池田 隼輝

荒眷 光利

不純物の影響によるウルトラピュア大気圧プラズマジェット中の

プラズマビュレットの伝播特性の変化

阪大工 吉田 実加 北野 勝久

1 はじめに

近年,大気圧プラズマジェットが,医療および 生物学の応用分野における有望な技術として研 究されている。大気圧プラズマジェット中では, ICCDカメラを用いて10⁴⁻10⁶m/sの速度で移動す る弾丸状のプラズマが観察され,ガス流速よりも はるかに速い¹。この弾丸はプラズマビュレット と呼ばれ,放電管中に流れるプラズマ中の作動ガ ス(の励起種)によって引き起こされる光の放出 と共に移動する。この現象は,電子が電場と反対 方向にドリフトすることで形成されるイオン化 波であり,ガス流に沿って伝播する。

一般的な大気圧プラズマの実験では, ppmの不 純物を有する高純度ガスを用いるが、2017年北 野ら2によって極微量不純物により発光スペクト ルが変化することが明らかになっており,極微量 不純物が放電に与える影響が注目されている。不 純物濃度が放電およびプラズマビュレットに強 く影響を与えていることが考えられるが、 プラズ マビュレット中の不純物濃度から伝播特性に与 える影響はまだ調べられていない。我々は、不純 物濃度の変化がプラズマビュレットに与える影 響を調べるため,純化装置を用いて作動ガス中の 不純物濃度をウルトラピュア状態まで徐々に低 下させ, 準安定原子密度の時空間分布の分光測定 を行った。準安定原子はプラズマビュレットで生 成され,不純物分子との衝突によって消滅するの で, 準安定原子の時空間的変化からプラズマビュ レットと不純物分子の情報を得ることができる。

本講演では、ウルトラピュアプラズマへと遷移 する過程におけるプラズマビュレットの伝播速 度や形状の変化について報告する。

2 実験装置

実験装置を図1に示す。プラズマジェットの発 生部分の構造は、放電電極の銅箔(厚さ0.01mm, 幅 15mm)を外側に巻いた石英管(内径 2mm, 外 径 4mm, 長さ 60cm, OH 含有量 3-150ppm)か



日大生産工

日大生産工(院) ○羽田 拓実

島津製作所 品田 恵

Fig.1 Experimental setup

ら成る。高電圧電源(LHV-10AC-24)を用いて,交 流高電圧(8kV, 17kHz)を放電電極に印加するこ とで石英管内部に誘電体バリア放電を生成し,流 入している He ガス(純度 99.9995%)を電離させ, プラズマジェットを生成した。He ガスは,ガス 流量計(KOFLOC, MODEL8500)及びガス精製 器(VICI, HP-2)を介して 50sccm で石英管に導 入される。純化装置の電源を入れた後,作動ガス 中の不純物濃度は徐々に低下する。

準安定 He 原子(2³S₁)の吸収ラインである 1083nm の分布帰還型(DFB)レーザーを光源とし て用いてレーザー吸収分光法(LAS)による測定を 行った。吸収の飽和を考慮し,ND フィルタで 1mW に減光されたレーザーは,放電管内部で生 成されたプラズマに入射した後,透過してきたレ ーザーをシリンドリカルレンズで集光し InGaAs 検出器(Thorlabs, PDA20CS)により検出される。準 安定 He 原子密度の時間変化は,純化装置の電源 投入前後で,石英管に沿って 1cm ずつ光軸を移 動させ観測した。また,中性粒子密度は三体衝突 により準安定原子の寿命に大きく影響を与える ため,ガス温度を考慮する必要がある。He の熱 容量は非常に低いため,放電管の温度が He ガス

Changes in Propagation Characteristics of Plasma Bullet in Ultrapure Atmospheric Pressure Plasma Jet due to Impurities

Takumi HADA, Toshiki IKEDA,

Mika YOSHIDA, Katsuhisa KITANO, Kei SHINADA, and Mitsutoshi ARAMAKI

に伝わる速さはガス流速よりも十分に早い。その ため本研究では、ガス温度は放電電極の下流側に 貼り付けた K型熱電対で測定された放電管の温 度と定義した。



3 実験結果と解析結果

Fig.2 Temporal variation of pulsed absorption time after (a) before gas purifier ON (b) after 18 hours from gas purifier ON



Fig.3 Discharge electrode distance dependence of gas temperature

LAS により得られた結果は、 ランベルト・ベー ルの法則より入射光 Io と透過光 I から吸光度 A で評価される。

$$A = -\log_{10} \frac{I}{I_0}$$
(1)

吸光度の時間変化((a)は純化装置 OFF, (b)は純化 装置を入れてから 18 時間後)を図 2 に示す。放電 が起きる度に生成されるプラズマビュレットは, 伝播しながら準安定 He 原子を生成するため,レ ーザーを通過する時に吸収が観測される。プラズ マビュレット内部の密度分布をガウス関数とし て表すことで,以下の式が得られる。

$$\frac{dN_{He^*}}{dt} = Ae^{-b(z-v_bt)^2} - \frac{N_{He^*}}{\tau_{He^*}}$$
(2)

ここで、 $N_{He^*} と \tau_{He^*}$ は準安定 He 原子の密度と半 減時間、zは放電電極からの距離、 v_b はプラズマ ビュレットの伝播速度を表している。右辺第1項 は、プラズマビュレットによる準安定 He 原子の 生成過程を表す項となっている。第2項は、クエ ンチングによる準安定 He 原子の消滅過程を考慮 している。吸収の波形を(2)式でフィッティング し、不純物濃度によるプラズマビュレットの特性 の変化について評価する。プラズマビュレットの 長さ L_b は、(3)式で表される。

$$L_b = 2\sqrt{\frac{ln2}{b}}$$
(3)

次に,ガス温度の放電電極距離依存性を図3に 示す。印加電圧が高いほどガス温度は上昇し, 8kV では放電電極近傍において384K まで上が った。

3-1 プラズマ中の不純物濃度

準安定 He 原子は, 選択則を満たしていないた め壁への拡散あるいは不純物分子との衝突によ って脱励起する。He ガスが不純物を含まない場 合, 準安定 He 原子の半減時間 τ_{He} は He 中性粒 子との三体衝突によって主に決定され, (5)式で 表される³。

$$He^* + 2He \rightarrow He_2^* + He$$
 (4)

$$\tau_{He} = (K_3 \cdot N_{He}^2)^{-1} \tag{5}$$

三体衝突の速度定数 K_3 は 2.5×10^{-34} cm⁶s⁻¹である⁴。He 中性粒子密度 N_{He} は、本実験で得られたガス温度から $1.92 - 2.16 \times 10^{19}$ cm⁻³であり、 τ_{He} は8.5 - 10.9 μs となる。準安定 He 原子の放電管までの拡散時間は、 τ_{He} よりも 2 桁以上大きいため無視できる。

また,Heガス中に含まれる不純物とのクエン チングを考慮した場合(窒素と酸素が支配的と仮 定),(8)式は以下のように書き換えられる⁵。

$$He^* + N_2 \to He + N_2^+ + e \tag{6}$$



Fig.4 Discharge electrode distance dependence of lifetime of metastable atom generated in plasma bullet



impurity concentration

$He^* + O_2 \rightarrow He + O_2^+ + e$	(7)
$\tau_{im} = (K_3 \cdot N_{He}^2 + K_{N_2} \cdot N_{N_2} + K_{O_2} \cdot N_{O_2})^{-1}$	(8)
ペニングイオン化の速度定数 <i>K_{N2}</i> は7.	$0 \times$
$10^{-11} cm^3 s^{-1}, K_{0_2}$ は $2.5 \times 10^{-10} cm^3 s^{-1}$ である	5 6-
7。 N_{N_2}, N_{o_2} は窒素,酸素の密度であり、LAS	5測
定によって得られた準安定 He 原子の半減時間	間を
π_{im}に代入することで、不純物濃度を推定す る	るこ
とができる。	

準安定 He 原子の半減時間の放電電極距離依存 性を図 4 に示す。純化装置の電源を入れると、半 減時間は 1µs 以上延び、 τ_{He} に近づく。また、放 電電極から離れていくとガス温度は下がるため、 τ_{He} は小さくなる。

次に,プラズマ中の不純物濃度の放電電極距離 依存性を図5に示す。酸素と窒素は3:7の割合で混 入していると仮定する。本実験で使用している Heガスボンベの純度は99.9995%であるにも関 わらず,プラズマ中の不純物濃度はその何倍も検 出した。この結果は,石英管のOH含有量や配管 の内壁に付着している不純物によるものと思わ れるため,純度の高い石英管を使用し配管のベー キングを行うことで不純物濃度は下がると考え られる。 3-2 プラズマビュレットの伝播速度



Fig.6 Discharge electrode distance dependence of propagation velocity of plasma bullet

プラズマビュレットの伝播速度の放電電極距離 依存性を図 6 に示す。純化装置 OFF は $0.88 \times 10^4 m/s$ から $1.78 \times 10^4 m/s$, ON では $0.65 \times 10^4 m/s$ から $1.07 \times 10^4 m/s$ まで,放電電極から離 れていくと徐々に加速する。

プラズマビュレットの伝播速度を決定する主な 要因は4つ挙げられる。1つめに、準安定原子と 不純物との間のペニングイオン化効果である。ペ ニングイオン化効果による電子密度の増加は、プ ラズマビュレットの伝播速度を加速させる。S. Wu らにより、O2は電子付着効果による電子のエ ネルギー損失に重要な役割を果たしていることが わかっているため,電子密度の増加は N2のイオン 化が支配的と結論付けられている % この現象は, 準安定原子の内部エネルギーに依存している。例 えば Ar の場合, 準安定 Ar 原子の内部エネルギー $(11.6eV(4^{3}P_{2}^{0}))$ では N₂をイオン化することはでき ない。Heの場合, 準安定 He 原子の内部エネルギ ー(19.82eV(2^{3} S¹)と 20.06eV(2^{1} S₀))は N₂をイオン 化するのに十分高いため,ペニングイオン化効果 が起き、プラズマビュレットの伝播速度は増加す る 9-10。2 つめに、電極に印加される電圧のパラメ ータである。印加電圧の波形、ピーク電圧、周波 数はプラズマビュレットの伝播速度に大きく影響 を与える 11。プラズマビュレットの伝播速度は, 電場の強さに依存するためである。3つめに、プ ラズマを取り囲む媒体の誘電率である。プラズマ ビュレットの伝播速度は媒質の誘電率に依存し, 誘電率が高いほど低下する 12-13。プラズマジェッ トの生成に使われる石英管は、全て空気よりも高 い誘電率を有する。そのためプラズマジェットが 放電管から大気中に出るときに誘電率は減少し, プラズマビュレットの伝播速度は加速される。4 つめに,流体の流れを表すレイノルズ数である。 ガスを過剰に流しすぎた場合,層流から乱流に遷 移する。そのとき慣性力は大きくなり,プラズマ ビュレットの伝播速度が遅くなる¹⁴⁻¹⁵。本実験で のレイノルズ数 Re を(9)式から求める。

$$Re = \frac{U \cdot d}{v_{mg}} = 700 \tag{9}$$

ここで、 \overline{U} は平均流速、dは石英管の直径、 v_{mg} は 動粘性係数を表している。(10)式から得られる値 は、層流の上限値 Re \approx 2000、乱流の下限値 Re \approx 4000 であるため、本実験の流体の領域は層流であ る。

本実験では、印加電圧の波形、ピーク電圧、周 波数は一定である。また、ガス流量はマスフロー メーターで制御され、放電管内のプラズマジェッ トの測定を行っている。そのため、プラズマビュ レットの伝播速度に影響を与える要因は N₂ によ るペニングイオン化効果のみである。実験結果は 作動ガス中に含まれる N₂ の減少によるプラズマ ビュレットの伝播速度の低下を示唆している。





Fig.7 Discharge electrode distance dependence of propagation velocity of plasma bullet

プラズマビュレットの長さの放電電極距離依存 性を図7に示す。(3)式から求めたプラズマビュレ ットの長さは、純化装置 OFF は2.52 – 2.71mm, ON では3.18 – 3.38mmであった。

プラズマビュレットは沿面放電によって伝播す るため、放電管の表面には電荷が付着している¹⁶ ¹⁷。前の放電によって付着している電子は、プラ ズマビュレットの頭にある高電界場により加速さ れ、ドリフト時に中性粒子と衝突してイオン化が 起きる。また、プラズマビュレットの電離面より も後ろの電荷は、プラズマビュレットの背後の電 界を減少させ、再結合をもたらす。従って、プラ ズマビュレットの長さは、イオン化と再結合との バランスによって決定される。

実験結果から電子と不純物との電荷交換衝突に よって電子温度が低下し、イオンと電子の再結合 が促進され、プラズマビュレットの長さが短くな ったと考えられる。

4 まとめ

本研究では、準安定 He 原子密度の時空間分布 の分光測定から、プラズマ中の不純物濃度、プラ ズマビュレットの伝播速度・長さを評価した。本 実験結果から、純化装置をつけることでプラズマ 中の不純濃度は約70ppm 減少した。また、不純 物濃度の減少は、プラズマビュレットの伝播速度 を低下させ、長さを伸張させた。これは窒素のペ ニングイオン化プロセスと不純物との衝突によ る再結合の促進が考えられる。

「参考文献」

- M. Teschke, J. Kedzierski, E. G. Finantu-Dinu, D. Korzec, and J. Engemann, IEEE Trans. Plasma Sci. 33, 310 (2005).
- [2] 北野,吉田,荒巻,品田,松岡,応用物理学会資料,7p-A413-5 (2017).
- [3] Tachibana K., Kishimoto Y. and Sakai O, J. Appl. Phys. 97, 123301 (2005)
- [4] A. V. Phelps, Phys. Rev. 99, 1307 (1955).
- [5] Niermann B, Kanitz A, Böke M and Winter J, J. Phys. D: Appl. Phys. 44, 325201 (2011).
- [6] R. S. F. Chang, D. W. Setser, and G. W. Taylor, Chem. Phys. 35, 201 (1978).
- [7] R. P. Cardoso, T. Belmonte, G. Henrion, and N. Sadeghi, J. Phys. D Appl. Phys. 39(19), 4178 (2006).
- [8] S. Wu, Q. Huang, Z. Wang, and X. Lu, IEEE Trans. Plasma Sci. 39, 2286 (2011).
- [9] W.-C. Zhu, Q. Li, X.-M. Zhu, and Y.-K. Pu, J. Phys. D: Appl. Phys. 42, 202002 (2009).
- [10] T. Shao, C. Zhang, R. Wang, Y. Zhou, Q. Xie, and Z. Fang, IEEE Trans. Plasma Sci. 43, 726 (2015).
- [11] L. Ji, Y. Xia, Z. Bi, J. Niu, and D. Liu, AIP Adv. 5, 087181 (2015).
- [12] S. Wu, X. Lu, and Y. Pan, Phys. Plasmas 21, 073509 (2014).
- [13] J. Jansky and A. Bourdon, Appl. Phys. Lett. 99, 161504 (2011).
- [14] D. Maletić, N. Puač, G. Malović, A. Đorđević, and Z. L. Petrović, J. Phys. D: Appl. Phys. 50(14), 145202 (2017).
- [15] K. Yambe, S. Masuda, and S. Kondo, J. Phys. Soc. Jpn. 87, 064501 (2018).
- [16] X. P. Lu and M. Laroussi, J. Appl. Phys. 100, 063302 (2006).
- [17] G. V. Naidis, Appl. Phys. Lett. 98, 141501 (2011).