

International Training Program イギリス クイーンズ大学ベルファスト校 派遣報告

名古屋大学 工学研究科 電子情報システム専攻 鈴木 陽香

1. はじめに

このたび、International Training Program 長期派遣プログラムによりクイーンズ大学ベルファスト校（イギリス）の Bill Graham 教授の研究グループにおいて電解質溶液中気泡内プラズマの電子温度計測に関する実験および解析を行った。滞在期間は平成 24 年 11 月 5 日から平成 25 年 1 月 8 日までの二ヵ月間であった。以下に今回の滞在の報告をまとめる。

2. クイーンズ大学ベルファスト校

ベルファストは北アイルランドの首府であり、人口は 27 万人を超え、文化・産業ともに第一の都市である。古くから造船業が盛んであり、映画で有名なタイタニック号もベルファストに拠点を置く造船会社ハーランド・アンド・ウルフによって製造された。現在では航空機産業なども盛んである。日本では北アイルランド問題や 2011 年のテロ騒ぎで知られているが、留学や観光においてはさほど危険ではなく治安も悪くない。



図 1. クイーンズ大学ベルファスト校

クイーンズ大学ベルファスト校は 1845 年にヴィクトリア女王によって設立されて以降 170 年近い学問の伝統を誇る大学である。また、イギリスの大規模研究型大学 24 校で構成するラッセル・グループの一員であり、世界トップクラスの教育を提供している。学生数は 17,000 人以上、教職員数は 3,500 人以上であり、北アイルランドの経済、産業、文化に大きく貢献しているほか、70 か国以上から 1,200 人にも及ぶ海外留学生の受け入れを行っており、国際色豊かな大学である。

今回、滞在したプラズマ物理センター（Centre for Plasma Physics (CPP)）は物理数学部（School of Mathematics & Physics）に属し、プラズマ物理の理解及び発展のために、非熱プラズマ、レーザー生成プラズマ、液中プラズマ、プラズマバイオ、物理シミュレーションなどの研究を行っている。

キャンパスは市の中心部から南へ徒歩 15 分程のところであり、周辺は緑豊かで静かな住宅地が広がるほか、カフェやレストラン、スーパーが多数あり、学生にとっても研究生活を送るのに適した環境となっている。

3. 研究活動について

滞在先である CPP では Graham 教授と相談の上、電解質溶液中気泡内プラズマに関する実験および解析に携わることになった。大気圧下で生成する液中気泡内プラズマはその高い反応性から環境・医療・材料プロセスの分野への応用が期待されている。一方で、液体が介在することによる計

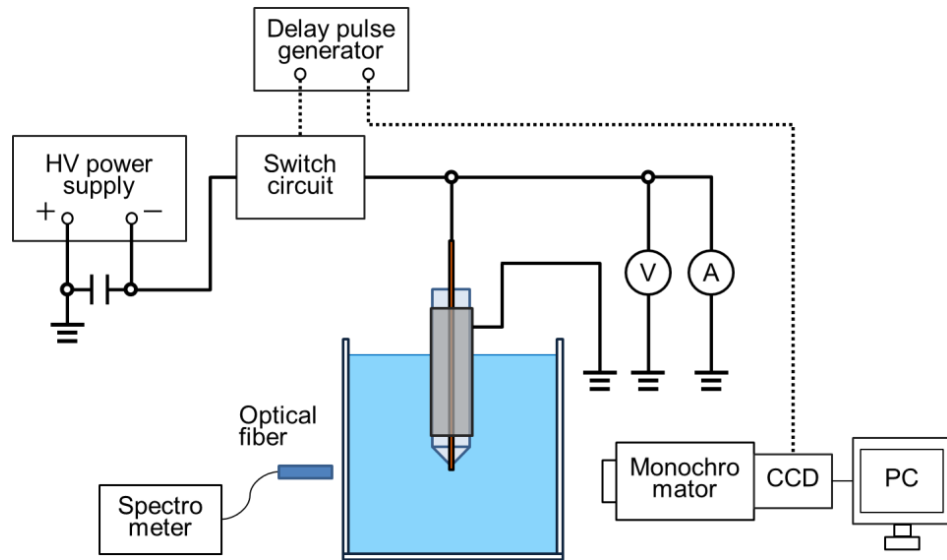


図 2. 実験装置図

測の困難性からプラズマの物理・化学反応の基礎課程に着目した研究例は必ずしも多くはなく、プラズマの制御及びプロセスの効率化を図る点で問題となってきた。本研究では高電導度液体中放電の特性と機構の理解を目的とし、電解質溶液中で生成した気泡内プラズマの電子温度を日接触計測である発光分光法により解析を行った。

図 2 に実験装置概略図を示す。電気的な接続については実線、トリガー信号は点線で示してある。電極は直径 0.5 mm のタングステンから成り、これは石英ガラス管に挿入され、先端部のみ液体と接触する形になっている。また、石英ガラス外部に円筒状の接地電極を取り付けることによりリターンパスを確保している。液体には 1.8 % w/v BaCl₂ 水溶液を使用している。この電極に電圧：-300 V、パルス幅：250 μs、パルス周波数：50 Hz を印加することにより液中に気泡及びその内部にプラズマを生成する。この高電圧パルスは DC 電源及び高耐圧トランジスタ回路、トリガパルスによって生成されている。液中気泡内プラズマは小型分光器および CCD 付モノクロメータを使用し、発光分光法により計測を行っている。電極へ印可される電圧及び電流はそれぞれ高電圧プロ

ーブとカレントプローブによって計測を行う。

図 3 はパルストリガ及び典型的な電圧・電流波形である。トリガパルス立ち上がりを $t = 0 \mu\text{s}$ とすると、 $t = 0 - 60 \mu\text{s}$ では電流は減少し電圧は増加（負電圧は減少）している。電極に電圧を印可するとジュール熱により電極表面に気泡が生成される。溶液よりも水蒸気のほうが低導電率であり、抵抗値が増加することがこの電圧・電流波形変化の要因であると考えられる。 $t = 60 \mu\text{s}$ 以降、電流は増加し電圧は減少（負電圧は増加）している。

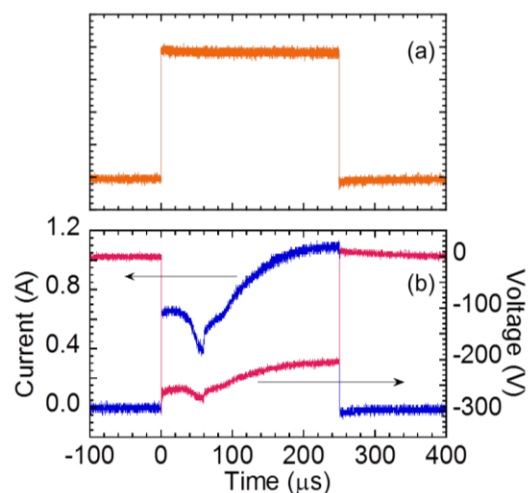


図 3. (a)トリガパルス信号、(b)電圧波形及び電流波形

ここから $t=60 \mu\text{s}$ に気泡内での放電が開始し、プラズマが形成され導電率が上昇したことが示唆される。

プラズマの平衡状態が局所熱平衡状態 (LTE) であり、電子温度が Maxwell-Boltzmann 分布を取るという仮定に基づくと、ある同種の原子またはイオンの発光強度の比から電子温度を求めることができる。厚さ l のプラズマから放射される、脱励起 (準位 $m \rightarrow n$) による線スペクトルの周波数積分強度 i_{nm} は以下の式で表すことができる。

$$i_{nm} \approx \frac{hcl A_{nm}}{4\pi \lambda_{mn}} N_m$$

ω_{mn} は光子の周波数、 A_{nm} は Einstein の A 係数、 N_m は準位 m の数密度、である。また、ボルツマン則より数密度 N_m は

$$N_m = N g_m \exp\left(-\frac{E_m}{k_B T_e}\right)$$

となることから、

$$i_{nm} \approx \frac{hclN A_{nm} g_m}{4\pi \lambda_{mn}} \exp\left(-\frac{E_m}{k_B T_e}\right)$$

となる。 N は系全体の数密度 (分配関数)、 g_m は統計重率、 E_m は励起エネルギー、 T_e は電子温度である。以上より、同種の原子からの二種類の線スペクトル強度 $i_{n_1 m_1}$ 、 $i_{n_2 m_2}$ の強度の比 R を求めると

$$R = \frac{i_{n_1 m_1}}{i_{n_2 m_2}} \approx \frac{\lambda_{m_2 n_2} A_{n_1 m_1} g_{m_1}}{\lambda_{m_1 n_1} A_{n_2 m_2} g_{m_2}} \exp\left(-\frac{E_{m_1} - E_{m_2}}{k_B T_e}\right)$$

となる。この式より電子温度の項は

$$k_B T_e = \frac{E_{m_1} - E_{m_2}}{\ln\left(\frac{\lambda_{m_2 n_2} A_{n_1 m_1} g_{m_1}}{\lambda_{m_1 n_1} A_{n_2 m_2} g_{m_2}} R\right)}$$

となる。

る。実際には、横軸に電子エネルギー、縦軸に強度を取りプロットを置くことで、その傾きから

$k_B T_e$ を求めることができる。

また、一価のイオンの発光強度については Saha の電離方程式

$$\frac{N_e N_i}{N_0} = \frac{2g_i}{g_0 a_0^3} \left(\frac{k_B T_e}{4\pi E_H}\right)^{\frac{3}{2}} \exp\left(-\frac{E_I}{k_B T_e}\right)$$

を用いて、

$$i_{nm} \approx \frac{hclN A_{nm} g_m}{4\pi \lambda_{mn}} \frac{2g_i}{a_0^3 N_e} \left(\frac{k_B T_e}{4\pi E_H}\right)^{\frac{3}{2}} \times \exp\left(-\frac{E_I + E_m}{k_B T_e}\right)$$

と表すことができる。

このプラズマの時間平均的な発光スペクトルを図4に示す。また、NIST の原子スペクトルデータベースと照らし合わせることにより、エネルギー準位、Einstein の係数、統計重率などを求めた (表1)。

その結果、確認できたスペクトルの殆どが Ba^{1+} イオンからのスペクトルであることがわかる。また、No.9 の線については Ba^{1+} イオンと Ba 原子のスペクトルが重なっていたため、より高分解能である分光器により、2本の線のピーク比から分離を試みた。横軸を電子エネルギー ($E_I + E_m$ (eV))、縦軸を No.6 の原子スペクトル強度で規格化した強度 ($(i_{nm}/i_{No.6})/(A_{nm} g_m/\lambda_{mn})$) で取り、すべてのイオンのスペクトルについてプロットすると図5のようになる。

指数近似線を引くと、その傾きから

$$T_e = 0.87 \text{ eV}$$

と求めることができる。

一方で、プロットは直線的ではないことが確認できる。この理由として

- 大気圧のプラズマは一般的に電子密度が $10^{19} \sim 10^{20} \text{ m}^{-3}$ であり、LTE や一温度の Maxwell-Boltzmann 分布が適用されない。

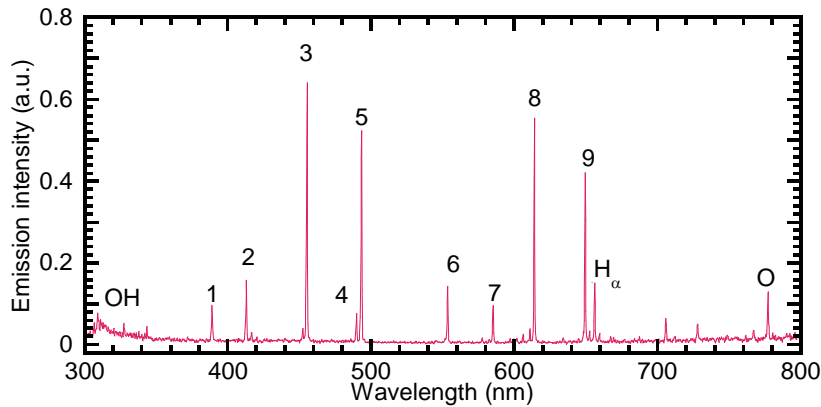


図4. 時間平均スペクトル

表1. Ba 原子スペクトルデータ

No.		λ (nm)	A (s^{-1})	E_l (eV)	E_k (eV)	Lower Level	Upper Level	gl	gk
1	Ba II	389.18	2.17E+08	2.512113	5.697008	6p $^2p^o$ $^1/2$	6d 2D $^3/2$	2	4
2	Ba II	413.06	2.18E+08	2.721751	5.722471	6p $^2p^o$ $^3/2$	6d 2D $^5/2$	4	6
3	Ba II	455.40	1.11E+08	0.000000	2.721751	6s 2S $^1/2$	6p $^2p^o$ $^3/2$	2	4
4	Ba II	489.99	1.04E+08	2.721751	5.251372	6p $^2p^o$ $^3/2$	7s 2S $^1/2$	4	2
5	Ba II	493.41	9.53E+07	0.000000	2.512113	6s 2S $^1/2$	6p $^2p^o$ $^1/2$	2	2
6	Ba I	553.55	1.19E+08	0.000000	2.239187	6s 2 1S 0	6s6p $^1p^o$	1	1
7	Ba II	585.37	6.00E+06	0.604281	2.721751	5d 2D $^3/2$	6p $^2p^o$ $^3/2$	4	4
8	Ba II	614.17	4.12E+07	0.703586	2.721751	5d 2D $^5/2$	6p $^2p^o$ $^3/2$	6	4
9	Ba II	649.69	3.10E+07	0.604281	2.512113	5d 2D $^3/2$	6p $^2p^o$ $^1/2$	4	2
	Ba I	649.88	5.40E+07	1.189818	3.097105	6s5d 3D 3	5d6p $^3D^o$	3	7

- プラズマ中の Ba イオン密度が高い状態では、電離励起だけではなく、イオンの励起やイオンによる光吸収も考慮する必要がある。などが考えられ、今後、更に詳細な計測が必要である。

$$y = 1.2286e-10 * e^{-(1.1488x)} \quad R = 0.77179$$

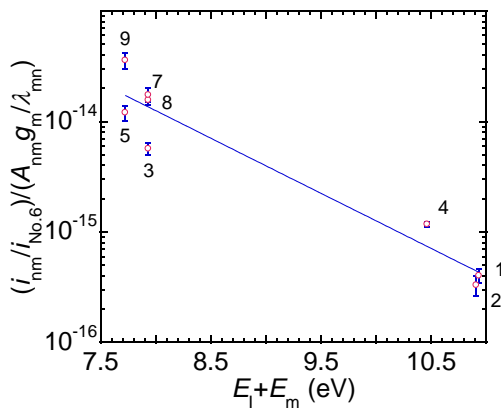


図5. 電子エネルギー依存発光強度

4. まとめ

今回の派遣では、発光分光法から高導電性液体中プラズマの電子温度計測を行うことができ、液中プラズマの分光計測を専門としてきた自分にとっては非常に良い経験であった。また、海外での研究生活を通して研究の進め方や新たな計測技術や物理的知識を得ることができ、有意義な滞在であったと感じている。滞在先の Graham 教授を始めとする QUB のスタッフ、学生の方々に感謝するとともに、このような機会くださった、堀勝教授、豊田浩孝教授、諸先生方、名古屋大学工学研究科附属プラズマナノ工学研究センターITP事務局に心より感謝申し上げます。