

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

福澤 剛・村上 和久*・平川 皓一**・小城 左臣

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

Tsuyoshi FUKUZAWA, Kazuhisa MURAKAMI*, Koichi HIRAKAWA** and Sukeomi OGI

Abstract

The atmospheric-pressure micro plasma jets to produce hydrogen radicals have been studied by a digital camera, a digital video camera and Schlieren photography. It is found that plasma jets are produced in the region in which the helium gas flow flux is high and the electric field exists. When hydrogen gas is introduced coaxially from outside of plasma jet, the color of plasma emission changes. This suggests that the micro plasma jets work as hydrogen radical sources.

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

1. 緒言

従来から、誘電体バリヤ放電(DBD)は大気圧で非熱平衡のプラズマを生成でき、オゾンナイザ等に利用されてきた。この誘電体バリヤ放電で、動作ガスを He にすると、大気圧でグロープラズマになり、しかもより低温のプラズマを生成でき⁽¹⁾。このため、プラスチックの表面処理や、医療分野への応用が期待されている。また、He ガスを流した内径数 mm のガラス管に低周波(LF)高電圧(13kHz, 7kV 程度)を印加すると、ガス流の方向に関係なく、高電圧電極側から数 cm まで、弾丸状のプラズマジェットが発生する^(2,3)。このプラズマジェットは、高速で伝搬するイオン化フロントによるものと言われており、この特徴を生かせば、処理対象物の近くでラジカルを高濃度で発生でき、高速プロセスを実現できる可能性がある⁽³⁾。また、大気圧プラズマは原理的に真空装置や真空容器が不要なため、電子デバイス作製に広く用いられている低圧プラズマを、大気圧プラズマに置き換えることができれば、デバイス作製時の消費エネルギーを大幅に削減できる可能性がある。

一方我々は、大気圧以下の圧力領域で熱 CVD 法により生成されるダイヤモンド薄膜について研究している⁽⁴⁾。この中で、一辺が 100 μ m 程度の単結晶ダイヤモンドの生成に成功しているが、ダイヤモンドの生成条件が狭く、ダイヤモンドと一緒にグラファイト等の非ダイヤモンド成分が生成してしまう問題がある。これらの背景から、本研究では、LF 高電圧で発生するプラズマジェットを用いた H ラジカル源を作り、H ラジカルで非ダイヤモンド成分を除去し、ダイヤモンド薄膜の高品質、高速成膜を目的としている。また、ダイヤモンド成膜への応用を通して、大気圧プラズマの電子デバイス作製への応用の可能性を探る。今回は、製作した大気圧マイクロプラズマジェット装置の特性について報告する。

2. 実験装置, 実験方法

図 1 (a-c)にマイクロプラズマジェット装置を示す。ガスはマスフローコントローラ(MFC)を介して、He は最大で 2SLM, H₂ は 5SLM 供給した。LF 電源にはオゾン発生用高圧電源 LHV-05DC (6kV_{pp}, 11kHz, ロジー電子)を使用した。DBD はマイクロピペット用のガラス毛细管 (内径 0.6mm, 外径

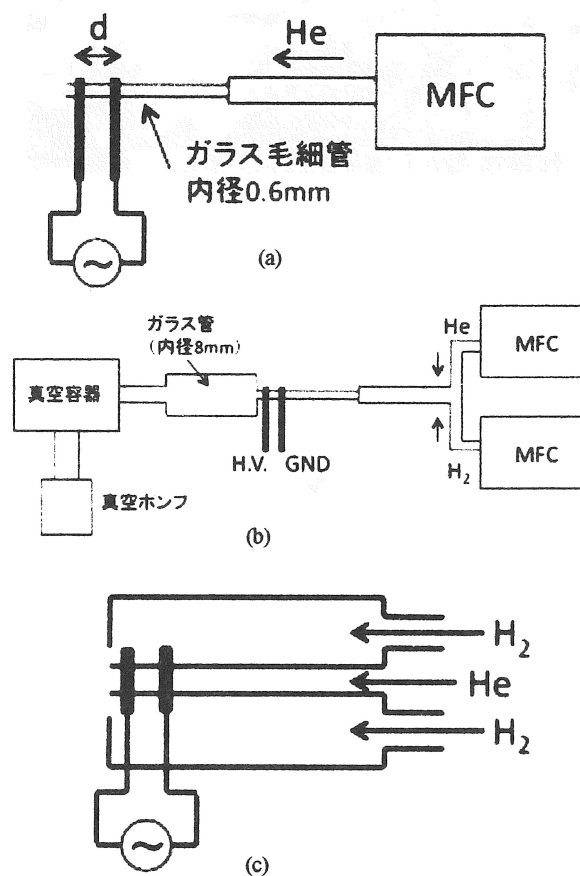


図1 マイクロプラズマジェット装置

1mm) 内で発生させた。マイクロプラズマジェットの観察には、デジタルカメラ(Canon EOS Kiss Digital N)とデジタルビデオカメラ(SONY DCR-PC101K)を使用した。

図 1 (a)では He ガスのみを使用し、電極間距離 d , ガス流量, および LF 電源の接続を変えながら、マイクロプラズマジェットの観察、放電電流・電圧の測定を行った。電流は接地電極側に直列に挿入した 61.9 Ω の抵抗で測定し、電圧は高電圧プローブ(Tektronix P6015A)で測定した。

図 1 (b)では毛细管出口にガラス管を接続し、真空容器を経てロータリーポンプでガスを排気している。この理由は、実

*専攻科生産工学専攻 2年

**専攻科生産工学専攻 1年

際にダイヤモンド成膜への応用を考えた場合、プラズマジェットの中の雰囲気は CH₄ 等の炭化水素ガスが微量混ざった H₂ で、空気ではない。また、ダイヤモンド成膜は数分の 1 気圧程度の低気圧でも行われるためである。

図 1 (c) では、毛細管には He ガスのみが流れ、H₂ はプラズマジェットの外から供給する。図 2 にその写真を示す。毛細管周囲の 3mm の穴から同軸状に H₂ が供給される。



図 2 図 1 (c) の写真

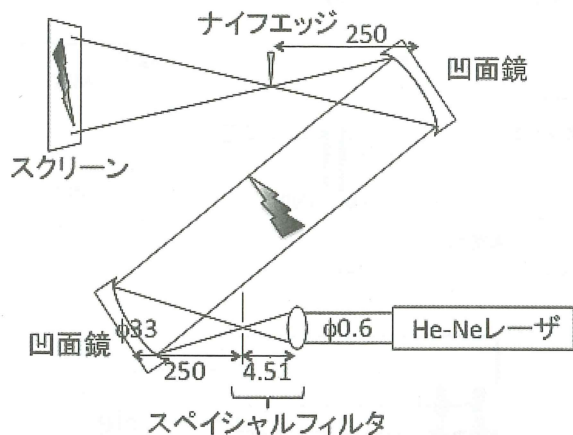


図 3 シュリーレン計測の光学系の概略図

図 3 はガスの密度勾配を調べるシュリーレン法の概略図である。上記図 1 (c), 図 2 の装置でガスの密度勾配を測定した。スペシャルフィルタで、He-Ne レーザ光の中心付近の良質の平行光を切り出すとともに拡大する。次に、凹面鏡で平行光に戻し、図 2 の左斜め上から照射した。また、再び凹面鏡で集光し、ガスの密度勾配のため偏向した光をナイフエッジで遮り、スクリーン上に投影した。

3. 結果および考察

図 4 に毛細管出口から測ったプラズマジェットの長さとして He ガス流量の関係を示す。飽和傾向を示すが、ガス流量が多いほど、また下流 (出口) 側の電極を高電圧にした方がジェットは長くなる。下流側が接地されている場合、プラズマジェットに別の接地電極を近づけても若干明るくなる程度で、指で直接触れてもアークは発生せず痛みも感じなかった

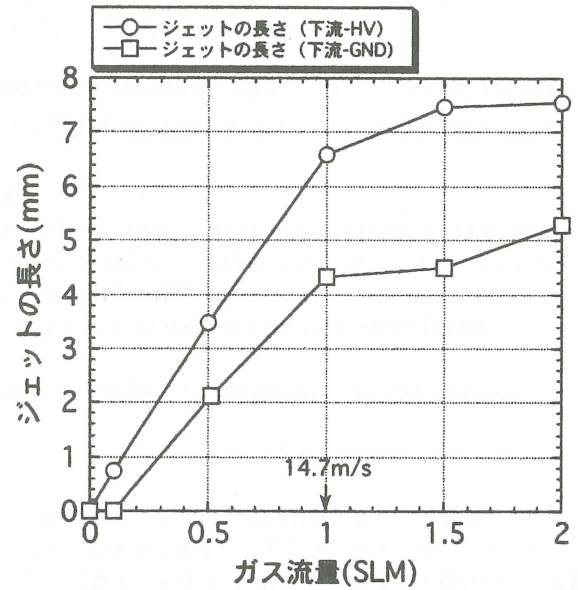


図 4 マイクロプラズマジェットとガス流量の関係 (He100%, d=2.6mm)



図 5 マイクロプラズマジェット (下流側: 高電圧)

が、逆に下流側を高電圧にすると、図 5 の様な、アークが発生し接地電極には放電痕が残り、指で触れると感電した。

図 6 は電極間隔 d に対するプラズマジェットの変化で、図 7 は同時に測定した放電電圧電流波形の一部である。d=2mm~17mm で測定を行ったが、ジェットの長さは d=6mm 付近で一旦短くなってから d=16mm まで徐々に長くなった。d=17mm では DBD 自体が発生しなかった。図 7 を見ると、放電・プラズマが発生するのは電圧の変化が大きい部分であ

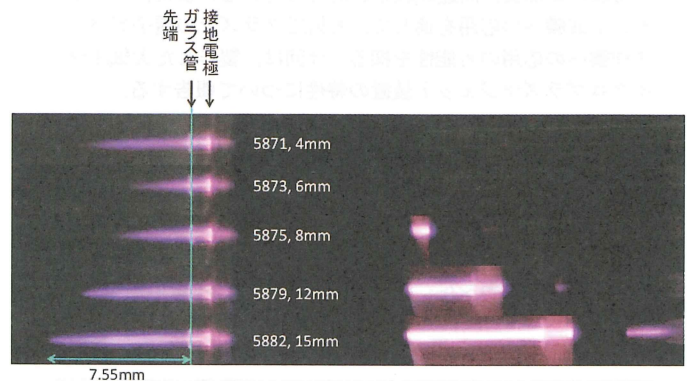


図 6 電極間隔 d に対するマイクロプラズマジェットの変化

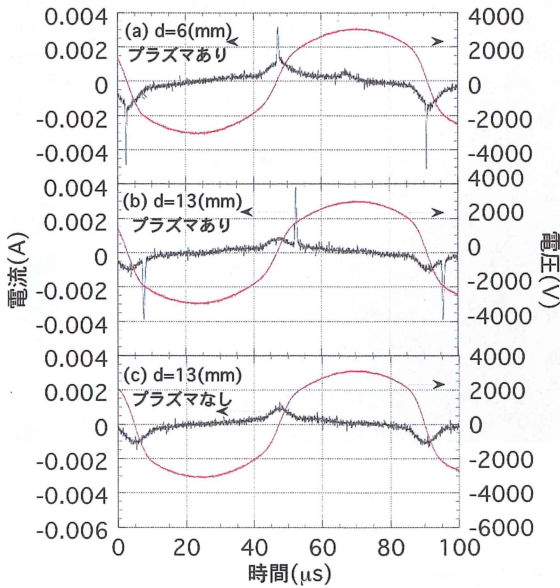


図7 放電電圧電流波形

り、発生する放電は半周期に1回だけである。また、 d が大きくなる程、放電が生じるには高い電圧が必要であること、放電期間が若干長くなることも分かる。これらのことから、プラズマジェットは電源周波数に同期したパルスプラズマであることが分かる。さらに、 d を大きくすることは、ガラス管内の放電領域、放電期間および放電電流の増加をもたらす、その結果、プラズマジェットが長くなっていると考えられる。

次に図1(b)の装置で行った実験結果について述べる。毛細管の上流から H_2 を混合した場合、 H_2 濃度が高い条件では、電極間でも放電は生じず、 H_2 濃度を6%以下にせざるを得なかった。また、プラズマジェットが発生する内径8mmのガラス管と真空容器の間はコンダクタンスが小さいため、真空容器の圧力が0.5気圧程度以下でHeのみでプラズマジェットが発生した。さらに低気圧にするとプラズマジェットは徐々に長くなり、真空容器内が11hPaというほぼ真空の状態では、図8(a)の様に約33mmに達した。一方、 H_2 を混入すると(b)の様にプラズマジェットは極端に短くなった。

これらの結果より、放電領域の上流から H_2 濃度を上げるの

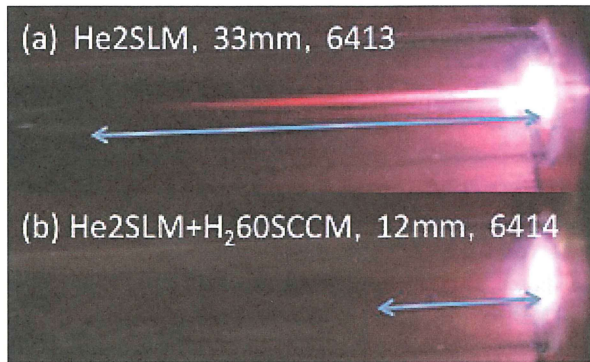


図8 雰囲気圧力、混合ガスによるマイクロプラズマジェットの変化

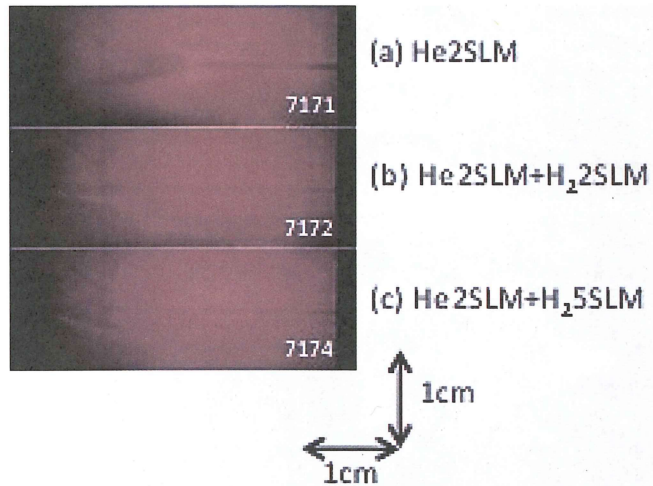


図9 シュリーレン法で観察したガスの密度勾配

は困難であり、発生したプラズマジェットの周囲から H_2 を供給する方がHラジカル源としては可能性があると考えられる。また、低気圧でプラズマジェットが伸びることは、ガラス毛細管から噴出するジェット状のガス(Heガス流速が高い状態)がプラズマジェット生成にとって重要であることを示唆している。

次に、図1(c)の装置で行ったHe、 H_2 を同軸状に供給した結果について述べる。図9はシュリーレン法で観察したガスの密度勾配の写真である。(a)のHeのみでは、毛細管の内径程度のガスが毛細管出口から1.4cm程度は徐々に圧力を下げながら、広がらずに真直ぐ噴出し、それより下流で急に広がっているのが分かる。(b,c)の H_2 を毛細管の外側から供給した場合、半径方向の密度勾配が緩やかになるため、中心のHeジェットは見難いが、Heジェットの長さは7mm程度である。その後徐々に半径方向に広がっている様に見える。

下流側を高電圧にした場合のプラズマジェットの写真を図10と11に示す。図10はHe2SLMのみ、図11はHe2SLM+ H_2 5SLMを流した写真である。下流側を高電圧にした場合、これまでの実験とは異なり、プラズマジェットが発生しなかった。そこで、大気中のガス流下流側にリング状の接地電極を設置しプラズマジェットを発生させた。写真は接地電極位置をいろいろ変えたもので、毛細管出口先端から2.3cm内に接地電極を近づけると一番下の写真の様に短くて暗いジェットが発生し始め、毛細管出口から数mm程度まで近づけると長くて明るいジェットが発生した。接地電極が毛細管出口に近い場合、毛細管出口と接地電極間でプラズマは明るくなり、ジェットがリングを通過した先では、少し暗いプラズマジェットが伸びている。接地電極を徐々に遠ざけると、毛細管出口と接地電極間の明るいプラズマは伸びるが、接地電極から下流のプラズマジェットの長さは一定のまま、さらに遠ざけると接地電極の下流のプラズマジェットは短くなった。また、 H_2 を周囲から供給した図11では、プラズマジェットは細く短くなり、プラズマの色も長波長側に変化している。これらの結果より、プラズマジェットが発生するには、ノズルの高電位と遠くの接地電位間の電界、He濃度が高い流速の2つが必要であることが示唆され、これは北野らの報告と一致する⁽³⁾。また、周囲から H_2 を供給する方法は、このマイクロプラズマジェットをダイヤモンド薄膜生成に

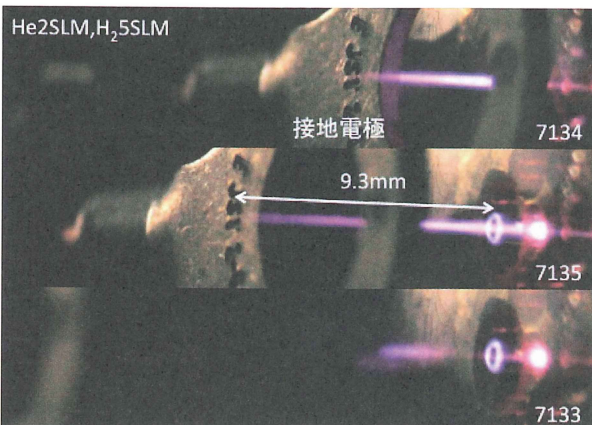
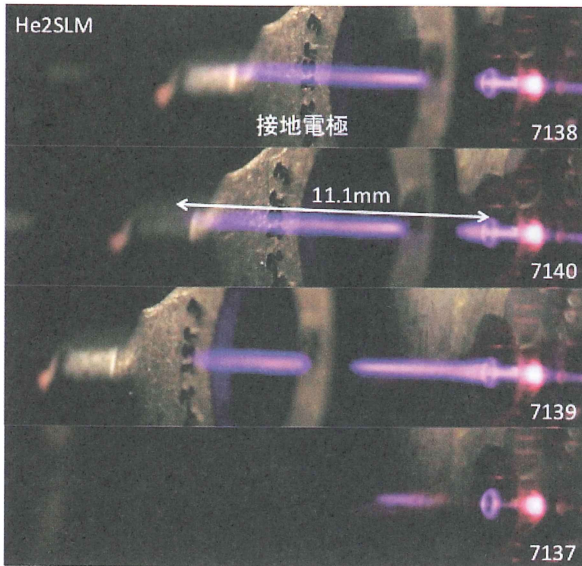


図11 マイクロプラズマジェット(He2SLM+H₂5SLM)
(上流側：接地，下流（出口）側：高電圧)

におけるHラジカル源として応用する際に有用である。

図12は下流側を接地電位にした場合のプラズマジェットの写真である。この場合は、リング状接地電極を近づけてもプラズマジェットの伸縮は見られず、図10、11とは異なり、リング状接地電極が無くてもプラズマジェットは発生した。従って、ジェットの生成機構としてはガラス毛細管内のDBDで発生したプラズマがガス流で押し流されるアフターグロープラズマに近い。しかしながら、①プラズマジェットにリング状接地電極を接触させると、毛細管出口の接地電極とリング電極に電流が分流し、プラズマジェットが若干明るくなること、②写真の様に毛細管出口より下流側で最もプラズマの発光が強く、この領域で電界が強いことから、毛細管出口中心のプラズマの高電位と遠くの接地電極の間の微弱な電界による放電がこのプラズマジェットの生成に関わっている可能性がある。

最後に、写真は示さないが、ガラス毛細管の上流側の電極は浮遊電位にしたまま、毛細管出口の電極と出口から下流側

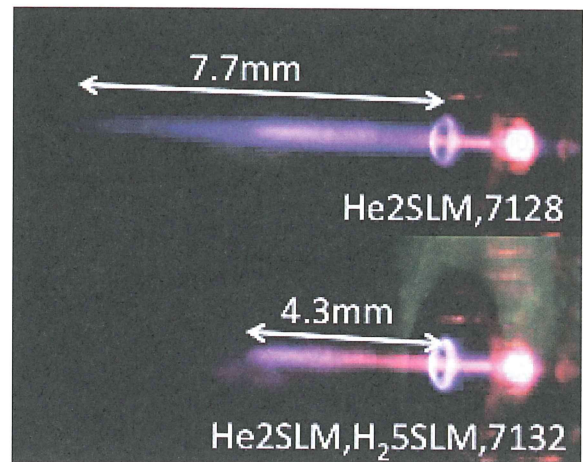


図12 マイクロプラズマジェット
(上流側：高電圧，下流（出口）側：接地)

に設置した電極の間にLF高電圧を印加したところ、どちら側を高電圧にしてもプラズマが発生した。従って、高速のHeガス流束が最も重要で、誘電体は必ずしも必要ではないと言える。また、接地したリング電極よりも下流側のプラズマジェットに素手で触れても、痛みを伴うような放電は起きなかった。

4. 結論

内径0.6mmのガラス毛細管にLF高電圧を印加し、Heのマイクロプラズマジェットを発生させた。プラズマジェットの発生には、高速のHeガス流束と電位勾配が最も重要であることが明らかになった。また、大気圧から低気圧まで広い圧力範囲でプラズマジェットを発生できること、および、Heガス流束の周囲からH₂を供給してもプラズマジェットが発生でき、しかもHラジカル生成が示唆されることから、同軸方式のプラズマジェットがダイヤモンド生成に応用できる可能性が示された。

さらに、接地電極の適切な挿入により、処理対象物に放電によるダメージを与えない、マイクロプラズマジェットの生成が可能であることが分かった。

謝辞

細管からのガス流束についてご助言いただいた、本校制御情報工学科榎村秀男教授に感謝いたします。

参考文献

- (1) S.Kanazawa, M. Kogoma, T. Moriwaki and S. Okazaki: Proc. Jpn. Symp. Plasma Chem. 3, 1893 (1987).
- (2) M. Teschke, J. Kedzierski, E. G. Finantu-Dinu, D. Korzec and J. Engemann: IEEE Trans. Plasma Sci. 33, 2, 310(2005).
- (3) 北野勝久, 浜口智志: 応用物理, 77, 4, 383(2008).
- (4) 小城左臣, 福澤剛: 北九州工業高等専門学校研究報告, 34, 19(2001).

(2009年10月9日 受理)