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

Tuno	Pressure		Gas Temperature		Electron Temperature		Transient Anneline time
туре	High	Low	High	Low	High	Low	Typical Applications
Low Pressure Plasma		0		0	0		- Semiconductor - Lump and Lasers - Display
Non-Thermal Plasma	0			0	\bigcirc		- Air Pollution Control - Waste Treatment - Polymer Coating - Polymer Treatments
Thermal Plasma	0		0		0		 Solid Waste Treatments Coating Ceramic Processing Water Treatments Cutting & Welding
Nuclear Fusion Plasma		0	0		0		- Energy - Military

表1 各種プラズマの分類と定義.

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,針電極の先端にほのかな放電光が観察される.さ



(b) Negative Corona

図1 針一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.



図2 針一針コロナ放電形態と電流依存性.

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].

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).

683

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) (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 マは光速度の約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、クリーンでスムースな電極表面を 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 放電雑音が大きいが,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 N₄⁺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、 $O_x^-(x=1\sim 6)$ 、 $O_y^+(y=1\sim 5)$ 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 $N_m O_n^+(x, y, m, n=0~6)$,湿度が高い場合はX⁺(H₂O)_n および Y⁺(H₂O), 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	$(10^{-5} - 10^{-10})$ Rp(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10 mm 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10~100 mm まで延び、プラズマ密度は約10⁹ cm⁻³、電界強度は $E/N = 10^{-19} \sim 10^{-17}$ Vm²、イオン温度は数百℃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℃)[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.

Physics and Chemistry of Atmospheric Plasmas



図5 コロナ放電 (a)高速気流点一平板コロナ,(b)コロナトーチ,(c)針一平板コロナトーチ,(d)キャピラリー放電,(e)同軸円筒放電,(f)線一平板放電.

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営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 なく、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,コロナ放電に数百ガウス以上の磁場 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 気圧では数百ガウス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 電導体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



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 $\epsilon_s = 2\sim4$)が使用されているが、 アルミナ($\epsilon_s = 9\sim12$)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 $\epsilon_s \ge 10,000$)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.



図7 バリア放電 (a)無声放電、(b)沿面放電、(c) and (d)パックトベット放電、(e)トレンチ放電.



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

$$\varepsilon_{gS}E_g = \varepsilon_{pS}E_p$$
(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、バリヤー型の電極構造で、 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).

pacitive 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 $M \ge 0.2$ を超えることもある)ので、流体 の取り扱いは、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ーサ ハの式-…-, Brawn&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成することができる. 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 10⁴ 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].

	Reactions		Reaction Rates [cm ³ /s], [cm ⁶ /s] ^a	Temperature Range [K]	
Three-body Conversion	$Ar^+ + Ar + Ar \xrightarrow{k_1} Ar_2^+ + Ar$	k1	$5.7 \times 10^{-32} \left(\frac{T_g}{300}\right)^{-\frac{3}{4}}$	Theory	
Dissociative	$\operatorname{Ar}_{2}^{+} + e \xrightarrow{k_{2}} \operatorname{Ar} + \operatorname{Ar}$	k ₂	$9.6 \times 10^{-7} \left(\frac{300}{T_g}\right)^{0.67}$	$300 \leq T_e \leq 670$ and $T_g \leq 670$	
Recombination			$4.38 \times 10^{-7} \left(\frac{670}{T_g} \right)^{1.5}$	$T_g \geq 670 \text{ and } T_g \geq T_e$	
			$4.38 \times 10^{-7} \left(\frac{670}{T_g}\right)^{1.5} \left(\frac{T_g}{T_e}\right)^{0.60}$	$T_g \geq 670 \text{ and } T_g \leq T_e$	
Radiative Recombination	$Ar^+ + e \xrightarrow{k_3} Ar + h\nu$	k3	$1.0 \times 10^{-12} \left(\frac{300}{T_e}\right)^{0.7}$	Theory	
Thermal	$Ar + Ar \xrightarrow{k_4} Ar^* + Ar$	k4	$10^{(-78.67+14.89 \log_{10}(T_g))}$	$7000 \le T_g \le 12000$	
Ionization	$Ar^* + Ar \xrightarrow{k_5} Ar^+ + e + Ar$	k ₅	$10^{(-36.83+6.11 \log_{10} (T_g))}$	$7000 \le T_g \le 12000$	
Three-body ^b	$Ar^+ + e + e \xrightarrow{k_6} Ar + e$	k ₆	$\left(\sum_{i=0}^{S}\sum_{i=0}^{2}A_{ij}\left(\log_{10}\left(\frac{[e]}{10^{12}}\right)\right)^{i}\left(\frac{1000}{\text{Te}}\right)^{\frac{i}{2}}\right)$	$300 \le T_e \le 16000$	
Recombination				$10^{10} \le N_{\rm e} \le 10^{10}$	
Electron Impact	$Ar + e \xrightarrow{K7} Ar^+ + e + e$	k7	$2.0 \times 10^{-10} T_e^{\frac{1}{2}*}$ (-1.8×10 ⁵)	Cross Section & Theory	
Ionization			$(1+1.1\times10^{-5}T_{e})e^{\left(\frac{-10-10}{T_{e}}\right)}$		
Cumulative	$Ar + e \xrightarrow{k_8} Ar^{**} + e$	k ₈	$3.3 \times 10^{-11} T_e^{\frac{1}{2}} *$	Cross Section & Theory	
Ionization	$\operatorname{Ar}^{**} + e \xrightarrow{k_9} \operatorname{Ar}^+ + e + e$	k9	$(1+1.5\times10^{-5}T_{e})e^{\left(\frac{T_{e}}{T_{e}}\right)}$		
			$3.0 \times 10^{-11} T_e^{\frac{1}{2}*}$		
			$(1+4.5\times10^{-5}T_{e})e^{\left(\frac{-4.5\times10^{-7}}{T_{e}}\right)}$		
Metastable-Metastable	$Ar^{**} + Ar^{**} \xrightarrow{f_{10}k_{10}} Ar^{+} + Ar + e$	k ₁₀	6.12×10^{-10}		
Collisions	$Ar^{**} + Ar^{**} \xrightarrow{(1-f_{10})k_{10}} Ar_2^+ + e$	f ₁₀	0.5		

表3 Ar 熱プラズマの反応過程[17].

 $a[cm^{3}/s]$ for two-body rections and $[cm^{6}/s]$ for three-body reactions.



図13 円柱ー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一電子温度領域.

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



図17 各種プラズマのガス温度一電子温度領域.

表4 大気圧プラズマの支配方程式.

(1) Mass Conservation				
$\partial ho / \partial t + abla \cdot (ho oldsymbol{U}) = 0$				
(2) Momentum Conservation				
$\partial \rho \boldsymbol{U} / \partial t + (\rho \boldsymbol{U} \cdot \nabla) \boldsymbol{U} = -\nabla p + \lambda \nabla (\nabla \cdot \boldsymbol{U}) + \mu \nabla^2 \boldsymbol{U} + \boldsymbol{F}_{\text{EB}}$				
(3) Energy Conservation				
$\rho C_{\rm p} \left(\frac{\partial T}{\partial t} + \boldsymbol{U} \cdot \nabla T \right) = \nabla \cdot \left(\boldsymbol{k} \nabla T \right) + Q_{\rm EB}$				
(4) Ion or Electron Conservation				
$ abla \cdot \boldsymbol{J} = -\partial N / \partial t + (source) - (sink)$				
(5) Ion or Electron Transport				
$\boldsymbol{J} = \boldsymbol{U} N \pm \mu N \boldsymbol{E} - D \nabla N$				
(6) Poisson's Equation				
$ abla \cdot (oldsymbol{\varepsilon} 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

Physics and Chemistry of Atmospheric Plasmas

表5 電磁気流体の項.

Additional Force and Energy Terms(i) Force density terms : $\vec{F}_{EB} = \rho_{ie}\vec{E} + \vec{J} \times \vec{B} - \frac{1}{2}E^2 \nabla \varepsilon - \frac{1}{2}H^2 \nabla \mu + \nabla \left[\frac{1}{2}\rho E^2 \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho}\right)_T + \frac{1}{2}\rho H^2 \left(\frac{\partial \mu}{\partial \rho}\right)_T\right]$ 1 st term: force density due to the space charge2 nd term: force density due to the charged particle motion3 rd term: force density due to the dielectric property change4 th term: force density due to the fluid permeability change5 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 heating2 nd 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 (ρu)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 周波を使用する場合が多いので,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., (Mercel 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, Calfolnia, 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 Japa-nese*].
- [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 Metallurigical 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).



$y_{\pm \nu} = - + + \nu \phi$ 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、仏ポアテェ大学、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.