

令和 4 年 6 月 6 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K03808

研究課題名(和文) 交流アークを用いた革新的長尺熱プラズマ流による大面積高速処理技術

研究課題名(英文) Innovative planar thermal plasma jet generated by diode-rectified AC arc for rapid surface treatment

研究代表者

田中 学 (Tanaka, Manabu)

九州大学・工学研究院・准教授

研究者番号：10707152

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、高速表面処理プロセスの構築に資する革新的長尺熱プラズマ流を構築することである。独自開発のダイオード整流型多電極交流アークを発生させることで、長尺熱プラズマ場を構築することに成功した。これにより、これまで点熱源(0次元)として考えられてきた熱プラズマ流を、1次元熱源として発生させることが可能となった。本研究で開発した新規な熱プラズマ源を用いた表面処理の実験的検討により、表面の高速熱処理、高速還元処理が可能であると示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本申請研究は、ダイオード整流型の交流アーク発生システムを独自開発し、それに基づく高速表面処理プロセスの実験的検討を行ったものである。熱プラズマ流が有する1万度の熱流体をプレーナー状に制御することで、高速の表面処理(加熱、還元・酸化・窒化等の表面反応)プロセスを提供とするという、学術的にも産業的にも新規性、応用性、発展性が大きいと判断できる。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this research is to develop innovative planar thermal plasma jet for rapid surface treatment. A new thermal plasma source achieves planar thermal plasma jet, has been successfully developed by diode-rectified AC arc system under atmospheric pressure. This indicates that one-dimensional plasma source can be stably sustained by developed technique. Experimental results with the developed system suggested that the planar thermal plasma jet is a promising plasma source for rapid surface treatment of heating and reduction of metal oxides.

研究分野：熱プラズマ理工学

キーワード：熱プラズマ 交流アーク プラズマ診断 表面処理 高速処理

1. 研究開始当初の背景

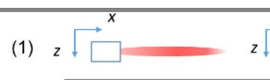
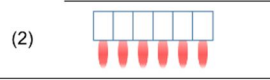

熱プラズマは 1 万 を超える高温を有し、化学的活性が極めて高い。熱プラズマの特長を活用することで、金属同士の接合(溶接)、切断(溶断)、表面コーティング(溶射)、気中溶解(インフライト溶融)などの溶融プロセスや、蒸発プロセスに基づくナノ材料創製、廃棄物処理など様々なプロセスでの応用が既に進んでいる。

しかし、現状では熱プラズマの産業応用での成功例は多くない。この原因は様々あるが、これまでに開発されている熱プラズマ発生手法は、数 mm から数 cm 程度の小さな領域にしか発生できないことが主要因の一つである。これは、大電流が流れる放電経路であるアークの自己収縮効果(ピンチ効果)に起因する本質的な問題である。数 mm から数 cm という限られたプラズマ領域は、溶接、溶断、溶射などの既存のプロセスにおいては問題とならないが、ナノ材料創製などの新規プロセスの視点から要求される大きさに対して不十分であり、熱プラズマの工業的応用性を狭めている。原理上、数千～数万 A もの大電流を流すことで、数十 cm 以上の大きさの熱プラズマ場を得ることも可能である。しかしそのような大電流を定常的に流す際には、極めて深刻な電極消耗現象が生じる点など、現実的に困難である。したがって、数～数百 A 程度の電流域で発生させる通常の熱プラズマ場は、空間的に“ゼロ”次元(点熱源)であると言える。

これまでに、様々な方法での長尺熱プラズマ源の構築が試みられた。例えば、Table 1 の発生手法(1)は、単にプラズマジェット流を延長しただけであるため、プラズマ流方向に対して急激な温度・速度勾配が生じることにより、大面積処理には不適切である。従来手法(2)は、個々のプラズマジェットを単に並列につなげただけであり、隣り合うプラズマジェット流の間には、電極などの設置物があるため有限の隙間が存在する。この原理的な温度ムラが致命的な欠点となり、線状熱プラズマの発生は未だ成功していない。そこで本申請では、数～数百 A 程度の電流域において、メートル級の熱プラズマ発生技術確立を目指し、その概念図を Table 1 中に示す。

本研究課題では、線状(1次元熱源)の熱プラズマ源として、メートル級の革新的長尺熱プラズマ発生技術の確立、およびそれを用いた大面積高速処理技術の開発を目的とする。メートル級の長尺熱プラズマ場は、従来技術の単なる延長ではない。本研究では、熱プラズマを用いた長尺熱プラズマ流の発生・制御技術を確立し、その変動現象を能動的に制御する。これにより、長尺熱プラズマ固有の変動現象・時空間特性の解明すること、およびプラズマと処理対象物との間に生じる非平衡現象を解明することが本研究の核心をなす「問い」である。

Table 1 長尺熱プラズマ流発生の概念図

概念図	温度勾配		プラズマ長
	x方向	z方向	
(1) 	大	大	制約あり 供給電力依存
(2) 	大	小	制約なし
本申請 革新手法 	小	小	制約なし

2. 研究の目的

ダイオード整流を用いた多電極交流アークを発生させることで、革新的な長尺熱プラズマ場を構築し、基板表面の大面積処理技術を確立することを目的とする。そこで本研究では、数百 A 級の大電流をミリ秒オーダーのダイオード整流により、新規な交流アーク発生手法を確立し、メートル級の長尺(1次元)熱プラズマ流を得ることで、高速大面積処理(窒化による硬化処理、酸化による絶縁処理、ナノ結晶構造の堆積処理)技術を確立する。この目標達成のために、プラズマ中の基礎過程を可視化する計測システムを活用し、プラズマ変動現象およびプラズマ・処理対象物間の非平衡現象を解明する。

3. 研究の方法

本申請課題における独自性は、数百 A のダイオード整流によるメートル級長尺熱プラズマ場の時空間特性を解明・制御する点にある。特に、熱(平衡)プラズマをこれまでにない長尺で発生させ、表面上を掃引することで、数～数百ミリ秒オーダーでの線状プラズマ-基板間での相互作用が生じる。(i)急激な温度勾配が生じるプラズマ-基板間における「熱プラズマ中の非平衡性」、(ii)急加熱・急冷により生じる基板材料の非平衡性、(iii)ナノ結晶の原料の熱プラズマ中での非平衡性といった、熱プラズマ中の様々な非平衡現象を取り扱う点が、学術的に独自の点である。

線状の長尺プラズマ流を確立することは、これまでに熱プラズマでは不可能とされてきた大面積の高速処理が可能となることを意味する。例えば、複数の線状プラズマを並列に並べ、それぞれに異なるプ

ラズマガス種を用いることで、熱処理、酸化(あるいは窒化、炭化)処理、ナノ結晶体積処理などの複合化処理が可能となる。また、長尺プラズマの掃引速度のみを変化させることで、その急加熱特性、急冷特性を変化させることも可能となる。これは、従来の熱プラズマ手法では実現できなかった処理であり、様々な発展的・革新的創造性を有する。

(1) ダイオード整流回路および長尺熱プラズマ流発生装置

本実験で用いたダイオード整流多電極交流アーク発生装置の発生原理図を Fig. 1 に示す。本方式では、4本の電極を一区画の構成電極とする。その内訳は、交流電極 A、半波整流陽極 B、交流電極 C(Aの反転)、半波整流陰極 D からなる。つまり、ある時刻 t において A-B 間、C-D 間でそれぞれアーク放電が形成されるとすると、そこから交流半周期ずれたタイミングにおいては、A-B 間、C-D 間はそれぞれ陽極側、陰極側で同相となり、アークは消弧する。一方、B-C 間が陽極-陰極の組合せとなるため、B-C 間では放電する。このような原理で放電を周期的に維持するため (Fig. 2)、電極の区画数を原理上無限に延長することができる点が、本手法の最大点の強みである。

本実験で用いた実験装置概略図を Fig. 3 に示す。電極区画数は二区画とし、端処理として陰極および陽極を両端にそれぞれ設置した。半波整流陽極 B には水冷銅を、それ以外の電極には 2wt% 酸化ランタン添加タングステンをを用いた。各電極におけるアーク電流値を 100~150 A、Ar 流量を 20~70 L/min の範囲で変化させた。以上のような条件下で、大気圧のアーク放電を持続的に発生させることで、装置上部のスリット(幅: 10 mm、長さ 190 mm)から熱プラズマジェットを噴出させた。前方、側方の二方向からの高速度カメラ同期観察を行い、電流・電圧波形とも同期させた。ミリ秒オーダーの変動に着目するため、10,000fps の撮影速度とした。

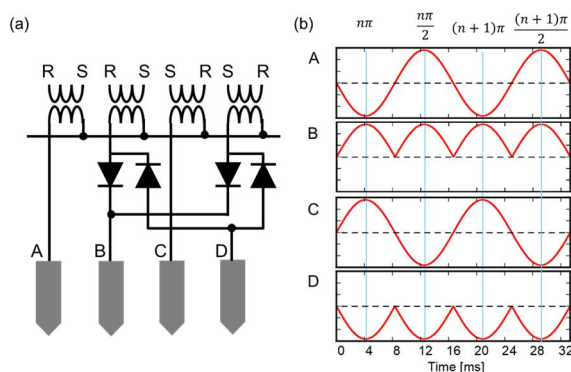


Fig. 1 (a)ダイオード整流多電極交流アークの回路図および(b)理想的な電流波形図。

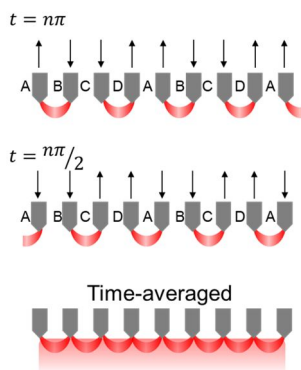


Fig. 2 ダイオード整流多電極交流アークを用いたプレーナー熱プラズマジェットの構想図

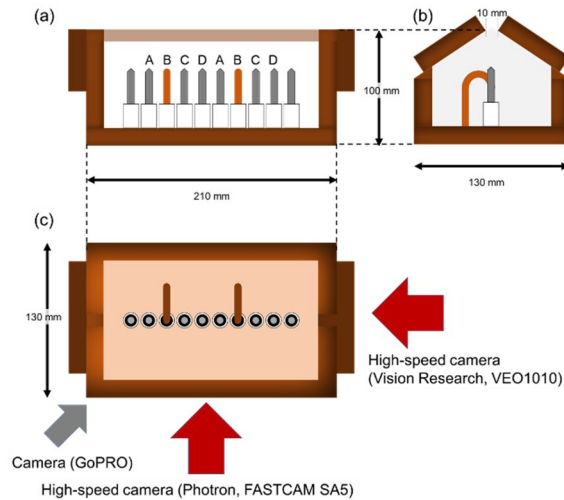


Fig. 3 ダイオード整流多電極交流アークの装置図。(a)正面図,(b)側面図,(c)上面図。

(2) 表面処理の検証実験

アルゴン-酸素プラズマによるシリコン基板の酸化処理を行う。プラズマ変動が及ぼす基板酸化反応への影響を評価するため、基板の各種表面分析を実施する。雰囲気制御型のダイオード整流型交流アークを用いた。電極区画数を2区画、全電極にCu電極を用い、電圧値を120V、水素ガス流量を0.5 L/min、アルゴンガスの流量を変化させることで水素濃度を20~50%、還元時間を2~20分の範囲で変化させた。原料には WO_3 と Nb_2O_5 を用いた。還元後の試料は粉末X線回折(XRD)および走査型電子顕微鏡(SEM)により評価した。

4. 研究成果

(1) 長尺熱プラズマ流の発生挙動と高速度カメラによる可視化

ダイオード整流多電極交流アークによるプレーナー熱プラズマジェットの発生の様子を Fig. 4 に示す。放電開始初期においては、青白い発光とヒュームが観察されている。これは、アーク点弧開始のために Igniter として用いたアルミニウム線の蒸発による 394.4 nm, 396.2 nm の線スペクトルおよびアルミニウムナノ粒子(ヒューム)の影響であるが、本質的な問題ではない。実際に、5~10 秒後からは青白い発光とヒュームは確認されなくなり、10~20 秒後以降、比較的安定なプラズマジェットが形成される。

安定なプラズマジェットの形成後、高速度カメラで観察を行った。電流値を 150 A、ガス流量 30 L/min とした際のプラズマジェットの高速画像を Fig. 5(a), (b) に示す。プラズマジェット長は 30~40 mm、横幅は 100 mm 以上のプレーナー熱プラズマジェットの発生が確認できた。取得した高速画像を解析して得られたプラズマジェットの存在確率分布を Fig. 5(c) に示す。交流 10 周期以上の画像を積算して解析しており、常にプラズマジェットが存在している場合は 1、存在していない場合は 0 を示す。半径方向の中心から ± 30 mm 程度の範囲では、高い存在確率値が比較的均一に得られている。また、この中心領域から両端方向に向かうにつれて、存在確率値が減衰している。これは、半周期しか放電しない端電極の影響が出ていることを意味する。しかし、原理上無限に水平方向に拡張できる点が、本プラズマ発生手法の特長であるため、端効果については重要な懸念事項ではない。

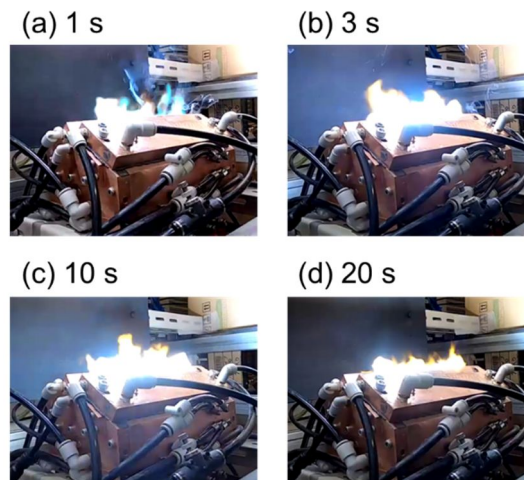


Fig. 4 ダイオード整流多電極交流アークを用いたプレーナー熱プラズマジェットの発生

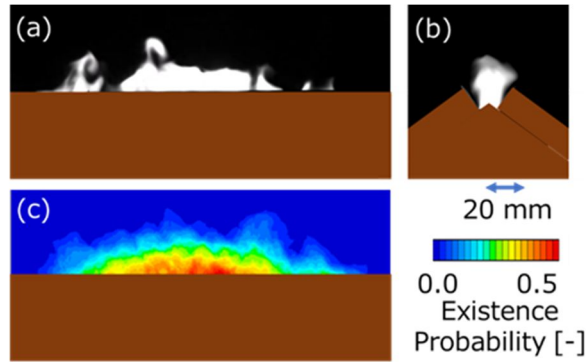


Fig. 5 高速度カメラスナップショット(a)正面画像, (b)側面画像および
(c)プラズマジェットが存在確率分布

(2) 長尺熱プラズマ流の発生挙動と高速度カメラによる可視化

水素濃度 50%, 還元時間を 2~20 分の範囲で変化させ, WO_3 の水素還元を行った. 生成物のモル分率を XRD 分析結果から計算し, 酸素欠損型である $\text{WO}_{2.92}$ と $\text{WO}_{2.72}$ のモル分率を Fig. 6 に示す. 還元時間の増加に従って酸素欠損型金属酸化物の割合が増加し, 還元時間 20 分の条件では, 平均で 44mol% に達した. 熱力学的検討より, 水素原子および水素分子による還元はいずれも自発的に進行することがわかっているため, どちらも還元に寄与していると示唆される.

Fig. 7 に WO_3 原料および還元時間 2 分, 20 分における生成物の断面 SEM 画像を示す. 原料粒子の断面は, 粒子内部にひびが見られるが, 細かい隙間は見られない. 一方, 2 分還元した生成物は, 繊維状の結晶が見られた. $\text{WO}_{2.72}$ は異方性成長挙動を示すことが報告されていることから, SEM 画像からも還元時間 2 分で $\text{WO}_{2.72}$ が生成されていることが確認された. さらに, 20 分還元後の試料には還元によって生じた隙間の割合の増加がみられた. WO_3 の還元の過程で生成する WO_2 と W は小さい粒子の集合であることが報告されており, 還元時間 20 分では WO_2 と W まで還元が進行している部分もあることが確認された.

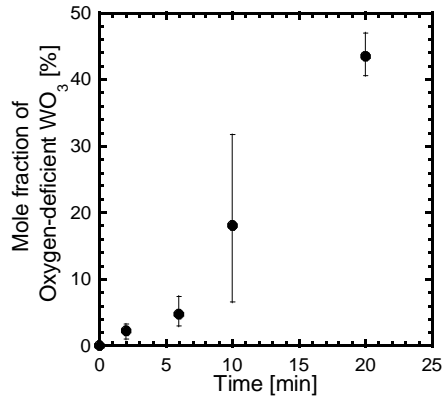


Fig. 6 酸素欠損型 WO_3 のモル分率への処理時間依存性

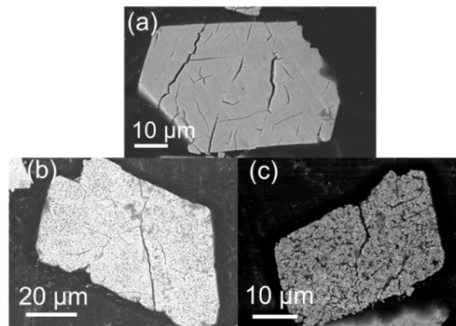


Fig. 7 長尺プラズマ処理前後の酸化タングステンの断面 SEM 画像.

(a)原料, (b)処理後 2 分, (c)処理後 20 分

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Manabu Tanaka, Yuki Saito, Hiroki Maruyama, and Takayuki Watanabe	4. 巻 59
2. 論文標題 High-Speed Visualization of Metal Oxide Precursor in Multiphase AC Arc during Nanoparticle Formation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SHHC08-1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/ab7e15	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Manabu Tanaka, Yuki Saito, Yushi Nawata, and Takayuki Watanabe	4. 巻 14
2. 論文標題 High-Speed Visualization of Metal Oxide Precursor in Thermal Plasma Flow during Nanoparticle Formation	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Fluids Science and Engineering	6. 最初と最後の頁 jfst0024-1-9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1299/jfst.2019jfst0024	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takafumi Okuma, Hiroki Maruyama, Tomoyuki Imatsuji, Taro Hashizume, Hisao Nagai, Takeshi Koiwasaki, Manabu Tanaka, Takayuki Watanabe	4. 巻 53
2. 論文標題 Investigation of Arc Behavior and Temperature Distribution Corresponding to Electrode and Phase Configurations in a Multiphase AC Arc	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Chemical Engineering of JAPAN	6. 最初と最後の頁 509-515
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1252/jcej.20we001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計16件（うち招待講演 4件／うち国際学会 10件）

1. 発表者名 Manabu Tanaka, Takafumi Okuma, Takayuki Watanabe, and Tsugio Matsuura, Juan-Pablo Trelles, and Masaya Shigeta
2. 発表標題 Development of diode-rectified AC arc system for high-throughput process
3. 学会等名 ISPIasma2022/IC-PLANTS2022（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Manabu Tanaka, Takafumi Okuma, Takayuki Watanabe, and Tsugio Matsuura
2. 発表標題 Planar Thermal Plasma Jet for Silicon Surface Treatment
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Manabu Tanaka, Takafumi Okuma, Takayuki Watanabe, Tsugio Matsuura, Juan-Pablo Trelles, and Masaya Shigeta
2. 発表標題 Fluctuation Phenomena in Planar Thermal Plasma Jet by Diode-Rectified AC Arc Discharge
3. 学会等名 The 74th Annual Gaseous Electronics Conference (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Chang Junjie, Yuki Takemoto, Takuya Suenaga, Aika Tamae, Manabu Tanaka, Takayuki Watanabe, Tsugio Matsuura, Tsuguo Ueda, Hideki Touzaki, Juan-Pablo Trelles, and Masaya Shigeta
2. 発表標題 High-Speed Visualization of Temperature Fluctuation of Dode-Rectified Multiphase AC Arc near the Electrodes
3. 学会等名 The 74th Annual Gaseous Electronics Conference (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Manabu Tanaka, Takuya Suenaga, Aika Tamae, Takafumi Okuma, Takayuki Watanabe, Tsugio Matsuura, Juan-Pablo Trelles, Masaya Shigeta
2. 発表標題 Planar Thermal Plasma Jet in Dode-Rectified AC Arc System under Atmospheric Pressure
3. 学会等名 5th Asia-Pacific Conference on Plasma Physics (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Manabu Tanaka, Hiroki Maruyama, Yuta Kugimiya, Takuya Suenaga, Takayuki Watanabe, Tsuguo Ueda, and Hideki Tousaki
2. 発表標題 Fluctuation Phenomena in Multiphase AC Arc under Nitrogen Atmosphere
3. 学会等名 47th IEEE International Conference on Plasma Sciences (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Manabu Tanaka, Yuta Kugimiya, Takayuki Watanabe, and Tsugio Matsuura
2. 発表標題 Planer Thermal Plasma Jet in Diode-Rectified AC Arc System under Atmospheric Pressure
3. 学会等名 47th IEEE International Conference on Plasma Sciences (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 田中学, 釘宮悠太, 末永拓也, 渡辺隆行, 松浦次雄
2. 発表標題 ダイオード整流型交流アークを用いたプレーナー型プラズマジェットの発生
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田中学, 釘宮悠太, 末永拓也, 渡辺隆行, 松浦次雄, 上田紹央, 東崎英樹
2. 発表標題 電極消耗低減化に向けたダイオード整流型多相交流アークにおける変動現象
3. 学会等名 第33回プラズマ材料科学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Manabu Tanaka, Yuki Saito, and Takayuki Watanabe
2. 発表標題 High-Speed Visualization of Metal Oxide Precursor in Thermal Plasma during Nanoparticle Synthesis Process
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Manabu Tanaka, Tsugio Matsuura, Yuta Kugimiya, Hiroki Maruyama, and Takayuki Watanabe
2. 発表標題 Generation of Innovative Thermal Plasma with Diode-Rectification Technique
3. 学会等名 3rd Asia-Pacific Conference on Plasma Physics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Manabu Tanaka, Hiroki Maruyama, Yuta Kugimiya, Takayuki Watanabe, and Tsugio Matsuura
2. 発表標題 Investigation of Temperature Fluctuation of Diode-Rectified Multiphase AC Arc by High-Speed Visualization
3. 学会等名 18th Asia-Pacific Confederation of Chemical Engineering (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田中学, 末永拓也, 渡辺隆行, 松浦次雄
2. 発表標題 ダイオード整流型交流アークを用いた プレーナー熱プラズマジェットの変動解析
3. 学会等名 化学工学会第52回秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田中学, 玉江藍花, 末永拓也, 竹中凌, 熊井絵理, 渡辺隆行, 松浦次雄, 茂田正哉, Juan Pablo Trelles
2. 発表標題 プレーナー熱プラズマジェットの基本現象解明に基づく高速表面処理
3. 学会等名 第37回九州・山口プラズマ研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田中学, 釘宮悠太, 丸山大貴, 渡辺隆行, 松浦次雄
2. 発表標題 ダイオード整流型交流アークによる長尺熱プラズマ発生手法の構築
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 田中学, 大熊崇文, 渡辺隆行, 松浦次雄, Juan-Pablo Trelles, 茂田正哉
2. 発表標題 ダイオード整流型交流アークを用いたプレーナー熱プラズマジェットの変動現象の可視化
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>研究室ホームページ http://www.chem-eng.kyushu-u.ac.jp/lab5/index.html 研究者の紹介ページ https://sentan-q.kyushu-u.ac.jp/en/movies/#a_TANAKA-M</p>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	渡辺 隆行 (Watanabe Takayuki) (40191770)	九州大学・工学研究院・教授 (17102)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
米国	University of Massachusetts Lowell		