

低圧力直流コロナ放電場におけるラジカル濃度の測定と数値解析

茨木 広*、荒木 拓人、恩田 和夫（豊橋技術科学大学）

Measurement and Numerical Simulation of Radical Concentration at Low-pressure DC Corona Discharge

Hiroshi Ibaraki, Takuto Araki, Kazuo Onda (Toyohashi University of Technology)

1. はじめに

プラズマ放電場で生成されるラジカルによって、機能薄膜の生成や、環境汚染物質の処理ができる。これまでに様々な放電プラズマ応用が提案され、研究・開発され、実用化が図られている。その応用として放電プラズマによる燃焼排ガスの脱硝が期待されている。この脱硝法は、各研究機関で実験的にその高い脱硝性能が確認されている。放電プラズマのより効率的な利用を進めるために、ラジカルの生成・反応などの挙動をより正確に把握する必要がある。今後は、ラジカルや NOx などの反応経路やラジカル生成に適した印加電圧などの運転条件を最適化する必要がある。

これまで我々は、室温、1Torr 程度の条件下において、直流電圧を印加した平板電極間に模擬燃焼排ガスを流し、N、O 等のラジカル濃度を出現質量分析法により実測してきた⁽¹⁾。またアンモニアや種々な炭化水素を添加したパルス放電脱硝を数値解析し、脱硝率へ与える効果や反応経路を明らかにしてきた⁽²⁾⁽³⁾。

本報告では、前報⁽¹⁾より更に低圧力の 0.3Torr 程度の低圧力直流放電場で実測したラジカル濃度を、数値解析により得られたラジカル濃度と比較し、反応経路を調べたので報告する。

2. 低圧力直流放電装置とラジカル濃度測定

ラジカル濃度及び電位分布を測定した実験構成を図 1 に示す。石油火力発電所の燃焼排ガスを想定して、ガス組成

を $N_2/O_2/CO_2/H_2O/NO/Ar = 70.97/1/15/12/0.03/1(\%)$ とし、出現質量分析法でラジカル濃度を測定するため、温度 $T=298K$ 、圧力を $P=40Pa$ とした放電管(円筒状:直径 5cm×長さ 37cm)に 200Ncc/min の流量に調節した模擬燃焼ガスを導入する。線と平板の電極間(線:直径 1mm、長さ 20cm、平板:幅 2cm、長さ 20cm、電極間隔 2cm)に直流電圧(線電極に負電圧)を印加し、コロナ放電を発生させる。電極間に吸引プローブを設置し、放電で発生したラジカルを含むガスを四重極質量分析計(QMS)に吸引する。吸引ガス中のラジカルを出現質量分析法により測定する。加えて、先端以外はガラスで絶縁したタングステン線を電極間に設置し、ラングミュアプローブとして電極間の電位分布を測定する。測定された電位分布より、電極間の換算電界を算出し、数値解析に用いる。

3. 測定結果

流れ方向中央で、線電極下 9mm 位置で、換算電界 186Td で測定したラジカル濃度を表 1 に示す。H、N、O、OH ラジカル濃度を測定したが、H ラジカルは適正な値が得られなかったため、N、O、OH のみを示す。表 1 において、ガス組成より N ラジカル濃度が多く、O ラジカルは少なく、OH ラジカルは多いことがわかる。また、ガス流れ方向に測定した N ラジカル濃度を表 2 に示す。測定位置は線電極下 9mm の位置で、上流に比べて下流の側の濃度が高い分布が得られた。低圧力での測定のため、ラジカルが消滅せず、

表 1 流れ方向中央でのラジカル濃度(E/N=186Td)

Table1 Radical Concentration at Center of Flow Direction

(E/N=186Td)

化学種	測定濃度(ppm)	計算濃度(ppm)
N	660	520
O	630	450
OH	1230	5

表 2 N ラジカル濃度の流れ分布(E/N=186Td)

Table2 N Radical Concentration along Flow Distribution (E/N=186Td)

化学種	流れ方向濃度(ppm)		
	下流(15cm)	中央(10cm)	上流(50cm)
N	1120	660	250

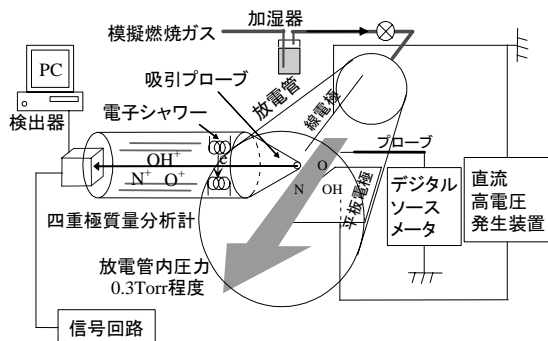


図 1 ラジカル及び電位分布を測定した実験構成

Fig. 1 Experimental Apparatus for Measurement of Radical Concentration and Potential Distribution

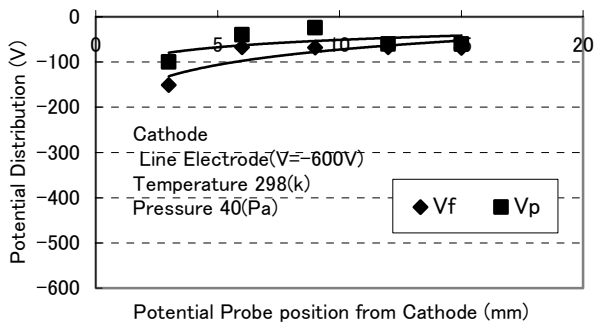


図2 流れ方向中央での電極間の電位分布

Fig. 2 Measured Potential Distribution between Electrodes at Center of Flow Direction

下流に蓄積したと考えられる。

同条件下で測定した流れ方向中央での電極間電位分布を図2に示す。横軸は線電極からの電位プローブの距離を示している。図中の Vf は浮遊電位、Vp はラングミュアプローブ法により求めたプラズマ電位である。線電極には-600Vの直流電圧を印加しており、図中では左縦軸が線電極側であり、右縦軸が平板電極側である。電極付近では陰極降下、陽極降下により正確な電位が測定できないので、電極近傍を除いて測定した。浮遊電位とプラズマ電位に大きな差異は見られなかった。これらを近似した電位分布から電界を求め、ガス密度で割って換算電界を算出した。換算電界 E/N は 186~328Td となり、これらの値を数値解析に用いた。

4. 解析結果

換算電界 E/N の最小値 186Td における解析結果を図3に示す。計算は電界印加後 10ms まで行なった。この時間は、ガスの流量や、放電管の体積などから求められる、模擬排ガスが電極中央部分に到達する時間である。図3より N、O、OH ラジカル濃度は 520ppm、450ppm、5ppm となる。表1

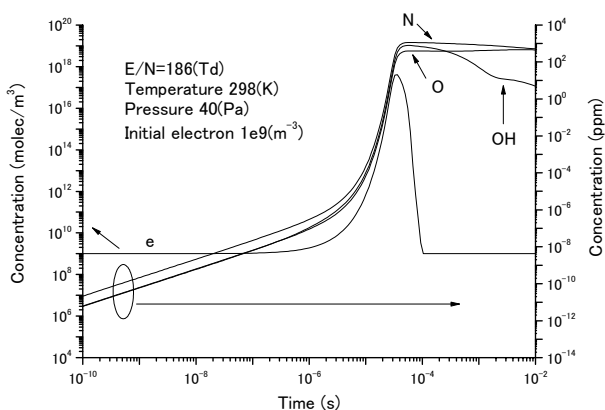


図3 流れ方向中央におけるラジカル濃度の時間変化 (E/N=186Td)

Fig. 3 Time Change of Radical Concentration At Center of Flow Direction (E/N=186Td)

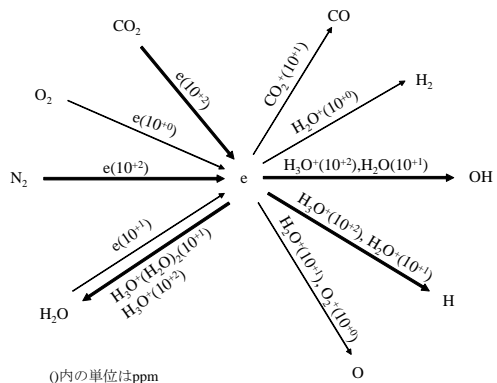


図4 E/N=186Tdにおける電子反応経路

Fig. 4 Electron Reaction Paths for E/N=186Td

の実験結果と比較すると、N、O、OH いずれも測定値の方が高くなるのが分かる。O ラジカルに比べて N ラジカルの方が多くという傾向は一致したが、OH ラジカルについては更に検討する必要がある。図3の解析では直流放電場において、電子の密度にピークが現れることが分かった。換算電界を変化させた結果、最大値は異なるが同じようにピークが表れることが分かった。N、O、OH は電子の生成と消滅経路を図4に示す。中央の電子に向かう矢印が生成、電子から出る矢印が消滅を示す。電子衝突により生成される電子は、やがてイオン化した二次生成物により消費されることが分かる。主要反応経路は生成より消滅のほうが多くなる。生成より消滅が多いため電子は減少する。N、Oなどのラジカルは主に電子衝突反応により生成されるため、電子密度が減少すると生成量が減少する。電子密度が減り始めてからは、NはOH、OHはNとH、H₃O⁺と反応し減少する。Oは電子とCO₂⁺と反応して増加する。

5. まとめ

放電脱硝法において重要な役割を果たすラジカルの挙動について、低圧力場でその濃度を測定し、換算電界などを考慮した数値解析を行なった。解析から直流放電場でも電子密度に最大値が表れることが分かった。N、O ラジカル濃度の大小関係は一致したが、OH ラジカル濃度については実測と解析は一致しなかった。その理由として、換算電界の違いが挙げられる。放電は絶えず変化するため換算電界が一定に保たれないが、一定として解析するので結果が変わってしまう。またOHについては器壁に吸着されやすいH₂Oが測定を邪魔したことも考えられるので、引き続きOH濃度について検討したい。また正極性での特性も検討する。

文献

- (1) 漆畑正太、伊藤衡平、恩田和夫、電気学会全国大会講演論文集、1-036、p.47、2003
- (2) 楠博敦、伊藤衡平、恩田和夫、電気学会論文誌 Vol.123-B、No.12、pp.1546-1553、2003
- (3) 楠博敦、茨木広、伊藤衡平、荒木拓人、恩田和夫、電気学会論文誌、Vol.125-B、No.2、2005 掲載予定