

平成 21 年 5 月 28 日現在

研究種目：基盤研究（C）  
 研究期間：2007～2008  
 課題番号：19510092  
 研究課題名（和文） スーパークリーンディーゼルのためのプラズマ排ガス浄化装置内の反応過程の総合的解明  
 研究課題名（英文） Interdisciplinary Study on Chemical Reactions of Exhaust Gas Clean-up Processes in Nonthermal Plasma Reactors for Super Clean Diesel Engines  
 研究代表者  
 大久保 雅章（OKUBO MASAOKI）  
 大阪府立大学・大学院工学研究科・教授  
 研究者番号：40223763

研究成果の概要：近未来のスーパークリーンディーゼルエンジンのためのプラズマ排ガス浄化装置内の反応過程の総合的解明を行った。「非熱プラズマ DPF 再生」, 「非熱プラズマ脱着 NOx 還元」の二要素に関する研究開発を行い, プラズマによる環境浄化に関する様々な学問的知見を蓄積し, 成果を統合してディーゼル排気中の主要有害成分 (NOx および微粒子など) を, 無害化といえる低レベルまで貴金属触媒を使用しないで同時低減する処理システムの反応過程を解明した。

## 交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2008年度	1,600,000	480,000	2,080,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境技術, 環境材料

キーワード：環境技術, 大気汚染防止・浄化, プラズマ・核融合, 流体力学, 環境保全, ディーゼルエンジン, 排ガス処理, 窒素酸化物

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 日本及び海外で, プラズマを利用したディーゼル排ガス浄化システムの研究を行っている主要メーカーや大学は数多いが, 特にアメリカの大手自動車部品メーカー Delphi 社及び North Western 大学から, プラズマを利用した DPF 再生のコンセプトが 2000 年に提案された。そのため, この方面の研究が活発化した。そのために, 現在までにプラズマを利用した DPF の再生に関する実験データを公表しているグループは我々を除き数少ない。

(2) 本研究のアイデアは国内の先端企業と我々のグループの共同研究から生まれてきたものであるが, 成功すればプラズマによるディーゼル排ガス後処理技術のブレークスルーとして, 全くユニークなもので, プラズマ環境改善技術における新しい分野, 手法への展開も期待でき, 産業界のみならず学会で学術的にも注目を浴びることを確信している。以上が研究開始当初の背景である。

## 2. 研究の目的

(1) 本研究は、ハイブリッドエンジンに匹敵する燃費をもつ、近未来のスーパークリーンディーゼルエンジンのためのプラズマ排ガス浄化装置内の反応過程の総合的解明を行うものである。常温非熱・非平衡プラズマを利用することを特徴とする。後述する「A. 非熱プラズマDPF再生装置」、「B. 非熱プラズマ脱着NOx還元装置」の二つのシステム要素に関する研究開発を行い、プラズマによる環境浄化に関する様々な学問的知見を蓄積し、成果を統合してディーゼルエンジン排気中の主要有害成分である窒素酸化物(NOx)、粒子状物質(PM, Particulate Matter)、炭化水素(HC, Hydrocarbon)、一酸化炭素(CO)を、無害化の低レベルまで貴金属触媒を使用しないで同時低減する新型プラズマ後処理システムの反応過程の総合的解明を進め、地球環境の保全に資することを目的とする。

(2) 浄化システムの原理：ディーゼルエンジンまたは燃焼炉からの微粒子PMおよびNOxを含む排気ガスを、「A. 非熱プラズマDPF再生装置」でPMを除去し、「B. 非熱プラズマ脱着NOx還元装置」により、一対の吸着コラムで乾式でNOxを除去する。このシステムは、一方のコラムがNOxを吸着している間、他方のコラムに低酸素プラズマを印加して吸着されたNOxを急速に還元するものである。以上の装置とプロセスにおける化学反応の総合的解明を行うことを目的とする。

(3) 粒子状物質除去と数値シミュレーション：ディーゼルエンジンから排出される微粒子状物質(PM)は、大気汚染物質の中で最も深刻であると言われ、法規制が急激に厳しくなっており、除去のためのセラミックDPF(Diesel particulate Filter)の開発が盛んになってきている。このDPFの内部にPMが大量に堆積すると、排気系に背圧がかかり、エンジン性能を低下させる。そのため、PMを除去してDPFを再生する技術開発が進められている。本研究ではこの再生をプラズマ技術で行うことを特色とし、数値シミュレーションで最適反応の解明を行うことを目的とする。

(4) ディーゼルエンジン浄化装置に関する現状を打破できる、電子温度の極端に高い非平衡プラズマ技術を利用した革新的高効率後処理システムP-DPNR(Plasma assisted Diesel Particulate and NOx Reduction)を提案する。その原理は申請者らが発明したプラズマDPF再生法とプラズマ脱着の原理を基礎とする。化学反応過程を詳細に究明することを目的とする。

## 3. 研究の方法

(1) 非熱プラズマDPF再生：セラミックディーゼル微粒子フィルタ(Diesel Particulate Filter, DPF)に捕集された微粒子の非熱大気圧プラズマによる新規な燃焼再生方式を実証、最適化する。この方法では、低温プラズマで励起されたNO<sub>2</sub>、オゾンや負イオンラジカルクラスタをDPFに注入し、ディーゼル微粒子(Diesel Emission Particle, DEP)を、常温で燃焼除去しようとするものである。

### 進め方

① リアクターの最適化：DPFハニカム内部で非熱プラズマを形成するのに適した電極構造をもつDPFプラズマリアクタを何種類か試作し、ハニカム内の放電状態の観測(写真、ビデオ撮影)を行う。一様な放電が得られることを期待する。

② プラズマパラメータの計測：電子温度 $T_e$ 、電子数密度 $n_e$ をできるだけ大きくし、エネルギー効率が最も高くなるリアクター形状、電極形状を決定する。 $T_e$ や $n_e$ の測定には探針法または現有の分光装置による分光法による。また、実験だけでなく数値シミュレーション(CFD-ACE+を使用)を用いたプラズマ数値シミュレーションによる検討も行う。現状SED=50 kJ/Nm<sup>3</sup>程度であるエネルギー効率を10 kJ/Nm<sup>3</sup>以下に低減することを期待する。

③ 直接再生実験：1, 2の結果を基礎として、現有のパルスコロナ高電圧装置(40kV, 1kHz)により非熱プラズマをDPF内部に発生させ、コンパクトな装置により100°C以下の低温でDPFを再生する方法の確証実験とDPF再生時間の短縮(1/20)を目指す。

(2) 非熱プラズマ脱着NOx還元：ディーゼルエンジンの運転モード(燃料噴射モード)を切り替え、酸素リッチな状態ではNOxを含む排ガスを一度吸着させ、その後、酸素量が少なくHC, COの多い状態へエンジン運転モードを切り替え、プラズマを印加してNOxを脱着・還元させ、同時にHC, COを酸化無害化する。この方法により、低濃度で酸素を多量に含む排気ガス処理を簡単な装置で触媒や、付加的な処理を行わず乾式で高効率に行うことができる。

### 進め方

① プラズマ脱着実験：疎水性ゼオライトにより、吸着剤ハニカムを試作し、ハニカム内部で非熱プラズマを形成するのに適した電極構造を検討する。並行して、ディーゼルエンジン模擬排ガスおよび実排ガスを用いてプラズマ脱着実験を行う。500 ppm程度のNOxに対して、吸着およびプラズマ脱着を繰り返

し、連続的に行えることを期待する。

②プラズマ脱着還元連続実験：プラズマ脱着により発生したNO<sub>x</sub>をさらにプラズマにより還元除去する実験を行う。ガスとしては上と同様に模擬排ガスまたはディーゼルエンジン実排ガスを用いる。脱着したNO<sub>x</sub>を95%以上の効率で除去できるようにシステムの最適化を行う。

(3) 最終年度には P-DNPR を試作し、実ディーゼルエンジン排ガスを対象とした試験研究を行う。

#### 4. 研究成果

(1) 非熱プラズマ DPF 再生セラミックディーゼル微粒子フィルタに捕集された微粒子の非熱大気圧プラズマによる新規な燃焼再生方式を実証、最適化した(図1参照)。また、沿面放電素子を用いた効率の良いプラズマリアクタを試作し、最適化を行った。



図1 再生前後のDPFの断面写真

(2) プラズマパラメータの計測とシミュレーションを行い、電子温度、電子数密度をできるだけ大きくするように設計し、エネルギー効率が最も高くなるリアクター形状、電極形状を実験で決定した。図2はその1例である。以上の結果を基礎として、コンパクトな装置により従来概念では困難と思われている100℃以下の低温でDPFを再生する方法の確証実験によりDPF再生時間の短縮を実現した。

(3) NO<sub>x</sub>処理ではエンジンの運転モードを切り替え、酸素リッチな状態ではNO<sub>x</sub>を含む排ガスを一度吸着させ、その後、酸素量が少なくHC、COの多い状態へエンジン運転モードを切り替え、プラズマを印加してNO<sub>x</sub>を脱着・還元させ、同時にHC、COを酸化無害化する新規な方法

を実証した。図2に微粒子とNO<sub>x</sub>を同時に除去できた結果を示す。横軸は経過時間、縦軸がガス濃度で、 $t>0$ でプラズマを印加後、NOは還元され、PMが燃焼されCO<sub>x</sub>の濃度が増加している。

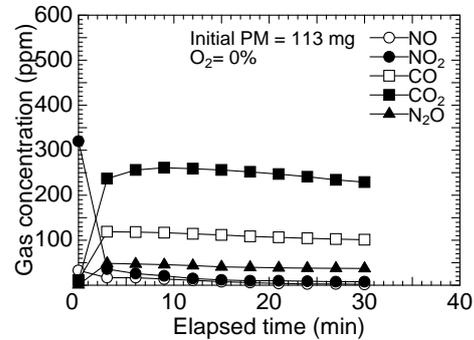
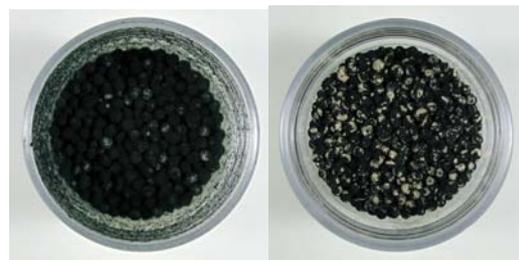


図2 各種ガス濃度の時間変化

実験前後のPM燃焼の写真を図3に示す。充てん剤の間に付着しているディーゼル微粒子が30分の間に確かに燃焼除去



(a) 印加前 (b) 30分印加後

図3 プラズマ印加後のPM燃焼の写真  
(O<sub>2</sub> = 0%, 初期PM質量 = 113 mg)

されていることが確認できる。500ppm程度のNO<sub>x</sub>に対して、吸脱着を繰り返して、連続的に行えることを実証し、ディーゼルエンジン実排ガスを用いて、脱着したNO<sub>x</sub>を高い効率で除去できるようにシステムの最適化を行うことに成功した。

(4) 以上得られた成果等の詳細は、国内外の主要な学会や学術雑誌に発表した。その質量、インパクトとも世界中の他機関の追随を許さず、世界最高水準のプラズマ環境技術拠点として本学本研究グループが認められつつある。レアメタル触媒を使用しない環境改善技術として将来性があり、今後の展望は極めて明るい。

## 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 10 件)

- ① 山本俊昭, 大久保雅章, 黒木智之, 吸着・脱着・低温プラズマを用いた経済的高効率ガス処理, 静電気学会誌, 33, 1, pp. 51-55 (2009-2), 査読有.
- ② 大久保雅章, 大気圧低温プラズマ複合技術を利用した大気・水環境保全技術, プラズマ・核融合学会誌, 84, 2, pp. 121-134 (2008-2) 査読有.
- ③ M. Okubo, N. Arita, T. Kuroki, K. Yoshida and T. Yamamoto, Total Diesel Emission Control Technology Using Ozone Injection and Plasma Desorption, Plasma Chemistry and Plasma Processing, Springer, 28, 2, pp. 173-187 (2008-4) 査読有.
- ④ 大久保雅章, 大阪府立大学 大学院工学研究科 機械系専攻 環境保全学研究グループ (研究グループ紹介), 電気学会論文誌A編, 128, 7, 501 (2008-7) 査読無.
- ⑤ M. Okubo, K. Yoshida and T. Yamamoto, Numerical and Experimental Analysis of Nanosecond Pulse Dielectric Barrier Discharge-Induced Nonthermal Plasma for Pollution Control, IEEE Transactions on Industry Applications, 44, 5, pp. 1410-1417 (2008-9) 査読有.
- ⑥ K. Yoshida, M. Okubo, T. Kuroki and T. Yamamoto, NO<sub>x</sub> Aftertreatment Using Thermal Desorption and Nitrogen Nonthermal Plasma Reduction, IEEE Transactions on Industry Applications, 44, 5, pp. 1403-1409 (2008-9) 査読有.
- ⑦ T. Yamamoto, A. Kajimoto, M. Okubo, T. Kuroki and K. Yoshida, PM and NO<sub>x</sub> Removal for Diesel Engine Emission Using Ozonizer and Chemical Hybrid Reactor, IEEE Transactions on Industry Applications, 44, 5, pp. 1431-1435 (2008-9) 査読有.
- ⑧ K. Yoshida, M. Okubo and T. Yamamoto, Distinction between Nonthermal Plasma and Thermal Desorptions for NO<sub>x</sub> and CO<sub>2</sub>, Applied Physics Letters, 90, 131501 (3 pages) (2007-5) 査読有.
- ⑨ K. Yoshida, M. Okubo, T. Kuroki and T. Yamamoto, NO<sub>x</sub> Aftertreatment System for Diesel Engine Emission Using Thermal Desorption and Plasma Reduction Combined Process, Proceedings of 2007 JSAE/SAE International Fuels and Lubricants

Meeting in Kyoto Japan, SAE, CD-ROM, SAE Paper, No. 2007-01-1915 (2007-7) 査読有.

- ⑩ 山本俊昭, 大久保雅章, 黒木智之, 吉田恵一郎, プラズマ・ケミカル複合プロセスによるごみ焼却炉排気浄化のパイロットプラント試験(NO<sub>x</sub>及びダイオキシンの同時処理), 日本機械学会論文集, 73B, 732, pp.1767-1778 (2007-8) 査読有.

[学会発表] (計 18 件)

- ① 川崎晋平, オゾンを利用したDPF再生によるディーゼルエンジン排ガス中のPM処理, 日本機械学会関西支部 第84期定時総会講演会, 講演論文集, 13-1 (2009年3月16日, 東大阪).
- ② 甘中洋平, 吸着剤を用いた非平衡プラズマと排気ガス再循環によるディーゼル排気ガスNO<sub>x</sub>後処理技術, 第84期定時総会講演会, 講演論文集, 13-2 (2009年3月16日, 東大阪).
- ③ M. Okubo, Recent Experiments with Diesel Particulate and NO<sub>x</sub> Reduction Systems Based on Nonthermal Plasma Combined Processes, Proceedings of the 6th International Symposium on Non-thermal Plasma Technology for Pollution Control and Sustainable Energy Development, CD-ROM 4 pages (Taipei, Taiwan, May 12-16, 2008).
- ④ M. Okubo, Pilot-scale Experiments with Diesel Particulate and NO<sub>x</sub> Aftertreatment Systems Using Nonthermal Plasma Hybrid Processes, Proceedings of Fourth International Conference on Flow Dynamics (Tohoku Univ. Global COE Program) OS2-6, 2 pages (Sendai, November 17-19, 2008).
- ⑤ 大久保雅章, 大気圧低温プラズマ複合プロセスを利用した大気環境保全と機能性材料創成, 日本機械学会No. 08-42講習会 - 環境浄化・医療バイオ応用に向けた新しいプラズマ技術 -, 日本機械学会, 環境工学部門企画, 講演会資料, pp. 1-10 (2008年6月13日, 東京) (招待).
- ⑥ 吉田恵一郎, 非熱プラズマ還元とNO<sub>x</sub>再循環を組み合わせたディーゼルエンジン排気ガス後処理システム (パイロット試験によるNO<sub>x</sub>還元効率120g/kWhの達成), 第18回環境工学総合シンポジウム2008, 講演論文集, pp. 266-267 (2008年7月10日, 東京).
- ⑦ S. Kawasaki, PM Removal in Exhaust Gas Emitted from Diesel Engine with Ozone Injection DPF Regeneration, 第18回環境工学総合シンポジウム2008, 講演論文集, pp. 305-307 (2008年7月11日, 東京)

- ⑧ 大久保雅章, 大気圧低温プラズマ複合プロセスを利用した大気環境保全技術 (招待), 東京工業大学総合理工学研究科, 化学環境工学専攻, 特別講演会 (2008年7月30日, 横浜) (招待)
- ⑨ 中條登, 非熱プラズマによる吸着剤の再生とNO<sub>x</sub>還元—電極形状の最適化—, 第32回静電気学会全国大会, 講演論文集, pp. 207-208 (2008年9月19日, 大分).
- ⑩ 大久保雅章, 磁性流体と環境改善プラズマ—研究の接点を探る—, 磁性流体連合講演会, 講演論文集, pp. 1-4 (2008年12月12日, 京田辺) (特別講演).
- ⑪ M. Okubo, Recent Experiments with Diesel Particulate and NO<sub>x</sub> Reduction Systems Based on Nonthermal Plasma Combined Processes, The 18th International Symposium on Plasma Chemistry (ISPC18) CD-ROM, 6 pages (Kyoto, Japan, August 26-31, 2007).
- ⑫ A. Mihalcioiu, Design Factors for NO<sub>x</sub> Reduction in Nitrogen Plasma, 2007 IEEE Industry Applications Society Annual Meeting, CD-ROM, 4 pages (New Orleans, USA, September 23-27, 2007).
- ⑬ K. Yoshida, NO<sub>x</sub> Aftertreatment System for Diesel Engine Emission Using Thermal Desorption and Plasma Reduction Combined Process, 2007 IEEE Industry Applications Society Annual Meeting, CD-ROM, 6 pages (New Orleans, USA, September 23-27, 2007).
- ⑭ M. Okubo, Simultaneous Reduction of Diesel Particulate and NO<sub>x</sub> Using Oxygen-Poor Nonthermal Plasma Application, 2007 IEEE Industry Applications Society Annual Meeting, CD-ROM, 7 pages (New Orleans, USA, September 23-27, 2007).
- ⑮ 大久保雅章, 低温プラズマ複合プロセスに基づく新しい環境保全技術, 日本学会会議, 環境工学連合講演会, 論文集, 3 pages (2007年4月24日, 東京) (招待)
- ⑯ 吉田恵一郎, 熱脱着・非熱プラズマ還元を用いたディーゼル排気ガスNO<sub>x</sub>の後処理システム, 第31回静電気学会全国大会講演論文集, pp. 127-130 (2007年9月10-11日, つくば).
- ⑰ 大久保雅章, 大気圧低温プラズマ複合技術を利用した大気・水環境保全技術, 真空トピックス, 環境・バイオ分野へのプラズマの応用, 日本真空協会9月研究例会, 講演論文集, 11 pages (2007年9月12日, 東京) (招待).
- ⑱ 大久保雅章, ナノ秒パルスコロナ放電により誘起される環境保全非熱プラズマの数値シミュレーション, 日本機械学会流

体工学部門講演会, 講演論文集, p. 109 (2007年11月17-18日, 東広島).

〔図書〕 (計1件)

- ① 大久保雅章他 (分担執筆), 日本機械学会, 創立110周年記念出版, 環境工学: その展開と今後の飛躍, 大気・水環境保全技術の展開と今後の飛躍, pp. 96-100 (2007-10).

〔産業財産権〕

○出願状況 (計1件) (テーマ関連の特許)

名称: 排気ガス処理装置

発明者: 吉田恵一郎, 大久保雅章

権利者: 大阪府立大学, 科学技術振興機構

種類、番号: PCT/JP2008/065441

出願年月日: 2008年8月28日

国内外の別: 外国

〔その他〕

テーマ関連の報道状況:

- ① 「船舶のディーゼル排ガスをプラズマ利用し浄化, ダイハツディーゼル・大阪府立大など」, 日本経済新聞, 2007年6月22日.

企業講習会や展示会による成果提供:

- ① 大久保雅章, 黒木智之, 大気圧低温プラズマ複合技術による大気・水環境保全と表面処理, イノベーションジャパン2007, 展示PK-7 (2007年9月12日, 東京).
- ② 大久保雅章, プラズマ複合プロセスによるディーゼル微粒子・NO<sub>x</sub>の浄化技術 (株)技術情報協会講習会, クリーンディーゼルの開発最前線 (2007年9月19日, 東京).
- ③ 大久保雅章, 大気圧プラズマ技術の基礎と応用, (株)日本テクノセンターセミナー (2008年9月10-11日, 東京).

ホームページ等:

<http://www.me.osakafu-u.ac.jp/plasma/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

大久保 雅章 (OKUBO MASA AKI)

大阪府立大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号: 40223763

### (2) 研究分担者

黒木 智之 (KUROKI TOMOYUKI)

大阪府立大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号: 00326274