Xe/O₂ ガス混合バリア放電のモデリング O₂ ガス添加の Xe バリア放電特性への影響

正員 小田 昭紀* 正員 木村 高志*

Modeling of Dielectric Barrier Discharges in Xe/O₂ Gas Mixture
— Influence of O₂ Gas Addition on Xe Barrier Discharge Properties —

Akinori Oda*, Member, Takashi Kimura*, Member

The influence of O₂ gas addition (~1 %) on discharge properties of high-pressure Xe dielectric barrier discharges was investigated using one-dimensional fluid model. In calculated voltage-current characteristics, sharp and shallow current pulses were observed during a half cycle in pure xenon case. With an increase in the mixture ratio r_{O_2} of oxygen, only a sharp current pulse was observed. The electronegativity in a discharge gap, which depends on r_{O_2} , was varied spatially and temporally. Even in $r_{O_2} = 1\%$, the maximum of electronegativity was reached to 53.1 at the phase of maximum value of discharge gap voltage. Despite of small r_{O_2} , dominant positive and negative charged species were changed from Xe₂⁺ ions and electrons to O₂⁺ and O⁻ ions rapidly.

キーワード：誘電体バリア放電，流体モデル，シミュレーション，Xe，O₂

Keywords: dielectric barrier discharges, fluid model, simulation, Xenon, Oxygen

1. はじめに

誘電体バリア放電 (DBDs) は，金属電極間に少なくとも 1 枚の誘電体が挿入された電極構成の下で高電圧を印加した際に発生する放電であり，誘電体の存在によってアーク放電への進展が抑制できる点や，電極形状の自由度が高く様々な構成で DBDs が生成可能である点などの特徴を有する。

DBDs は，1980 年代中盤から後半にかけて Eliasson and Kogelschatz によってオゾン生成や真空紫外光源の励起源としての可能性が指摘され⁽¹⁾⁽²⁾，上記应用のみならず，公害物質の分解⁽³⁾ やプラズマディスプレイパネル⁽⁴⁾ と，その応用分野を広げながら研究・開発が行われてきた。最近では，各種材料の表面改質などへの応用を目的とした大気圧グロー放電の放電特性に関する実験的およびシミュレーションを含めた理論的研究が盛んになっている^{(5)~(8)}。

しかし，これまで様々なガス種の DBDs に関する研究がされているにもかかわらず，希ガスバリア放電特性への電氣的負性ガス混合の影響に着目した報告はほとんどなく，その詳細は未だ明らかでない。

本論文では，紫外光源での利用の多い Xe ガスに O₂ ガスを混合した際の DBDs のシミュレーションを 1 次元流体モデルにより行い，その放電特性を決定する荷電粒子種に主眼をおいた解析を行った。荷電粒子種密度の時空間分布から典型的な Xe/O₂ バリア放電特性に関して詳述し，その後，O₂ ガス混合の Xe バリア放電特性へ及ぼす影響を電圧・電流波形，電氣的負性度，消費電力などの観点から考察・検討する。

2. 誘電体バリア放電のモデリング

本研究で適用したシミュレーションモデルは，放電空間内の電子，イオン，中性粒子（励起種や解離種）を流体として取り扱った空間 1 次元流体モデルである。また，本モデルでは電子輸送の非平衡性を考慮するために，擬似熱平衡近似⁽⁹⁾（電子が熱平衡状態に近く，かつそのエネルギー分布が Maxwell 分布に近い）を仮定した。したがって，従来高圧力放電のモデリングで用いられてきた，電子・正負イオンの輸送係数が局所電界で決定される局所電界近似モデルと異なり，電子輸送係数に関しては平均電子エネルギーの関数で決定される。

以下に，本モデルの電極構成，反応過程，支配方程式，境界条件，輸送係数，数値計算法と順を追って説明する。

2・1 電極構成 図 1 に，本モデルでの電極構成を示す。両金属電極が誘電体（厚さ d_{B1} と d_{B2} ，比誘電率 ϵ_{B1}

* 名古屋工業大学
〒466-8555 名古屋市昭和区御器所町
Nagoya Institute of Technology
Gokiso-cho, Showa-ku, Nagoya 466-8555

図 1 シミュレーションモデル

Fig. 1. Simulation model in this work.

と ϵ_{B2} で覆われており，両誘電体間の間隙長（気相ギャップ長）は d_G である。図中の上部および下部金属電極をそれぞれ接地および放電駆動電極とし，両電極間に交流電圧（振幅 V_0 ，周波数 f ）が印加される。

2.2 反応過程 Xe/O₂ DBDs 内の反応過程は，運動量移行，励起，電離，付着といった電子衝突や，電子-正イオン再結合や正イオン-負イオン再結合，正イオンの電荷交換など，表 1 に示した粒子種（電子，4 種の正イオン，2 種の負イオン，14 種の中性粒子）が関与する合計 110 種類の過程を考慮した^{(10)~(13)}。

2.3 支配方程式 支配方程式は，電子，正・負イオン，中性粒子に関する粒子数連続の式（(1) と (2) 式），Poisson の式（(3) 式），電子エネルギー保存式（(4) と (5) 式）から構成される。

$$\frac{\partial n_j}{\partial t} = -\frac{\partial \Gamma_j}{\partial z} + S_j \quad (1)$$

$$\Gamma_j = W_j n_j - D_j \frac{\partial n_j}{\partial z} \quad (2)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} \left(\epsilon_0 \epsilon_r \frac{\partial \phi}{\partial z} \right) = -\rho \quad (3)$$

$$\frac{\partial (n_e \bar{\epsilon}_e)}{\partial t} = -\frac{\partial q_e}{\partial z} - e \Gamma_e E - S_e \quad (4)$$

$$q_e = \frac{5}{3} \Gamma_e \bar{\epsilon}_e - \frac{5}{3} D_e n_e \frac{\partial \bar{\epsilon}_e}{\partial z} \quad (5)$$

ここで，添字 j は表 1 中の荷電粒子および中性粒子種を表す。 n ， $\bar{\epsilon}_e$ ， ϵ_r ， ρ ， ϕ は粒子数密度，平均電子エネルギー，比誘電率，空間電荷密度，電位であり， W ， D ， Γ ， q_e は，それぞれドリフト速度，拡散係数，粒子フラックス，電子エネルギーフラックスである。また， S ， S_e は，粒子の生成・消滅を含めた正味発生項，非弾性衝突による電子エネルギー損失項を表す。なお，中性粒子種に関して $W = 0$ である。

2.4 境界条件 粒子数連続の式に関しては，表 1 に示す全ての粒子種に対し，両誘電体表面上（ $z = d_{B1}$ ， $d_{B1} + d_G$ ）で $n = 0$ とした。電子エネルギー保存式に関しても同様に， $n_e \bar{\epsilon}_e = 0$ と設定した。ただし，電子に関しては，正イオン衝撃による 2 次電子放出（係数 0.01）を考慮し，その

表 1 本モデルで考慮した粒子種

Table 1. Species included in this model.

Gas Mixture	Charged Species	Neutrals
Xe/O ₂	e^- , Xe^+ , Xe_2^+ ,	Xe , $Xe^*(^3P_2)$, $Xe^*(^3P_1)$, Xe^{**} , Xe^{***} ,
	O_2^+ , O^+ , O_2^- , O^-	$Xe_2^+(0_u^+, \nu \gg 0)$, $Xe_2^+(1_u, 0_u^-, \nu \gg 0)$,
		$Xe_2^+(0_u^+, \nu \sim 0)$, $Xe_2^+(1_u, 0_u^-, \nu \sim 0)$, O_2 , $O_2(a^1\Delta_g)$, $O(^3P)$, $O(^1D)$, O_3

表 2 計算条件

Table 2. Calculation conditions.

Gas Mixture	Xe/O ₂ (40 kPa)	
	O ₂ Mixture Ratio (r_{O_2})	0, 0.1, 0.2, 0.5, 1 %
Discharge Gap	Length	$d_G = 4$ mm
	Constant	$\epsilon_r = 1$
Dielectric	Width	$d_{B1} = d_{B2} = 2$ mm
	Constant	$\epsilon_{B1} = \epsilon_{B2} = 4$
Discharge Area		$S = 1$ cm ²
Applied Voltage	Waveform	$v_s(t) = V_0 \sin(2\pi f t)$
	Amplitude	$V_0 = 4.8$ kV
	Frequency	$f = 100$ kHz

2 次電子を粒子フラックスやエネルギーフラックスで評価し，両誘電体表面近傍の (2) 式と (5) 式に反映させている。Poisson の式に関しては，接地側および放電駆動側金属電極上（ $z = 0$ ， d ）において，それぞれ $\phi = 0$ および $\phi = v_s$ と設定した。

また，本モデルでの両誘電体表面への蓄積電荷の取り扱い，誘電体表面に到達した荷電粒子は直ちに表面に電荷が蓄積し，異符号の電荷が入射して誘電体表面上で再結合するまで電荷が蓄えられた状態が続くものと仮定した。

2.5 輸送係数 本シミュレーションを行なう際に使用される Xe/O₂ 混合ガス中電子輸送係数は以下の手順で算出した。はじめに，Uchida ら⁽¹⁴⁾，Phelps⁽¹⁵⁾ の Xe ガス中および O₂ ガス中電子衝突断面積セットを用い，Yachi らの 6 項近似 Boltzmann 方程式コード⁽¹⁶⁾ によって，0.01 Td E/N 3000 Td の換算電界範囲で解析を行い，各 E/N に対する電子エネルギー分布 $F(\epsilon)$ を求めた。その後，得られた $F(\epsilon)$ を用いて，Xe/O₂ 混合ガス中の平均電子エネルギー $\bar{\epsilon}_e$ ，移動度 $\mu_e (= |W_e/E|)$ ，拡散係数 D_e ，衝突レート係数（弾性，回転・振動励起，直接励起，解離，直接電離）といった電子輸送係数を算出した。その後， Xe^* ， $O(^3P)$ ， $O(^1D)$ ， $O_2(a^1\Delta_g)$ などの励起・解離粒子種-電子間衝突が電子エネルギー分布へ与える影響は小さいと仮定した上で，これらの衝突レート係数を Gudmundsson ら⁽¹²⁾，Lieberman and Lichtenberg⁽¹³⁾，Uchida ら⁽¹⁴⁾，Laher and Gilmore⁽¹⁷⁾ の各衝突断面積データと上記解析から得られた $F(\epsilon)$ から算出した。

混合ガス中の各種イオンの移動度は，Eliasson⁽¹¹⁾ や Ward⁽¹⁸⁾ のイオンスオームデータなどを参考にして Blanc の法則を適用し求めた。各イオンの拡散係数はイオン温度を 300 K と仮定し Einstein の関係式から求めた。中性粒子種の拡散係数は，衝突断面積（各ガスの原子半径から算

出) から得られた平均自由行程と, ガス温度 300 K 時の熱速度から求めた。

2・6 数値計算法 数値計算法は, (2) 式と (5) 式の解法に Scharfetter-Gummel Scheme⁽¹⁹⁾ を, (1) 式と (4) 式の解法に数値的に安定な陰解法を適用し, 周期的定常状態に達するまで逐次計算を行った。その際, 本シミュレーションの CPU 時間は中性粒子種の緩和時間に大きく依存するため, 通常の計算では CPU 時間は膨大となる。そこで, Newton-Raphson 法に基づく Acceleration Scheme⁽²⁰⁾ を中性粒子に関する粒子数連続の式に適用し, 密度の緩和を速め CPU 時間の短縮をはかった。

3. シミュレーション結果と考察

3・1 Xe/O₂ バリア放電特性 本節では, O₂ ガス混合比 $r_{O_2} = 0.2\%$ (Xe(99.8 %)/O₂(0.2 %)) 時の計算結果を例にとり, 気相ギャップ間の各荷電粒子数密度と電界強度の時間的・空間的变化から, Xe ガスに少量の O₂ ガスが混合した際の典型的なバリア放電特性を考察する。計算条件に関しては表 2 に示す。

図 2(a) ~ (f) に, (a) 電子数密度, (b) Xe⁺ 数密度, (c) Xe₂⁺ 数密度, (d) O₂⁺ 数密度, (e) O⁻ 数密度, (f) 電界強度の時空間分布をそれぞれ示す。本条件下では, O₂⁺ 数密度は, O⁻ 数密度に比して 3 桁程度低く, 放電へ及ぼす影響は無視し得るほど小さいため, 本論文では割愛した。ここで, 本図中の $z = 2$ mm および 6 mm は, それぞれ接地側および駆動電極側誘電体表面の位置を表す。参考のため, 外部印加電圧 v_S , 気相ギャップ間電圧 v_g , 放電電流 i の時間変化を本図左端に付与した。

電流・電圧波形において, 図中期間 (I) ($t = 3.51 \mu s \sim 8.51 \mu s$) に着目すると, 急峻な電流パルス (以後, 1st 電流

パルス) と緩やかな電流パルス (以後, 2nd 電流パルス) が現れており, 半サイクル毎に極性を変えながら繰り返している様子がわかる。このとき, それぞれのパルスの最大値は約 16 mAcm^{-2} と約 2 mAcm^{-2} であった。この傾向は, 放電条件 (ガス種やガス圧力など) は異なるが, Trunec らの実験結果⁽²¹⁾ と定性的に一致しており, 本シミュレーションの妥当性が確認できる。

次に, 両電流パルスの発生機構を, 期間 (I) 中の各荷電粒子数密度の時空間分布から説明する。ここで, 本期間中での v_g の極性が負であるため, 気相ギャップ間の $z = 2$ mm および 6 mm がそれぞれ陽極側および陰極側に対応する。図 2(a) ~ (f) 中 ‘A’ において, 陽極側誘電体近傍から陰極方向へ放電がストリーマ状に進展し, 陰極側誘電体前面に陰極シース部が形成される。Xe₂⁺ や O₂⁺ といった正イオンは陰極側誘電体表面まで到達するが, それに対して電子や O⁻ イオンはそこまで到達せずにバルクとシースの境界部分で抑止される。このとき, シース部の電界強度は最大約 40 kVcm^{-1} であり, その厚さは約 $24 \mu m$ であった。また, 各荷電粒子数密度の最大値は, それぞれ $1.0 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ (電子), $1.3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ (Xe⁺), $1.3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ (Xe₂⁺), $1.0 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ (O₂⁺), $2.0 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ (O⁻) であった。その後, 放電進展にともなう放電電流の増加によって両誘電体間で電圧降下が起こり, その結果 v_g が減少する。その後, 放電が消滅する。上記機構によって 1st 電流パルスが現れる。

図 2(a) ~ (f) 中 ‘B’ で示される 2nd 電流パルスの基本的な発生機構は, 1st 電流パルス時と同様に説明される。しかし, 1st 電流パルス時に比べ, 電流パルス発生直前の, 放電開始に寄与する高エネルギー電子数密度のオーダが低い点や, 1st 電流パルス発生時に両誘電体電極表面に蓄積された電荷

図 2 O₂ ガス混合比 $r_{O_2} = 0.2\%$ 時の気相ギャップ間の時空間分布: (a) 電子数密度, (b) Xe⁺ 数密度, (c) Xe₂⁺ 数密度, (d) O₂⁺ 数密度, (e) O⁻ 数密度, (f) 電界強度 E

Fig. 2. Spatio-temporal distributions of charged species densities and electric field for the O₂ mixture ratio $r_{O_2} = 0.2\%$: (a) electron density, (b) Xe⁺ ion density, (c) Xe₂⁺ ion density, (d) O₂⁺ ion density, (e) O⁻ ion density and (f) electric field E .

図3 種々の r_{O_2} 時の電圧・電流波形

Fig. 3. V-I characteristics for various r_{O_2} .

の影響によって放電進展にともなう両誘電体による放電抑止効果が1st 電流パルス時よりも速やかに現れる点が大きく異なる。詳細は次節にて述べるが、特に1st 電流パルス後の高エネルギー電子数密度のオーダが2nd 電流パルス発生の有無に大きく影響する。このとき、2nd 電流パルス発生時の各荷電粒子数密度の最大値はそれぞれ $3.2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ (電子), $2.0 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ (Xe^+), $2.5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ (Xe_2^+), $1.6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ (O_2^+), $2.8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ (O^-) となり、上述の1st 電流パルス時のものと比べて低いため、2nd 電流パルスも同様に低くなる。

その後、 v_g の極性が反転し、今度は $z = 2 \text{ mm}$ および 6 mm の側がそれぞれ陰極および陽極となる。そして、図2(a)中‘C’に示すように、気相ギャップ間での残存電子は約 $1.7 \mu\text{s}$ の時間をかけて電子なだれを形成し陽極方向へ向かう。その後、電子は陽極側誘電体近傍に $6.3 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ の高密度で集中する。このとき、陰極および陽極近傍での電界強度は、それぞれ -12.8 kVcm^{-1} および -0.2 kVcm^{-1} であった。この高密度で集中した電子が種となり、図2(a)~(f)中‘A’に示す陰極方向へのストリーマ状の放電進展が再び起こる。

あと、 Xe_2^+ , O_2^+ , O^- イオンは、常時気相ギャップ間で高密度で存在し、その密度は、印加電圧の1サイクル間での平均でみた場合、それぞれ $1.6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, $1.6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$, $2.0 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ であった。したがって、少量の O_2 混合 ($r_{O_2} = 0.2\%$) にもかかわらず、支配的な負イオン種である O^- イオンの数密度は、支配的な正イオン種である Xe_2^+ や O_2^+ と比較して同程度であった。この負イオンの存在によって、放電空間全体に常時電界が浸透しており、その最大値はおおよそ 5.5 kVcm^{-1} であり、換算電界で表すと約 57 Td に相当する。これは、負イオン存在時の大きな特徴といえる。

3.2 O_2 ガス混合比依存性 本節では、 O_2 ガス混

図4 種々の r_{O_2} 時の2nd 電流パルス発生直前の空間分布：(a) 電界強度、(b) 高エネルギー電子数密度

Fig. 4. Spatial distributions of (a) electric field strength and (b) higher energy electron density at the adjacent phase of the occurrence of 2nd current pulse for various r_{O_2} .

合が電圧・電流波形、電氣的負性度、荷電粒子種の消費電力および密度組成へ与える影響を順に検討する。

3.2.1 電圧・電流波形 図3(a)~(c)に、印加電圧と全ガス圧力を一定とし、 O_2 混合比 r_{O_2} を 0% , 0.2% , 1% と変化した際の電圧・電流波形をそれぞれ示す。

本図から、 r_{O_2} の増加にともない、1st および2nd 電流パルスは共に小さくなり、 $r_{O_2} = 1\%$ では2nd 電流パルスが完全に消失し1st 電流パルスのみとなる。この2nd 電流パルス消失の原因は以下のように説明される。図4(a)と(b)に、種々の r_{O_2} 時の2nd 電流パルス発生直前の(a) 電界強度、(b) 高エネルギー電子数密度の空間分布をそれぞれ示す。ここで、高エネルギー電子は、 $\bar{R}_i > 0$ ($\bar{R}_i$: Xe/O_2 混合ガス中の実効電離周波数であり、本モデルでは平均電子エネルギーの関数である。) の関係を満足する電子と本論文では定義した。図4(a)から、 r_{O_2} の増加に対して、気相ギャップ間に常時存在する負イオンが高密度となるため、バルク部の電界強度が強まり、それとは対照的に陰極シース部の電界が弱まる。その結果、電子付着衝突の増加にともなう実効電離周波数の低下により、図4(b)に示す2nd 電流パルス発生に寄与する高エネルギー電子数密度が減少する。そして、 $r_{O_2} = 0.5\%$ 以降は2nd 電流パルスが消失している結果から、2nd 電流パルスを発生させるために必要な高エネルギー電子数密度に約 10^9 cm^{-3} というしきい値の存在が示唆される。したがって、 r_{O_2} の増加にともない、高エネルギー電子数密度のオーダがそのしきい値よりも減少したために2nd 電流パルスが次第に消失する。

また、1st 電流パルスの現れる位相が、若干ではあるが次第に遅れていることも確認できる。この位相遅れは、上述した負イオン存在による電界緩和の影響でパルス放電開始

図5 種々の r_{O_2} 時の 1st および 2nd 電流パルス時の電子、正・負イオン数密度の空間分布

Fig. 5. Spatial distributions of electron and ion densities at the phase of 1st and 2nd current pulses for various r_{O_2} .

条件が整うための印加電界への到達に時間を要するため生じたと考えられる。

3・2・2 電氣的負性度 負イオン存在の影響を電氣的負性度 α_0 (電子数密度に対する負イオン数密度の比) から考察する。図5(a)~(c)に、種々の r_{O_2} 時の 1st および 2nd 電流パルス時の電子数密度、全正イオン数密度、全負イオン数密度の空間分布をそれぞれ示す。ここで、 $r_{O_2} = 1\%$ では 2nd 電流パルスは存在しないため、 v_g の最大値の位相時 ($t = 2.13 \mu s$) の空間分布を示した。

図5(a)から、負イオンは存在せず、電子と正イオンのみが存在する。1st および 2nd 電流パルス時において、気相ギャップ間は、陰極方向へのストリーマ状の放電進展で形成される電子および正イオンがほぼ同程度で存在する領域(バルク部)、数密度の最大値から陰極 ($z = 2 \text{ mm}$ の側) にかけての陰極シース部、陽極近傍の陽極シース部とに分けられる。

次に、図4(b)に示す $r_{O_2} = 0.2\%$ の場合、気相ギャップ間に負イオン (O^- イオン) が存在しており、その数密度は 1st 電流パルス時では電子と同程度である。このとき、 α_0 は 0.44 ($z = 4 \text{ mm}$) であった。それに対して、2nd 電流パルス時では、負イオンは電子よりも多く、かつ正イオンと同程度存在する。このときの α_0 は 2.22 ($z = 4 \text{ mm}$) であり、上記の値と比較して時間的に α_0 が大きく変化している。

さらに、図5(c)に示す $r_{O_2} = 1\%$ の場合、1st 電流パルス時では、負イオンよりも電子が多く存在する領域とその逆の関係となる領域が気相ギャップ間に現れている。前者と後者の領域での α_0 は、それぞれ約 0.08 ($z = 2.6 \text{ mm}$) と 2.6 ($z = 4 \text{ mm}$) であった。それに対して、 v_g の最大値の位相時には、気相ギャップ間にはほとんど電子は存在しておらず、正イオンと負イオンのみである。このときの α_0 はおよそ 53.1 ($z = 4 \text{ mm}$) と、1st 電流パルス時と比べて大きく増加しており、負イオン存在の影響が顕著に現

図6 各荷電粒子の消費電力と数密度(時空間平均値)の r_{O_2} 依存性

Fig. 6. r_{O_2} dependence of (a) power density dissipated by charged species and (b) spatio-temporal averaged densities of charged species.

れている。

よって、本図の結果から、少量の O_2 ガス添加 ($\sim 1\%$) にもかかわらず、 α_0 が $10^{-2} \sim 10^1$ のオーダーと 3 桁もの広範囲で時間的・空間的に複雑に変化する。

3・2・3 荷電粒子種の消費電力および密度組成 図6(a) および (b) に、それぞれ各荷電粒子の消費電力密度と数密度 (1 サイクル間での時空間平均値) の r_{O_2} 依存性を示す。

図6(a)から、全消費電力密度はおよそ 1.75 Wcm^{-2} であり、 r_{O_2} に対する依存性はほとんどない。よって、負イオン存在の影響が無いように思われる。しかし、各荷電粒子の消費電力に着目すると、 r_{O_2} の増加に対して電子の消費電力は、 1.4 Wcm^{-2} ($r_{O_2} = 0\%$) から 1.1 Wcm^{-2} ($r_{O_2} = 1\%$) へと約 20% 減少している。また、 Xe^+ ならび Xe_2^+ の消費電力は純 Xe ガス ($r_{O_2} = 0\%$) 時の約半分まで減少している。それに対して、 O_2^+ のみならず負イオンである O^- による消費電力は、電子、 Xe^+ ならび Xe_2^+ イオンによる消費電力の減少分を補償するように増加傾向を示す。このため、全消費電力密度はほぼ一定値となる。したがって、負イオンはその消費電力においても放電特性に影響を与える。

図6(b)から、 r_{O_2} 増加に対する各荷電粒子密度の傾向は上記消費電力のものと同様であるが、その組成に着目すると、 Xe/O_2 ガス DBDs 内の支配的な負イオン種は、 $r_{O_2} \leq 0.1\%$ では e^- であるが、 $r_{O_2} > 0.2\%$ においては O^- である。それに対して、支配的な正イオン種は $r_{O_2} < 1\%$ では Xe_2^+ であるのに対し、 $r_{O_2} = 1\%$ では O_2^+ と切り替わる。よって、少量の O_2 添加にもかかわらず、 Xe/O_2 DBDs 内で生成される荷電粒子種の組成が、純 Xe ガス主導の荷電粒子組成 ($r_{O_2} < 0.2\%$)、中間的な組成 ($0.2\% < r_{O_2} < 1\%$) を経て、純 O_2 ガス主導の組成 ($r_{O_2} \geq 1\%$) へと複雑に変化する。

4. ま と め

少量の負性ガス混合の希ガスバリア放電特性へ及ぼす影響を検討することを目的とし、1次元流体モデルによるXe/O₂(~1%) DBDsのシミュレーションを行い、放電特性を決定する荷電粒子種に主眼をおいた解析を行った。以下に、得られた結果を要約する。

(1) O₂ ガス混合比 r_{O_2} の増加に対して、純 Xe ガス放電時に現れていた急峻な 1st 電流パルスと緩やかな 2nd 電流パルスは共に小さくなり、 $r_{O_2} = 1\%$ 時で 2nd 電流パルスが完全に消失し 1st 電流パルスのみとなった。これは、負イオンの高密度化に起因する電界緩和によって陰極シース電界が弱まる。そのため、2nd 電流パルス発生に重要な高エネルギー電子の数密度が減少したためである。また、2nd 電流パルス発生には、発生直前に約 10^9 cm^{-3} 以上の高エネルギー電子数密度が必要であることが示唆された。

(2) 電氣的負性度(電子数密度に対する負イオン数密度の比)から負イオン存在の影響を評価すると、電氣的負性度は $10^{-2} \sim 10^1$ と3桁もの広範囲で時間的・空間的に複雑に変化する。

(3) r_{O_2} の増加にともない、DBDs内の荷電粒子種の密度組成が変化する。その組成は、大別すると純Xeガス主導の組成($r_{O_2} < 0.2\%$)、中間的な組成($0.2\% \leq r_{O_2} < 1\%$)、純O₂ガス主導の組成($r_{O_2} \geq 1\%$)である。

最後に、本研究の一部は日本学術振興会科学研究費補助金の助成を受けて行われたことを記し謝意を表す。

(平成15年1月22日受付, 平成15年7月30日再受付)

文 献

- (1) B. Eliasson and U. Kogelschatz: "UV excimer radiation from dielectric-barrier discharges", *Appl. Phys. B*, Vol.46, No.4, pp.299-303 (1988)
- (2) B. Eliasson, M. Hirth, and U. Kogelschatz: "Ozone synthesis from oxygen in dielectric barrier discharges", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.20, No.11, pp.1421-1437 (1987)
- (3) A.C. Gentile and M.J. Kushner: "Microstreamer dynamics during plasma remediation of NO using atmospheric pressure dielectric barrier discharges", *J. Appl. Phys.*, Vol.79, No.8, pp.3877-3885 (1996)
- (4) R.T. McGrath, R. Veerasingam, J.A. Hunter, P.D. Rockett, and R.B. Campbell: "Measurements and simulations of VUV emissions from plasma flat panel display pixel microdischarges", *IEEE Trans. Plasma Sci.*, Vol.26, No.5, pp.1532-1542 (1998)
- (5) F. Massines, A. Rabehi, P. Decomps, R.B. Gadri, P. Segur, and C. Mayoux: "Experimental and theoretical study of a glow discharge at atmospheric pressure controlled by dielectric barrier", *J. Appl. Phys.*, Vol.83, No.6, pp.2950-2957 (1998)
- (6) K.V. Kozlov, H.-E. Wagner, R. Brandenburg, and P. Michel: "Spatio-temporally resolved spectroscopic diagnostics of the barrier discharge in air at atmospheric pressure", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.34, No.21, pp.3164-3176 (2001)
- (7) Yu.B. Golubovskii, V.A. Maiorov, J. Behnke, and J.F. Behnke: "Influence of interaction between charged particles and dielectric surface over a homogeneous barrier discharge in nitrogen", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.35, No.8, pp.751-761 (2002)
- (8) D. Trunec, R. Brandenburg, P. Michel, D. Pasedag, H.-E. Wagner, and Z. Navratil: "Spatio-temporally resolved emission spectroscopy of the atmospheric pressure glow discharge in neon", *Proc. of 8th Int. Symp. on High Pressure Low Temperature Plasma Chemistry*, pp.63-67, Pühajärve, Estonia (2002)
- (9) D.B. Graves and K.F. Jensen: "A Continuum Model of DC and RF Discharges", *IEEE Trans. Plasma Sci.*, Vol.PS-14, No.2, pp.78-91 (1986)
- (10) F. Adler and S. Müller: "Formation and decay mechanisms of excimer molecules in dielectric barrier discharges", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.33, No.14, pp.1705-1715 (2000)
- (11) B. Eliasson and U. Kogelschatz: "Basic data for modeling of electrical discharges in gases", Baden, CH5405: Brown Boveri Konzernforschung (1986)
- (12) J.T. Gudmundsson, I.G. Kouznetsov, K.K. Patel, and M.A. Lieberman: "Electronegativity of low-pressure high-density oxygen discharges", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.34, No.7, pp.1100-1109 (2001)
- (13) M.A. Lieberman and A.J. Lichtenberg: *Principles of Plasma Discharges and Material Processing*, John Wiley, New York (1994)
- (14) S. Uchida, H. Sugawara, Y. Sakai, T. Watanabe, and B.-H. Hong: "Boltzmann equation analysis of electron swarm parameters and related properties of Xe/He and Xe/Ne mixtures used for plasma display panel", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.33, No.1, pp.62-71 (2000)
- (15) A.V. Phelps: JILA Information Center Report (University of Colorado) (1985)
- (16) S. Yachi, H. Date, K. Kitamori, and H. Tagashira: "A multi-term Boltzmann equation analysis of electron swarms in gases-the time-of-flight parameters", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.24, No.4, pp.573-580 (1991)
- (17) R.R. Laher and F.R. Gilmore: "Updated excitation and ionization cross sections for electron impact on atomic oxygen", *J. Phys. Chem. Ref. Data*, Vol.19, No.1, pp.277-305 (1990)
- (18) A.L. Ward: "Calculations of cathode-fall characteristics", *J. Appl. Phys.*, Vol.33, No.9, pp.2789-2794 (1962)
- (19) J.-P. Boeuf: "Numerical model of rf glow discharges", *Phys. Rev. A*, Vol.36, No.6, pp.2782-2792 (1987)
- (20) D.P. Lymberopoulos and D.J. Economou: "Fluid simulations of glow discharges: Effect of metastable atoms in argon", *J. Appl. Phys.*, Vol.73, No.8, pp.3668-3679 (1993)
- (21) D. Trunec, A. Brablec, and J. Buchta: "Atmospheric pressure glow discharge in neon", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol.34, No.11, pp.1697-1699 (2001)

小 田 昭 紀 (正員) 1972 年 1 月 11 日生。1994 年 3 月秋田大学鉱山学部電気工学科卒業, 1996 年 3 月北海道大学大学院工学研究科電気工学専攻修士課程修了, 2001 年 3 月同大学大学院工学研究科電子情報工学専攻博士課程修了。同年 4 月名古屋工業大学工学部生産システム工学科助手, 現在に至る。博士(工学)。放電プラズマのモデリングに関する研究に従事。応用物理学会, 放電学会会員。

木 村 高 志 (正員) 1964 年 12 月 17 日生。1989 年 3 月名古屋工業大学大学院工学研究科生産システム工学専攻博士前期課程修了。同年 4 月三菱重工業入社。1990 年 4 月より同大学工学部生産システム工学科助手, 1998 年同助教授, 現在に至る。博士(工学)。プラズマプロセスおよびバリア放電応用に関連した放電物理に関する研究に従事。日本物理学会, 応用物理学会会員。