

機関番号：54502

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2008～2010

課題番号：20560285

研究課題名(和文) 大気圧放電プラズマを利用した燃焼排ガスの処理

研究課題名(英文) Treatment of combustion gas by atmospheric pressure discharge plasma

研究代表者

藤井 富朗 (FUJII TOMIO)

神戸市立工業高等専門学校・電気工学科・名誉教授

研究者番号：80099837

研究成果の概要(和文)：

種々の電極配置で水面コロナの放電特性とNO<sub>x</sub>処理に有効なオゾンおよびラジカルの生成条件を検討し水平に配置したノコ刃電極で正コロナが優れていることを確認した。高速二段式電気集塵装置(ESP)と水面コロナリアクタを組み合わせた複合リアクタによる排ガスの臭気、NO<sub>x</sub>、ダストの総合処理実験を行い、最適処理条件を検討した。臭気とダストは広範囲の流速で高効率処理されるが、NO<sub>x</sub>処理については水面コロナ部分でガス滞留時間を大きくする必要があり、新たな知見が得られた。

研究成果の概要(英文)：

Basic characteristics of corona discharge over water surface were investigated with various electrode geometry. The positive corona showed the better characteristics to induce the good condition for the NO<sub>x</sub> treatment reactions. Contaminated air cleaning test was carried out with ESP and water reactor. In case of the ESP with water reactor model, dust and odorant were well removed but gas flow speed (resident time) was an important factor to control the NO and NO<sub>x</sub> removal rate.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2009年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2010年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：放電工学、静電気応用

科研費の分科・細目：電気電子工学 5101 電力工学・電力変換・電気機器

キーワード：放電プラズマ、コロナ放電、水面コロナ、電気集塵、排ガス処理

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 燃焼装置やエンジンから排出されるNO<sub>x</sub>、SO<sub>x</sub>、粒子状物質(ダスト)等の大気汚染物質は、直接的な健康被害や生態系、気候への影響が心配されている。特に、東アジア地域では最近の急速な経済成長に伴う排出量の増加に対して、CO<sub>2</sub>と共にその抑制と有効な対策が求められている。わが国では主に大規模ボイラを対象とした厳しい規制が

あり、排煙脱硝、脱硫装置が広く普及している。これらの従来型排ガス処理装置は、設置および運転コストの面で発展途上国では容易に普及しにくい状況にある。また、わが国でも中小ボイラやエンジン排ガスなどの対策が課題となっており、燃焼方法の改善や燃焼効率の向上による汚染物質の排出抑制と、簡易で有効な排ガス処理技術の開発が要請されている。また、最近では道路トンネルや

地下駐車場等の低濃度の汚染処理について、従来のファンによる循環排気では排気口周辺の環境悪化、フィルタではサブミクロン粒子の取りこぼしやメンテナンス費用の面で問題がある。

(2) 研究代表者らは、水面上のコロナ放電を利用した燃焼排ガス中の NOx 処理の方法を提案し、特定の条件のもとで優れた特性が得られること確認している。この方法は、リアクタの構造が簡単で、圧力損失が小さいため高濃度から低濃度までの広範囲の空気浄化に有効であると考えられる。これまでの研究成果を進展させて、実用化を視野に入れたリアクタの形状や電極の改良、最適放電条件、処理水の無害化二次処理の方法を検討する。さらに、高速二段式電気集塵装置との組み合わせによる燃焼排ガスの総合処理を含め、処理効率の向上と処理コストの検証も行う必要がある。

## 2. 研究の目的

(1) 大気圧放電プラズマ中で生成する各種ラジカルと、放電空間のプラズマ化学反応に関する最近の研究から、NOx 処理のプロセスでオゾンと OH ラジカルの存在が重要であることが明らかになってきている。我々は、水面上方に配置した突起電極と水中電極に高電圧を印加して発生するコロナ放電（水面コロナ）について種々の条件で放電の特性を調べた結果、用いる水の導電率や水中の電極形状に依存せず安定した放電と、NOx 処理に有利な条件が得られることを確認している。

特に、正コロナ放電は、放電空間にオゾンと OH ラジカルを有効に生成し燃焼排ガス中の NO を水溶性の NO<sub>2</sub>、NO<sub>3</sub> へ酸化すると共に、水面に射突するコロナ風がこれらの水への溶解を促進して NOx を硝酸または亜硝酸として効率よく回収除去できる。硝酸を含む処理水は、アンモニア等で中和して簡単に無害化できる等のメリットもある。燃焼排ガス中の SO<sub>x</sub> についても同じプロセスで処理ができると考えられる。また、フィルタ等で捕集の困難な微小な粒子状物質（サブミクロンダスト）は、生成イオンによる荷電によって水面に集塵除去されるため、燃焼排ガスの総合処理が可能である。すでに、試作した水面コロナリアクタを用いたディーゼルエンジン排ガスの小容量処理実験で NOx とダストが効率良く処理できることを確認している。水面コロナリアクタは、圧力損がなく直流でも十分な処理効果があり、簡易な構造のリアクタと簡単な電源で構成できるので小規模な排出源や、排気ガス等で汚染された空気の

浄化装置への応用の可能性を持っている。しかし、二次生成物の検証、NOx 処理とダスト処理の最適放電条件および処理時間の差、残留オゾンの処理、特に油膜による処理効率の不安定等の問題が残っている。

(2) 水面コロナリアクタを試作し種々条件における直流およびパルスコロナ放電特性、放電空間の生成オゾン濃度および生成ラジカルの種類を検証する。これらの結果からリアクタ内で促進するプラズマ化学反応を推定し有効な放電空間を形成するための条件を明らかにする。

(3) 水面コロナリアクタの油膜の問題と、集塵率の改善のために前段に置く高速二段式電気集塵装置(ESP)と連結した複合型リアクタの有効性を検証する。そのために新たに水平電極配置の二段式 ESP を試作してそのコロナ放電特性、排ガス中のダスト、臭気および NOx 処理特性を調べて、最適放電条件を決定する。これらの結果から二段式 ESP リアクタと水面コロナリアクタを組み合わせた複合型の燃焼排ガス総合処理リアクタを構成する。ディーゼルエンジンの排ガスをテストガスとして、ガス濃度と流量に対する排ガス中のダスト粒子、臭気、NOx の処理特性から最適放電条件を明らかにする。さらに水面集塵ダスト層の処理、リアクタの形状および反応生成物の無害化、残留オゾンの軽減、除去方法等を検討し、燃焼排ガスの総合処理に適した複合型コロナリアクタの最適設計条件を明確にする。

## 3. 研究の方法

種々の電極配置の水面コロナリアクタについて放電特性とオゾン生成特性を測定し、排ガス中の NOx 処理に有効な電極、放電条件を検討する。次に水平高速二段式 ESP について、ダストおよび臭気最適処理条件を検討して荷電部の電極配置を決定して水面コロナリアクタと組み合わせたハイブリッド型リアクタを製作する。これを用いてディーゼルエンジン排ガスのダスト、臭気、NOx の総合処理実験を行い、低濃度から高濃度までをカバーできる放電条件をラジカル生成および促進される化学反応から明らかにして実用化の可能性を検討する。また、海外共同研究者(イタリア・パドバ大学)の実験結果(生成ラジカル測定)と照合検討してリアクタの改良を行う。

### (1) 水面コロナリアクタの最適設計：

各種電極配置における正負水面コロナ放電特性とイオン、オゾン生成特性を測定し、燃焼排ガス中の NOx 処理に有効なリアクタ

の設計条件を検討する。

(2) 水平二段式 ESP リアクタの製作：

電極形状が放電特性とイオン、オゾン生成に与える影響を検証し、種々の電極形状と電極配置のリアクタを製作して放電特性と排ガスの各空気汚染物質の処理等の諸特性を測定し、集塵、脱臭リアクタとして有効な電極配置を検討する。

(3) 水面コロナおよび ESP リアクタによるダスト、臭気、NO<sub>x</sub>の総合処理実験：

各種汚染空気、ディーゼルエンジン排ガスを用いて、試作した各個別および複合リアクタについて、ガス濃度やガス流速などの諸条件下で臭気、NO<sub>x</sub>およびダスト処理特性を測定する。これらの結果から反応の促進に有効なラジカルの生成条件と燃焼排ガスの総合処理に適したハイブリッド型リアクタの構成および各処理プロセスにおける最適放電条件を検討する。

#### 4. 研究成果

(1) 水面コロナリアクタの特性

水面とその上方に配置した突起電極と水中の金属電極に直流高電圧を印加すると水面上に安定したコロナ放電が持続する。また、その正負コロナ放電特性は、水面を金属平板電極とみなした時の特性にほぼ等しい。

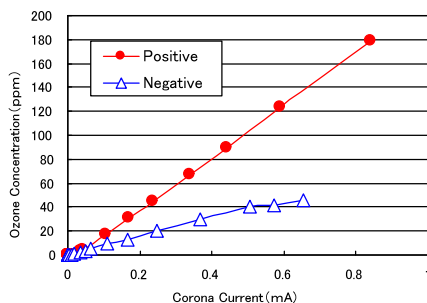


図1 正負水面コロナのオゾン生成特性

正コロナは強い線状の発光が見られ、ストリーマモードの放電であることが確認できる。正コロナは負コロナより同一放電電流で生成オゾン濃度が高い。(図1) これらのことから水面正コロナ放電空間ではOHラジカルをはじめ各種プラズマ化学反応に寄与するラジカルの生成に有利である。

(2) 二段式 ESP と水面コロナによる燃焼排ガスの総合処理

ディーゼル排ガスはサブミクロン粒子を主とする大量の固体粒子状物質 (SPM) のほかカーボン、タール等、ミスト状物質を含ん

でいる。自動車トンネル内の空気浄化を目的に開発した高速二段式 ESP をベースに燃焼排ガス中のダスト、気体汚染物質 (NO<sub>x</sub>、臭気など) を総合処理するための ESP リアクタを試作し、処理特性を測定した。

(2-1) ダスト処理特性

ディーゼルエンジン排ガスを用いた正および負コロナ荷電における ESP リアクタの集塵特性を図6に示す。リアクタに電圧を印加しない時のダスト濃度を100として処理後の濃度の相対値で示している。

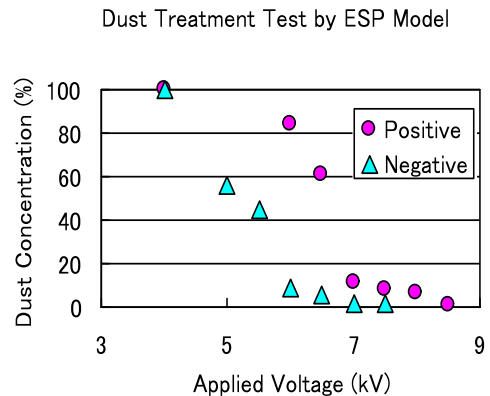


図2 ESPリアクタのダスト処理特性

この実験ではリアクタ内のサンプルガス流速約 2m/s、リアクタ入口ダスト濃度 (粒径 0.3 μm 以上のダスト粒子個数) 約 1.5×10<sup>6</sup> / ft<sup>3</sup> であるが、多少変動がある。負コロナがイオンの生成、ダスト粒子への荷電で優れているが、正コロナ荷電でも 95% 以上のダスト処理が行われている。なおダスト粒子の個数で 99% 以上が粒径 1 μm 以下である。

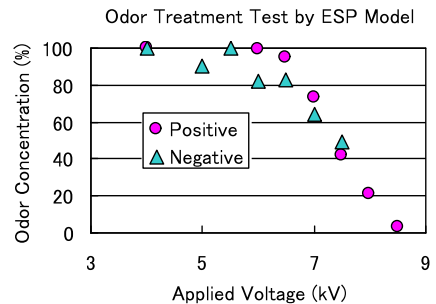


図3 ESPリアクタの臭気処理特性

(2-2) 臭気処理特性

ディーゼルエンジンからの排ガスは強い

臭気を持っており、揮発性有機化合物のほか燃料由来の各種の化学物質によるものである。これらはリアクタの放電空間で生成されるオゾンやラジカルによるプラズマ化学反応で分解または他の化合物に変化することで脱臭作用があると考えられる。リアクタの荷電部の正負コロナによる排ガス中の臭気処理特性を図3に示す。特に正コロナで脱臭効果が大きいのは、ストリーマによるオゾンとラジカルの生成が関係するものと思われる。

### (2-3) NO<sub>x</sub> 処理特性

燃焼排ガス中のNO<sub>x</sub>はその大部分がNOで排出される。コロナ放電空間でのNO<sub>x</sub>処理プロセスとして、①放電で生成するオゾンによるNOのNO<sub>2</sub>への酸化、②NO<sub>2</sub>の水分層への溶解除去、または③OHラジカルによるNOの水分層への溶解除去が考えられる。

ESPリアクタによるNOとNO<sub>x</sub>の処理特性を図4に示す。リアクタの荷電部のコロナ放電空間で②、③の反応によりNO<sub>x</sub>が溶解処理され、集塵部でダストとともに集塵除去される。正コロナ荷電でのNO<sub>x</sub>とNOの処理特性を図4に示す。両極性ともNOは酸化されて減少するがNO<sub>x</sub>の処理はできていない。

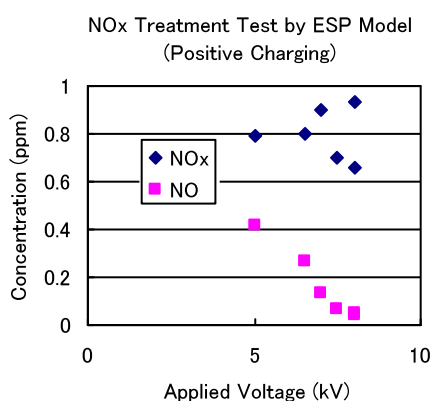


図4 正コロナ荷電によるNO, NO<sub>x</sub>処理特性

リアクタ入り口で加湿器による水分を供給してNO<sub>x</sub>の処理率は多少改善する。

次にESPの後段に水面コロナリアクタを設置し、②、③の反応を促進してESPで未処理のNO<sub>x</sub>を追加処理し全体の処理率の向上を試みた。ESPリアクタに負極性8kVを印加した状態を保ち、水面コロナリアクタの正の印加電圧を火花放電まで上昇させた時のNO<sub>x</sub>処理特性を図5に示す。

この場合もNO<sub>x</sub>の処理率の向上はなく、設置の効果は見られない。その理由としてこのリアクタでのNO<sub>x</sub>の処理にはより長い滞留時

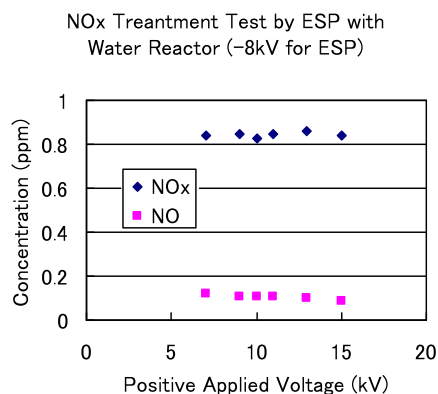


図5 水面コロナリアクタ付加時のNO<sub>x</sub>処理特性

間が必要と思われる。この実験ではNO<sub>2</sub>の水への溶解を阻害する水面での油膜の形成は見られず、排ガス中の固体状および液状のダストの大部分は前置のESPにより除去されている。このため、放電空間でのガス流速を制御して反応に必要な滞留時間を確保すれば水面コロナリアクタの効果が期待できる。

### 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2件)

1 Tomio Fujii, Massimo Rea; "Contaminated Air Cleaning by Corona Discharge Reactor", *Frontier of Applied Plasma Technology*, 査読有 Vol.4, No.1, p.53-56 (2011)

2 Tomio Fujii, Yasushi Arao, Massimo Rea; "Characteristics of Pulse Corona Discharge over Water Surface", *Journal of Physics: Conference Series*, 査読有 012070, p.1-4 (2009)

[学会発表] (計4件)

1 T. Fujii, M. Rea; "Contaminated Air Cleaning by Corona Discharge Reactor", *The 24th Symposium on Plasma Physics and Technology (SPPT '10)*, 2010.6.14 (Prague)

2 Tomio Fujii, Hiroshi Akamatsu, Massimo Rea; "Development of Corona Discharge Reactor for Contaminated Air Cleaning", *The 17th Annual Meeting of IAPS*, 2010.2. (Busan, Korea)

3 藤井富朗, 水面コロナリアクタによる汚染空気の浄化、電気学会パルスパワー、放電合同研究会、PPT-09-100、ED-09-144、

p.37-41、2009.10（熊本）

4 藤井富朗、マシモ レア、コロナ放電リアクタによるディーゼル排ガスの処理、電気学会プラズマ研究会、PST-09-95, p.11-15、2009.9（大阪）

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

○取得状況（計 0 件）

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等  
構築中

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

藤井 富朗 (FUJII TOMIO)  
神戸高専・電気工学科・名誉教授  
研究者番号：80099837

### (2) 研究分担者

( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号：