

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 6月 5日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2009～2011

課題番号：21540509

研究課題名（和文）

大気圧プラズマ密度計測の高精度化

研究課題名（英文）

High Precision Measurement of Plasma Density in Atmospheric Pressure Plasma

研究代表者

豊田 浩孝 (TOYODA HIROTAKA)

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：70207653

研究成果の概要（和文）：大気圧プラズマは、さまざまな分野への応用が進められているが、それにともないプラズマ密度の高精度な計測手法が求められている。本研究代表者らは、大気圧プラズマの電子密度測定に一般に用いられるシュタルク拡がりに着目し、シュタルク拡がりの時空間分解測定からマイクロ波プラズマ中におけるプラズマ密度および放電印加電界の時間変化を実験的に求め、より高精度なプラズマ密度測定法の指針を得ることができた。

研究成果の概要（英文）：Atmospheric pressure plasma is used in various application areas and this trend requires diagnostic technique that enables precise plasma density measurement. Focusing on Stark broadening, we have successfully measured spatiotemporal variation of the plasma density as well as external electric field in atmospheric pressure microwave plasma and have obtained a guideline to measure plasma density with high accuracy.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2010年度	800,000	240,000	1,040,000
2011年度	500,000	150,000	650,000
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：プラズマ工学

科研費の分科・細目：プラズマ科学・プラズマ科学

キーワード：シュタルク効果・大気圧プラズマ・電界計測・電子密度計測・発光分光

## 1. 研究開始当初の背景

大気圧プラズマは、真空システムを用いないなど、従来のプラズマ源にない利点を有しており、表面処理などさまざまな分野への応用が進められ、精力的な研究がなされている。本プラズマのプラズマ密度等の基礎的なプラズマ特性評価は応用を目指す際にきわめて重要であり、高精度なプラズマ計測手法が求められている。大気圧プラズマのプラズマ密度測定法としては一般にシュタルク拡がりから密度を算出する手法が用いられているが、我々はこれまでの研究から本測定法には、ある問題点があることを見出してきた。以下に、シュタルク拡がりによるプラズマ密

度測定の問題点と、これまでに我々が明らかにしてきた問題点を示す。

## &lt;シュタルク拡がりによるプラズマ密度測定の問題点&gt;

水素原子発光線の線幅がプラズマ密度とともに広がることを用いてプラズマ密度測定をおこなう手法で、現在広く用いられている。以下に原理の概要を示す。

(1) 外部電界による水素原子 H $\beta$ 線の分裂(シュタルク分裂)

一般に、原子に外部電界を印加すると原子スペクトル線の縮退が解け多数のスペクトルに分裂する。特に水素原子は比較的弱い電界でも計測可能なシュタルク分裂を起こす。

## (2) 荷電粒子による水素原子スペクトル線幅の変化

一方、荷電粒子の集合体であるプラズマは、巨視的には内部電界は存在しないが、微視的には荷電粒子による電界が存在している。荷電粒子と水素原子の衝突においては、水素原子は瞬間的に荷電粒子による電界を感じることであり、その際にスペクトルが瞬間的に分裂する。時間的な電界の変化を平均化すると水素原子スペクトルはスペクトル幅が広がったようにみられ、またプラズマ密度の増加とともに、水素原子が感じる電界はさらに強く線幅はさらに広がる。これを用いるとスペクトル線幅の広がりからプラズマ密度の評価が可能となる。すなわち、シュタルク広がりによるプラズマ密度測定においては、根本には水素原子近傍の電界強度が重要な役割を果たす。

### <プラズマ密度時分解計測における課題>

大気圧プラズマを安定に生成するためには、放電のアーク遷移を避けることが重要であり、そのため一般には放電をパルス化させている。本研究代表者はこれまでマイクロ波液中大気圧プラズマの研究をおこなっており、シュタルク広がりを用いたプラズマ密度の時分解測定を試みている。この結果、発光強度は放電開始とともに増加するに係らず、プラズマ密度は放電直後に高い密度を示しその後減少するという結果となった。しかしこのようなプラズマ密度の時間変化挙動は明らかに不自然であり、本測定法に何らかの問題が存在することを示している。

本研究代表者はこのようなシュタルク広がりを用いたプラズマ密度測定の問題点について検討をおこなった。そしてこのような不自然な結果が得られる原因が、シュタルク広がりを用いた大気圧プラズマのプラズマ密度測定において放電のために印加する外部電界の影響によりスペクトルが広がるという要因を考慮していないためである、という結論に至った。すなわち、実際に測定されるスペクトル広がりには単にプラズマ中の荷電粒子に起因するものだけでなく、外部電界に起因する広がりとの重ね合わせによるものである。放電初期においてプラズマ密度はまだ十分に高い値でないため、放電のために印加する外部電界がプラズマ内部に侵入しており、これによるH $\beta$ 線のシュタルク分裂がスペクトルを広げる。しかし放電開始後の時間発展とともにプラズマによる遮蔽効果により外部電界によるスペクトル広がりが減少し、一方で荷電粒子による広がりが増大するというものである。我々の予備的な計算からも放電初期の外部電界はスペクトルの広がりに非常に大きな影響を及ぼすことがわかっており、放電開始後の時間発展においてこれらの成分によるスペクトル広がりの大

小関係が変化して前述のような不自然なプラズマ密度時間変化の結果が得られたものと考えられる。なお、このことは放電初期におけるシュタルク広がりを用いたプラズマ密度の不正確さだけでなく、定常状態においてもプラズマ密度や外部電界強度によっては測定結果が不正確になることを示唆しており、本問題の解決はシュタルク広がりを用いた大気圧プラズマの高精度な測定をおこなう際に極めて重要な課題であるといえる。

## 2. 研究の目的

このような背景から本研究では以下の2つを目的に掲げて研究をおこなった。

- (1)シュタルク広がりを用いた大気圧プラズマ密度測定における、荷電粒子による広がり成分と外部電界による広がり成分の実験的手法による分離・評価。
- (2)上記の分離結果を踏まえた、一般利用可能な高精度なプラズマ密度測定法の指針を得る。

## 3. 研究の方法

図1に実験装置の概略を示す。本研究の対象となるプラズマとして、マイクロ波大気圧プラズマを用いた。プラズマは導波管端部に設置したスロットアンテナ間で生成する。微量のH $_2$ を添加したArガスを導波管内に導入し、2.45GHzパルスマイクロ波(パルス幅70 $\mu$ s, 繰返周波数10kHz, ピーク電力150W)によりArプラズマを生成するとともに添加H $_2$ からのH $\beta$ 発光よりシュタルク分光測定を行った。スロットアンテナのギャップは0.2~0.8mmとし、プラズマ空間分布を評価するために顕微鏡を通して発光を分光器に導き、ICCD検出器により発光スペクトルの時空間分解測定を行った。またマイクロ波電界によるH $\beta$ スペクトル分裂は電界方向に依存し

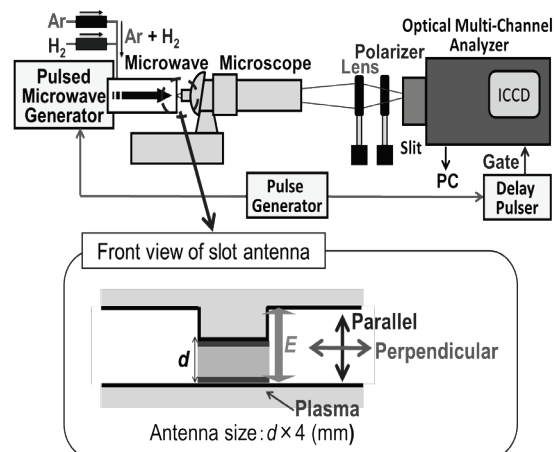


図1 実験装置概略図

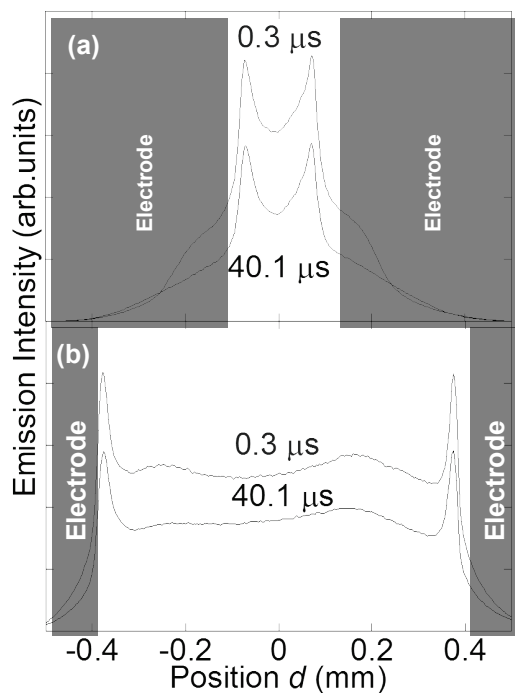


図2 スロット幅(a) 0.2 mm および (b) 0.8 mm の発光強度分布。時刻は放電開始後 0.3 および 40 $\mu$ s.

て分裂幅が異なることから、プラズマ一分光器間に偏光板を設けマイクロ波電界と垂直および平行方向の  $H_{\beta}$  偏波成分のスペクトルをそれぞれ測定することにより、電界評価をおこなった。

#### 4. 研究成果

##### (1) 発光強度の時空間分解測定

マイクロ波電力投入後のプラズマ挙動を調べるため、ICCD 検出器と分光器を組み合わせ

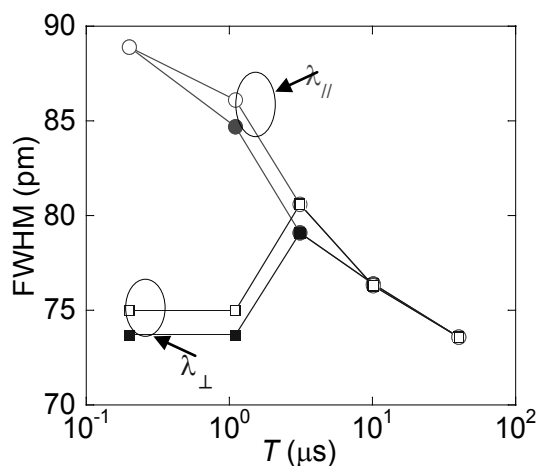


図3  $H_{\beta}$  線幅の時間変化

ることにより、スロットを横切る方向に対して発光強度の時空間変化を測定した。図2にスロット幅 0.2 mm および 0.8 mm における放電開始直後 (0.3  $\mu$ s) および 40  $\mu$ s 後の発光強度空間分布を示す。放電開始直後において強い発光強度が 40  $\mu$ s 後には減少していることがわかり、放電開始直後における強い発光が確認される。また、スロット幅に関わらず電極近傍に発光強度のピークが見られ、スロット近傍における電界集中が示唆される。

##### (2) 電界強度およびプラズマ密度測定

放電開始後のプラズマ密度および電界強度の時間変化を調べるため、 $H_{\beta}$  発光スペクトルの各々の偏波の線幅の時分解測定をおこなった。図3にその結果を示す。図中  $\lambda_{||}$  および  $\lambda_{\perp}$  はそれぞれマイクロ波電界に対して平行および垂直方向偏波の線幅を示しており、放電開始直後から 0.3  $\mu$ s までにおいて偏波成分による明確な線幅の違いが確認される。また、時刻の経過とともに線幅の違いはなくなっており、放電とともに電界強度が弱くなっていることを示唆している。なお、図中の  $\blacksquare$  および  $\square$  はそれぞれ下側スロットおよび上側スロット近傍での測定結果であり、どちらの電極においてもほぼ同じ結果が得られており放電の対称性が示される。

次にこの結果から電界強度を求めるため、 $H_{\beta}$  線プロファイルの計算を行った。計算においては、装置線幅、ドップラー拡がり、衝突拡がり、Van der Waals 拡がりを考慮し、実験で用いる装置線幅をもとに、さまざまなローレンツ線幅および電界強度に対して平行および垂直偏光スペクトル線幅の変化を計算した。その計算結果を図4に示す。平行偏光および垂直偏光で等高線の形状が異

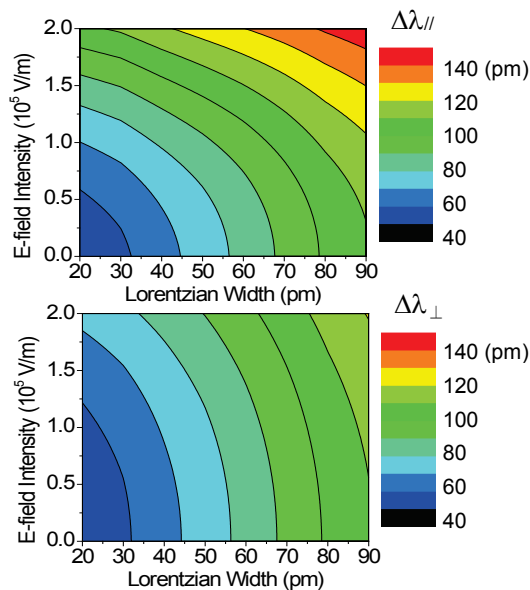


図4 線幅の計算結果

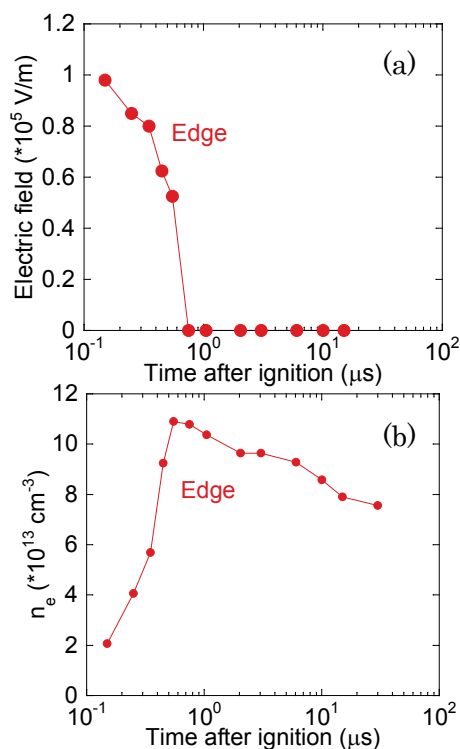


図5 マイクロ波大気圧放電開始後における(a)マイクロ波電界強度、および(b)プラズマ密度の時間変化

なっていることから、実験的に得られた垂直および水平偏光スペクトルの線幅に対応した等高線を双方から選び出し、その交点より電界強度およびローレンツ線幅が得られることがわかる。さらにローレンツ線幅をもとにプラズマ密度の評価も可能となる。このように偏光スペクトル解析からプラズマ密度および電界強度の双方を得る指針が得られた。

このような方法をもとに、電界強度およびプラズマ密度の時間変化を測定した結果を図5に示す。図5(b)においてプラズマ密度は放電開始後0.7μsまでで急激な上昇をみせるが、その後緩やかに減少する。プラズマ密度増加はマイクロ波電力の増加に伴うもの、またプラズマ密度のその後の減少はマイクロ波電界によりプラズマを介してガス温度が増加しプラズマとともにガスが膨張することによるものと考えられる。また、マイクロ波電界強度は10<sup>5</sup>V/cm程度の値を示すが、時間経過とともに電界強度は減少していく。これはプラズマ密度の増加に伴うプラズマ抵抗の減少およびマイクロ波電力の立ち上がり時定数(約1μs)によって決まることが解析より明らかとなった。

### (3) まとめ

以上のように、本研究により従来測定が非常に困難であった時間的に変化する放電初

期のプラズマ密度計測だけでなく、プラズマの成長に伴う電界強度の変化の測定も可能となった。本研究は今後の大気圧プラズマの詳細な解析に大きく役立つ手法を提供したものである。

### 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0件)

[学会発表] (計21件)

- ① 村瀬 卓也, 石島 達夫, 豊田 浩孝, シュタルク分光を用いた大気圧パルスマイクロ波プラズマの時空間分解計測, 第59回応用物理学関係連合講演会, 2012年3月18日, 早稲田大学(東京)
- ② T. Murase, T. Ishijima and H. Toyoda, Temporal-Spatial Measurement of Electric Field Using Stark Spectroscopy in Atmospheric-pressure Pulsed Slot-antenna Microwave Plasma, The 5th International Conference on Plasma-Nanotechnology & Science, 2012年3月12日, 犬山国際観光センター(愛知)
- ③ T. Murase, T. Ishijima and H. Toyoda, Spatio-temporal Variation of Microwave Electric Field in an Atmospheric Pressure Slot-antenna Microwave Plasma, 4th International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications for Nitrides and Nanomaterials, 2012年3月6日, 中部大学(愛知)
- ④ 村瀬 卓也, 石島 達夫, 豊田 浩孝, 時空間発光分光によるスロットアンテナ励起大気圧マイクロ波プラズマの診断, Plasma Conference 2011, 2011年11月22日, 石川音楽堂(石川)
- ⑤ H. Toyoda, T. Murase and T. Ishijima, Influence of microwave electric field on H<sub>β</sub> broadening in atmospheric pressure microwave plasma, 64th Annual Gaseous Electronics Conference, 2011年11月15日, Utah (USA)
- ⑥ 村瀬 卓也, 石島 達夫, 豊田 浩孝, 大気圧パルスマイクロ波プラズマの時空間発光分光計測, 応用物理学会 プラズマエレクトロニクス分科会20周年記念特別シンポジウム, 2011年10月22日, 名古屋大学(愛知)
- ⑦ 村瀬 卓也, 石島 達夫, 豊田 浩孝, 時空間発光分光計測を用いた大気圧パルスマイクロ波プラズマ生成過程の観察, 平成23年度電気関係学会東海支部連合大会,

- 2011年9月27日, 三重大学(三重)
- ⑧ T. Murase, A. Kamata, T. Ishijima, H. Toyoda, Influence of Microwave Electric Field on Spatial and Time-Variation of  $H_{\alpha}$  Spectra in Pulsed-Microwave Atmospheric Pressure Plasma, The XXX International Conference on Phenomena in Ionized Gases, 2011年9月1日, Belfast (Northern Ireland)
- ⑨ H. Toyoda, T. Murase, T. Ishijima, Spatiotemporal measurement of microwave electric field in an atmospheric pressure microwave plasma, The 13th International Workshop on Advanced Plasma Processing and Diagnostics (招待講演), 2011年7月27日, Deajeon (Korea)
- ⑩ T. Murase, A. Kamata, T. Ishijima, Y. Kinoshita, H. Kawauchi, K. Yoshida, and H. Toyoda, Time- and Space-Resolved Characteristics of Ozone Concentration in Atmospheric Pressure Plasma using Ultra Short Pulses, The 3rd International Conference on Microelectronics and Plasma Technology, 2011年7月6日, Dalian (China)
- ⑪ T. Murase, A. Kamata, T. Ishijima and H. Toyoda, Space- and Time-Resolved Measurement of Electric Field in Atmospheric-pressure Pulsed Microwave Plasma, The 4th International Conference on Plasma-Nanotechnology & Science, 2011年3月11日, 高山文化会館(岐阜)
- ⑫ 石島 達夫, 水素原子シュタルク拡がりを用いた大気圧マイクロ波プラズマにおける電子密度および電界強度の時分解計測, 「原子分子光の素過程とプラズマ分光の研究フロンティア」「原子分子データ応用フォーラムセミナー」合同研究会, 2011年2月3日, 核融合科学研究所(岐阜)
- ⑬ H. Toyoda, A. Kamata, T. Murase, T. Ishijima, Time and Space Resolved Measurement of Microwave Electric Field in Atmospheric Pressure Plasma, The 12th International Workshop of Advanced Plasma Processing and Diagnostics, 2011年1月5日, 九州大学(福岡)
- ⑭ H. Toyoda, A. Kamata, T. Murase, and T. Ishijima, Diagnostics of atmospheric pressure plasma by space and time-resolved Stark broadening, The 2nd International Plasma Nanoscience Symposium, 2010年12月13日, New South Wales(Australia)
- ⑮ 鎌田 安住, 石島 達夫, 豊田 浩孝, 大気圧パルスマイクロ波プラズマにおける時空間発光分光計測, 平成22年度電気関係学会東海支部連合大会, 2010年8月30日, 中部大学(愛知)
- ⑯ 鎌田 安住, 楊 海鵬, 石島 達夫, 豊田 浩孝, 水素原子偏光スペクトル計測を用いた大気圧パルスプラズマの外部印加電界強度の検討, 第57回応用物理学関係連合講演会, 2010年3月17日, 東海大学(神奈川)
- ⑰ A. Kamata, H. Yang, T. Ishijima, H. Toyoda, Time Resolved Measurement of  $H_{\beta}$  Emission from Atmospheric-Pressure Pulsed Microwave Plasma, The 3rd International Conference on Plasma-Nanotechnology & Science, 2010年3月11日, 名城大学(愛知)
- ⑱ 鎌田 安住, 楊 海鵬, 石島 達夫, 豊田 浩孝, 大気圧パルスマイクロ波プラズマの時分解発光分光計測, 第27回プラズマプロセッシング研究会, 2010年2月3日, 横浜市開港記念会館(神奈川)
- ⑲ H. Toyoda, H. Yang, T. Ishijima, Temporal variation of plasma density in atmospheric pressure pulsed-microwave plasma, 62nd Annual Gaseous Electronics Conference, 2009年10月20日, Saratoga Springs (NY, USA)
- ⑳ H. Yang, T. Ishijima, H. Toyoda, Temporal Variation of Hydrogen Atom Spectrum Emitted from Pulsed Microwave Plasma under Atmospheric Pressure, The 31th International Symposium on Dry Process, 2009年9月24日, Busan Exhibition & Convention Center (Busan, Korea)
- ㉑ 楊 海鵬, 石島達夫, 豊田浩孝, シュタルク拡がりを用いたプラズマ密度計測における外部電界の影響, 第70回応用物理学学会学術講演会, 2009年9月9日, 富山大学(富山)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

豊田 浩孝 (TOYODA HIROTAKA)  
名古屋大学・工学研究科・教授  
研究者番号: 70207653

### (2) 研究分担者

石島 達夫 (ISHIJIMA TATSUO)  
名古屋大学・工学研究科・助教  
研究者番号: 00324450

### (3) 連携研究者なし