電圧印加サイクル数と大気圧空気中における 均一バリア放電現象の関係

渡部 佳月*, 大澤 直樹**.1

(2022年11月16日受付;2023年1月12日受理)

Relation Between Number of Voltage Application Cycles and Diffuse Barrier Discharge Phenomena in Atmospheric Pressure Air Kazuki WATANABE^{*} and Naoki OSAWA^{**,1}

(Received November 16, 2022; Accepted January 12, 2023)

We succeeded in generating an Atmospheric Pressure Townsend Discharge (APTD) in air by the specific alumina barrier. Since this barrier can easily accumulate and maintain negative charges on the surface, we believed that negative charges on the surface play an important role in generating APTD in air. Therefore, we considered that APTD generate even in air if negative charges are accumulated on the surface. In this study, in order to clarify whether the APTD can be generated or not, we investigated current waveforms and discharge appearance immediately after applying voltage using a non-charged barrier, and discussed the relation between the amount of accumulated negative charge estimated from the negative pulse current and APTD generation. As a result, (1) APTD did not generate at the 1st sinusoidal voltage application although we used the specific alumina barrier which can generate APTD, (2) when the peak value of applied voltage is increased, APTD generate quickly and stably, and (3) if the amount of the transferred charge by streamer discharge generated in previous half cycle is large, APTD generate stably. These results suggested that a large number of negative charges on the barrier surface is necessary to generate APTD in air.

1. はじめに

J. Inst. Electrostat. Jpn.

文

論

大気圧空気中での誘電体バリア放電(Dielectric Barrier Discharge:DBD)は、電極間に1枚以上の誘電体(バリア) を挿入し、交流高電圧を印加することで発生するストリー マ放電の集合体である。このDBDは、高分子材料の表面 改質やオゾン生成に応用されている^{1,2)}.近年では、皮膚 疾患の治療や農作物の収量改善などの医療・農業分野への 応用も報告されている^{3:5)}.DBDは、特定のガスを用いる ことで、ストリーマ放電が発生せずに空間一様に発光する 大気圧均一バリア放電となることが知られている.大気圧 均一バリア放電には、He や Ar といった希ガスを用いるこ とで発生する大気圧グロー放電(Atmospheric Pressure Glow

キーワード:誘電体バリア放電,大気圧タウンゼント放電,

ストリーマ放電,電圧印加サイクル数,表面電荷密度 *金沢工業大学大学院工学研究科電気電子工学専攻

(〒921-8501 石川県野々市市扇が丘 7-1) Graduate Program in Electrical Engineering and Electronics, Kanazawa Institute of Technology, 7-1 Ohgigaoka, Nonoichi, Ishikawa 921-8501, Japan

* 金沢工業大学工学部電気電子工学科 (〒921-8501 石川県野々市市扇が丘 7-1) Department of Electrical and Electronic Engineering, Kanazawa Institute of Technology, 7-1 Ohgigaoka, Nonoichi, Ishikawa 921-8501, Japan

n.osawa@neptune.kanazawa-it.ac.jp

DOI: https://doi.org/10.34342/iesj.2023.47.2.70

Discharge: APGD)と^{6,7},高純度の窒素を用いることで発生 する大気圧タウンゼント放電(Atmospheric Pressure Townsend Discharge: APTD)がある⁸⁻¹⁰⁾.窒素中のAPTDの発生メカ ニズムについて K. V. Kozlov らは、準安定状態の窒素分子 同士の衝突により種電子が生成されるため、放電が均一化 すると報告している¹¹⁾. そのため、準安定状態の窒素分子 のクエンチャーである酸素が100 ppm でも混入すると APTDが発生しなくなる^{11,12)}.著者らの研究グループでは、 誘電体材料に、比誘電率(1 MHz)が9.1,誘電正接(1 MHz)が5×10¹⁴,表面粗さが0.390 µmの特徴を有するア ルミナ(純度92%)を用いることにより、空気中や酸素 中でも APTDを発生できた^{13,14)}.約20%の酸素を含む空気 中でも APTD を発生できたことから、K. V. Kozlov らの提 唱する APTD の発生メカニズムとは異なる、APTD の発生 メカニズムが存在すると考えている.

これまでに、著者らは、空気中での APTD 発生メカニズム を明らかにするために、ガス圧力が APTD の発生に及ぼす 影響を調べてきた.これは、放電空間のガス圧力を低くする と電子なだれが径方向に拡散しやすくなるので¹⁵⁾、放電が均 一化しやすくなるのではないかと考えたためである.その結 果、0.17 MPa に加圧された乾燥空気中でも APTD を発生で きたことから、空気中での APTD の発生は電子なだれの径 方向への拡散現象ではなく、誘電体表面に蓄積される負の 電荷量やその一様な分布が重要であることが示唆された¹⁶⁾. 近年,著者らは,半球棒電極とアルミナ被覆平板電極で 構成される DBD 装置と非接触型の表面電位測定器を用い て,誘電体表面に蓄積される電荷の様子を調べてきた.そ の結果,APTD を発生できる誘電体では,誘電体表面に蓄 積される電荷量が多く,帯電状態を維持しやすいことを明 らかにできた^{17,18)}.したがって,APTD を発生できる誘電 体でも,誘電体の表面に負の電荷が蓄積されていない状態 では,APTD は発生しないことが予想される.しかし,こ れまでの研究では,電圧印加直後のAPTD 発生現象は明 らかにできていなかった.

本研究では、大気圧空気中での APTD の発生メカニズム を解明するために、誘電体表面が帯電していない状態で DBD 装置に電圧を印加したときの APTD の発生や、印加 電圧の印加サイクル数を増やしたときに APTD がどのよ うに発生していくのかを調べた.

2. 実験方法

2.1 実験システム

Fig.1 に実験システムを示す.システムは、高電圧電源、 DBD 装置,電流測定部,高速度カメラで構成される.高 電圧電源は、ファンクションジェネレータ(AFG-3022C、 Tektronix) と高圧アンプ (Model 20/20C-HS, Trek) で構成 されており, 電圧波高値, 初期位相, 印加電圧サイクル数 をコントロールできる. 電流波形は DBD 装置の低圧側に 接続された電流検出抵抗(20 kΩ)の電圧降下より測定し た。印加電圧波形と電流波形の測定には、オシロスコープ (TBS 2104C, Tektronix)を使用した. 過電圧によりオシロ スコープが破損するのを防止するために、電流検出抵抗に はバリスタを並列に接続した. 放電の撮影には、イメージ インテンシファイア(Model-C5100、浜松ホトニクス)を 付けた高速度カメラ (FASTCAM SA4, Photron) を用いた. ディレイジェネレータ (DG-535, Stanford Research Systems) を用いて、ファンクションジェネレータと高速度カメラを 同期させた.カメラの露光時間は0.5 ms. レンズの絞りは



図1 実験システム



f/3.5 とした.印加電圧波形は正弦波交流,周波数は 50 Hz とした.非接触型の表面電位計(Model 341HV, Trek)に より誘電体の表面電位が 0 V であることを確認してから半 球棒電極に電圧を印加した.

ここで,文献^{19,20)}によると誘電体表面に蓄積される荷電 粒子について電荷と示している.それらの文献では,放電 空間中で生成された負イオンや電子が誘電体の表面に蓄積 されていることから,本論文では誘電体表面に蓄積された 荷電粒子を電荷と呼ぶことにする.

2.2 DBD装置の仕様

Fig.2 は DBD 装置の外観である. DBD 装置の周辺湿度は, 乾燥空気を用いて相対湿度を 25%に調整した.装置は半球 棒電極(先端部半径:5 mm,材質: SUS304)とアルミナ 被覆平板電極で構成されており,ギャップ長は3 mm とした.

Fig.3 はアルミナ被覆平板電極の寸法である. アルミナ 被覆平板電極は,100 mm × 100 mmのセラミックス(A473, 京セラ社製) に,80 mm × 80 mmのタングステン製の薄 膜電極が内挿されている. 誘電体材料はアルミナ(純度 92%) であり,厚さは1 mm,比誘電率は9.1 である. Table 1 は誘電体材料の特徴をまとめたものである.





図3 アルミナ被覆平板電極の寸法と構成

Fig.3 Configuration and size of alumina coated flat plane electrode.

表1	バ	IJ	ア材料の)特徴	
Table	1	F	eatures of	barrier	material.

A473	
APTD	
Al ₂ O ₃ (92%)	
9.1	
5×10^{-14}	
0.390 µm	
Kyocera Corporation	

3. 結果

3.1 電圧電流波形のパターンと放電の発光様相

Fig.4(a)~(c)は, 11.2 kVpの電圧を半球棒電極に印加し たときに得られた代表的な電圧電流波形である.以下に, それぞれのパターンについて説明する.

<パターン A >

電圧印加1サイクル目(0 ms ~ 20 ms)は、印加電圧の 極性が正(以降,正極性と呼ぶ)と負(以降,負極性と呼 ぶ)のときにパルス電流が発生した.2サイクル目(20 ms~40 ms)は、正極性のときに連続的な電流が発生し、 負極性のときにパルス電流が発生した.3サイクル目以降 (40 ms~)は、2サイクル目と同じ電流波形となった. <パターン B >

電圧印加1サイクル目 (0 ms ~ 20 ms) は,正極性のと きはパルス電流が発生しなかったが,負極性のときはパル ス電流が発生した.2サイクル目 (20 ms ~ 40 ms) は, 正極性のときは連続的な電流が発生したが,負極性のとき はパルス電流が発生した.3サイクル目以降(40 ms ~)は, 2サイクル目と同じ電流波形となった.

<パターン C >

電圧印加1サイクル目(0 ms ~ 20 ms)は、パターンA と同様、正極性と負極性のときにパルス電流が発生した. 2サイクル目(20 ms ~ 40 ms)は、パターンBの1サイ クル目と同様、正極性のときはパルス電流が発生しなかっ たが、負極性のときはパルス電流が発生した.3サイクル 目以降(40 ms ~)は、正極性のときは連続的な電流が発 生し、負極性のときはパルス電流が発生した.

Fig.5(a)~(d)は放電写真であり, Fig.4(a)中のGate(a)~ (d) にそれぞれ対応している. (a)~(c)の露光時間は 0.5ms, (d) は 20 ms である.発光が弱かったため,高速度 カメラの制御ソフト (Photron FASTCAM Viewer Ver.3) と 汎用画像処理ソフト (ImageJ) において, (a)~(c)の γ と 中間トーンをそれぞれ 0.3 と 30, (d) をそれぞれ 0.6 と 60



(c) Pattern C

Fig.4 Examples of voltage and current waveforms.

図4 電圧電流波形の一例



Fig.5 Discharge photographs.

に設定した. Fig.5(a), (b) は, 電圧印加1サイクル目にお いて、パルス電流が発生したときの放電写真である。印加 電圧の極性に関係なく、電極間でフィラメント状の発光が 観察された.このことから、1 サイクル目において正極性 と負極性のときに発生した放電はストリーマ放電であるこ とを確認できた. Fig.5(c)は、電圧印加2サイクル目以降 の正極性において連続的な電流が観察されたときの放電写 真である.半球棒電極(陽極)の表面で一様な発光が観察 された. 陽極表面での一様な発光と連続的な電流波形が観 察されたことから、この放電は APTD であることを確認 できた. Fig.5(d) は、定常状態の1サイクル分を撮影した 放電写真である. 半球棒電極の表面での一様な発光と、電 極間での筋状の発光が同時に観察され, APTD とストリー マ放電が混在している様子を観察できた.このことから, 2 サイクル目以降は、この放電様相が周期的に発生するこ とを確認できた.以上より, APTD を発生できる誘電体で もストリーマ放電が発生することと、APTD は電圧印加2 サイクル目以降の正極性で発生することが確認できた.

3.2 印加電圧サイクル数と各種放電の発生率

Fig.6 は,正極性のときに発生した放電の種類とその発生 率を整理したものである.放電の発生率は10回の実験から 算出した.ここで,印加電圧は11.2 kVpである.電圧印加1 サイクル目では,放電が発生しないときとストリーマ放電が 発生するときがあった.一方,電圧印加2サイクル目~5サ イクル目では,APTD は発生するが,ストリーマ放電は発生



Fig.6 Relation between the number of applied voltage cycles and discharge probabilities of streamer discharge and APTD.

しなくなった.また、電圧印加サイクル数が増えると APTD の発生率が上昇した.電圧印加6サイクル目以降は、APTD の発生率が100%となった.本研究では、誘電体の表面電位 が0Vであることを確認してから実験を行ったことから、 APTDを発生できる誘電体でも、誘電体表面に負の電荷が蓄 積されていなければ、APTD は発生しないことが明らかとなった.ここで、電圧印加サイクルが増えると APTD 発生率が 高くなったのは、負極性のストリーマ放電によって誘電体表 面に蓄積される負の電荷量が多くなったためと考えられる.

4. 考察

図 6

4.1 印加電圧の大きさとAPTDの発生率の関係

印加電圧の波高値を高くすると,発生したストリーマ放 電によって誘電体表面に蓄積される電荷量が増加すること から¹⁹,印加電圧を高くすることにより,少ない電圧印加 サイクル数でも APTD の発生率が 100%になると考えられ る.ここでは,印加電圧を 11.2 kVp から 11.8 kVp に高く したときの APTD の発生率を調べた.

Fig.7 は印加電圧サイクル数と APTD 発生率の関係である. APTD の発生率は 10回の実験から算出した.印加電圧の波 高値を高くしても,1サイクル目では APTD は発生しなかっ たが,2サイクル目以降では,印加電圧の波高値を高くする と APTD の発生率が高くなった.また,11.6 kVp や 11.8 kVp では,2サイクル目でも APTD の発生率は 100%となった.

4.2 ストリーマ放電とAPTDの発生に伴う移動電荷量

Fig.4(c)より,電圧印加1サイクル目の負極性のときにスト リーマ放電が発生しても,電圧印加2サイクル目の正極性の ときに APTD が発生しないことがあった.これは,負極性の ストリーマ放電によって誘電体表面に蓄積された負の電荷量 が少なかったためと思われる.ここでは,負極性のストリー



図7 電圧印加サイクルと APTD 発生率の関係(印加電圧波高 値の影響)



マ放電の発生に伴う移動電荷量と、正極性の APTD の発生 に伴う移動電荷量を電流波形から算出し、これらの関係を調 べた.また、APTD が初めて発生するとき(Fig.4(a)中の期 間 A)と、安定して発生するとき(Fig.4(a)中の期間 B)の 移動電荷量の違いも調べた.なお、この実験では、APTD の 発生を不安定にするため、印加電圧を 11.0 kVp に低くした.

Fig.8 は、APTD が安定して発生しているときの印加電 圧と電流波形の一例である. *i*m はストリーマ放電の電流を 調べるために測定した電流であり, *i*m'は APTD 電流を調 べるために測定した電流である. *i*m や *i*m'には、放電電流 と変位電流 *i*a が含まれるため, *i*m や *i*m'から *i*a を減じて放電 電流を求めた. ここで, *i*a は印加電圧の時間変化より求め た²¹⁰. また、ストリーマ放電の発生に伴う移動電荷量 *Q*sn と APTD の発生に伴う移動電荷量 *Q*APTD は、それぞれの放 電流を時間積分して求めた^{11,22)}.

Fig.9 は、Qsp と QAPTD の関係を整理したものである. APTD が初めて発生したとき(期間 A)では、Qsp が -12 nC 以下 では APTD が発生しなかった. また、Qsp が増加すると QAPTD が増加した. 前者は、誘電体表面に蓄積される負の 電荷量が少なかったため、正極性の電圧が印加されてもギ ャップの電界が絶縁破壊電界に到達しなかったためであ る. 後者は、誘電体表面に蓄積される負の電荷量が増加す ると、正極性の電圧が印加されたときの電界強度が高くな ったためである. 期間 A では、Qsp よりも QAPTD の方が少 なくなった. これは、ストリーマ放電によって誘電体表面 に蓄積された負の電荷の一部が APTD によって誘電体表 面から放出されたためである. 一方、期間 B では、Qsp と QAPTD の絶対値が約 20 nC であった. これは、APTD の発生 によって誘電体から放出された負の電荷が負極性のストリ ーマ放電によって回復したためである. この現象を明らか



図 8 測定された電流,変位電流ならびに放電電流 Fig.8 Measured current, displacement current and discharge current.



図9 ストリーマ放電による移動電荷量と APTD による移動電 荷量の関係

Fig.9 Relation between transferred charge by streamer discharge and that by APTD.

にするには、電流波形から電荷量を推定するだけではなく、 表面電位計を用いて、誘電体表面に蓄積される電荷の極性、 量ならびに分布を時間分解測定する必要がある.

本研究では、印加電圧の波高値や移動電荷量の観点から 空気中での APTD 発生メカニズムを検討したが、電源電圧 の周波数が空気中での APTD の発生に関係しているとの報 告もある²³⁾. 今後、誘電体表面に蓄積された負極性の電荷 が放出される現象についても明らかにしていく必要がある.

5. まとめ

大気圧空気中での APTD の発生メカニズムを解明するために、電圧印加サイクル数と APTD の発生率を調べた.また、誘電体表面に蓄積される負の電荷量が APTD の発生 に及ぼす影響を調べるために、印加電圧の波高値や移動電 荷量が APTD の発生に及ぼす影響を調べた.その結果、以 下の知見が得られた.

(1) 誘電体の表面電位が0Vのとき,正極性の電圧を印加

しても APTD は発生しない. また,印加電圧の波高値 を高くしても発生しない.

- (2) APTD は少なくとも電圧印加2サイクル目から発生する.また、電圧印加サイクル数が増えると APTD の発 生率が高くなる.
- (3)印加電圧の波高値を高くすると、電圧印加サイクル数が2でもAPTD発生率が100%となる。
- (4) 負極性のストリーマ放電による蓄積電荷量が -12 nC 以下では、APTD は発生しない.また、その電荷量が 増加すると、APTD の移動電荷量も増加する.
- (5) APTD が初めて発生するときは、ストリーマ放電によって誘電体表面に蓄積された負の電荷の一部が APTD によって誘電体表面から放出される.一方、APTD が 安定して発生している期間では、APTD の発生によって誘電体表面から放出された負の電荷が負極性のスト リーマ放電によって回復される.

本研究は, JSPS 科研費 JP19K04360 の助成を受けたもの です. また, アルミナ被覆平板電極は京セラ株式会社から 提供を受けました.

参考文献

- 1) 柳沢雄太,吉岡芳夫:大気圧バリア放電によるプラスチックのリモート表面改質.電学論A,12 (2007) 303
- 2) 山部長兵衛:オゾン生成技術とオゾン利用. 電学論 A, 126 (2006) 874
- 3) 熊谷慎也,小林未明,清水鉄司,佐々木実:一細胞に非熱 平衡プラズマを照射する Plasma-on-Chip デバイス:誘電体 バリア放電方式による動作特性の改善. 電学論 C, 140 (2020) 452
- 4) 門脇一則, 栗坂信之:極性反転パルス電圧によるバリア放 電処理における Arabidopsis 種子の発芽促進と抑制. 電学 論 A, 133 (2013) 38
- 5) 蛯原健治,高山正弘, Henryka Danuta Strycewska,池上知顯, 行徳 裕,立花賢浩:誘電体バリア放電によるオゾンの広 範囲濃度制御と土壌処理への応用.電学論 A, 126 (2006) 963
- S. Kanazawa, M. Kogoma, T. Moriwaki and S. Okazaki: Stable glow plasma at atmospheric pressure. J. Phys. D: Appl. Phys., 21 (1988) 838
- T. Yokoyama, M. Kogoma, T. Moriwaki and S. Okazaki: The mechanism of the stabilization of glow plasma at atmospheric pressure. J. Phys. D: Appl. Phys., 23 (1990) 1125
- N. Gherardi, G. Gouda, E. Gat, A. Ricard and F. Massines: Transition from glow silent discharge to micro-discharges in nitrogen gas. Plasma Sources Sci. Technol., 9 (2000) 340
- N. Gherardi and F. Massines: Mechanisms Controlling the Transition from Glow Silent Discharge to Streamer Discharge in Nitrogen. IEEE Trans. Plasma Sci., 29 (2001) 536
- 10) N. Naude, J-P. Cambronne, N. Gherardi and F. Massines:

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

- K. V. Kozlov, R. Brandenburg, H-E. Wagner, A. M. Morozov and P. Michel: Investigation of the filamentary and diffuse mode of barrier discharges in N₂/O₂ mixtures at atmospheric pressure by cross-correlation spectroscopy. J. Phys. D: Appl. Phys., 38 (2005) 518
- R. Brandenburg, V. A. Maiorov, Yu. B. Golubovskii, H-E. Wagner, J. Behnke and J. F. Behnke: Diffuse barrier discharges in nitrogen with small admixtures of oxygen: discharge mechanism and transition to the filamentary regime. J. Phys. D: Appl. Phys., 38 (2005) 2187
- 13) 大澤直樹, 吉岡芳夫, 花岡良一, 望月祐太朗, 小林祐介, 山田雄太:誘電体バリア放電装置における大気圧空気中で の均一放電の発生. 電学論 A, 130 (2010) 306
- 14)大澤直樹,守本祐生,吉岡芳夫,花岡良一:大気圧空気中 や酸素中で発生する均一バリア放電によるオゾン生成.電 学論 A, 134 (2014) 98
- 15) 杤久保文嘉:改訂版 大気圧プラズマの生成制御と応用技 術,小駒益弘, p.23,サイエンス&テクノロジー株式会社 (2012)
- 16) N. Osawa, A. Takashi, Y. Yoshioka and R. Hanaoka: Generation of high pressure homogeneous dielectric barrier discharge in air. Eur. Phys. J. Appl. Phys., 61 (2013) 24317
- N. Osawa and Y. Yoshioka: Progresses of Fundamental Research and Application of Atmospheric Pressure Townsend Discharge. J. Adv. Oxid. Technol., 17 (2014) 217
- 18) N. Osawa, Y. Mori, N. Hirose, S. Motoyama, Y. Yoshioka and R. Hanaoka: DISTRIBUTION OF SURFACE POTENTIAL ON DIELECTRIC BARRIER UNDER DIFFERENT DISCHARGE MODES IN ATMOSPHERIC-PRESSURE AIR. Proc. 16th High Pressure Low Temperature Plasma Chemistry Symposium (2018)
- 19) C. Natsume, A. Komuro and A. Ando: Characterization of surface charge density and net electric field during parallel-plate dielectric barrier discharge generated in atmospheric-pressure air. Plasma Sources Sci. Technol., **31** (2022) 095019
- 20) Y. Zhu, T. Takada, K. Sakai and D. Tu: The dynamic measurement distribution deposited from partial discharge in air by Pockels effect technique. J. Phys. D: Appl. Phys., 29 (1996) 2892
- 21)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ナイザの電極形状によ る高効率化.電学論A,125 (2005)501
- 22) A. Komuro, R. Ono and T. Oda: Numerical simulation for production of O and N radicals in an atmospheric-pressure streamer discharge. J. Phys. D: Appl. Phys., 45 (2012) 265201
- 23) A. Belinger, S. Dap and N. Naude: Influence of the dielectric thickness on the homogeneity of a diffuse dielectric barrier discharge in air. J. Phys. D: Appl. Phys., 55 (2022) 465201