

平成30年6月8日現在

機関番号：12401

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H05515

研究課題名(和文)電子密度の高感度・高時間分解測定に基づいた放電活性種の効率的・選択的生成法の創成

研究課題名(英文) Highly sensitive and temporally resolved electron density measurement of discharge plasma for effective and selective generation of reactive species

研究代表者

稲田 優貴 (INADA, Yuki)

埼玉大学・理工学研究科・助教

研究者番号：00735532

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 18,000,000円

研究成果の概要(和文)：大気圧プラズマの一種であるストリーマ放電は、環境・エネルギー・医療など幅広い分野への応用が期待されている。しかし、活性種の生成機構には未解明な部分が多い。この一因は、活性種の生成源である電子が時空間的にどのような挙動を示すのか、その詳細が全く測定できていない点にある。こうした背景のもと、本研究では、ストリーマ内の2次元電子密度分布がシングルショットで撮影できる高時間分解能・高感度型センサを独自に開発した。これにより、ストリーマ内の電子密度を～1nsの時間分解能と1立方メートル当たり～10の20乗の測定感度で可視化することに成功し、いくつかの活性種について、その生成・消滅機構を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：The streamer discharge in open air is one of the important types of atmospheric-pressure non-thermal plasma, and it has been attracting interest in a wide range application fields: environmental pollution control, plasma-assisted ignition and combustion, and plasma medicine. However, the processes by which reactive species are produced in air streamers are not fully understood because the electron density determination using conventional measurement systems has been extremely difficult.

In order to overcome the difficulty, we developed novel electron density sensors capable of visualizing two-dimensional electron density distributions from single-shot recordings under sensitivity of 10 m and temporal resolution of 1ns. These sensors were successfully used for the electron density imaging over the air streamer discharges and production mechanisms of several reactive species were elucidated.

研究分野：高電圧工学

キーワード：活性種 ストリーマ

1. 研究開始当初の背景

大気圧プラズマの一種であるストリーマ放電中では、電界で加速された電子が大気中の分子と衝突することで、イオン・解離種・励起種などの「活性種」が効率よく生成される。これら活性種は非常に反応性が高いため、環境・エネルギー・医療など幅広い分野への応用が期待されている。このように電子は活性種の生成を司る重要なパラメータであるため、活性種応用技術の最適化や新規実用化を達成するためには、電子の特性計測、とりわけ密度計測が必須となる。

プラズマ内の電子密度測定を行うべく、従来から様々な手法が精力的に開発されてきた。しかし、これら従来型センサの多くは局所計測型であるため、これまでの電子密度測定の大半は空間的再現性の良いプラズマを対象としてきた。こうした従来の局所型センサではストリーマ放電のような空間的再現性の低いプラズマに対して電子密度測定を行うことは非常に困難である。こうした事情から、活性種の生成源である電子が時間的にどういった挙動を示すのか、その詳細はこれまで全く測定できておらず、活性種の生成機構には未解明な部分が数多く残されている。再現性の低いプラズマ内の電子密度測定を可能とするためには、電子密度の空間分布が単一測定で可視化できるセンサを開発する必要がある。

こうした背景のもと、筆者らは近年、空間的再現性に乏しいプラズマの機構解明を行うべく、プラズマ内の2次元電子密度分布が単一測定で取得できるシャックハルトマン型レーザ波面測定装置を独自に開発してきた。このセンサではプラズマの普遍的属性である屈折率分布をマッピングすることで電子密度の可視化を行うため、本センサはプラズマの種類や発生環境に依存することなく、広域なプラズマ現象に適用が可能である。

2. 研究の目的

本研究の目的は、著者らが独自に開発したセンサによりストリーマ放電内の2次元電子密度分布を測定し、活性種の生成機構を明らかにすることである。

3. 研究の方法

シャックハルトマン型レーザ波面測定装置の基本原理解を以下に示す。レーザ光を拡大光学系で拡げたのち、図1のようにプラズマ中へ入射する。するとプラズマ内外における屈折率差に応じて、プラズマ中を透過したレーザの測定波面は湾曲する。シャックハルトマン装置では、マイクロレンズを2次元的に配列させたマイクロレンズアレイと呼ばれる光学素子を用いてレーザ波面の勾配を測定する。各マイクロレンズの焦点位置をプラ

ズマの発生前後で撮影することにより、焦点位置の移動量が求まり、これによりレーザ波面の勾配を算出することができる。このように焦点位置の移動量という相対量を扱うことで、拡大光学系など光路上の各種光学素子に起因した波面の乱れを相殺することができる。

まず始めに電子密度の算出方法について述べる。今、 $k$  番目のマイクロレンズへ向かう光路上の領域  $0 \leq z \leq L$  にプラズマが存在したとする。プラズマ内の正イオンを全て一価と仮定すると、プラズマ発生前と発生時の屈折率変化  $n(x, y, z, \lambda)$  は次式で与えられる。

$$\Delta n(x, y, z, \lambda) = K_n \Delta N_n(x, y, z) + K_i \Delta N_i(x, y, z) - \beta \lambda^2 \Delta N_e(x, y, z) \dots \dots \dots (1)$$

添字  $n, i, e$  はそれぞれ中性粒子、正イオン、電子をあらわし、 $K$  は比屈折率 [ $m^3$ ] で定数、 $N$  は粒子密度 [ $m^{-3}$ ]、 $\beta = e^2 / 8\pi^2 c^2 m_e \epsilon_0 = 4.47 \times 10^{-16} m$ 、 $\lambda$  はレーザ波長 [ $m$ ] である。また以下ではプラズマ発生前の電子密度を  $0 m^{-3}$  と仮定し、 $N_n(x, y, z)$  と  $N_e(x, y, z)$  は同義として表記する。

このとき、マイクロレンズの焦点距離を  $f$  として、図1における  $x$  方向への集光点(以下、輝点と称す)の移動量  $T_k(\lambda)$  は、

$$T_k(\lambda) = f \frac{\partial}{\partial x} \int_0^L \Delta n(x, y, z, \lambda) dz \dots \dots \dots (2)$$

と書ける。ここで  $K_i$  は  $-\beta \lambda^2$  の10分の1以下であるため、式(1)右辺のイオン項は無視することができる。この場合、式(2)中の  $T_k(\lambda)$  は  $N_n, N_e, \lambda$  の3変数関数となる。そこで  $\lambda_1, \lambda_2$  という2つの波長を用いて各波長に対する輝点移動量  $T_k(\lambda_1), T_k(\lambda_2)$  を同時測定することで、測定値である  $T_k(\lambda_1)$  と  $T_k(\lambda_2)$  は  $N_n, N_e$  の2変数関数となる。このように、2つの変数  $N_n, N_e$  に対して2つの方程式が立てられるため、変数である  $N_n, N_e$  は一意に決めることができる。空間電子密度  $N_e(x, y, z)$  を光路方向  $z$  に沿って積分した線積分電子密度  $\langle N_{ek}(x, y) \rangle L = \int_0^L N_e dz$  は以下の様に表せる。

$$\langle N_{ek}(x, y) \rangle L = -\frac{P}{f} \sum_{j=1}^k \frac{T_j(\lambda_1) - T_j(\lambda_2)}{\beta(\lambda_1^2 - \lambda_2^2)} \dots \dots (3)$$

ここでは式(2)中の  $x$  と  $y$  をそれぞれとマイクロレンズアレイの中心間距離  $P$  で代用することにより離散化を行った。このようにシャックハルトマン法では線積分電子密度が得られる。プラズマの軸対称性を仮定してアーベル変換を施すことにより、線積分電子密度から空間電子密度  $N_e(x, y, z)$  を求めることができる。

本研究で構築したシャックハルトマンセンサの構成一例を図2に示す。レーザ光源には波面の安定性を考慮して連続発振半導体レーザを採用した。半導体レーザそれぞれの中心波長は $\lambda_1=784\text{nm}$ 及び $\lambda_2=408\text{nm}$ である。両ビームをダイクロイックプリズムで合波し、放電ギャップ間に入射した。その後、レーザ光をダイクロイックプリズムで分波し、各波長に対応したICCD (Intensified Charge-Coupled Device) カメラで波面を計測した。本測定装置の時間分解能はICCDカメラのゲート時間に等しい。また、本測定装置の空間分解能はマイクロレンズのピッチ $P$ に等しい。

式(2)に示すよう、輝点移動量、すなわち本センサの測定感度はマイクロレンズの焦点距離に比例する。そのため、焦点距離の長いマイクロレンズアレイを開発し実装することができれば、等しい傾きを持った波面に対しても輝点移動量は増大し測定感度は向上する。そこで本研究では、市販されているほぼ全てのマイクロレンズアレイが片面凸形状であることに着目し、図3下部に示すメニスカス形状のマイクロレンズアレイを開発した。これにより測定感度は100倍改善された。

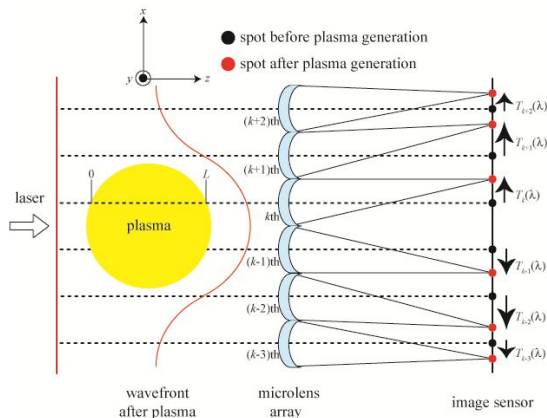


図1 シャックハルトマン型レーザ波面測定装置の基本原理

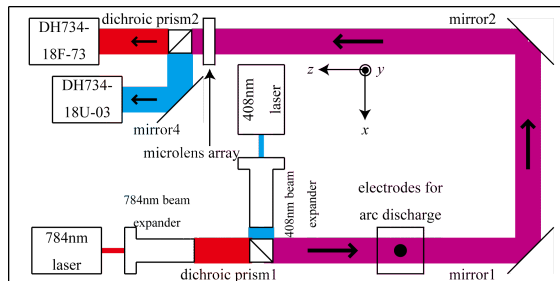


図2 シャックハルトマン型レーザ波面測定装置の構成

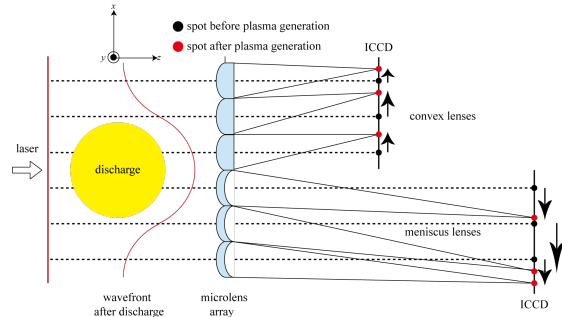
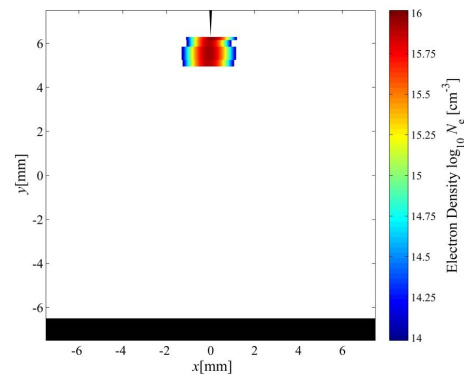


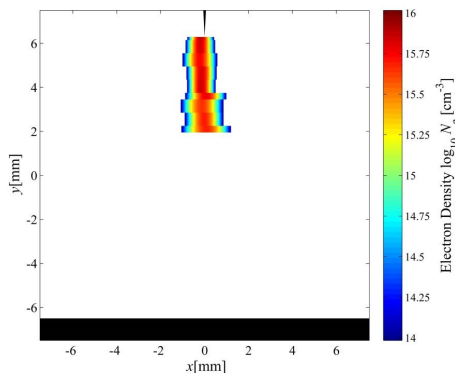
図3 メニスカス型マイクロレンズアレイによる測定感度の改善

#### 4. 研究成果

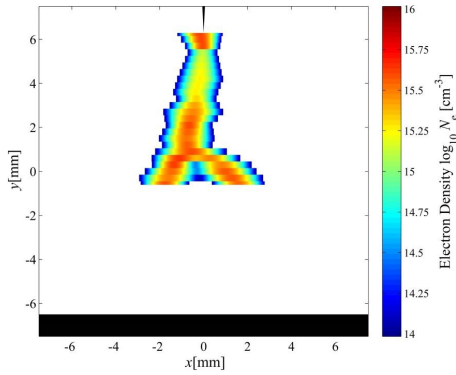
大気中で発生させた正極性一次ストリーマ内における2次元電子密度分布を図4に示す。同図に示すよう、ストリーマ放電は毎回ランダムに分岐するなど非常に複雑な放電形状を呈するが、本研究ではそのような空間的再現性の低いプラズマに対しても2次元電子密度分布の取得に成功しており、本センサの高い汎用性を示す一例となっている。これにより、発生直後のストリーマ内では $8 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$ にも及ぶ電子密度が進展方向に沿って均一に分布していること、この高電子密度はストリーマの進展とともに2nsの時定数で高速減衰すること、電子密度が高速減衰する主要メカニズムは3体再結合反応であり、この減衰速度がストリーマの進展速度よりも早いために電子密度はストリーマの進展に伴って不均一な分布を示すようになること、などを明らかにした。



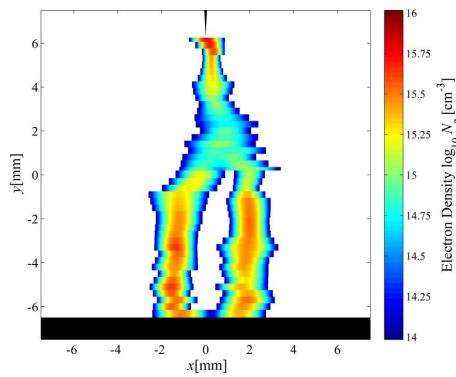
(a)  $t=0\text{ns}$



(b)  $t=5\text{ns}$



(c)  $t=8\text{ns}$



(d)  $t=15\text{ns}$

図 4 大気中における正極性一次ストリーマ内の 2 次元電子密度分布

さらに、今回得られた電子密度の時空間的挙動が再現できるよう、既存の電磁流体シミュレーションモデルを改良することで、これまでの数値解析においてはあまり考慮されることの無かった活性種が、実際に生成されておりその活性種がストリーマの時空間発展に大きな影響を与えていることを示すなど、シミュレーションモデルの改良と精緻化を行うこともできた。このように本研究では当初の目的のとおり、電子密度の実測値に基づいていくつかの活性種について生成機構を解明した。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 1 件)

Yuki Inada, Kaiho Aono, Ryo Ono, Akiko Kumada, Kunihiko Hidaka and Mitsuaki Maeyama, “Two-dimensional electron density measurement of pulsed positive primary streamer discharge in atmospheric-pressure air”, Journal of Physics D: Applied Physics, 査読有, Vol.50, 2017, 174005

[学会発表](計 8 件)

稲田優貴, “シャックハルトマン法による電子密度・中性粒子密度の 2 次元分布同時計測”, 日本学術振興会プラズマ材料科学第 153 委員会「第 134 回研究会」, 2018 年 01 月 18 日, 金沢大学 (金沢)

Yuki Inada, “Shack-Hartmann Sensor for Two-Dimensional Electron Density Measurement over Positive Primary Streamer Propagating in Atmospheric-Pressure Air”, XXIII International Symposium on Plasma Chemistry, 2017 年 08 月 01 日, Montréal (Canada)

Yuki Inada, “Two-Dimensional Electron Density Distribution over Positive Primary Streamer Propagating in Atmospheric-Pressure Air”, XXXIII International Conference on Phenomena in Ionized Gases, 2017 年 07 月 13 日, Lisbon (Portuguese)

稲田優貴, “シャックハルトマンセンサによる放電プラズマの 2 次元電子密度分布計測”, 第 34 回プラズマプロセッシング研究会/第 29 回プラズマ材料科学シンポジウム, 2017 年 01 月 17 日, 北海道大学 (札幌)

Yuki Inada, “Two-Dimensional Electron Density Measurement of Positive Streamer Discharge in Atmospheric-Pressure Air”, 69<sup>th</sup> Annual Gaseous Electronics Conference, 2016 年 10 月 13 日, Bochum (Germany)

稲田優貴, “大気中正極性ストリーマ放電内の 2 次元電子密度分布測定”, 第 40 回静電気学会全国大会, 2016 年 09 月 29 日, 群馬大学 (桐生)

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

稲田 優貴 (INADA, Yuki)

埼玉大学・理工学研究科・助教

研究者番号: 00735532