

大気圧パルス放電プラズマによる
窒素酸化物の制御

2005年3月

熊本大学大学院 自然科学研究科

王 斗艶

本論文の構成と内容

本論文は、パルスパワー電源を用いて排ガス中にパルスストリーマ放電を印加し、そこに生成された放電プラズマが排ガス分子と引き起こす化学反応を利用して、排ガスに含まれる有害な窒素酸化物をクリーンな窒素等に分解する研究についてまとめたものである。

第1章では、排ガスの現状およびパルスパワーを用いた排ガス処理の必要性について述べている。

第2章では、パルスパワー電源を設計・製作し、その出力特性を評価した。ここで、パルスパワーとは、電磁エネルギーを時間・空間的圧縮して蓄積し、それをパルス化した高いピーク値を有する電力として取り出したものである。したがって、パルスの時間幅をいかに短く、出力ピーク値をいかに効率よく高く導くかが重要な指標となる。

第3章では、製作した数機のパルスパワー電源を用いて、排ガス処理容器に誘起されるパルスストリーマ放電を観測することにより、ストリーマ進展に必要となる電界強度や進展速度を評価した。

第4章では、排ガスを模擬したガスを用いて、排ガスの分解に必要となるNラジカルの生成エネルギー効率、異なるNO_x排出源を考慮したNO濃度の違いによる排ガス処理への影響を調べた。また、比較的高濃度のNO_xを排出するディーゼルエンジンに対して、実際にディーゼル発電機を用いて、除去エネルギー効率を高めるために処理容器の最適化を図った。最後に、より高効率にNO_xを分解するために電源の極短パルス化・超高電圧化を行い、パルス幅7ナノ秒を有するパルス高電圧発生装置を開発し、そのNO_x処理実験結果を報告した。

一方、地球環境へ悪影響を及ぼす大気汚染物質の一つとして認知されてきたNOは、1998年にノーベル医学生理学賞を受賞したR. Furchgott, L. Ignarro, F. Muradらによって、生体内の血管内皮由来弛緩因子(EDRF: Endothelium derived relaxing factor)として発見され、以来NOは生理活性物質としての重要性が認識されるようになった。現在はNOの医学臨床応用として、肺動脈圧の低下を期待した吸入療法が検討されており、肺高血圧症、急性呼吸促迫症候群、重症呼吸不全などの治療法として実績があがりつつある。しかし、NOは厚生労働省の認可した医薬品ではないため、医療現場においては工業用の高濃度NOガスボンベが使用されている。NOは空気中への漏洩により人体へ有害な二酸化窒素(NO₂)へと容易に酸化する。そのため、NOガスボンベを用いた現NO吸入療法は、NO漏洩による重大医療事故につながる危険性を有する。

本論文の第5章では、安全なNO吸入療法の確立を目的として、高濃度NOガスボンベを用いない人工呼吸器の開発を行った。適時適量のNOを生成できる装置として、人工呼吸器組込型NO生成装置を試作し、本試作機が実用化へ十分な能力を有すること

を確認した。

第 6 章は本研究の総括であり、巻末には参考文献および謝辞を記している。

目 次

第 1 章 序論	1
1.1 酸性雨	1
1.2 窒素酸化物	1
1.3 硫黄酸化物	2
1.4 大気汚染に対する環境基準	2
1.5 既存の排ガス処理装置	3
1.5.1 排煙脱硝装置 (NO _x 処理)	3
1.5.2 排煙脱硫装置 (SO _x 処理)	4
1.5.3 電子ビーム照射法 (NO _x と SO _x の同時処理)	5
1.6 パルスパワーを用いた排ガス処理	5
第 2 章 パルスパワー電源の開発	7
2.1 三段ブルームライン線路	7
2.1.1 ブルームライン線路の動作原理	7
2.1.2 パルス幅の決定	8
2.1.3 スイッチ	9
2.1.4 電圧伝搬特性	10
2.1.5 三段ブルームライン線路	10
2.1.6 三段ブルームライン線路の負荷特性	11
2.2 磁気パルス圧縮装置	18
2.3 ナノ秒パルス高電圧発生装置	21
2.3.1 構造	21
2.3.2 出力特性	23
第 3 章 パルスストリーマ放電の観測	30
3.1 放電の歴史	30
3.2 気体の放電現象	31
3.3 初期電子の発生	32
3.4 ストリーマ放電	32
3.4.1 Meek の理論 (正ストリーマ)	32
3.4.2 Raether の理論 (負ストリーマ)	33
3.5 スチールカメラによる放電観測	35
3.6 高速ゲート付 ICCD カメラによる放電観測 (齧取り)	37
3.7 ストリークカメラによる放電観測 (流し取り)	45

3.7.1	三段ブルームライン線路	45
3.7.2	ナノ秒パルス高電圧発生装置	54
3.7.3	希ガス（キセノン）中における放電の観測	60
第4章	パルスストリーマ放電による NO _x 処理	62
4.1	放電プラズマ	62
4.1.1	非熱平衡プラズマ	63
4.1.2	熱平衡プラズマ	63
4.2	ラジカル	63
4.3	パルスストリーマ放電による NO _x 除去メカニズム	65
4.4	放電プラズマによる高効率な N ラジカルの生成方法	68
4.4.1	実験装置および方法	68
4.4.2	実験結果および考察	69
4.5	NO _x 処理における NO への注入エネルギー密度による影響	77
4.5.1	実験装置および方法	77
4.5.2	実験結果および考察	77
4.6	磁気パルス圧縮装置を用いたディーゼルエンジン排ガス処理における最適電極	85
4.6.1	実験装置および方法	85
4.6.2	実験結果および考察	86
4.7	ナノ秒パルス高電圧発生装置を用いた NO _x 処理	96
4.7.1	実験装置および方法	96
4.7.2	実験結果および考察	96
第5章	人工呼吸器組込型 NO 生成装置の開発	103
5.1	背景	103
5.2	装置および方法	103
5.3	結果および考察	104
第6章	総括	107
	参考文献	109
	謝辞	117

第1章 序論

1.1 酸性雨 [1,2]

環境問題はこの四半世紀のうちに地球規模での広がりを見せ、その重要性に対する認識も世界的に高まってきている。中でも酸性雨は、原因物質の発生源から 500・1,000 キロも離れた地域にも沈着する性質があり、国境を越えた広域的な大気汚染である。

酸性雨は従来、主として化石燃料に起因する窒素酸化物 (NO_x) や硫黄酸化物 (SO_x) などの原因物質から生成された硫酸や硝酸が溶解した酸性の強い (pH5.6 以下) 雨のこととされていた。しかし、最近ではより幅広い捉え方がなされている。二酸化硫黄、窒素酸化物等の大気汚染物質は、大気中で硫酸、硝酸等に変化し、再び地上に戻ってくる (沈着)。それには2種類あり、一つは、雲を作っている水滴に溶け込んで雨や雪などの形で沈着する場合 (「湿性沈着」) であり、他の一つは、ガスや粒子の形で沈着する場合 (「乾性沈着」) である。現在、「酸性雨」は、湿性沈着及び乾性沈着を併せたものとして捉えられており、「酸性沈着」という用語が使用されている。酸性雨による影響としては、土壌の酸性化等による森林の衰退、湖沼の酸性化による陸水生態系の被害、銅像等の文化財や建造物の損傷等が指摘されている。酸性雨による影響は、湿性沈着及び乾性沈着の量によって決まると考えられている。このため、例えば雨の場合、雨の pH の値のみならず、そのときの雨の量も考慮した沈着量に着目する必要がある。

環境庁による第4次酸性雨対策調査 (平成10年度～12年度) によると、日本の酸性雨は pH 4.72・4.90 の範囲となっている。日本における酸性雨の特徴として、偏西風の影響により中国大陸からの酸性成分が流れ込み、その結果、太平洋側よりも日本海側で強い酸性雨が降る。従って、酸性雨対策としては、国内のみの取り組みでは解決されず、周辺のアジア諸国と連携をとる必要がある。最近では、2000年9月に日本・中国・韓国の間で非公式三カ国環境大臣会合を開催するなど、努力が払われている。

1.2 窒素酸化物

物が燃える際には空気中の窒素と酸素が結合して窒素酸化物 (NO_x) が必然的に発生する。例えば、自動車エンジンなど高温燃焼の際に一酸化窒素 (NO) が発生し、その後酸化され安定な二酸化窒素 (NO_2) となり大気中に排出されることが挙げられる。また、発電所や工場のボイラーなどは代表的発生源である。通常、この一酸化窒素と二酸化窒素とを合わせて窒素酸化物と呼ぶ。 NO_x は人体に有害であり、その中でも NO_2 は低濃度で長時間吸い続けると、咳や痰などが出やすくなる等の呼吸器に影響を与える。高濃度だと鼻や喉が痛み、呼吸が困難になる。また、 NO_x は紫外線により光化学反応を起こし、オゾンなどの光化学オキシダントを生成する。光化学オキシダントが空気中に漂いスモッグをつくることにより、光化学スモッグを発生させる。これは強い酸化力を持ち、高濃度では目や喉への刺激や呼吸器に影響を及ぼし、農作物などにも影響を与

える。NO_xによる大気汚染を防止するため、大気汚染防止法等により対策が進められている。

1.3 硫黄酸化物

硫黄の酸化物の総称で、硫黄酸化物 (SO_x) と略称される。二酸化硫黄 (SO₂) のほか、三酸化硫黄 (SO₃)、硫酸ミスト (H₂SO₄) などが含まれる。工場や火力発電所で石炭、重油を燃焼する際、その燃料中に存在する硫黄分が SO_x となり排出ガス中に含まれ大気汚染の原因となる。このため「環境基本法」(1993年法91)に基づき、SO₂ についての環境基準が定められている。SO₂ は人間をはじめ、動物の呼吸器を刺激し、喘息を引き起こす。また、大気中の SO₂ は酸性雨となって地上に降り、広域にわたって建物の損傷、森林の枯死、湖沼の酸性化による魚類の死滅などをもたらす。

1.4 大気汚染に対する環境基準

日本では、1968年6月10日に「大気汚染防止法」が公布・施行され、1999年12月3日に最終改正されている。これによると、NO_xおよびSO_xの規制は表1.1のようになっている。

表 1.1 NO_x 及び SO_x に関する規制方式とその概要 (「大気汚染防止法」より)

物質名	規制の方法と概要
NO _x	1) 施設・規模ごとの排出基準 新規：60・400 ppm、既設：130・600 ppm 2) 総量規制 総量削減計画に基づき地域・工場ごとに設定
SO _x	1) 排出口の高さ (H _e) 及び地域ごとに定める定数 K の値に応じた規制値を設定 $\text{許容排出量 (Nm}^3\text{/h)} = K \times 10^{-3} \times H_e^2$ 一般排出基準：K = 3.0・17.5 特別排出基準：K = 1.17・2.34 2) 季節による燃料使用基準 燃料中の硫黄分を地域ごとに設定。 硫黄含有：0.5・1.2%以下 3) 総量規制 総量削減計画に基づき地域・工場ごとに設定

1.5 既存の排ガス処理装置 [3-5]

1.5.1 排煙脱硝装置 (NO_x処理)

NO_x を排ガス中から除去する装置である。現在おもに使用されている脱硝法を方式で分類すると、乾式法と湿式法に大別される。乾式法としては接触還元法、非接触還元法及び電子ビーム照射法がある。その中においても、主流となっているのはアンモニア接触還元法と呼ばれるもので、ボイラーや焼却炉に使われている。これらの方法は、その開発・普及がかなり進んでいる。一方、湿式法としては酸化吸収法や直接吸収法があるが、これらの湿式脱硝法は、処理する排ガス中の NO_x の 90%以上を占める NO が水に対する溶解度が低く、溶解した後の処理も難しいという性質を持っているため、乾式法に遅れを取っている。これらの脱硝法の中で、すでに実用化もしくは実用の可能性が高いとされる乾式脱硝法について紹介する。

(1) 乾式アンモニア選択接触還元法 (Selective Catalyst Reduction: SCR 法)

NO_x と還元剤を触媒の存在下で反応させて N₂ に還元する方法である。NO_x の選択還元が可能な還元剤としては、アンモニア (NH₃)、尿素 ((CONH₂)₂)、シアン化水素 (HCN)、シアヌル酸 ((HNCO)₃) など、分子に N 原子を含むものや炭化水素、水素などがあげられる。ここでは、最も発達しているアンモニア選択接触還元法について述べる。

SCR 法は、NO_x を含む排ガスにアンモニアを混合し、触媒層を通過させ、共存するアンモニアにより選択的に還元されることで NO_x を窒素と水に分解する。脱硝反応は次の式(1-1), (1-2)の通りである。



反応に必要なアンモニア量は、排ガスに含まれる NO_x のほとんどが NO であるため、式 (1-1) の通り低減 NO_x 量と同程度である。なお、アンモニアは、還元剤としては高価であるが、酸素が過剰に存在する条件下でも NO_x と選択的に反応するため、よく使用される。

(2) 乾式アンモニア選択非接触還元法

触媒や特別の反応容器を用いずに、燃焼室出口の高温域に NH₃ を加え、NO_x を N₂ に還元する方法である。高温の燃焼炉や煙道に還元剤としてアンモニアを噴霧し、NO_x と選択的に反応させて窒素と水にする。NO 除去に対する反応は式(1-3), (1-4), (1-5)のようになる。



この方法は、触媒が不要で、設備も簡単であるという長所がある。しかし、適用温度

域は 850 - 1000 °C と狭く、触媒を用いる方法より多くの還元剤を必要とする。また、いろいろな制約により、脱硝率は 30 - 50 % 程度と低い。

1.5.2 排煙脱硫装置 (SO_x 処理)

SO_x を排ガス中から除去する装置である。硫黄分を含む燃料を燃焼すると、灰分中に固定されるものを除いて、すべて亜硫酸ガス (SO₂) となって大気中に放出される。対策としては、良質の燃料を使用するか、排ガスを処理して含まれる SO₂ を除去するしかない。

脱硫の方法は燃料中の硫黄化合物を除く方法と排ガス中の SO_x を除去する排煙脱硫法がある。排煙脱硫法は、排ガス中の SO_x をアルカリ性の物質や吸収剤で吸収・除去する方法で、アルカリ性の水溶液やスラリー液を吸収剤として使う湿式吸収法が主流となっている。日本の排煙脱硫技術は世界一の水準にあると言われており、外国への技術供与も話題になっている。その主役は石灰石膏法である。

(1) 石灰石膏法

排ガス中の硫黄酸化物は石灰と化合して除去され、副産する石膏 (CaSO₄·2H₂O) はセメントや石こうボード、石こうプaster等原料として使用される。その反応プロセスを簡単に記すと次のようである：

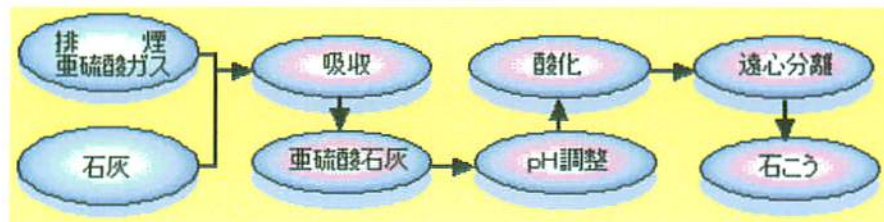


図 1.1 典型的な排煙脱硫法のしくみ

(2) 水酸化マグネシウム法

この脱硫法は、石灰石膏法における石灰を回収する複雑な工程を設けなくて済むため、小型のボイラーなどで使用されている。水酸化マグネシウムは石灰に次ぐ安価なアルカリである。その上、脱硫後の化合物である硫酸マグネシウムは水溶性のためスケルトラブルの心配がなく、回収行程が不要であり、さらに吸収効率も高い。装置が比較的コンパクトになるなど、小容量の装置に最適である。

1.5.3 電子ビーム照射法 (NO_x と SO_x の同時処理)

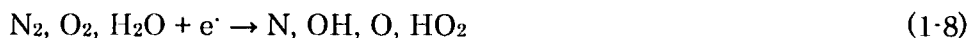
現在おもに研究されているものは、電子ビーム乾式ガス洗浄方式 (EBDS) と呼ばれる。煙道から排出されるガスに NH₃ を添加して電子ビームを照射し、SO₂ と NO_x を同時に処理できる手法である。また、高濃度硫黄含有石炭燃焼ボイラーや、民間からの固形廃棄物の処理施設にも適用される。どちらも高い除去効率を得ている。他の手法と比較した場合の EBDS の利点には：

1. 石炭中の硫黄含有量が高い場合に対しても、高い処理効率を持つ。
2. 煙道中の SO₂, NO_x 除去に対して高効率で、処理法が簡易である。
3. 乾式処理方式を用いているので、取り扱いが容易で耐久性に優れている。
4. 処理により発生した副産物は農業用肥料に変換される。

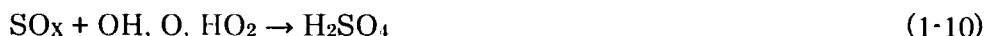
などが挙げられる。

EBDS は数十年来、日本、ドイツ、米国、ポーランドにおいて研究されてきたが、従来の電子ビーム発生装置における欠点として、パワーが小さいわりにサイズが大きく、高いコストを要するなどが挙げられる。そこで、高い平均電力を得られる電子ビーム発生装置を確立するため、加速器部を中心とした開発が米国国防総省を主体に進められ、民間への実用化を目的としている。この方法のメカニズムを以下に示す。

1. 電子ビームの照射によって、排ガス中の O₂ 及び H₂O から式 (1-8) に示す反応により、OH, O, HO₂ などの非常に酸化力が高い原子やラジカルを生成する。



2. これらの原子やラジカルによって排ガス中の NO_x, SO_x は式(1-9), (1-10)の反応により硝酸と硫酸に酸化される。



3. 排ガス中の NO の一部は式(1-11)の反応により N 原子と反応して、N₂ を生成する。



4. 硝酸と硫酸は式(1-12), (1-13)の反応により、アンモニアと反応して、硝安、硫安になる。



この方法を用いた SO₂, SO_x 同時除去の結果によると、2.5 %以上の硫黄を含む石炭を使用した場合、SO₂ 除去においては 95%以上、NO_x 除去においては 80 %以上の除去結果を得られる。しかし、実用化にあたっては、装置の長時間連続運転に対する信頼性などの問題を解決しなければならない。

1.6 パルスパワーを用いた排ガス処理

前節で紹介した排ガス処理方法は、いずれも建設費用、維持費用および建設敷地が莫

大に要されるため、開発途上国では経済成長の持続と環境対策コスト捻出とのジレンマに直面して脱硝・脱硫装置の設置が欠乏している。一方先進国においても、今後普及が期待されるコ・ジェネレーション・システムの小型分散電源に対して、現行処理装置は巨大なため適応が困難であり、かつ電源が都市部に立地するため排ガス規制の強化は避けられない。また、近年 SO_x に関する環境基準達成は、低硫黄燃料の使用等により改善されつつあるが、NO_x による被害は広がる一方である。以上より、安価かつ小型・高性能の排煙脱硝・脱硫装置の実現が急務となってきている。

現在最もその実現可能性を秘めている非熱平衡プラズマを用いた排ガス浄化法は世界中で研究されており [6,7]、無声放電 [8-11]、重畳放電 [12]、グロー放電 [13]、直流コロナ放電 [14,15] 等様々な方法が提案されている。本研究では、その中でも比較的安易に高効率な処理結果が得られるパルスストリーマ放電を用いた排ガス処理を提案し、実験・検討を行った。パルスストリーマ放電は、排ガス処理容器へ印加される電圧が極めて短い時間だけ継続変化するパルスであるため、直流や交流と比較して金属製処理容器の損傷が軽く、エネルギーロスの原因となるアーク放電へ転移せずに高電圧印加が可能であるという利点を持つ。

第2章 パルスパワー電源の開発 [1-3]

パルスパワーとは、電磁エネルギーを時間・空間的に圧縮して蓄積し、それをパルス化した高いピーク値を有する電力として取り出したものである。その特徴として、大電力、立ち上がり時間が短い、短いパルス幅、高エネルギー密度を供給できることが挙げられる。その瞬時最大電力は 10 TW 以上にも達し、日本の瞬時最大電力に相当する。また、自然界に存在する雷などは、パルスパワーの代表的な例である。

パルスパワー技術は元来、軍事的目的として発達した技術で、1983年3月23日に米国レーガン大統領がテレビで演説した SDI (Strategic Defense Initiative) 計画により発達したものである。米国においては、NASA や軍の支援のもと、宇宙開発や軍事目的のためにパルスパワー研究が行われてきた。宇宙空間への高速物質輸送や超高速砲弾のための電磁加速装置、通信・電力輸送のための高出力マイクロ波、慣性核融合によるエネルギー発生などを中心に、高い予算を要する政治絡みの研究内容が殆どであった。このような研究は依然として一部は引き継がれているが、世界情勢およびアメリカにおける研究方針の転換とともに、大規模な応用から小規模な装置を使った産業応用研究に移行してきた。現在では大気浄化、オゾン生成、オゾン水生成、水処理、リサイクル、岩石破壊、高出力マイクロ波の発生、殺菌や医療など、一般産業分野への応用が行われるようになった。また、パルスパワーにより地球の中心部にも匹敵する極限エネルギー密度状態の達成が可能となるため、新材料の創製、極限環境下での材料の耐久性評価、短波長レーザー励起、新型光源の開発等の応用研究への道も拓かれている。

パルスパワー発生システムは、高電圧発生部、エネルギー貯蔵部、スイッチ、パルス形成、およびパルス伝送部から構成される。優れたパルスパワー発生装置は、蓄えたエネルギーを放出する際に、(1)いかに大きなエネルギーを、(2)いかに短いパルス幅に圧縮できるか、がその性能を決定付ける。パルスパワー発生装置には様々なものが挙げられるが、本研究ではブルームライン線路 (Blumlein Generator) および磁気パルス圧縮装置 (Magnetic Pulse Compressor) を使用している。

2.1 三段ブルームライン線路 [4]

2.1.1 ブルームライン線路の動作原理

Blumlein によって提案されたブルームライン線路 (Blumlein Generator) は、2層のパルス形成線路を1組として形成されている。単一のパルス形成線路からなるシングルラインによる出力パルスが充電電圧の 1/2 となるのに対し、ブルームライン線路では充電電圧と同じ波高値を持つパルスが得られるという利点がある。図 2.1 にブルームライン線路の等価回路およびその動作原理を示す。まず、 V_0 で充電された線路において、 $t=0$ でスイッチ S を閉じると、電圧の進行波が生じる。電圧波は図中の A 端 (短絡端) では反転全反射し、D 端 (開放端) では全反射する。負荷整合 ($Z_1 = Z_2 = Z_0$) が取れて

いるとすると、A, B, C, D 端でのそれぞれの電圧反射係数 $\rho_A, \rho_B, \rho_C, \rho_D$ は、

$$\rho_A = \frac{0 - (2Z_0 + Z_1 + Z_2)}{0 + (2Z_0 + Z_1 + Z_2)} = \frac{-4Z_0}{4Z_0} = -1 \quad (2-1)$$

$$\rho_B = \frac{2Z_0 + Z_2 - Z_1}{2Z_0 + Z_2 + Z_1} = \frac{2Z_0}{4Z_0} = \frac{1}{2} \quad (2-2)$$

$$\rho_C = \frac{2Z_0 + Z_1 - Z_2}{2Z_0 + Z_1 + Z_2} = \frac{2Z_0}{4Z_0} = \frac{1}{2} \quad (2-3)$$

$$\rho_D = \frac{\infty - (2Z_0 + Z_1 + Z_2)}{\infty + (2Z_0 + Z_1 + Z_2)} = 1 \quad (2-4)$$

となる。また、 $t = l/v$ までは、BC 間は同電位であるが、 $t = l/v$ において V_0 の電位差が生じ負荷にエネルギーが転送され、 $t = 3l/v$ まで負荷へ充電電圧と等しい波高値を持つ電圧パルスが印加される。ここで、 v は電圧波の伝搬速度である。このとき得られる出力パルスは、

$$\text{出力電圧： } v = V_0 \quad (2-5)$$

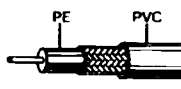
$$\text{パルス幅： } \tau = \frac{2l}{v} \quad (2-6)$$

となる。図 2.2 にブルームライン線路の出力電圧波形を示す。

2.1.2 パルス幅の決定

ブルームライン線路の作成には、三菱電線製の同軸ケーブル (RG/213U, 50 Ω) を用いた。その特性を表 2.1 に示す。

表 2.1 RG-213/U 同軸ケーブルの特性

内部導体外径 [mm]	絶縁体外径 [mm]	外部導体		被覆外径 [mm]	仕上外径 [mm]	特性インピーダンス [Ω]	概算質量 [kg/km]
		構成	外径 [mm]				
7/0.75 2	7.2	軟銅線 編組	8.1	10.3	10.3	50	160
標準減衰 [dB/km]							外観図
1MHz	10MHz	30MHz	100MHz	400MHz	1000MHz	3000MHz	
5.6	19.0	35	69	160	285	590	

この同軸ケーブルの単位長さ当たりのキャパシタンス C とインダクタンス L は式 (2-7) および (2-8) で与えられる。

$$C = \frac{2\pi\epsilon}{\ln \frac{r_o}{r_i}} = \frac{2\pi\epsilon_0\epsilon_r}{\ln \frac{r_o}{r_i}} = \frac{2\pi \times 8.85 \times 10^{-12} \times 2.3}{\ln \frac{3.60 \times 10^{-3}}{1.017 \times 10^{-3}}} \quad (2-7)$$

$$= 101.2 \times 10^{-12} \text{ [F/m]} = 101.2 \text{ [pF/m]}$$

$$L = \frac{\mu}{2\pi} \ln \frac{r_o}{r_i} = \frac{\mu_0\mu_r}{2\pi} \ln \frac{r_o}{r_i} = \frac{4\pi \times 10^{-7} \times 1.0}{2\pi} \ln \frac{3.60 \times 10^{-3}}{1.017 \times 10^{-3}} \quad (2-8)$$

$$= 252.8 \times 10^{-9} \text{ [H/m]} = 252.8 \text{ [nH/m]}$$

ここで、 r_i , r_o , ϵ_0 , ϵ_r , μ_0 , μ_r はそれぞれ同軸円筒線路の内部導外径、同軸円筒線路の外部導体内径、真空の誘電率、線路の絶縁物の比誘電率、真空の透磁率、および線路の絶縁物の比透磁率である。RG-213/U の内部導体外径 r_o および外部導体内径 r_i はそれぞれ 1.017 mm (実測値)、3.6 mm (設計値) であるの。このとき、線路の特性インピーダンス Z_0 及び電圧波の伝搬速度 v は式(2-9)、(2-10)で与えられる。

$$Z_0 = \sqrt{\frac{L}{C}} = \sqrt{\frac{252.8 \times 10^{-9}}{101.2 \times 10^{-12}}} \quad (2-9)$$

$$= 49.98 \text{ } [\Omega]$$

$$v = \frac{1}{\sqrt{LC}} = \frac{1}{\sqrt{252.8 \times 10^{-9} \times 101.2 \times 10^{-12}}} \quad (2-10)$$

$$= 1.98 \times 10^8 \text{ [m/s]}$$

したがって、パルス幅 τ はケーブル長を l とした場合、 $2l/v$ であるので、

$$\tau = \frac{2l}{v} = \frac{2l}{1.98 \times 10^8} \text{ [s]} \quad (2-11)$$

となる。

以上より、ブルームライン線路のパルス幅は同軸ケーブルの長さによって決定付けられることがわかる。

2.1.3 スイッチ

三段ブルームライン線路のクロージングスイッチとして、トリガトロン型スパークギャップスイッチまたは水素封入型サイラトロンスイッチ (CX1685, E2V Technologies, Ltd., UK) を使用した。

スパークギャップスイッチの動作原理は、低電圧側主電極とトリガ電極との間に比較的小さなパルス電圧を供給して微小放電を生成し、この放電からのプラズマおよび紫外線によって高電圧側の主電極との間に電子を生成して主放電を起こし、スイッチングするものである。このスパークギャップスイッチをトリガさせるための電子回路の構成を、図 2.3 に示す。このトリガモジュールにより、理論的には 1 kHz の高繰り返しが可能である。また、トリガモジュールへの信号入力にはパルスジェネレータ (8116A PULSE/FUNCTION GENERATOR, Hewlett Packard, USA) を用いた。

サイラトロンスイッチの動作原理は、水素ガスや重水素ガスを封入した絶縁容器の中にアノードとカソード電極を配置し、電極間に設置された制御グリッドにかける電圧によりカソードからアノードに流れる電子を制御して、主電流をオン・オフするものである。また、ヒーターでカソードを温めることにより熱電子放出を容易にしてある。スパークギャップスイッチと比較して、高電圧・大電流かつ kHz 以上の高繰返しが可能である。一方、サイラトロンは放電管であるため、電極の消耗などによって寿命が 10^9 回程度と制限される。

2.1.4 電圧伝搬特性

我々はパルス幅 50 ns の一段ブルームライン線路を製作し、線路内における電圧伝搬の様子を調べた。図 2.4 に実験の概略図を示す。ブルームライン線路の外部導体における電圧の位置依存性を調べるため、1 m 毎に外皮を長さ 1 cm 取り除き、その部分の露出した外部導体における出力をそれぞれ測定した。電圧の測定位置を No.1・No.12 とし、抵抗分圧器 (ratio, 1:10k) を用いて、シールドルーム内に設置されたオシロスコープ (HP54542A, Hewlett Packard, USA) により計測した。負荷として整合抵抗 100 Ω を用い、ブルームライン線路への充電電圧は 21 kV とした。

実験結果を図 2.5 に示す。図 2.5 より、測定位置 No.1 から No.12 まで進むにつれ、外部導体における電圧波の進行が生じている様子がわかる。また、No.12 においてはパルス幅約 50 ns (半値幅)、最大値 11.6 kV の良好なパルスが得られた。

2.1.5 三段ブルームライン線路

図 2.6(a), (b) に、三段ブルームライン線路 (Three-stage Blumlein Generator) の外観及び概略図を示す。この三段ブルームライン線路は、パルス形成線路である同軸ケーブル (RG/213U, 50 Ω , 三菱電線) を 2 本組合せてブルームライン線路を構成し、昇圧のために 3 段直列に積重ねたものである。3 段積重ねることにより、整合負荷は 300 Ω ($50 \Omega \times 2 \times 3$) となる。パルス幅は同軸ケーブルの長さにより可変である。本電源のサイズは 500 \times 500 \times 200 mm と非常にコンパクトである。この三段ブルームライン線路の出力パルスの波高値は、負荷整合が取れている場合、充電電圧の 3 倍となる。我々はパルス幅が異なる三段ブルームライン線路を 5 台作成し、それぞれの整合抵抗接続時の出力を測定した。表 2.2 に、出力パルス幅の計算値と測定値の結果をまとめる。表 2.2 より、各線路ともほぼ計算値と同等の出力パルス幅を持つ良好なパルスを得られた。

表 2.2 製作した三段ブルームライン線路の一覧表

ケーブル長 X [m]	パルス幅 [ns]	
	理論値	測定値
4	40.0	40.5
6	60.0	60.7
8	80.0	81.0
10	100.0	101.2
12	120.0	121.5

2.1.6 三段ブルームライン線路の負荷特性

製作した三段ブルームライン線路の負荷特性を確認した。パルス幅 100 ns のものを用いて、整合抵抗負荷 (300 Ω) 接続、充電電圧 20 kV における電圧、電流波形を測定した。なお、電流測定には電流プローブ (Pearson current monitor, Model 2878, Pearson Electronics Inc., USA) を用いた。図 2.7(a), (b) に典型的な出力電圧・電流および 1 パルスあたりの電力・エネルギー ($\int v i dt$) 波形を示す。図 2.7 より、出力電圧・

電流の最大値はそれぞれ 41.3 kV および 142.8 A であり、出力最大電力は 5.8 MW、1 パルスあたりのエネルギーは 0.44 J を示した。したがって、充電電圧に対するエネルギー換算効率 は 37 % となる。測定された電圧が 1 パルス終了後も負方向へ振れている原因としては、三段ブルームライン線路のスイッチとして使用したスパークギャップスイッチにおける損失、負荷抵抗付近に存在する漂遊キャパシタンスおよび漂遊インダクタンスによる不整合によるものなどが考えられる。

図 2.8(a), (b) にそれぞれ負荷を開放端および短絡端とした場合の出力電圧・電流波形を示す。図 2.8(a) より、開放端においては負荷のインピーダンスを無限大とみなすため電圧は反射して 2 倍となり、電流は殆ど流れない。また図 2.8(b) より、短絡端においてはインピーダンスがほぼ零とみなされるため電圧は殆ど現れず、電流が大きな値を示す。

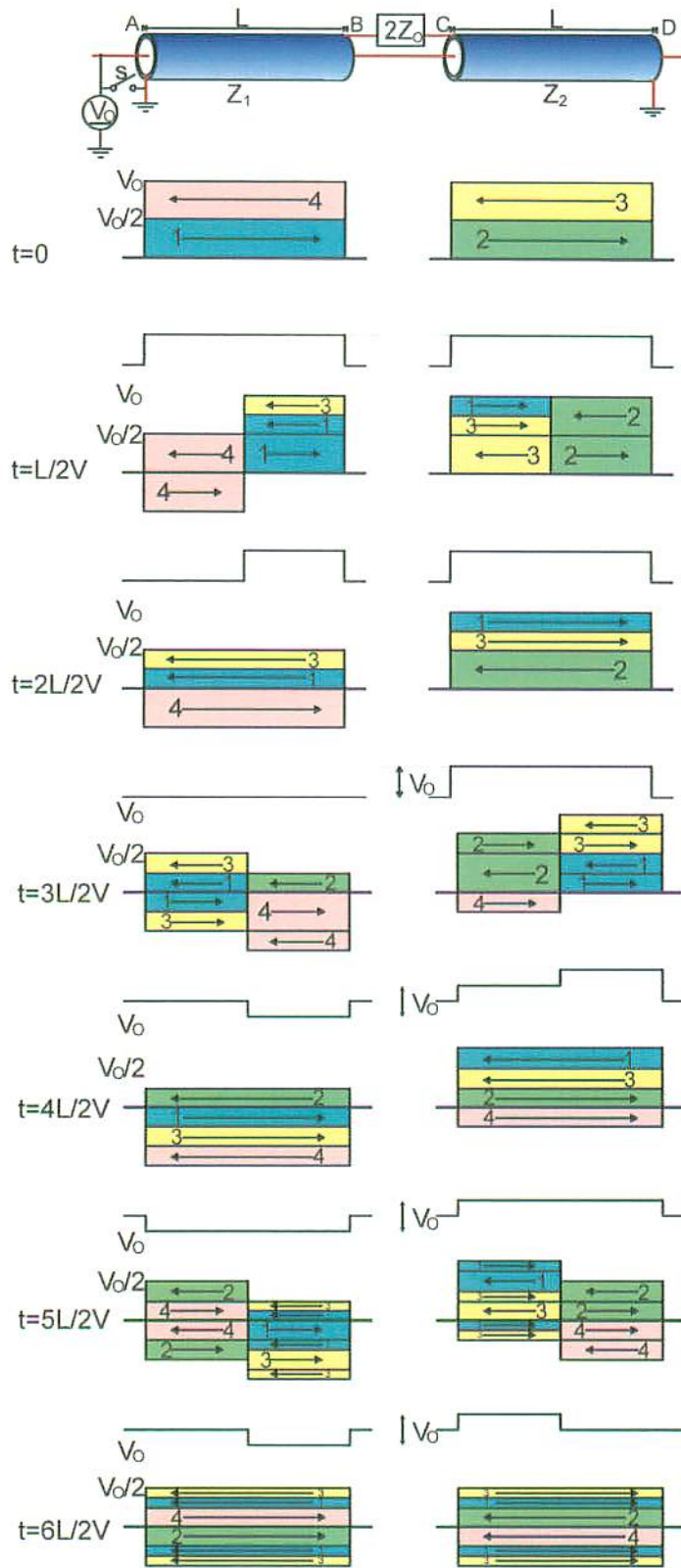


図 2.1 ブルームライン線路の等価回路及びその動作原理

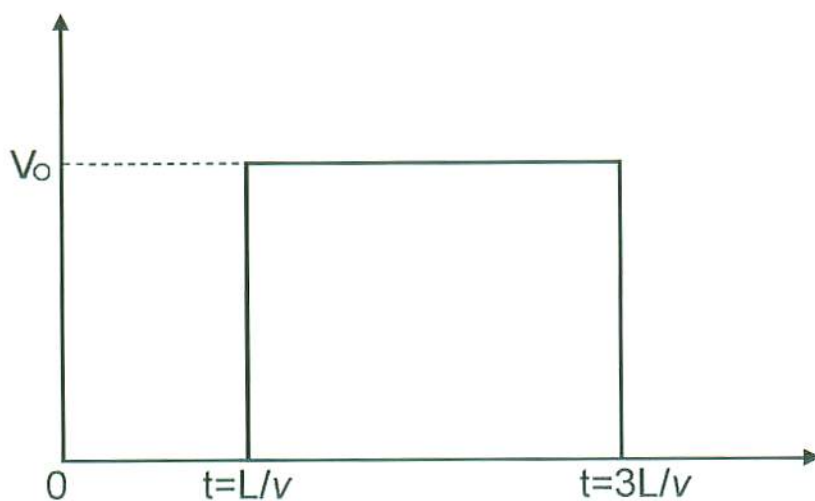


図 2.2 ブルームライン線路の出力電圧波形

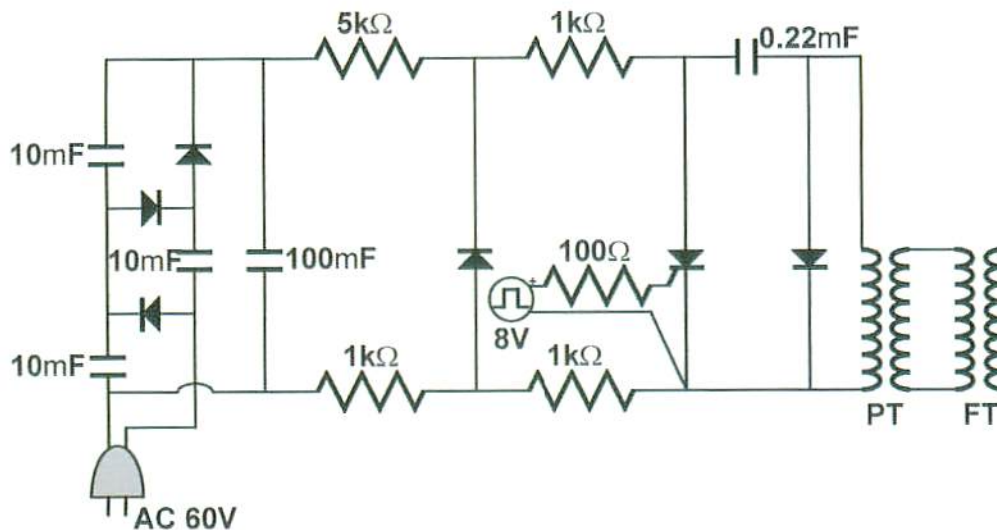


図 2.3 スパークギャップスイッチのトリガーモジュール回路図

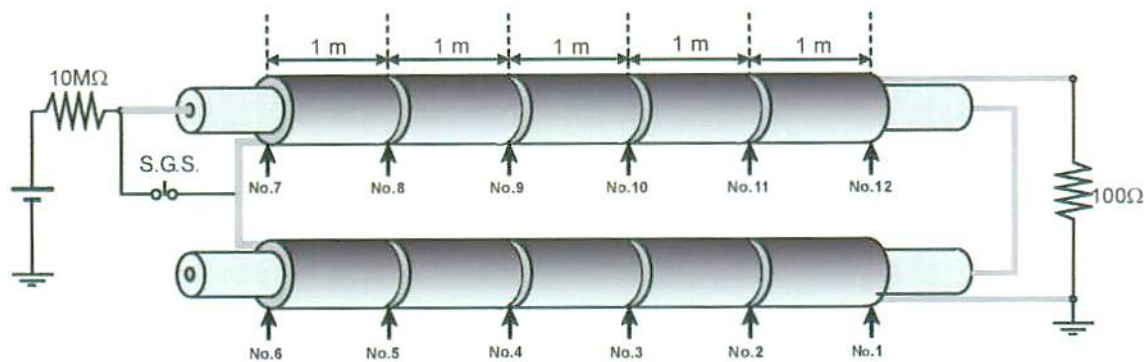


図 2.4 ブルームライン線路における電圧伝播特性の実験概略図

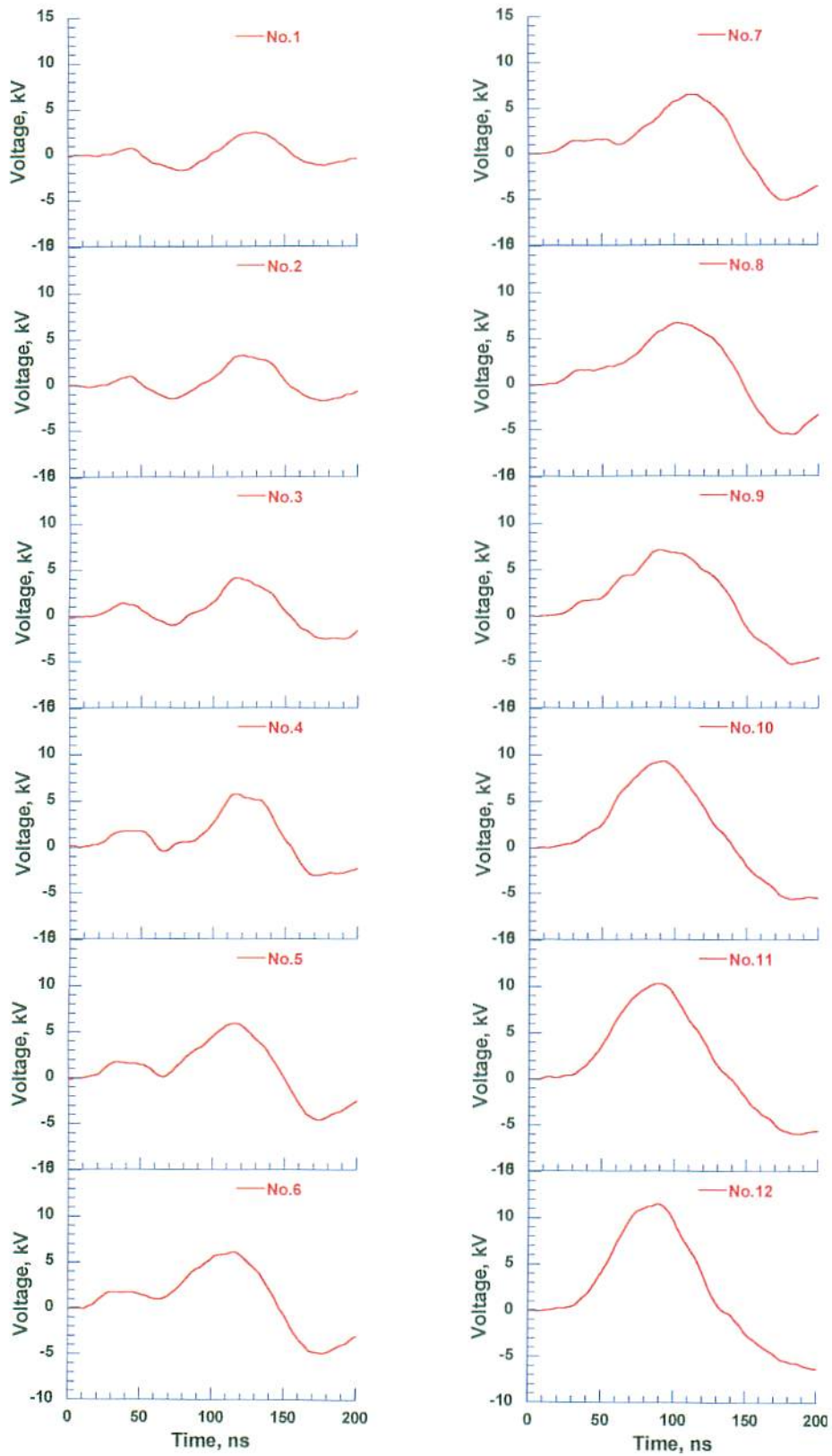
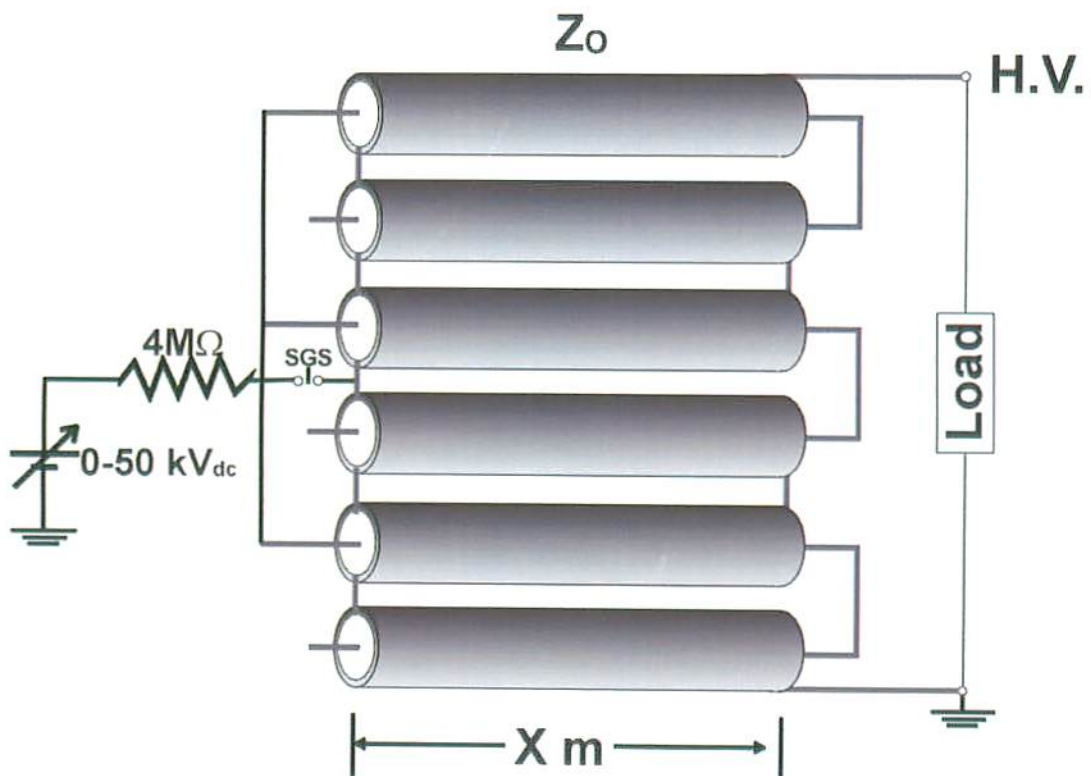


図 2.5 ブルームライン線路における電圧の伝播

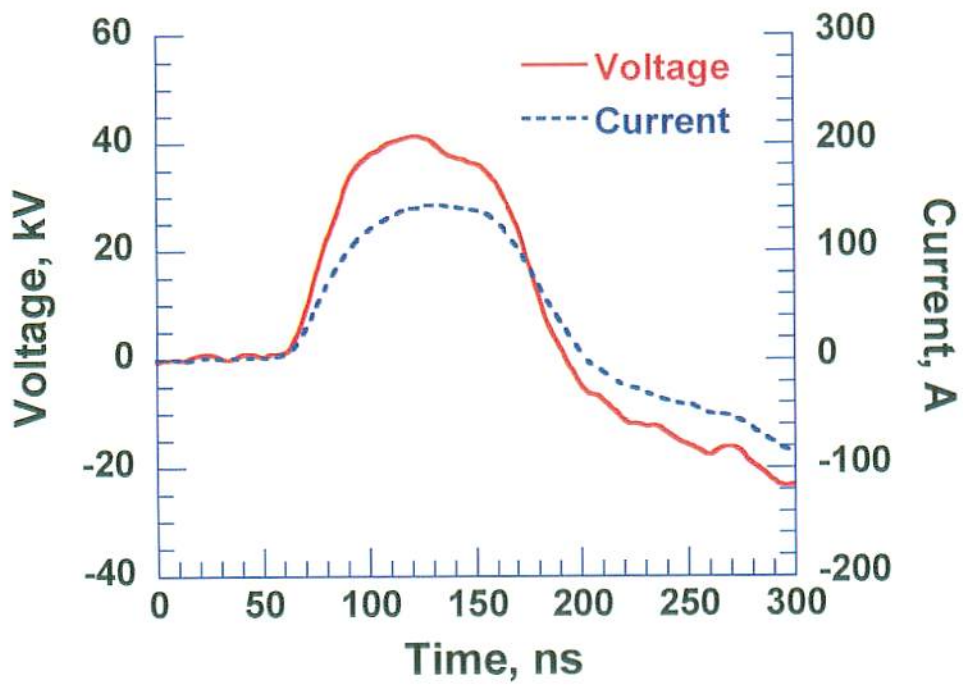


(a) 外観

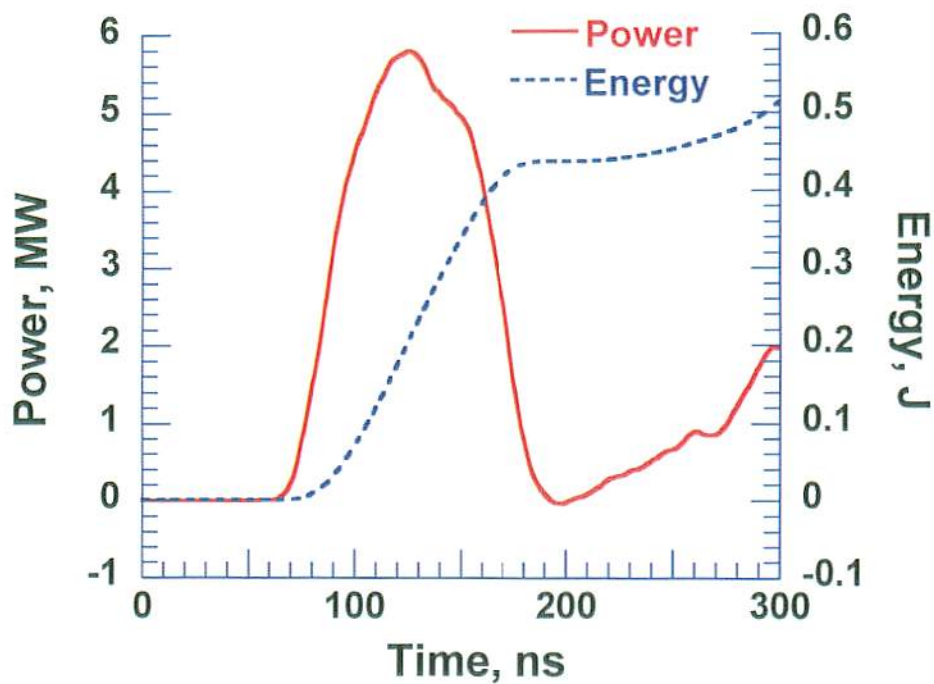


(b) 概略図

図 2.6 三段ブルームライン線路の外観及び概略図

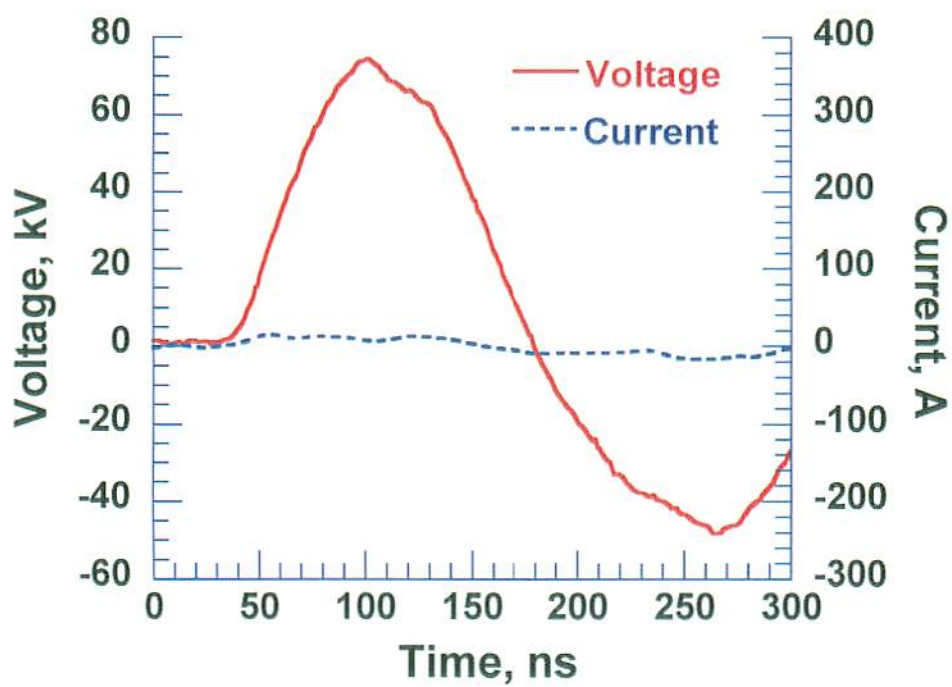


(a) 電圧・電流

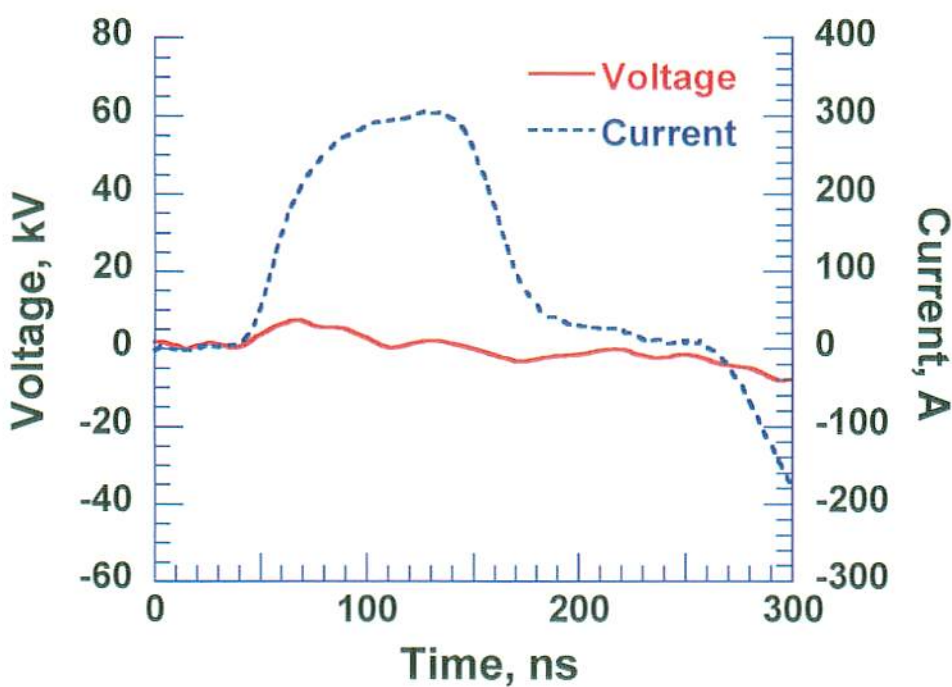


(b) 電力・1パルスあたりのエネルギー

図 2.7 三段ブロームライン線路の典型的な出力波形
(パルス幅 100 ns、整合抵抗負荷接続)



(a) 開放端



(b) 短絡端

図 2.8 開放端および短絡端における三段ブルームライン線路の出力
(パルス幅 100 ns)

2.2 磁気パルス圧縮装置 [5]

パルスパワー発生装置の重要な構成要素として、高速スイッチングが挙げられる。一般的には、スパークギャップスイッチやサイラトロンスイッチ等の放電型スイッチが広く使用されているが、放電型スイッチは放電回数の増加に伴い電極の劣化が進み、スイッチングの不安定性や電極の寿命短縮といった問題が懸念される。そこで、産業応用を目指したパルスパワー発生装置として、半導体スイッチと磁気スイッチ（可飽和インダクタ）を組み合わせた全固体素子化スイッチを組み込んだ磁気パルス圧縮装置（MPC: Magnetic Pulse Compressor）が開発されている。MPCは基本的にはC-L-Cの共振回路であり、Lに可飽和インダクタを用いた構成となる。基本的なMPCの動作原理およびその物理特性については、佐久川が文献 [5] において紹介している。

本研究において使用したMPC（Meidensha Corp., Japan）の等価回路を図2.9に示す。図2.9よりMPCは、高電圧直流電源、直流電源保護のためのダイオード D_P ・インダクタンス L_P （100 μm ）・抵抗 R_P （1 Ω ）、低インダクタンス充電用キャパシタ C_0 （ $C_0 = 800$ nF）、可飽和インダクタ SI_0 、高速ゲートターンオフサイリスタGTO（H10D33YFH, Meidensha Corp., Japan）、GTO保護用のダイオード D_0 およびスナバ回路（ D_s, R_s, C_s ）、昇圧用パルストランスPT（FT-1H, Hitachi metals Ltd, Japan, ratio, 1:3）、昇圧およびパルス圧縮用可飽和トランスST（FT-1H, ratio, 1:8）、低インダクタンスパルス形成キャパシタ C_1 （ $C_1 = 1$ nF）、可飽和インダクタ SI_1 から構成されている。GTOをPTの一次側巻線の後に配置したのは、接地を確保するためである。回路の動作としては、Eより C_0 を直流充電した後、GTOをオンする。PTとSTにより24倍に昇圧した後、 C_1 を高圧充電する。 C_0 から C_1 へ電荷が完全に転送されるまでは、STは未飽和状態を保つようにする。その後、STが飽和して磁気スイッチ動作することにより、 C_1 に蓄えられた電荷が負荷へ転送される。ここで、 SI_0 および SI_1 はそれぞれ、磁気アシストによるGTOの損失低減およびリセット電流による C_1 の充放電電流の方向制御（ダイオードと同じ）の役割をもっている。磁気アシストとは、電圧と電流に位相差をつけてスイッチング電力の低減を図る方法である。 SI_0 が未飽和のときは、 SI_0 の主電流と逆方向に流したりセット電流によりその間のインピーダンスが高く、 I_0 は殆ど流れない。したがってGTOのターンオン損失を抑制でき、高繰返し動作が可能となる。 SI_0 が飽和するとその間のインピーダンスが低くなり、 I_0 がGTOに流れる。次に、 C_1 が充電されている間は、STは未飽和でトランスとして動作し、また SI_1 は主電流と同じ方向に流したりセット電流によりその間のインピーダンスが低くダイオードとして電流方向を制御し、ST \rightarrow C₁ \rightarrow SI₁のループで I_1 が流れる。 C_1 の充電が終了すると、STが飽和してその間のインピーダンスが低くなり、C₁ \rightarrow ST \rightarrow Loadのループで I_2 が流れ、 C_1 に蓄えられた電荷が負荷へ高速転送される。STの磁心材には、鉄系の超微結晶質軟磁性合金を使用した。また、半導体スイッチは逆電圧に非常に弱いため、GTOの保護として逆並列にダイオード D_0 が接続されている。このMPCから出力され

る電圧（正極性）の最大値、パルス幅および最高繰り返し周波数の設計値はそれぞれ約 60 kV、130 ns、500 pps（pulses per second）である。また、特性インピーダンスは 10 Ω 以下である。

図 2.10 に MPC へ抵抗負荷 200 Ω を接続し、2.7 kV 充電時の出力電圧波形を示す。図 2.10 より、出力電圧のピーク値は約 59 kV、パルス幅は約 70 ns であった。ここで、設計では負荷に 1 nF のキャパシタがあると見なしているため、実測値のパルス幅は設計値よりも短い。図 2.11 に、抵抗負荷 200 Ω 接続時の MPC の充電電圧と出力電圧の関係を示す。図 2.11 より、MPC の出力電圧は C_0 への充電電圧に比例して上昇することがわかる。

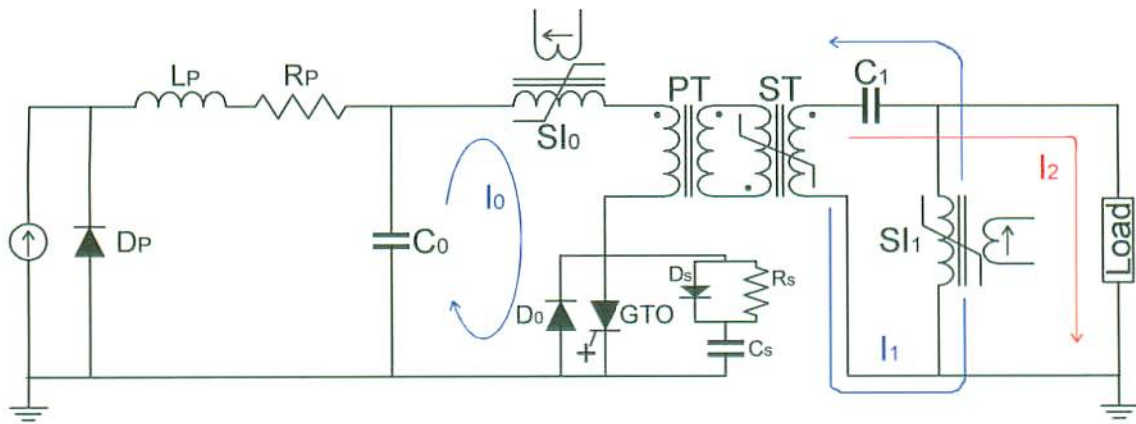


図 2.9 磁気パルス圧縮装置 (MPC) の等価回路図

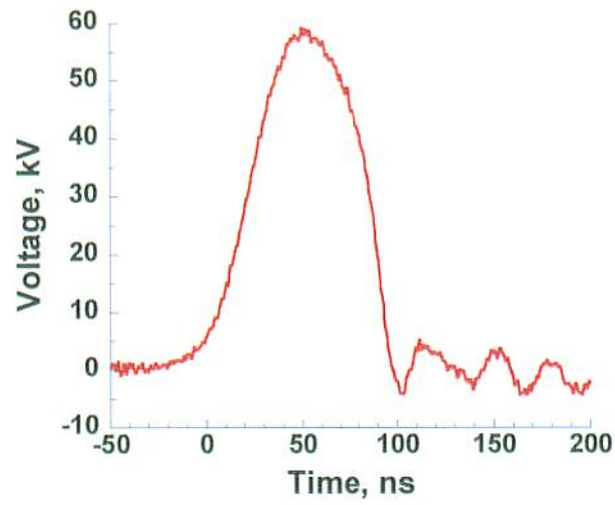


図 2.10 MPC の典型的な出力波形

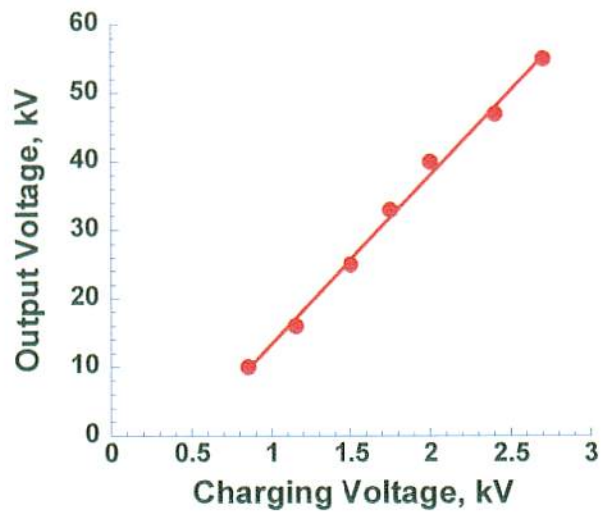


図 2.11 MPC の充電電圧と出力電圧の関係

2.3 ナノ秒パルス高電圧発生装置

我々のこれまでの研究成果によると、パルスパワー電源の出力電圧のパルス幅が短いほど、排ガス処理を高効率に行なうことができる。その詳細理由は後出の第4章4.7項で述べるとして、ここでは我々が開発したパルス幅の極めて短いパルスパワー電源について紹介する。

2.3.1 構造

出力電圧のパルス幅が数ナノ秒のナノ秒パルス高電圧発生装置 (Ultra-Short Pulse Generator) を設計・製作した。この装置はブルームライン線路の動作原理を基本としているが、パルス幅が極端に短いためスイッチ部や伝送線路部における損失を最小限に減らすために、三重同軸の構造とした。図 2.12(a), (b)に同軸ケーブル型と三重同軸型のブルームライン線路の比較外略図を示す。図 2.12 より、内部導体 (Inner Conductor)、中間導体 (Middle Conductor)、外部導体 (Outer Conductor) は(a), (b)のそれぞれで対応している。

図 2.13(a), (b), (c)にナノ秒パルス高電圧発生装置の構造図および外観を示す。この装置は自爆型高圧スパークギャップスイッチ (High-pressure Spark Gap Switch)、三重同軸型ブルームライン線路 (Triaxial Blumlein Line)、ブルームライン線路から負荷へエネルギーを転送する低インダクタンス伝送線路 (Transmission Line) より構成されている。スパークギャップスイッチ内は絶縁ガスとして SF₆ を充填し、ギャップ間隔は 1 mm に固定されている。三重同軸型ブルームライン線路の内部導体は棒形、中間導体および外部導体は円筒形である。また、内部導体と外部導体は充電のためにインダクタンス (Charging Inductor) で接続されている。ブルームライン線路と伝送線路内は絶縁油 (日石三菱高圧絶縁油 A, JISC2320) を充填している。内部導体はステンレス、絶縁体はデルリン、その他の導体は全て真鍮より構成されている。充電ポート (Charging Port) を通して中間導体へ高電圧を印加し、外部導体は接地されている。充電電源として MPC を用いている。これはパルス充電であるため電圧の立ち上がりが速くかつ高繰返しが可能、全固体半導体スイッチであるため長寿命という特徴をもつ。ここで、今回作成したナノ秒パルス高電圧発生装置は、その構造の都合により中間導体と外部導体の間でスイッチングが動作する。このため、MPC より正極性のパルス電圧が印加された場合、スイッチ・オンの瞬間に接地端の外部導体が高電位となるため、負荷両端には負極性のパルス電圧が出力される。同様に、負極性のパルス電圧が印加された場合には、負荷両端に正極性のパルス電圧が出力される仕組みとなっている。伝送線路内は容量分圧器を組み込んでおり (図 2.13(c))、負荷へ印加される電圧の測定に用いた。

ナノ秒パルス高電圧発生装置の各部寸法を表 2.3 に示す。表 2.3 より、この装置の単位長さ当たりのキャパシタンス C とインダクタンス L は式(2-12)および(2-13)となる。

表 2.3 ナノ秒パルス高電圧発生装置の寸法一覧

高圧スパークギャップスイッチ	内部電極外径	40 mm
	外部電極内径	110 mm
	長さ	60 mm
三重同軸型ブルームライン線路	内部導体外径	4 mm
	中間導体内径	20 mm
	中間導体外径	22 mm
	外部導体内径	110 mm
	外部導体外径	120 mm
	長さ	500 mm
伝送線路	内部導体外径	4 mm
	外部導体内径	110 mm
	長さ	210 mm

$$C = \frac{2\pi\epsilon}{\ln \frac{r_o}{r_i}} = \frac{2\pi\epsilon_0\epsilon_r}{\ln \frac{r_o}{r_i}} = \frac{2\pi \times 8.85 \times 10^{-12} \times 2.2}{\ln \frac{20 \times 10^{-3}}{4 \times 10^{-3}}} = \frac{2\pi \times 8.85 \times 10^{-12} \times 2.2}{\ln \frac{110 \times 10^{-3}}{22 \times 10^{-3}}} \quad (2-12)$$

$$= 76 \times 10^{-12} \text{ [F/m]} = 76 \text{ [pF/m]}$$

$$L = \frac{\mu}{2\pi} \ln \frac{r_o}{r_i} = \frac{\mu_0\mu_r}{2\pi} \ln \frac{r_o}{r_i} = \frac{4\pi \times 10^{-7} \times 1.0}{2\pi} \ln \frac{20 \times 10^{-3}}{4 \times 10^{-3}} = \frac{4\pi \times 10^{-7} \times 1.0}{2\pi} \ln \frac{110 \times 10^{-3}}{22 \times 10^{-3}} \quad (2-13)$$

$$= 322 \times 10^{-9} \text{ [H/m]} = 322 \text{ [nH/m]}$$

ここで、 r_i 、 r_o 、 ϵ_0 、 ϵ_r 、 μ_0 、 μ_r はそれぞれ同軸円筒線路の内部導外径、同軸円筒線路の外部導体内径、真空の誘電率、絶縁油の比誘電率、真空の透磁率、および絶縁油の比透磁率である。製作したナノ秒パルス高電圧発生装置の三重同軸部の長さ l は 500 mm であるため、内部導体と中間導体の間、中間導体と外部導体の間を合わせると総長 1 m のブルームライン線路となる。したがって、三重同軸型ブルームライン線路のキャパシタンスとインダクタンスはそれぞれ 76 pF、322 nH である。このとき、線路の特性インピーダンス Z_0 、電圧波の伝搬速度 v およびパルス幅 τ は式(2-14)・(2-16)で与えられる。表 2.4 に製作したナノ秒パルス高電圧発生装置の電気特性（計算値）をまとめて示す。

$$Z_0 = 2\sqrt{\frac{L}{C}} = \sqrt{\frac{322 \times 10^{-9}}{76 \times 10^{-12}}} \quad (2-14)$$

$$= 130 \text{ [\Omega]}$$

$$v = \frac{1}{\sqrt{LC}} = \frac{1}{\sqrt{322 \times 10^{-9} \times 76 \times 10^{-12}}} \quad (2-15)$$

$$= 2.0 \times 10^8 \text{ [m/s]}$$

$$\begin{aligned}\tau &= \frac{2l}{v} = \frac{2 \times 0.5}{2.0 \times 10^8} \\ &= 5.0 \times 10^{-9} \text{ [s]} = 5.0 \text{ [ns]}\end{aligned}\tag{2-16}$$

ここで、式 (2.13) および表 2.3 に基づいてナノ秒パルス高電圧発生装置のスイッチ部のインダクタンスを計算した結果、12.12 nH であった。

表 2.4 ナノ秒パルス高電圧発生装置の電気特性 (計算値)

キャパシタンス	76 pF
インダクタンス	322 nH
インピーダンス	130 Ω
パルス幅	5 ns

2.3.2 出力特性

製作したナノ秒パルス高電圧発生装置の出力特性を確認した。ナノ秒パルス高電圧発生装置への充電電圧(すなわち、MPC からの出力電圧)は高電圧プローブ(EP-100K, 1:5000, Pulse Electric Engineering, Japan) を用いて測定し、負荷への印加電圧は抵抗負荷に流れた電流値に負荷の抵抗値をかけて計算で求めた。なお、負荷への電流は電流プローブ (Pearson current monitor, Model 2877, Pearson Electronics Inc., USA) を用いて測定した。電圧・電流信号は、シールドルーム内に設置されたオシロスコープ (54855A Infiniium, Agilent Technologies, USA) により計測した。実験における MPC への充電電圧は、すべて 2.7 kV とした。図 2.14 に、典型的なナノ秒パルス高電圧発生装置への充電電圧波形および負荷の出力波形を示す。ただし、負荷抵抗、充電インダクタンス、SF₆ ガス圧はそれぞれ 130 Ω, 2.5 μH, 1.0 MPa である。図 2.14 より、充電電圧がゼロに落ちるとほぼ同時に負荷へパルス電圧が印加され、出力電圧は半値幅 (FWHM) で約 7 ns を示し、計算値と非常に近い値である。出力電圧のピーク値が充電電圧のピーク値のおよそ半分であるのは、負荷を含めた回路中の浮遊インダクタンス (L di/dt) による影響と考えられる。

以下に回路パラメータの最適化に関する実験結果を示す。

(1) 充電インダクタンス依存性

充電インダクタンス (Charging Inductor) の値は、ナノ秒パルス高電圧発生装置への充電時には充電インダクタンスのみに電流が流れ、放電時には負荷のみに電流が流れるものが理想である。したがって、充電時のインピーダンスは最小値、放電時のインピーダンスは最大値となるよう選定しなければならない。

図 2.15 に、充電インダクタンスの値を 0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5, 3.0 μH と変化させたときの負荷の出力電圧波形を示す。このとき、負荷には 130 Ω の整合抵抗を接続し、SF₆

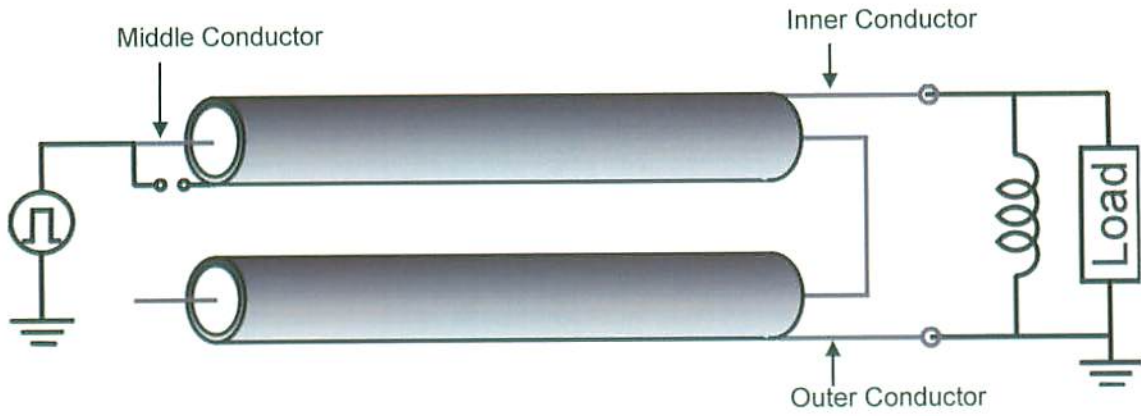
のガス圧は 1.0 MPa とした。図 2.15 より、出力電圧のピーク値が高く、1 パルス出力後の電圧波形の振動がもっとも小さい結果を示したのは充電インダクタンスが 2.5 μH である。したがって、整合負荷に対する最適な充電インダクタンスは 2.5 μH と考えられる。

(2) SF₆ガス圧依存性

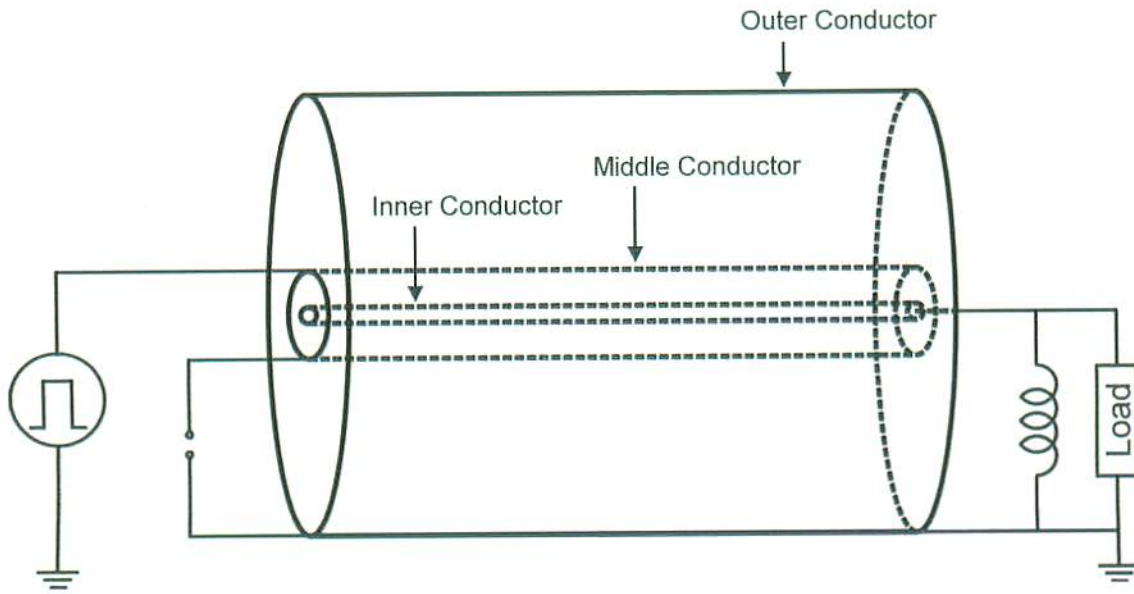
高圧スパークギャップスイッチ (High-pressure Spark Gap Switch) 内に充填する SF₆ ガスの圧力特性を調べるために、ガス圧を 0.1 から 1.0 MPa まで 0.1 おきに变化させた。図 2.16 に、異なるガス圧に対するナノ秒パルス高圧発生装置への充電電圧のピーク値を示す。このとき、負荷には 130 Ω の整合抵抗を接続し、充電インダクタンスは 2.5 μH とした。図 2.16 より、充電電圧は SF₆ ガス圧の増加に伴い上昇している。これは、スパークギャップスイッチの絶縁破壊電圧がガス圧に依存しているためである。図 2.17 に、異なるガス圧に対する負荷の出力電圧波形を示す。図 2.17 より、出力電圧のパルス幅は SF₆ ガス圧には依存せず、出力電圧のピーク値はガス圧の増加に伴い上昇し、1.0 MPa では 44.1 kV を示した。以上より、ナノ秒パルス高圧発生装置の出力電圧は SF₆ ガス圧によって制御可能である。

(3) 負荷抵抗依存性

ナノ秒パルス高圧発生装置を排ガス処理実験に適用する際、負荷には放電管が接続される。この場合負荷のインピーダンスが変化するため、その影響について調べた。図 2.18 に、負荷抵抗値を 40 から 1000 Ω まで变化させた場合の負荷の出力電圧波形を示す。このとき、SF₆ ガス圧および充電インダクタンスはそれぞれ 1.0 MPa, 2.5 μH とした。図 2.18 より、負荷の抵抗値が増加するのに伴い、出力電圧のピーク値は上昇した。一方、1 パルス出力後の電圧波形の振動も抵抗値増加とともに大きくなった。これは、三重同軸型ブルームライン線路と負荷との間の反射係数の違いによると考えられる。

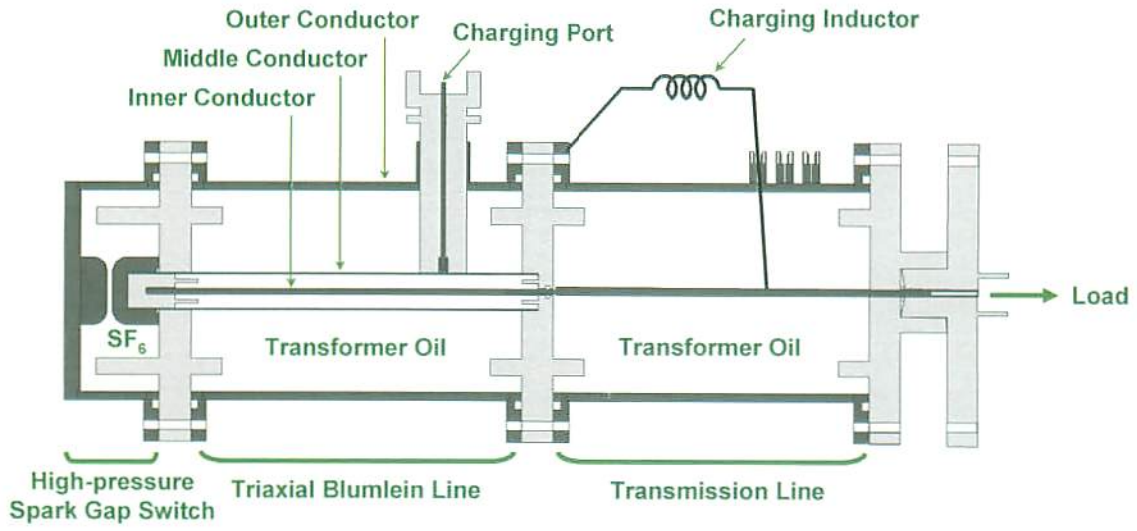


(a) 同軸ケーブル型

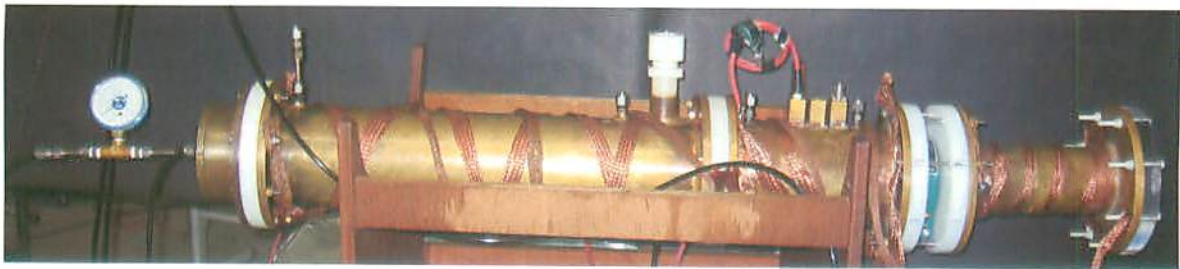


(b) 三重同軸型

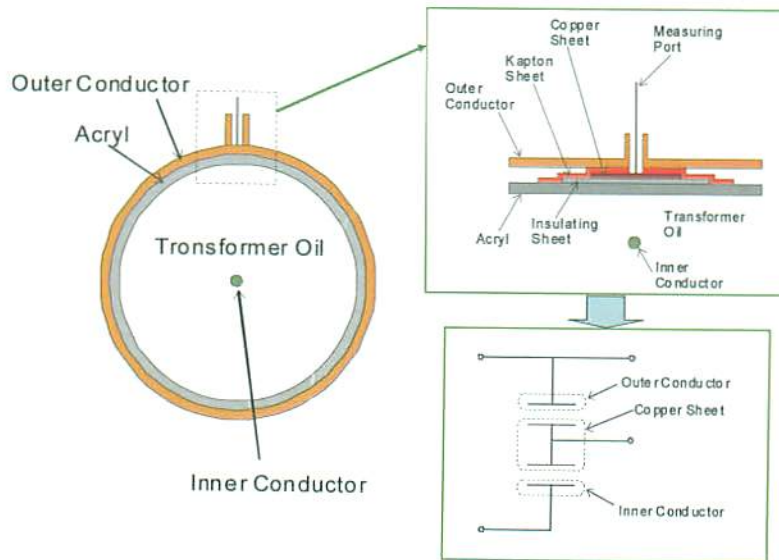
図 2.12 ブルームライン線路の比較概略図



(a) 構造図



(b) 外観 (放電管負荷接続の場合)



(c) 容量分圧器 (伝送線路内へ組み込み)

図 2.13 ナノ秒パルス高電圧発生装置

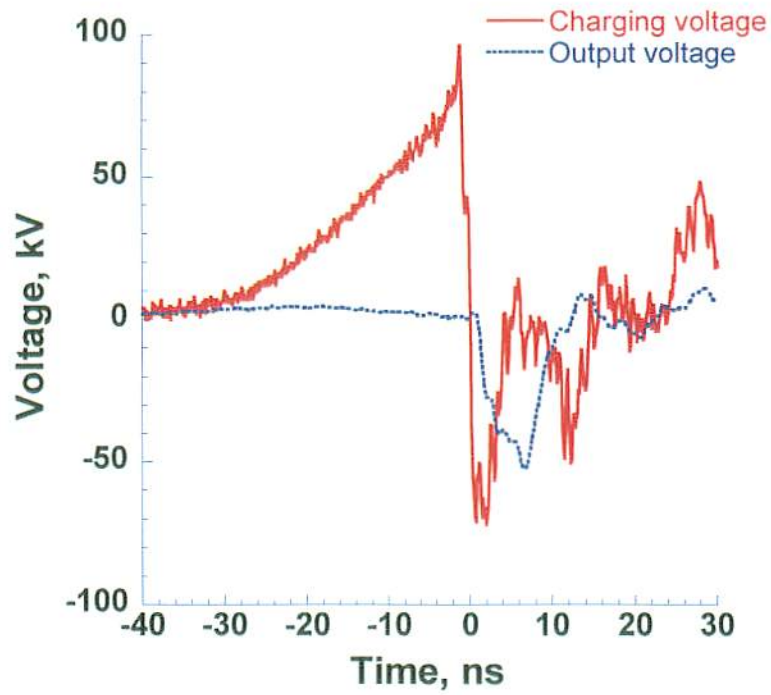


図 2.14 典型的なナノ秒パルス高圧発生装置への充電電圧波形および負荷の出力波形
(130Ω , $2.5 \mu\text{H}$, 1.0 MPa)

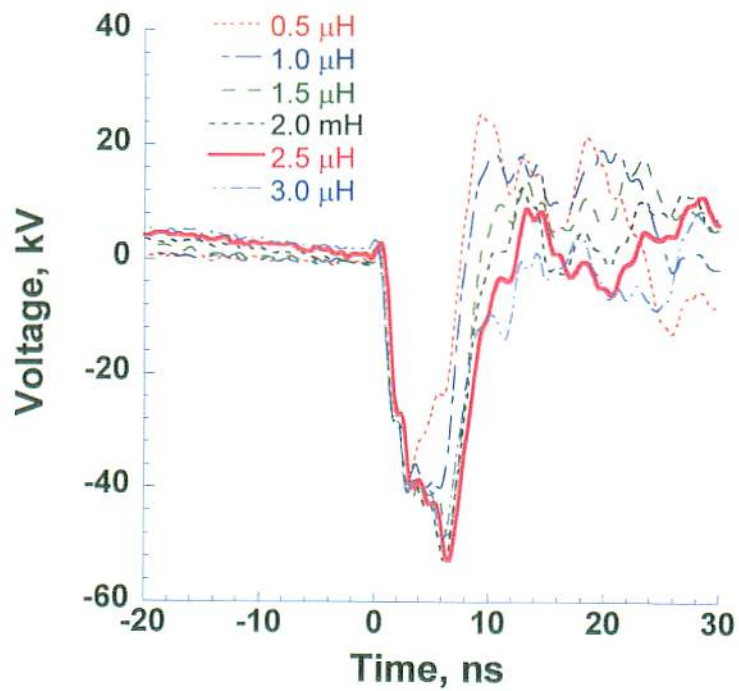


図 2.15 出力電圧の充電インダクタンス依存性 (130Ω , 1.0 MPa)

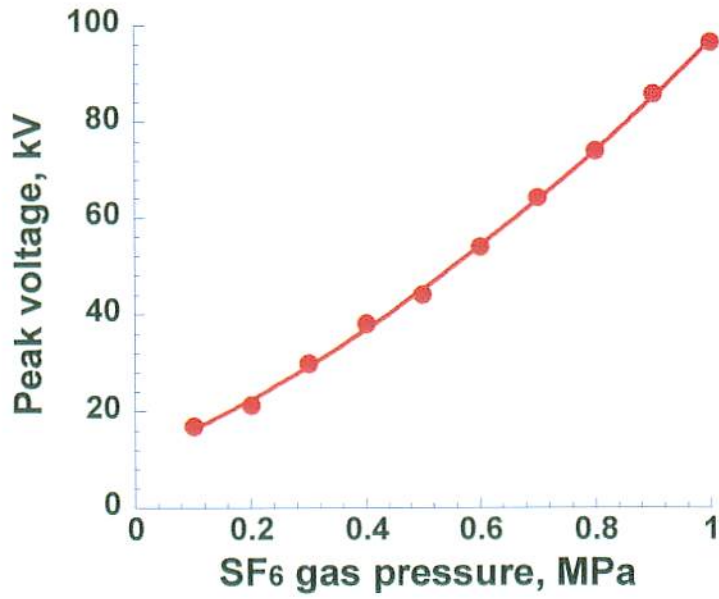


図 2.16 充電電圧ピーク値の SF₆ ガス圧依存性 (130 Ω, 2.5 μH)

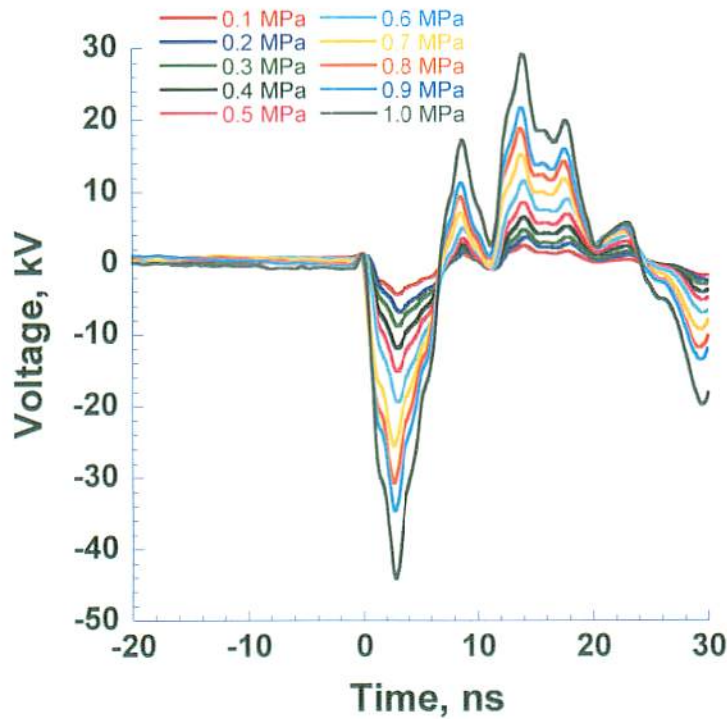


図 2.17 出力電圧の SF₆ ガス圧依存性 (130 Ω, 2.5 μH)

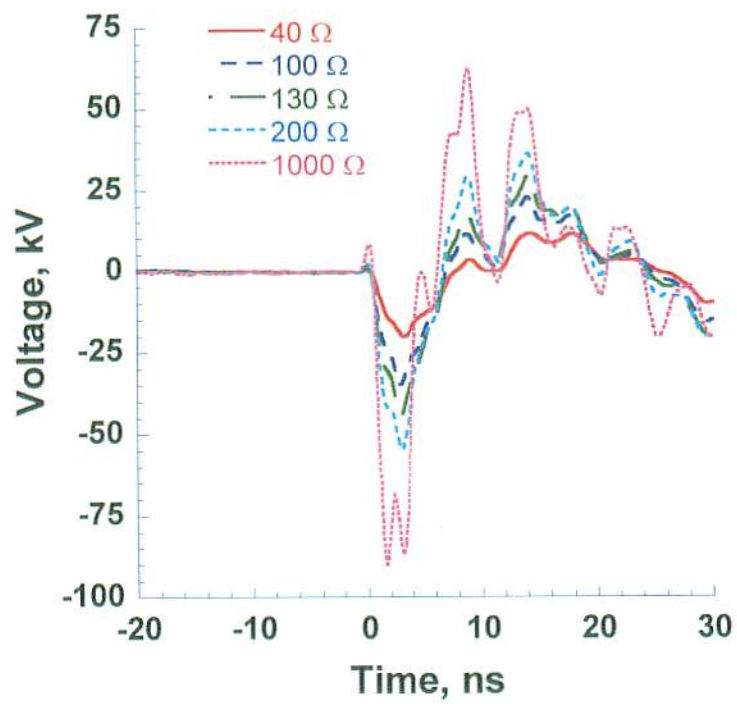


図 2.18 出力電圧の負荷抵抗値依存性 (1.0 MPa, 2.5 μ H)

第3章 パルスストリーマ放電の観測

本研究では、排ガス処理の方法として気体中にパルスストリーマ放電を印加生成している。この章では、パルスストリーマ放電および観測実験の結果について述べる。

3.1 放電の歴史 [1]

放電は、電磁気現象のうちで、人類に最も古くから知られていた。すなわち雷である。雷・稲妻は、原始時代から人々の恐怖の対象であったようで、ギリシャ神話の主神ゼウス・北欧神話のトール神のシンボル・武器となった。放電は雷・絶縁破壊などのかたちで害を及ぼすだけではなく、さまざまに利用されて現代工業社会を支えている。放電の研究は、表 3.1 の気体エレクトロニクス発見史に示されるように、物理学者による研究史・学説史から始まった。さらに、工学畑の学者により応用上で重要な放電の研究史が展開され、高電圧工学として発展した。この物理学と高電圧工学を結ぶ鍵となる学者の一人に Winfried O. Schumann が挙げられる。

現在の電気物理・電気技術においては、放電は電離空間・電離チャンネルあるいはその形成を指すが、本来放電“discharge”は「たまっているものを放出する」ことであった。今日でも電池の「放電」は、この意味で使われている。放電は、本来は unload であり、電気がある物体から他の物体へ移ることである。Unload しないように保っておくのが絶縁であるから、放電と絶縁とは対となる概念であり、unload は絶縁破壊でもある。しかし、現在では unload という結果よりもその物理過程・機構を意味し、放電の語の意味が変化してきたあゆみが放電工学の形成でもある。

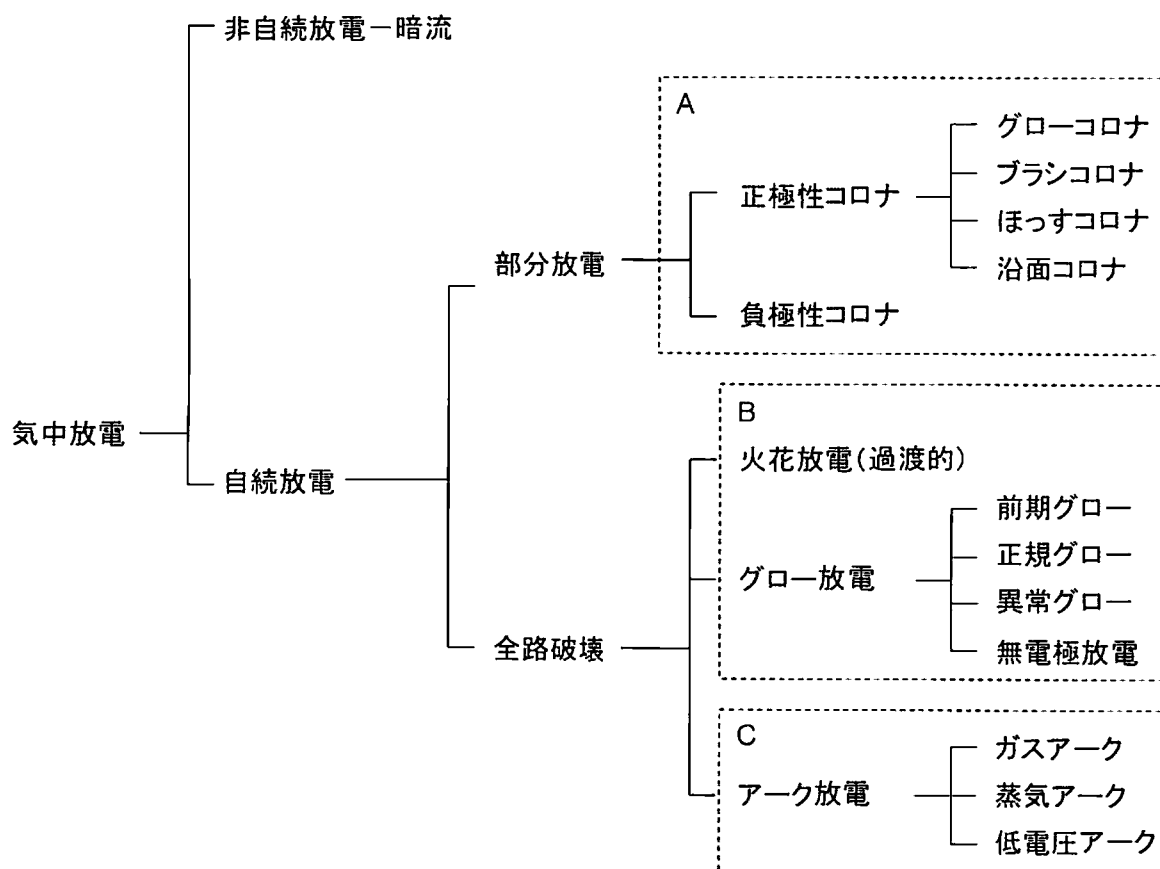
表 3.1 気体エレクトロニクスにおける発見 ([1])

年	概念	発見者
1600	電気	Gilbert
1742	電気火花	Desaguliers
1808	拡散	Dalton
1808	アーク放電	Davy
1817	移動度	Faraday
1821	アーク (名前)	Davy
1834	陰極と陽極	Faraday
1834	イオン	Faraday
1848	放電橋	Abria
1860	平均自由行程	Maxwell
1876	陰極線	Goldstein
1879	物質の第四状態	Crookes
1880	パッシェン曲線	La Rue and Müller
1889	マクスウェル・ボルツマン分布	Nernst
1891	電子 (電荷)	Stoney
1895	X線	Röntgen
1897	サイクロトン周波数	Lodge
1898	電離	Crookes
1899	移動方程式	Townsend
1899	エネルギー利得の式	Lorentz
1901	タウンゼント係数	Townsend
1905	荷電粒子の拡散	Einstein
1906	プラズマ周波数	Rayleigh
1914	両極性拡散	Seeliger
1921	ラムザウア効果	Ramsauer
1925	デバイ長	Debye and Hückel
1928	プラズマ	Langmuir
1935	速度分布関数	Allis

3.2 気体の放電現象 [2]

通常、気体は絶縁性の媒体である。しかし、二枚の金属板の間に気体を入れ、金属板間の電圧を次第に大きくしていくと、ある値に達したときに突然電流が流れ出し、金属板の間は明るく光るプラズマで結ばれる。これを気体の絶縁破壊、あるいは放電という。また、この瞬間の電圧を絶縁破壊電圧、あるいは火花電圧という。気体中放電は、外観上あるいは電圧電流特性上から種々に分類される。表 3.2 にその一例を示す。外部からの刺激によって電子の供給を停止しても電離が自続する段階の自続放電、電子の供給毎に電離が再開する段階の非自続放電とで大別され、自続放電は部分放電（金属間の部分放電はコロナ放電と呼ばれる）と全路破壊等に細分化される。ただし、点線で囲まれる A の範囲の分類は外観によるもので、B の範囲では電圧電流特性によって分類され、C の範囲では自続機構によって分類される。電流形態によってパルス放電、無パルス放電に区別可能であり、放電を開始させるために初期電子を与える技法によって、トリガ放電、レーザ放電などの呼び名がある。

表 3.2 気体中放電の形式 ([1])



3.3 初期電子の発生

放電がスタートするには、タネとなる電子（初期電子）が必要である。自然界には常に高エネルギーの宇宙線、放射線、紫外線などがあり、これが電離を引き起こして（自然電離）偶発的に電子が発生する。この偶発電子がトリガとなって電界により加速され、衝突電離の連鎖反応が始まり、放電に至る。初期電子の生成機構には、負イオンからの電子離脱、電界電子放出、熱電子放出、光電子放出、自然電離、正イオンによる二次電子放出、水分効果などが挙げられる。放電の開始に対してどの生成機構が支配的となるかは、放電の種類によって異なる。

3.4 ストリーマ放電

放電の研究が進むに連れ、タウンゼント理論では説明が困難になる現象が観察されるようになった。とくに、気圧 (p) とギャップ長 (d) との積が $500 \text{ Torr}\cdot\text{cm}$ ($665 \text{ Pa}\cdot\text{m}$) 程度になると、火花過程の実験において下記の点が問題となった。

- (a) タウンゼント理論では、火花が発生するには少なくともイオンがギャップ間を走行する時間が必要であるが、それより短い時間 (1cm で 10^{-7} 秒以内) で火花が発生する。
- (b) タウンゼント理論では横方向に一樣な放電を想定しているが、実際に火花は細いフィラメント状で、時にはジグザグ形状を示す。また、1930年代に霧箱を用いて電子なだれが紡錘状であることが観測された。

これらの事象を受けて、1930年代の後半にイギリスの J. M. Meek とアメリカの L. B. Loeb はストリーマ理論を提案した。これは γ 作用を必要とせず、 α 作用と光電離、空間電荷による電界を考慮した理論である。

ここで、ストリーマ理論において重要となる電子なだれ (electron avalanche) について述べる。気体に電界を加えておいて、そこに電子を走らせると、電子は電界によって加速されて運動エネルギーを得る。そのエネルギーが気体の電離エネルギーより大きくなると、陰極を出発した電子よりも陽極に到達する電子の数が著しく増大する。このような電子増倍過程を電子なだれという。

3.4.1 Meek の理論 (正ストリーマ) [3]

これは、平等電界の中で、偶発電子をタネとして一本の電子なだれが進展し、陽極へ到達する理論である。図 3.1 に電子なだれから正ストリーマへの転換を示す。その構成は、先端頭部が正イオンシース、背後幹部がプラズマとなっている [4]。図 3.1 に示すように、電子と正イオンの速度の違いから、電子なだれの先端部分には電子が多く存在し、後方には正イオンが残され、強い空間電界を作り出す。電子なだれの進展に伴う紫外線で作り出された光電子は、イオンの空間電界で加速され、二次的な電子なだれを形

成する。この電子はイオンに吸収されて中和し、ストリーマと呼ばれる細いプラズマ柱を形成する。これが陰極へと進展していき、陰極へ達すると絶縁破壊を起こす。

なお、Meek は電子なだれが通過した後に残された正イオンが作り出す電界（空間電荷電界）が外部電界と同程度になると、電子なだれがストリーマに転換すると考えた。

3.4.2 Raether の理論（負ストリーマ） [5]

図 3.2 に負ストリーマの進展を示す。その構成は、先端部が電子シース、背後部がプラズマとなっている [4]。図 3.2 より、電子なだれが成長すると、なだれの先端には電子が分布する。したがって、陽極と電子なだれ先端の間の空間の電界が強まることになり、電離係数が大きくなる。その空間に光電離により電子が供給されると、なだれの先端から離れた位置より、いくつかの電子なだれがそれぞれ成長する。このようないわゆる飛び火作用により電子なだれが離れた位置から進展し、また、先端の電子なだれの痕跡に残留している正イオンの中に後続の電子なだれが電子を供給し、プラズマ状態を形成する。

光電離をもたらす光は、電子とイオンの再結合によって放出されるとしている。光電離が放電路の進展に寄与するため、放電路の進展速度が速くなることを説明できる。

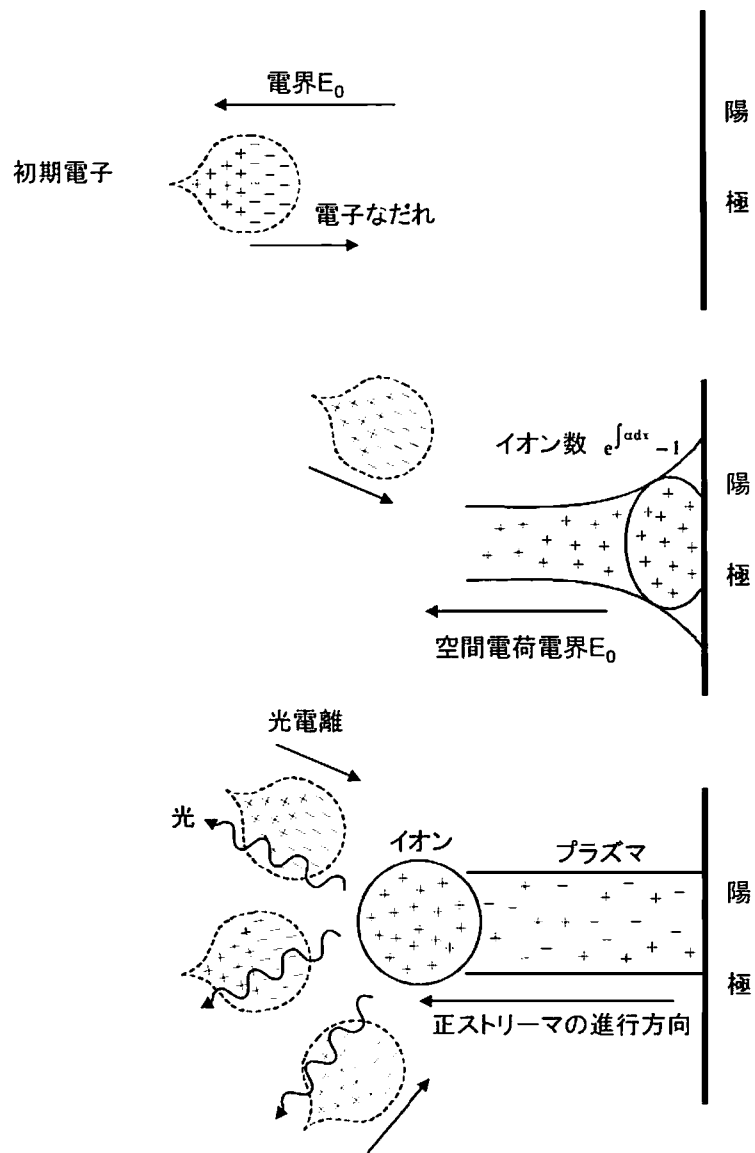


図 3.1 電子なだれから正ストリーマへの転換 ([2])

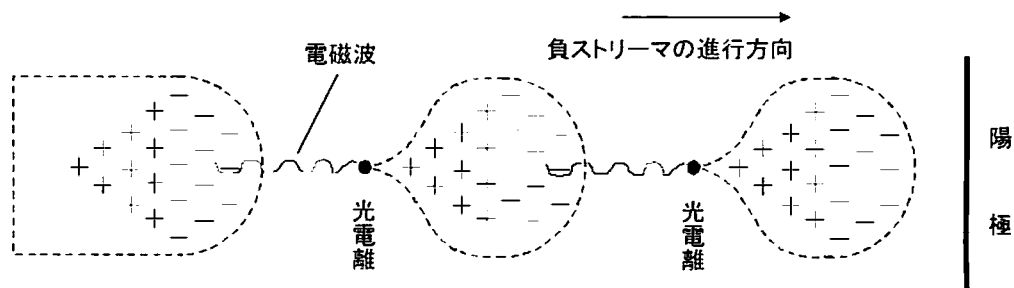
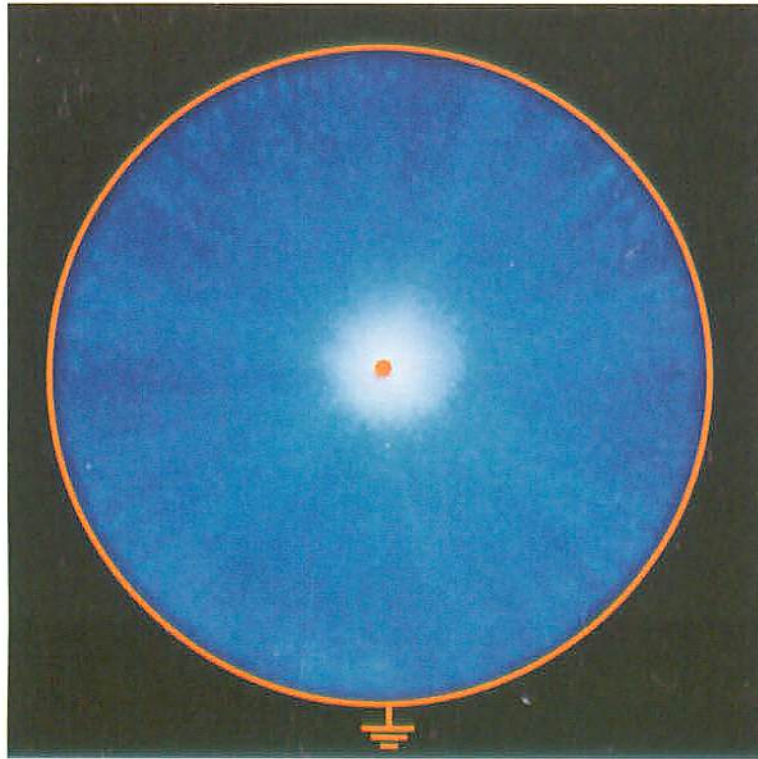


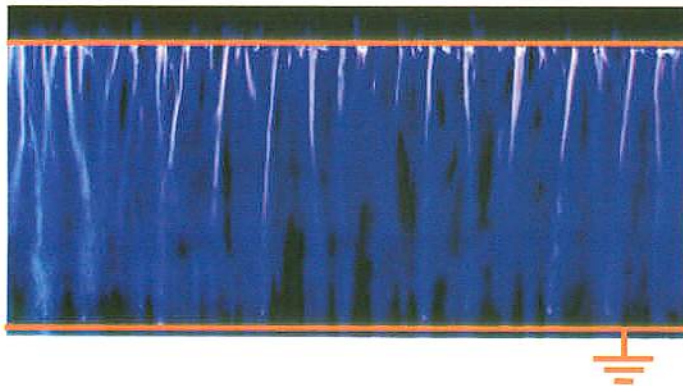
図 3.2 負ストリーマへの進展 ([1])

3.5 スチールカメラによる放電観測

図 3.3(a)に、同軸円筒型電極（排ガス処理実験で使用するものと同形状）における、軸方向から撮影した放電写真を示す。また、軸方向からの放電様子を観測するために、長さ 5 m の線対平板型電極における写真を図 3.3(b), (c)に示す。実験はパルス幅 100 ns の三段ブルームライン線路を用いて、ギャップ長 38 mm の電極へ正極性のパルス電圧を印加し、(a)は窒素中、(b), (c)は大気中において行なった。また、(a), (b)は 1 ショット、(c)は 10 ショット分の放電の積分写真である。図 3.3(a), (b)より、電極間に線状（ストリーマ）の放電が均一に印加されている。また(c)より、長い放電路においても一様に放電が印加される様子が確認できた。



(a) 軸方向からの撮影（同軸円筒型電極、1ショット）



(b) 軸方向への撮影（線対平板型電極、1ショット）



(c) 軸方向への撮影（線対平板型電極、10ショット、5 m 全体）

図 3.3 スチールカメラ撮影によるパルスストリーマ放電の様子

3.6 高速ゲート付 ICCD カメラによる放電観測（齧取り） [6]

図 3.4 に、高速ゲート付 ICCD カメラによるパルスストリーマ放電撮影時の実験装置の構成を示す。パルス電源としては 100 ns 三段ブルームライン線路を用い、撮影電極には大気圧乾燥空気中に設置された径が異なる二種類の同軸円筒電極を用いた。電極①は内部電極外径 0.5 mm、外部電極内径 76 mm、長さ 10 mm とし、電極②は内部電極外径 0.5 mm、外部電極内径 152 mm、長さ 10 mm とした。これ以降、電極①を ϕ 76 mm、電極②を ϕ 152 mm と呼ぶ。内部電極にはステンレス、外部電極には銅を用いた。電極長さを 10 mm と短くしたのは、放電管の奥行きへ起因するストリーマ像の重なりを減らし、一本のストリーマ像をより鮮明に撮影するためである。撮影に用いた高速ゲート付 ICCD カメラ (C7972-01, 浜松ホトニクス, 日本) は、最短露光時間 5 ns のゲートおよび最大増幅率 10,000 の MCP (Micro Channel Plate) を有する。実験では露光時間を 5 ns と固定し、パルス電圧印加から撮影終了までの時間を 10 ns 毎に 0 から 130 ns の範囲で遅延させた。三段ブルームライン線路への充電電圧を 20, 25, 30 kV と変化させ、電極へ印加した 1 ショット分の放電写真を撮影した。印加電圧および放電電流の波形は、写真撮影と同時にそれぞれ抵抗分圧器 (Ratio, 1:10k)、電流プローブ (Pearson current monitor, Model 2878, Pearson Electronics, USA) を介し、シールドルーム内に設置されたオシロスコープ (HP 54542A, Hewlett Packard, USA) により計測した。なお、実験データの精度を上げるために、各遅延時間において撮影を 10 回繰返し行なった。

図 3.5(a), (b) に、 ϕ 76 mm における、放電撮影時の同軸円筒電極への印加電圧および放電電流を示す。電圧・電流ともその最大値は、充電電圧の増加とともに大きくなった。電流に関しては、すべての充電電圧において急激に増加する現象が見られた。また、電圧印加開始 (0 ns) から電流急増までの時間は充電電圧の増加とともに短くなり、その時間は 55 ns (20 kV), 46 ns (25 kV), 40 ns (30 kV) であった。ここで、電流が急増する時間は、ストリーマヘッドが外部電極へ到達時間と一致していることを確認した。したがって電流が急増するのは、ストリーマヘッドの電極間進展時、ストリーマヘッドと外部電極間の浮遊容量は電流制限インピーダンスとして振舞い電流を抑制し、ストリーマヘッドの外部電極への到達後、ストリーマヘッド通過後のプラズマ中を大電流が流れるからである [7]。

図 3.6(a), (b) に、 ϕ 152 mm における、放電撮影時の同軸円筒電極への印加電圧および放電電流を示す。図 3.6(a) より、印加電圧のピーク値が ϕ 76 mm より少し高いのは、放電管の容量が ϕ 76 mm よりも小さくインピーダンスが高いため、三段ブルームラインから負荷への反射が大きいからと考えられる。図 3.6(b) より、放電電流が急増する時間は ϕ 76 mm より遅く、またピーク値も ϕ 76 mm の場合より遥かに低い値を示している。これは、電極ギャップが長い分ストリーマの外部電極到達に時間がかかり電流急増時間が遅くなり、外部電極に到達した時には電圧パルスが低下し始めたためにピーク

値が低いと考えられる。

図 3.7(a), (b)に、各遅延時間における放電撮影像を電圧・電流波形に重ねて示す。(a)はφ 76 mm における充電電圧 20 kV の場合、(b)はφ 152 mm における充電電圧 30 kV 時の場合である。図 3.7(a)より、各画像において発光が観測されているが、これらの発光は高電界を有するストリーマヘッド中の励起窒素・酸素からの輻射光であると考えられる [8-15]。また、ストリーマヘッドの通過後、その通過領域はプラズマ化し電界が緩和されるため窒素・酸素の励起が起こらず無発光となる。よって画像中の発光領域はストリーマヘッドの露光時間内における移動領域と考えられる。以降これを踏まえ各画像について考察する。まず撮影時間 0・5 ns ではまったく発光が観測されない。この時間は電極容量への充電時間と考えられる。次に 10・15 ns において内部電極近傍にストリーマヘッドが形成され、その後時間の経過とともに外部電極へ向けストリーマヘッドが進展している。ストリーマヘッドの外部電極到達後、電極間の電界は急激に緩和され、電極形状に起因する電界集中部である内部電極付近での発光のみとなる。このグローのような発光は約 135 ns まで続いた。図 3.7(b)より、φ 76 mm ではストリーマヘッドの外部電極到達時間が 50・55 ns であったのに対して、φ 152 mm では 70・75 ns と到達により長い時間が必要である。

ここで、数多く発表されているシミュレーション結果では、ストリーマヘッドの形状を直径約 100 μm の球状としている [16-20]。ゆえに、ストリーマヘッドの大きさは撮影した画像サイズに対して無視できると考え、式 (3-1) を適用することで各齧取り画像より進展中のストリーマヘッド速度を算出することが可能となる。

$$v_{\text{streamer}} = \frac{L}{t_{\text{exposure}}} \quad (3-1)$$

ここで、 v_{streamer} , L , t_{exposure} はそれぞれストリーマヘッドの進展速度、画像中発光領域の半径方向長さ、ICCD カメラの露光時間である。図 3.8(a), (b)に、φ 76 mm およびφ 152 mm における、電極への印加電圧およびストリーマヘッドの進展速度を示す。また図 3.9 に、ストリーマヘッド進展速度と電極への印加電圧の関係を示す。これらの結果より、ストリーマヘッドの進展速度は充電電圧の増加および電圧の立ち上がりの増加とともに増えた。また、電極ギャップが長いとストリーマヘッド進展速度は遅延時間の増加に伴って遅くなった。つまり、内部電極からの距離が長いほどストリーマヘッド進展速度は遅くなった。これは、同軸円筒電極では内部電極から離れるほど電界強度が弱くなるためである。以上より、ストリーマヘッドの進展速度は内部電極の電界強度と関係があり、本実験条件においては 0.9・3.3 mm/ns であった。

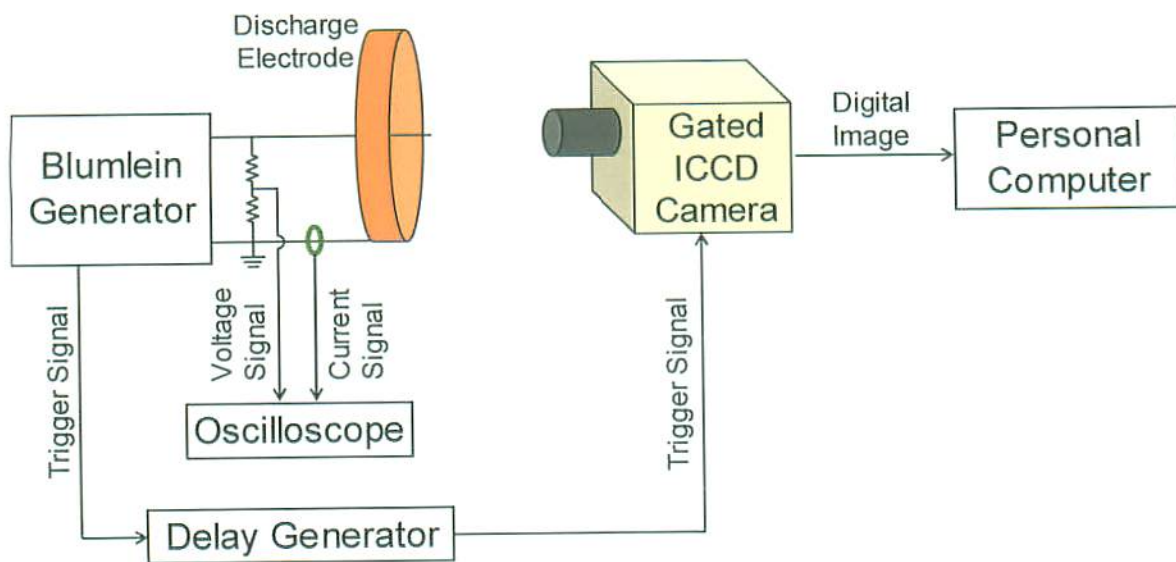
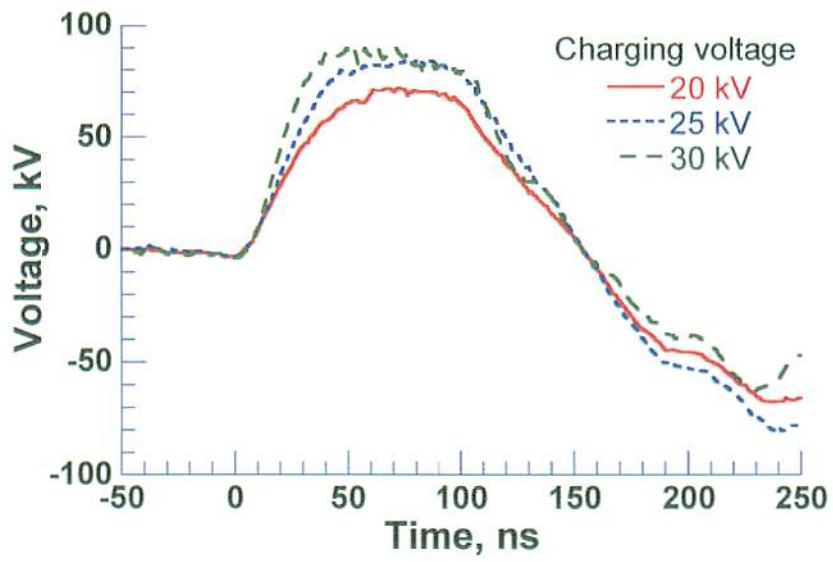
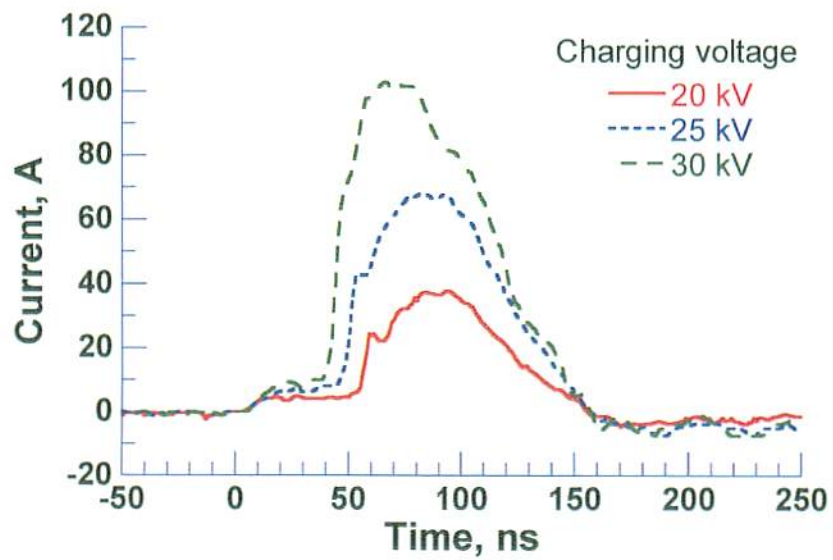


図 3.4 実験装置の構成 (高速 ICCD カメラによるパルスストリーマ放電の撮影)

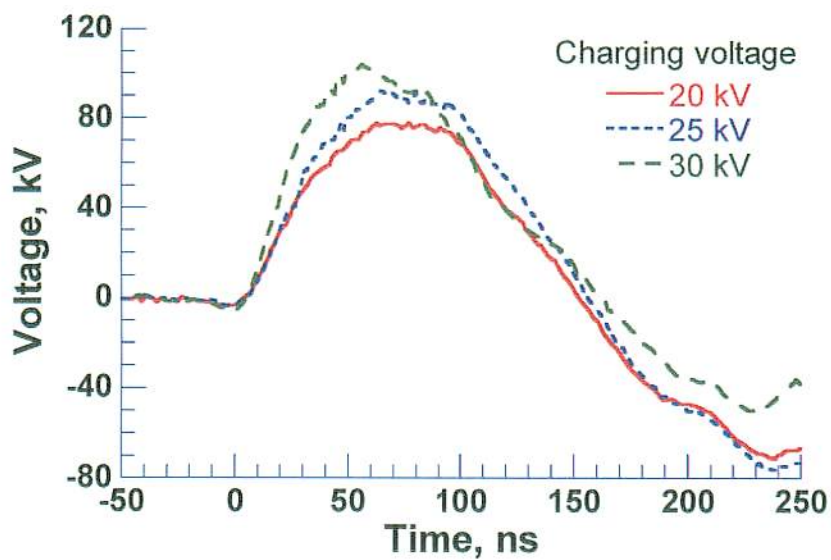


(a) 印加電圧

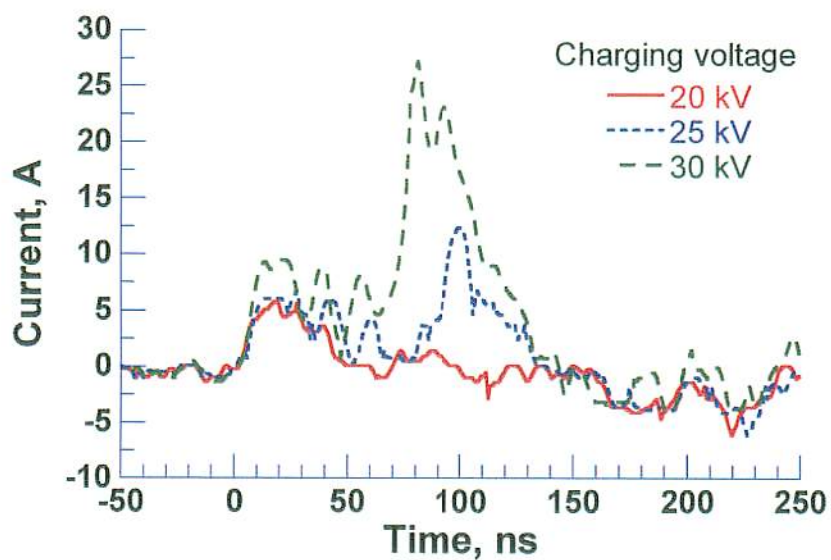


(b) 放電電流

図 3.5 放電撮影時の同軸円筒電極への印加電圧および放電電流 (ϕ 76 mm)

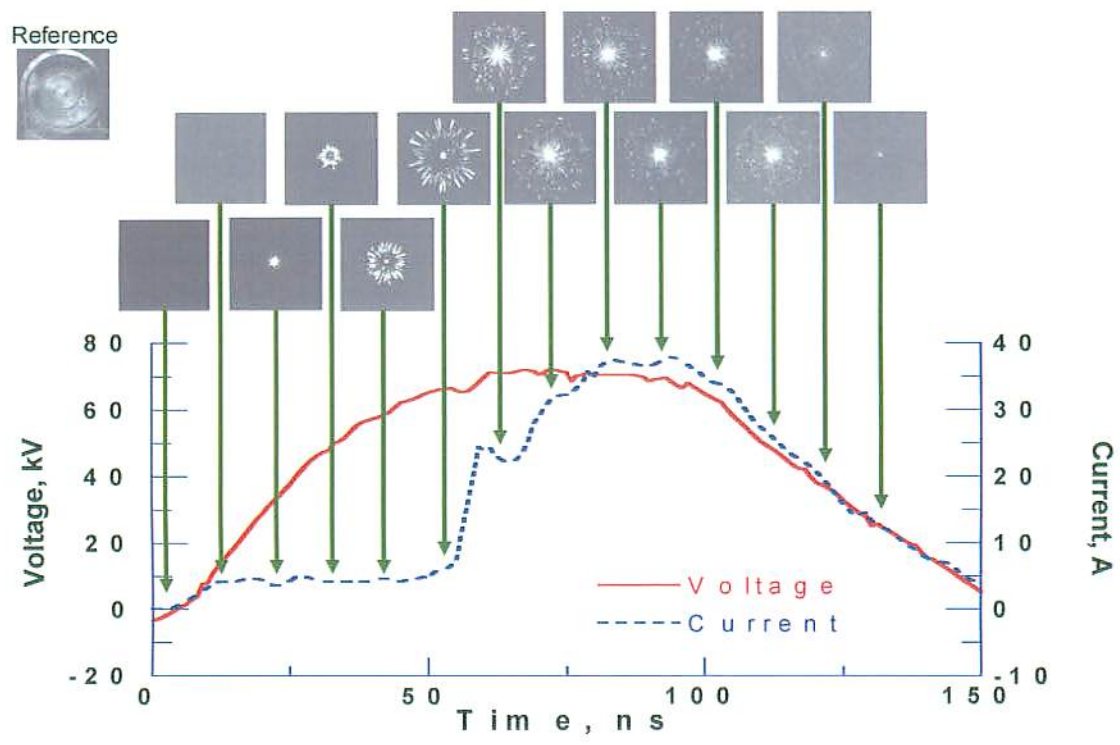


(a) 印加電圧

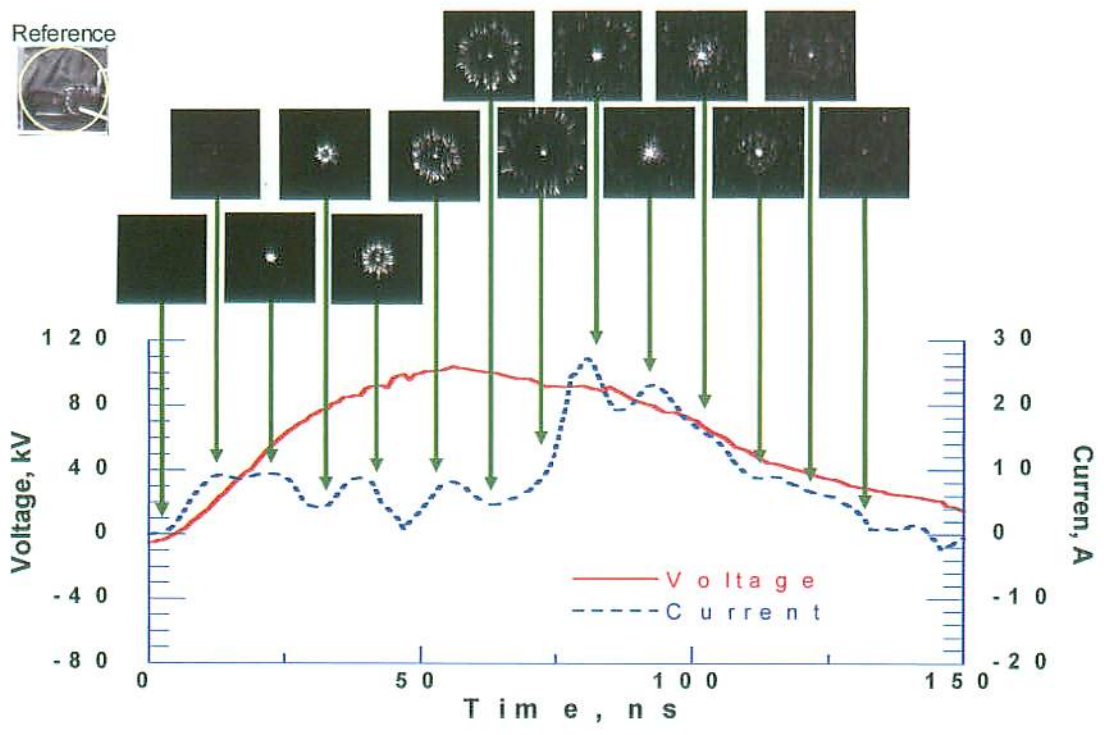


(b) 放電電流

図 3.6 放電撮影時の同軸円筒電極への印加電圧および放電電流 (ϕ 152 mm)

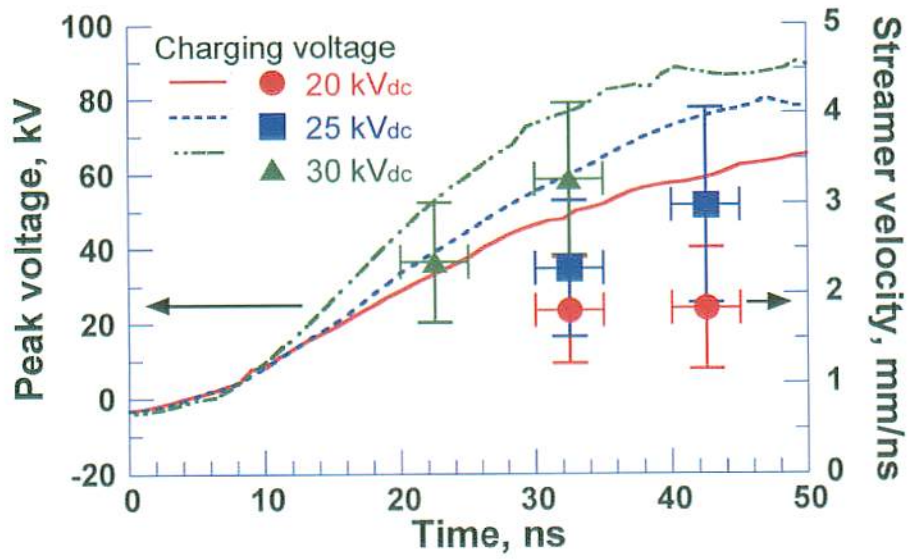


(a) ϕ 76 mm (20 kV 充電、72 kV 出力ピーク)

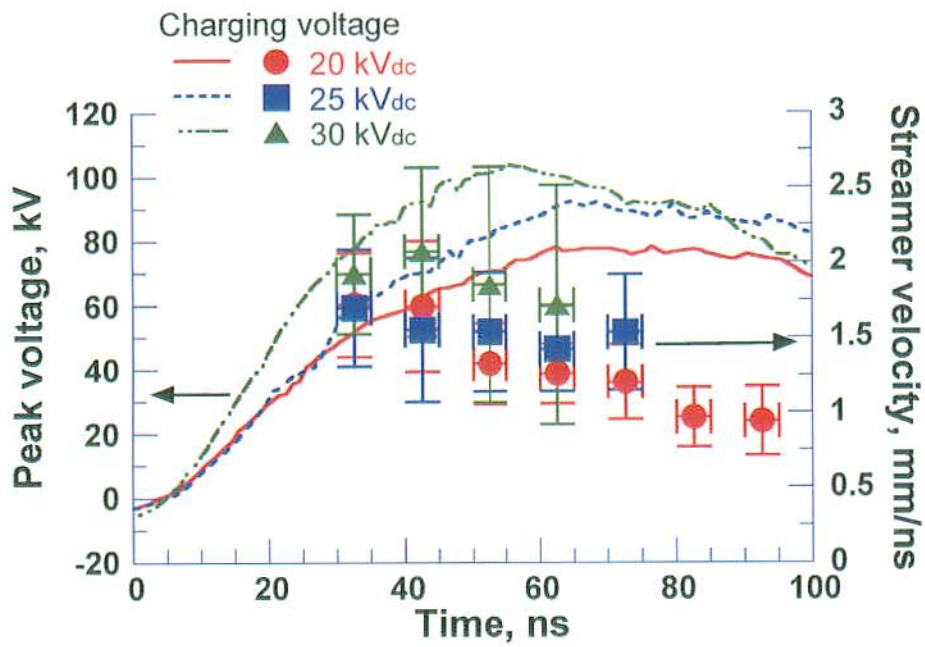


(b) ϕ 152 mm (30 kV 充電、104 kV 出力ピーク)

図 3.7 各遅延時間における放電撮影像



(a) ϕ 76 mm



(b) ϕ 152 mm

図 3.8 電極への印加電圧およびストリーマヘッドの進展速度

3.7 ストリークカメラによる放電観測（流し取り） [1]

3.7.1 三段ブルームライン線路

図 3.10(a)に、三段ブルームライン線路を用いた、ストリークカメラによるパルスストリーマ放電撮影時の実験装置の構成を示す。パルスパワー電源としては、パルス幅が 100 ns の三段ブルームライン線路を用い、撮影電極には大気圧乾燥空気中に設置された同軸円筒電極を用いた。電極は、3.6 項でもちいた ϕ 76 mm と同じく内部電極外径 0.5 mm、外部電極内径 76 mm、長さ 10 mm である。撮影に用いた高ダイナミックレンジストリークカメラ (C7700、浜松ホトニクス、日本) は、最短掃引時間 0.5 ns および最大増幅率 8.500 の MCP を有する。実験では、掃引時間を 200 ns と固定し、カメラのスリット幅は 50 μ m とした。三段ブルームライン線路への充電電圧を 20, 25, 30 kV と変化させ、正極性または負極性のパルス電圧を電極間へ印加した。なお、負極性電圧は三段ブルームライン線路出力端の高電圧側を接地させることで発生させた。三段ブルームライン線路のスイッチとして、サイラトロンを用いた。これは、スパークギャップスイッチと比較して放電が安定しているため、ジッターが比較的小さい特徴をもつ。したがって、実験において最も重要となる回路の遅延時間の制御は、ディレイ・ジェネレーター (DG535, Stanford Research Systems Inc., USA) を用いてサイラトロンおよびストリークカメラへの指令を行なうことで達成できた。実験は、電極へ印加した 1 ショット分の放電写真を撮影し、その時の印加電圧および放電電流の波形はそれぞれ抵抗分圧器 (Ratio, 1:10k)、電流プローブ (Pearson current monitor, Model 2877, Pearson Electronics, USA) を介し、シールドルーム内に設置されたオシロスコープ (54855A Infiniium, Agilent Technologies, USA) により計測した。図 3.10(b)に、典型的なストリーク写真を示す。ストリーク写真の縦方向はカメラの掃引時間を示し、横方向は中央に位置する内部電極を基準に、外部電極へ進むストリーマの進展位置 (Position) を左右対称に示す。なお、3.6 項で示した齧取り写真から、ストリーマは内部電極から外部電極へ向かってまっすぐに進展している。したがって、撮影したストリーク写真は一本のストリーマの像であるといえる。

図 3.11 に、正ストリーマ放電のストリーク写真を印加電圧・放電電流波形に重ねて示す。(a), (b), (c)はそれぞれ充電電圧 20 kV, 25 kV, 30 kV の場合である。図 3.11 より、いずれの写真もプライマリー・ポジティブ・ストリーマ (Primary Positive Streamer; PPS) が内部電極 (陽極) 付近から発生し、外部電極 (陰極) へ進展している様子が観測できた。PPS のストリーク像が線状を示すのは、ストリーマヘッド周辺の正電荷に起因した高電界が発生されるためヘッド部のみが光り、その発光軌跡が線状となったと考えられる。PPS が外部電極に到達した直後に、電流の急増が観測された。一方、PPS が外部電極へ向けて進展し内部電極から離れた後に、内部電極からセカンダリー・ポジティブ・ストリーマ (Secondary Positive Streamer; SPS) が発生し、PPS を追うように進展を始める [8]。しかし、外部電極に到達するはるか前に進展が終了した。こ

これは、PPS ヘッドがある程度内部電極から離れたところで再び内部電極近傍の電界が強まり SPS が発生するが、PPS の外部電極の到達後は周囲気体の電離を持続させるほど十分な電界強度を持たないため、途中で消失したと考えられる。SPS からの発光は、PPS が外部電極に到達した後もしばらく観測された。また、電圧の立ち上がりから PPS の発光が初めて観測されるまでの時間は、電極容量への充電時間と考えられる。以上の結果は、3.6 項で得られた齧取り写真の結果とよく一致している。

図 3.11 では、充電電圧が高いほど、PPS が外部電極へ到達するまでの時間が短い。したがって、以降ストリーマヘッドの進展速度について考察する。式 (3-2) に、各ストリーク写真からストリーマヘッドの進展速度を算出する方法を示す。

$$v_{\text{streamer}} = \frac{\Delta L}{\Delta t} \quad (3-2)$$

ここで、 v_{streamer} 、 ΔL 、 Δt はそれぞれストリーマヘッドの進展速度、写真中の PPS 像を格子状に一定間隔区切ったときの距離、その距離で進んだ時間である。

図 3.12 に、図 3.11 から得られた正ストリーマの進展速度を示す。図 3.12 より、速度は時間が経過するにつれて、つまり外部電極に近づくほど速くなり、また充電電圧が高いほど速い。これをもとに、正ストリーマ進展速度の電極間における位置依存性および電極への印加電圧依存性をそれぞれ図 3.13(a), (b) に示す。図 3.13(a) より、各充電電圧において進展速度はストリーマヘッドが外部電極に近づくほど速くなっている。また図 3.13(b) より、全ての充電電圧においてストリーマ進展速度は重なり、その速度は電極への印加電圧が高くなるほど速くなった。波形の後半がカーブしているのは、電圧波形におけるピーク値以降の電圧降下部分に相当するためである。以上図 3.13 より、正ストリーマの進展速度は電極への印加電圧にのみ依存し、電極間における位置には依存しないことを確認した。

さらに、図 3.14 に負ストリーマ写真を印加電圧・放電電流波形に重ねて示す。(a), (b), (c) はそれぞれ充電電圧 20 kV, 25 kV, 30 kV の場合である。図 3.14 より、内部導体（陰極）付近から負ストリーマが発生し、外部電極（陽極）へ向けて進展する発光が確認された。しかし、負ストリーマでは正ストリーマと比較して電流が非常に低いため、充電電圧 20 kV（図 3.14(a)）と 25 kV（図 3.14(b)）では内部電極からの発光は次第に薄くなり、外部電極には到達しなかった。一方、充電電圧 30 kV（図 3.14(c)）においては高い電界強度を持っているため、プライマリー・ネガティブ・ストリーマ（Primary Negative Streamer; PNS）が内部電極付近から進展し外部電極へ到達する様子が確認できた。また、セカンダリー・ネガティブ・ストリーマ（Secondary Negative Streamer; SNS）からの発光も確認できた。電流の絶対値が急増したあとは、外部電極から内部電極へ向けて進む発光も確認された。なお、負ストリーマの発生機構に関する詳細な説明は、更なる研究が必要である。図 3.15 に、正・負ストリーマ進展速度の電極への印加電圧依存性を示す。ただし、負ストリーマについては充電電圧 30 kV のみを算出し、

印加電圧は絶対値を示した。図 3.15 より、負ストリーマの進展速度は正ストリーマの約半分である。

以上の結果を踏まえて、ストリーマヘッドが内部電極付近で発生してから外部電極へ到達するまでの時間を電極ギャップ長で割った平均速度を、正・負ストリーマ両方について表 3.3 にまとめて示す。

表 3.3 ストリーマヘッドの平均進展速度（三段ブルームライン線路）

Charging Voltage Streamer Condition	20 kV	25 kV	30 kV
Positive 100 ns	0.8 mm/ns ($V_{\text{applied}\cdot\text{peak}}=43\text{kV}$)	1.0 mm/ns ($V_{\text{applied}\cdot\text{peak}}=56\text{kV}$)	1.2 mm/ns ($V_{\text{applied}\cdot\text{peak}}=60\text{kV}$)
Negative 100 ns	-	-	0.6 mm/ns ($V_{\text{applied}\cdot\text{peak}}=-93\text{kV}$)

図 3.11 より、全ての正ストリーマの結果において、PPS の開始時間における電極への印加電圧は 15 kV を示した。また、図 3.14 より、全ての負ストリーマの結果において、PNS の開始時間における電極への印加電圧は 25 kV を示した。ここで、ストリーマヘッドの進展開始電界強度について考察する。各実験条件におけるストリーマヘッド形成時の内部電極表面の電界強度 E_0 は、式 (3-3) より算出できる。

$$E_0 = \frac{V_{\text{applied}}}{r \ln \frac{r_2}{r_1}} \quad (3-3)$$

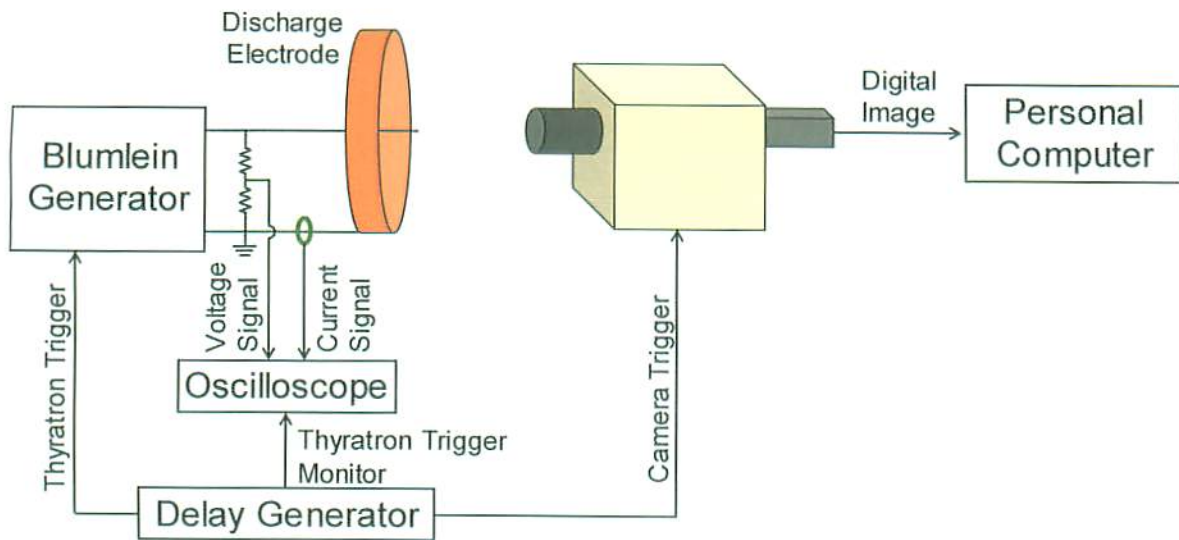
ここで、 V_{applied} 、 r 、 r_1 、 r_2 は PPS または PNS 開始時間における電極への印加電圧、同軸円筒電極中心からの距離、内部電極の半径、外部電極の半径である。本実験では、 r は内部電極の表面における距離、すなわち r_1 とする。Meek が提案したストリーマの自己進展条件 (Meek's criteria、式 3-4) [5], [157] によると、電子なだれの通過後に残された正イオンが作り出す電界 (空間電荷電界) E_S が外部電界 E_0 程度となるときにストリーマが発生する。したがって、本実験におけるストリーマヘッドの進展開始電界強度 E_S を表 3.4 のように示すことができる。

$$E_S = kE_0 \quad (3-4)$$

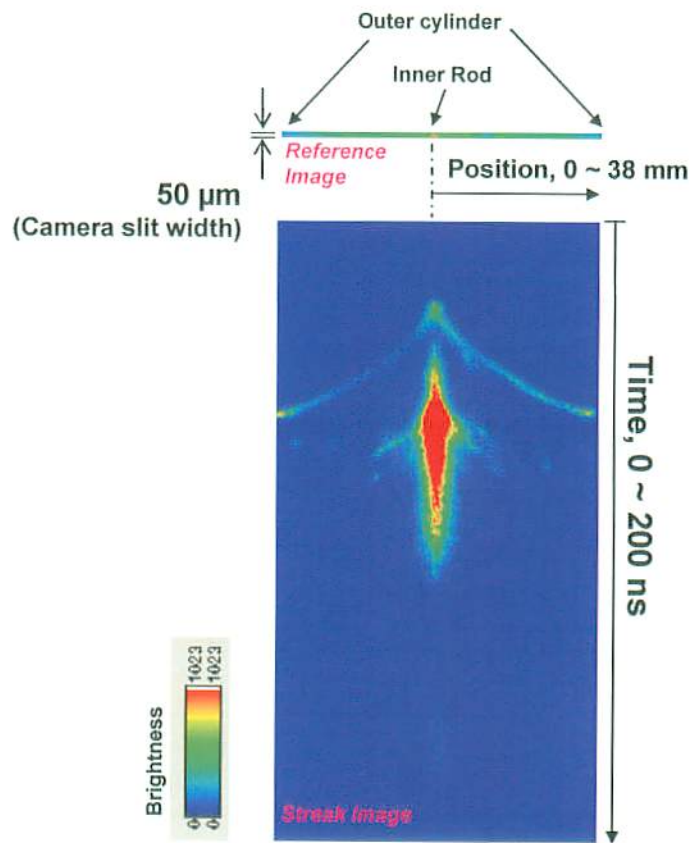
ここで、 k は補正係数で、 $k = 0.1 \sim 1$ の値をとる。ただし、本実験では $k = 1$ としている。

表 3.4 ストリーマヘッドの進展開始電界強度

Polarity Factor	Positive	Negative
$V_{\text{applied-onset}}$	15 kV	25 kV
E_s	11.9 MV/m	19.9 MV/m

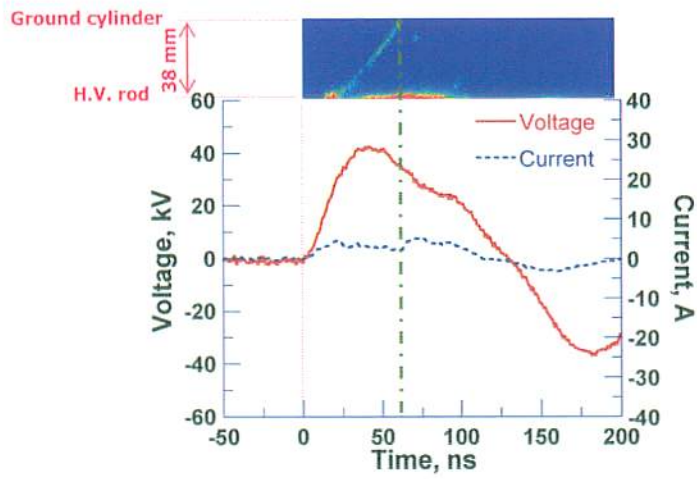


(a) 実験装置の構成

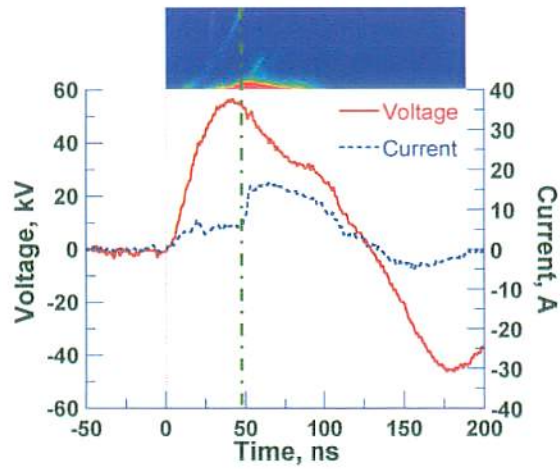


(b) 典型的なストリーク写真

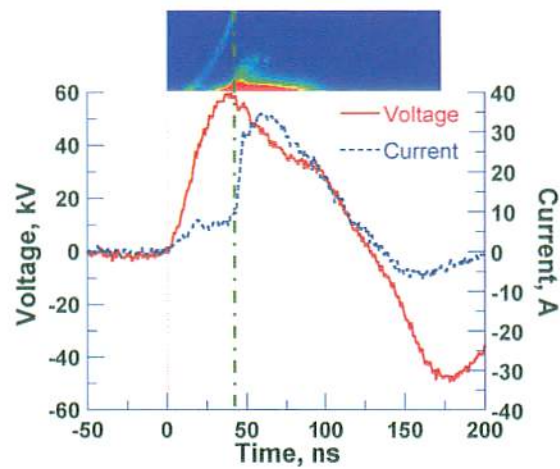
図 3.10 ストリークカメラによるパルスストリーマ放電の撮影
(三段ブルームライン線路)



(a) 充電電圧 20 kV



(b) 充電電圧 25 kV



(c) 充電電圧 30 kV

図 3.11 正ストリーマ放電のストリーク写真および印加電圧・放電電流波形
(三段ブルームライン線路)

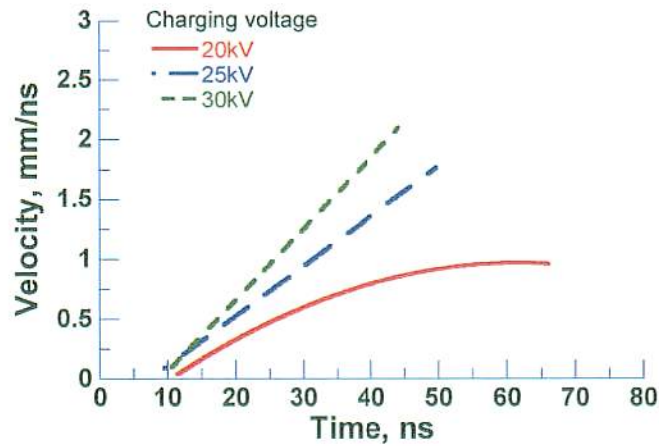
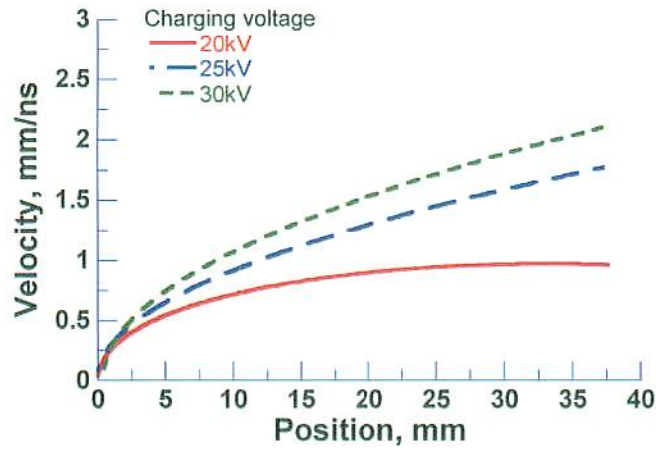
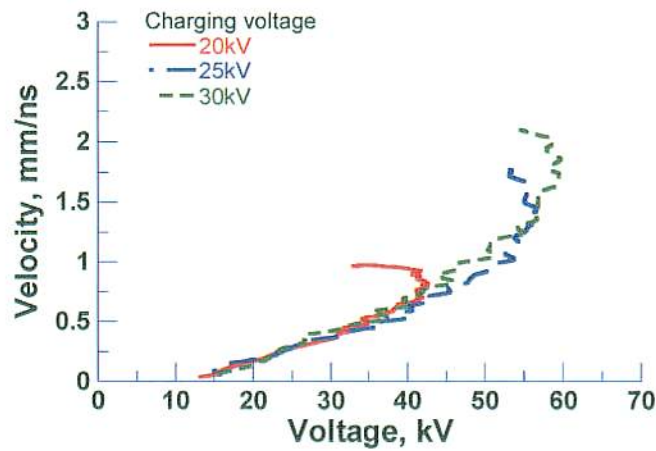


図 3.12 正ストリーマの進展速度 (三段ブルームライン線路)

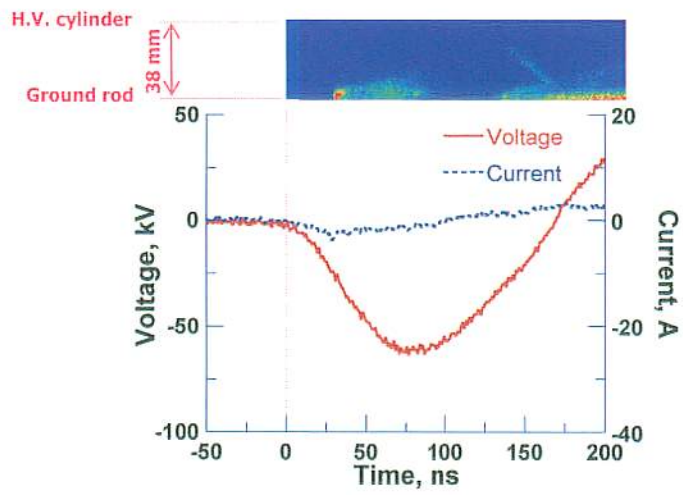


(a) 電極間における位置依存性

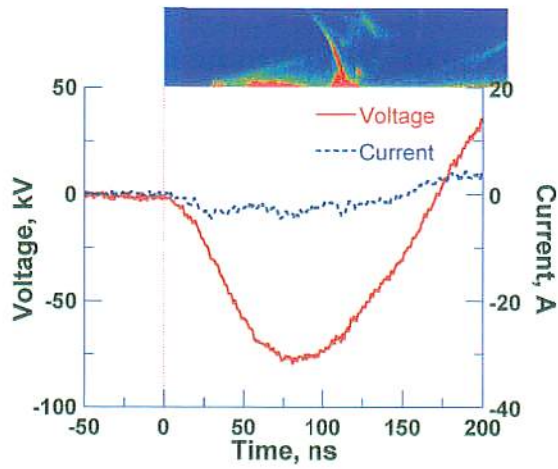


(b) 電極への印加電圧依存性

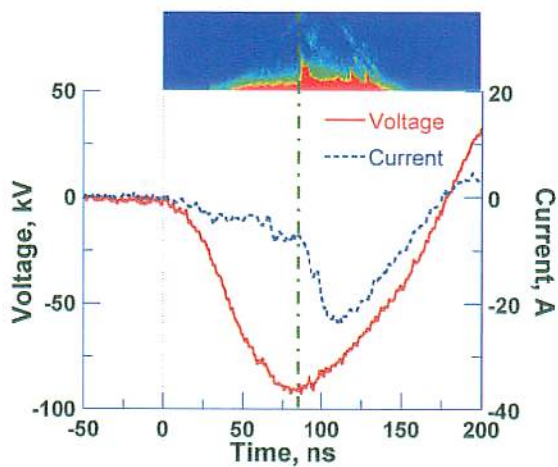
図 3.13 正ストリーマ進展速度の依存性 (三段ブルームライン線路)



(a) 充電電圧 20 kV



(b) 充電電圧 25 kV



(c) 充電電圧 30 kV

図 3.14 負ストリーマ放電のストリーク写真および印加電圧・放電電流波形
(三段ブルームライン線路)

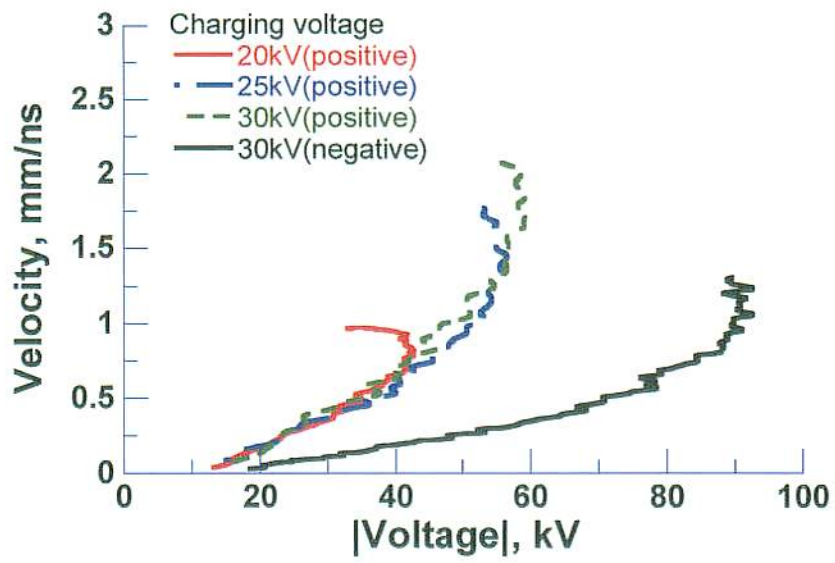


図 3.15 正・負ストリーマ進展速度の電極への印加電圧依存性
(三段ブルームライン線路)

3.7.2 ナノ秒パルス高電圧発生装置

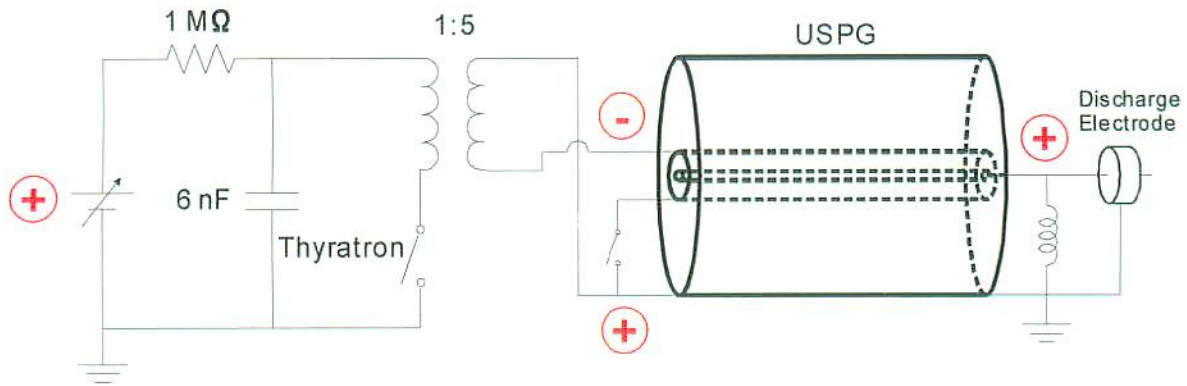
この実験では、ナノ秒パルス高電圧発生装置から正・負極性両方の出力電圧・電流を得られるように、充電電源としてコンデンサおよびパルストランスを用いた。図 3.16 に、ナノ秒パルス高電圧発生装置の回路概略図を示す。出力パルスの極性は、パルストランスの二次側の接続方法によって変化させた。撮影電極には大気圧乾燥空气中に設置された同軸円筒電極を用い、内部電極外径 0.5 mm、外部電極内径 76 mm、長さ 50 mm とした。ストリークカメラによるパルスストリーマ放電撮影時の実験装置の構成は、図 3.10 と同等である。実験では、ストリークカメラの掃引時間を 20 ns と固定し、カメラのスリット幅は 50 μm とした。ナノ秒パルス高電圧発生装置の出力電圧は、高圧スパークギャップスイッチ内に充填した SF₆ ガスの圧力を変化させ、0.3, 0.4, 0.5 MPa とした。実験は、電極へ印加した 1 ショット分の放電写真を撮影し、その時の印加電圧および放電電流の波形はそれぞれ容量分圧器 (ratio, 1:9.8k)、電流プローブ (Pearson current monitor, Model 6585, Pearson Electronics, USA) を介し、シールドルーム内に設置されたオシロスコープ (54855A Infiniium, Agilent Technologies, USA) により計測した。

図 3.17 と図 3.18 にそれぞれ正極性および負極性出力における、放電撮影時の同軸円筒電極への印加電圧・放電電流の波形を示す。また、図 3.19(a), (b) に、正極性および負極性出力におけるストリーク写真を示す。

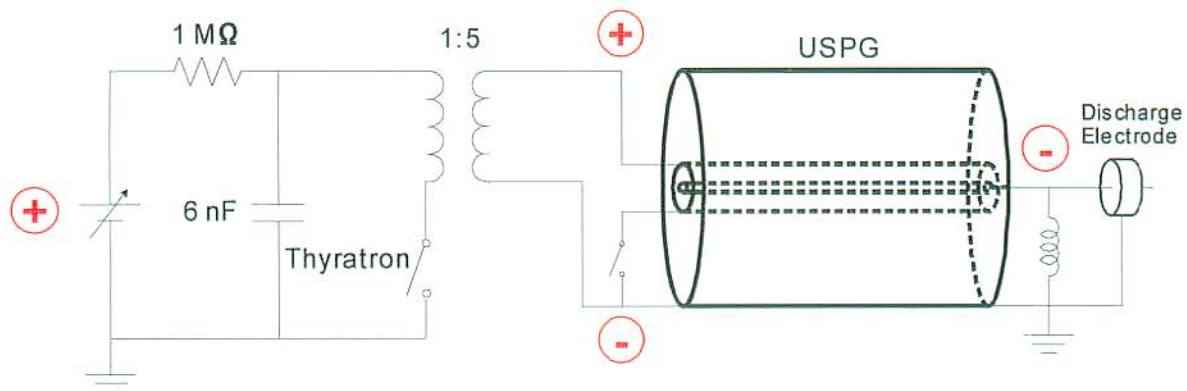
図 3.20 に、式 (3-2) より算出したストリーマヘッドの進展速度の電極間における位置依存性を示す。図 3.20 より、ストリーマヘッドの進展速度はパルス幅 100 ns (図 3.13(a)) と比較して非常に速くなっている。ストリーマヘッドが内部電極付近で発生してから外部電極へ到達するまでの時間を電極ギャップ長で割った平均速度を、表 3.5 にまとめて示す。表 3.5 より、SF₆ ガス圧力つまり印加電圧が高いほど、ストリーマヘッドの進展速度は速くなる。また、正極性と負極性の出力による明らかな速度差が見られなかった。この結果を表 3.3 と比較すると、ナノ秒パルス高電圧発生装置により誘起されたストリーマヘッドの進展速度は、三段ブルームライン線路のものより約 6 倍も速い。これは、ナノ秒パルス高電圧発生装置の電圧パルス立ち上がり時間が短いと思われる。ここで、出力電圧パルス幅が 7 ns のナノ秒パルス高電圧発生装置と 100 ns の三段ブルームライン線路の立ち上がり時間 (10 - 90 %) はそれぞれ 25 ns と 2.5 ns であり、10 倍の違いがある。したがって、ストリーマヘッド進展速度は、同じパルス幅の下において、出力電圧ピーク値を変化させたときの影響よりも電圧立ち上がり時間の影響の方が支配的であると考えられる。このことを踏まえて、今後は電圧パルスの立ち上がり時間を変化させた場合の研究が必要である。

表 3.5 ストリーマヘッドの平均進展速度 (ナノ秒パルス高電圧発生装置)

SF ₆ Gas Pressure (=Charging Voltage) Streamer Condition	0.3 MPa	0.4 MPa	0.5 MPa
Positive 7 ns	6.1 mm/ns (V _{applied-peak} =67kV)	6.5 mm/ns (V _{applied-peak} =77kV)	7.0 mm/ns (V _{applied-peak} =93kV)
Negative 7 ns	6.0 mm/ns (V _{applied-peak} =-67kV)	6.0 mm/ns (V _{applied-peak} =-72kV)	8.0 mm/ns (V _{applied-peak} =-80kV)

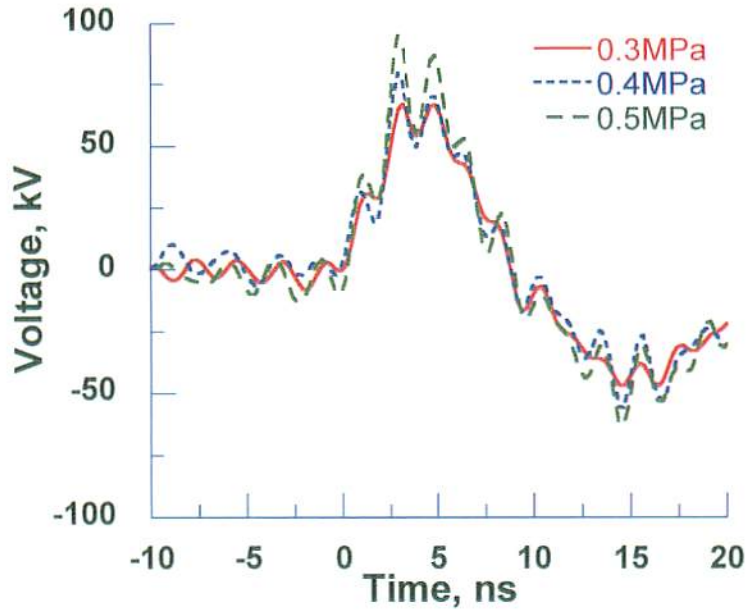


(a) 正極性パルス出力

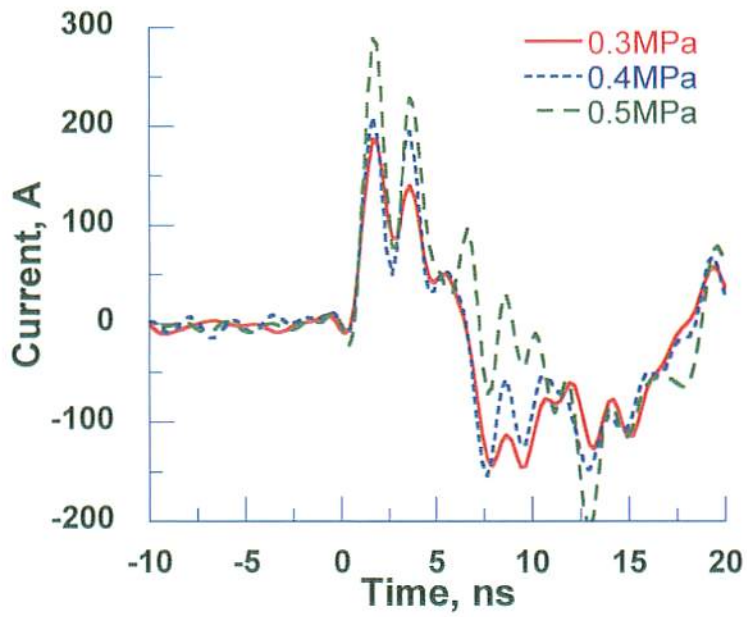


(b) 負極性パルス出力

図 3.16 ナノ秒パルス高電圧発生装置の回路概略図

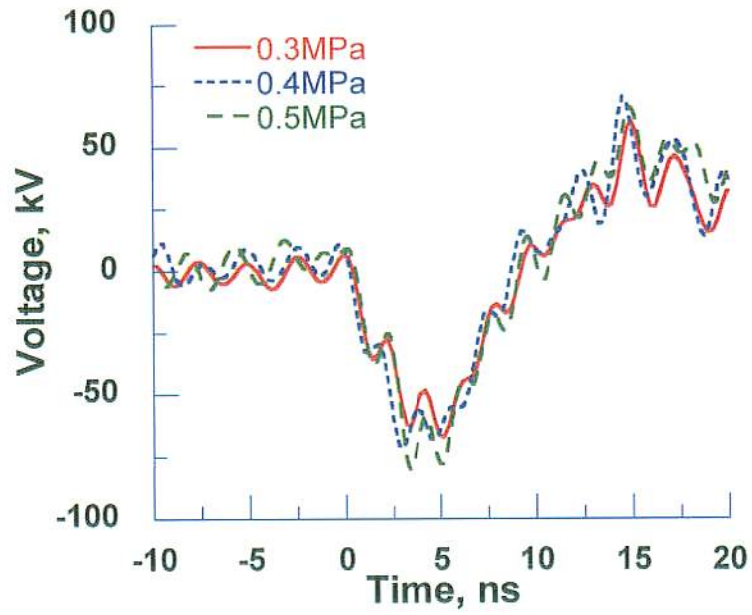


(a) 印加電圧

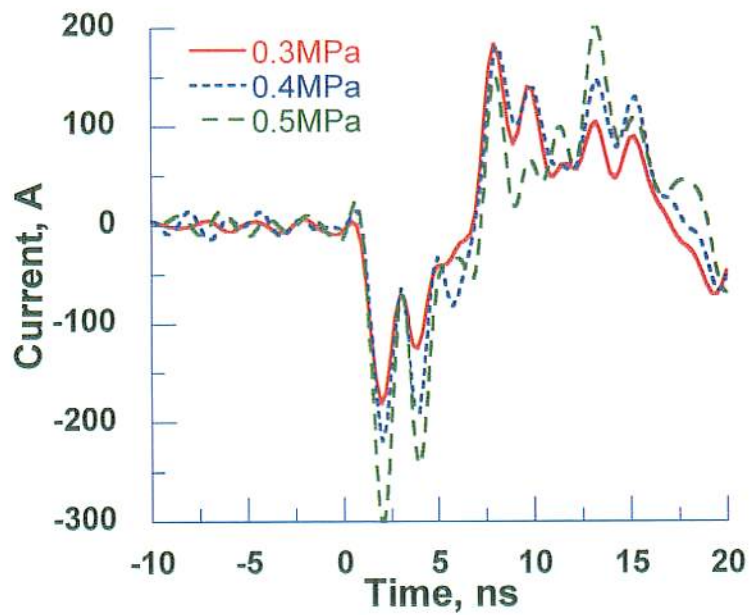


(b) 放電電流

図 3.17 放電撮影時の同軸円筒電極への印加電圧および放電電流 (正極性パルス出力)

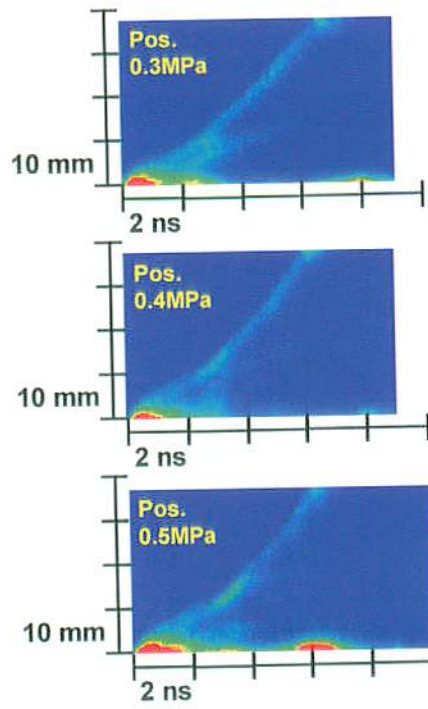


(a) 印加電圧

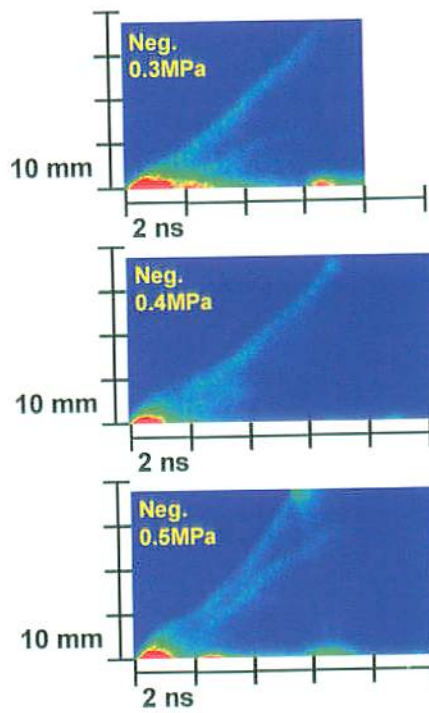


(b) 放電電流

図 3.18 放電撮影時の同軸円筒電極への印加電圧および放電電流（負極性パルス出力）

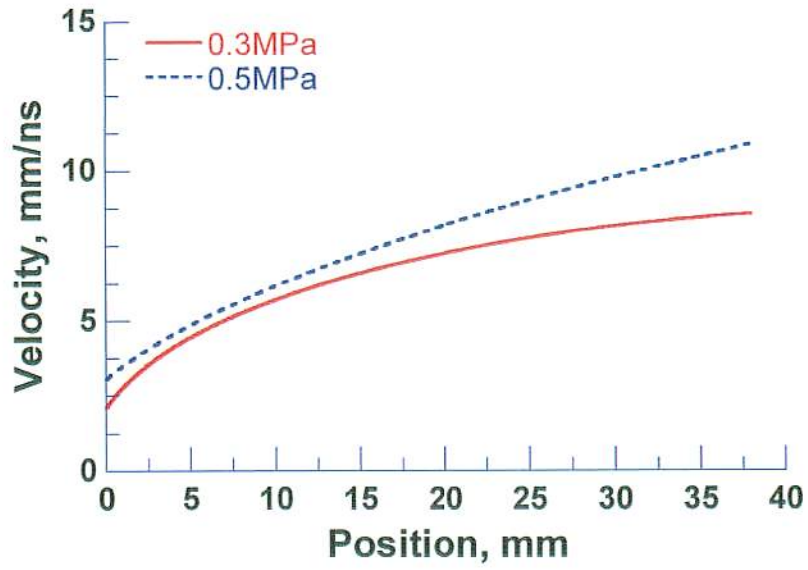


(a) 正極性パルス出力

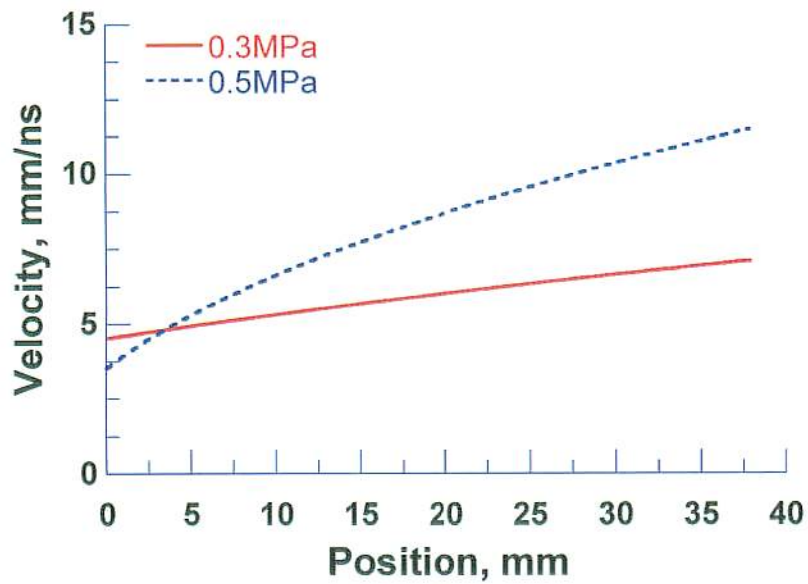


(b) 負極性パルス出力

図 3.19 ストリーク写真
(ナノ秒パルス高電圧発生装置)



(a) 正極性パルス出力



(b) 負極性パルス出力

図 3.20 ストリーマヘッド進展速度の電極間における位置依存性
(ナノ秒パルス高電圧発生装置)

3.7.3 希ガス（キセノン）中における放電の観測

希ガス (rare gas) は、原子における最外殻電子が閉殻となっているため他原子と結合することが無く、化学的に非常に安定した原子である。かつては化合物が知られていなかったために、不活性ガス (inert gas) 類と呼ばれていた。希ガスは、蛍光灯やプラズマディスプレイ、レーザー、真空紫外光源の開発などさまざまな分野において応用されている。ここでは、大気圧キセノン (Xe) を用いて、高速ゲート付 ICCD カメラによりその放電観測を行なった。

実験装置の構成は、放電電極を除いて図 3.4 と同等である。放電電極には線対平板型を用い、線電極直径 0.5 mm、電極間ギャップ 35 mm、電極長 200 mm とした。線電極へ正極性のパルス電圧印加し、平板電極は接地した。なお、電極の都合上、放電空間には若干の窒素が混入した。実験は、三段ブルームライン線路への充電電圧を 20 kV とし、他の条件は図 3.4 の場合と同等である。

図 3.21 に、Xe 中における放電撮影時の線対平板電極への印加電圧および放電電流を示す。また図 3.22 に、各遅延時間における放電撮影像を示す。図 3.22 より、撮影時間 15・20 ns において、空気中と同様に線電極近傍に無数のストリーマヘッドが形成され、その後遅延時間の増加とともに平板電極へ向けてストリーマヘッドが進展した。遅延 35・40 ns においてストリーマヘッドが平板電極へ到達しており、その時間で印加電圧が急激に低下し、同時に放電電流が急増した (図 3.21)。平板電極到達後、再び線電極近傍から発光が観測されたが、空気中のようにグロー状のもの (図 3.7) ではなく、強い光を伴うアーク放電となった。ストリーマヘッドが平板電極へ到達するまでの時間は、大気中の場合よりもわずかに短い。なお、撮影像のうち、線電極の上部方向へ進展するストリーマ発光は、容器の蓋によりストップしている。

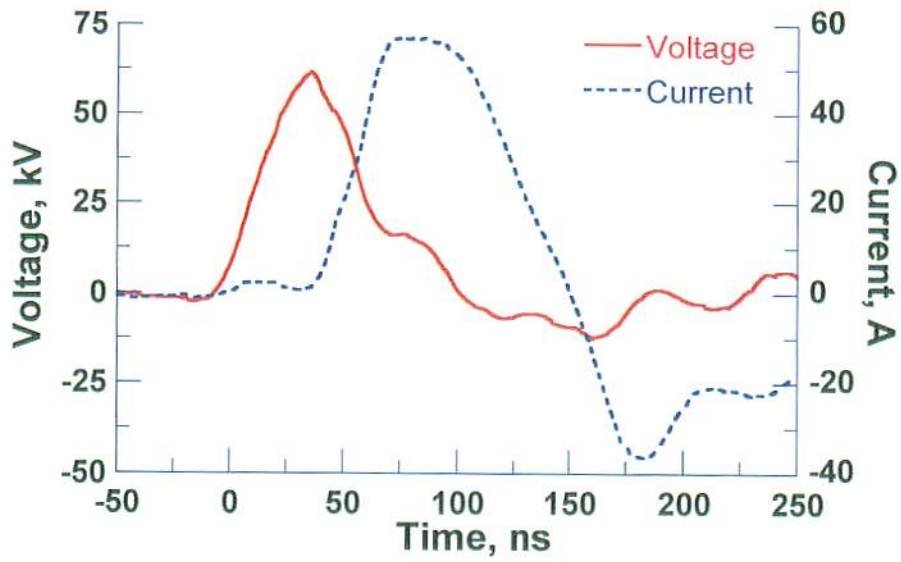


図 3.21 放電撮影時の線対平板電極への印加電圧および放電電流 (Xe 中)

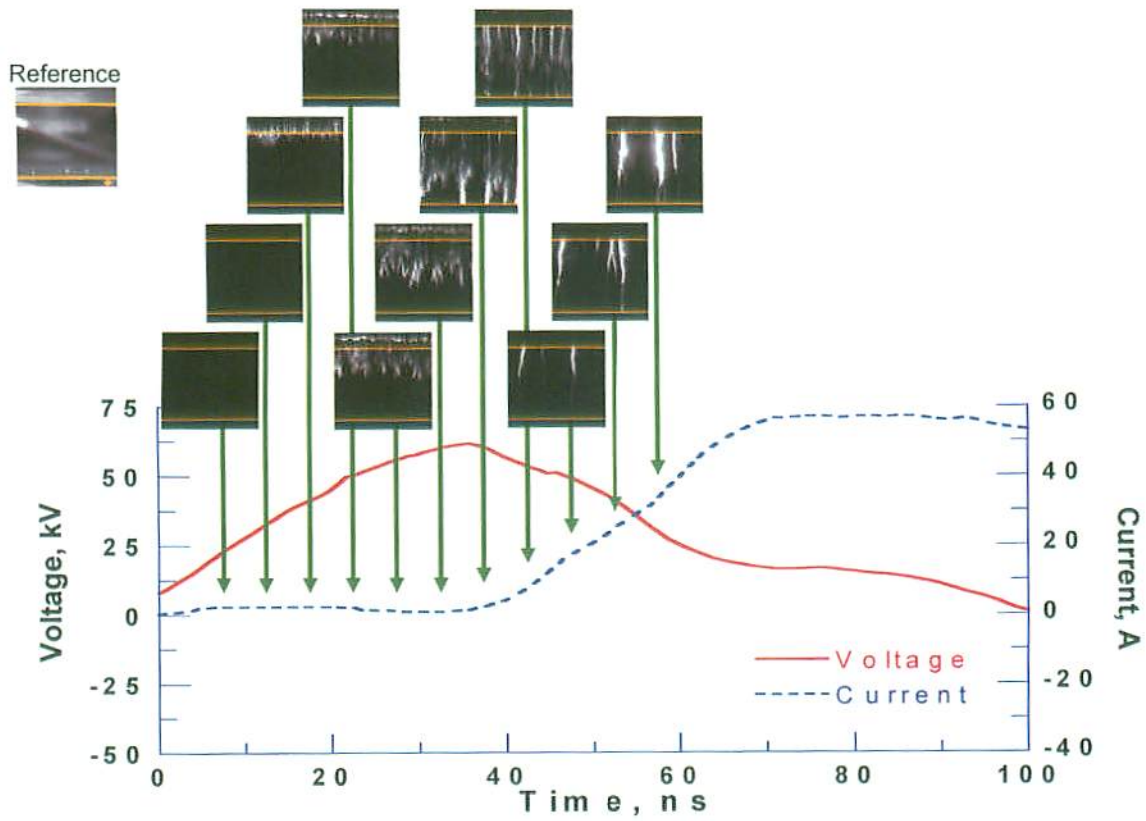


図 3.22 各遅延時間における放電撮影像 (Xe 中)

第4章 パルスストリーマ放電によるNO_x処理

安価かつ小型・高性能の排煙脱硝・脱硫装置の実現に向けて、現在最も可能性を秘めている非熱平衡プラズマを用いた排ガス浄化法は世界中で研究されており [1,2]、無声放電 [3-6]、重畳放電 [7]、グロー放電 [8]、直流コロナ放電 [9,10] 等様々な方法が提案されている。本研究では、大気圧プラズマ中で 10 eV を越える高速電子の多量生成が可能であり [11]、かつ排ガス浄化に寄与するラジカル（化学的活性種）の大量生成が容易であるパルスストリーマ放電 [12-16] を用いている。

4.1 放電プラズマ

“plasma”の名称を初めて用いたのは米国の科学者 I. Langmuir であり、1928 年にその概念が発表された。英語の“plasma”は、to mold または a thing formed or molded の意味をするギリシャ語πλάσμαに由来しているが、その名づけ理由は不明である。米国の S. C. Brown は著書の中で、“発光領域が放電管の形に応じ、その内部をほぼ埋め尽くすことから、この名称が用いられた”と述べている。

分子同士の衝突により、その構成分子に破壊される破壊過程（例： $\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H} + \text{OH}$ ）を解離（dissociation）という。解離した気体の温度をさらに上昇させると、原子同士の衝突が始まり、原子がその構成要素である電子とイオンに破壊される（例： $\text{H} \rightarrow \text{H}^+ + \text{e}^-$ ）。この破壊過程を電離（ionization）という [17]。

一般に、固体にエネルギーを与えると、順次に液体、気体になる。さらに加熱や放電によりエネルギーを与えると、気体はプラズマになる。プラズマは電離気体（ionized gas）とも呼ばれる。すなわち、原子・分子から電子が飛び出して、電子やイオンが自由に飛び回って荷電粒子が集合体になった状態である [18]。プラズマとして存在する条件は、

- (1) ほぼ同数の正と負の荷電粒子群を含んでいること。
- (2) 全体として、ほぼ電気的中性が保たれていること。
- (3) この中の少なくとも 1 種の荷電粒子群が不規則な熱運動を行なっていること、あるいは行なえる自由度を持っていること。
- (4) その体積がデバイ長（二つの荷電粒子が力を及ぼし合う平均距離）よりも大きい物質であること。

とされている。また近年、非中性プラズマの研究が行なわれ、必ずしも上記条件の(1)と(2)を満たさなくても良いことが分かってきている [19]。

プラズマが普通の気体と大きく異なる点は、電磁界に対する振る舞いである。気体は通常では電氣的に絶縁物であるのに対し、プラズマは導電性を有し、電磁界と相互作用を行う。また、プラズマは“粒子的性質”と“集団的性質”の二面性を持つ。荷電粒子の一つ一つは、その相互間でクローン衝突を行ったり、磁界中でサイクロトロン運動を行うが、集団としては、デバイ遮蔽やプラズマ振動といった集団現象を引き起こす。

4.1.1 非熱平衡プラズマ

放電プラズマ中では、主に軽い電子が印加電界からエネルギーを受け取り、衝突によって重いイオンや中性粒子へエネルギーが伝達される。したがって、衝突が少ない数 Torr 以下の気圧では電子温度は非常に高いが、イオン温度やガス温度は低い。この温度が平衡状態にないプラズマを非熱平衡プラズマ (Non-Thermal plasma) という。ただし、高ガス圧においても放電時間が短いパルス放電の場合、電子温度がイオン温度やガス温度に比べて非常に高い非平衡プラズマとなる。

非熱平衡プラズマでは、プラズマ中の電子数が中性粒子の 0.1% 以下と遥かに少ないため、電子温度そのものは数 eV と高くても数が少ないので、プラズマ全体の温度は大部分を占める中性粒子によって決まり、室温程度にしかならない。

4.1.2 熱平衡プラズマ

プラズマのうちで、イオン、電子、中性粒子などの各化学種の温度がほぼ等しく (温度が平衡状態である)、しかもその温度が $5 \times 10^3 \sim 2 \times 10^4$ K 程度の範囲内にある熱容量の大きいプラズマを熱平衡プラズマ (Thermal plasma) という。

表 4.1 に、非熱平衡プラズマと熱平衡プラズマの特性比較の一例を示す。

表 4.1 プラズマの特性比較 ([20])

	非熱平衡プラズマ	熱平衡プラズマ
気圧	0.1 - 10 Torr (パルスは大気圧でも可)	数 Torr · 大気圧
電子密度 (Ne)	約 $10^9 \sim 10^{11} \text{ cm}^{-3}$	$10^{15} \sim 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 以上
電子温度 (Te)	数 eV	数 eV (数万度 K)
その他	気体温度 \ll 電子温度 (非熱平衡状態)	気体温度 \approx 電子温度 (熱平衡状態)

4.2 ラジカル

ラジカル (radical、記号「 \cdot 」) とは、最外殻に不対電子を持つ化学種と定義されている。原子や分子は通常、1 軌道に對の電子を持って安定している。對になっていない電子を不対電子と呼び、この不対電子は對になろうとする性質を持っているため、對になっている電子と比較して不安定で、反応し易い。したがって、ラジカルは化学的活性種とも呼ばれる [21]。

ある化学成分がラジカルであるか否かは、その電子数から判断できる。つまり、電子数が奇数個であればラジカルであり、偶数個の場合はラジカルではない。たとえば、NO はラ

ジカルである (7+8=15 個の電子) が、HNO₃ (硝酸) はラジカルではない (1+7+(3×)8=32 個の電子)。ただし、酸素原子はこの原則の例外である。酸素原子は 8 個の電子を持っているが、その「三重項 (triplet) 」O(³P) 基底状態は 2 つの対最外殻電子を持っているため (2s²2p_x²2p_y¹2p_z¹)、ラジカルである。すべての電子が対になっている酸素原子 (2s²2p_x²2p_y²) は、よりエネルギーの高い「一重項 (singlet) 」O(¹D) 状態にあり、O(³P) より反応性が高い [22]。

ラジカル生成には、主に二つの方法がある [23]。

- (1) 熱、光、放射線などのエネルギーを供給する。
- (2) 酸化還元反応を利用する。

本研究では、放電プラズマによってラジカルを生成している。

気相反応にはイオン反応とラジカル反応がある [19]。ラジカル反応は化学反応を扱っている点ではイオン反応と基本的に大きな相違はないが、一般的に二体反応 (two body reaction) (または二分子反応) と三体反応 (three body reaction) (または三分子反応) に大別され、以下のように分類される。

二体反応

会合反応 (association)	$A + B \rightarrow AB$
置換反応 (substitution)	$A + BC \rightarrow AB + CD$
交換反応 (exchange)	$AB + CD \rightarrow AC + BD$
解離反応 (dissociation)	$AB + C \rightarrow A + B + C$

三体反応

再編反応 (reorganization)	$A + B + C \rightarrow 2D$
再結合反応 (recombination)	$A + B + C \rightarrow AB + C$

ラジカル反応においては必ずしも上に分類された反応が単一に起こるのではなく、複数のタイプの反応が並列に、または段階的に起こることも多い。

ラジカル反応の反応速度や反応機構は個々の反応によって異なり一般化することは難しい。例外は多々あるものとして、ごく一般的傾向を以下にまとめる。

(1) ラジカル-原子反応

多くは二体反応で非常に速い反応速度 (反応速度が $10^{10} \sim 10^{11} \text{ cm}^3 \text{ molecule}^{-1} \text{ sec}^{-1}$) であり、反応の活性化エネルギーは小さい。

(2) ラジカル-ラジカル反応

二体反応では基本的にはラジカル-原子反応に近い。高圧では三体反応になる。

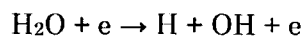
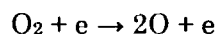
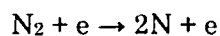
(3) ラジカル-分子反応

多くの二体反応では会合反応であり、二体で反応する場合と、三体による再結合反応がある。どちらの場合も反応速度は非常に幅広く、一般化は難しい。
なお、ラジカル反応の速度に関しては文献 [24] を参考にされたい。

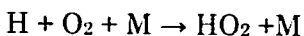
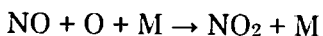
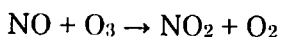
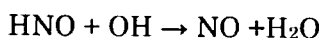
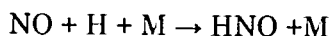
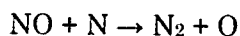
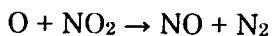
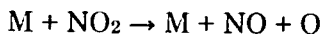
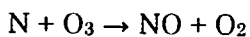
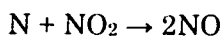
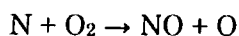
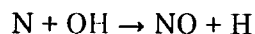
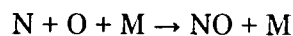
4.3 パルスストリーマ放電による NO_x 除去メカニズム

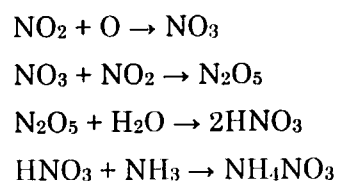
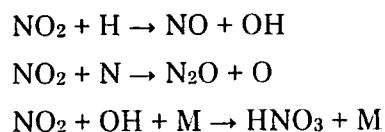
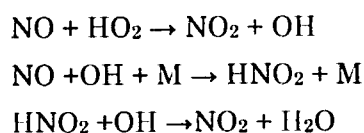
パルスパワー方式排ガス処理における NO_x 除去メカニズムは、パルスストリーマ放電により生成された高速電子が引起こすプラズマ化学反応によるものである。パルスパワー電源を用いてストリーマ放電プラズマを発生させ、プラズマにより生成された各種ラジカルが引き起こす化学反応が NO_x を分解する。代表的な反応例は、N ラジカルによる NO の N₂ への還元、O と O₃ ラジカルによる NO の NO₂ への酸化、さらに OH ラジカルによる NO₂ の NO への還元および HNO₃ への酸化等である [25]。本研究における主な反応式を以下に示す。

ラジカル生成



NO, NO₂ に関する反応





なお、Mは第三体 (third body) であり、N₂やO₂と考えられる。

ラジカルを生成するには、各気体分子の解離エネルギー以上のエネルギーを持つ電子が気体分子へ衝突する必要がある。表 4.2 に、排ガス中に含まれる主な気体分子の解離エネルギーを示す。排ガス中に最も多く含まれる窒素 (N₂) は、気体分子の中でも 9.8 eV と比較的高い解離エネルギーを持つ。そのため、ラジカルの生成には少なくとも 10 eV 以上のエネルギーを持つ高エネルギー電子が必要となり、さらにそれらを生成するためには電極間への高電界印加が必要となる。我々は本研究で使用する三段ブルームラインについて、その放電発光に関する分光計測を行い、放電プラズマ中の電子エネルギーを見積もった結果、プラズマ中で N₂ が 11 eV 以上のエネルギーを受け取っていることを確認した [26]。電子エネルギーの見積もり評価には、N₂ の 2nd positive band からの発光を用いた。

表 4.2 排ガス中に含まれる主な気体分子の解離エネルギー

気体分子	N ₂	O ₂	NO	NO ₂ (O)	H ₂ O (H)	OH	O ₃ (O)
解離エネルギー eV	9.759	5.115	6.497	3.110	5.112	4.392	1.050

これまでに我々は、パルスパワー電源として三段ブルームライン線路を用い、以下に示す成果を得ている。

① 同軸円筒型排ガス処理容器の設計・製作

排ガス処理容器を最適化した結果、最大容積の放電プラズマを生成できる同軸円筒型電極を設計・製作した。また、その電極にパルス電圧を印加した場合の放電プラズ

マについて、分光計測より放電プラズマ中における高エネルギー電子の存在を明らかにした。

② 処理ガス組成の影響

実験とシミュレーションの双方から考察した結果、模擬ガス中への水蒸気 (H₂O) 若しくは酸素 (O₂) の添加は NO_x 除去へ悪影響を及ぼし、H₂O と O₂ の同時添加は NO_x 除去反応を促進させることを解明した。実際の排ガスは H₂O および O₂ を多量に含むため、パルスストリーマ放電方式排ガス処理は非常に有効であることを証明した。

③ 排ガス流量 (流速) および同軸円筒型放電反応容器長の影響

パルスストリーマ放電方式排ガス処理においては、NO 除去は排ガス流量や反応容器長には依存せず、排ガス中の放電エネルギー密度のみに依存することを解明した。

④ パルス幅および放電電流の効果

パルス幅の短縮は、NO、NO_x 除去エネルギー効率を改善できることを解明した。また、パルスストリーマ放電において、ストリーマヘッドの高電圧電極から接地電極到達までの伝播時間が排ガス処理に最も寄与し、その後には発生する大電流は寄与が小さいことを解明した。

⑤ アンモニア添加の効果

アンモニアを処理ガスに添加することにより、電極表面に硝安やテトラアンミン銅 (II) 硝酸塩が付着することを確認した。さらに、硝安等は NO₂ を吸着する特性があり、排ガス中の放電による NO から NO₂ への転換率を低下させ、NO_x 除去率を向上させることを解明した。

⑥ フライアッシュの効果

火力発電所の実排ガスより採取したフライアッシュを模擬ガス中に添加し、NO_x 処理への影響を調べた結果、粒子サイズ約 15μm のフライアッシュは放電に寄与する注入エネルギーには影響を与えず、NO_x 除去を促進する働きがあることを解明した。

⑦ レーザ誘起蛍光法 (LIF) による電極中 NO 分子の時空間解析

放電処理後の電極間 NO 分子について、LIF を用いてその時空間的な振舞いを解析した結果、放電空間内における NO の拡散を確認した。

⑧ 火力発電所における排ガス処理現地実験

稼働中の石炭専焼火力発電所において排ガス処理実験を行った結果、流量 0.8 l/min の排ガスに対する除去率はそれぞれ NO 76%、NO_x 50%、SO₂ 48% という良好な結果を得られた。また、ガス処理後の放電反応容器内の付着物を分析した結果、少量の硫酸アンモニウムと硝酸アンモニウムを検出した。

ここで、NO_x に含まれる NO₂ は、その毒性の強さから排出規制が非常に厳しく、またアンモニアと混ぜて硝安にすることで肥料として再利用が可能である。一方、NO_x の殆どを占める NO は再利用の方法が無いいため、処理の必要性が優先的であると考えられる。本論では、

特に NO の 100 % 処理に主を置くものとした。

4.4 放電プラズマによる高効率な N ラジカルの生成方法

非熱平衡プラズマを用いた NO_x 処理において、N ラジカルが重要な役割を果たすことはよく知られている。N ラジカルは、高エネルギー電子の N₂ との衝突により生成される [27,28]。この実験では、異なる出力パルス幅をもつ三段ブルームライン線路を用いて、その発生させる放電プラズマが N ラジカル生成に与える影響を調べた。

4.4.1 実験装置および方法

三段ブルームライン線路は、パルス幅 40 ns と 100 ns の二通りを用いた。図 4.1 に、NO_x 処理を行った装置の概略を示す。図 4.1 より、ガスボンベに封入された①N₂および②N₂希釈の NO (0.1 %) を、マスフローコントローラ (SEC-E440J, STEC, 日本) を用いて総流量を 2.0 l/min と制御し、処理容器へ導いた。なお、図中の O₂ はこの実験では使用していない。NO の初期濃度は、①と②の流量の割合を調整することにより、200 ppm と 400 ppm (parts of NO per million parts of molecules of the mixture) の二通りに変化させた。実験は大気圧および室温において行なった。処理容器として同軸円筒型を採用し、ステンレス製内部電極直径 0.5 mm、銅製外部電極内径 76 mm、長さ 500 mm とした。三段ブルームライン線路より正極性のパルス電圧を内部電極に印加し、印加電圧のピーク値がパルス幅 40 ns と 100 ns において等しくなるよう、ブルームライン線路への充電電圧を変化させた。外部電極は接地した。パルス繰返し周波数を 1・40 pps (pulses per second) と変化させ、各周波数において放電処理したガスの濃度が飽和状態となった後に、ガス分析器 (Testo350, Testo Term Co., German) へ導き、NO、NO₂ 濃度を計測後に排気した。なお、ガス分析器は定電位電解法を原理としている。これは、電極と電解質溶液の界面を所定の電位に保つことによって、ある特定の酸化または還元反応を選択的に進行させて、そのとき得られる電流の大きさでガス濃度を検知する方法である。印加電圧および放電電流は、それぞれ抵抗分圧器 (ratio, 1:10k) および電流プローブ (Model 2878, Pearson Electronics Inc., USA) を用いて、シールドルーム内に設置されたオシロスコープ (HP54542A, Hewlett Packard, USA) により計測した。

また、パルスストリーマ放電からの放電発光を観測するために、分光実験を行なった。電極は、長さが 10 mm であることを除いては、上記ガス処理実験と同等である。内部電極付近に石英製光ファイバーを設置し、光ファイバーが集光した放電光をモノクロメータ (Macs320, Atago Bussan, Japan) へ導き、さらに光電子増倍管 (PMT, Type R166UH, Hamamatsu Photonics K. K., Japan) を用いてモノクロメータからの分光された光を電気信号として、オシロスコープで検出した。実験では、光ファイバーを内部電極から外部電極に向けて移動し、放電発光の空間分解性を調べた。なお、光ファイバーの内部電極表面からの距離は 11, 19, 27, 35 mm と変化させた。この実験において、N₂ second positive band

($N_2(2+)$, $C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$, $\lambda=337.1$ nm) および N_2^+ first negative band ($N_2^+(1-)$, $B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+$, $\lambda=391.4$ nm) からの発光強度を計測することにより、それぞれの発生に必要なしきいエネルギー値による電子エネルギーの評価が可能となる [29-31]。ここで、 $N_2(2+)$ および $N_2^+(1-)$ のしきいエネルギーはそれぞれ 11.03 と 18.75 eV である [32,33]。

4.4.2 実験結果および考察

図 4.2(a), (b)に、パルス幅 40 ns と 100 ns における、典型的な印加電圧および放電電流を示す。図 4.2(a)より、印加電圧のピーク値は両方のパルス幅において 63.4 ± 1.3 kV であった。電圧ピーク値の後に現れた波形の違いは、ブルームライン線路を構成する同軸ケーブルに蓄えられたエネルギーの違いによると考えられる。図 4.2 のパルス印加時間 300 ns までの電圧・電流値から算出した 1 パルスあたりの注入エネルギー ($\int V \cdot Idt$) は、パルス幅 40 ns と 100 ns に対してそれぞれ 0.44 ± 0.2 J と 1.25 ± 0.1 J であった。この注入エネルギーの値は、混合ガス中の NO 濃度には影響されていない。また、図 4.2(b)に示す電流波形は、変位電流 (電極容量への充電電流) および放電電流 (電極間を流れる電流) の両方を含んでいる。変位電流 (I_d) は、式 (4-1) より算出できる。

$$I_d = C_{\text{reactor}} \times \frac{dV_t}{dt} \quad (4-1)$$

ここで、 C_{reactor} , V_t はそれぞれ電極の容量と図 4.2(a)の印加電圧波形である。式 (4-1) より算出した変位電流による電極への注入エネルギーは、上記の 1 パルスあたりの注入エネルギーに対して、パルス幅 40 ns の場合で 2.6 %、パルス幅 100 ns で 1.2 % であった。したがって、変位電流によるエネルギー評価への影響は無視できるものと考えられる。図 4.3 に、NO 濃度の放電電力依存性を示す。放電電力は、1 パルスあたりの放電エネルギー (J/pulse) とパルス繰り返し周波数 (pulses/sec) から算出した。 N_2 と NO の混合ガスでは、NO の除去反応は主に式(4-2), (4-3)である [34-37]。



ここで、 e は高エネルギー電子を示す。図 4.3 より、NO 濃度は放電電力の増加とともに減少した。NO 濃度が 200 ppm と 400 ppm の両方において、パルス幅 40 ns の方が 100 ns より高いエネルギー効率を示した。 N_2 と NO の混合ガスにおける NO 除去では N 原子が支配的に作用するため、図 4.3 の結果は、パルス幅が短い方が高効率に N ラジカルを生成することを暗示している。このことは、次に述べる放電発光観測の実験結果から証明できる。

図 4.4(a), (b)に、パルス幅 40 ns と 100 ns における、放電発光の観測実験における典型的な印加電圧および放電電流波形を示す。図 4.4 より、印加電圧のピーク電圧値は両方のパルス幅において 74.7 ± 1.4 kV であった。図 4.5 に、パルス幅 40 ns の場合の、異なる光フ

ファイバー配置位置における、 $N_2(2+)$ ($\lambda=337.1$ nm) および $N_2^+(1-)$ ($\lambda=391.4$ nm) からの発光の時間経過図を示す。また、図 4.6 に、パルス幅 40 ns の場合の、図 4.5 と同様の結果を示す。実験結果の精度を高めるために、図 4.5 と図 4.6 はそれぞれの条件において 50 回の出力波形の平均値をとっている。ここで、我々のこれまでの研究成果 [38] によると、同軸円筒型電極の内部電極に正極性のパルス電圧を印加したとき、プライマリー・ストリーマは内部線電極から外部円筒電極へ向けて進展する。プライマリー・ストリーマが外部電極に到達する前に、セカンダリー・ストリーマが内部線電極から発生する。プライマリー・ストリーマが完全に外部電極に到達した後、セカンダリー・ストリーマはグロー放電のような形となる。この結果は図 4.5 と図 4.6 の結果とよく一致している。図 4.5 と図 4.6 より、パルスストリーマ放電中の $N_2(2+)$ および $N_2^+(1-)$ からの発光は、全てのファイバー位置において検出された。また、内部電極に近い距離に配置したファイバーからは、より早い時間において 337.1 nm と 391.4 nm からの発光を記録している。これらの結果は、これまでの研究成果 [38] とよく一致している。図 4.5(a), (b) の場合、セカンダリー・ストリーマからの発光は内部電極に最も近い 11 mm にのみ現れた。これは、パルス幅 40 ns の場合、印加電圧が早い時間に降下したために、プライマリー・ストリーマが外部電極に到達した後に十分に放電を維持することができなかったためである。一方、図 4.6(a), (b) では全てのファイバー位置から、セカンダリー・ストリーマからの発光が確認された。パルス幅 100 ns の場合は、プライマリー・ストリーマが外部電極に到達した後もグローのような放電を発生させるほど十分に長いパルス幅を有するためである。

$N_2(2+)$ および $N_2^+(1-)$ は電子衝突により直接に励起されているため、発光の時間遷移は、しきい値以上のエネルギーを持つ電子の数の時間依存性を示す [32,34]。このしきい値が前述の 11.03 eV ($N_2(2+)$) および 18.75 eV ($N_2^+(1-)$) である。したがって、11.03 eV 以上の高エネルギー電子を生成するエネルギー効率は、 $\int I_{337.1\text{nm}} dt / E$ より算出できる。 $I_{337.1\text{nm}}$ と E はそれぞれ 337.1 nm からの発光波形および 1 パルスあたりの放電エネルギーである。パルス幅 40 ns および 100 ns について算出したエネルギー効率は、それぞれ 1.45 と 0.93 である。この結果より、等しい放電エネルギーのもとで、パルス幅が短い方がより効率的に高エネルギー電子を生成できることがわかる。

また、 $N_2(2+)$ と $N_2^+(1-)$ の比は、電界強度あるいはストリーマ放電中の高エネルギー電子の温度に依存することが知られている [39,40]。図 4.7 に、パルス幅 40 ns と 100 ns における、391.4 nm と 337.1 nm の強度比の内部電極からの距離依存性を示す。強度比は、式 (4-4) より算出できる。

$$\text{Intensity ratio} = \int I_{391.4\text{nm}} dt / \int I_{337.1\text{nm}} dt \quad (4-4)$$

ここで、 $I_{391.4\text{nm}}$ は 391.4 nm からの発光波形である。この強度比が観測位置における高エネルギー電子の平均温度を反映するため、図 4.7 の結果は、両方のパルス幅において電子エネルギーが内部電極から外部電極へ向かうほどにわずかに減少することを示している。ま

た、パルス幅 40 ns の方が、100 ns よりもエネルギーがわずかに高い電子を生成している。

高いエネルギーの電子は、低いエネルギーの電子に比べてより効率良く N ラジカルの生成が可能である [35]。したがって、以上の結果より、パルス幅が短い方がより高効率に N ラジカルを生成できるのは、高いエネルギーの電子をより多く生成できるからである。

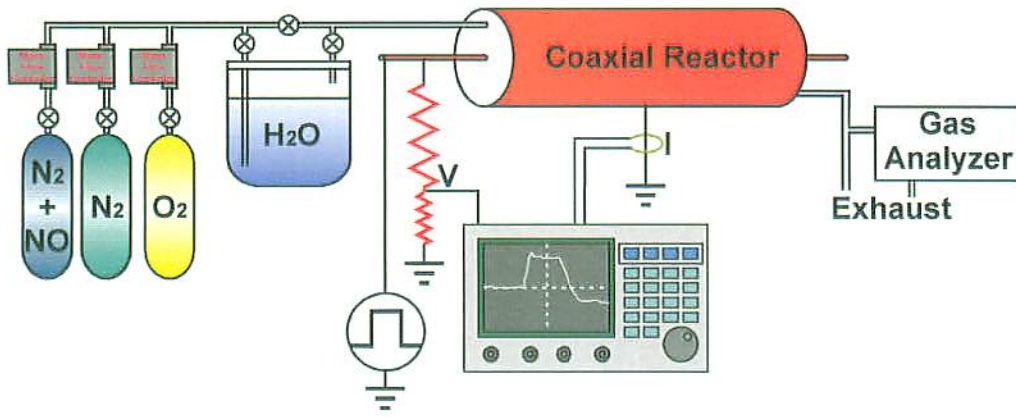
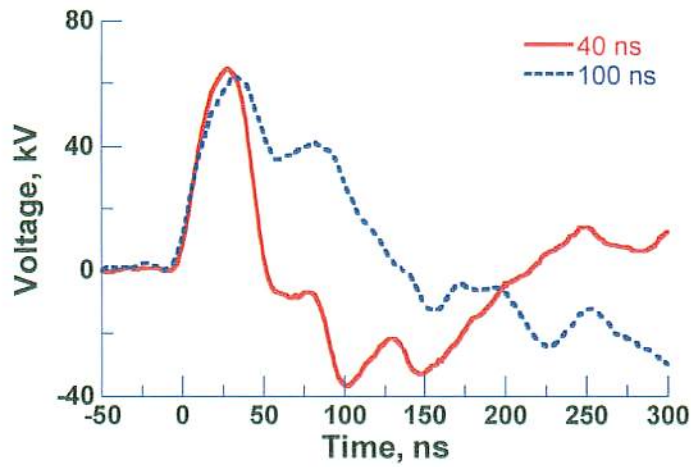
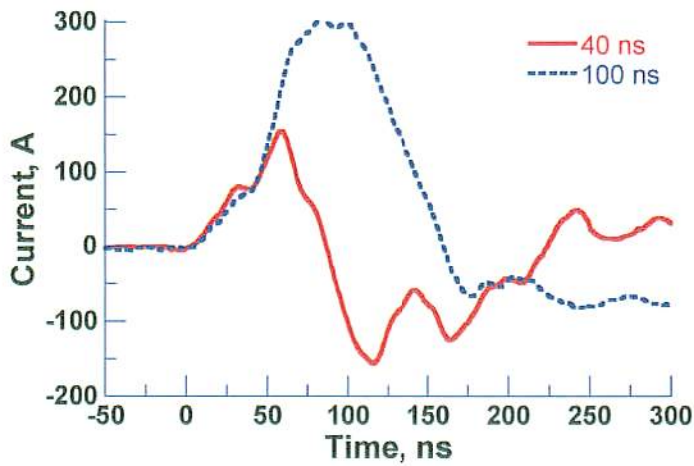


図 4.1 実験装置の概略 (N ラジカル生成)



(a) 印加電圧



(b) 放電電流

図 4.2 典型的な印加電圧および放電電流波形 (N ラジカル生成)

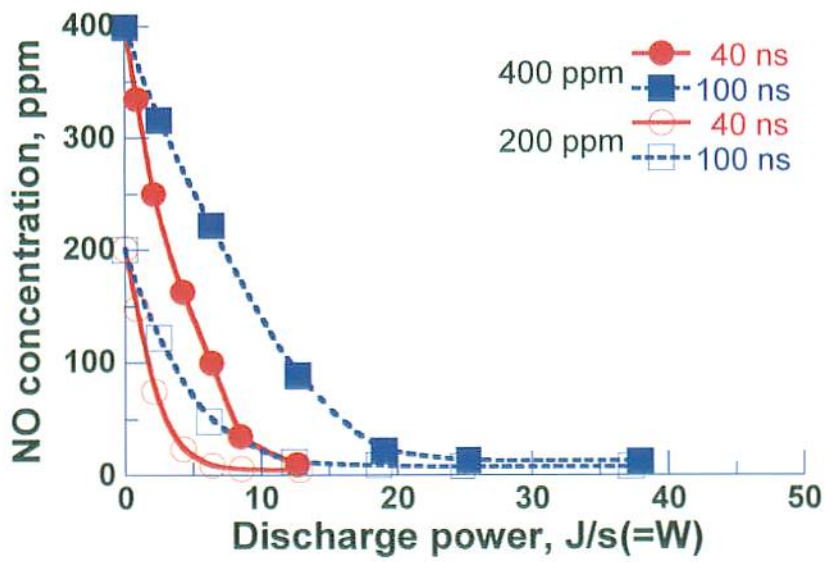


図 4.3 NO 濃度の放電電力依存性 (N ラジカル生成)

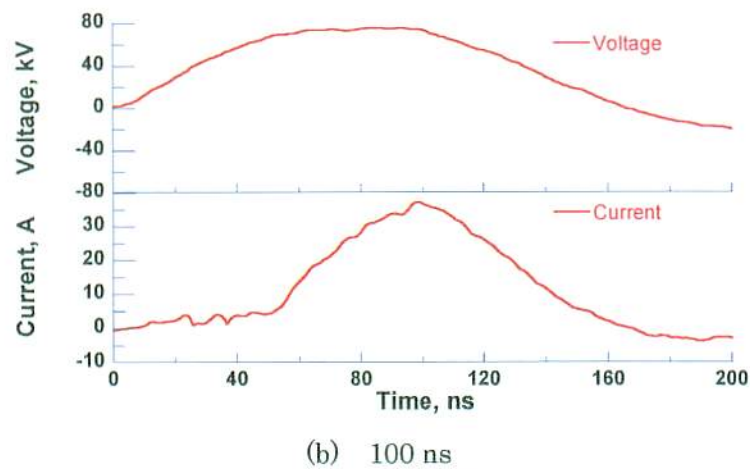
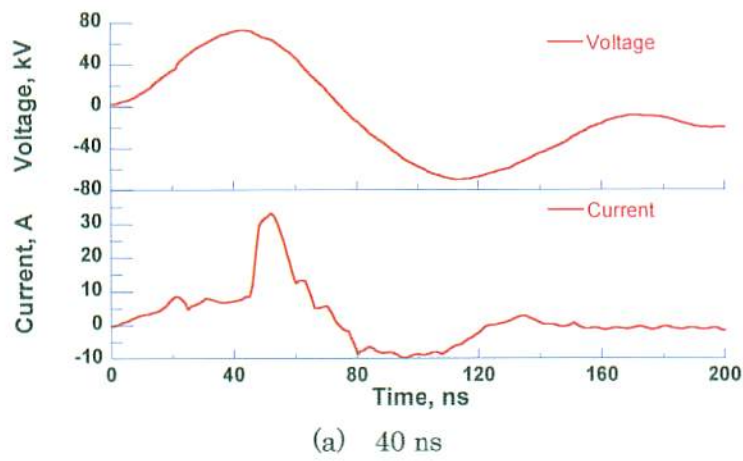
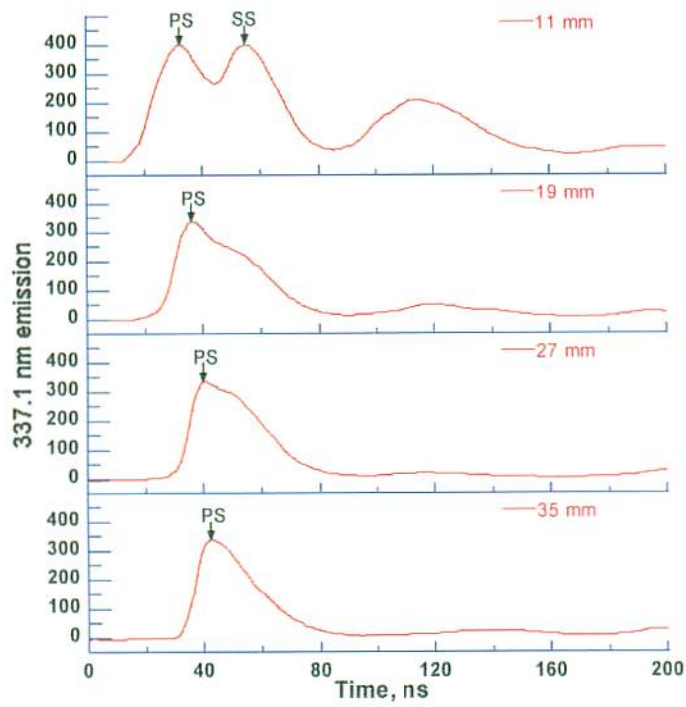
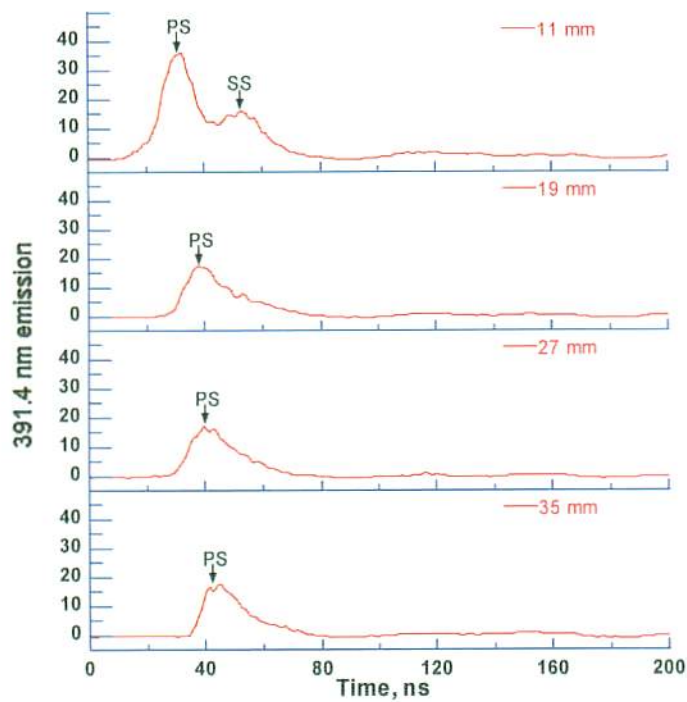


図 4.4 放電発光の観測実験における典型的な印加電圧および放電電流 (N ラジカル生成)

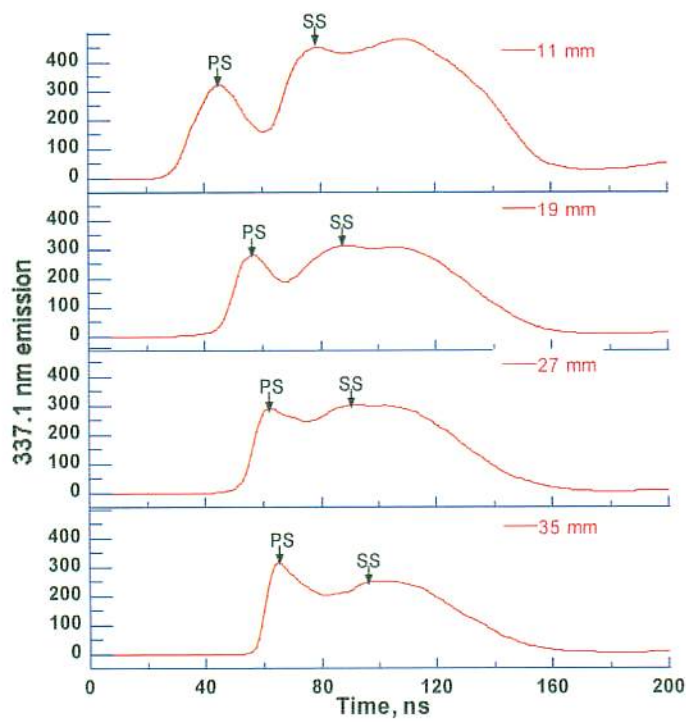


(a) 337.1 nm

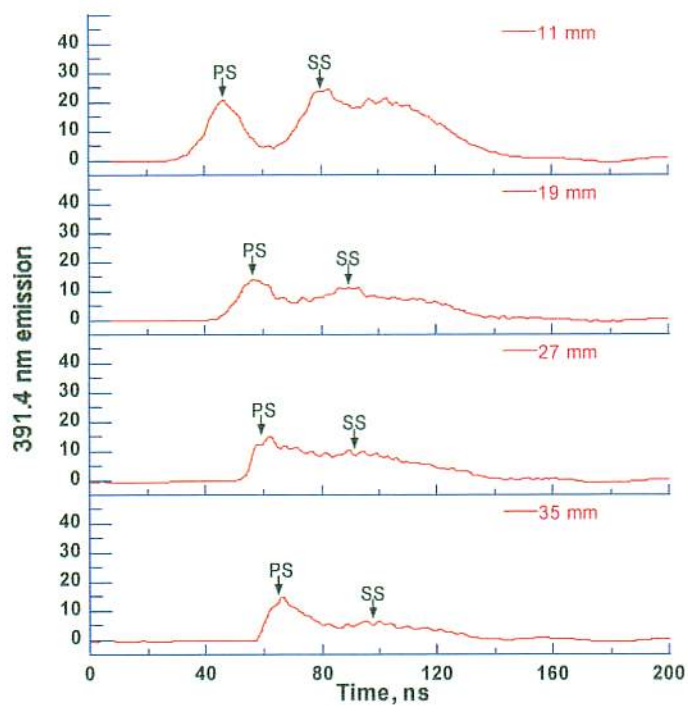


(b) 391.4 nm

図 4.5 異なる光ファイバー配置位置における $N_2(2+)$ ($\lambda=337.1$ nm) および $N_2^+(1-)$ ($\lambda=391.4$ nm) からの発光の時間遷移図 (パルス幅 40 ns)



(a) 337.1 nm



(b) 391.4 nm

図 4.6 異なる光ファイバー配置位置における $N_2(2+)$ ($\lambda=337.1$ nm) および $N_2+(1+)$ ($\lambda=391.4$ nm) からの発光の時間遷移図 (パルス幅 100 ns)

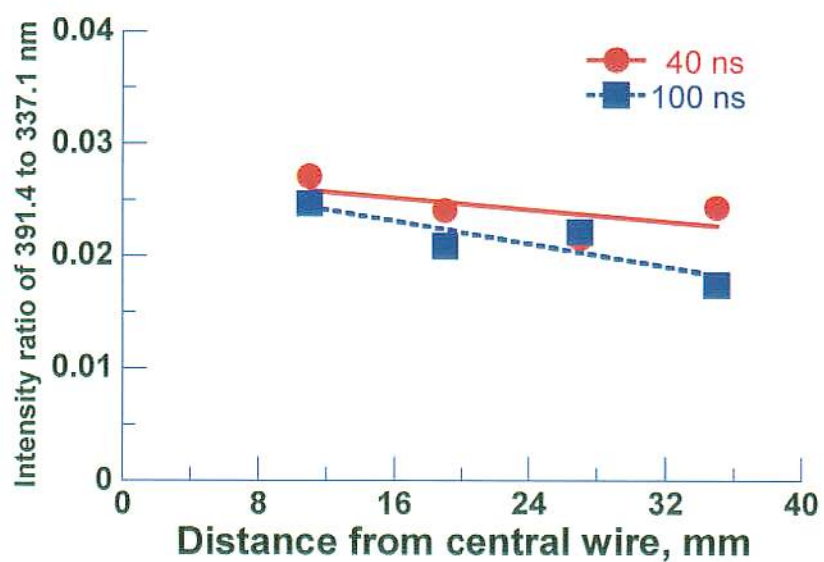


図 4.7 391.4 nm と 337.1 nm の強度比の内部電極からの距離依存性 (N ラジカル生成)

4.5 NO_x処理における NO への注入エネルギー密度による影響

排ガス発生源は、火力発電所や工場等の固定発生源と自動車や船舶等の移動発生源に大きく分けられ、最近ではタバコ工場 [41] からの例も報告されている。発生源が異なると、含有する一酸化窒素 (NO) の濃度も変化するため、パルスパワー方式排ガス処理の処理ガス中 NO 初期濃度に対する特性把握は、実用可能性の議論のためにも必要である。

これまでに非熱平衡プラズマを用いた排ガス処理に関する NO 初期濃度特性は、無声放電 [42] やアーク放電 [43]、 μs オーダーのパルスコロナ放電 [44] による結果が報告されている。本研究では、パルス幅が数十 ns の短パルス放電による排ガス処理の基礎特性として、その NO 初期濃度依存性を調べた。

また、我々がこれまでに報告したパルスパワー方式排ガス処理に関する処理ガスの組成 [25]、パルス幅の効果 [28]、処理ガス流量 [27]、フライアッシュの影響 [45]、アンモニア添加の効果 [46] 等によると、NO_x 除去率は放電への注入エネルギー増加に伴い増加すると考えられていた。しかし、今回我々は注入エネルギーと除去率の間に最適値が存在することを発見し、さらにその最適値が NO 初期濃度に依存することを見出した。

4.5.1 実験装置および方法

実験装置の概略は、4.4.2 項に示す図 4.1 と同等である。4.4.2 項目と異なる条件を以下に記す。

模擬排ガスとして、ガスボンベ N₂、N₂ 希釈の NO (0.1%)、O₂ を使用し、マスフローコントローラを用いて総流量を 2.0 l/min と制御した。また、模擬排ガスは蒸留水 (約 300K) へバブリングさせることで約 2% の水蒸気 (H₂O) を添加し、排ガス処理容器へ導いた。実験は、酸素濃度を 5% 一定とし、NO 初期濃度を 100, 150, 200, 250, 300 ppm の 5 通りに変化させて行った。同軸円筒型電極のステンレス製内部電極直径は 1 mm、銅製外部電極内径は 76 mm、長さ 1,000 mm である。三段ブルームライン線路は、より高効率に高エネルギー電子を生成できるパルス幅 40 ns を用いて、充電電圧 25 kV で動作させ、排ガス処理容器の内部電極に正極性パルス電圧を印加して、外部電極を接地した。

本実験のガス組成では、生成された高エネルギー電子の N₂、O₂ および H₂O 分子への衝突により、N、O、OH ラジカルが生成される [27,28]。

4.5.2 実験結果および考察

図 4.8(a), (b)に、各 NO 初期濃度における典型的な印加電圧および放電電流波形を示す。図 4.8 より、電圧・電流に対する NO 濃度変化による影響は見られず、パルス幅 40 ns を有する良好なパルス電圧が得られた。電圧と電流の最大値はそれぞれ 53.8 ± 1.6 kV および 137.5 ± 5.8 A であり、電圧と電流の積分より算出された 1 パルス分の注入エネルギーは全ての NO 初期濃度及びパルス繰返し周波数において 0.28 ± 0.01 J であった。実験で使用した三段ブルームライン線路を 25 kV で充電したときに線路内に蓄えられるエネルギーは

0.75 Jである。したがって、三段ブルームライン線路のエネルギー転送効率は37%となる。これは、電源と処理容器間の不整合に起因している。また、本実験における変位電流による電極への注入エネルギーは、全注入エネルギーの6.0%であったため、その影響は無視できると考える。

図4.9(a), (b)に、各NO初期濃度に対するNO、NO₂濃度のパルス繰返し周波数依存性を示す。また、図4.10はNO_x除去率のパルス繰返し周波数依存性を示す。なお、NO_x除去率は式(4-5)より算出した。

$$NO_{XR} = \frac{NO_{Xi} - NO_{Xf}}{NO_{Xi}} \times 100 \quad (4-5)$$

ただし、NO_{XR}、NO_{Xi}、NO_{Xf}はそれぞれNO_x除去率(%）、NO_x初期濃度(ppm)、各繰返し周波数におけるNO_x濃度(ppm)である。図4.9(a)より、各NO初期濃度において、パルス繰返し周波数が増加するとともにNO濃度は減少した。これは、放電によって生成されたN、O、O₃、OHラジカルがNOの酸化・還元反応を促進したためである[25]。また、各NO初期濃度100、150、200、250、300ppmに対して、それぞれパルス繰返し周波数10、16、20、26、32ppsにおいてNO除去率100%に達した。図4.9(b)より、NO₂濃度は全てのNO初期濃度においてパルス繰返し周波数の増加にともない初めに増加し、NO除去の初期段階では減少し、その後NOがほぼ除去された時点で再び増加する傾向を示した。このNO₂の増加-減少-増加の傾向は、放電プラズマ中のO、O₃、OH等のラジカルが初期段階ではNOを酸化しNO₂を生成するが、NOの減少とともに、各種ラジカルはNO₂と反応するようになり、NO₂濃度は一度減少に転じる。さらにNO除去が進みその除去率が100%へ到達すると、余剰に生成される各種ラジカルがNO₂を生成し始めるためである。これらNO、NO₂の除去特性より、図4.10に示されるように、NO_x除去率には最大値が存在する。

ここで、NOの100%除去後に生成されたNO₂が放電に起因することを確認するために、NO初期濃度0ppmに関する実験を行った。図4.11に、NO初期濃度0ppmの場合のNO、NO₂濃度のパルス繰返し周波数依存性を示す。なお、この実験は長さ500mmの処理容器により実施された。図4.11より、NO₂のみが確認された。これは、下記反応式により説明される[25,47-49]。

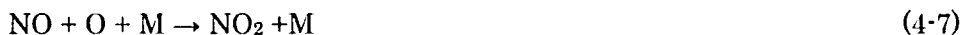


図4.12に、NO初期濃度とNO_x除去率の関係を示す。グラフの縦軸は最高NO_x除去率、横軸はNO初期濃度を示す。ここで、最高NO_x除去率とは、図4.10におけるNO_x除去率の最高値である。図4.12より、NO初期濃度が増加するにつれ最高NO_x除去率は高くなり、NO初期濃度250ppm以上においてNO_x除去率97%で飽和した。

前述したように、本実験では、NO初期濃度が異なっても排ガス処理容器へ注入されるエネルギーは同等である。したがって、NO一分子あたりへ注入されるエネルギー(NOエネ

ルギー密度)に着目して、以下検討を行った。図 4.13(a), (b)に、各 NO 初期濃度における NO, NO_x 除去率の NO エネルギー密度依存性を示す。NO エネルギー密度は、式 (4-9) より算出した。

$$E_d = \frac{E \times f}{G \cdot \frac{1}{60} [\text{min/s}] \cdot \text{NO}_i \times 10^6 \cdot \frac{1}{22.4} [\text{mol/l}] \cdot N_A} \quad (4-9)$$

E_d [J/NO]: Input energy density to NO, input energy per one NO molecule

NO_i [ppm]: NO initial concentration

E [J/pulse]: Energy per pulse

f [pulses/s]: Pulse repetition rate

G [l/min]: Gas flow rate, 2.0 at present work

N_A [NO/mol]: Avogadro's number, 6.022×10^{23}

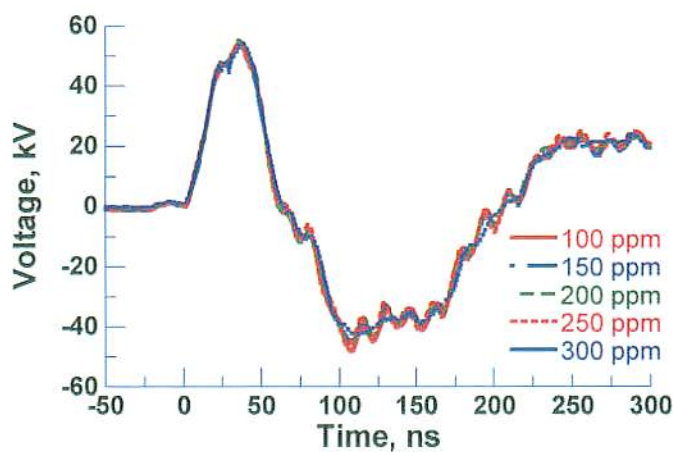
図 4.13(a)より、NO 除去率は全ての NO 初期濃度において同様の傾向を示し、NO エネルギー密度の増加とともに上昇した。このとき、全ての NO 初期濃度において、NO 除去率は NO エネルギー密度 $(3.2 \pm 0.1) \times 10^{17}$ J/NO にて 100%へ達した。また図 4.13(b)より、NO_x 除去率もまた NO 除去率と同じく全ての NO 初期濃度において同様の傾向を示し、NO エネルギー密度 $(3.7 \pm 0.1) \times 10^{17}$ J/NO にてピーク値を持つ。NO 初期濃度が高いほど、一定の NO_x 除去率へ達する NO エネルギー密度はわずかではあるが低かった (すなわち、除去効率が高い)。以上図 4.13 より、NO, NO_x 除去率の推移は NO エネルギー密度に依存することは明らかである。

冒頭にて述べたように、排ガスの発生源が異なると含有する NO の濃度 (NO 初期濃度) は変化する。ここで、排ガス処理の実用化を検討するに際して、NO_x 排出基準値について考察を行なう。環境省が定める「大気汚染防止法」によると、ガスタービン、ボイラーおよび各種炉から排出される NO_x の排出基準値は、60・450 ppm となっている。したがって、排出 NO_x 濃度を 60 ppm 以下に抑えることは新施設における実用化の最高基準と考えられる。この 60 ppm という値は、今回実験をおこなった NO 初期濃度 100, 150, 200, 250, 300 ppm に対する NO_x 除去率 40.0, 60.0, 70.0, 76.0, 80.0 %に対応している。これらの値を図 4.12 に追加 (図 4.12 中の◇印) して、本研究における処理結果と比較すると明らかなように、パルスパワー方式排ガス処理は 100 から 300 ppm の NO_x 排出施設に対する適用が可能であることが確認される。また、NO 初期濃度 300 ppm から NO_x 濃度 60 ppm までの低減に要する NO エネルギー密度は 2.08 ± 10^{17} J/NO であった。

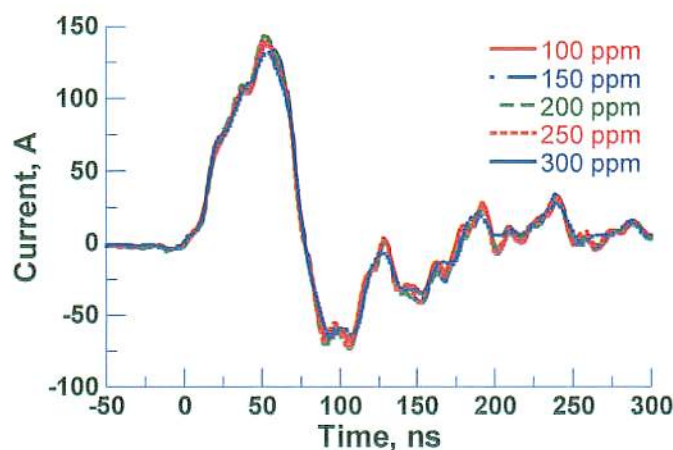
参考として、本研究成果を他の研究報告例 [7,13,42] と比較した結果を表 4.3 に示す。表 4.3 に示される NO エネルギー密度は、ガス組成や温度など実験条件の相違のため直接比較することはできないが、本研究結果は還元剤の添加や触媒との併用がない条件においては比較的高い効率となっている。

表 4.3 NO エネルギー密度に関する本研究と他の研究結果との比較

Reference	Type of discharge	Pulse width [ns]	Initial NO [ppm]	Gas composition	Gas flow rate [l/min]	NO _x removal ratio [%]	NO energy density [$\times 10^{-17}$ J/NO]
Present work	Pulsed Streamer	40	300 (100)	NO / N ₂ / O ₂ / H ₂ O	2.0	60	1.250 (1.875)
Ehara <i>et al.</i> [7]	Superimposing Multiple	-	1850	NO / N ₂	0.2	60 (NO)	2.156
Penetrante <i>et al.</i> [13]	Pulsed Corona	100	100	NO / N ₂	65.0	60	1.860
	Dielectric-Barrier	-	100	NO / N ₂	65.0	60	2.046
	Dielectric-Pellet Bed	-	100	NO / N ₂	65.0	60	2.976
Morimune <i>et al.</i> [42]	N ₂ Arc Plasma Injection	-	2150	NO / N ₂ / O ₂	20.0	50	3.114

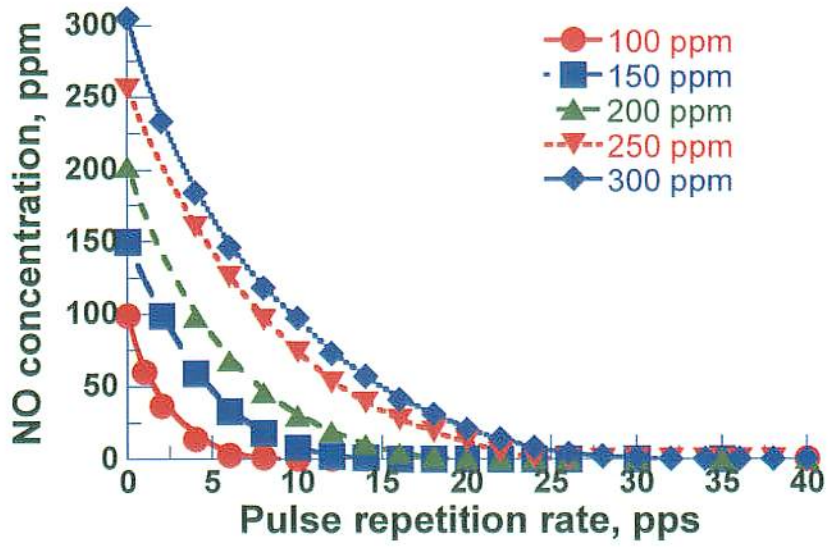


(a) 印加電圧

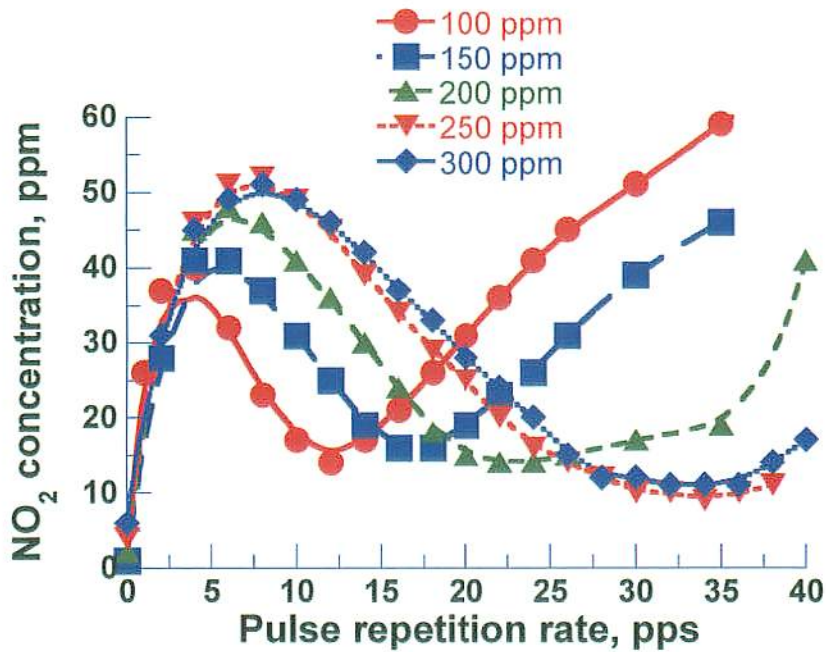


(b) 放電電流

図 4.8 各 NO 初期濃度における典型的な印加電圧および放電電流 (NO 注入エネルギー密度依存性)



(a) NO



(b) NO₂

図 4.9 各 NO 初期濃度に対する NO, NO₂ 濃度のパルス繰返し周波数依存性
(NO 注入エネルギー密度依存性)

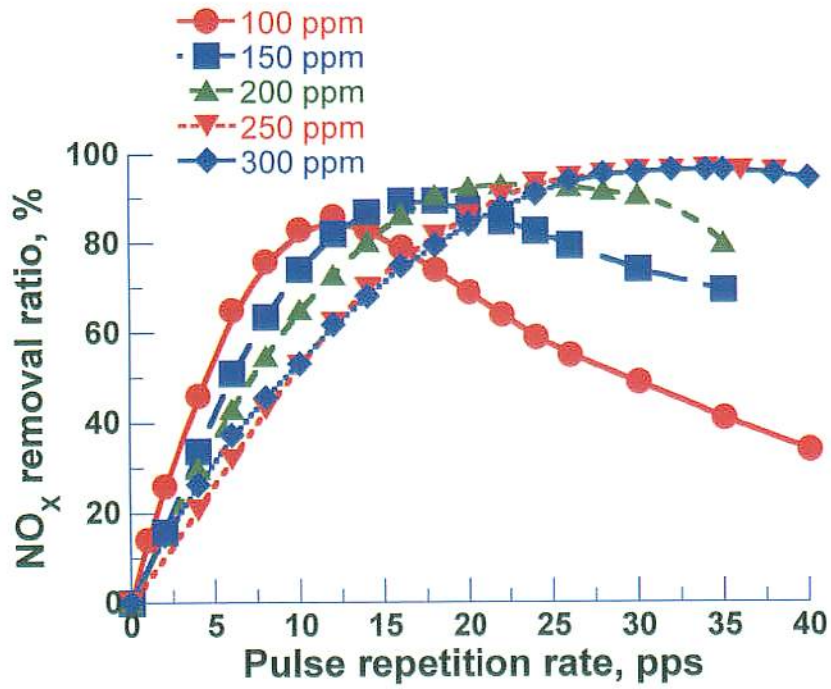


図 4.10 NO_x 除去率のパルス繰り返し周波数依存性
(NO 注入エネルギー密度依存性)

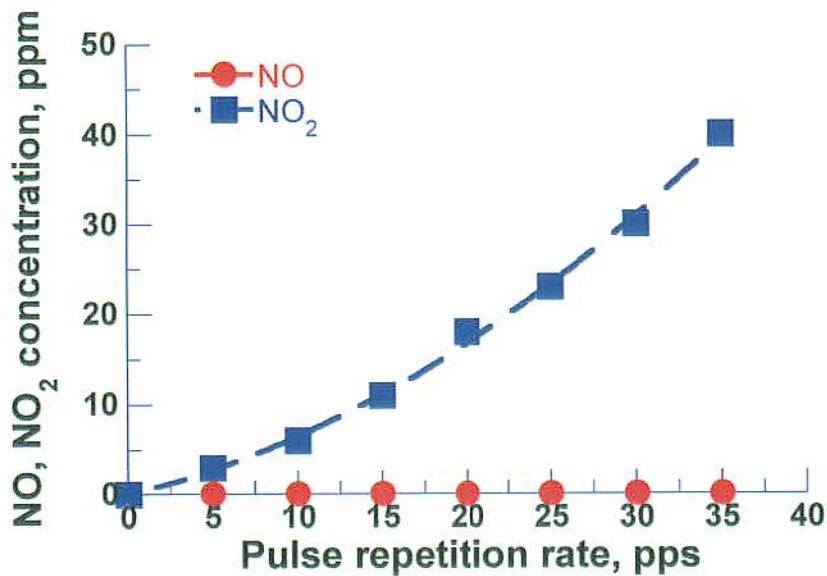


図 4.11 NO 初期濃度 0 ppm の場合の NO, NO₂ 濃度のパルス繰り返し周波数依存性
(NO 注入エネルギー密度依存性)

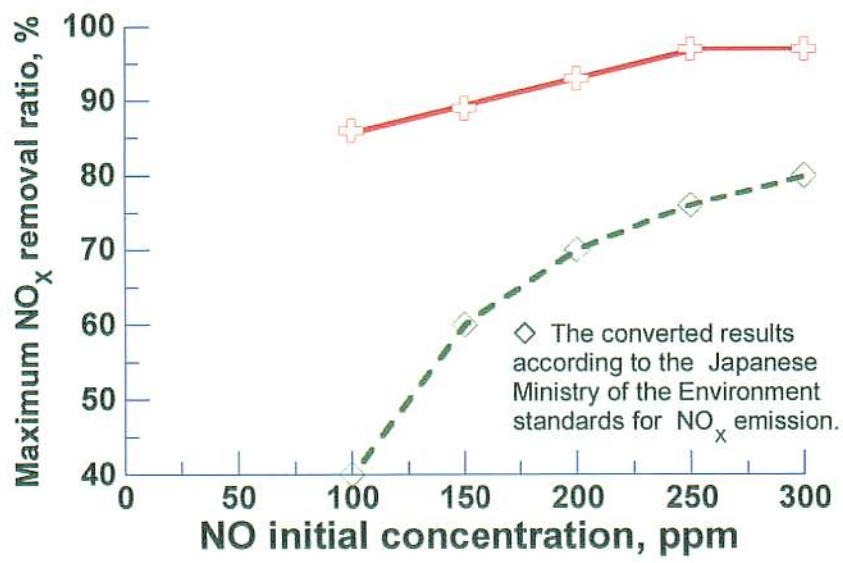
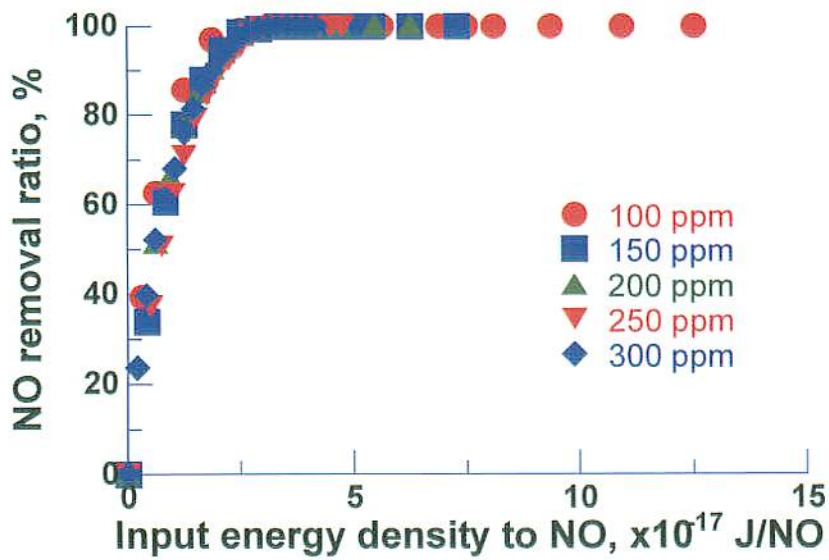
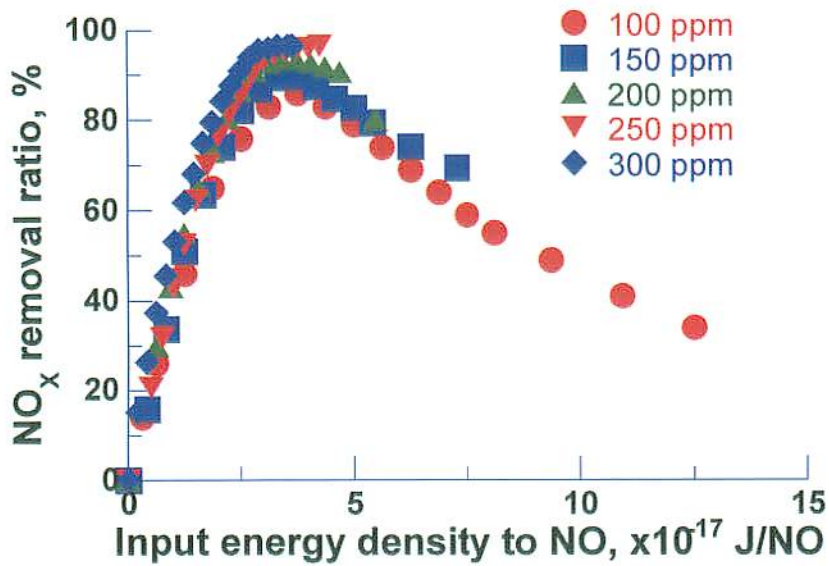


図 4.12 NO 初期濃度と NO_x 除去率の関係
(NO 注入エネルギー密度依存性)



(a) NO



(b) NO_x

図 4.13 各 NO 初期濃度における NO, NO_x 除去率の NO エネルギー密度依存性

4.6 磁気パルス圧縮装置を用いたディーゼルエンジン排ガス処理における最適電極

ディーゼルエンジンから排出される NO_x の濃度は、他の発生源と比較して高く、数 100 ppm から 1000 ppm 以上である。したがって、この排ガス処理には高繰返し可能なパルスパワー電源が必要となる。本研究では、実際にディーゼルエンジンから排出される NO_x を、磁気パルス圧縮装置 (MPC) を使用して処理実験を行なった。

また、この高濃度の排ガスを高効率に処理するには、パルスパワー電源から処理容器へのエネルギー転送効率の向上が一つのキーポイントとなる。処理容器の電極容量は、ストリーマ放電の開始前と進展中とでは変化するが [50,51]、ストリーマ放電開始前の電極容量値による影響を調べることは重要である。Mok によると、線対平板型電極では、パルス形成回路からストリーマ放電電極へのエネルギー転送効率の最大値は、パルス形成回路の容量と電極の幾何学的容量の比が約 3.0 のときに達成される。これは、電極容量値がストリーマの進展により約 3 倍に上昇するためである [52]。しかし、Mok は電極の線間距離による影響を考慮に入れていない。電極の線間距離による違いは、ストリーマ放電進展中における放電プラズマの状態に大きく影響を与える。Kim らはパルスストリーマ放電の進展に関する二次元時間依存性数値解析シミュレーションを行い、電子密度および電界強度の二次元像を示すことにより、線対平板型電極におけるストリーマ進展は電極形状、特に隣接する線の間隔に強く影響されることを報告した [53]。本研究では、一度に多量の排ガスを処理できる線対平板電極について、線電極の本数および線間距離がエネルギー転送効率に与える影響を調べ、最適な電極形状について考察した。

4.6.1 実験装置および方法

パルスパワー電源として用いた MPC の詳細は、第 2 章 2.2 項で述べたものと同等である。図 4.14 に、一組の線対平板電極の概略を示す。電極は全てステンレスで作られ、線電極の直径は 0.5 mm、平板電極のサイズは 500 mm × 300 mm である。3 枚の平板電極はそれぞれ平行に設置され、平板間の距離は 60 mm で固定した。線電極は 2 枚の平板の真中に設置し、それぞれの線は端部で電氣的に接続されている。すなわち、電極ギャップ長は 30 mm である。隣り合う線電極の距離は 40 mm 毎に調整でき、線間距離を 40, 80, 120 mm の 3 通りに変化させた。したがって、線間距離が 40 mm の場合、一組の電極における線電極の総本数は 24 本となる。正極性のパルス電圧を線電極へ印加し、平板電極は接地した。

図 4.15 に、NO_x 処理の実験装置の概略を示す。排ガス処理容器として、三組の線対平板電極を直列に接続した。ディーゼルエンジン発電機 (SGD 3000S-III, 3.2 kW, SUBARU, Japan) は、出力 2.38 kW で動作させ、排出したガスを排ガス処理容器へ導いた。排ガスの流量は 236.7 l/min、処理容器の入口と出口における温度はそれぞれ 411 K と 318 K であった。実験では、MPC から排ガス処理容器へ印加するパルス電圧の繰返し周波数を 100 - 400 pps と変化させた。印加電圧および放電電流は、それぞれ抵抗分圧器 (ratio, 20:10 k) および電流プローブ (Model 2878, Pearson Electronics Inc., USA) を用いて、シールドル

ーム内に設置されたオシロスコープ (HP54542A, Hewlett Packard, USA) により計測した。各周波数において放電処理したガスの濃度が飽和状態となった後に、ガス分析器 (Testo350, Testo Term Co., German) へ導き、NO, NO₂濃度を計測後に排気した。印加電圧のピーク値が全ての実験条件において等しくなるよう、MPC の充電用キャパシタ C₀ への充電電圧を変化させた。

ストリーマ放電開始前の処理容器の幾何学的容量を入手するために、放電が起きない程度の低い電圧を処理容器に印加し、そのときの印加電圧および放電電流を測定した。なお、この測定には1ショットの放電のみを処理容器へ印加し、波形の精度を高めるために電圧・電流とも15回の結果を平均した。

本実験は、以下に示す二つの項目に分けて行なった。

A. 線電極の本数依存性

有効電極長が NO_x 処理に与える影響を調べるために、線電極の本数を24本と48本の二通り変化させた。このとき、線間距離は40 mmに固定した。線電極の本数が多い場合、つまり有効電極長が長い場合、処理容器内の排ガスに対する処理時間は長くなる。実際にガス流量236.7 l/minにおける排ガス処理時間を測定した結果、24本と48本に対してそれぞれ4.56秒と9.12秒であった。

B. 線間距離依存性

線対平板電極における線間距離が NO_x 処理に与える影響を調べるために、線間距離を40, 80, 120 mmの三通りに変化させた。このとき、線電極の本数は24本に固定した。このため、本実験項目における有効電極長は変わらずに、電極容積は変化する。一組の線対平板電極における電極密度は、線間距離40, 80, 120 mmに対してそれぞれ25.0, 12.5, 8.3 wires/mであった。また、排ガス処理時間は40, 80, 120 mmに対してそれぞれ4.56, 9.12, 13.7秒であった。

4.6.2 実験結果および考察

A. 線電極の本数依存性

図4.16(a), (b)に、異なる線電極本数における、典型的な印加電圧および放電電流波形を示す。図4.16(a)より、印加電圧のピーク値は 42.4 ± 0.1 kVであった。1パルス終了後に波形が負極性に振れているのは、MPC内のインダクタ SI₁と処理容器間の電圧波の振動によると考えられる。図4.16(b)より、放電電流のピーク値は電極数24本と48本に対してそれぞれ279 Aと559 Aであった。電圧・電流波形より算出した1パルスあたりの注入エネルギーは、24本と48本に対してそれぞれ0.67 J/pulseと1.44 J/pulseであった。図4.17に、図4.16より算出した、異なる線電極本数における放電中の処理容器のインピーダンス変化を示す。図4.17は、放電中における処理容器のインピーダンスは線電極本数が増すと低い

傾向を示した。これは、有効電極長（線電極）の増加に伴い大きな電流が流れ、多数のストリーマが生成されたためである。

図 4.18 に、異なる線電極本数における、NO_x 除去率の MPC 消費電力依存性を示す。MPC 消費電力 (P_{in} , W) は、式 (4-10) より算出した。

$$P_{in} = f \times E_{ch}, \quad E_{ch} = \frac{1}{2} C_0 V_{ch}^2 \quad (4-10)$$

ただし、 f [pps], E_{ch} [J/pulse], V_{ch} [V] はそれぞれパルス繰り返し周波数、MPC の蓄積エネルギー、 C_0 への充電電圧である。図 4.18 より、NO_x 除去率は MPC 消費電力および線電極本数が増加するにつれて上昇した。線電極の本数が多いと容器内における NO_x 処理時間が長くなるので、高エネルギー電子と周囲の N₂, O₂, H₂O 等のガス分子との衝突が盛んに行なわれ、より多くの O, N, OH ラジカルを生成できる [24]。このため、これらのラジカルが NO や NO₂ 除去を促進したのである。また、MPC 消費電力が高い (1 パルスあたりのエネルギーが大きい) と生成されるストリーマの本数が多く、より多量の NO_x が処理される。

表 4.14 は、異なる線電極本数における、処理容器のインピーダンス (Z_R)、ストリーマ放電開始前の電極容量 (C_{R0})、MPC から処理容器へのエネルギー転送効率 (E_T)、MPC 消費電力 0.80 kW における NO_x 除去率 (NO_{xR}) の関係を示す。ストリーマ放電開始前の電極容量 (C_{R0} , F) は式 (4-11) より算出した。

$$C_{R0} = \frac{\int_0^t i dt}{V_t} \quad (4-11)$$

ただし、 V_t [V], i [A] はそれぞれ時間 t における放電が起きない程度の低い電圧を処理容器に印加したときの印加電圧および放電電流である。また、エネルギー転送効率 (E_T , %) は 1 パルスあたりの C_0 への蓄積エネルギーを処理容器への注入エネルギーで割った値である。表 4.14 より、NO_x 除去率はエネルギー転送効率が高いときに高い値を示した。エネルギー転送効率は、低い処理容器のインピーダンスおよび高いストリーマ放電開始前の電極容量において高くなる。MPC の特性インピーダンスが 10 Ω 以下であるため、この結果は処理容器のインピーダンスが低い方が MPC との整合性が良く、高いエネルギー転送効率を生み出す。ここで、Mok [52]によると、パルス形成回路の容量と電極の幾何学的容量の比が約 3.0 のときにエネルギー転送効率は最大値を示す。表 4.14 より、線電極本数 48 本のときのストリーマ放電開始前の電極容量は 360 pF であり、この値は MPC 中のパルス形成キャパシタ C_1 ($C_1 = 1$ nF) の約 1/3 である。したがって、この実験結果は Mok のデータとよく一致している。

B. 線間距離依存性

図 4.19(a), (b) に、異なる線間距離における、典型的な印加電圧および放電電流波形を示す。図 4.19 より、印加電圧のピーク値は 40.1 ± 0.4 kV、放電電流のピーク値は線間距離

40, 80, 120 mm に対してそれぞれ 260, 375, 399 A であった。また、電圧・電流波形より算出した 1 パルスあたりの注入エネルギーは、40, 80, 120 mm に対してそれぞれ 0.60, 1.01, 1.17 J/pulse であった。図 4.20 に示す異なる線間距離における放電中の処理容器のインピーダンス変化は、線間距離が増すと低い傾向を示した。

図 4.21 に、異なる線間距離における、NO_x 除去率の MPC 消費電力依存性を示す。図 4.21 より、NO_x 除去率は等しい線間距離のもとでは MPC 消費電力が増加するにつれて上昇した。これは、図 4.18 で述べた理由と同じく、高い消費電力により多数生成されたストリーマが NO_x 除去を促進したためである。また、図 4.21 より、等しい MPC 消費電力のもとでは線間距離が増すにつれて NO_x 除去率は上昇した。これは、線間距離が増したことにより放電容積が広くなり、長い排ガス処理時間を通してより多くのラジカルが NO_x 分子と反応したためである。NO_x 除去率が高い理由をさらに検討するために、表 4.15 について異なる線間距離における各種特性をまとめた。表 4.15 の表示内容は、表 4.14 と同じ手法によって求められた。表 4.15 より、ストリーマ放電開始前の電極容量は全ての線間距離において相似の結果を示した。これは、有効電極長が全て同じためである。また、線間距離が広いときにエネルギー転送効率が高く、NO_x 除去率も高い。表 4.14 の結果と違い、同じ C_{RO} においてもエネルギー転送効率は線間距離に影響される。このことは、線間距離が異なると放電中のプラズマの状態が変化していること示す。線間距離が異なるときの放電状態を考察するために、パルスストリーマ放電の積分写真を撮影した。

図 4.22(a), (b), (c) に、異なる線間距離における、積分写真を示す。なお写真は、一組の線対平板電極の平板電極を一枚外した状態で、線電極の真上からスチールカメラを用いて、露光時間 10 秒で 2000 ショット分の放電を積分撮影した。図 4.22 より、放電光は青く、線電極付近で最も強く発光して両側へ均一に広がる様子が伺える。線電極付近が強く発光しているのは、セカンダリー・ストリーマによると考えられる。それぞれの写真を視覚化するために、写真を数値解析した結果を図 4.23 に示す。図 4.23 の縦軸は写真の輝度、横軸は写真の横方向の距離依存性を示す。図 4.23 より、ストリーマ放電からの発光は横軸の正負両方に向かって広がり、徐々に弱くなった。また線間距離が広いほど、発光領域は大きい。この結果は、Kim らによるシミュレーション結果と一致する [53]。Kim らは、隣接する線電極の距離が狭くなるにつれ、お互いの電界分布による影響が強くなり、線電極から発生するストリーマの幅は縮むと報告した。我々の実験において、近隣する線電極が互いに干渉することは、図 4.22, 4.23 の結果および表 4.15 のストリーマサイズが縮まったことによる処理容器インピーダンスの増加から明らかである。Kim はさらに、排ガス処理において効率的に非平衡プラズマを生成するには、線電極間距離を少なくとも線対平板間ギャップ距離の 2 倍は広く確保するべきだと提案している。図 4.21 より、NO_x 除去率は線間距離が 80 mm と 120 mm の両方において相似した結果を示している。Kim の提案を考慮すると、これは線間距離が線対平板間ギャップの 30 mm の 2 倍以上であるため、近隣線電極からの干渉を回避できたためと考えられる。

以上の結果より、パルスパワー電源中のパルス形成キャパシタと処理容器の幾何学的容量の比は、電源から処理容器へのエネルギー転送効率を高めるために非常に重要な指標である。また、線対平板型電極における隣接線電極間距離を広く確保することは、NO_x 処理効率高めるために重要である。

表 4.14 異なる線電極本数における各種特性

Number of Wires	24 wires	48 wires
Z_R [Ω]	Z_{R24}	Z_{R48} ($Z_{R48} < Z_{R24}$)
C_{R0} [pF]	180	360
E_T [%]	30.0	44.0
NO_{XR} [%]	44.0	57.0

表 4.15 異なる線間距離における各種特性

Wire-to-Wire Distance	40 mm	80 mm	120 mm
Z_R [Ω]	Z_{R40}	Z_{R80} ($Z_{R80} < Z_{R40}$)	Z_{R120} ($Z_{R120} < Z_{R80} < Z_{R40}$)
C_{R0} [pF]	180	184	195
E_T [%]	28.8	39.1	41.9
NO_{XR} [%]	38.0	51.0	56.0

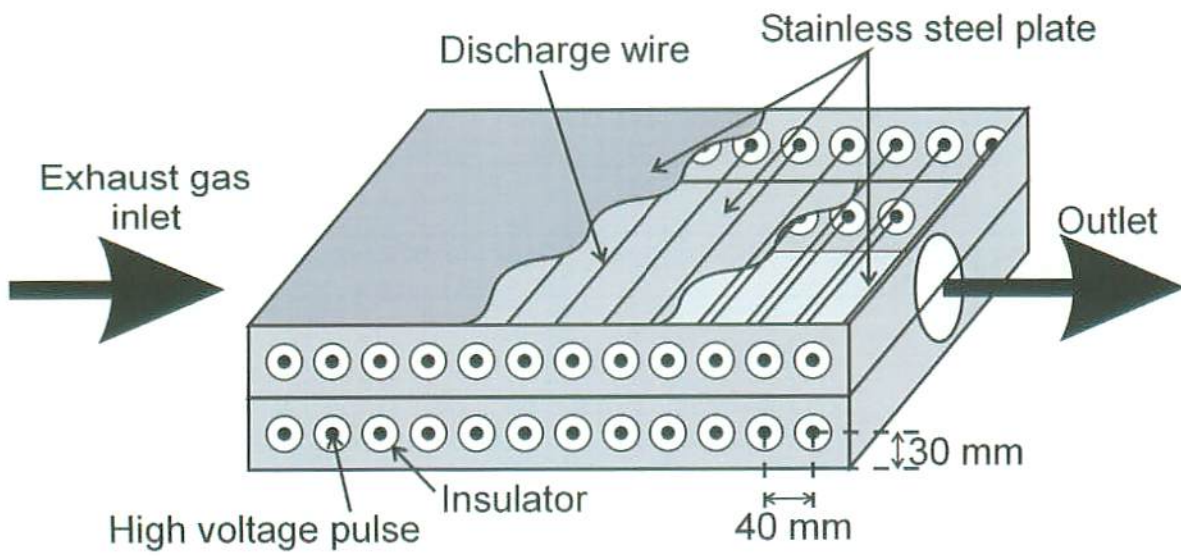


図 4.14 線対平板電極の概略図 (ディーゼルエンジン排ガス処理)

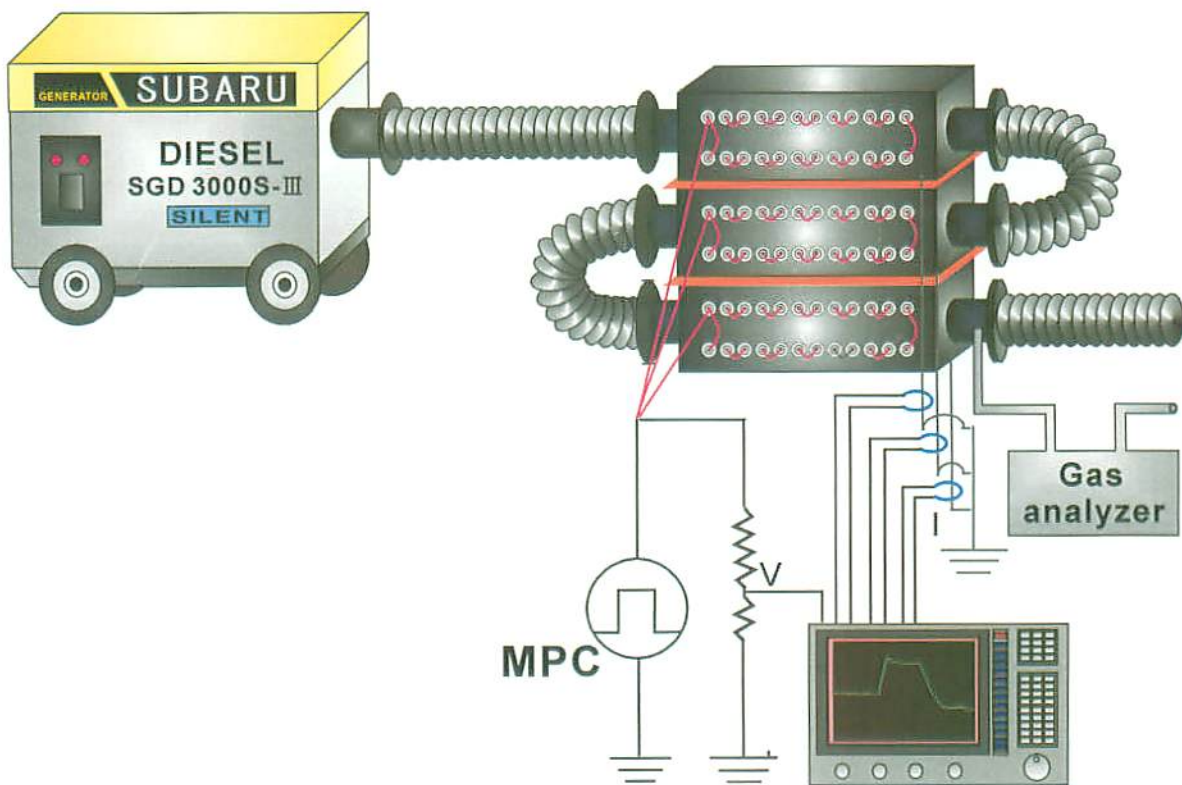
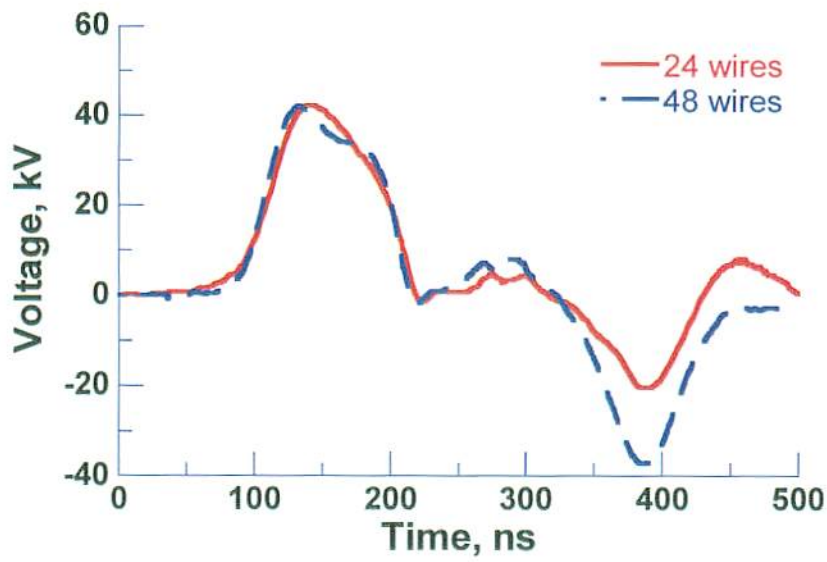
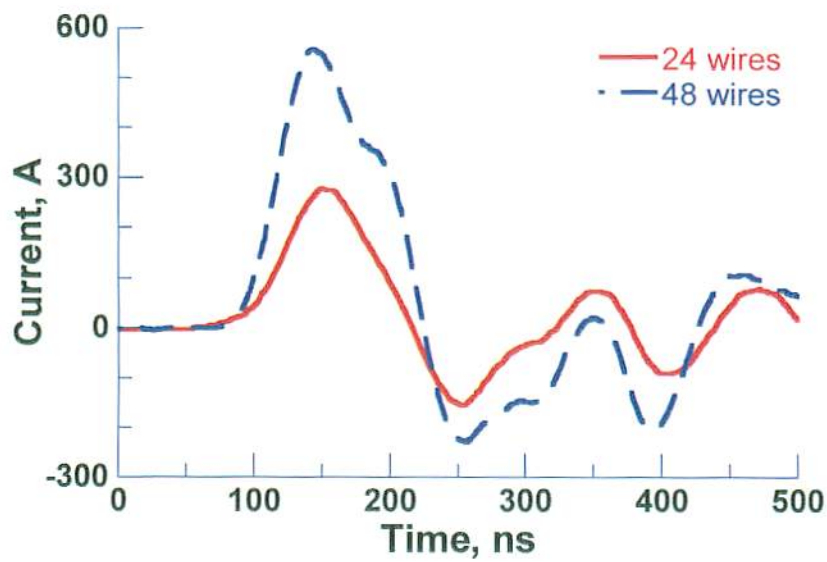


図 4.15 実験装置の概略図 (ディーゼルエンジン排ガス処理)



(a) 印加電圧



(b) 放電電流

図 4.16 異なる線電極本数における典型的な印加電圧および放電電流
(ディーゼルエンジン排ガス処理)

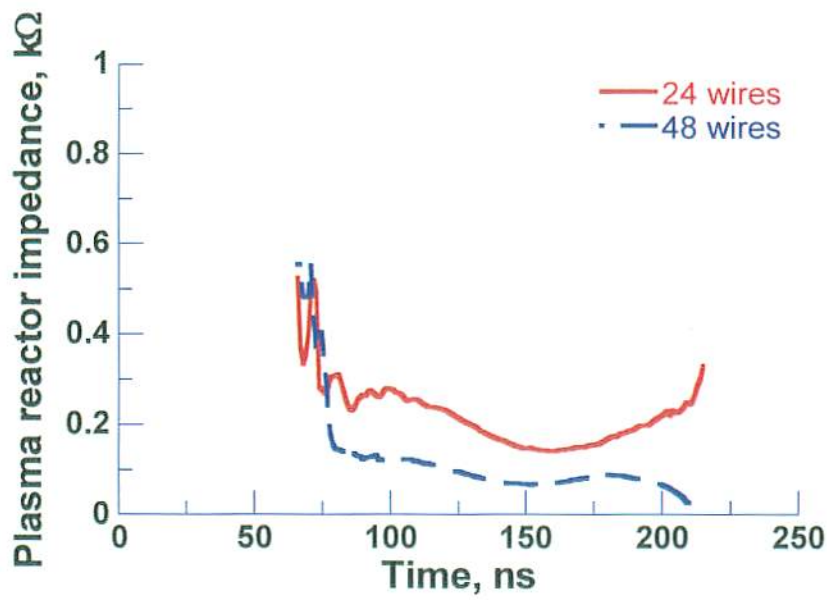


図 4.17 異なる線電極本数における放電中の処理容器のインピーダンス変化
(ディーゼルエンジン排ガス処理)

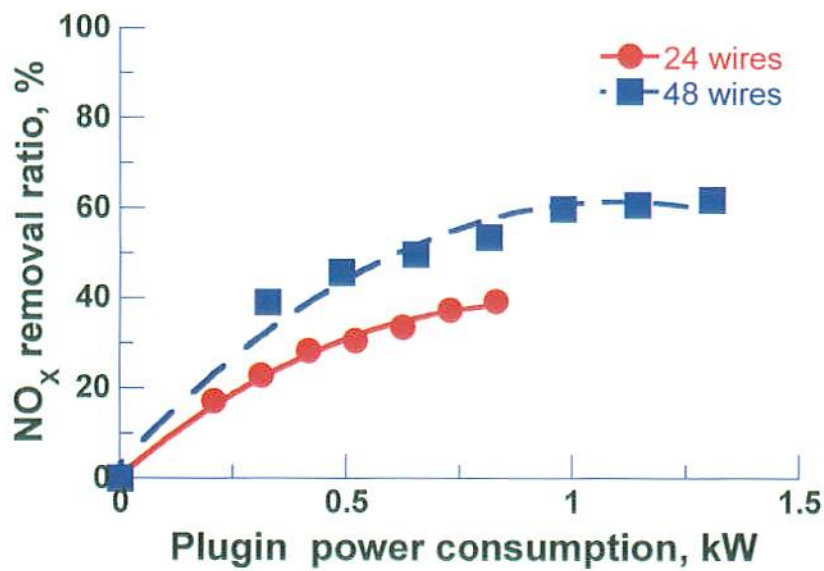
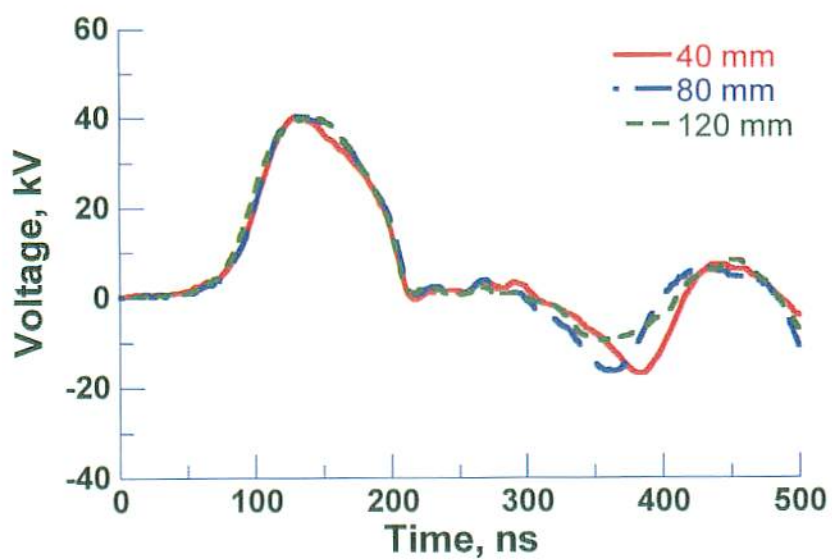
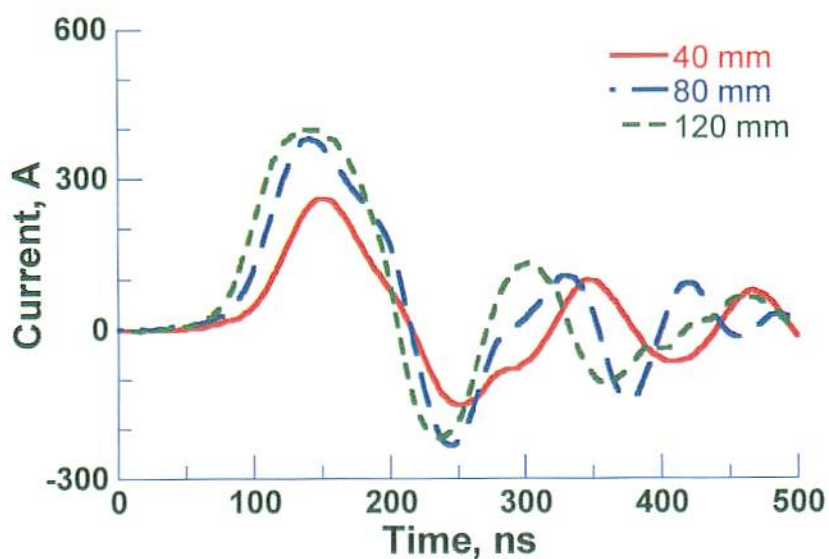


図 4.18 異なる線電極本数における NO_x 除去率の MPC 消費電力依存性
(ディーゼルエンジン排ガス処理)



(a) 印加電圧



(b) 放電電流

図 4.19 異なる線間距離における典型的な印加電圧および放電電流
(ディーゼルエンジン排ガス処理)

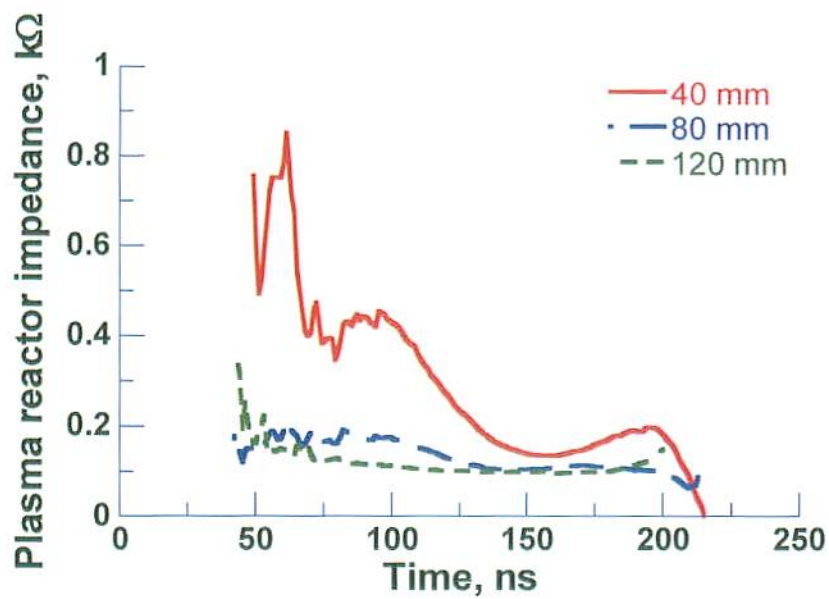


図 4.20 異なる線間距離における放電中の処理容器のインピーダンス変化
(ディーゼルエンジン排ガス処理)

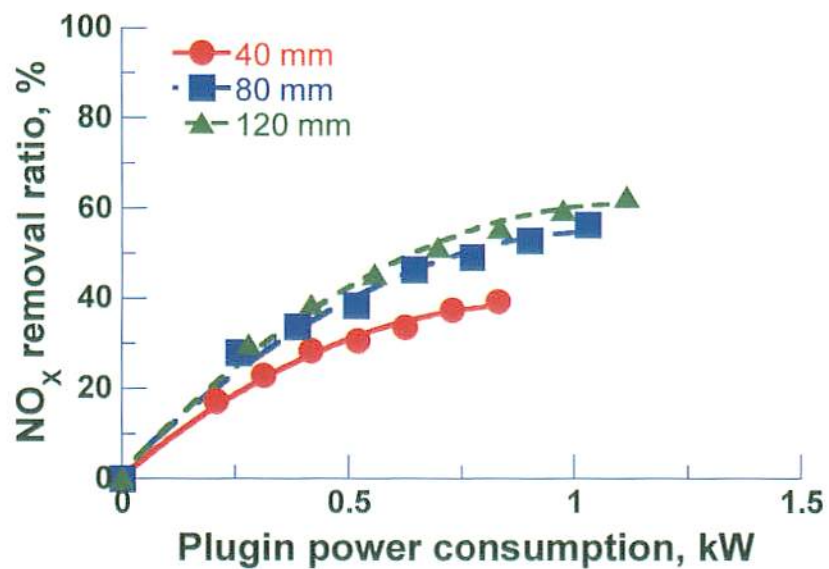


図 4.21 異なる線間距離における NO_x除去率の MPC 消費電力依存性
(ディーゼルエンジン排ガス処理)

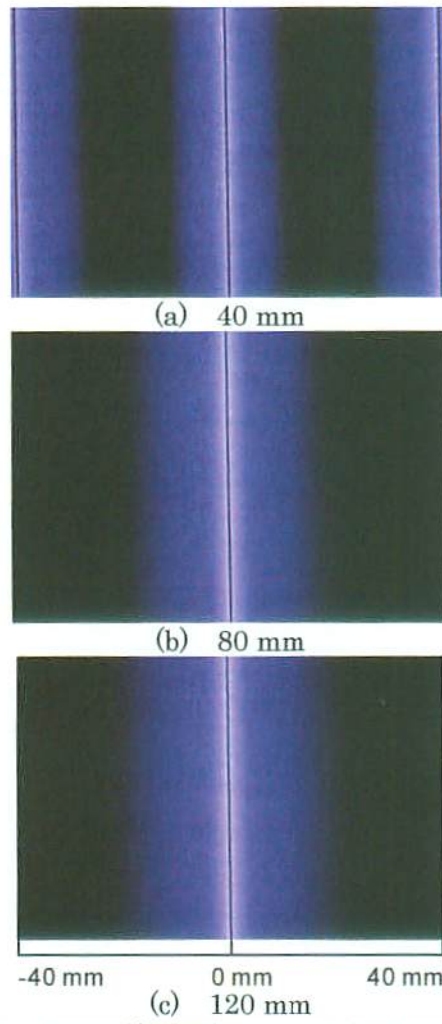


図 4.22 異なる線間距離における放電の積分写真

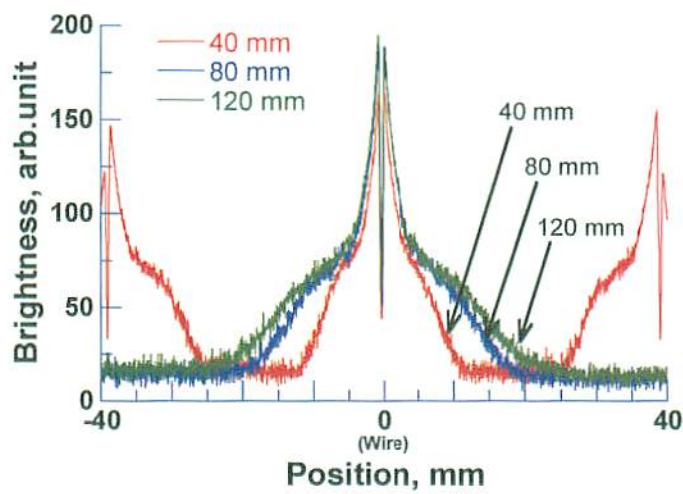


図 4.23 異なる線間距離における放電発光輝度の位置依存性
(ディーゼルエンジン排ガス処理)

4.7 ナノ秒パルス高電圧発生装置を用いた NO_x 処理

我々のこれまでの研究により、排ガスへ印加する電圧のパルス幅を短くすることで、NO_x の除去エネルギー効率を改善することができることが明らかとなっている。これは、一定最高電圧の下では、パルス幅の減少に伴い NO、NO_x 除去量に対する処理容器への 1 パルスあたりの注入エネルギーが小さくなるためである。また、第 3 章の 6, 7 項からも明らかのように、ストリーマ放電はストリーマヘッドが内部電極から外部電極へと進展する期間とストリーマヘッドの外部電極への到達後の期間に大別することができる。したがって、パルス幅の減少はストリーマヘッドの外部電極へ到達後の期間を短くし、到達後の期間は排ガス処理への寄与が小さいという結論を得ている。以上の知見より、我々はパルス幅が数 ns のナノ秒パルス高電圧発生装置を開発し排ガス処理に関する基礎実験を行なったので、以下詳細を述べる。

4.7.1 実験装置および方法

図 4.24 に、NO_x 処理実験装置の概略を示す。模擬排ガスとして、ガスボンベ N₂、N₂ 希釈の NO (0.1%)、O₂ を使用し、マスフローコントローラを用いて総流量を 2.0 l/min と制御した。また、模擬排ガスは蒸留水 (約 300K) へバブリングさせることで約 2% の水蒸気 (H₂O) を添加し、排ガス処理容器へ導いた。実験は、NO 初期濃度 200 ppm、酸素濃度 5% と固定した。同軸円筒型電極のステンレス製内部電極直径は 0.5 mm、銅製外部電極内径は 76.5 mm、長さ 210 mm である。放電処理したガスの濃度が飽和状態となった後に、ガス分析器 (Testo350, Testo Term Co., German) へ導き、NO、NO₂ 濃度を計測後に排気した。

ナノ秒パルス高電圧発生装置の出力が正と負極性の両方の極性について、NO_x 処理実験を行なった。正極性出力の場合は第 3 章図 3.16(a)と同様にコンデンサおよびパルストランズを用いて充電し、負極性出力の場合は第 2 章図 2.9 に示す磁気パルス圧縮装置 (MPC) を用いて充電した。ナノ秒パルス高電圧発生装置への充電電圧は抵抗分圧器 (ratio, 1:9.8k)、処理容器への印加電圧および放電電流はそれぞれ容量分圧器および電圧プローブ (Pearson current monitor, Model 6585, Pearson Electronics Inc., USA) を用いて測定した。電圧・電流信号は、シールドルーム内に設置されたオシロスコープ (54855A Infiniium, Agilent Technologies, USA) により計測した。また、ナノ秒パルス高電圧発生装置の充電インダクタンスおよび SF₆ ガス圧はそれぞれ 2.5 μH, 0.3 MPa とした。

4.7.2 実験結果および考察

図 4.25(a), (b)に、正極性出力の場合の充電電圧、印加電圧、放電電流を示す。また、図 4.26(a), (b)には負極性出力の場合の結果を示す。図 4.25(a)より、充電電圧、印加電圧、放電電流のピーク値はそれぞれ 79.5 kV, 61.8 kV, 241.4 A であり、算出した 1 パルスあたりの注入エネルギーは 0.036 J であった。また図 4.25(b)より、充電電圧、印加電圧、放電電流のピーク値はそれぞれ 84.4 kV, -70.4 kV, -222.2 A であり、算出した 1 パルスあたりの注

入エネルギーは 0.052 J であった。

図 4.26(a), (b)に、それぞれ正極性および負極性出力の場合の NO, NO₂ 濃度変化のパルス繰り返し周波数依存性を示す。図 4.26 より、負極性の方がより低い繰り返し周波数にて NO 除去 100 % に達し、また各繰り返し周波数における NO 濃度の減少量も正極性より大きい。図 4.27(a), (b)に、それぞれ正極性および負極性出力に対する NO, NO_x 除去効率の除去率依存性を示す。ただし、これらは極性変更のために異なる充電電圧源を用いた実験結果であることを追記しておく。図 4.27 より、負極性は低い周波数にて NO 除去が速く進んだにも拘らず、NO 除去効率が正極性より低いのは、1 パルスあたりの注入エネルギーが高いためである。また、NO_x に関しては極性の変化による違いはみられなかった。

ここで、以前の研究結果 [28] よりパルス幅 40・120 ns における NO_x 除去結果と今回の実験結果を比較するために、図 4.28(a), (b)に異なるパルス幅における NO, NO_x 除去効率の除去率依存性を示す。NO, NO_x 効率は式 (4-12) より算出した。

$$\text{NO}_{\text{XE}} = \frac{G \times \frac{1}{22.4} [\text{mol/l}] \times (\text{NO}_{\text{Xi}} - \text{NO}_{\text{Xf}}) \times 60 [\text{min/h}]}{f \times E \times 10^3} \quad (4-12)$$

ただし、NO_{XE}, G, NO_{Xi}, NO_{Xf}, f, E はそれぞれ NO_x 除去率 (%), ガス流量 (l/min), NO_x 初期濃度 (ppm), 各繰り返し周波数における NO_x 濃度 (ppm), パルス繰り返し周波数 (pps), 1 パルスあたりの注入エネルギー (J/pulse) である。なお、パルス幅 40・120 ns の結果は三段ブルームラインを用いて、処理容器パラメータ内部電極外径 0.5 mm、外部電極内径 76 mm、長さ 500 mm によることを記しておく。図 4.28 より、開発したナノ秒パルス高電圧発生装置 (7 ns) は NO, NO_x とともに除去効率が最も高い結果を示した。

なお、今回のナノ秒パルス高電圧発生装置を用いた NO_x 処理実験は初歩的なものであり、今後回路パラメータ等の改善を図ることにより更なる高効率化が望まれると考える。

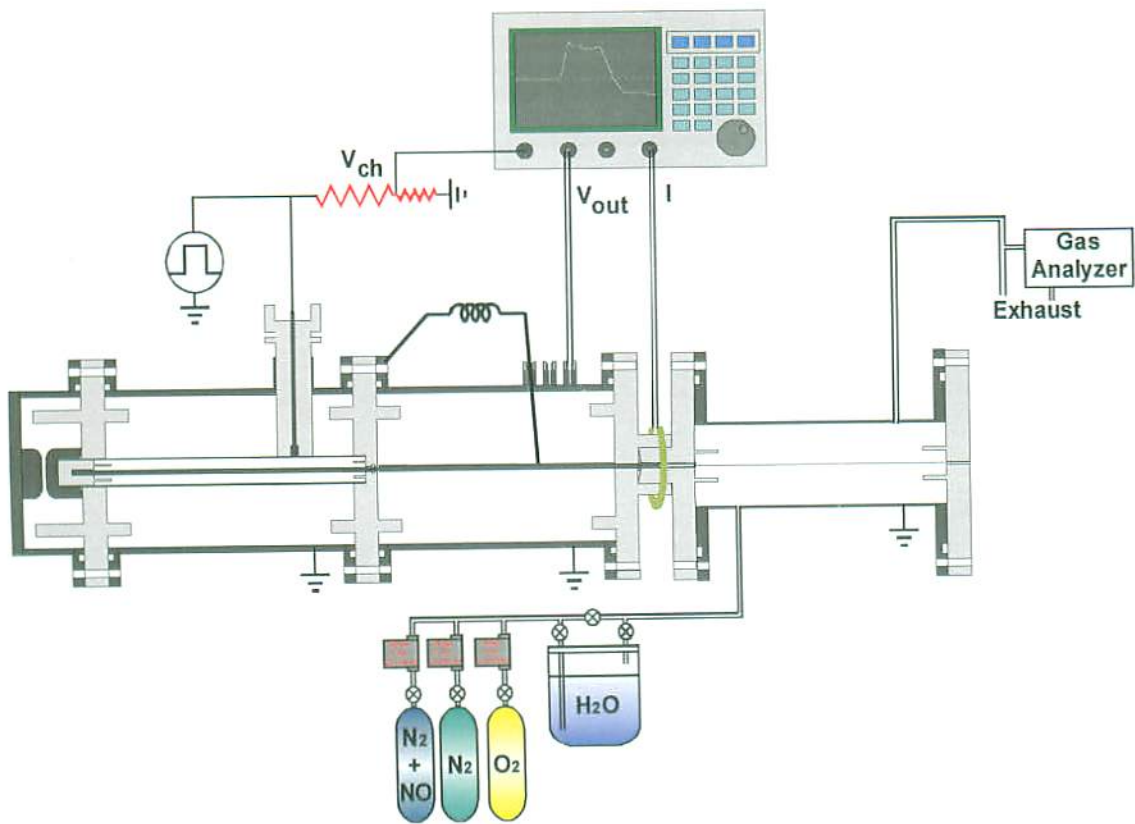
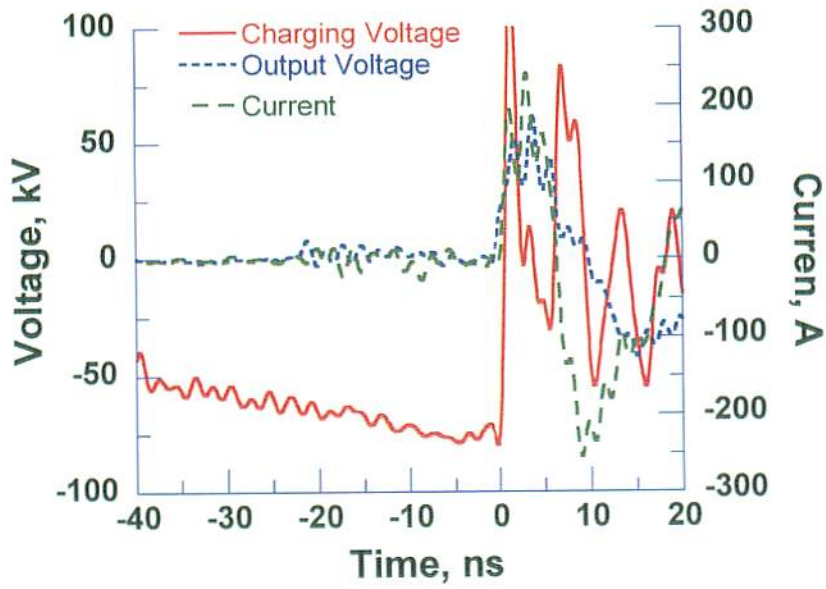
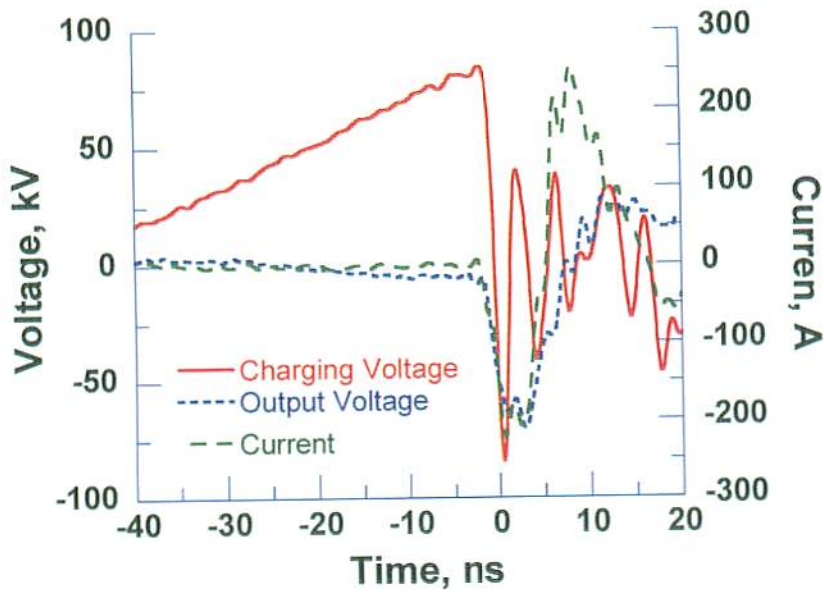


図 4.24 NO_x 処理実験装置の概略 (ナノ秒パルス高電圧発生装置)

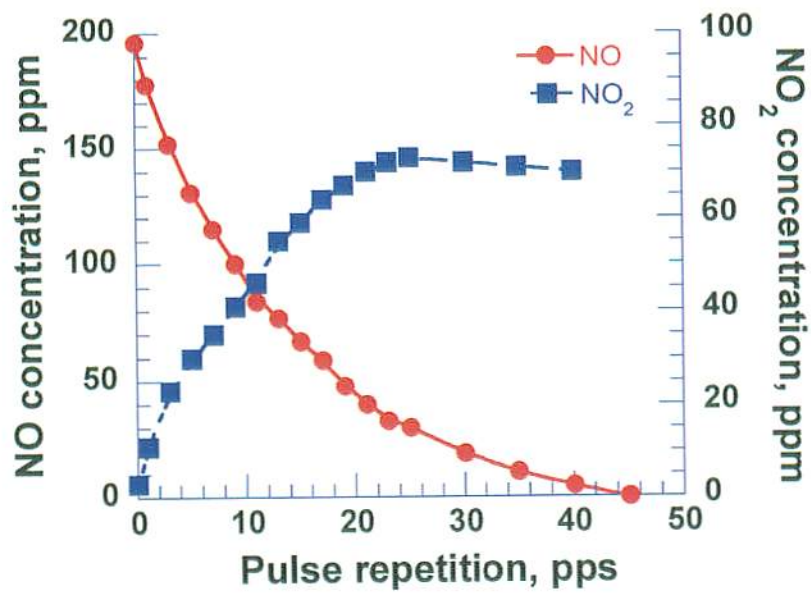


(a) 正極性出力

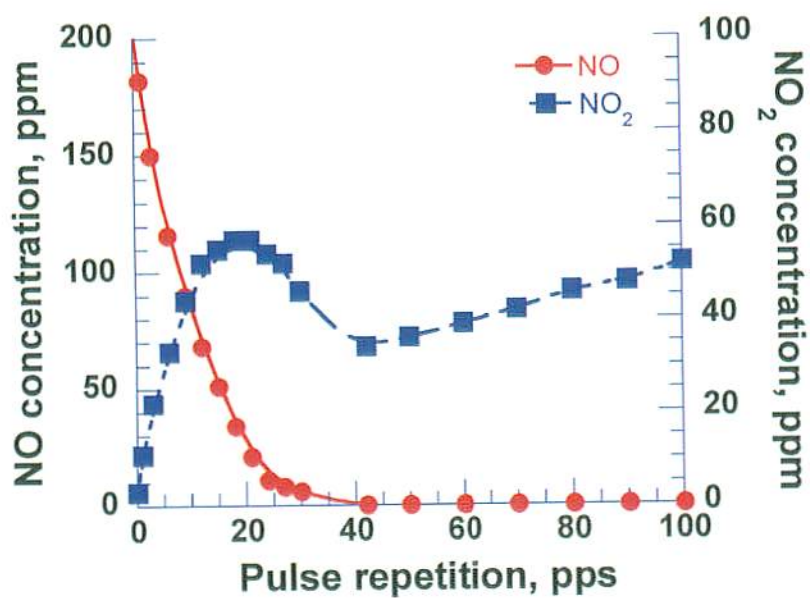


(b) 負極性出力

図 4.25 典型的な出力波形
(ナノ秒パルス高電圧発生装置)

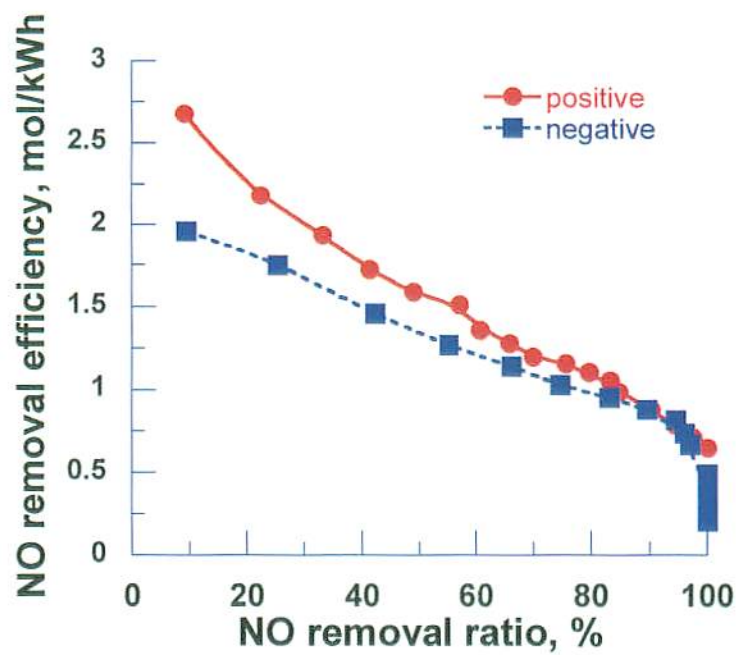


(a) 正極性出力

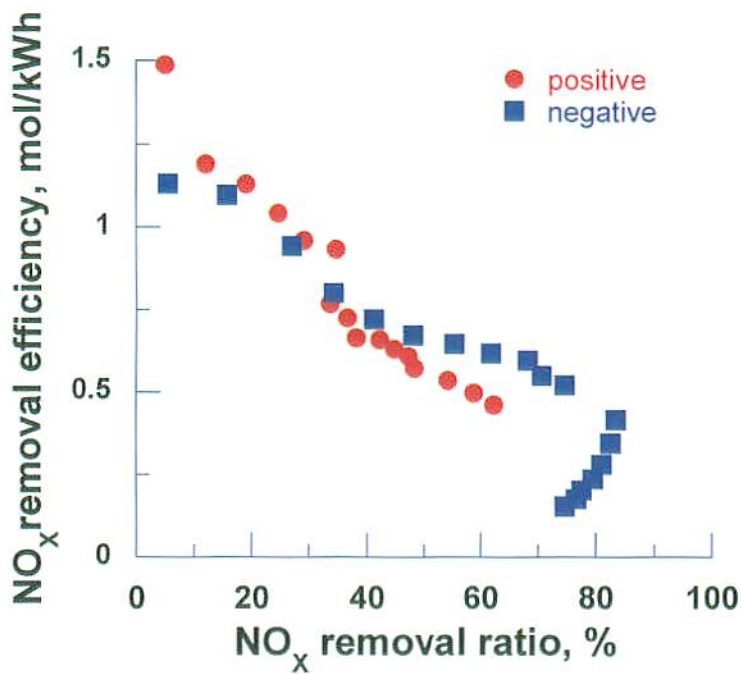


(b) 負極性出力

図 4.26 NO, NO₂ 濃度変化のパルス繰り返し周波数依存性
(ナノ秒パルス高電圧発生装置)

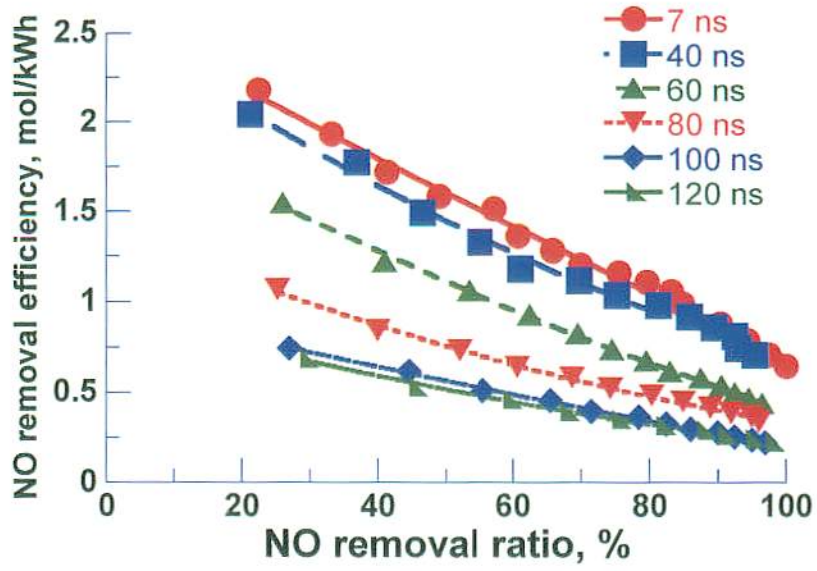


(a) NO

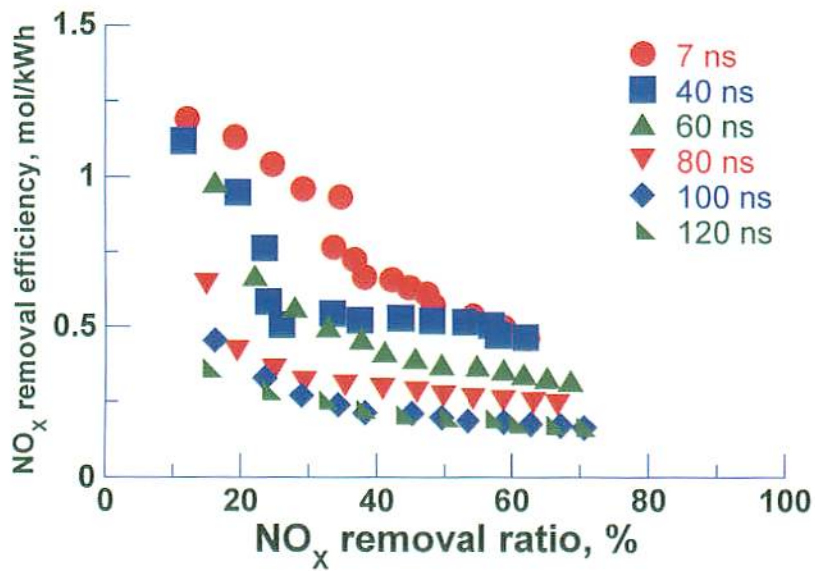


(b) NO_x

図 4.27 NO, NO_x 除去効率の除去率依存性
(ナノ秒パルス高電圧発生装置)



(a) NO



(b) NO_x

図 4.28 異なるパルス幅における NO, NO_x 除去効率の除去率依存性

第5章 人工呼吸器組込型 NO 生成装置の開発

5.1 背景

産業革命に始まる化石燃料の大量消費時代の到来以降、一酸化窒素 (NO) は地球環境へ悪影響を及ぼす大気汚染物質の一つとして認知されてきた。しかし、1998 年にノーベル医学生理学賞を受賞した R. Furchgott, L. Ignarro, F. Murad らによる、生体内 NO の血管内皮由来弛緩因子 (EDRF: Endothelium derived relaxing factor) としての発見以来、NO は生理活性物質としての重要性が認識されるようになった [1]。いまや NO は環境学・化学だけでなく医学、生物学、生化学、薬学など幅広い分野で研究されるようになってきている。この章では、NO を作り出すことについて述べる。

現在、NO の医学臨床応用として、肺動脈圧の低下を期待した吸入療法が検討されており、肺高血圧症、急性呼吸促迫症候群、重症呼吸不全などの治療法として実績があがりつつある。しかし、NO は厚生労働省の認可した医薬品ではないため、医療現場においては工業用の高濃度 NO ガスボンベが使用されている。現在使用されているガスボンベ充填の NO 濃度は 500 ppm [2] から 800 ppm と報告されている [3]。の NO は空気中への漏洩により人体へ有害な二酸化窒素 (NO₂) へと酸化する。そのため NO ガスボンベを用いた現 NO 吸入療法は、NO 漏洩による重大医療事故につながる危険性を有する。

我々は安全な NO 吸入療法の確立を目的として、高濃度 NO ガスボンベを用いない人工呼吸器の開発を行なってきた。これまでに、以下の知見を得ている [4-7]。

- (1) パルスアーク放電を用いることで、窒素 (N₂) と酸素 (O₂) から NO を生成することが可能である。
- (2) 原料ガスである N₂ と O₂ の供給割合は、空気と同様の 20 %前後が効果的である。
- (3) 原料ガス流量とパルス繰り返し周波数の調節により、NO 生成濃度を調整可能であるなどの知見が得られている。

NO 生成の最新結果として、適時適量の NO を生成できる装置を試作したので、その基本特性について記す。

5.2 装置および方法

図 5.1 に、人工呼吸器組込型 NO 生成装置の試作機の概略を示す。図 5.1 より、本試作機は、パルスアーク放電容器、NO₂-NO 触媒 (NO₂-NO converter, Model No. 638-52842, Shimadzu Corporation, Japan)、活性炭、微粒子フィルター (0.2 μm, Filling machine capsule, PALL Gelman Laboratory, USA) より構成されている。NO₂-NO 触媒および活性炭は、パルスアーク放電により NO 生成と同時に生成される NO₂ の完全除去、微粒子フィルターはパルスアーク放電により溶出される電極材料粒子の完全捕集のために組み込まれた。NO 生成の原料ガスとして、ガスボンベに充填された乾燥空気をママスフローコントローラ (SEC-E440J, STEC Inc., Japan) を用いて総流量 2.0 l/min に制御した。乾燥ガスの

組成は、N₂ 80 %、O₂ 20%、1 ppm 以下の一酸化炭素(CO)、1 ppm 以下の二酸化炭素(CO₂)、5 ppm 以下の水蒸気である。

図 5.2 に、パルスアーク放電容器の概略を示す。図 5.2 より、放電容器は定電圧直流電源 (MK20P3.7, Glassman High Voltage, Inc., USA)、セラミックコンデンサ (0.4 nF, Murata manufacturing Co., Japan)、電流制限用抵抗 (2 MΩ)、電極、スパークプラグから構成されている。スパークプラグはトリガーパルス回路に接続されており、トリガーパルス回路はコンデンサ (0.22 μF)、サイリスタ、パルストランス (HFT1009, Sanyo, Japan) より構成されている。電極形状は棒対平板であり、先端を半球型に加工した棒の直径は 10 mm、電極ギャップ長は 5 mm とした。電極材料はステンレスとし、容器の外径および長さはそれぞれ 60 mm と 100 mm とした。パルスアーク放電の印加機構は、まずトリガーパルス回路よりスパークプラグと平板の間に比較的小さな放電を生成し、生成された放電による紫外線等により棒と平板の間にパルスアーク放電を開始させる仕組みである。試験では、セラミックコンデンサへの充電電圧を 15 kV と固定し、生成された NO および NO₂ の濃度は 2 番目の微粒子フィルターの後設置したガス分析器 (Testo350, Testo Term Co., German) にて計測し、排気した。

5.3 結果および考察

図 5.3 に、NO, NO₂ 濃度のパルス繰り返し周波数依存性を示す。なお、パルス繰り返し周波数は 10 - 90 pps とした。図 5.3 より、実線に示すように NO₂-NO 触媒のみでは NO₂ の完全除去は不可能であるが、活性炭を併用することで破線のように純粋な NO を生成することが可能となった。また、90 pps 時に 133 ppm の NO が得られている。この濃度は NO 吸入療法における要求濃度 (0.3 l/min, 800 ppmNO) を十分に満たす。

図 5.4 に試作機の 24 時間連続運転試験の結果を示す。なお、パルス繰り返し周波数は 70 pps と固定した。図 5.4 より、試験開始直後から純粋な NO が約 100 ppm 得られており、14 時間経過時まで NO 濃度は多少の増減はあるもののほぼ一定濃度 (最大 102 ppm, 最小 97 ppm) となった。しかし、14 時間目から 16 時間目にかけて生成 NO 濃度が減少した。これはアーク放電に起因するステンレス製放電電極の消耗により、70 pps のパルス放電持続が困難になったためである。なお、17 時間目において充電電圧とパルス繰り返し周波数を調整することで生成 NO 濃度はもとの 100 ppm へ回復した。これより放電電極の消耗による生成 NO 濃度の減少は、生成 NO 濃度を充電電圧とパルス繰り返し周波数にフィードバックすることで解決できるものと考えられる。また、この試験の運転期間中、ガス分析器において NO₂ 分子は検出されなかった。

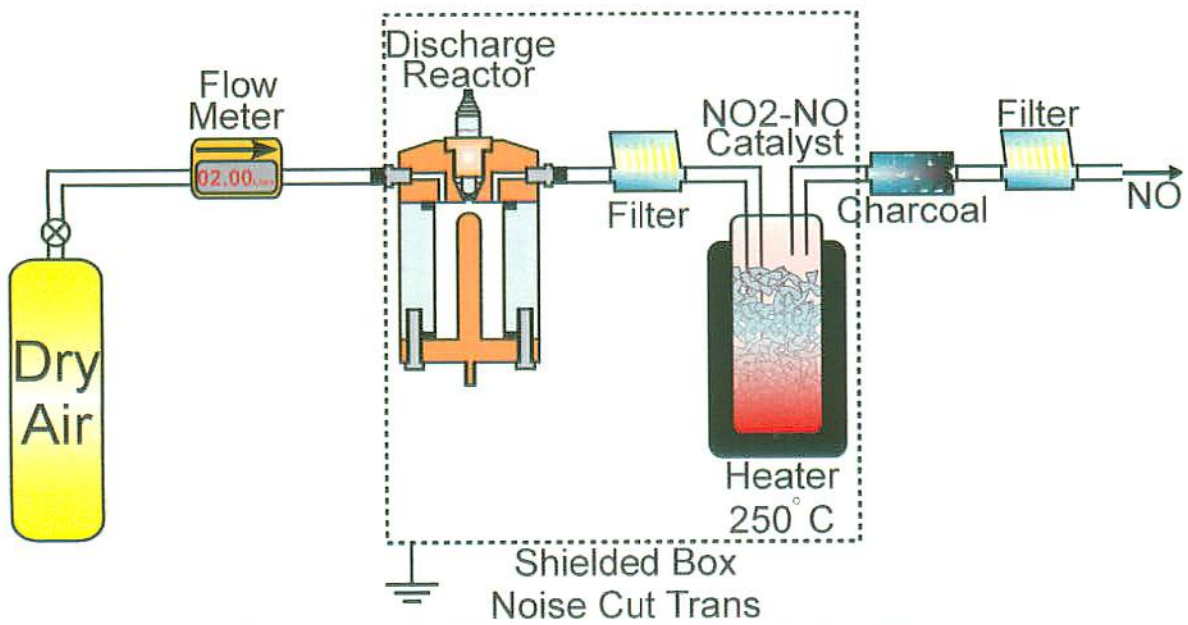


図 5.1 人工呼吸器組込型 NO 生成装置の試作機の概略

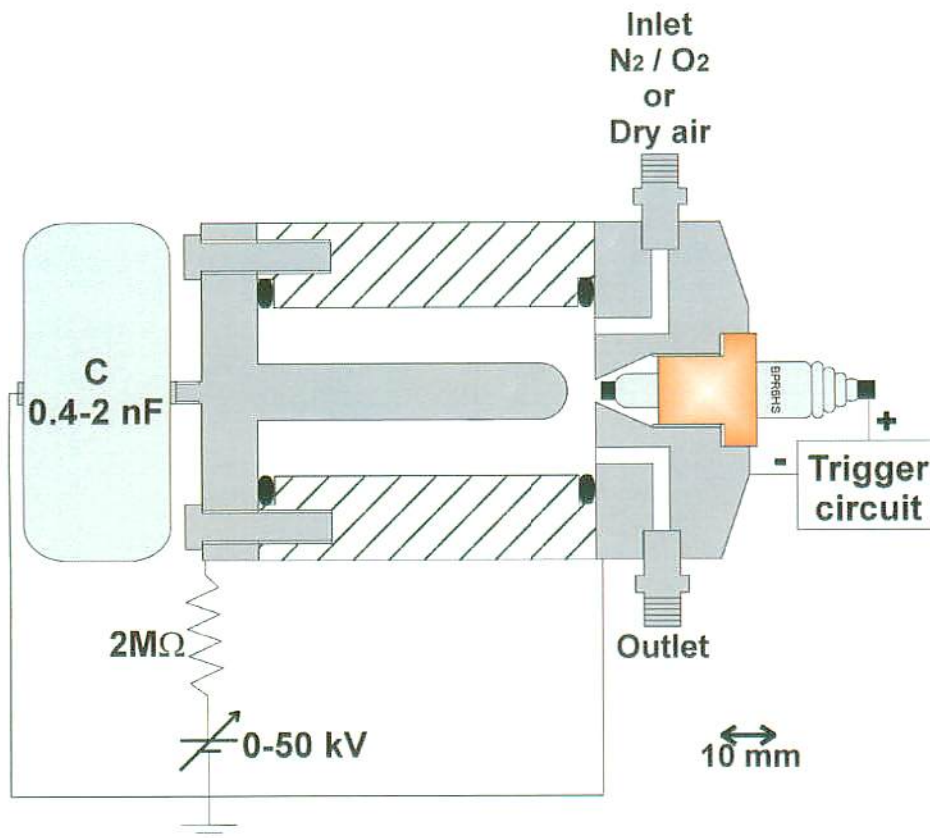


図 5.2 パルスアーク放電容器の概略

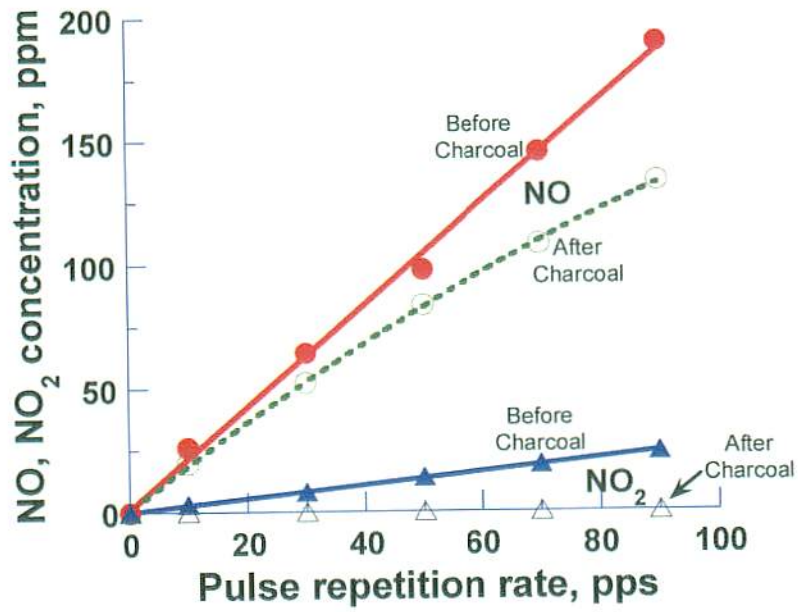


図 5.3 NO, NO₂ 濃度のパルス繰り返し周波数依存性

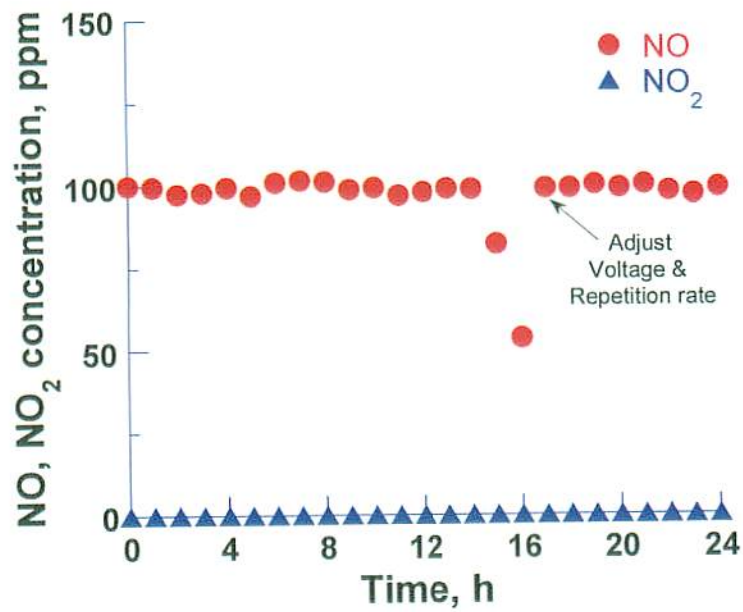


図 5.4 試作機の 24 時間連続運転試験

第6章 総括

本論文では、パルスパワーを用いて排ガス中に含まれる NO_x を処理した研究結果について報告している。排ガス中にパルスストリーマ放電を誘起し、非熱平衡プラズマにより排ガス中に生成されたラジカルが排ガス分子と引き起こす化学反応を利用して、NO_x を分解する仕組みとなっている。以下に本論文の内容をまとめて記す。

第1章では、排ガスの現状およびパルスパワーを用いた排ガス処理の必要性について述べた。

第2章では、パルスパワーを発生させるための電源について述べた。本研究では、パルス幅 40・120 ns を持つ5台の三段ブルームライン線路およびパルス幅 7 ns を持つナノ秒パルス高電圧発生装置を設計・製作した。基礎特性試験の結果、いずれもほぼ設計値通りのパルス幅を得ることができ、良好な出力電圧・電流波形を示した。また、高繰返し可能な半導体スイッチを利用した磁気パルス圧縮装置について、その動作原理を説明した。

第3章では、パルスストリーマ放電の概念およびその観測実験の結果について述べた。放電の観測は、第4章以降排ガス処理へ使用する処理容器と同じく線対円筒型電極を用いて、大気圧中でスチールカメラによる撮影、高速ゲート付 ICCD による齧取り撮影、ストリークカメラによる流し取り撮影を行ない、考察した。その結果、電極間に線状（ストリーマ）の放電が均一に印加されることを確認でき、線電極から円筒電極へ向けてプライマリー・ストリーマとセカンダリー・ストリーマが進展する様子を観察した。また、ストリーマヘッドの円筒電極到達後は、電極間にグローのような放電が確認された。ここで、パルス幅 100 ns および 7 ns のプライマリー・ストリーマの進展についてまとめると、ストリーマヘッドの進展速度は線電極表面の電界強度より影響を受け、出力電圧のピーク値が 43・104 kV における進展速度は 0.8・7.0 mm/ns となった。比較的遅い電圧立ち上がり時間 (20 ns) を有するパルス幅 100 ns に関しては、正ストリーマよりも負ストリーマの方が進展速度は遅く、ストリーマヘッドの進展開始に必要な電界強度は正ストリーマにおいて 11.9 MV/m、負ストリーマにおいては 19.9 MV/m であった。一方、速い立ち上がり時間 2.5 ns を有するパルス幅 7 ns に関しては、正・負のストリーマとも進展速度はほぼ等しく、100 ns の正ストリーマの場合より約 6 倍速い値を示した。これは、7 ns は 100 ns とでは出力電圧の立ち上がり時間に 10 倍の違いがあるためと思われる。したがって、ストリーマヘッドの進展速度は、同じパルス幅の下においては、電圧立ち上がり時間の影響が支配的であると考えられる。さらに、我々は希ガス（キセノン）中における正ストリーマ放電も観測した。その結果、希ガス中のストリーマヘッドの進展は大気中よりもわずかに速く、陰極到達後は大気圧中で見られたグローのような放電はなくアーク放電となった。

第4章では、パルスストリーマ放電を用いた排ガス処理の概念および実験結果について述べた。まず、排ガス分子を分解するために必要となる N ラジカルを高効率的に生成する検討を行なった。その結果、より多くの N ラジカルを生成できる高エネルギー電子を放電

プラズマ中に効率的に生成できるのは、短いパルス幅を持つ電源であることを見出した。次に、排ガス発生源が異なると含有 NO 濃度も変化することを考慮して、処理ガス中の NO 初期濃度に対する特性を考察した。結果として、排ガス中の NO 初期濃度が異なっても、NO、NO_x 除去率は NO 一分子あたりに注入されるエネルギー（NO エネルギー密度）に依存することを把握した。また、NO 濃度が 100 から 300 ppm の NO_x 排出施設において、環境庁所定の NO_x 排出環境基準値をクリア可能であることを確認した。さらに、比較的高い NO_x 排出濃度を有するディーゼルエンジンに対する排ガス処理実験も行い、処理容器の最適化を図った。その結果、パルスパワー電源中のパルス形成キャパシタと処理容器の幾何学的容量の比は、電源から処理容器へのエネルギー転送効率を高めるために非常に重要な指標であり、また処理容器として用いた線対平板型電極における隣接線電極間距離を広く確保することは、NO_x 処理効率を高めるために重要であることを確認した。最後に、NO_x 除去エネルギー効率を向上させるために、印加電圧のパルス幅が極めて短いナノ秒パルス高電圧発生装置を用いて実験を行なった。その結果、今後さらなる改善が必要とされるものの、NO、NO_x ともに除去効率がこれまでの最高値を示した。

第 5 章では、それまでの NO_x 処理とは一変して、医療用 NO 生成装置について述べた。微量の NO は人体に対して肺動脈圧の低下を助ける機能があり、現存の高濃度 NO ガスボンベを用いた NO 吸入法に取ってかわる安全な人工呼吸器組込型 NO 生成装置の開発を行なった。その結果、開発した試作機を用いて乾燥空気中へパルスアーク放電を印加することで NO 吸入療法における要求 NO 濃度 (0.3 l/min, 800 ppmNO) を達成することができ、24 時間連続運転試験においても優れた性能を得た。

参考文献

第1章 序論

- [1] 環境省: “大気汚染の現状”, 環境白書, 平成16年版, 財務省印刷, 平成16年.
- [2] The World Health Organization (WHO): “Nitrogen Oxides”, 丸善株式会社, 1999.
- [3] 富士総合研究所: “環境要覧”, p.481, 1992.
- [4] 親環境管理設備事典編集委員会編: “大気汚染防止機器活用事典”, 産調出版, 1995.
- [5] 大気汚染研究協会編: “地球大気環境問題とその対策”, オーム社, 1992.
- [6] R. Hackam and H. Akiyama: “Air pollution control by electrical discharges”, IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol.7, No.5 pp.654-683 (2000)
- [7] 吉岡芳夫: “各種非熱平衡プラズマによる排ガス浄化技術の適用法と相互比較法”, 電気学会誌, Vol.122-A, No.7 pp.676-682, 2002.
- [8] K. Urashima, J.S. Chang and T. Ito: “Reduction of NO_x from combustion flue gases by superimposed barrier discharge plasma reactor”, IEEE Transactions on Industry Applications, Vol.33, No.4 pp.879-886, 1997.
- [9] T. Oda, T. Kato, T. Takahashi and K. Shimizu: “Nitric oxide decomposition in air by using nonthermal plasma processing with additives and catalyst”, IEEE Transactions on Industry Applications, Vol.34, No.2 pp.268-272, 1998.
- [10] K. Takaki and T. Kujiwara: “Multipoint barrier discharge process for removal of NO_x from diesel engine exhaust”, IEEE Transactions on Plasma Science, Vol.29, No.3 pp.518-523, 2001.
- [11] 新川智祥, 島崎純平, 佐野和慶, 吉岡芳夫: “無声放電による NO 除去法において NO 除去効率に影響する諸因子”, 電気学会誌, Vol.122-A, No.9 pp.832-839, 2002.
- [12] 江原由泰, 野村季和, 馬場幸政, 村田義元, 伊藤泰郎: “複数放電重畳による窒素酸化物処理システムの効率向上”, 電気学会誌, Vol.123-A, No.6 pp.537-542, 2003.
- [13] Y. Sakai and H. Tagashira: “Decomposition of NO₂ by glow discharge plasma”, NATO ASI Series, Vol.34, Part A, Non-Thermal Plasma Techniques for Pollution Control, Edited by B.M. Penetrante and E. Schultheis, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, pp.139-149, 1993.
- [14] B. Held: “Corona and their applications”, 11th International Conference on Gas Discharges and Their Applications, Vol.2 pp.514-526, 1995.
- [15] T. Ohkubo, S. Kanazawa, Y. Nomoto, J.S. Chang and T. Adachi: “Time dependence of NO_x removal rate by a corona radical shower system”, IEEE Transactions on Industry Applications, Vol.32, No.5 pp.1058-1062, 1996.

第2章 パルスパワー電源の開発

- [1] 原雅則, 秋山秀典: “高電圧パルスパワー”, 森北出版, 1991.
- [2] 柳父悟: “パルスパワー技術とその応用”, オーム社, 1992.
- [3] 京都ハイパワーテクノロジー研究会編: “パルスパワー工学の基礎と応用”, 近代科学者, 1995.

- [4] T. Namihira, S. Tsukamoto, D. Wang, S. Katsuki, R. Hackam, H. Akiyama, Y. Uchida and M. Koike: "Improvement of NO_x removal efficiency using short width pulsed power", IEEE Transactions on Plasma Science, vol.28, pp.434-442, 2000.
- [5] 佐久川貴志: "高繰り返しパルスパワー発生装置の開発とその応用に関する研究", 熊本大学大学院自然科学研究科博士学位論文, 2004.3

第3章 パルスストリーマ放電の観測

- [1] 電気学会放電ハンドブック出版委員会: "放電ハンドブック 上巻", オーム社, 1998.
- [2] 秋山秀典: "EE Text 高電圧パルスパワー工学", オーム社, 2003.
- [3] Meek, J. M. & Craggs, J. D.: "ELECTRICAL BREAKDOWN OF GASES", pp. 251-290, Clarendon Press, 1953.
- [4] 電気学会: "放電ハンドブック 改訂新版", オーム社, pp.87-88, 昭和59年.
- [5] Raether, H.: "ELECTRON AVALANCHES AND BREAKDOWN IN GASES", pp. 113-153, Butterworths, 1964.
- [6] T. Namihira, D. Wang, S. Katsuki, R. Hackam and H. Akiyama: "Propagation velocity of pulsed streamer discharges in atmospheric air", IEEE Transactions on Plasma Science, Vol.31, No.5, pp.1091-1094, 2003.10.
- [7] E.H.W.M. Smulders, B.E.J.M. van Heesch and S.S.V.B. van Passen: "Pulsed power corona discharges for air pollution control", IEEE Transactions on Plasma Science, Vol.26, No.5, pp.1476-1484, 1998.
- [8] T. Yoshida, F. Tochikubo and T. Watanabe: "Diagnostics of pulsed corona discharge for DeNO_x process", 11th International Conference on Gas Discharges and Their Applications", Vol.2, pp.410-413, 1995.
- [9] 川村啓介, 塚本俊介, 竹下智洋, 勝木淳, 秋山秀典: "誘導型パルスパワー電源を用いた NO_x除去", 電気学会論文誌, Vol.117-A, No.9, pp.956-961, 1997.
- [10] K. Yan, H. Hui, M. Cui, J. Miao, X. Wu, C. Bao and R. Li: "Corona induced non-thermal plasmas: Fundamental study and industrial applications", Journal of Electrostatics, Vol.44, pp.17-39, 1998.
- [11] 小菅真, 藤原正純, 石田政義: "発光量評価による放電 NO_x 処理に関するパルス幅の影響分析", 電気学会論文誌, Vol.120-A, No.2, pp.167-173, 2000.
- [12] F. Tochikubo and T.H. Teich: "Optical emission from a pulsed corona discharge and its associated reactions", Jpn. J. Appl. Phys, Vol.39, No.3A, pp.1343-1350, 2000.
- [13] P. Yan, M. Fujiwara, Y. Zhou and M. Ishida: "Investigation on luminescence

and NO_x removal by pulse corona discharges”, *Journal of Electrostatics*, Vol.51-52, pp.266-271, 2001.

- [14] K. Yan, S. Kanazawa, T. Ohkubo and Y. Nomoto: “Evaluation of NO_x removal by corona induced non-thermal plasmas”, *Transactions on IEE Japan*, Vol.119-A, No.6, pp.731-737, 1999.
- [15] F. Tochikubo and T. Watanabe: “Two - dimensional measurement of emission intensity and NO density in pulsed corona discharge”, *International Symposium on High Pressure Low Temperature Plasma Chemistry*, Vol.1, pp.219-223, 2000.
- [16] F. Tochikubo, A. Miyamoto and T. Watanabe: “Simulation of streamer propagation and chemical reaction in pulsed corona discharge”. *11th International Conference on Gas Discharges and Their Applications*, Vol.1, pp.168-171, 1995.
- [17] A.A. Kulikovsky: “Analytical model of positive streamer in weak field in air: Application to plasma chemical calculations”, *IEEE Transactions on Plasma Science*, Vol.26, No.4, pp.1339-1346, 1998.
- [18] A.A. Kulikovsky: “Positive streamer in a weak field in air: A moving avalanche-to-streamer transition”, *Physical Review E*, Vol.57, No.6, pp.7066-7074, 1998.
- [19] F. Tochikubo and T. Watanabe: “Use of nonequilibrium plasma for harmful gas treatment”, *OYO BUTURI*, Vol.66, No.6, 576-579, 1997.
- [20] K. Durbhakula and S. Dhali: “Computer-generated image of streamer propagation in nitrogen”, *IEEE Transactions on Plasma Science*, Vol.27, No.1, pp.24-25, 1999.
- [21] Sigmond, R. S.: *Journal of Applied Physics*, 56 (5), 1, 1355, 1984.
- [22] J.M. Meek: “A theory of spark discharges”, *Physics Review*, Vol.57, p.722, 1940.

第4章 パルスストリーマ放電によるNO_x処理

- [1] R. Hackam and H. Akiyama: “Air pollution control by electrical discharges”, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol.7, No.5, pp.654-683, 2000.
- [2] 吉岡芳夫: “各種非熱平衡プラズマによる排ガス浄化技術の適用法と相互比較法”, *電気学会誌*, Vol.122-A, No.7, pp.676-682, 2002.
- [3] K. Urashima, J.S. Chang and T. Ito: “Reduction of NO_x from combustion flue gases by superimposed barrier discharge plasma reactor”, *IEEE Transactions*

- on Industry Applications, Vol.33, No.4, pp.879-886, 1997.
- [4] T. Oda, T. Kato, T. Takahashi and K. Shimizu: "Nitric oxide decomposition in air by using nonthermal plasma processing with additives and catalyst", IEEE Transactions on Industry Applications, Vol.34, No.2, pp.268-272, 1998.
 - [5] K. Takaki and T. Kujiwara: "Multipoint barrier discharge process for removal of NO_x from diesel engine exhaust", IEEE Transactions on Plasma Science, Vol.29, No.3, pp.518-523, 2001.
 - [6] 新川智祥, 島崎純平, 佐野和慶, 吉岡芳夫: "無声放電による NO 除去法において NO 除去効率に影響する諸因子", 電気学会誌, Vol.122-A, No.9, pp.832-839, 2002.
 - [7] 江原由泰, 野村季和, 馬場幸政, 村田義元, 伊藤泰郎: "複数放電重畳による窒素酸化物処理システムの効率向上", 電気学会誌, Vol.123-A, No.6, pp.537-542, 2003.
 - [8] Y. Sakai and H. Tagashira: "Decomposition of NO₂ by glow discharge plasma", NATO ASI Series, Vol.34, Part A, Non-Thermal Plasma Techniques for Pollution Control, Edited by B.M. Penetrante and E. Schultheis, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, pp.139-149, 1993.
 - [9] B. Held: "Corona and their applications", 11th International Conference on Gas Discharges and Their Applications, Vol.2, pp.514-526, 1995.
 - [10] T. Ohkubo, S. Kanazawa, Y. Nomoto, J.S. Chang and T. Adachi: "Time dependence of NO_x removal rate by a corona radical shower system", IEEE Transactions on Industry Applications, Vol.32, No.5, pp.1058-1062, 1996.
 - [11] F. Tochikubo and T.H. Teich: "Optical emission from a pulsed corona discharge and its associated reactions", Jpn. J. Appl. Phys, Vol.39, No.3A, pp.1343-1350, 2000
 - [12] H. Akiyama: "Pollution control by pulsed power", International Power Electrics Conference, pp.1937-1400, 1995.
 - [13] B.M. Penetrante, M.C. Hsiao, B.T. Merritt, G.E. Vogtlin and P.H. Wallman: "Comparison of electrical discharge techniques for nonthermal plasma processing of NO in N₂", IEEE Transactions on Plasma Science, Vol.23, No.4, pp.679-687, 1995.
 - [14] 川村啓介, 塚本俊介, 竹下智洋, 勝木淳, 秋山秀典: "誘導型パルスパワー電源を用いた NO_x 除去", 電気学会論文誌, Vol.117-A, No.9, pp.956-961, 1997.
 - [15] V. Puchkarrev and M. Gundersen: "Energy efficient plasma processing of gaseous emission using a short pulse discharge", Applied Physics Letter, Vol.71, No.23, pp.3364-3366, 1997.
 - [16] 塚本俊介, 浪平隆男, 王斗艶, 勝木淳, 秋山秀典, 中島英作, 佐藤昭広, 小池正実,

- 内田佳孝: “火力発電所におけるパルスパワーを用いた実ガス処理”, 電気学会論文誌, Vol.119-A, No.7, pp.984-989, 1999.
- [17] 赤崎正則, 村岡克紀, 渡辺征夫, 蛭原健治: “プラズマ工学の基礎”, 産業図書, pp.5-6, 1991.
- [18] 林泉: “高電圧プラズマ工学”, 丸善株式会社, pp.4-10, 平成8年.
- [19] 電気学会放電ハンドブック出版委員会: “放電ハンドブック 上巻”, オーム社, 1998.
- [20] 堤井信力, 小野茂: “プラズマ気相反応工学”, 内田老鶴圃, pp.77-78, 2000.
- [21] 吉川敏一, 河野雅弘, 野原一子: “活性酸素・フリーラジカルのすべてー健康から環境汚染までー”, 丸善株式会社, p.14, 2004.
- [22] D. J. ジェイコブ 著, 近藤豊 訳: “大気化学入門”, 東京大学出版会, pp.164-165, 2002.
- [23] “現代の有機化学ーラジカル反応”, 廣川書店, 1977.
- [24] “NIST Chemical Kinetics Database”, Version 6.01, U.S. Dept of Commerce. Technology Administration, Natl. Inst. Standard and Technol. Standard Ref. Data Program, Gaithersburg, MD14.
- [25] 浪平隆男, 王斗艶, 塚本俊介, 勝木淳, 秋山秀典: “パルスパワーを用いた NO_x 処理におけるガス組成の影響”, 電気学会論文誌, Vol.119-A, No.10, pp.1190-1195, 1999.
- [26] 浪平隆男: “パルスパワーを用いた窒素酸化物の分解と生成” 熊本大学博士学位論文, 2003.7.
- [27] T. Namihira, S. Tsukamoto, D. Wang, H. Hori, S. Katsuki, R. Hackam, H. Akiyama, M. Shimizu and K. Yokoyama: “Influence of gas flow rate and reactor length on NO removal using pulsed power”, IEEE Transactions on Plasma Science, Vol.29, No.4, pp.592-598, 2001.8.
- [28] T. Namihira, S. Tsukamoto, D. Wang, S. Katsuki, R. Hackam, H. Akiyama, Y. Uchida and M. Koike: “Improvement of NOX removal efficiency using short width pulsed power”, IEEE Transactions on Plasma Science, Vol.28, No.2, pp.434-442, 2000.4.
- [29] I. Gallimberti, J.K. Hepworth and R.C Klewe: “Spectroscopic investigation of impulse corona discharges”, Journal of Physics D: Applied Physics, Vol.7, pp.880-898, 1974.
- [30] N. Sgyrou and C. Manassis: “Spectroscopic study of a positive streamer in a point-to-plane discharge in air: evaluation of the electric field distribution”, Journal of Physics D: Applied Physics, Vol.22, pp.120-128, 1989.
- [31] M. Simek, S. DeBenedictis, G. Dilecce, V. Babicky, M. Clupek and P. Sunke:

- "Time and space resolved analysis of N_2 ($C^3\Pi_u$) vibrational distributions in pulsed positive corona discharge", *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol.35, pp.1981-1990, 2002.
- [32] F. Tochikubo and T.H. Teich: "Optical emission from a pulsed corona discharge and its associated reaction", *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol.39, Part 1, No.3A, pp.1343-1350, 2000.
- [33] K.V. Kozlov, H.E. Wagner, R. Brandenburg and P. Michel: "Spatio-temporally resolved spectroscopic diagnostics of the barrier discharge in air at atmospheric pressure", *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol.34, pp.3164-3176, 2001.
- [34] P. Yan, M. Fujiwara, Y. Zhou and M. Ishida: "Investigation on luminescence and NOx removal by pulse corona discharges", *Journal of Electrostatics*, Vol.51-52, pp.266-271, 2001.
- [35] B.M. Penetrante, J.N. Bardsley, and M.C. Hsiao: "Kinetic analysis of non-thermal plasmas used for pollution control", *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol.36, Part 1, No.7B, pp.5007-5017, 1997.
- [36] C.R. McLarnon and B.M. Penetrante: "Effect of Gas Composition on the NOx Conversion Chemistry in a Plasma", SAE Technical Paper Series 982433, San Francisco, CA, October 1998.
- [37] Gui-Bing Zhao, Xudong Hu, Morris D. Argyle, and Maciej Radosz: "N Atom Radicals and N_2 ($A^3\Sigma_u^+$) Found To Be Responsible for Nitrogen Oxides Conversion in Nonthermal Nitrogen Plasma", *Industrial & Engineering Chemistry Research*, Vol.43, No.17 pp.5077-5088, 2004.
- [38] T. Namihira, D. Wang, S. Katsuki, R. Hackam and H. Akiyama: "Propagation velocity of pulsed streamer discharges in atmospheric air", *IEEE Transactions on Plasma Science*, Vol.31, No.5, pp.1091-1094, 2003.10.
- [39] I. Gallimberti, J.K. Hepworth and R.C Klewe: "Spectroscopic investigation of impulse corona discharges", *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol.7, pp.880-898, 1974.
- [40] N. Sgyrou and C. Manassis: "Spectroscopic study of a positive streamer in a point-to-plane discharge in air: evaluation of the electric field distribution", *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol.22, pp.120-128, 1989.
- [41] 日本たばこ産業株式会社: "JT 環境報告書 2002", 2002.
- [42] 木村康平, 林健司, 吉岡芳夫: "無声放電によるディーゼルエンジン排ガスの NO 除去制御法の研究", *電気学会誌*, Vol.123-A, No.10, pp.1037-1044, 2003.
- [43] T. Morimune, Y. Ejiri and T. Tsukakoshi: "Removal of NOx from Exhaust Gas

- by N₂ Arc Plasma Injection”, *Int. J. of Experimental Heat Transfer, Thermodynamics and Fluid Mechanics (Experimental Thermal and Fluid Sci.)*, Vol.8, pp.175-180, 1994.
- [44] G. Dinelli, L. Civitano and M. Rea: “Industrial Experiments on Pulse Corona Simultaneous Removal of NO_x and SO₂ from Flue Gas”, *IEEE Transactions on Industry Applications*, Vol.26, No.3, pp.535-541, 1990.
- [45] S. Tsukamoto, T. Namihira, D. Wang, S. Katsuki, R. Hackam, H. Akiyama, A. Sato, Y. Uchida and M. Koike: “Effects of fly ash on NO_x removal by pulsed streamers”, *IEEE Transactions on Plasma Science*, Vol.29, No.1, pp.29-36, 2001.
- [46] 浪平隆男, 堀秀男, 王斗艶, 塚本俊介, 勝木淳, 秋山秀典, 清水勝, 横山健一: “パルスパワー方式排ガス処理におけるアンモニアの効果”, *電気学会論文誌*, Vol.121-A, No.9, pp.834-840, 2001.9.
- [47] Ann C. Gentile and Mark J. Kushner: “Reaction chemistry and optimization of plasma remediation of N_xO_y from gas streams”, *Journal of Applied Physics*, Vol.78, Issue 3, pp. 2074-2085, 1995.
- [48] S. Mukkavilli, C. K. Lee, K. Varghese, and L. L. Tavlarides: “Modeling of the Electrostatic Corona Discharge Reactor”, *IEEE Transactions on Plasma Science*, Vol.16, No.6, pp.652-660, 1988.
- [49] Young Sun Mok, Jae Hak Kim, In-Sik Nam, and Sung Won Ham: “Removal of NO and Formation of Byproducts in a Positive-Pulsed Corona Discharge Reactor”, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, Vol.39, No.10, pp.3938-3944, 2000.
- [50] L. Civitano, “Industrial application of pulsed corona processing to flue gas”, in *Non-Thermal Plasma Techniques for Pollution Control*, Eds., B. M. Penetrante and S. E. Schultheis, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, NATO ASI Series, Part B, pp.103-130, 1993.
- [51] H.S. Uhm and W. M. Lee: “An analytical theory of corona discharge plasmas”, *Physics of Plasmas*, Vol.4, No.9, pp.3117-3128, 1997.
- [52] Y. S. Mok: “Efficient Energy Delivery Condition from Pulse Generation Circuit to Corona Discharge Reactor”, *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, Vol.20, No.3, pp.353-364, 2000.
- [53] Y. H. Kim and S. H. Hong: “Two-dimensional simulation images of pulsed corona discharge in a wire-plate reactor”, *IEEE Transactions on Plasma Science*, Vol.30, No.1, pp.168-169, 2002.

第5章 人工呼吸器組込型 NO 生成装置の開発

- [1] R.M. Palmer, A.G. Ferrige and S. Moncada: "Nitric oxide release accounts for the biological activity of endothelium-derived relaxing factor", *Nature*, Vol.327, pp. 524-556, 1987.
- [2] O. Stenqvist, B. Kjelltoft and S. Lundin: "Evaluation of a new system for ventilatory administration of nitric oxide", *Acta Anaesthesiologica Scandinavica*, Vol.37, pp. 687-691, 1993.
- [3] I. Kukita, K. Okamoto, T. Sato, Y. Shibata, K. Shiihara and K. Kikuta: "Evaluation of Mapleson systems for administration of inhaled nitric oxide", *Journal of Anesthesia*, Vol.10, pp.44-48, 1996.
- [4] T. Namihira, S. Tsukamoto, D. Wang, S. Katsuki, R. Hackam, K. Okamoto and H. Akiyama: "Production of nitric monoxide using pulsed discharges for a medical application", *IEEE Transactions on Plasma Science*, Vol.28, No.1, pp.109-114, 1999.
- [5] T. Namihira, S. Katsuki, R. Hackam, H. Akiyama and K. Okamoto: "Production of nitric oxide using a pulsed arc discharge", *IEEE Transactions on Plasma Science*, Vol.30, No.5, pp.1993-1998, 2002.
- [6] T. Namihira, S. Tsukamoto, D. Wang, S. Katsuki, H. Akiyama, R. Hackam and K. Okamoto: "Production of nitric monoxide in dry air using pulsed discharge", *International Pulsed Power Conference, Monterey, USA*, Vol.2, pp.1313-1316, 1999.
- [7] T. Namihira, K. Shinozaki, H. Hori, S. Tsukamoto, S. Katsuki, H. Akiyama, K. Okamoto and R. Hackam: "Production of NO for medical applications using pulsed power technology", *2nd International Symposium on Nonthermal Medical / Biological Treatments Using Electromagnetic Fields and Ionized Gases, Portsmouth, USA, Symposium Record Abstracts*, p. 35, 2001.

謝辞

本研究を進めるにあたり、多くの方々にご指導、ご助言ご協力を頂き、本論分をまとめることができました。ここに感謝の意を表します。

パルスパワーを用いた排ガス処理に関する研究を五年に渡りご指導いただきました秋山秀典教授、勝木淳助教授に感謝いたします。また、共に研究を進め、公私共に強力に支えてくれた、夫でもある浪平隆男助手に心より深く感謝いたします。

本論文をまとめるにあたり、ご指導、ご助言を受け賜りました熊本大学大学院自然科学研究科の蛭原健治教授、檜山隆教授、後藤元信教授に感謝いたします。

日頃の研究およびゼミにおいてアドバイスを頂きました寄附講座の Tammo Heeren 客員助教授、佐久川貴志助教授に感謝いたします。

熊本大学 21 世紀 COE プログラムの喜屋武毅技官、寺本明美秘書、秋山研究室の辻光輝事務補佐、山内隆子秘書には、実験器具および各種事務手続きに関する相談に応じていただき、感謝いたします。

昼夜を問わずに実験を進めてくださいました、熊本大学院修了生（現アイシン精機株式会社）の藤矢浩二氏、本講座博士前期課程 2 年生の加藤善英氏、同じく 1 年生の吉田政史氏、軸屋学氏に心から感謝いたします。また、秋山・勝木研究室の学生の皆さんに感謝いたします。

また、2003 年から 2004 年にかけて滞在し、米国パルスパワー技術の先端に関する研究を経験させていただいた、米国テキサス州テキサステック大学の Magne Kristiansen 教授および Andreas Neuber 教授に感謝いたします。

最後に、研究を進めるにあたり多忙な私を支えてくれた家族の皆さんに深く感謝いたします。

本論文に関する研究業績

1 学術論文

- [1] D. Wang, T. Namihira, S. Katsuki and H. Akiyama, "Dependence of NO_x removal by pulsed streamer discharge on the input energy density to nitric oxide ratio". Journal of Advanced Oxidation Technologies, 2004年12月13日掲載決定.
- [2] D. Wang, T. Namihira, K. Fujiya, S. Katsuki and H. Akiyama, "The reactor design for diesel exhaust control using a magnetic pulse compressor". IEEE Transactions on Plasma Science, Vol.32, No.5, pp.2038-2044, 2004.10.
- [3] 王斗艶, 浪平隆男, 勝木淳, 秋山秀典, D. Wang, T. Namihira, S. Katsuki and H. Akiyama, "パルスパワー方式排ガス処理に関する基礎研究-NO 初期濃度による影響-". "Effect of NO initial concentration on NO_x removal using pulsed power", 電気学会論文誌, IEEJ Transactions on Fundamentals and Materials, Vol.124-A, No.8, pp.741-746, 2004.08.
- [4] 浪平隆男, 王斗艶, 勝木淳, 秋山秀典, 岡元和文, T. Namihira, D. Wang, S. Katsuki, H. Akiyama and K. Okamoto, "人工呼吸器組込型 NO 生成装置の開発". "Development of NO generator for medical applications", 電気学会論文誌, IEEJ Transactions on Electronics, Vol.124-C, No.1, pp.215-216, 2004.01.
- [5] T. Namihira, D. Wang, S. Katsuki, R. Hackam and H. Akiyama, "Propagation velocity of pulsed streamer discharges in atmospheric air", IEEE Transactions on Plasma Science, Vol.31, No.5, pp.1091-1094, 2003.10.
- [6] T. Namihira, S. Tsukamoto, D. Wang, H. Hori, S. Katsuki, R. Hackam, H. Akiyama, M. Shimizu and K. Yokoyama, "Influence of gas flow rate and reactor length on NO removal using pulsed power", IEEE Transactions on Plasma Science, Vol.29, No.4, pp.592-598, 2001.8.
- [7] 浪平隆男, 堀秀男, 王斗艶, 塚本俊介, 勝木淳, 秋山秀典, 清水勝, 横山健一, "パルスパワー方式排ガス処理におけるアンモニアの効果" 電気学会論文誌, IEEJ Transactions on Fundamentals and Materials, Vol.121-A, No.9, pp.834-840, 2001.9.
- [8] S. Tsukamoto, T. Namihira, D. Wang, S. Katsuki, R. Hackam, H. Akiyama, A. Sato, Y. Uchida and M. Koike, "Effects of fly ash on NO_x removal by pulsed streamers". IEEE Transactions on Plasma Science, Vol.29, No.1, pp.29-36, 2001.2.
- [9] T. Namihira, S. Tsukamoto, D. Wang, S. Katsuki, R. Hackam, H. Akiyama, Y. Uchida and M. Koike, "Improvement of NO_x removal efficiency using short width pulsed power", IEEE Transactions on Plasma Science, Vol.28, No.2, pp.434-442, 2000.4.
- [10] T. Namihira, S. Tsukamoto, D. Wang, S. Katsuki, R. Hackam, K. Okamoto and H. Akiyama, "Production of nitric monoxide using pulsed discharges for a medical application", IEEE Transactions on Plasma Science, Vol.28, No.1, pp.109-114, 2000.2.
- [11] 浪平隆男, 王斗艶, 塚本俊介, 勝木淳, 秋山秀典, "パルスパワーを用いた NO_x 処理におけるガス組成の影響", 電気学会論文誌, IEEJ Transactions on Fundamentals and Materials, Vol.119-A, No.10, pp.1190-1195, 1999.10.
- [12] 塚本俊介, 浪平隆男, 王斗艶, 勝木淳, 秋山秀典, 中島英作, 佐藤昭広, 小池正実, 内田佳孝, "火力発電所におけるパルスパワーを用いた実ガス処理", 電気学会論文誌, IEEJ Transactions on Fundamentals and Materials, Vol.119-A, No.7, pp.984-989, 1999.7.
- [13] D. Wang, T. Namihira and H. Akiyama, "NO_x removal using pulsed streamer

- discharges”. Proceedings of 12th Asian Conference on Electrical Discharge, Shenzhen, China, pp.39-42, 2004.11.
- [14] T. Namihira, D. Wang, S. Katsuki and H. Akiyama, “Experimental analysis of pulsed streamer discharges in atmospheric air”, Proceedings of 12th Asian Conference on Electrical Discharge, Shenzhen, China, pp.122-125, 2004.11.
- [15] D. Wang, T. Namihira, S. Katsuki and H. Akiyama, “Ultra-short pulse generator for environmental control”, Proceedings of 15th International Conference on Gas Discharges and Their Applications, Toulouse, France, vol.2, pp.709-712, 2004.09.
- [16] T. Namihira, D. Wang, S. Katsuki, H. Akiyama and K. Okamoto, “Development of NO production system for medical applications”, Proceedings of 15th International Conference on Gas Discharges and Their Applications, Toulouse, France, vol.2, pp.725-728, 2004.09.
- [17] D. Wang, T. Namihira, S. Katsuki and H. Akiyama, “Effect of nitric oxide initial concentration for industrial applications on NO_x removal using pulsed power”, Proceedings of 4th International Symposium on Non Thermal Plasma Technology for Pollution Control and Sustainable Energy Development, Panama city beach, USA, pp.142-146, 2004.05.
- [18] T. Namihira, D. Wang, S. Katsuki and H. Akiyama, “Radical formations in pulsed streamer discharges”. Proceedings of 4th International Symposium on Non Thermal Plasma Technology for Pollution Control and Sustainable Energy Development, Panama city beach, USA, pp.134-139, 2004.05.
- [19] D. Wang, K. Fujiya, T. Namihira, S. Katsuki and H. Akiyama, “Diesel exhaust control using a magnetic pulse compressor”, Proceedings of 14th IEEE International Pulsed Power Conference, Dallas, USA, vol.2, pp.1270-1273, 2003.06.
- [20] T. Namihira, D. Wang, T. Takashima, S. Katsuki and H. Akiyama, “Water purification using a pulsed streamer discharges in micro-bubbled water”, Proceedings of 14th IEEE International Pulsed Power Conference, Dallas, USA, vol.2, pp.1266-1269, 2003.06.
- [21] T. Sakugawa, D. Wang, K. Shinozaki, T. Namihira, S. Katsuki and H. Akiyama, “Repetitive short-pulse generator using MPC and Blumlein line”, Proceedings of 14th IEEE International Pulsed Power Conference, Dallas, USA, vol.1, pp.657-660, 2003.06.
- [22] T. Namihira, S. Tsukamoto, D. Wang, S. Katsuki, R. Hackam and H. Akiyama, “Axial distribution of NO_x in a coaxial reactor during NO_x removal with pulsed power”, Proceedings of 13th International Conference on Gas Discharge and their Applications, Glasgow, UK, vol.2, pp.712-715, 2000.9.
- [23] S. Tsukamoto, T. Namihira, D. Wang, S. Katsuki, H. Akiyama, E. Nakashima, A. Sato, Y. Uchida and M. Koike, “NO_x and SO₂ removal by pulsed power at a thermal power plant”. Proceedings of 12th IEEE International Pulsed Power Conference, Monterey, USA, Vol.2, pp.1330-1333, 1999.6.
- [24] T. Namihira, S. Tsukamoto, D. Wang, S. Katsuki, H. Akiyama, R. Hackam and K. Okamoto, “Production of nitric monoxide in dry air using pulsed discharge”, Proceedings of 12th IEEE International Pulsed Power Conference, Monterey, USA, Vol.2, pp.1313-1316, 1999.6.

2 著書
なし

3 資料

- [1] T. Heeren, T. Ueno, D. Wang, T. Namihira, S. Katsuki, H. Akiyama. “Prototype

- Miniature Marx Generator for Microplasma Applications”, 2nd International Workshop on Microplasma, Hoboken, USA, p.66, 2004.10.
- [2] D. Wang, T. Namihira, S. Katsuki and H. Akiyama, “Ultra-short pulse generator for environmental control”, The Papers of Joint Technical Meeting on Plasma Science and Technology and Pulsed Power Technology, IEE Japan, PPT-04-34, PST-04-39, pp.45-48, Maui, USA, 2004.08.
- [3] T. Namihira, D. Wang, S. Katsuki, H. Akiyama and K. Okamoto, “Development of NO production system for medical applications”, The Papers of Joint Technical Meeting on Plasma Science and Technology and Pulsed Power Technology, IEE Japan, PPT-04-49, PST-04-54, pp.115-118, Maui, USA, 2004.08.
- [4] T. Heeren, T. Ueno, D. Wang, T. Namihira, S. Katsuki and H. Akiyama, “Miniature Marx generator for microplasma applications”, The Papers of Joint Technical Meeting on Plasma Science and Technology and Pulsed Power Technology, IEE Japan, PPT-04-41, PST-04-46, pp.77-80 Maui, USA, 2004.08.
- [5] T. Namihira, D. Wang, A. Neuber, M. Butcher, J. Dickens and H. Krompholz, “Light-matter interaction in transformer oil”, 31st IEEE International Conference On Plasma Science, Baltimore, USA, vol.1, pp.448, 2004.06.
- [6] 藤矢浩二, 王斗艶, 浪平隆男, 勝木淳, 秋山秀典, “磁気パルス圧縮電源を用いたディーゼル排気ガスの浄化”, 第 7 回プラズマ・核融合学会 九州・沖縄・山口支部, pp.81-82, 2003.12.19.
- [7] T. Namihira, H. Hori, D. Wang, S. Tsukamoto, S. Katsuki, H. Akiyama, M. Shimizu and K. Yokoyama, “Effect of NH₃ on NO_x removal using pulsed power”, XXV International Conference on Phenomena in Ionized Gases, Nagoya, Japan, vol.4, p.137, 2001.7.21.
- [8] 堀秀男, 浪平隆男, 王斗艶, 塚本俊介, 勝木淳, 秋山秀典, 内田佳孝, 小池正実, “パルスパワー方式排ガス処理におけるアンモニアの効果”, 平成 12 年度電気学会放電研究会資料, ED-00-96, pp.55-60, 2000.9.
- [9] T. Namihira, H. Hori, D. Wang, S. Tsukamoto, S. Katsuki, R. Hackam, H. Akiyama, Y. Uchida and M. Koike, “Effect of pulse width on NO_x removal using Non-thermal plasma”. 13th International Conference on High-Power Particle Beams, Nagaoka, Japan, pp.189, 2000.6.
- [10] 塚本俊介, 浪平隆男, 王斗艶, 勝木淳, R. Hackam, 秋山秀典, 佐藤昭広, 内田佳孝, 小池正実, “パルスパワーを用いた NO_x 処理におけるフライアッシュの効果”, 平成 12 年度電気学会パルスパワー研究会資料, PPT-00-37, pp.13-18, 2000.5
- [11] 浪平隆男, 堀秀男, 王斗艶, 塚本俊介, 勝木淳, 秋山秀典, 内田佳孝, 小池正実, “パルスパワー方式排ガス処理におけるアンモニアの効果”, 平成 12 年度電気学会パルスパワー研究会資料, PPT-00-36, pp.7-12, 2000.5.
- [12] 浪平隆男, 王斗艶, 塚本俊介, 勝木淳, 秋山秀典, “パルスパワーを用いた排ガス処理 – 同軸円筒電極における処理ガスの軸方向分布 –”, 平成 12 年電気学会全国大会講演論文集, 1-272, p.331, 2000.3.
- [13] 塚本俊介, 浪平隆男, 王斗艶, 勝木淳, R. Hackam, 秋山秀典, 佐藤昭広, 内田佳孝, 小池正実, “パルスパワーを用いた排ガス処理におけるフライアッシュの効果”, 平成 12 年度電気学会全国大会講演論文集, p.1-129, p.162, 2000.3.
- [14] T. Namihira, S. Tsukamoto, D. Wang, S. Katsuki, R. Hackam and H. Akiyama, “NO_x removal using pulsed power”, 平成 11 年度核融合科学研究所共同研究会, National Institute for Fusion Science – Physics and Applications of Extreme Energy Density State, pp.130-138, 1999.11.
- [15] 浪平隆男, 王斗艶, 塚本俊介, 勝木淳, R. Hackam, 秋山秀典, “短パルス化によるパルスパワー方式排ガス処理の高効率化”, 平成 11 年度電気学会放電研究会資料, ED-99-95, pp.7-12, 1999.9.

- [16] 王斗艶, 浪平隆男, 塚本俊介, 勝木淳, 秋山秀典, “パルスパワーを用いた排ガス処理におけるガス流量の影響”, 平成 11 年度電気学会九州支部大会講演論文集, p.4, 1999.10.
- [17] 浪平隆男, 王斗艶, 塚本俊介, 辻公輝, 勝木淳, 秋山秀典, 岡本和文, “パルスアーク放電プラズマを用いた NO 生成”, 平成 11 年度電気学会九州支部大会講演論文集, p.6, 1999.10.
- [18] 浪平隆男, 王斗艶, 塚本俊介, 勝木淳, 秋山秀典, “パルスパワーを用いた排ガス処理におけるストリーマ放電現象の解析”, 平成 11 年度電気学会九州支部大会講演論文集, p.53, 1999.10.
- [19] 塚本俊介, 浪平隆男, 王斗艶, 勝木淳, 秋山秀典, 佐藤昭広, 内田佳孝, 小池正実, “パルスパワーを用いた排ガス処理におけるフライアッシュの影響”, 平成 11 年度電気学会九州支部大会講演論文集, p.10, 1999.10.
- [20] 王斗艶, 浪平隆男, 塚本俊介, 勝木淳, 秋山秀典, “パルスパワーを用いた NO_x 処理におけるガス組成の影響”, 平成 11 年電気学会全国大会講演論文集, p.1-113, 1999.3.
- [21] 浪平隆男, 王斗艶, 塚本俊介, 勝木淳, 秋山秀典, “パルスパワーを用いた NO_x 処理の高効率化”, 平成 11 年電気学会全国大会講演論文集, p.1-114, 1999.3.
- [22] 塚本俊介, 浪平隆男, 王斗艶, 辻公輝, 勝木淳, 秋山秀典, 岡本和文, “パルスアーク放電を用いた NO 生成”, 平成 11 年電気学会全国大会講演論文集, p.1-135, 1999.3.
- [23] 浪平隆男, 王斗艶, 塚本俊介, 勝木淳, 秋山秀典, “パルスパワーを用いた排ガス処理の高効率化”, 平成 10 年度プラズマ・核融合学会 九州・沖縄・山口地区研究連絡会, P-22, p.75, 1999.2.
- [24] 王斗艶, 浪平隆男, 塚本俊介, 辻公輝, 勝木淳, 秋山秀典, 岡本和文, “パルスアーク放電プラズマを用いた NO 生成”, 平成 10 年度電気学会九州支部大会講演論文集, p.866, 1998.10.
- [25] 浪平隆男, 王斗艶, 塚本俊介, 勝木淳, 秋山秀典, “パルスパワーを用いた NO_x 処理におけるガス組成の影響”, 平成 10 年度電気学会九州支部大会講演論文集, p.875, 1998.10.
- [26] 塚本俊介, 浪平隆男, 王斗艶, 勝木淳, 秋山秀典, 中島英作, 佐藤昭広, 小池正実, “パルスパワーを用いた火力発電所における排ガス処理”, 平成 10 年度電気学会九州支部大会講演論文集, p.867, 1998.10.
- [27] 浪平隆男, 王斗艶, 塚本俊介, 勝木淳, 秋山秀典, “パルスパワーを用いた NO_x 処理におけるガス組成の影響”, 平成 10 年度電気学会放電研究会資料, ED-98-111, pp.29-34, 1998.9.