



解説

大気圧プラズマの物理と化学

チャング ジェン シー
マクマスター大学

(原稿受付：2006年7月19日)

大気圧プラズマはアーク放電による熱プラズマとストリーマー・コロナ放電による低温プラズマに分類されるが、近年、大気圧プラズマの工業上の実用化に伴って注目されつつある。本稿は大気圧プラズマの物理と化学をわかりやすく解説するとともに、最近の研究を紹介する。

Keywords:

thermal plasma, non-thermal plasma, corona discharge, spark discharge, arc discharge

1. 序言

通常、各種プラズマの分類は表1で示したように、気圧と温度雰囲気で分類される[1]。大気圧プラズマの応用は、過去においては熱プラズマ（大気圧／高温電子およびガス温度）が中心であったが、近年、低温大気圧プラズマ（大気圧／高温電子温度／低温ガス温度）の応用が注目されている。熱プラズマは、その物理的高温と高速電子、イオンによって生じる化学効果の重畳という特性を生かして、

1. 排ガス処理
 2. 液体および水処理
 3. 固体廃棄物処理
 4. プラズマセラミックコーティング
 5. プラズマ超微粒子製造
 6. 金属および無機材料の精製
 7. プラズマ切断と溶接
 8. 燃料改質
- 等に主に利用されている。また、低温プラズマの応用とし

ては、化学的応用が中心であるが、生成される材料は薄膜、エアロゾル等の固体も物理的に生成することができる。その主な応用は、

1. 排ガス処理
2. 水処理
3. 燃料改質
4. 燃焼コントロール
5. 材料表面処理とコーティング
6. 超微粒子の生成

等を挙げることができる。本稿では、大気圧プラズマの物理的・化学的特性を熱および低温プラズマ双方に対して解説する。

2. 大気圧低温プラズマの種類と物理現象

2.1 コロナ放電の種類と電極の影響

コロナ放電は、使用する電極の形状によって異なる形態を有する。例えば、図1に示される針-平板直流放電では

表1 各種プラズマの分類と定義。

Type	Pressure		Gas Temperature		Electron Temperature		Typical Applications
	High	Low	High	Low	High	Low	
Low Pressure Plasma		○		○	○		- Semiconductor - Lump and Lasers - Display
Non-Thermal Plasma	○			○	○		- Air Pollution Control - Waste Treatment - Polymer Coating - Polymer Treatments
Thermal Plasma	○		○		○		- Solid Waste Treatments - Coating - Ceramic Processing - Water Treatments - Cutting & Welding
Nuclear Fusion Plasma		○	○		○		- Energy - Military

Physics and Chemistry of Atmospheric Plasmas
CHANG Jen-Shih
author's e-mail: changj@mcmaster.ca

針電極に正極性を加えた場合、低い電圧において放電開始電圧でバーストパルスコロナ (Burst Pulse Corona) 放電が発生し、針電極の先端にはほのかな放電光が観察される。さ

らに電圧を上昇させると、放電路は多岐に分れた細い線状で平板電極に向かう。これをストリーマコロナ (Streamer Corona) 放電という。そしてさらに電圧を加えると、放電は強い光を針先端で放射するグローコロナ (Glow Corona) 放電となり、最終的にスパーク (Spark) 放電となる。スパーク放電が起こる電圧をスパーク開始電圧といい、線状のやや太めの放電路が針電極と平板電極間に繰り返し通電する [1, 2]。

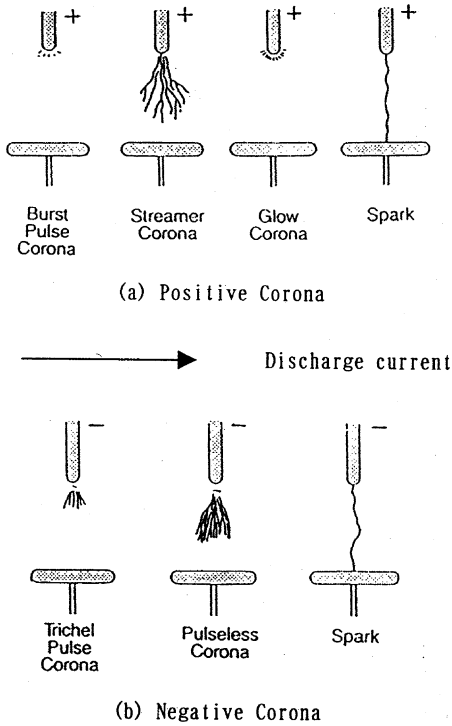


図1 針-平板コロナ放電形態と電流依存性. a) 正コロナ, b) 負コロナ.

針電極に負の印加電圧を加えると、コロナ放電開始電圧ではトリチェリパルスコロナ (Trichel Pulse Corona) 放電というやや長い放電路が針電極近傍で発生し、電圧が大きくなると更に長い放電路になり、パルスレスコロナ (Pulseless Corona) 放電となり、最終的にはスパーク放電に移行する [1, 2]。

電極形状を針-針電極にすると、図2に示されるように、針電極先端にグローコロナが発生して、やや電圧を高くするとスパーク放電に移行する。針-針電極では放電は不安定で、ほんのわずかに印加電圧を増加するだけで、グローコロナからスパーク放電に移行してしまう [2, 3]。

一般に、直流コロナ放電が一番安定している電極形状は、図3に示されるような同軸円筒放電または線-平板電極である [2, 3]。線電極に正電圧を印加すると、コロナ開始電圧ではグローコロナが均一に線電極に沿って生成し、電圧の増加とともにストリーマコロナからスパーク放電に移行する。線電極に負の高電圧を印加すると、線電極に沿って移動を繰り返すグローコロナから、線上の固定点のみコロナが発生するタフト (Tufts) またはビーズ (beads) コロナ放電に移行する (図3)。タフトの数は通常印加電圧とともに増加して、最終的にはスパーク放電に移行する。またタフトコロナは放電音を伴い、電流は定常であるが小さ

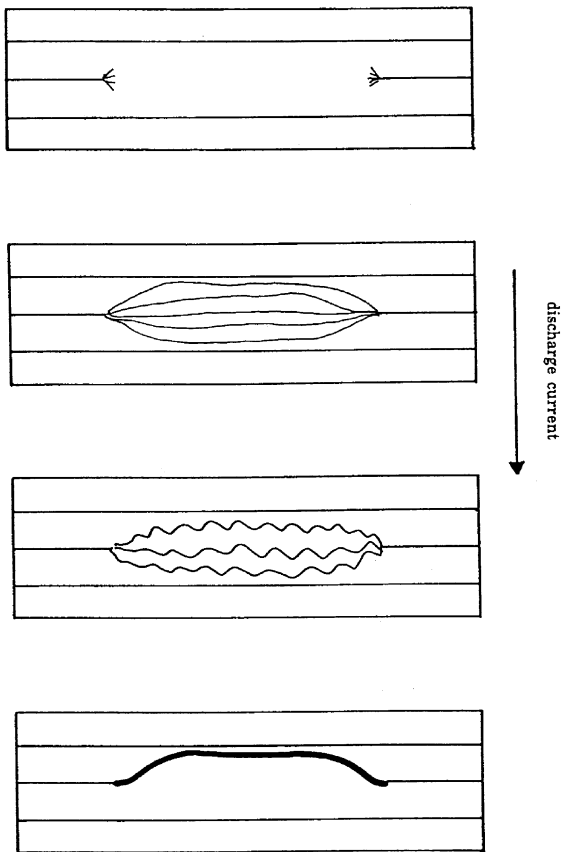


図2 針-針コロナ放電形態と電流依存性.

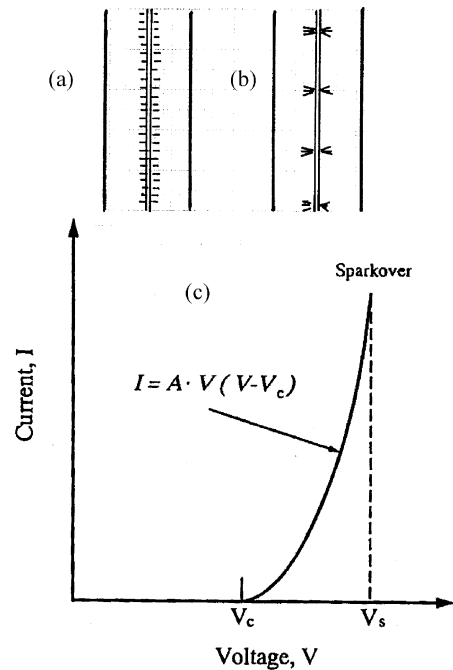


図3 同軸円筒コロナ放電特性. (a) 正コロナ, (b) 負コロナ, (c) 電流電圧特性 (V_c : コロナ開始電圧, V_s : スパーク開始電圧).

なパルスが重畳される。コロナ放電時間平均電流-電圧特性は、通常

$$I = aV(V - V_c) \quad (1)$$

(a : 実験で得られた定数, V_c : コロナ開始電圧)

で表される[2].

2.2 放電発生機構とプラズマ化学

負コロナは主に分子の電子衝突電離によって、正コロナは光電離によって伝達される。したがって、正のストリーマは光速の約1%の伝搬速度を有する。また極性にかかわらず、電子-イオン再結合による強い紫外線光を放出する。

正極性シース領域は、通常ヘルムシュタイングロー(Hermstein's Glow)とも呼ばれ、一定電圧で定常電流であり、スパークがなく、静かな放電である。正極性ストリーマコロナは、電極から細い光を放出し、非定常電流(パルス状電流波形)で放電音を発生する。

負グローの発生には、クリーンでスムーズな電極表面を必要とする。グローは電子なだれで発生し、電流は比較的定常であるが小さな多くのパルスを含む。また負グローは放電雑音が大きい。正極性ストリーマコロナやスパーク放電電圧よりも十分低い電圧で発生する。コロナ放電は、通常、空間における電荷の制限領域内にて電流が発生し、電極空間は正または負イオンで満たされる。したがって、電流は電圧とともに上昇する(正特性)。一方、ストリーマ放電はスパーク放電と同様負特性であり、電流は電圧とともに低下する。よって、コロナ/ストリーマ/スパーク間の遷移は明確でない。針-平板電極では、針の先端が加熱され、時間とともにコロナからスパークに移行する[2,4]。コロナ放電化学は複雑で、窒素ガス中でも N^+ , N_2^+ , N_3^+ および N_4^+ と複数のイオンがイオン-分子反応で生成される[5]。また、負性ガスである酸素では電子が分子に付着するので、 O_x^- ($x=1\sim6$), O_y^+ ($y=1\sim5$) という多種のイオンが生成される[6]。また、空気中では乾燥の場合は $N_x O_y^+$ および $N_m O_n^+$ ($x, y, m, n=0\sim6$)、湿度が高い場合は $X^+(H_2O)_n$ および $Y^+(H_2O)_n$ と重い水クラスターイオンが支配的となる[7]。分子、ラジカル、正/負イオンおよび電子間の反応係数を表2に示す。反応の速さは分子よりもラジカルが速

表2 分子、ラジカル、電子、正負イオン反応の二体および三体反応係数のオーダーと表面反応の比較[1,8].

Reaction	two body reaction rate [cm ³ /s]	three body reaction rate [cm ⁶ /s]
molecule-molecule	$10^{-4} - 10^{-31}$	$10^{-30} - 10^{-40}$
atom/radical-molecule	$10^{-11} - 10^{-24}$	$10^{-30} - 10^{-36}$
ion-atom/molecule	$10^{-9} - 10^{-13}$	$10^{-28} - 10^{-32}$
electron-molecule/molecule	$10^{-7} - 10^{-11}$	$10^{-27} - 10^{-35}$
positive-negative ion	$10^{-6} - 10^{-8}$	$10^{-25} - 10^{-26}$
electron-ion	$10^{-6} - 10^{-7}$	$10^{-26} - 10^{-28}$
molecule/radical-aerosol	$(10^{-5} - 10^{-10}) R_p$ (nm) Rp: diameter of aerosol	
comparison of dominant reaction [reaction rate] × [molecule density] × [reactant density] (× [third body molecule density])		

く、さらに、イオン、電子と荷電ダストの存在によって、プラズマ中での反応はさらに速くなることがわかる[1,8].

3. 大気圧低温プラズマの維持機構と不安定性

正極性ストリーマは、図4のような領域に示される[9]. 線状のストリーマは、径が約20 μ mで電極表面から約10mm伸展する。ストリーマ内はプラズマであり、その先端では正イオン雲が他の電極の方向に高速移動する。また、正イオン雲の先端からは強い発光があり、ストリーマ近傍に光電離領域が形成される。ストリーマの長さは10~100mmまで伸び、プラズマ密度は約 10^9 cm⁻³, 電界強度は $E/N = 10^{-19} \sim 10^{-17}$ Vm², イオン温度は数百 $^{\circ}$ C程度である[2]. 一つのストリーマの寿命は約1 μ sで、次のストリーマは約1 μ sで生成される。したがって、ストリーマが発生すると非定常プラズマではあるが、広範囲にわたって低温高密度プラズマが形成される。

スパーク放電は、ストリーマよりも高密度のプラズマが高ガス温度(約1,000 $^{\circ}$ C)[2,4]で発生するが、放電は狭い線上に集中している。スパークチャンネルは狭く、電極表面を移動し非定常である。

3.1 コロナ放電と安定化

これまで説明してきたように、コロナ放電は極めて狭い領域(数mm以下)に不安定に存在するので、工業的応用[10]には放電の安定化または拡大化の必要がある。したがって、コロナ放電を安定な広い空間に作成するには次のアプローチが提案されている[2,3,10].

- (a) 流体安定化コロナ
- (b) 短パルス印加電圧コロナ
- (c) 器壁安定化コロナ
- (d) バリア放電
- (e) 使用ガスまたは添加ガスによる安定化
- (f) 磁場による安定化

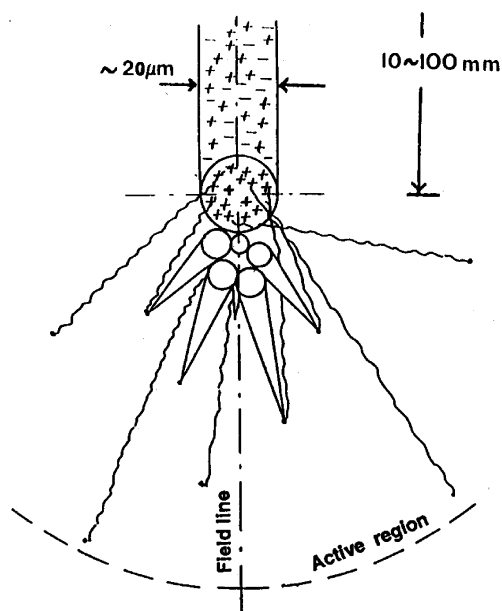


図4 ストリーマコロナ.

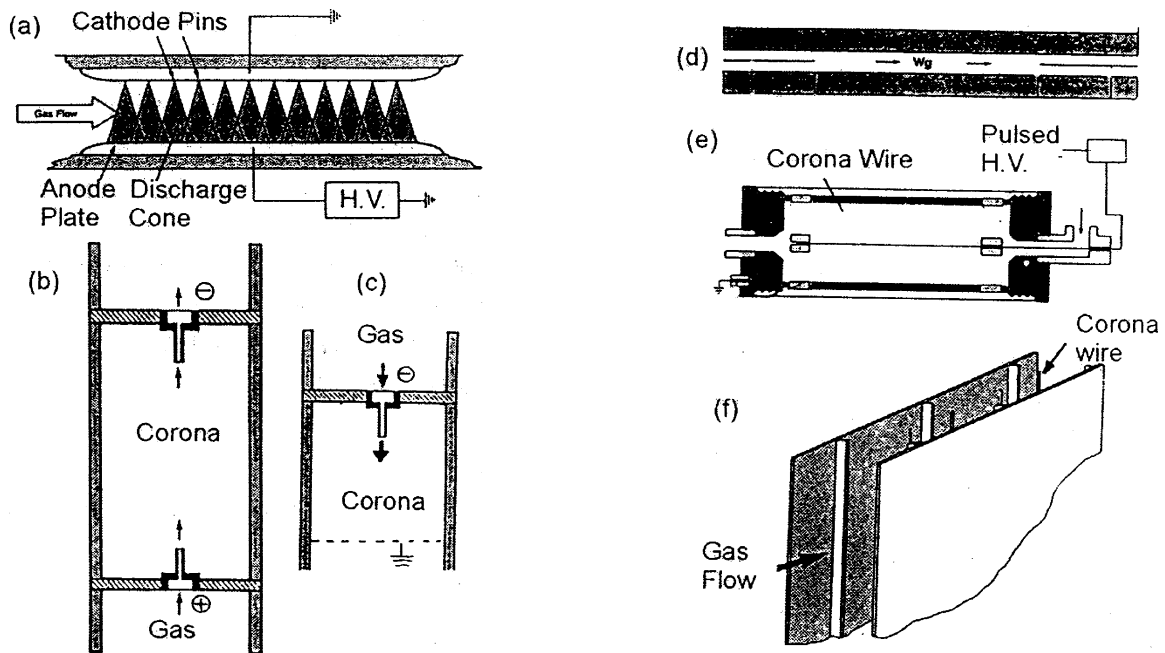


図5 コロナ放電 (a)高速気流点-平板コロナ, (b)コロナトーチ, (c)針-平板コロナトーチ, (d)キャピラリー放電, (e)同軸円筒放電, (f)線-平板放電.

3.2 高速流安定化コロナ放電

流体安定化コロナ放電は、コロナ放電の発生領域を高速気流で覆うことによって、放電の安定化を行う方式で、気流の速度は約 50~200 m/s とイオンのドリフト速度 (数10~1,000 m/s) の数%である。コロナ放電の安定化のメカニズムは不明であるが、一般には次の要因が考えられる [11].

- ・高速気流による冷却効果で電極表面が高くならないため、スパーク放電に移行しにくい。
- ・イオン流によって発生する二次的電気流体力学的渦流を制限することができる。
- ・ガス流によってイオンの電界によるドリフト流を制限できる。

ここで、流体安定化コロナ放電の例を図5に示す。図5(a)は針-平板コロナプラズマの例であるが、ガス流を 50~100 m/s にして針電極先端からのストリーマコロナを安定化している。図5の(b)と(c)は針-針または針-平板電極の例であり、通常コロナトーチと呼ばれる。電極の針の部分はホロー状で、気流はホロー電極内を通り放電管に導入される。他の一方が平板の場合はメッシュ電極から、また他の一方がホロー電極の場合は管内から気流が放出される。ホロー電極先端でのガス流速はやはり 50~200 m/s 程度で、電流-電圧特性はガス流量に依存するのみならず、気流が導入される電極の場合、つまりガスの流れと電界の方向の組み合わせに大きく依存する。

3.3 壁安定化放電

器壁安定化コロナには図5(d)に示されるような細管(0.1~10 mm)に針-針電極を配置したものが使用されており、器壁の電位および速いガス気流によってコロナを安定化させる [2, 10]. バリア放電 [1, 2] については3.6節で詳しく述べるが、この放電は電極表面に誘電体を配置することによって、スパークを発生しない安定なストリーマを目的と

する放電形態の一つである。また、使用ガスまたは添加ガスによって放電を安定化することも可能である。ヘリウムや希ガスに炭化水素系のガスを添加した大気圧グロー放電がその例である。

3.4 パルスコロナ放電

短パルスコロナには、nsec~μsec の立ち上がりのパルス電圧を印加する。つまりコロナ放電がスパーク開始電圧まで上昇しないような波形の電圧を印加する。したがって、立ち上がり電圧は数nsecから1μsecとイオン周波数より速く電子周波数より遅いので、重いイオンを加速することができず、温度が上昇しない軽い電子のみを有効に移動させることができる。短パルスコロナでは、通常コロナは直流よりも均一となり、安定なコロナを発生することができる。図6にその典型的な電圧および電流波形を示す。電圧波形は波の立ち上がりがnsec~μsecと速く、波尾も早く減衰するほうが望ましい。電流波形は同軸円筒の場合の例で、波尾が小さいピークを作ったり振動する場合がある [2, 3].

3.5 磁場によるコントロール

磁場安定化放電は、コロナ放電に数百 Gauss 以上の磁場を印加することによって、電子の動きを磁力線に沿って制限し、安定化を試みる方法である。したがって、特に負コロナの安定化に用いられている [12]. ただし、理論的に大気圧では数百 Gauss の領域でイオンは影響を受けない [12].

3.6 バリア放電

バリア放電は図7に例を示すように、ストリーマコロナを安定化させることを目的としたもので、交流電圧を金属間に印加した場合、その金属電極の前面にある誘電体が帯電され、その電荷が局所的に大きくなった場所で電荷は誘電体表面で逆電界を形成するために、高電界で発生しているストリーマコロナは制限され、スパークの発生しない放

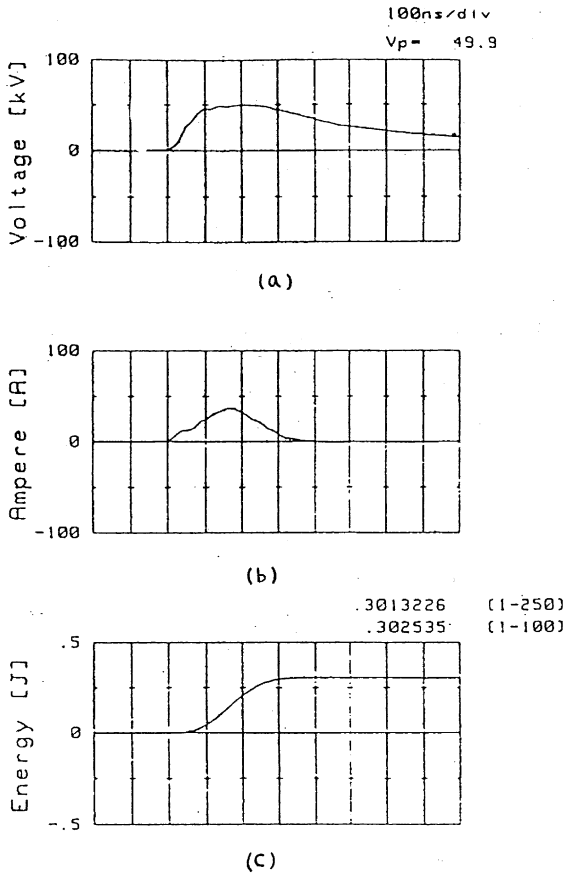


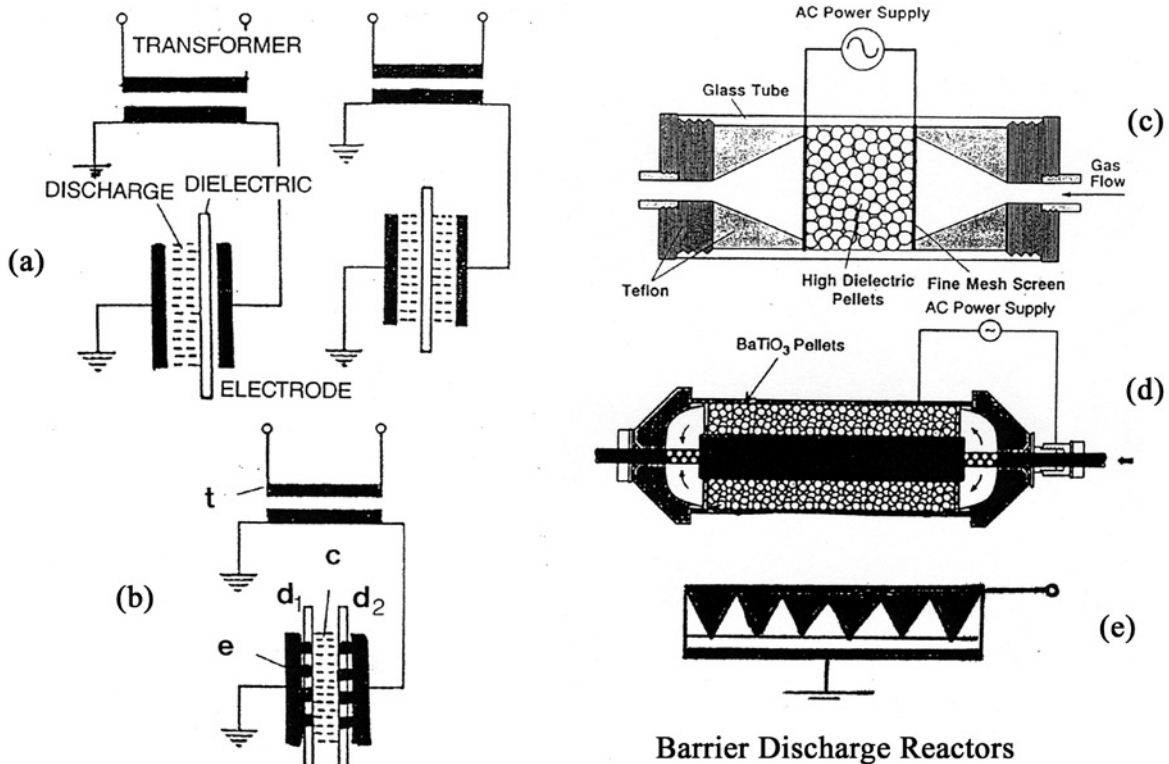
図6 パルスコロナ放電特性.

電空間を得ることができる[1-3]. 図8に電圧-電流波形を示す[13]. この図で明確なように, サイン波の最大電圧近傍で誘電体の荷電が起こり, 電圧がゼロより最大になる正および負電圧の領域でのみ放電が起こる. 誘電体バリアには主にガラス(比誘電率 $\epsilon_s = 2 \sim 4$)が使用されているが, アルミナ ($\epsilon_s = 9 \sim 12$)などのセラミックスや強誘電体(例えばチタン酸バリウム $\epsilon_s \geq 10,000$)なども使用されている. バリア放電は, 主としてオゾンの発生器や公害ガス処理装置に使用されているが, 放電管は主に次の3種類に分類される[2, 3].

- ・平行電極方式 (Parallel Electrode Barrier Discharge / Silent Discharge)
- ・沿面放電方式 (Surface Discharge)
- ・充填および移動層方式 (Packed Bed Barrier Discharge)

平行電極方式は, 平行平板または同軸円筒のものが使用されているが, 図7(a)と(b)に示されるように金属電極と誘電体バリアの組み合わせを変化させることによっても放電をコントロールすることができる.

沿面放電方式は, 図7(b)に示されるような金属表面電極間に誘電体層が存在する方式である. ただし, グラウンド電極は通常誘電体層の外側に配置される. ストリーマ放電は金属表面電極が正・負の場合で異なり, 誘電体沿面に沿って強い発光が見られる. 平行電極バリア放電と沿面放電を重畳させた場合[14]は, 交流電圧が同相と逆相の場合がある. この重畳放電方式(特に逆相の場合)は, 平行電極方式および沿面放電方式と比較して, より均一な放電が得られる.



Barrier Discharge Reactors

図7 バリア放電 (a)無声放電, (b)沿面放電, (c) and (d)パケットベット放電, (e)トレンチ放電.

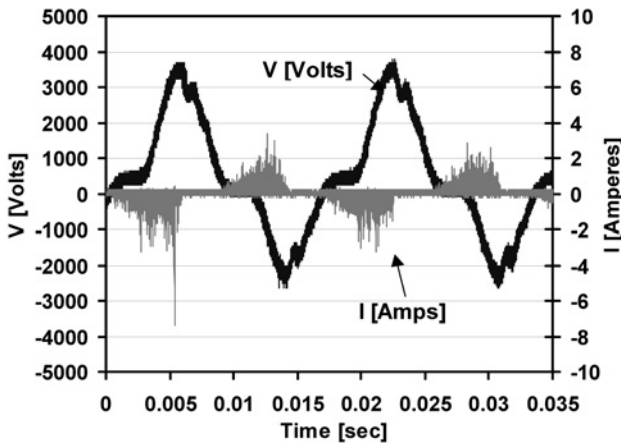


図8 バリア放電特性.

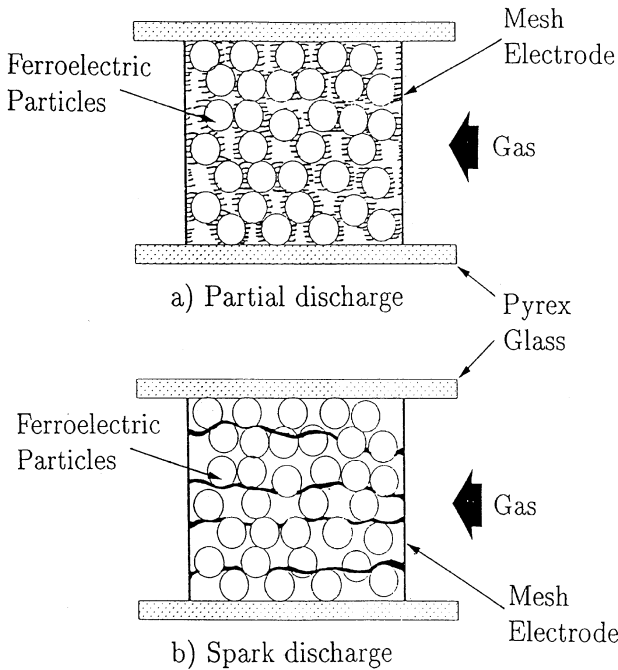


図9 パックトベットの放電形態.

充填式または移動層方式は、二つの金属電極（特にメッシュ電極）間に誘電体ペレットまたは粉体を充填した方式で、ガスの流れと印加電界の方向によって①同方向流方式 (Co-Flow) (図7(c),(d)), ②交差流方式 (Cross-Flow) (図7(e)) に分類される。本方式では、充填したペレット間の狭い空間にガス (ϵ_{gS}) とペレット (ϵ_{pS}) の比誘電率の差異によって表される次式

$$\epsilon_{gS} E_g = \epsilon_{pS} E_p \quad (2)$$

(g: ガス空間, p: ペレット内)

によって強電界が形成されるので、より強力なプラズマが充填層内で均一に発生する。図9に平行平板電極内にチタン酸バリウムの強誘電体を充填した場合の放電形態を示す[2]。図9a)ではガス空間のみプラズマが発生しているが、図9b)では印加電圧を上昇させたことにより、ストリーマが電極間に形成される。さらに、印加電圧を上昇さ

せるとプラズマがガス空間を通り抜け、スパークからアーク放電が電極間で発生する。

バリア放電では印加する電圧の周波数によっても放電をコントロールできるが、ジュール加熱と誘電損によって多くの発熱があるので、通常、電極の空冷または水冷が必要である。バリア放電で使用される周波数は商用 50~60 Hz 以外に、放電の均一性を向上させるために 1~10 kHz のものが多く使用されている。

3.7 大気圧グロー放電

大気圧グロー放電は、電極間に均一な発光を伴う放電で、上部電極に誘電体を被せた、バリエー型の電極構造で、使用ガスは He と他のガスとの混合で用いた場合のみ観測されている[15]。比較的大きな面積のプラズマ処理ができるという特徴がある。この誘電体層は特定の場所に放電が集中するのを防ぐ役割を持ち、ギャップは薄紫色に光り、更に微細に見ると細い絹糸のような放電が起きている。なお、この形式の放電は主として、有機・無機の化学反応を行うのに用いられている。大気圧グローの発生メカニズムは不明であるが、He ガスは気体中で一番熱容量が高いガスなので、熱的要素が主因である可能性がある。

4. 大気圧熱プラズマの種類と物理現象

4.1 熱プラズマの種類

大気圧プラズマの分類は発生源によって、図10に示される有極アークプラズマでは(1)単相交流オープンアーク；(2)直流オープンアーク；(3)三相交流アーク；(4)移行型アーク；(5)非移行型アーク；(6)中空電極アーク；(7)グライデングアーク等に分けられる[16]。通常熱プラズマはガス燃焼温度以上の 2,300 K を基準としている。図10で示されるように、基本的には電気アーク現象で、スパーク放電とは異なりプラズマに雰囲気ガスのみならず、電極材料の一部が蒸発し主なプラズマの組成イオンとなっている。一方、無電極熱プラズマは、図11に示されるようなコイル電極を対電管外部に数ターン巻いた誘導結合 (Inductive Coupling, ICP) 方式とリング電極間に高周波をかけた容量結合 (Ca-

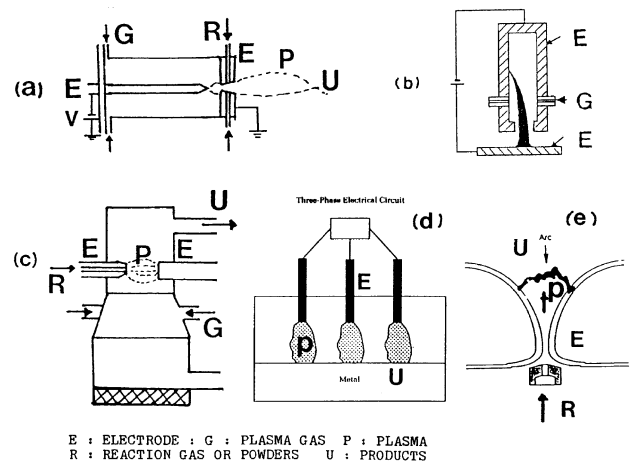


図10 有極アークプラズマ a) 非移行型アーク, b) 中空電極アーク, c) 単相交流オープンアーク, d) 三相交流アーク, e) グライデングアーク.

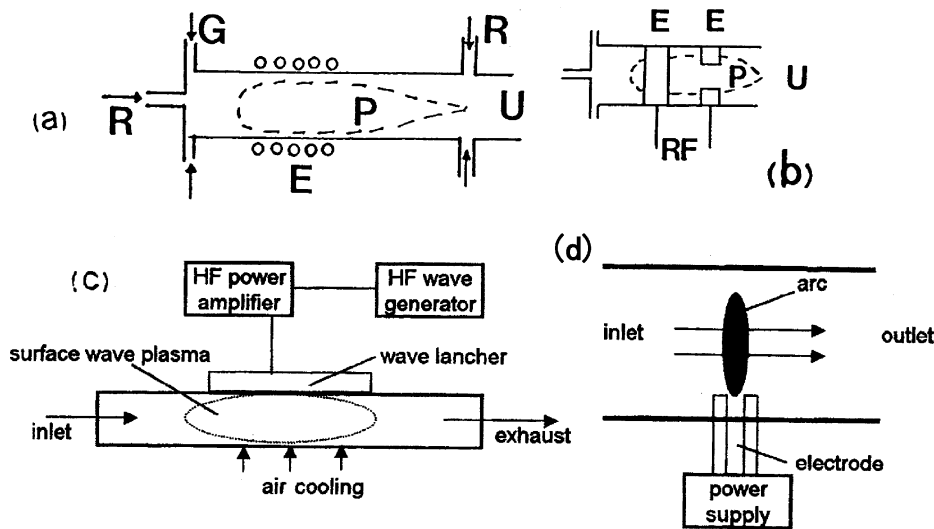


図11 無電極熱プラズマ。(a)誘導結合方式 (ICP), (b)容量結合方式 (CCP), (c)マイクロ波共振 (Cavity)方式, (d)マイクロ波プラズマトーチ方式 (MPT)。

capitive Coupling, CPP) 方式, マイクロ波共振 (Cavity) 方式, マイクロ波プラズマトーチ方式が使用されている [1, 16].

4.2 熱プラズマの発生維持とプラズマ化学

熱プラズマは, 化石燃料の燃焼火炎先端の温度約2,300 K 以上のガス/イオン温度を有するプラズマをもって規定される。火炎先端の2,000 K 近傍で, 原子または分子は振動し衝突を繰り返し, 熱電離が行われる。金属原子の熱電離は通常サハの方程式で表されるが, 金属原子と異なる複数のイオンが空間に生成存在するので, 例えば図12で示される Ar の例をとっても, サハの熱電離式で単純に表すことができず, 各種の化学反応を用いた化学反応式モデルを用いる必要がある。表3にその Ar での例を示す [17]。電離は熱電離のみならず, 電子衝突や電子励起された原子によってもなされる。また, 生成されたイオンはイオン分子反応等によって, 原子イオンのみならず分子イオンも生成される。

イオンや電子の消失は, 体積再結合が主なメカニズムとなるが, ガスによっては, 酸素や炭化水素等のように, 電子が付着して負イオンを生成し, 正負イオンによる荷電消失反応等もある。これらのイオン, 電子の消失・転換を通じて, ラジカルや励起粒子が生成される。

4.3 熱プラズマの流体コントロールと二次流の発生

熱プラズマでは, ガス温度が高いということとガス流速が速い(マッハ数 $M \geq 0.2$ を超えることもある)ので, 流体の取り扱い, 低温プラズマと異なり圧縮性気体となり, ガス密度が気体温度に依存するのみならず, 時間と空間で均一という仮定はなくなるので, 数値モデルは複雑となる。また, 電気流体の項に加えて, 大放電電流で発生する磁場による効果も考慮する必要がある。例えば, ICP プラズマではコイルの近傍に磁場による流体渦ができることがわかっているので, 電磁気流体力学モデルを用いて解析がなされている。

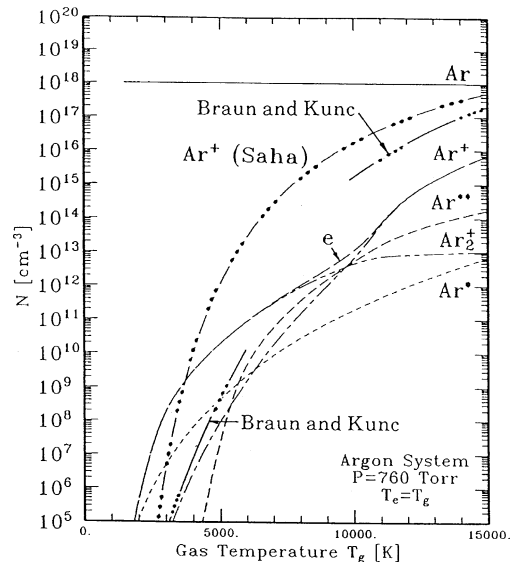


図12 Ar 熱プラズマ中のイオン; 中性励起粒子密度の計算例—サハの式—, Braun&Kunc Model [18] — — — [17].

4.4 熱プラズマの熱環境

図13に円錐-平面電極間の直流アークプラズマの温度分布の例を示す [1, 19]。ガス温度は, 電流の流れに沿って高温で, 21,000 K 近くの高温雰囲気を生じることができ。図14のように直流プラズマトーチはノズル間より, アークプラズマを吹き出させるので, プラズマの出口近くではやはり 10^4 K 近くのガス温度が生成できる [1, 20]。一方, ICP 等の高周波電極放電においては, 図15で示されるように [1, 21], 磁気渦の影響等も含めて, 約7,000 K の高温雰囲気を生成できる。マイクロ波プラズマトーチの温度雰囲気の解析が一番複雑で, 主に分光計測によって温度が決められている。その温度はマイクロ波プラズマトーチの形状で大きく異なり, 3,000~6,000 K の間の値が報告されている。したがって, マイクロ波トーチの種類によっては低温プラズマに分類されるものも存在する [22]。

表3 Ar熱プラズマの反応過程[17].

	Reactions		Reaction Rates [cm ³ /s], [cm ⁶ /s] ^a	Temperature Range [K]
Three-body Conversion	$Ar^+ + Ar + Ar \xrightarrow{k_1} Ar_2^+ + Ar$	k_1	$5.7 \times 10^{-32} \left(\frac{T_g}{300}\right)^{-\frac{3}{4}}$	Theory
Dissociative Recombination	$Ar_2^+ + e \xrightarrow{k_2} Ar + Ar$	k_2	$9.6 \times 10^{-7} \left(\frac{300}{T_g}\right)^{0.67}$ $4.38 \times 10^{-7} \left(\frac{670}{T_g}\right)^{1.5}$ $4.38 \times 10^{-7} \left(\frac{670}{T_g}\right)^{1.5} \left(\frac{T_g}{T_e}\right)^{0.60}$	$300 \leq T_e \leq 670$ and $T_g \leq 670$ $T_g \geq 670$ and $T_g \geq T_e$ $T_g \geq 670$ and $T_g \leq T_e$
Radiative Recombination	$Ar^+ + e \xrightarrow{k_3} Ar + h\nu$	k_3	$1.0 \times 10^{-12} \left(\frac{300}{T_e}\right)^{0.7}$	Theory
Thermal Ionization	$Ar + Ar \xrightarrow{k_4} Ar^* + Ar$ $Ar^* + Ar \xrightarrow{k_5} Ar^+ + e + Ar$	k_4 k_5	$10^{(-78.67 + 14.89 \log_{10}(T_g))}$ $10^{(-36.83 + 6.11 \log_{10}(T_g))}$	$7000 \leq T_g \leq 12000$ $7000 \leq T_g \leq 12000$
Three-body ^b Recombination	$Ar^+ + e + e \xrightarrow{k_6} Ar + e$	k_6	$10^{\left(\sum_{i=0}^s \sum_{j=0}^2 A_{ij} \left(\log_{10} \left(\frac{[e]}{10^{17}}\right)\right)^i \left(\frac{1000}{T_e}\right)^{\frac{j}{2}}\right)}$	$300 \leq T_e \leq 16000$ $10^{10} \leq N_e \leq 10^{16}$
Electron Impact Ionization	$Ar + e \xrightarrow{k_7} Ar^+ + e + e$	k_7	$2.0 \times 10^{-10} T_e^{\frac{1}{2}*}$ $(1 + 1.1 \times 10^{-5} T_e) e^{\left(\frac{-1.8 \times 10^5}{T_e}\right)}$	Cross Section & Theory
Cumulative Ionization	$Ar + e \xrightarrow{k_8} Ar^{**} + e$ $Ar^{**} + e \xrightarrow{k_9} Ar^+ + e + e$	k_8 k_9	$3.3 \times 10^{-11} T_e^{\frac{1}{2}*}$ $(1 + 1.5 \times 10^{-5} T_e) e^{\left(\frac{-1.4 \times 10^5}{T_e}\right)}$ $3.0 \times 10^{-11} T_e^{\frac{1}{2}*}$ $(1 + 4.5 \times 10^{-5} T_e) e^{\left(\frac{-4.5 \times 10^4}{T_e}\right)}$	Cross Section & Theory
Metastable-Metastable Collisions	$Ar^{**} + Ar^{**} \xrightarrow{f_{10}k_{10}} Ar^+ + Ar + e$ $Ar^{**} + Ar^{**} \xrightarrow{(1-f_{10})k_{10}} Ar_2^+ + e$	k_{10} f_{10}	6.12×10^{-10} 0.5	

^a[cm³/s] for two-body reactions and [cm⁶/s] for three-body reactions.

^bwhere $A_{00} = -13.319$ $A_{01} = 3.9654$ $A_{02} = -0.054716$
 $A_{10} = -0.30894$ $A_{11} = 1.4089$ $A_{12} = -0.24503$
 $A_{20} = -0.10322$ $A_{21} = 0.73602$ $A_{22} = -0.58010$
 $A_{30} = 0.028512$ $A_{31} = -0.1206$ $A_{32} = 0.085961$

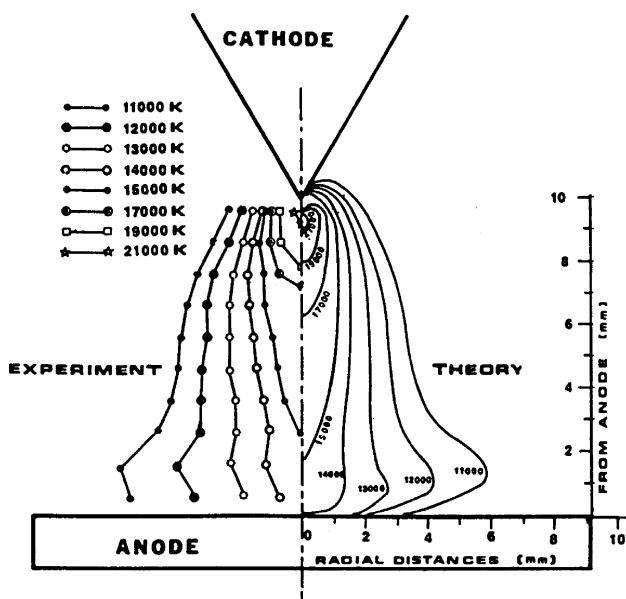


図13 円柱-平板電極間の直流アークの温度分布[19].

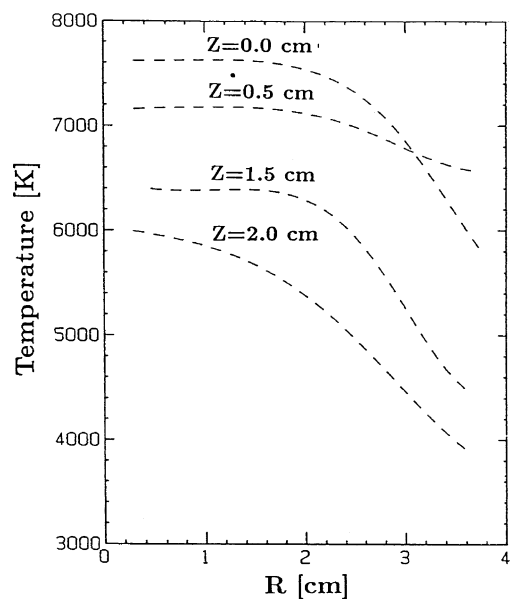


図14 直流プラズマトーチ出口の温度分布[20].

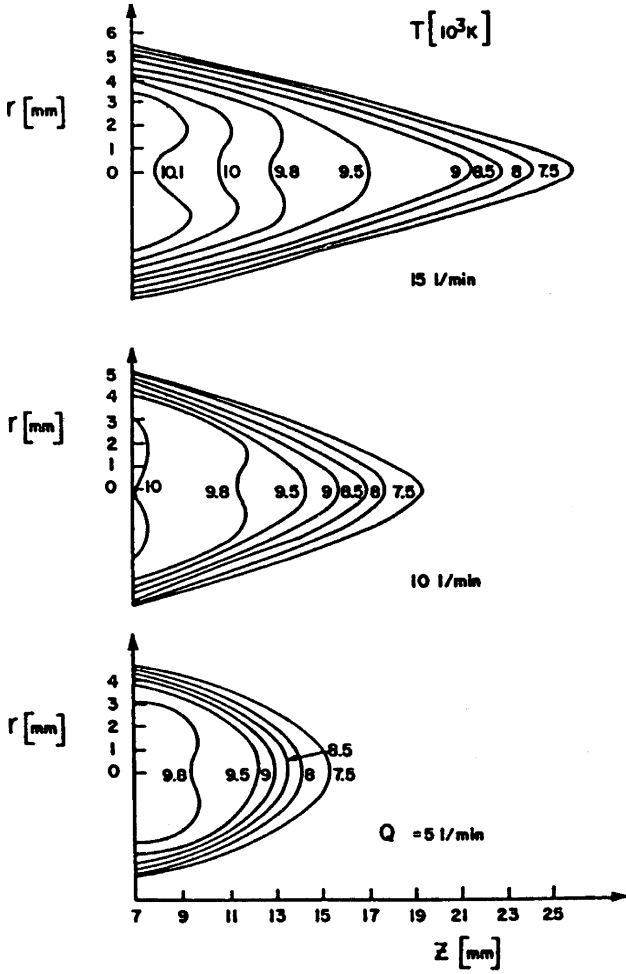


図15 ICP方式高周波プラズマトーチ出口の温度分布[21].

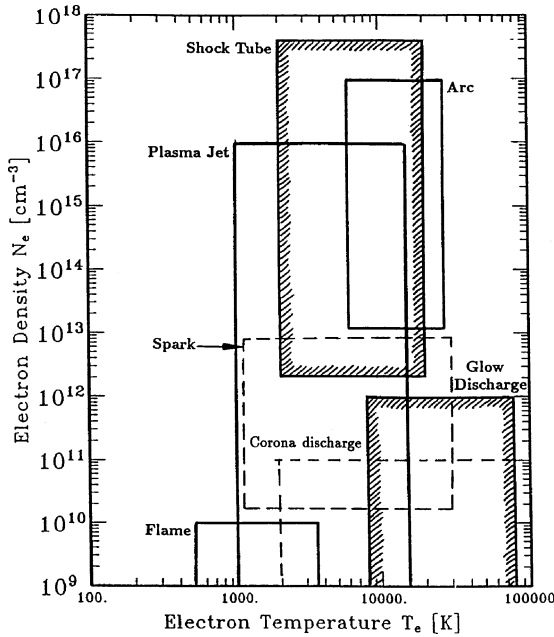


図16 各種プラズマのプラズマ密度—電子温度領域.

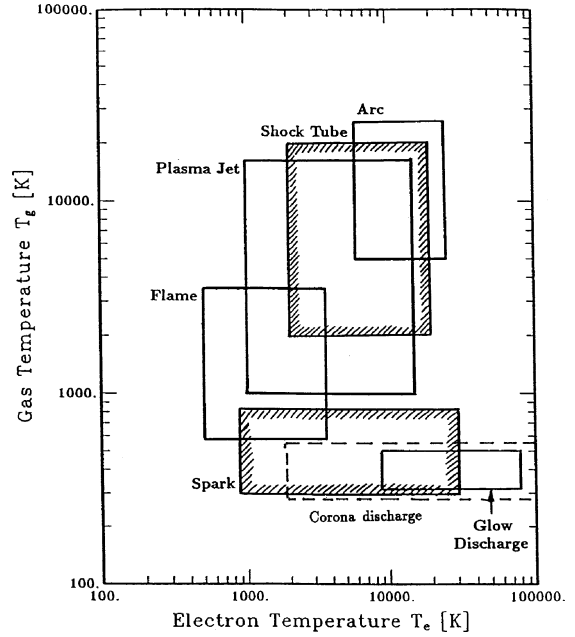


図17 各種プラズマのガス温度—電子温度領域.

表4 大気圧プラズマの支配方程式.

(1) Mass Conservation	$\partial\rho/\partial t + \nabla \cdot (\rho U) = 0$
(2) Momentum Conservation	$\partial\rho U/\partial t + (\rho U \cdot \nabla)U = -\nabla p + \lambda \nabla(\nabla \cdot U) + \mu \nabla^2 U + F_{EB}$
(3) Energy Conservation	$\rho C_p (\partial T/\partial t + U \cdot \nabla T) = \nabla \cdot (k \nabla T) + Q_{EB}$
(4) Ion or Electron Conservation	$\nabla \cdot J = -\partial N/\partial t + (source) - (sink)$
(5) Ion or Electron Transport	$J = UN \pm \mu NE - D \nabla N$
(6) Poisson's Equation	$\nabla \cdot (\epsilon E) = -eN$

子温度を基準にして各種プラズマについて示した。図16および図17で示されるように大気圧プラズマは熱プラズマでは、高温ガス温度と高いプラズマ密度が特徴的で、大気圧低温プラズマでは低いガス温度とプラズマ密度が特徴的である。しかるに、双方に共通なのは高い電子温度によって、プラズマが維持されているということである。大気圧プラズマの応用はこれらのそれぞれの特徴を用いて利用されている。

5.2 電気流体力学的二次ガス流の発生と支配方程式

大気圧プラズマの支配方程式は通常表4に示される流体モデルが用いられている[23]。第1, 2, 3式は流体の質量, 運動量, エネルギー保存式で、第4, 5式は電子, 正または負イオンの荷電粒子の質量保存式と輸送方程式である。ガス流体の質量保存式は、ガスの密度時間変化の第1項と(密度×速度)の保存の第2項に分けられる。大気圧

5. 結言

5.1 大気圧プラズマのプラズマパラメータ

図16にプラズマ密度の範囲, 図17にガス温度の範囲を電

表5 電磁気流体の項.

Additional Force and Energy Terms	
(i) Force density terms :	
$\vec{F}_{EB} = \rho_{ie}\vec{E} + \vec{j} \times \vec{B} - \frac{1}{2}E^2\nabla\epsilon - \frac{1}{2}H^2\nabla\mu + \nabla\left[\frac{1}{2}\rho E^2\left(\frac{\partial\epsilon}{\partial\rho}\right)_T + \frac{1}{2}\rho H^2\left(\frac{\partial\mu}{\partial\rho}\right)_T\right]$	
1 st term: force density due to the space charge 2 nd term: force density due to the charged particle motion 3 rd term: force density due to the dielectric property change 4 th term: force density due to the fluid permeability change 5 th term: force density due to the electrostriction and magnetostriction	
(ii) Energy terms due to electromagnetic fields :	
$Q_{EB} = (\vec{j} - \rho_{je}\vec{U})(\vec{E} + \vec{U} \times \vec{B}) + \nabla \cdot (\vec{E} + \vec{U} \times \vec{B}) \times (\vec{H} - \vec{U} \times \vec{D}) + \left[\vec{E} \frac{d}{dt} \left(\frac{\vec{D}}{\rho} \right) + \vec{H} \frac{d}{dt} \left(\frac{\vec{B}}{\rho} \right) \right] \rho$	
1 st term: energy generation due to the flow of charged particles such as ohmic heating 2 nd term: energy generation due to the polarization such as electromagnetic hysteresis loss 3 rd term: energy generation due to the displacement current and time varying magnetic field such as energy storage in an electromagnetic system	

低温プラズマでは非圧縮性気体と仮定できるので密度 ρ は一定と仮定できるが、熱プラズマでは圧縮性ガスのため、この仮定はできない。第2式は運動量保存の式で、左辺第1項の運動量 ($\rho\vec{u}$) の時間変化、第2項の慣性、右辺第1項の圧力、第2項の粘性に加えて、第4項については表5の第1式で示される電磁界による運動量の変化を考慮する必要がある。この電磁気流体の項は、空間電荷の第1項、誘電分極の第2項、磁性分極の第3項、電歪の第4項と磁歪の第5項がある。低温プラズマでは、放電電流が小さいので、外部磁場を印加しても磁場の項の影響は小さい。しかるに、熱プラズマでは、放電電流が大きいのと、高周波を使用する機会が多いので、全ての項を考慮する必要がある。これらはエネルギー保存式にもあてはまるが、ここでは詳細を略す。

表4第4式において右辺第1項は気体による輸送、第2項と第3項は化学反応による生成と消滅である。表4第5式において右辺第1項は気体による輸送、第2項は電界による輸送、第3項は拡散項である。磁場の効果は通常、拡散係数 D と移動度 μ をテンソル化して導入されている。また、表4第6式は電界を支配するポアソンの式で、電磁界を支配するマクスウェルの式はここでは略す[8]。

これらの支配方程式より、流れ U 、温度 T 、ガス密度 ρ 、イオン密度 N_+ または N_- 、電子温度 N_e 、電界 E 、磁界 B および圧力 P は複雑に相互に影響しあうのが大気圧プラズマの特徴である。したがって、ガス流を加えなくても、放電プラズマによって二次的にガス流が生成される。また、ガス流が層流で放電領域に導入されても、下流では渦が発生したり、乱流に移行する現象が見られているので[23]、将来の研究が必要とされている。

5.3 電磁波の発生と EMC

EMC (electromagnetic compatibility) の問題は直流や交流アークおよびプラズマトーチでは、その電圧より発生する低周波成分の影響がある。例えば、0.3 Hzの電磁波は、主

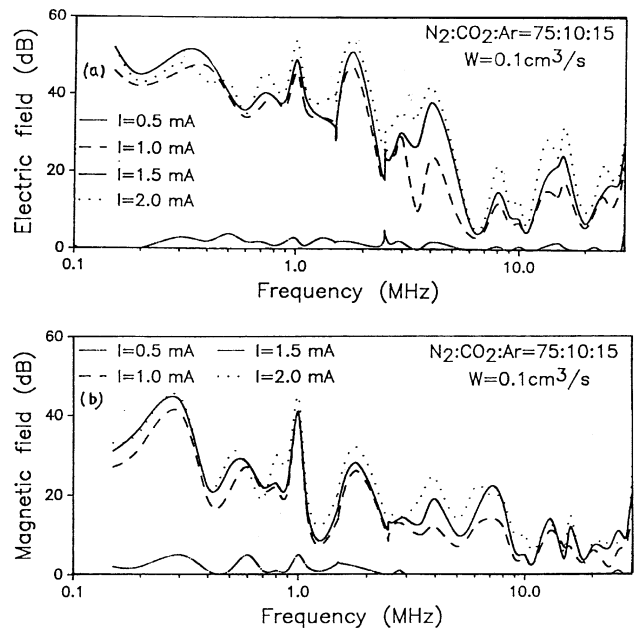


図18 コロナトーチによる電磁波放射周波数特性. a)電界, b)磁界[3].

に人間の目に害があることがわかっている。コロナトーチ、高周波トーチやマイクロ波の場合は、かなり広い範囲にわたった周波数成分が図18の例で見られるようにあり、特に数kHz以上の成分によるコンピュータ等の誤動作が注目されている[3]。

コロナ放電の基礎過程、応用や EMC の問題については文献[1, 2, 3, 8, 9]を参考されたい。

参考文献

[1] T.G. Beuthe and J.S. Chang, *Glow Discharge Phenomena*, Ch.9 of *Handbook of Corona Discharge Processes*, J.S. Chang et al. Ed., (Merzel Dekker, New York, 1995).
 [2] J.S. Chang, P.A. Lawless and T. Yamamoto, *IEEE Trans.*

- Plasma Sci. **19**, 1152 (1991).
- [3] J.S. Chang, IEICE Trans. Commun. **E79-B**, 447 (1996).
- [4] E. Marode, J. Appl. Phys. **46**, 2005 (1975).
- [5] K. Takaki, J.S. Chang and K.G. Kostov, IEEE Trans. Dielect. Elect. Insul. **11**, 481 (2004).
- [6] J.S. Chang and S. Masuda, J. Pure Appl. Chem. **60**, 645 (1988).
- [7] J.S. Chang and A. Kwan, *Proc. ESA-IEJ Symp. on Electrostatics*, J.M. Crowley and K. Asano Ed., (Laplacian Press, California, 1998) p.390.
- [8] J.S. Chang, R.M. Hobson, 市川幸美, 金田輝男: 電離気体の原子分子過程 (電機大学出版, 東京, 1983) [*in Japanese*].
- [9] I. Glinberti, J. Phys. D: Appl. Phys. **40**, 193 (1979).
- [10] J.S. Chang, Sci. Tech. Adv. Materials **2**, 571 (2001).
- [11] I. Maezono and J.S. Chang, J. Appl. Phys. **59**, 2322 (1988).
- [12] Y. Uchida, K. Urashima, J.W. Hoard and J.S. Chang, Jpn. J. Electrostatics **26**, 281 (2002).
- [13] K. Uchimura, S. Nitta, J.S. Chang, IEICE Trans. Commun. **E79-B**, 490 (1995).
- [14] K. Urashima, H. Miyamoto and T. Ito, Comb. Sci. Tech. **133**, 79 (1998).
- [15] M. Kogama and S. Okazaki, Kagaku Kogaku **3**, 56 (1993) [*in Japanese*].
- [16] J.S. Chang and R.P. Mahant, *Resource Conversion and Environmental Technologies in Metallurgical Industries* (CIM-Press, Toronto, 1994) p.119.
- [17] T.G. Beuthe and J. S. Chang, Jpn. J. Appl. Phys. **38**, 98060 (1999).
- [18] C.G. Brawn and J.A. Kunc, Phys. Fluids **31**, 671 (1988).
- [19] K.C. Hsu, K. Etemadi and E. Pfender, J. Appl. Phys. **54**, 1293 (1983).
- [20] I. Izumi, T.G. Beuthe, F.Y. Chu, J.S. Chang and T. Kaneda, Res. Report of Tokyo Denki University Engineering **46**, 11 (1998).
- [21] A.V. Donskoi, V.M. Goldfarb and V.S. Klubnikin, *Physics and Technology of Low-Temperature Plasma* (Iowa University, Press, 1972).
- [22] M. Jashinski, J. Mizeraczyk, Z. Zakrewski, T. Ohkubo and J.S. Chang, J. Phys. D: Appl. Phys. **35**, 2274 (2002).
- [23] J.S. Chang and A. Watson, IEEE Trans. Dielect. Elect. Insul. **1**, 871 (1994).



ジェン シー チャング
Jen-Shih Chang

武蔵工業大学電気工学科学士および修士
1969年/1971年卒。カナダ・ヨーク大学実験宇宙科学科1973年博士課程修了 (Ph. D.) 後, フランス CNRS-GRI 研究員, ヨーク大学物理科助教授を経て, 1979年よりカナダ・マクマスター大学物理工学科で助教授, 副教授, 教授就任。2005年より名誉教授。現在, マクマスター大学でプラズマ環境・エネルギー技術の研究を専従している傍ら, 日本文部科学省科学技術政策研究所国際委員, 中国環境総局環境技術委員, IEEE 電気流体技術委員長, ポーランド科学アカデミー流体機械研究所, 仏ポアテエ大学, 武蔵工大, 中国安全・環境研究所等の客員教授。趣味は新石器時代の考古学の旅。