

大気圧マイクロプラズマジェットによる水素ラジカル源の開発 II

福澤 剛・平川 皓一*・中村 勇太**・小城 左臣

Development of Hydrogen Radical Sources Using Atmospheric-pressure Micro Plasma Jets II

Tsuyoshi FUKUZAWA, Koichi HIRAKAWA*, Yuta NAKAMURA** and Sukeomi OGI

Abstract

The atmospheric-pressure micro plasma jets are generated by a dielectric barrier discharge with a low frequency high voltage power supply. The plasma jets have been studied using a spectroscopic method and an optical detection system consisting of quartz fibers and avalanche photodiodes. The spectroscopic measurements show that the plasma jets can decompose gases exposed to the jets and produce H radicals. From the temporal evolutions of emission intensities of both plasma jets and discharges between electrodes and discharge currents, it is suggested that plasma jets are caused by a streamer discharge starting from positive space charges in the glass capillary tube.

key words: Atmospheric-pressure micro plasma jet, Low frequency, Dielectric barrier discharge, Hydrogen radical

1. 緒言

近年、原理的に真空装置が不要、液体のプラズマ処理が可能、装置が安価等の理由で、大気圧プラズマが注目されている。また、大気圧プラズマの1つである低周波マイクロプラズマジェットは、10 km/s 程度の弾丸状プラズマ、手で触れることができる、高アスペクト比等のユニークな特徴を有しており特に注目されている^(1,2)。本研究では、このマイクロプラズマジェットで水素ラジカルを発生し、ダイヤモンド薄膜の高品質に活用することを目的としている。これまでに、大気圧下で He ガスを用いマイクロプラズマジェットを発生させ、その特性等について報告している⁽³⁾。今回は、水素ラジカル生成の可否、プラズマジェットの発生機構等について述べる。

2. 実験装置、実験方法

図1(a)に発光分光計測を行った H₂ と He を別々に供給するタイプの実験装置を示し、図1(b)に発光分光計測の光学系の実験装置を示す。実験装置は同軸構造になっている。中心のマイクロピペット用ガラス毛細管(内径0.6 mm, 外径1 mm)に最大2 SLM で He ガスを流し、外側のアクリルパイプ(内径26 mm, 外径30 mm)に5 SLM までの H₂ を流している。H₂ はガラス毛細管出口の周囲3 mm の穴から He と同軸状に大気中に噴出すようにしている。放電はオゾンナイザ用の低周波高電圧電源(6 kV_{pp}, 11 kHz)で毛細管の周囲から高電圧を印加することで発生させる。発光分光計測はレンズとアパーチャにより観測領域を制限し、プラズマジェットの光を分光器(ユニオン RA-1100)と光電子増倍管(浜松ホトニクス R374)で測定した。また、測定波長は H α (656.3 nm), He(706.6 nm)に加え、空気からの関与を調べるため O(777 nm)も測定した。

図2はプラズマジェットの速度等を測る実験装置である。プラズマジェット等の発光を石英ファイバ(コア径1 mm, 外径1.4 mm)とアバランシェフォトダイオード(浜松ホトニクス S8664-20K)を組み合わせた2つのセットで測定する。アバランシェフォトダイオードには350 V の逆バイアス電圧

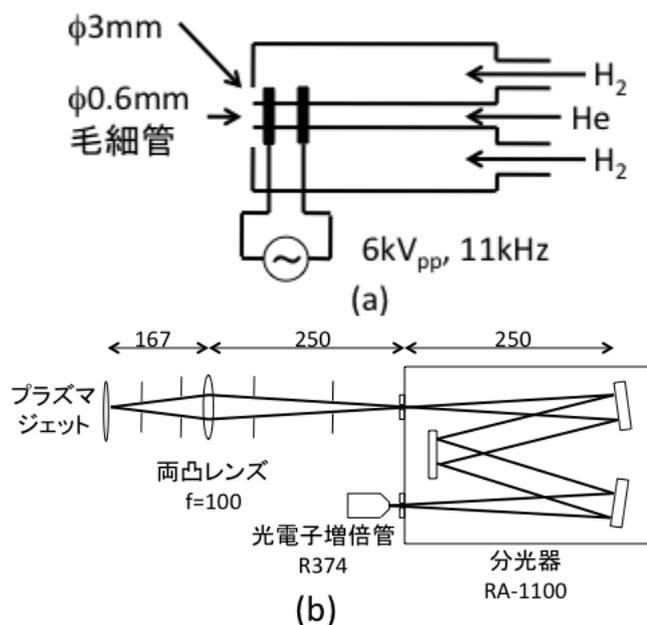


図1 (a)実験装置, (b)発光分光計測の光学系

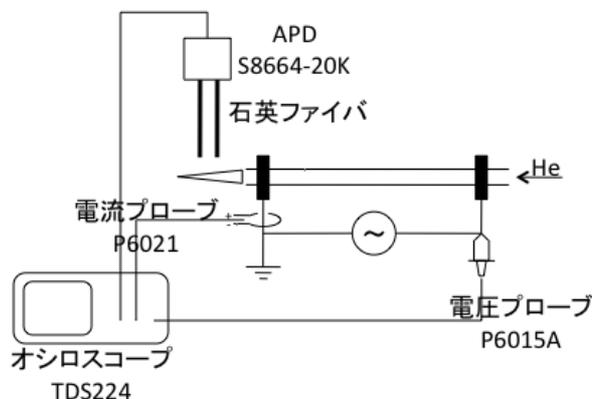


図2 実験装置(プラズマジェットの速度, および放電電圧電流計測)

を印加し増幅率を約50倍にする。また、ペルチェ素子で冷却しノイズを低減している。プラズマジェットやガラス毛細管内の発光とあわせて、放電電圧・電流を電圧プローブ(テ

*専攻科生産工学専攻2年

**専攻科生産工学専攻1年

クトロニクス P6015A) と電流プローブ (テクトロニクス P6021) で測定する。

3. 結果および考察

図 1 (a)(b)の実験装置で発光分光計測した結果を図 3 に示す。He 流量は 2 SLM 一定で、H₂ 流量を変化させている。また、下流側電極を高電圧にしている。この場合、プラズマジェットが発生しにくいので、接地したリング電極を図 4 の様に設置しプラズマジェットを伸ばしている。He ジェットの周囲に H₂ を供給しない場合は、H α 、He、O 全ての発光が観測され、H₂ を供給した場合は、O の発光が極端に低下しほとんど観測されなくなる。H₂ を供給しない場合は He プラズマジェットの周囲は空気や水分であり、これらが He プラズマジェットで分解され、H α 、O の発光が観測されていると考えられる。H₂ を供給した場合、供給しない場合に比べ、He も含め全体的に発光強度が低下しているのは、He の濃度が高い領域が減少し、プラズマジェット自体が発生しにくい状態になっているためと考えられる。以上から、He プラズマジェットによって周囲のガスを分解できることが示され、マイクロプラズマジェットを用いたラジカル源が可能であることが分かった。

次にプラズマジェットの発生機構について調べるため、プラズマジェットの速度や、プラズマジェット発生タイミング等を調べた。図 5 は 2.4 mm の間隔で設置された二本の光ファイバで測定したプラズマジェットの発光の時間推移である。先に立ち上がっている信号が上流側のもので、それから約 0.33 μ s 遅れて下流側が立ち上がっている。この差からプラズマジェットの速度は約 7.2 km/s と見積もられる。これは、ガラス毛细管から出る He ジェットの流速 29 m/s よりも 2 けた速く、Teschke 等が報告した弾丸状のマイクロプラズマジェットの速度と同程度である⁽¹⁾。ただし、上流側電極を

高電圧、下流側 (ガラス毛细管出口側) 電極を接地しており、下流側を高電圧にした Teschke 等とは逆になっている。図 6 は、光ファイバの位置を変えてプラズマジェットの速度を測定した結果である。ガラス毛细管出口から遠ざかるにつれ若

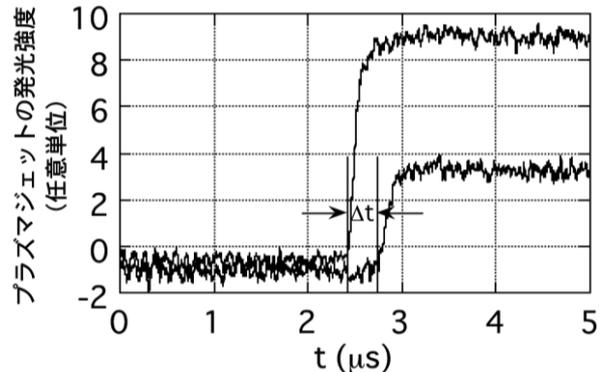


図 5 プラズマジェットの発光強度の時間推移

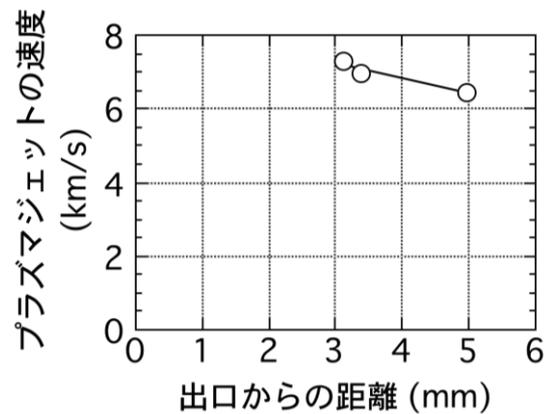


図 6 プラズマジェットの速度

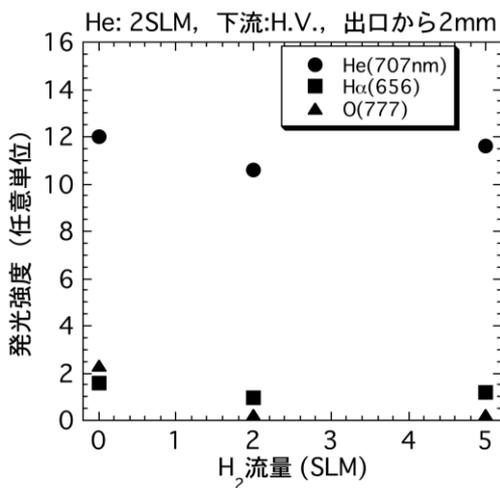


図 3 プラズマジェットの発光強度の H₂ 流量依存性

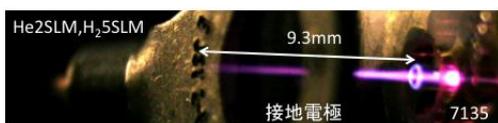


図 4 リング状接地電極挿入によって伸ばされたプラズマジェット (下流側電極: 高電圧)

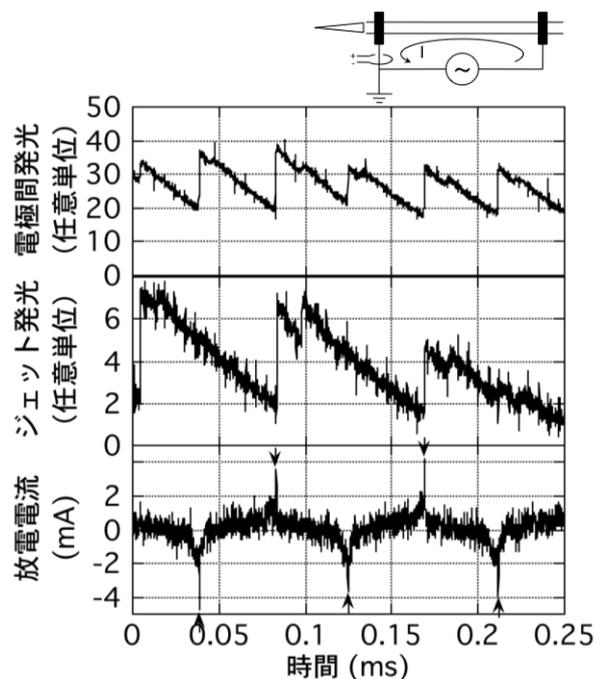


図 7 発光強度、放電電流の時間推移 (下流側電極: 接地)

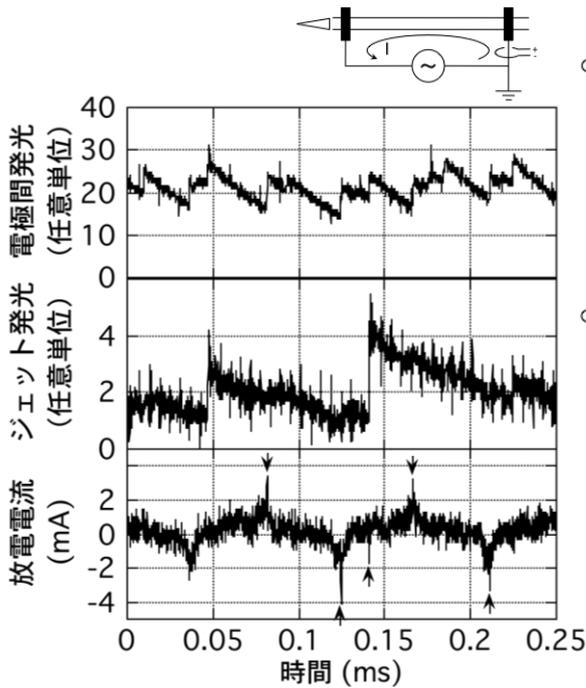


図 8 発光強度，放電電流の時間推移
(下流側電極：高電圧)

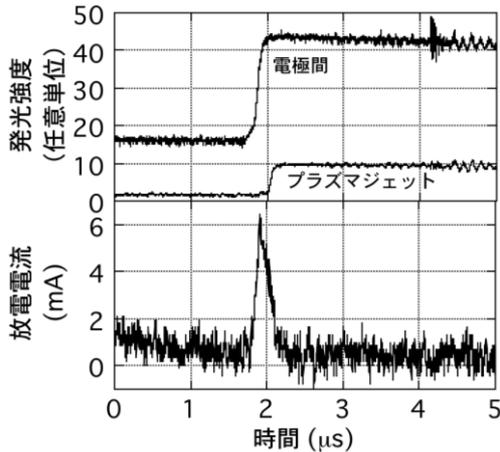


図 9 発光強度，放電電流の時間推移
(下流側電極：接地)

干減速しているもの数 km/s という高速を維持している。
 図 7, 8 は，電極間中央におけるプラズマとガラス毛細管出口におけるプラズマジェットの見光強度，および放電電流波形であり，図 7 は下流側電極を接地，図 8 は下流側電極を高電圧にしている。図 9 は，下流側を接地した場合の見光強度と電流波形で，時間軸を縮小したものである。図 7, 8 の電流波形より，緩やかに変化する変位電流と矢印で示すパルス電流が分かる。ここには示していないが，変位電流は放電電圧波形に対応している。電極間の発光は，変位電流が大きく変化した直後のパルス電流に同期して変化するため，電源の 2 倍の周波数になっている。これに対し，プラズマジェットの発光は，図 7, 8 の上に図示している向きの電流が流れる時に大きく変化し，反対の電流ではほとんど変化せず，結果的に電源周波数と同じになっている。また，プラズマジ

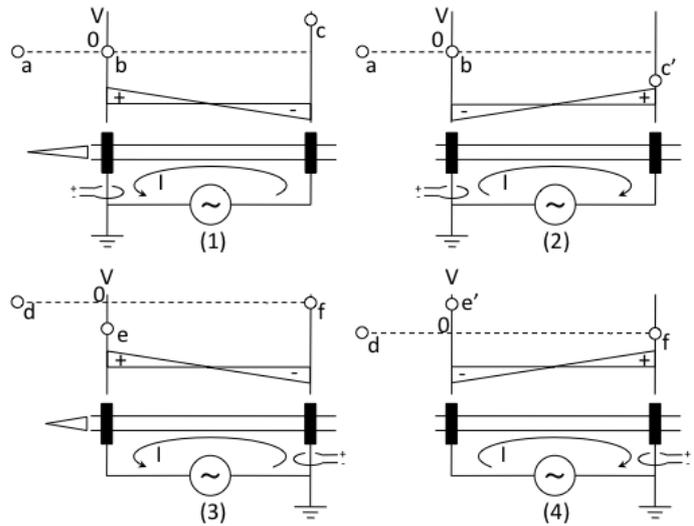


図 10 電極電位，ガラス毛細管内の正負電荷の分布の模式図

ェットの発光が強い期間で電極間の発光が急変すると，それに同期してプラズマジェットが大きく変化している。次に，図 9 より発光強度とパルス電流の詳細を見ると，パルス電流の半値幅は約 $0.1 \mu\text{s}$ であり，このパルス電流と同期して電極間が発電し，放電開始から約 $0.2 \mu\text{s}$ 遅れてプラズマジェットが発生している。以上図 7～9 の結果から，電極間の放電状態がプラズマジェット発生に強く影響していると考えられる。

次に，プラズマジェットが主に 1 周期毎にしか発生しないことについて考察する。図 10 はパルス電流 I が流れる時の電極電位，ガラス毛細管内の正負電荷の分布の模式図である。上下が接地／高電圧電極の位置が違い，左右が電流の向きが違っている。図 10(1)の状況では， $V_b=0 \text{ V}$ だが，正イオンが毛細管出口付近にあり，毛細管内の電位は基準電位 (a 点) よりも高くなり，b 点の毛細管内の正イオンに向かって，電子が加速され He 濃度の高い He ジェット内にプラズマジェットが発生する。電流が反対に流れる図 10(2)の場合，電子は左向きに加速されるが，出口から遠ざかるにつれ電界が弱まるため，プラズマジェットは長くなりにくい。図 10(3)の状況では，e 点の毛細管内に正イオンがあるものの， $V_e < 0 \text{ V}$ のため e 点付近の毛細管内部の電位と基準電位の差は左上より小さくプラズマジェットが発生しにくい。図 10(4)の場合も，正の V_e' と電子による負電位が相殺するためプラズマジェットが発生しにくい。下流側電極が高電圧の場合，前述の図 4 の様に接地したリング電極を近づけると，プラズマジェットがリング電極を越えて伸びる。これは，図 10(3)(4)において，de および de' 間の電界が強まり，このギャップで放電し，接地したリング電極と下流側高電圧電極が，図 10(1)(2)の下流側接地電極と上流側高電圧電極の役目をそれぞれ果たしていると考えられる。従って，図 4 の場合，プラズマジェットは，ガラス毛細管出口とリング電極間では電源周波数の 2 倍で発生し，リング電極を突き抜けるプラズマジェットは電源周波数と同じになると予想される。

4. 結論

発光分光計測により, He マイクロプラズマジェットは周囲のガスを分解でき, Hラジカルを発生できることが分かった. マイクロプラズマジェットはガラス毛細管内の正電荷からの放電現象と考えられ, ガラス毛細管出口付近の電極を接地した場合に発生しやすいことが明らかになった. このことは, 処理対象の材質が限定されないという利点につながる.

参考文献

- (1) M. Teschke, J. Kedzierski, E. G. Finantu-Dinu, D. Korzec and J. Engemann: IEEE Trans. Plasma Sci. **33**, 2, 310(2005).
- (2) 北野勝久, 浜口智志: 応用物理, **77**, 4, 383(2008).
- (3) 福澤剛, 村上和久, 平川皓一, 小城左臣: 北九州工業高等専門学校研究報告, **43**, 41(2010).

(2010年10月15日 受理)