# 電流波形を用いた誘電体バリア放電中の放電本数計算

竹本 翔一<sup>\*.1</sup>, 松井 良彦<sup>\*\*</sup>, 飯盛 遊<sup>\*\*</sup>, 西島 義明<sup>\*\*</sup>, 松本 修一<sup>\*\*</sup>, 榎本 啓士<sup>\*\*</sup>

(2019年10月31日受付;2020年2月19日受理)

# Calculation of the Number of Discharges in DBD Using Current Waveforms Shoichi TAKEMOTO<sup>\*,1</sup>, Yoshihiko MATSUI<sup>\*\*</sup>, Yu ISAKARI<sup>\*\*</sup> Yoshiaki NISHIJIMA<sup>\*\*</sup>, Shuichi MATSUMOTO<sup>\*\*</sup> and Hiroshi ENOMOTO<sup>\*\*\*</sup>

(Received October 31, 2019; Accepted February 19, 2020)

Dielectric barrier discharge (DBD) is one means that can be used to generate ozone efficiently. In order to improve the generation efficiency of ozone, it is necessary to increase electric charge per single discharge and the number of discharges. However, up to now there has been no method by which electric charge per single discharge and number of discharges could be measured simultaneously with ozone generation in the same experiment. In this study, we developed a method to calculate the number of discharges from the current waveform measured simultaneously with ozone generation, making it possible to calculated electric charge per single discharge. Using this method, it was shown that ozone generation can be examined from electric charge per single discharge and the number of discharges.

### 1. はじめに

オゾンはフッ素に次ぐ酸化力を持ち、反応性に富む. また容易に生成できる利点があり、殺菌装置や消臭装置 への実用化<sup>1)</sup>や有害ガスの無害化などへの応用<sup>2)</sup>が期待 されている.

オゾン生成の手法としては、放電<sup>3)</sup>,紫外線照射<sup>4)</sup>, 電気分解<sup>5)</sup>があるが、多量のオゾンを必要とする工業用 途では、投入エネルギーに対するオゾン生成量(以下、 オゾン生成効率 [g/kWh])が最も高い放電方式が一般 的である.放電方式のオゾン生成装置には、誘電体バリ ア放電(Dielectric Barrier Discharge:DBD)が用いられ る.DBDは、一対の電極間に誘電体層を配置すること で発生する.電位差により生じた放電に伴う電荷が誘電 体表面に蓄積することで、電極間電圧は減少し放電が停 止する.この現象により多数の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)が繰り返 し生じる放電形態である.

放電にて高効率にオゾンを生成するには,投入電力に対 し,オゾンの原料となる酸素分子をより多く酸素ラジカル に分解する必要がある.そのためには,酸素分子と衝突す る電子,則ち放電電荷量の増加が有効となる.一方で DBDは,誘電体材質・層厚・放電空間ギャップなどのパ ラメータで放電の系が決定されれば,電圧や電力,周波数, ガス流れに依存せず,同じ性質の単一放電が多数発生す る特徴を持つ<sup>31</sup>とされている.そのため放電電荷量の増加 を原理原則から検討するには,放電の系により定まる単一 放電の電荷量と放電本数の双方の把握が重要である.

秋山らは針 - 平板電極を用いて,1本の放電の電流・電荷量と放電撮影画像から放電の伸展を議論している<sup>®</sup>. ここで測定した1本の放電の電荷量を,複数本の放電が 生じる系へ拡張することは後述する理由により困難であ ると考える.

古橋らは複数突起電極と触媒間の放電生成にて,突起 ピッチ間隔と触媒上の放電広がりを議論している.ここ では,突起ピッチ間隔が小さ過ぎると隣接する放電との 干渉で放電路が妨げられることが言及されている<sup>70</sup>.ま た稲田らは針電極をサイコロの5の目状に配列した放電 リアクタを用いて,中心電極とその他電極との静電反発 力から中心の放電を直進進展させている<sup>80</sup>.複数本の放 電が生じる系では,上記に挙げたような放電形態変化に 伴い,1本の放電のみでの現象に対し単一放電の電荷量 が変化することが想定される.

<sup>キーワード:DBD, 放電電流,単一放電本数, 放電電荷量
\*株式会社 SOKEN
(〒470-0111 愛知県日進市米野木町南山 500-20)
SOKEN INC., 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 448-8661, 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
<sup>1</sup> shoichi.takemoto.j6r@soken-labs.co.jp
DOI: https://doi.org/10.34342/iesj.2020.44.3.135</sup> 

よって,複数本の放電が生じる系においての単一放電 の電荷量と放電本数の把握が必要である.

本報では、DBD での単一放電の電流波形に着目し、そ の波形形状や波形長の特徴量から単一放電の抽出を試み た.そして複数本の放電が生じる系での電流波形を単一 放電に分解することで放電本数を算出し、その放電本数 を用いて単一放電の電荷量を明確にする手法を考案した.

#### 2. 実験装置および方法

# 2.1 実験装置と測定データ

実験で用いた放電リアクタ仕様を図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AとBの2仕様を 用意し,それらの組み合わせで放電リアクタを構成する. 電極板仕様Aは,電極板中央に電極線幅0.1 mmのAg 単線を長尺方向に平行となるように印刷した.電極板仕 様Bは,電極線幅0.1 mmの単線を,電極ピッチ間隔を パラメータとして等間隔,短尺方向に平行となるように 印刷した.放電リアクタの構成は,2枚の電極板の誘電 体層側を対向させる.放電ギャップは電極板長尺方向の 端部に PTFE 絶縁スペーサを挟み込み調整した.

実験装置全体図を図2に示す. 放電リアクタへの導入 ガスは、 $O_2: 21\%$ ,  $N_2: 79\%$ のドライガスを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. 放電リアクタの電源側端子とGND 側端子間の印加電圧 Vout を交流作動高電圧プローブ (Tektronix 社製 P6015A) で測定した. 放電の電荷量測定 のため, 放電リアクタと GND 端子間に 1.5 nF のキャパシ タ C<sub>E</sub> を配置し、その両端電圧 V<sub>c</sub> を交流作動電圧プロー ブ (LeCroy 社製 ADP305) で測定した. 放電電流 Iout は, 放電リアクタ低電圧側に配置した電流プローブ (FCC 社 製 F-65A) で測定した. 各プローブの測定出力は、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) で記録した.

本法で用いた代表実験装置構成での各測定データを図 3,4に示す.本実験では2枚の電極板仕様Aを放電空 間ギャップ1.0mmで組み合わせ,平行する線-線電極 構成とした放電リアクタを用いた.交流印加電圧条件は, 振幅14.8 kVp-p,周波数45 kHzとした.放電電流 Iouの 測定データを図3に示す.データは2.5 GS/sec にて計測 した.単一放電の電流波形長である~20 nsec を 50 サン プルで測定しており,電流の発生状態を精度良く測定し ている.単一放電の電流は,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とされている<sup>9</sup>.よって本電流波形



ii) Assembly

図1 誘電体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 放電電流波形

Fig.3 Discharge Current Waveform.

を単一放電の電流波形とみなし検討を進める.

図4に印加電圧 Vot 波形と評価用キャパシタ電圧 Vc 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 Vot, 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<sub>E</sub> とその両端電圧 Vc から(1)式により算出できる.

$$\mathbf{Q} = \mathbf{C}_{\mathrm{E}} \cdot \mathbf{V}_{\mathrm{C}} \tag{1}$$

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 [J] を表している、印加電圧波形1/2周 期分(以下,放電1サイクルと呼ぶ)の放電電荷量 Qaは、 図4中に記載のy軸方向長さから算出できる。 放電エ ネルギーEと放電電荷量 Qaの値は、E:0.09 mJ(4.05 W), Qa: 35.7 nC となる、

### 2.2 単一放電本数計算手法

単一放電本数を計算する手法について下記(1)~(4) で説明する.本手法は、後に面 - 面電極サイズの放電へ の展開も考慮し、実用性を鑑みて電流プローブで測定し た放電電流波形からの計算手法確立を試みた.この際、 電流プローブが持つインピーダンスにより測定電流波形 に重畳するリンギングは、電流波形同士の減算により打 ち消す手段をとった.

- 図5に示すように、放電本数を計算する放電1サイ クル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を任意に設定する。そして図6に示すように、電流閾値を超過し、且つ閾値を超過してから単一放電波形長期間(~20 nsec)内に再び電流閾値を超過しない波形を単一放電の基準電流波形候補として抽出する。
- (3)図7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8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、電流閾値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、電流閾値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単一放電の本数とする。

図8の計算例では、合計3回の減算が実施されるので、 放電本数は3本となる。



図4 リサージュ図形 (E: 0.09 J, Qa: 35.7 nC) Fig.4 Lissajous figure (E: 0.09 J, Qa: 35.7 nC).







20nsec Candidate standard current waveform

図6 基準電流波形候補の抽出

Fig.6 Extraction standard current waveform.



図7 基準電流波形の導出

Fig.7 Deriviation standard current waveform.



図8 基準電流波形の減算

Fig.8 Subtracting standard current waveform.

#### 3. 実験結果

ここでは図2の実験装置構成にて,2枚の電極板仕様 Aを放電空間ギャップ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 kVp-p,印加電圧周波数45 kHzとしたときの放電電流 Lour を測定し,前述した単一放電本数計算手法を適用した.

測定した電流波形と選択波形を図9に示す. 放電電流 Iout 波形から放電本数を計算する放電1サイクル分とし て放電電流波形(c)を選択した.

図 10 には, 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1 サイクル分の放電電流波形(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11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9の放電電流波形(a) ~(j)に単一放電本数計算を実施した.図12に示すように,各放電サイクルの放電本数は近い値を示し,平均 放電本数*N*は22本となった.



図 9 放電 1 サイクルの放電電流波形の選択 Fig.9 Selecting discharge current waveform.



図 10 基準電流波形の算出 Fig.10 Calculating standard current waveform.



図 11 基準電流波形の減算 Fig.11 Subtracting standard current waveform.





Fig.12 Average number of discharges in all No. discharge current waveform.

この平均放電本数 N と 2.1 項で算出した放電電荷量 Qd (35.7 nC)を用いて、単一放電あたりの電荷量 q は(2) 式で表すことができる.算出結果、単一放電あたりの電荷量 q は 1.62 nC となる.

$$\mathbf{q} = Q_d / \overline{N} \tag{2}$$

以上のように、本実験で用いた放電リアクタ 仕様・ 印加電圧条件での単一放電特性は、電荷量:1.62 nC, 放電本数:22本であることを導出した。

#### 4. 放電観測による手法の検証

実際の放電タイミングと放電本数に対して,前述の本数 計算手法を検証するため,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本数計算を実施した.

実験装置構成を図 13 に示す. 高速度カメラ (Photron 社製 SA-11) は放電リアクタへのガス導入方向から放電

空間を撮影可能な状態でセッティングされる.そして電 圧プローブによる電圧信号を撮影開始のトリガーとし, 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 保されている.単一放電の観測を行うため,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.検証に用いた放電リアクタ仕 様と交流印加電圧条件は 2.1節での測定時と同様にした.

高速度カメラ撮影の各設定値を表1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14と図15それぞ れ示す.図14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15では,撮影画像に放 電が4本観測される.図14での電流波形を単一放電の基 準電流波形として図15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 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.これは基準電 流波形のピーク電流値のばらつき分だけ減算毎に誤差が蓄 積し、減算回数が増減したことに起因するものと考える.

よって、本手法は 10本 /200 nsec 則ち 50 本 /µsec 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.



図 13 実験装置概要 Fig.13 Experimental Setup.

#### 表1 高速度カメラ撮影条件 Table 1 High-Speed camera conditions.

Condition	
9,000 fps	
ening period 200 nsec	
$V_{\text{out}} > \pm ~5~kV$	
(Interval 0.1 msec)	
250,000 fps	

計算精度の向上に関する検討は今後の研究課題とする.

以上より,本研究で構築した単一放電本数計算手法と 撮影画像で観測した放電本数が高精度で一致するため, 本手法の確からしさが実証されたと考える.



図 14 放電撮影画像と電流波形(1 放電)

Fig.14 Discharge image and current waveform (1 discharge).



図15 放電撮影画像と電流波形(4放電)

Fig.15 Discharge image and current waveform (4 discharges).

表 2 放電撮影画像と本手法での放電本数比較結果 Table 2 Comparison of number of discharges in the photograph and by this method.

Number of discharges in photograph	Number of applicable photograph data	Match the number of discharges in the photograph and by this method	Wrong	Match Rate
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%

#### 5. 単一放電測定によるオゾン生成考察

放電本数・単一放電の電荷量とオゾン生成量を関連付 け、オゾン生成に関して考察した.

図2の実験構成で、放電リアクタには電極板仕様A とBを電極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1.0 mmとして PTFE 絶縁スペー サで固定したものを用いた.電極板仕様Bの電極ピッ チ間隔は0.5 mm, 1.0 mm, 2.0 mmの3水準とし、隣接 する単一放電の間隔を意図的に変えた.実験条件は、交 流印加電圧振幅17.5 kVp-p,交流周波数45 kHzを固定 条件とし、オゾン量は放電リアクタ下流のオゾン分析計 (荏原実業社製 EG-3000D)にて測定した.

図 16 に電極ピッチ間隔水準ごとの排出ガスのオゾン 濃度を並べて示す.今回の電極ピッチ間隔水準では, 1.0 mm 仕様のオゾン濃度が最大となる.図17 には,(i) 放電本数,(ii)単一放電の電荷量,(iii)単一放電あた りのオゾン生成量を電極ピッチ間隔ごとに並べて示す. 電極ピッチ間隔が小さいほど,単一放電の電荷量は増加 し,それに伴い単一放電あたりのオゾン生成量も増加す る.一方で電極ピッチ間隔が小さ過ぎると,放電本数は



図 16 出ガスの O<sub>3</sub>濃度 Fig.16 O<sub>3</sub> concentration in out gas.



図17 結果

 $\ i) \ Number of \ discharges \quad ii) \ Electric \ charge \ of \ single \ discharge \ iii) \ O_3 \ amount \ of \ single \ discharge.$ 

減少する傾向にあることが分かる.

図 16 で 1.0 mm 仕様のオゾン濃度が最大となるのは, 放電本数 39 本と単一放電の電荷量 0.84 nC の乗算値 32.76 nC が電極ピッチ間隔水準で最も大きいことから説 明ができる.

以上のように、本研究で構築した手法を用いて、放電 本数や単一放電の電荷量といった放電特性から、オゾン 生成現象に対しての考察を行うことを可能とした.

## 6. まとめ

放電電流波形に対して単一放電の基準電流波形を繰り返 し減算し,減算回数で単一放電本数を計算する手法を考案 した.また,高速度カメラにより撮影した放電観測画像と 撮影と同期させた放電電流波形を用いて,前記手法の確か らしさを実証した.その後,前記手法を用いて算出した放 電本数・単一放電の電荷量とオゾン生成量とを関連付け, オゾン生成現象を放電特性から考察することを可能とした.

# 謝辞

放電の計測・可視化にあたり,株式会社ナックイメー ジテクノロジー殿に多大なご協力をいただきました.心 より感謝申し上げます.

#### 参考文献

- T. Hijikata and K. Nakajoh: Deodorization and Decomposition of Organic Compounds by Plasma Photocatalyst System. Toshiba Review., 61 [10] (2006) 70-73
- 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., 1 [1] (2007) 34-38
- 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 微:3. 大気圧プラズマを準備しよう.プラズマ・核融合学会誌, 83 [12] (2007) 942-956
- Shengi Zhang, Feng Yu and Qing Yuan: UV-ozone induced surface passivation to enhance the performance of Cu2ZnSnS4 solar cells. SEM and SC., 200 (2019) 109892
- F. Okada, K. Nagashima and T. Kobayashi: Production of 160 mg/L ozone water using circulating water electrolysis system. Electrocnimica Acta., 294 (2019) 391-397
- 高木浩一,秋山秀典,前田定男:気流中における針対平板電極間放電の特性.電学論A,110 [2] (1990)119-125
- 7) 古橋拓也,志賀 彰,竹内史朗,藤田洋司:平板突起電 極と触媒間のコロナ放電によるホルムアルデヒド分解性 能.静電気学会誌,29 [1] (2005) 56-61
- 8) 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)
- 9) 八木重典:バリア放電, p.74, 朝倉書店 (2012)

i) 放電本数 ii) 単一放電の電荷量 iii) 単一放電の O<sub>3</sub>量 Fig.17 Results of