

令和 3 年 6 月 25 日現在

機関番号：57301

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2020

課題番号：19K14978

研究課題名（和文）ナノ秒パルスマイクロ放電の生成と水素製造技術への応用

研究課題名（英文）Generation of Nanosecond Pulsed Microdischarge and its Application for Hydrogen Production

研究代表者

猪原 武士（IHARA, Takeshi）

佐世保工業高等専門学校・電気電子工学科・准教授

研究者番号：30634050

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、水素エネルギーを積極的に利用した水素社会の実現に向けて、生成エネルギーの更なる効率化のために、ナノ秒パルスマイクロ放電（nsPMD）を生成し、これを水素製造技術に応用した。本研究の成果として、3Dプリンタを用いてマイクロ流路を有するnsPMDデバイスを作製し、マイクロギャップ内気液混相流場にnsPMDが生成されることを確認した。このデバイスの水素生成エネルギー効率従来からの放電方式と比べて10倍程度向上したことが確認された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

放電プラズマによる新しい水素製造技術である本研究の成果は、海水や汚水、排水といったあらゆる水を原料として水素を製造できる可能性を示すものであり、持続可能で環境に優しいエネルギー資源の確保が期待される。これによって二酸化炭素を排出しないクリーンな水素社会の実現が期待される。また、ナノ秒時間という極めて短い時間の放電プラズマをマイクロ流路内という狭小空間で生成させることは、これまでにない新しい化学反応が期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, nanosecond pulsed microplasma (nsPMD) has generated and applied to hydrogen production technology in order to improve the efficiency of hydrogen production energy for the realization of a hydrogen society. As a result of this study, nsPMD device with microchannels has developed by using 3D printer and nsPMD was confirmed in the gas-liquid multiphase flow in the microchannel. The efficiency of hydrogen production energy by using the device was improved by about ten times compared with the previous discharge method.

研究分野：放電プラズマ工学

キーワード：パルスパワー 水素製造 ナノ秒パルス マイクロ流路

### 1. 研究開始当初の背景

近年、導入が拡大する再生可能エネルギーによる需給バランス不安定の対策として余剰電力を水素に置換し貯蔵する Power to Gas (P2G) など、「水素エネルギー」の利活用に関する取り組みが精力的に進められている。このような背景を受けて、我が国でも調達できる原料で、製造過程で二酸化炭素を排出しない低環境負荷で持続可能な水素製造法の確立が急務となっている。

申請者は、これまでにパルス放電技術を用いて水を原料とした水素製造法に関する研究を行っている (H27 科研費若手 B 採択, 等)。これまでの研究成果より、パルス放電、特に、一次ストリーマ放電による水分子の直接解離反応を利用することによって、純水から海水などの幅広い水を原料に水素を製造できることを明らかにしている。しかし、実用化のためには水素生成エネルギー効率は十分ではなく、その効率化 (目標 10 倍程度) が課題となっている。これら課題を解決するためには、水分子と一次ストリーマの接触頻度を増加させることが重要となる。つまり、高密度なエネルギー場の創出が本研究の鍵となる。

### 2. 研究の目的

放電プラズマによる水素製造技術の実用化のためには、局所空間、かつ、極短時間に形成される放電機構およびその化学反応過程の理解、また、その知見を基に効率的に水素製造を行うために最適化された放電デバイスの開発が必要である。

本研究の目的は、高いエネルギー密度、かつ、高い非熱性を有するナノ秒パルスマイクロ放電 (nsPMD) を新規に生成し、これを水素製造技術に応用する。本研究では、1) nsPMD の放電機構および反応過程を解明するために、精密な電圧電流計測および高時空間分解発光分光法による放電の診断を行い、2) 水素生成エネルギー効率 7 kWh/Nm<sup>3</sup> の水素製造に向けた nsPMD デバイスの開発および変圧器レスな全固体パルス電源の開発を行う。

### 3. 研究の方法

#### (1) 効率的な水素製造システム確立のために、nsPMD デバイスの開発

申請者は、これまでに 3D プリンティング技術を用いることで比較的容易にマイクロ流路放電デバイスを製作できることを示している。本研究では、光造形による高精度 3D プリンタを新たに導入し、マイクロ流路を備えた新たな放電プラズマデバイスを製作する。作製した nsPMD デバイスを用いて放電試験を行い、水素生成特性を明らかにする。測定は図 1 に示す実験システムによって行われた。

#### (2) nsPMD の放電機構を解明するために、精密な電圧電流計測による nsPMD の特性解明

マイクロ流路内気液混相流や蒸気を添加した気相雰囲気中において、所有の 25 ns 時間幅ナノ秒パルス電源を用いて放電を生成する。放電開始電圧、放電電流、単一放電あたりの電荷量を調べることにより nsPMD の放電プラズマの特性を明らかにする。また、製作するデバイスを用いて、形成する気液混相流の媒質条件を変化させた場合の放電特性も調べることによって、放電雰囲気を与える影響についても調べる。

#### (3) 水素製造用全固体ナノ秒パルス電源の開発

上記で開発するデバイスに最適な出力電圧、電圧幅を有する変圧器を用いない昇圧チョッパ回路と SiC-MOSFET を組み合わせた手のひらサイズのナノ秒パルス電源の開発を行う。全固体素子で構成されたナノ秒パルス電源は、初段のスイッチの性能によってパルスの立ち上がり、およびパルス幅が大きく影響を受ける。より高速で大電流のスイッチングが可能となれば、全固体素子によるナノ秒パルス電源が作製可能となる。本研究では、大電流での高速スイッチングを行うために高速高電圧ゲート信号による市販の SiC-MOSFET の高速駆動回路を作製する。

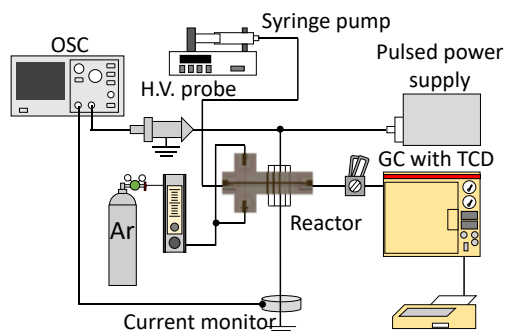


図 1 実験システムの概略図

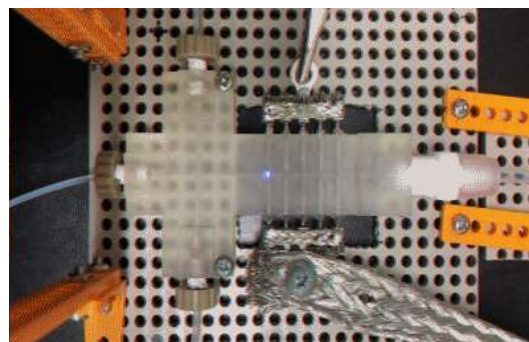


図 2 本研究で開発した nsPMD の外観

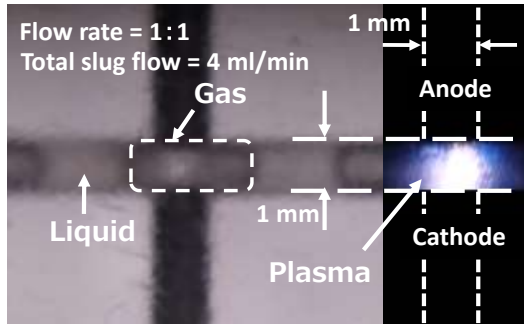


図3 本研究で形成した気液混相流の例

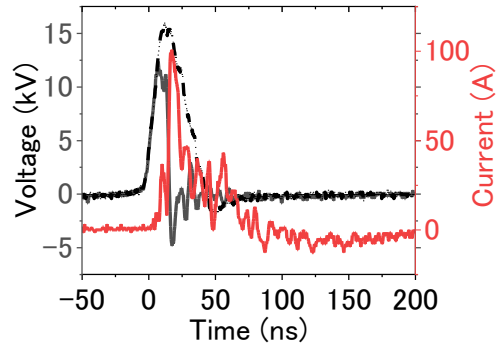


図4 nsPMDの典型的な電圧電流波形

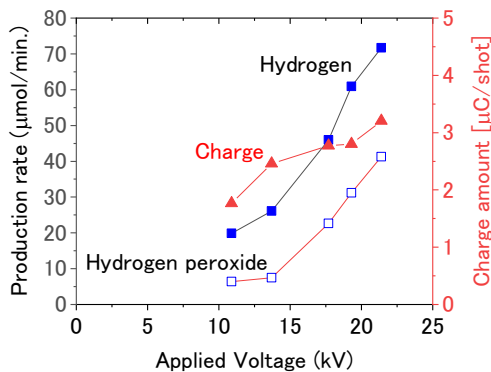


図5 水素生成および放電電荷量の関係

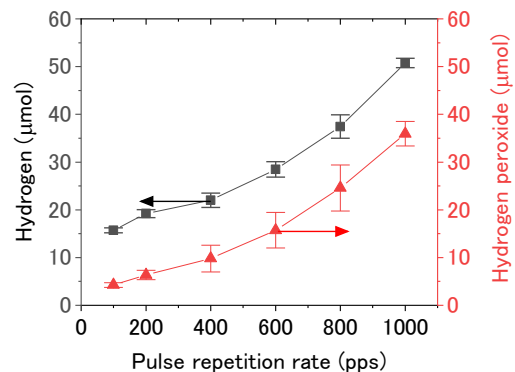


図6 水素および過酸化水素生成特性

#### 4. 研究成果

##### (1) 効率的な水素製造システム確立のために、nsPMD デバイスの開発

図2に本研究で開発したマイクロ流路を備えた nsPMD デバイスの外観を示す。3D プリント (Form3, Formlabs 社製) を新たに導入し、マイクロ流路を備えた nsPMD デバイスを作製した。デバイスは、3つの入力ポートおよび1つの出力ポートを備え、入力側に混相流を形成するジャンクション部を備える。中央部に5対のタンガステン電極が挿入され、電極間1 mmの間に高電圧パルス電圧を印加する。混相流は、シリジポンプによる液体およびガスポンベからの気体挿入によって形成された。スラグ流の様子を図3に示す。図3の右は、nsPMD が形成された際の様子である。この時の典型的な電圧電流波形を図4に示す。放電の開始時に合わせて急峻な立ち上がりのパルス状電流が計測された。発光および電流の発生より nsPMD が発生していることを確認した。

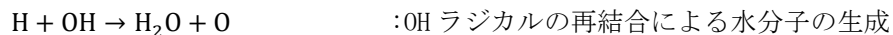
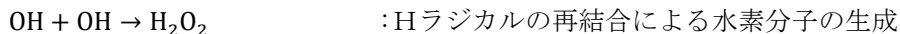
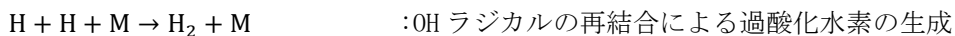
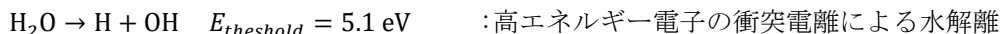
次に、液体および気体の流量を調整することによって、気液スラグ長を制御した。気液スラグ長を変化させた場合の放電プラズマによる水素生成特性を調べた。その結果、気液スラグ長による水素生成量の大きな違いは見られなかったが、気相が長い条件において若干ではあるが水素生成量が増加した。これは気相領域が長いことによって気相中に生成されるプラズマの数が増加し、水素生成量に影響を与えたと考察する。また、印加電圧を増加させた場合の水素生成量および、反応によって副次的に生成される過酸化水素量の特性について図5に示す。併せて、算出された放電に寄与した電荷量を示す。この結果より、印加電圧の増加に伴い、水素および過酸化水素量が増加した。放電に寄与する電荷量も併せて増加していることから放電プラズマの時間的密度 (発生回数) およびプラズマのエネルギー密度が増加したことによって水素の生成が促進されたと考える。また、水素および過酸化水素の生成割合も大きく変化することなく、水素: 過酸化水素 = 2 : 1 で推移していることが分かる。

水素生成に必要なエネルギー効率について、ナノ秒パルス電源の最終段のキャパシタのエネルギーおよび、放電によって生成された水素量を用いて検討を行った。その結果、従来の放電プラズマを用いた方法と比較するとエネルギー効率の改善は見られたが、本研究の最終的な水素生成効率は目標値である約 500 kWh/Nm<sup>3</sup> を達成することができなかった。

##### (2) nsPMD の放電機構を解明するために、精密な電圧電流計測による nsPMD の特性解明

nsPMD 生成時の電流値を時間積分することにより放電に寄与した電荷量を算出した。その結果、印加パルス電圧の増加に伴い、電荷量が増加することが確認された。また、nsPMD は気液混相流

場の気相部にて生成されており、間欠的に放電が形成されていることが確認された。先行研究より、ストリーマ放電の初期形態（1次ストリーマ）において水素の解離が促進されていることが示唆されている。詳細な時間分解による放電様の観測は行われていないが、本研究での電流波形より、ストリーマ放電の初期状態での放電が行われていると推測される。このことから、本研究では、次のプロセスによって水を原料として水素が生成されていると考察する。



このプロセスは、(1) の水素生成量と過酸化水素生成量の比率とほぼ一致している。このことから、放電プラズマを用いた水を原料とした水素生成は電界によって加速された高エネルギー電子による水分子の解離によって行われている可能性が高いことが示唆された。なお、当初の計画では発光分光法を用いて放電の電子温度の計測を行う予定にしていたが、放電時に発生するノイズを除去することができず、電子温度の算出までには至らなかった。電子温度などの情報は反応プロセスを解明するためには必要であるため、今後ノイズ除去やシールドの検討などの対策を行っていききたい。

### (3) 水素製造用全固体ナノ秒パルス電源の開発

アバランシェトランジスタを用いて立ち上がり時間 2 ns、最大値 330 V の高速高電圧パルス電圧を生成し、これを市販の SiC-MOSFET のゲート信号として印加した。その結果、立ち上がり約 5 ns でのスイッチングが確認され、これは仕様書 (19 ns) 以上のスイッチングが可能となることが示された。本研究期間内では、水素生成特性までを調べるに至らなかったが、今後は本電源を用いた水素生成を行っていく予定である。

#### ・ まとめ

本研究期間においては、次のことが明らかにされた。

- ① 光造形 3D プリンタを用いて新しく nsPMD デバイスを開発した。
- ② nsPMD デバイスを用いて水素生成を確認し、印加電圧およびパルス繰り返し数などの諸量を変化させたときの水素生成特性を明らかにした。
- ③ 放電特性より、電界によって加速された高エネルギー電子が水の解離を生じ、水を原料として水素が生成されることが確認された。
- ④ 本研究による水素生成に必要なエネルギー効率は十分ではないことが分かった。

今回の成果を踏まえ、放電部の幾何学構造や放電プラズマの生成方法を再検討し、効率的な水素生成法を開発する。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 猪原 武士, 井上 伶, 長田 秀夫, 柳生 義人, 大島 多美子, 篠原 正典, 川崎 仁晴
2. 発表標題 微細流路内ナノ秒パルス放電プラズマによる水を原料とした水素生成機構の検討
3. 学会等名 応用物理学会九州支部学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takeshi Ihara, Ryo Inoue, Hideo Nagata, Yoshihito Yagyū, Tamiko Oshima, Masanori Shinohara and Hiroharu Kawasaki
2. 発表標題 Hydrogen Production from Water by Nanosecond Pulsed Discharge in Microchannels
3. 学会等名 The 11th Asia-Pacific International Symposium on the Basic Applications of Plasma Technology (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 猪原 武士, 柳生 義人, 大島 多美子, 篠原 正典, 川崎 仁晴
2. 発表標題 極短パルスマイクロ放電プラズマリアクターの開発
3. 学会等名 2019年静電気学会九州支部・第413回生存圏シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 猪原武士, 柳生義人, 大島多美子, 川崎仁晴
2. 発表標題 気液混相流内ナノ秒パルス放電を用いた水素生成における生成エネルギー効率
3. 学会等名 応用物理学会 九州支部学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 猪原武士
2. 発表標題 パルスパワー技術による持続可能な水素発電への応用
3. 学会等名 第11回九州パワーアカデミー研究部会シンポジウム
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------