

ネオン変圧器を用いたバリア放電型 NO_x 処理系のエネルギー変換効率

正員 鈴木 智 一 (日立メディアエレクトロニクス)

非会員 Muaffaq Achmad Jani (岩手大学)

非会員 工 藤 昭 一 (岩手大学)

正員 高 木 浩 一 (岩手大学)

非会員 加 藤 昭 二 (岩手大学)

正員 藤 原 民 也 (岩手大学)

Energy Transfer Efficiency of NO_x Reduction System Using a Neon Transformer
by Dielectric Barrier DischargeTomokazu Suzuki, Member(Hitachi Media Electronics Co., Ltd.), Muaffaq Achmad Jani, Non-Member,
Shoichi Kudo, Non-Member, Koichi Takaki, Member, Shoji Kato, Non-Member,
Tamiya Fujiwara, Member(Iwate University)

Analysis of NO_x removal by a discharge plasma is made with an equivalent circuit. The used NO_x reduction system consists of a neon transformer and a plasma reactor based on a dielectric barrier discharge. Impedance of the neon transformer has been determined experimentally. The equivalent circuit based on a series connection of two capacitors is used for the plasma reactor. The capacitances are obtained from experimental V-Q Lissajous diagram. Comparison with experimental data of consumed energy and the dependence of NO removal on gap length is successfully done.

キーワード: NO_x 処理、誘電体バリア放電、V-Q Lissajous、排ガス処理、ネオン変圧器

1. 目的

近年、環境問題への関心が高まっており、新しい環境保全技術の登場が望まれている。窒素酸化物(以下 NO_x と記述)は大気汚染の主因子の一つであり、これまでも多くの処理技術が開発され、実用化されているが⁽¹⁾⁽²⁾、装置が大規模かつ高価になるなどの問題も残されており、新しい処理技術の開発が望まれ、研究されている⁽³⁾⁻⁽⁶⁾。

誘電体バリア放電を用いた排ガス処理は実用化が期待される処理方式の一つである。この方式は電極間に誘電体を挿入することで放電を間欠化して非平衡プラズマを生成し、その高エネルギー電子を利用して NO_x を除去するものである。この方式は動作電圧が低く、印加電圧波形に対する制約が少ないため、小規模排出源に対する小型の処理装置としての実現が期待されている。特に最

近は、実排ガス中の NO_x を対象とした実験なども行われており、基礎実験の段階から実用化に向けての实地試験の段階へと移りつつある⁽⁷⁾⁽⁸⁾。

我々は、これまで剣山型電極を用いることで数 kV と、バリア放電方式としても比較的低い動作電圧で NO_x 処理を行い⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾、放電で消費されるエネルギーをもとに NO_x 処理効率や、その他の処理特性などを明らかにしてきた。しかし実用化を考えた場合、リアクター内の NO_x 処理効率だけではなく、電源などの損失も含めた処理系全体の効率を上げる必要がある。これにはあらかじめ放電消費エネルギーや NO_x 処理効率などを予測し、最適な条件で NO_x 処理を行う必要がある。そこで本論文では、バリア放電の形成にネオン変圧器を使用した場合の、放電へのエネルギー投入効率、及び処理効率と、ギャップ長や印加電圧などの動作条件による変化を実験的に調べ、等価回路による解析結果との比較を行った。

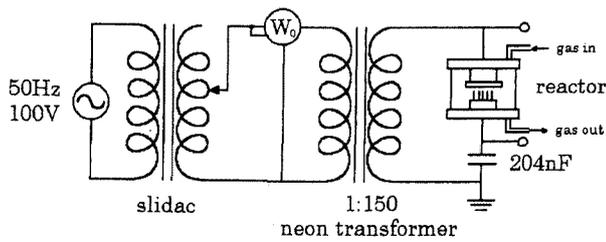


図1 実験装置

Fig.1. Experimental setup.

2. 実験装置

図1に実験装置の概略図を示す。放電容器は、高さ89mm 内径140mm のアクリル円筒の上下を、SUS製の蓋で押さえ込む構造をしている。上部電極は直径89mm のロッドであり、その下面に直径120mm 厚さ1mm のソーダガラス（比誘電率7.5）を取り付ける。下部電極は直径90mm の円形台座に397本の針を取り付けた剣山である。ネオン変圧器（松下電器産業）は定格二次電圧15kV（実効値）、定格二次電流20mA のものを用い、スライダックと併用して印加電圧を変化させる。印加電圧は抵抗分圧器（Tektronix P6015）の出力をオシロスコープ（SONY Tektronix TDS310）に入力して観測する。放電消費エネルギーは204nFのコンデンサを放電容器に直列に挿入して電荷量を計測し、V-Q Lissajous法を用いて測定する。針先端から誘電体表面までのギャップ長を1mm から10mm まで1mm 毎に変化させ、それぞれ印加電圧を35kV_{pp}（peak-to-peak値）から5kV_{pp} 毎に減少させて実験する。処理系全体の消費電力は、変圧器の一次側に可動鉄片型の電力計を接続して測定する。NO 処理実験では模擬排ガスとしてN₂、O₂、NO の濃度がそれぞれ90%、10%、200ppm となるように混合して用いる。この混合ガスは流量5L/min で容器に導入後、容器外に排気され、その一部がNO_x計（ホダカ testo350）に導入される。放電によ

るNO 処理量は処理前後の濃度差から求める。

3. 変圧器の等価回路

はじめに電源として使用するネオン変圧器の等価回路を求めるために、変圧器の無負荷及び短絡試験を行い⁽¹¹⁾、その特性を調べた。図2にその結果を示す。これから一次側の電圧電流特性が負荷によってほとんど変化しない事が分かる。また、力率角は無負荷時に81.6度、短絡時に79.4度となり、これも負荷によってほとんど変化していない。図3に漏れ変圧器の一般的な等価回路を示す⁽¹²⁾。この等価回路では一次側及び二次側の巻線抵抗をそれぞれ r_1 、 r_2 で、漏れリアクタンスを x_1 、 x_2 で、漏れ磁束の形成するリアクタンスを x_3 で表している。図2に示す、無負荷試験、短絡試験より求めた一次側のインピーダンスはそれぞれ66.5Ωおよび60.9Ω、抵抗分は9.77Ωおよび11.2Ω、リアクタンス分は65.8Ωおよび59.9Ωとなる。従って、正確に解析を行うためには負荷によってネオン変圧器のインピーダンスを変化させる必要があるが、ここでは簡単化のために短絡試験時の値を用いた。

4. 放電容器の等価回路

バリア放電の等価回路は部分放電の等価回路⁽¹³⁾、すなわち図4のように誘電体をコンデンサで、放電部をコンデンサと可変抵抗の並列回路とした、これら2つの直列回路として取り扱う。誘電体の静電容量 C_B は誘電体の材質や形状、電荷が蓄積する面積によって決定され、放電部の静電容量 C_D は針電極と誘電体表面との間で構成される静電容量である。放電部の可変抵抗は C_D のインピーダンスに比べ、一般に非放電時には大きく、放電時には小さな値となる。正確には上下電極間の浮遊容量がこの等価回路と並列に存在する⁽¹⁴⁾。しかし、本論文では解析を簡単にするために浮遊容量は C_B 、 C_D の値の形で考慮した。

C_B 及び C_D を幾何学的形状から求めるには、誘電体

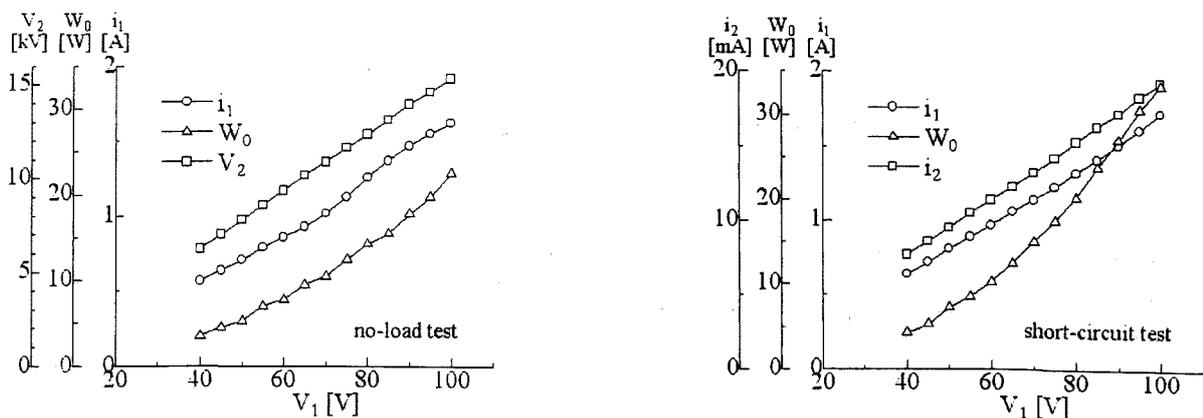


図2 ネオン変圧器の特性

Fig.2. Characteristics of the neon transformer.

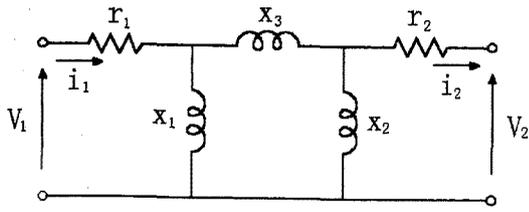


図3 漏れ変圧器の等価回路
Fig.3. Equivalent circuit of a leakage transformer.

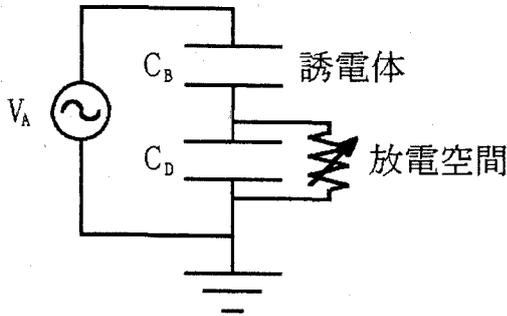


図4 バリア放電の等価回路
Fig.4. Equivalent circuit of the barrier discharge.

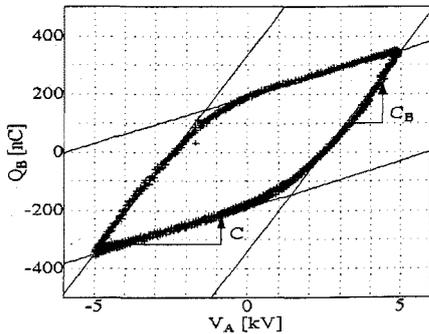
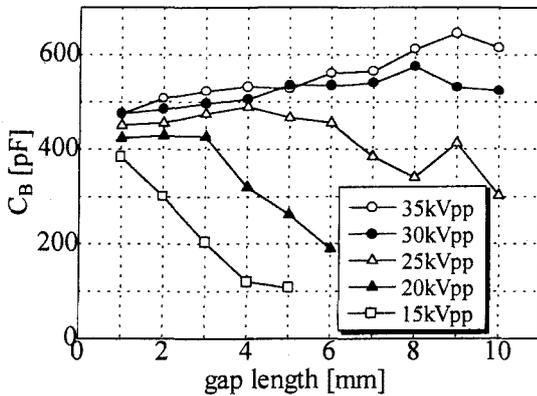


図5 V-Q Lissajous 図
Fig.5. V-Q Lissajous diagram.



(a) Capacitance C_B

表面上に蓄積される空間電荷などが存在するため困難である。そこで、V-Q Lissajous 図を用いて C_B 及び C_D 等を求めた。図5に一例としてギャップ長を 0.5mm とし、50Hz、10kV_{pp} の電圧を印加した時の V-Q Lissajous 図を示す。 C_B と C_D の直列容量を C とすると、放電容器全体の容量は非放電時には C 、放電時には C_B となり、これが Lissajous 図の傾きとなる。従って、放電時の急な傾きから C_B を、非放電時の傾きから C を求めることができ、これらから計算によって C_D を求めることができる。このようにして求めた等価容量 C_B 、 C_D と印加電圧およびギャップ長との関係をそれぞれ図 6(a), (b) に示す。図 6(a) から C_B はギャップ長に対して最大値をとる傾向があること、 C_B 最大となるギャップ長は印加電圧が高いほど大きいことが分かる。また、図 6(b) から C_D はギャップ長に伴い減少し、印加電圧に依存しないことが分かる。 C_B がギャップ長に対して急激に減少する領域では放電の発光が弱く、もしくは局所的になっており、バリア放電に伴う電流パルスも少なくなっていることから、剣山全体で放電していないと考えられる。本解析では剣山全体で放電が生じた時のみを扱うこととし、 C_B については 25kV_{pp} ではギャップ長 4mm まで、30kV_{pp} では 8mm までの正特性の領域のみを関数化した。

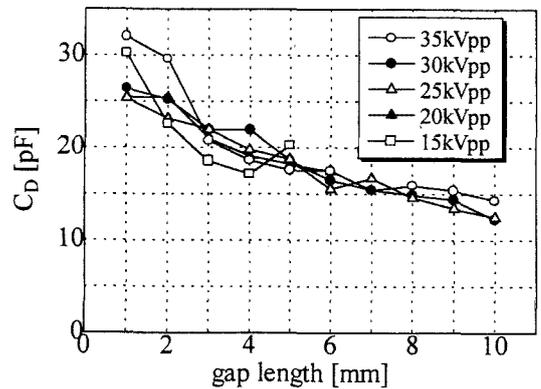
以下に C_B 、 C_D の実験式を示す。

$$C_B [pF] = 450 + 15.1 \times d \quad \dots\dots\dots (1)$$

$$C_D [pF] = 24.2 + \frac{5.48}{d} - 1.57 \times d \quad \dots\dots\dots (2)$$

ここで d はギャップ長、単位は mm である。

C_D に蓄積される電荷 Q_D は変位電流によって充電されるが、ある電荷量 Q_D^* 以上に蓄積されると、絶縁破壊を起こし放電で電荷を放出する。しかし、 Q_D の電荷量が Q_D^* 未満になると放電が停止する。このため、巨視的には放電中の Q_D は Q_D^* で一定になり、放電中空間は V_D^* ($=Q_D^*/C_D$) の一定電圧を保つ可変抵抗として近似され



(b) Capacitance C_D

図6 C_B 及び C_D のギャップ長依存性
Fig.6. Dependence of capacitance on gap length.

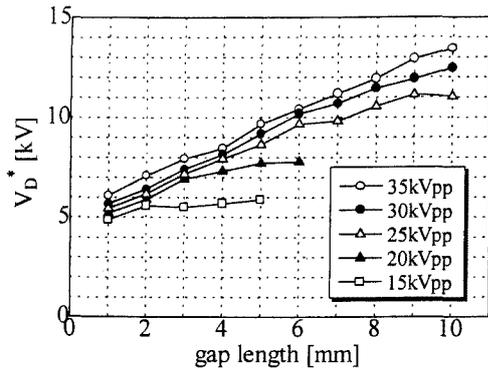


図7 V_D^* のギャップ長依存性
Fig.7. V_D^* as a function of gap length.

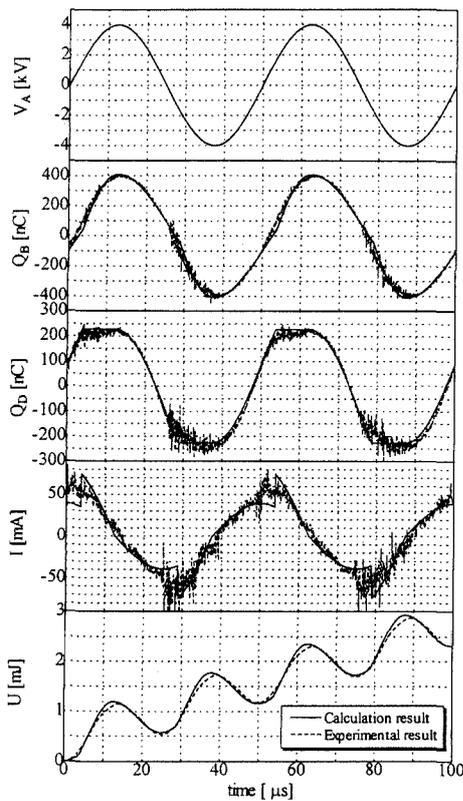


図8 V_A , Q_B , Q_D , I , U の時間変化
Fig.8. Time variations of V_A , Q_B , Q_D , I and U .

る⁽¹⁵⁾。図7にV-Q Lissajous図より求めた V_D^* を示す。この様に V_D^* はギャップ長に伴い増加するが、次第に飽和する傾向を持つことが分かる。これをギャップ長の関数として、以下に示す実験式で近似する。

$$V_D^* [kV] = 4.88 + 0.853 \times d \quad \dots \dots \dots (3)$$

5. 放電容器における消費電力

図4に示す等価回路を用いて放電容器内の消費エネルギーの計算を行った。図8に印加電圧 V_A 、 C_B に蓄積する電荷 Q_B 、 C_D に蓄積する電荷 Q_D 、電流 I 、放電消費

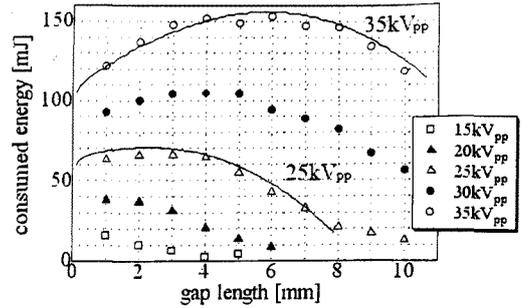


図9 放電消費エネルギーのギャップ長依存性
Fig.9. Consumed energy in discharge vs gap length.

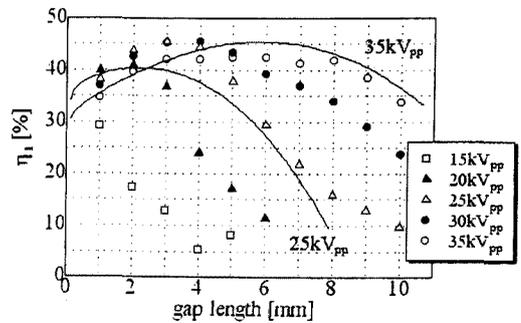


図10 エネルギー変換効率 η_1 のギャップ長依存性
Fig.10. Energy transfer efficiency (η_1) vs gap length.

エネルギー U の経時変化（実測値：破線、計算値：実線）を示す。この時の印加電圧は $8kV_{pp}$ であり、消費エネルギーは電流と電圧を掛け合わせて電力を求め、その電力を時間的に積分することで求めた。但し、この場合は印加電圧の周波数を $20kHz$ としている。これは時間的変化を測定する場合、 $50Hz$ では変位電流の周波数に比して放電電流のパルス幅（約 $10ns$ ）が非常に短いため、オシロスコプのサンプリング漏れが起き、エネルギーを正確に求められないためである。図8より解析結果が実験結果とよく一致しており、図4の等価回路を用いて解析することで、消費エネルギーを算出できることが分かる。

V-Q Lissajous図において一周期当たりの放電消費エネルギーはループが囲む面積で表され、

$$U = 4C_B V_D^* \left(\frac{V_{pp}}{2} - \left(1 + \frac{C_D}{C_B} \right) V_D^* \right) \quad \dots \dots \dots (4)$$

となる⁽¹⁵⁾。ここで V_{pp} は印加電圧のpeak-to-peak値である。図9に印加電圧をパラメータとしたギャップ長と放電消費エネルギーとの関係を示す。プロットは実験値であり、二本の実線は(4)式に(1)~(3)式を代入し、電圧をそれぞれ 35 、 $25kV_{pp}$ とした場合の計算結果である。ここから消費エネルギーがギャップ長の増加に伴っ

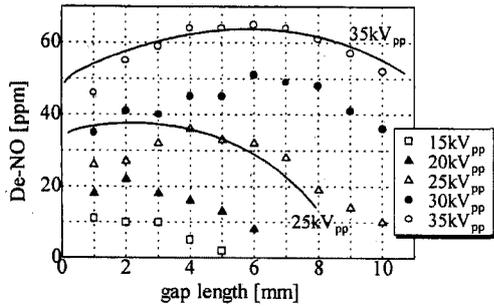


図 11 NO 処理量のギャップ長依存性
Fig.11. NO removal as a function of gap length.

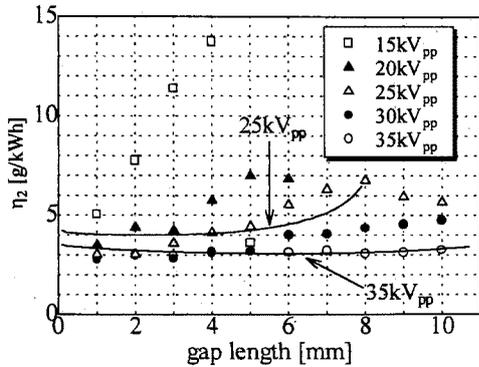


図 12 放電容器における NO 処理効率 η₂ のギャップ長依存性
Fig.12. NO removal efficiency of reactor η₂ vs gap length.

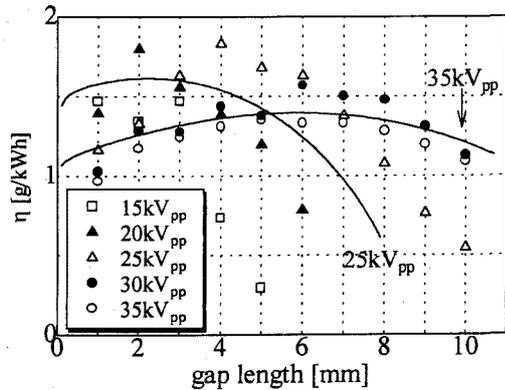


図 13 システム全体の NO 処理効率 η のギャップ長依存性
Fig.13. Relationship between NO removal efficiency of the system η and gap length.

て増加し、最大値を経た後に減少することが分かる。また、エネルギー最大となるギャップ長は印加電圧の増大と共に増加していることが分かる。計算結果は実験結果とほぼ一致している。

図 10 にネオン変圧器のエネルギー変換効率 η₁ のギャップ長依存性を示す。η₁ は変圧器に入る電力 P₁ と放電

電力 P₂ を用いて η₁=(P₂/P₁)×100 として求めた。実線は計算値であり、二次電圧波形の歪みを補正するため、変圧器の二次電圧の実効値は波高値の 1/1.6 倍として計算している。傾向は比較的良く模擬できているが、25kV_{pp} 印加時には P₁ を大きく見積もりすぎていることが分かる。

6. NO 処理実験

NO 処理実験を行った結果を図 11 に、NO 処理量のギャップ長依存性として示す。パラメータは印加電圧である。図より NO 処理量も放電消費エネルギーと類似したギャップ長依存性を持つことが分かる。実験結果より、本リアクターでは NO 処理量は放電の消費エネルギーの関数として以下の様に近似する。

$$De - NO [ppm] = 2.2 \times U^{2/3} \dots\dots\dots (5)$$

ここで U は 1 サイクルの放電消費エネルギーで、単位は mJ である。この式から求めた処理量を図 11 中に実線で示す。図より、ギャップ長が小さい領域では差が生じるが、全体の傾向は一致している事が分かる。

図 12 に放電容器における NO 処理効率 η₂ を示す。ここで η₂ は放電消費エネルギーに対する NO 処理量であり、η₂∝U^{-1/3} である。よって、低エネルギーであるほど効率が高く、計算結果は実験と傾向が一致する。また、35kV_{pp} 印加時の効率は約 3.07g/kWh であり、これは 0.274 個/heV に相当する。

図 13 に P₁ に対する NO 処理量、すなわち変圧器での損失なども含めた放電処理系全体の NO 処理効率 η (=η₁ × η₂) を示す。図より、各電圧で効率最大となるギャップ長が存在すること、その値は印加電圧の増加に対して大きくなることが分かる。計算結果は、25kV_{pp} では実験値と異なるが、あるギャップ長で効率最大となる傾向や、最大効率が印加電圧の増加で減少すること、最大効率となる時のギャップ長が印加電圧に対してシフトする傾向は一致する。電圧が 35kV_{pp} における最大効率は 1.33g/kWh (処理量 65ppm) であり、この時のギャップ長は 6mm である。

7. まとめ

誘電体バリア放電による NO_x 処理系において、放電消費電力及び電力の投入効率などを、等価回路を用いて解析した結果、以下の事が分かった。

1. 誘電体バリア放電は部分放電型等価回路を用いて解析することで、放電消費エネルギー等を模擬できる。
2. 誘電体が形成する静電容量はギャップ長に対して線形的に増加するが、ギャップ長が大きくなりすぎると逆に急激に低下する。また、放電空間が形成する静電容量は印加電圧に対してはほぼ一定であり、ギャップ長に対しては減少する傾向を示す。
3. 放電空間にかかる電圧は放電中は一定であり、その

値は印加電圧及びギャップ長に対して増加する傾向を示す。

4. 放電消費エネルギーはあるギャップ長で最大値を取り、そのギャップ長は印加電圧の上昇に伴って増加する。
5. NO_x処理量は放電消費エネルギーの2/3乗に比例すると近似することによって、処理量及び処理効率のギャップ長依存性を比較的良く模擬できる。

最後に本研究を遂行するにあたり、御協力を頂きました本学板垣稔氏に深く感謝いたします。また、実験装置の準備、御討論などで御協力を頂いた(株)日立メディアエレクトロニクス加藤友行氏ならびに高橋和徳氏に深く感謝いたします。尚、本研究の一部は文部省科学研究費(課題番号09555084)の援助によって行われた。

(平成10年1月26日受付, 平成10年5月29日再受付)

文献

- (1) 化学工学協会編:「環境プロセス工学」(1976) 榎書店
- (2) S. Masuda, M. Hirano & K. Akutsu: "Enhancement of Electron Beam Denitration Process by Means of Electric Field", Radiat. Phys. Chem., 17, 223~228 (1981)
- (3) A. Mizuno, J. S. Clements & R. H. Davis: "A Method for the Removal of Sulfur Dioxide from Exhaust Gas Utilizing Pulsed Streamer Corona for Electron Energization", IEEE Trans. Ind. Appl., IA-22, 3, 516~522 (1986)
- (4) 川村啓介・塚本俊介・竹下智洋・勝木淳・秋山秀典:「誘導型パルス電源を用いたNO_x処理」, 電学論A, 117, 9, 956~961 (1997)
- (5) 宮本秀志・野村季和・浦島邦子・江原由泰・岸田治夫・伊藤泰郎:「NO_xの分解における放電重量効果」, 電学論A, 116, 8, 678~683 (1996)
- (6) 黄土峯・猪原哲・石峯真佐志・佐藤三郎・山部長兵衛:「ワイヤ対平板電極を用いた正ストリーマコロナ放電によるNO_x処理」, 電学論A, 117, 10, 1034~1039 (1997)
- (7) G. Dinelli, L. Civitano, & M. Rea: "Industrial Experiments on Pulse Corona Simultaneous Removal of NO_x and SO₂ from Flue Gas", IEEE Trans. Ind. Appl., 26, 3, 535~541 (1990)
- (8) M. Higashi, S. Uchida, N. Suzuki & K. Fujii: "Soot Elimination and NO_x and SO_x Reduction in Diesel-Engine Exhaust by a Combination of Discharge Plasma and Oil Dynamics", IEEE Trans. Plasma Sci., 20, 1, 19~30 (1992)
- (9) 鈴木智一・村上宏行・高木浩一・藤原民也:「誘電体バリア放電を用いたNO₂除去」, 電学論A, 117, 11, 1084~1089 (1997)
- (10) K. Takaki, T. Suzuki, S. Maekawa, H. Yamada & T. Fujiwara: "Reduction of NO_x by Dielectric Barrier Discharge", Proc. 12th Int. Conf. Gas Discharge & Their Applications, 1, 391~396 (1997)
- (11) 野中作太郎:「電気機器工」(1973) 森北出版
- (12) 猪狩武尚:「電気機械学」(1970) コロナ社
- (13) 電気学会:「放電ハンドブック」(1974) オーム社
- (14) 葛本昌樹・田畑要一郎・吉沢憲治・八木重典:「100 μm 級極短ギャップ下における無声放電による高濃度オゾン発生」, 電学論A, 116, 11, 121~127 (1996)
- (15) 民田太郎・岩田明彦・田中正明:「V-Q Lissajous 図形を用いたac-PDPの放電諸量の測定」, 電気学会放電研究会資料, ED-96-274, 1~10 (1996)

鈴木智一 (正員) 1974年1月18日生。1996年3月岩手大学工学部卒業。同年4月同大学大学院工学研究科博士前期課程入学、1998年3月同修了。同年4月(株)日立メディアエレクトロニクス入社、現在に至る。主として、放電によるNO_x処理に関する研究に従事。



Muaffaq Achmad Jani (非会員) Muaffaq A. Jani was born December 12, 1965 in Surabaya, Indonesia. He received the B.S. degree in electrical engineering from Sepuluh Nopember Institute of Technology, Surabaya, Indonesia, in 1990. Then, he joined with PT Boma Bisma Indra, Surabaya, Indonesia, working as an Engineer in the field of design and planning of electrical control system. He received the M.Eng. degree from Iwate University, Japan, in 1995. He is currently pursuing the Ph.D degree at Iwate University.



工藤昭一 (非会員) 1975年6月13日生。1998年3月岩手大学工学部卒業。同年4月同大学大学院工学研究科博士前期課程入学、現在に至る。主として、放電によるNO_x処理に関する研究に従事。



高木浩一 (正員) 1963年10月16日生。1988年3月熊本大学大学院修士課程修了。同年4月同博士過程入学。1989年4月大分高専電気工学科助手、1993年同校講師。1996年4月岩手大学電気電子工学科助手、現在に至る。工学博士。高電圧パルスパワー、放電プラズマ工学に関する研究に従事。日本物理学界、静電気学会会員。



加藤昭二 (非会員) 1945年6月3日生。1964年3月盛岡工業高等学校電気科卒業。同年同月より岩手大学工学部に勤務し、現在に至る。主として、高電界における液体絶縁物の電気伝導現象と破壊、放電プラズマの応用に関する研究に従事。



藤原民也 (正員) 1947年4月17日生。1973年3月東北大学大学院工学研究科修士課程修了。同年4月一関高専電気工学科助手。1975年4月岩手大学工学部電気工学科助手、講師、助教授を経て1994年2月同教授。1987年3月~1988年3月マサチューセッツ工科大学客員研究員。工学博士。応用物理学会、電気設備学会、プラズマ・核融合学会会員。

