

Stable Operation Region and Dynamic Behavior of Ar Pulse-Modulated Induction Thermal Plasma with Different Molecular Gases

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2017-10-03 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/2297/36213

各種ガス混入大気圧パルス変調 Ar 誘導熱プラズマの安定維持範囲と過渡応答特性

正員 田中 康規 (金沢大学)

正員 作田 忠裕 (金沢大学)

Stable Operation Region and Dynamic Behavior of Ar Pulse-Modulated Induction Thermal Plasma with Different Molecular Gases

Yasunori Tanaka, Member, Tadahiro Sakuta, Member (Kanazawa University)

The pulse-modulated induction thermal plasma (PMITP) was established in Ar gas with additional gases such as H₂, O₂, N₂ and CO₂ to investigate the effects of various gas inclusions upon the transient characteristics of thermal plasma. The dynamic response times of the thermal plasmas were estimated from the measured time-varying radiation intensity of Ar spectral line. Furthermore, time evolution of the Ar excitation temperature was determined by the two-line method. The results indicated that especially in Ar-CO₂ PMITP, decreasing lower current level in a modulation cycle raised the on-delay time which means a recovery time from low temperature state to high temperature one. In addition, the inclusion of CO₂ in Ar PMITP caused lower temperatures just before the on-operation compared with other gases used in the experiment.

キーワード：誘導熱プラズマ, パルス変調, 過渡応答特性時間, Ar 励起温度

Keywords: Induction thermal plasma, pulse-modulation, dynamic response time, Ar excitation temperature

1. まえがき

大気圧程度の高気圧で発生させた熱プラズマは、重粒子温度すなわちガス温度が数千から数万ケルビンと高く、エンタルピーが極めて大きいため、これまでこの熱を利用して、溶接、溶射などの分野で応用されてきた。近年、熱プラズマの中でも誘導熱プラズマ (ICTP; Inductively Coupled Thermal Plasma) が材料分野で注目されている。これは、ICTP が無電極でクリーンな熱プラズマ空間を形成でき不純物がないことが大きな理由として挙げられる。また、これまで問題であった電力変換効率が、真空管に替わる大電力半導体高周波素子の出現のため以前ほど問題とならなくなったことも理由の一つである。最近ではこの ICTP のクリーン・高温・高活性・高反応性を活かし、Si 結晶の精製、ダイヤモンド薄膜、セラミック微粒子、高温超伝導膜の生成などの様々な材料プロセス分野への応用が活発になっている^{(1)~(9)}。しかし、熱プラズマはガス温度、熱容量が極めて高く、ガス温度の制御が困難であったため、基板や生成物に熱的なダメージを与えてしまう欠点も指摘されている⁽¹⁰⁾。このため、熱プラズマのガス温度を制御する新しい手法を確立することが望まれている。

以上の背景の下、筆者らは ICTP を維持するコイル電流をミリ秒オーダーの周期でパルス的に振幅変調させて

熱プラズマを意図的に過渡状態することを考案している^{(10)~(17)}。この誘導熱プラズマをここでは「パルス変調誘導熱プラズマ (PMITP; Pulse Modulated Induction Thermal Plasma)」と呼ぶ。この PMITP を用いれば、熱プラズマを時間的に交互に、ガス温度および電子温度の高・低ならびに高温熱流体の高速・低速状態とすることができる。このため、材料プロセス分野において、熱プラズマの高ガス温度・高活性を活かしつつも、基板へのダメージをできるだけ小さくできる可能性があり、かつ通常の定常・平衡運転条件下では生成できない新物質創製も期待できる。さらに、各ガスが熱プラズマの過渡応答に及ぼす影響を検討できるため、電力用遮断器消弧媒体の消弧性能の検証、代替ガス探索に使用できる。

本論文では、ガス温度制御可能な材料プロセス用熱源としての可能性を探るために、大気圧の Ar PMITP を点弧し、そこに H₂, N₂, O₂ および CO₂ の四種類のガスを数%混合させた場合について、それらガス種が PMITP の安定維持範囲、過渡応答および Ar 励起温度変化に与える影響を検討している。これらのガスは熱プラズマプロセスに様々に使用されるものである⁽¹⁸⁾。ここで検討する PMITP の安定維持範囲は、材料分野における PMITP の使用範囲を制限するものとして極めて重要であり、過渡応答特性は材料生成に直接影響を与える。ここでは、過渡応答特性と

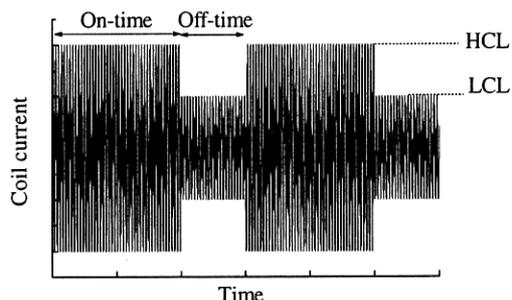


図1 パルス変調されたコイル電流
Fig. 1. Pulse modulated coil current.

して Ar PMITP から放射される Ar スペクトル放射強度の過渡変化と、Ar 励起準位間に Boltzmann 分布を仮定した場合における Ar 励起温度の時間変化とに対する、ガス混入の影響を明らかにしている。

2. パルス変調誘導熱プラズマの動作パラメータ

これまでの論文においても PMITP の動作原理について述べてきた^{(11)~(13)}が、ここでも簡単に述べる。図1に、PMITP 方式のコイル電流波形の概略図を示す。本実験装置におけるコイル電流の高周波基本周波数は 450 kHz である。この周波数 450kHz に選定したのは、適用周波数を下げること、近年大電力化してきた高周波大電力 MOSFET を電源として採用できるためと、MHz 帯の電磁界に比較して浸透深さを大きくとれ、大口径大容量の熱プラズマを容易に維持できるためである。MOSFET の電力変換効率は 80% 程度であり、従来の ICTP 用真空管型電源の効率約 40-60% に比較して、極めて高効率であるのが特徴の一つである⁽¹⁹⁾。また、MOSFET により電流を振幅変調することが可能になる。本実験においては、この高周波電流を同図に示すように数百 Hz オーダで方形波パルス的に振幅変調 (AM 変調) を施している⁽¹¹⁾。ここで、同図に示すように HCL および LCL をそれぞれ電流振幅の高値 (Higher Current Level) および低値 (Lower Current Level) とし、On-time および Off-time を変調一周期において電流振幅が HCL をとる時間および LCL をとる時間と定義する。これらはそれぞれ独立に設定することができる。また、電流振幅が HCL および LCL をとる状態をそれぞれ On 状態および Off 状態と呼ぶことにする。さらに、電流振幅の比 $LCL/HCL \times 100$ [%] を電流変調率 SCL (Shimmer Current Level) と定義する。Duty factor DF は $DF = \text{On-time} / (\text{On-time} + \text{Off-time}) \times 100$ [%] とする。これらのパラメータを様々に設定することにより様々な状態の熱プラズマが発生できる。今回の実験においては HCL を一定としたまま LCL を変化させて SCL を変化させている。

一般的に、ICTP は以下のようにして形成される。コイルに流した高周波電流がトーチ内部に軸方向の交番磁界を

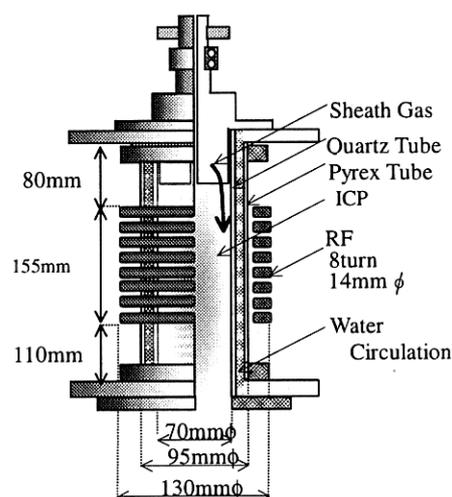


図2 熱プラズマトーチ

Fig. 2. Schematic diagram of thermal plasma torch.

作り、さらにこれにより周回方向の電界を作成して電子を加速する。この時、気体は電子との衝突によりエネルギーを受け、あるものは電離され、あるものは加熱される。これが一般的な ICTP の形成構造である。ここで本論文の手法では、この高周波電流をパルス的に変調し、トーチ内部に形成される電界も変調させ、したがって電子への入力電力も変調させる。これにより、電子の運動エネルギーを変調させ、ガス温度を変調させ、時間平均的ガス温度を制御することを試みている。筆者らは、これまでモデリングから PMITP の電磁熱流体的構造について検討しており^{(14)~(17)}、On-time および Off-time を数 ms オーダとすると熱プラズマのガス温度がコイル電流の変調にともない、変化できることを明らかにしている⁽¹⁷⁾。したがって、本論文においては一例として On-time=10 ms とした実験について述べている。

3. 実験装置

(3・1) パルス変調誘導熱プラズマ発生装置 図2に、本実験に用いた PMITP トーチの断面図を示す。熱プラズマ発生部は二重管構造になっており、内管は内径 70 mmφ、厚さ 5 mm の石英管、外管は外径 95 mmφ、厚さ 5 mm のパイレックス管である。これらの長さは 370 mm である。これら内外管の隙間に水を流すことにより石英管を冷却し、石英壁温度をほぼ 300K に保っている。ガスは内管の内壁に沿って上部からシースガスとして流している。これにより、高温熱プラズマを石英管壁から隔離するとともに熱プラズマにガスを供給している。本実験においてはガスとして Ar, Ar-H₂, Ar-N₂, Ar-O₂ および Ar-CO₂ の 4 種類を用いている。熱プラズマ発生用誘導コイルは、8 turns、コイル導体径 14 mmφ、コイル外径 130 mmφ、コイル長 155 mm のものである。電源としては基本周波数 450 kHz、最

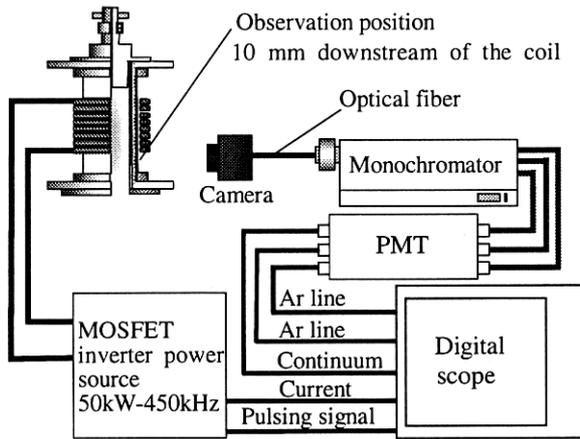


図3 スペクトル観測システム

Fig. 3. Spectroscopic observation system.

大電力 50 kW の MOSFET インバータ電源を用いている。

〈3・2〉 スペクトル観測系 図3は実験に用いたスペクトル観測システムの概略図である。スペクトル観測位置として、コイル下 10 mm の径方向中心点を取っている。この位置における熱プラズマからの放射光をカメラレンズにより集光する。カメラの集光面には光ファイバ束を取り付け、光を分光器のスリット前に導いている。分光器の出射側には三組の光ファイバ束端部を並べてある。これらの光ファイバ束の別端には光電子増倍管を設置してあり、所定の三波長における放射強度の時間変化を同時に測定できる。この装置の波長分解能は 1 チャンネルあたり 0.6 nm である。これらのカメラレンズ、光ファイバなどすべてを含めたスペクトル観測系は、タングステンハロゲンランプ標準二次光源により、校正している。

〈3・3〉 実験条件 今回の実験においては、PMITP の基礎特性を測定する目的で、次のように基準条件を設定した。本論文で一定とした条件は以下のものである。パルス変調を加えない場合の MOSFET 電源への入力電力を 30 kW 一定、チャンバ内圧力 760 torr (=100 kPa) 一定、シースガスの流量を Ar/付加ガス = 100/2.5 liters/min 一定、On-time / Off-time = 10 ms / 5 ms 一定とする。ここで上記の条件を基準とした理由は、熱プラズマ温度を変調させる変調周期が ms オーダであることと、電源容量の制約条件の中で、大気圧 Ar PMITP が安定点弧する条件が実験的に上記条件であることがわかったためである。

この条件の下、付加ガスの種類を H_2 , N_2 , O_2 , CO_2 の 4 種類とした。SCL については、HCL を定常 30kW 一定の条件での値で固定し、LCL を下げることにより、40-100% としている。ただし、PMITP の安定維持範囲を探る実験においては Off-time を 0-990 ms (DF=100-1%) までとっている。

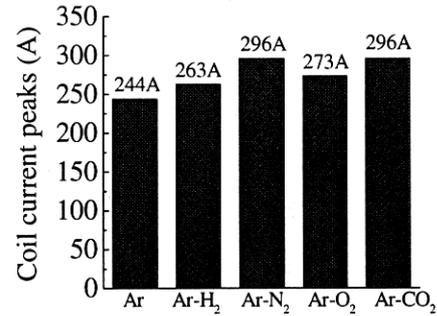


図4 各種ガス ICTP の定常運転時のコイル電流波高値

Fig. 4. Peak value of coil current for different steady ICTP.

4. 各種ガス混入パルス変調誘導熱プラズマの発生とコイル電流

〈4・1〉 コイル電流 まず、パルス変調を加えない定常状態における実験を行った。図4は、入力電力を 30 kW 一定とした定常状態時のコイル電流波高値を示している。Ar ICTP の場合 244 A であるが、付加ガスを混入させると、電流波高値は大きくなる。特に N_2 , CO_2 を混合させた場合は、296 A となり、その大きさは Ar の場合の値 244A に比較して 1.2 倍である。このように Ar のみの場合より、流量比で分子ガスを数%混入させた熱プラズマは同一電力条件においても大きな電流を要している。これはつぎのように考えられる。付加ガスとして分子ガスを用いているため、その解離にエネルギーが費やされる。分子の解離へのエネルギー消費は、等価的にガスの熱伝導率の三成分 (接触熱伝導率、内部熱伝導率、反応熱伝導率) のうち、反応熱伝導率をいわゆる解離温度付近において大きくすることになる⁽²⁰⁾。熱伝導率の局部的上昇はその温度における温度勾配を小さくするため、熱プラズマが径方向に縮小する。その結果、コイル磁界と熱プラズマとの結合が弱くなり、コイル電流波高値が一定電力を維持するために上昇したものと考えられる。

次に HCL を図4の値に固定したまま、LCL を低下させ、On-time / Off-time = 10 ms / 5 ms の条件でパルス AM 変調させて PMITP の維持を試みた。その結果、前記三つのガス種・流量条件でそれぞれの PMITP を安定に維持できた。図5(a)は、パルス制御信号、(b) 上部は Ar PMITP の場合のコイル電流波形、下部はそのステップ変化時の時間軸拡大図を示している。SCL = 40% である。同図に示すように、約 80 μ s 程度かけてコイル電流振幅を上昇させている。このように次第に振幅を上昇させるのは、急激なコイル電流変化によってコイル間に誘起される高電圧をなるべく抑えるためである。図6(a)は、パルス制御信号、同図(b), (c) および (d) はそれぞれガスを Ar, Ar-N₂ および Ar-CO₂ とした場合における PMITP の高周波コイル電流

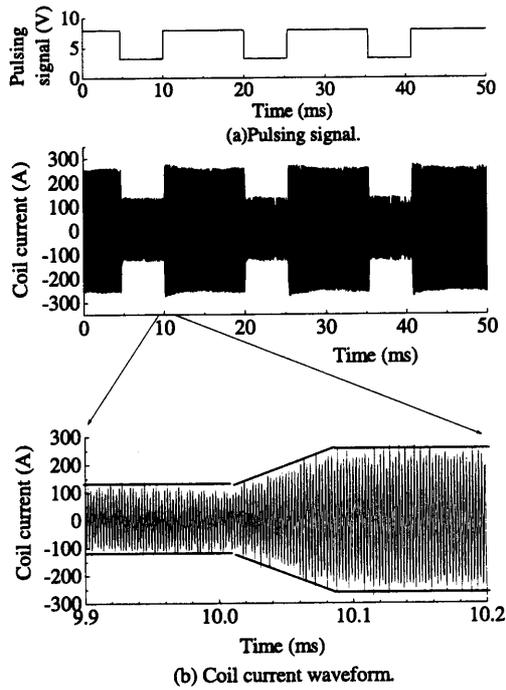


図5 電流変調率 SCL=40%時における Ar PMITP におけるコイル電流波形
Fig. 5. Current waveform for Ar PMITP at SCL=40%.

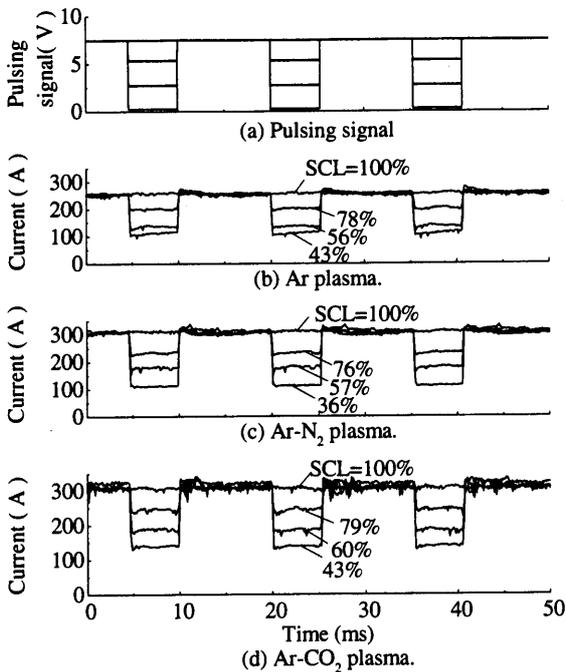


図6 各種ガスパルス変調誘導熱プラズマのコイル電流包絡線変化
Fig. 6. Coil current waveforms for different PMITP.

の包絡線変化の正の部分を示している。SCLがパラメータとなっている。いずれの条件においてもコイル電流の波高

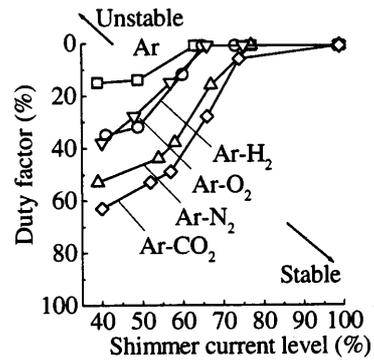


図7 各種ガス PMITP の安定維持範囲
Fig. 7. Stable operation region for different PMITP.

値は、パルス制御信号にともなって方形波的に AM 変調できており、かつコイル電流が $80 \mu\text{s}$ 以下の短時間でステップ的に変調できていることが確認できた。

〈4・2〉 PMITP の安定維持範囲 PMITP は、LCL を小さくするほど、あるいは Off-time を長くするほど、入力電力の時間的平均値が小さくなり、入力電力よりも損失の方が大きくなれば安定維持が難しくなり、やがて消滅する。そこで、一例として HCL を定常 30 kW 時の値に固定し、SCL および DF を変化させることで、それぞれ LCL および Off-time を変化させて、PMITP を安定維持する範囲を実験的に検討した。図 7 は PMITP を安定維持する臨界条件を DF-SCL 上にプロットしたものである。図中プロットよりも DF が小さいあるいは SCL が小さくなると PMITP を維持できなくなることを示している。Ar PMITP の場合、安定維持領域は広く、 $SCL < 50\%$ 、 $DF < 14\%$ で不安定領域が現れる。このように PMITP には、安定維持のために DF および SCL に対して限界値があり、完全に任意の DF および SCL に設定できないことがわかる。ここに分子ガスを混入させると、さらに不安定領域が広がる。特に、 CO_2 を混合させると、 $SCL < 66\%$ 、 $DF < 28\%$ で不安定となり、他のガスに比較して CO_2 を混合すると PMITP が不安定になる領域が極端に広がることわかる。このことから、 CO_2 が熱プラズマ維持を妨げる効果があるものと考えられる。これは熱プラズマプロセスからは CO_2 混合によって、PMITP の平均的温度をより低下しうること示しており、極めて重要である。

5. 検 討

〈5・1〉 パルス変調誘導熱プラズマの温度 ここで取り扱う PMITP は厳密には熱平衡プラズマとはいえないが、以下の考察から、ある部分において局所熱平衡が成り立つものと仮定して取り扱う。

本論文では、対象としている PMITP 内におけるいずれの粒子の速度分布も Maxwell-Boltzmann 分布になっていると仮定する。これは、ここで扱う熱プラズマの典型的な

実測電子温度 ($\sim 1\text{-}2\text{ eV}$) および電子密度 ($\sim 10^{22}\text{ m}^{-3}$) の条件下では、電子-電子の衝突によるエネルギー緩和時間 $\tau_{ee} \sim 10^{-12}\text{ s}$ ⁽²¹⁾が、制動放射によるエネルギー減衰時間 $\tau_{\text{rad}} \sim 10^{-3}\text{ s}$ ⁽²¹⁾、電界による加熱時間 $\tau_h \sim 10^{-4}\text{ s}$ ⁽²¹⁾ および他中性粒子との衝突によるエネルギー減衰時間 $\tau_c \sim 10^{-6}\text{ s}$ ⁽²¹⁾ よりも十分小さいことから、この仮定がほぼ成り立っているものと判断した。したがって、これによりそれぞれの粒子温度が定義できるとした。

ICTPにおいては、特に管壁付近においてガス温度が低くかつ電界強度の大きい場合、ガス温度と電子温度との相違が発生することが指摘されている ⁽²²⁾。一般に、対流、拡散、粘性による発熱、放射、非弾性衝突などの効果を見積もった場合、次式によりガス温度 T_g と電子温度 T_e との相違を見積もることができる ^{(20) (21)}。

$$\frac{T_e - T_g}{T_e} = \frac{m_{\text{Ar}}}{4m_e} \left(\frac{el_{e-\text{Ar}}E}{\frac{3}{2}kT_e} \right)^2 \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 m_e : 電子の質量、 m_{Ar} : Ar 原子の質量、 e : 素電荷、 $l_{e-\text{Ar}}$: Ar プラズマ中の電子の平均自由行程、 E : 電界強度、 k : Boltzmann 定数である。この式から、電界強度が、200 V/m 以下の場合、 $(T_e - T_g)/T_e$ は 0.2 以下となり、20% の相違を見込んでほぼ局所熱平衡状態が成り立つと考えてみる。本装置においては、半径 $r < 15\text{ mm}$ において $E < 200\text{ V/m}$ であるため、 $r < 15\text{ mm}$ の範囲においてはほぼガス温度と電子温度とが等しくなるといえる。 $r > 15\text{ mm}$ の範囲においては、ガス温度と電子温度とは等しいとはいえないが、本論文においては簡単化のため局所熱平衡が成り立つものとして整理している。

過渡変動が生じた今回の PMITP について、筆者らはこれまでに局所熱平衡を仮定したモデルによる計算結果と、実験結果とを比較し、特に立ち上がり部分で局所熱平衡からのずれを確認している ⁽¹⁴⁾。しかし、熱プラズマの熱的変動を大まかに見るためには局所熱平衡モデルが有用であるため、ここでも使用する。

〈5・2〉 熱プラズマの過渡応答特性

コイル電流のパルス AM 変調に伴う熱プラズマ内部変化を把握するために、例として波長 751 nm における Ar スペクトル放射強度の時間変化を測定した。図 8(a) はパルス制御信号、同図 (b), (c) および (d) はそれぞれ Ar, Ar-N₂ および Ar-CO₂ PMITP からの Ar スペクトル放射強度の時間変化である。同図からいずれの条件においても、コイル電流のパルス AM 変調にともない、Ar スペクトル放射強度は強弱を繰り返している。この放射強度は、プラズマが光学的に薄いと仮定すると、観測範囲における、エネルギー準位 106054 cm^{-1} (13.1 eV) に励起される Ar 原子数に比例している。したがってこの放射強度の変化は、励起原子数の増減が熱プラズマ内で繰り返して生じていることを示唆している。このようにコイル電流を数ミリ秒オーダーで AM 変調させることにより熱プラズマを意図的に過渡状態にすることが確認できる。

図 9 は、変調周期内におけるスペクトル放射強度変化の

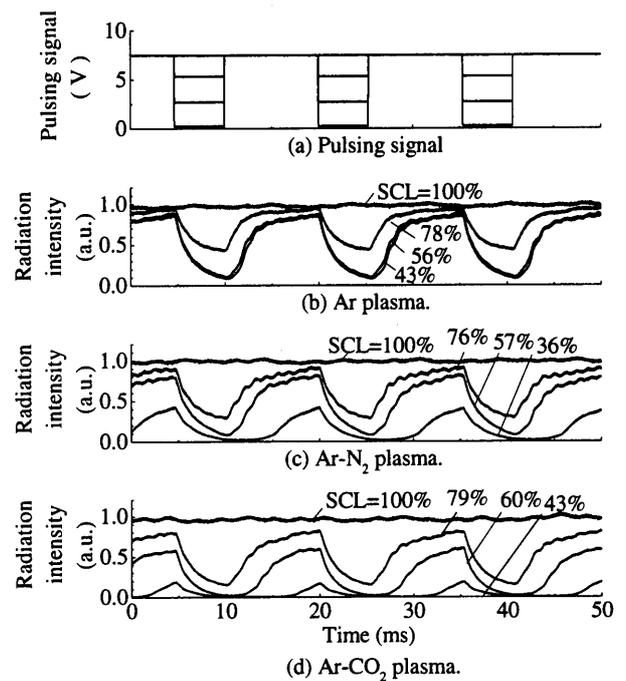


図 8 各種ガス PMITP からの波長 751 nm における Ar スペクトル放射強度の時間変化
Fig. 8. Time evolution of radiation intensity of Ar line at 751 nm emitted from different PMITP.

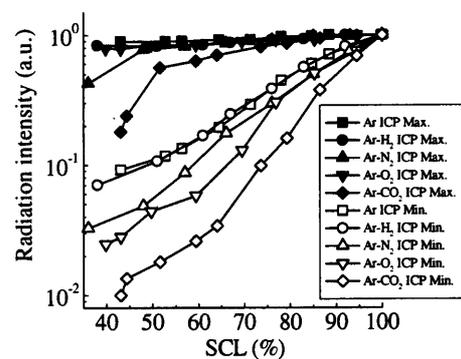


図 9 変調一周期における放射強度の最大値および最小値の SCL 依存性
Fig. 9. Dependence of maximum and minimum values of radiation intensity on shimmer current level.

最大値と最小値の SCL 依存性を示したものである。同図では、いずれのガスの熱プラズマに対しても SCL=100% の場合の放射強度を 1 に正規化して表示している。同図から、Ar PMITP の場合、SCL を低下させると放射強度の最大値はほぼ保たれているが、最小値は指数関数的に低下することがわかる。例えば、SCL=40% では放射強度の最小値は最大値の約 1/10 にまで低下している。この放射強度は、前述のように励起原子数の増減に比例している。一方、一般的に励起原子数は、励起させる粒子の平均エネルギーす

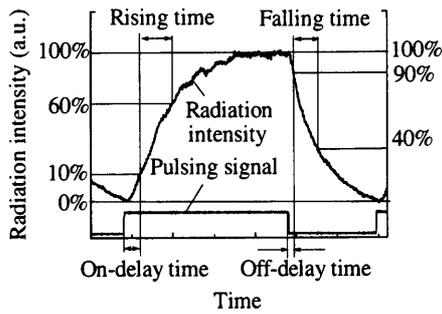


図 10 特性時間の定義

Fig. 10. Definition of characteristic times.

なわち温度が高くなると急激に増加する。励起原子数間に Boltzmann 分布が仮定できる場合には次式が成り立つ。

$$N_m = \frac{n_{Ar}}{Z_{Ar}} g_m \exp\left(-\frac{E_m}{kT_{ex}}\right) \dots\dots\dots (2)$$

ここで、 n_{Ar} : Ar 原子の密度、 Z_{Ar} : Ar 原子の内部状態和、 m : 準位 m の添え字、 E_m : 準位 m のエネルギーレベル、 T_{ex} : Ar 励起温度である。したがって、放射強度の増減は、大略 Ar 励起温度の高低と考えることができる。このことから、SCL を低下させることにより、パルス On 時の高温状態を保ったまま、パルス Off 時の低温状態のみを下げるができることになる。分子ガスを混合させた場合、SCL を低下させると、最小値はより低下していく。特に CO_2 を混合させると SCL=45% では、放射強度は 0.013 であり、SCL=100% の場合の 1/100 である。これは、分子ガスを解離するためにエネルギーが費やされ、前述のようにこれは等価的ガスの反応熱伝導率を大きくさせる⁽²⁰⁾ことが考えられる。 CO_2 の混入で CO_2 、 CO の二段解離が生じ熱伝導損が増加し熱プラズマ冷却効果が大きくなり、On 直前の温度が低下していると考えられる。

〈5・3〉特性時間導入による応答特性の比較 図 6 に示したコイル電流変化は、図 8 の放射スペクトル強度変化に比較して十分速い。また、圧力が 0.1MPa と大きく、数ミリ秒オーダーでは粒子の衝突励起が十分行われることから、この放射強度の波形は熱プラズマ自身の変動に対応していると考えられる。そこで、これら Ar スペクトル放射強度波形から、その立ち上がり、立ち下がり時間、On-遅延時間および Off-遅延時間を熱プラズマの過渡応答特性時間として算出した。図 10 に、それら特性時間の定義を示す。On-遅延時間は低温状態から高温状態への復帰速さ、Off-遅延時間は高温状態から低温状態への変化の速さ、立ち上がりおよび立ち下がり時間はそれぞれ熱プラズマの過渡変化の速さを示している。別途、他の 12 本の Ar スペクトル放射強度に対しても同様の手法で、熱プラズマ特性時間を検討したが、全て同様の結果となった。したがって、ここでの特性時間はスペクトルに依存するものではなく、熱プラズマ全体の特性であるといえる。

図 11 に SCL を変化させた場合の各ガスの熱プラズマにおける Ar スペクトル放射強度の特性時間を示す。同図 (a) および (b) から、立ち上がり時間および On-遅延時間が、特に CO_2 を混入させた場合、純粋 Ar の場合に比較して大きくなっている。この時間応答は発光領域の半径方向の広がり速度および温度変化に関する。第〈5・1〉節から、局所熱平衡が成り立つと仮定すると、PMITP の温度変化は次式に従う⁽¹⁷⁾。

$$\frac{Dh}{Dt} = \rho C_p \frac{DT}{Dt} = \rho C_p \left(\frac{\partial T}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) T \right) \quad (3)$$

$$= \sigma \mathbf{E} \cdot \mathbf{E}^* + \nabla \cdot (\kappa \nabla T) - P_{rad}$$

ここで、 h : エンタルピー、 C_p : 定圧比熱、 T : 温度、 ρ : 質量密度、 \mathbf{u} : 流速ベクトル、 σ : 導電率、 \mathbf{E} : 電界強度、 κ : 熱伝導率、 P_{rad} : 放射損である。ここで温度に関しては $T=T_e=T_g$ を仮定している。上式から、温度変化の速さは単位体積あたりの比熱 ρC_p に大きく依存することがわかる。この ρ は一般的に状態方程式から温度に逆比例するため、 ρC_p も温度の低い領域においては温度にほぼ逆比例になる。 CO_2 を混入した場合、純粋 Ar 熱プラズマに比べ、特に On 直前の状態において温度が低くなり、 ρC_p が急激に大きくなるため応答が遅くなったと考えられる。また同図より、立ち上がり時間および On-遅延時間は、いずれのガスの熱プラズマにおいても SCL を小さくするにつれ、次第に長くなるという傾向が見られる。特に On-遅延時間にはこの傾向が顕著である。これは SCL が小さい場合、放射強度の最低値が小さく温度も低くなっており、上記と同様の理由で応答が遅くなると考えられる。一方、立ち上がり時間および Off 遅延時間にはガス種による違いや SCL 依存性はみられない。これはいずれのガス条件においても、Off 直前状態が同程度の高温状態にまでほぼ復帰できており、分子が解離され原子あるいはイオン状態にまでなっており、ガスの特徴が出現しにくくなっているためと考えられる。

〈5・4〉Ar 励起温度の変化 PMITP において熱プラズマの温度がどのように変化しているのか、また、ガス混合により温度がどのように変化するのかを検討する。Ar 原子の励起分布が Boltzmann 分布に従うと仮定できるとき、Ar 励起温度 T_{ex} は次式から求められる⁽²³⁾。

$$T_{ex} = \frac{E_1 - E_2}{k \ln \left(\frac{g_1 A_1 \lambda_2 I_2}{g_2 A_2 \lambda_1 I_1} \right)} \dots\dots\dots (4)$$

ここで、 k : Boltzmann 定数、 g : 上準位の縮退度、 E : 上準位エネルギー、 A : 遷移確率、 I : 放射強度である。本算出においては、波長 703.0 および 714.7nm における Ar スペクトルを選んだ。これらのスペクトル線は上準位エネルギーレベルの差 $E_1 - E_2$ が 1.5 eV と比較的大きく、Ar 励起温度を精度よく算定できるためである。また、これらの二本のスペクトルの二線強度比法から得られる温度は、7 本の波長 687.1, 696.5, 703.0, 706.7, 714.7, 727.3 および 738.4 nm における Ar スペクトル放射強度から得られる温

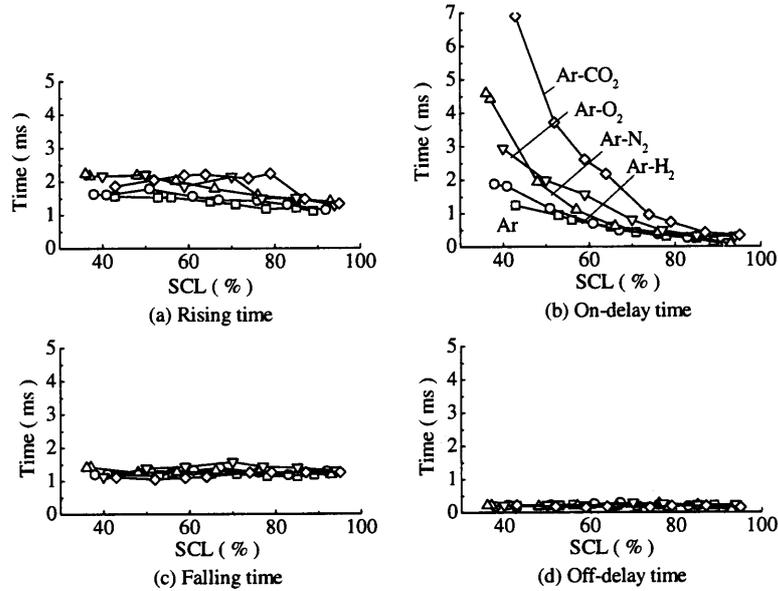


図 11 各種ガス PMITP の特性時間の SCL 依存性

Fig. 11. Dependence of four characteristic times of PMITP on SCL.

度と同程度であることも確認している。ここで得られる温度は、上述の上準位エネルギーレベル間で定義された Ar 励起温度である。これは Ar 原子を励起する粒子の運動エネルギーすなわち温度に比較的近くなる。当該の場合においては、Ar 原子を励起する粒子は電子が支配的である。したがって、Ar 励起温度は電子温度に近いと考えられる。一方、第<5.1>節の議論から、今回のように高気圧熱プラズマでは本算定範囲では電子温度とガス温度とはほぼ等しいと考えられる。一方、今回測定している放射強度は、プラズマの径方向に積算した見かけの放射強度である。通常、アーベル逆変換を施しその分布を求めて Ar 励起温度を算出するが、今回は簡易的に見かけの放射強度で Ar 励起温度を求めた。ここで求めた温度は、観測部分の放射係数が最も大きい箇所の Ar 励起温度を最も大きく反映しており、その箇所は通常最も Ar 励起温度の高いところである⁽²⁴⁾。

図 12 は、Ar, Ar-N₂ および Ar-CO₂ における Ar 励起温度の時間変化を示している。Ar PMITP の場合、ここで求めた Ar 励起温度は SCL を小さくしてもほとんど変化していない。一方、N₂ あるいは CO₂ を混合させると Off 時における温度が明らかに低下し、コイル電流のパルス変調に従い周期的に変化している。この温度変化における変調一周期における温度の最大値と最小値とを SCL に対してプロットしたのが、図 13 である。同図 (a) から、温度の最大値は SCL を変化させてもほとんど変化せず、17000 K 程度である。一方、温度の最小値は SCL を低下させると低下していく。これは、HCL を一定としたまま、SCL あるいは LCL を制御すると、最大温度を保持させたまま、最小温度のみを制御できることを示している。特に CO₂ 混合時において

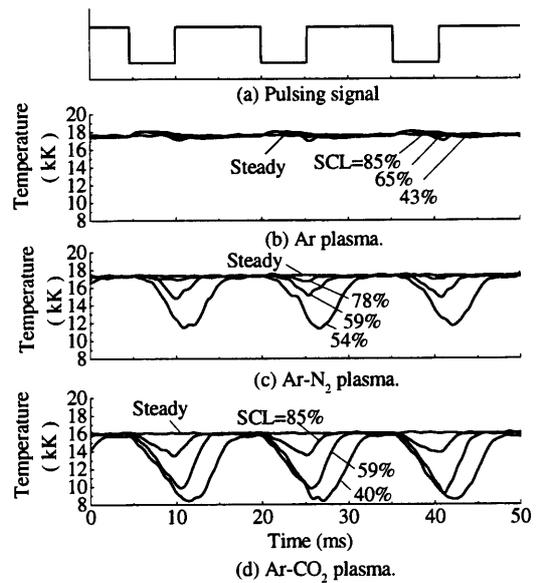


図 12 各種ガス PMITP における Ar 励起温度の時間変化

Fig. 12. Time variation in Ar excitation temperature in different PMITP.

は、最小温度は SCL=40% において、8000 K まで低下でき、そのときの最大温度 16000 K の約 1/2 となる。この結果は、CO₂ には熱プラズマを冷却する能力が他の対象ガスよりも大きいことを示唆している。

図 14 は各熱プラズマの On-遅延時間と Ar 励起温度の最小値との関係を示したものである。同図から、温度が低下

するに従い On-遅延時間が大きくなっていることが確認できる。このことから、On-遅延時間の増加の原因として、温度が低下していることが考えられることが判明した。

(5・5) プロセス用熱源としての応用 以上から、PMITPにより熱プラズマ温度を数 ms オーダで変調でき、これにより平均的な温度を低下させることができることが判明した。熱プラズマ溶射などのプロセス用熱源としての応用を考えた場合、基材・基板の熱容量が大きくそれらの温度上昇の時定数が数 ms 以上であれば、熱プラズマ平均温度が低下しているため、定常の熱プラズマに比較して基材・基板に与える熱的ダメージも小さく抑えられると考えられる。ただし、基板・基材の熱容量が小さく温度上昇の時定数が数 ms 以下の場合には、熱的ストレスを与える可能性もある。

(5・6) 電力用遮断器用ガス診断への PMITP の適用性 これまでに、筆者らは定常 ICTP 装置を用いた手法により、消弧媒体 SF₆ を含む各種ガスの熱プラズマ冷却効果を検討し、ICTP の消弧媒体ガス試験装置としての有効性を検討してきた^{(25)~(27)}。しかし、アーク遮断現象は本質的に過渡現象であり、各ガスが熱プラズマの過渡変動に及ぼす影響を検討することが必要である。本論文でとりあげた PMITP を使用すれば、各ガスが熱プラズマの過渡応答に及ぼす影響を検討できるため、これを電力用遮断器消弧媒体アークの過渡状態を模擬した消弧性能の検証、代替ガス探索に適用しうると考えられる。

本論文では PMITP の安定維持範囲および過渡応答特性を取り上げ、それらの付加ガスによる変化を検討した。PMITP が安定維持しうる範囲が小さいガスほど、熱プラズマの過渡変動に対して、熱プラズマの消滅を促していることになり、このことから消弧性能を評価できる。SCL を小さい状態で Off-time を次第に大きくとっていく実験においては、On 動作直前の温度をより低くした状態で、電界をかけることになり、各温度における熱プラズマの復帰の速さを表すと考えられる。PMITP の安定維持範囲は Ar ガスの場合が最も広く、付加ガスとして分子ガスを数%混合させただけでも小さくなった。特に CO₂ を混合させた場合には、極端に小さくなった。このことは、CO₂ の熱プラズマ消滅能力が高いことを示しているといえる。

また、過渡応答特性は、アーク遮断の立場からはアークの過渡変動および復帰特性と関係付けられ重要である。特に、PMITP の安定維持が難しくなる領域においては、この特性が熱プラズマ消弧性能と密接に関わっていると考えられる。本実験結果においては、PMITP の過渡変動特性の中でも、On-遅延時間に SCL 依存性とガス依存性が強く現れた。特に、CO₂ を混合させた場合には、他の場合に比較して著しく On-遅延時間を大きくする作用があることがわかった。On-遅延時間は、熱プラズマが低温から高温へ復帰する速さを表しており、低温となった熱プラズマに過渡回復電圧が印加された場合と想定できる。したがって、CO₂ には一度低温になった熱プラズマを維持しようとする作用が

あるといえる。このことは、アーク遮断の観点からは、一度消弧したアークプラズマに電圧が印加された場合にもアークが再び形成されにくいことを示していると考えられる。

6. 結 論

コイル電流を意図的に振幅変調させたパルス変調誘導熱プラズマ (PMITP) により、Ar, Ar-H₂, Ar-N₂, Ar-O₂ および Ar-CO₂ の 5 種類の熱プラズマ過渡応答特性を実験的に検討した。その結果、以下の知見を得た。

- (1) PMITP の安定維持範囲は、Ar ガスの場合が最も広く、付加ガスとして分子ガスを数%混合させただけでも小さくなる。特に CO₂ を混合させた場合には、極端に小さくなる。このことは、CO₂ の熱プラズマ消滅能力が高いことを示している。
- (2) PMITP の過渡変動特性の中で、On-遅延時間に SCL 依存性とガス依存性が強く現れる。特に、CO₂ を混合させた場合には、他の場合に比較して著しく On-遅延時間を大きくする作用がある。On-遅延時間は、熱プラズマが低温から高温へ復帰する速さを表している。したがって、CO₂ には、一度低温になった熱プラズマを維持しようとする作用がある。
- (3) PMITP により、熱プラズマ温度を数 ms オーダで変調でき、これにより平均的な温度を低下させることができる。熱プラズマ溶射などの応用を考えた場合、基材・基板の熱容量が大きく温度上昇の時定数が数 ms 以上であれば、定常の熱プラズマに比較して基材・基板に与える熱的ダメージも小さく抑えられると考えられる。
- (4) HCL を維持したまま LCL(SCL) を小さくすると、パルス変調一周あたりの Ar 励起原子数の最大値を維持したまま、最小値を低下させることが可能である。また同時に、パルス変調一周あたりの Ar 励起温度の最大値を維持したまま、最小値を低下させることも可能である。特に CO₂ を混合させた場合、Ar 励起原子数および Ar 励起温度の最小値をより小さくすることができる。すなわち、SCL を制御すれば、Ar 励起原子数および Ar 励起温度の最小値を制御でき、時間平均的なこれらの量を制御できることを示している。
- (5) PMITP の安定維持範囲および過渡変動特性は、熱プラズマ消滅能力と密接に関わっている。このことから、PMITP は、電力用遮断器消弧媒体の試験装置として使用可能である。

7. 謝 辞

本研究の実験を遂行するにあたり、ご協力いただいた片山正幸氏 (現 (株) 東京電力) に感謝致します。

本研究の一部は、平成 13 年度科学研究費補助金基盤研究 (B)(1)(No.11555078) および平成 13 年度科学研究費補助金奨励研究 (A) (No.12750237) の補助を受けた。

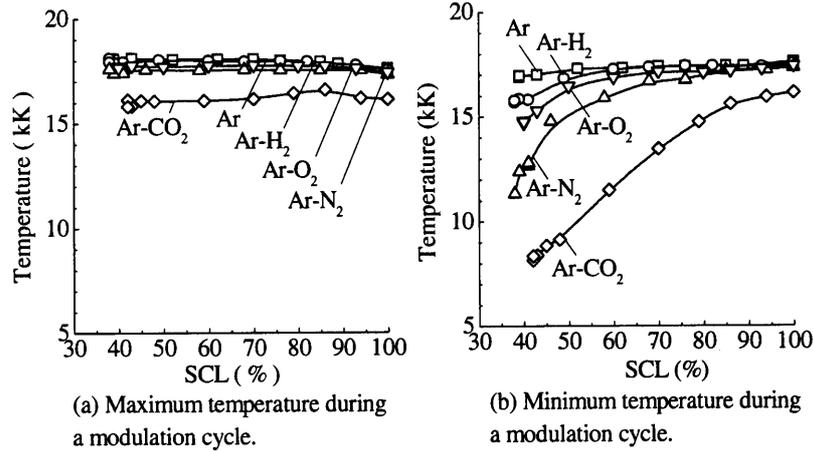


図 13 パルス一周期における温度の最大値および最小値の SCL 依存性

Fig. 13. Maximum and minimum values of Ar excitation temperature in a modulation cycle in different PMITP.

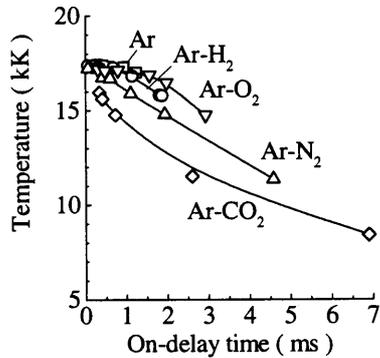


図 14 On-遅延時間と温度の最小値との関係

Fig. 14. Relationship between minimum temperature in a modulation cycle and on-delay time.

(平成 13 年 7 月 24 日受付, 同 13 年 11 月 7 日再受付)

文 献

- (1) S.Magnaval, M.Arnold, I.Cazard-Juvernât, E.Francke, D.Morvan and J.Amouroux: "Diagnostic of flow fields of silicon particles in an rf plasma for purification treatments", *Progress in Plasma Processing of Materials*, 291-298, 1997.
- (2) D.Morvan, I.Cazard-Juvernât and J.Amouroux: "Photo-voltaic silicon produced by thermal plasma: Influence of atomic hydrogen on oxygen elimination and passivation of the crystal defects", *J.Mater.Res.*, **13**, 2709-2720, 1998.
- (3) H.Murakami, T.Yoshida and K.Akashi: "High-rate thermal plasma CVD of SiC", *Advanced Ceramic Materials*, **3**, 423-426, 1988.
- (4) 村上, 永井, 色川, 吉田, 明石:「セラミックスの熱プラズマ超高速 CVD 法に関する研究」, 日本セラミックス協会学術論文誌, **97**, 49-55, 1989.
- (5) H.Zhu, Y.C.Lau and E.Pfender: "Deposition of YBa₂Cu₃O_{7-x} thick films using an rf thermal plasma reactor", *Chem. Eng. Sci.*, **45**, 2461-2465, 1990.
- (6) 浜谷, 熊岡, 八幡, 吉田:「高温固体電解質型燃料電池の一貫作成を目指したハイブリッドプラズマ溶射法開発」, 日本金属学会誌, **55**, 1240-1248, 1991.
- (7) X.Fan and T.Ishigaki: "Phase formation during in-flight treatment of MoSi₂ powders in an r.f. induction plasma", *Thermal Spray: Practical Solutions for Engineering Problems*, 379-385, 1996.
- (8) S.Takeuchi, K.Takeda, N.Uematsu, H.Komaki, K.Mizuno and T.Yoshida: "The first step to industrialize decomposition process of ozone depleting substances by steam plasma", *Proc. 12th Int. Symp. Plasma Chem.*, pp. 1021-1026, 1995.
- (9) X.Fan, T.Ishigaki and Y.Sato: "Phase formation in molybdenum disilicide powders during in-flight induction plasma treatment", *J.Mater.Res.*, **12**, 1315-1326, 1997.
- (10) T.Ishigaki and T.Sakuta: "Pulse-modulated rf thermal plasma for advanced materials processing", *J.Intell. Mater. Syst. & Struct.*, **10**, 565-568, 1999.
- (11) 作田, 田中, 橋本, 香月:「高周波電磁界の AM 変調機能を有する高気圧誘導熱プラズマ方式の開発」, 電学論 A, **120-A**, 972-978, 2000.
- (12) Y.Tanaka and T.Sakuta, "Measurement of dynamic response time in pulse modulated thermal plasma", *Trans. MRS-J*, **25**, 35-38, 2000.
- (13) 作田, 田中, 香月, 石垣:「パルス変調された高周波誘導熱プラズマの発生」, 日本金属学会誌, **63**, 2-8, 1999.
- (14) M.M.Hossain, K.C.Paul, Y.Tanaka, T.Sakuta and T.Ishigaki: "Prediction of operating region of pulse modulated rf inductively coupled thermal plasma", *J.Phys.D: Appl.Phys.*, **33**, 1843-1853, 2000.
- (15) K.C.Paul M.M.Hossain, Y.Hashimoto, Y.Tanaka and T.Sakuta: "Responses of a long-coil pulse modulated induction plasma", *IEEE Trans. Plasma Sci.*, **29**, 326-334, 2001.
- (16) K.C.Paul, J.Mostaghimi, T.Ishigaki and T.Sakuta: "Transient response of radio frequency inductively coupled plasma for pulse modulation", *Plasma Chem. Plasma Proc.*, **371-400**, 2001.
- (17) J.Mostaghimi, K.C.Paul and T.Sakuta: "Transient response of the radio frequency inductively coupled plasma to a sudden change in power", *J. Appl. Phys.*, **83**, 1898-1908, 1998.
- (18) 熱プラズマプロセス研究会編:「熱プラズマ材料プロセスの基礎と応用」, 1996, 信山社
- (19) Y.Sakakibara, G.Katagiri, M.Toraguchi and T.Sakuta: "Generation of large area inductively coupled plasma at atmospheric pressure with high efficiency", *Proc. 4th Asia-Pacific Conf. on Plasma Sci. & Technol.*, p.103, 1998.
- (20) M.I.Boulos, P.Fauchais and E.Pfender: *Thermal Plasmas, Fundamentals and Applications*, Vol.1, pp.271-273, 1994, Plenum Press, New York.

-
- (21) 山本, 村山:「プラズマの分光計測」, pp.150-155, 1995, 学会出版センター
- (22) J.Mostaghimi, P.Proulx and M.Boulos: "A two-temperature model of the inductively coupled r.f. plasma", *J. Appl. Phys.*, **61**, pp.1753-1760, 1987.
- (23) F.Canannes and J.Chapelle: Reactions under plasma conditions, Vol.I, ch.7, p.395-396, 1971.
- (24) Y.Tanaka, Y.Yokomizu, T.Matsumura and Y.Kito: "Transient distribution of metallic vapour concentration in a post-arc channel after current zero along the nozzle axis in a flat-type SF₆ gas-blast quenching chamber", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **29**, 1540-1550, 1996.
- (25) 田中, 作田:「大気圧誘導熱プラズマを用いた電力用遮断器消弧媒体の消弧基礎特性の診断」, 電学論 B, **121-B**, 758-766, 2001.
- (26) 田中, 作田:「大気圧誘導熱プラズマを用いた各種環境適応ガスの熱プラズマ冷却効果の診断」, 電学論 B, **121-B**, 837-844, 2001.
- (27) Y.Tanaka, M.Takahashi and T.Sakuta: "Influence of various gas injection upon Ar thermal ICP at atmospheric pressure", *Int. Workshop on High Voltage Engineering, IWHV'00*, Vol.I, ED-00-120, SP-00-28, HV-00-38, 2000.

田中 康規 (正員) 1970年生。1997年4月～1998年3月日本学術振興会特別研究員 DC。1998年3月名古屋大学大学院工学研究科博士課程後期課程修了。同年4月金沢大学工学部助手。工学博士。主として、大電流アーク遮断現象、熱プラズマ診断・応用に関する研究に従事。



作田 忠裕 (正員) 1950年生。1980年3月名古屋大学大学院工学研究科博士課程後期課程修了。同年4月同大学工学部助手。1988年金沢大学工学部助教授, 1990年同大学教授, 現在に至る。工学博士。主として高気圧熱プラズマ・アーク診断, 応用に関する研究に従事。

