

原著論文

低周波・大容量誘導プラズマの安定発生条件

On Stable Generation of a Low-Frequency High-Power Induction Thermal Plasma

作田 忠裕	(金沢大学工学部)	坂下 典久	(金沢大学工学部)
坂井 健一	(金沢大学工学部)	高嶋 武	(金沢大学工学部)

Tadahiro SAKUTA, Kanazawa University
 Norihisa SAKASHITA, Kanazawa University
 Ken-ichi SAKAI, Kanazawa University
 Takeshi TAKASHIMA, Kanazawa University

The induction thermal plasma with a power of a few tens to hundreds of kW, which is produced in an oscillating magnetic field without electrodes, is now becoming gradually an important source with high-temperature and high-reactivity either for processing of new functional materials or for destruction of circumstance depleting substances. Although the volume of the plasma is restricted to 50 to 60 mm in diameter by the applied frequency of the generator, that is MHz order, a wider plasma space is required for higher rate of processing as a future technology. In this paper, An attempt to expand the high temperature plasma fields was made by superimposing a low frequency(67 kHz) magnetic fields on the r.f.(13.56 MHz) plasma discharge. Because the penetrating depth of such low frequency field is as long as a few hundreds mm, a more wider plasma in radius is expected to be produced stationary. After proposing the new designs of the plasma torch, experiments were carried out using a LC oscillating circuit which provides a coil current of 67-kHz frequency and 5600-A peak. The results were compared with the theoretical calculations and the necessary condition in both electrical and physical parameters for stable generation of high capacity l.f. plasma were discussed.

Key Words : Induction Plasma, Low Frequency, Magnetic Field,
 Superimpose, Plasma Processing

1 緒論

数十から数百 kW 級大容量高周波誘導熱プラズマ (Inductively-Coupled R.F. Plasma) は、その温度が数千から数万 K に達する。この誘導熱プラズマの最大の利点は、コイル内空間磁界の高周波振動に伴う誘導電流をプラズマの加熱・維持源とするもので、その反応性豊かな高温のプラズマ空間が無電極状態で実現できることである。このため、電極金属による汚染のないクリーンな放電領域を形成できる。この優れた特徴を利用して、近年、高融点金属やセラミクス、高温超電導体の生成に利用され始めている。従来まで、この誘導熱プラズマは数 MHz の高周波域で点弧されているに過ぎず、その高温領域も直径にして、約 50~60mm が限界であった [1] [2]。従って、これらの機能性材料の高速生成を行うためには高温のプラズマ空間を拡大することが望まれる [3]。

本論文は、13.56MHz の高周波誘導熱プラズマを安定に点弧させておき、これを種火にして、別途準備した第 2 のコイルに数十から数百 kHz の低周波大電流を流し、放電中の導電性プラズマに結合させ、低周波電力を陽光柱深くに注入し、その高温領域を拡大しようとするものである。従来までにこのような試みの報告は全くなく、本文では、まず第一段階として、LC 共振回路を用いた単発放電現象を利用して、一時的なプラズマの拡大化の実験を行うために必要とされる条件を導いている。すなわち、この種の広域高温プラズマの連続長時間運転の基礎固めをするものである。

2 実験装置

2.1 低周波磁界の印加方法

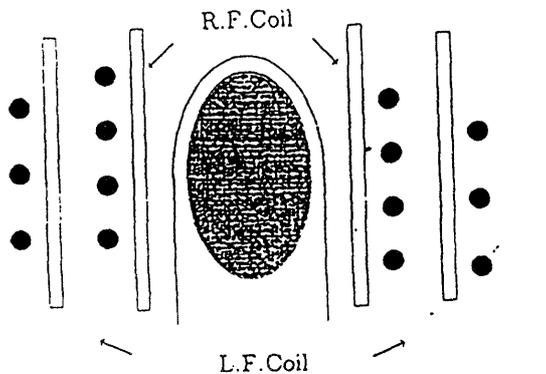
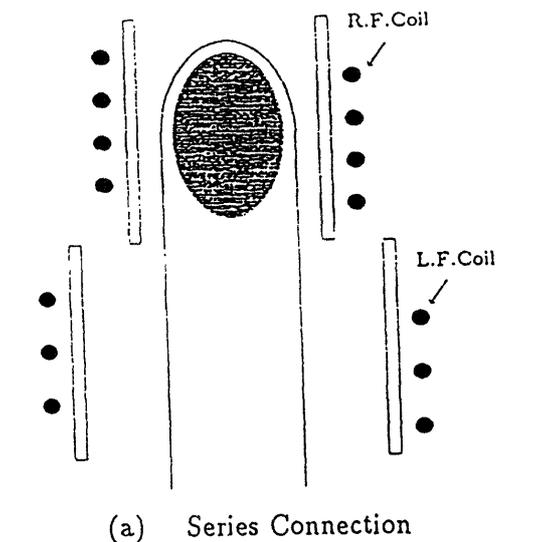
高周波プラズマに低周波磁界を重畳する方法として、以下に示す 2 通りを考えた。

(I) 縦列配置法 (Fig.1(a))

Fig.1(a) に示すように高周波プラズマを安定に点弧しておき、その下流域の導電性気体に低周波電力を印加し、その高温のプラズマ空間を拡大化するものである。この方法の利点としては、軸方向および径方向に高温領域を拡げることができることである。

(II) 外部配置法 (Fig.1(b))

これは、安定に点弧している高周波プラズマの外側から、同一空間内に低周波電力をも重畳するものである。この方法の利点は、表皮効果によって中心部の温度が周辺部よりも低くなっている高周波プラズマの温度分布を全体的にさらに高温かつ均一にできることである。



R.F. : Radio Frequency (~MHz)
L.F. : Low Frequency (~100kHz)

Fig.1 Plasma Torch Design

2.2 低周波発生回路の特性

高周波プラズマに印加する低周波は、コンデンサ充電方式による LC 共振を利用した回路によって発生させ、その一例を Fig.2 に示す。コイル端電圧波形を解析した結果を Table1 に示す。ここで、コンデンサは $2[\mu\text{F}]$ で一定としている。(定格充電電圧 6,600[V])

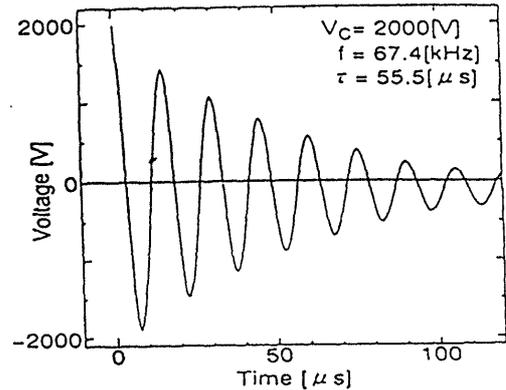


Fig.2 Wave of L.F. coil voltage

Table 1 circuit Parameters

	f [kHz]	L_0 [μH]	L_x [μH]
Series	67.60	0.734	2.038
Parallel	64.88	0.971	2.038
R [m Ω]	τ [μs]		
100.2	55.5		
90.6	67.7		

ここで、f:発振周波数、 L_0, L_x :コイル、線路のインダクタンス、R:回路の抵抗、 τ :時定数である。

2.3 プラズマの温度分布の測定

低周波磁界を効率的にプラズマに結合させるためには、プラズマ導電率が重要なパラメータとなってくる。そこで、低周波印加位置での高周波単独でのプラズマの温度分布の測定を行い、これより、プラズマ気体として Ar の導電率の評価を行った。Fig.3 にプラズマトーチの構成と温度分布の測定位置を示す。大別して、上部が高周波プラズマ発生部で、 $\phi=33\text{mm}$ 石英管壁に沿って Ar 旋回流 (流量 50 l/min) を高速で流し、高温プラズマを管中央に定置させるとともに、高温気体を下部低周波プラズマ発生部に供給している。Fig.4

に高周波電源入力 12kW, 圧力 300Torr の条件の下での測定結果を示す。Fig.4 より、外部配置法によって低周波を印加する場所 (測定位置 A,B,C) では、中心温度が 4,000~5,000[K] で、ピーク温度が最大で 18,000[K] にも及ぶ。このように、表皮効果のため中心部よりも周辺部での温度が高くなっている。これに対して、縦列配置法で低周波を印加する場所 (測定位置 D,E) では、プラズマ温度が約 2,000[K] 程度でフラットな分布である。この位置では高周波による直接的な電力の注入がなく、上流からガス流によって希薄になったプラズマのためである。

なお、プラズマの温度分布の測定法として分光法を用いた。以下に、測定の説明をする。プラズマからの放射光をレンズを通して、ミラーに反射させ分光器のスリットに入射する。このミラーを回転させることにより、プラズマを径方向にスキャンすることができ、径方向の見かけの放射強度を測定する。それらをアーベル変換で真の放射強度に変換し、二線強度比法により温度分布を求めるものである。

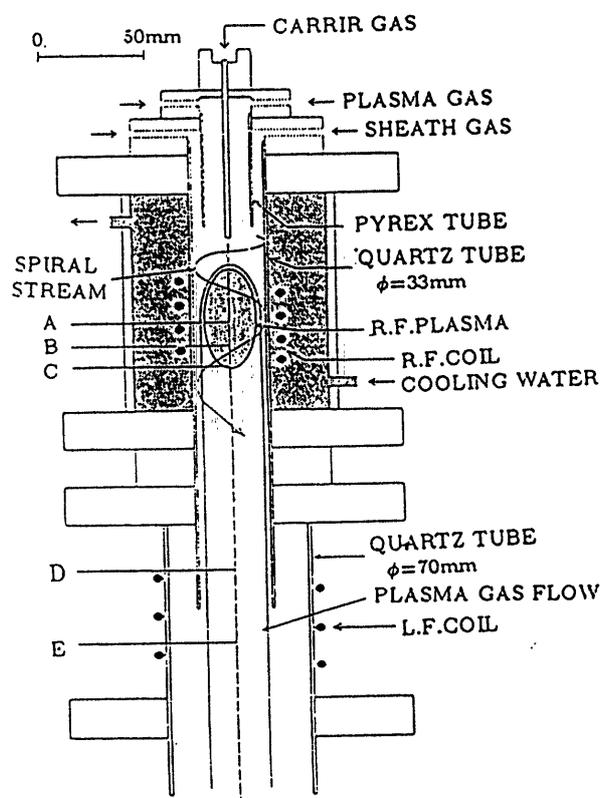


Fig.3 Induction Plasma Torch(Series Connection) and Measuring Point of Plasma Temperature

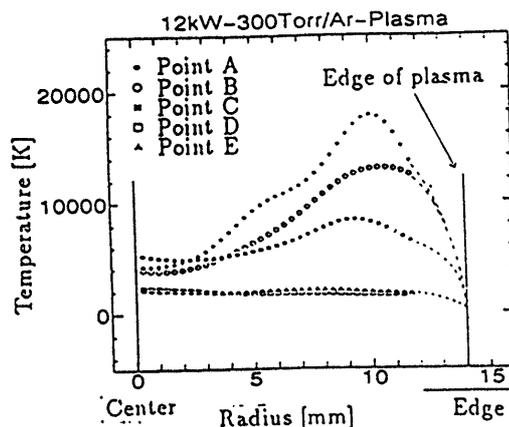


Fig.4 Temperature Distribution inside the Induction Plasma

3 等価回路によるプラズマパワー評価と実験結果

プラズマの温度分布測定結果により、低周波印加位置でのプラズマ温度が分かり、これを基にしてプラズマ導電率 σ に対する検討を行う。まず、導電率 σ として、式(1),(2)よりプラズマ温度の関数として計算したものをFig.5に示す。なお、ここでは、プラズマガスとして Ar のみを用いているので、添え字の ij はそれぞれ電子、Ar 系粒子である。ただし、式(1)の Σ' は $x_e \Delta_{ee}$ を除くことを意味している [4]。

$$\sigma = \frac{e^2}{kT} (x_i / \sum_{j=1}^{n'} x_j \Delta_{ij}) \quad (1)$$

$$\Delta_{ij} = \frac{8}{3} \sqrt{\frac{2m_i m_j}{\pi kT(m_i m_j)}} \pi \bar{\Omega}_{ij}^{(1,1)} \quad (2)$$

ここで、 m_i : i 種粒子の質量、 x_i : i 種粒子のモル分率、 e : 電子の電荷、 T : 温度、 k : Boltzmann's Const.、 $\pi \bar{\Omega}_{ij}^{(1,1)}$: ij 粒子の運動量変換断面積である。

これにより、Fig.6 に示す誘導プラズマ発生回路の等価回路について、低周波電力のプラズマ負荷による吸収量を回路論的に考察してゆく。

本実験における高周波プラズマは電源入力 4~15kW で安定に点弧しており、15kW のときのプラズマ電力密度 (単位体積中に吸収される電力) は $672[W/cm^3]$ である。言い換えれば、これだけの電力密度の注入ができれば低周波単独でもプラズマの点弧が可能となる。

縦列配置法による低周波印加位置 (D,E) では、Ar の温度が 2,000K と非常に低く、導電率はわずか $0.7 \times 10^{-7}[S/m]$ で低周波磁界をプラズマに結合させ、これ

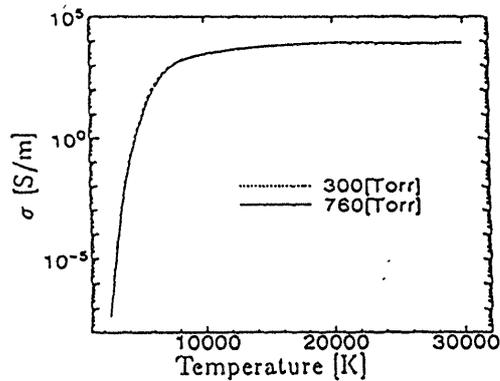


Fig.5 Electrical Conductivity of Ar Gas

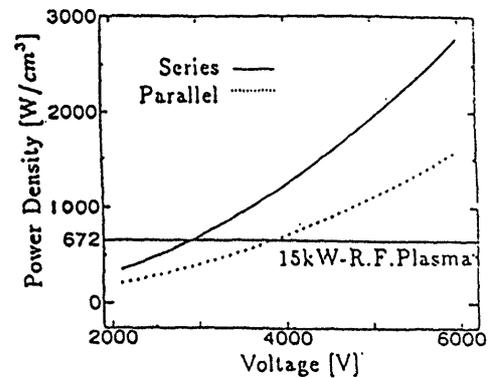


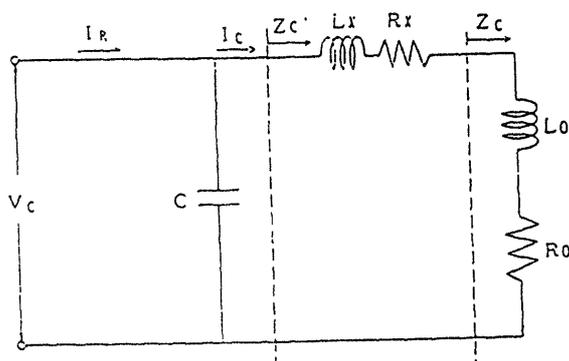
Fig.7 Voltage of Power Supply vs. Power Density

を拡大するのはかなり困難と言える。しかしながら、外部配置法での印加場所は点弧している高周波プラズマと同一空間なので、Arの温度を10,000[K]とすると、導電率は2,700[S/m]程度あり、十分に低周波プラズマを点弧・維持することが可能となる。Fig.7に、等価回路解析から計算された電源電圧と低周波電力密度との関係を示す。この図より、電源電圧を約4,600[V]以上とすれば、15kWの高周波プラズマの電力密度を超えることになり、プラズマの定常点弧が可能、つまり、表皮深さの大きい低周波入力により高周波プラズマの中心にも電力を注入することができ、温度を上昇させることができると考えられる。

これらの結果をもとに、縦列および外部配置法において、低周波磁界重畳実験を行った。ここでは、低周波磁界によるプラズマ拡大の確認法として、プラズマ放射光強度の変化を測定した。これは、プラズマが拡大することによってプラズマ温度が上昇し、プラズマ放射光強度が変化すると考えられるからである。

Fig.8に実験結果を示す。Fig.8(a)に、高周波プラズマに重畳させた低周波コイル電流 (Fig.2に示したLC単発放電による電流)、すなわち印加した低周波磁界に相当し、Fig.8(b)に、縦列および外部配置法におけるプラズマ放射光強度の変化をそれぞれ示している。なお、Fig.8(a),(b)はデジタイザを通して同時に観測したものであり、これらは同期している。

Fig.8より、両方式ともに、低周波磁界印加によるプラズマ放射光強度の変化は多少認められるものの、プラズマの拡大化を明確に確認するには至っていない。このことについて次章で検討する。



V_C : 電源電圧 C : コンデンサの容量 I_R : 入力電流
 L_X, R_X : 線路のインダクタンス, 抵抗
 L_0, R_0 : コイルのインダクタンス, 抵抗
 I_C : 回路に流れる電流 R_P : プラズマの抵抗

Fig.6 Equivalent Circuit of Induction Plasma Generator

4 物理解による考察

前章での等価回路による計算は、連続発振の電源を用いた定常状態でのみ有効である。しかし、実際の実験では、点弧中の高周波プラズマに単発現象の低周波を印加したため、条件が異なっている。そこで、単発低周波印加時のプラズマの過渡応答を計算し、これらの結果の妥当性について検討する。計算には、エネルギー保存式・質量保存式をプラズマに対応させた、プラズマ支配方程式 (式(3)~(7)) を用いた [5]。

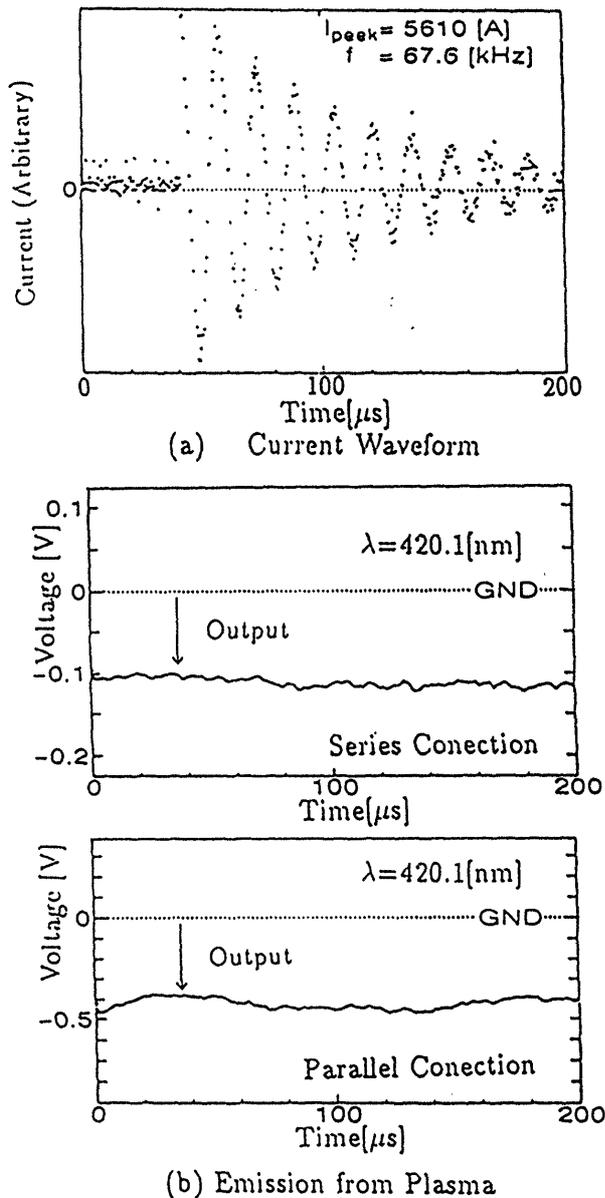


Fig.8 Time Variation of Plasma Emission after Superimposing L.F. Magnetic Field

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = -\rho C_p v_r \frac{\partial T}{\partial r} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \lambda \frac{\partial T}{\partial r}) + \sigma E^2 - W_{\text{rad}} - W_{\text{conv}} \quad (3)$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \rho v_r) = 0 \quad (4)$$

$$W_{\text{conv}} = \rho v_z \frac{(h_T - h_{300})}{Z} \quad (5)$$

$$v_z = v_0 \left(\frac{r_p - r}{r_p} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (6)$$

$$M = \int_0^{r_p} (2\pi r v_z \rho) dr \quad (7)$$

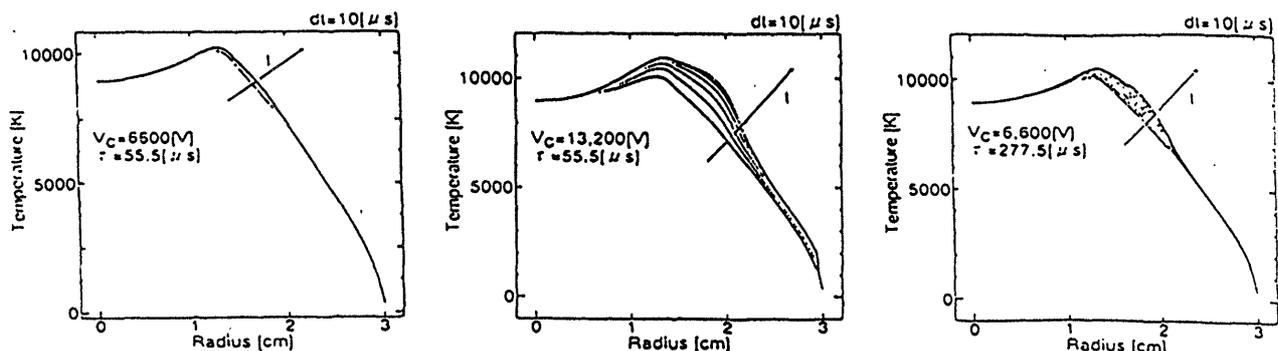
ここで、 T : プラズマ温度、 ρ : プラズマ密度、 C_p : 定圧比熱、 σ : 導電率、 λ : 熱伝導率、 W_{rad} : 熱放射損失、 E : 電界強度、 Z : プラズマ長、 r_p : プラズマ半径、 h_T, h_{300} : 温度 T および 300K におけるエンタルピー、 v_r, v_z : r, z 方向への流れ速度、 v_0 : プラズマ中心の z 方向の流れ速度である。

この式をもとに、次のようなモデルを考え、プラズマ拡大の測定に深く関係のあるプラズマ温度分布の計算を行った。

基本的なモデルとしては、プラズマが円筒状の物体と考え、その軸方向にプラズマ流を流した場合を想定している。次に、このモデルを現実の実験装置(縦列配置法と外部配置法)に相当するように変化させる。また、この2つのモデルに関して、高周波プラズマは、コイル半径 $r_c = 2.0$ [cm] で、周波数 $f = 13.56$ [MHz]、中心温度 $T_0 = 9,000$ [K]、外部磁界 $H = 20.96$ [AT/cm]、流量 5.0 [l/min] で安定に点弧されているものと仮定している。

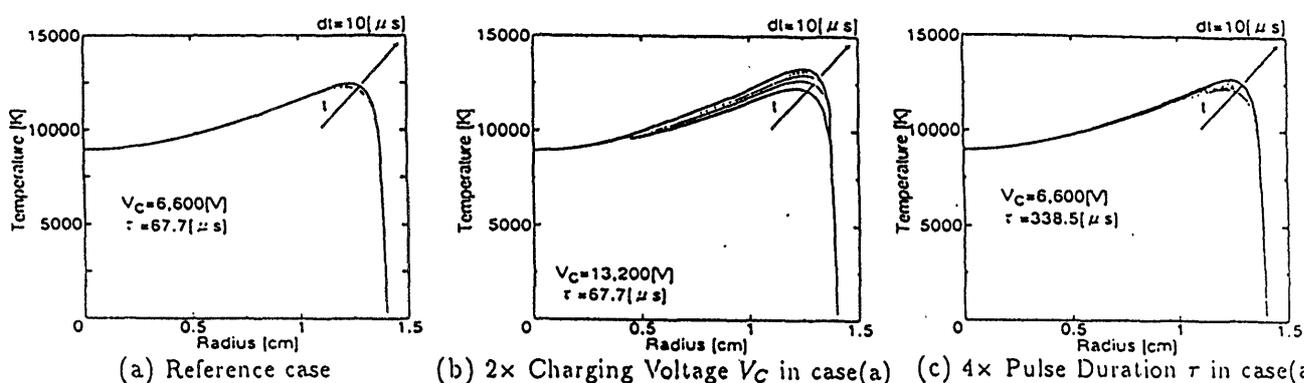
まず初めに、縦列配置法のモデル化について述べる。安定に点弧されている高周波プラズマが、 Z 方向流れに乗って半径 3 cm に拡大され、同じ温度分布のまま低周波コイル領域まで伸びているものとする。この状態で、現有実験装置において、コンデンサ充電電圧 $V_C = 6,600$ [V] にした時に発生すると考えられる外部磁界を印加した場合と、 V_C を 2 倍にした場合、 τ を 5 倍にした場合のプラズマの過渡応答を求めた。この結果を Fig.9(a)~(c) に示す。次に、外部配置法のモデル化について述べる。安定に点弧されている高周波プラズマに、半径 4.2 cm、コイル長 7.2 cm の低周波コイルに流れる電流によって生じる外部磁界に相当する磁界を発生するように、高周波コイルに低周波を重畳させるものである。この状態で、縦列配置型モデルの場合と同様に計算を行った。この結果を Fig.10(a)~(c) に示す。

これらの図より、まず、本実験に対応する図 (a) Reference case では、いずれの方式においてもプラズマ温度の変化がわずかで、高温場の拡大は認められない。この事は、Fig.8 の実験と矛盾しない。プラズマの拡大(温度上昇)を具体的に行うためには、図 (b),(c) にみられるように、最低でも、充電電圧を 2 倍程度または時定数を現在の 5 倍程度にする必要があることが分かる。



(a) Reference case (b) 2x Charging Voltage V_C in case(a) (c) 4x Pulse Duration τ in case(a)
Fig.9 Transient Aspects of Plasma Temperature after Superimposition of Single-Pulse L.F.

Magnetic Field (Series Connection)



(a) Reference case (b) 2x Charging Voltage V_C in case(a) (c) 4x Pulse Duration τ in case(a)
Fig.10 Transient Aspects of Plasma Temperature after Superimposition of Single-Pulse L.F.

Magnetic Field (Parallel Connection)

5 まとめ

定常に点弧した高周波誘導プラズマ (13.56 MHz, 15kW) に、低周波磁界を重畳させ、プラズマ高温場の拡大実験を行うとともに、それを実現するための発生条件について理論的な検討を行った。低周波磁界の結合方式として、外部配置法 (Parallel Connection) と継列配置法 (Series Connection) とを考え、現有設備の最大定格で得られる単発低周波電流 (ピーク値 5.300A, 65kHz, 継続時間 約 150 μ s) を用いて実験を行った。連続発振とは異なり、このような単発振動波形で一時的なプラズマの拡大化を図るためには、いずれの配置法においても、上述の現有実験装置で充電可能な電圧 (6,600V) の2倍程度、または入力低周波の継続時間、すなわち時定数を5倍程度 (700~800 μ s) の値にすることが判明した。

なお、本研究の一部は、別川基金の援助に基づいて行われた。

(1993年3月15日受付)

参考文献

[1] Yoshida, T.: The Future of Thermal Plasma Processing. *Material Trans., JIM, Vol.31(1)*,

1990, pp.1-11

- [2] 作田, 高嶋, Boulos, M.I.: 光パルス解析法による誘導プラズマ中を飛行する金属、セラミクス粒子の加熱、加速特性の測定. *電気学会論文誌, Vol.113-A(5)*, 1993, pp.420-427
- [3] 竹内, 井藤, 武田, 水野, 朝倉, 小林: 熱プラズマ法によるフロン分解プロセスの熱力学解析. *日本鉄鋼協会講演論文集, Vol.5(2)*, 1992, p.718
- [4] YOS, J.M.: Transport Properties of Nitrogen, Hydrogen, Oxygen and Air to 30000K. *AVCO Tech. Memorandum RAD-TM-63-7*, 1963
- [5] Sakuta T., Takashima T., and Boulos, M.I.: Effects of Plasma Diameter and Operating Frequency on Dynamic Behaviour of Induction Thermal Plasma. *Plasma Sources Sci. Technol. Vol.2*, 1993, pp.67-71