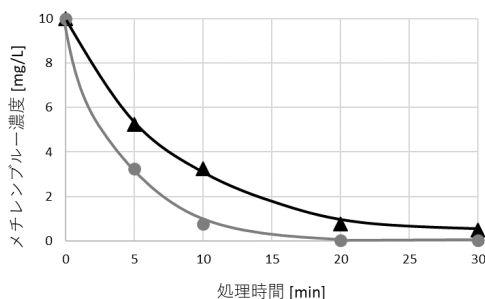
この形式では、モータの回転数とパルス電源の繰り返し周波数の組み合わせにより活性種が発生する位置の間隔が決まるが、これによりメチレンブルーの酸化分解効率が影響されることを確認した (図 7)。

酸化分解の能力を確認するため、難分解性物質および微生物を含む試水として、72 時間以内に採取した河川水に、精製水を加えて 3.2 L とした上で、難分解性のメチレンブルー色素を 10 ppm となるように加えたものを用いた。この時点で試水は濃い青色を呈する。

高電圧は SiC トランジスタ 16 個で発生させた繰り返し周波数 1 kHz、半値幅 230 ns、10 kV または 15 kV の負極性の高電圧パルス（瞬時電力約 600 kW、平均電力 90 W）とした。放電処理によりメチレンブルー色素は徐々に酸化分解されて試水は次第に脱色された（図 8）。パルス電圧 10 kV では 20 分、15 kV では 10 分で試水中のメチレンブルーの 90 % を分解できた。分解効率は約 5 g/kWh であった。また、パルス電圧が低い方が投入電力当たりのメチレンブルー分解効率が高くなった。これは、パルス発生に用いている SiC 素子が、15 kV 出力時にはドレイン定格電流の 80 % を超えて運転しているため出力抵抗が増加したことによると考えられる。他グループによるメチレンブルー分解実験では、水上放電による分解効率 1.8 g/kWh、水中放電による処理では 5 g/kWh などの報告例があり、本研究での見かけの分解効率はこれらと同程度であった。しかし本研究では水の旋回流の成長を防ぐと共に水中の夾雑物の巻き込みを防ぐためにリアクタの回転方向は約 1 秒毎に反転させている。このためパルス電力の通電期間のうち、分解処理に寄与しない期間があり、今後はこれを考慮した電源駆動方式にすれば、リアクタの効率は高くなる。



（図 7）活性種発生位置の間隔と分解効率の測定例。モータ回転数とパルス繰り返し周波数の組み合わせで活性種の発生位置の間隔が決まるが、これによりメチレンブルー処理効率が影響される。



（図 8）放電によるメチレンブルー濃度の変化。パルス電圧 10 kV では 20 分、15 kV では 10 分で試水中のメチレンブルーの 90 % を分解できた。分解効率は約 5 g/kWh であった。

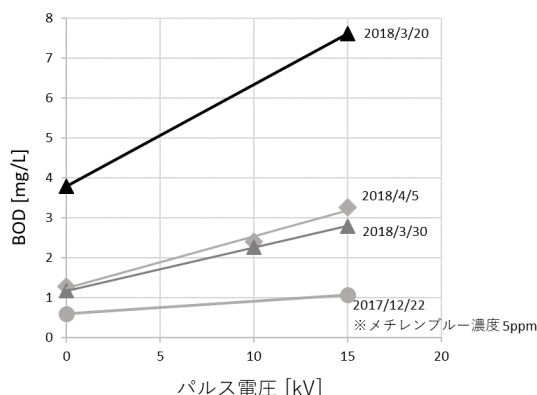
（4）生物処理との組み合わせの可能性

促進酸化法と生物処理の組み合わせをコ

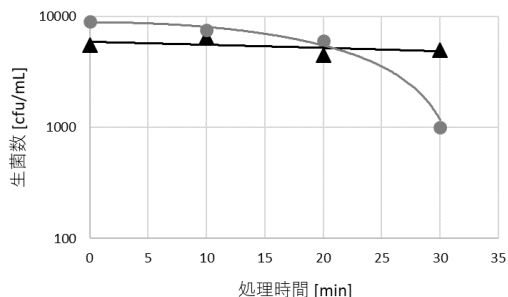
ンパクトな一つの処理槽で行うことを目標として、放電による微生物への影響を調べた。微生物としては環境中の細菌群を対象とした。作用機序は次の二段階を想定している。すなわち、水と空気の境界で沿面放電させることで複数の化学活性種および紫外線が同時に発生すると水中の難分解性有機物の一部が生分解可能な物質へと酸化分解される。これを好気性の微生物が酸素を呼吸しながら栄養源として取り込んで微生物が増殖するというものである。酸化分解により試水の生分解性が向上し微生物が増加すると考えられる。これを確認するため生物化学的酸素要求量（BOD）を測定した。放電処理を開始してから 5 分間経過した時点の試水のサンプルを採り、未反応の酸性物質の反応を終了させ、かつ溶存酸素量を飽和させるためにマグネチックスターラーで 15 分間攪拌した。これをフラン瓶（102 mL）の半量とり、残りの半量を微生物の生存に必須の無機塩類と緩衝液（JIS K 0102 -工場排水試験方法に定める A~D 液）を含む希釈水でフラン瓶を満たしたのち、20 の暗所で 5 日間の酸素消費量を測定した。希釈水の BOD は 1.0 mg/L であった。放電処理では高電圧パルス（ピーク電圧 15 kV または 10 kV）を加えた場合と、対照として無電圧の場合についても実験した。放電処理水の BOD 測定例を図 9 に示す。河川水の採水日をパラメータとしてパルス電圧の違いによる放電処理後の BOD を比較している。全ての実験でパルス電圧を加えたことによる BOD 値の増加がみられる。また、フラン瓶中の従属栄養細菌数を計数したところ 5 日間で 2 桁以上増加していることが分かった。このことから酸素消費は微生物によるものであると確認した。以上のことから放電によりメチレンブルーが微生物によって BOD として測定可能な生分解されやすい物質に酸化分解され、試験環境中の細菌が増殖したものと考えられる。

放電中の生菌数への影響を確認するため、処理中の試水に含まれる従属栄養細菌の生菌数を計数した。これにはオートクレーブ処理された R2A 寒天培地（低栄養培地）による平板表面塗抹法を用いた。サンプルはオートクレーブにより滅菌された精製水により 10 倍段階希釈を行い、6 分画した寒天培地に各希釈倍率とも 20 μ L ずつマイクロピペットで滴下し、20 で 5 日間培養後にコロニーを計数した。30 分の放電処理中に採取したサンプルの従属栄養細菌数（R2A 培地による 20、5 日間培養）を図 10 に示す。パルス電圧 10 kV 30 分の処理では生菌数に変化は見られず、パルス電圧 15 kV では 30 分経過時点で生菌数が減少した。どちらの電圧でもこの時点までにメチレンブルーの脱色が進んでいることから、この処理では高電圧放電による殺菌効果が顕著となるまでの間に酸化分解を進めておくことが可能であった。つまり、細菌が放電の影響により死滅しないリアクタの運

転パターンとすることが可能であり、一つの処理槽において高電圧の処理に引き続いて微生物の助けが得られれば、コンパクトで電力消費が少ない排水処理法を構成しうる可能性が示唆された。



(図9) 放電による生物化学的酸素要求量 (BOD) の増加。パルス電圧を加えたことによる BOD 値の増加がみられる。また、フラン瓶中の従属栄養細菌数を計数したところ 5 日間で 2 桁以上増加していることが分かった。このことから BOD 値の測定に用いた 5 日間の酸素消費は微生物によるものであり、放電によりメチレンブルーが微生物によって BOD として測定可能な生分解されやすい物質に酸化分解され、試験環境中の細菌が増殖したものと考えられる。



(図10) 放電による生菌数の減少の測定例。パルス電圧 10 kV 30 分の処理では生菌数に変化は見られず、パルス電圧 15 kV では 30 分経過時点で生菌数が減少した。この時点までにメチレンブルーの脱色が進んでいることから、この処理では高電圧放電による殺菌効果が顕著となるまでの処理時間に酸化分解を進めることが可能であった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 4 件)

松林 裕士、柳平 丈志「投げ込み式放電リアクタによる難分解性物質の分解と細菌数の変動」(第 17 回世界湖沼会議)(国際学会)(2018 年、茨城県土浦市)

柳平 丈志、松林 裕士:「気液境界のパル

ス沿面放電が微生物の酸素消費に及ぼす影響」平成 29 年度 電気学会東京支部茨城支所研究発表会(2017 年、茨城県日立市)

松林 裕士、柳平 丈志:「回転電極による気液沿面パルス放電の発生」平成 29 年度 電気学会東京支部茨城支所研究発表会(2017 年、茨城県日立市)

平野貴広、佐藤秀斗、松林裕士、柳平丈志:「回転式リアクターを用いたパルスパワー排水処理」第 24 回 電気学会東京支部茨城支所 研究発表会(2016 年 12 月 17 日、茨城県日立市)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

「パワーデバイスの多数同期運転と電力回生によるメガワット級パルス電源の開発」

<http://pulsedpower.ee.ibaraki.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

柳平丈志 (YANAGIDAIRA, Takeshi)

茨城大学・理工学研究科(工学野)電気電子システム工学領域・教授

研究者番号: 10323213