

機関番号：11201
 研究種目：若手研究（B）
 研究期間：2009～2010
 課題番号：21740393
 研究課題名（和文） マイクロプラズマによる微細チューリング構造の形成とフォトニック結晶への応用
 研究課題名（英文） Micro Turing structure formation using microplasmas and application to plasma photonic crystals
 研究代表者
 向川 政治（MUKAIGAWA SEIJI）
 岩手大学・工学部・准教授
 研究者番号：60333754

研究成果の概要（和文）：マイクロギャップ誘電体バリア放電方式によるマイクロプラズマのチューリング型自己組織構造を、プラズマフォトニック結晶の実現の1つの方法として提案し、これに適した自己組織構造発生の条件を実験的に検討した。自己組織構造の維持機構を明らかにするため、珪酸ビスマス結晶のポッケルス効果を用いて、誘電体表面の電荷の蓄積量の測定システムを構築した。自己組織構造の微細化には、誘電体材料の低い導電率、低いガス速度、電極のパターニング、および電源の周波数調整が有効であることを実証した。

研究成果の概要（英文）：It proposed the Turing type self-organization of microplasmas using micro-gap dielectric barrier discharge as one of the methods of achieving the plasma photonic crystals it, and the condition for generation of the self organized structure was examined experimentally. The measuring system of the accumulation charge on the dielectric surface was constructed by using Pockels effect of the bismuth silicon oxide crystals to clarify generation and sustaining mechanism of the self-organization. It was clarified that low conductivity of dielectrics, low gas velocity, patterning of electrode, and adjustment of the excitation frequency was effective for self organized structure scaling.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,700,000	810,000	3,510,000
2010年度	700,000	210,000	910,000
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：数物系科学

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：放電

1. 研究開始当初の背景

マイクロプラズマは、局在性、高反応性、高輝度性を有し、従来のプラズマのパラメー

タ領域の違いから、新たな学問領域の開拓として多くの研究が行われており、近年では京都大の橋氏の特定領域研究が行われ、数多く

の基礎的な現象の確認に基づいて学術的基盤構築のための基礎が確立された。マイクロプラズマの性質を独創的に応用したプラズマフォトニック結晶デバイスが京都大の研究グループから提案されて以来、プラズマフォトニック結晶（さらにはメタマテリアル）をマイクロプラズマで実現することは放電プラズマ研究者にとってチャレンジングなテーマとなっている。フォトニック結晶は、屈折率の異なる物質を光の波長程度の間隔で周期的に配置した構造を成しており、その内部を伝搬する光のエネルギースペクトルに禁制帯を生じられるものである。屈折率の周期構造によって光はブラッグ反射を起し、光のスペクトルには禁制帯が生じる。プラズマは密度が高まると屈折率が小さくなるので、マイクロプラズマを周期的に配置した空間は、フォトニック結晶と同等の性質を持つようになる。プラズマフォトニック結晶は、このマイクロプラズマ研究の新たな応用の可能性として1つの大きな研究分野となっており、注目を浴びている。本研究においては、屈折率の周期構造をマイクロプラズマの自己組織化で実現し、プラズマフォトニック結晶の実現の1つの方法として提案する。大気圧放電の自己組織化の研究については、実験・理論の両面からの体系的な研究として、ドイツのH.-G. Purwinらのグループが精力的に行っている。平行平板型の短ギャップ放電はチューリングモデル（2成分反応拡散方程式）として記述され、また、均一構造から自己組織構造が発現するとき、例えば、グロー放電からフィラメントの二次元的配列（六角構造）やストライプ構造へ転移するときは、チューリング型の不安定性が物理的なメカニズムとして背後にあることが知られている。マイクロギャップ誘電体バリア放電における自己組織パターンについては、本研究の代表者（向川）が自己組織構造の発現条件を詳細に調査し、①低ガス流速かつ低印加電圧の条件ではフィラメントの六角構造が発現し、②印加電圧またはガス流速の増加によって六角構造からストライプ構造への転移することが研究開始当時わかっていた。

2. 研究の目的

自己組織化マイクロプラズマをフォトニック結晶として応用するためには、六角構造の場合は各フィラメントの間隔が、またストライプ構造の場合は縞の間隔が、被制御電磁波の波長程度でなければならない。反応拡散系におけるチューリングパターンの固有波数 k は、活性因子と抑制因子それぞれの拡散係数が小さいほど大きくなる（波長は短くなる）ので、拡散を抑えるとパターンは微細化

する。また、自己組織化したプラズマの濃淡を激しくするためには、誘電体表面に蓄積する電荷を不均一にし、メモリー作用を強くする必要がある。これらの要件を誘電体バリア放電で実現するには、大気圧グロー放電生成のための3条件とはまったく正反対の条件

(a) 誘電体に非常に低い表面伝導度を持たせる、

(b) 荷電粒子や準安定粒子の横方向拡散の遅くする（遅い粒子を用いる）、

(c) 電界に直交する誘電対面に添うガス流は導入しない、

を満足しなければならない。本研究では、マイクロプラズマが微細チューリング構造となる条件として、上記の3条件を実験的に検証する。分光学的方法などを用いてプラズマの状態を詳細に調べ、これによって幾何構造成り立ちや構造の生成要因を探る。また、実際にマイクロ波やミリ波を微細チューリング構造に導入し、フォトニックバンドギャップの存在や、アクティブ素子としてのダイナミック特性を実験的に調べる。

3. 研究の方法

(1) 誘電体バリア放電型平行平板マイクロギャップを構成する。上部ITO(indium titanium oxide)電極からプラズマの横方向2次元分布を、横方向から拡大鏡を用いて縦方向分布を、それぞれICCDカメラで観測し、放電進展の様子やパターン固有波数などの幾何情報を抽出し、放電形態の同定や分岐パラメータを抽出する。電圧電流波形の観測や発光分光分析などを併用し、原子分子過程やスウォームパラメータを決定する。具体的には、①誘電体材料の種類およびその表面処理の効果、②重い粒子（少なくともヘリウムより重い原子分子）のガスの使用、③ガスが速度ゼロまたは低流速におけるプラズマ生成の課題に取り組む。

①については、放電基礎データの収集を行う。導電率などの異なる材料が放電様相や電気特性に及ぼす影響について、実験的に評価する。

②については、放電の自己組織構造に対するメモリー効果の影響を調べる。誘電体バリア放電では、誘電体表面の電荷の蓄積量が放電形態に対して重要な決定要素となるので、この測定法について検討する。ポッケルス効果を用いた電界測定法は、帯電に応用すれば電荷密度測定システムとなるので、この方法を検討し、装置の試作を行う。これに基づいて、ガスの拡散係数の違いと誘電体表面の蓄積電荷の不均一性について調べる。

③については、放電の自己組織構造に対する気体の流れの影響を調べる。上記の②の実験結果に基づいて、気体の流れが誘電体表面に蓄積する電荷へ与える影響を調べ、これにより自己組織構造形成と流れの関係を調べる。

(2) 微細化を実現できる現実的な手法を検討し、実証する。微細チューリングパターンを生成するにあたって、均一構造からの構造発生メカニズムが、“対称性の自発的破れ”に基づくものであるならば、初期のわずかな擾乱が対称性の破れのシードとなり、その破れのパターンは自ずと決まってくるものと考えられる。したがって、MEMS 作成技術などの微細加工技術を用いて、多少なりとも電極などに加工を施すことが特定の構造（例えばストライプ構造）を生成するのに有効である可能性がある。したがって、誘電体表面上にパッドパターンの構造を形成し、これを誘電体バリアとして用いることを試みる。また、理論的研究・解析の立ち上げを行う。2次元拡散反応系の基礎方程式を用い、パターン形成の数値計算を立ち上げ、テストランまで行ってみる。自己組織構造は一般には放電の不安定性に起因して発生することが知られており、タウンゼント放電からグロー放電への転移にともなう負性微分抵抗の出現と自己組織化についての議論がある Steenbeck-von Engel の理論を発展させたタウンゼント-グロー転移の解析的計算を適用することで、負抵抗の現れる様子を計算し、実験・理論を検証するシステムを検討する。

4. 研究成果

(1) 放電の自己組織構造に対するメモリー効果の影響を調べるため、誘電体表面の電荷の蓄積量を測定するシステムを構築した。BSO (Bismuth Silicate: 珪酸ビスマス) のポッケルス効果を用いた電界測定法を電荷密度測定システムに応用して装置を試作し、誘電体バリア放電におけるバリア表面の蓄積電荷の測定を試みた。本システムにおける蓄積電荷測定法の評価として、放電電流の値と比較する推定を行ったところ、両測定方法で帯電電荷の値はほぼ同等の値を示し、また、電荷の誘電体表面上の分布はBSO薄膜の厚さ程度の空間分解能を有することが分かり、電荷測定系は確立されたものとみなしてよいレベルに達した。

(⇒発表①⑦)

(2) ヘリウムを用いたマイクロギャップ誘電体バリア放電の自己組織構造において、

プラズマへの投入エネルギー等の計測からプラズマの状態を推定し、幾何構造の成り立ちや構造の生成要因を検討した。グロー相とフィラメント相が共存する場合には、放電への投入エネルギーのほとんどがグロー相に投入されることがわかった。また、グローがなくフィラメントだけが存在する相では、フィラメントに投入されるエネルギー密度は、フィラメント数が少ないときの方が大きく、その値はグロー放電生成時の投入エネルギー密度と同程度になることがわかった。

(⇒発表②)

(3) マイクロプラズマの自己組織構造が微細化する条件を探るため、導電率の異なる誘電体を使用してヘリウム放電の自己組織構造を生成し、ガラス誘電体と比較した。誘電体としてガラスを用いるときは、フィラメントの生成時から消滅時にかけてその直径が大きくなり続けるのに対し、BSOを用いた場合は、フィラメントの直径は生成時とほぼ変わらず約 0.5mm を保ち、BSOを用いることで構造は微細化することがわかった。また、このときの放電は、半周期ごとに、フィラメントの位置における放電と、フィラメント間誘電体領域における放電の2段階があり、後述(6)の人工的にパッド電極を設けた場合と類似の放電過程をたどることがわかった。

(⇒論文①)

(4) 電界に直交する誘電体面に添うガス流速ゼロの極限において、自己組織構造の安定生成条件について検討した。流速ゼロにおける環境空気の混入を避けるため、放電の発生は密閉構造内で行った。ヘリウム放電では、有限の流速のときに比べ、流速ゼロの付近では六角状構造が現れるパラメータ領域が広がる。また、100kHzから200kHzの周波数の増加にしたがって、六角状パターンからストライプパターンへ転移する電圧は増加し、六角状パターンが起こりやすくなることがわかった。

(⇒発表⑧)

(5) 放電生成に用いる電圧の高周波化を試み、実験的に調査した。窒素マイクロギャップ誘電体バリア放電において、放電様相を観測したところ、自己組織構造として、ストライプ構造と、電極端にだけにフィラメントが複数現れる構造が現れることがわかった。ストライプ構造では、線の間隔が高周波化に伴って小さくなる。また、フィラメント構造では、放電形態はタウンゼントライク放電であり、高周波化に伴ってフィラメント間隔が狭くなりフィラメントの個数は増加することがわかった。窒素放電では、電圧の高周波化は放電構造の微細化をもたらすこと

がわかった。
(⇒発表④)

(6) 誘電体バリア上に浮遊電極パッドを、エッチング技術を用いて作製することで、自己組織構造のシーズを人工的に与える実験を行った。窒素放電において、1回の放電における電荷の移動量は、浮遊電極がない場合に比べてある場合のほうが多いことがわかった。また、発生する放電は、半周期ごとに、パッド上放電、パッド周辺放電、パッド間誘電体領域の放電の3段階があり、ある種の自己組織化を呈することがわかった。
(⇒論文③、発表③)

(7) ヘリウムマイクロギャップ放電において、放電形態を観測するときには、デジタルカメラ(目視とほぼ同じ)による観測と、高速度(ICCD)カメラによる観測方法がある。ある条件下では、自己組織構造としてストライプ形状の放電構造が現れるが、これをデジタルカメラで測定するとストライプ構造と認識できるが、同条件の放電をICCDカメラで観測すると、六角構造として認識されることがある。これにより、ストライプ構造は六角構造をなすフィラメントが高速度で同一方向に運動していることがわかり、その速度はすくなくとも17.2m/sであることがわかった。
(⇒論文②)

(8) 理論的研究・解析については、2次元拡散反応系の基礎方程式を用い、自己組織構造の発現の数値計算システムを立ち上げ、テストランまで行った。放電のパターン形成を計算するためスウォームデータをインプットパラメータとするシステムを構成し、自己組織構造の生成には、拡散係数の異なる2つ以上の成分が存在し、ある種の不安定性条件を満たし、振動励起をおこすための非線形相互作用の存在が不可欠であることがわかった。(未公表)

【得られた成果の国内外での位置づけとインパクト、今後の展望について】

誘電体バリア放電におけるプラズマ自己組織化の研究は近年活発になりつつある。国内では件数は多くないものの自己組織化を意識した研究発表が現れており、海外ではドイツのH.-G. Purwinグループの20年にわたる研究がある。また、負性微分抵抗の発現との関連や、自己組織化の文脈に添った放電形態転移(タウンゼント-グロー転移やグロー-アーク転移)との関連について議論が高まりつつある。本研究の遂行期間中に、本研究と同様に、自己組織構造をプラズマフォトリック結晶に応用する研究の論文が、中国の

グループから発表され、この課題に取り組んでいる研究者の存在と、この課題への関心の高さが伺える。このグループは、実験で得られた自己組織構造の周期パターンからフォトリックバンドギャップを理論計算しているが、実際に自己組織構造へ電磁波を導入してフォトリックバンドギャップの存在を実証したものではない。プラズマフォトリック結晶に使用可能なタイプの自己組織構造には、本研究において明らかにしたように、現実には、フィラメントの不安定生成やフィラメント以外の余分な放電の発生の問題がある。また、誘電体バリア放電を用いる限り交流電圧の使用は避けられないが、これに起因するフィラメント発生時間の短さの問題がある。また、本研究において明らかにしたように、目視で観測できる構造と、実際の構造が異なることがあるという観測上の問題があるため、目視観測に準じた観測から得られた周期構造を基にバンド構造を計算してみたところで、その結果には当り外れがあるとしか言いようがないであろう。残念ながら、本研究では、当初の計画を達成できていない部分が随所に残されているが、自己組織構造の制御とプラズマフォトリック結晶への応用に向けて、技術上重要な基礎情報が得られたと考えている。今後は、この成果を踏まえ、フィラメントを安定に生成する方法や、時間的に継続できる方法を、平成23年度に採択された基盤研究(C)において提案していきたい。また、このような実験的アプローチに加えて、次のステップとして、これらの現象を数理的モデルで記述・精密計算し、非平衡統計力学・非線形力学などの学問体系との整合を行うことで、本研究で得られた知見をより普遍的なものに昇華させ、この意味で学問的に意義のあるものになりたいと考えている。

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6件)

- ① Hiroyuki Fue, Tatsuya Hasegawa, Tomohiko Sato, Seiji Mukaigawa, Koichi Takaki, Tamiya Fujiwara, Development of self-organized filaments in a microgap atmospheric barrier discharge on bismuth silicon oxide dielectrics, IEEE Transactions on Plasma Science, 査読有、2011, in print
- ② Tomohiko Sato, Tatsuya Hasegawa, Hiroyuki fue, Seiji Mukaigawa, Koichi

Takaki, Tamiya Fujiwara、
Self-Organization Pattern of Microgap
Atmospheric Barrier Discharge、IEEE
Transactions on Plasma Science、査読有、
2011、in print

- ③ So Matsumoto, Kazunori Takahashi,
Seiji Mukaigawa, Koichi Takaki and
Tamiya Fujiwara、Discharge Formation of
DBD with Floating Electrode Array at
Atmospheric Pressure in Mixed Gas of Helium
and Nitrogen、IEEE Transactions on
Plasma Science、査読有、2011、in print
- ④ T. Shimokawara, S. Mukaigawa, Y.
Shida, K. Takahashi, K. Takaki, T.
Fujiwara、Measurement of Heat Flux
Applied from Atmospheric Pressure
Plasma Jets to Substrate Using a
LiNbO₃ Laser Interferometer、
Transactions of the Materials Research
Society of Japan, Vol. 34, No. 4、査読有、
2009、pp. 267-270
- ⑤ 向川政治、下河原孝夫、北慎勇希、長谷川
達也、高木浩一、藤原民也、大気圧プラズ
マジェットを用いた高分子表面処理と基
板への投入エネルギー、電気学会研究会資
料、査読無、PST-09-49、PPT-09-49、
ED-09-93、2009、pp. 41-46
- ⑥ 北慎勇希、伊藤寛、志田寛、向川政治、高
木浩一、藤原民也、高周波大気圧プラズマを
用いた高分子材料表面の親水性向上と浮遊
電極の影響、電気学会研究会資料、査読無、
PPT-09-2、ED-09-24、2009、pp. 7-12

[学会発表] (計9件)

- ① 松田紘和、向川政治、高木浩一、
藤原民也、BSO 結晶を用いた表面電荷測
定系の基礎特性、電気学会パルスパー
ワー・放電合同研究会、2011. 6. 4、岩手大
学工学部 (岩手県)
- ② 渡部 博、佐藤友彦、志田寛、向川政治、
高木浩一、藤原民也、大気圧マイクロギ
ャップバリア放電における流れの影響、
電気学会パルスパワー・放電合同研究会、
2011. 6. 4、岩手大学工学部 (岩手県)
- ③ 佐藤拓也、平野隆大、向川政治、高木浩
一、藤原民也、湿度制御環境下における
高周波大気圧プラズマを用いた高分子材
料表面処理、電気学会パルスパワー・放
電合同研究会、2011. 6. 4、岩手大学工学
部 (岩手県)
- ④ 長谷川達也、向川政治、高木浩一、藤原民也、
窒素マイクロ
プラズマにおける自己組織構造、第 65 回
応用物理学会東北支部学術講演会、
2010. 11. 26、東北大学工学部 (宮城県)

- ⑤ 笛宏行、長谷川達也、向川政治、高木浩
一、藤原民也、気圧マイクロギャップバ
リア放電における誘電体表面電荷の測定、
平成 22 年度電気関係学会東北支部大会
連合大会、2010. 8. 27、八戸工業大学 (青
森県)
- ⑥ 佐藤友彦、長谷川達也、向川政治、高木
浩一、藤原民也、マイクロギャップバ
リア放電における自己組織構造と投入エネ
ルギー密度、平成 22 年度電気関係学会
東北支部大会連合大会、2010. 8. 27、八戸
工業大学 (青森県)
- ⑦ 松本創、志田寛、高橋和貴、向川政治、
高木浩一、藤原民也、浮遊電極を有する
自己消弧放電の放電特性、平成 22 年度
電気関係学会東北支部大会連合大会、
2010. 8. 27、八戸工業大学 (青森県)
- ⑧ 北慎勇希、伊藤寛、向川政治、高木浩一、
藤原民也、志田寛、浮遊電極付きの高周
波大気圧プラズマを用いた高分子表面処
理と異種材料接着、第 64 回応用物理学会
東北支部学術講演会、2009. 12. 3、日本大
学工学部 (福島県)
- ⑨ 長谷川達也、向川政治、高木浩一、藤原
民也、高周波放電プラズマにおけるグリ
ッドバイアスの制御性、第 64 回応用物理
学会東北支部学術講演会、2009. 12. 3、日
本大学工学部 (福島県)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

向川 政治 (MUKAIGAWA SEIJI)
岩手大学・工学部・准教授
研究者番号：60333754