

研究論文

液中プラズマ放電に用いる電極構造の最適化

小林弘明*¹、松田喜樹*¹、山口敏弘*¹、水野金儀*²、石崎貴裕*³、齋藤永宏*⁴

Optimization of Electrode Geometry for Discharge in Aqueous Solution

Hiroaki KOBAYASHI*¹, Yoshiki MATSUDA*¹, Toshihiro YAMAGUCHI*¹
Kaneyoshi MIZUNO*², Takahiro ISHIZAKI*³ and Nagahiro SAITO*⁴Industrial Technology Division, AITEC*^{1*2}Advanced Industrial Science And Technology, AIST*³EcoTopia Science Institute, Nagoya University*⁴

水浄化に使用する液中プラズマ放電電極について、低電圧でプラズマを発生させることができ、さらに電極損傷量の少ない電極構造の形成を目的として研究を行った。電極の材質としてはタングステン（以下、W と記す）を使用した。作製した電極を使用してプラズマ放電を行った結果、電極表面積が小さく、電界集中が発生する電極を使用することで、電極損傷量が少なく、低電圧でプラズマを発生させることが可能であることがわかった。我々が試作した電極構造の中では、棒-棒（板付）の組み合わせ電極が最も良好な研究結果を与えた。

1. はじめに

現在地球上に存在する水資源の内、海水は 97% であるのに対して、淡水はわずか 3% である。この淡水の内、大部分は氷河や地下水として存在しており、通常我々が利用できる河川や湖水として存在している淡水は 1% に過ぎない¹⁾。我々が利用できる水は限られており恒久的な水不足が懸念されている。一方、日本では毎年のように地震や水害などが発生しており、これらの災害の発生にともなって、水道などのインフラ設備の破壊が多発している。特に医療現場では感染症を防ぐために滅菌水が多用されているが、災害時に対応した水供給システムは構築されていない。このように常時と災害時のいずれにおいても水の循環利用は重要な課題となっている。

一般的な水の滅菌方法として、塩素処理をはじめとする化学処理が行われている。しかし、残留物や滅菌対象に限られるなどの課題がある。これに替わる新たな水の滅菌方法として、近年プラズマによる滅菌が注目されている。これは水中でプラズマを発生させ、それにもなって発生するラジカル、紫外線や衝撃波によって滅菌を行う方法である。この方法の問題点は、プラズマ放電にともなう電極の損傷であり、電極の損傷が抑えられれば低コストで永続的な滅菌が可能となる。筆者らはこれまでに、液中プラズマ放電に使用する電極の材質について研究を行ってきた²⁾³⁾。その結果、電極の材質として

は W が優れていることがわかった。そこで本研究では、液中プラズマ放電に用いる電極として、低電圧でプラズマを発生でき、電極損傷量の少ない電極構造を形成することを目的として研究を行った。

2. 実験方法

図 1 にプラズマ放電に使用した装置の概略図を示す。電解液中に対向させた電極間にパルス電圧を加え、プラズマ放電を行った。電極材質としては W ((株) ニラコ製、純度 99.95%) を使用した。電極形状は大きく分けて棒状型と平板型の 2 種類を使用した。棒状型電極としては、直径 0.8mm の線材を用いて、電極先端から約 1mm を残してアルミナ管で覆った状態で使用した。平板型電極としては、1mm×10mm×100mm の板材を用いて、金属表面を 10mm×10mm だけ残し、それ以外はアルミナ板で覆って使用した。また電極間の距離は 1mm とした。電解液は蒸留水 300ml に Na₂SO₄ を加え導電率が 500 μS/cm になるように調整した。

パルス電源は、繰り返し周波数 15kHz、パルス幅 2 μsec の条件で放電を行い、電圧を上昇させていきプラズマが発生したときの入力電圧をプラズマ発生電圧とした。放電は 10 分間連続して行い、放電前後の電極重量を電子天秤によって測定し、その差を損傷量とした。さらに放電中の発光を光ファイバーで分光器に取り込み、

*1 工業技術部 加工技術室 *2 工業技術部 加工技術室 (現工業技術部 応用技術室) *3 産業技術総合研究所

*4 名古屋大学エコトピア科学研究所

発光スペクトルを測定した。また、デジタルオシロスコープを使用し放電中の電圧波形と電流波形を測定した。放電前後の電極形状観察にはデジタルマイクروسコープと走査型電子顕微鏡（以下、SEM と記す）を使用した。

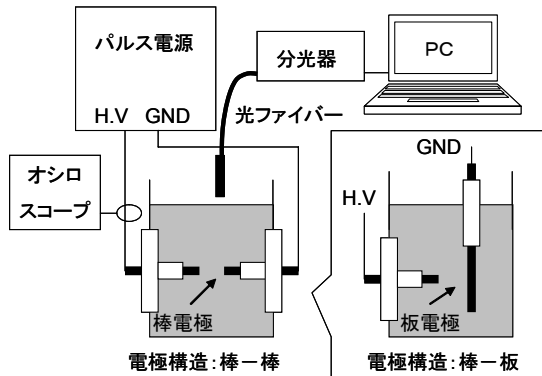


図1 実験装置の構成図

3. 実験結果および考察

3.1 プラズマ放電中の電圧・電流波形

図2に棒-棒電極におけるプラズマ放電中の様子を示す。パルス電圧を上昇させていくと電極先端から気泡が発生し、さらにパルス電圧を上昇させると、絶縁破壊が生じ紫色のプラズマによって電極間が短絡される。

図3にプラズマ放電中の電圧波形と電流波形を示す。パルス電圧の印加直後、電極間には急激に高電圧が加わる。その後、絶縁破壊にともなう電圧の急激な低下が生じ、パルス電圧が印加されている間、一定の電圧値になる。放電電流はパルス電圧の印加とともに直線的に増加し、パルス電圧が OFF になるとともに次第に減少することが確認できた。

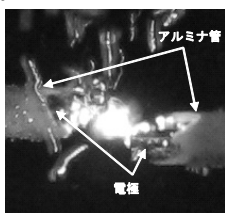


図2 プラズマ放電の様子

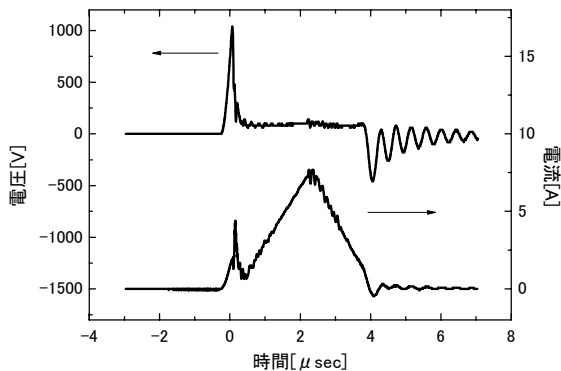


図3 プラズマ放電中の電流電圧波形

3.2 発光スペクトル

図4に棒-棒電極で放電を行ったときの発光スペクトルの測定結果を示す。ラジカルとしては H ラジカル、OH ラジカルと O ラジカルの発光が確認できる。また、H ラジカルの発光が強く、OH ラジカルの発光が弱いことがわかる。この理由は、OH ラジカルは会合反応などの速度定数が大きいいため、 H_2O_2 やその他の反応生成物となるためである⁴⁾。また、これらの発光は電解液として使用している H_2O に由来していると考えられる。このようなプラズマ放電によって生成される各種ラジカルは、大腸菌および黄色ブドウ球菌の殺菌や有機汚染物質の分解に有効であることが報告されている²⁾⁵⁾⁶⁾。W の発光は、電極が損傷しているためであり、Na の発光は、電解液として使用した Na_2SO_4 に起因していると考えられる。

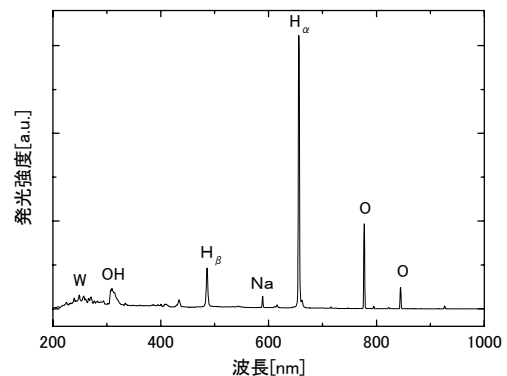


図4 発光スペクトル測定結果

3.3 電界分布の数値計算

一般に線材対板材の電極構造を用いることで、電極間に不平等電界が発生し、局所的な絶縁破壊が生じることで、低電圧でプラズマ放電が生じるとされている⁷⁾⁸⁾。

図5に各電極構造の電界分布計算結果を示す。差分化した2次元ラプラス方程式から電位分布を計算し、それを微分することで電界分布を求めた。白色部分が電界の集中している部分である。棒-棒、棒-板と棒-棒（板付）の電極構造において、棒のエッジ部分に電界が集中していることがわかる。一方、板-板構造では電極間で電界が一樣である。

これらの結果を考慮して、線材対線材グループ（棒-棒、針-棒）、線材対板材グループ（棒-板、針-板）、さらにこれらのグループに属さない2種類の試作電極を作製した。棒電極とは、線材の中心線から約90度の角度で切断した試料であり、針電極とは、線材の中心線から約30度の角度で切断した試料と定義した。図6に試作型電極構造を示す。図6(a)に示すように、板を櫛状に加工し、棒-櫛電極とした。また図6(b)に示すように、板中央に穴をあけ、その穴に棒電極を挿入し、棒-棒（板付）電極とした。

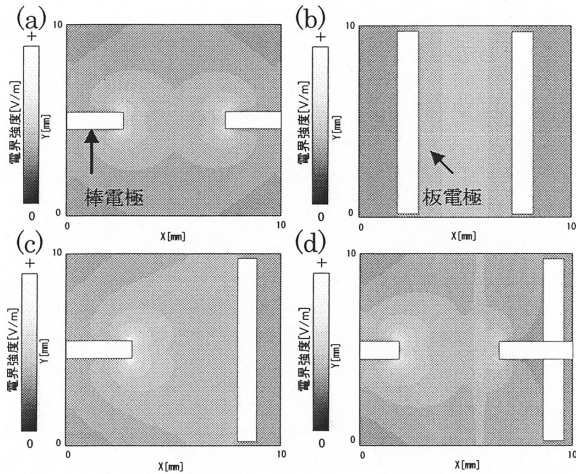


図5 電界分布数値計算結果

- (a) 棒-棒構造 (b) 板-板構造 (c) 棒-板構造
- (d) 棒-棒 (板付) 構造

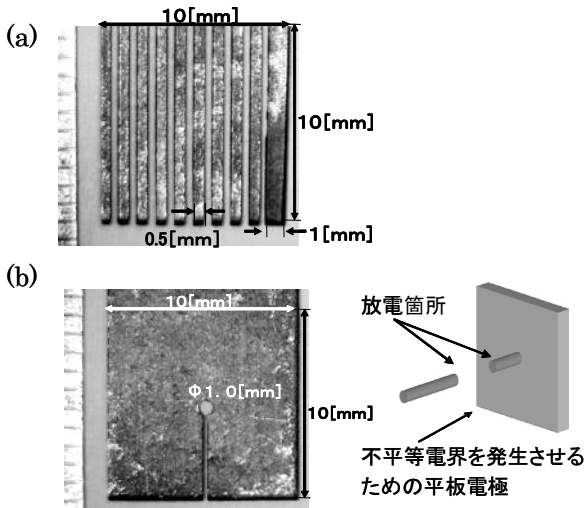


図6 試作型電極構造

- (a) 籠電極 (b) 棒-棒 (板付) 構造

3.4 電極 SEM 像

図7にプラズマ放電前後における電極表面のSEM像を示す。放電後の電極については、電極表面全体と放電によって損傷した部分のSEM像を示す。棒や針のような線材電極は、電極のエッジ部分が損傷していることがわかる。これは前節で明らかになったように線材電極のエッジ部分に電界が集中し、その部分で絶縁が破壊されプラズマが発生したため、電極のエッジ部分が損傷したと考えられる。これに対して板電極の場合にはクレータ状の損傷ができてることが確認できる。このクレータの直径は約2mmである。籠状電極も同様にクレータ状の損傷ができてはいるが、クレータの直径は約0.5mmとかなり小さくなっている。

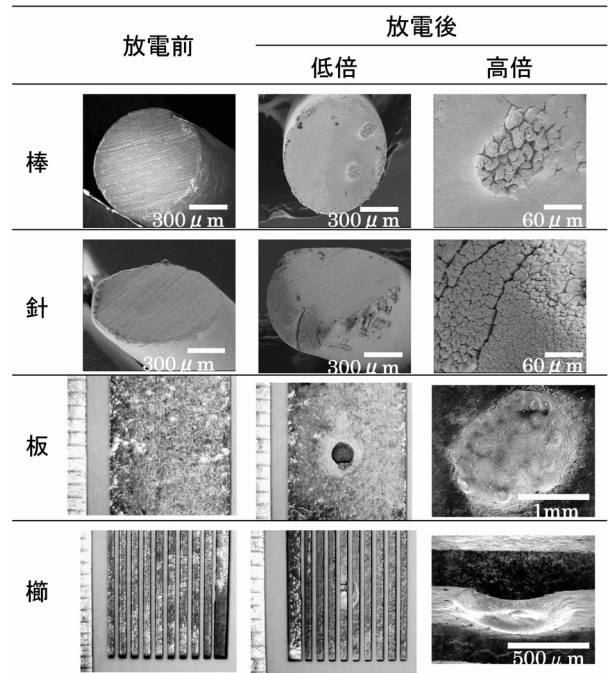


図7 放電前後における電極先端の状態

3.5 プラズマ発生電圧

図8にプラズマ発生電圧の測定結果を示す。線材対線材グループ(棒-棒、針-棒)よりも、線材対板材グループ(棒-板、針-板)と試作型電極グループ(棒-籠、棒-棒(板付))の方が、低い電圧でプラズマが発生していることがわかる。これは、3.3節で述べたように、不平等電界が生じることで局所的な電界集中部が発生したため、低電圧で絶縁が破壊されプラズマが発生したと考えられる。

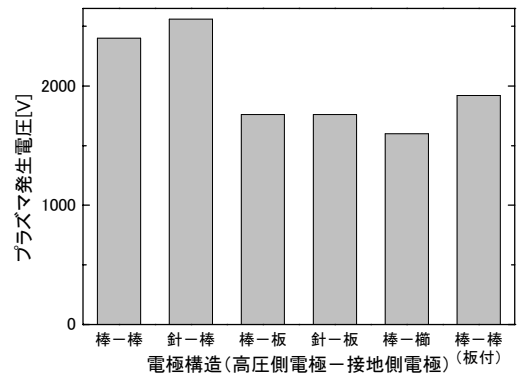


図8 プラズマ発生電圧測定結果

3.6 電極損傷量

図9に電極損傷量の測定結果を示す。損傷量は、線材対板材グループ(棒-板、針-板)よりも、線材対線材グループ(棒-棒、針-棒)と試作型電極グループ(棒-籠、棒-棒(板付))の方が少ないことがわかる。損傷量の内訳を見ると、板電極の損傷量が非常に多いことがわかる。

各電極構造における電極損傷量の違いについて考察する。電極損傷の主な理由は、電極表面におけるジュール熱による電極の蒸発であると考えられる。図10に電極損傷モデルを示す。棒電極の場合、電極先端のエッジ部分からプラズマが発生する。このような微小面積部分からプラズマが発生するため、ジュール熱による電極蒸発量が少ない(図10(a)、(c))。一方、板電極の場合は、電極表面積が大きいためジュール熱による電極蒸発量が多くなってしまふと考えられる(図10(b))。

試作型電極グループの櫛電極のように板電極の表面積を小さくしたり、棒-棒(板付)のように、板電極側に電極表面積の小さい棒電極を組み合わせたことで、板電極の損傷量を少なくできることが測定結果からわかる。

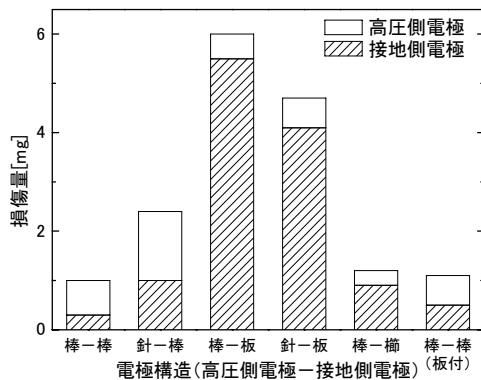


図9 電極損傷量測定結果

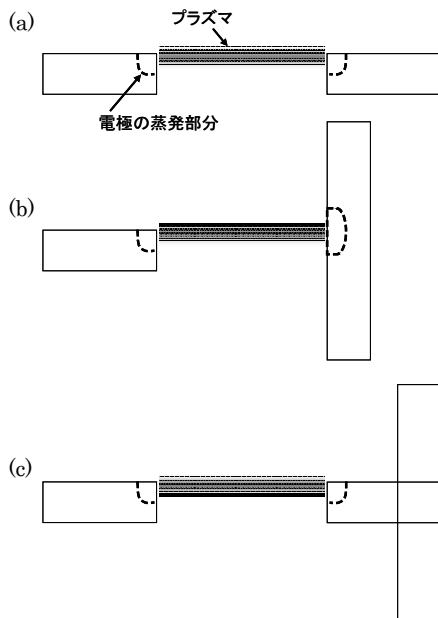


図10 各電極構造と損傷状態

(a) 棒-棒 (b) 棒-板 (c) 棒-棒 (板付)

4. 結言

電極材質として W を使用し、電極損傷量が少なく、プラズマ発生電圧の低い電極構造の形成を目的として研究を行った。まず、液中でのプラズマ放電における基礎特性である電圧、電流波形と発光スペクトルを測定した。電圧波形は、パルス電圧の印加直後、電極間には急激に高電圧が加わるが、その後絶縁破壊にともなう電圧の急激な低下が生じる。そしてパルス電圧が印加されている間は、一定の電圧値になることを確認した。電流波形は、パルス電圧の印加とともに電流値が直線的に増加し、パルス電圧が OFF になるとともに次第に減少することがわかった。次にプラズマ放電中の発光スペクトル分析を行った。その結果、HラジカルやOHラジカルなど各種ラジカルの発生が確認できた。差分法による2次元ラプラス方程式を用いて電界分布を計算し、実験に用いる電極構造を考案した。作製した電極を使用してプラズマ放電を行った結果、電極構造としては、電極表面積が小さく、電界集中が発生するような電極を使用することで、電極損傷量が少なく、低電圧でプラズマを発生させることが可能であることがわかった。特に試作した電極構造の中で、棒-棒(板付)構造が最良の結果を示した。

付記

本研究は名古屋大学エコトピア科学研究所との共同研究事業(平成18年度~20年度)として行われた。

文献

- 1) 国土交通省:平成20年度版 日本の水資源, P70(2008)
- 2) 黒澤, 水野, 綿野:愛知県産業技術研究所研究報告, 6, 72(2007)
- 3) 綿野, 黒澤, 水野:愛知県産業技術研究所研究報告, 7, 50(2008)
- 4) 齋藤永宏, 稗田純子, Camelia Miron, 高井治:表面技術, 58(12), 112(2007)
- 5) 佐藤正之, アントトリスギアルト, 三浦雅彦:化学工学, 66(12), 754(2002)
- 6) 佐藤正之:静電気学会誌, 29(3), 162(2005)
- 7) 菅井秀朗:プラズマエレクトロニクス, P74(2000), オーム社
- 8) 行村建:放電プラズマ工学, P22(2008), オーム社