

異種放電の重畳による放電プラズマ反応器の効率改善の試み — 沿面・直流コロナ放電重畳型反応器の特性 —*

山隈瑞樹**, 禹 仁成***

A Trial for Improvement of Energy Efficiency of Plasma Reactor by Superposing Two Heterogeneous Discharges

— Characteristics of Surface and Corona Discharge Combined Plasma Reactor —*

by Mizuki YAMAGUMA** and In-Sung WOO***

Abstract: In order to cope with environmental problems caused by harmful gases emitted from various industrial sources, a new technology which employs discharge plasma formed in ordinary atmospheric pressure has been intensively investigated in many industrialized nations. Although a plenty of useful outcomes and suggestions have been made public by scientists in this field, few commercial products which effectively decompose pollutant gases have appeared as yet. This is partly because that the energy efficiency of a most effective plasma reactor has not reached a satisfactory level in comparison with those of devices using conventional technologies.

In an attempt to solve the problem mentioned above, we noticed to combine heterogeneous electrical discharges. This concept is based on that each plasma reactor has its specific spatial region in which chemical reactions are active and by electrically mutually affected with another reactor of different type, the activated region would increase – which may lead to cutting down the energy consumption.

To prove this concept experimentally, two different discharge equipments, a plane ceramic-based surface discharge electrode and a corona electrode with tungsten needle array, are selected and combined to fabricate a hybrid plasma reactor.

The results are summarized as follows;

- (1) Ozone concentration generated in the plasma region drastically increases when the positive corona discharge is added to the surface discharge. The rate of increase of ozone depends on the frequency of the surface discharge. The negative corona, however, does not contribute to the improvement of the ozone generation.
- (2) NO (nitrogen monoxide) decomposition rate also improves by simultaneously applying the surface and the positive corona discharges. The effect of the corona superposition is more evident when the level of the surface discharge is moderate.
- (3) By adjusting the corona level, the net energy efficiency during NO decomposition improves in comparison with the simple surface discharge reactor.

Keywords; plasma chemical reaction, surface discharge, corona discharge, decomposition, NO_x, VOC, ozone

* 平成 10 年 9 月 28 日, 第 22 回静電気学会全国大会において一部発表した。

** 物理工学安全研究部 Physical Engineering Safety Research Division

*** 仁川大学校工科大学 (大韓民国) College of Engineering, Incheon University, KOREA

1. 緒 言

生産現場のみならず日常生活の様々な場面で環境が悪化させる有害物質が排出され、そのための対策が焦眉の急となっている。従来、多種多様な有害物質の中で、一部の気体状の物質については、その性質に応じて、燃焼や触媒を用いた化学的処理、活性炭吸着等の物理的処理が実施されてきたが、近年、大気中での放電現象に伴い発生するプラズマによる化学反応を利用した処理方式が多くの研究機関で試みられ、中には、従来の方式では困難であった物質（例えばフロンガス）の分解・無害化処理へ実用化された例もある。更に、火力発電所、ゴミ焼却炉等からの排気ガス中の NO_x ・ SO_x またはダイオキシンや生産現場から排出されるVOC（揮発性有機化合物）等の有害物質の処理にプラズマを応用するための研究が活発に行われており、特に、プラズマ中の電子温度がイオン温度よりも極めて高いという性質を有する非平衡プラズマは、適用できる物質が多いこと、放電の制御が容易であること、また既存設備への追加的な取り付け等構造的な自由度が高い等の理由で注目されている技術である¹⁾。

非平衡プラズマの発生方式としてパルス放電、無声放電等種々の方式が提案されており、各々特長を有している。筆者等は、従来から、コンパクトでありながら比較的大きな放電エネルギーの発生が可能なセラミックベースの沿面放電に注目し、主として有機溶剤等のVOCを対象にその特性を調べてきた²⁾。なお、この方式を利用した化学的な処理方式は最初、増田によって提唱されSPCP (Surface Discharge Induced Plasma Chemical Process) という名称でも広く知られている³⁾。

さて、沿面放電電極はセラミック基板の表面に焼結された細長いタングステン電極の近傍で放電プラズマを発生させるものであるので、これを利用して反応器を構成する際には、被処理ガスを極力電極近傍に沿うように通過させるといった構造上の工夫が処理能力の向上に不可欠である。このように反応領域が偏在することは、時間当たりの処理量の増加を企図する場合の隘路になる。この点を改良する試みとして、既に他の研究機関において、円筒型沿面放電リアクタの中心軸上にバリア放電電極を配置した沿面・バリア放電重畳方式⁴⁾および同じく円筒型沿面放電リアクタの中心にコロナ放電用ワイヤーを配置した沿面・コロナ放電重畳式⁵⁾が提案され、それぞれある程度の効率の向上が認められたことが報告されている。

本研究で採用した方式は、前述の沿面・コロナ放電重畳式の一つであるが、既往の研究とは異なり、周波

数可変の交流電源を用いて沿面放電の電氣的条件を変化させており、かつ、コロナ電極としてタングステン針アレイ電極ユニットを用いることにより、沿面およびコロナ両電極間に安定した相互作用が生じるように工夫している。

今回は、 NO_x を対象にその分解特性を実験的に調べ、沿面・コロナ放電重畳方式が電力効率の改善に有効であること、さらに、その効果は沿面放電側の放電電力および周波数、コロナ放電側の極性および印加電圧の影響を受けること等を明らかにした。

2. 実験装置および実験方法

本研究で製作した沿面・コロナ複合型反応器の構造をFig. 1に示す。沿面放電発生用には、パネル型放電電極（株）増田研究所製。以下、沿面電極という）を、コロナ放電発生用には、タングステン製の針状電極を1列当たり21本を3列に埋め込んだアレイ電極（株）春日電機製。以下、コロナ電極という）を使用した。これらの電極の外観をFig. 2に示す。両電極は20 mmの間隔で放電面を対向して配置されている。放電用電源には、高周波可変周波数電源（可変範囲5～15 kHz）および直流高電圧電源を使用した。なお、直流電源とコロナ電極は、スパーク（火花放電）による両電極間の橋絡を防止するため10 M Ω の抵抗を介して接続し過電流対策を施した。放電経路を描いた概念的な電気回路をFig. 3に示す。

実験用の被処理ガスとして、NOを窒素または空気をベースとして調合した模擬ガスを使用した。 NO_x の濃度測定には、化学発光式 NO_x 濃度計（株）島津製作所製NOA-7000）を用いた。沿面放電の放電電力は、デジタルオシロスコープに電圧および電流波形を取り込み、コンピュータでその積を一周期にわたり積分し平均電力を求めた。

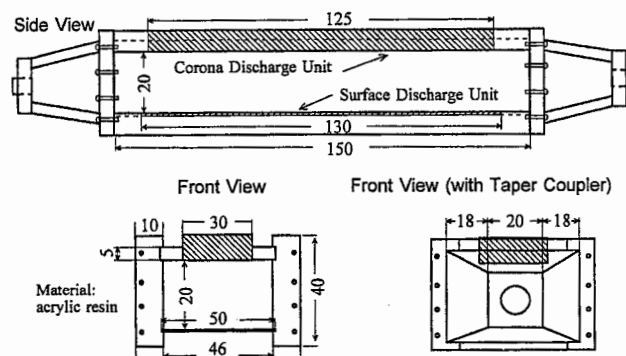


Fig. 1 Structure of surface and corona discharge combined plasma reactor.
放電重畳型プラズマリアクタの構造

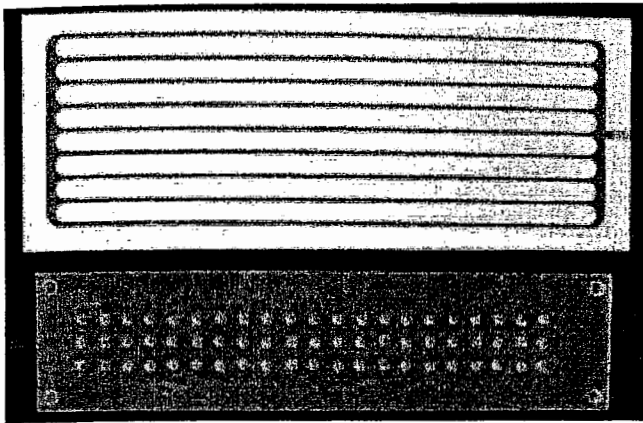


Fig. 2 Photograph of surface discharge unit (upper) and corona discharge unit (lower).
沿面放電ユニット (上) およびコロナ放電ユニット (下) の写真

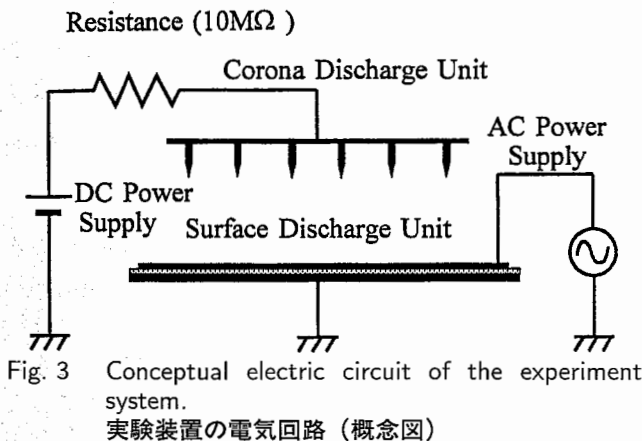


Fig. 3 Conceptual electric circuit of the experiment system.
実験装置の電気回路 (概念図)

なお、本稿中の被処理ガスの分解率は、次式で定義される値である。

$$\text{分解率} = 1 - (\text{処理前濃度} - \text{処理後濃度}) / \text{処理前濃度}$$

3. 実験結果

3.1 空気中におけるオゾン発生特性

標準的な大気中での放電は必然的にオゾンの生成を伴い、その発生量はプラズマのエネルギーの大きさと密接な関係があることが知られている。そこで、純粋な乾燥空気を試料ガスとしてオゾンの発生量を測定し、沿面電極の駆動周波数とコロナ電極の印加電圧の影響を調べた。その結果を Fig. 4 に示す。この実験では、沿面放電のみの時にはほとんどオゾンが発生しないような低いレベルの電圧を印加し、コロナ電圧のみ変化させている。負極性のコロナ放電を重畳した場合、オゾンの発生量はほとんど変化しないが、正極性のコロナ放電の場合には、印加電圧の増加と共にオゾン発生

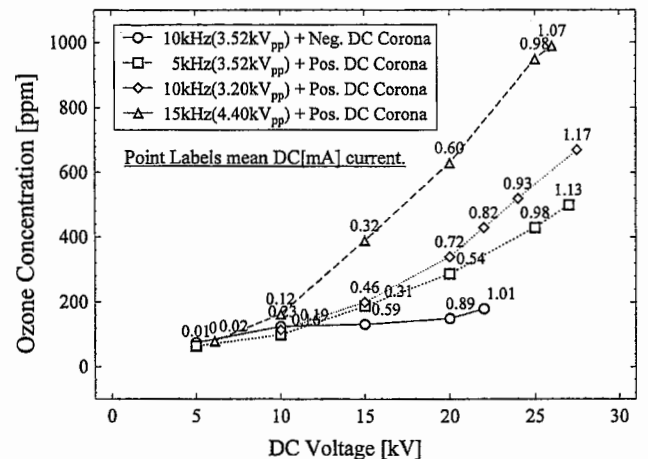


Fig. 4 Effect of superposition of two discharges on ozone generation (10 kHz, 534 ppm, 2 l/min).
オゾンの発生特性に与える直流コロナ放電の影響

量も増加し、かつ沿面放電の周波数が高いほど増加率も大きくなった。このように、負極性コロナの場合、放電化学反応にはほとんど影響しないと考えられたので、以後の実験では負極性コロナを用いないこととした (実際に、予備実験において、負極性コロナは NO_x の分解にほとんど寄与しなかった。)

3.2 NO_x 模擬ガスの分解特性

次に、窒素 (N₂) に 534 ppm の一酸化窒素 (NO) を混合した試料ガス (模擬ガス) を反応器に導入し分解を試みた。正極性コロナ放電のみの場合および沿面放電電極への印加電圧を一定 (約 5.04 kV_{pp}) としてコロナ放電を重畳した場合の結果を Fig. 5 に示す。コロナ放電のみでは、NO はほとんど分解されない (最大分解率約 5%) が、沿面放電とコロナ放電を重畳した場合には、コロナ電圧の上昇とともに分解率 (初期値 45%) が徐々に増加し、コロナ電圧 20 kV とき 86% に達した。なお、電源容量の関係で 20 kV を超える電圧を加えることができなかった。同図の沿面・コロナ重畳時のグラフの各ラベルの上方および下方には、それぞれコロナ放電電流 (直流, 単位 mA) および沿面放電電力 (単位 W) が記載されている。これら値の変化を見ると、コロナ電圧を増加すると、直流電流のみならず、沿面放電電力も増加していくことがわかる。コロナ放電のみの場合の NO 分解率は低いレベルに留まっていることから、沿面放電の改質が効率の向上により多く寄与したと考えられる。

Fig. 6 は、模擬ガスの流量を 1~10 l/min の範囲で変化させ、放電重畳の効果をみたものである。この実験においては、沿面放電電極の周波数 (10 kHz) および印加電圧 (5 kV_{pp} および 5.3 kV_{pp})、コロナ放電電極の印加電圧 (10 kV) は一定の値に保持されている。い

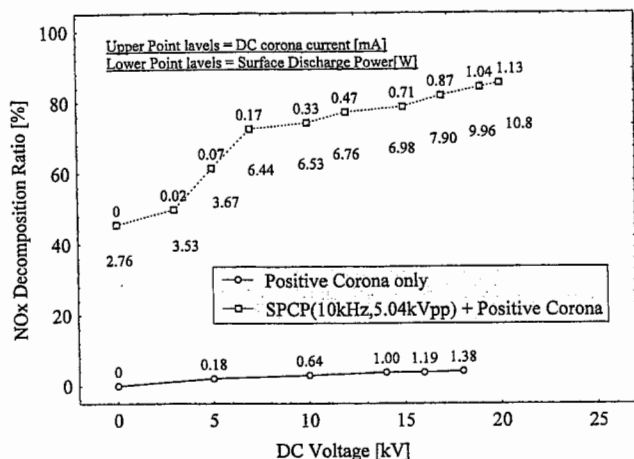


Fig. 5 Effect of superposition of two discharges on NO decomposition (1)(N₂ balance, 534 ppm, 2 ℓ/min).
NO の分解におけるコロナ放電重量の効果 (1)

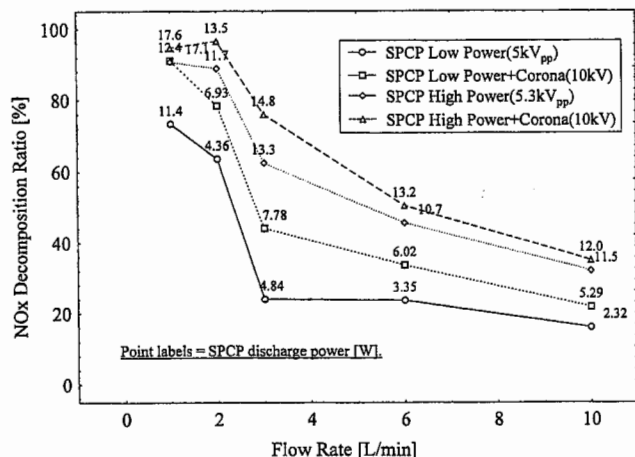


Fig. 6 Effect of superposition of two discharges on NO decomposition (2)(N₂ balance, 534 ppm).
NO の分解におけるコロナ放電重量の効果 (2)

ずれの流量においてもコロナ放電重畳による分解効率の向上が認められ、やはり Fig. 4 と同様に、コロナ放電の重畳が沿面放電の電力を増加させるという特徴が見られる。

更に、実際の排ガスには酸素が含まれている場合が多いことを考慮して、模擬ガス中の酸素濃度を 4.2%～16.8%まで変化させ、沿面放電のみおよび沿面・コロナ重畳（沿面放電周波数を 10 kHz、コロナ電圧を 10 kV に固定）の場合の分解率を Fig. 7 に示す。酸素濃度が高いほど分解率が低下する傾向があるが、これは測定器が NO の他に NO₂（二酸化窒素）を加算して計測するため、NO の分解時の生成物の一つである NO₂ が加味された結果と考えられる。酸素濃度（4.2%、8.4% および 12.6%）がいずれの条件でも、コロナ放電を重

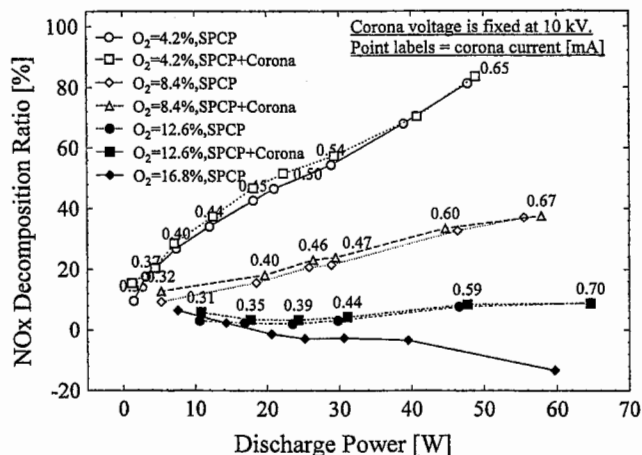


Fig. 7 Effect of superposition of two discharges on NO decomposition (3) (534 ppm, 2 ℓ/min).
NO の分解におけるコロナ放電重量の効果 (3)

畳すると分解率が向上すること、ならびに、コロナ重畳の効果は、沿面放電の放電電力が小さい領域でより高いという結果が得られた。

4. 考 察

放電の状態を観測すると、コロナ放電の効果があると考えられる領域であっても放電ストリーマが反応器全体を満たすということではなく、むしろ沿面放電を活性にする（放電電力が増加する）という現象が見られる。この傾向は周波数が高いほど顕著になるので、これが上記のオゾン生成量の結果に見られるような高周波域での放電化学反応の促進に寄与しているものと考えられる。この周波数依存性のメカニズムの解明については今後の課題とする予定である。

負極性コロナ放電を重畳した場合にその効果がほとんど見られない理由として、コロナ放電電極からのストリーマの進展が全くないこと、および正極性コロナのような沿面放電への作用がほとんど見られないことが挙げられる。

システム全体の電力効率（消費電力に対する分解量の割合）の改善という観点から沿面・コロナ放電重畳の効果を評価すると、限定的ではあるが、有効と判断することができる。たとえば、Fig. 8 は、Fig. 4 で得られた沿面・コロナ重畳時の分解率と別途沿面放電のみで測定した分解率と放電電力の関係を示すものであり、総放電電力が 10W 程度未満の領域では、沿面・コロナ重畳型の方が効率が高いことがわかる。コロナ放電電力の占める割合が更に大きくなると逆に沿面放電のみのときよりも効率が低下することから、コロナ放電側の電源容量は小さいもので十分であると考えられる。なお、Fig. 6 中の Gross Total Power と Net Total

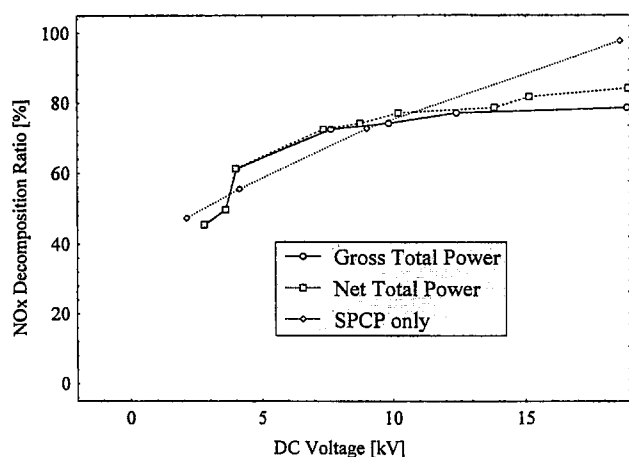


Fig. 8 Range in which energy efficiency of superposing reactor surpasses that of normal reactor.
放電重畳型リアクタと沿面放電型リアクタのエネルギーのエネルギー効率の比較

Power は、前者が沿面放電電力に直流コロナ電極の印加電圧と電流の積を加えたものであるのに対し、後者はこれからスパーク防止用抵抗 (10 MΩ) での電力の損失分を差し引いたものである。もちろん後者の場合の方が電力効率は高くなるが、前述の有効範囲内においては大差は見られない。したがって、コロナ放電の安定性 (スパークの発生が少ない) を確保するためにも、このような抵抗を回路中に挿入することが有益と考えられる。

5. 結 言

放電化学反応を利用した有害物質処理時の電力効率の改善を目的として、沿面放電とコロナ放電を組み合わせた重畳放電型プラズマ反応器を製作し、その特性を実験的に調べた。その結果、以下の知見が得られた。

なお、今回はこの種研究の端緒を開くという意図であったので、沿面放電に対して直流コロナ放電のみを

重畳するという手法を試みたが、交流またはパルスのコロナ放電を重畳させた場合についても電力効率の向上が可能性があると考えられるので、今後の検討課題とする予定である。

- (1) 沿面放電の駆動周波数が高いほど、正極性コロナ放電重畳時のオゾン発生量の増加率は大きい。負極性コロナ放電はオゾン増加にほとんど寄与しない。
- (2) 正極性コロナ放電を沿面放電と同時に発生することにより NO の分解率を向上することが可能である。分解率向上への寄与度は沿面放電の放電エネルギーが小さいほど大きい傾向にある。
- (3) NO の分解においては、正極性コロナ放電のレベルを適当な値とすることにより、総合的な電力効率の改善が可能である。

参 考 文 献

- 1) 例えば、静電気学会編、静電気ハンドブック、オーム社、pp. 27-129 (1998).
- 2) 山隈瑞樹・大澤敦・児玉勉・田島泰幸、放電プラズマ化学反応を用いた有害物質の無害化、RIIS-RR-92, pp. 157-166 (1993).
- 3) S. Masuda, A Ceramic-Based Ozonizer Using High Frequency Discharge, IEEE Trans. on IA, pp. 223-231 (1988).
- 4) 伊藤泰朗、放電重畳法によるプラズマリアクタの開発、静電気学会研究会, IESJ95-1-7, pp. 65-74 (1995).
- 5) S. Satoh, N. Katsuki, K. Hakia, S. Ihara, M. Ishimine, C. Yamabe, An Effect of Superposition of Positive Streamer and Surface Discharge on Ozone Generation, 13th OZONE WORLD CONGRESS, KYOTO, JAPAN, pp. 865-869 (1997).

(平成 11 年 3 月 24 日受理)