

# 噴流型大気圧プラズマにおける電荷密度測定

深渡瀬 領祐<sup>\*1</sup> 大山 龍一郎<sup>\*2</sup>

## Charge Density Measurement in Atmospheric Pressure Plasma of He Gas-Jet Type

by

Ryosuke FUKAWATASE<sup>\*1</sup> and Ryu-ichiro OHYAMA<sup>\*2</sup>

(Received on Mar. 31, 2009 and accepted on July 6, 2009)

### Abstract

In this work, an atmospheric pressure plasma source was experimentally investigated and constructed as a coaxial arrangement with a discharge electrode and dielectric tube. Atmospheric pressure plasma was formed into a He gas jet exposed to dielectric barrier discharges in high-voltage applications. Plasma ignited by the barrier discharges was observed as a plasma bullet traveling from the nozzle of the dielectric barrier discharge tube to room air. Since electron temperature and charge species density were required in the plasma diagnoses, important plasma parameters were quantitatively evaluated using the optical emission spectroscopy method and magnetic probe method. The charge density was obtained from the current density and traveling velocity of plasma bullet propagation along the gas jet axis, which were monitored by magnetic probe. This paper discusses the plasma density characteristics of plasma bullet propagation for analyzing the plasma generation mechanism.

**Keywords:** Plasma, Atmospheric pressure, He, Charge density, Magnetic probe

### 1. はじめに

低温プラズマは、イオン温度や中性粒子温度に比べ電子温度のみが非常に高いプラズマである。低温プラズマを造出する放電形態は主に低圧グロー放電と大気圧放電の二つに大別されている<sup>(1)</sup>。低圧グロー放電は空間的均一性に優れているが、低気圧下のみでしか生成できないために、装置コストや装置の大型化などの問題がある。一方、大気圧放電の代表例である誘電体バリア放電(DBD)は化学的活性種を豊富に生成できるが、誘電体損失が大きいことから、空間に均一な放電を実現することが困難である。したがって、これらの放電形態は共に幾多の問題点を抱えていることから、近年ではその改善策として大気圧下でグロー放電を生成する技術の研究が盛んに行われている。すなわち、大気圧下でのグロー放電生成技術は、低圧グロー放電と比べ真空機器設備の必要性が無いなど装置の低コスト化が期待出来る。また、対象物の連続処理やプロセス速度の向上など多くの利点が挙げられ、プラズマプロセスシステムを簡易化出来ると考えられている<sup>(2)</sup>。

大気圧プラズマを利用するには、プラズマを特徴付ける要素(ガス組成、電荷密度、温度等)を知ることが重要である。プラズマ診断の中でも磁気プローブは、時間的に変動する磁場計測に頻繁に使用される

基本的な計測法であり、電磁誘導の法則に基づいている。この原理に基づいてプラズマ電流やプラズマに印加される誘導電場も測定される。この計測原理が簡単なうえ、しかもセンサである磁気プローブや磁気ループは安価で比較的容易に製作可能であるため、プラズマ実験に頻繁に使用されている<sup>(3)</sup>。

本研究では、誘電体バリア放電部分に希ガスを流入することで、大気圧下でグロー状の放電を生成する噴流型大気圧プラズマ発生装置<sup>(4),(5),(6)</sup>について、本装置より生成されるプラズマの診断を行っている。本論文では、プラズマ中の電荷密度を測る一つの手法として、伝播する電流波形を観測することにより、電荷密度の測定を行った結果について報告する。

### 2. 実験方法

Fig.1 に噴流型大気圧プラズマ発生装置の概略図を示す。本装置は、放電電極の銅パイプ(内径4 mm, 外径6 mm)に誘電体の石英パイプ(内径6 mm, 外径8 mm)を挿入し、石英パイプの外側に接地電極の銅箔(厚さ0.05 mm, 幅10 mm)を覆った非常に簡易で安価な装置構成となっている。本装置においては、電極間に高電圧を印加することによって、石英パイプ内部にDBDを生成し、そのDBD部分にHeガスを流入することによって、噴流型の大気圧プラズマを生成することができる。

\*1 電気電子システム工学専攻

\*2 電気電子工学科 教授

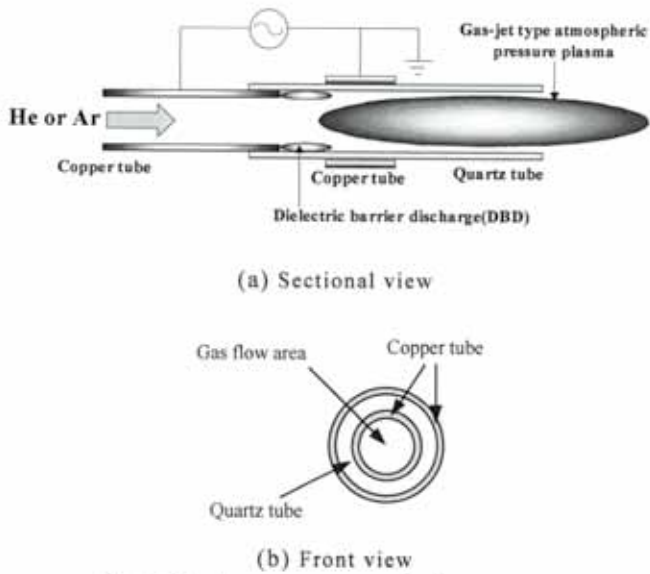


Fig.1 Gas-jet type atmospheric pressure plasma device.

Fig.2 に実験装置の概略図を示す。実験は、インパルス式高周波高圧電源(ハイデン研究所, PHF-2K-20)を用いて、噴流型大気圧プラズマ発生装置の電極間に周波数 9kHz、電圧 10kV を印加した。作動ガスは大気圧下で流量 5L/min の He ガスを供試した。プラズマの電流波形はロゴウスキーコイル (Peason, 6585) を用いて、放電電極からの距離  $d=0 \sim 190$  mm (管内:  $d=0 \sim 180$ , 管外:  $d=180 \sim$ ) の位置で測定を行った。放電電極からの距離  $d$  に対する電流パルスの移動からプラズマの速度  $v_p$  とプラズマ中の電荷密度  $n_e$  を求めた。

なお、 $He$  のイオン化エネルギーは全ての気体中最も高い 24.5 eV であるが、そのすぐ下に約 20 eV の準安定状態がある。持続的な放電には、その差の約 4 eV しか必要としない。そのため大気圧中の放電開始電圧が  $4 \text{ km} \cdot \text{cm}^{-1}$  とすべての気体中最も低い値を示すことが知られている<sup>(7)</sup>。すなわち、 $He$  は安定したグロー放電が生成できる。したがって、本手法を検討するにあたって、キャリアガスに  $He$  ガスを供試した。また、実験に供試したロゴウスキーコイルの幅 (10 mm) を考慮し、十分なプラズマ伸長距離が得られる印加電圧 6 kV で行った。

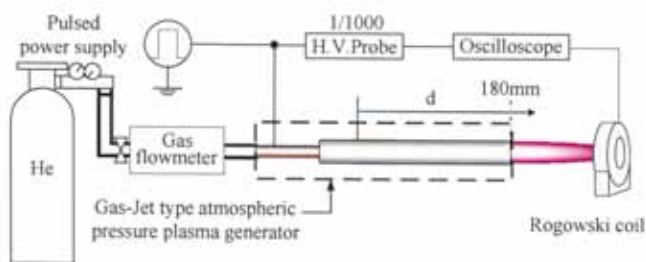


Fig.2 Schematic illustration of experimental system.

本装置により実際に生成したプラズマの様子を Fig.3 に示す。これより、電圧を 10 kV 印加するとプラズマは全長 200 mm となり、ノズル先から 20 mm ほど空気中に伸長していることがわかる。また、プラズマの長さは印加電圧に依存している。このように、安定したプラズマがジェット状に生成されていることが目視により確認できる。実際、このプラズマは DBD に同期したプラズマ塊の流出となっている<sup>(8)</sup>。



(a) 6kV



(b) 8kV



(c) 10kV

Fig.3 Plasma emission photograph.

### 3. 実験結果および考察

#### 3.1 プラズマ中の電荷密度

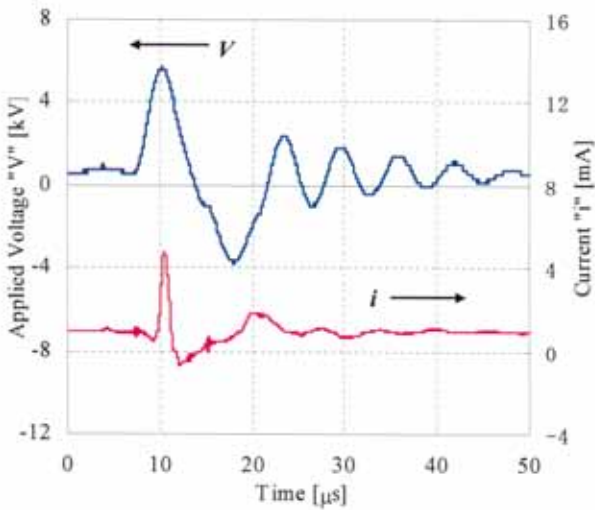
本実験より、このプラズマ中の電流波形には、均一な低温プラズマ特有の電流パルス波形が観測された。そこで、この電流パルスに着目し、測定位置  $d$  における特性変化について実験的検討を行った。

Fig.4 (a) に  $d=50$  mm における電圧電流波形、(b) に電極からの各距離  $d$  における電流波形を示す。(a) より最初のピーク電流は、誘電体を通過するプラズマの大部分を観測していることが考えられる。(b) より、電流パルス波形は距離  $d$  に依存し、電流パルス発生時間に遅れが生じていることが観測された。

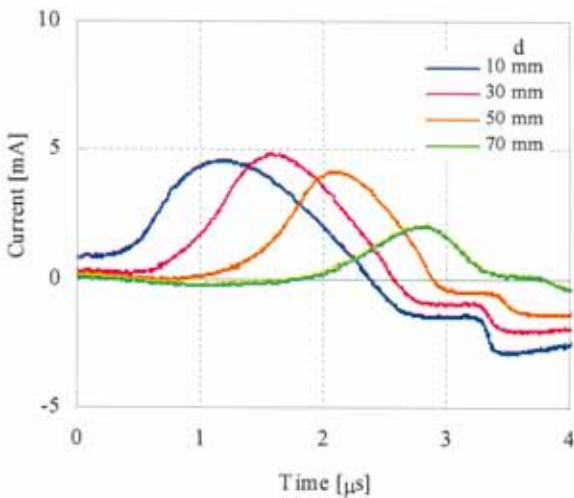
ここで、一般にアフターグロータイプのプラズマジェットを高速撮影すると、球状のプラズマ塊が非常に高速で進行する過渡的な放電現象である<sup>(8)</sup>という報告がされている。したがって、本装置におけるプラズマでも同様のことが考えられ、その挙動はバレット状の過渡的な放電であることがいえる。すなわち、観測される電流パルスはプラズマバレットが通過した時に発生するパルスであることが考え

られる。本測定法はこのプラズマバレットの移動を観測している。

この電流パルスの伝搬時間特性を Fig.5、電流パルスの最大放電電流特性を Fig.6 に示す。Fig.5 において、伝搬特性は移動時間が距離  $d$  の増加とともに遅延していることがわかる。そして、Fig.6 においては電流パルスの電流値が  $d$  の増加とともに減衰していることがわかる。すなわち、電流パルスの伝搬では、距離に対して定常的に伝搬することが確認でき、その電流は一定傾向を示した後、減衰傾向を示すことがわかった。



(a) Typical waveforms of applied voltage  $V = 6$  kV and current  $i$  observed by magnetic probe at distance " $d$ " = 50 mm.



(b) First current peaks observed at various distance " $d$ " for applied voltage  $V = 6$  kV.

Fig.4 The current pulse waveform.

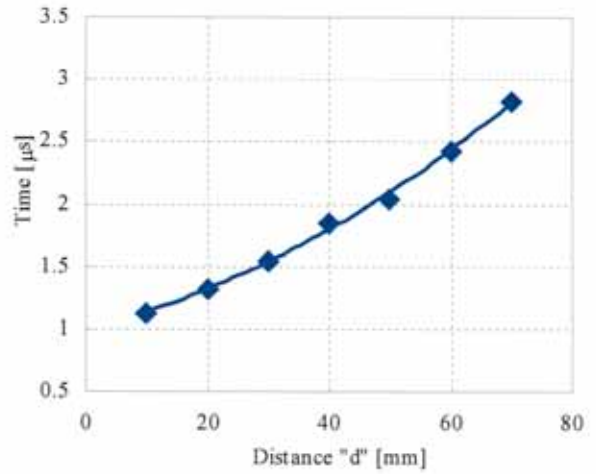


Fig.5 Current pulse peak time as a function of " $d$ ".

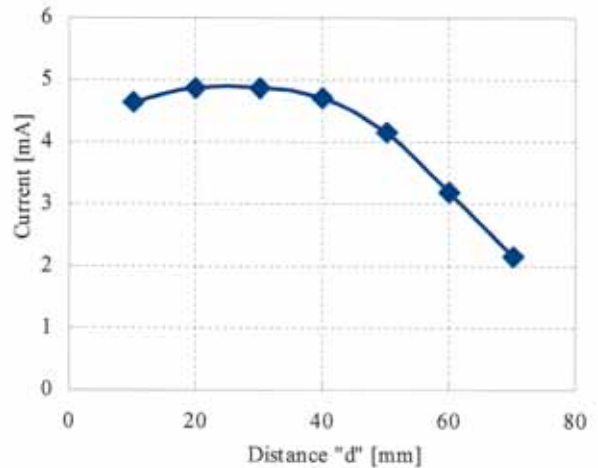


Fig.6 Current pulse peak as a function of " $d$ ".

一般にプラズマ中の電磁波の伝搬速度は荷電粒子に比べて十分速いので、伝搬特性を調べる場合には、これら熱速度の影響(温度の効果)は無視することができる。またイオンの質量は電子の質量に比べて十分大きいので、電磁波の電界に対するプラズマの応答は電子のみ考慮すれば十分である。プラズマが電的に中性で一様であるとすると、プラズマ中の電磁波の伝搬の特性は、マクスウェル方程式および電子に対する運動方程式を連立させて解くことにより求まる。これにより、電流密度  $J$  は次式のよう表される<sup>(9)</sup>。

$$J = en_e v_e$$

すなわち、電子密度  $n_e$  は

$$n_e = J/ev_e \quad (1)$$

となる。ここで、 $v_e$  は電子の速度、 $e$  は電子の電荷である。

式(1)より密度を推定するには、速度と電流密度が必要となることがわかる。まず、Fig.6 に示した電流ピーク値と He ガス流の断面積から単位面積あたりの電流密度が定義できる。次に、速度は前述したように本装置により生成されるプラズマは部分放電と考えられ、本測定法ではこのプラズマバレットの移動の観測を行っている。すなわち、電流パルスの伝播から求められる速度は、プラズマの速度と見なすことができる。

Fig.5 に示した電流パルスの伝搬特性からプラズマの速度を求めたものを Fig.7 に示す。プラズマの速度は約 50 km/s の値を示し、電極からの軸方向距離に依存し減少傾向を示すことがわかる。また、Fig.5 からわかるように、伝搬するプラズマの速度に大きな変動は見られないことがわかる。

電流パルスの伝搬から求めたプラズマの速度と電流密度より、式(1)を用いてプラズマ中の電荷密度を求めたものを Fig.8 に示す。これより、プラズマ中の電荷密度は  $10^{16}$  [m<sup>-3</sup>] のオーダーにあることがわかる。また、プラズマ中の電荷密度は電極付近  $d=20\sim 40$  mm ではほぼ一定であり、 $d=40$  mm 以上から減少傾向を示すことが確認できた。これは、Fig.6 における電流特性と同様の傾向にあることがわかる。

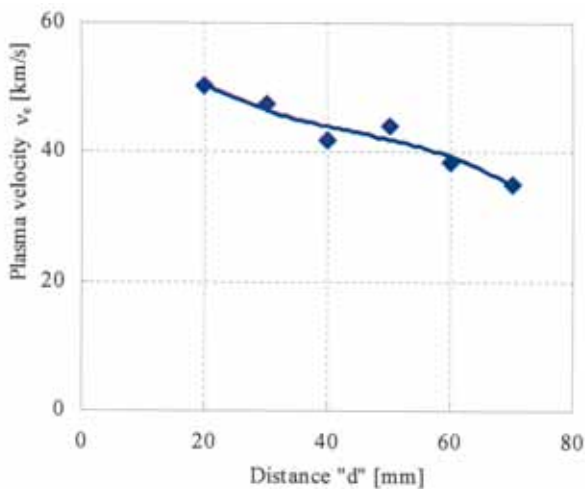


Fig.7 Plasma velocity  $v_e$  as a function of "d".

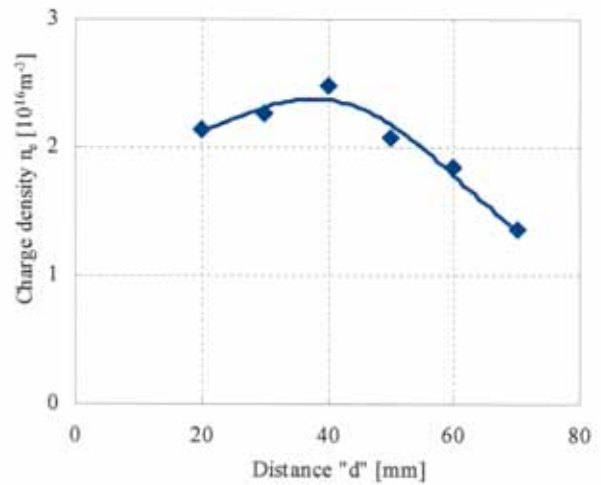


Fig.8 Charge density  $n_e$  as a function of "d".

### 3.2 印加電圧の依存性

印加電圧を 6~10 kV に変化させ、その特性変化から本装置におけるプラズマの電圧依存性について本手法による検討を試みた。その結果、電圧変化においても、電流波形の伝搬が確認できた。その伝搬特性から前述と同様にプラズマの速度とプラズマ中の電荷密度を求めた。

Fig.9 に電流パルス伝搬の電流特性、Fig.10 にプラズマの速度特性を示す。Fig.9 において、電流は印加電圧に依存し、その特性は 6 kV 時と同様に減衰傾向を示した。また、10 kV 時では、ばらつきが多く見られた。Fig.10 において、プラズマの速度は印加電圧に依存していることが確認された。

以上よりプラズマ中の電荷密度を求めたものを Fig.11 に示す。Fig.11 において、6kV 印加時と同様にプラズマ中の電荷密度は  $10^{16}$  [m<sup>-3</sup>] のオーダーにあることがわかる。そして、プラズマの速度と同様にプラズマ中の電荷密度も印加電圧に依存していることがわかる。また、印加電圧 10 kV 時にばらつきが多く見られた。この特性は Fig.8 の電流特性と同様の傾向であることがいえる。

ここで、ログウスキーコイルにおいては、自己積分型ログウスキーコイルを用いても、高周波域では波形ひずみが発生して誤差を生ずる。高周波測定において生ずる波形ひずみは、自己積分型ログウスキーコイル内部の成分による共振現象の影響と考えられる<sup>(9)</sup>。すなわち、10 kV 時におけるばらつきは共振現象による影響であることが考えられる。そして、電圧増加に伴い共振現象の影響が大きくなることがいえる。したがって、電極付近においてプラズマ中の電荷密度が上昇傾向を示すことも、これに起因していると考えられる。

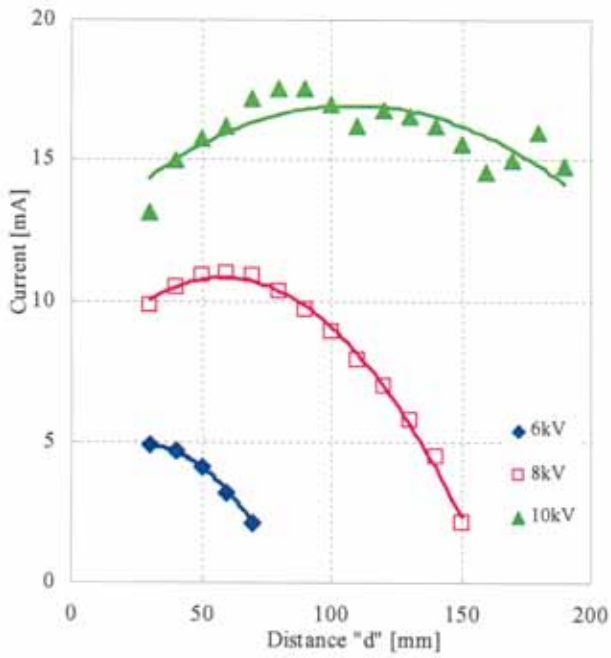


Fig.9 Current pulse peak as a function of "d", applied voltage 6 to 10 kV.

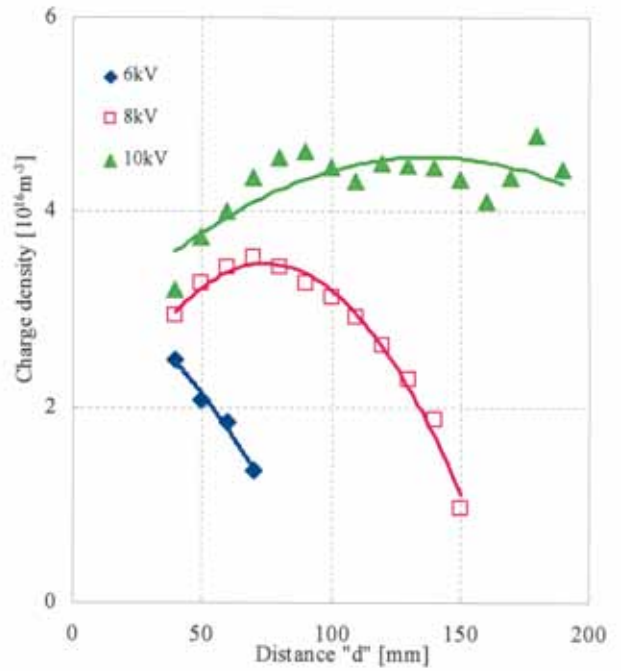


Fig.11 Plasma density  $n_e$  as a function of "d", applied voltage 6 to 10 kV.

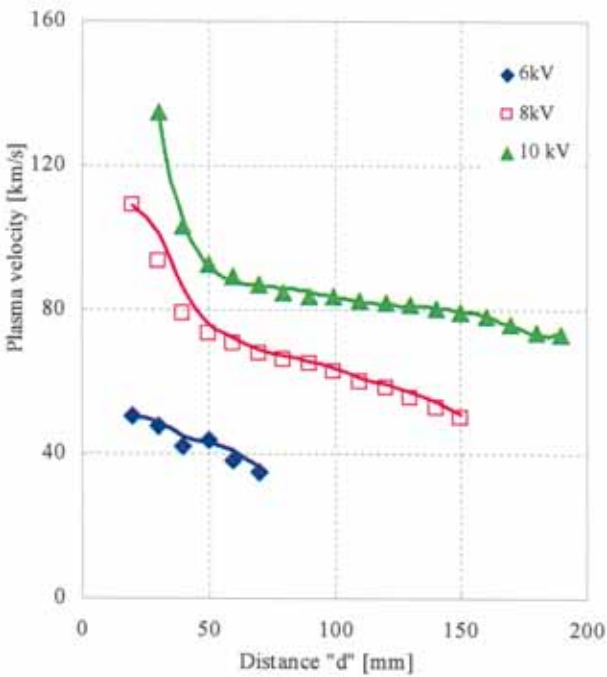


Fig.10 Plasma velocity  $v_e$  as a function of "d", applied voltage 6 to 10 kV.

#### 4. まとめ

本論文では、大気圧プラズマジェットの電流波形を観測することにより、プラズマパラメータの一つとしてプラズマの電荷密度の測定法について実験による検討を行った。本実験により、電極から管外までの波形を観測することにより、プラズマの電流パルス波形の伝搬を確認した。本測定法ではプラズマバレットの移動の観測を行っていることから、この伝搬速度と電流値よりプラズマ中の電荷密度の推定を行った。その結果、プラズマの速度は印加電圧による測定条件の変化において、同様の傾向を示した。また、プラズマ中の電荷密度は  $10^{16} \text{ [m}^{-3}]$  のオーダーにあることが確認できた。このことから、本測定法により求めた密度は、一般に報告されているアフターグローの電子密度と同程度であることがわかった。

文 献

- 
- (1) プラズマ・核融合学会:「プラズマ診断の基礎と応用」コロナ社, pp.6-7 (2006)
  - (2) 高木浩一・藤原民也・柘久保文嘉:「大気圧グロー放電の発生」プラズマ核融合学会誌, pp.1002-1008(2003)
  - (3) プラズマ・核融合学会:「プラズマ診断の基礎と応用」コロナ社, pp.32-43 (2006)
  - (4) M. Sakamoto, S. Kikuchi and R. Ohyama : Proc. IEEE 2007 Annual Report CEIDP, pp.525-528(2007)
  - (5) 深渡瀬領祐・大山龍一郎 : 「Ar 噴流型大気圧プラズマの基礎特性」平成 20 年電気学会全国大会講演論文集, p. 245(2008)
  - (6) 深渡瀬領祐・大山龍一郎 : 「噴流型大気圧プラズマにおける電荷密度測定の実験的検討」平成 21 年電気学会全国大会講演論文集, p.274(2009)
  - (7) 小駒益弘・田中邦翁:「大気圧低温グロープラズマの生成と制御」応用物理,第 75 巻,第 4 号,pp.419-425(2006)
  - (8) 北野勝久・浜口智志 : 「単電極方式による大気圧低温プラズマジェット」平成 20 年電気学会全国大会講演論文集, p.241(2008)
  - (9) プラズマ・核融合学会:「プラズマ診断の基礎」名古屋大学出版会, pp.41-42 (1993)
  - (10) N. Shimomura, M. Nagata, H. Akiyama : [ Resonance Characteristics of Self-Intergrating Rogowski Coils ] T.IEE Japan, Vol.114-B,No.1, pp.33-37(1994)
-