

高周波バリア放電時の放電抵抗数式モデルの開発

竹本 翔一^{*.1}, 松井 良彦^{**}, 飯盛 遊^{**}, 服部 健二^{**},
西島 義明^{**}, 松本 修一^{**}, 榎本 啓士^{***}

(2019年10月31日受付; 2019年12月13日受理)

The Mathematical Model of Discharge Resistance in DBD considering High-Frequency AC Voltage

Shoichi TAKEMOTO^{*.1}, Yoshihiko MATSUI^{**}, Yu ISAKARI^{**}, Kenji HATTORI^{**}
Yoshiaki NISHIJIMA^{**}, Shuichi MATSUMOTO^{**} and Hiroshi ENOMOTO^{***}

(Received October 31, 2019; Accepted December 13, 2019)

Dielectric Barrier Discharge (DBD) is expected to be applied in various fields such as automobiles, surface treatment and medical treatment. In the design of an electrical circuit using a DBD as a load, it is essential to clarify its discharge characteristics. However, to date, no mathematical model has been available that can handle changes in discharge characteristics due to AC voltage frequency in an electric circuit. In this study, we found that the discharge resistance changes when the AC voltage frequency changes, through single discharge observation and measurement. Furthermore, the phenomenon was expected to space-time and theorized to construct the mathematical model that can handle frequency change of discharge resistance value of macro-scale DBD.

1. はじめに

一対の電極間に誘電体層を設け発生させる誘電体バリア放電 (Dielectric Barrier Discharge: DBD) という放電形態がある。DBDは、自動車の排気ガス浄化・物体の表面処理・プラズマジェットの医療利用など様々な技術分野への応用が期待されており、技術研究開発が進められている¹⁻³⁾。

これまでの研究で、DBDは小さなフィラメント状の放電 (以下、本放電の1本を単一放電と呼ぶ) が無数に繰り返して放電空間内に生じることが知られている。しかし、放電空間のガス組成・密度や誘電体層材質、電極への印加電圧周波数を代表とした要因により、放電の形態や特性が変わることも報告されている^{4,5)}。

例えば、HeやArなどの希ガス雰囲気中で数kHzの交流電圧を印加すると、大気圧グロー放電と呼ばれる輪郭のはっきりしない様/均一な放電が発生し、1度の放電サイクル中にひとつだけ大きなパルス電流を伴う⁴⁾。別の例では、主にN₂ガス雰囲気中でTiO₂を代表とする誘電率の大きい誘電体層を用いて放電することで、放電中に持続的に電流が流れる特性を持つタウンゼント放電と呼ばれる放電が発生することも報告されている⁵⁾。

このように、DBDは放電様態により放電電流の特性が大きく異なる。これまでにDBDの特性理解や電気回路設計に繋げるため、前述の放電様態を取り扱うシミュレーションモデル開発が複数報告されている^{5,6)}。

一方で、通常放電様態であるフィラメント状放電においても、電気回路定数や放電ギャップなどの設計要素、印加電圧周波数により、放電電流特性が変化することも報告されている⁶⁾。特に印加電圧周波数では、放電空間中イオンのドリフト速度との関係で、低周波領域と高周波領域での単一放電の電流が大きく変化する⁷⁾。現在この現象の過渡特性を解明し、取り扱える数式モデルはない。

本論文では、印加電圧周波数を変化させた際の単一放電電荷測定を通して過渡特性を明確にし、数式モデルを構築したので、電気回路設計への適用検証結果を含め報告する。

キーワード: DBD, 放電抵抗, 静電容量, 単一放電本数

* 株式会社 SOKEN

(〒470-0111 愛知県日進市米野木町南山 500-20)

SOKEN CORP., 500-20, Nanzan, Komenoki-cho, Nisshin-shi, Aichi 470-0111, Japan

** 株式会社デンソー

(〒448-8661 愛知県刈谷市昭和町 1-1)

DENSO CORP., 1-1, Showa-cho, Kariya-shi, Aichi 448-0111, Japan

*** 金沢大学

(〒920-1192 石川県金沢市角間町)

Kanazawa University, Kakuma-cho, Kanazawa-shi, Ishikawa 920-1192, Japan

¹ shoichi.takemoto.j6r@soken-labs.co.jp

DOI: <https://doi.org/10.34342/iesj.2020.44.1.20>

2. 実験装置及び方法

印加電圧周波数による放電電流変化の現象を表す数式モデル開発を3ステップで実施した。まず、我々が報告した単一放電本数計算手法⁸⁾を用いて、印加電圧周波数による単一放電電流の変化傾向を明確にし、単一放電電流の周波数特性を表す基礎式を定式化した(ステップ1)。続いて、基礎式を空間・時間的に拡張するために放電発生確率分布の考えを数式に取り入れ、数式モデルを構築した(ステップ2)。最後に電気回路設計への応用として放電リアクタの静電容量推定式へ数式モデルを反映し、推定精度の向上について検証した(ステップ3)。

2.1 実験装置と測定データ

ステップ1, 2で用いたテストピースサイズの放電リアクタの主な仕様を図1に示す。電極層を含む平行平板の誘電体層には厚み0.38 mmの α アルミナを用いた。電極印刷パターンは、高電圧側電極板には線幅0.1 mmのAg単線を長尺方向と平行に印刷し、低電圧側電極板には同じく線幅0.1 mmの単線をピッチ間隔2 mmで短尺方向と平行に15本印刷した。高電圧側電極板と低電圧側電極板を電極印刷パターンが直交するように誘電体層側を対向し、放電空間ギャップを0.8 mmとしPTFE絶縁スペーサで固定した。

実験装置全体図を図2に示す。放電リアクタへ O_2 : 21%, N_2 : 79%のドライガスを常時10 L/minで流した。放電リアクタへの電圧印加はインバータ交流電圧電源により行う。放電リアクタの高電圧側端子と低電圧側端子間の印加電圧 V_{out} を交流差動高電圧プローブ(Tektronix社製, P6015A)で測定した。放電の電荷量を測定するため、放電リアクタの低電圧端子側に0.01 μ Fの評価用キャパシタ C_E を配置し、その両端間の電圧 V_C を交流作動電圧プローブ(LeCroy社製, ADP305)で測定した。

図3には、印加電圧 V_{out} 波形と評価用キャパシタ電圧 V_C 波形、双方の測定データより作成されるリサージュ図形を示す。リサージュ図形のx軸は印加電圧 V_{out} 、y軸は電荷量 Q で表される。電荷量 Q は、評価用キャパシタの静電容量 C_E とその両端電圧 V_C から(1)式により算出できる。

$$Q = C_E \cdot V_C \tag{1}$$

また、印加電圧波形1/2周期(以下、放電1サイクルと呼ぶ)の放電電荷量 Q_d は、図3中に記載のy軸長から求めることができる。放電電流 I_{out} は、放電リアクタ低電圧端子側に配置した電流プローブ(FCC社製, F-65A)で測定した。各プローブでの測定値は、2.5 GS/secの高時間分解能でサンプリング可能なデジタルオシロスコープ(LeCroy社製, HDO8108A)により記録した。

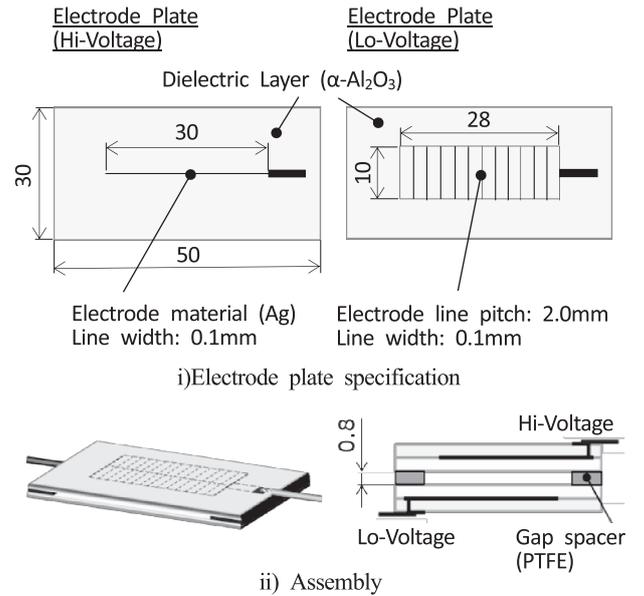


図1 バリア放電リアクタ i) 電極板仕様 ii) アセンブリ
Fig.1 DBD reactor. i) Electrode plate specification. ii) Assembly.

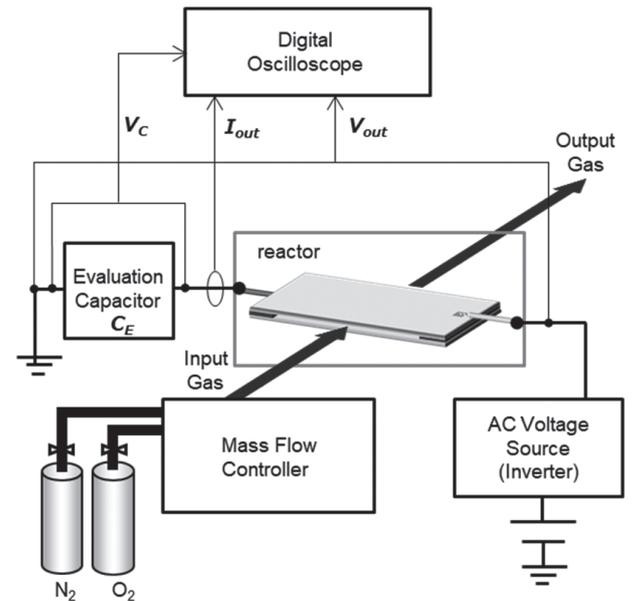


図2 実験装置概要
Fig.2 Experimental setup.

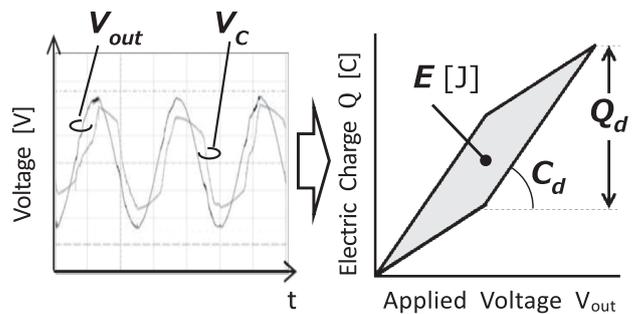


図3 リサージュ図形
Fig.3 Lissajous figure.

2.2 単一放電電流の周波数特性計測

単一放電電流の周波数特性を把握する手段として、印加電圧周波数と単一放電の放電電荷量 q の関係性を測定する。単一放電の放電電荷量 q は、放電1サイクル分の電荷量 Q_d と単一放電本数計算手法で算出した平均放電本数 \bar{N} を用いて(2)式で表される。

$$q = Q_d / \bar{N} \tag{2}$$

3. 実験結果及び考察

3.1 単一放電電荷量の周波数特性

印加電圧振幅を 12 kV_{p-p} の固定条件とし、印加電圧周波数を 20~90 kHz の範囲で 10 kHz ずつ変化させたときの単一放電電荷量を測定した。

図4に各印加電圧周波数の単一放電あたりの電荷量を示す。印加電圧周波数が高周波になるほど単一放電の電荷量は増加しており、その傾向は比例関係にあることを明らかにした。

図5には、高速度カメラにて露光時間 0.2 μsec で撮影した印加電圧周波数 20 kHz と 90 kHz の単一放電の画像を示す。印加電圧周波数が高周波になると放電の輝度が増加し、かつ放電柱の太さも大きくなる様子が見てとれる。この現象は印加電圧周波数と放電空間中イオンのドリフト速度の関係性から説明することができる。

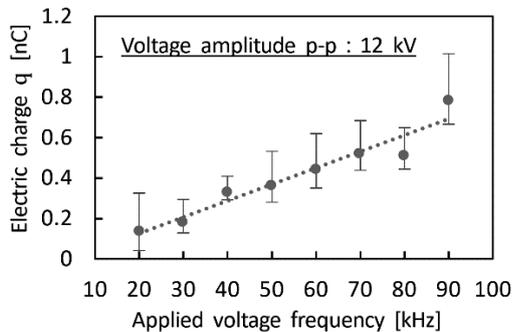


図4 単一放電の電荷量
Fig.4 Electric charge of single discharge.

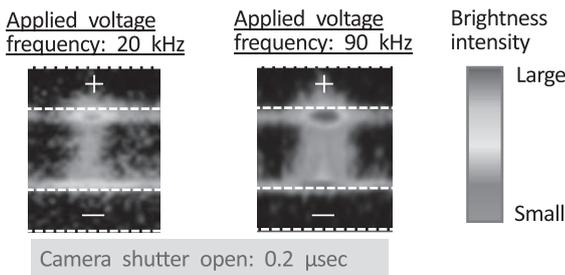


図5 単一放電の高速度カメラ撮影画像
Fig.5 Image of single discharge taken by high-speed camera.

図6に印加電圧周波数が 20 kHz のように比較的低い場合の放電の想定図を示す。放電により加速した電子は、放電空間中の分子・原子に衝突し、電子を乖離させ正イオンが生成される。生成されたイオンは、負電荷が集合している誘電体層に移動し正負中和されるか、空間中に拡散する。この現象が放電1サイクル内で完結するため、次サイクル放電時には放電空間の極性は中性となる。つまり、放電発生に至るための絶縁破壊条件が常に中性的な状態となっていると言える。

図7に印加電圧周波数が 100 kHz のように比較的高い場合の放電の想定図を示す。放電による正イオン生成までの現象は、印加電圧周波数 20 kHz 相当と同様だが、正イオンは負電荷が存在する誘電体層に完全に帰結しない、もしくは空間中に拡散する前に次サイクルの放電が発生する。よって、次サイクル放電発生時には放電空間が極性を持つ。つまり放電発生に至るまでの絶縁破壊条件が、放電空間中に正イオンが残存しているために緩和されている。言い換えると、放電空間中の抵抗値が下がった状態であり、放電発生時の電荷が移動しやすい放電場が形成されている。

以上の結果と考察より、単一放電電流の周波数特性は、放電空間中の放電抵抗変化による現象だと考えられる。

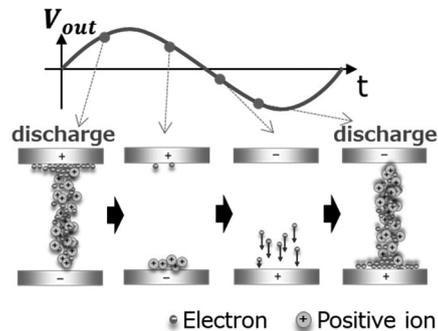


図6 印加電圧周波数 20 kHz 未満の正イオン挙動
Fig.6 Positive ion behavior with applied voltage frequency < 20 kHz.

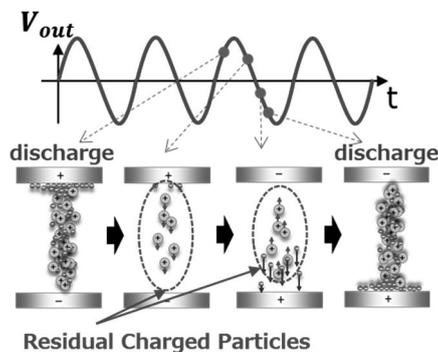


図7 印加電圧周波数 100 kHz 以上の正イオン挙動
Fig.7 Positive ion behavior with applied voltage frequency ≥ 100 kHz.

現象を数式モデル化するために、まず単一放電抵抗 r の周波数特性を示す基礎式を定義する。基本とする放電抵抗式としては、説明変数が放電ギャップ l 、空気密度 δ 、放電電荷量 q と少なく、且つシンプルな1次式で表される代表的な静電気火花抵抗則である Toepler 則 $r \propto l/(\delta \cdot q)$ を用いた。この式に図4での単一放電電荷量の周波数特性を反映する。Toepler 則から放電抵抗 r と放電電荷量 q は反比例関係にあるので、放電抵抗 r と印加電圧周波数 f も反比例関係となると考えられる。よって単一放電抵抗 r の周波数特性を示す基礎式は(3)式で表される。

$$r \propto \frac{l}{\delta \cdot q} \cdot \frac{1}{f} \quad (3)$$

3.2 放電抵抗特性の空間・時間拡張

続いて、(3)式を空間・時間的に拡張した状態を数式化する。この際、印加電圧周波数での放電発生確率変化を考慮する必要がある。なぜなら、放電発生確率分布により、放電全体の抵抗値を示す平均放電抵抗 \bar{r} が大きく変化するためである。

まず、単一放電の放電抵抗 r の特性を示す(3)式を空間的に拡張する。放電が発生する面領域である放電領域面積 S を持つものとして、放電抵抗式 ($r = (\rho \cdot l)/S$ ρ : 抵抗率) の考えを基に、放電抵抗 r と放電領域面積 S が反比例関係となるように拡張し(4)式で表す。

$$r \propto \frac{l}{\delta \cdot q \cdot S} \cdot \frac{1}{f} \quad (4)$$

続いて、数式を時間的に拡張するため、単一放電の電荷量 q を放電1サイクル分の総電荷量 Q へ変換した後、放電発生確率分布を考慮する。

まず(4)式中の q を Q へ変換する。(4)式は単一放電の電荷量 q と印加電圧周波数 f の変数に対する放電抵抗 r の比例関係式であるので、 q から Q への変換がその傾向を変えるものではないとの考えから単純に変数を置換し(5)式で表す。

$$r \propto \frac{l}{\delta \cdot Q \cdot S} \cdot \frac{1}{f} \quad (5)$$

次に(5)式に対して放電発生確率分布の考えを反映する。放電1サイクルの間、単一放電は数ナノ秒ごとに放電発生と消滅を繰り返している。極微小時間内で、放電は放電領域面積 S 内の最も絶縁破壊しやすい箇所で順次発生する。この現象は、「破壊現象は、最も弱い箇所の損傷から一気に進展する」という最弱リンクモデル(ワイブル分布)の考えに類似する。このことから本論文では、放電発生確率分布をワイブル分布として(6)式のように表す。

$$f(n) = \frac{m}{\eta} \cdot \left(\frac{n}{\eta}\right)^{m-1} \cdot \exp\left(-\left(\frac{n}{\eta}\right)^m\right) \quad (6)$$

(適合定数 m : ワイブル係数, η : 尺度パラメータ)

この時、(6)式中の確率変数 n は放電1サイクル中の放電発生回数とし、尺度パラメータ η は印加電圧振幅および印加電圧周波数とした。ワイブル分布における期待値、則ち平均放電発生回数 \bar{n} は(7)、(8)式で表される。

$$\bar{n} = \int_0^{\infty} n \cdot f(n) \, dn \quad (7)$$

$$\bar{n} = \int_0^{\infty} n \cdot e^{-\frac{m}{\eta} \cdot \left(\frac{n}{\eta}\right)^{m-1}} \cdot \exp\left(-\left(\frac{n}{\eta}\right)^m\right) \, dn \quad (8)$$

放電発生時、放電リアクタの等価抵抗は図8に示すように放電発生状態に応じて変化すると考えられる。同時刻での放電発生数が多いほど、単一放電抵抗 r が等価回路上で並列に増加する。放電リアクタ全体の瞬時平均放電抵抗 $\Delta \bar{r}$ は、同時刻(以下、20 nsec 期間内と定義する)の放電発生数が1本の時が最大となり、その他の放電発生数においては全て同値となる。つまり、放電1サイクル期間の平均放電抵抗 \bar{r} を求めるには、放電発生数1本とその他本数の発生時間比率を考慮することが重要となる。放電1サイクルにおいて放電発生回数が多い程、同時刻に2本以上の単一放電が存在する確率は高くなる。つまり、放電発生数1本の発生時間比率は減少する傾向にあると考えられる。

以上より、本論文では平均放電抵抗 \bar{r} は平均放電発生回数 \bar{n} に反比例するとし(9)式で表す。また(5)式中の放電1サイクル分の総電荷量 Q は、変数取り扱いの便宜上から(9)式では放電エネルギー E (図3リサージュ面積)に置換している。

$$r \propto \frac{l}{\delta \cdot E \cdot S} \cdot \frac{1}{f} \cdot \frac{1}{\bar{n}} \quad (9)$$

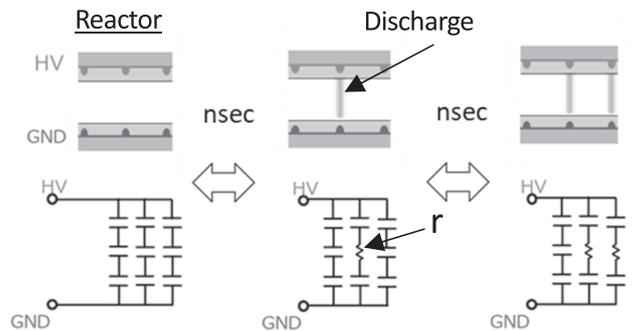


図8 放電時のリアクタ等価回路
Fig.8 Equivalent circuit of reactor during discharge.

最後に、(9)式の比例関係式を方程式に変換するために適合係数 α を(9)式に乘じる。印加電圧周波数特性変化を考慮した平均放電抵抗 \bar{r} は(10)式のように定式化できる。適合係数 α は、次節にて数サンプルの実測データを用いて決定する。

$$\bar{r} = \alpha \frac{l}{\delta \cdot E \cdot S} \cdot \frac{1}{f} \cdot \frac{1}{n} \tag{10}$$

4. 放電リアクタ静電容量推定への応用

DBD を放電負荷に用いる場合の電気回路設計において、放電時の特性を決めるリアクタ静電容量 C_d は重要なパラメータである。その C_d の推定式に対して(10)式を適用することによる推定精度の向上について検証した。

実験で用いたフルワークサイズの放電リアクタの主な仕様を図9に示す。電極層を含む平行平板の誘電体層には厚み 0.38 mm の α アルミナを用いた。電極印刷の面積は W:160 mm, D:40 mm とした。電極印刷パターンは、高電圧側電極板には線幅 0.1 mm の Ag 単線をピッチ間隔 1 mm で長尺方向と平行に複数本印刷し、低電圧側電極板には線幅 0.1 mm の Ag 単線をピッチ間隔 1 mm で短尺方向と平行に複数本印刷した。高電圧側電極板と低電圧側電極板の電極印刷パターンが直交するように誘電体層側を対向させ、放電ギャップを 0.8 mm とし PTFE 絶縁スペーサで固定した。

放電時のリアクタ静電容量推定式は、図10に示す等価回路の合成インピーダンス Z から導出できる。この時、平均放電抵抗 \bar{r} を周波数依存の変数として数式中に反映した。放電時の合成インピーダンス Z を放電時のリアクタ静電容量 C_d に置き換えると(11)式のように表される。

$$C_d = C_b \left\{ 2 + \frac{C_b}{C_g \left(1 + \frac{1}{(\omega C_g \bar{r})^2} \right)} \right\} \tag{11}$$

ここで、印加電圧振幅と周波数を振った7つの C_d 実測データと、実測と同条件にて(11)式により計算した C_d が、最も近似するように適合係数 α を決定する。図11には、実測した C_d と計算した C_d の適合結果を示す。 C_d の実測データは図3のリサージュ図形上の傾き C_d から取得している。最も近似する状態として、プロットデータ近似線の傾きが1となる $\alpha = 21.5$ を適合係数として決定した。

(10)式を用いて、放電時のリアクタ静電容量 C_d の机上計算値と実測値の比較を実施した。(10)式中の \bar{r} を印加電圧周波数 45 kHz 時の \bar{r} 演算値で固定とした場合の机上計算結果と、印加電圧振幅 10~20 kVp-p の 11 水準と周波数 25~80 kHz の 11 水準組合せによる実測結果の

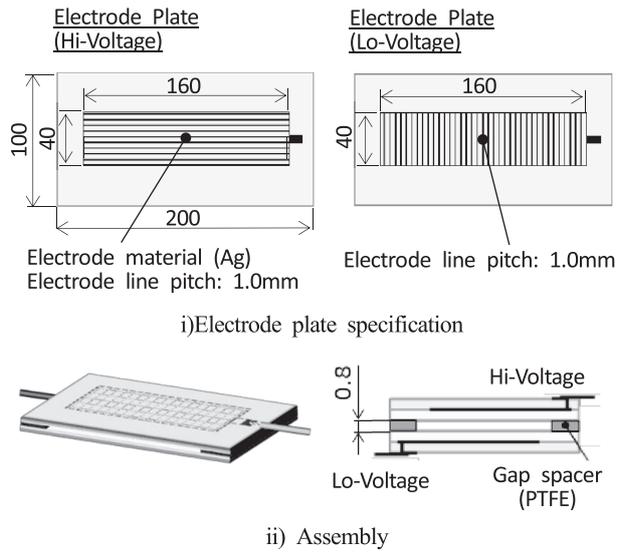


図9 バリア放電リアクタ i) 電極板仕様 ii) アセンブリ
Fig.9 DBD reactor. i) Electrode plate specification. ii) Assembly.

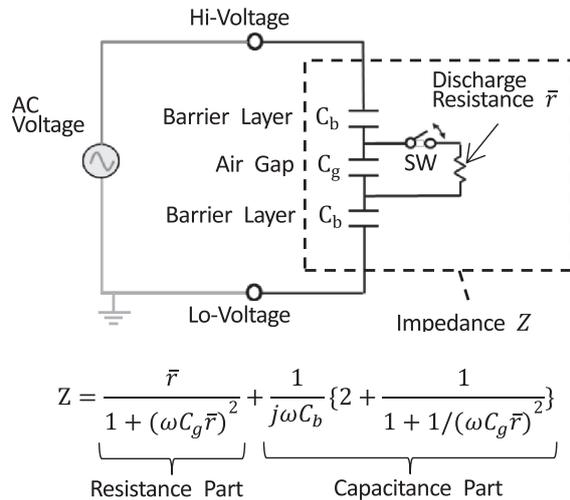


図10 等価回路図と合成インピーダンス
Fig.10 Representative circuit schematic and synthetic impedance.

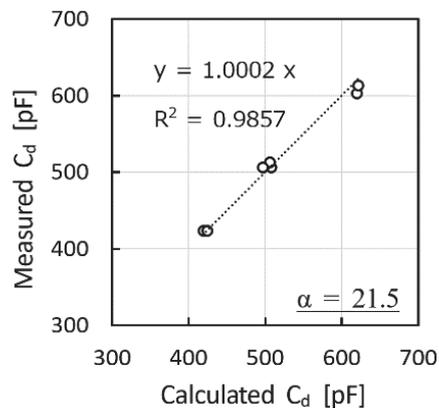


図11 適合係数 α の合わせ込み
Fig.11 Fitting of coefficient α .

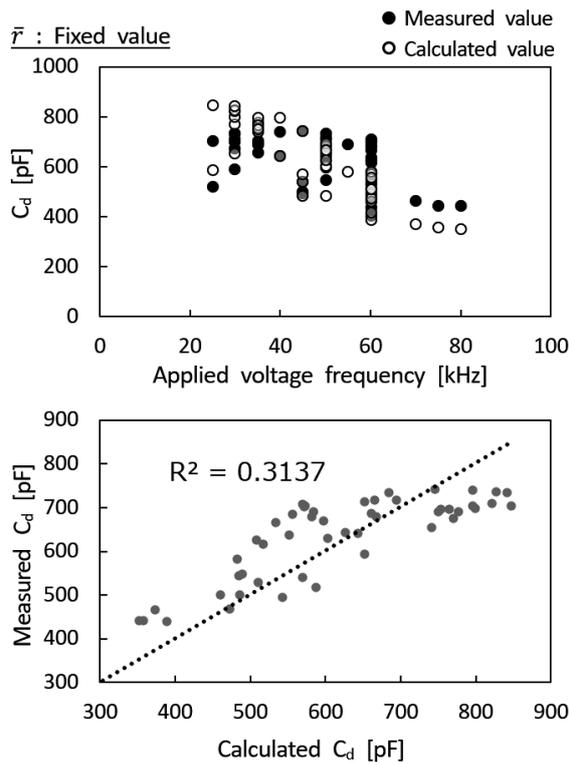


図12 実測 C_d と計算 C_d の相関 (\bar{r} : 固定値)
 Fig.12 Correlation between Measured C_d and Calculated C_d (\bar{r} : Fixed value).

C_d をプロットした後、その計算精度を検証したグラフを図12に示す。結果は、決定係数 $R^2 = 0.31$ と机上計算値の精度は低く、正確な C_d は推定できていない。

一方で、(11)式中の放電抵抗 \bar{r} に(10)式を反映し周波数依存とした場合の机上計算結果と、先程同様の試験水準での実測結果の C_d をプロットした後、その計算精度を検証したグラフを図13に示す。結果は、決定係数 $R^2 = 0.92$ と高精度に C_d を推定可能であることが分かる。

以上のように、本研究で構築した放電抵抗値の周波数特性を表した数式モデルが、現象を正しく反映できていることを実証した。

5. まとめ

本研究では、バリア放電における放電リアクタへの印加電圧周波数が20 kHzから90 kHzに増加するに伴い、単一放電の電荷量が比例関係で増加する傾向を明らかにした。また、印加電圧周波数による放電抵抗値の変化を表す数式モデルを構築し、放電リアクタの静電容量推定式に反映することで、高精度に放電時の静電容量 C_d を推定可能とした。またこの応用検証を通して、数式モデルの確からしさを実証した。

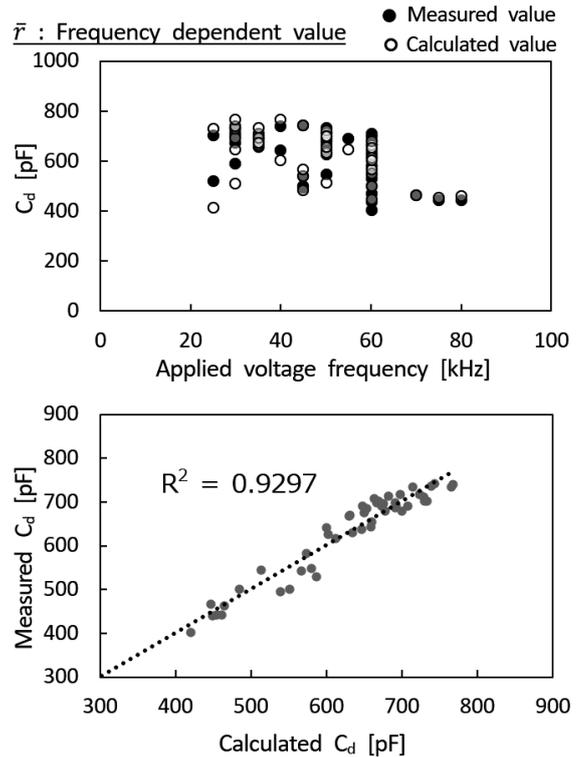


図13 実測 C_d と計算 C_d の相関 (\bar{r} : 周波数依存)
 Fig.13 Correlation between Measured C_d and Calculated C_d (\bar{r} : Frequency dependent value).

参考文献

- 1) P.Chawdhury and C.Subrahmanyam: Catalyst DBD plasma approach for methane partial oxidation to methanol under ambient conditions. *Catalysis Today In press.*, **337** (2019) 117-125
- 2) F. Kong and C. Chang: Surface modifications of polystyrene and their stability: A comparison of DBD plasma deposition and direct fluorination. *Applied Surface Science.*, **459** (2018) 300-308
- 3) T. Maho and E. Robert: Atmospheric Pressure Multijet Plasma Sources For Cancer Treatments. *Clinical Plasma Medicine.*, **9** (2018) 2-48
- 4) S.Okazaki, M.Kogoma, M.Uchida, and Y.Kimura: Appearance of stable glow discharge in air, argon and nitrogen at atmospheric pressure using a 50Hz source. *J.Phys. D:Appl. Phys.*, **26** (1993) 889-892
- 5) Z. Fang and T.Shao: Electrical model and analysis of the transition from an atmospheric pressure Townsend discharge to a filamentary discharge. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **38** (2005) 530-538
- 6) 吉岡芳夫, 大澤直樹: バリア放電のモードを考慮した電気回路シミュレーションモデルの開発. *電気学会論文集*, Vol130, No.7, pp. 690-697, 電気学会 (2010)
- 7) 八木重典: バリア放電, p. 127, 朝倉書店 (2012)
- 8) 竹本翔一, 松井良彦, 飯盛 遊, 西島義明, 松本修一, 榎本啓士: バリア放電における放電本数計算手法. *静電気学会全国大会予稿集 '19*, pp.39-44, 静電気学会 (2019)