

# 博 士 論 文

## バリア放電の放電発生点配置における 放電発生メカニズムの研究

A study on Mechanism of Discharge Generation in the  
Discharge Generating Point Arrangement of  
Dielectric Barrier Discharge

金沢大学大学院 自然科学研究科  
機械科学専攻

学籍番号	1924032005
氏名	竹本 翔一
主任指導教員	松井 良彦
提出年月	2022 年 9 月

# 目次

	頁
1章 序論	4
1.1. はじめに	4
1.2. プラズマとは	4
1.3. 放電プラズマとその分類	5
1.4. 放電過程における非熱プラズマ領域	6
1.5. 放電による非熱プラズマを形成する要素	7
1.6. バリア放電の特徴	9
1.7. バリア放電研究における課題	13
1.8. 放電空間密度を高める課題とアプローチ	19
1.9. 放電本数減少メカニズムの推定	28
1.9.1. 1つの放電発生点における放電発生メカニズム	28
1.9.2. 複数の放電発生点における放電発生メカニズム	33
1.9.3. 誘電体電極の複数の放電発生点での放電発生メカニズム	36
1.9.4. 放電結合条件の試算	40
1.10. 本研究の目的	42
1.11. 本論文の構成	43
参考文献	44
2章 放電結合の観察/データ取得手段の構築	48
2.1. 本研究での構築手段の概要	48
2.2. 実験装置概要	53
2.2.1. 放電リアクタ仕様	53
2.2.2. 実験装置と仕様	58
2.3. 実験系全体の放電電荷量と電力の算出	65
2.4. 放電本数・放電1本あたりの平均電荷量の計算手法構築	67
2.4.1. 電流波形の高精度サンプリング	67
2.4.2. 放電結合を取り扱う空間/時間単位	68
2.4.3. 放電本数の計算	74

2.4.4.	放電本数計算の確からしさ検証	80
2.4.5.	放電 1 本あたりの平均電荷量の計算	84
2.5.	放電 1 本あたりの電荷量ばらつきの計算	84
2.6.	実機試験での測定/計算の流れ	89
	参考文献	93
3 章	測定結果・考察	95
3.1.	測定結果	95
3.2.	放電本数減少メカニズムの考察	101
4 章	結論	103
	主な使用記号	106
	関連公表論文	108
	謝辞	109

# 1章 序論

## 1.1. はじめに

本研究では、気体を流通させた電極間に高電圧を印可することにより生じる放電プラズマ、この中でも誘電体を介した電極間に生じるバリア放電に焦点を当てる。

本章では、バリア放電の属する現象であるプラズマ/放電現象について説明する。次にバリア放電の生成過程・特徴と研究課題を述べ、本研究の目的を述べる。

## 1.2. プラズマとは

プラズマ（電離気体）は、図 1.1 に示すように固体・液体・気体に次ぐ物質の第 4 の状態である。プラズマは、気体を構成する分子が電離し正電荷のイオンと負電荷の電子に分かれて領域全体では中性を保ちつつ運動している状態であり、電離した気体に相当する。プラズマは、主に熱エネルギーや電気エネルギーにより、物質が高エネルギー状態となることで形成される。電気エネルギーを用いた例では、気体を介した電極間に高電圧を印可することにより電極間に放電現象が起こる。この放電により加速された電極間の電子が気体分子に衝突し、分子をイオンと電子に電離することでプラズマ状態としている。

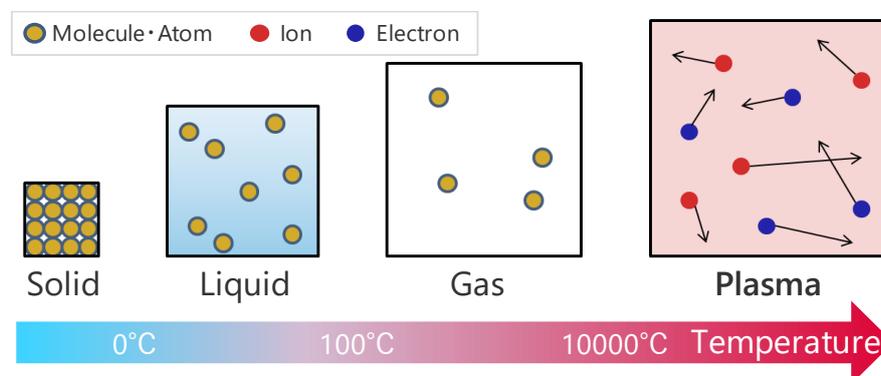


Fig. 1.1 State of matter.

### 1.3. 放電プラズマとその分類

放電は一对の電極間に電圧を印可し、これにより生じる電界によって電極間の空間（以下、放電空間と呼称）において絶縁破壊し、電流が流れる現象をいう。このような電圧印加に伴う放電によって形成されるプラズマを放電プラズマと呼ぶ。本論文での絶縁破壊とは、放電空間に電流が流れることを指す。

放電プラズマは進展の段階や電極の材質・形状により形態は多種多様であるが、大きく分類して非熱プラズマと熱プラズマに分けられる。非熱プラズマは、放電により形成されたプラズマ領域の電子温度  $T_e$  とイオン温度  $T_i$ 、中性子温度  $T_g$  の関係が  $T_e \gg T_i \approx T_g$  となる状態を指す。ここでは放電により電子のみが加速され、電子と分子の衝突、あるいは電子と電極の衝突が起こる。主に加速電子と分子の衝突により生じた活性種、例えば大気雰囲気中では O ラジカルや OH ラジカル、 $HO_2$  ラジカルなどによる反応が促進される。一方で熱プラズマは、 $T_e = T_i = T_g$  となる状態、すなわち放電空間の熱緩和が進行した状態であり、主に熱により解離した活性種による反応が促進される。

本研究では、前述した放電プラズマ中の非熱プラズマに着目し、加速電子と分子の衝突に起因する反応に焦点を当てる。

#### 1.4. 放電過程における非熱プラズマ領域

ここでは、一对の電極間で放電が発生した後、電圧上昇に伴う放電の形態変化について説明する。その後、非熱プラズマに該当する放電の形態について述べる。

気体中に空間をあけて配置した一对の電極間に電圧を印加し、徐々に電源の電圧を上昇してゆくと、電極間の電圧と電流は図 1.2 の様な振る舞いとなる<sup>(1.1)</sup>。

図 1.2 中 a で生じる放電電流は、放電空間中に存在する宇宙線や紫外線などによる気体の電離によって毎秒 10~20 個/cm<sup>3</sup> 発生する電子・イオンに起因した 10<sup>-17</sup>A/cm<sup>2</sup> 程度の電流である<sup>(1.2)</sup>。このような初期の放電にて流れる電流を暗流と呼ぶ。

電源の電圧を上昇させると、電極間の電界が強くなり陰極付近で気体の電離が生じてパルス状の放電電流が散発的に生じ始める。電極間では均一な電界が形成されており、図 1.2 中 b に示すように一定電圧となる。このときのパルス状の放電は、電子衝突により気体分子を電離させるエネルギーを持ち、電離によって生じた電子が雪崩式に増加することで放電が進行する。この領域は非熱プラズマの代表的な状態で、電極形状により、コロナ放電、ストリーマ放電、トリチェルパルス放電などと呼ばれる<sup>(1.3),(1.4)</sup>。この状態の放電は、電子による衝突電離作用である  $\alpha$  作用が多く発生している状態であり、加速電子と分子との衝突反応促進に向いている放電形態である<sup>(1.3)</sup>。

更に電源の電圧を上昇させると、陰極からの電子放出による気体分子の電離は増加する。電離により生じた正イオンにより陰極付近に強電界が形成され、更には正イオンにおいても衝突電離作用である  $\beta$  作用が引き起こされ、図 1.2 中 c のように、より大きな電流が流れ始める。この放電形態はグロー放電と呼ばれる。

更に電源の電圧を上昇させ、陰極付近の強電界領域が拡大すると、電離により生じた正イオンは陰極へ向かい衝突し、陰極から更なる電子を放出させる反応が増加する。陰極からの直接電子放出が過剰になる、または陰極が加熱されることによる熱電子放出が多数生じると、図 1.2 中 d の様に急激に放電電流が流れる。この大電流となる放電形態をアーク放電と呼ぶ。アーク放電は、正イオンの陰極への衝突による二次電子放出である  $\gamma$  作用が多く発生している状態であり、熱を伴う放電であることから、熱による気体分子の解離反応促進に向いている放電形態である<sup>(1.3)</sup>。

前記の放電形態のうち、非熱プラズマ特有の電子衝突による反応促進に向いている

のは図 1.2 中 b の放電形態であり，図 1.2 中 c のグロー放電の高電圧側から図 1.2 中 d のアーク放電は熱プラズマの領域となる。

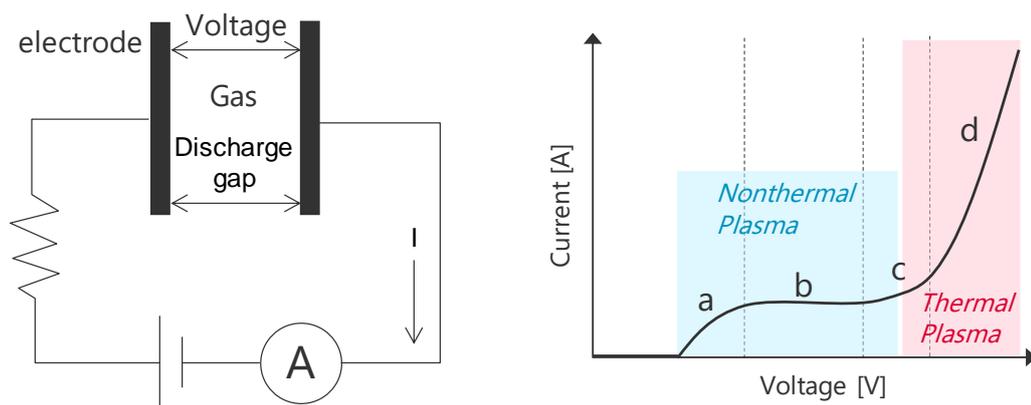


Fig. 1.2 Discharge process and nonthermal plasma region<sup>(1.1)</sup>.

### 1.5. 放電による非熱プラズマを形成する要素

ここでは，放電による非熱プラズマを生じさせる必要要素について述べる．非熱プラズマを発生させるための構成要素としては，2つの電極とそれら電極間に形成される放電空間，電極に電圧印加するための電圧供給電源が必要となる。

電極の構成として考えられる分類は，大きく2種類ある．一つは，両電極を金属とし，その電極間で放電が生じる金属-金属電極である．もう一つは，金属電極間に誘電体（バリア）を配置し，誘電体表面と金属または誘電体表面同士の間で放電が生じる誘電体電極である．金属電極と誘電体電極の放電の違いは，電極間のインピーダンス構成が異なることに起因する．以降，それぞれの放電について解説する．本論文では，

金属-金属電極による放電を金属電極放電，誘電体電極による放電をバリア放電の呼称で統一する。

金属電極放電とバリア放電それぞれの非熱プラズマ形成状態を図1.3に示す。

金属電極放電では，電極間のインピーダンスは気体のオーム抵抗成分が主である。気体は通常高いインピーダンスを持つが，1.4節で示したように電極間で放電が発生すると放電空間にて電子衝突と電離作用が起こり，インピーダンスが減少する。金属電極放電の場合は $\alpha$ ， $\beta$ ， $\gamma$ の電離作用が急激に進展することから，即座に図1.2中b~dの過程を経て熱プラズマ領域であるアーク放電まで進展する。金属電極放電で非熱プラズマを維持する手段としては，図1.3(a)に示すように針や棒電極を用いて先端部に強電界をつくり，その先端部近傍の気体のみを電離させるコロナ放電に代表される方法がある。この方法では，電極間が放電により導通しないためインピーダンスは高いまま保たれ，アーク放電への急激な進展はない。しかし，この方法では非熱プラズマの状態を維持できる範囲が狭く，放電空間全体で安定した非熱プラズマを形成するには不向きである。

一方バリア放電では，電極間のインピーダンスは気体のオーム抵抗成分と誘電体による静電容量成分である。金属電極放電との大きな違いは，放電発生時の加速電子の移動は誘電体によってせき止められることである。これにより，放電電流の増加は制限され放電は発生後に終了し，図1.3(b)に示すように電極間のまた別の領域で放電が生じることを繰り返す。よって印加電圧をいくら上昇させても熱プラズマへは進展せず，放電空間全体で安定して非熱プラズマを維持することができる。

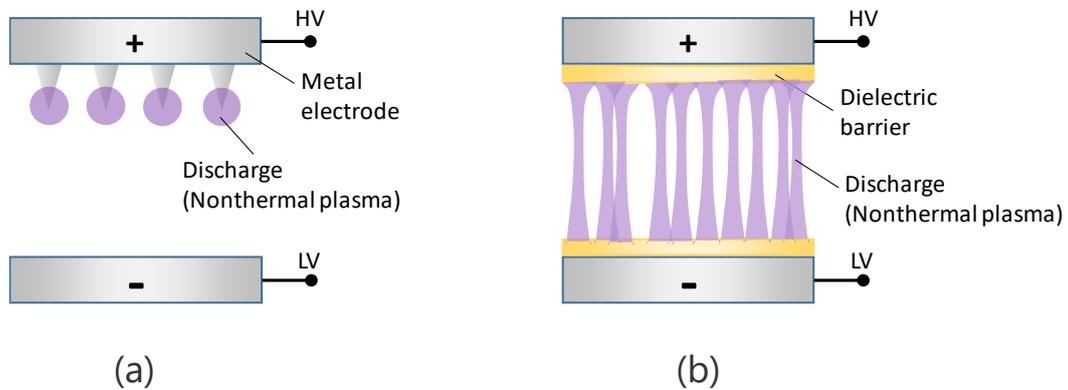


Fig. 1.3 Nonthermal plasma formation state (a)Metal electrode discharge (Corona discharge), (b)Barrier discharge.

## 1.6. バリア放電の特徴

1.5 節に示した金属電極放電とバリア放電の特徴を鑑みると、放電空間全体で安定した非熱プラズマを形成するにはバリア放電が有用であると言える。ここではバリア放電の特徴について説明する。

図 1.4 にバリア放電発生のための電極構成概要図を示す。誘電体の内部に金属電極が埋め込まれた電極板 2 枚を空間を空けて対向させて配置し、電極間に交流電圧を印加する。図 1.5 に電圧印加時の放電空間の電界形成想定図を示す。電極間に電圧を印加すると、高電圧電極の誘電体表面には、電界により電離された電子や放電空間中の電子が収集される。高電圧電極の誘電体表面に電子が蓄積されるに伴い、放電空間では電極の陽極-陰極とは逆の極性を持つ電界が形成される。印加電圧の上昇によって誘電体表面の電界強度が高くなり放電空間の絶縁破壊強度を超過すると、蓄積された電子は高電圧電極から接地電極へ一気に加速され移動する。これにより放電が生じる。

図 1.6 に、交流電圧印加にて繰り返しバリア放電が発生する生滅過程を示す。電極

間に電圧を印加することで高電圧電極と接地電極間で電位差が生じる。徐々に印加電圧を上昇させてゆくと高電圧側の誘電体表面電位が上昇して電界強度が高くなる。電極間で絶縁破壊が起きると、図 1.6 (a) に示すように、誘電体沿面や近傍の放電空間に存在する電子が加速され、対向極へ移動し放電が開始する。この際、加速電子が気体に衝突することでさらに気体分子の一部から加速電子が生じ、これらの電子も巻き込みながら図 1.6 (b) に示すように対向極の誘電体表面へ移動し、放電が停止する。一方、電離により生成された正イオンは陰極側へ移動する。加速電子が対向側の誘電体表面に到達した際、絶縁体である誘電体が存在するため電子は接地電極に流れ込むことが出来ず、図 1.6 (c) のように誘電体表面上に蓄積される。同様に、正イオンも陰極の誘電体表面に蓄積される。以上がバリア放電における 1 本の放電が起こる現象である。

続いて、逆に電圧（図 1.6 中の負極性の電圧）が印可された場合、図 1.6 (d) に示すように陽極と陰極を逆にして図 1.6 (a) と同様の放電現象が生じる。切り替えされた印可電圧により陽極と陰極が切り替わりながら放電が繰り返される。バリア放電では、この放電を繰り返し、非熱プラズマ状態を維持することができる。これにより電極間に強電界を形成し、反応が起こる状態を繰り返し形成できる。

加えて 1.5 節でも述べたように、誘電体の働きにより放電は発生後に終了し、電極間のまた別の領域で放電が生じることを繰り返すため、放電空間の広い領域で発生し、大面積で電子衝突反応を起こすことができる。

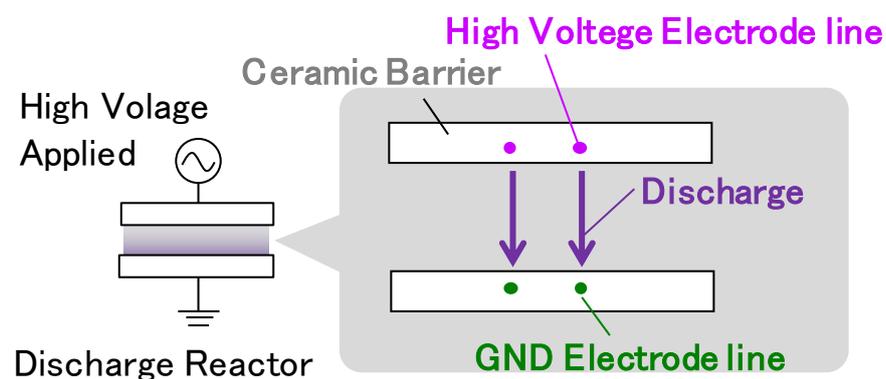


Fig. 1.4 Barrier discharge.

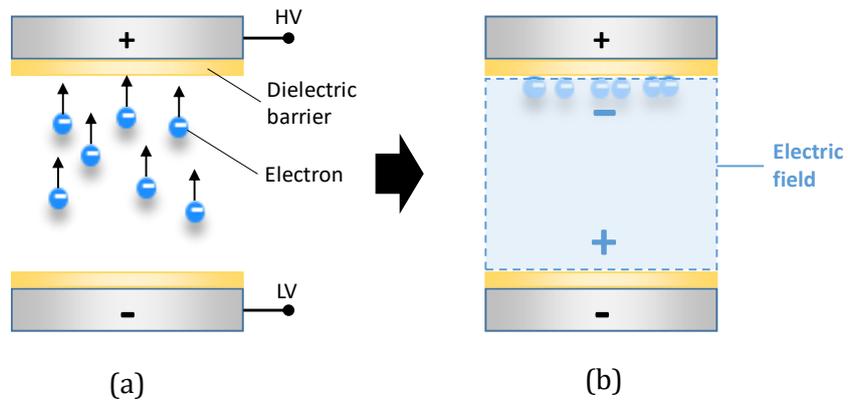


Fig. 1.5 Electric field formation in dielectric electrode.

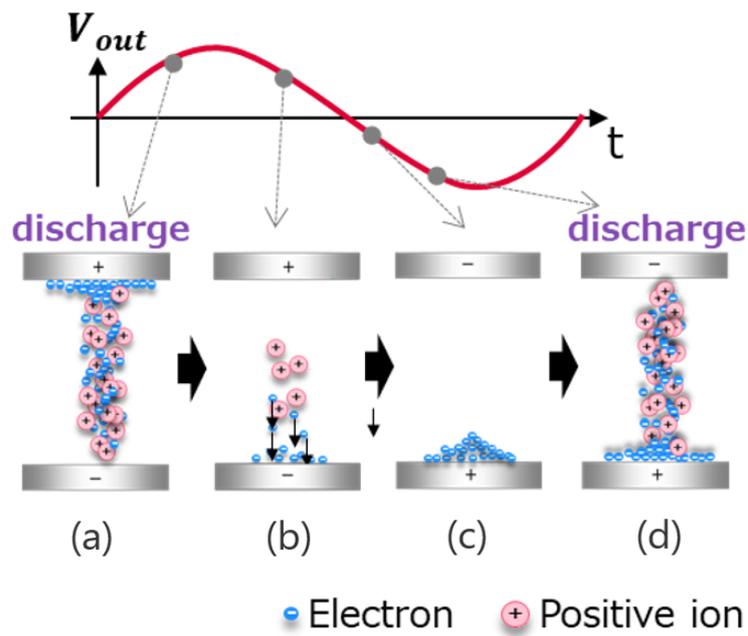


Fig. 1.6 Barrier discharge generation process.

バリア放電の反応促進における特徴、利点を以下にまとめる。

- ・放電電流は誘電体のインピーダンスで制限され熱プラズマに移行しない。⇒活性種により反応が促進される非熱プラズマ領域で強電界を安定して維持可能

- ・電極間に印加する正負の印可電圧の切り替えにより、反応が起こる状態を繰り返し形成できる。⇒周波数を増加させることで時間あたりの放電回数を増加でき、電子衝突反応の頻度増加を制御可能

- ・放電空間全体で均一に放電が生じるため、対象物を反応させる反応場を広く確保できる。⇒空間利用率を向上、省スペースで効率的に反応を促すことが可能

以上のように、バリア放電は、“非熱プラズマの反応場を安定して形成”、“繰り返し反応場を形成”、“反応領域を広くとれる”といった特長を持つ。これは放電1本・時間・空間あたりの化学反応の増加に繋がり、バリア放電を扱う反応装置の小型化・高効率化を可能にする。

このため、バリア放電は有害物処理・表面加工・物質励起・医療などの様々な分野で応用されており<sup>(1.5)-(1.9)</sup>、放電の産業応用としては数多くの成功例を有する稀有な存在である。バリア放電の応用先として最も多いものはオゾン発生装置（オゾナイザ）であり、生成したオゾンの高酸化作用を利用した数多くの化学反応装置が報告されている。他の応用事例としては、放電空間に種々の気体を流して放電化学反応を生じさせ、活性生成物や過酸化水素、ヒドラジン（ $N_2H_4$ ）を生成したり、炭化水素系の酸化による無害化処理の研究も古くから行われている<sup>(1.10),(1.11)</sup>。

また、ガス燃焼の安定化にバリア放電を利用する研究もなされている<sup>(1.12)</sup>。近年では、水処理を目的に非処理水に直接放電させる研究も盛んである。これはバリア放電で発生させた活性な放電生成物を利用するものである。活性生成物は一般的に寿命が短いので、水と直ちに反応させるための方式や電極構造の工夫が行われている。例えば、非処理水の水面を一方の電極としたもの<sup>(1.13)</sup>や、水中の気泡中で放電を行わせる研究も幾つか報告されている<sup>(1.14)~(1.16)</sup>。放電で生成された短寿命な活性生成物ガスをエジ

ェクタで直ちに非処理水と混合させる研究もある<sup>(1.17)</sup>。ガス処理では被処理ガスを放電空間に流入させて分解する方式や<sup>(1.18)</sup>，放電空間に吸着剤を詰め込み放電分解処理させる研究も行われている<sup>(1.19), (1.20)</sup>。

## 1.7. バリア放電研究における課題

バリア放電による化学反応促進のためには，反応に寄与する加速電子を増やすことが重要と考えられる。これを観点ごとに分類すると，“放電1本あたりの電子数（放電電子密度）を増加させる”，“単位時間あたりの放電回数（放電時間密度）を増加させる”，“放電発生領域の空間的な占有率（放電空間密度）を高める”の3つが研究開発における焦点となる。

1つ目の“放電1本あたりの電子数（放電電子密度）を増加させる”の観点について，考えを述べる。まず放電電子密度を増加させるには，放電領域を広げること，加速電子数を増加させること，さらに反応に適した電子エネルギーを持たせることが必要となる。

放電領域について，放電電極や形態によって放電範囲が決まる。先行研究の報告によれば，電極間で生じる電気力線方向より，高電圧極からの放射角は60deg程度になり，電極間の距離が広がると放射角は小さくなる方向へ推移するとの報告がある<sup>(1.3)</sup>。また高電圧極を正にした場合と負にした場合で，放電の広がりが変化し領域が変化することも報告されている<sup>(1.21)</sup>。

本研究で取り扱うバリア放電の電極間距離（以下，放電ギャップと呼称）は，安価電源を睨み印加電圧～10kV以下を想定するため0.5～2.0mmの範囲を用いる。先行研究によれば，この放電ギャップ範囲では放電領域の広がりは放電開始点から60deg程度を取る<sup>(1.3)</sup>と考え，本研究ではこの範囲の放電領域を形成しているとみなし検討を進める。

次に，加速電子数を増加させる手段については，電極間に高電圧を印加し，電界強度を高めることが有効である。先行研究では，単位面積あたりの電界強度である換算電界として30Tdから300Td（Td=1×10<sup>-17</sup>V・cm<sup>2</sup>）を振っており，反応生成物とす

るオゾンの生成効率は増加するが正比例せず, 100Td から次第に飽和に向かい, 150Td で飽和する<sup>(1.22), (1.23)</sup>. 大気を原料ガスに用いたオゾナイザを例にとると, 図 1.7 に示すように, 大気を前提とした換算電界 300 Td でのオゾン生成の事例では, オゾン生成の前段反応である O<sub>2</sub> 解離反応が飽和した状態となる. この現象により, 熱力学計算での放電エネルギーに対するオゾン生成量は 183g/kWh に対し, 実際は電子衝突反応の減少のために反応が飽和し 110g/kWh 程度で頭打ちとなる<sup>(1.3)</sup>. 筆者の考えでは, 飽和する原因として加速電子数の増加に伴い, 狙いの反応ではない化学反応の割合が増加するためと推定する<sup>(1.24)~(1.27)</sup>. このように, 空間の電界強度を高めることにより, 加速電子数の増加は可能であるが, 化学反応は頭打ちになることが想定される. よって本研究では, オゾン生成を例とした場合に, 反応が飽和するまでの 30~150Td の領域電界を用いる.

最後に, 電子エネルギーの観点を述べる. 反応を促すには電子衝突によって解離させたい対象物に合わせた電子エネルギーを持たせることが必要となる. 例えば, 大気環境で用いるオゾナイザにおいては, 供給ガスで対象とする主な反応種の結合エネルギーは O-O : 5.12 eV, N-N : 7 eV であり, オゾン生成反応 (O<sup>·</sup>+O<sub>2</sub>→O<sub>3</sub>) の前段反応である O<sub>2</sub> 解離 (O<sub>2</sub>→O<sup>·</sup>+O<sup>·</sup>) のみを行うには, 5.12~7eV の電子エネルギー分布とすればよい<sup>(1.3)</sup>. 電子は電界によって加速され, エネルギーを持つ. このため電界強度を変化させることでエネルギーを変えることが可能である. バリア放電の形成時に電子エネルギーは図 1.8 に示したエネルギー分布を持つことが報告されている<sup>(1.3)</sup>. 一方で, バリア放電における電子エネルギー分布の中央値は電界強度の大きさに対し, 大きく変化することはなく, 本研究で用いる 30~150Td では 2~5eV の範囲でしか変化しないことが報告されている<sup>(1.3)</sup>.

以上より, “放電 1 本あたりの加速電子数 (放電電子密度) を増加させる”の観点に関しては, 先行研究より放電領域は放射角 60deg と想定する. また電子密度は過剰に増加すると対象物を生成する電子衝突反応は漸近する, 電子エネルギーの電界強度での変化は小さい, といった現象や特性について明らかにされている. このため本研究の本題としては加速電子数の増加についての中身は扱わない. 本論文では, バリア放電の特性として, 下記項目を対象とする.

- ・放電領域はギャップ 1 mm, 放射角 60deg での広がりとなると想定する
- ・電界強度 30~150Td を作り出すため, 放電ギャップとして 1 mm, 印可電圧 7.5~10kV
- ・本研究で扱う電界強度での電子エネルギーは 2~5eV と想定する

次に 2 つ目の“単位時間あたりの放電回数（放電時間密度）を増加させる”の観点について、考えを述べる。

放電時間密度を増加させるには、放電発生時間を短くするための正負電圧印可の（交流電圧周波数の）高周波化および放電リアクタの短放電ギャップ化が有効である。

まず、高周波化について述べる。先行研究では周波数の上昇に伴い、単位時間あたりの電子衝突頻度が増加し、効率向上が見られる<sup>(1.28)-(1.30)</sup>。しかし周波数を倍にしても、放電空間内の加速電子数に対する反応対象物数の減少や放電空間内の温度上昇による生成物の熱分解によって時間効率は単純に倍にはならない。

また近年の研究では、所定の周波数以上は放電回数の増加に伴い、反応促進効果が減少することが報告されている<sup>(1.31)</sup>。これは、特定の放電ギャップにおいて、凡そ 60kHz 以上の周波数にて起こる、イオントラッピングという現象による影響である<sup>(1.3)</sup>。

イオントラッピングとは、電子衝突により生成された正イオンの消滅過程を待たずして交流電圧による逆電界形成が生じるため、放電空間に電子と正イオンが捕捉される現象をいう<sup>(1.3)</sup>。この現象により、加速電子は常に放電空間中に補足された状態となり、電子衝突反応が生じなくなるために、活性種の生成が起こらず反応が促進されない。

以上より、“単位時間あたりの放電回数（放電時間密度）を増加させる”の観点に関しては、約 45kHz の周波数において反応の時間効率向上効果が得られることが判っている。しかしながら約 60kHz 以上の周波数ではイオントラッピング現象が起こり、反応促進に関する限界は既に明らかとなっている。

上記したように交流電圧周波数と放電ギャップの関係において有効だと考える領域が明確であることから、本論文では周波数 45kHz, 放電ギャップ 1mm として条件を固定する。条件選定の詳細については 2 章にて述べる。

最後に 3 つ目の“放電発生領域の空間的な占有率（放電空間密度）を高める”の観点

について考えを述べる。放電空間密度を増加させるには、空間中に放電していない領域がないように均一に放電を配置することが最良であると考え。放電空間密度の増加の方法としては、電極形状や配置により電界の集中箇所（以下、放電発生点と呼称）を作り出し、この放電発生点を制御することが有効である。

先行研究として、S.L.Park らは、メッシュ形状電極を用いて放電発生点を制御し、放電の空間占有率を改善している<sup>(1.32)</sup>。また高木らは、電極板の放電面に複数の四角錐形状を持つ多点突起電極を用いて放電発生点を制御し、効率が最大約 4.5 倍に改善することを示している<sup>(1.33)</sup>。いずれの研究も、電極間の放電空間における放電の占有率向上を狙っており、バリア放電において一般的な平面-平面電極に対して、生成物量の向上効果が報告されている。

また Ernest らは、メッシュサイズの異なる 2 種類の電極を用いて放電発生点の配置や数を変え、そのマクロな電気特性と放電での生成物量の関わりについて報告している<sup>(1.34)</sup>。このように、この観点に関しては一般的な平面-平面電極形状に対するメッシュ形状電極や多点突起電極の有効性や、放電発生点の配置や数の大まかな違いによる効果は示されている。しかしながら、いずれの研究でも放電発生点の配置による放電現象、すなわち 1 本の放電領域や電荷量、また放電本数の増減と反応促進効果の関わりについては未解明である。また先行研究において、放電 1 本の形成～進展を実験的に捉えたもの<sup>(1.35), (1.36)</sup>や数値解析等でメカニズムの解明を試みたもの<sup>(1.37)~(1.42)</sup>は報告されているが、工業利用のように多数の放電が隣接する放電の関わりについては報告例がない。

図 1.9 には、バリア放電による化学反応促進の 3 つの観点において、メカニズムとその実現手段が報告されている代表的な先行研究をマッピングしたグラフを示す。“放電空間密度を高める”観点に関しては、その他の観点と比較して議論が開始された年度が新しく、メカニズムや実現手段における議論が不十分であると捉えている。

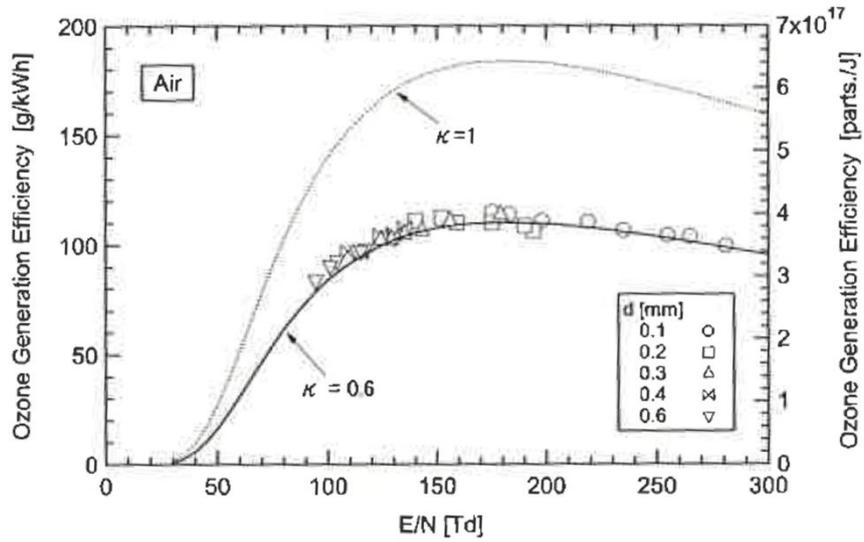


Fig. 1.7 Ozone production efficiency for converted electric field<sup>(1,3)</sup>.

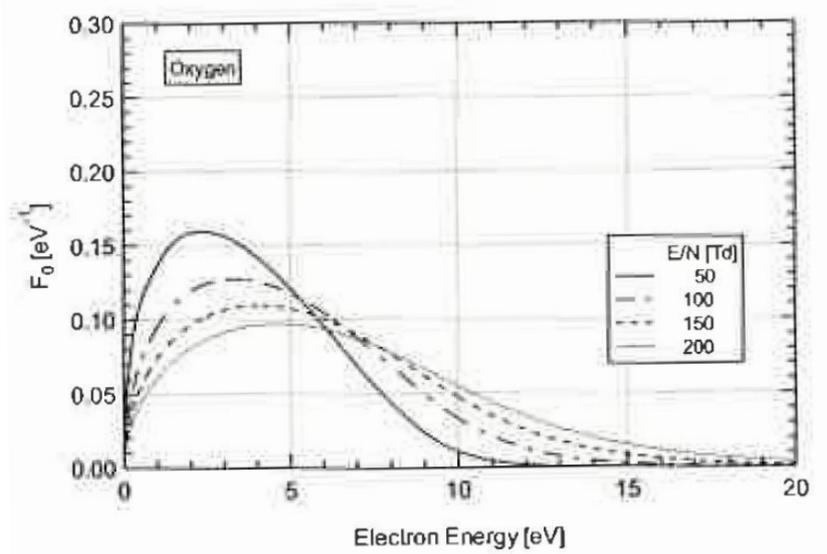


Fig. 1.8 Electron energy distribution for converted electric field in barrier discharge<sup>(1,3)</sup>.

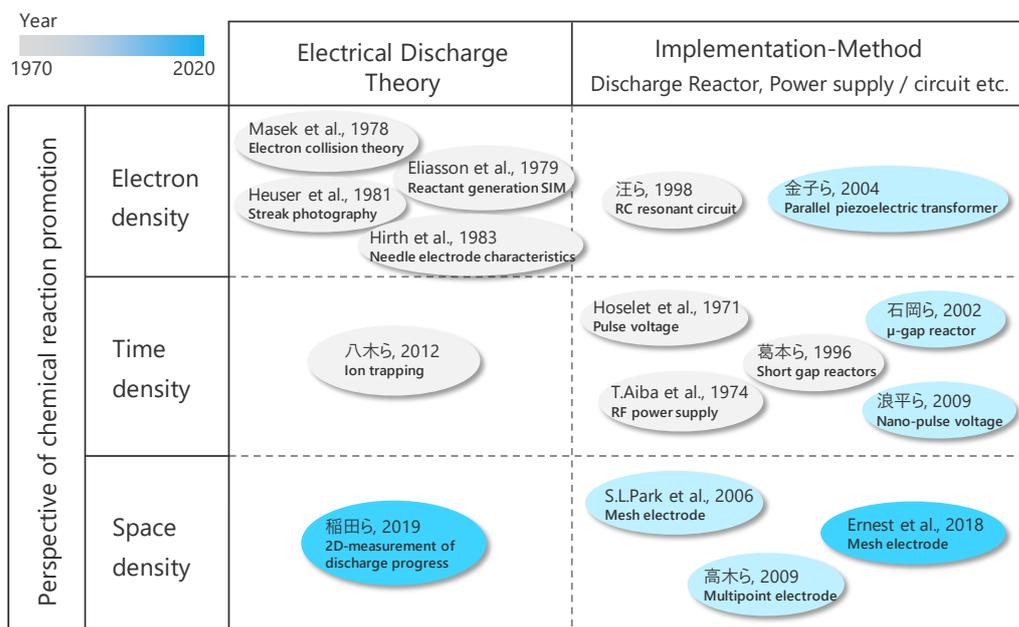


Fig. 1.9 Previous research on chemical reaction promotion in barrier discharge.

## 1.8. 放電空間密度を高める課題とアプローチ

この節では、“放電発生領域の空間的な占有率（放電空間密度）を高める”の観点に関して先行研究の情報を整理した後、本論文にて取り扱う課題を説明する。

放電発生領域の空間的な占有率を高めるには、前述のように空間中に放電していない領域がないように均一に配置することが最良と考える。このためには1本放電の電荷量・広がる領域を加味し、空間中に放電を適切に配置することが重要と考える。

S.L.Park らは、メッシュ形状電極でのバリア放電を用いてオゾン生成効率を向上させた論文を報告している<sup>(1.32)</sup>。図1.10にメッシュ形状電極とオゾン生成効率の測定結果を示す。S = 0.00 mm のプロットが従来の平面-平面電極でのオゾン生成効率を示し、それ以外がメッシュ形状電極でのオゾン生成効率を示している。メッシュ形状電極は入力電圧に対するオゾン生成効率が高いことが見て取れる。論文中では、そのメカニズムを、メッシュ形状電極の電極線交差部において電界集中が生じるため、放電に必要な電圧が下がり、平面-平面電極と比較して小さい電圧印加で放電本数を増加させることができ、O<sub>2</sub>分子を電離させる機会が増加するためとしている。

メッシュ形状電極の電界集中により電圧を下げ、低電圧(低電力)にて放電を多く発生させることをポイントとしているが、実際の放電本数や放電領域や電荷量については言及しておらず、メッシュ電極による生成効率向上のメカニズムを定量的に説明していない。

また高木らの論文<sup>(1.33)</sup>では、電極板の放電面に複数の四角錐形状を持つ多点突起電極（Multipoint 電極）を用いたときのオゾン生成効率の向上について、メカニズムを議論している。図1.11に Multipoint 電極とオゾン生成効率の測定結果を示す。Multipoint 電極は平面-平面電極（Plane 電極）と比較してオゾン生成効率が2倍程度高い。こちらの論文中でもオゾン生成向上のメカニズムについてはS.L.Park らの考察と同じく、放電本数を増加させることに起因すると考察している。更にこれに加えて、Plane 電極と Multipoint 電極それぞれの1本のフィラメント状放電の電荷量も測定、比較した。このとき Plane 電極：1.2 nC、Multipoint 電極：0.5 nC であり Multipoint 電極でオゾン生成効率が向上したのは、電力量と同義である総電荷量を一定とした場合に放電1本あたりの電荷量を下げて、放電本数を多くすることで、放電空間におけ

るバリア放電の空間密度が向上したためとしている。

上述の先行研究<sup>(1.32),(1.33)</sup>では、オゾン生成効率の向上には、総電荷量を一定とした場合に放電1本あたりの電荷量を小さくし、なるべく放電本数を増加させることが良いと言及している。

このように考えた場合に、Plane電極とMultipoint電極では、放電空間密度になぜ差が出るのか、筆者の考察を示す。

図1.12にPlane電極での放電発生過程のイメージを示す。Plane電極では、電極間の電圧上昇に伴う両電極面上の電界形成は均一化され、誘電体表面に層状に形成される。以下、平面-平面電極での放電を均一電界放電と呼称する。ある点で絶縁破壊し放電が発生する際、放電は層状に形成された電界に収集された放電発生箇所周囲の電子を伴って生じるため、広い範囲から電子が流れ込み放電1本あたりの電荷量は後述するMultipoint電極と比較して大きくなる。更に放電発生点の位置は特に定まっておらず、電極面全体での略均一な電界形成において、宇宙線の影響や気体の濃度・温度分布のばらつき等で最も早く放電電圧(電位差)に至った箇所で発生すると考える。

図1.13にMultipoint電極での放電発生過程のイメージを示す。Multipoint電極では、電極間の電圧上昇に伴う電界形成は多点突起先端に集中して生じるため、多点突起先端位置を凸部とする波状に形成される。そのため、電界強度の大きい凸部では放電電圧に早く至り、発生箇所周囲の電子をあまり伴うことなく生じるため、放電1本あたりの電荷量は小さくなる。更に放電は突起点で発生するため、電子が流れ込む領域が規定され放電発生点の位置が固定されている特徴を持つ。以下、任意に形成された電界集中部を持つ電極での放電を固定電界放電と呼称する。

以上の特徴から、均一電界放電と固定電界放電のオゾン生成効率の違いについて考察する。オゾン生成効率を向上させるには、加速電子を $O_2$ と効率よく衝突させることが必要であり、このためには加速電子を空間に均一に配置することが重要である。

均一電界放電では、放電1本あたりの電荷量は大きいため、放電1本あたりの酸素活性種生成能力(≒オゾン生成能力)は高い。しかし放電空間的には放電が発生している場所と発生していない場所のバラツキが大きく、反応に寄与する加速電子が均一に配置されていない。このため反応が起こる場所は限定的で反応空間を十分に利用で

きていないと想定される。

一方、固定電界放電では、放電1本あたりの電荷量は小さいため、放電1本あたりの反応に寄与する加速電子の生成能力は低い。しかし固定された領域毎に放電が形成され、均一電界放電に比べ本数が増加する。固定電界放電では放電空間全体に放電を発生させることで反応に寄与する加速電子が空間に均一に配置される。均一電界放電と固定電界放電で比較した場合、固定電界放電が放電空間全体でとらえた場合の反応に寄与する加速電子の生成能力は高く、反応空間を広く利用し、衝突頻度が高くなることで反応効率が向上すると考える。

では固定電界放電では、どこまで放電発生点を増加させることが出来るのか、ここが課題であると捉える。ここで筆者は、固定電界放電と均一電界放電における放電本数の増減を整理するため、先行研究で示された結果を放電発生点の密集度合、つまり放電発生点密度で整理することを試みた。

初めに、高木らの研究<sup>(1.33)</sup>で示された3つの電極形状に対しての放電発生点の設定・考え方について述べる。Multipoint電極は各突起先端が放電発生点となる(528点)。Plane電極は放電発生点が無限に配置されているものとする( $\infty$ 点)。Trench電極は短尺方向にのみ無限に配置されていると考える( $\infty/2$ 点)。いずれの電極形状も電極面積は等しいと設定されているため、放電発生点密度と放電本数の関係で整理すると図1.14の序列となる。

一方、固定電界放電において放電面積を固定した条件での放電発生点数の増加に伴う放電本数の増加傾向は、先行研究<sup>(1.43),(1.44)</sup>でも報告されている。上記の情報をグラフで整理すると、図1.14中(a)に見られるように、放電発生点密度の増加により放電本数は増加傾向にある。これは放電発生点が増加し、その発生点から放電がその数だけ起これば、当然放電本数は増加する。この仕組みにより放電空間密度が増加すれば放電本数は増加することが通常考えられる。しかし、図1.14中(b)の高木らの研究<sup>(1.33)</sup>のプロット点は、前述の放電発生点密度の増加に伴う放電本数増加の傾向とは異なり、放電発生点密度の増加に伴い放電本数は減少の傾向を示す。

これは放電発生点の間隔がより狭くなった場合に、放電発生点密度の増加に伴う放電数の増加が起こらなくなったことが原因と考える。これは隣り合う放電同士が結合

するような可能性が示唆されるが、現在までにこの傾向がなぜ生じるかは論じられておらず、またメカニズムの検証もなされておらず未解明である。

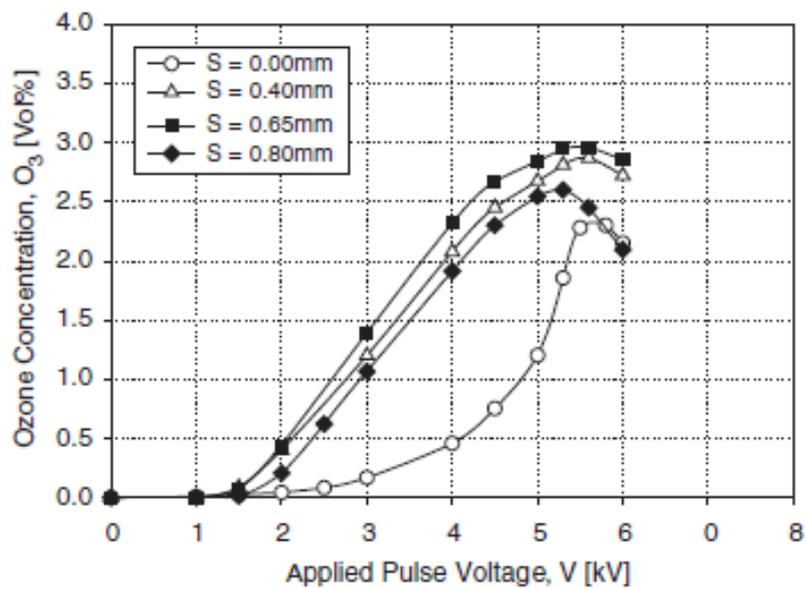
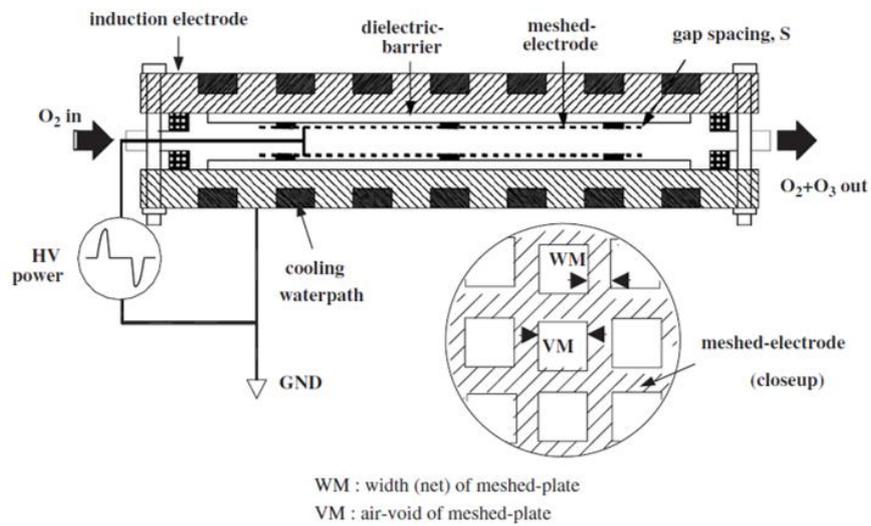


Fig. 1.10 Previous research on improving ozone yield using mesh-shaped electrodes<sup>(1,32)</sup>.

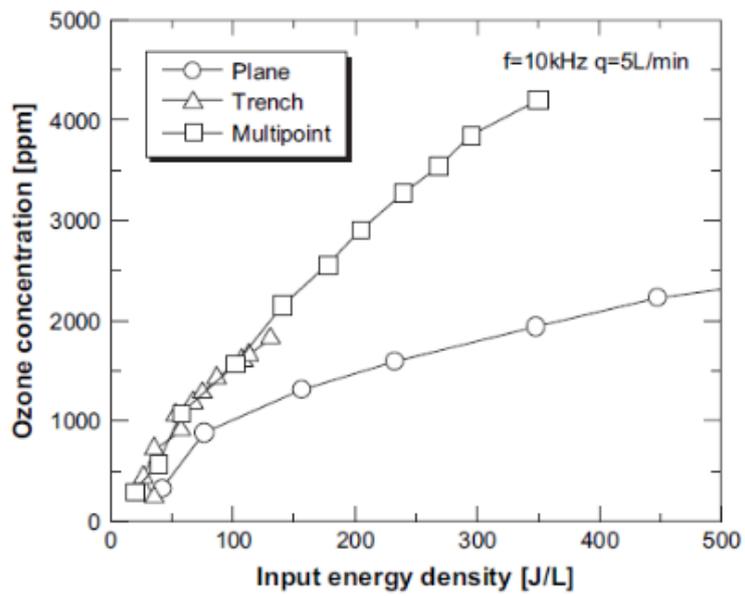
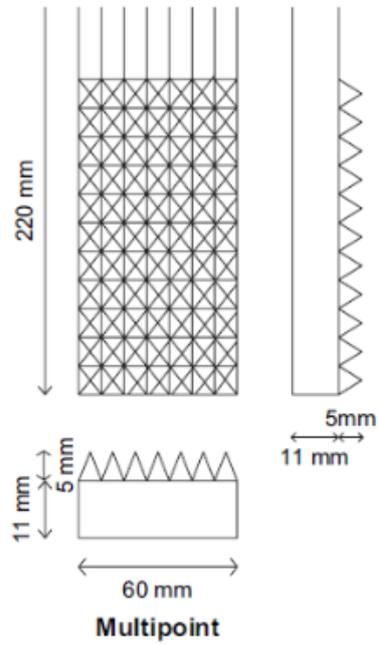


Fig. 1.11 Previous research on improving ozone yield using multi-point protrusion-shaped electrodes<sup>(1.33)</sup>.

Uniform Electric Field Discharge  
(Plane electrode)

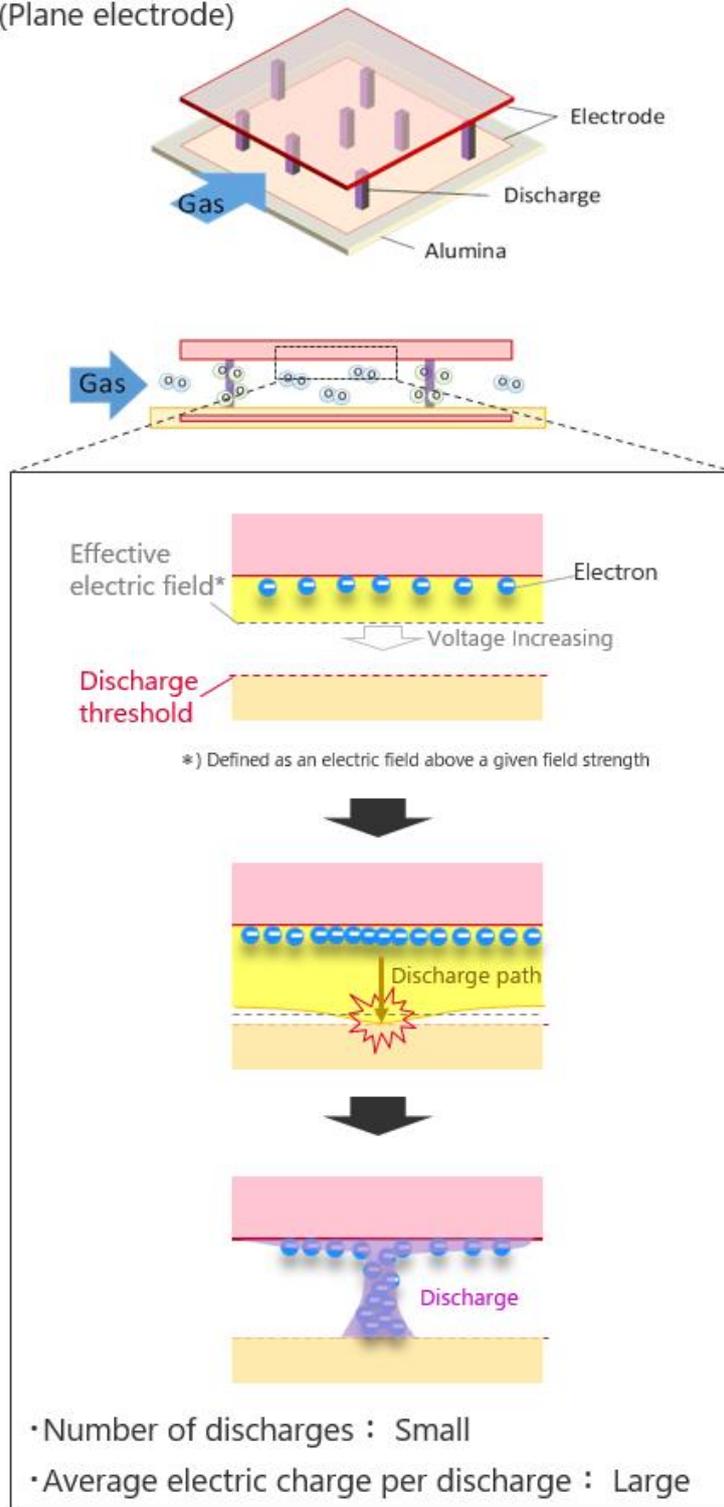


Fig. 1.12 Discharge mechanism of uniform electric field discharge.

### Fixed Electric Field Discharge

(Multipoint electrode)

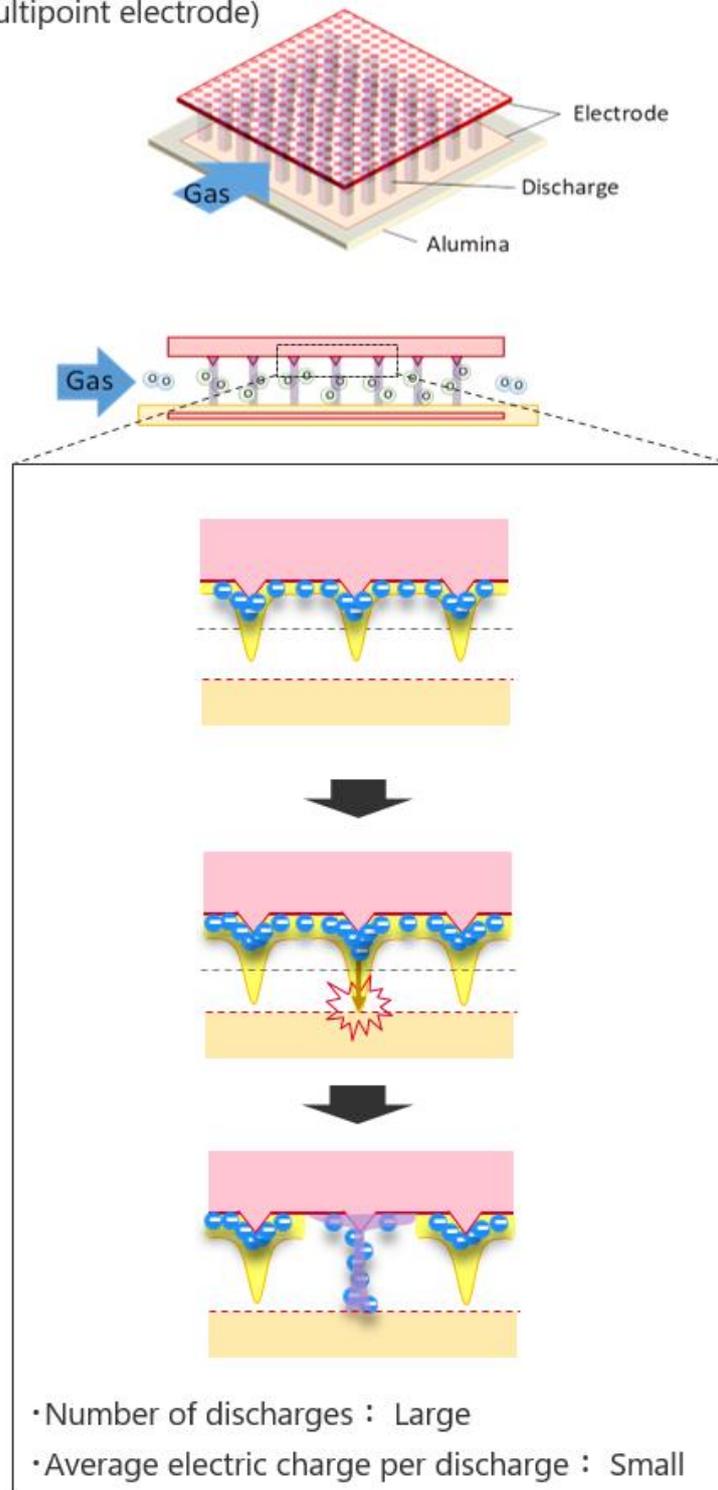


Fig. 1.13 Discharge mechanism of fixed electric field discharge.

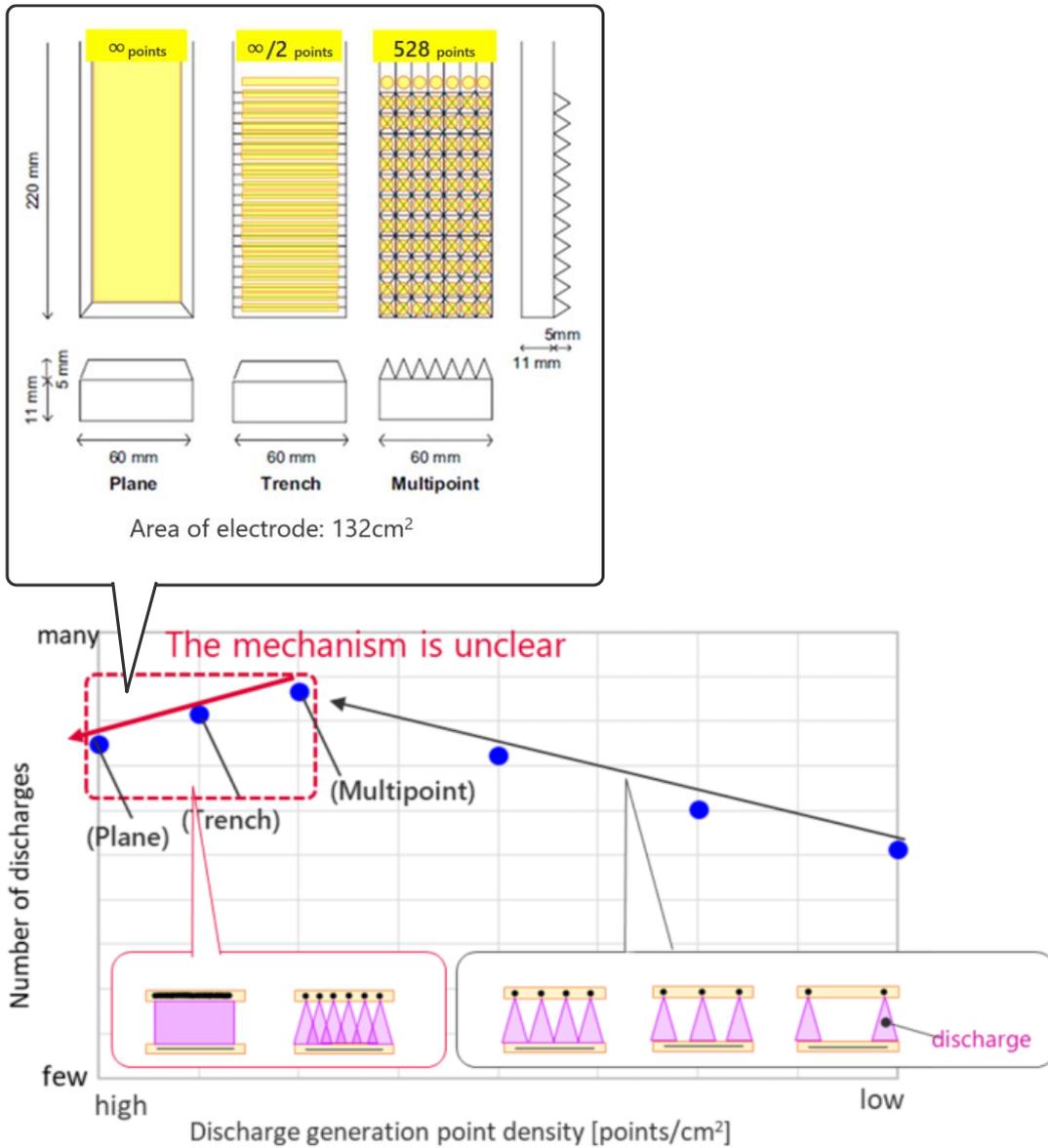


Fig. 1.14 Relationship between discharge point density and number of discharges.

## 1.9. 放電本数減少メカニズムの推定

放電発生点配置の密集度が所定値以上となると放電本数が減少する現象について、そのメカニズムを推定する。針-平板電極での1つの放電発生点からの放電発生メカニズムを基本として、複数の放電発生点の場合に考えを拡張する。その後、誘電体電極で複数放電発生点を持つ場合に考えを反映し、放電同士の干渉について考察する。更に放電発生点距離が変化することによる放電発生メカニズムを推定し、放電本数が増減するメカニズムの考え方を示す。

### 1.9.1. 1つの放電発生点における放電発生メカニズム

図1.15に示すような金属-金属電極で1つの放電発生点を持つ針-平板電極を用いたときの放電発生メカニズムについて述べる。図1.16に示すように針電極側を高電位 (HV(-))、平板電極側を低電位 (LV) としたとき、両電極間の電圧が増加すると、針電極先端に電界が形成されていく。その過程に伴い、電界によって電離した放電空間中の電子は針電極へ収集されていく。そして針-平板電極間で対象空間の物質の絶縁破壊強度を超過する電界強度となると、放電可能な経路（以下、放電パスと呼称）が形成され、針電極先端に蓄積された電子が放電パスに流れ込み放電発生に至る。このとき針電極先端から電子は流出するため針電極は一時的に低電位となる。針電極先端の所定の距離における電界強度は(1.1)式のガウスの法則の式で表すことができる。

$$E = \frac{q}{4\pi\epsilon r^2} \quad (1.1)$$

ここで、E：電界[V/m]，q：電荷量[C]， $\epsilon$ ：誘電率[F/m]，r：帯電体からの距離[m]である。

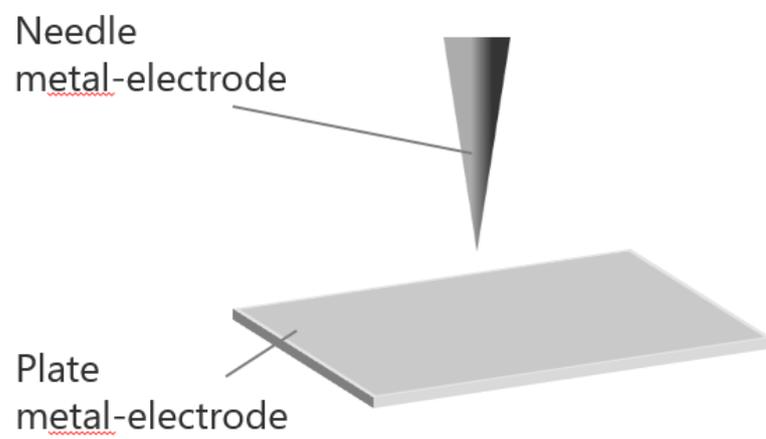


Fig. 1.15 Needle - Plate electrode.

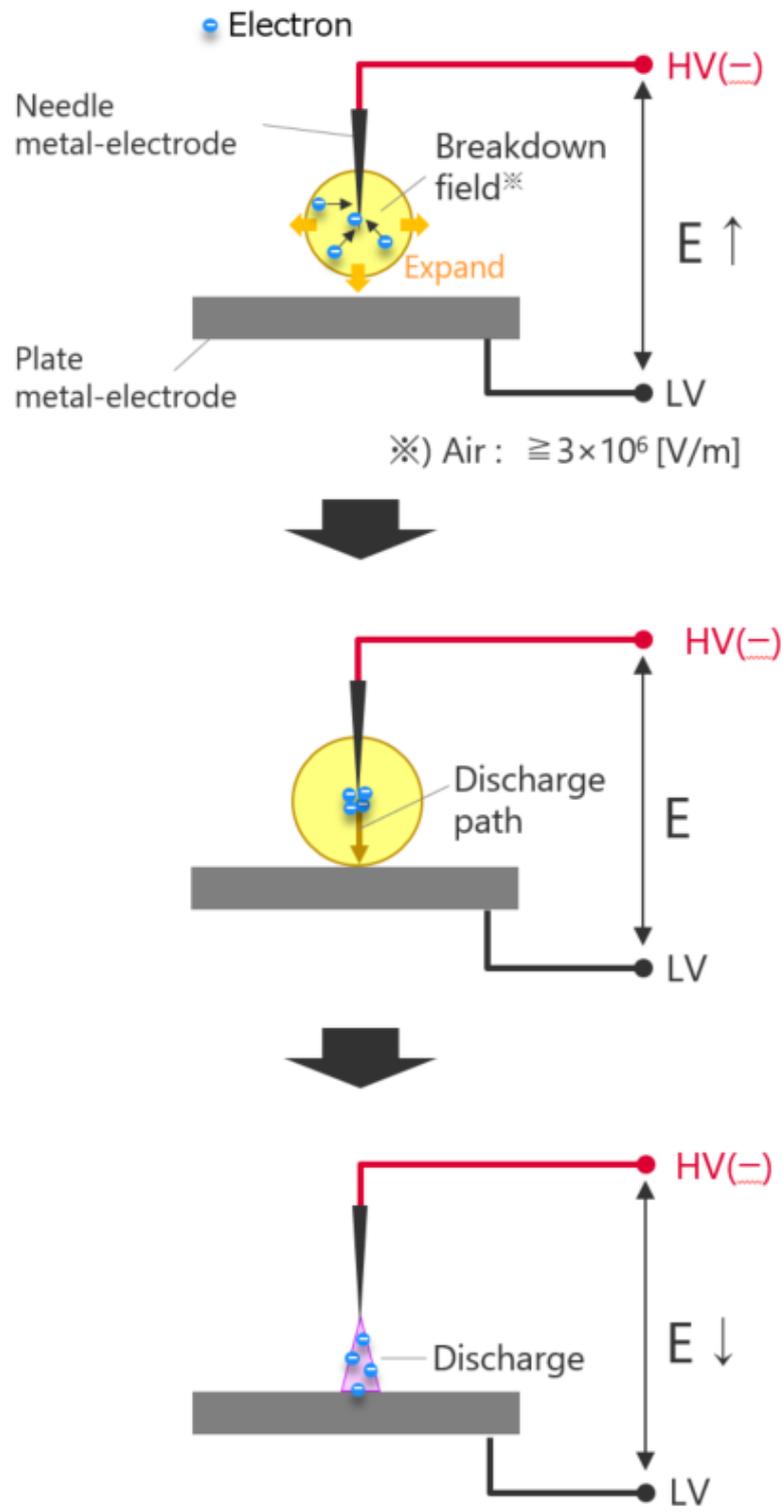


Fig. 1.16 Mechanism of single discharge generation at metal electrode.

一方、図1.17に示すような金属の針-平板電極間に誘電体層を介在させた誘電体電極を用いたときの放電発生メカニズムについて述べる。図1.18に示すように両電極間の電圧が増加すると、高電位側の誘電体表面に電界が形成されていく。その過程に伴い、電界によって電離した放電空間中の電子は誘電体表面へ蓄積されていく。これは1.6節の図1.5にて示した現象と同様である。

電極間で対象空間の物質の絶縁破壊強度を超過する電界強度となると放電パスが形成され、誘電体表面に蓄積された電子が一気に放電パスに流れ込み（以下、電子なだれと呼称）、放電発生に至る。このとき高電位側の針電極近傍の誘電体表面に蓄積された電子は流出し、針電極近傍の誘電体表面は一時的に低電位となる。

以上のように、金属電極放電とバリア放電では、放電空間の電界極性方向や放電進展方向が逆転する放電発生メカニズムとなる。

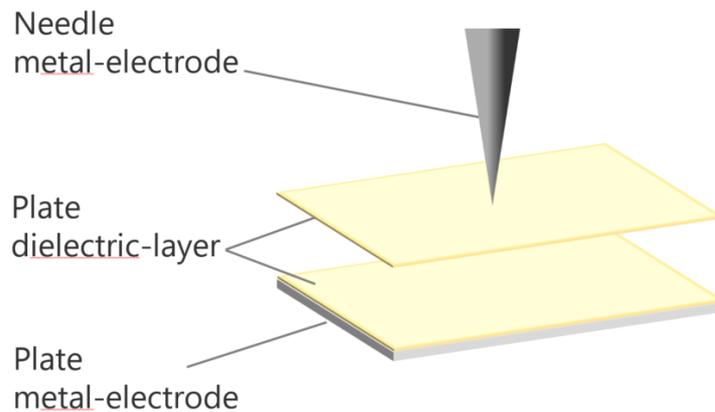


Fig. 1.17 Barrier built-in line – line electrode.

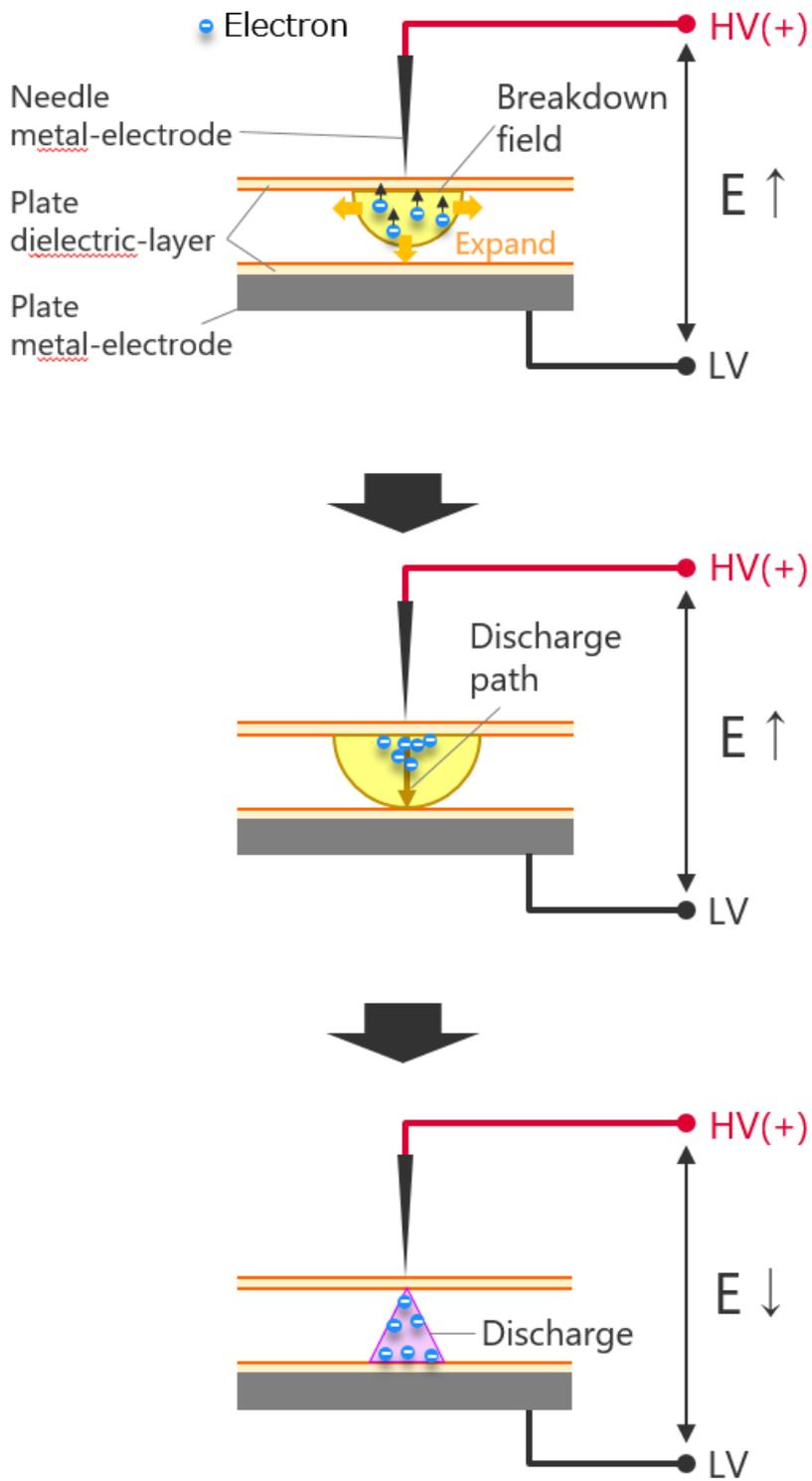


Fig. 1.18 Mechanism of single discharge generation at barrier electrode.

### 1.9.2. 複数の放電発生点における放電発生メカニズム

ここでは、複数の放電発生点が存在する場合における放電発生メカニズムを考える。まず、放電同士の干渉現象を扱うことのできる最も単純な放電発生点配置について検討する。前提として、図1.19に示すように放電発生点同士の間隔は均一に配置されているものとして考える。各放電発生点での放電は、各々の針-平板電極間で電界強度が絶縁破壊に至った時点で生じる。このときの、放電発生点距離と放電干渉について考察する。

図1.19中の放電発生点Aから見ると、放電干渉する放電発生点は周囲に8つ存在する。放電発生点同士の間隔は均一とすると、放電干渉する可能性のある方向軸を考えると縦・横・斜めの3方向となる。ここで放電発生点同士の間隔を $p$ と置くと、縦と横の放電発生点の間隔は $p$ 、斜めは $\sqrt{2}p$ となる。放電干渉は電界強度の観点から放電発生点の間隔 $r$ が小さいほど生じやすいと考えられる。複数の放電発生点がある場合も考え方は同様であり、以降は横の放電発生点の間隔について焦点を当て検討を進める。

図1.20に示すように、放電が発生した直後の放電発生点Aは収集・蓄積した電子が無くなった状態となり、低電位となる。このとき、図1.20(a),(b)に示すように、放電発生点距離 $p$ [mm]と放電ギャップ $d$ [mm]の大小関係によって放電現象が異なると考える。図1.20(a)に示す $p > d$ の関係では、(1.1)式を鑑みると電界は理屈上、真球状に形成されるため必ず先に針-平板電極間で絶縁破壊が生じることになり、放電干渉は生じない。一方で、図1.20(b)に示す $p \leq d$ の関係では、放電発生点Bにおいて針-平板電極間で絶縁破壊するより先に低電位となった放電発生点Aとの間で絶縁破壊が生じることになり、この場合は $B \rightarrow A$ に向けて放電が発生し、放電発生点Aから平板電極への放電に追従する形で放電が結合すると考える。

このように放電干渉の発生は、放電発生点距離 $p$ と放電ギャップ $d$ の関係で整理することが可能と考える。このように図1.19における縦・横・斜めに隣り合う放電発生点との放電干渉の発生メカニズムは上記の $p, d$ の考え方を適用できると考える。

以降の検討では、放電干渉現象について議論できる系として隣り合う放電発生点間の放電発生点距離のみとし一列に並んだ一次元系を扱うものとする。

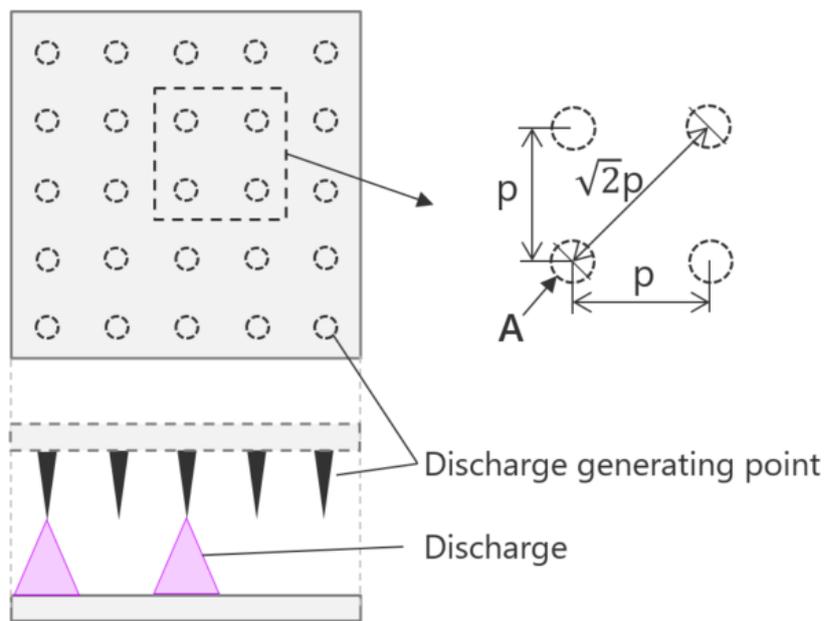
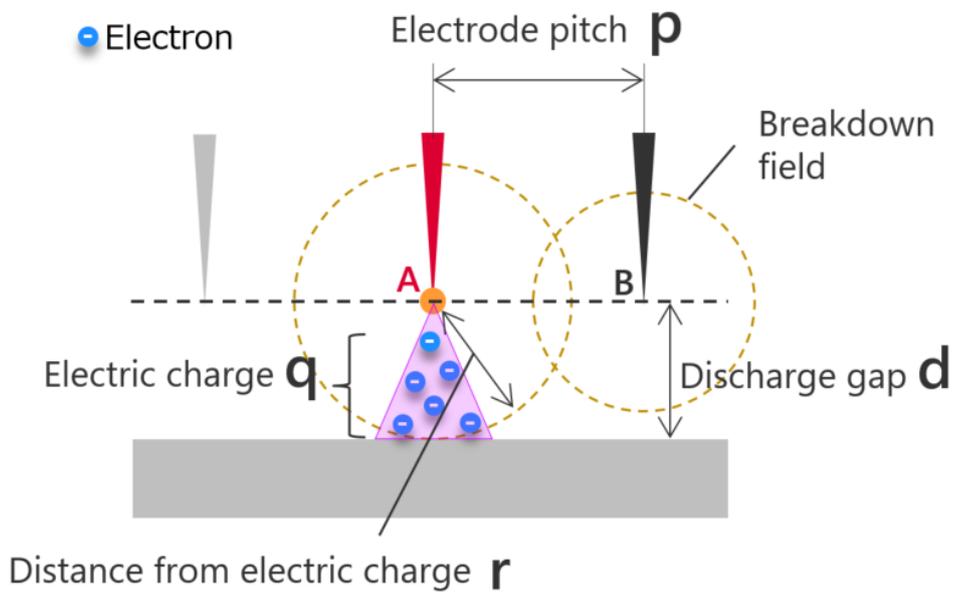
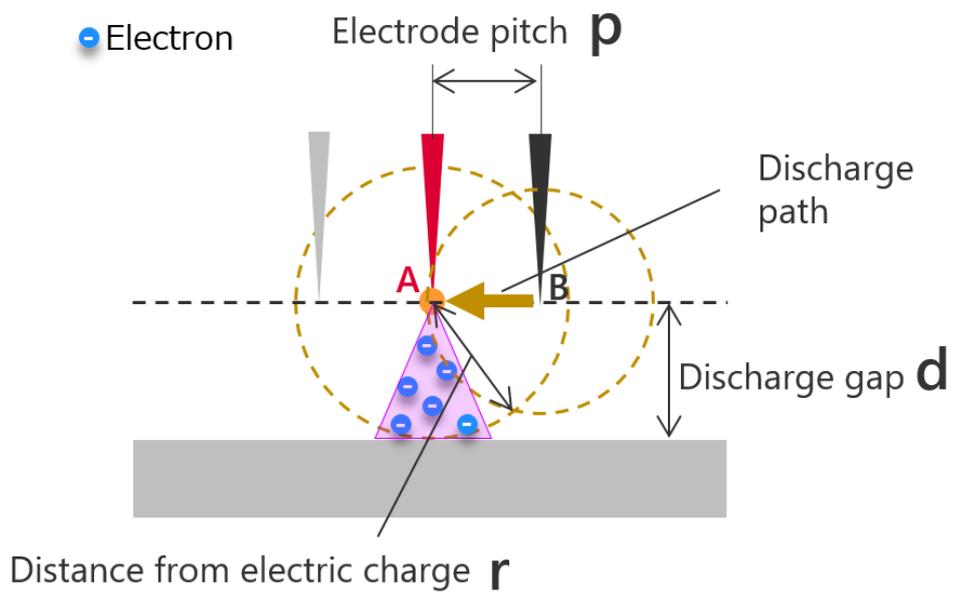


Fig. 1.19 Arrangement relation of each discharge generation point.



(a)  $p > d$



(b)  $p \leq d$

Fig. 1.20 Electric field formation with multiple needle – Plate electrode.

複数の放電発生点が存在する場合は、放電発生点間で生じるクーロン力による斥力・引力も考慮する必要がある。クーロン力は(1.2)式で表される。

$$F = \frac{1}{4\pi\epsilon} \frac{q_1 q_2}{r^2} \quad (1.2)$$

このとき、 $F$ :クーロン力[N],  $q_i$ :電荷量[C],  $\epsilon$ :誘電率[F/m],  $r$ :帯電体からの距離[m]である。

印加電圧の増加時には、全ての放電発生点において同時に電子が収集されるため、放電発生点間と同極性の電荷同士となり、斥力のクーロン力が働くことになる<sup>(1.42)</sup>。しかし、複数の放電発生点の内1つが放電発生すると、電子なだれの後には、空間中の分子・原子との電子衝突で生じた正イオンが多数存在しており、隣り合う放電発生点に蓄積された電子との間に引力のクーロン力が働くことになる。

以降は、絶縁破壊を生じさせる電界と各放電発生点に蓄積された電子間の斥力・引力であるクーロン力の観点からも、放電発生点距離の大小に伴う放電干渉を考察する。

### 1.9.3. 誘電体電極の複数の放電発生点での放電発生メカニズム

複数放電発生点を持つ誘電体電極の場合について、放電発生メカニズムを考察する。図1.2 1に、針-平板電極と誘電体電極の電界の形状をそれぞれ示す。針-平板電極と誘電体電極では形成される電界の形状が大きく異なり針-平板電極では楕円形に電界が形成<sup>(1.45)</sup>されるのに対して、誘電体電極では正規分布形の電界が形成<sup>(1.46)</sup>される。この電界形状の違いは、電極への電子の蓄積形態が影響しており、針-平板電極では針電極先端に電子が蓄積されるが、誘電体電極では針電極先端を中心とした正規分布形に誘電体表面に電子が蓄積される。この電子の蓄積形態の違いにより、針-平板電極と誘電体電極では、1.9.2節で述べたクーロン力の影響が異なってくると考える。

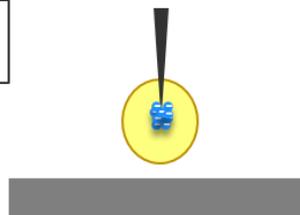
複数の放電発生点がある場合の針-平板電極と誘電体電極について、それぞれのクー

ロン力による放電への推定影響を図 1.2 2 に示す. 針-平板電極では, 針電極先端に電子が収集されるため放電発生点間の空間には電子は存在していない. 一方で, 誘電体電極では各放電発生点の電界は誘電体表面に沿って広がりを持つため, 電子も誘電体表面の放電発生点から広がって蓄積される.

針-平板電極において,  $p > d$ ,  $p \geq d$  の場合は, 放電発生箇所と隣り合う放電発生点の収集した電子に対し放電発生点間の距離は大きい. このため放電発生により発生点の電荷極性が変化し, 隣り合う放電発生点とのクーロン力が斥力から引力に変わっても電子なだれに巻き込まれる電子は殆どないと考える. 一方  $p < d$  の場合は, 放電発生箇所と隣り合う放電発生点の収集した電子に対し放電発生点間の距離は小さく, 電子はクーロン力の影響を受けると考える. しかし, 2.1.2 節で述べたようにこの  $p$ ,  $d$  関係で生じる放電結合で電子が動く力の方が大きいため, クーロン力の影響は殆ど無視できるものと考え. 最後に  $p = d$  の場合は, 放電結合あり/なしのどちらかが生じる領域であると考え. 以上より, 針-平板電極での  $p$  と  $d$  の大小関係では, 放電結合あり/なしの 2 状態のみが存在すると考える.

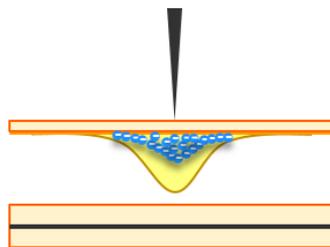
一方で誘電体電極において,  $p > d$  の場合は, 針-平板電極と同様に放電発生箇所と隣り合う放電発生点の収集した電子の距離は大きいため, 放電発生によりクーロン力が斥力から引力に変わっても電子なだれに巻き込まれる電子は殆どないものと考え. しかし  $p \geq d$  では, 放電発生箇所のクーロン力 (引力) の影響が及ぶ範囲に電子が存在するため, 隣り合う放電発生点の一部の電子は電子なだれに巻き込まれる (以下, 放電一部結合と呼称) と考えられる. 以降では, 隣り合う放電発生点に蓄積している電子を巻き込んで結合する状態の総称を「放電結合」, 蓄積している全ての電子を巻き込んで結合する状態を「放電全結合」, 一部の電子を巻き込んで結合する状態を「放電一部結合」と区別して表記する.  $p < d$  の場合は, 放電全結合が生じるものと考え. 最後に  $p = d$  の場合は, 放電全結合/一部結合のどちらかが生じる領域であると考え. 以上より, 誘電体電極では針-平板電極の  $p$  と  $d$  の大小関係で生じる放電結合あり/なしの 2 状態に加えて,  $p \geq d$  での放電一部結合の状態も存在すると考える.

Needle-Plate  
electrode



In the direction of the counter electrode Elliptical with long

Dielectric  
electrode



Normal distribution shape

Fig. 1.21 Shape of the electric field between needle-plate and dielectric electrodes.

Needle-Plane Electrode	$p > d$	$p \approx d$	$p = d$	$p < d$		
	<p>Coulomb's force</p> <p>Discharge</p>		<p>With/without discharge coupling Either of the following occurs</p>	<p>Discharge coupling</p>		
Dielectric Electrode						
		<p>Partial discharge coupling</p>	<p>Discharge total coupling/ partial coupling Either of the following occurs</p>	<p>Total discharge coupling</p>		

Fig. 1.22 Effects of Coulomb forces on needle-plate electrode and dielectric electrode.

#### 1.9.4. 放電結合条件の試算

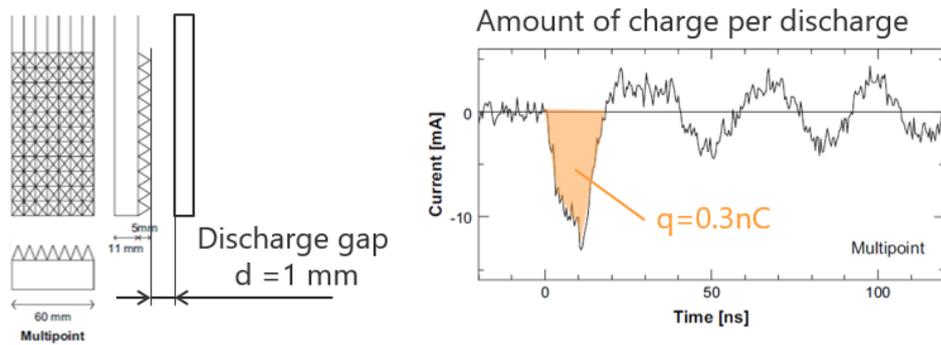
ここでは、隣接する放電発生点間の放電結合が起こる間隔を試算により検討した。高木らの文献中に見られる multipoint 電極の情報を用い(1.1)式で試算することで電界強度及び、放電発生点間隔について推察した。推察に用いた電極情報、放電の電荷量、これらを用いた計算結果を図1.23に示す。

Multipoint 電極は、金属の突起状電極と誘電体層を備える平板電極の組み合わせにより成る。このため、各突起部で形成される電界は図1.21の針-平板電極に近いと想定される。よって試算結果は、図1.22の針-平板電極の  $p$  と  $d$  の大小関係に基づいてその整合性を判別する。

(1.1)式に用いた変数は  $E=3 \times 10^6$ [V/m] (大気中の絶縁破壊電界)、 $\epsilon = 8.6 \times 10^{-12}$ [F/m] (大気の誘電率)<sup>(1.48),(1.49)</sup>、放電1本の電荷量  $q=0.3 \times 10^{-9}$ [C]<sup>(1.33)</sup>、の値を用いた。これらの計算から突起状電極の先端から放電が発生する距離  $r$  を試算すると 0.9 mm となる。

考察すると、文献中<sup>(1.33)</sup>の Multipoint 電極の放電ギャップは 1.0 mm なので、各突起状電極間の距離が 0.9mm であると放電結合すると考えられる。つまり、 $p < d$  関係であると放電結合する考え方が成立する。

上記の考え方を基に、誘電体電極でも同様の  $p$  と  $d$  の大小関係で図1.22に示す状態となると推定する。よって本研究で扱うバリア放電リアクタの放電発生点間隔  $p$  を 0.5mm, 1.0mm, 2.0mm, 放電ギャップ  $d$  を 1.0mm と設定する。 $p=0.5$ mm の場合は放電全結合が生じ、 $p=1.0$ mm の場合は放電全結合もしくは放電一部結合が生じ、 $p=2.0$ mm の場合は放電結合が生じないと想定している。



Gauss's law  $E = q/4\pi\epsilon r^2$   
 (Point electric field)

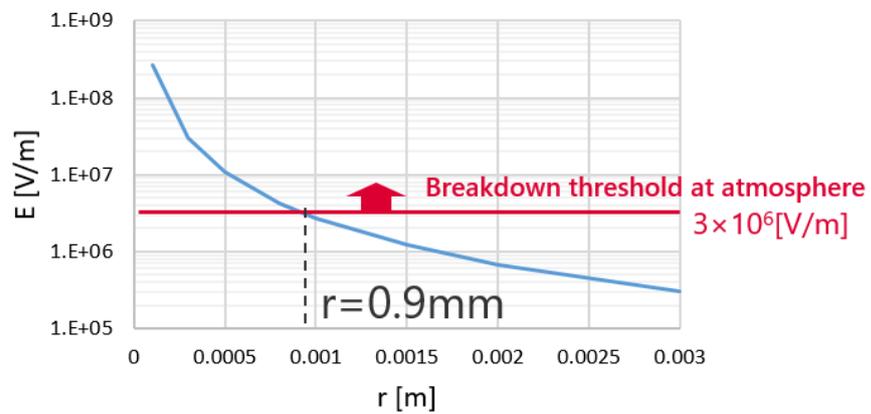


Fig. 1.23 Verification of electric field shape of needle electrode<sup>(1.33)</sup>.

## 1.10. 本研究の目的

固定電界放電における放電空間密度の更なる向上のためには、放電発生点距離と放電結合の関係を把握することが重要な観点と考える。本研究の目的は、「バリア放電の放電発生点距離に応じた放電現象において、①放電画像、②放電本数、③放電1本あたりの平均電荷量を取得すること。さらに放電発生点距離が小さくなることにより隣接した放電が結合することを、取得データを用いて明確化すること」である。

バリア放電における反応促進の要素の1つとして“放電発生領域の空間的な占有率（放電空間密度）を高める”に焦点を当てる。放電空間密度の向上には、1本の放電の広がる領域(電荷量)を加味し、空間中に電荷量の小さい放電を密に適切に配置することが重要である。この手法として多点突起形状電極のような電界集中部を備えた固定電界放電が有効である。この中で放電発生点配置の密集度が所定値以上となると放電本数が減少する現象が示唆される。本研究ではこのメカニズム解明を目的とする。

この傾向について現象/メカニズムを明らかにするには、現象観察と紐づいた情報の測定が必要となる。現在までに先行研究においてこの傾向の議論がなされていない要因は、バリア放電研究の動機的な面や、測定装置/演算系の構築に膨大な工数を要することが挙げられる。

動機的な面として、バリア放電における先行研究では、その目的別に放電を観察・測定する実験系が二極化していることがある。放電特性やメカニズムを議論するには、放電1本を発生させる放電リアクタを用いて放電進展の撮影や電荷量・生成活性種などを測定する実験系で実施している。一方で産業製品を見据えて反応物の処理量/効率を議論するには、マクロな放電を発生させる放電リアクタを用いて放電全体の電気特性や反応物量などを測定する実験系で実施している。

そのため、本研究で扱うような放電1本同士の干渉メカニズムの解明自体を目的とした先行研究は確認できていない。ここで言う干渉とは、隣り合う放電発生点の電界や放電発生に伴い生じる正イオン等によって、放電の形状や進展経路、電荷量などが変化することと定義する。加えて測定装置/演算系の構築も、前述の動機的な面とも相まって実施されていないものとする。更なる詳細については2章にて述べる。

## 1.11. 本論文の構成

本論文は全4章にて構成される。

本章では、放電プラズマの中でも特に非熱プラズマ領域で化学反応を扱う多種多様な産業製品/システムに応用されているバリア放電について特徴を説明した。また、バリア放電での化学反応促進に関するいくつかの観点について考えを述べた後、未だ議論が十分になされておらず研究途上の課題である”放電発生領域の空間的な占有率である放電空間密度を高める”方法に着眼した。放電空間密度の向上には、多点突起形状電極のような電界集中部を備えた固定電界放電が有効であるが、この放電を理解する上で重要な放電発生点配置の密集度と放電本数の関わりにおいて、“放電発生点配置の密集度が所定値以上となると放電本数が減少する”現象がある。この現象の要因は、隣り合う放電発生点の放電が結合する放電結合によるものであると推定した。固定電界放電における放電空間密度の更なる向上のためには、放電発生点距離と放電結合有無の関係とこれによる放電本数・放電1本あたりの平均電荷量の影響を把握することが重要な観点と考え、本研究の目的を「バリア放電の放電発生点距離に応じた放電現象において、①放電画像、②放電本数、③放電1本あたりの平均電荷量を取得すること。さらに放電発生点距離が小さくなることにより隣接した放電が結合することを、取得データを用いて明確化すること。」と設定した。

2章では、放電結合を観察・計測するための測定装置/演算系の構築について述べる。仮説立証の概要・本研究の実機試験にて用いた試験装置構成/計測器詳細スペックおよび測定情報の計測手法について説明する。

3章では、放電発生点距離を水準とした放電リアクタの放電試験により、放電発生点距離における放電画像の観察とこれに紐づいた放電本数・放電1本あたりの平均電荷量の計算を行う。

最後に4章で結論を述べ、本論文をまとめる。

## 参考文献 1章

- (1.1) 高電圧プラズマ工学, 丸善株式会社 (1996)
- (1.2) 石井彰三:「大気圧付近における放電の基礎」, プラズマ・核融合学会誌, 第70巻, 第1号, pp. 61-66(1993)
- (1.3) 朝倉電気電子工学大系2:バリア放電, 朝倉書店 (2012)
- (1.4) J. S. Chang: “Physics and Chemistry of Atmospheric Plasmas”, J. Plasma Fusion Res., Vol.82, No.10, pp. 682-692(2006)
- (1.5) T. Hijikata and K. Nakajoh: “Deodorization and Decomposition of Organic Compounds by Plasma Photocatalyst System”, Toshiba Review., Vol. 61, No. 10, pp. 70-73 (2006)
- (1.6) K. Nakada, T. Kitano, S. Fuse, T. Shoyama and Y. Yoshioka: “Automatic Control of NO removal by Ozone injection Method”, International Journal of Plasma Environmental Science & Technology., Vol. 1, No. 1, pp. 34-38 (2007)
- (1.7) C. Gottschalk, J. A. Libra, A. Saupe, Ozonation of Water and Waste Water: “a Practical Guide to Understanding Ozone and Its Applications”, Wiley-VCH Verlag, Weinheim, Germany (2010)
- (1.8) Fei Kong, Chao Chang, Yiyang Ma, Cheng Zhang, Chengyan Rena, Tao Shao: “Surface modifications of polystyrene and their stability: A comparison of DBD plasma deposition and direct fluorination”, App. Surface Sci., Vol. 459, pp. 300-308 (2018)
- (1.9) V. Bocci, E. Borrelli, V. Travagli, I. Zanardi: “The ozone paradox: ozone is a strong oxidant as well as a medical drug”, Med. Res. Rev., Vol. 29, pp. 646-682 (2009)
- (1.10) 鈴木桃太郎, 三山創:「無声放電によるアンモニア分解反応に関する研究」, 日本化学雑誌, Vol. 75, No. 8, p. 53 (1954)
- (1.11) 井上英一:「無声放電による炭化水素の低温緩酸化反応機構について:シクロヘキサンの主酸化過程」, 電気化学, Vol.22, p. 668 (1954)
- (1.12) S. Inohara, S. Okazaki, T. Moriwaki and M. Suzuki: “The application of silent discharges to propagating flames”, Combust and Flame, Vol. 50, No. 3, p. 361

- (1983)
- (1.13) 江原由泰：「水電極型オゾン水生成リアクタの開発」，放電学会誌，Vol. 49，No. 2, pp. 83-84 (2006)
- (1.14) 堀井憲爾：「水中の気泡内における放電とその利用」，電気学会放電研究会資料，ED-73-22 (1973)
- (1.15) 見市知昭，林信哉，猪原哲，佐藤三郎，山部長兵衛：「水中気泡内放電によるオゾン生成」，電気学会論文誌A，Vol.121, No. 5, pp.448-452 (2001)
- (1.16) 山竹厚，安岡康一，石井彰三：「直流駆動マイクロホローカソード放電による水の直接処理」，電気学会論文誌A，Vol. 124, No. 11, pp. 1021-1026 (2004)
- (1.17) 田中正明，池田彰，谷村泰宏，太田幸治，吉安一：「低圧無声放電式活性酸素発生機とその水処理への適用」，電気学会論文誌A，Vol. 125, No. 12, pp. 1017-1022 (2005)
- (1.18) 工藤昭一，戸田慶二，高木浩一，加藤昭二，藤原民也：「誘電体バリア放電によるディーゼル発電機の排ガス処理」，電気学会論文誌A，Vol. 120, No. 5, pp. 553-559 (2000)
- (1.19) 生沼学，稲永康隆，谷村泰宏：「吸着濃縮・放電分解式VOC除外装置における吸着水分の影響評価」，電気学会プラズマ研究会，PST-07-45, (2007)
- (1.20) 井上宏志，古木哲明，岡野浩志，山形幸彦，村岡克紀：「ゼオライトハニカムとバリア放電組合せによるVOC処理システム」，電気学会論文誌A，Vol. 127, No. 6, pp. 309-316 (2007)
- (1.21) 小野亮，小田哲治：「パルスコロナおよびパルスバリア放電下のOHラジカルの測定」，電気論A，123巻，9号，pp.920-925 (2003)
- (1.22) 江盛浦，小西義弘，古家伸一，中岡睦雄：「オゾナイザ用パルス密度変調制御方式高周波インバータ」，パワーエレクトロニクス研究会論文誌，Vol. 23, No. 2, pp. 63-69 (1998)
- (1.23) 金子一弥，寺西研二，伊藤晴雄：「圧電トランスの並列駆動におけるオゾン生成」，電気学会放電研究会資料，ED-04-84 (2004)
- (1.24) K. Masek, L. Laska and Ruzicka : "Electron collision rate in oxygen glow discharge", Czech. J. Phys., B28, p. 1321 (1978)

- (1.25) B. Eliasson : “Electrical discharge in oxygen Part I : Basis data and rate coefficients”, Brown Boveri Reserch Report, KLR 83-40C (1983)
- (1.26) B. Eliasson, M. Hirth and U. Kogelschatz : “A numerical model of ozone generation in an oxygen discharge”, 16<sup>th</sup> Int. Conf on Phenomena in Ionized Gases, Dussldorf (1983)
- (1.27) B. Eliasson, U. Kogelschatz, S. Strassler and M. Hirth : “Electrical discharge in oxygen Part II”, Brown Boveri Research Report, KLR 83-28C (1983)
- (1.28) 江盛浦, 小西義弘, 古家伸 一, 中岡睦雄 : 「オゾナイザ用パルス密度変調制御方式高周波インバータ」, パワーエレクトロニクス研究会論文誌, Vol. 23, No. 2, pp. 63-69 (1998)
- (1.29) 金子一弥, 寺西研二, 伊藤晴雄 : 「圧電トランスの並列駆動におけるオゾン生成」, 電気学会放電研究会資料, ED-04-84 (2004)
- (1.30) T. Aiba and P. Freeman : “Mechanizm of a radio frequency ozonizer discharge”, Ind. Eng. Chem. Fundam., Vol. 13, No. 3, p. 179, (1974)
- (1.31) 葛本昌樹, 八木重典 : 「高周波無声放電の時間, 空間分解測定」, 電気学会論文誌, Vol. 110-A, No. 5, pp. 302-306 (1990)
- (1.32) S. L. Park, J. D. Moon, S. H. Lee, S. Y. Shin : “Effective ozone generation utilizing a meshed-plate electrode in a dielectric-barrier discharge type ozone generator”, J. Electrostat., Vol. 64, pp. 275-282 (2006)
- (1.33) K. Takaki, Y. Hatanaka, K. Arima, S. Mukaigawa, T. Fujiwara : “Influence of electrode configuration on ozone synthesis and microdischarge property in dielectric barrier discharge reactor”, Vacuum, Vol. 83, pp. 128-132 (2009)
- (1.34) G. Ernest, G. Sebastian, P. Jaroslaw : ” Effect of Mesh Geometry on Power, Efficiency, and Homogeneity of Barrier Discharges in the Presence of Glass Dielectric”, IEEE Trans. on Plasma Science, Vol. 46, No. 10, pp. 3493-3498 (2018)
- (1.35) C. Heuser and G. Pietsch : “Prebreakdown phenomena between glass-glass and glass-metal electrodes”, 7<sup>th</sup> Int. Conf. on Gas Discharges and their Applications, Edenburg, p. 98 (1980)
- (1.36) M. Hirth, U. Kogelschatz and B. Eliasson : “The structure of the microdischarge

- in ozonizers”, 6<sup>th</sup> Int. Conf. on Plasma Chem. Montreal (1983)
- (1.37) B. Eliasson and U. Kogelschatz : “Ozone production in a homogeneous oxygen discharge”, 14<sup>th</sup> Int. Conf. On Phenomenon in Ionized Gases, Grenoble, p. 19 (1979)
- (1.38) U. Kogelschatz : “Ozone synthesis from oxygen in dielectric barrier discharges”, J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 20, pp. 1421-1437 (1987)
- (1.39) 七里義雄, 犬石嘉雄 : 「オゾンナイザーの等価回路に就いて」, 電気学会誌, Vol. 67, p. 235 (1947)
- (1.40) M. Suzuki and Y. Naito : “On the nature of the chemical reaction in silent electric discharge”, Proc. Jap. Acad., Vol. 28, p. 469 (1952)
- (1.41) 兵頭 正, 市川倉治, 浜中 渉 : 「オゾン管放電の特性に関する研究」, 電試記念論文集, No. 76 (1948)
- (1.42) 稲田優貴, 小野亮, 小室淳史, 熊田亜紀子, 日高邦彦, 前山光明 : 「空間制御された大気圧空気中正極性ストリーマ放電の2次元電子密度分布測定」, 静電気学会全国大会予稿集'19, pp.95-96, 静電気学会 (2019)
- (1.43) 清水雅樹, 佐藤徹, 加藤昭二, 向川政治, 高木浩一, 藤原民也 : 「誘電体バリア放電方式オゾンナイザーの電極形状による高効率化」, 電気論 A, 125 巻, 6 号, pp.501-507 (2005)
- (1.44) H. Ueno, S. Kawahara, H. Nakayama, : ” Influence of Needle Tip Distance on Barrier Discharge and Ozone Generation for Multiple Needle-Plane Electrode Configuration”, IEEJ Trans. FM, vol.128, No.11, pp.676-682(2008)
- (1.45) Y. Yasui, S. Otsuki, K. Yamazawa, H. Yamashita, : ” Field Distribution Calculation in Negative Streamer Propagation in Dielectric Liquids”, T. IEE Japan, vol.119-A, No. 5 (1999)
- (1.46) K. Nishijima, S. Furuie, Y. Izawa, : ”Effect of Surface Charge Control on DC Corona Onset Voltage”, IEEJ Trans. FM, vol.127, No.12, pp.736-740(2007)
- (1.47) 誘電率と比誘電率 コンデンサー技術入門 :  
<http://www.buturigaku.net/main04/capacitor/050.html>
- (1.48) Electrical Information : <https://detail-infomation.com/permittivity/>

## 2章 放電結合の観察/データ取得手段の構築

### 2.1. 本研究での構築手段の概要

放電発生点距離に応じた①放電画像、②放電本数、③放電 1 本あたりの平均電荷量を取得するには、放電発生点距離  $p$  と放電ギャップ  $d$  の関係における放電を形成し、放電及び放電結合の現象を観察すること、放電本数、放電 1 本あたりの平均電荷量をそれぞれ測定/計算すること、それらの観察・測定情報を同一時間軸で同期させて取得する実験装置環境/手段が必要となる。

放電結合の観察、放電本数の測定/算出、放電 1 本あたりの平均電荷量の算出のそれぞれにおいて、先行研究での取り組み事例を図 2.1 に示す。

1 本の放電の観察と放電の電荷量の測定は先行研究にて実施されている。これは基礎的な放電発生メカニズムや現象観察を行った研究<sup>(2.1),(2.2)</sup>である。一方でオゾン生成器のような実用レベルサイズでのマクロな放電特性の研究<sup>(2.3)-(2.5)</sup>にて放電観察や電流波形取得の研究も実施されている。

この内、前者は放電発生点同士の干渉がそもそも存在しないため、本研究の目的とする仮説立証のための情報取得は行えない。一方、後者の研究における放電の観察では、マクロな放電特性の研究に用いられる放電リアクタ（以下、マクロ放電リアクタと呼称）は、エネルギー効率や反応生成物の収率向上を目的としているためガス流れ方向と放電観察方向に対して奥行きを持つ。そのため、放電観察において視覚的に前後の放電が重なり、放電 1 本をを判別できない<sup>(2.3)</sup>。したがって放電結合の有無も観察することは難しい。

続いて放電本数について、マクロ放電リアクタでは図 2.2 のような放電電流波形が得られるが、この電流波形からは放電本数の計算は困難である<sup>(2.4)</sup>。このような多数の放電が時間的に重なった電流波形から放電本数を推定する手段として、放電全体の電荷量から代表的な放電 1 本の電荷量を除算し放電本数を計算<sup>(2.5)</sup>している文献がある。

しかしながら放電 1 本の電荷量が全ての放電で一致しているとみなして計算した本数であり、実際には電荷量のばらつきが生じると考えられ大まかな放電本数把握に留まると考える。文献では放電 1 本の電荷量ばらつきの影響には言及していないため、図 2.3 に示した筆者が実験により取得したバリア放電の電流波形を用いて影響を考察する。電流ピークが生じている部分が放電 1 本の電流波形に対応していると仮定し、電流波形の積分により各放電の電荷量を計算した。各放電 1 本の電荷量を計算した結果を図 2.4 に示す。結果より、放電 1 本の電荷量は  $0.26\sim 0.49\text{nC}$  のばらつきがあることを確認した。先行研究の手法に則って放電本数を計算することを考えると、この電荷量のばらつきはそのまま放電本数の計算精度に影響する。 $0.26\text{nC}$  から  $0.49\text{nC}$  で電荷量は 88%増加しており、放電本数の計算には最大 47%の誤差が生じる。

最後に放電 1 本あたりの平均電荷量について、上記放電本数計算を実施している文献では、多数の放電が時間的に重なった電流波形から 1 本の電流波形となっている部分を任意に切り出し、その波形を積分することで計算している<sup>(2.5)</sup>。この方法では、代表的な 1 本の電流波形の電荷量は計算できるが、全体電流波形を 1 本の電流波形に分離し、の平均電荷量を計算することは難しい。

本研究では、放電波形の観察と放電電流の取得に対し下記の工夫を実施した。

- 放電の観察：放電が観察方向に対して奥行を持たないように、放電が横一列の並びとなる放電リアクタを採用し放電 1 本および放電結合の観察を可能とした。
- 電流波形取得：放電 1 本に分離可能な電流波形取得のため放電本数を調整した。放電本数の調整は、放電が「各放電発生点で形成される電界強度が絶縁破壊閾値を超過した際に生じる」という考えに基づき、放電発生点数と印加電圧を低減方向に制御して行った。この結果、図 2.5 に示すような交流電圧 1/2 周期で 10~100 本程度の電流波形を得た。放電 1 本の電流波形を正確に読み取れるレベルのサンプリングレート(時間分解能)でデータを取得する。これにより、放電 1 本の電流波形を分離可能とし、放電本数と放電 1 本あたりの平均電荷量を計算する。計算手法の詳細は 2.4 節にて述べる。

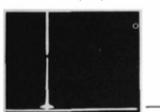
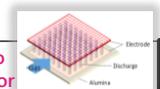
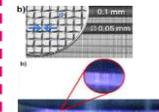
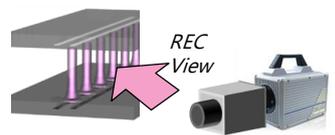
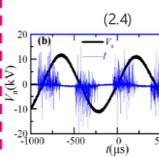
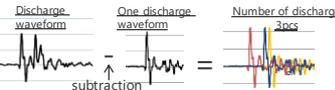
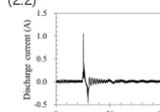
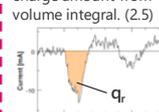
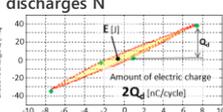
Observation/calculation items	Micro Reactor	Previous Study	Macro Reactor	This study
Discharge coupling/co-associating	Observation of electrical discharge at a needle-plate Electrode. (2.1)  		Discharge observation with Mesh-electrode. (2.3)  	Adoption of discharge reactors where discharge is in a horizontal line. 
Number of discharges [pcs/cycle]			(2.4)  	Highly accurate calculation of the number of discharges using the subtraction method. 
Average electric charge per discharge [nC]	Discharge current waveform at needle-plate electrode. (2.2)  		Single current waveform cutout. Calculation of charge amount from volume integral. (2.5)  	Calculated by dividing $2Q_d$ derived by the Lissajous method by the number of discharges $N$  $\frac{2Q_d}{N} = \text{number of discharges}$

Fig. 2.1 Comparison between this study and previous studies on observation/computational methods.

Electrode Area : 2000mm<sup>2</sup> (W50 x T40)

Power : 600W

Frequency : 45kHz

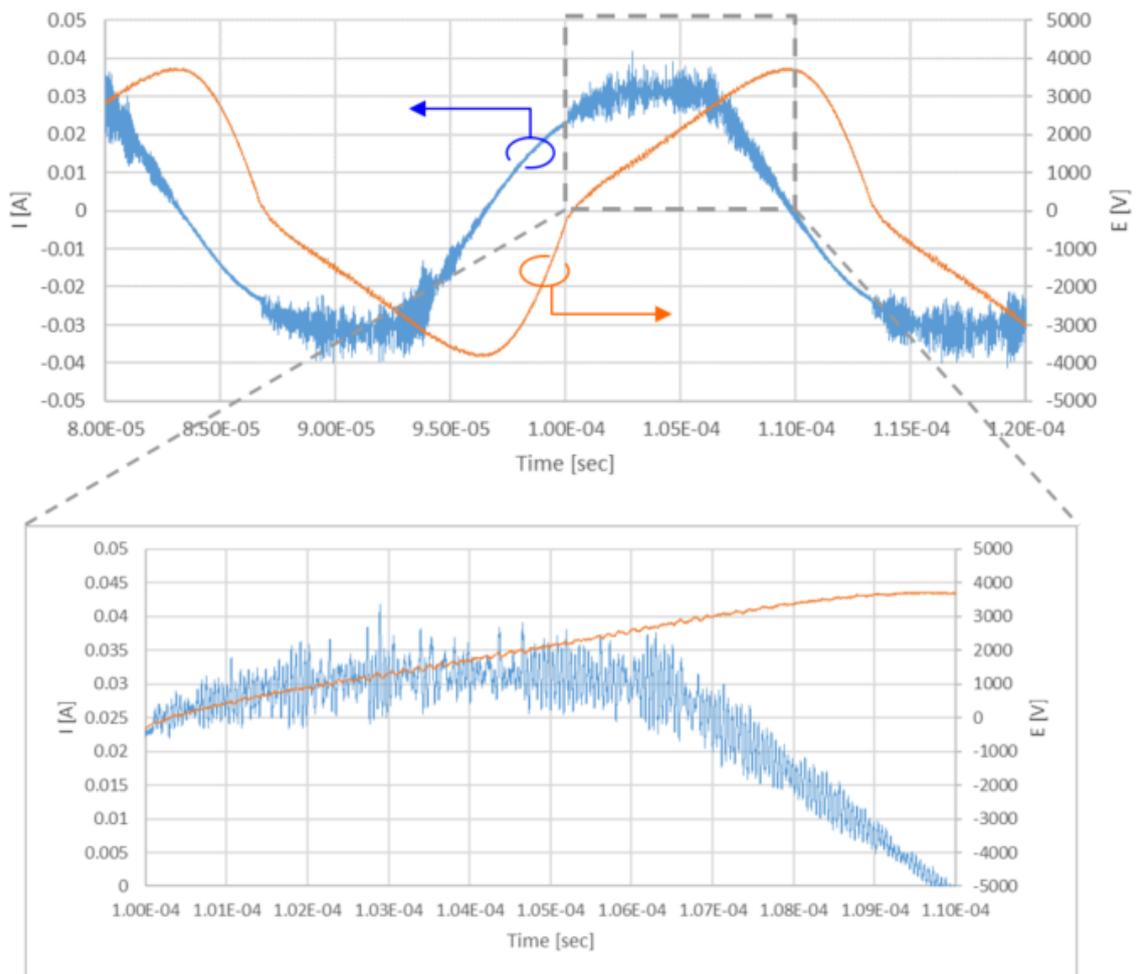


Fig. 2.2 Current waveform of macro discharge reactor.

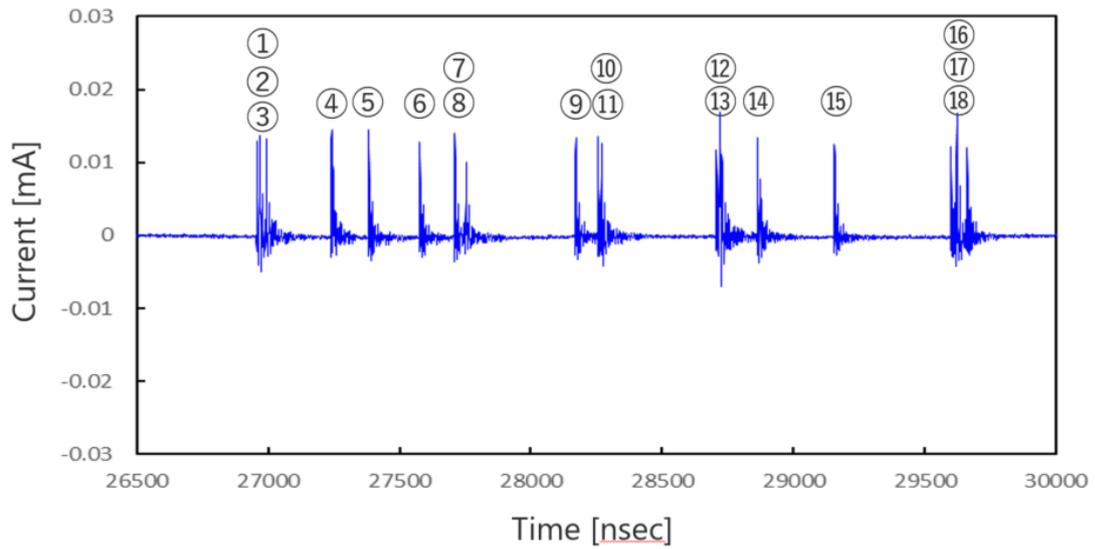


Fig. 2.3 Current waveform of barrier discharge obtained by experiment.

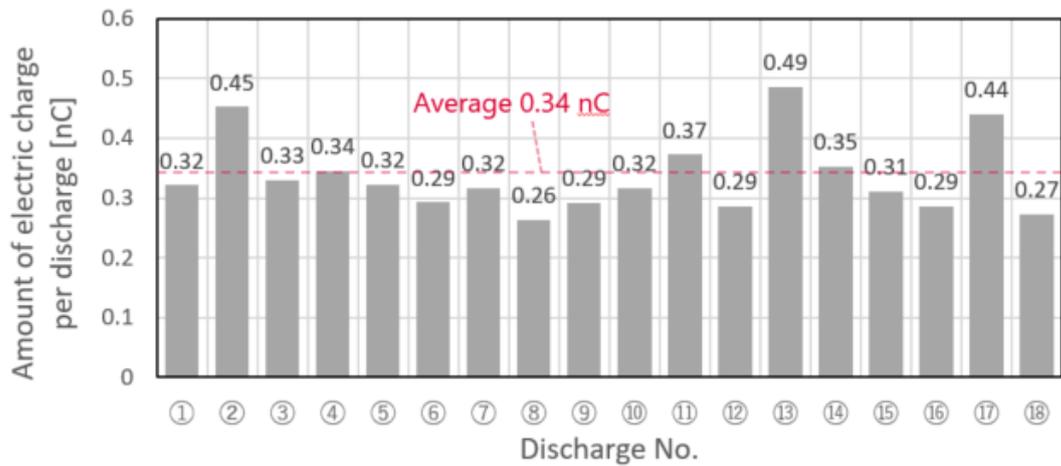


Fig. 2.4 Calculation of the amount of electric charge for each discharge by integrating the current waveform.

Electrode Area : Line-Line electrode 28mm  
Power : 10W  
Frequency : 45kHz

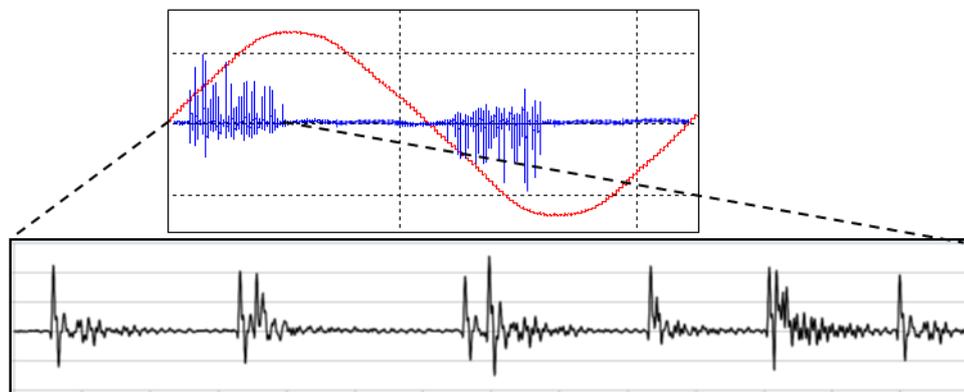


Fig. 2.5 Current waveforms of the discharge reactors in this study.

## 2.2. 実験装置概要

### 2.2.1. 放電リアクタ仕様

2.1 節にて述べた観察/測定情報を実験的に取得するための放電リアクタ仕様について説明した後、形状パラメータとその水準の選択の考え方を説明する。

本研究における実験で用いた放電リアクタ仕様を図 2.6 に示す。

電極層および誘電体層を含む 2 種の電極板 A, B をギャップスペーサを挟んで重ね合わせた構成をとる。電極板の誘電体層には厚み 0.38 mm の  $\alpha$  アルミナを用い、電極層には電極線幅 0.1mm, 厚み 20  $\mu$ m の電極パターンを印刷した。電極パターンがガス流れ方向に対して横(垂直), 縦(並行)となる A と B の 2 仕様を用意し、上部から見た線の交差点がそれぞれ放電発生点となる仕組みを採用した。

図 2.7 に電極板の写真を示す。電極板仕様 A は 1 種で電極板中央に電極線幅 0.1 mm, 長さ 30mm の Ag 単線を電極板のガス流れに対して横(垂直)となるよう配置し

た。電極板仕様 B は、電極線幅 0.1 mm、長さ 10mm の Ag 単線を等ピッチで並べ、ガス流れに対して縦(並行)となるよう配置した。電極板の両端にフッ化炭素樹脂 (PTFE) の絶縁スペーサを挟み込み放電ギャップを形成する。

本研究の放電リアクタは、1章で述べた考えより「放電結合しない状態」、「放電全結合もしくは放電一部結合が生じる状態」、「放電全結合する状態」の3状態を作り出せるように考慮して、電極板仕様 B の電極線ピッチ幅と絶縁スペーサによる放電ギャップ長の水準を表 2.1 のように設定した。

実験時には、実際にバリア放電を化学反応に応用する場面を想定し、放電リアクタを樹脂ケースに収めた状態（以下、リアクタアセンブリと呼称）で電圧印加および原料ガスの供給を行う。原料ガスには、大気組成を模擬したドライガスを供給した。

リアクタアセンブリの構成と、構成内での原料ガスの流れを図 2.8 に示す。樹脂ケースおよび樹脂蓋には、ポリカーボネート (PC) の切削加工品を用いた。樹脂ケース内での配線は、電極板仕様 A - 高電圧配線、電極板仕様 B - GND 配線の対応で接続した。放電リアクタへの配線接続の後、樹脂ケースの開口部縁面と樹脂フタの間にシリコンゴムシートを挟み込む形で樹脂蓋をボルトで締結した。リアクタアセンブリは、内部圧力 15kPa に保持した状態からの圧力降下法にて、ガス抜け量を 0.1mL/min 以下に担保した。リアクタアセンブリ内部では、供給した原料ガスが放電リアクタの放電場を流通するようにシリコンゴムシートを用いてガスシールを実施している。

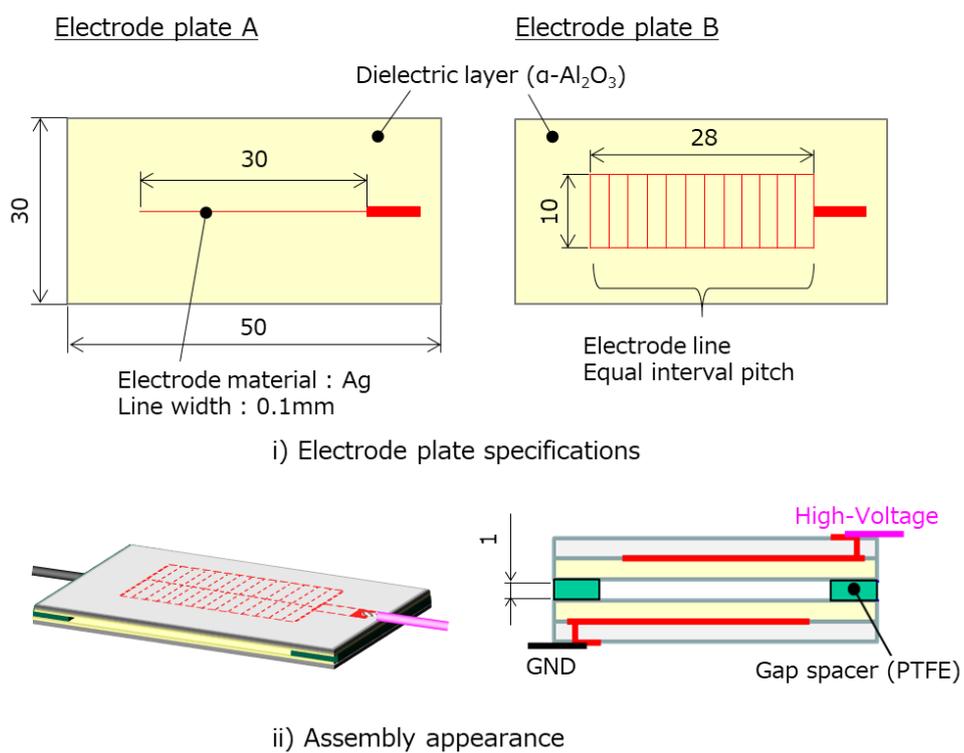


Fig. 2.6 Specifications of dielectric barrier discharge reactor.  
 i) Electrode plate specifications and ii) Assembly appearance.

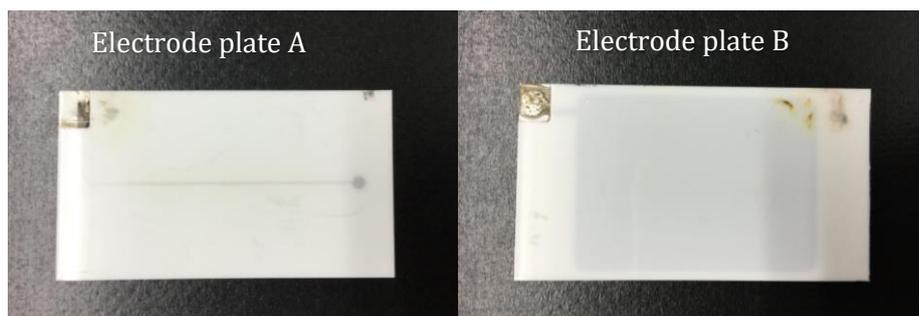


Fig. 2.7 Barrier discharge reactor. i)Electrode plate A ii)Electrode plate B.

Table 2.1 DBD reactor specifications

Item	Specification
Electrode line pitch [mm]	0.5, 1.0, 2.0
Discharge gap [mm]	1.0

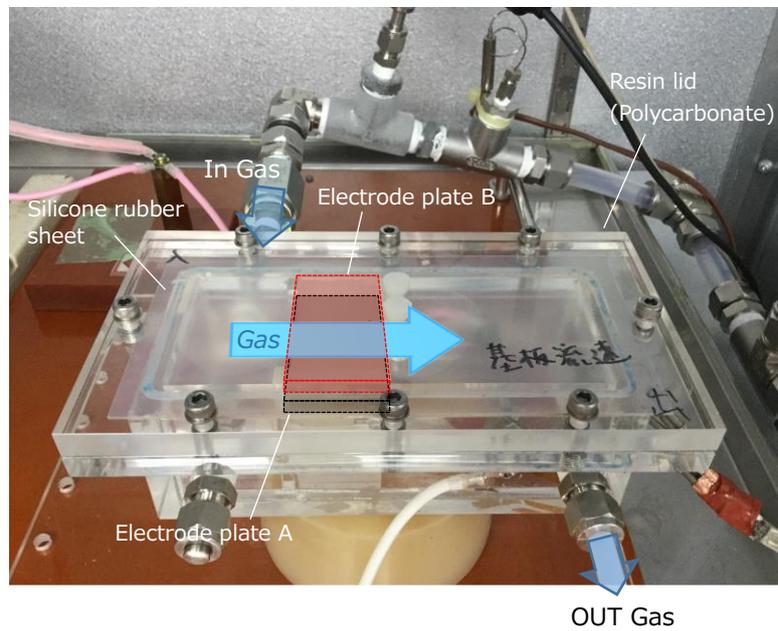
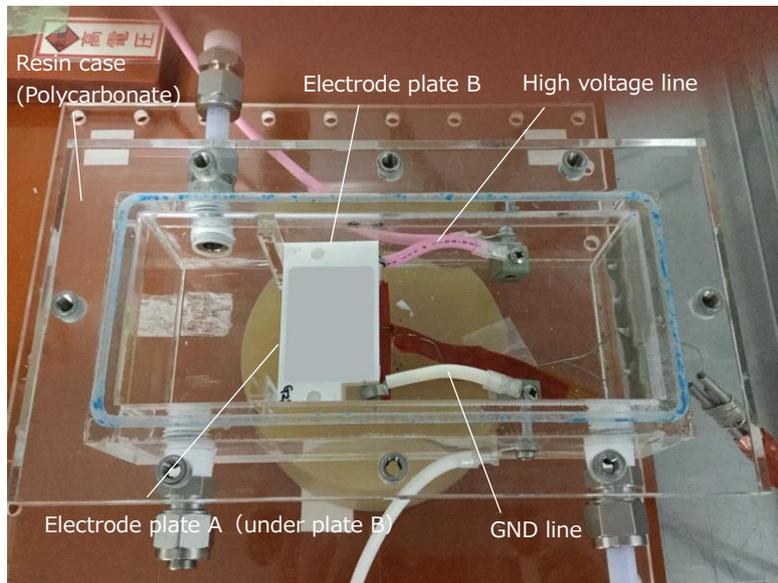


Fig. 2.8 Appearance of barrier discharge reactor assembly.

## 2.2.2. 実験装置と仕様

実験装置概観を図 2.9 に示す。また実際の実験環境を撮影した写真を図 2.10 に示す。本研究での実験は、大気へのバリア放電によって、人体にとって有毒となる濃度のオゾンと、放電による放射ノイズが懸念される数十 nsec オーダーのパルス状電流を扱う。そのため、十分な換気能力と外部への放電放射ノイズ遮断能力を備えるシールドルーム内で実験を実施した。また、シールドルーム内にもシールドボックスを配置した。シールドボックス内で放電リアクタを扱うことで、シールドルーム内に設置した計測器・記録器への放電放射ノイズ影響を遮断した。

リアクタアセンブリへの電圧印加は、交流電圧を扱う必要があるためインバータ回路電源（内製）により行う。インバータ回路電源の構成を図 2.11 に示す。また、主要な構成部品仕様を表 2.2 に示す。バリア放電の発生には、放電リアクタに対し 10 kVp-p 程度の交流高電圧印加が必要とされるため、インバータ回路電源には高昇圧機能が求められる。そのため本研究でのインバータ回路電源は、LC 共振を利用した直列共振回路構成としている。パワー半導体スイッチ Q1~Q4 のスイッチング動作は、マイコンからの PWM 信号により制御される。この時のスイッチング周波数で交流電圧周波数を決定する。

1 章で述べたとおり、化学反応促進の観点では、交流電圧周波数は高い方が放電の時間密度は増加するため優位である。一方で、1 章で述べたイオントラッピングを鑑み、本研究での交流電圧周波数にはバリア放電による化学反応促進が極大値近傍となる 45kHz を選定した<sup>(2.7)</sup>。

リアクタアセンブリへの供給ガスは、大気組成を模擬して 100% O<sub>2</sub> ボンベガスと 100% N<sub>2</sub> ボンベガスの混合比を O<sub>2</sub> : 21vol.%, N<sub>2</sub> : 79vol.% として総流量 10 L/min で流した。この時に用いたボンベガスの規格より、供給ガスの相対湿度は 0.1%RH 以下（20°C、大気圧）が担保されている。

各計測器の設置写真を図 2.12 に示す。リアクタアセンブリの高電圧配線端子と GND 配線端子間の印加電圧  $V_{out}$  を交流高電圧プローブ（Tektronix 社製 P6015A）で測定した。リアクタアセンブリの GND 配線端子と実際の GND の間に 1.5 nF のキャパシタ  $C_E$  を配置し、 $C_E$  の両端電圧  $V_C$  を電圧作動プローブ（LeCroy 社製 ADP305）で測定

した。  $V_{out}$ 、  $C_E$  および両端電圧  $V_C$  を用いリサージュ法<sup>(2.6)</sup>にて印加電圧 1 周期のバリア放電全体の電荷量及び電力を算出した。 リサージュ法の詳細は次節で述べる。 放電電流  $I_{out}$  は、リアクタケースの GND 線端子と  $C_E$  の間の配線に配置した電流プローブ(FCC 社製 F-65A) で測定した。 各プローブの測定出力は、2.5 GS/sec の高時間分解能でサンプリングが可能なデジタルオシロスコープ (LeCroy 社製 HD08108A) で記録した。

また放電および、放電結合の現象を観察するため、高速度カメラ (Photron 社製 SA-1.1) を放電リアクタへのガス出口方向から放電空間を撮影可能な状態でセッティングした。 このとき、電圧プローブによる電圧信号を撮影開始のトリガーとすることで、オシロスコープで記録される放電電流波形との同期が確保されるようにした。 放電 1 本の微弱な光を観測するため、感度増幅器である Image Intensifier (NAC 社製 UVi) を用いて輝度情報を増幅し撮影を行った。

表 2.3~表 2.8 には、各計測器の主要スペックを示す。

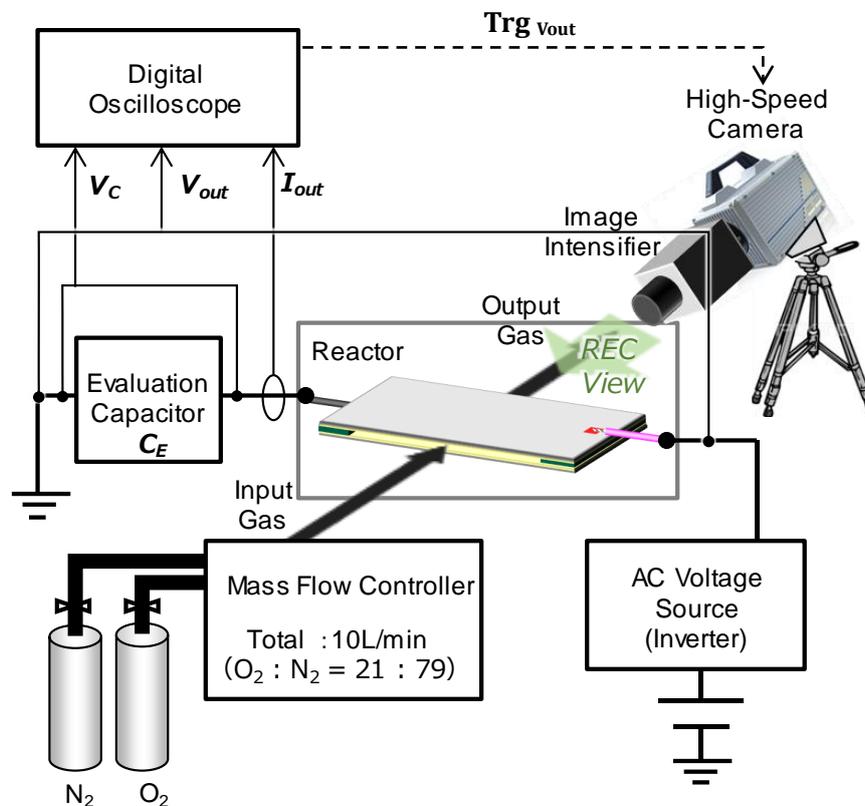


Fig. 2.9 Overview of the experimental apparatus.

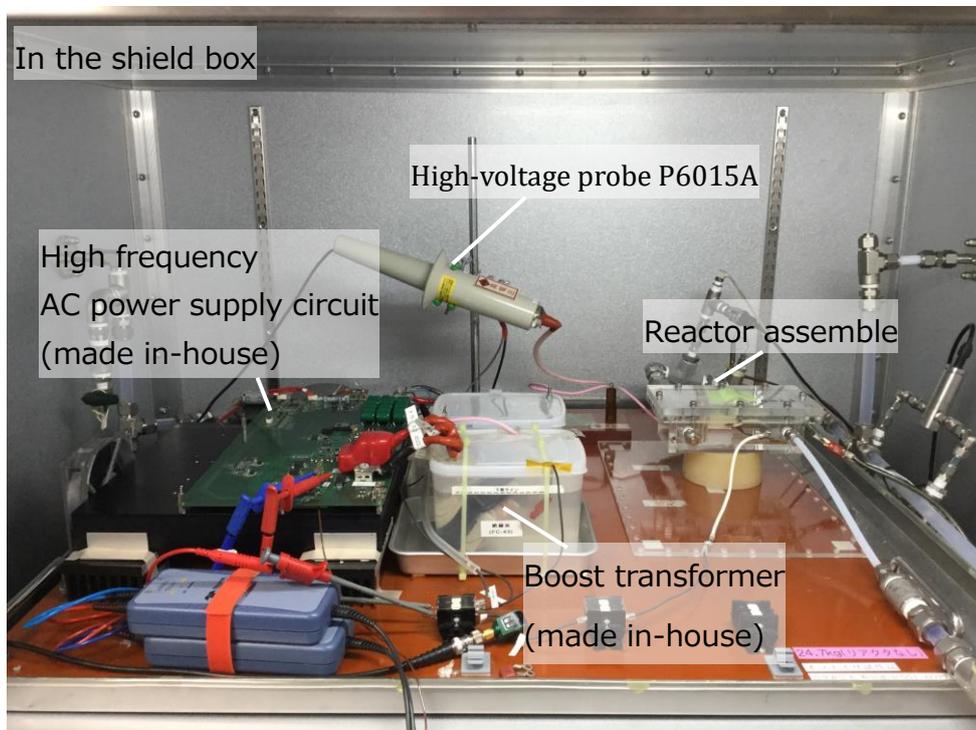
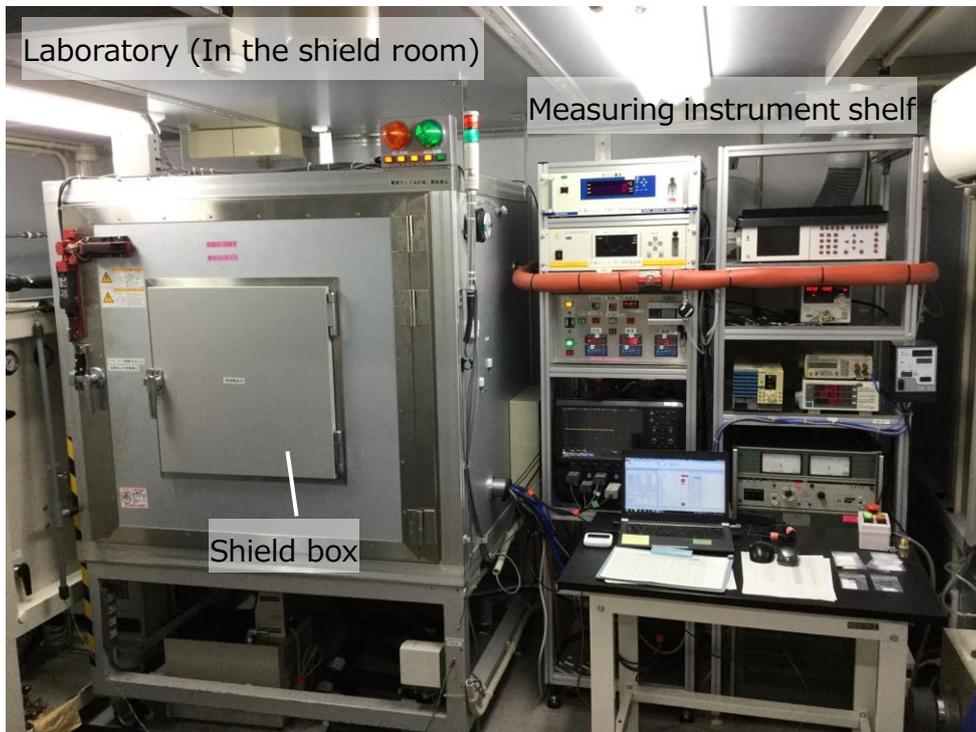


Fig. 2.10 Appearance of experimental apparatus.

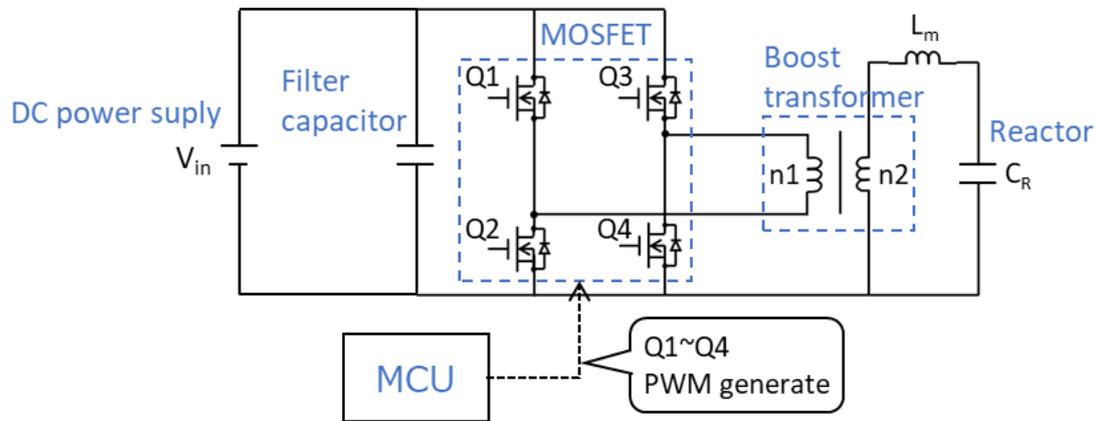


Fig. 2.11 Configuration of inverter circuit power supply.

Table 2.2 Specifications of main components of inverter circuit power supply

Part	Specification	Number	Manufacturer	Part number
MCU	Package : BGA252	1	Renesas	R7F701Z06AEDBG
MOSFET	Package : TO220 100V, 120A, 3.8mΩ	4	Infinion	IPP120N10-S4-03
Filter capacitor	Package : φ 10, H10.2 330 μ F	40	Panasonic	EEHZK1V331P
Boost transformer	Winding ratio n1 : n2 = 2 : 400	1	In-house	-

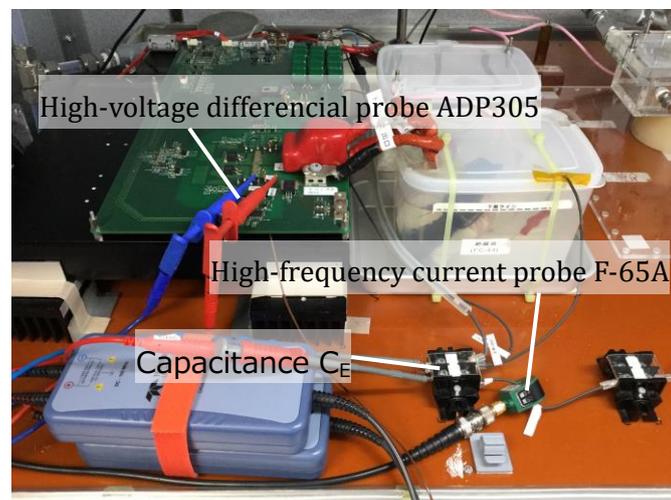


Fig. 2.12 Measuring instrument layout.

Table 2.3 Digital Oscilloscope HDO8108A.

Item	Specification
Cut- off frequency	1 GHz
Rise time	450 psec
Channel Number	8 ch
Trigger delay time	1 nsec

Table 2.4 High-voltage probe P6015A.

Item	Specification
Maximum input voltage	20 kV
Rise time	4 nsec
Gain / Phase correction function	Have

Table 2.5 High-voltage differential probe ADP305.

Item	Specification
Cut- off frequency	100MHz
Rise time	3.5 nsec
Maximum input voltage	1.4kV

Table 2.6 High-frequency current probe F-65A.

Item	Specification
Cut- off Frequency band	10 kHz ~ 1 GHz
Rise time	100 psec
Maximum input current	100 A
Gain @1GHz	-20 dB

Table 2.7 High-Speed Camera SA-1.1.

Item	Specification
Resolution	1024 × 1024 pixel
maximum shooting speed	675,000 fps
Full frame	5,400 fps
Electronic shutter	370 nsec

Table 2.8 Image Intensifier UVi.

Item	Specification
Sensitivity wavelength	150 ~ 650 nm
Sensitivity peak	400 nm
Active area	φ 18 mm
Minimum gate time	5 nsec

### 2.3. 実験系全体の放電電荷量と電力の算出

実験系全体の放電電荷量と放電エネルギーをリサージュ法にて導出した。印加電圧  $V_{out}$  [V]と放電電荷量  $Q_d$ [C]から作成されるリサージュ図形の面積として算出される。放電電荷量  $Q_d$ は、評価用キャパシタの静電容量  $C_E$ [F]とその両端電圧  $V_C$ から(2.1)式により算出できる。

$$Q_d = C_E \cdot V_C \quad (2.1)$$

図2.13には放電エネルギーをリサージュ図形から算出した実例を示す。試験条件は以下に記す。放電リアクタ仕様は、2枚の電極板仕様Aを放電ギャップ長1.0mmで組み合わせ、平行する線-線電極構成としたものを用いた。印加電圧条件は、交流電圧振幅15kVp-p、交流電圧周波数45kHzを固定条件とした。リサージュ図形は、横軸が印加電圧  $V_{out}$ 、縦軸が電荷量  $q$  で表される。リサージュ図形の面積は、印加電圧波形1周期分の放電エネルギー  $E_d$  [J] を表している。印加電圧波形1/2周期分の放電電荷量  $Q_d$ は、図2.13に記載の矢印の縦軸方向長さから算出できる。放電エネルギー  $E_d$  と放電電荷量  $Q_d$ の値は、 $E_d : 0.09 \text{ mJ}(4.05 \text{ W})$ ,  $Q_d : 35.7 \text{ nC}$  となる。

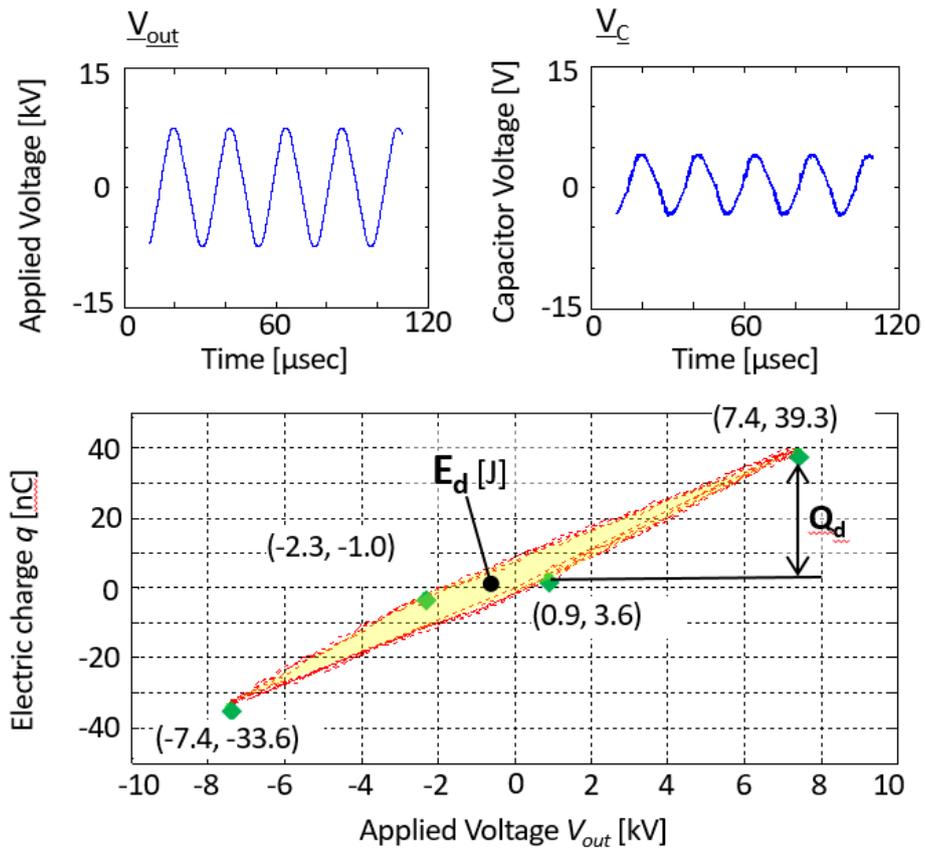


Fig. 2.13 Lissajous diagram with the x-axis as the applied voltage  $V_{out}$  and the y-axis as the electric charge  $Q$ . Discharge energy  $E$  of 0.09 J and discharge electric charge at 1/2 cycle of discharge waveform of 35.7 nC can be read from this diagram.

## 2.4. 放電本数・放電 1 本あたりの平均電荷量の計算手法構築

この節では、放電 1 本あたりの電流波形の特徴を用いて放電電流  $I_{out}$  波形から放電 1 本を抽出し、放電本数と放電 1 本あたりの平均電荷量の算出を試みる。

各情報の算出にあたり、改めて放電 1 本あたりの電流波形の特徴に着目する。放電 1 本あたりの電流波形は、“数 nsec の立ち上り時間を要し、10 nsec 以内に終了する突出したピークを持つ山なり形状波形<sup>(2.6)</sup>”とされる。更には、バリア放電は、誘電層材質・層厚・放電ギャップなどのパラメータで放電の系が決定されれば、同じ性質の単一放電が多数発生する特徴を持つ<sup>(2.8)</sup>。つまり、放電電流波形から放電 1 本あたりの電流波形を特定すれば、その特徴量を用いて放電本数や放電 1 本あたりの平均電荷量の計算手法の構築が可能と考えられる。

### 2.4.1. 電流波形の高精度サンプリング

本研究では、放電 1 本あたりの電荷量と放電本数を取得するため、放電電流波形から放電 1 本の電流波形を抽出し、その特徴情報を用いて各計算手法を構築する。そのために、放電 1 本の電流波形まで高精度にサンプリングしている。

放電 1 本の放電電流は、放電リアクタ全体の放電電流を計測した放電電流  $I_{out}$  [A] の波形中に観測される。図 2.1 4 に、図 2.1 3 のリサージュ図形の実例と同様の試験条件で  $I_{out}$  を測定したデータを示す。 $I_{out}$  測定には表 2.6 に記載の高周波対応の電流センサを用いて、周波数帯域 1GHz までの電流変動を測定した。また測定データのサンプリングは、表 2.3 に記載のデジタルオシロスコープを用いて 10 GS/sec にて実施し、電流の発生状態を精度良く測定した。放電 1 本の電流波形は、数 nsec の立ち上り時間を要し、10 nsec 以内に終了する突出したピークを持つ山なり形状波形である<sup>(2.6)</sup>。図 2.1 4 を見ると、放電 1 本の電流波形条件に該当する放電波形が確認される。放電波形の立ち上がり開始から放電波形の終端までの 10 nsec の間に 25 回のサンプリングを実施しており、放電 1 本の電流波形を精度良く測定できていることを確認した。

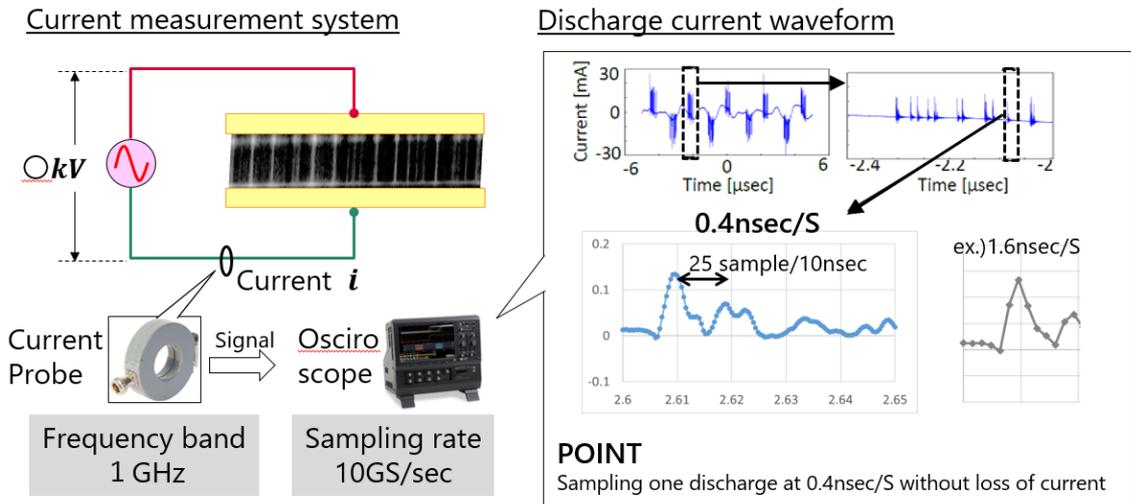


Fig. 2.14 Measurement of current waveform per discharge.

#### 2.4.2. 放電結合を取り扱う空間/時間単位

本研究では、放電結合を実際の放電リアクタで発生させ、その時の放電の観察画像と電流波形の取得を考える。そのためには、放電の観察領域と電流波形の取得時間は、バリア放電現象の特異点であってはならない。ここでは、バリア放電現象の特性を示すための空間/時間単位について講じる。

図2.15に示す一次元系に放電発生点を持つ誘電体電極にて、交流印加電圧の立ち上がりまたは立ち下がりにおける空間的なバリア放電発生過程を図2.16の①～⑥の手順で説明する。

- ① 電極間に電圧が印加されると、放電空間中の分子の電離による電子が放電発生点 A ～D 近傍の誘電体表面に収集・蓄積され、電界が形成される。

- ② 印加電圧の増加に伴い、放電発生点 A~D 近傍の誘電体表面の電子蓄積は進行し、略均一に電界強度が増大する。
- ③ ②の状態では放電空間局所に宇宙線の影響や温度分布などの揺らぎが生じると、その部分で放電が発生する。図中では放電発生点 C で放電が生じる。
- ④ 放電した放電発生点 C の電界強度は初期に戻り、再び電子の収集・蓄積が開始される。また③と同じく揺らぎの影響により、電界強度の十分な放電発生点 A, B, D の内から放電が発生する。図中では放電発生点 A で放電が生じる。
- ⑤ 放電した放電発生点 A の電界強度は初期に戻り、再び電子の収集・蓄積が開始される。また③と同じく揺らぎの影響により、電界強度の十分な放電発生点 B, D の内から放電が発生する。図中では放電発生点 D で放電が生じる。
- ⑥ 放電した放電発生点 D の電界強度は初期に戻り、再び電子の収集・蓄積が開始される。最後に、唯一電界強度の十分な放電発生点 B で放電が生じる。以降は、印加電圧が増加する限り、電界強度が十分に達する順序 (C→A→D→B) で順次放電が生じる。

以上のように、空間的なバリア放電の発生過程では、初期は放電が発生する放電発生点はランダムになるものの、全ての放電発生点で一度放電が生じてからは、放電電位に達した放電発生点で順次放電が生じるため、ランダム放電発生時に放電した順序に従った放電発生が行われている。この放電発生に関する法則は放電リアクタの放電発生点数や放電発生点距離、放電ギャップなどの仕様に問わず成り立つと考える。ここで放電結合の現象を捉えたいと考えると、放電発生点は一次元配列で3点以上を備えていけばよいと考えることが出来る。

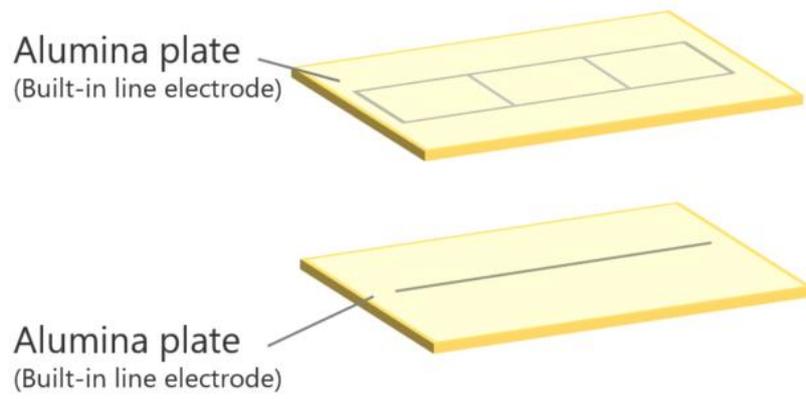


Fig. 2.15 Dielectric electrode.

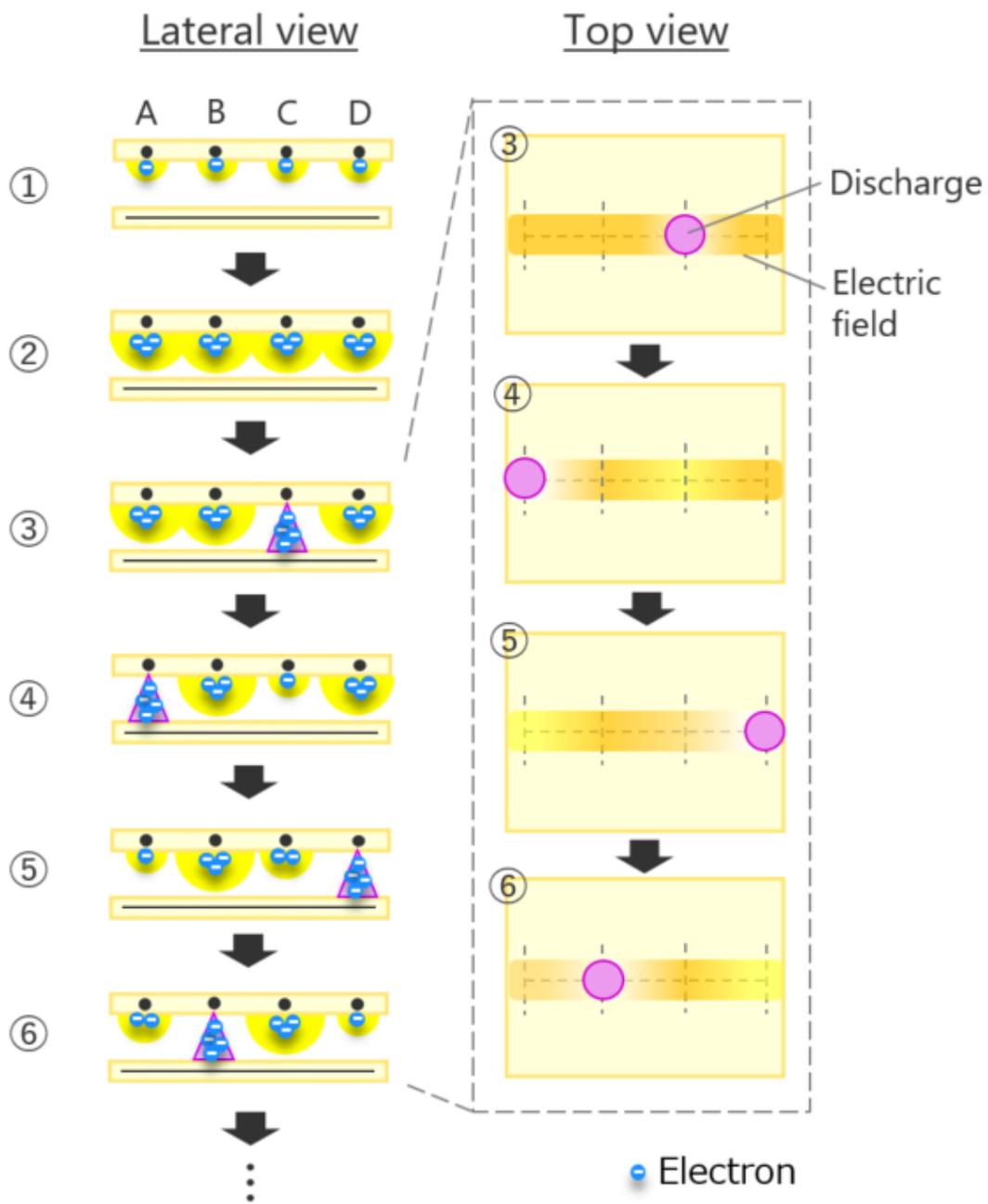


Fig. 2.16 Process of barrier discharge generation.

次にバリア放電発生の時間的な取り扱いについて講じる。1章でも述べたように交流印加電圧でのバリア放電発生では、交流印加電圧の1/2周期で一方向への放電が複数の放電点でランダムに生じ、次の1/2周期で逆方向への放電が同じように生じる。交流電圧の繰り返し印可により本現象が繰り返し起こる。交流電圧切り替わりの初期に放電する放電発生点はランダムであるがそれ以後は法則に従った放電発生順序となる。

図2.17には、デジタルオシロスコープにより計測した交流印可電圧とそれに伴う放電電流を示す。繰り返しの電圧印可における電流は図示するようにほぼ重なる。このように交流印加電圧1周期分の放電電流波形や放電本数は再現性があると考えられる。そのため交流印加電圧1周期分の放電発生現象について議論すれば、それは時間的に連続な現象の議論として捉えることができると考える。

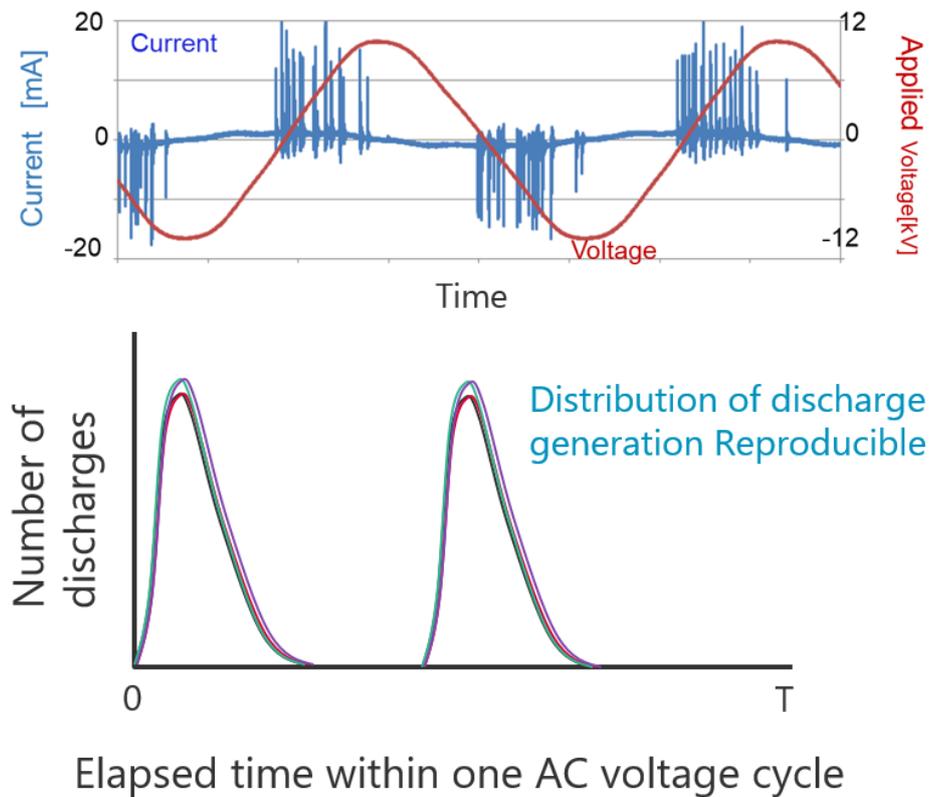


Fig. 2.17 Reproducibility of barrier discharge phenomena for one cycle of AC applied voltage.

以降においては、交流電圧でのバリア放電に対して空間/時間的に現象の再現性が担保可能な最小の系として一次元系の放電発生点配置かつ放電発生点3つ以上・交流印加電圧1周期分)において議論する。

### 2.4.3. 放電本数の計算

放電本数の計算手法について説明する。本研究では、前述した電流センサ/プローブが持つインピーダンスにより測定電流波形に重畳するハンチングの誤差影響を排除するため、放電1本あたりの電流波形が持つ形状的な特徴全体に着目した。加えて、生体工学や音響工学における信号処理で用いられるテンプレート減算法<sup>(2.9),(2.10)</sup>の考え方を参考とし、本手法を構築した。テンプレート減算法とは、ある特定のノイズ情報などの特徴量が規定された波形データをテンプレート波形とし、被処理波形データからテンプレート波形情報を減算することで、得たい波形情報とテンプレート波形情報の分離を行う手法である。この考えを基本に、本手法では、放電電流波形から放電1本あたりの電流波形をテンプレート波形として抽出した後、放電電流波形からテンプレート波形の電流値を減算し、減算回数を放電本数としている。以降で、これら手法の具体的内容について説明する。

放電本数を計算する手法について下記(1)～(4)で説明する。

- (1) 図2.18に示すように、電流センサにより測定した放電電流  $I_{out}$  波形から放電本数を計算する交流電圧1/2周期分の電流波形を選択する。
- (2) 選択した電流波形に対して、スパイク状のピーク電流を検出可能な電流閾値  $I_{thres}$  を任意に設定する。そして図2.19に示すように、電流閾値を超過し、かつ閾値を超過してから放電1本あたりの放電波形長期間(～10 nsec)内に再び電流閾値を超過しない波形を放電1本あたりの基準電流波形候補として抽出する。
- (3) 図2.20に示すように、抽出した基準電流波形候補のピーク電流タイミングを合わせて、電流値を平均化した波形を基準電流波形とする。
- (4) 図2.21に示すように、放電1サイクル分の電流波形を時間方向に掃引し、先ほど設定した電流閾値  $I_{thres}$  を超過するタイミングで電流波形から基準電流波形を減算する。そしてまた最初から時間方向に掃引し、 $I_{thres}$  を超過するタイミング

で基準電流波形を減算する。この流れを放電1サイクル分、 $I_{\text{thres}}$ を超過せず掃引を終えるまで繰り返し、終了時点での減算回数を放電本数  $N$  とする。

図 2.2 1 の計算例では、合計3回の減算が実施されるので放電本数  $N$  は3本となる。

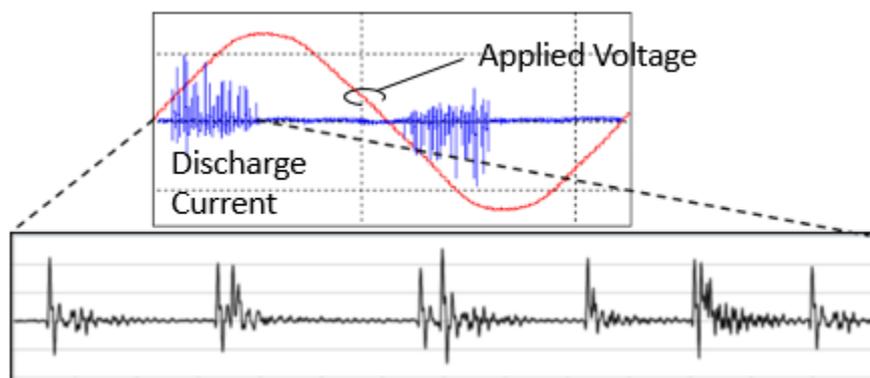


Fig. 2.18 Selecting discharge current waveform.

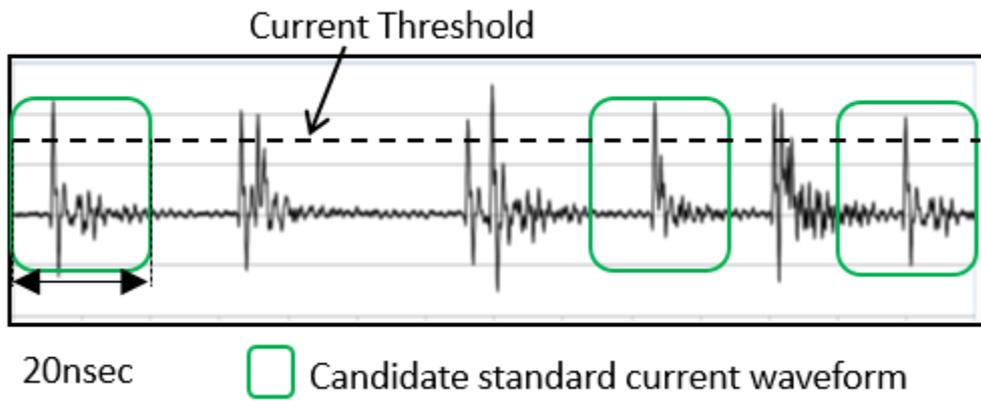


Fig. 2.19 Extraction standard current waveform.

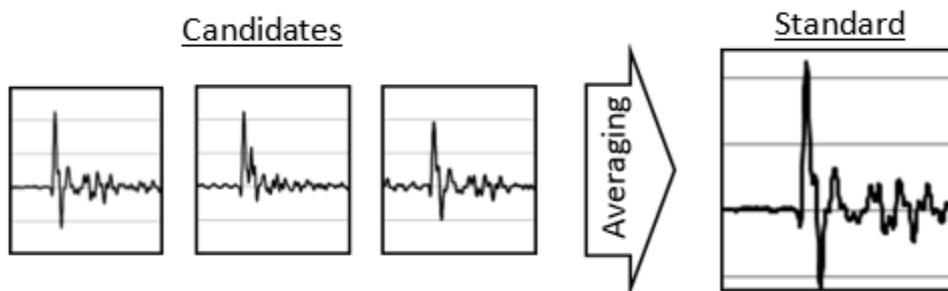


Fig. 2.20 Derivation standard current waveform.

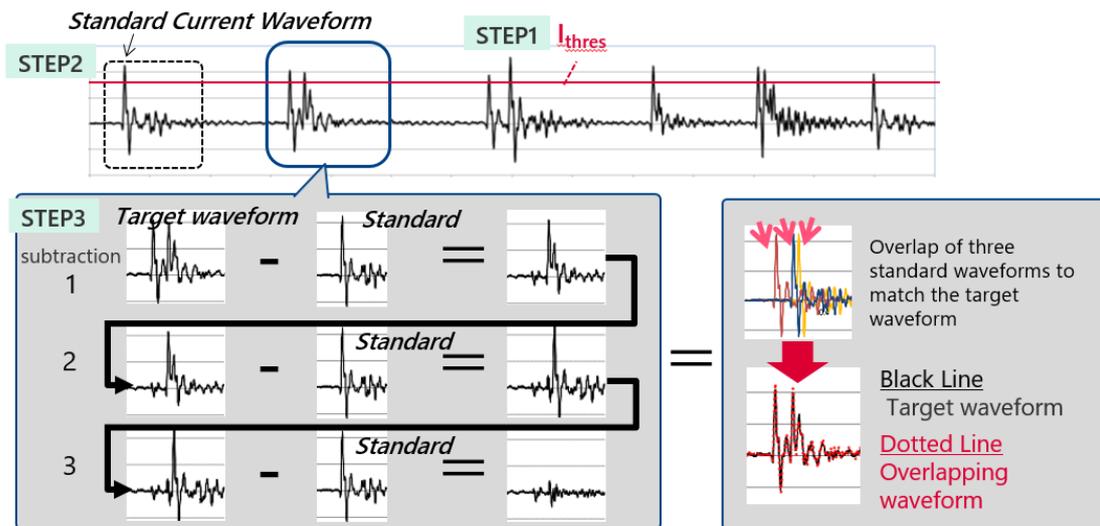


Fig. 2.21 Subtracting standard current waveform.

ここでは、2.2節の実験装置を用いて測定したデータに対し、上記説明した放電本数の計算手法を適用した実例を示す。放電リアクタには、図2.6に示す放電リアクタ仕様から、2枚の電極板仕様Aを放電ギャップ1.0 mmで組み合わせた線-線電極構成の放電リアクタを用いた。交流印加電圧14.8 kV<sub>p-p</sub>、印加電圧周波数45 kHzとしたときの放電電流 $I_{out}$ を測定し、測定データに対し放電本数の計算手法を適用した。

測定した電流波形と選択波形を図2.22に示す。放電電流 $I_{out}$ 波形から放電本数を計算する交流電圧1/2周期分の電流波形として放電電流波形(c)を選択した。

図2.23に、放電電流波形(c)から電流閾値10 mA以上、設定期間20 nsecの探索条件で抽出した基準電流波形の候補と、候補波形の電流平均化により導出した基準電流波形を示す。ここでは放電電流波形(c)より、ピーク電流を検出可能な電流閾値の設定を10 mAとした。放電電流波形(c)に対し、基準電流波形で繰り返し減算による放電本数計算を行った結果、図2.24に示すように放電本数は22本となった。

放電電流波形(c)と同様に、図2.22の放電電流波形(a)~(j)に放電本数計算を実施した。図2.25に示すように、各放電電流波形(a)~(j)の放電本数は近い値を示し、平均放電本数 $\bar{N}$ は22本となる。

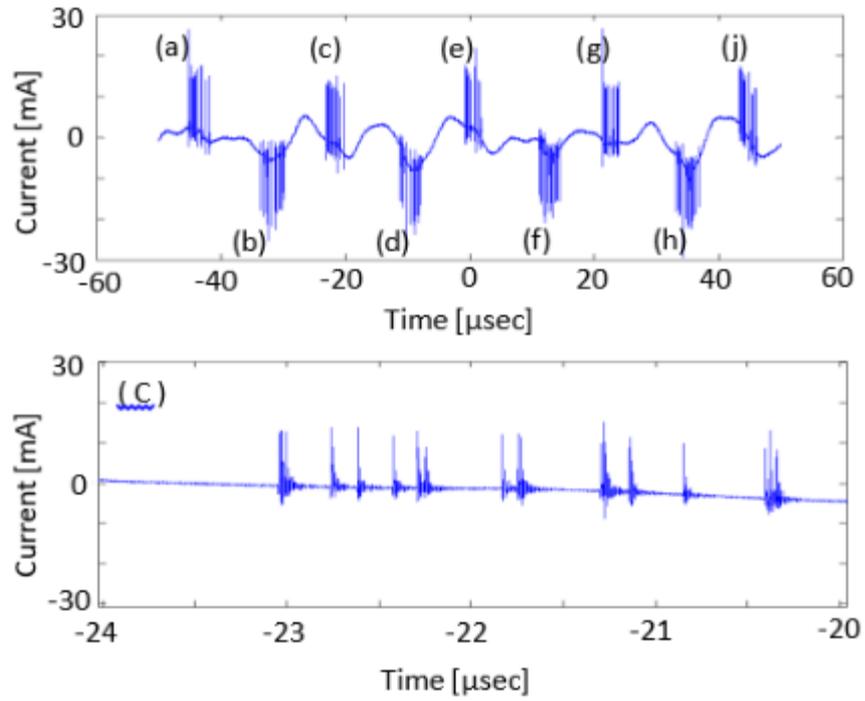


Fig. 2.22 Selection of discharge current waveform for one discharge cycle.

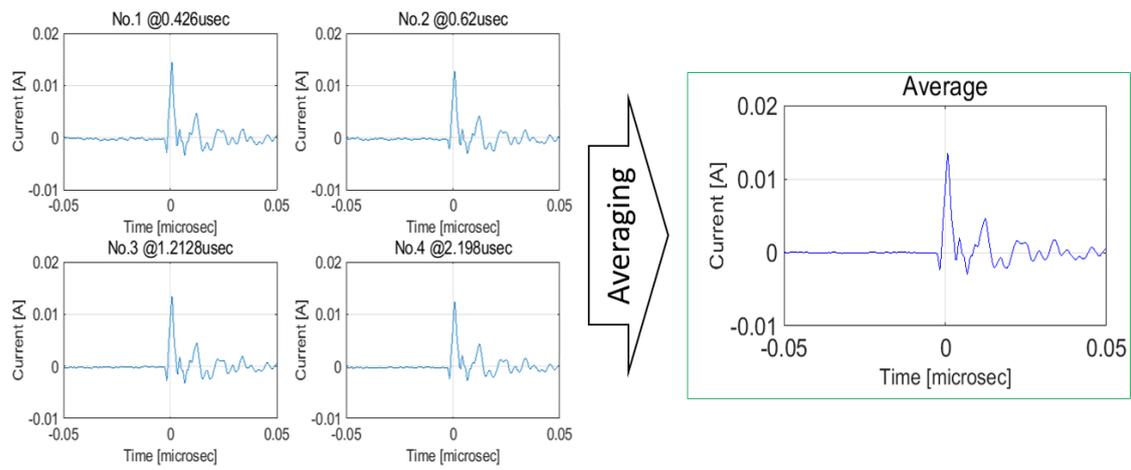


Fig. 2.23 Calculation of standard current waveform.

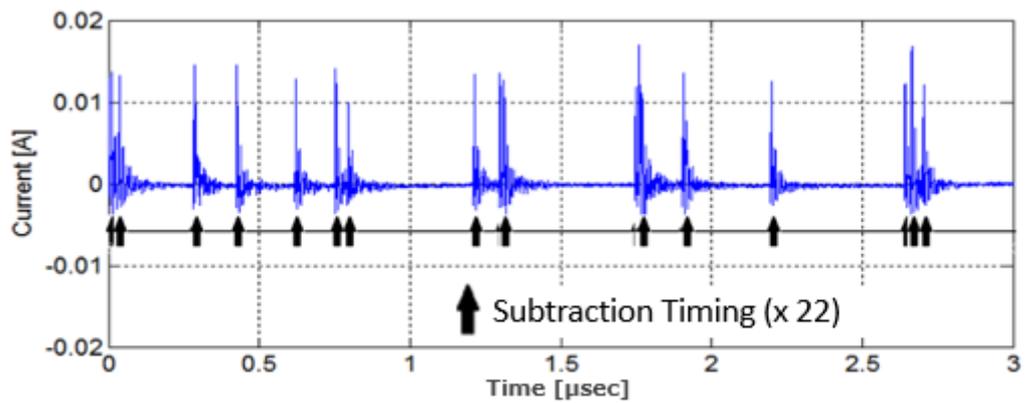


Fig. 2.24 Subtraction of standard current waveform.

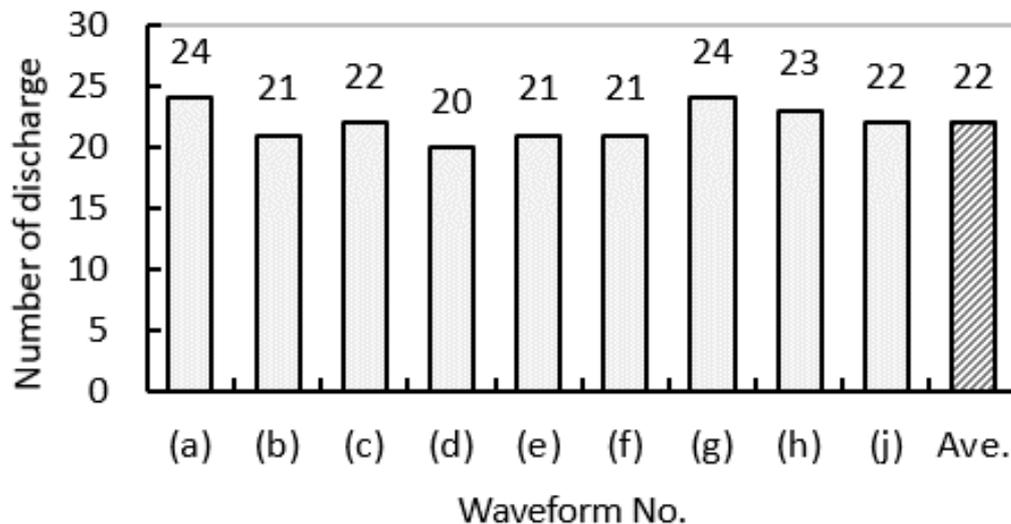


Fig. 2.25 Average number of discharges for all cycles of discharge current waveform.

#### 2.4.4. 放電本数計算の確からしさ検証

前述の放電本数計算手法の計算精度を検証するため、高速度カメラ撮影による放電観測と、これに同期した放電電流波形の放電本数計算を実施した。実験装置構成は図 2.9 に示す通りである。検証に用いた放電リアクタ仕様と交流印加電圧条件は 2.4.3 節での測定時と同様とした。高速度カメラ撮影の各設定値を表 2.9 に示す。また撮影した放電画像を輝度情報で二値化処理した画像と、撮影同期したタイミングで測定した電流波形を図 2.26 と図 2.27 にそれぞれ示す。図 2.26 では、撮影画像に 1 本の放電が観測され、撮影と同期した電流波形からの放電本数計算の結果も矢印部分にて 1 本と計算される。一方、図 2.27 では、撮影画像に放電が 4 本観測される。図 2.26 での電流波形を放電 1 本あたりの基準電流波形として図 2.27 の撮影時間 200 nsec 内の電流波形から放電本数計算を実施した。結果は、矢印部分にて放電本数は 4 本と計算され、撮影画像から観測した放電本数と電流波形から算出した放電本数が一致することを確

認した。

上記のように、撮影画像と放電本数計算の比較検証をデータ数  $n=122$  に対して実施した結果を表 2.10 に示す。データ全体での正答率は 96% となることを確認した。また誤答データは、放電本数 10 本以上に集中している。放電本数 10 本以上での放電本数の計算誤差内訳を図 2.28 に示す。誤答データは、全て計算による放電本数が少ない結果を示す。これは基準電流波形の減算毎に対象波形のピーク電流値のばらつき分だけ負電流側に誤差が蓄積し、減算最後の放電波形 1 本もしくは 2 本が電流閾値  $I_{thres}$  を超過しなくなることに起因するものと考ええる。

よって、本手法は 10 本/200 nsec 則ち 50 本/ $\mu$ sec 以下の放電電流波形に対して計測精度が高い手法と言える。計算精度の向上に関する検討は今後の研究課題とするが、本研究で扱う放電本数は最大 5 本/ $\mu$ sec を扱うため、構築した放電本数の計算手法は十分な精度であると言える。

Table 2.9 High-Speed camera conditions.

Item	Condition
Camera shutter speed	9,000 fps
Shutter opening period	200 nsec
Camera shutter trigger (dual edge)	$V_{out} > \pm 5kV$ (Interval 0.1 msec)
Image intensifier speed	250,000 fps

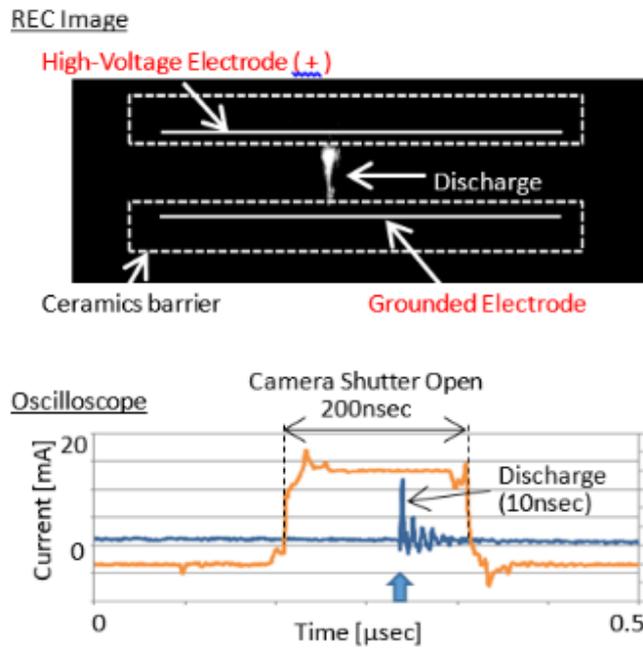


Fig. 2.26 Discharge image and current waveform (1 discharge).

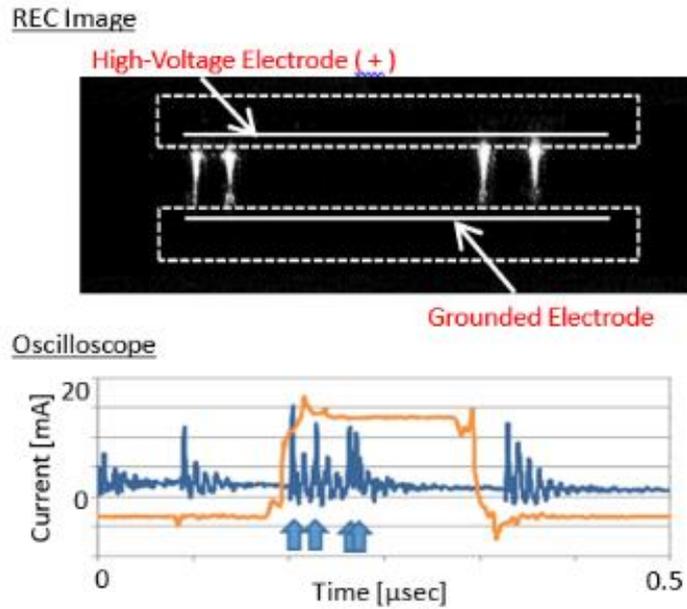


Fig. 2.27 Discharge image and current waveform (4 discharges).

Table 2.10 Comparison of number of discharges in the photograph and by this method.

Number of discharges in photograph	Number of applicable photograph data	Match		Match Rate
		the number of discharges in the photograph and by this method	Wrong	
0	21	21	0	100%
1~3	49	49	0	100%
4~6	31	31	0	100%
7~9	12	12	0	100%
10~	9	4	5	44%
total	122	117	5	96%

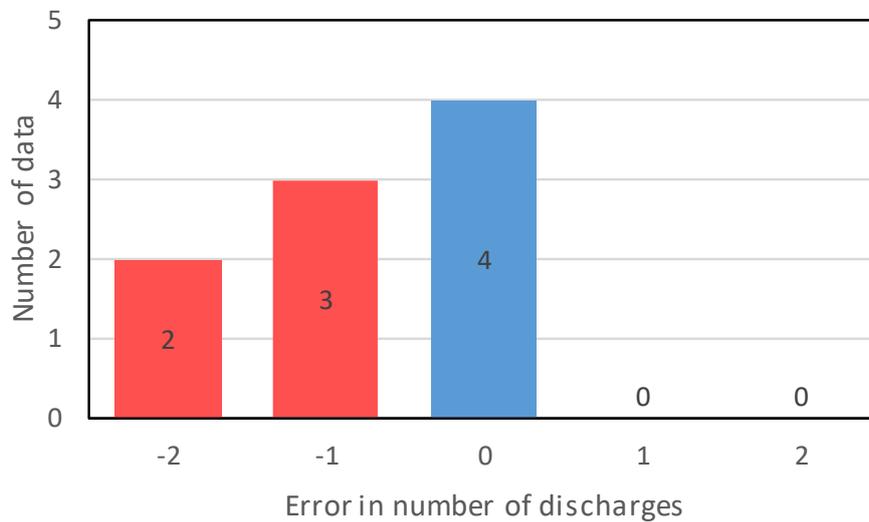


Fig. 2.28 Error in calculation of number of discharges for 10 or more discharges.

#### 2.4.5. 放電 1 本あたりの平均電荷量の計算

放電 1 本あたりの電荷量であるが、2.1 節でも挙げたように代表的な算出方法としては放電 1 本あたりの電流波形の時間積分値として計算される<sup>(2.4)</sup>。

しかし、放電 1 本あたりの電荷量のような極微量の電荷量計算においては、電流波形を測定するための電流センサ/プローブ自身を持つ静電容量が大きく影響を与える。具体的には、静電容量により放電 1 本あたりの電流波形にはハンチングが生じるため、正確な電荷量計算が実施できない。静電容量による影響を排除して放電 1 本あたりの電荷量を正確に捉えるには、放電リアクタに対し無誘導抵抗などの静電容量成分の無い抵抗器を直列に接続して、その抵抗器両端の電圧を計測する手段がある。しかし、この手段が有効であるのは交流電圧 1/2 周期あたりの放電本数が 1～3 本程度に留まる小規模な系のみである。

本研究にて取り扱う 1～3 本程度より多くの放電本数を生じさせる系には、無誘導抵抗の抵抗値が放電状態にも影響を与えるため正確な電荷量は計算できない。以上を勘案し、本研究では交流電圧 1 周期分の総電荷量（図 2.1 3 のリサージュ図形中の放電電荷量  $2Q_d$ ）を計算し、(2.2) 式に示すように放電本数  $N$  の導出後に電荷量  $2Q_d$  を放電本数  $N$  で除することで放電 1 本あたりの平均電荷量  $q_\mu$  を算出する。

$$q_\mu = 2Q_d / N \quad (2.2)$$

#### 2.5. 放電 1 本あたりの電荷量ばらつきの計算

2.4 節に述べた手法で、“放電画像”、“放電本数”、“放電 1 本あたりの平均電荷量”は取得可能である。ここでは取得情報に対して更に考察を深めるための放電 1 本あたりの電荷量ばらつきの計算手法について説明する。この手法は、放電本数計算の手法に手順を追加し構築している。ただし、本手法では計算精度検証は行っておらず、取得情報の確からしさは保証されない。あくまで定性的に現象の傾向を捉える手法とする。

ここから放電 1 本あたりの電荷量ばらつきの計算手順について説明する。計算手法の概要を図 2.2 9 に示す。計算の手順を下記 (1) ~ (5) で説明する。

- (1) 放電電流波形  $I_{out}$  から 2.4.3 節の手法で放電 1 本の基準電流波形を抽出して、基準電流波形の電荷量  $q_r$  を時間積分により算出する。
- (2) 基準電流波形の電流ピーク  $I_r$  に対して、変動許容幅 ( $\pm m\%$ ) を設定する (本研究では、実機試験での放電リアクタ仕様・印加電圧条件・供給ガス条件による放電 1 本あたりのピーク電流ばらつきから  $m=20$  と設定)。
- (3) 基準電流波形の減算時に  $I_r$  の変動許容幅  $\pm m\%$  に電流ピーク  $I_t$  が入る対象波形に対し、(2.3) 式で電荷  $q_t$  を算出。このとき対象波形の電流ピークが  $I_r$  の  $+m\%$  を超過し、減算後の電流ピークが  $I_r$  の  $-m\%$  を下回る場合は、電荷量を  $q_r+q_t$  として算出する。
- (4) 放電電流波形  $I_{out}$  全体に対して放電 1 本あたりの電荷量を算出し終わったら、(2.4) 式で平均電荷量  $\bar{q}$  を算出する。
- (5) 各放電 1 本あたりの電荷量  $q_i$  を (2.5) 式により校正し  $\hat{q}_i$  を算出する。

$$q_t = (I_t / I_r) * q_r \quad (2.3)$$

$$\bar{q} = \sum_{i=0}^n q_i / N \quad (2.4)$$

$$\hat{q}_i = q_i * \frac{q_\mu}{\bar{q}} \quad (2.5)$$

放電 1 本あたりの電荷量の計算手法について説明したが、この計算手法は放電 1 本あたりの電流波形が電流値 (高さ) 方向に波形形状は維持したまま比例倍であること

を前提として成立している。そのため、放電結合の電流波形に対しても電流値方向に比率倍となるか検討する必要がある。

図2.30には、その検討内容を示す。本項での計算手法は、放電初期に生じるスパイク状の電流ピークを利用しているため、放電結合時にも同様の電流ピークが存在する必要がある。この電流ピークは、バリア放電初期の電子なだれ現象であるストリーマヘッドの進展を捉えたものである。ストリーマヘッドは印加電圧への依存性はなく、常に同一速度で進展し、その進展速度は凡そ  $1 \text{ mm/nsec}$  である<sup>(2.11)</sup>。

本研究で用いる放電リアクタ仕様（電極ピッチ  $p: 1 \text{ mm}$ 、放電ギャップ  $d: 1 \text{ mm}$ ）にて、放電一部結合が生じた状況を想定する。まず1つの放電発生点から放電発生すると、ストリーマヘッドは放電ギャップ間を  $1 \text{ nsec}$  で進展し対面の電極へ到達する。隣の放電発生点からは、このストリーマヘッドに追従する形で一部の電子が引き込まれ、放電一部結合が生じる。このとき、ストリーマヘッドが到達する対向電極上の位置と、一部結合された電子が到達する対向電極上の位置は同じである。そのため、隣の放電発生点からストリーマヘッドの到達点までの距離で巻き込まれた電子の移動時間を算出すると  $1.9 \text{ nsec}$  となる。図2.14中に示した放電1本あたりの電流波形では、その電流ピーク波形は  $5\sim 7 \text{ nsec}$  の山なり波形であることが確認できる。放電一部結合の場合を想定して試算した電子の移動速度の方が早いため、放電結合による電流増加は、初期の電流ピーク波形に含まれると考えられる。すなわち、放電結合の電流波形に対しても電流値方向に比例倍となると言える。

以上のように、放電1本あたりの電荷量ばらつきを計算する手法を構築した。

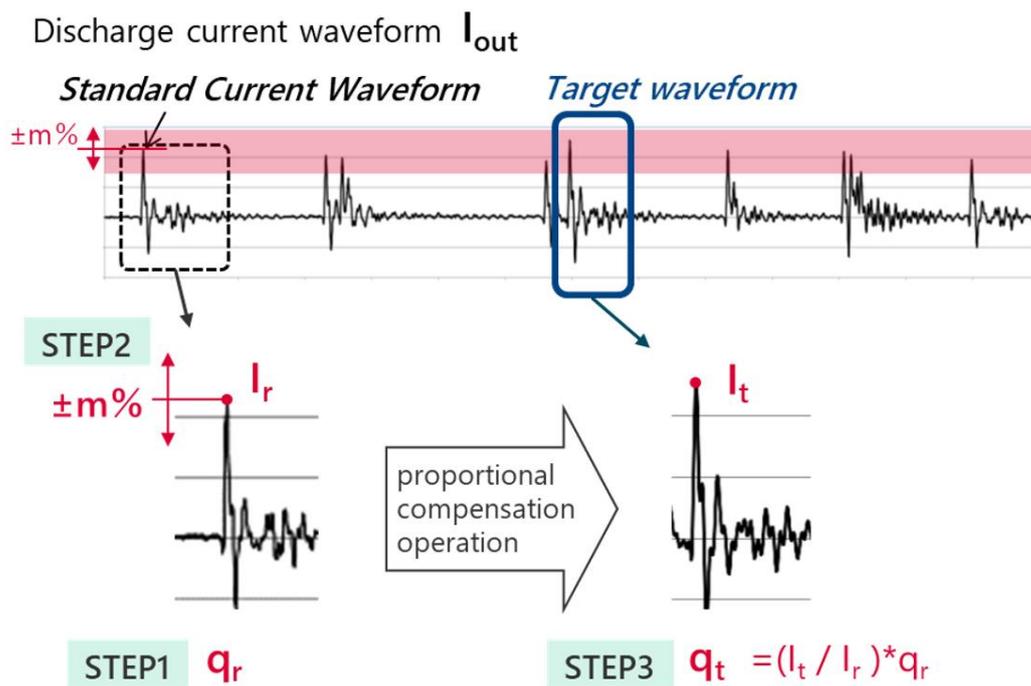
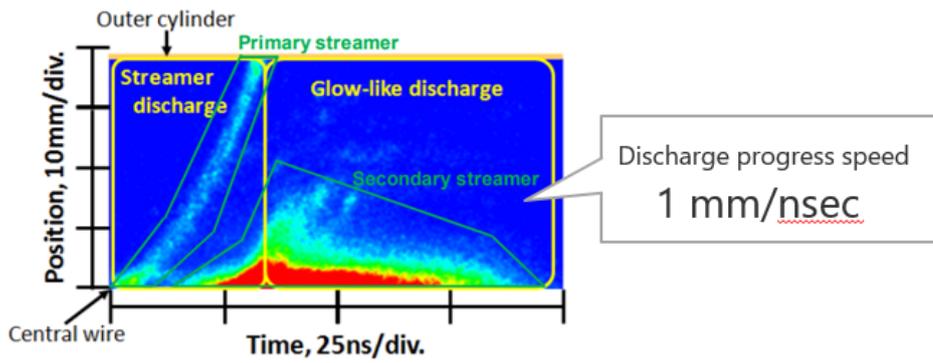
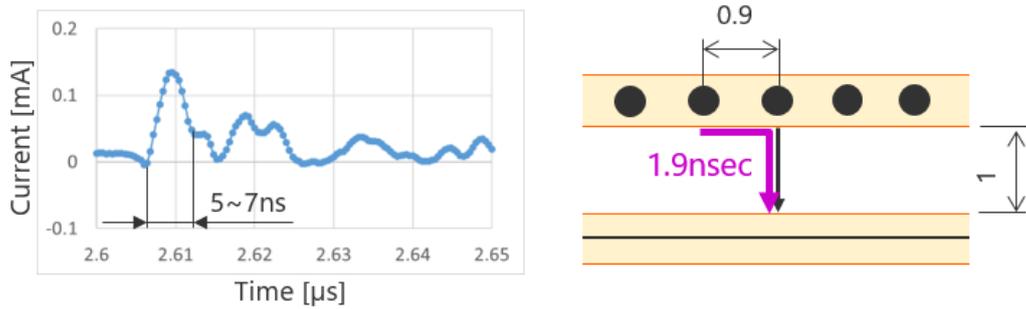


Fig. 2.29 Method for calculating the amount of charge per discharge.



(a) Streak image of pulsed discharge in coaxial electrode<sup>(2.9)</sup>.



(b) Current waveform of one discharge. Discharge coupling develops at 1.9 nsec

Fig. 2.30 Current waveform consideration of discharge coupling. (a)Streak image of pulsed discharge in coaxial electrode<sup>(2.11)</sup>. (b)Current waveform of one dischrge.

## 2.6. 実機試験での測定/計算の流れ

実機試験は、図 2.6 の放電リアクタを用いて、放電ギャップ  $d$  を 1.0mm で固定条件とし、放電発生点距離  $p$  が 0.5mm, 1.0mm, 2.0mm の 3 水準における「①放電画像」の撮影と、その時の「②放電本数」および「③放電 1 本あたりの平均電荷量」の取得を行った。実験環境は図 2.9 に示す装置構成にて、表 2.1 1 の電圧印加条件と、表 2.1 2 の高速度カメラ撮影条件で行った。

Table 2.11 Voltage application conditions

Item	Condition
Applied AC voltage	17.5 kVp-p
Applied voltage frequency	45 kHz

Table 2.12 High-speed camera shooting conditions

Item	Condition
Frame Rate @ Camera	9,000 fps
Shutter opening time	200 nsec
Shooting start trigger	Vout > $\pm 5$ kV (Interval 0.1 msec)
Frame Rate @ I.I.	250,000 fps

実機試験による「①放電画像」および電流波形の取得、「②放電本数」、「③放電1本あたりの平均電荷量」の計算は、図2.3 1の測定/計算フローに従って実施した。

測定フローは、放電生成-電流波形測定プロセスと放電画像撮影プロセスが並行して進行する。まず、放電リアクタに交流電圧  $V_{out}$  を印加する。このとき、高速度カメラは放電撮影トリガー信号を待機した状態となっている。 $V_{out}$  が予め設定した撮影トリガー信号の電圧閾値  $V_{trg}$  を超過すると、デジタルオシロスコープより撮影トリガー信号が発信され、高速度カメラでは放電画像の撮影を行う。鮮明な放電画像を撮影するため、撮影トリガー信号が発信される毎に撮影された画像は、輝度情報が重ね書きされる。この過程で発生している放電電流  $I_{out}$  は電流センサで測定し、 $V_{out}$ ・撮影トリガー信号と共にデジタルオシロスコープに記録される。この測定フローを  $V_{out}$  が出力されている間継続する。 $V_{out}$  の出力が停止したときには、デジタルオシロスコープから高速度カメラに停止信号を発信し、高速度カメラの撮影トリガー信号待機状態を解除する。そして、重ね書きされた放電画像をデータとして保存する。以上の流れで、撮影した「①放電画像」と、それに同期する「電流波形」を取得する。

続いて計算フローでは、先程測定フローにて取得した「電流波形」を使って「②放電本数」と「③放電1本あたりの平均電荷量」を計算する（加えて「放電1本あたりの電荷量」も計算）。まず、電流波形  $I_{out}$  から 1/2 周期分の電流波形を選択し、放電1本の電流波形のピーク電流より若干小さい値で任意に電流閾値  $I_{thres}$  を設定し、基準電流波形を抽出する。そしてその基準電流波形の積分より電荷量  $q_r$  を算出する。続いて基準電流波形ピーク  $I_r$  の変動許容幅  $\pm m[\%]$  を設定する。本研究では、2.5 節で述べたように実機試験での放電リアクタ仕様・印加電圧条件・供給ガス条件による放電1本あたりのピーク電流ばらつきから  $m=20$  と設定した。また別途取得した放電リアクタの出力電圧  $V_{out}$  とキャパシタ  $C_E$  両端間電圧  $V_C$  からリサージュ法により放電電荷量  $2Q_d$  を導出する。

$I_{thres}$  を超過する電流ピーク  $I_i$  を持つ対象波形に対し、基準電流波形の電流値を減算する。またこのとき、 $I_r$  の  $\pm m\%$  に  $I_i$  が該当する場合、放電1本あたりの電荷量  $q_i$  を (2.3) ~ (2.5) 式にて計算する。

$$q_t = (I_t / I_r) * q_r \quad (2.3)$$

$$\bar{q} = \sum_{i=0}^n q_i / N \quad (2.4)$$

$$\dot{q}_i = q_i * \frac{q_\mu}{\bar{q}} \quad (2.5)$$

そしてまた、「電流波形」に対して  $I_{\text{thres}}$  を超過する電流ピーク  $I_t$  を探索し、対象波形が存在すれば基準電流波形の電流値の減算と  $q_t$  の計算を実施する。この流れを対象波形が存在しなくなるまで繰り返し実施し、最終的に減算回数として「②放電本数  $N$ 」と「放電 1 本あたりの電荷量分布」を得る。その後、リサーチ法により算出した総電荷量  $2Q_d$  と放電本数  $N$  から「③放電 1 本あたりの平均電荷量  $q_\mu$ 」を (2.2) 式にて計算する。

$$q_\mu = 2Q_d / N \quad (2.2)$$

以上より、本研究で取得したい「①放電画像」、「②放電本数」、「③放電 1 本あたりの平均電荷量」の各々を、同一時間に測定したデータから取得する。

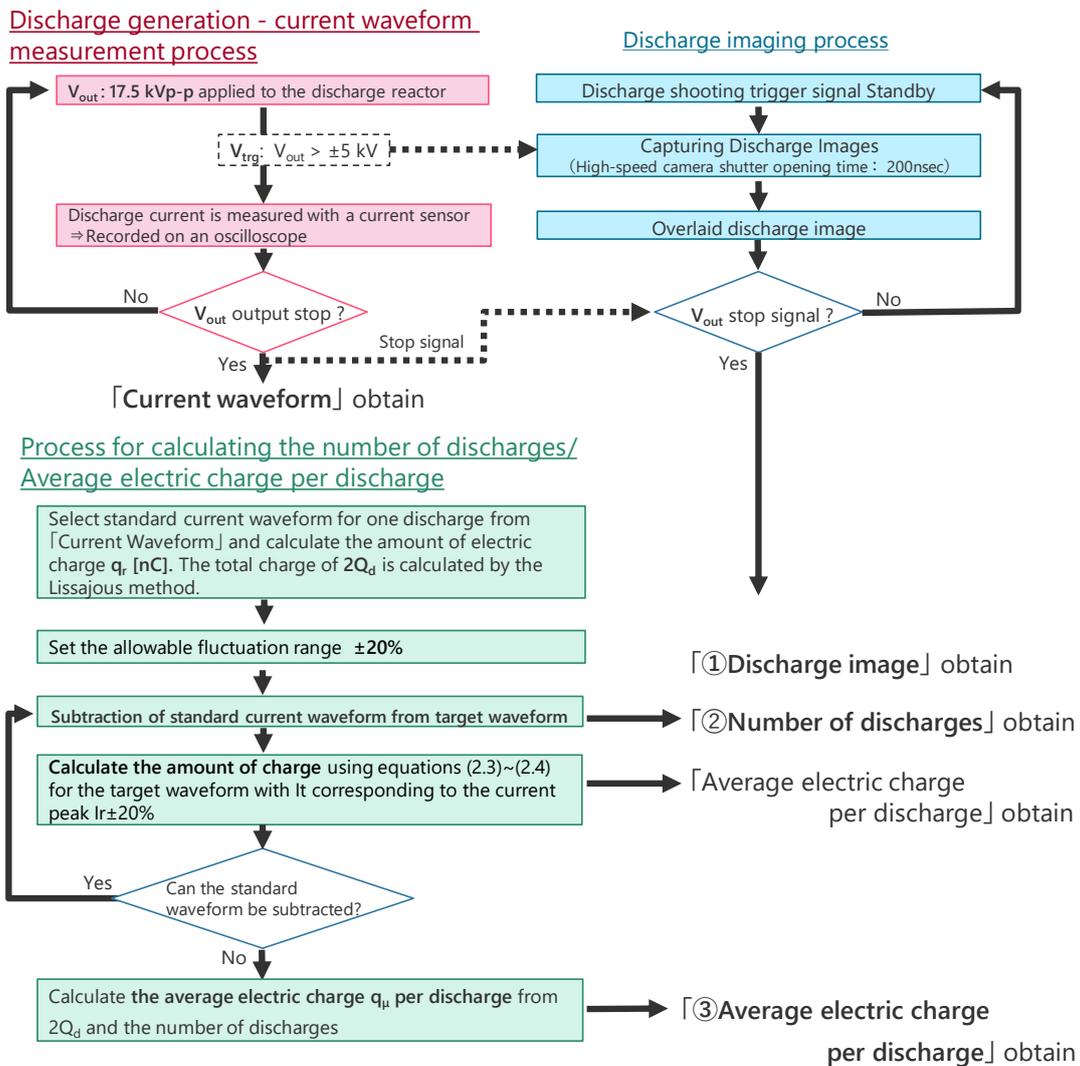


Fig. 2.31 Measurement/calculation flow.

## 参考文献 2章

- (2.1) 田中正明, 八木重典, 田畑則一: 「イメージ・インテンシファイヤによる無声放電の観測」, 電気学会論文誌A, Vol. 110, pp. 119-125 (1990)
- (2.2) Y. Shuiliang, W. Zuliang, H. Jingyi, T. Xiujuan, J. Boqiong, L. Hao, S. Yamamoto, S. Kodama: " Study of ozone generation in an atmospheric dielectric barrier discharge reactor", J. Electrostat., Vol. 75, pp. 35-42 (2015)
- (2.3) G. Ernest, G. Sebastian, P. Jaroslaw: " Effect of Mesh Geometry on Power, Efficiency, and Homogeneity of Barrier Discharges in the Presence of Glass Dielectric", IEEE Trans. on Plasma Science, Vol. 46, No. 10, pp. 3493-3498 (2018)
- (2.4) J. Ran, X. Zhang, D. Ge, X. Li, and X. Li: "Effect of Dielectric Surface Morphology on Dielectric Barrier Discharge Mode in Air at Atmospheric Pressure", IEEE Trans. on Plasma Science, Vol. 49, No. 1, pp. 214-218 (2021)
- (2.5) K. Takaki, Y. Hatanaka, K. Arima, S. Mukaigawa, T. Fujiwara: "Influence of electrode configuration on ozone synthesis and microdischarge property in dielectric barrier discharge reactor", Vacuum, Vol. 83, pp. 128-132 (2009)
- (2.6) 朝倉電気電子工学大系2: バリア放電, 朝倉書店 (2012)
- (2.7) 竹本翔一, 松井良彦, 飯盛遊, 服部健二, 松本修一, 西島義明, 榎本哲士: 「高周波バリア放電時の放電抵抗数式モデルの開発」, 静電気学会誌, Vol. 44, No.1 (1990)
- (2.8) 野崎智洋, 高木浩一, 浪平隆男, 北野勝久, 金載浩, 野村信福, 市川紀充, 富田一, 林信哉, 岩尾徹: 「3.大気圧プラズマを準備しよう. 」, プラズマ・核融合学会誌, Vol. 83, No. 12, pp. 942-956 (2007)
- (2.9) J. Costa, J. Seixas, A. Mauricio, : " A template subtraction method for reducing electrocardiographic artifacts in EMG signals of low intensity", Biomedical Signal Processing and Control, Vol. 47, pp. 380-386 (2019)
- (2.10) Y. Ma, X. Xiao, Y. Wang, : " Identifying the root cause of power system disturbances based on waveform templates", Electric Power Systems Research,

Vol. 180, 106107 (2020)

- (2.11) 浪平隆男, 王斗艶, 松本宇生, 岡田翔, 秋山秀典: 「ナノ秒パルス放電プラズマの特性とその応用展開」, 電気学会論文誌FM, Vol. 129, No. 1, pp. 7-14 (2009)

## 3 章 測定結果・考察

### 3.1. 測定結果

2.2 節で示した放電リアクタと測定装置を用いて、放電リアクタの放電発生点距離を変更し、①放電画像、②放電本数と③放電 1 本あたりの平均電荷量を測定した結果をそれぞれ示す。

バリア放電リアクタの放電発生点間隔  $p$  を 0.5mm, 1.0mm, 2.0mm, 放電ギャップ  $d$  を 1.0mm と設定した。  $p=0.5\text{mm}$  の場合は放電全結合が生じ、  $p=1.0\text{mm}$  の場合は放電全結合もしくは放電一部結合が生じ、  $p=2.0\text{mm}$  の場合は放電結合が生じないと想定している。

取得した画像を図 3.1 に示す。放電画像中の白線交点は、各放電発生点距離  $p$  水準における放電発生点位置を模式的に示したのものである。

$p=2.0\text{mm}(p>d)$  の場合は、放電発生点ごとに、発生点の下部で放電が生じていることを確認した。一方で、  $p=0.5\text{mm}(p<d)$  と  $p=1.0\text{mm}(p=d)$  の場合は、放電発生点間と対向電極の空間にも放電が生じていることが確認できた。

以上のように、放電発生点距離と放電結合有無の関係において想定通りの結果となった。

同時取得した電流波形より算出した ②放電本数と ③放電 1 本あたりの平均電荷量を図 3.2 に示す。また②放電本数の計算結果を変換し、交流電圧 1 周期あたりの放電発生点数に対する放電発生数としたグラフを図 3.3 に示す。放電本数及び放電 1 本あたりの平均電荷量の計算は、2.4 節に示した手法を用いた。

$p=2.0\text{mm}$  の場合は、放電発生点数 15 に対して放電本数 34 本/cycle と放電発生点数に対する放電本数の割合は試験水準の中で最も大きいことを確認した。加えて、放電 1 本あたりの平均電荷量は試験水準で最も小さい 0.79nC であった。

一方で  $p=0.5\text{mm}$  の場合は、放電発生点数 57 に対して放電本数 30 本/cycle と放電発生点数に対する放電本数の割合は試験水準で最も小さいことを確認した。加えて、放電 1 本あたりの平均電荷量は試験水準で最も大きい  $1.27\text{nC}$  であった。

$p=1.0\text{mm}$  の場合の放電発生点数 29 に対する放電本数 38 本/cycle と放電 1 本あたりの平均電荷量  $0.81\text{nC}$  の大きさの序列は、共に放電発生点距離 3 水準の内の中間となることを確認した。

放電発生点数に対する放電発生数は、 $p=2.0\text{mm}$  の場合、放電発生点数以上の放電が発生しており、全ての放電発生点において放電発生していることが示唆される。一方で  $p=0.5\text{mm}$  と  $p=1.0\text{mm}$  では、放電発生点数に対して放電の発生が少なく、放電が発生していない放電発生点の存在が示されている。

以上のように、放電結合と放電本数・放電 1 本あたりの平均電荷量の関係は想定通りの結果となった。

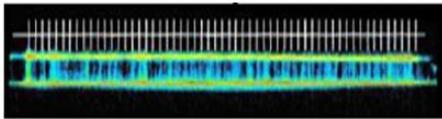
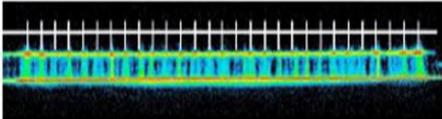
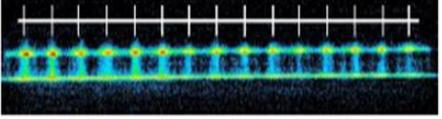
続いて、放電 1 本あたりの電荷量分布を図 3.4 に示す。

$p=2.0\text{mm}$  の場合は、電荷量のばらつきは小さく、かつ他の水準と比較して全体的に小さい電荷量となる分布となった。

$p=1.0\text{mm}$  の場合は、 $p=2.0\text{mm}$  と比較して電荷量のばらつきは大きくなり、分布は高電荷量側へ全体的に移動している。

$p=0.5\text{mm}$  の場合は、 $p=1.0\text{mm}$  よりも僅かに電荷量のばらつきが大きくなり、分布は更に高電荷量側へ移動する。加えて、 $1.0\text{nC}$  付近に分布の度数ピークが見られるが、 $1.8\text{nC}$  付近にももう一つの度数ピークが生じていることを確認した。

以上のように、放電結合程度における放電 1 本あたりの電荷量分布の関係も想定通りの結果となった。

Discharge point interval $p$ [mm]	Discharge photography image
0.5 ( $p < d$ )	 <p data-bbox="767 976 1161 1010">Number of discharge points : 57</p>
1.0 ( $p = d$ )	 <p data-bbox="767 1178 1161 1211">Number of discharge points : 29</p>
2.0 ( $p > d$ )	 <p data-bbox="767 1379 1161 1413">Number of discharge points : 15</p>

Discharge gap  $d$ : 1.0 [mm]

Fig. 3.1 Observation results of discharge images.

Discharge point interval $p$ [mm]	Number of discharges [ /cycle]	Average electric charge per discharge [nC]
0.5 ( $p < d$ )	30 Number of discharge points : 57	1.27
1.0 ( $p = d$ )	38 Number of discharge points : 29	0.81
2.0 ( $p > d$ )	34 Number of discharge points : 15	0.79

Discharge gap  $d$ : 1.0 [mm]

Fig. 3.2 Calculation of number of discharges / average electric charge per discharge.

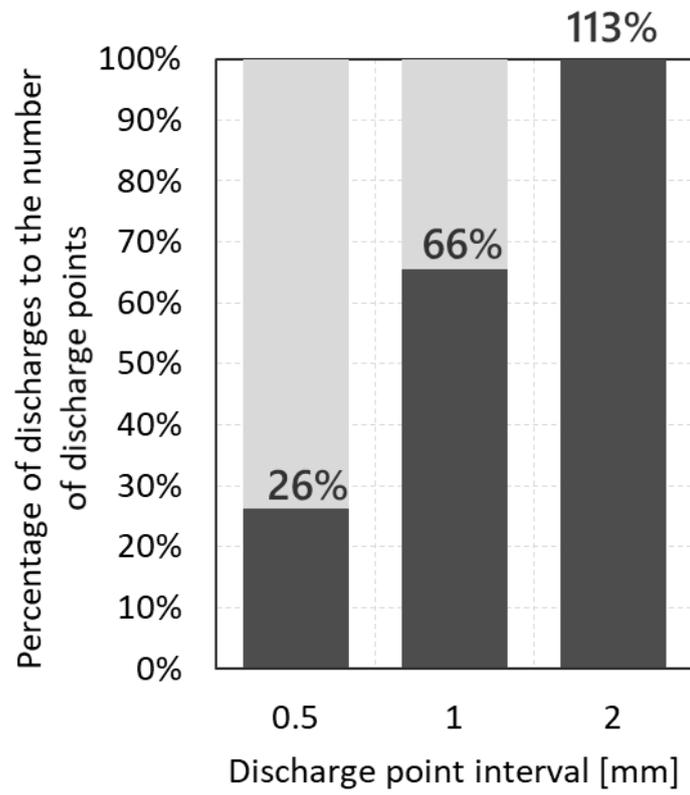
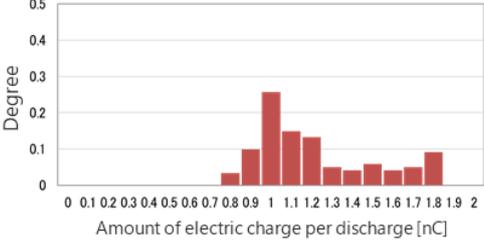
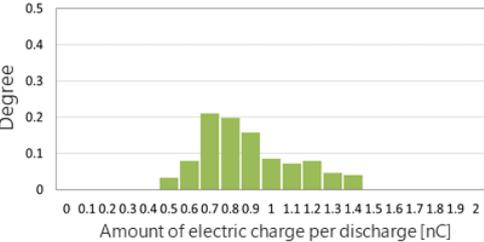
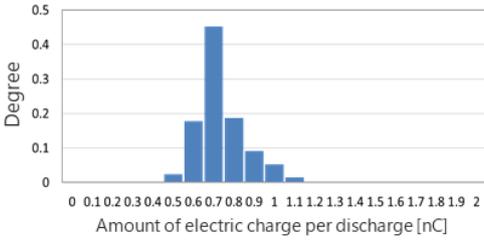


Fig. 3.3 Percentage of discharges to the number of discharge points.

Discharge point interval $p$ [mm]	Distribution of electric charge per discharge
0.5 ( $p < d$ )	
1.0 ( $p = d$ )	
2.0 ( $p > d$ )	

Discharge gap  $d$ : 1.0 [mm]

Fig. 3.4 Calculation of distribution of electric charge per discharge.

### 3.2. 放電本数減少メカニズムの考察

1.9 節における放電本数減少メカニズムの推定では、 $p=0.5\text{mm}$  の場合は放電全結合が生じ、 $p=1.0\text{mm}$  の場合は放電全結合もしくは放電一部結合が生じ、 $p=2.0\text{mm}$  の場合は放電結合が生じないと想定した。放電本数は、放電結合した場合、放電発生点数よりも小さくなると予想され、放電結合しない場合は、放電発生点数と同等となると想定した。また放電 1 本あたりの平均電荷量は、放電結合した場合、放電結合しない場合と比較して大きくなると想定した。

図 3.1 の放電の観察画像より、 $p=0.5\text{mm}(p<d)$  と  $p=1.0\text{mm}(p=d)$  の場合は放電発生点間と対向電極の空間に放電発生が見られた。一方で、 $p=2.0\text{mm}(p>d)$  の場合は放電発生点の下で放電が見られた。これは想定通り、 $p\leq d$  では隣り合う放電発生点で放電結合するため、放電発生点間で放電結合した様子が撮影されているものと考えられる。

加えて、放電発生点数に対する放電本数は、 $p=0.5\text{mm}$  で 30 本/cycle @57 点、 $p=1.0\text{mm}$  で 38 本/cycle @29 点、 $p=2.0\text{mm}$  で 34 本/cycle @15 点であり、放電発生点距離  $p$  が小さいほど放電発生点数に対する放電本数が小さいことを確認した。また放電 1 本あたりの平均電荷量は、 $p=0.5\text{mm}$  で  $1.27\text{nC}$ 、 $p=1.0\text{mm}$  で  $0.81\text{nC}$ 、 $p=2.0\text{mm}$  で  $0.79\text{nC}$  となり、放電発生点数に対する放電本数の割合が小さい方が 1 本あたりの平均電荷量に関してはより大きい結果となっている。これは  $p\leq d$  の場合では、放電発生箇所の周囲に蓄積している電子が放電に巻き込まれて放電結合したため、放電 1 本あたりの平均電荷量が増加し、結果として放電本数が減少したものと考えられる。また、放電結合が生じる  $p=0.5\text{mm}$  と  $p=1.0\text{mm}$  の比較においても放電本数と放電 1 本あたりの平均電荷量には放電発生点距離に応じた序列が見られる。これは放電発生点距離が小さい方が、より放電発生箇所の周囲に蓄積される電子数が多いために、放電結合として巻き込まれる電子の数も多くなった結果によるものと考えられる。

以上までで、“放電画像”、“放電本数”、“放電 1 本あたりの平均電荷量”の結果から放電結合による放電本数減少メカニズムについては考察を行った。これに加えて更に考察を深めるため、ここでは放電 1 本あたりの電荷量ばらつきについての結果考察を行

う。ただし、繰り返しとなるが、放電 1 本あたりの電荷量ばらつきを計算する本手法では、計算精度検証は行っておらず、取得情報の確からしさは保証されない。あくまで定性的に現象の傾向を捉える手法としてその結果を考察した。

放電 1 本あたりの電荷量分布では、放電結合しない  $p=2.0\text{mm}$  に対して、放電結合する  $p=0.5\text{mm}$  と  $p=1.0\text{mm}$  は分布のばらつきが増加し、その分布の中央も高電荷側へシフトしている。これは放電結合により放電 1 本あたりの平均電荷量が増加しているのに加えて、放電結合する放電割合と放電一部結合の程度も放電発生点距離に応じて変化していることを示唆していると考えられる。 $p=0.5\text{mm}$  においては、分布のピークが見られる  $1.0\text{nC}$  に対してほぼ倍近い電荷量の  $1.8\text{nC}$  にももう一つの分布のピークが確認される。これは、放電結合に占める放電全結合の割合が増加したことによるものと考えられる。

以上のように、放電発生点距離に応じた放電結合の観察と放電本数、放電 1 本あたりの平均電荷量の計測を実施し、想定した放電結合条件や状態と実機試験で得られた結果が合致することを確認した。

## 4 章 結論

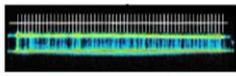
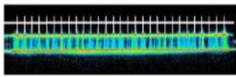
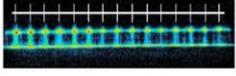
本研究では、「バリア放電の放電発生点距離に応じた放電現象において、①放電画像、②放電本数、③放電 1 本あたりの平均電荷量を取得すること。さらに放電発生点距離が小さくなることにより隣接した放電が結合することを、取得データを用いて明確化すること。」を目的とし、以下に挙げる結論を得た。

本研究における実機試験のまとめ結果を図 4.1 に示す。

- **放電画像の撮影**：放電が観察方向に対して奥行を持たないように、放電が横一列の並びとなる放電リアクタを開発した。また放電状態を鮮明に捉えるため、放電の発生タイミングである電圧変化をトリガーとして、印加交流電圧が毎周期同じ電圧となるタイミングで放電の画像撮影を実施し、輝度情報の重ね描きが可能な装置系・撮影手法を構築した。取得した画像より  $p \leq d$  では放電発生点間と対向電極の空間に放電が見られ、 $p > d$  では放電発生点の下で放電が見られた。放電発生点距離が小さい  $p \leq d$  の条件にて放電が結合することを画像にて示した。
- **放電本数の計算**：複数の放電の重畳からなる全体電流波形から放電 1 本の基準電流波形を抽出し、全体電流波形から減算する放電本数の計算手法を構築した。本手法の精度検証を電流波形と同時取得した放電撮影画像を用いて行った。データ数  $n=122$  に対して正答率は 96 %となることを確認した。この手法により放電本数を取得した。 $p=0.5\text{mm}$ (放電発生点数 57),  $p=1.0\text{mm}$ (放電発生点数 29),  $p=2.0\text{mm}$ (放電発生点数 15)ではそれぞれ 30 本/cycle, 38 本/cycle, 34 本/cycle であり、放電発生点距離  $p$  が小さくなるに従って放電発生点数に対する放電本数が減少しており、放電結合を裏付ける結果を得た。

- **放電 1 本あたりの平均電荷量の計算**：リサーチ法に則った交流電圧 1 周期の総電荷量を，算出した放電本数で除することで放電 1 本あたりの平均電荷量を取得した． $p=0.5\text{mm}$ ， $p=1.0\text{mm}$ ， $p=2.0\text{mm}$  で，それぞれの放電 1 本あたりの平均電荷量の序列が  $1.27\text{nC} > 0.81\text{nC} > 0.79\text{nC}$  であることを示した．放電発生点距離  $p$  が小さくなるに従って放電 1 本あたりの平均電荷量が増加しており，放電結合を裏付ける結果を得た．

以上，①放電画像，②放電本数，③放電 1 本あたりの平均電荷量の 3 つの結果より，隣接した放電発生点の放電が結合しているデータを示し，放電発生点距離が  $p \leq d$  の条件にて放電結合が起こることを明確化した．

Discharge point interval $p$ [mm]	Discharge photography image	Number of discharges [ /cycle]	Average electric charge per discharge [nC]	discharge coupling/co-associating [Occurrence or None]
0.5 ( $p < d$ )		30	1.27	Occurrence
1.0 ( $p = d$ )		38	0.81	Occurrence
2.0 ( $p > d$ )		34	0.79	None

Discharge gap  $d$ : 1.0 [mm]

Fig. 4.1 Summary of verification results.

本研究では、奥行き方向の放電発生点を排除し、横一列の一次元系かつ放電ギャップ 1.0mm、交流電圧振幅 17.5kV<sub>p-p</sub>、交流電圧周波数 45kHz、ガス組成 O<sub>2</sub>:N<sub>2</sub>=21:79 で放電発生点距離を水準としたときの放電結合について検討を行った。

後進の研究には、本研究を、工業応用されるバリア放電へ活用できるよう、より実用形態に近い奥行きを持った放電リアクタや多様な電圧印加条件・ガス組成へ適用可能なように発展させることを期待する。

## 主な使用記号

$C_E$	リサージュ図形測定用キャパシタ	[nF]
$d$	放電ギャップ	[mm]
$E$	電界	[V/m]
$E_d$	放電エネルギー	[J]
$F$	クーロン力	[N]
$I_{out}$	放電電流	[A]
$I_r$	基準電流波形の電流ピーク値	[A]
$I_t$	対象波形の電流ピーク値	[A]
$I_{thres}$	電流閾値	[A]
$m$	変動許容幅	[%]
$N$	放電本数	[pcs / cycle]
$p$	放電発生点距離	[mm]
$q$	電荷量	[C]
$Q_d$	放電電荷量	[C]
$q_r$	基準電流波形の電荷量	[C]
$q_t$	対象波形の電荷量	[C]
$q_{\mu}$	放電 1 本あたりの平均電荷量	[C]
$\bar{q}$	概算平均電荷量	[C]
$\dot{q}_t$	放電 1 本あたりの電荷量	[C]
$r$	帯電体からの距離	[m]
$V_C$	キャパシタ $C_E$ 両端間電圧	[V]
$V_{out}$	放電リアクタの二極間電圧	[V]

$V_{\text{trg}}$	撮影トリガー信号の電圧閾値	[V]
$\varepsilon$	誘電率	[F/m]

## 関連公表論文

題 目	掲載誌 巻・号	発表 年月	著者名
高周波バリア放電時の放電抵抗数式モデルの開発	静電気学会誌（2020）、44巻、1号	2019年9月	竹本翔一、松井良彦、飯盛遊、服部健二、西島義明、松本修一、榎本啓士
電流波形を用いた誘電体バリア放電中の放電本数計算	静電気学会誌（2020）、44巻、3号	2019年9月	竹本翔一、松井良彦、飯盛遊、西島義明、松本修一、榎本啓士

## 謝辞

本研究は、金沢大学と株式会社デンソーとの協力で平成 24 年 4 月に創設された連携講座内において進めたものです。連携講座の運営に関しては、金沢大学 和田隆志学長、山崎光悦前学長、金沢大学大学院 自然科学研究科 榎本啓士准教授にご尽力いただきました。本連携講座は金沢大学大学院 自然科学研究科 機械科学専攻内におかれた先進自動車工学講座であり、株式会社デンソー内に客員教員を擁するものです。

本論文の作成にあたり、多くのご指導、ご助言を賜りました金沢大学大学院 自然科学研究科 榎本啓士准教授、愛知工業大学 工学研究科 西島義明教授（株式会社デンソー、金沢大学大学院 自然科学研究科 客員教授）、株式会社デンソー 噴射機器事業部 松本修一統括部長、株式会社デンソー FVC 事業推進部 松井良彦担当課長（金沢大学大学院 自然科学研究科 客員准教授）に心から感謝申し上げます。中でも松井良彦担当課長には、本研究の遂行、論文執筆にわたり多大なる御尽力を賜りました。厚く御礼申し上げます。また、木綿隆弘教授と寺岡喜和准教授には、本論文をまとめるに当たり貴重なご教示、ご助言を賜りました。心より感謝申し上げます。

本研究は、株式会社 SOKEN、株式会社デンソーで行われた研究であり、実際の研究遂行にあたっては、株式会社デンソー エネルギーソリューション開発部 服部健二担当係長、飯盛遊担当係長、太田裕一郎様、エンジン機器技術部 度会武宏部長、二村麻衣子上級実務職、パワトレ基盤推進部 松岡貴志班長、粕谷忍様には、多大なご協力とご支援を賜りました。心より感謝申し上げます。

近年のカーボンニュートラルに対する機運の高まりの中、株式会社 SOKEN の中でも多忙な部署であるにも関わらず、寺西真哉室長には、業務調整に腐心いただき、学業に専念させていただいたご厚恩に拝謝いたします。

そして、本研究に関わる従来技術の理解について、不躰な問い合わせにも快くご支援、ご指導をいただきました、岩手大学 理工学部 システム創成工学科 高木浩一教授、東京大学 新領域創成科学研究科 小室淳史助教に感謝いたします。

すべての方のお名前を記す事は出来ませんが，研究の遂行から論文の作成に至るまで多くの方々にご支援いただきました。心より感謝の意を表します。

最後に，本研究に取り組むことについて理解し，快く送り出し，長い研究期間にわたって献身的に支えてくれた妻と娘，息子に心より感謝いたします。

2022年9月

竹本翔一