

## 講座

熱プラズマの物理・化学過程とその応用Ⅱ

## 2. 高周波誘導熱プラズマにおける物理・化学過程

渡 辺 隆 行

(東京工業大学工学部)

(1995年12月7日受理)

Physical and Chemical Processes in Radio Frequency Thermal Plasmas

WATANABE Takayuki

*Department of Chemical Engineering, Tokyo Institute of Technology, Tokyo 152, Japan*

(Received 7 December 1995)

## Abstract

Radio Frequency thermal plasmas offer a high-temperature source with free electrode contamination, and have a number of applications with chemical reactions. The distributions of the temperature, velocity and chemical species concentration have been calculated, however more sophisticated model with turbulence, non-LTE, or chemical reactions is indispensable to development of novel plasma processing.

## Keywords:

thermal plasma, radio frequency plasma, modeling, electromagnetic field, local thermodynamic equilibrium

## 2.1 はじめに

高周波誘導 (Radio Frequency, RF) 熱プラズマは、直流アーク放電について現れた比較的新しいタイプのプラズマで、材料プロセッシングに広く用いられている。しかしRF熱プラズマの物理的な現象や化学的な現象は解明されていないことが多く、装置の開発や改良は経験的に行われていることもある。そこでこの章ではRF熱プラズマの物理および化学過程について、現在までに解明されてきたこと、および現在の問題点について解説する。

RF熱プラズマの発生方法は金属等の誘導加熱と同じ原理である。つまり石英管でできた水冷トーチ内に大気圧程度のガスを流し、管外の誘導コイルに数MHzの高周波電流を流す。その高周波電流によって生じる電磁場により、プラズマを誘導的にトーチ内に発生させる方法

である (Fig. 1)。トーチ内部の中心軸方向に高周波の周波数に応じて変化する磁界を生じ、また同時にプラズマに電磁誘導作用により円周方向に渦電流が流れる。この電流によって生じるジュール加熱によって高温のプラズマが維持される。このような原理によってReed[1, 2]がRF熱プラズマトーチの原型を1961年に開発したが、現在使用されているトーチも基本的にはこれと同じである。商品化されているRF熱プラズマ装置は周波数が2~5MHz、出力が5~100kW程度である。

RF熱プラズマの重要な特色は、大きな直径(5~6cm程度)のプラズマであること、およびガス流速が直流アークに比べて1桁程度低いことである。そのためにプラズマ内における反応物質の滞留時間を長くすることができる。

RF熱プラズマの次の特色は、反応後の超急冷が可能

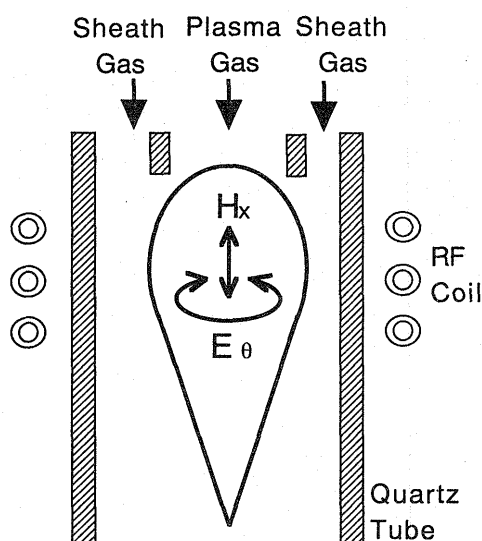


Fig.1 RF thermal plasma torch.

であることである。トーチ出口に水冷等による急冷装置を設置することにより、 $10^5 \sim 10^6 \text{K/s}$  程度の冷却速度を得ることができる。材料プロセッシングにおいて熱力学的に不安定な材料合成をしようとする場合には、エネルギーレベルの高い状態で準安定相を凍結しなくてはならない。このような急冷が可能である RF 熱プラズマは、新しい材料合成の手段として適している。

また RF 熱プラズマは無電極放電の一種であることも、材料合成に適している点である。無電極放電であるために電極物質が不純物としてプラズマ中に混入しない。さらに各種の反応性ガスを使用して、酸化雰囲気や還元雰囲気を自由に選択することができる。

しかし無電極放電である RF 熱プラズマは、外的じょう乱には敏感である。これは RF 熱プラズマを反応合成炉として用いる場合、トーチに導入できる反応物質の量が限定されてしまうことを意味する。その不安定性を克服するために RF 熱プラズマのトーチの改良が行われてきた。ハイブリッド型トーチ[3]や2段式トーチ[4]がその改良例である。ハイブリッド型トーチは RF 熱プラズマの上部に直流プラズマジェットを設けた方式である。2段式トーチは大小2つの高周波誘導放電を組み合わせたもので、上部は点火および安定用、下部は反应用である。いずれの方法も下部の反应用トーチのプラズマを安定化するために、上部に別のプラズマを発生させている。

RF 熱プラズマを各種のプロセスに適用するには、その物理的および化学的現象を正確に知る必要がある。プラズマ装置の開発や改良において、また実際のプロセス

の合成条件の制御においては、プラズマの数値解析や計測が重要な知見を与える。そこでこの章では RF 熱プラズマの速度分布、温度分布、プラズマ中で起きる反応、およびプラズマの高周波電磁場について解説する。

## 2.2 高周波電磁場(一次元モデル)

RF 熱プラズマは管外の誘導コイルによって生じる高周波電磁場によりプラズマを誘導的に発生させる方法であるので、プラズマの速度や温度分布を求めるためには、トーチ内の高周波電磁場を正確に求め、それによって生じるローレンツ力とジュール加熱を求めなくてはならない。RF 熱プラズマにおける高周波電磁場はマクスウェル方程式を解くことによって得られる。高周波電磁場の波長がトーチの代表的長さより大きいので、変位電流は伝導電流に比べて無視できる。このときマクスウェルの式は次のとおりになる。

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = 0 \quad (2.1)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (2.2)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = - \left( \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \right) \quad (2.3)$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{j} \quad (2.4)$$

ここで  $\mathbf{E}$  は電場、 $\mathbf{B}$  は磁束密度、 $\mathbf{j}$  は電流密度、 $\mu_0$  は真空の透磁率である。RF 熱プラズマの高周波電磁場は電場が円周方向、磁場が軸方向のみと仮定することにより、マクスウェルの式は(2.5-7)式に示すように一次元の式になる。

$$\frac{dE_\theta}{dr} = - \frac{E_\theta}{r} - \mu_0 \omega H_x \sin \chi \quad (2.5)$$

$$\frac{dH_x}{dr} = - \sigma E_\theta \cos \chi \quad (2.6)$$

$$\frac{d\chi}{dr} = \frac{\sigma E_\theta}{H_x} \sin \chi - \frac{\mu_0 \omega H_x}{E_\theta} \cos \chi \quad (2.7)$$

ここで  $H_x$  は磁場、 $\chi$  は電場と磁場の位相差であり、 $\omega$  は角周波数、 $\sigma$  は電気伝導度である。この高周波電磁場の一次元の式は四次のルンゲ-クッタ法で容易に解くことができる。これらの式から得られた電場、磁場、および位相差からローレンツ力  $F_r$  を(2.8)式から、ジュール加熱  $P$  を(2.9)式から計算できる。

$$F_r = \mu_0 \sigma E_\theta H_x \cos \chi \quad (2.8)$$

$$P = \sigma E_\theta^2 \quad (2.9)$$

磁場は軸方向成分のみを仮定しているので、ローレンツ力は半径方向のみの成分になる。この半径方向のロー

レンツ力は常にトーチの中心に向いた方向に働くので、放電領域においてトーチ内では渦流が発生する。

RF 熱プラズマの数値解析の開発はカナダの Sherbrooke 大学の Boulos らのグループによるところが非常に大きい。この一次元モデルを用いた RF 熱プラズマのモデリングが Boulos により発表されたのは1976年であり[5]、その後10年以上はこの一次元モデルが用いられ、数々の RF 熱プラズマの数値解析が行われてきた。誘導コイルのアスペクト比（長さ／直径）が大きい場合、または RF 熱プラズマのような高周波電磁場の周波数が比較的低い場合には、この簡便な一次元モデルが適用できると考えられていたからである。しかし実際の RF 熱プラズマのアスペクト比はあまり大きくないので磁場の半径方向成分は無視できない。またこの一次元モデルで用いられていた境界条件がマクスウェルの式と矛盾していたこともあり（文献[6]を参照）、現在ではこの一次元の電磁場モデルは使用されていない。

## 2.3 高周波電磁場(二次元モデル)

一次元の高周波電磁場では磁場の半径方向成分を無視したことが最大の欠点であったので、磁場の軸方向成分と半径方向成分を考慮した二次元電磁場モデルが開発された[7-9]。二次元モデルでは(2.10)式を満足するようなベクトルポテンシャル  $A$  を導入する。

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} \quad (2.10)$$

この(2.10)式を(2.4)式の代入し、次にクーロンゲージを導入することにより、(2.11)式を得る。

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{A}) = \nabla^2 \mathbf{A} = \mu_0 \sigma \mathbf{E} \quad (2.11)$$

一方(2.10)式を(2.3)式に代入し、プラズマ中の静電場を無視すると(2.12)式を得る。

$$\mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \quad (2.12)$$

(2.11)式と(2.12)式から、ベクトルポテンシャルに対する(2.13)式を得ることができる。

$$\nabla^2 \mathbf{A} - \mu_0 \sigma \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} = 0 \quad (2.13)$$

RF 熱プラズマは軸対称であるので、ベクトルポテンシャルは円周方向の成分のみを持つ。よって(2.13)式は(2.14)式に書き換えることができる。この(2.14)式を解くことによって、ベクトルポテンシャルの分布を求めることができる。

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial A_\theta}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 A_\theta}{\partial x^2} - \frac{A_\theta}{r^2} = -\mu_0 j_\theta \quad (2.14)$$

ベクトルポテンシャルの分布を求めることができれば、高周波電磁場の分布を求めることができる。しかしベクトルポテンシャル自体は高周波電磁場を求めるために必要な中間的な変数である。そこでベクトルポテンシャルを用いずに電場を直接求める方法が開発された[10]。ベクトルポテンシャルの(2.13)式を導出した方法と同様な方法で電場に対する(2.15)式を得ることができる。

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \mu_0 \sigma \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} = 0 \quad (2.15)$$

電場は円周方向の成分のみを持つので、(2.15)式は(2.16)式に書き換えられる。この式を解くことによって電場の分布を求めることができる。

$$\frac{\partial^2 E_\theta}{\partial x^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial E_\theta}{\partial r} \right) - \frac{E_\theta}{r^2} - \mu_0 \sigma \frac{\partial E_\theta}{\partial t} = 0 \quad (2.16)$$

軸方向および半径方向に働くローレンツ力はそれぞれ(2.17,18)式により、またジュール加熱は(2.19)式により求められる。

$$F_x = -\sigma E_\theta B_r \quad (2.17)$$

$$F_r = \sigma E_\theta B_x \quad (2.18)$$

$$P = \sigma E_\theta^2 \quad (2.19)$$

以上のような二次元電磁場モデルが現在の RF 熱プラズマのモデリングに用いられている。この二次元電磁場モデルを用いて計算した磁場および電場の半径方向分布を Figs. 2, 3 に示す[9]。これらの分布は誘導コイルのほぼ中間における分布であり、電場および磁場ともにトーチ壁近傍で最大値を示している。これは導体を流れる電流が表面を流れる表皮効果のためである。この表皮効果によって RF 熱プラズマでは中心からずれたところに最

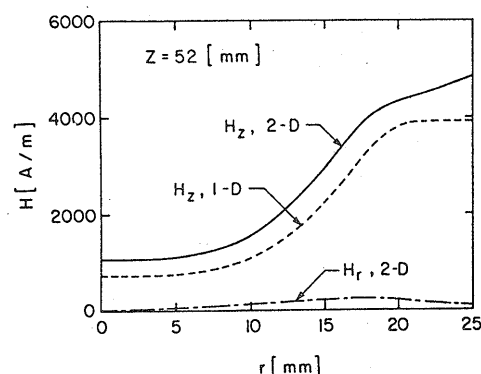


Fig. 2 Radial profiles of the magnetic field.

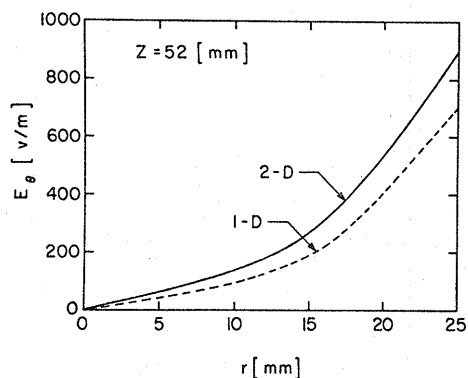


Fig. 3 Radial profiles of the electric field intensity.

高温度を持つことになる。この表皮の厚さ  $\delta$  は

$$\delta = (\pi f_0 \sigma \mu_0)^{-1/2} \quad (2.20)$$

で表すことができる。ここで  $f_0$  はプラズマ周波数である。周波数が大きくなると表皮の厚さが薄くなり、導体の表面を電流が流れることになる。数 MHz の高周波を印加すれば、表皮の厚さは数 cm となるので、その程度の半径を持つプラズマができる。またこの図から一次元高周波電磁場モデルでは無視していた半径方向の磁場は、軸方向の磁場より小さいが、それでも無視はできないことがわかる。

## 2.4 数値解析による高周波誘導熱プラズマの速度、温度、濃度分布の解析

RF 熱プラズマの温度、速度、濃度分布は、基礎方程式として流体力学の保存式をたて、それらを解くことによって求めることができる。熱プラズマにおける基礎方程式を解くには数値解析を用いることが一般的であり、数値解析の手法は、Patanker によって開発された SIMPLER 法[11]がおもに利用されている。

RF 熱プラズマの数値解析において問題となるのは以下の点である。第 1 にはプラズマに存在する急激な温度勾配のために物性値が激しく変化することである。このことは数値解析の収束解を得ることが困難であることを示している。第 2 として非平衡の問題を考慮しなければいけない場合があることである。従来は熱プラズマでは電子と重い粒子との温度が等しく、局所熱平衡 (Local Thermodynamic Equilibrium, LTE) が成り立つとして数値解析が行われてきた。しかし LTE の妥当性については第 1 章で述べられているような問題がある。特に RF 熱プラズマのトーチ壁付近では熱平衡状態が成立しない場合がある。これについては 2.6 章で述べる。第 3

には乱流の問題がある。プラズマが乱流状態になると輸送係数が大きくなるが、それは乱流強度に依存する。RF 熱プラズマは一般的に層流として扱うことができるが、高出力または大流量の条件では乱流を考慮しなくてはならない場合がある。このことに対する検討を 2.5 章で述べる。

これらの問題点に対して以下の仮定を用いることにより、RF 熱プラズマの数値解析が容易になり、RF 熱プラズマの特性を調べることができる。

- (1) 定常状態で軸対称である。
- (2) 層流である。
- (3) LTE が成り立つ。
- (4) 重力および粘性による散逸は無視する。
- (5) 光学的に薄い。すなわちプラズマからの放射エネルギーがプラズマ自体によって吸収されない。

このような仮定を用いれば熱プラズマは連続流体として扱え、一般の流体力学の保存式を用いることができる。しかし第 1 章で指摘されているように、このような仮定を熱プラズマだからという理由で無条件で使うことはできない。熱プラズマの数値解析を行う場合には、それぞれのモデルに対して適切な仮定を使わなくてはならない。

これらの仮定が成立する場合の基礎方程式を円筒座標系で表すと (2.21-24) 式になる。熱プラズマでは物性値が温度と密度の関数になるので、これらの質量、運動量、エネルギー、成分の各保存式を、2.3 章で述べたマクスウェルの式と連立させて解くことになる。

$$\text{連続の式:} \quad \nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0 \quad (2.21)$$

運動量保存式:

$$\rho \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} = -\nabla p + \nabla \cdot \boldsymbol{\tau} + \mathbf{J} \times \mathbf{B} \quad (2.22)$$

エネルギー保存式:

$$\begin{aligned} \rho \mathbf{u} \cdot \nabla h = & \nabla \cdot (k / C_p \nabla h) \\ & + \nabla \cdot (\mu / Pr \sum_i (Le_i - 1) h_i \nabla c_i) \\ & - Q_r + \mathbf{J} \cdot \mathbf{E} \end{aligned} \quad (2.23)$$

成分保存式:

$$\rho \mathbf{u} \cdot \nabla c = \nabla \cdot (\rho D \nabla c) + S \quad (2.24)$$

ここで  $\mathbf{u}$  は速度、 $p$  は圧力、 $\boldsymbol{\tau}$  は応力テンソル、 $h$  はエンタルピー、 $\rho$  は密度、 $\mu$  は粘性率、 $k$  は熱伝導率、 $C_p$  は定圧比熱、 $Pr$  はプラントル数、 $Le$  はルイス数、 $c$  は質量分率、 $D$  は拡散係数である。運動量保存式の右辺最後の項はローレンツ力による項、エネルギー保存式の右辺第 2 項は拡散によるエネルギー輸送の項、第 3 項の  $Q_r$  は放射による熱損失、最後の項はジュール加熱によ

る項である。成分保存式の  $S$  は反応による生成項である。この生成項は化学反応の生成速度から求める。CVD (Chemical Vapor Deposition) などにおいてはプラズマ中で気相から固相への変化があるので、核生成速度なども考慮する。しかし RF 熱プラズマの数値解析で問題となるのが、この化学反応に起因する生成項である。プラズマ中で起きている化学反応を解析しようとする多数の化学種と反応式を考慮しなくてはならないし、またプラズマのような高温における反応速度はわからない場合が多い。多数の化学種に対する成分保存式と反応式を、流体力学の保存式と連立させて解くことは困難であるが、RF 熱プラズマを材料合成に活用するには、是非ともプラズマ中の化学反応を数値解析により解明することが必要である。

現在ではまだ複雑な化学反応を考慮した RF 熱プラズマの数値解析は行われていないが、比較的簡単な 2 原子分子の解離および再結合反応を含めたモデリングは行わ

れている。RF 熱プラズマ中の水素の解離および再結合反応速度を考慮した数値解析における流れと温度分布の様子を Figs. 4, 5 に示す[12]。RF 熱プラズマ (2MHz, 25kW) の放電領域の上流と下流において、高周波電磁場のローレンツ力による渦流が発生している。RF 熱プラズマではこの渦流が特徴であり、プラズマの安定性は渦流の健全性に依存している。RF 熱プラズマを用いたプロセッシングでは中心軸に沿って反応物質を挿入するために、ノズル径や位置によってはこの渦流を乱して、プラズマを不安定にしてしまうことがある。また等温線では、誘導電流のジュール加熱により放電領域において 10,000K 以上の高温域が発生していることが示されている。表皮効果のために、この高温域は中心からずれており、中心近傍では温度は最高でも 9,500K 程度である。

このモデルでは水素の解離および再結合反応速度を考慮して数値解析を行ったが、水素のように解離エネルギーが比較的低いガスでは解離および再結合反応に対して

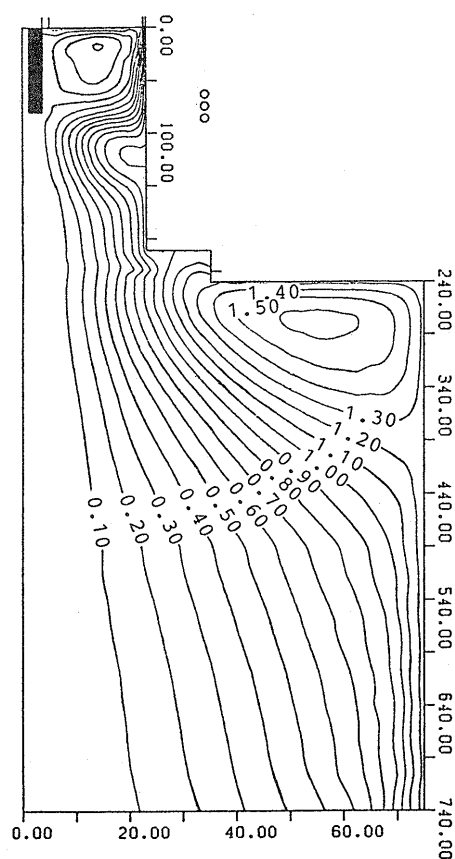


Fig. 4 Streamlines in an argon-hydrogen plasma.

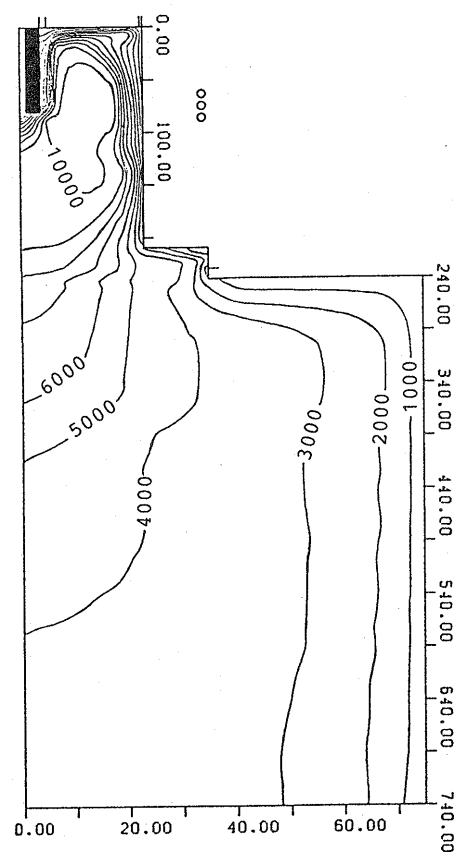


Fig. 5 Isotherms in an argon-hydrogen plasma.

は熱平衡と考えてよい。しかし窒素のように解離エネルギーが大きいガスの場合には熱平衡と扱うことはできない。

RF 熱プラズマを用いた材料合成の応用例としてダイヤモンドの合成があるが、ダイヤモンド合成に関与すると考えられている化学種は23であり、反応式の数60にもなる。現段階ではこれらを流体力学の保存式と連立させて解くことは困難である。そこですべての式を連立させて解くのではなく、RF 熱プラズマの二次元の速度、温度、密度分布（アルゴン、水素分子、水素原子）をSIMPLER法によって求め、その結果を利用して基板上の境界層における化学種の密度分布を一次元モデルで計算する方法が提案された[13]。RF 熱プラズマを用いたダイヤモンド合成ではプラズマ中に水素とメタンを吹き込み、トーチ出口の水冷基板上において急冷することによりダイヤモンドが合成できると考えられている。RF 熱プラズマ中では水素はほとんど解離するが、基板上の境界層が厚ければ再結合してしまう。つまり境界層の厚さがダイヤモンド合成には大きな影響を与える。よってダイヤモンドに関与する化学反応は境界層の内部を詳しく調べればよいという考え方である。RF 熱プラズマに供給したメタンと水素の比が2%の場合の結果をFig. 6に示す。この結果からRF 熱プラズマによるダイヤモンド合成では、炭素原子が重要な化学種と考えられる。

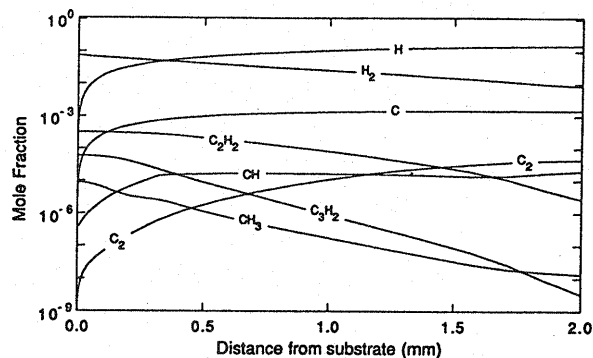


Fig. 6 Calculated chemical species in the boundary layer.

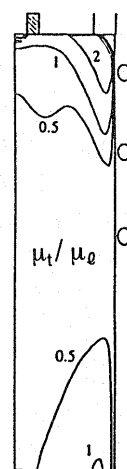


Fig. 7 Viscosity ratio when the inlet Reynolds number is 625.

## 2.5 高周波誘導熱プラズマにおける乱流

通常の操作条件においては、RF 熱プラズマは層流として扱うことが多かった。これはRF 熱プラズマのガス流速が直流アークより1桁程度遅いためである。この章ではRF 熱プラズマにおける乱流の影響について述べる。

乱流に対する基礎方程式では、層流の場合に用いられている粘性率の代わりに実効粘性率を用いる。この実効粘性率は層流の粘性率に乱流粘性率を加えたものである。よって乱流のモデリングでは乱流粘性率を求めることが重要になる。熱プラズマでは $k$ - $\epsilon$ 乱流モデルに基づいた(2.25)式から乱流粘性率 $\mu_t$ が計算されている。

$$\mu_t = \rho C_\mu (k^2/\epsilon) \quad (2.25)$$

ここで $C_\mu$ は散逸係数である。この式中に現れる乱流の力学的エネルギー $k$ および乱流の散逸率 $\epsilon$ はそれぞれの輸送方程式から求める。

この乱流モデルによって計算された高周波誘導熱プラズマの粘性率の比（乱流粘性率／層流粘性率）の結果を

Fig. 7に示す[14]。このときのガス導入部におけるレイノルズ数は625であり、このような条件の場合には、ガス導入部近傍において、乱流の影響が大きいことがわかる。もちろんガス流速を速くすれば乱流域が拡大する。例えばこの条件よりガス流量を5倍程度多くすると、RF 熱プラズマの高温領域（およそ9,000K以上）以外には乱流となる。ただしFig. 7に示したようにRF 熱プラズマのほとんどの領域が層流と扱える場合でも、低温のガスが吹き込まれるところでは乱流の影響を考慮しないといけない。RF 熱プラズマ中に粒子をキャリアガスによって供給する場合には、供給位置近くでは乱流を考慮して熱移動量を計算する必要がある。

## 2.6 高周波誘導熱プラズマにおけるLTEの妥当性

プラズマ発光分析に用いる誘導結合プラズマ（Induction Coupled Plasma, ICP）の温度分布を分光的に測定

した結果を数値解析の結果と比較してみると、プラズマの中心近傍では両者は一致したが、プラズマの周辺部では測定結果が5,000Kも高くなっていたことが報告されている[15]。これは分光測定が示している温度はプラズマの電子温度であり、ICPプラズマの周辺部はLTEが成立していないことを示唆している。ここではRF熱プラズマにおけるLTEの妥当性について、2温度モデルを用いて説明する。2温度モデルとは電離が非平衡であり、電子温度が重い粒子の温度より高いモデルである。2温度モデルでは、連続の式および運動量保存式はLTEモデルの(2.21~23)式を用いればよい。エネルギー保存式については、電子と重い粒子の温度が異なるのでそれぞれについてのエネルギー保存式を考える。

この2温度モデルに基づいたRF熱プラズマ(0.3気圧)の温度分布をFig. 8に示す[16]。これは誘導コイルの位置における分布である。従来から指摘されていたように、トーチ壁近傍では電子温度が重い粒子の温度より高く、LTEが成立していないことがわかる。

また周波数もLTEに影響を与える。周波数が高いほどLTEからのずれは大きくなる。RF熱プラズマで通常用いられている数MHz程度の周波数では、トーチ壁近傍およびガス流入口の低温領域以外では、大気圧ならば電子温度と重い粒子の温度は等しいと考えられる。しかしICPで用いられているような40MHzの周波数の場合には、大気圧でもほとんどLTEは成立しない。

## 2.7 高周波誘導熱プラズマの計測

RF熱プラズマの特性の解析には、これまで述べた数値解析による方法の他に、計測による診断も数々行われている。モデリングの妥当性の判断、およびプロセス技術の開発のために、RF熱プラズマの測定は重要である。計測の対象として重要なものは、温度分布、流速分布、密度分布、化学種の分布の測定である。しかし本稿では、計測による方法よりも数値解析のほうがRF熱プラズマの物理的・化学的過程を解説できると考え、計測方法の紹介にとどめる。

RF熱プラズマの温度測定では分光学的診断、レーザーによる診断、および熱的診断が主に利用される。分光学的診断では、プラズマ中の輝線スペクトル強度を測定して温度を測定する方法、およびスペクトル線の広がりから温度や電子密度を測定する方法が利用されている。レーザーによる方法ではレーザー干渉法によって電子密度を測定する方法が用いられている。熱的方法はプラズマ中に水冷プローブを挿入し、冷却水の温度上昇からプラズマ

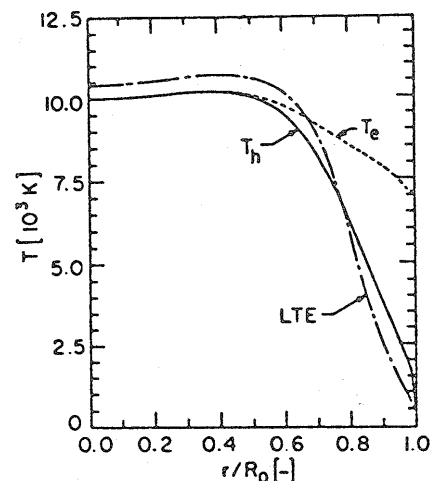


Fig. 8 Radial temperature profiles at 0.3 atm.

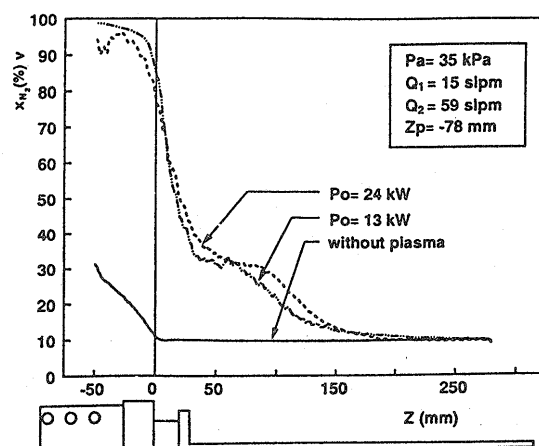


Fig. 9 Axial  $N_2$  profiles in an argon-hydrogen plasma and without a plasma.

のエンタルピーを測定するして、温度分布を求める方法である。

RF熱プラズマの流速測定においては、レーザドップラ流速測定法(LDV)が数多く用いられている。この方法はプラズマと一緒に動いているトレーサ粒子からの散乱光の周波数の変化を測定する方法である。

RF熱プラズマの化学種の測定では質量分析法が強力な方法である。またレーザ誘起蛍光法(LIF)やレーザ誘起ラマン散乱法(CARS)により化学種の測定が行われている。ここでは計測結果の例として質量分析法による結果をFig. 9に示す[17]。これはアルゴン-水素プラズマの中心軸上の管から窒素を吹き込んだ場合の窒素の濃度変化である。プラズマがない場合に比べてプラズマ中の窒素の混合は遅い。これはプラズマ中での混合は分

子拡散が中心であるが、プラズマがない場合は乱流によって混合するためである。

## 2.8 おわりに

RF 熱プラズマは高温かつ化学的に高活性であり、さらに超急冷が可能であり、各種の材料合成に適している。RF 熱プラズマの高出力化によりプラズマの温度を上昇させ、さらに高周波誘導放電の周波数を可変にすることにより、効率的な化学反応を起こすことができる。これは化学反応プロセスが反応速度や、電子との衝突などの時間的要因が重要であるからである。RF 熱プラズマの物理、化学過程、そして特にプラズマ中の反応過程を詳細に把握することにより、より広い応用分野が期待できる。例えばこれらの新しい応用分野としては、180kW の水蒸気プラズマを用いたパイロットプラントにおけるフロンの分解の研究[18]、およびハイブリッドプラズマ溶射による高温固体電解質型燃料電池(SOFC)の作成の研究[19]があり、広い分野におけるRF 熱プラズマのこれからの発展が楽しみである。

## 参考文献

- [1] T. B. Reed, J. Appl. Phys. **32**, 821 (1961).
- [2] T. B. Reed, J. Appl. Phys. **32**, 2534 (1961).
- [3] T. Yoshida, T. Tani, H. Nishimura and K. Akashi, J. Appl. Phys. **54**, 640 (1983).
- [4] T. Uesugi, O. Nakamura, T. Yoshida and K. Akashi, J. Appl. Phys. **64**, 3874 (1988).
- [5] M. I. Boulos, IEEE Trans. Plasma Sci. **PS-4**, 28 (1976).
- [6] X. Chen, Int. J. Heat Mass Transfer **33**, 815 (1990).
- [7] J. W. McMelliget and N. El-Kaddah, J. Appl. Phys. **64**, 2948 (1988).
- [8] X. Chen, J. Phys. D **22**, 361 (1989).
- [9] J. Mostaghimi and M. I. Boulos, Plasma Chem. Plasma Processing **9**, 25 (1989).
- [10] X. Chen and E. Pfender, Plasma Chem. and Plasma Processing **11**, 103 (1991).
- [11] S. V. Patanker, *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow*, McGraw-Hill, New York (1980).
- [12] T. Watanabe, A. Kanzawa, T. Ishigaki and Y. Moriyoshi, *Proc. Symp. Plasma Sci. Materials* **6**, 211 (1993).
- [13] S. L. Girshick, C. Li, B. W. Yu and H. Han, Plasma Chem. Plasma Processing **13**, 169 (1993).
- [14] K. Chen and M. I. Boulos, J. Phys. D **27**, 946 (1994).
- [15] J. Mostaghimi, P. Proulx and M. I. Boulos, *Spectrochim. Acta* **40B**, 153 (1985).
- [16] J. Mostaghimi, P. Proulx and M. I. Boulos, J. Appl. Phys. **61**, 1753 (1987).
- [17] G. Soucy, J. W. Jurewicz and M. I. Boulos, Plasma Chem. Plasma Processing **14**, 43 (1994).
- [18] S. Takeda *et al.*, *Proc. 12th Inter. Symp. Plasma Chem.* **1021** (1995).
- [19] 浜谷秀樹, 熊岡 尚, 八幡稔文, 吉田豊信: 日本金属学会誌 **11**, 1240 (1991).