

誘電体表面電位と大気圧空気中における 均一バリア放電現象の関係

渡部 佳月*. 大澤 直樹**.1

(2024年2月29日受付;2024年5月13日受理)

Relation Between Dielectric Surface Potential and Diffuse Barrier Discharge Phenomena in Atmospheric Pressure Air Kazuki WATANABE^{*} and Naoki OSAWA^{**,1}

(Received February 29, 2024; Accepted May 13, 2024)

The amount of surface charge accumulation on the barrier surface is important in generating Atmospheric Pressure Townsend Discharge (APTD) in air. However, since APTD was not generated in air if we used different barrier materials, it remains to be seen whether the barrier material or the amount of surface charge accumulation is more important in generating APTD in air. In this study, we investigated the effect of surface charge accumulation on APTD generation by controlling surface potential on the barrier. As a result, (1) the barrier that can generate APTD had high surface and volume resistivity and was easy to maintain surface potential, (2) APTD was generated when the surface potential on the barrier was high and was not generated when it was low, and (3) APTD was generated at high applied voltage even at the low surface potential on the barrier.

1. はじめに

誘電体バリア放電 (Dielectric Barrier Discharge: DBD) は, 電極間に誘電体を介在させ,交流高電圧を印加することで 発生するストリーマ放電の集合体である. この DBD は, 大容量のオゾン生成に有効であり,主に上下水道処理に利 用されている¹⁰. 近年では,皮膚疾患の治療や種子の発芽 促進・抑制などの医療・農業分野への応用も報告されてい る^{2,3)}.しかし,放電処理による種子の抑制において,プ ラズマに暴露された種皮が壊死する,種皮に細孔が生じる などの報告例もある^{3,4)}. そのため,これらの分野では, 低侵襲で均一な DBD 装置の開発が切望されている.

DBD は特定の条件で、大気圧下でもストリーマ放電が 発生しない均一バリア放電となることが知られている、大 気圧均一バリア放電には、大気圧グロー放電(Atmospheric

```
キーワード:誘電体バリア放電,大気圧タウンゼント放電,
ストリーマ放電,誘電体表面電位,表面抵抗率
```

* 金沢工業大学大学院 工学研究科 電気電子工学専攻 (〒921-8501 石川県野々市市扇が丘 7-1)

Graduate Program in Electrical Engineering and Electrics, Kanazawa Institute of Technology, 7-1 Ohgigaoka, Nonoichi, Ishikawa 921-8501, Japan

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

¹ n.osawa@neptune.kanazawa-it.ac.jp

Pressure Glow Discharge: APGD)と大気圧タウンゼント放 電(Atmospheric Pressure Townsend Discharge: APTD)があ り, APGD は He や Ar といった希ガス中^{5.6}, APTD は窒 素中,空気中,ならびに酸素中で発生する⁷⁻¹⁰. しかし, 空気中や酸素中で APTD を発生させるには,特定の誘電 体材料を用いる必要があり¹¹⁾,その発生メカニズムは明ら かにされていない. APTD の放電エネルギーはストリーマ 放電先端のエネルギーよりも低いことから¹²⁾,大気圧空気 中における APTD の発生メカニズムを解明することで,低 侵襲で均一な DBD 装置の開発に貢献できる.

空気中で APTD を発生できる誘電体では、ストリーマ放 電のみ発生する誘電体よりも誘電体表面に蓄積される電荷 量が多く、帯電状態を維持しやすい^{13,14)}. そのため APTD の発生は、誘電体表面の蓄積電荷量に起因するものと予想 してきた. そこで近年, 著者らは, 半球棒電極とアルミナ 被覆平板電極で構成される DBD 装置を用いて,誘電体表 面が帯電していない状態で DBD 装置に電圧を印加したと きの APTD 発生の有無を調べてきた.その結果,交流電圧 1サイクル目では APTD は発生しないことが明らかとなり, APTD の発生には蓄積電荷量が関係していることがわかっ た¹⁵⁾.また、放電電流から移動電荷量を求め、誘電体表面 に蓄積される電荷量を推定して APTD 発生との関係を調べ た結果, APTD の発生には蓄積電荷量に閾値が存在するこ とが示唆された¹⁵⁾.しかし、これまでの研究では、誘電体 表面に蓄積された帯電量と APTD 発生の関係について明ら かにできていなかった.また、誘電体材料を変えると APTD

DOI : https://doi.org/10.34342/iesj.2024.48.4.143

が発生しなくなるため、誘電体材料と帯電量のどちらが APTDの発生に寄与するのかも明らかにできていなかった.

本研究では、大気圧空気中での APTD 発生メカニズムを 解明するために、非接触型の表面電位計を用いて誘電体表 面電位を測定し、APTD 発生との関係について調べた.本 論文では、はじめに誘電体材料ごとの放電発生中における 帯電分布の特徴について述べる.次に APTD を発生でき る誘電体を用いて、誘電体の表面電位を制御したときの APTD の発生について述べる.

2. 実験方法

2.1 実験システム

図1に実験システムを示す.システムは、高電圧電源、 DBD 装置, 電流測定部, 表面電位測定系で構成される. 高電圧電源は、ファンクションジェネレータ(AFG-3022C、 Tektronix) と高圧アンプ (Model 30/20A, Trek) で構成さ れており、電圧波高値と印加電圧サイクル数をコントロール できる. 電流波形は DBD 装置の低圧側に接続された電流検 出抵抗(20 kΩ)の電圧降下より測定した。印加電圧波形と 電流波形の測定には、オシロスコープを使用した、過電圧 によりオシロスコープが破損するのを防ぐために、電流検出 抵抗にはバリスタを並列に接続した.印加電圧波形は正弦 波交流とし, 周波数は 50 Hz とした. ディレイジェネレータ (DG535, Stanford Research Systems)を用いて、電源と表面 電位を測定するための電動アクチュエータを同期させた.表 面電位の測定には、表面電位計(Model 341B, Trek Japan) と非接触型の測定プローブ (Model 3455ET, Trek Japan, 測定 スポット直径:25 mm)を用いた.誘電体の表面電位が0V であることを確認してから半球棒電極に電圧を印加した.

2.2 DBD装置の仕様

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

図3はアルミナ被覆平板電極の寸法である.アルミナ被 覆平板電極は、100 mm × 100 mmのセラミックスに、80 mm × 80 mmのタングステン製の薄膜電極が内挿されてい る.誘電体材料はアルミナ(純度92%)であり、厚さは1 mmである.使用した誘電体は、APTDを発生できる誘電 体(A473、京セラ社製)とストリーマ放電のみ発生する誘 電体(A440、京セラ社製)の2種類である.Table1はそれ ぞれの誘電体の仕様をまとめたものである.また、高抵抗 率計(MCP-HT800, Nittoseiko Analytech)でそれぞれの誘 電体の表面及び体積抵抗率を測定した.測定箇所はJIS K 7194を参考に5点とし、その平均値を測定値とした¹⁶.



図1 実験システム

Fig.1 Experimental setup.



図 2 DBD 装置

Fig.2 DBD device.





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

2.3 誘電体表面電位分布の時間変化の測定方法

誘電体材料ごとの放電発生中における表面電位分布の時 間変化を調べるため、交流電圧を各位相で遮断し、直後の 表面電位分布を測定した。A473 バリアを用いるときは、 電圧波高値を 11.8 kVp とし、交流電圧 6 サイクル目の各位 相で表面電位分布を測定した.この条件は、交流電圧の極 性が正(以降,正極性と呼ぶ)のときに APTD が安定し て発生し、極性が負(以降,負極性と呼ぶ)のときにスト ーマ放電が1本だけ発生する条件である¹⁵⁾.A440 バリアを 用いるときは、電圧波高値を 10.6 kVp とし、交流電圧 151

表 1 A473 と A440 バリアの仕様 Table 1 Specifications of the A473 and A440 barriers

Material code	A473	A440
Major component (Purity)	Al ₂ O ₃ (92%)	
Relative permittivity (1 MHz)	9.1	9.8
$\tan \delta (1 \text{ MHz})$	5×10^{-4}	24×10^{-4}
Surface roughness Ra	0.390 µm	0.410 μm
Supplier	Kyocera Corporation	



Fig.4 Examples of applied voltage.

サイクル目の各位相で表面電位分布を測定した.これは, 1本のストリーマ放電が発生しやすい条件である.

2.4 誘電体表面電位の制御方法

A473 バリアを用いたときの表面電位を制御し,表面電位 と APTD 発生の関係を調べる.ここでは,誘電体表面電位 の制御方法について説明する.図4 は印加電圧波形の一例 である.図に示すように,先ずは,電圧波高値 11.8 kVp の 正弦波を5サイクル印加し,表面電位分布を測定する(図 内(1)).次に,バリア中心(半球棒電極直下)の表面電位 が任意の値に減少するまで休止時間 toFF (10~30 min 程度) を設ける(図内(2)).最後に,表面電位が任意の値まで減 衰したのを確認後,正極性の正弦波を印加する(図内(3)). このときの電流波形から APTD 発生の有無を観察した.

3. 結果

3.1 誘電体表面電位分布の時間変化

図5に、A473バリアを用いたときの電圧電流波形、変 位電流ならびに放電電流波形の一例を示す.測定された電 流 *i*m は変位電流 *i*a と放電電流 *i*as の和であるため、*i*m から *i*a を減じて *i*as を求めた.ここで、*i*a は印加電圧の時間変化 より求めた.位相 20°~100°(期間 A)で連続的な電流が発 生し、位相 215°~225°(期間 C)の間でパルス電流が1本 発生した.これまで同条件での放電観察にて、連続的な電流 が発生しているときでは APTD、1本のパルス電流が発生し ているときでは 1本のストリーマ放電が発生していることを 確認している¹⁵.したがって、期間 A では APTD、期間 C では 1本のストリーマ放電が発生していることを確認できた.



図5 印加電圧 v, 測定電流 im, 変位電流 ia ならびに放電電流 ids. (A473)







図6に、A473バリアでの表面電位分布の時間変化を示す。 位置0mmはバリアの中心(半球棒電極直下)である.表 面電位分布は、0.05 mm 間隔のデータによって示されてい る. なお、測定された分布は、沿面放電によるものも含ま れている. 放電が発生するとバリア中心の誘電体表面には. 放電前と逆極性の電荷が蓄積されることを確認した.期間 Aでは,帯電分布は4.4 msの時間をかけて緩やかに変化し, APTD 発生後は正に帯電した. APTD 発生後からストリー マ放電発生直前までの期間 B では、帯電分布が維持され ることを確認した.期間Cでは、帯電分布は0.6 ms以内 で変化し、ストリーマ放電発生後は負に帯電した. ストリ ーマ放電発生後から APTD 発生直前までの期間 D では、 期間 B と同様に帯電分布が維持されることを確認した.以 上より A473 バリアでは、APTD が発生している期間の帯電 分布は、ストリーマ放電が発生しているときよりも緩やか に変化することがわかった.また、放電が発生していない



Fig.7 Applied voltage: v and current waveforms: i (A440).



Fig.8 Spatiotemporal distribution of surface potential (A440).

期間では帯電分布が維持されることを確認した.

図7に、A440バリアを用いたときの電圧電流波形の一 例を示す.正極性と負極性でパルス電流が1本ずつ発生し、 半サイクルで1本のストリーマ放電の発生を確認できた. しかし、放電の発生タイミングはランダムであり、正極性 では位相25°~65°、負極性では205°~250°で発生した.

A440 バリアでは放電発生前後の表面電位分布を取得し た.これは、放電の発生タイミングがランダムであり、表 面電位マップの作成が困難なためである.図8に位相100°, 180°, 280°及び360°(0°)の表面電位分布を示す。A473 バリアと同様に、放電が発生するとバリア中心の誘電体表 面には、放電前と逆極性の電荷が蓄積されることを確認し た. 正極性のストリーマ放電発生後(位相100°)では, 誘電体表面は正に帯電した.一方で負極性のストリーマ放 電発生後(位相 280°)では、およそ± 6.5 mm 以内は負に 帯電したが, ± 6.5 mm 以外では正に帯電した. ここで, 負極性の沿面放電では、その外殻に正電荷帯が形成される ことが実験的に報告されている 17. そのため, バリア中心 部以外で正に帯電したのは、沿面放電で生じた正イオンの 残留によるものと思われる。放電発生直前である位相180°及 び360°(0°)では、どちらも放電発生後の表面電位よりも 低い値となった.

4. 考察

4.1 各種誘電体の帯電特性と表面及び体積抵抗率の関係 放電が発生していない期間では、A473バリアの方が



図 9 A473 と A440 バリアの表面抵抗率と体積抵抗率 Fig.9 Surface resistivity and volume resistivity.

A440 バリアよりも帯電状態が維持された. このことから APTD の発生には,帯電状態の維持が重要であると考えら れる.異なる誘電体材料で帯電の維持に違いが見られたの は,誘電体の表面及び体積抵抗率の違いとそれに伴う蓄積 電荷の表面及び体積漏れ現象が関係していると思われる. そこで,各種誘電体の表面及び体積抵抗率を調べた.

図 9 に, 各種誘電体の表面及び体積抵抗率の測定結果を 示す. A473 バリアの表面抵抗率と体積抵抗率は, それぞ れ 1.0 × 10¹⁶ Ω/sq と 2.0 × 10¹⁵ Ω·cm 以上であった. 一方, A440 バリアの表面抵抗率と体積抵抗率は, それぞれ 3.2 × 10¹⁴ Ω/sq と 2.0 × 10¹³ Ω·cm であった. 以上より, A473 バ リアの方が A440 バリアよりも帯電を維持しやすかったの は, A473 バリアの方が表面及び体積抵抗率が高いため, 電荷の表面及び体積漏れが少なったためと考えられる.

4.2 誘電体表面電位制御後の電圧電流波形

ストリーマ放電のみ発生する A440 バリアでは,放電直 後から次の放電直前までの間に帯電分布が維持されず,表 面電位が低くなった.このことから,A473 バリアでも表面 電位が低いと APTD が発生しなくなることが予想される. そこで,表面電位を制御したときの APTD の発生について 調べた.ここではまず,表面電位制御後に正極性の電圧を 印加したときに得られた電流波形について説明する.

図10に、A473 バリアで休止時間 toFF 後に、正極性の電 圧を印加したときに得られた代表的な電圧電流波形を示す (例:電圧 11.8 kVp,電極直下部の表面電位-3.0 kV).図中 (a)では、APTD は発生せず、ストリーマ放電のみが発生 した.図中(b)では、ストリーマ放電が発生した後に APTD が発生した、以上のように、休止時間 toFF を設けて表 面電位を制御した後では、APTD のみで発生するパターン は見られなかった。Golubovskii ら¹⁸⁾は、誘電体表面に蓄積 された電子の二次電子放出が窒素中でのAPTD の発生に重 要であることを報告している、A.P. Papadakis¹⁹⁾は、数値解



Fig.10 Voltage and current waveform after off-time *t*_{OFF}.

析を用いてストリーマ放電発生直後の放電空間には,正イ オンが残留することを示している.しかし,今回は表面電 位の調整のために休止時間 toFF を設けたため,放電を連続 的に発生させた場合に比べて,放電発生直前の放電空間の 残留正イオンははるかに少なくなっていたと考えられる. そのため,本実験では正イオンが誘電体表面に衝突するこ とによる二次電子放出の効果が,連続的に放電させた場合 に比べて少なかったことが予想される.以上がストリーマ 放電の後に APTD が発生した理由であると考えられる.な お,上記の結果は,空気中での APTD の発生においても, 二次電子放出による電子の連続的な供給が重要であること を示唆している.

4.3 誘電体表面電位とAPTD発生の関係

次に,バリア中心の表面電位を制御したときの APTD の 発生の有無について調べた.また,電界強度の影響も調べ るため,休止後の印加電圧を変えたときの影響も調べた.

図 11(a)~(c)に,休止時間 torr 後に電圧 10.6, 11.8, 13.0 kVp 印加したときの表面電位と APTD 発生の関係を示す. APTD のピーク電流は,図 10(b)中の APTD 発生中におけ る放電電流(以降, APTD 電流と呼ぶ)のピーク値である. 図 11(a)には、参考までに A440バリアでの放電発生直前(位 相 100°)の表面電位を示している.図 11(a),(b)より,印 加電圧 10.6 kVp では表面電位 -3.5 kV 以下,11.8 kVp では -2.5 kV 以下は APTD が発生しなかった.表面電位を高く すると APTD が発生するようになり,APTD の発生率も高 くなった.13.0 kVp ではすべての表面電位で APTD が発生 し、発生率も 80%以上であった.すべての印加電圧で表面 電位を高くすると APTD 電流の波高値が高くなったが,こ れは印加電圧を高くすると衝突電離係数が高くなるため, APTD 発生中の移動電荷量が増えたからである.また,低 い印加電圧で APTD が発生しない表面電位(例:印加電圧



図 11 バリア中心部の表面電位と APTD 電流の波高値, なら びに APTD 発生率の関係

Fig.11 Relation between the surface potential at the center of the barrier, peak of the APTD current, and discharge probability for APTD.

10.6 kVp. 表面電位-3.0 kV)でも、印加電圧を高くすると APTD が発生するようになり、発生率も高くなった.以上 より、休止時間を設けた後での APTD の発生には、高い電 界強度が必要であることを確認できた.しかし、本実験に おける APTD の現象は、休止時間後の同じ半周期におけ るストリーマ放電発生後の現象である.そのため今後は、 休止時間後におけるストリーマ放電発生後の帯電分布と印 加電圧によって形成されるギャップ間の電界を解析し、こ れらが APTD 発生に及ぼす影響を調べる必要がある.

誘電体表面が帯電していないとき、電圧を印加しても APTD が発生しないことから¹⁵,空気中での APTD の発生 には誘電体表面が少なくとも負に帯電している必要がある ことがわかっている.また、本研究により、放電発生前の ギャップ間には、正イオンが存在している必要があること が示唆された.したがって、空気中での APTD の発生には、 1)誘電体表面が負に帯電していること、2)残留正イオン がクーロン力を受けて誘電体表面に衝突し、二次電子放出 によって電子が連続的に供給されることが重要であると考 えられる.正イオンによる二次電子出の効果については、 今後さらに調べていく必要がある.

5. まとめ

大気圧空気中での APTD の発生メカニズムを解明するために,誘電体材料ごとの放電発生中における帯電分布の特徴について調べた.また,APTD を発生できる誘電体を用いて,誘電体の表面電位を制御したときの APTD の発生について調べた.その結果,以下の知見が得られた.

- (1) APTD を発生できる誘電体は、ストリーマ放電のみ発 生する誘電体に比べて、表面及び体積抵抗率が高く、 帯電状態を維持しやすい。
- (2) 電圧印加に休止時間を設けて再び電圧を印加した場合, ストリーマ放電が発生した後に APTD が発生する.
- (3) APTD を発生できる誘電体でも、バリア中心の表面電 位が低い場合では APTD は発生しない.
- (4) APTD が発生しない表面電位でも印加電圧を高くする と発生するようになることから、高い電界強度が必要 であることを確認した。

最後に、本研究の実験に協力していただいた本学大学院 電気電子工学専攻の堀隼太朗氏、本学電気電子工学科の勘 田裕仁郎氏、髙橋慶氏に深く感謝いたします.また、アル ミナ被覆平板電極は京セラ株式会社から提供していただき ました.ここに深く感謝いたします.なお、本研究はJSPS 科研費 JP23K03824の助成を受けて実施されました.

参考文献

- 1) 山部長兵衛:オゾン生成技術とオゾン利用. 電学論 A, 126 (2006) 874
- 2) 熊谷慎也,小林未明,清水鉄司,佐々木実:一細胞に非熱 平衡プラズマを照射する Plasma-on-Chip デバイス:誘電体 バリア放電方式による動作特性の改善. 電学論 C, 140 (2020) 452
- 3) 門脇一則, 野中将輝, 中田晃弘, 尾崎良太郎, 辻田泉, 栗

坂信之:ナノ秒極性反転パルス電圧によりバリア放電処理 されたトマト種子の嫌光性喪失. 電学論 A, 136 (2016) 434

- 4) 葛谷昌之:低温プラズマ技術の新規医薬学的応用.薬学雑誌,126 (2006) 439
- S. Kanazawa, M. Kogoma, T. Moriwaki and S. Okazaki: Stable glow plasma at atmospheric pressure. J. Phys. D: Appl. Phys., 21 (1988) 838
- T. Yokoyama, M. Kogoma, T. Moriwaki and S. Okazaki: The mechanism of the stabilization of glow plasma at atmospheric pressure. J. Phys. D: Appl. Phys., 23 (1990) 1125
- N. Gherardi, G. Gouda, E. Gat, A. Ricard and F. Massines: Transition from glow silent discharge to micro-discharges in nitrogen gas. Plasma Sources Sci. Technol., 9 (2000) 340
- N. Gherardi and F. Massines: Mechanisms Controlling the Transition from Glow Silent Discharge to Streamer Discharge in Nitrogen. IEEE Trans. Plasma Sci., 29 (2001) 536
- 9) N. Naude, J-P. Cambronne, N. Gherardi and F. Massines: Electrical model and analysis of the transition from an atmospheric pressure Townsend discharge to a filamentary discharge. J. Phys. D: Appl. Phys., **38** (2005) 530
- N. Osawa and Y. Yoshioka: Generation of Low-Frequency Homogeneous Dielectric Barrier Discharge at Atmospheric Pressure. IEEE Trans. Plasma Sci., 40 (2012) 2-8
- 11) 大澤直樹, 吉岡芳夫, 花岡良一, 望月祐太朗, 小林祐介, 山田雄太:誘電体バリア放電装置における大気圧空気中で の均一放電の発生. 電学論 A, 130 (2010) 306
- 12) A. Komuro, R. Ono and T. Oda: Numerical simulation for production of O and N radicals in an atmospheric-pressure streamer discharge. J. Phys. D: Appl. Phys., 45 (2012) 265201
- N. Osawa and Y. Yoshioka: Progresses of Fundamental Research and Application of Atmospheric Pressure Townsend Discharge. J. Adv. Oxid. Technol., 17 (2014) 217
- 14) N. Osawa, Y. Mori, N. Hirose, S. Motoyama, Y. Yoshioka and R. Hanaoka: DISTRIBUTION OF SURFACE POTENTIAL ON DIELECTRIC BARRIER UNDER DIFFERENT DISCHARGE MODES IN ATMOSPHERIC-PRESSURE AIR. Proc. 16th High Pressure Low Temperature Plasma Chemistry Symposium (2018)
- 15)渡部佳月、大澤直樹:電圧印加サイクル数と大気圧空気中 における均一バリア放電現象の関係.静電気学会誌,47 (2023)70
- 16) 日本産業規格, K 7194 (1994)
- 17) 遠藤正雄,高橋雄造,渡辺真人:沿線ストリーマと逆放電の伸展と電荷図.静電気学会誌,10 (1986) 45
- 18) Yu. B. Golubovskii, V. A. Maiorov, J. Behnke and J. F. Behnke: Influence of interaction between charged particles and dielectric surface over a homogeneous barrier discharge in nitrogen. J. Phys. D: Appl. Phys., 35 (2002) 751
- Antonis P. Papadakis: Numerical Analysis of the Heating Effects of an Atmospheric Air-Dielectric Barrier Discharge. IEEE Trans. Plasma Sci., 40 (2012) 811