

研究論文

グライディングアークプラズマのマルチ化技術

豊橋技術科学大学

志岐 肇, 元木純平

滝川浩史, 徐 国春

榊原建樹

株式会社栗田製作所

西村芳実, 菱田茂二

大研化学工業株式会社

西 毅, 大川 隆

Pluralization Technique of Gliding Arc Plasma

Hajime SHIKI, Junpei MOTOKI, Hirofumi TAKIKAWA,

Guochun XU, Tateki SAKAKIBARA,

Yoshimi NISHIMURA*, Shigeji HISHIDA*, Tsuyoshi NISHI**, Takashi OKAWA**

Toyohashi University of Technology, * Kurita Seisakusho Co., Ltd., ** Daiken Chemical Co., Ltd.

Abstract

Gliding arc, one of atmospheric pressure plasma, discharges between a pair of diverging electrodes immersed in fast-gas-flow. Gliding arc is a non-equilibrium plasma which generates medium temperature in contrast to those of called cold plasma and thermal plasma. In order to apply this technique in the fields of surface treatment, gas conversion, and sterilization, generation of the plasma with large area or volume is required. In the present study, diverging angle of the electrodes, electrical power supply, and circuit design were investigated. A multi-channel apparatus with a pulse power supply was developed. The optimum diverging angle of the electrodes was found to be 45 degree for wide and long plasma. When using a pulse modulator supplying multiphase-pulse power to the electrodes through branch circuits composed of reactance and capacitance, we successfully developed a 6-channel gliding arc apparatus which generates plasma with an width of 300 mm.

Keywords: Gliding arc, Atmospheric pressure plasma, Pluralization, Surface treatment.

1. はじめに

表面改質法は、一般に、溶剤を用いるウェットプロセス（湿式法）と、熱・光（UV）・レーザ・プラズマなどを用いるドライプロセス（乾式法）とに大別される。現状ではウェットプロセスが主流であるが、溶剤による環境破壊の問題が指摘されており、代替法の開発が急務である。一方、ドライプロセスは、化学薬品を使わないため、そのような問題が指摘されることは少ない。中でもプラズマプロセスは、プロセスの低温化、処理時間の短縮、原子・分子レベル

での制御が可能といった利点がある。例えば、プラズマを樹脂表面に照射すると、表面では、化学的あるいは物理的反應による有機汚染物の除去、化学組成の変化、表面の粗面化などを生じ、表面のクリーニングを始め、濡れ性や接着性を改善することができる¹⁻³⁾。このような目的のプラズマを発生させる従来の方法としては、コロナ放電や低圧 RF グロー放電⁴⁾がよく知られているが、最近では、大気圧グロー放電（AGP: Atmospheric Glow Plasma）⁵⁾や誘電体バリア放電（DBD: Dielectric Barrier Discharge）⁶⁾といっ

た大気圧プラズマを使った樹脂の表面改質や成膜に関する技術が報告されている^{7,8)}。しかし、これらのプラズマは、He や Ar といった比較的高価な希ガスを使用するため、ランニングコストが高くなるという問題がある。そこで、筆者らは、動作ガスに空気を利用できるグライディングアーク放電⁹⁾に注目した。グライディングアークは、大気圧で発生するアークであるものの、室温～数百度程度の温度を呈する非平衡プラズマである。グライディングアークを、樹脂、ガラス、あるいは金属などに照射することによって、水の濡れ性を向上することができる¹⁰⁾。しかしながら、実用装置としては大面積の処理が要求される。もちろん、グライディングアークを多数配置すれば大面積処理が可能となる。ところが、現存のグライディングアーク装置は、一つの電源で一つのグライディングアークしか発生できない。すなわち、複数のグライディングアークを発生するためには、それに対応する数の電源が必要であり、設備費が高くなる。このような背景から、本研究では、低設備コストおよび低ランニングコストで大面積の表面処理を可能とする装置を開発するため、一つの電源で複数のグライディングアークを発生するシステムの開発を行った。

2. グライディングアークの概要

グライディングアークは、そもそも 20 世紀初頭に発見された現象、すなわち、2 本の末広がり電極対の間に高電圧を加えアークを発生させたとき、アークが電極に沿って滑るように移動する現象を起源としている¹¹⁾。当時は、アーク放電の高温を用い、空気から NO_x を合成するといった化学的な利用が主体であった¹¹⁾。その後、より効率的な化学合成法の出現により、グライディングアークを使った手法・研究は一旦姿を消してしまった。その後、1980 年代中頃、Czernichowski らが、再びこのアークに着目し、新たなプラズマ発生方法として提案した。彼ら

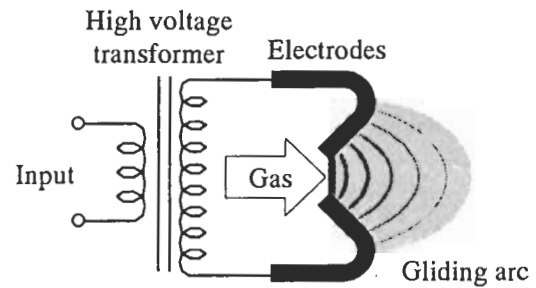


Fig.1 Basic system of gliding arc discharge.

はグライディングアークを使って、H₂S の分解や、天然ガスから H₂ の合成などを行った⁹⁾。

グライディングアーク発生装置の原理図を Fig.1 に示す。直流 (DC)、交流 (AC)、あるいはパルス状の高電圧を末広がり電極対に印加する。印加電圧が電極間最短ギャップにおける絶縁破壊電圧に達すると、その位置においてスパークを生じ、アークが発生する。その際、電極間に平行にガスを流すと、アーク陽光柱がガス流で押し出され、アークは電極に沿って下流へと移動する。絶縁破壊直後のアークは、高温の準熱平衡プラズマ状態であるが、下流では非平衡プラズマ状態となる。陽光柱がある長さまで伸びると、対流による冷却作用による放電抵抗の増加も加わり、放電維持電圧が電源電圧を超えてアークは自己消弧する。しかし、続いて高電圧が印加されると、最短ギャップ位置で再びアークが発生する。この発生から消滅までのプロセスを繰り返すのが、グライディングアークであり¹²⁾、見掛け上、電極対が作る二次元空間に平面プラズマが生成される。

Fig.2 に、グライディングアークをポリエチレンテレフタレート (PET) 板に照射している様子を示す。この実験では、インパルス型高周波電源 (ハイデン研究所製、PHF-2K 型) を使用し、処理条件は、出力: 200 W, パルス周波数: 15 kHz, 間欠周波数: 66 Hz, 処理速度: 4 mm/s とした。Fig.3 にグライディングアーク照射前後に PET 表面に滴下した水滴の形状を接触角計 (共和界面科学製, DropMaster 500 型) で観測

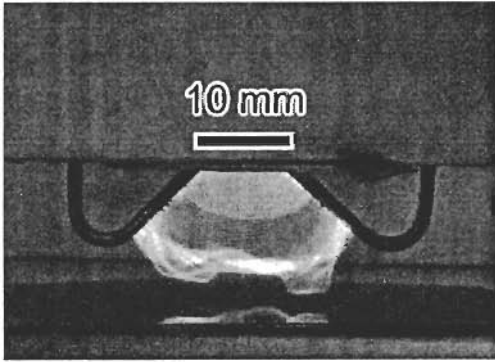
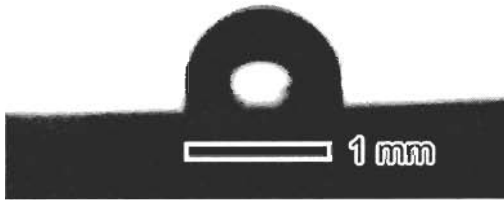


Fig.2 Photograph of gliding arc discharge irradiating on PET film.



(a) Untreated PET surface



(b) Treated PET surface

Fig.3 Photograph of water droplet on (a) untreated and (b) treated PET surface by gliding arc.

した結果を示す。同図から、未処理場合の接触角が 93° だったのに対し、処理後は 18° に減少しており、表面の濡れ性が向上したことがわかる。

3. 電極構成の検討

処理効率を向上させるためには、Fig.4 に示すように処理領域を拡大し、広範囲の処理を実現することが必要である。そのためには、グライディングアークの放電パラメータを最適化する必要がある。グライディングアークの放電パラメータは、入力電圧・電流やその波形・周波数などの電気的なものだけでなく、ガス種、ガス流速、電極形状など物理的・幾何学的なものがある。中でも電極形状は、放電の幾何学的な

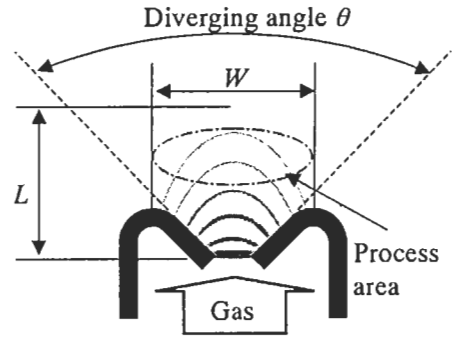
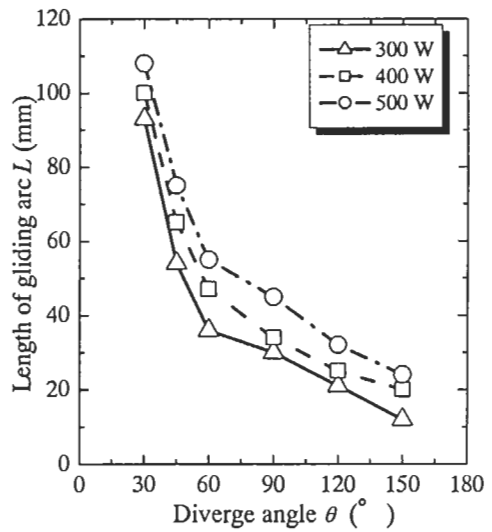
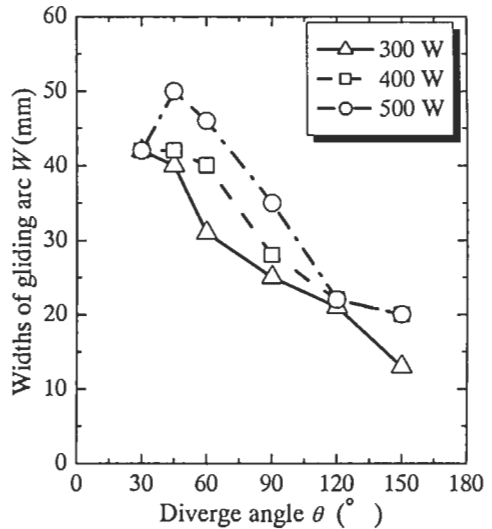


Fig.4 Schematic illustration of the gliding arc parameters.



(a) Visible length of gliding arc



(b) Visible width of gliding arc

Fig.5 Influence of diverging angle of electrodes on (a) length and (b) width of gliding arc.

特性と密接な関係にある¹³⁾。そこで、処理領域を最も広く得ることができる電極対の開口角 θ

を求めるため、開口角 θ を変化させ、プラズマの縦方向への伸び L と横方向への広がり W を可視的に測定した。実験では、電極の最短ギャップを4 mmとした。電源にはインパルス型高周波電源（ハイデン研究所製、PHF-2K型）を用い、パルス周波数：20 kHz、投入電力；300~500 Wとした。プラズマ動作ガスとして空気を用い、流量を20 L/min、風速を約2.0 m/sとした。

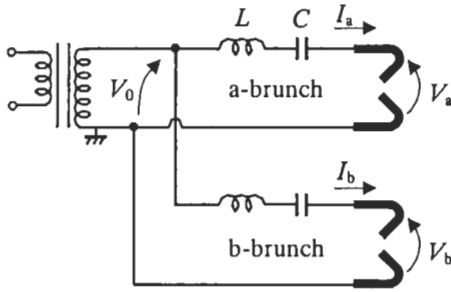


Fig.6 Diagram of branched electrical circuit.

実験結果を Fig.5 に示す。縦方向への伸び L は、開口角 θ が狭くなるほど長くなり、横方向への広がりは $30\sim 60^\circ$ の範囲で比較よく広がることがわかった。中でも、開口角 $\theta=45^\circ$ の場合、最も横方向への伸びがよくなり、最適な角度であると言える。なお、入力エネルギーが大きいほど、伸びも広がりも大きい傾向にある。

4. グライディングアークのマルチ化

より広範囲の処理を行うためには、複数のグライディングアークを一度に発生させ、横一列に並べればよい。そこで、一台の電源を用いて複数のグライディングアークを同時に発生させる回路、つまりマルチ化回路について検討した。

マルチ化の工夫として2つの方法をとった。

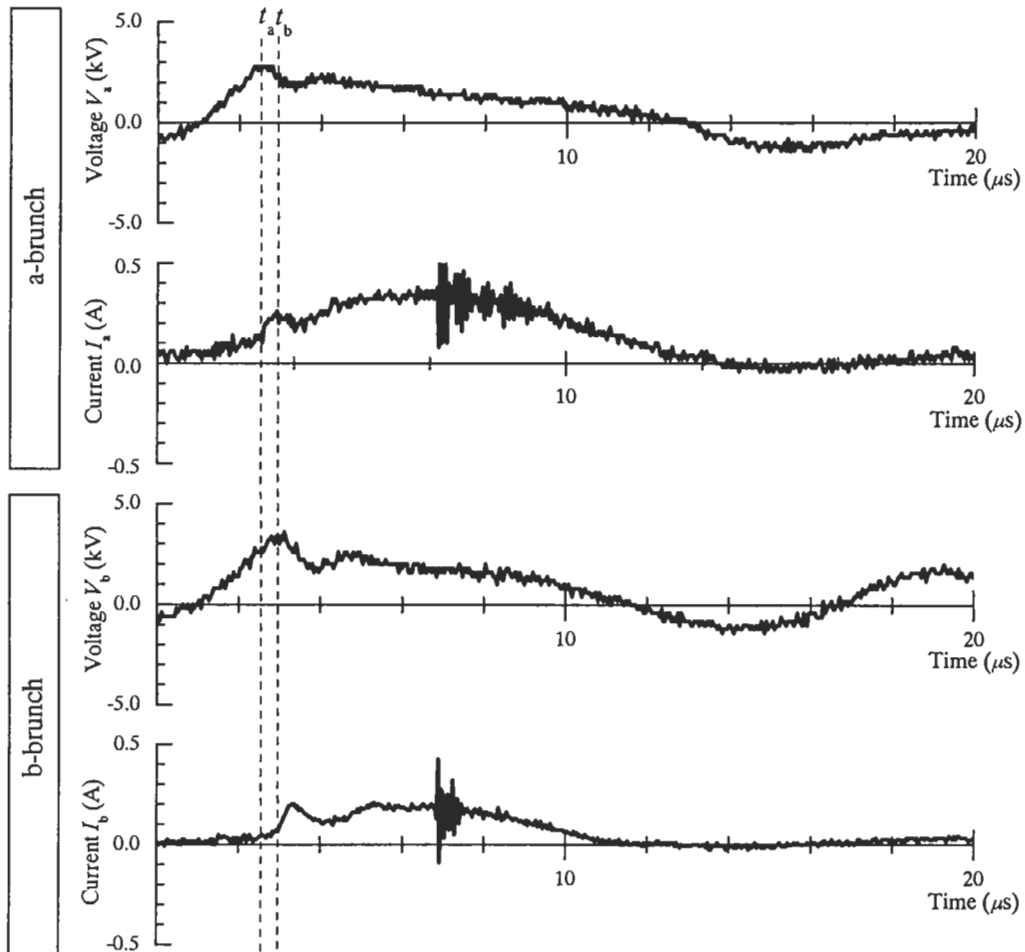


Fig.7 Typical waveforms of electrode voltages and circuit currents for a- and b-branches to generate two gliding arcs.

まず一つは、トランスからの出力を枝分けする「枝回路化」である。Fig.6 に示すように、2組の枝回路電極対のそれぞれに対し、インダクタンス L とキャパシタンス C を直列に接続した。枝回路化において、 L と C が無い場合、例えば a 枝回路が先に放電したとすると、a 枝が短絡状態となるため、b 枝には電圧が印加されず、b 枝では放電が発生しない。つまり、片方の電極対で放電が発生すると、その電極対でしか放電しない。一方、適切な値の L および C が各回路に直列に接続されている場合、例えば a 枝で放電が発生したとしても、 L と C との合成逆起電力によって、分岐点電圧 V_0 を高く保つことができる。従って、b 枝電極間にも高電圧が印加され、わずかな時間差の後、b 枝でもアークが発生する。このようにすれば、一つの電源から二つのグライディングアークを発生させることができる。Fig.6 の回路を用いた場合の a 枝および b 枝の電極間電圧および回路電流波形を Fig.7 に

示す。同図から、時刻 t_a で a 枝の放電が開始した後も、b 枝の電圧が高く保たれ、a 枝の放電にやや遅れ、 t_b で b 枝の放電が開始したことがわかる。

もう一つのマルチ化の工夫として、高電圧パルストランスの二次側のマルチ出力化、すなわち、「巻線の多相化」を行った。このことによって、トランス二次側の各相でグライディングアークを発生させることができた。更に、Fig.8 に示すように、トランス二次側の各相を枝回路化することで、(トランス二次側相数) × (枝回路数) だけの、グライディングアークを発生することが可能となった。Fig.9 は Fig.8 に示す回路を製作し、6 個のグライディングアークを発生したときの写真である。なお同図を見ると、各プラズマのバランスが必ずしもとれていないが、これは電極形状・配置および電気回路の微妙な違いが原因であると考えている。今後、各プラズマのアンバランスが表面処理にどのよう

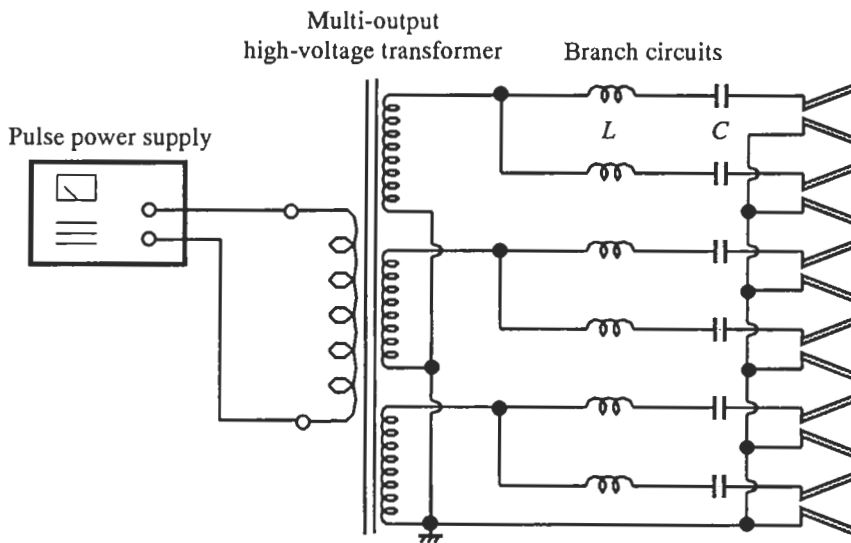


Fig.8 Circuit diagram of high-voltage pulse transformer with multi-output.



Fig.9 Photograph of 6 channel discharges of multi-gliding arc plasma.

に影響するかを検討するとともに、各プラズマのバランス化を図る。

5. まとめ

グライディングアークを用いた大面積の表面処理実用化装置の開発手始めとして、放電電極構造の最適化、および電源・放電回路の開発を行なった。主要な結果を以下に要約する。

放電電極構造として、プラズマの伸びおよび広がりやすい開口角を調査した。その結果、開口角は 45° 程度が適切であることがわかった。

電源回路・放電回路については、一つの電源で複数のグライディングアークを発生させるため、高圧トランスからの出力を分岐する放電回路の枝回路化と、高圧トランスの二次側出力巻線を複数化する多相化の二つの手法を考案した。これらの手法をもとに開発した電源を用い、実際に 6 個のグライディングアークを同時に発生させることができた。

グライディングアークは表面処理の分野のみならず、ガス分解・合成といった環境およびエネルギー分野におけるプラズマ触媒としての応用、更に殺菌などの医療応用も期待できる。いずれの分野でも、大面積あるいは大体積の大気圧プラズマを実現するマルチグライディングアークの実用化は大変魅力的であり、今後の更なる開発が期待される。

謝辞

本研究の一部は、豊橋技術科学大学未来技術流動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、および文部科学省 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」の援助を受けて行われた。

参考文献

1) 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.

- 2) Y. Lee, S. Han, J. H. Lee, J. H. Yoon, H. E. Lim, K. J. Kim: Surface studies of plasma source ion implantation treated polystyrene, *J. Vacuum Science Technology A*, **Vol.16** (1998) pp.1710-1715.
- 3) R. Wilken, A. Holländer, J. Behnisch: Surface radical analysis on plasma-treated polymers, *Surface and Coatings Technology*, **Vol.116-119** (1999) pp.991-995.
- 4) A. Kaminska, H. Kaczmarek, J. Kowalonek: The influence of side groups and polarity of polymers on the kind and effectiveness of their surface modification by air plasma action, *European Polymer J.*, **Vol.38** (2002) pp.1915-1919.
- 5) T. Yokoyama, M. Kogoma, T. Moriwaki, S. Okazaki: The mechanism of the stabilisation of glow plasma at atmospheric pressure, *J. Physics D: Applied Physics*, **Vol.23** (1990) pp.1125-1128.
- 6) X. Xu: Dielectric barrier discharge - properties and applications, *Thin Solid Films*, **Vol.390** (2001) pp.237-242.
- 7) R. Prat, Y. J. Koh, Y. Babukutty, M. Kogoma, S. Okazaki, M. Kodama: Polymer deposition using atmospheric pressure plasma glow (APG) discharge, *Polymer*, **Vol.41-20** (2000), PP.7355-7360.
- 8) S. Ishikawa, K. Yukimura, K. Matsunaga, T. Maruyama: The surface modification of poly (tetrafluoroethylene) film using dielectric barrier discharge of intermittent pulse voltage, *Surface and Coatings Technology*, **Vol.130** (2000) pp.52-56.
- 9) A. Czemichowski: Gliding Arc. Applications to engineering and environment control, *Pure and Applied Chemical*, **Vol.66** (1994) pp.1301-1310.
- 10) K. Yukimura, K. Matsunaga, T. Maruyama: Surface modification of materials using atmospheric gliding arc plasma, *J. of IAPS.*, **Vol.9** (2001) pp.37-42. (in Japanese)
- 11) A. A. Naville, A. P. Guye, E. C. Guye; Fr. Patent 350 120, 1904.
- 12) A. Fridman, S. Nester, L. A. Kennedy, A. Saveliev, O. Mutaf-Yardimci: Gliding arc gas discharge, *Progress in Energy and Combustion Science*, **Vol.25** 211 (1999) pp.211-231.
- 13) B. Benstaali, D. Mussa, A. Addou, J. L. Brisset: Plasma treatment of aqueous solutes: Some chemical properties of a gliding arc in humid air, *The European Physical J. Applied Physics*, **Vol.4** (1998) pp.171-179.