

## 極性反転高速繰り返しパルス放電の排ガス処理への適用\*

# High Speed Repetitive Discharges Produced by a Polarity-Reversed Traveling Pulse for Gas Cleaning System

門脇 一則・山賀 圭介・西本 栄・木谷 勇\*\*

kazunori KADOWAKI, Keisuke YAMAGA,  
Sakae NISHIMOTO and Isamu KITANI\*\*

We propose a new method for gas cleaning system with repetitive discharges produced by reciprocal voltage pulse in a coaxial cable. When the cable is charged and then grounded at one end of the cable without any resistance, a reciprocal traveling voltage pulse is repeatedly applied to a barrier-type reactor at the opposite end with a change in its polarity. High speed photographs of discharge light showed that the voltage oscillation caused by one switching induced alternate propagation of positive and negative streamers with a very high frequency. The minimum charging voltage which has 50% probability for streamer propagation with the reciprocal pulse generator became much smaller than that with a self-matched pulse generator having a matching resistance. The reason for the difference of the minimum charging voltage was explained by the space charge effect. In the case of reciprocal pulse, a large number of space charges were accumulated on the barrier surface during the cable charging, so that the field strength in the gap was strongly enhanced after the polarity reversal. In a test of NO removal from a flue gas, high NO removal ratio could be obtained under the low charging voltage with the reciprocal pulse generator.

**Key words:** NO<sub>x</sub> decomposition, polarity reversal, repetitive pulse, directly grounding, streamer discharge

## 1. はじめに

発電所やディーゼル自動車などから排出される燃焼ガス中に含まれる窒素酸化物(NO<sub>x</sub>)などの有害物質を化学的手法のみで処理する場合、設備の大型化が避けられない。この問題を解決するために、放電プラズマ空間内で有害物質の酸化を効率よく行うことにより、処理設備を小型化する方法が検討されている。有害物質の酸化処理に対するエネルギー効率を高めるには、電子温度のみが高く分子温度は低いといういわゆる非平衡プラズマを作り出すことが重要である。非平衡プラズマ状態のもとで十分に高い電子温度を維持するために、ナノ秒領域で急激な電界の変化を引き起こす高電圧パルスを繰り返し印加するという手法が用いられており、その有効性は既に認められている[1]-[3]。多量に排出される有害ガスの処理効率を高めるためには、パルス放電の発生周期をどのようにして高めるかが重要となる。従来のパルス電圧発生装置の場合、装置に蓄積されたエネルギーを1回のスイッチングにより短時間で取り出すことにより、1発の高電圧パルスが出力される。つまり、放電の発生周期を高めるためには、スイッチング周波数の向上が必要である。最近では、高電圧用半導体スイッチを用いてスイッチング周波数を飛躍的に高める方法が実用化されているものの、装置の複雑化および高価格化が問題として残っている[4]。

\* 本稿は、"Repetitive Discharges in a Corona Reactor Produced by a Reciprocal Traveling Voltage Pulse in a Coaxial Cable", Jpn. J. APPL. Phys., Vol42.No6B., pp.L688-L690(2003)を書き改めると共に、加筆されたものである。

\*\*愛媛大学工学部 電気電子工学科

\*\*Department of Electrical and Electronic Engineering

原稿受理 平成15年10月30日

これまで我々は、これらの問題を解決するためのひとつの方法として、ケーブル内進行波の往復現象を利用した極性反転高速繰り返しパルス放電の排ガス処理への適用を提案してきた<sup>[5][6][7]</sup>。この繰り返し放電は、充電された同軸ケーブルの一端を1回短絡した時に正負のナノ秒パルス電圧が、開放端側の電極に繰り返し印加されるという原理に基づいている。すなわち、スイッチング周波数が低くても単位時間当たりの放電発生回数を高めることができるという点がひとつの特徴である。本報は、本手法の有効性を明らかにすることを目的として、これまでに行われた放電光の観測結果およびNO酸化処理率の測定結果についてまとめたものである。

## 2. 極性反転繰り返しパルスの発生原理

図1に極性反転繰り返しパルス発生装置の概要を示す。本装置は同軸ケーブル(フジクラ(株)製:RG-17A/U, 特性インピーダンス $52\Omega$ , 長さ35m), 短絡用スイッチおよび直流電源を主な構成要素としている。本装置の特色は、このように単純な構造であるにもかかわらず、たった1回のスイッチングによりパルス電圧を繰り返し発生させ得るという点である。しかもそのパルスの最大振幅は充電電圧の2倍となるため、低い充電電圧でも放電を引き起こすことができる。 $-V_0$ の電圧で充電されたケーブルの内部導体と外部導体を短絡した後の進行波の伝搬状態を図2に示す。図2(a)は短絡した瞬間の状態であり、進行波はケーブルの左右方向に伝搬を開始する。この時短絡側では負の全反射が起き、開放端側では正の全反射が起きるので、図2(b)に示すように短絡側から開放端側に向かって逆極性の進行波が伝搬する。図2(c)から(d)への移行において、反転した進行波は開放端に到着し、さらにそこで正の全反射が起きるため、開放端での内部導体と外部導体の電位差は $-V_0$ から $+V_0$ に反転する。開放端側から短絡側へ向かう進行波は、短絡部に到達したときに再び負の全反射を起こす。つまり進行波がケーブル内を往復する毎に開放端側の電圧の極性が反転することになる。さらにこの原理において注目すべき点は、 $S_2$ の切り替えにより、終端部に直結された電極に対向する電極の電位を $-V_0$ に維持しておくこと、電極間の電位差は0から $+2V_0$ へと急上昇し再び0へ戻るという変化を繰り返すことができる点である。

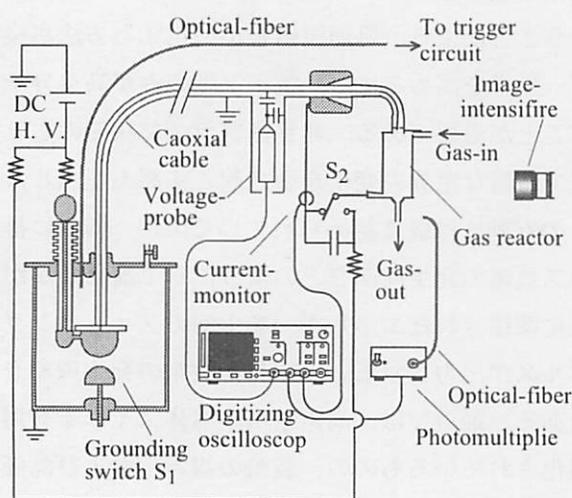


図1 極性反転繰り返しパルス発生装置

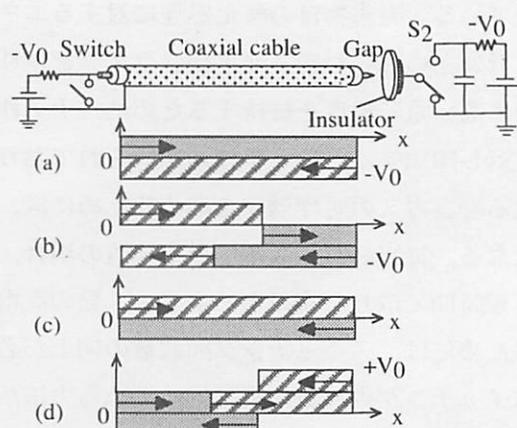


図2 進行波の伝搬モデル

本研究においては、極性反転繰り返しパルス発生装置との比較のために自己整合型単一パルス発生装置を用いての実験も行われた<sup>18)</sup>。自己整合型単一パルス発生装置の特徴は、ケーブルの内部導体の一端が整合抵抗 $52\Omega$ を通して接地されていることと、直流電圧が外部導体側に印加される点である。すなわちケーブル充電後のスイッチ投入によりケーブル内部の電位は急激に上昇し、進行波が左右に伝搬する。しかしこの場合、 $52\Omega$ 側に向かう進行波は反射しないため、結果として1発のパルス電圧が反応器に印加されるにとどまる。図3

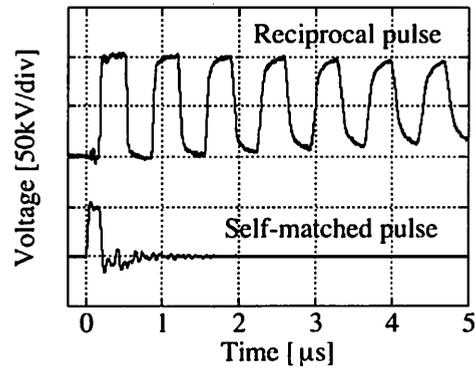


図3 パルス電圧波形（上：極性反転繰り返しパルス，下：自己整合型単一パルス）

は、充電電圧が $-50\text{kV}$ に達した時点でスイッチが投入された場合の、反転繰り返しパルス発生装置の出力電圧波形と自己整合型単一パルス発生装置の出力電圧波形である。充電電圧は等しいにもかかわらず、反転繰り返しパルス発生装置の適用によりパルスが繰り返し印加されるのはもちろんのこと、個々のパルス波形の振幅および幅が、自己整合型のそれよりも2倍大きくなっているのがわかる。

### 3. 実験方法

#### (1) 繰り返し放電光の過渡的变化

前駆発光像観測システムを用いて、針電極から平板電極に向かって進展するストリーマ放電光の過渡的变化を観測した。先端の曲率半径が約 $10\mu\text{m}$ の木綿針と直径 $50\text{mm}$ のステンレス製円板よりなる電極が、所定のギャップ長に設定された状態でガラス製の反応器（内径 $190\text{mm}$ 、長さ $300\text{mm}$ ）内へ置かれた。さらに平板電極上に厚さ $3\text{mm}$ のポリテトラフルオロエチレン製の絶縁板を挿入し、パルス印加時における電極間での閃絡を防止した。窒素 $80\%$ 、酸素 $20\%$ の混合ガスが $0.1\text{MPa}$ で封入された反応器内での放電現象の光学的観測を行った。充電電圧の大きさや極性を変えながら、極性反転するたびに進展するストリーマの発光像を高速ゲート付きイメージンテンシファイア（浜松ホトニクス(株)：C2925-01）にてナノ秒領域で切り取った。スイッチギャップ間で生じる発光を光電子増倍管（浜松ホトニクス(株)：H5783）で電気信号に変換した後、遅延回路を用いて所定のタイミングでTTLパルス信号をイメージンテンシファイアに入力することにより高速ゲートを動作させ、望みの期間の発光像を得た。

#### (2) $\text{NO}_x$ 酸化処理率の測定

本実験で使用した同軸円筒型反応器には、内径 $17\text{mm}$ 、厚さ $1\text{mm}$ 、長さ $500\text{mm}$ のガラス管を使用した。また、内部線電極として直径 $1\text{mm}$ 、長さ $400\text{mm}$ のタングステン線を使用し、ガラス管の外周に配置された外部円筒電極として、直径 $35\text{mm}$ の銅メッシュを使用した。さらにガラス管と外部円筒電極との隙間には、バリア層の絶縁耐力を増強するためにシリコンオイルが満たされた。 $\text{NO}_x$ 酸化処理実験を行った時の条件を以下に記す。模擬排ガスとして、 $\text{NO}$ 、 $\text{N}_2$ および $\text{O}_2$ を、それぞれ $170\text{ppm}$ 、 $85\%$ および $15\%$ の比率で混合したものを使用した。反転繰り返しパルスと自己整合型単一パルスのいずれを用いた場合も、スイッチング周波数を $1\text{Hz}$ に固定した状態のもとで、充電電圧とガス流量をパラメータとして反応器通過後のガス中 $\text{NO}$ 濃度と $\text{NO}_2$ 濃度を測定した。濃度測定には $\text{NO}_x$ 検知管(ガス

テック (株) : NO.10)が用いられた。さらに、パルス印加時の電極間電圧および放電電流を、電圧プローブ(Tektronix(株) : P6015A)とカレントモニタ(Pearson(株) : Model2878)を用いて、デジタルオシロスコープ(Tektronix(株) : TDS7104)上で観測することにより、放電がどの程度繰り返されているのかを調べた。電圧と電流の波形から、反応器内で消費された放電エネルギーを計算した。

#### 4. 実験結果および検討

##### (1) 繰り返し放電光の過渡的变化

充電電圧を-20kVとして、30mmの電極間に極性反転繰り返しパルスを印加した場合における、最初の反転時に伸びる正ストリーマを、ゲート幅を変えながら撮影した結果を図4に示す。すなわちここで観測された像は-20kVから+20kVへの最初の反転にともない針電極から進展する正ストリーマの発光を捕えている。なおこれらの写真は、ひとつの放電現象を連続的に撮影したものではなく、実験を繰り返しながら、ゲート動作の条件を変えつつ撮影した結果を並べたものである。極性反転直後からチャンネル状の正ストリーマが針先より放射状に広がり、反転開始から40ns後には、絶縁板の表面まで到達している。一方、同様の充電電圧で自己整合型単一パルスを印加しても、図4に示されたような放電の広がりを観測することはできなかった。そこでストリーマの進展確率が50%となる時の充電電圧を比較したところ、反転繰り返しパルスのそれは自己整合型単一パルスのほぼ半分の値となった。このような差の生じた理由については、空間電荷効果と長時間印加の効果を用いて以下のように説明することができる。繰り返し反転パルスの場合、ケーブル充電中に針電極から放出され、バリア表面に堆積した負の空間電荷が初回極性反転の時点にそのまま残留しているため、空間電荷効果により反応器内の電界強度は高められ、その結果線電極からの正ストリーマの進展確率が高められる。また、単位時間あたりに電子雪崩の初期電子が生成される確率が一定であるならば、パルス幅が大きいほど放電が引き起こされる確率は上昇する。つまり反転繰り返しパルスの場合、これらふたつの効果により、低い充電電圧でもストリーマの進展が可能であると説明することができる。ここで注目すべきは、両者の差を静電エネルギーで比較すると、反転繰り返しパルスにおいてケーブルに蓄積されるエネルギーは、自己整合型パルスにおけるその4分の1程度ですむという点である。

充電電圧-20kVとして極性反転繰り返しパルスを印加した場合における、2回目の反転時に伸びる負ストリーマ像を図5に示し、3回目の反転時に伸びる正ストリーマ像を図6に示す。これらの撮影結

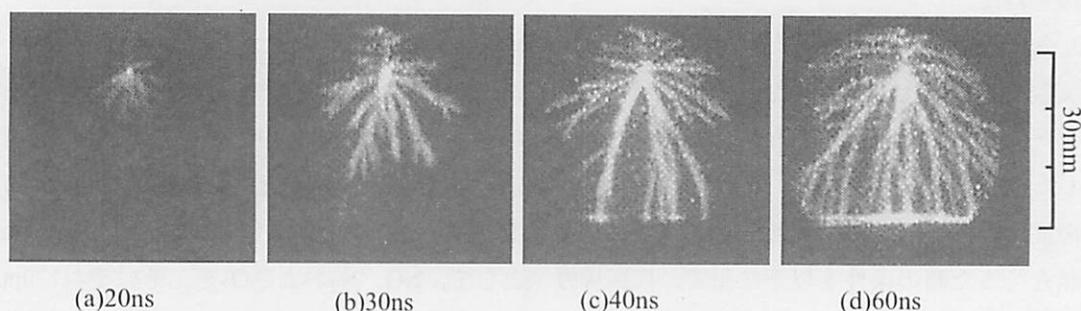


図4 初回反転時においてゲート幅を変えながら撮影された正ストリーマ像

果は、ストリーマ進展能力の極性間での差を明確に示している。すなわち正ストリーマはその先端の電界強度を高く維持したまま伸びやすい進展機構を有しているのに対し、負ストリーマの場合、電子雪崩により形成された多数の負電荷がストリーマ先端の電界強度を緩和するため、その進展能力は小さいことが図5と図6の比較から明らかである。

充電電圧を高く設定することにより、1回のスイッチングでストリーマ放電が繰り返し起きる回数は、当然ながら増加した。図7は、充電電圧-40kVにおける極性反転ごとの放電光を、約60nsのゲート幅で切り取ったものである。充電電圧が大きければ、極性にかかわらず反転の度に電極間に放電が広がっている。しかし、反転繰り返しの回数が少ない段階と10回以上の繰り返しを経た段階との間で放電光を比較したところ、明確な違いが認められた。図7の各写真による比較から明らかのように、初回や2回目の反転時においてはストリーマ状のチャンネルが放射状に広がっているのに対し、繰り返し回数が多くなった段階では、1本の太い放電路が電極間を橋絡し、さらにバリア表面に沿って放電路が伸びている様子が観測できる。この放電形態の変化の物理的過程については興味深い点であるが、その詳細は今のところよくわからない。

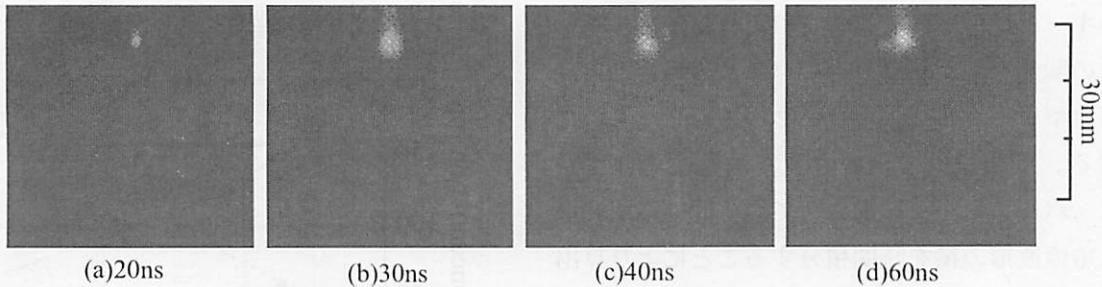


図5 2回目の反転時においてゲート幅を変えながら撮影された負ストリーマ像

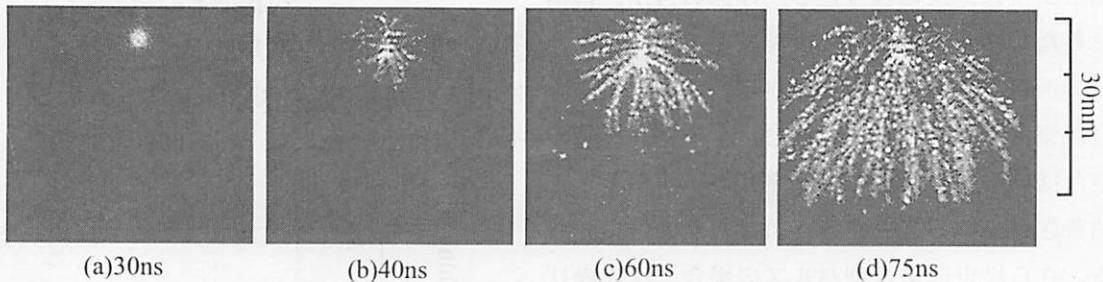


図6 3回目の反転時においてゲート幅を変えながら撮影された正ストリーマ像

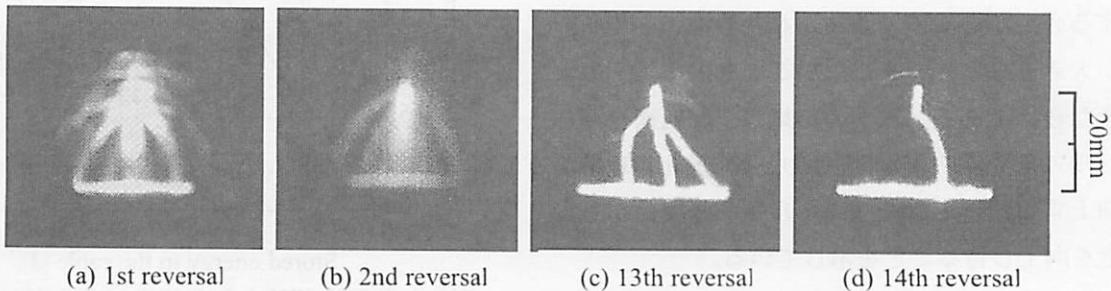
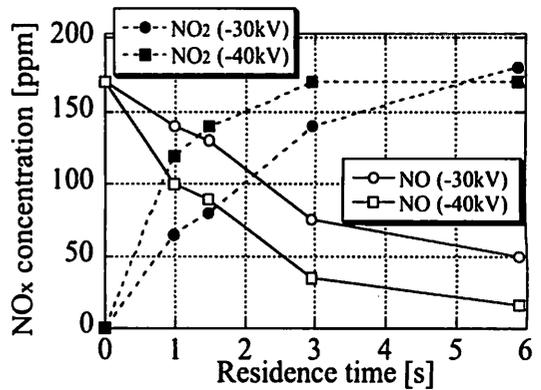


図7 反転繰り返し毎に撮影された放電光 (ゲート幅60ns一定)

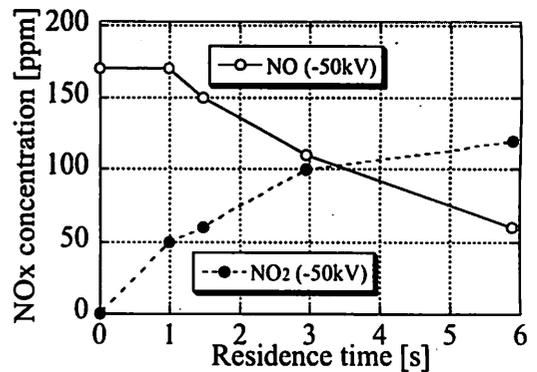
(2) NO<sub>x</sub>酸化処理率の測定

同軸円筒型反応器内で模擬排ガスが滞留する時間を変化させながら、反応器出口部でのNOおよびNO<sub>2</sub>濃度を測定した。各実験におけるガスの滞留時間は、反応器内部の容積とガス流量から計算により求められた。反転繰り返しパルスを印加した場合と、自己整合型パルスを印加した場合のそれぞれにおける滞留時間に対するNO濃度およびNO<sub>2</sub>濃度の関係を図8(a)(b)に示す。どちらのパルス電圧を印加した場合も、滞留時間が長くなるにつれてNO濃度は減少し、NO<sub>2</sub>濃度は上昇する傾向を示した。これはNOからNO<sub>2</sub>への酸化反応がパルス放電によって促進されたためである。ここで注目すべきは、反転繰り返しパルスの充電電圧は単一パルスのそれより低いにもかかわらず、放電の繰り返し効果により、高いNOの酸化処理率を得ることができるという事実である。

図9は、同軸ケーブルに蓄積された静電エネルギーと反応器内で消費された放電エネルギーとの関係を、反転繰り返しパルスの場合と自己整合型単一パルスの場合について示したものである。反応器内で消費された放電エネルギーは、パルス電圧が印加されている間の電圧波形と電流波形の積を時間積分することにより算出された。一方、充電エネルギーはケーブルの静電容量と充電電圧から求められた。図から明らかのように、反転繰り返しパルスの方が、蓄積されたエネルギーを効率よく放電エネルギーとして消費していることがわかる。このことは、自己整合型単一パルスの場合、ケーブル末端の整合抵抗の部分で多くのエネルギーが熱として消費されていることを考えれば当然の結果である。さらに自己整合型パルスの場合、反転繰り返しパルスにおけるような空間電荷による電界強調の効果が無いために、充電電圧を高く設定する必要があるため蓄積された静電エネルギーが大きくならざるを得ないことも効率低下の大きな要因である。以上の結果は、反転繰り返しパルス発生装置の適用により、NO酸化処理率が向上するだけでなく、エネルギー変換効率も大きく向上し得ることを示している。



(a) Reciprocal pulse generator



(b) Self matched pulse generator

図8 ガス滞留時間とNO,NO<sub>2</sub>濃度との関係 (a)極性反転パルス, (b)自己整合型単一パルス

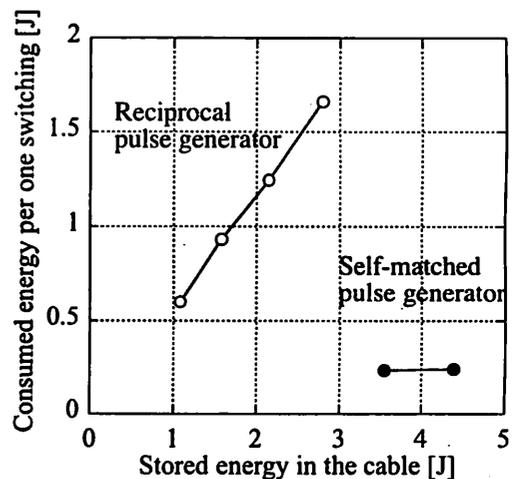


図9 装置に蓄積された静電エネルギーと反応器内で消費されたエネルギーの関係

## 5. まとめ

極性反転繰り返しパルス放電を用いた排ガス処理システムの開発を目的としてこれまでに行われてきた研究成果の概要を紹介した。高速ゲート付きイメージインテンシファイアを用いてストリーマ進展状態の過渡的变化を調べた結果、パルスの極性が反転するたびに電極間に放電が広がることを確認した。繰り返しの過程において、初期の段階では数多くの放電チャンネルが電極間に広がるものの、繰り返し数が10回を過ぎた頃から、放電チャンネルの数が減少していることがわかった。同軸円筒型反応器を用いて、NO酸化処理率の測定を行った結果、極性反転繰り返しパルスの適用により、比較的低い充電電圧でも、高いNO酸化処理率を得ることができることを明らかにした。今後は、本手法と化学的手法を併用した処理システムを構築し、高効率なNOxの完全除去技術の確立を目指して研究を進める。また本手法は、排ガス処理に限らず廃液処理等の分野への応用も十分可能であることから、パルス電圧が高速で繰り返し印加された時の液体中ストリーマの進展機構に関する基礎的研究も進める予定である。

## 謝 辞

本研究を進めるにあたり、同軸円筒型反応器の設計製作にご協力くださいました本学工学部機能材料工学科、青野宏通助教授に感謝の意を表します。実験に協力してくれた、本学工学部卒業生の川村幸司氏（現:ドコモエンジニアリング四国（株））に感謝の意を表します。

## 参 考 文 献

- [1] S. Matsuda and H. Nakano : "Control of NO<sub>x</sub> by Positive and Negative Pulsed Corona Discharge", IEEE Trans. on Ind. Appl., 26,2,pp.374-383 (1990)
- [2] B. Sun, M. Saito and J. S. Clements : "Use of a Pulsed High-Voltage Discharge for Removal of Organic Compounds in Aqueous Solution ", J. Phys. D: Appl.Phys., 32,pp.1908-1915 (1999)
- [3] G. Dinelli, L. Civitano and M. Rea : "Industrial Experiments on Pulse Corona Simultaneous Removal of NO<sub>x</sub> and SO<sub>2</sub> from Flue Gas", IEEE Trans. on Ind. Appl., 26,3,pp.535-541(1990)
- [4] F. Endo, M. Souda, C. Yamazaki, K. Okamura and K. Fukushima, " All-Solid-State Pulsed Power Modulator for High Power, High Repetition Rate Applications", Proc. 12<sup>th</sup> Int. Pulsed Power Conf., pp.1417-1420 (1999)
- [5] K. Kadowaki, S. Nisimoto and I. Kitani : "Repetitive Discharges in a Corona Reactor Produced by a Reciprocal Traveling Voltage Pulse in a Coaxial Cable", Jpn. J. APPL. Phys., Vol42.No6B., pp.L688-L690 (2003)
- [6] 門脇一則：「放電発生装置」，日本国特許，特願2002-346520
- [7] K. Kadowaki, S. Nisimoto and I. Kitani: "NO<sub>x</sub> Decomposition with Repetitive Discharges Caused by Reciprocal Voltage Pulse in a Coaxial Cable", Proceedings of 14th IEEE International Pulsed Power Conference (2003) (to be printed)
- [8] M. Ishii and H. Yamada, "Self-Matched High-Voltage Rectangular Wave Pulse Generator", Rev. Sci.Instrum., vol.56, ( no.11), pp.2116-2118, (Nov. 1985)