

令和 4 年 5 月 1 日現在

機関番号：12401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01418

研究課題名(和文)放電活性種の生成機構解明に向けた超高性能な電子密度可視化技術の創出

研究課題名(英文) Electron density visualization technique for elucidation of production mechanism 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) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：ストリーマ放電をはじめとした大気圧プラズマによって生成される活性種の応用技術は、環境・エネルギー・医療・農業を筆頭に、幅広い分野への応用が期待されている。しかし、その生成機構は未解明である。この一因としては、大気圧プラズマの空間的再現性が低いために、活性種の生成源である電子の密度が現状技術では測定できないことが挙げられる。さらに電子密度が低いことも、測定を困難にしている。そこで本研究では、これまで測定不能であったフェーズにあるストリーマ放電の2次元電子密度分布が単一測定で可視化できる高感度なセンサを開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

大気圧下で生成された放電プラズマの内部では、反応性に富んだ化学活性種が効率よく産出される。化学活性種の応用技術は、燃焼技術や環境汚染物質の浄化技術、特定疾患の選択的治療技術などに代表されるよう多岐にわたるが、その生成機構には未解明な部分が多く存在する。これは、大気圧プラズマの挙動が非常に難解であるために、化学活性種の生成源である電子の密度が現状技術では測定できないことが一因として挙げられる。さらに電子密度が低いことも、測定を困難にしている。そこで本研究では、大気圧プラズマ内の2次元電子密度分布が高感度かつシングルショットで撮影できる計測ツールを開発した。

研究成果の概要(英文)：The reactive species generated in atmospheric-pressure nonthermal plasma, e.g. a streamer discharge, has been expected to be utilized in wide range application fields, such as environmental pollution control, plasma-assisted ignition and combustion, plasma medicine, and plasma agriculture. However, the production mechanism of the reactive species is not fully understood. This difficulty is partially caused by the fact that the electron density determination using conventional measurement systems has been extremely difficult due to spatial non-reproducibility of the atmospheric-pressure nonthermal plasma and the low electron density in the plasma. Here, we developed a highly sensitive, single-shot electron density sensor capable of visualizing a two-dimensional electron density distribution over the streamer discharge in an unmeasurable phase.

研究分野：高電圧工学

キーワード：大気圧プラズマ 電子密度 化学活性種

1. 研究開始当初の背景

大気圧下で生成された放電プラズマの内部では、電界で加速された電子が雰囲気中の分子と衝突することで、O, N, OH, O₃, O₂などの「化学活性種」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く、反応相手に革新的な機能や特性を発現させることができる。そのため、環境・エネルギー・医療・農業を筆頭に、幅広い分野への応用が期待されている。このように電子は化学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、放電プラズマ内に電子がどれくらいの濃度で存在するのかを明らかにする必要があります。すなわち電子の空間数密度を詳細測定する必要があります。

放電プラズマ内部の電子密度を詳しく測定するために、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、単一測定で空間0次元、もしくは空間1次元の電子密度を測定する局所計測型であるため、これまでの電子密度測定ではほぼ、空間的再現性の良いプラズマが測定対象とされてきた。こうした従来の局所型センサでは大気圧放電プラズマの一種であるストリーマ放電のような、空間的再現性の低い現象に対しては、電子密度測定を行うことが非常に困難である。こうした事情からストリーマ放電に対しては、活性種の生成源である電子が時空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。再現性の低い放電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ります。

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。筆者らはこのセンサをストリーマ放電の初期フェーズ(=プライマリー)に適用することで、世界で初めてストリーマ放電内の電子密度を測定することに成功した。しかし測定に成功したのは電子密度の高い初期フェーズのみであり、それに後続するフェーズ(=セカンダリー)では電子密度が低く、測定を行うことは困難であった。

2. 研究の目的

そこで本研究の目的は、著者らが独自に開発したセンサをさらに高感度化することにより、セカンダリーストリーマ放電内の2次元電子密度分布が測定できるセンサを開発することである。

3. 研究の方法

著者らが独自に開発したセンサはレーザ波面センサの一であり、シャックハルトマン型レーザ波面測定装置と呼ばれている。まずこの基本原理を以下に示す。レーザ光を拡大光学系で上げたのち、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}]、 β は $\beta = e^2 / 8\pi^2 c^2 m_e \epsilon_0 = 4.47 \times 10^{-16} m$ 、 λ 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_1 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, λ の 3 変数関数となる。そこで λ_1, λ_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。

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

ここでは式(2)中の x と y をそれぞれ x と y 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。しかしこのシャックハルトマン方式をストリーマ放電に適用した際には、先述の通り、測定は電子密度の高いプライマリーにおいてのみ可能であった。電子密度の低いセカンダリーにおいても測定を実現するためには、更なる高感度化が必須となる。そこで、より焦点距離の長いマイクロレンズアレイを開発する、という指針もあり得るが、これ以上焦点距離を長くすると回折限界の制約により、隣り合う輝点同士が重なり合ってしまう、輝点位置の算定精度が低下し、正確な電子密度を得ることができなくなる。

そこで本研究ではピンホールアレイに起因したタルボ効果という、新たな現象を採用したレーザ波面センサを開発することとした。タルボ効果とは、格子などの周期的構造を持つ物体に平面波を透過させると、特定の距離だけ離れた位置に物体そのものの自己像が形成される現象である。そして、この特定距離は周期的に現れる。例えば、円形のピンホールをピッチ $P=300 \mu\text{m}$ の間隔でグリッド状に配置したピンホールアレイに対し、波長 784 nm のレーザを入射させると、ピンホールアレイから $230, 460, 690, 920, \dots \text{ mm}$ だけ離れた遠い位置でも、グリッド状のスポット列が形成される。タルボ型レーザ波面測定装置では、マイクロレンズをピンホールアレイに交換するだけで、図 4 に示すよう、シャックハルトマン方式と同じ方法により電子密度が測定できる。つまり、ピンホールアレイに起因したタルボ効果を新規適用することで、レンズアレイが抱えていた回折限界の制約を突破し、擬似的な焦点距離を更新(=さらに高感度化)することができる。

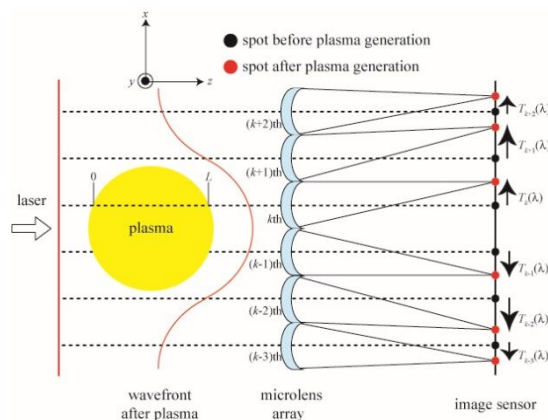


図 1 シャックハルトマン型レーザ波面測定装置の基本原理

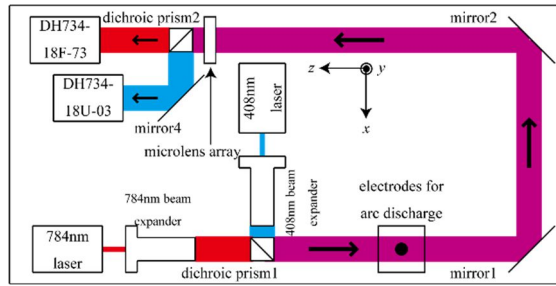


図2 シャックハルトマン型レーザ波面測定装置の構成

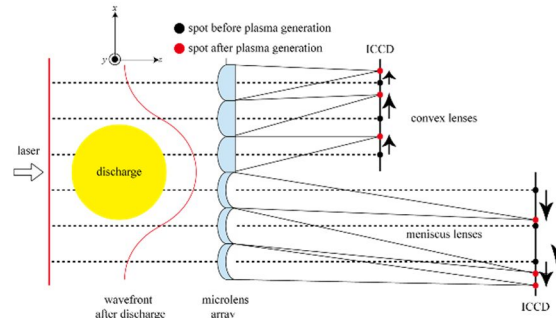


図3 メニスカス型マイクロレンズアレイによる測定感度の改善

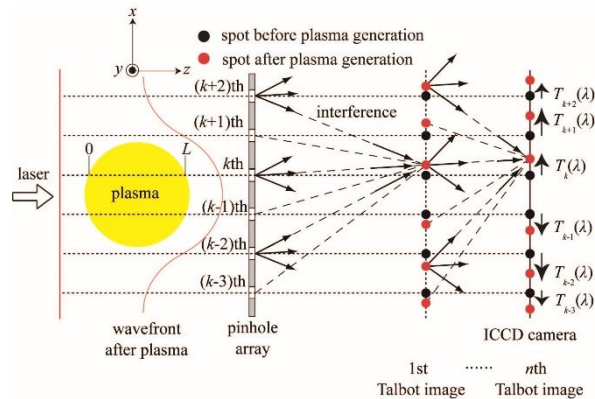


図4 タルボ効果の採用による測定感度の更なる改善

4. 研究成果

本研究で測定対象としているストリーマ放電内部の屈折率分布をレンズにより模擬し、測定感度の検証を行った結果を図5に示す。同図内における直線の勾配が測定感度を示しており、予想通り擬似的な焦点距離に比例して、直線の勾配が大きくなっている。レーザ断面の端部効果から、無限遠まで擬似的焦点距離を伸ばすことは不可能であったが、実現可能な擬似的焦点距離は1.8m(=第8タルボ距離)であった。これは、従来型センサの焦点距離である~0.1mよりも1桁程度長い。よって、タルボ効果を採用することで、測定感度を1桁程度改善することが出来た。

このタルボ方式のセンサを使って、セカンダリーストリーマの2次元電子密度分布を測定した結果を図6に示す。図6(a)はセカンダリーストリーマ進展時 ($t=22$ ns)、図6(b)はセカンダリーストリーマ到達時 ($t=57$ ns)における測定結果である。タルボ方式とは全く測定原理の異なるトムソン散乱法を同様のセカンダリーストリーマに適用したところ、両者は測定精度の範囲内で良好な一致を示しており、本センサによる測定結果の妥当性を実証することが出来た。

ギャップ間の下部における電子密度の経時変化を図7に示す。同図内ではストリーマ放電の進展が開始する針電極先端を $Y=0$ mm とした。 $Y=10.6$ mm に着目すると、セカンダリーストリーマが未到達の $t=22$ ns では電子密度は一時的に $3\text{--}5 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ まで落ち込むが、セカンダリーストリーマ通過時の $t=32$ ns には $1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ まで電子密度は回復する。これはセカンダリーストリーマ内部で電離が起きていることを示唆しており、セカンダリーの内部では電離が生じていないと報告してきたこれまでの数値シミュレーションに、修正を迫る結果である。電離が起きているとすると、セカンダリーストリーマ内部における実際の基礎物理量や活性種の種類・生成量は、数値シミュレーションによる従来の報告例と異なる可能性がある。その後、電子密度は緩やかな減少を示し、ギャップ橋絡となる $t=57$ ns 以降は約 10 ns の時定数で減衰していた。この時定数は、酸素分子と電子との2体付着反応による減衰時定数と良好に一致する。また本研

究では、本電子密度センサの測定感度をさらに改善すべく、高解像度の撮像系を構築した。具体的には、ピクセルサイズの小さな高精細型 CCD を搭載し、さらに倍率 5 の対物レンズを使用することで、10 倍の高解像度撮影を試みた。対物レンズの焦点位置調整機構に対して改良を重ねることで、集光点へのフォーカスを実現し 10 倍の解像度を達成した。これにより、タルボ方式への変更結果と合わせて、2 桁程度の高感度化を実現することが出来た。

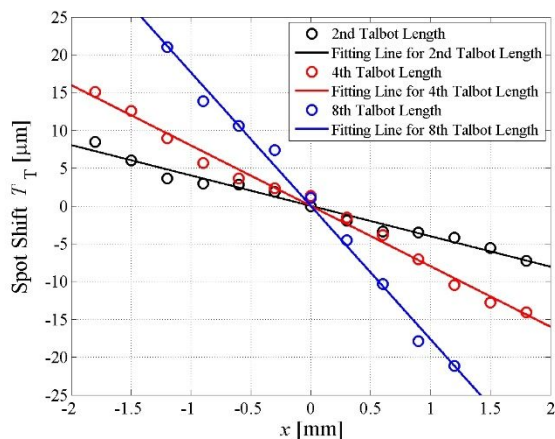
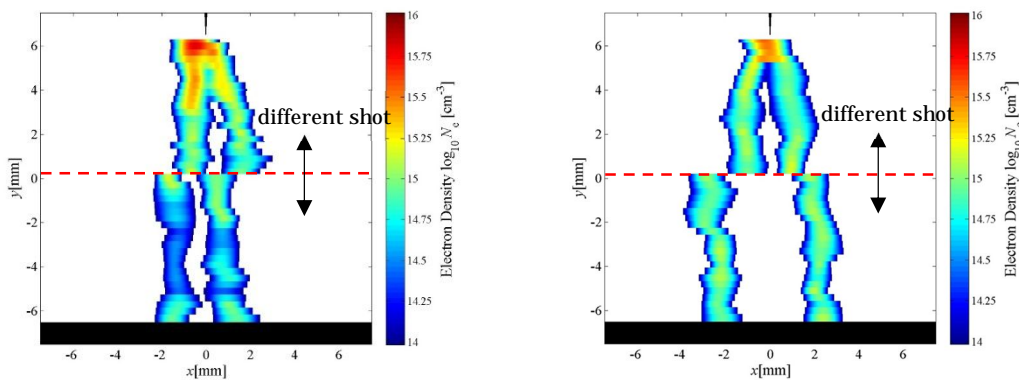


図 5 タルボ効果による電子密度センサの高感度化



(a) 進展時 ($t=22\text{ns}$) (b) 到達時 ($t=57\text{ns}$)

図 6 セカンダリーストリーマの 2 次元電子密度分布

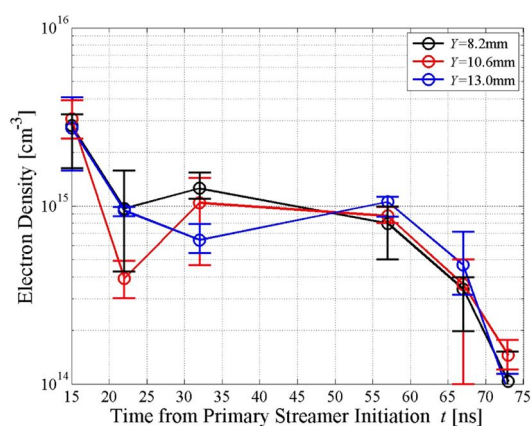


図 7 セカンダリーストリーマ内部における電子密度の経時変化

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5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 Inada Yuki, Komuro Atsushi, Ono Ryo, Kumada Akiko, Hidaka Kunihiko, Maeyama Mitsuaki	4. 巻 52
2. 論文標題 Two-dimensional electron density measurement of pulsed positive secondary streamer discharge in atmospheric-pressure air	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics D: Applied Physics	6. 最初と最後の頁 185204 ~ 185204
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6463/ab0725	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 Inada Y., Kamiya T., Nagai H., Matsuoka S., Kumada A., Ikeda H., Hidaka K.	4. 巻 89
2. 論文標題 Talbot interferometry for imaging two-dimensional electron density distribution over discharge plasma with higher sensitivity	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 123112 ~ 123112
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5049199	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 Tomita Kentaro, Inada Yuki, Komuro Atsushi, Zhang Xiang, Uchino Kiichiro, Ono Ryo	4. 巻 53
2. 論文標題 Measurement of electron velocity distribution function in a pulsed positive streamer discharge in atmospheric-pressure air	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics D: Applied Physics	6. 最初と最後の頁 08LT01 ~ 08LT01
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6463/ab58b4	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 INADA Yuki, FUJINO Takayasu	4. 巻 140
2. 論文標題 Recent Study on Interruption Phenomenon of High Current Arc	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of The Institute of Electrical Engineers of Japan	6. 最初と最後の頁 354 ~ 357
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1541/ieejjournal.140.354	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 INADA Yuki	4. 巻 140
2. 論文標題 Overview and Prospect	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of The Institute of Electrical Engineers of Japan	6. 最初と最後の頁 366 ~ 367
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1541/ieejjournal.140.366	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11件 (うち招待講演 7件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 Y. Inada
2. 発表標題 Two-Dimensional Electron Density Measurement over Streamer Discharge in Atmospheric-Pressure Air Using Laser Wavefront Sensor
3. 学会等名 13th Frontiers in Low-Temperature Plasma Diagnostics & 1st Frontiers in Low-Temperature Plasma Simulations (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 稲田優貴, 小野亮, 小室淳史, 熊田亜紀子, 日高邦彦, 前山光明
2. 発表標題 空間制御された大気圧空気中正極性ストリーマ放電の2次元電子密度分布測定
3. 学会等名 静電気学会全国大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Inada, A. Komuro, R. Ono, A. Kumada, K. Hidaka, M. Maeyama
2. 発表標題 Comparison of Two-Dimensional Electron Density Distribution between Positive Primary and Secondary Streamer Discharge in Atmospheric-Pressure Air
3. 学会等名 24th International Symposium on Plasma Chemistry (ISPC 24) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Inada
2. 発表標題 Two-dimensional electron density measurement of streamer discharge in atmospheric-pressure air
3. 学会等名 XXXIV International Conference on Phenomena in Ionized Gases (XXXIV ICPIG) & 10th International Conference on Reactive Plasmas (ICRP-10) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 稲田 優貴
2. 発表標題 プラズマの基礎と計測技術
3. 学会等名 第30回 プラズマエレクトロニクス講習会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 稲田優貴, 塩田達俊, 中村亮介, 小野亮, 前山光明
2. 発表標題 空間制御された大気圧空気中正極性2次ストリーマ放電に対する電子密度、換算電界、発光強度の包括的測定
3. 学会等名 SPP-38/SPSM33
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 稲田優貴
2. 発表標題 プラズマ診断・計測
3. 学会等名 応用物理学会プラズマエレクトロニクス分科会プラズマエレクトロニクスインキュベーションホール (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Inada, T. Shioda, R. Nakamura, M. Maeyama, A. Kumada and R. Ono
2. 発表標題 High Spatial Resolution Measurement of Electric Field in Positive Secondary Streamer Discharge under Atmospheric-Pressure Air
3. 学会等名 The 74th Annual Gaseous Electronics Conference (GEC2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yuki Inada
2. 発表標題 Fundamental-Experimental: Visualization Technique of Atmospheric Pressure Plasmas
3. 学会等名 38th JSPF Annual Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 稲田優貴, 大西亘, 中野裕介
2. 発表標題 研究テーマの創出
3. 学会等名 電気学会基礎・材料・共通部門 若手チャプタ企画若手研究者向けオンライン講演会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 稲田優貴
2. 発表標題 レーザを用いたプラズマ診断技術の開発-電子密度、乱流、電界-
3. 学会等名 2022年度第1回静電気学会研究会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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	前山 光明 (Maeyama Mitsuaki) (00196875)	埼玉大学・理工学研究科・教授 (12401)	

	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 協力者	小野 亮 (Ono Ryo) (90323443)	東京大学・大学院新領域創成科学研究科・教授 (12601)	

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
---------	---------