

称号及び氏名	博士（工学）藤島英勝
学位授与の日付	平成 17 年 3 月 31 日
論文名	「Electrohydrodynamics of Plasma System and Application of Plasma Flue Gas Treatment」 (プラズマシステムにおける静電流体力学と放電プラズマによる燃焼排ガス処理)
論文審査委員	主査 教授 山本 俊昭 副査 教授 伊東 弘一 副査 教授 高比良 裕之 副査 助教授 大久保 雅章

## 論文要旨

日本において大気環境問題が本格化したのは 1955 年以降であった。鉄鋼、石油化学、機械などを中心とする重化学工業化が強く推進され、エネルギー源も水力から火力へ、さらに、石炭から石油へと変革したことにより大量の汚染物質が排出され、ばいじんのみならず、特に硫黄酸化物 (SO<sub>x</sub>) による大気汚染が深刻化した。このため 1968 年に「大気汚染防止法」が公布され、燃料の低硫黄化や集じん及び脱硫装置などの対策がなされた。その後、石油危機を経て再び石炭が多用されたため「排出規制値」が強化され、さらに 1974 年に SO<sub>x</sub>、1981 年に窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>) の「総量規制基準」が制定され、石炭をクリーンエネルギーとして使うための技術開発が進み、単なるばいじん、SO<sub>x</sub>、NO<sub>x</sub> の処理という範疇を超え、公害をなくすトータルシステムとして発展した。

現在、最大の大気汚染問題は SO<sub>x</sub> と NO<sub>x</sub> に起因する酸性雨と温室効果ガスによる地球温暖化である。日本において主要な排ガス源は火力発電所、その他産業の工場である。火力発電所では通常、NO<sub>x</sub> は乾式選択的接触還元法、ばいじんは電気集じん装置 (ESP)、そして、SO<sub>x</sub> は湿式石灰・石膏法によって個々に除去されている。これは日本では排出基準が大変厳しく、高い除去効率が要求されるためである。これらの設備費は大変高いため、個々の設備費の低廉化とともに経済的な新プロセスの開発と早期実用化が期待され技術開発が進められてきたが、残念ながら既存技術に優る新プロセスは、まだ確立されていない。しかし、その間、放電プラズマによるガス処理技術が提案され、大気圧下での非平衡プラズマによる NO<sub>x</sub>、SO<sub>x</sub>

処理の研究と実用化が進められてきた。プラズマ処理プロセスは排ガスを電離してプラズマ化し、活性種（ラジカル）による化学反応でガスを処理する方式である。これまで多くの研究者が実験室やパイロット設備において研究、実験を行ってきたが、これらは主に乾式処理法であり、まだ実用化されていなかった。また、プラズマと化学吸収剤による湿式処理法に関しても、実験室、さらに大型パイロット試験までに展開させた研究はほとんどなかった。

このような背景から、本研究では放電プラズマ・化学反応複合排ガス処理プロセスの開発に取り組んだ。排ガス中のNOを非平衡プラズマで酸化させ、その下流においてNO<sub>2</sub>をNa<sub>2</sub>SO<sub>3</sub>水溶液で還元、SO<sub>2</sub>をNaOH水溶液で吸収するNO<sub>x</sub>・SO<sub>x</sub>同時処理プロセスを構築し、研究室で実験を行い、さらに実機ボイラー排ガス処理パイロット設備でプロセスの実証を行った。

一方、ばいじんは低濃度であればプラズマ処理プロセスにてガスと同時除去されることは確認しているが、高濃度の場合にはガス処理への影響も懸念されるのでESPが別途、必要である。電気集じん技術の実用上の課題は現在ではほぼ解決されたと思われるが、更なる装置小型化、低コスト化に寄与する集じん性能向上研究は必須である。その内容は集じん空間におけるガス流れ、粒子挙動の把握、さらに電極形状や配置などの最適化などが挙げられる。これまで、集じん空間でのガス流れや粒子挙動に関して多くの研究者が実験や数値解析を行ってきたが、その対象は殆ど線対平板電極ESPであって、突起型対凸凹型電極ESPなどの実機ESPではなかった。また、電圧・電流特性曲線や放電極、集じん電極の形状、電極間隔や放電線突起間隔など新しい電極設計に有効な数値解析による評価検討も未だ試みられていなかった。そこで、本研究では実機ESPの電気集じん空間における電場特性、2次流れ（イオン風）の主流ガス流への影響などを把握し、電極形状や配置などの電極設計に反映できる解析モデルの構築に取り組んだ。

本研究は、NO<sub>x</sub>、SO<sub>x</sub>処理の新プロセスの実証と実機ESP設計に反映できる静電流体力学（EHD）解析モデルの構築により排ガス処理トータルプロセスのグレードアップを目指したものである。本論文は以下の6章から成り立っている。

第1章では、排ガス処理プロセスにおける電気集じん技術、及びプラズマ処理技術の課題と研究の目的、内容を概説した。

第2章では、電気集じん空間における2種類（丸線型及び突起型）の複数放電極対平板集じん電極に対する三次元EHD解析を実施し、その結果を述べた。最初に、丸線型放電極に対しイオン風のガス流れへの影響を層流モデルと乱流モデルとの場合について比較した。層流の場合には旋回らせん状の渦流が形成されるのに対し、乱流の場合には乱流拡散による渦流形成が抑制されることがわかった。次に、

突起型放電極に対し実機ESP運転時の電圧 40 kV、電流密度  $0.3 \text{ mA/m}^2$  の条件時の解析をした結果、以下の知見を得た。(1) 主流がない場合はイオン風によって放電極突起を基点に長楕円形の渦流が発生し、一方、主流ガスがある場合には、その渦流がガス流れ方向に大きな旋回らせん状の流れを形成する。そのらせん状渦流の周期はEHDナンバー (イオン風速/ガス流速) の減少につれて増加する。

(2) その渦流が認められるか否かは放電極上の突起間隔 ( $S_z$ ) と放電線と集じん極との電極間隔 ( $d$ ) の比 ( $S_z/d$ ) に左右され、 $S_z/d=0.1\sim 0.17$  の範囲が遷移領域で、これ以下になると渦流が認められず流れは乱れる。この開発モデルを利用することにより複数の電極配置 (電極間隔、放電線間隔)、電極形状 (突起間隔) など、様々な組み合わせに対するESP内のガス流れの様子を予測できるようになった。

第3章では、実機産業用の突起型対凸凹型集じん電極ESPに対する電場解析及びEHD解析を実施し、その結果を述べた。放電極突起先端からイオン風が吹き出し集じん極に達すると放電極に沿う垂直流れとなり、また放電極方向に戻る循環流が形成され、この流れは第2章で確認された長楕円形の渦流と一致していることが示された。次に、集じん空間でのガス流れの計算結果を研究室の小型ESPで高電圧下における空気流れの実測値と比較した結果、イオン風の影響が計算結果の方は少し大きくなる傾向があることが示された。さらに、開発された解析モデルを用いることによって、産業用ESP集じん電極形状の最適化、トンネル換気用ESPの放電極突起間隔の最適化、さらに電極間隔 ( $d$ ) 拡大時や超微粒子の $\text{SO}_3$ ミスト ( $0.05 \mu\text{m}$ ) 捕集用湿式ESPの実機運転時などの電圧・電流特性曲線の予測などできることが示された。この結果、電極設計やESP性能計画に非常に役立つツールが開発された。

第4章では、模擬ガスと実ガスを用いた実験装置において実施したプラズマ・化学反応複合プロセスによる $\text{NO}_x$ 、 $\text{SO}_x$ 及びばいじんの同時処理に関する調査結果を述べた。模擬ガス ( $\text{NO}$ 、 $\text{SO}_2$ =各 200 ppm) または、ディーゼル排ガス ( $\text{NO}_x=300 \text{ ppm}$ ) をプラズマ反応と化学反応を同じ容器内で行わせる一段式リアクタ内に通し、そのリアクタ内壁に $\text{Na}_2\text{SO}_3$ と $\text{NaOH}$ の水溶液を上部から流し実験を行った。その結果、模擬ガスの場合では $\text{NO}_x$ を75%、 $\text{SO}_2$ を93%除去でき、 $\text{N}_2\text{O}$ 、 $\text{CO}$ などの副生成物は極めて微量であった。一方、ディーゼル排ガスの場合、 $\text{NO}_x$ は70%除去され、同時にばいじんは88%除去された。なお、 $\text{SO}_2$ は排ガス中に検知されなかった。これらの実験結果から $\text{NO}_x$ 、 $\text{SO}_x$ 及びばいじんの同時処理が可能であることが確認された。

また、 $\text{NO}_x$  処理の経済性と高効率化を図るため、ガス量全部を直接酸化する方式 (直接プラズマ方式) に加え、必要な空気量のみを別途、プラズマ化し、それ

をガスと混合させる間接プラズマ（空気活性ガス注入）方式を新たに構築した。そして、プラズマ反応用と化学反応用の個々のリアクタで構成された二段式実験装置において模擬ガス（NO=300 ppm）を用い実験を行った。その結果、空気活性ガス量が処理排ガス量の 20%以上あれば NO を 80%酸化でき、NO<sub>x</sub> を 70%除去できること、さらに放電電力は直接プラズマ方式に比し僅か 1/3 で済むことが示された。これにより間接プラズマ方式が排ガス量の多い実機適用には有効であることがわかった。

第 5 章では、産業ボイラー排ガス処理パイロット設備において実施したプロセス実証試験（ガス量=500~1000m<sup>3</sup>N/h）の結果を述べた。燃料として都市ガス（NO=約 30 ppm）とA重油（NO=約 80 ppm, SO<sub>x</sub>=35 ppm）を用いて主にNO<sub>x</sub>除去試験を行った結果、以下の知見を得た。（1）空気活性ガス量が増加するに従って、NO酸化量とNO<sub>x</sub>除去量は増大する。空気活性ガス量が 処理排ガス量に対し 24%あればNOを 84~96%酸化でき、NO<sub>x</sub>を 85%除去できる。しかし、NO<sub>x</sub>除去率は時間経過とともに低下し長期的な性能については化学反応が安定していないため、今後の継続、調査を要する。（2）A重油燃焼時においてSO<sub>x</sub>を 86%、同時にばいじんを 36%除去できる。なお、ばいじん除去率が低くなっているのは、ばいじんが極低濃度、かつ微細粒子で、その主体が“すす”のためである。また、化学反応プロセスで用いた水溶液の廃液の化学分析結果では一般排水基準を満足できるレベルであった。これらの結果から、排ガス処理プロセスとして間接プラズマ・化学反応複合プロセスの有効性を実証した。

第 6 章では、本研究で得られた結果の総括を行った。

## 本論文の基礎となる発表論文

No.	論文題目	著者名	発表誌名	本論文との対応
1	Three-Dimensional Electrohydrodynamics of the Spiked-Electrode Electrostatic Precipitator	H. Fujishima Y. Morita M. Okubo T. Yamamoto	Transactions, IEEE on Dielectrics and Electrical Insulation, submitted for publication	第2章
2	電気集じん装置における EHD 場の解析と実験	藤島 英勝 上田 泰稔 富松 一隆	静電気学会誌、 28 巻 4 号、 pp. 218-223 (2004).	第3章
3	Electrohydrodynamics of Spiked Electrode Electrostatic Precipitators	H. Fujishima Y. Ueda K. Tomimatsu T. Yamamoto	J. Electrostatics, Vol. 62, pp. 291-308 (2004).	第3章
4	プラズマ・化学複合プロセスを用いたディーゼル微粒子、NO <sub>x</sub> 、SO <sub>x</sub> の同時処理	藤島 英勝 黒木 智之 大久保雅章 山本 俊昭	日本機械学会論文集、 (B)編 70 巻 691 号、 pp. 817-822 (2004).	第4章
5	間接プラズマ・化学複合プロセスを用いた NO <sub>x</sub> 処理技術 (空気活性ガス注入方式と直接酸化方式の比較)	藤島 英勝 春名 俊治 黒木 智之 大久保雅章 山本 俊昭	日本機械学会論文集、 投稿中	第4章 第5章

## 本論文に関するその他の発表論文

No.	論文題目	著者名	発表誌名
1	Three-Dimensional EHD Simulation for Alternatively-Oriented Spiked Electrode Electrostatic Precipitator	T. Yamamoto H. Fujishima Y. Morita M. Okubo	Proc. of the Society of France Electrostatics, pp. 335-340 (Poitiers, France, 2004).
2	Three-Dimensional EHD Simulation for Point Corona Electrostatic Precipitator Based on Laminar and Turbulent Models	T. Yamamoto Y. Morita H. Fujishima M. Okubo	Proc. of the 5th Int. Electrohydrodynamics Workshop, pp. 318-323 (Poitiers, France, 2004).
3	Experiences of Wet-Type Electrostatic Precipitator Successfully Applied for SO <sub>3</sub> Mist Removal in Boiler Using Sulfur Content Fuel	H. Fujishima C. Nagata	Proc. of the 9th Int. Conf. on Electrostatic Precipitation, Total 12 pages (Kruger Gate, South Africa, 2004).
4	Novel Electrostatic Precipitation in Japan – Colder side ESP and New Wet-Type ESP Application for Boiler Facilities –	H. Fujishima N. Maekawa S. Onishi H. Fujitani	Proc. of the U.S. EPA-DOE-EPRI Combined Power Plant Air Pollution Control Symposium: The Mega Symposium and The A&WMA Specialty Conference on Mercury Emissions, Total 17 pages (Chicago, USA, 2001).

5	Study on Electrode Arrangement of ESP by Numerical Simulation	H. Fujishima Y. Ueda	Proc. of the 9th EPRI-EPA Symp. on Particulate Control, pp. 154-169 (Williamsburg, USA, 1991).
---	---	-------------------------	--

### 審査結果の要旨

本論文は世界的な大気汚染を引き起こす酸性雨の主因となるSO<sub>x</sub>、NO<sub>x</sub>を同時に除去する新プロセスの開発、ならびにばいじんを除去する電気集じん装置（ESP）の合理化設計に展開できる静電流体力学（EHD）場の解析モデル開発によりボイラー排ガス処理トータルプロセスのグレードアップを目指した研究で、以下の成果を得ている。

- (1) ESP 内部のガス流れは、EHD 場にあるためイオン風（二次流れ）の影響を受け複雑な挙動を示すが、これまで試行されていない突起型放電極 ESP に対し三次元 EHD 解析を実施している。その結果、放電極突起点から長楕円形状の渦流が発生し、ガス流れ方向に大きな旋回らせん状の流れを形成していることなど、ESP 内部の特異な現象を解明している。そして、開発した解析モデルを用いて電極配置、電極形状などの様々な組み合わせに対する ESP 内部の流れの予測を可能にしている。
- (2) さらに、特殊な放電・集じん電極形状を有する産業 ESP に対して三次元 EHD 解析を実施し、解析モデルを開発している。これによって、産業 ESP の集じん電極形状やトンネル換気用 ESP 放電突起間隔などの最適化、また乾式 ESP 電極間隔拡大時や超微粒子の SO<sub>3</sub> ミスト (0.05 μm) 捕集用湿式 ESP の実機運転時などの ESP 荷電特性の予測等ができ、ESP の合理化設計を可能としている。
- (3) 大気圧下での非平衡プラズマによって排ガスを電離、プラズマ化し、活性種（ラジカル）による化学反応で排ガスを処理する方式に着目し、プラズマの利点を生かしガス中の NO をプラズマで酸化させ、その下流において酸化された NO<sub>2</sub> を Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> 水溶液で還元、SO<sub>2</sub> を NaOH 水溶液で吸収する非平衡プラズマ・湿式化学反応複合プロセスを構築し、高い性能を実証している。
- (4) 実験室において一段式湿式プラズマ・ケミカルリアクターにおいて模擬ガス（NO、SO<sub>2</sub>）およびディーゼル排ガスを用いた試験結果では、高効率で NO<sub>x</sub>、SO<sub>x</sub> を同時に除去し、また微粒子も効率よく除去できている。さらに、必要な空気量のみを別途、プラズマ化し、それをガスと混合させる間接プラズマ（空気活性ガス注入）方式を構築し、直接プラズマ方式の僅か 1/3 の電力で所定の NO<sub>x</sub> 除去性能が得られることを確認している。

- (5) さらに、産業ボイラーパイロット設備（ガス量 500～1,000m<sup>3</sup>N/h）で都市ガスおよびA重油の燃焼排ガスに対し間接プラズマ・化学複合プロセスによるNO<sub>x</sub>, SO<sub>x</sub>の同時処理実証試験を実施している。その結果、排ガス量の 24%の空気活性ガス量があれば、NO<sub>x</sub>, SO<sub>x</sub>ともに 80%以上の高い除去率を達成でき、上記プロセスの有効性を実証している。
- (6) 空気活性ガス注入・湿式化学複合プロセスのNO<sub>x</sub>, SO<sub>x</sub>処理設備とESPとを組み合わせた新しいボイラー排ガス処理システムを提案している。

以上、プラズマシステムにおける静電流体力学と放電プラズマによる燃焼排ガス処理に関する基礎および応用について数多くの知見を得たものであり、機械工学の発展に資するところが大きい。

### 3. 最終試験結果の要旨

審査委員会は、平成 17 年 2 月 9 日、委員全員の出席のもとに、申請者に内容に説明を行わせ、関連する諸問題について試問を行った結果、合格と判定した。

### 4. 公聴会の日時

平成 17 年 2 月 9 日、午後 4 時 00 分～5 時 30 分

### 5. 審査委員会の所見

本委員会は、本論文の審査ならびに最終試験の結果から、博士（工学）の学位を授与することを適当と認める。