

直流重畳型ナノ秒パルス高電圧発生装置の出力特性及びその応用

鳥越 泰明*, 王 斗艶**, 浪平 隆男**.¹

(2018年9月13日受付; 2018年11月20日受理)

Characteristic of DC Superimposed Nanosecond Pulsed Discharge and Its Application

Yasuaki TORIGOE*, Douyan WANG** and Takao NAMIHIRA**.¹

(Received September 13, 2018; Accepted November 20, 2018)

Non-thermal plasma generated by pulsed discharge is expected to treat combustion exhaust gases such as nitrogen oxide (NOx) and sulfur oxide (SOx) due to high chemical activity. Nanosecond pulsed discharge which has voltage rise time and fall time of 2ns, pulse width 5 ns and peak value of 60 kV, has been developed by our group. Nanosecond pulsed discharge mainly consists of streamer discharge phase, so that heat loss which caused by glow discharge is less, and plasma impedance is kept constant during the streamer discharge phase. Therefore, impedance matching between pulsed power supply and discharge load is possible. Applications on ozone generation and NO treatment using nanosecond pulsed discharge are reported with high energy efficiency compared to other discharge methods. However, the discharge mode transit to arc discharge phase sometimes. Also, for industrial applications, the plasma processing capacity leaves room to improve. In this study, DC superimposed nanosecond pulsed discharge is suggested in order to improve the better performance of nanosecond discharge plasma. Results of ozone generation and NO treatment using DC superimposed nanosecond pulsed discharge have also been introduced.

1. 序論

放電によって形成される非熱平衡プラズマは、その化学的活性度の高さから窒素酸化物 (NOx) や微粒子 (PM) を含む燃焼排気ガスの浄化、揮発性有機化合物 (VOCs) 等の産業排気ガスの浄化、次世代の酸化剤として期待されるオゾン (O₃) の生成など、多岐にわたる応用展開の研究が行われている¹⁻⁵⁾。本研究室では、立上りおよび立下り約 2 ns, パルス持続時間約 5 ns, ピーク電圧 60 kV 超のパルス高電圧によって発生させるナノ秒パルス放電を用いた応用研究を進めてきた。ナノ秒パルス放電は主にストリーマ放電のみで構成されるため、グロー放電時に発生する気体加熱に伴う熱損失が少ない。また、放電形態の移行に伴う放電インピーダンスの変動が少ないため、電源と放電リアクタ間のマッチングも比較的容易となる。以上の利点より、ナノ秒パルス放電による応用研究は他

の放電方式と比較して高いエネルギー効率を誇る⁶⁾。一方で、電源と放電リアクタ間のマッチングが完全でないために、電源から放電リアクタへのエネルギー転送効率の低下や高繰り返し動作時におけるアーク放電への移行が発生している。更にこれらが原因となって、エネルギー不足や処理効率の低下に繋がっており、ナノ秒パルス放電の性能を十分に引き出せていないのが現状である。マッチング改善には、特性インピーダンスが電源と一致するように放電リアクタを設計するという方法があるが、後述する理由により他の手法が求められる。そこでマッチング改善や注入エネルギー増加の手法として直流電圧をパルス電圧に重畳する方法に着目した⁷⁾。本研究では直流重畳型ナノ秒パルス放電の基礎特性の取得として、放電リアクタへの1パルスあたりの注入エネルギー増加効果及びマッチング改善効果の検証を行った。更に、ナノ秒パルス放電にて応用研究が進められている一酸化窒素処理とオゾン生成に対して直流重畳が与える影響の調査を行った。

キーワード: ナノ秒パルス, 放電, 直流重畳, NO, オゾン

* 熊本大学大学院自然科学研究科

(〒860-8555 熊本市中央区黒髪 2-39-1)

Graduate School of Science and Technology, Kumamoto University, 2-39-1, Kurokami, Chuo-ku, Kumamoto 860-8555, Japan

** 熊本大学パルスパワー科学研究所

(〒860-8555 熊本市中央区黒髪 2-39-1)

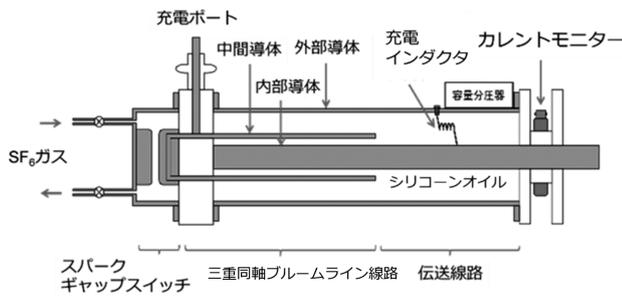
Institute of Pulsed Power Science, 2-39-1, Kurokami, Chuo-ku, Kumamoto 860-8555, Japan

¹ namihira@cs.kumamoto-u.ac.jp

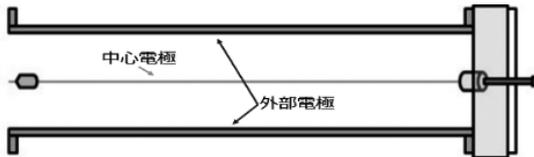
2. 実験装置

2.1 ナノ秒パルス高電圧発生装置と放電リアクタ

図 1(a) に、本実験で用いるナノ秒パルス高電圧発生装置の構造を示す。本装置は、スパークギャップスイッチ (SGS), 三重同軸型ブルームライン線路, 伝送線路より構成されている。SGS 内は SF₆ が充填されており, SF₆ ガス圧力を変化することにより, ナノ秒パルス電源



(a) ナノ秒パルス高電圧発生装置
(a) Schematic of nanosecond pulse generator.



(b) 放電リアクタ
(b) Schematic of coaxial cylinder type reactor.

図1 ナノ秒パルス高電圧発生装置の概略
Fig.1 Schematic of nanosecond pulse generation system.

の出力電圧値を調整する。ブルームライン線路部は外部電極、中間電極、内部電極の三重同軸構造となっている。また、外部電極は接地されており、内部電極はインダクタを介して外部電極と接続されている。ブルームライン線路と伝送線路内はシリコンオイル (KF-96, Shin-Etsu Chemical, Japan) で充填されており、その単位長あたりのインダクタンスとキャパシタンスの計算値はそれぞれ 140 nH/m, 216 pF/m である。なお、これらの値より算出されるナノ秒パルス発生装置の特性インピーダンスは 50 Ω となる。また、ブルームライン線路長は 500 mm であり、これよりパルス幅は 5 ns となる。

図1(b)に応用研究の際に主に用いられる放電リアクタの概略図を示す。同軸円筒構造となっており、高電圧が印加される中心電極には φ1.0 mm のステンレス製ロッドを使用している。また接地側の外部電極の内径は φ76 mm、長さは 1000 mm となっている。式1は同軸円筒放電リアクタの特性インピーダンスの計算式である⁸⁾。

$$Z_0 = \frac{\ln\left(\frac{b}{a}\right)}{2\pi} \sqrt{\frac{\mu}{\epsilon}} \quad (1)$$

式中の a は中心電極内径、b は外部電極内径である。上記した値より本実験で用いた放電リアクタの特性インピーダンスは約 216 Ω と計算される。序論で記したようにマッチング改善のためには、放電リアクタの特性インピーダンスを 50 Ω に近づければよいが、そのためには中心電極径を更に大きく、もしくは外部電極径を更に小さ

くする必要がある。しかし、中心電極の太径化は式2で表される同軸円筒放電リアクタにおける電界集中係数の急激な低下をもたらす。それによって、放電が開始する電圧が増加してしまい、放電を発生させるために更なる高電圧が必要となる。

$$f = \frac{\frac{b}{a} - 1}{\ln \frac{b}{a}} \quad (2)$$

なお、本放電リアクタをナノ秒パルス高電圧発生装置の放電負荷とした際のエネルギー転送効率は 40 - 55% 程度である⁹⁾。また、上記した電極パラメータより放電リアクタの体積に占める放電空間の体積の割合(放電空間率)が求まる。放電空間率が高い程、小さい放電リアクタ体積で十分な放電空間を確保する事が可能なため、装置の小型化に繋がる。本研究で用いる放電リアクタの放電空間率は約 99% となる。これは主流な非熱平衡プラズマ生成法である同軸円筒型誘電体バリア放電と比較して高い値である^{10,11)}。

2.2 直流重畳型ナノ秒パルス高電圧発生装置

図2に、直流重畳型ナノ秒パルス高電圧発生装置の概略図を示す。上述したナノ秒パルス高電圧発生装置に放電リアクタ、ハイパスフィルタ (HPF)、DC バイアス回路を取り付けている。まず、放電リアクタは放電負荷としての役割を持つ。次に、DC バイアス回路は放電リアクタに直流を印加するための回路である。直流電源 (Glassman PS/LT050R035-20, XP Power, Republic of Singapore) の出力が電源の保護抵抗である R_{DC} を介して、放電リアクタの終端に接続され、HPF を構成するコンデンサに直流を印加して重畳を行う。 C_{DC} (10 pF) は、回路中の浮遊キャパシタンスによる注入エネルギー計算のための模擬キャパシタとして挿入している。最後に HPF は、直流成分を遮断しナノ秒パルス高電圧発生装置を保護する役割を有する。ナノ秒パルス放電に直流を重畳した際、直流成分はナノ秒パルス高電圧発生装置方向へ進

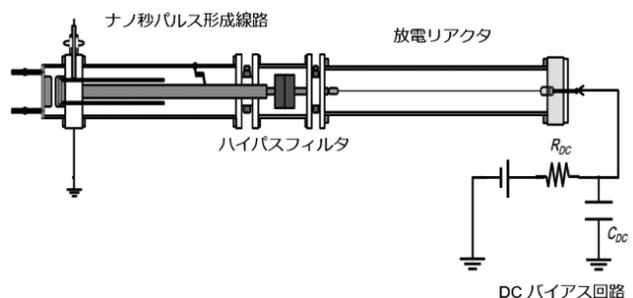


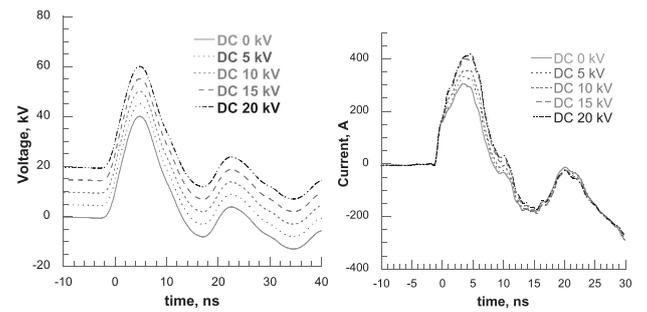
図2 直流重畳型ナノ秒パルス高電圧発生装置概略
Fig.2 Schematic of DC superimposed nanosecond pulse generator.

行するが HPF により直流成分を遮断することで、ナノ秒パルス高電圧発生装置を保護することが可能となる。反対にナノ秒パルス成分は高周波成分であるため、HPF を通過し放電リアクタへと印加される。また、HPF と放電リアクタの接続部分には容量分圧器とカレントモニター (MODEL CT-F1.0, Bergoz Instrumentation, USA) が取り付けられており、放電リアクタへの出力電圧及び放電電流が計測される。

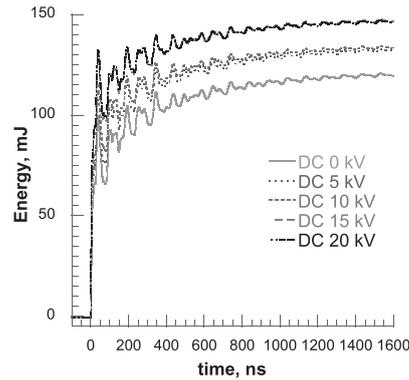
3. 直流重畳型ナノ秒パルス高電圧発生装置の諸特性

3.1 出力波形

図 3 にパルス印加電圧 40 kV に固定し、重畳電圧を 0, 5, 10, 15, 20 kV と変化させて取得した直流重畳型ナノ秒パルス高電圧発生装置の典型的な出力波形を示す。ここで図 3(c) の 1 パルスあたりの注入エネルギーは、出力電圧と放電電流の積の時間積分により求めた。図 3(a) より約 2 ns の立ち上がり及び立下り、パルス幅が約 7 ns のパルス電圧が確認される。また図 3(b), (c) より直流重畳電圧の増加に伴う放電電流と注入エネルギーの増加が確認された。次に、表 1 に各直流重畳電圧におけるコロナ電流、コロナ電力、1 パルスあたりの注入エネルギーをまとめる。表中の最右列には 1 パルスあたりの注入エネルギーの増加量を記載している。表より、直流重畳電圧の増加に伴って、コロナ電流及びコロナ電力の値が増加していることが確認される。更に、直流重畳電圧の増加に伴って 1 パルスあたりの注入エネルギーも増加しており、特に DC 15, 20 kV 重畳において、顕著な増加が確認された。また、コロナ電力が 0.03 W 及び 0.13 W の時点では 1 パルスあたりの注入エネルギーの顕著な増加は確認されない。一方で、コロナ電力が 1.03 W の時点では、1 パルスあたりの注入エネルギーが急激に増加しており、26.5 mJ の増加が確認された。また、コロナ電力が 12.3 W の際には、1 パルスあたりの注入エネルギーの増加は 27.1 mJ となり、コロナ電力が 1.03 W の際と比較して大きな変化は確認されなかった。



(a) 出力電圧 (a) Voltage waveform. (b) 放電電流 (b) Current waveform.



(c) 放電リアクタへの 1 パルスあたりの注入エネルギー (c) Input energy waveform to reactor per pulse.

図 3 直流重畳型ナノ秒パルス高電圧発生装置の出力波形
Fig.3 Output waveforms of DC superimposed nanosecond pulsed discharge.

3.2 インピーダンスマッチング

ナノ秒パルス高電圧発生と放電リアクタ間のインピーダンスマッチングに対する直流重畳の効果进行调查するために、3.1 項における注入エネルギーを更に細かく分析する。

3.2.1 評価方法

図 3 (c) の時間軸最大値を 4000 ns まで広げた波形を図 4 に示す。図 4 より、0 から約 10 ns 程度まではリアクタへの注入エネルギーが急速に上昇し、その後、時間の進行に対する増加量が徐々に減少しながら飽和している。本実験で使用しているナノ秒パルス電圧は立上がったから立下がるまでが 10 ns 以内で完了するため、最初

表 1 パルス出力 40 kV 動作時における重畳電圧ごとの出力特性
Table 1 Output characteristics for different DC superimposed voltages at 40 kV.

DC bias voltage [kV]	Corona current [mA]	Corona power [W]	Input energy per pulse [mJ]	Increment input energy per pulse [mJ]
0	-	-	120.4	-
5	0.006	0.03	132.7	12.3
10	0.013	0.13	134.1	13.7
15	0.069	1.03	146.9	26.5
20	0.615	12.3	147.5	27.1

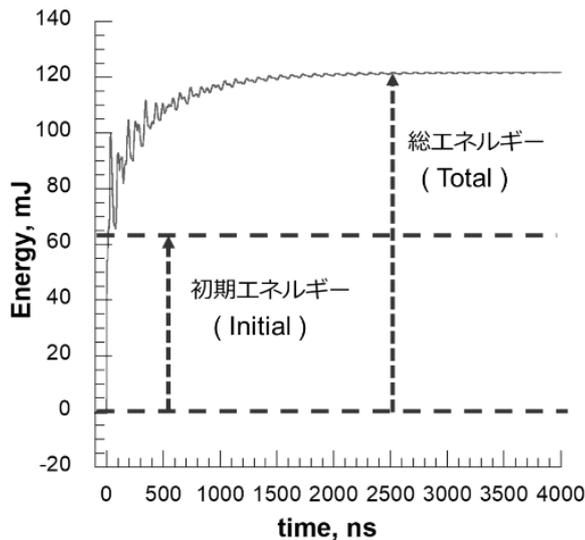


図4 放電リアクタへ1パルスあたりに注入されるエネルギー波形

Fig.4 Input energy waveform to reactor per pulse.

の10 ns までのエネルギーの増加はパルスの立ち上がりから立下りまでの間にリアクタへ注入されたエネルギーであり、それ以降のエネルギーの増加は不完全なマッチングに起因する反射によるものと考えられる。そこで、10 ns までのエネルギー値を初期エネルギー (Initial)、最終的に飽和した値を総エネルギー (Total) と定義して、総エネルギーに占める初期エネルギーの割合 (Initial/Total) をマッチング改善の指標に用いることとする。Initial/Total が高い値を示すほど、直流重畳によるマッチング改善が示唆され、ナノ秒パルス電源の出力が効率的に放電リアクタへ転送されたといえる。次項より、ここで定義したマッチングの指標である Initial/Total を基にマッチング改善の評価を行う。

3.2.2 実験結果

ナノ秒パルス電源の出力電圧を 35, 40, 45, 50 kV と変化させ、各出力電圧に対して直流電圧 0 (重畳無し)、10, 15, 20 kV を重畳した。パルス繰り返し周波数は 100 pps に固定した。図5にそれぞれの条件における総エネルギーに占める初期エネルギーの割合 (Initial/Total) を示す。グラフの横軸はナノ秒パルス電源の出力電圧、縦軸は Initial/Total である。図5より、直流重畳電圧が 10 kV の場合には、重畳無し (DC 0 kV) の場合と比較して Initial/Total の増加は確認されない。その一方で、重畳電圧を 15, 20 kV まで増加させると、重畳無しの場合よりも高い Initial/Total を示し、パルス電圧が高いほど増加の割合も増した。これには、15 kV を重畳した段階で中心電極表面に発生した直流コロナ放電によるプラズマが寄与したと考えられる。中心電極表面を覆うように

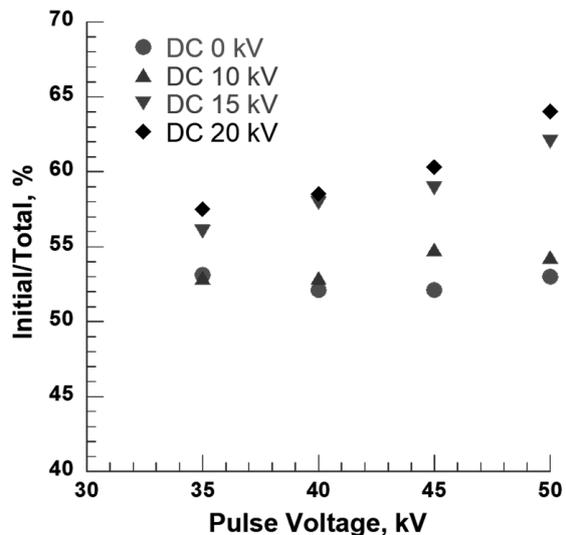


図5 直流重畳電圧ごとの総エネルギーに占める初期エネルギーの割合

Fig.5 Ratio of Initial/Total for different superimposed DC voltages.

発生したプラズマは導体の役割を果たす^{7,12)}。これにより、直流コロナ放電が発生する前と比較して、中心電極の径が太くなったようにみなせる。式1より、放電リアクタの特性インピーダンスは中心電極内径が大きいほど小さくなる。つまり、直流コロナ放電に起因するプラズマが中心電極表面上で導体のように振舞う事で、リアクタの特性インピーダンスが減少し、ナノ秒パルス電源の特性インピーダンスである 50 Ω に近づいたため、マッチングが改善されたと考えられる。

3.3 ガス処理への影響調査

本項では、ナノ秒パルス放電の応用先として研究されている一酸化窒素処理及びオゾン生成に対して直流重畳が与える影響を調査する。

3.3.1 一酸化窒素処理

原料ガスとして、N₂に対してNOを濃度が920 ppmとなるように混合したガスを使用し、5 L/minのガス流量で放電リアクタへ流入させ処理を行った。パルス電圧を50 kVに固定して、直流重畳電圧は0 (重畳無し)、5, 10, 15, 20 kVと変化させた。注入電力はパルス繰り返し周波数を0, 50, 100, 150, 200, 250, 300, 350 ppsと変化させることで調整しており、最大パルス繰り返し周波数である350 ppsに達するかアーク放電への移行を確認した時点でデータ取りを終了した。図6に、放電リアクタへの注入電力に対する一酸化窒素 (NO) 除去率の直流重畳電圧依存性を示す。グラフの横軸は直流分の電力も加味した放電リアクタへの注入電力を、縦軸はNO除去率を示している。図6より、直流重畳を行っていない場合 (DC

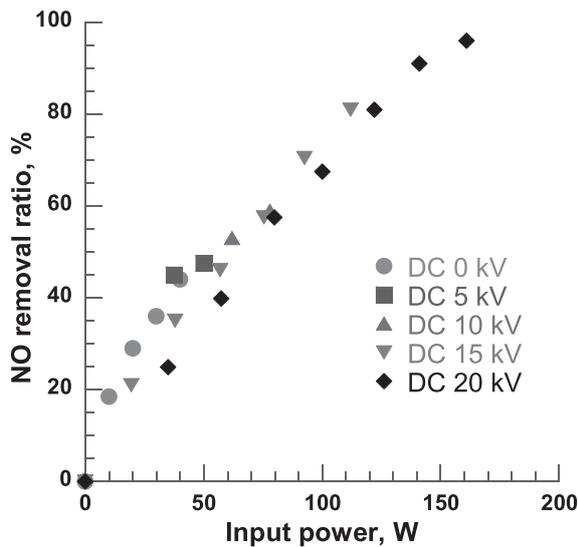


図6 放電リアクタへの注入電力に対するNO除去率の直流重畳電圧依存性

Fig.6 Dependence of the NO removal ratio on input power into the discharge reactor for different DC superimposed voltages.

0 kV) はNO除去率45%を超えた時点でアーク放電への移行が確認され、重畳電圧が5, 10 kVの際にも除去率45-50%を超えた時点で同様にアーク放電への移行が確認された。一方で、DC15, 20 kVの重畳では、アーク放電への移行が抑制され、更なる電力を注入できるようになり、NO除去率は90%以上に達した。

3.3.2 オゾン生成

原料ガスとして合成空気(窒素:酸素=8:2)を用い、5 L/minのガス流量でオゾン生成を行った。パルス電圧を50 kVに固定して、直流重畳電圧を0(重畳無し)、5, 10, 15, 20 kVへと変化させた。また、放電リアクタへの注入電力はパルス繰り返し周波数を0, 50, 100, 150, 200, 250 ppsと変化させることにより調整しており、最大パルス繰り返し周波数である250 ppsに達するかアーク放電への移行を確認した時点でデータ取りを終了した。図7に放電リアクタへの注入電力に対する生成オゾン濃度の直流重畳電圧依存性を示す。図7より、DC 0, 5, 10 kV重畳では最大オゾン濃度は約6 g/m³となった。一方で、DC 15, 20 kV重畳では最大オゾン濃度は約10 g/m³となり、直流重畳によって最大オゾン濃度が増加する事が確認された。このオゾン濃度は、空気原料によるオゾン生成としては比較的高濃度である^{1, 6, 13, 14)}。次に、オゾン濃度2.5 g/m³, 5 g/m³, 10 g/m³付近における重畳電圧ごとのオゾン生成効率を図7から算出し、表2にまとめた。表2より、DC 15 kVの重畳によってオゾン収率の増加が確認され、最大オゾン収率はオゾン濃度2.5 g/m³の際の68.5 g/kWhという結果となった。この結果はこれま

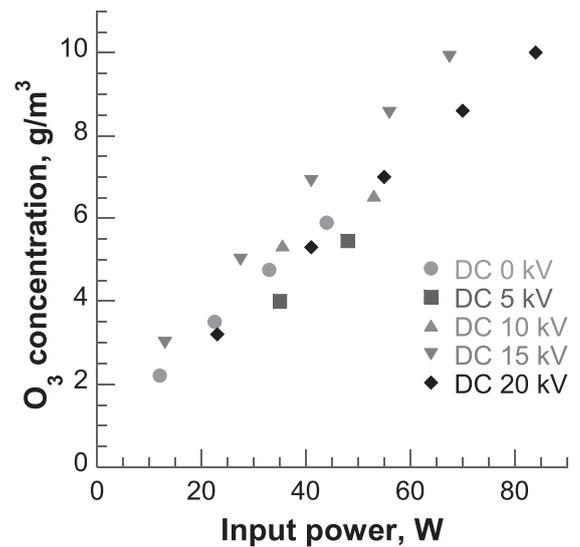


図7 放電リアクタへの注入電力に対する生成オゾン濃度の直流重畳電圧依存性

Fig.7 Dependence of the ozone concentration on input power into the discharge reactor for different DC superimposed voltages.

表2 各重畳電圧における生成オゾン濃度ごとのオゾン収率
Table 2 O₃ yield each O₃ concentration at different DC superimposed voltages.

DC bias voltage [kV]	O ₃ yield at 2.5 g/m ³	O ₃ yield at 5 g/m ³	O ₃ yield at 10 g/m ³
0	48.1	42.6	-
5	-	34.8	-
10	-	45.1	-
15	68.5	55.1	42.5
20	34.9	37.7	37.2

でのいくつかの報告と比較して低くなっている^{6,7)}。しかし一方で、オゾン濃度の飽和は確認されておらず、更なる注入電力の増加によって、オゾン濃度の高濃度化が見込まれる。また、DC 20 kVにおいては多くのオゾン発生装置にみられる生成オゾン濃度の増加に伴うオゾン収率の低下^{5, 6, 11, 14)}が確認されておらず、一定のオゾン収率を保った状態で高いオゾン濃度が得られる事が示唆された。

4. まとめ

本研究では、ナノ秒パルス電源と放電リアクタ間のマッチング改善および注入エネルギーの増加を狙い、直流重畳型ナノ秒パルス放電の基礎特性の調査を行った。その結果、ナノ秒パルス放電に対してDC15 kV以上の重畳を行う事で、注入エネルギーの増加及びマッチング改善効果が確認された。更にNO処理とオゾン生成に対する直流重畳の影響の調査を行った。その結果、NO処理ではDC 15 kV以上の重畳を行うことで、NO除去率の

大幅な増加が確認され、最終的に90%以上に達した。オゾン生成では、DC 15 kV以上の重畳によって生成オゾン濃度の増加が確認され、最大オゾン濃度は10 g/m³に達した。現状ではオゾン濃度の飽和が発生しておらず、更なる注入電力の増加によって更なる高濃度オゾン生成が見込まれる。

参考文献

- 1) 郷 富夫, 田仲 泰, 山崎信幸, 向川政治, 高木浩一, 藤原民也: 誘導性パルスパワー電源を用いたオゾン生成の酸素濃度依存性. IIEJ Trans. FM, **129** [7] (2009)
- 2) F. J. C. M. Beckers, W. F. L. M. Hoeben, A. J. M. Pemen and E. J. M. van Heesch: Low-level NOx removal in ambient air by pulsed corona technology. J. Phys. D: Appl. Phys., **46** (2013)
- 3) F.J.C.M Beckers, W.F.L.M. Hoeben, T. Huiskamp, A.J.M. Pemen, Member, IEEE, and E.J.M. van Heesch: Pulsed Corona Demonstrate for Semi-Industrial Scale Air Purification, IEEE Trans. Plasma Sci., **41** [10] (2013)
- 4) K. Takaki, J. Nishimura, S. Koide, K. Takahashi and T. Uchino: Decomposition of Ethylene Using Dual-Polarity Pulsed Dielectric Barrier Discharge. IEEE Trans. Plasma Sci., **43** [10] (2015)
- 5) X. Zhang, B.J. Lee, H.G. Im and M.S. Cha: Ozone Production With Dielectric Barrier Discharge: Effects of Power Source and Humidity. IEEE Trans. Plasma Sci., **44** [10] (2016)
- 6) 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. IEEJ Trans. FM, **129** [1] (2009)
- 7) T. Huiskamp, N. Takamura, T. Namihira and A.J.M. Pemen: Matching a Nanosecond Pulse Source to a Streamer Corona Plasma Reactor With a DC Bias, IEEE Trans. Plasma Sci., **43** [2] (2015)
- 8) 秋山秀典, 勝木 淳, 金澤誠司, 下村直行, 高木浩一, 塚本俊介, 南谷靖史, 山下敬彦: EE Text 高電圧パルスパワー工学, P. 86, 株式会社オーム社 (2003)
- 9) D. Wang, M. Matsuda, T. Matsumoto, T. Namihira and H. Akiyama: Energy Transfer Efficiency of Nano-seconds Pulsed Power Generator for Nonthermal Plasma Processing Technique. IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul., **18** [4] (2011-8)
- 10) Zhi Fang, Yuchang Qiu, Yanzhou Sun, Hui Wang, Kuffel Edmund: Experimental study on discharge characteristics and ozone generation of dielectric barrier discharge in cylinder-cylinder reactor and a wire-cylinder reactor, Journal of Electrostatics, **66** (2008)
- 11) 布川史章, 田口正樹, 鈴木 進, 伊藤晴雄: パルスパワーで駆動した誘電体バリア放電型オゾナイザのオゾン生成特性, IEEJ Trans. FM, **133** [9] (2013)
- 12) 中野武雄: プラズマの基礎, J. Vac. Soc. Jpn., **57**[8] (2014)
- 13) M. Simek and M. Clupek: Efficiency of ozone production by pulsed positive corona discharge in synthetic air. J. Phys. D: Appl. Phys., **35** (2002)
- 14) 大澤直樹, 守本裕生, 吉岡芳夫, 花岡良一: 大気圧空気や酸素中で発生する均一バリア放電によるオゾン生成. IEEJ Trans. FM, **134** [2] (2014)