

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 13 日現在

機関番号：17401

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2009～2013

課題番号：21246047

研究課題名(和文) ナノ秒パルス放電プラズマによる環境軽負荷プロセスの実現

研究課題名(英文) Environmental process using nano-seconds pulsed discharge plasma

研究代表者

浪平 隆男 (Namihiro, Takao)

熊本大学・パルスパワー科学研究所・准教授

研究者番号：40315289

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 36,000,000円、(間接経費) 10,800,000円

研究成果の概要(和文)：研究代表者である浪平独自の提案技術であり、高いエネルギー効率でのプロセス構築が期待される「ナノ秒パルス放電」について、本研究では、その物性を把握するとともに、その高エネルギー効率化(省エネルギー化)要因を明らかにした。その結果として、企業とのナノ秒パルス放電の産業応用に関する共同研究が数多くスタートし、その実用化へ向けた活動が着実に進展している。

研究成果の概要(英文)：The nano-seconds pulsed discharge was developed by T. Namihiro and it has been expected as one of the promised plasma process with the higher energy efficiency. In the research project, the physical and the chemical properties of the nano-seconds pulsed discharge become clear. In addition, it was also clear why the nano-seconds pulsed discharge has higher energy efficiency for the ozone generation, exhaust gas treatment and so on. As the results of the project, recently, some companies have started the application research using the nano-seconds pulsed discharge.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電力工学・電力変換・電気機器

キーワード：ナノ秒 パルス 放電 プラズマ

1. 研究開始当初の背景

大気圧非熱平衡プラズマは、その高い化学活性ゆえ「窒素酸化物 (NOx) や硫黄酸化物 (SOx)、揮発性有機化合物 (VOCs)、ダイオキシンなど大気環境汚染物質の分解」並びに「次世代の酸化剤として期待されているオゾンの生成」法として注目されている。この大気圧非熱平衡プラズマは種々の電氣的放電により形成されるが、それらは原理的に、「金属電極間へ絶縁体 (誘電体) を挿入することで受動的にアーク放電 (熱平衡プラズマ) への移行を防止する誘電体バリア放電 (沿面放電や誘電体ペレット放電を含む)」と「金属電極間への印加電圧を制御することで能動的にアーク放電への移行を防止するパルス放電」の2種類へ大別される。

代表者である浪平は、これまでに電極間注入エネルギーの非熱平衡プラズマ形成に対する高効率運用が期待できるパルス放電法について研究を進めてきており、その成果として、金属電極間への高速な立ち上がり並びに立ち下り時間 (現状は 2 ns) 及び数ナノ秒の持続時間 (現状は 5 ns)、100 kV 超の過電圧を印加することで得られる放電が、非熱平衡プラズマの形成エネルギー効率において誘電体バリア放電法を凌駕することを実証し、その放電を「ナノ秒パルス放電 (nano-seconds pulsed discharge)」と命名した。

この「ナノ秒パルス放電」は、初公表した 2006 年開催の第 1 回ユーロ・アジアパルスパワー会議 (1st Euro-Asian Pulsed Power Conference) においては、その将来性及び飛躍性に対して高い評価を受けて Outstanding Young Researcher Award を受賞し、2008 年度開催の第 2 回ユーロ・アジアパルスパワー会議 (2nd Euro-Asian Pulsed Power Conference) においては、その有効性実証に関する講演を依頼されるなど、国際的に広く認知され、非常に高い評価を受けている。また、国内においても、電気学会誌への特集記事「大気圧プラズマの生成と応用」やプラズマ・核融合学会誌への講座記事「大気圧プラズマをつけてみよう」、電気学会基礎・材料共通部門誌への解説記事「ナノ秒パルス放電プラズマの特性とその応用展開」の掲載、及び応用物理学会九州支部シンポジウムや電気学会全国大会シンポジウム (平成 21 年 3 月開催) での講演依頼など近年注目を集めている。

本研究では、実用プロセスとして非常に高いポテンシャルを有する「ナノ秒パルス放電」に関して、その物理特性の把握や新規応用先の探索など科学的及び工学的知見を深化させ、その知見を持って実用化への後押しとする。

2. 研究の目的

通常、パルス放電は、図 1 のフレーミング及びストリーク撮影像に示されるように、

「ストリーマヘッドの金属電極間進展 (ストリーマ放電)」と「ストリーマヘッドの接地電極への到達にともなう電極間での全体放電 (グロー様放電)」の 2 つの放電にて構成される。一方、代表者である浪平の提案している「ナノ秒パルス放電」は、図 2 のフレーミング及びストリーク撮影像に示されるように、ストリーマ放電のみで構成される放電であり、金属電極間への印加電圧の「高速な立ち上がりや数ナノ秒の持続時間による過電圧印加」、及び「高速な立ち下りによるグロー様放電への移行防止」がそれを可能にしている。これまでの「ナノ秒パルス放電」に関する研究は、パルス線路方式のナノ秒パルス電源を用いたその形成過程及び一酸化窒素処理やオゾン生成を通じたその非熱平衡プラズマ形成能力の把握が中心であった。本研究では、「ナノ秒パルス放電」に関する科学的・工学的知見を得ることで、そのプロセス実用化を後押しする。

ナノ秒パルス放電は代表者である浪平独自の提案技術であり、このナノ秒パルス放電に関する科学的及び応用的探究に基づく研

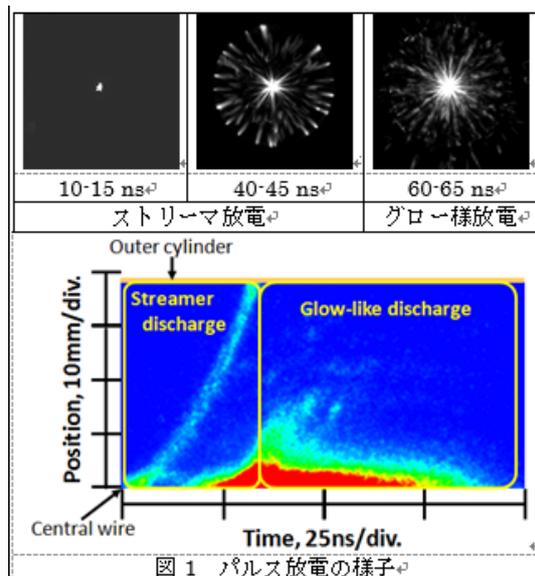


図 1 パルス放電の様子

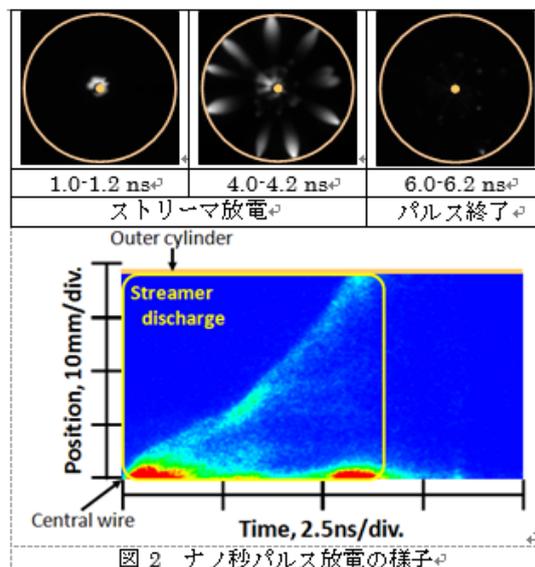


図 2 ナノ秒パルス放電の様子

究例はこれまで皆無である。本研究成果は、ナノ秒パルス放電の科学を創生するとともに、排気ガス浄化やオゾン生成などのプロセスに対して、高エネルギー効率化（省エネルギー化）及びその学術的裏付けを与えることで、その実用化への橋渡しとなる。また、ナノ秒パルス放電は最も効率の高い非熱平衡プラズマ形成法であり、本研究グループは非熱平衡プラズマの応用に関する国際的先導拠点となり得る。更に、10 mm/ns という超高速にて移動するストリーマヘッドの諸特性を計測するシステム及びその技術は、代表者の研究室を世界における超高速放電・プラズマ発光現象の観測拠点として認知させることとなる。

3. 研究の方法

本研究では、「ナノ秒パルス放電」を「つくる」、「はかる」、「つかう」の3つの観点より次の事項について科学的・工学的に探究することで、ナノ秒パルス放電プラズマプロセスの実用化を検討する際の懸案事項となる「信頼性・安定性」、「性能保証」、「将来性」に対する3つの不安を払拭する。

- ✓SOS (Semiconductor Opening Switch) 方式パルス電源による「ナノ秒パルス放電」の形成
- ✓「ナノ秒パルス放電」により形成される各種ラジカル (O_3 , OH , O , $N_2(A)$) の生成効率の確認
- ✓ストリーマヘッドの電極間進展へ特化した数値計算コードの開発
- ✓「ナノ秒パルス放電」プラズマの酸化・還元能の評価
- ✓「ナノ秒パルス放電」プラズマの一酸化窒素処理及びオゾン生成、その他への適用性探

4. 研究成果

図3に、SOSと可飽和トランスを用いた高電圧パルス発生回路を示す。一次側回路は、高電圧直流電源、キャパシタ C_f 、インダクタ L_f で構成されている。二次側回路は、キャパシタ C_r 、インダクタ L_r 、SOSを5直列2並列で構成している。一次側と二次側の回路は、ギャップスイッチ S_r もしくは可飽和トランスにより結合されている。始めに、 C_f を充電し、ギャップスイッチが導通すると、 C_f の放電電流が流れる。 C_f の放電電流が、可飽和トランスもしくは C_r および L_r を経て、SOSに順方向電流として流れ、SOSの接合面にキャリアを蓄積する。可飽和トランスの飽和もしくはスイッチ S_r を閉じることで、一次側と二次側の回路が切り離される。 C_r の放電により、SOSに逆方向電流が流れ、SOSに蓄積されていた少数キャリアが消滅したとき、急激な電流遮断が生じる。それに伴い、パルス電圧 V_{out} が出力される。SOSに流れる電流と端子間への出力電圧の様子を図4に示す。出力パルスの半値幅は12 nsとなる。

本電源の特徴として、回路のインダクタン

スやキャパシタンスを変化することで、容易にパルス幅や電圧の立ち上がり時間を変化できることが挙げられる。ナノ秒パルス放電の特徴は印加電圧の立ち上がり時間で、進展速度や先端電界や平均電子エネルギーが変化することとなる。図5に、一次側と二次側の回路パラメータを変化させたときの出力電圧波形を示す。16.5 kVの出力に対して、回路パラメータを変化させることで、立ち上

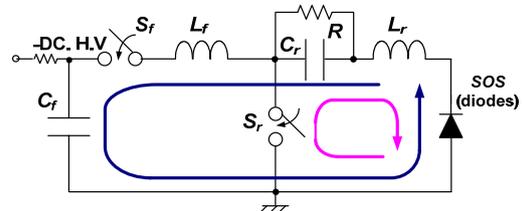


図3 ダブルインダクティブエネルギー蓄積システム型パルス電源

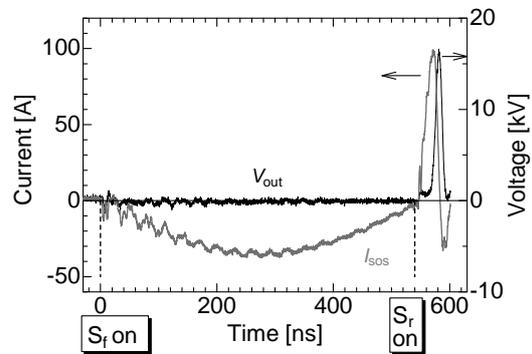


図4 ダブルインダクティブエネルギー蓄積システム型パルス電源の出力 ($C_f=C_r=2.7$ nF, $L_r=1.0$ μ H)

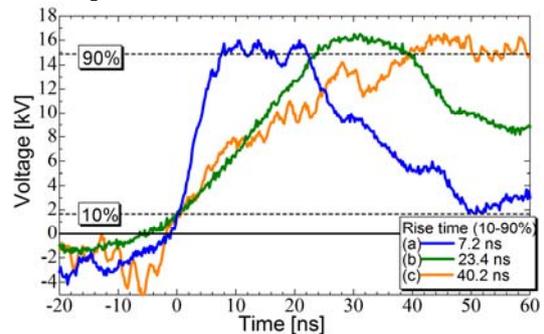


図5 回路パラメータの電圧に対する影響 (a: 2 and 0.2 nF, 2 and 0.1 μ H; b: 2 and 2 nF, 2 and 8 μ H; c: 2 and 2nF, 10 and 4 μ H)

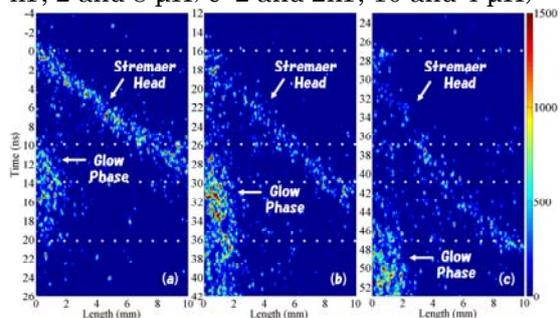


図6 印加電圧立ち上がり時間の差異による放電ストリーク像 (a: 7.2 ns, b: 23.4 ns, c: 40.2 ns)

がり時間が変化している様子がわかる。このときのストリーマの進展の様子を、図6に示す。電圧の立ち上がり時間が短くなることでストリーマの進展速度が増加していることがわかる。立ち上がり時間が 7.2, 23.4, 40.2 ns に対して、ストリーマの平均進展速度はそれぞれ 0.92, 0.79, 0.49 mm/ns となる。

図7に、パルス幅を 20~400 ns で変化させてストリーマ放電を発生し、様々なラジカルの生成エネルギー効率を測定した結果を示す。ラジカルは種類に応じて、レーザー誘起蛍光法、吸収法、発光分光法で測定した。パルス幅が長いほど、ラジカルの生成効率が低下していることが分かる。詳細に調べた結果、ラジカルは主に一次ストリーマ、あるいは二次ストリーマの前半部分で生成されており、二次ストリーマの後半部分では生成効率が極めて低いことが分かった。ナノ秒パルス放電は、二次ストリーマよりも一次ストリーマのラジカル生成効率が高いという仮定に基づいており、その一部が正しいことが定量的に示された。

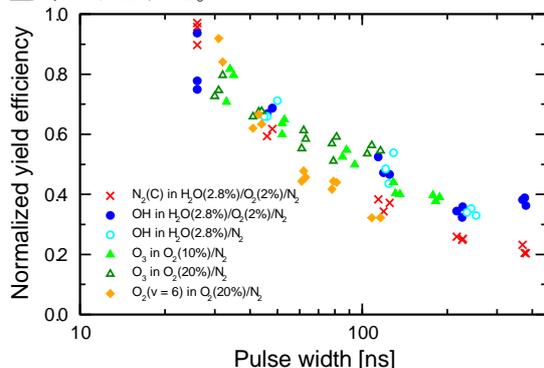


図7 パルス幅と各種ラジカルの生成エネルギー効率

図8に、平行平板電極間へ形成されるストリーマの挙動に関するシミュレーションを行う際に使用した一次元モデルを示す。本モデルでは、図8に示されるように、ストリーマ半径 r_s を一定値と仮定し、ストリーマは一方方向 (z 方向) のみに進展するものとしている。本手法では、荷電粒子の輸送は完全に一次元で扱うのに対し、電界については図1の各ディスク内の体積電荷、及び、この映像電荷が z 軸上に形成する電界を重ね合わせることで得られ、ここにストリーマ半径の影響が反映される。ストリーマの半径は、代表的な値として観測されている 100 μm とした。支配方程式は電子、及び、正負イオンに対する密度連続式であり、ストリーマヘッドでの電子ソースとして光電離を考慮している。また、荷電粒子の輸送、及び、電子衝突による電離反応や励起、解離反応については局所電界近似を仮定している。そのため、対象となるガスに対し、事前に換算電界 E/N の関数として電子に関する各種輸送パラメータをボルツマン方程式より計算しており、今回、電極間距離は 1 cm に固定している。

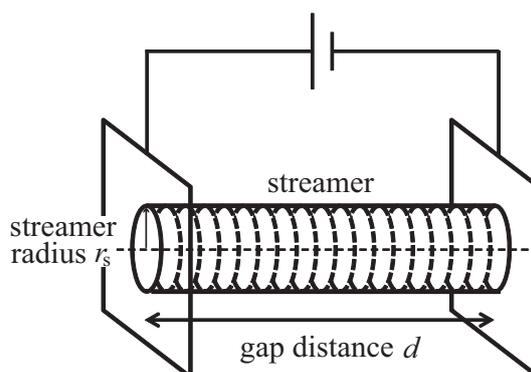


図8 ストリーマの一次元モデル

図9に、電極間滞在ガスを乾燥空気とし、波頭 40 kV の矩形波を印加した際の陰極向きストリーマの進展挙動を示す。ここで、矩形波とは印加電圧の立ち上がり dV/dt が無限大に相当することを意味する。図9より、ストリーマヘッドは、進展とともに、電界が大きくなり、最終的には 1,000 Td を超える高電界になっている。電子密度も、電界と同様に、進展とともに大きくなり、最終的には 10^{15} cm^{-3} オーダーに達している。なお、ストリーマの進展速度は、印加電圧とともに増した。また、陽極向きストリーマの進展についても、同様のシミュレーションを行ったが、こちらは光電離を考慮せずとも、陰極向きストリーマとほぼ同様の結果が得られており、ストリーマの極性による進展原理の差異が明らかとなった。

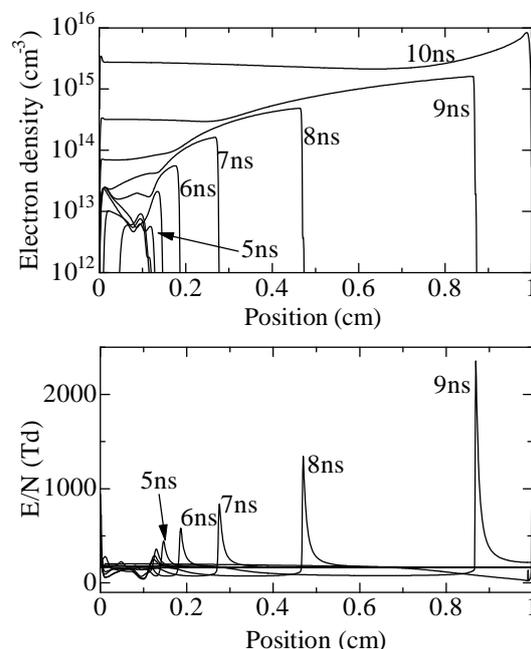


図9 乾燥空気、40 kV/cm 電界環境における陰極向きストリーマの進展

図10に、シミュレーションより得られた陰極向きストリーマにおけるストリーマヘッドの電界と電荷密度、及び、ストリーマ進展速度の関係を示す。図10より、印加電圧に依存せず、ストリーマヘッドでの電荷密度に

比例して、ストリーマヘッドの電界とその進展速度が決定されている。これは、ナノ秒パルス放電による高電圧印加は、高密度のチャネル形成により高速で進展するストリーマを誘発することを意味しており、このような高電界がラジカル生成に有利ならば、ラジカル生成効率が高くなることが裏付けられる。なお、陽極向きストリーマにおいてもほぼ同様の議論が可能であった。

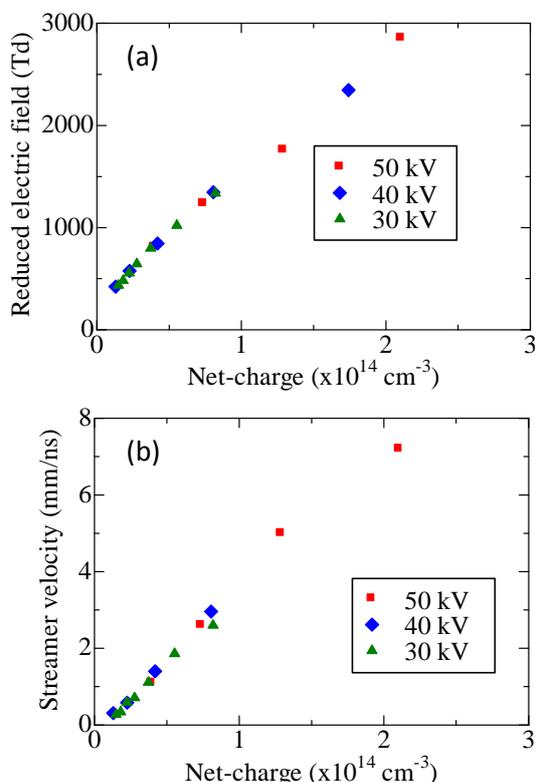


図 10 陰極向きストリーマのヘッドにおける電荷密度と電界、電荷密度とその進展速度の関係

表 1 に、シミュレーションより得られたナノ秒パルス放電による O ラジカル生成効率を示す。これより高電圧印加時に O ラジカルの生成効率が高く、また、陰極向きと比較して、陽極向きストリーマがわずかではあるが O ラジカルの生成効率が高いことも確認された。しかしながら、乾燥空气中オゾン生成におけるナノ秒パルス放電の他の放電法に対する優位性は大きくなく。酸素中オゾン生成では大きく O ラジカル生成効率が改善される。図 11 は、シミュレーションより得られた乾燥空气中、及び、酸素中でのオゾン生成時における電子のエネルギー消費割合を表わしている。ストリーマ生成に寄与する高電界域において、乾燥空气中では必ずしも O₂ の解離に使われるエネルギーの割合が高くないのに対し、酸素中では比較的高い状態が維持されている。よって、高電界域でのラジカル生成に効率的にエネルギーが注入されるのがナノ秒パルス放電が魅力であるの一つであると考えられる。

表 1 O ラジカルの生成効率 (括弧内は O ラジカルが全て O₃ になると仮定した時の O₃ 生成効率)

印加電圧 (ガス)	陰極向きストリーマ	陽極向きストリーマ
30 kV (dry air)	$1.9 \times 10^{17} \text{ J}^{-1}$ (54 g/kWh)	$2.6 \times 10^{17} \text{ J}^{-1}$ (74 g/kWh)
40 kV (dry air)	$2.5 \times 10^{17} \text{ J}^{-1}$ (71 g/kWh)	$2.8 \times 10^{17} \text{ J}^{-1}$ (72 g/kWh)
50 kV (dry air)	$2.8 \times 10^{17} \text{ J}^{-1}$ (82 g/kWh)	$2.9 \times 10^{17} \text{ J}^{-1}$ (85 g/kWh)
40 kV (O ₂)	$1.3 \times 10^{18} \text{ J}^{-1}$ (363 g/kWh)	

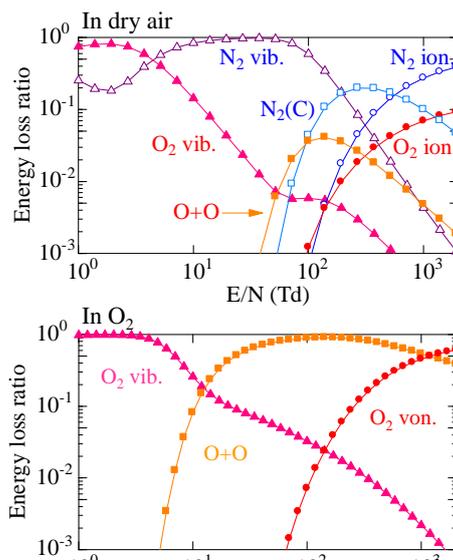


図 11 各換算電界での電子のエネルギー消費割合

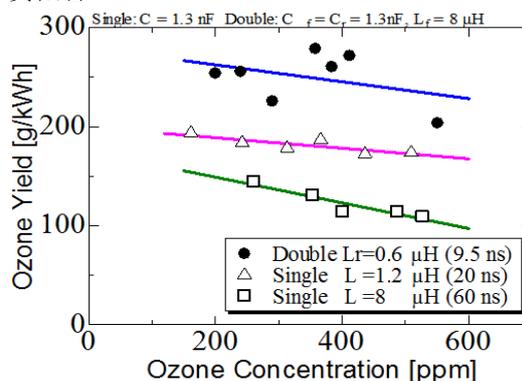


図 12 放電プラズマ酸化能のパルス幅依存性

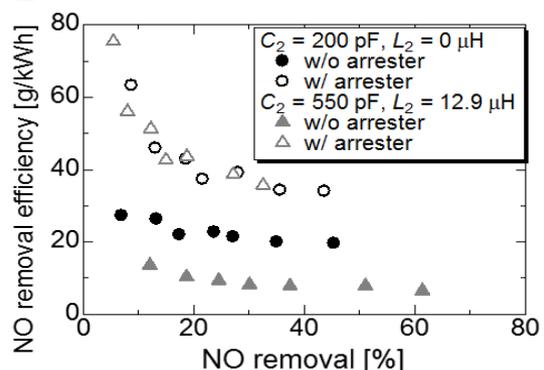


図 13 放電プラズマ還元能のパルス幅依存性

ナノ秒パルス放電プラズマをプロセスへ利用する場合、ほとんどのプラズマ・ケミカルプロセスでは、電子衝突で生成されるOやOHおよびNラジカルなどによる酸化・還元反応が利用される。そこで、Oラジカルの生成指標であるオゾン(O₃)生成のエネルギー効率でナノ秒パルス放電プラズマの酸化能を、またNラジカルの指標であるNOの還元除去効率で還元能を評価した。図12に酸化能の評価結果を、また、図13に還元能の評価結果を示す。いずれの効率も、短パルス化による工場が確認できる。酸化能の効率は、パルス幅を60から9.5nsと圧縮することで、約2倍になっている。還元能も、酸化能同様に、パルス幅の短縮で、効率は大幅に改善されていることがわかる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計77件、全て査読あり)

- ① 澁田哲, 王斗艶, 浪平隆男, 秋山秀典, “ナノ秒パルス放電方式オゾン発生におけるマルチワイヤ電極の特性”, 静電気学会誌, Vol.37, No.1, pp.2-7, 2013.
- ② 角田貴俊, 高木浩一, 八木一平, “高速リカバリーダイオードと可飽和コア併用型ナノ秒パルス電源の開発とアレスタによるオゾン生成効率の向上”, 放電研究, Vol.56, No.2, pp.17-12, 2013.
- ③ I. Yagi, S. Okada, T. Matsumoto, D. Wang, T. Namihira and K. Takaki, “Streamer propagation of nanosecond pulse discharge with various rise times”, IEEE Transactions on Plasma Science, Vol.39, No.11, pp.2232-2233, 2011.
- ④ A. Komuro and R. Ono, “Two dimensional simulation of fast gas heating in an atmospheric pressure streamer discharge and humidity effects”, Journal of Physics D, Vol.47, No.15, pp.155202, 2014.
- ⑤ D. Wang, T. Namihira, H. Akiyama, “Propagation of streamer heads during a 5 nanosecond pulsed discharge”, IEEE Transactions on Plasma Science, Vol.39, No.11, pp.2268-2269, 2011.

[学会発表] (計97件)

- ① R. Ono, “Production and reaction processes of radicals in pulsed streamer discharge studied by laser diagnosis and numerical simulation,” Japan-Australia commemorative workshop, 25 Years of Collaboration in Gaseous Electronics and its Applications, p.28, Canberra, Australia, 2013.06.23-25.
- ② T. Namihira, D. wang, T. Matsumoto, S. Okada, and H. Akiyama, “Different discharge phenomena between general and nano-second pulsed discharges”, 7th International Symposium on

Non-Thermal/Thermal Plasma Pollution Control Technology & Sustainable Energy, St. John's, Canada, pp.CD-ROM, 2010.06.21-25.

[図書] (計5件)

- ① T. Matsumoto, D. Wang, T. Namihira, H. Akiyama, “Chapter9 – Non-thermal plasma technic for air pollution control”, “Air Pollution - A Comprehensive Perspective” edited by Budi Haryanto, ISBN 978-953-51-0705-7, InTech, pp.215-234, 2012.
- ② D. Wang, T. Namihira, H. Akiyama, “12-Pulsed discharge plasma for pollution control”, “Air Pollution” edited by Vanda Villanyi, ISBN 978-953-307-143-5, SCIYO.COM, pp.265-287, 2010.

[産業財産権]

○出願状況 (計2件)

名称: パルス発生装置

発明者: 浪平隆男、王斗艶

権利者: 国立大学法人熊本大学

種類: 特許

番号: 特願 2013-117345

出願年月日: 2013年6月3日

国内外の別: 国内

6. 研究組織

(1)研究代表者

浪平 隆男 (NAMIHIRA, Takao)

熊本大学・パルスパワー科学研究所・准教授

研究者番号: 40315289

(2)研究分担者

高木 浩一 (TAKAKI, Koichi)

熊本大学・工学部・教授

研究者番号: 00216615

朽久保 文嘉 (TOCHIKUBO, Fumiyoshi)

首都大学東京・理工学研究科・教授

研究者番号: 90244417

小野 亮 (ONO, Ryo)

東京大学・新領域創成科学研究所・准教授

研究者番号: 90323443

王 斗艶 (WANG, Douyan)

熊本大学・大学院先端機構・准教授

研究者番号: 30508651