

## 研究論文

## マルチインナー電極大気圧プラズマジェットの開発

豊橋技術科学大学	志岐 肇、元木純平
	伊藤之一、滝川浩史
新東ブレーター	薄木英二
住友大阪セメント	大塚剛史
大研化学工業	大川 隆、山中重宣
岐阜工業高等専門学校	榊原建樹

### Development of Atmospheric-Pressure Plasma-Jet with Multi-Inner-Electrodes

Hajime SHIKI, Junpei MOTOKI, Yukikazu ITO, Hirofumi TAKIKAWA,  
Eiji USUKI\*, Takeshi OOTSUKA\*\*, Takashi OKAWA\*\*\*, Shigenobu YAMANAKA\*\*\*,  
Tateki SAKAKIBARA\*\*\*\*

Toyohashi University of Technology, \* Sintobator Ltd., \*\*Sumitomo Osaka Cement Co., Ltd.,  
\*\*\* Daiken Chemical Co., Ltd., \*\*\*\*Gifu National Collage of Technology

#### Abstract

The PEN-Jet (Plasma ENergized Jet) is one of atmospheric-plasmas and available for the surface treatment. The treatment performance of the PEN-Jet is considered to be enhanced by increasing input power. However, the input power of the conventional PEN-Jet is limited to 200 W due to electrode erosion at higher power. Then, the 4-in-1 PEN-Jet, which has 4 rod electrodes in the PEN-Jet body and one exit nozzle, was developed to generate the plasma jet with higher power. In the present study, as fundamental characteristics of the 4-in-1 PEN-Jet, gas temperature of plasma jet and emission spectra radiated from the plasma were measured. The temperature of plasma jet at 1mm from the nozzle electrode was 700°C and that at 30 mm was 250°C in the 4-in-1 PEN-Jet, while the conventional PEN-Jet had 200°C maximum. From the emission spectroscopy, it was found that different N<sub>2</sub> radical radiations were observed in the 4-in-1 PEN-Jet as well as in the conventional PEN-Jet. In order to evaluate the treatment performance of the 4-in-1 PEN-Jet, the plasma was irradiated onto various kinds of materials. The treatment performance for glass and aluminum were found to be 10 times and 4 times higher, respectively, compared with the conventional PEN-Jet.

**Keywords:** 4-in-1 PEN-Jet, Plasma gas temperature, Plasma spectrum, Surface treatment

#### 1. はじめに

大気圧プラズマ処理は、従来の低圧プラズマ処理に比べ、単純な装置構造、簡単な操作、低いランニングコスト、高い工業生産性などの利点から年々注目が高まってきている<sup>1)</sup>。プラズマを物質表面へ照射すると、化学的あるいは物理的反応によって表面の有機汚染物の除去や粗

面化、化学組成の変化が生じる。これらの効果によって、表面のクリーニングや濡れ性を向上させることができる<sup>2)</sup>。表面処理に用いられる大気圧プラズマの発生方法として、大気圧グロー放電 (AGP: Atmospheric Glow Plasma)<sup>3)</sup>、誘電体バリア放電 (DBD: Dielectric Barrier Discharge)<sup>4)</sup>、RF 放電<sup>5)</sup>、マイクロ波放電<sup>6)</sup>、

交流／パルスアーク放電などがある。筆者らは大気圧プラズマの中でも、動作ガスに比較的な安価な空気を用いことができる大気圧パルスアーク放電を用いたグラディングアーク<sup>7, 8)</sup>とPEN-Jet (Plasma ENergized Jet)<sup>9)</sup>という2種類のプラズマ源の開発を行ってきた。グラディングアークは古くから知られている放電方式であり、気流中に配置した末広りの電極対間に繰り返しアーク放電を発生させるものである。一方、PEN-Jet は、絶縁円筒内の中心に棒電極を、絶縁円筒の一端にノズル状の先端電極を配置し、これらの電極間でアーク放電を発生させるものである。絶縁円筒の他端から動作ガスを導入することで、プラズマジェットが先端ノズル電極から放出される。これらのパルスアーク放電の場合、大気圧で発生するアーク放電をプラズマ源としているものの、ガス流によってアーク陽光柱を引き伸ばし、弱電離状態のプラームを形成させるため、プラズマガス温度が室温～数百度程度を呈する非平衡プラズマとなる。このような温度領域の大気圧プラズマを大気圧メゾプラズマと呼ぶ。また、パルスアーク放電のマルチ化技術<sup>10)</sup>を適用することで、複数のグラディングアーク、および／または、PEN-Jet を1台の電源で同時に発生させることができ、大面積処理や複数の処理物に対する多数並行処理が可能である。

PEN-Jet の表面処理能力は高く、動作電力を増加することによって、より高い処理能力が得られる。しかしながら、大電力を入力した際に中心電極が損耗し、電極から微粒子が放出され、処理基板を汚染するという問題があった。このことから従来のPEN-Jet においては電極の損耗なく使用可能な電力には限界があった(約200W)<sup>11)</sup>。

本研究では、従来のPEN-Jet の4倍の電力を入力できるようにするため、内部電極を4個持つPEN-Jet (マルチインナー電極PEN-Jet)、『4-in-1 PEN-Jet』を開発した。これは、4つの

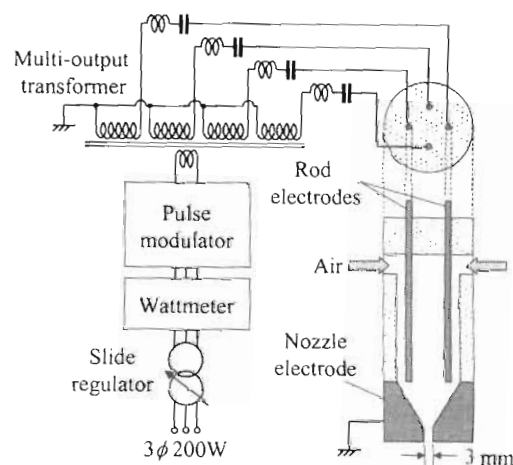


Fig.1. Schematic diagram of the 4-in-1 PEN-Jet and power supply.

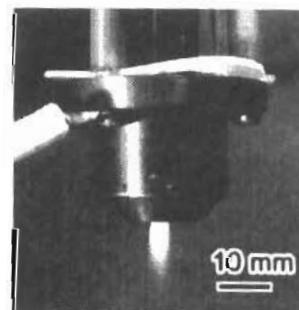


Fig.2. Photograph of free-burning of 4-in-1 PEN-Jet plasma (800 W).

パルスアーク放電を同時に発生させ、1個のノズル電極からプラズマジェットを放出させるものである。本研究では、このプラズマ源の基礎特性を調査した後、様々な基板に対する表面処理能力を評価した。

## 2. 実験方法

### 2.1 4-in-1 PEN-Jet の概要

Fig.1 に4-in-1 PEN-Jet の概略を示す。絶縁円筒内の中心から半径6 mm の位置に円状に4本の電極(白金(Pt)、直径:1 mm)を配置した。隣り合う電極の間隔は10 mm とし、ノズル電極(銅(Cu)、ノズル孔径:3 mm)と棒電極との間の最短距離は5 mm とした。使用した電源は、パルスモジュレータ(栗田製作所、6 kW、200 V)

とマルチ出力トランス（栗田製作所、6 kW、250/12 kV、出力端子：4 個）で構成した。4-in-1 PEN-Jet の各電極とマルチ出力トランスの各出力端子とをコンデンサ（1000 pF）とインダクタンス（40 mH）の直列回路を介して接続した。こうすることで、各棒電極とノズル電極との間にそれぞれ高電圧パルスを印加すると、4 個のアーク放電発生することができ、パルスモジュレータから供給された電力を 4 個のプラズマに分配することができる。絶縁円筒端から動作ガス（本論文では空気）を導入することで、4 個のパルスアーク放電で発生したプラズマを一つのノズルから放出させ、プラズマジェットが形成される。4-in-1 PEN-Jet の発生の様子を Fig.2 に示す。

プラズマへの入力電力は、クランプ電力計（Hioki 製、3166：クランプ電流プローブ（Hioki 製、9694））を用いて見積もった。パルスモジュレータの出力電圧は、パルスモジュレータへの入力電圧をスライドレギュレータ（松永製作所製、S3-2413：5.2 kVA、200 V）を用いて調節することによって変化させた。

4-in-1 PEN-Jet への動作ガスの供給は次のようにして行った。室内空気をドライヤ付きスクロール型コンプレッサ（Hitachi、PSD5.5A）でリザーバタンク（Hitachi、ST150C）に貯め、その貯留空気を、圧力レギュレータ、デジタル流量計（Horiba Stec、SEF-21A）、および流量調整用ニードルバルブを介して 4-in-1 PEN-Jet へ供給した。

## 2.2 基礎特性と処理効果の測定

4-in-1 PEN-Jet の基礎特性の測定として、プラズマジェットのガス温度の測定、およびプラズマスペクトルの測定を行った。絶縁型熱電対（K 型）および温度計（アズワン、TM-300）を用いて、プラズマジェットの中心における軸方向ガス温度分布を測定した。また、プラズマの発光スペクトルを測定するため、分光計測を行っ

た。装置構成は次のようにした。凸レンズ（シグマ光機、SLSQ-50B-170P、焦点距離：170 mm、石英製）を用いてプラズマ放射光を光ファイバ（ファイバ径：1 mm、長さ：2 m、石英製）に集光し、光ファイバを経由してマルチチャンネル分光器（相馬光学、Fastvert S-2400）に入光し、分光スペクトルを得た。プラズマジェットとレンズとの距離、レンズと光ファイバ入射口との距離は共に 340 mm（つまり、1:1 結像）とした。分光器計測条件は、露光時間 10 s、積算回数 10 回の平均とした。

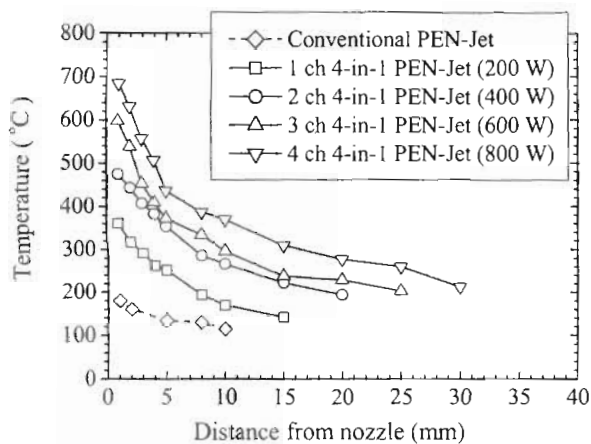
表面処理能力を評価するため、4-in-1 PEN-Jet を様々な種類の基板（PET、PTFE、アルミニウム（Al）、SUS304、およびガラスを使用した。）に照射し、表面の親水性を計測した。ノズル出口から 10 mm 下流に基板を配置し、基板を一定の速度で移動させながら、基板に対し垂直にプラズマを照射した。その直後、蒸留水（1.5 ml）の接触角を接触角計（協和界面、Drop Master 300）を用いて測定した。

各実験において、4-in-1 PEN-Jet の発生条件は、1 個の放電に対する電力：200 W、周波数：20 kHz、パルス幅：2.0  $\mu$ s とした。動作ガス条件は、空気供給圧：0.11 MPa、空気流量：50 L/min とした。また、4-in-1 PEN-Jet の結果を従来型 PEN-Jet の結果と比較した。従来型 PEN-Jet の装置条件および発生条件は以下のとおりとした。棒電極：Pt（直径 1.6 mm）ノズル電極：Pt（ノズル孔径：1 mm）、電極間最短ギャップ：2 mm、電力：200 W、パルス周波数：20 kHz、パルス幅：2.0  $\mu$ s、空気圧力：0.16 MPa、空気流量：20 L/min。

## 3. 4-in-1 PEN-Jet の基礎特性

### 3.1 温度分布

4-in-1 PEN-Jet の基礎特性として、まず、プラズマジェットの中心における軸方向ガス温度分布を測定した。（ノズル出口を原点とした。）棒電極 1 本当たりへの入力電力が一定になるように調整しながら、電圧を印加する電極の数、つ



**Fig.3.** Plasma gas temperature of 4-in-1 PEN-Jet along the jet axis with a parameter of electrical input power.

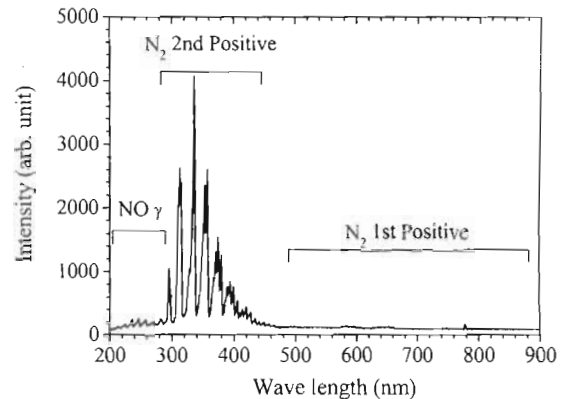
まり発生させる放電の数を増やした。

計測結果を **Fig.3** に示す。従来型 PEN-Jet と、放電数が 1 個の 4-in-1 PEN-Jet (総電力: 200 W) とでは、4-in-1 PEN-Jet の方がガス温度が高いことがわかる。また、ジェット長も 4-in-1 PEN-Jet の方が長い。このように、4-in-1 PEN-Jet は従来型 PEN-Jet より高温で、かつ、長いプラズマジェットを発生することができた。これは、4-in-1 PEN-Jet のノズル孔径が従来型 PEN-Jet より大きかったことから、ノズルでの損失が少なかったためと考えている。

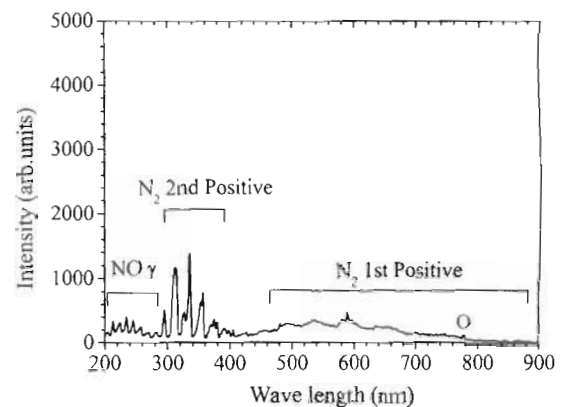
4-in-1 PEN-Jet において、放電数、すなわち総電力を増加すると、プラズマガス温度は増加し、プラズマジェット長もそれに伴って伸びた。4 個の放電で、合計で 800 W の電力を入力した場合、ノズル出口付近の温度は 700°C であった、プラズマジェット長は 30 mm であり、放電数が 1 個の場合 (ジェット長: 約 15 mm) の 2 倍、従来型 PEN-Jet の場合 (ジェット長: 約 10 mm) の 3 倍の長さであった。

### 3.2 放射スペクトル計測

従来型 PEN-Jet と 4-in-1 PEN-Jet のノズル出口から 1 mm の位置のプラズマジェットからの



(a) Conventional PEN-Jet (200 W)



(b) 4-in-1 PEN-Jet (800 W)

**Fig.4.** Optical emission spectra radiated from (a) conventional PEN-Jet (200 W) and (b) 4-in-1 PEN-Jet (800 W) at 1 mm downstream from the nozzle exit.

放射スペクトルを **Fig.4** に示す。従来型 PEN-Jet の場合、 $N_2$  のバンドスペクトルである 2nd Positive ( $C^3\Pi_u - B^3\Pi_g$ ) が強く観測された。そのほか  $NO \gamma$  系 ( $A^2\Sigma^+ - X^2\Pi_r$ ) や  $O$  の原子スペクトル (777.2 nm) が観測された。一方、4-in-1 PEN-Jet の場合、従来型 PEN-Jet で観測された 2nd Positive や  $NO \gamma$  のほかに  $N_2$  の 1st Positive ( $B^3\Pi_g - A^3\Sigma_g^+$ ) が観測された。2nd Positive は従来型 PEN-Jet の場合と比べて、強度は弱くなったが、 $NO \gamma$  は強くなった。また、1st Positive は 2nd Positive を放射し脱励起した  $N_2$  ( $B^3\Pi_g$ ) がさらに下位準位に脱励起して得られたと考えられる。

**Table 1** Water contact angle as a function of input power and traverse speed.

	Input power (W)	Traverse speed (mm/s)	Contact angle (°)				
			PET	PTFE	Al	SUS304	Glass
Untreated	-	-	84	109	90	91	18
Conventional PEN-Jet	200	20	25	109	42	24	1
Conventional PEN-Jet	200	100	65	109	80	74	11
4-in-1 PEN-Jet (1ch)	200	20	36	109	55	74	less than 1
4-in-1 PEN-Jet (2ch)	400	20	36	109	34	72	less than 1
4-in-1 PEN-Jet (3ch)	600	20	35	109	31	56	less than 1
4-in-1 PEN-Jet (4ch)	800	20	24	108	20	47	less than 1
4-in-1 PEN-Jet (4ch)	800	80	28	109	25	71	less than 1
4-in-1 PEN-Jet (4ch)	800	200	32	109	51	2	less than 1

#### 4. 4-in-1 PEN-Jet を用いた表面処理

Table 1 に基板の送り速度を固定し (20 mm/s)、投入電力 (放電数) を変化させて処理した場合と、投入電力を固定し (800 W)、基盤の送り速度を変化させた場合の各種基板における水の接触角を示す。

プラズマを照射することによって、PTFE を除く全ての材料に対して、水の接触角が減少することがわかる。4-in-1 PEN-Jet と従来型 PEN-Jet とを比較すると、電力を 200 W (4-in-1 PEN-Jet の放電数 : 1 個) としたとき、PTFE とガラスを除いた全ての材料において、従来型 PEN-Jet の方が 4-in-1 PEN-Jet より接触角が小さかった。しかしながら、放電数が増え電力が増したことで、接触角が減少し、処理能力が高まった。特に Al の場合、電力を 800 W とした 4-in-1 PEN-Jet で処理したとき、接触角が 20° となり、従来型 PEN-Jet で処理した場合 (接触角 : 42°) より格段に高い処理能力が得られた。

基板の送り速度を増加させるにつれて、各基板の接触角は大きくなっている。しかしながら、ガラスの場合、従来型 PEN-Jet を用いて送り速度 20 mm/s で処理したとき、1° だったのに対し、4-in-1 PEN-Jet を用いて送り速度を 200 mm/s (前述の 10 倍の送り速度) とした場合でも接触角が 1° 未満であり、極めて高い親水性を示した。

ちなみに、従来型 PEN-Jet を用い、送り速度 100 mm/s で処理をした場合、水の接触角は 11° であった。Al の場合、従来型 PEN-Jet を用いて送り速度 20 mm/s で処理した場合、接触角が 49° であったのに対し、4-in-1 PEN-Jet を用いて送り速度 80 mm/s (前述の 4 倍の送り速度) で処理した場合、接触角は 25° であった。つまり、電力 800 W の 4-in-1 PEN-Jet を用いて処理したとき、ガラスに関しては従来型 PEN-Jet の 10 倍、Al に関しては 4 倍の送り速度で処理が可能であることがわかった。

一方、SUS304 に対しては、従来型 PEN-Jet で処理した場合よりも 4-in-1 PEN-Jet で処理した方が接触角は大きかった。これは、4-in-1 PEN-Jet の処理条件が SUS304 に対して適切でなかったためと考える。つまり、処理時間を単に長くすればよい、あるいは、プラズマ出力を単に増加すればよい、ということではないことを意味している。しかしながら、総合的に見て、4-in-1 PEN-Jet は従来型 PEN-Jet より高速に処理ができることがわかった。

#### 5. まとめ

高出力のパルスアークプラズマジェットを発生させるために、4-in-1 PEN-Jet 装置を開発し、基礎特性の測定、および様々な材料に対する、

親水化能力を評価した。得られた知見を以下にまとめる。

- (1) ガス温度分布の測定結果、4-in-1 PEN-Jet のプラズマガス温度は 800 W のときノズル付近で 700°C 近くまで達し、30 mm 下流のところでも 200°C 以上の温度を示した。
- (2) プラズマからの放射スペクトル測定により、4-in-1 PEN-Jet の場合、N<sub>2</sub> の 1st Positive ( $B^3\Pi_g-A^3\Sigma_g^+$ ) と 2nd Positive ( $C^3\Pi_u-B^3\Pi_g$ )、および NO  $\gamma$  系 ( $A^2\Sigma^+-X^2\Pi_r$ ) および O の原子スペクトル (777.2 nm) が観測された。
- (3) 4-in-1 PEN-Jet の電力を 800 W としたとき、ガラスに関しては従来型 PEN-Jet の 10 倍、Al に関しては 4 倍の送り速度で処理することが可能である。

#### 謝辞

本研究の一部は、独立行政法人日本学術振興会 (JSPS) 科学研究費補助金、科学技術振興機構 (JST) 重点地域研究開発推進事業平成 17 年度「シーズ育成試験」、豊橋技術科学大学未来技術流動研究センター重点研究プロジェクト、ベンチャービジネスラボラトリプロジェクト研究、未来ピークルリサーチセンタープロジェクト研究、文部科学省 21 世紀 COE プログラム「インテリジェントヒューマンセンシング」、JSPS の拠点大学交流事業 (日韓協力事業「次世代半導体開発」、および日中協力事業「プラズマおよび核融合」) などの支援を受けて行われた。

#### References

- 1) C. Tendero, C. Tixier, P. Tristant, J. Desmaison, P. Leprince: Atmospheric pressure plasmas: A review, *Spectrochimica Acta Part B*, **Vol.61** (2006) pp.2-30.
- 2) A. Bogaerts, E. Neyts, R. Gijbels, J. van der Mullen: Gas discharge plasmas and their applications, *Spectrochimica Acta Part B*, **Vol.57** (2002) pp.609-658.
- 3) S. Kanazawa, M. Kogoma, T. Moriwaki, S. Okazaki: Stable glow plasma at atmospheric pressure, *J. Physics D: Applied Physics*, **Vol.21** (1988) pp.838-840
- 4) X. Xu: Dielectric barrier discharge - properties and applications, *Thin Solid Films*, **Vol.390** (2001) pp.237-242
- 5) A. Schütze, J. Y. Jeong, S. E. Babayan, J. Park, G. S. Selwyn, R. F. Hicks: The atmospheric-pressure plasma jet: A review and comparison to other plasma sources, *IEEE Transactions on Plasma Science*, **Vol.26** (1998) pp.1685-1693.
- 6) Y. Kabouzi, M. D. Calzda, M. Moisan, K. C. Tran, C. Trassy: Radial contraction of microwave-sustained plasma columns at atmospheric pressure, *J. Applied Physics*, **Vol.91** (2002) pp.1008-1016.
- 7) A. Czemichowski: Gliding arc. Applications to engineering and environment control, *Pure and Applied Chemistry*, **Vol.66** (1994) pp.1301-1310.
- 8) A. Fridman, S. Nester, L. A. Kennedy, A. Savelev, O. Mutaf-Yardimci: Gliding arc gas discharge, *Progress in Energy and Combustion Science*, **Vol.25** (1999) pp.211-231.
- 9) J. Toshifuji, T. Katsumata, H. Takikawa, T. Sakakibara, I. Shimizu: Cold-plasma jet under atmospheric pressure for surface modification, *Surface and Coating Technology*, **Vol.171** (2003) pp.302-306.
- 10) H. Shiki, J. Motoki, H. Takikawa, G. C. Xu, T. Sakakibara, Y. Nishimura, S. Hishida, T. Nishi, T. Okawa: Pluralization technique of gliding arc plasma, *J. Institute of Applied Plasma Science*, **Vol.12** (2004) pp.41-46 (in Japanese).
- 11) H. Shiki, J. Motoki, H. Takikawa, T. Sakakibara, Y. Nishimura, S. Hishida, T. Okawa, T. Ootsuka: Electrode erosion in pulsed air-arc meso-plasma jet under atmosphere, *Transactions on the Institute of Electrical Engineers of Japan* (in Japanese) (Submitted).