

# 発光分光特性による大気圧マイクロ波プラズマトーチ特性の検討

金井博史 山村辰徳 藤分浩一郎 中嶋康雄 神藤正士

(2005年1月24日受理)

## Consideration of Atmospheric Microwave Plasma Torch from its Emission Spectroscopy

Hiroshi KANAI, Tatsunori YAMAMURA, Kouichiro FUJIWAKE, Yasuo NAKASHIMA and Masashi KANDO

(Received January 24, 2005)

### Abstract

Atmospheric microwave plasma torch can be produced by the TIAGO nozzle with simple structure, applying the 2.45 GHz microwave power around 200 W. It can feed the gas through the pipe opened along the nozzle axis. In the present work, the properties of the torch plasma were investigated through the spectroscopic measurement. It was found that the spectral profiles of the light emission from the torch plasma depend on the axial position of the plasma in such a way : 1) the spectral profiles within the filamentary plasma near the nozzle, i.e, within 20 mm from the nozzle tip, have discrete line spectra from 600 to 850 nm due to ArI, 2) above such a region, discrete line spectra from 350 to 500 nm become stronger and comparable to those of longer wavelength mentioned at 1), 3) in the region of the plume which appears above and or surrounding the filamentary plasma, the broad spectral profile from 500 to 800 nm becomes dominant over the discrete line spectra mentioned at 1) and 2). It is found that the line spectra described at 1) is rather similar to ones from the atmospheric planar dielectric barrier discharge and low-pressure microwave glow discharge, which are considered to be typical non-thermal equilibrium plasmas. However, it tends to a thermal plasma quickly with separating from the filamentary plasma.

### 1. はじめに

トーチ状プラズマは、通常、交流やRF電力が利用され、比較的簡単な構造の電極を用いて大気圧中で細長くシャープな形状の熱プラズマが生成される。このため、金属の溶接や切断の他、TiO<sub>2</sub>やSiO<sub>2</sub>などの微粉末をトーチプラズマ中で溶融させ基板上に高機能膜を生成するプラズマ溶射など様々な分野で実用化されている。最近開発された小型マイクロ波プラズマトーチは、これまでのACまたはRFプラズマトーチに比べてより簡便な装置である上に、トーチプラズマ発生に供給される2.45GHzマイクロ波も小電力で間に合うため、微量元素の分析装置や小型UV光源などへの新たな展開が期待されている。マイクロ波プラズマトーチを発生するノズルには同軸型ノズル<sup>1)</sup>とTIAGO型ノズル<sup>2)</sup>があり、いずれも100W程度のマイクロ波電力で大気中でトーチプラズマを発生できる。TIAGO型ノズルは円錐形でテーパー導波管のH面に取り付けられ、ノズル側面と導波管H面との間の0.5mmの隙間から漏れるマイクロ波がノズル先端に集中して大気を絶縁破壊し、プラズマを発生すると考えられている。一方、同軸型ノズルでは、ノズル先端で外部導体端より2~3mm突き出た内部導体先端に集中するマイクロ波により大気が絶縁破壊されプラズマが生成される。一たびプラズマが生成されると、周辺のがスがプラズマの熱で加熱されて上昇するので、プラズマは自然にローソク状のトーチプラズマとなる。TIAGO型ノズルはその軸に沿ってパイプが設けられていて、このパイプにより種々のガスをトーチプラズマに供給できる構造を有している。プラズマによって加熱されやすいノズル先端部は、このガス流により冷却することができる。トーチプラズマは、中心部のフィラメントとその上部のブルームとで構成され、ガス流とマイクロ波電力によりそれらの長さが変化する。

このようなマイクロ波プラズマトーチは通常熱プラズマとして扱われる。事実、SUSやニッケルなどの金属板をフィラメント部に曝すと短時間で溶融することから、熱プラズマとしての性質を備えていることが理解される。しかし、トーチプラズマは専らノズル先端部で生成されると考えられ、ガス流で冷却されていることから、この付近のプラズマが熱化されているとは考えにくい面がある。本研究は、ノズル先端部から上方に向かって立ち上がるトーチプラズマの特性の空間的な変化を、プラズマからの発光スペクトルを測定することにより検討することを目的とする。トーチプラズマの周りの大気はプラズマ内に巻き込まれて、発光スペクトルの構造を複雑にし解析を困難にする。このため、トーチプラズマを大気から遮断するために石英管を取り付けた実験を行った。この結果、ノズル先端部の発光スペクトルは非平衡プラズマに類似したものであることが明らかにされた。この性質はトーチプラズマの応用に新たな局面を拓く可能性があり、重要な結果であると考えられる。

### 2. 実験装置および結果

#### 2-1) TIAGO型ノズルおよびトーチプラズマ

実験では、ガス供給が可能で熱損傷が少なく、プラズマの特性を調べやすいTIAGO型トーチを用いた。このノズルの詳細を図1に示す。ノズルはマイクロ波電力密度を高めるためテーパー導波管を用い、図1のようにH面中心に設置される。ノズルの前後にはE-Hチューナと可動ブランジャが置かれ、これらを調整してインピーダンスマッチングを取ることで、低電力のマイクロ波で安定なトーチプラズマが生成される。導波管には、管内波長の1/2の間隔でノズルを取り付けられ、同時に複数のトーチプラズマを生成できる。図2(b)に大気中で生成された2

個のトーチプラズマの例を示す。トーチプラズマの維持に必要なマイクロ波電力は、ノズルの数にほぼ比例した。図3(a)はアルゴンガスをノズル先端から噴出させて形成したトーチプラズマである。図2に較べてトーチ状のシャープなプラズマ中が形成されていることが判る。図3(b)はこの構造を模式化したもので、ノズル先端から上方に向かって赤紫色のフィラメントが伸び、さらにその上に白色のブルームがフィラメント部を覆って

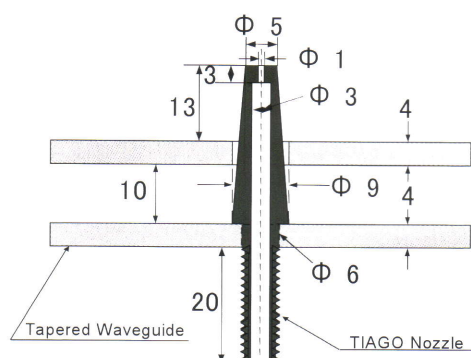
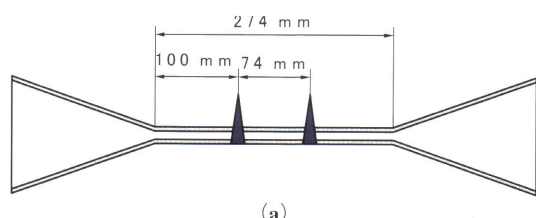
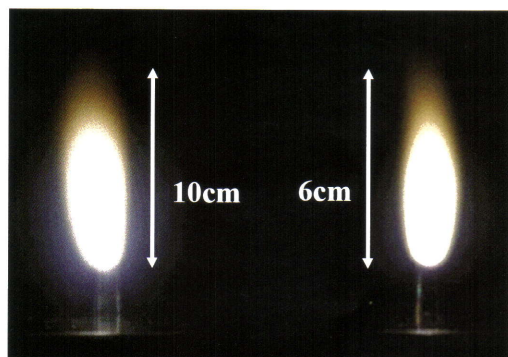


図1. TIAGO型ノズル詳細図(単位: mm)

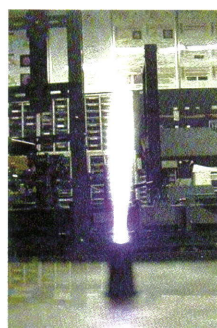


(a)

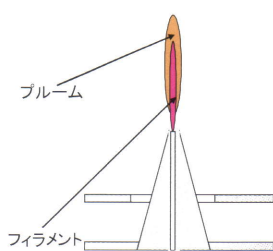


(b)

図2. 2つのTIAGO型ノズルを取り付けたテーパ導波管(a)および2つのトーチプラズマ(b)



(a)



(b)

図3. アルゴンプラズマトーチ(a)およびトーチ構造を示す模式図(b). マイクロ波入射電力: 150W

いる様子を表している。ガス流量一定で、マイクロ波入力を増加させると、ブルームが長くなるがフィラメント部の長さはやや延びるものの、ブルームほど大きくは変化しなかった。またマイクロ波電力を一定にしてガス流量を増やしても、トーチプラズマの長さや構造はほぼ一定であった。空気をノズルから供給すると、アルゴンに較べてずっと大きく長い白色のプラズマ中が形成された。以上の実験結果から、トーチプラズマの形状は、主としてマイクロ波電力に依存するがガス流量には影響を受けないこと、供給されるガスの電離電圧に大きく影響されることが判る。

## 2-2) 石英ガラス管でカバーしたトーチプラズマ

本研究では、発光スペクトルからトーチプラズマの特性を検討することを目的としている。この場合トーチプラズマに供給するアルゴンガスに空気が混じると発光スペクトルが複雑に変化し解析が難しくなる。このため、ノズルに直径18mm、高さ500mmの石英管をかぶせてトーチプラズマを大気から遮断することを試みた。図4にその様子を示す。この結果、ブルームのプラズマの色は白色から赤紫色に変化し、また、マイクロ波電力一定の下でガス流量を増すと、ブルームの長さは伸びたがフィラメント長はほぼ一定であった。これらのことから、大気中で覆いを取り付けない場合には多くの空気がトーチプラズマに取り込まれていることが考えられる。

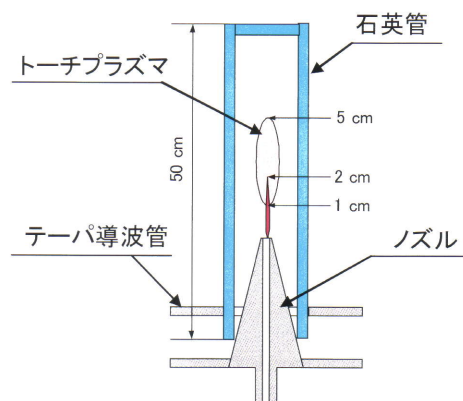


図4. 空気遮断用石英管を取り付けたノズル

## 2-3) トーチプラズマの発光スペクトル

トーチプラズマの特性を調べるために、発光スペクトルの軸方向の変化を測定した。測定においては、レンズによりトーチプラズマをスクリーン上に拡大して結像し、その像のあらかじめ定められた諸点からの放射光を光ファイバーで検出し、分光器(HR2000CG-UV-NIR Ocean Optics社)に入力することにより、発光スペクトルのトーチ軸方向の変化を測定した。図5に石英管のない場合の、また、図6に石英板を取り付けた場合のトーチプラズマの発光スペクトルを、ノズルからの距離Z(mm)をパラメータとして表示した。Z=0および5mmの場合、ガラス管の有無にかかわらず800nm付近に多くの離散的なAr Iのスペクトルが観測されているが、Zが増すに連れてガラス管による大気遮断の効果が強く現れてくる。すなわち、ガラス管がない場合には300~900nmにかけて連続スペクトルが強く現れ、Z=30mmでは熱放射のような連続スペクトル分布になるが、ガラス管有りの場合には連続スペクトルの増大は少なく、300~400nm付近にAr IおよびAr IIの離散的なスペクトルが強く現れ、800nm付近

のスペクトルが消滅していることが分かる。

以上を要約すると、ガラス管を取り付けることによりプラズマの発光スペクトルは大きく変化する、ノズル先端付近では800nmを中心にAr Iの離散的なスペクトルが支配的であるが、Z>15mmでは、300~400nm付近に離散的なスペクトルが集中し、その強度は連続スペクトルや長波長域の離散的なスペクトルよりも強くなる。これとは対照的にガラス管なしの場合にはZ>15mmでは強い連続スペクトルが300~900nmに現れる。この相違は、O<sub>2</sub>、N<sub>2</sub>に起因するスペクトルは顕著には観測されていないが、トーチプラズマに巻き込まれた空気によるものと考えている。興味深いことは、Z<5mmにおける離散的なスペクトル分布が非熱平衡プラズマからの発光スペクトルに類似していることである。これを確かめる目的で代表的な2種類の非熱平衡プラズマの発光スペクトルを観測し、トーチプラズマのそれと比

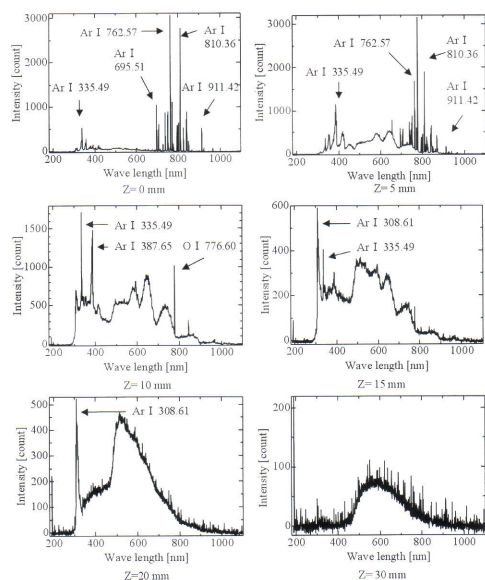


図5. 石英管なしの場合のトーチプラズマの発光スペクトル。Z：ノズルからの距離、マイクロ波入射電力：300W、同反射電力：50W、アルゴンガス。

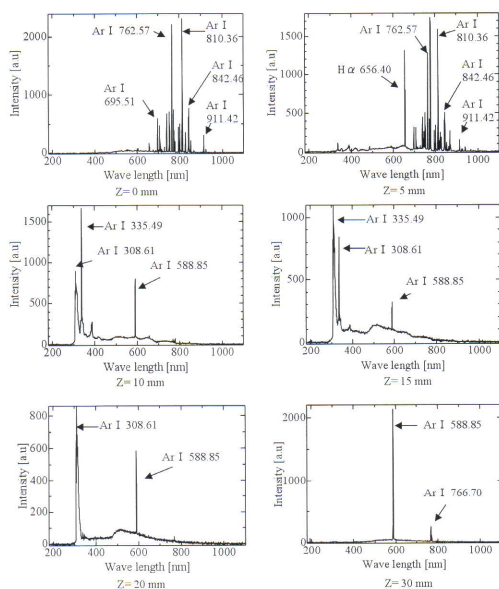


図6. 石英管を取り付けた場合のトーチプラズマの発光スペクトル。Z：ノズルからの距離、マイクロ波入射電力：300W、同反射電力：50W、アルゴンガス。

較することとした。ここでは、非熱平衡プラズマとして1.0~10.0Torrのマイクロ波放電アルゴンプラズマと大気圧平板型バリア放電アルゴンプラズマを取り上げた。図7にマイクロ波放電プラズマ生成装置を、図8にAr2.0Torrのグロー-状マイクロ波放電を、図9にその発光スペクトルを示す。

次に、図10に平板型誘電体バリア放電装置を、図11に大気圧アルゴン中の誘電体バリア放電を、図12にその発光スペクトルを示す。印加電圧は、 $f=2.1\text{kHz}$ 、 $V_{pp}=9\text{kV}$ であり、消費電力は20Wであった。この放電は、大気中で点灯すると多量のオゾンが生成されることから、オゾンナイザとして利用されているが、これはこのプラズマが非熱平衡プラズマであることを証明している。

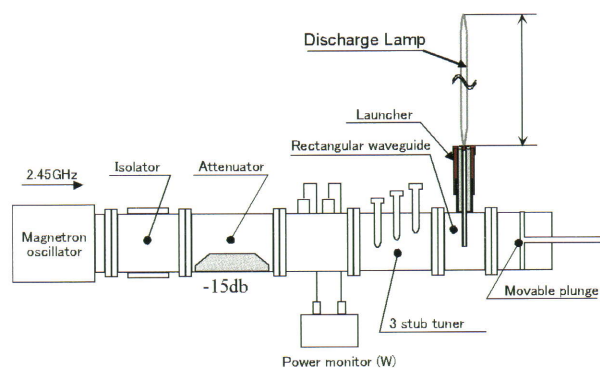


図7. マイクロ波放電装置

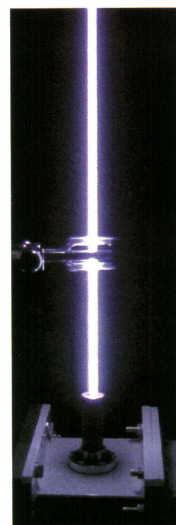


図8. 低気圧マイクロ波グロー放電  
アルゴン1Torr、マイクロ波入射電力：200W

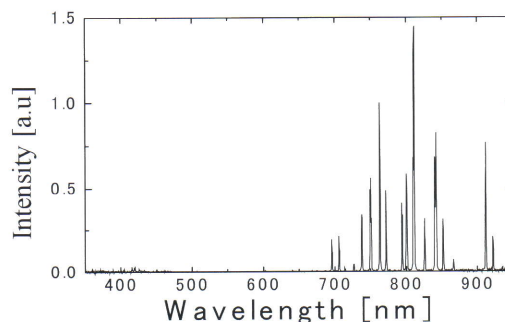


図9. 低気圧マイクロ波放電の発光スペクトル  
マイクロ波入射電力：50W、アルゴン：2.0Torr。



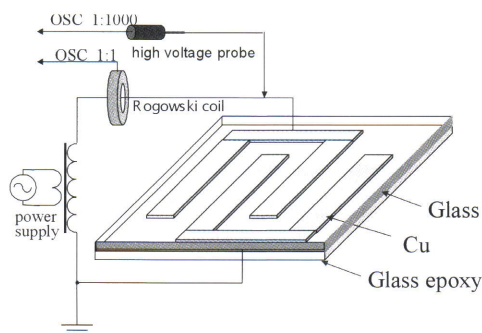


図10. 平板型誘電体バリア放電装置

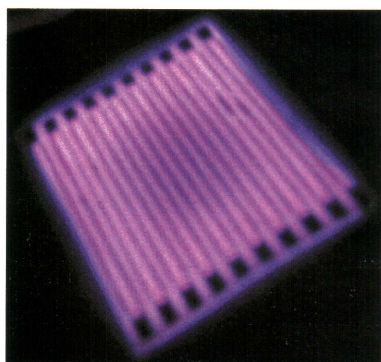


図11. 平板型誘電体バリア放電  
アルゴン1気圧、印加電圧9kV、  
消費電力：20W.

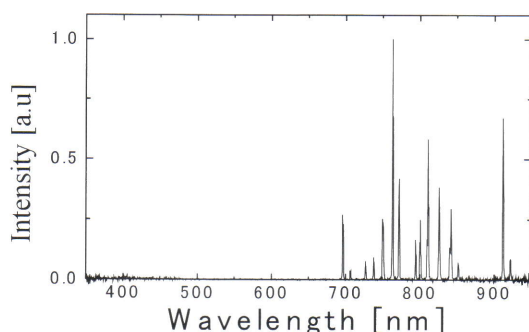


図12. 大気圧誘電体バリア放電発光スペクトル  
アルゴン、1気圧

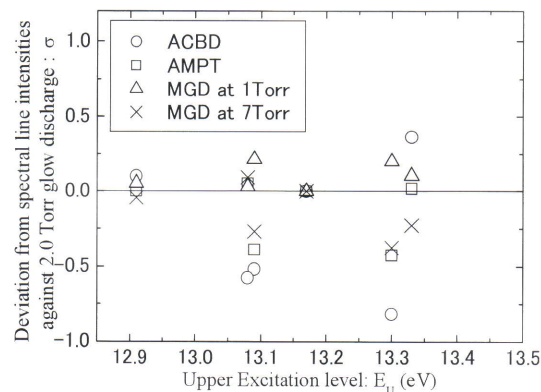
図6のZ=0mmの発光スペクトルは、図9および図12の2つの非熱平衡プラズマの発光スペクトルに類似していることが判る。

次に上記の類似性を定量的に調べるために、Ar I : 763.51nm ( $4p[3/2]_1 \rightarrow 4s[3/2]_1$ )のスペクトル強度で規格化した後、(1)式で定義される低気圧マイクロ波グロー放電の発光スペクトルとの偏差  $\sigma$  を計算した。

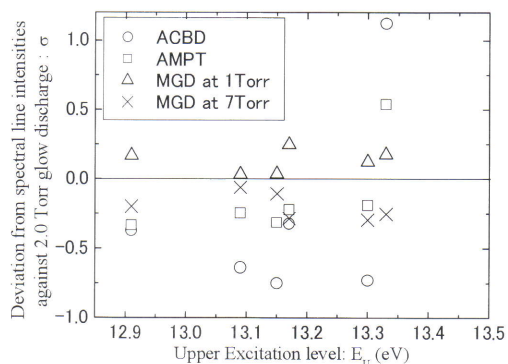
$$\sigma = \frac{A-B}{B} \quad (1)$$

ここで、Aは試料となる放電(大気圧マイクロ波プラズマトーチ：略称AMPT、平板型誘電体バリア放電：ACBD)、Bは標準となるマイクロ波グロー放電(MD)の同じ波長のスペクトル強度である。図13(a)～(c)に3つの下準位毎に、上準位をパラメータとして求めた  $\sigma$  の計算結果を示す。なお、ノズル先端部における大気圧マイクロ波プラズマトーチのスペクトルを対象としている。□印で示されるAMPTの  $\sigma$  は、○印のACBDの  $\sigma$  より

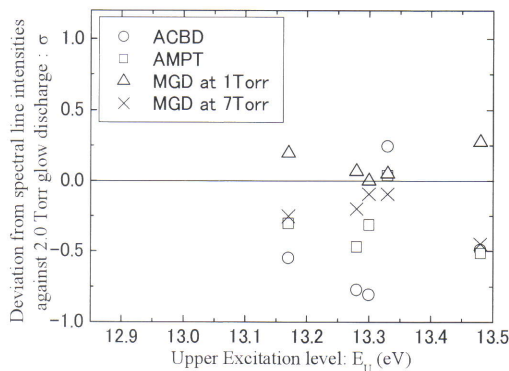
も小さな値であることが判る。この結果より、大気圧マイクロ波プラズマトーチで生成されるプラズマは、ノズル先端部のフィラメント部では平板型大気圧誘電体バリア放電と同様に非平衡プラズマである可能性が高いと考えられる。しかし、ノズルから離れるにつれて、高頻度の衝突過程を経て急速に熱化するため、オゾンなどの熱に弱い分子は破壊されてしまい、検出されなくなると考えられる。



(a) Lower Excitation State : 11.55 [eV] ( $4s[3/2]_2$ )



(b) Lower Excitation State : 11.62 [eV] ( $4s[3/2]_1$ )



(c) Lower Excitation State : 11.83 [eV] ( $4s[1/2]_1$ )

図13. 各種プラズマと低気圧マイクロ波グロー放電からの発光スペクトルの比較、いずれのプラズマもアルゴンを使用。ACBD、AMPT、MDはそれぞれ、大気圧平板状誘電体バリア放電、大気圧マイクロ波プラズマトーチ、低気圧マイクロ波グロー放電の略称。

### 3. まとめ

簡単な構造のTIAGO型ノズルを用いて生成される大気圧マイクロ波プラズマトーチの特性を、発光スペクトルより考察した。このノズルは中心軸に沿って開けられているパイプを用いてガスを供給できる上、インピーダンスマッチングが簡単に得られ、200W程度のマイクロ波電力で安定なトーチプラズマが得られることから、利用価値が高いと考えられる。トーチプラズマには周囲の大気が巻き込まれることが判ったが、これは石英管をノズルにかぶせることにより制御できた。プラズマの特性は、石英板で覆うことにより、フィラメント部が長くなり、その上部でフィラメント部を覆うブルーム部の色もアルゴン発光色に変化した。

ノズル先端部からフィラメント部にかけてのプラズマからの発光スペクトルは、700-850nm付近の離散的なAr Iの線スペクトルで構成されているが、上にのぼるにつれて、350-500nmの離散的なAr Iのスペクトル強度が強くなり、さらに上部では、400-800nmにわたる連続的なスペクトルが支配的となった。これは、石英管を用いない場合に顕著となった。

ノズル先端部の発光スペクトルを、典型的な大気圧非平衡プラズマである誘電体バリア放電と低気圧マイクロ波グロー放電の発光スペクトルと比較したところ、グロー放電のそれと類似していることが判った。これはノズル先端部のフィラメント上のプラズマでは平板型大気圧誘電体バリア放電と同様に非平衡プラズマである可能性が高いと考えられる。しかし、強い上昇気流で上部に輸送される過程で熱化し、ブルームでは熱プラズマに変化していることが明らかになった。この結果は、トーチプラズマの特性の改善に手がかりを与えるものと考えられる。

### 参考文献

- 1) H.Kanai, K.Fujiwake, T.Yamamura and M.Kando, *"Properties of Microwave Plasma Torches in the Atmosphere"*, Proc. of Int'l COE Forum on Plasma Science and Technol., (April 2004, Nagoya) p.49.
- 2) M.Moisan, Z.Zakrzewski and J.C.Rostaing: *"Waveguide-based single and multiple nozzle plasma torches: the TIAGO concept"*, Plasma Sources Sci. Technol., **10** (2001) 387.