大気圧空気バリア放電における駆動周波数とバリア層の静電容量の比の適正化

福島和宏*, 一山正則*, 菊地直人*, 草野英二*, 南戸秀仁*, 金原 繁*

Optimizaion of the Ratio of Drive Frequency to Copacitance of Barrier Layer in Air Barrier Discharge at Atomospheric Pressure

Kazuhiro FUKUSHIMA*, Masamori ICHIYAMA*, Naoto KIKUCHI *, Eiji KUSANO*
Hidehito NANTO* and Akira KINBARA*

The ratio of drive frequency f to capacitance C of the barrier layer on electrodes was investigated to generate a glow-like barrier discharge in air at atmospheric pressure. The uniformity of the discharge was estimated by observing the optical emission from the discharge through a transparent electrode and a glass plate used as the barrier layer. The impedance of the barrier layer $1/(2\pi fC)$ was kept at $12.3\text{ k}\Omega$ and the drive frequency f was varied from 33.3 kHz to 100 kHz . Air and nitrogen were both used as the discharge gas. The discharge contained bright spots generated by self-organization. The distribution and diameter of the bright spots were affected by f/C and the species of discharge gas used. The lager f/C was chosen, the more homogeneous the discharge that appeared when nitrogen served as the discharge gas. In contrast, the optimum value of the f/C that allowd homogeneous discharge occurred when air was used. It seems that the bright spots appear more readily when either the discharge cycle is shorter than the lifetime of the active species or when the effects of discharge current regulation by the barrier layer lessen.

Key Words: Barrier Discharge, Atmospheric Pressure, Glow, Corona, Treatment

1. 結 言

大気圧における低温プラズマ(グロー放電)の生成方法としては横山, 金沢らにより報告されているものがよく知られている^{1),2)}, これは, 電極の少なくとも一方を誘電体バリア層で被覆し, 1 kHz 以上の周波数の電圧を印可し, かつ放電ガスとしてHeを用いるというものである, この方法は, 設備が簡易かつ安価であることや真空では気体を放出するような物体に対しても処理が可能であるなどの長所をもつ. しかし, Heは非常に高価であるうえに漏洩し易いため, 工業レベルの大規模な連続処理プロセス用の放電ガスとしては適していない.

一方, 大気圧空気中で安価に連続処理が可能な技術として従来からコロナ放電処理が広く使われている^{3)~5)}. これは放電方法で分類すると空気中でバリア放電であり, 放電形態で分類すると局所的なストリーマをとまなうコロナと均一なグローが混在した状態である. 実際にはコロナが支配的であるため, 放電の空間的, 時間的不均一性がプラスチック基板表面の処理むらを引き起こすという問題がある. また, コロナ放電に特有の帯電現象

によりプラスチック基板が帯電し, 異物の付着や後加工のコーティングむらなどを引き起こすことも大きな問題となる. そこで, 我々は大気圧の空気を用いたバリア放電をできるだけグローに近づけることにより, 均一, 無帯電かつ安価なプラスチック表面の処理技術の確立を目指している⁶⁾.

今回, 空気または窒素を用いたバリア放電を均一化するために, 印加電圧の周波数 f やバリア層の静電容量 C を適正化するための設計指針を探索した. その結果, 放電の均一性は電源周波数とバリア層の静電容量の比(f/C)に依存し, その適正值は放電気体の種類により異なるという重要な知見を得たので報告する.

2. バリア層の静電容量と周波数

バリア放電は, バリア層に充放電される電荷により電極間の気体を放電させるものである. 電極間に供給される電荷は(1)式により表せるバリア層のインピーダンス Z により制限される.

$$Z=1/2\pi fC \dots\dots\dots(1)$$

ここで, f は印加電圧の周波数, C はバリア層の静電容量である. バリア層が対向する両方の電極にある場合, C は各バリア層の静電容量を直列接続した値となる. (1)式からは, f と C の積さえ一定となる条件を満たせば, その条件下で f と C の比を変えてもバリア層のイ

* 金沢工業大学 AMS R & D C (〒924-0838 石川県松任市八束穂 3-1)
Kanazawa Institute of Technology, AMS R & D Ctr. (3-1, Yatsukaho, Matto-shi, Ishikawa 924-0838)

インピーダンス Z は一定であることが導かれる。ただし、これは電極間の放電が空間的に均一なグロー放電で満たされる場合に限られる。一般に大気圧空気中のバリア放電では、均一なグローと不均一なストリーマをともなうコロナが混在する。 f/C が大きい時はバリア層の小さな静電容量に制限された少ない電荷が、単位時間当たり多くの移動を繰り返し、 f/C が小さい時は一度に多くの電荷が時間間隔を置いて移動することになる。つまり、 f と C はバリア放電における役割が異なり、バリア層のインピーダンス Z が一定でも f/C により放電状態(空間的均一性)がことなることが予想される。なお、今回パルス電源を用いたが、後述の 3.1 に示すように電極に印加される電圧波形はほぼ sin 波に近似できるため、上記バリア層のインピーダンスに関する推察が適用できる。

3. 実験方法

放電は、大気圧の室素中および特に制御されていない常温(25±5℃)常湿(RH=50±10%)の空気中で行われた。室素雰囲気における放電は、電極をアクリルチャンパー内に置き、ロータリーポンプで1.0Paまで排気した後、純度99.9999%以上の室素を流量1.33×10⁻⁴m³/s(8L/min)で流し、0.1MPaに維持した状態で行われた。酸素計(TORAY LC-800)で測定された酸素濃度はこの状態で200ppmであった。

放電実験装置の概略を図1に示す。放電部の構成は、ガラス/透明電極(90mm×90mm)/空気または室素/ガラス/SUS430(100mm×100mm)とした。透明電極は90mm×90mmのガラス基板に全面蒸着されたものを用いた、バリア層にはアルミノケイ酸ガラスを用い、0.7mm厚のものを重ねることにより、0.7、1.4、2.1mmの3通りに設定した。バリア層用のガラスを150mm×150mmと電極よりも大きくすることで、間隙を設定するスペーサー(アルミノケイ酸ガラス)を放電領域の外に設置できるようにした。有効放電領域は90mm×90mmで、対向する電極の各バリア層を合わせた厚み4.2、2.8、1.42mmに対する静電容量は130、195、390pFとなる。

電源には高電圧高周波パルス電源(㈱ハイデン研究所:PHF0.5K)を用いた。ただし、電源から出力される矩形波の電圧は昇圧トランスの影響で歪んだ状態で電極に印加される。図2に20kHzおよび100kHzの電圧を印加した場合の電極間の電圧波形を示す。このように、一つのパルス波形は約100kHzのsin波形の1周期分と見なすことができ、電源周波数によりその単位時間あたりのパルス密度が変化する。

電力は、放電に消費される電力をQ・Vリサージュ法⁷⁾により測定し、この値が250Wになるように電源の出

Fig. 1 Schematic of experimental system.

Fig. 2 Voltage wave forms at the electrode.

力を設定した。また、電源の周波数 f は、バリア層のインピーダンス $Z=1/2\pi fC$ が12.3kΩ一定になるようにした。具体的には、対向する電極の各バリア層を合わせた厚みを4.2、2.8、1.4mmとした場合に、周波数 f をそれぞれ100k、66.7k、33.3kHzとした。なお、このときの f/C はそれぞれ769、342、86Hz/pFとなる。

4. 結果

4. 1 放電電荷と f/C の関係

図3に f/C を769、342、86kHz/pFとして室素中および空気中で放電を行った場合の電荷の時間変化を示す。いずれもパルスの立ち上がりおよび立ち下がり部で電荷が激しく移動している放電領域と電荷がほとんど移動していない非放電部が存在している。室素に比べて空気の方が、電荷が短時間に激しく移動している様子が伺われる。図4に電荷波形の周波数スペクトルを示す。放電の基本周波数とその高調波成分および約5MHz以上の f/C にほとんど依存しない成分が見られる。基本周波数とその高調波成分は、電極間の電界の時間的変化に支配される電荷の動きを表している。一方、約5MHz以上の成分は放電周波数よりも数十から数百nsの時間で

Fig. 3 Comparison of the charge wave form under the various ratio of the frequency to the capacitance of the barrier layer in air and N₂.

Fig. 4 FFT spectra of charge wave under the various ratio of the frequency to the capacitance of the barrier layer in air and N₂.

完了する微小放電の寿命に起因するものと考えられる。また、約 5 MHz 以上の成分については窒素放電よりも空気放電の方が多くなっている。これは窒素放電よりも空気放電の方が微小放電の寿命が短いことを示唆していると考えられる。

4. 2 窒素放電の放電光の分布と f/C の関係

図 4 に f/C を (a) 769, (b) 342, (c) 86 Hz/pF として窒素中で放電を行った場合の放電光の写真を示す。いずれも電極間隙全体に発光が見られるが、完全に均一ではなくストリーマによる明るい輝点が分布していることがわかる。また、この輝点の分布は全く任意の位置に発生するのではなくほぼ定常的であり、また f/C の値により異なることから、一種の自己組織化現象⁸⁾であるといえる。窒素放電の場合、 f/C が小さい程輝点が目立つ傾向にある。

4. 3 空気放電の放電光の分布と f/C の関係

図 5 に f/C を (a) 769, (b) 342, (c) 86 Hz/pF として空気中で放電を行った場合の放電光の写真を示す。窒素放電の場合と同様に輝点の自己組織化現象が見られる。ただし、 f/C が大きすぎても小さすぎても輝点が目立ってくる点で窒素放電の場合と異なる。これは明らかに放電気体の種類が、ストリーマの発生の仕方に大きく関与していることを示す。

5. 考 察

5. 1 放電光分布の発生原因

これまでバリア放電中のストリーマに関しては、時間的かつ空間的にランダムに発生すると説明されることが多かった。しかし、今回の実験からストリーマの発生は自己組織化的なものであり、放電路に残留する活性種によるチャンネルが、同じ位置に繰り返しストリーマを発生させる正のフィードバック機構に大きく関与しているこ

Fig. 5 optical emission from the barrier discharge in N₂ at atmospheric pressure.

とが推察される。また、ストリーマは分極状態にあり、同一電極面上ではお互い同極性のクーロン力に見合った距離を保つようになると考えられる。したがって、電荷が集中したストリーマは強く反発し合い散逸して発生し、微小なストリーマは比較的に密に分布されると説明でき、実験結果と対応する。

5. 2 放電光分布と f/C の関係

ストリーマが発生する位置は、放電路に残留するチャンネルの寿命に影響されると考えると、チャンネルの寿命よりも放電周期が短ければ、ストリーマは同じ位置に発生し易くなる。また、ストリーマ間の距離にストリーマの電荷量に関与していると考えられる。また、バリア層の静電容量が大きければ、充放電される電荷量が多くなるためストリーマの電荷量が多くなり、空間的に散逸した放電となる。図 5 に示したように、空気放電で f/C を大きくした場合にストリーマが目立つのは、チャンネルの寿命に対して放電周期が近づいたか短くなったためと説明できる。また、 f/C を小さくした場合にストリーマが目立つのは、バリア層の静電容量が大きいため一つ

Fig. 6 optical emission from the barrier discharge in air at atmospheric pressure.

のストリーマ当たりに多くの電荷が集中するためと説明できる。このことは、図5および図6において f/C が小さい場合の輝点が f/C の大きい場合と比較して数が少なくかつ直径が大きい事実に対応する。

5. 3 放電光分布とガス種の関係

図5と図6を比較すると、バリア層のインピーダンスおよび f/C を同じにしても、放電ガスの種類により放電光の分布(ストリーマの発生の仕方)が異なることがわかる。また、図3からは窒素放電の方が空気放電よりも高周波成分が少なく、各微小放電の寿命が長いことが推察される。これを、窒素の方が放電により生成される活性種の寿命が長い⁹⁾と仮定すると、放電を繰り返すごとに放電間隙で活性種が増加および拡散していくと考えられる。その結果、放電路に形成されたチャネル以外の部分でも放電し易い場所が生じるため、 f/C が大きいほどストリーマが生じにくく均一な放電になると考えられる。また、Heを用いた場合や圧力が低い場合に周波数を高くすると均一な放電を得やすいという従来の知見も、この活性種の寿命と拡散を考慮することで同様の説明が可能となる。すなわち、大気圧の空気を放電させる場合には、Heよりも活性種の寿命および拡散性が低いことを考慮すると、 f/C を適正な値にする必要があ

るといえる。

6. 結 言

今回、空気または窒素を用いたバリア放電を均一化するために、印加電圧の周波数 f やバリア層の静電容量 C を適正化するための設計指針を探索した。その結果、放電の均一性は電源周波数とバリア層の静電容量の比(f/C)に依存し、その適正值は放電気体の種類により異なるという重要な知見を得た。

大気圧の空気を放電させる場合には、Heよりも活性種の寿命および拡散性が低いことを考慮すると、 f/C を適正な値にする必要があるといえる。具体的には、バリア層のインピーダンスを $12.3\text{ k}\Omega$ 、電極面積を $8.1 \times 10^{-3}\text{ m}^2$ とした場合、 f/C は 340 Hz/pF 付近が適正であることがわかった。

謝 辞

本研究の一部は私立大学ハイテク・リサーチ・センター整備事業に対する助成により行われた。

(Received February 22, 2000 ; Accepted July 10, 2000)

文 献

- 1) T. Yokoyama, M. Kogoma, T. Moriwaki and S. Okazaki ; *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 23, 1125 (1990)
- 2) S. Kanazawa, M. Kogoma, S. Okazaki and T. Moriwaki ; *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 21, 838 (1988)
- 3) L. M. Salmen ; *Film & Foil CONVERTER*, 10, 94 (1978)
- 4) P. B. Sherman ; *Converter*, 17, 9, 19 (1980)
- 5) Wayne. M. Collins ; *TAPPI Proceedings*, p 132 (1981)
- 6) 福島和宏, 一山正則, 小林俊起, 菊地直人, 草野英二, 南戸秀仁, 金原 繁 ; *真空*, 42, (3), 396 (1999)
- 7) 田中正明, 八木重典, 田畑則一 ; *電気学会論文誌 A* 68, 533 (1982)
- 8) 蔵本由紀, 川崎恭治, 山田道夫, 甲斐昌一, 篠本 滋 ; *パターン形成*, p 26 (朝倉書房, 1991)
- 9) 岡崎幸子, 小駒益弘 ; *静電気学会誌*, 15, (3), 222 (1991)