装置と技術**マグネトロン直結型マイクロ波誘起プラズマ光源の
試作とその発光特性**

前田 愛明*・小松 敏行*・荒木 勉*・内田 照雄**

*徳島大学工学部機械工学科 徳島市南常三島町 2-1 (〒770)

**摂南大学工学部物理学教室 寝屋川市池田中町17-8 (〒572)

(1997年 1 月25日 受理)

キーワード：マイクロ波誘起プラズマ (MIP)，インピーダンス整合，同軸型マッチング用アダプタ

Design and performance of a stable microwave-induced plasma
light source directly coupled with a magnetron

Yoshiaki MAEDA*, Toshiyuki KOMATSU*, Tsutomu ARAKI*, and Teruo UCHIDA**

*Department of Mechanical Engineering, Faculty of Engineering,
University of Tokushima, Minamijousanjima, Tokushima, 770**Department of Physics, Faculty of Engineering, Setsunan University,
Ikedanakamachi 17-8, Neyagawa, Osaka, 572

(Received January 25, 1997)

1. はじめに

マイクロ波誘起プラズマ (Microwave Induced Plasma, 以下 MIP と略す) 光源は発振周波数2450 MHz のマイクロ波を円筒型空洞共振器で共振させ、共振器中央部に通した放電管中でアルゴン、ヘリウム、窒素などの気体を高温プラズマ化する無電極放電プラズマ励起光源である。1976年に Beenakker が TM₀₁₀ モード共振器を開発し¹⁾、これによって大気圧下でのプラズマ生成が可能となったため、MIP は発光分光分析用の励起光源や質量分析用のイオン源として注目されるようになった。MIP 光源の特長は、

- ① 励起、イオン化効率が高い、
- ② 必要とする電力やガス流量が少ない、
- ③ 装置がコンパクトかつシンプルである、

などが挙げられる。

マイクロ波出力が200 W 以下の低出力 MIP 光源では、通常、マイクロ波発生装置 (マグネトロン) から共振器へのマイクロ波伝送に同軸ケーブルを使用する。伝送電力が大きいので、大口径 (外径10 mm 以上) のケーブルが望ましいが、大口径ケーブルはフレキシビリティに欠け、装

置が大型化する。さらに、この方法では共振器と同軸ケーブルのインピーダンス整合が困難であり、共振器からマイクロ波の反射が起こる。そのため入射波と反射波の干渉でケーブル内に定在波が発生し、マイクロ波の伝送効率が悪化するだけでなく、マグネトロンや同軸ケーブルを焼損する恐れがある。われわれの経験では、外径10 mm の同軸ケーブル (藤倉電線 RG-8U: 特性インピーダンス52 Ω) を使用した場合、マイクロ波出力が100 W 程度でも定在波発生によって、ケーブルの導体部や絶縁部が局所的に熱変形した。そのため同軸ケーブルの特性インピーダンスが次第に変化し、ますます損失が大きくなって熱発生が増加するという悪循環が生じ、時間的に安定したプラズマ発光を得ることが困難であった。このような定在波の影響を軽減するため、逆伝播回避用サーキュレータと、サーキュレータからの反射波吸収用に大容量アッテネータを常用している。しかし、これらは MIP 装置を複雑化し、電氣的損失の大きいケーブル接続部が増えるなど、新たな問題発生要因になりかねない。

そこで我々はマグネトロンと共振器との間を金属円筒と同軸中心導体で構成された同軸型マッチング用アダプタで直結する方法を考案した。アダプタの線路長を変えること

で伝送路のインピーダンスが変化するため、任意の負荷インピーダンス値に対応できる。しかし、現実の共振器においては、プラズマ状態や試料の有無などさまざまな要因で負荷インピーダンスが変化するため、計算によってアダプタの最適線路長を決定できない。そこで、いくつかの長さのアダプタを製作し、実験的に最適条件を求めた。その結果、線路長は80 mm が最適となった。また、同軸型マッチング用アダプタは機械的にも十分な強度を持たせ、マグネトロンと共振器を一体化できるように設計した結果、機械的にも電気的にもきわめて安定な光源となった。

本論文ではマイクロ波伝送の高効率化を目的とした直結型 MIP 光源について、同軸型マッチング用アダプタの線路長を変化させた場合の共振器内電界強度、プラズマ発光強度、励起温度の測定結果および最適アダプタ使用時のプラズマ発光強度の安定性について述べる。

2. マイクロ波伝送回路

本研究では同軸型マッチング用アダプタの線路長を段階的に変えてインピーダンス整合に近づけ、マイクロ波伝送の高効率化を図った。その原理を述べるにあたり、共振器を負荷、同軸型マッチング用アダプタを伝送路とする一般的なマイクロ波伝送回路を Fig. 1 に示す。

負荷インピーダンスを Z_R 、伝送路の特性インピーダンスを R_C とすると、負荷端から距離 l の点での電圧 (V_l) と電流 (I_l) は以下の式で表せる。

$$V_l = V_i \exp(j\beta l) + V_r \exp(-j\beta l) \quad (1)$$

$$I_l = [V_i \exp(j\beta l) - V_r \exp(-j\beta l)] / R_C \quad (2)$$

ただし、

$$V_i = I_R (Z_R + R_C) / 2$$

Fig. 1 Change of the standing wave in a transmission line due to the line length.

$$V_r = I_R (Z_R - R_C) / 2$$

β : 位相定数

式(1)、(2)の第一項は入射波、第二項は反射波を表し、伝送路の入力インピーダンス Z_l 、すなわち A-A' から右をみたインピーダンスは次式で表せる。

$$Z_l = V_l / I_l = R_C [Z_R + jR_C \tan(\beta l)] / [R_C + jZ_R \tan(\beta l)] \quad (3)$$

式(3)から、線路長 l によって入力インピーダンス Z_l が変化することがわかる。この伝送路のインピーダンス変換作用を利用して、負荷のみかけのインピーダンスを R_C に等しくすれば反射波を抑制することができ、高効率のマイクロ波伝送が可能になる。

3. 装 置

3.1 MIP 光源

3.1.1 TM₀₁₀ モード共振器

本研究で製作した同軸型マッチング用アダプタおよび TM₀₁₀ モード共振器の軸方向断面図を Fig. 2 に示す。共

Fig. 2 Inside of the resonance cavity and the coaxial adapter.

共振器の深さはプラズマガスや試料の滞在時間を考慮して 20 mm^2 とし、内径は有限要素法による共振器解析の報告³⁾から 88 mm とした。共振器内部には共振周波数調整用の同調棒および電界強度測定用のアンテナを取り付けた。共振器内部を Fig. 3 に示す。

放電管は、その中心部にプラズマを安定保持する目的で Fig. 4 のように石英ガラス管を二重に配置した³⁾。各放電管の内外径は、内側放電管の内径を 2.0 mm 、外径を 4.0 mm 、外側放電管の内径を 4.5 mm 、外径を 6.0 mm とした。

3.1.2 同軸型マッチング用アダプタ

同軸型マッチング用アダプタの導体部は電気伝導度の高い銅を用い、内部導体の直径を 3 mm 、外部導体の内径を 13 mm 、特性インピーダンスを $88\ \Omega$ とした。また絶縁部には耐熱性のあるテフロンを使用した (Fig. 2)。したがって同軸ケーブルのようなフレキシビリティはないが、耐熱性に優れており、熱による導体部および絶縁部の変形は起きにくい。線路長は、伝送路内で共振が起きないように、マイクロ波 1 波長以下の長さ (120 mm 以下) とし、 $1/8$ 波長 (15 mm) ごとに $50, 65, 80, 95, 110\text{ mm}$ の計 5 本を製作した。これは定在波の山または谷が繰り返される間隔が、使用するマイクロ波の半波長に相当し、さらに伝送路の入力インピーダンスが $1/4$ 波長ごとに誘導性と容量性を繰り返すことから (Fig. 1), その半分の $1/8$ 波長ごとに線路長を変えてインピーダンス整合に近づけることをねらいとしている。製作した各同軸型マッチング用アダプタを Fig. 5 に示す。

3.2 分析システム概要

本 MIP 光源および分析システムの概略図を Fig. 6 に示す。定電圧電源から定常的に一定電力がマグネトロンに供給される。マグネトロン (松下電子応用機器 TO75-01 :

Fig. 4 Schematic view of the resonance cavity with a double discharge tube.

Fig. 5 Five coaxial adapters of different length to determine the impedance matching.

A: 50, B: 65, C: 80, D: 95, E: 110 mm

Fig. 3 Direct view of the inside resonance cavity.

Fig. 6 Schematic diagram of the MIP measurement system.

発振周波数2450 MHz, 最大出力200 W) で発生したマイクロ波は, 同軸型マッチング用アダプタを介して共振器へ伝送される. TM_{010} モード共振器は中心軸上で電界強度が最大になり, その強電界によってプラズマが生成する. ボンベから出た高純度アルゴンガス (99.99%) は2経路に分岐され, 一方はプラズマの生成 (プラズマガス), 他方はネブライザ (ICP 用同軸型ネブライザ) による溶液試料の霧化 (キャリアガス) に使用される. この2経路のガスは予混合され, 共振器中央部の放電管内へ送られる. 各ガス流量の最適値は, プラズマガス0.6 l/min, キャリアガス0.4 l/min であった.

プラズマの観測は放電管の軸方向から行うため, プラズマ先端部の発光をレンズによって分光器 (島津製作所 MAF: エバート型, 焦点距離0.5 m, 1200本/mm) 入射スリット上に結像する. 受光素子には光電子増倍管 (浜松ホトニクス R106: サイドオン型) を使用し, その出力信号はAD変換後コンピュータで解析される.

マグネトロン出力はカタログ記載の印加電圧—出力特性カーブを基に, 使用印加電圧から求めた. 今回は低出力時の安定性を中心に調査する目的で, 出力を100 Wに設定した.

4. 測定および考察

4.1 共振器内電界強度

各線路長に対する共振器内電界強度を比較するため, BNC型コネクタに取り付けたアンテナ (長さ10 mm) を共振器内へ挿入し, サンプリングオシロスコープで電圧信号をモニタした. その結果, Fig. 7に示すように線路長が80 mmのときに共振器内電界強度は最大となった.

4.2 プラズマ発光強度

各線路長に対するプラズマ発光強度を測定した. ここで試料導入をせず, Ar原子線427,217 nmについて, 時定数0.5秒の検出器によって10秒間測定を行った. その平均値と変動をプロットした結果, Fig. 8に示すように線路長80 mmのときプラズマ発光強度が最大となった.

Fig. 7 Change of the electric field in the resonance cavity with respect to the adaptor length at microwave power of 100 W.

Fig. 8 Change of the emission intensity of Ar (I) 427.217 nm line with respect to the adaptor length. Microwave power: 100 W.

4.3 プラズマ励起温度^{4,5)}

温度はプラズマの特性を知る上で最も重要な要素の一つである. そこで各線路長に対するプラズマ励起温度を測定した. 分光学的に励起温度を求めるにあたり, 異なるエネルギー準位の原子密度分布がボルツマン分布に従い, プラズマが均一で自己吸収が無いと仮定する. そしてプラズマ内の中性粒子において, 単位時間に準位 i から準位 j への遷移によって放射される光強度 I_{ij} の式, $I_{ij} = n(g_i/Z)A_{ij} h\nu \exp[-E_i/(kT)]$ を変形し両辺対数を取り次式を得る.

$$\log [I_{ij}/(g_i A_{ij} \nu)] = C - E_i/(kT) \quad (4)$$

ここで,

n : 粒子の密度
 Z : 分配関数
 A_{ij} : 準位 i から j への遷移確率
 E_i : 準位 i の励起エネルギー
 T : 温度
 g_i : 準位 i の多重度
 h : プランク定数
 ν : 放射される光の振動数
 k : ボルツマン定数
 C : 定数

g_i , A_{ij} および E_i が既知である複数の同一元素スペクトル線の相対強度を測定し、縦軸に左辺を、横軸に E_i をとって各点をボルツマンプロットすると(4)式は直線となり、その勾配から励起温度 T を求めることができる。本研究では各線路長に対して Fig. 9 に示す Ar 原子線の相対強度と、Table 1 に示す各値を用いて励起温度を求めた。その結果を Fig. 10 に示す。最も励起温度が高いのは線路長 80 mm のときであり、これは前述した共振器内電界強度およびプラズマ発光強度の測定結果と一致している。

したがって以上の測定結果を総合すると、線路長 80 mm の同軸型マッチング用アダプタが共振器とインピーダンス整合に最も近く、マイクロ波伝送の効率が最良の状態にあるといえる。

4.4 プラズマ発光強度の安定性

マイクロ波伝送の効率が良くなれば、プラズマ発光強度も安定すると考えられる。そこで各アダプタについて、Ar 原子線 427.217 nm の発光強度を 100 秒間記録し、強度の変動を調査した。Fig. 11 にアダプタ長 80 mm と 50 mm の変動の様子を示すが、80 mm の場合、発光強度が大きく、かつ変動が小さくなっていることがわかる。このようにして各アダプタごとに測定したプラズマ発光強度の変動

Fig. 9 Emission spectra of the argon gas between 425 and 435 nm obtained from the MIP. Microwave power: 100 W, adapter length: 80 mm.

Table 1 Argon transitions used for excitation temperature measurements

No.	λ (nm)	E_i (cm ⁻¹)	g_i	A_{ij} (10 ⁻⁷ sec ⁻¹)
(1)	425.118	116660	3	0.0089
(2)	425.936	118871	1	0.3665
(3)	426.629	117184	5	0.0265
(4)	427.217	117151	3	0.0688
(5)	430.010	116999	5	0.0318
(6)	433.356	118469	5	0.0506
(7)	433.535	118459	3	0.0308
(8)	434.545	118408	3	0.0273

Fig. 10 Relation between the excitation temperature of argon plasma and the adaptor length without sample introduction. Microwave power: 100 W.

Fig. 11 Emission stability of Ar (I) 427.217 nm line for 100 sec with adapter length of 50 and 80 mm. Microwave power: 100 W.

幅を、エラーバーとして Fig. 8 に記入した。この結果から 80 mm のアダプタはマイクロ波伝送の効率が最大で、発光変動が最小となり、本装置においては最適の線路長であるといえる。

次に線路長 80 mm のアダプタを使用し、アルゴンスペクトルおよびカルシウムスペクトルの発光強度を 20 分間測定した結果を Fig. 12 に示す (検出器時定数 0.5 秒)。アルゴンスペクトル線の測定においては溶液試料を導入せず、Ar 原子線 427.217 nm を観測し、カルシウムスペクトルでは試料として 150 ppm のカルシウム溶液を導入し、Ca イオン線 393.366 nm の発光を観測した。

Fig. 12 から各発光強度の相対標準偏差は、Ar 原子線が $\pm 1.6\%$ 、Ca イオン線が $\pm 3.8\%$ となった。Ar 原子線は、通常の測定時間に対して充分長い 20 分間でも安定した発光強度を持続しているが、Ca イオン線は、Ar 原子線よりも発光強度変動が大きい。加えて時間の経過に伴い発光強度がやや低下傾向にあることから、この原因は溶液試料の

Fig. 12 Emission stability of Ar (I) 427.217 nm and Ca (II) 393.366 nm lines for 20 min. Microwave power: 100 W, adapter length: 80 mm.

直接噴霧導入による影響と考えられる。具体的には、溶液試料の噴霧に ICP 用同軸型ネブライザを流用している点や、導入した試料によるプラズマの冷却などが変動の原因として挙げられる。これらの問題は溶液試料の脱溶媒および、超微細霧化が可能な超音波ネブライザの使用など、試料導入系の改良によって改善されると考えられる。

5. おわりに

今回開発した MIP 光源の特長は、マイクロ波伝送の高効率化を目的として、マグネトロンと共振器を同軸型マッチング用アダプタで直結したことにある。これまで不可欠であったサーキュレータとアッテネータを取り外し、同軸ケーブルに代えて同軸型マッチング用アダプタで直結したことは、マイクロ波伝送の高効率化に加えて装置の小型化にも貢献している。今回、共振器とのインピーダンス整合をとるために線路長の異なる 5 本のアダプタを製作し、共振器内電界強度、プラズマ発光強度、励起温度の測定を行った。その結果、いずれの測定においても線路長 80 mm のときに良好な結果を示した。このとき、共振器と同軸型マッチング用アダプタのインピーダンス整合が最もと

れており、効率よくマイクロ波伝送が行なわれている。また、本アダプタは耐熱性にも優れているため、従来の同軸ケーブルに比べて熱変形による特性インピーダンスの変化が起きにくく、長時間安定したプラズマ発光を得ることができた。

しかし、本方法はシンプルである反面、微妙なインピーダンスチューニングが行えず、完全なインピーダンス整合を実現することは困難である。今回の装置では線路長を 15 mm ($\lambda/8$) 毎に変化させ、最適長 80 mm を得たが、完全な整合を行うためには 80 mm 近傍をさらに細かく分割して調査する必要がある。また、たとえこのようにして最適線路長が決定できたとしても、プラズマや試料の有無によってインピーダンスが逐次変化するため、今回のような方法ではその対応に限界がある。そこで、リアルタイムかつ任意にインピーダンスチューニングができるスタブチューナでマグネトロンと共振器を電氣的・機械的に直結すれば、微妙なインピーダンス整合が可能になる。現在、このような同軸型ダブル・スタブチューナを設計、製作しており、有効性を検討中である。

謝 辞

本研究の遂行にあたり、実験方法に関して懇切丁寧なご指導を頂いた本学大学院生、蓮井秀朝氏（現東レエンジニアリング株式会社）に厚く御礼申し上げます。さらに本研究の一部は平成 8 年度阿波銀行学術・文化振興財団の助成を受けて行われており、ここに感謝の意を表します。

文 献

- 1) C. I. M. Beenakker: *Spectrochim. Acta* **31B**, 483 (1976).
- 2) A. B-Kamara and E. G. Codding: *Spectrochim. Acta* **36B**, 973 (1981).
- 3) 沖野, 宮武, 内田, 南: *分光研究* **42**, 289 (1993).
- 4) 沖野, 宮武, 南, 内田: *分光研究* **43**, 23 (1994).
- 5) M. M. Mohamed, T. Uchida, D. M. Coleman, and S. Minami: *J. Spectrosc. Soc. Japan* **38**, 288 (1989).