

自己組織化大気圧プラズマを利用した バリア放電メカニズムの解明

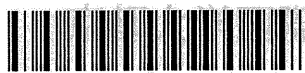
課題番号 16540448

平成16年度～平成17年度科学研究費補助金
(基盤研究(C)) 研究成果報告書

平成18年5月

京都大学図書

著者 白藤 立



京大融合創造センター助教授

1060667534

附属図書館

自己組織化大気圧プラズマを利用した バリア放電メカニズムの解明

課題番号 16540448

平成 16 年度～平成 17 年度科学研究費補助金
(基盤研究 (C)) 研究成果報告書

平成 18 年 5 月

研究代表者 白藤 立
京都大学国際融合創造センター助教授

はしがき

本研究では、誘電体バリア放電中の誘電体電極上の電荷が放電形態等に与える影響を調べ、それを制御する方法を提案するとともに、誘電体上に蓄積される電荷密度の二次元分布、及びその動的挙動を測定し、放電形態との関係を明らかにすることである。本報告書は、平成16～17年度の2年度間にわたり行われた研究において得られた成果をまとめたものである。

研究組織

研究代表者

白藤 立 (京都大学国際融合創造センター・助教授)

研究協力者

橘 邦英 (京都大学大学院工学研究科・教授)

中村敏浩 (京都大学大学院工学研究科・講師)

酒井 道 (京都大学大学院工学研究科・講師)

久保 寔 (京都大学大学院工学研究科・助手)

Sergey N. Abolmasov

(京都大学ベンチャー・ビジネス・ラボラトリー
・非常勤研究員)

英保 黎 (京都大学大学院工学研究科・修士課程)

交付決定額 (配分額)

(金額単位:千円)

	直接経費	間接経費	合計
平成16年度	1,500	0	1,500
平成17年度	2,100	0	2,100
総計	3,600	0	3,600

研究発表

(1) 学会誌等

1. S. N. Abolmasov, T. Shirafuji and K. Tachibana: “*Submillimeter dielectric barrier discharges at atmospheric pressure: edge effect*”, IEEE Trans. Plasma Science, **33**, 941–948 (2005).
2. T. Somekawa, T. Shirafuji, O. Sakai, K. Tachibana and K. Matsunaga: “*Effects of self-erasing discharges on the uniformity of the dielectric barrier discharge*”, J. Phys. D: Appl. Phys., **38**, 1910–1917 (2005).
3. R. Abo, S. N. Abolmasov, T. Shirafuji and K. Tachibana: “*Spatiotemporal surface charge measurement in two types of dielectric barrier discharges using pockels effect*”, Jpn. J. Appl. Phys. (2006); accepted for publication (発表予定).

(2) 口頭発表

1. S. N. Abolmasov, T. Shirafuji and K. Tachibana: “*Different discharge modes in 1-bar dielectric barrier discharges: edge, temperature and quantum effects*”, The 7th asia pacific conference on plasma science and technology (APCPST-7) and The 17th symposium on plasma science for materials (SPSM-17), Fukuoka, Japan, June 29-July 2, 2004, 01P-39, p.393 (2004).
2. S. N. Abolmasov, T. Shirafuji and K. Tachibana: “*Surface charge density measurement in dielectric barrier discharge with stabilized filaments: pockels technique*”, The 7th asia pacific conference on plasma science and technology (APCPST-7) and The 17th symposium on plasma science for materials (SPSM-17), Fukuoka, Japan, June 29-July 2, 2004, 01P-40, p.394 (2004).
3. S. N. Abolmasov, T. Shirafuji and K. Tachibana: “*Pattern formation in unipolar-pulsed dielectric barrier discharges*”, The 22nd symposium on plasma processing (SPP-22), Nagoya, Japan, January 26-28, 2005, P2-34, pp.285–286 (2005).

4. S. N. Abolmasov, T. Shirafuji and K. Tachibana: "*Experimental study of pattern formation in unipolar-pulsed dielectric barrier discharges*", The 17th international symposium on plasma chemistry (ISPC-17), Toronto, Canada, August 7-12, 2005, G4, 6 pages in CDROM (2005).
5. R. Abo, S. N. Abolmasov, T. Shirafuji and K. Tachibana: "*Spatio-temporal surface charge measurement in two types of dielectric barrier discharges using pockels effect*", The 6th international conference on reactive plasmas (ICRP-6) and The 23rd symposium on plasma processing (SPP-23), Matsushima/Sendai, Japan, January 24-27, 2006, P-1B-43, pp.365-366 (2006).

目次

1	研究成果	1
1.1	本研究の背景	1
1.2	蓄積電荷と放電様式の関係	4
1.3	ポッケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価	8
1.3.1	空間分解能の予備検討	8
1.3.2	無放電時電圧の影響の予備検討	12
1.3.3	測定感度の予備検討	14
1.3.4	ポッケルス効果を用いた蓄積電荷評価装置	17
1.3.5	5%Xe/Ne 沿面放電の電荷蓄積特性	20
1.3.6	100%He 沿面放電の電荷蓄積特性	30
1.3.7	自己組織化フィラメント放電の蓄積電荷評価	32
2	まとめと展望	43

1 研究成果

1.1 本研究の背景

大気圧放電 (Atmospheric pressure discharge; APD) は、プラズマプロセスのシステムを単純で安価なものにできるために注目されている。また新しい表面処理、例えば有機材料の親水性・疎水性のコントロール [1,2] や、物質合成 [3]、耐菌性処理、殺菌や滅菌 [4,5] など医用・食品関係や農業分野などへの応用が可能なることから、その利用範囲が広がっている。

APD の中でも、1988 年の上智大学の岡崎・小駒らによる大気圧グロー放電 [6] が注目を集めている。この放電は、主に誘電体バリア放電という放電方式で実現されており、電極の形状や誘電体の選択などを経て [7,8]、現在では空気、窒素、アルゴンなど、様々なガスで大気圧グロー放電を起こせるまでに至っている [7]。

誘電体バリア放電は、片側もしくは両側の電極上に誘電体層があることによって特徴付けられる [9-14]。この構造によって、過度の電流が流れることによるアーク放電への移行が抑止されている。即ち、放電電流が流れると、誘電体に電荷が蓄積され、その蓄積電荷による誘電体間の電圧が印加電圧と逆符号であるために、自動的にギャップ間電圧が放電維持電圧以下まで低下する機構が組み込まれている。この原理では、放電は 1 回きりであるが、逆符号の電圧を更に印加することによって、再度放電をさせることができる。このとき、先の放電で蓄積された電荷による誘電体間の電圧は、加えた逆符号電圧と同符号となるため、2 回目以降は、1 回目よりも低い電圧で放電を開始させることができるという特徴がある。図 1.1 にその概念図を、図 1.2 に動作時の電極間ポテンシャル分布を示す。これより、電荷蓄積によって放電が消弧されること、および、消弧後に逆符号の電圧を印加すると電荷が蓄積されていなかったときより低い印加電圧でもギャップ間電圧が放電開始電圧に至ることがわかる。

この特徴は、沿面放電型の誘電体バリア放電を用いているプラズマディスプレイパネルにおいては「メモリー効果」と呼ばれており、放電開始

1.1. 本研究の背景

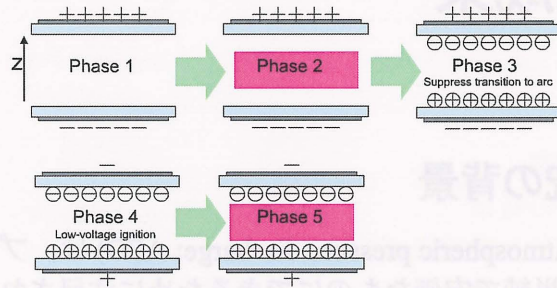


図 1.1 誘電体バリア放電における蓄積電荷の基本的な挙動とその効果.

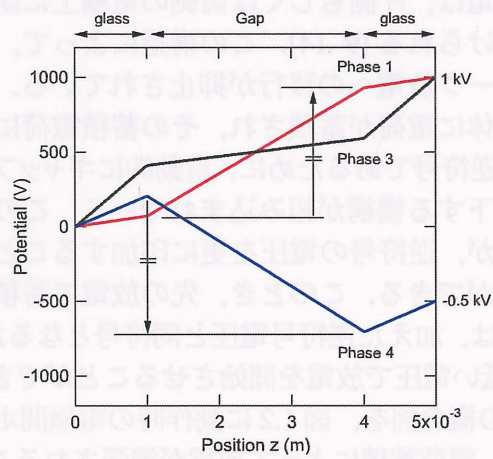


図 1.2 図 1.1 に示した誘電体バリア放電における特徴的なフェーズのポテンシャル分布.

1 研究成果

電圧を低減するのに役立っている [15].

以上のように、誘電体バリア放電の放電機構において、誘電体に蓄積される電荷の量や分布は、放電の動的挙動を左右する重要な因子であることがわかる。すなわち、誘電体バリア放電の放電機構を明らかにするためには、誘電体表面に蓄積される電荷量や分布の評価を度外視することはできないのである。

ところで、なにがしかの原因で誘電体表面上の局所的な箇所放電が開始したとすると、その放電自身が更に局所化する方向に各種プラズマパラメータが遷移するという、正のフィードバックループに入ることが報告されている [16-20]。この理論は一端放電が止む誘電体バリア放電の場合には、そのまま適用はできないが、先の「メモリー効果」によって一端放電の起こった場所には、放電終了後も電荷が蓄積されており、次の逆符号の電圧が印加されたときには、その蓄積電荷による電圧分が加算され、電荷が蓄積されていない場所よりも放電がし易くなっているはずである。従って、これらの因子を抑制する機構が働かない限り、誘電体バリア放電はフィラメント状になろうとすると予測される。

しかしながら、フィラメント状になるか一様なグロー状の放電になるかについては、もっぱら気相のプロセスに焦点を当てて議論がなされていた。例えば、フィラメント状の放電になりにくいガス種として、 He 、 N_2 やケトンを含んだガスが報告されているが [6, 7, 21-24]、彼らの共通した見解は、 He や N_2 の比較的エネルギーの高い準安定原子の関与が重要であるとしている。即ち、他の原子をイオン化出来る程度のエネルギーを有すること、並びに、中性であり電界にとらわれず、密度勾配によって拡散する性質を持つこと、がグロー様の放電を得る際に重要としている。その他にも、電離係数の換算電界に対する変動が緩やかであることや等なども重要であると指摘されている [25]。しかしながら、これらの議論の中には、誘電体バリア放電特有の誘電体表面の蓄積電荷の効果が全く言及されていない。

そこで、本研究では、誘電体バリア放電の特徴とも言うべき蓄積電荷が放電形態に与える影響を明らかにすることを目的とした。この目的を達成するためには、

- 蓄積電荷をなにがしかの方法で操作すること、
- 蓄積電荷の空間分布を計測する方法を確立すること（これは、フィラメント1本当たりの蓄積電荷をモニターすることにも相当する）、

1.2. 蓄積電荷と放電様式の関係

が必要である。

第二の要求に係る蓄積電荷の評価方法としては、放電回路に直列に接続されたコンデンサに蓄積される電荷から放電電流による蓄積電荷を見積もる方法（リサージュ図法）が良く知られている [26,27]。しかし、この方法は放電ギャップ間に流れた全放電電流を測定しているため、全蓄積電荷量を評価することはできても、ランダムに発生し、ランダムに動き回るフィラメント1本の蓄積電荷量を評価することは不可能である。

誘電体上に蓄積される電荷分布を評価する方法として、通常の誘電体の代わりに Poockels 効果を示す電気光学結晶を用いた方法が知られている [28-31]。この手法は、電圧が印加されて光学的に異方性が発生している電気光学結晶に偏光を入射すると、入射光と透過光の偏光状態に違いが現れることを利用している。ここで、誘電体にかかる電圧としては、放電電流によって誘電体（容量 C ）に蓄積される電荷 Q による電圧 $V = Q/C$ を想定している。なお、放電が生じない時であっても、外部印加電圧の分圧が誘電体である電気光学結晶に印加されることになるが、後述のようにこの電圧の大きさは蓄積電荷による電圧に比べて十分小さいことを検証した。

本研究は、このように重要でありながら、その測定方法をはじめとする特性評価が十分に進んでいない誘電体上蓄積電荷に焦点を当て、その測定装置の構築を行い、バリア放電における蓄積電荷の挙動を観測するとともに、放電機構におけるその効果を明らかにすることを目的とした。

1.2 蓄積電荷と放電様式の関係

ここでは、平行平板型の誘電体バリア放電装置において誘電体に蓄積される電荷が放電形態を制御する上で重要なパラメータであることを述べる。

誘電体バリア放電においてフィラメント状放電とグロー状の放電が存在することは既に述べた。詳しく分類すれば、目視でグロー状に見える放電は、物理的にもグロー放電になっている放電と、フィラメント状放電ではあるが、その発生箇所がランダムであるために、繰り返し放電を目視で観測する限りにおいては、一様な放電に見える放電とに分けられる。

He や Ne を用いた場合には、物理的にもグロー状態が出来ることが報告されているが [21,32]、実用上重要な窒素と酸素の混合気体である空気による放電については、物理的な意味でのグロー状態が得にくいことが

1 研究成果

報告されている [22]. 産業応用上は, 本当の意味でのグロー放電でなくとも, 目視レベルの時定数で一様に見える放電も十分実用価値があるため, N_2/O_2 混合ガスに関して調べた.

本研究では, 電極間に高電圧を簡便に印加するために, パルス発信器と変圧器を組み合わせた電源を用いたため, その電圧波形は図 1.3 に示すようにリングングしている. すなわち, 同図に示したように, 第 1 番目のパルス電圧 V_0 によって第 1 番目の放電が起こるが, これに引き続きリングングによって生じた異符号の電圧 V_1 が印加され, 第 2 番目の放電が生じる. 放電が生じていることは放電電流波形を見ることで確認できる. 観測される電流波形は変位電流成分と放電電流成分の和であるから, 変位電流成分をもとめて除去する必要がある. 放電が起こっていない時間領域の波形をコンデンサのみ回路に流れる電流と仮定して実験系全体のコンデンサ容量 C を求め,

$$I = C \times \frac{dV}{dt}$$

によって決まる変位電流成分を割り出した. 図 1.3 には, 観測された総合電流が実線で, 変位電流成分が破線で示されている. これより, 第 1 番目の放電に引き続き, 異符号の電流が流れる第 2 番目の放電が生じていることが確認できる.

この観測を系統的に行った結果, 放電形態と第 2 番目のパルス電圧 V_1 の間に相関関係があることがわかった. 図 1.4 は, V_1 と放電形式の関係をしめしたものである. $V_1 = 4 \text{ kV}$ を境にして, それ以下であるとフィラメント状に, それ以上であるとグロー状の放電になる. このような違いが生じる原因を明らかにするために, フィラメント状放電時, グロー状放電時, およびその境界領域における電流波形を解析した結果を図 1.5 に示す. 図 1.5(a) はフィラメント状放電の場合である. 第 1 番目のパルスによって放電が生じるが, 第 2 番目のパルス電圧は放電を開始させるには不十分であり, 第 2 番目のパルス印加時には, 放電電流が流れていない. 一方, 第 2 番目のパルスが大きくなると, 図 1.5(b) や (c) のように, 第 2 番目のパルスによる放電が生じるようになる. 第 1 番目の放電電流によって蓄積された電荷は, この第 2 番目の異符号の放電電流によってうち消されることになる. 特に, 図 1.5(c) では, 完全にうち消されていることがわかる.

以上の結果より, フィラメント状放電からグロー状放電にする方策の一つとして, 最初の主放電によって蓄積された誘電体表面上の電荷をそのすぐ後に続く異符号電圧によって生じる放電によりうち消す, という

1.2. 蓄積電荷と放電様式の関係

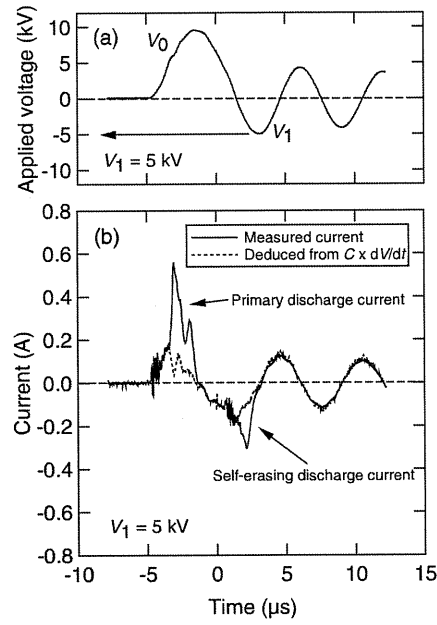


図 1.3 電流電圧波形

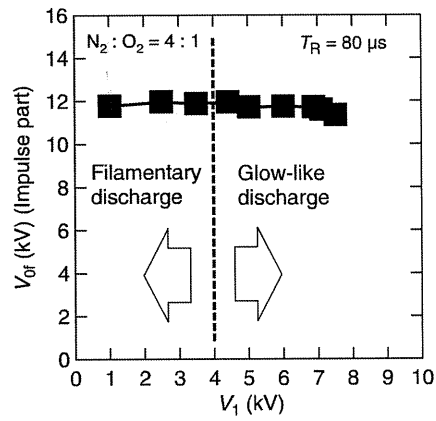


図 1.4 放電形式の第 2 番目の電圧依存性

1 研究成果

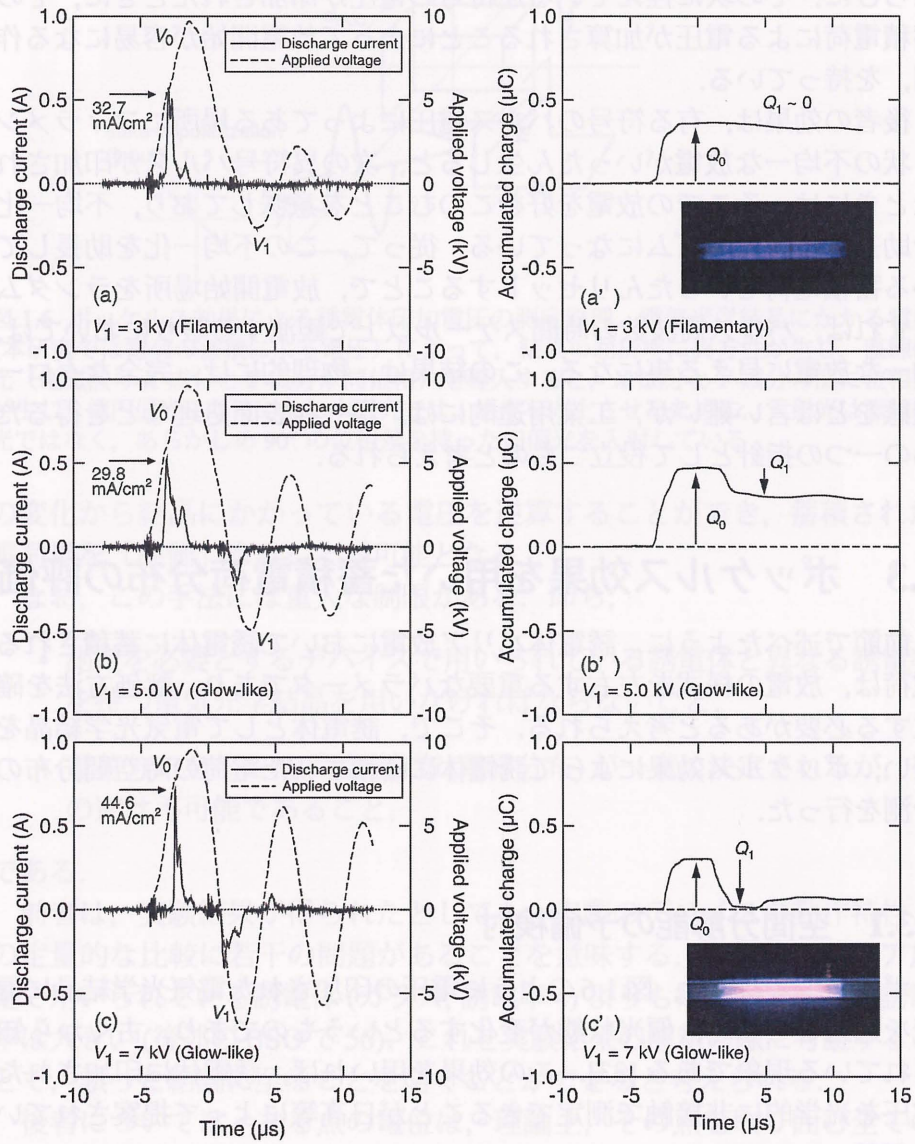


図 1.5 蓄積電荷の V_1 依存性

1.3. ポッケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

方法があることが明らかになった。

誘電体バリア放電における電荷の蓄積という現象は、その蓄積によってギャップ間電圧を減少させ、アーク放電に移行する前に放電を消す作用、ならびに、その次に控えている逆符号の電圧が印加されたときに、その蓄積電荷による電圧が加算されることによって放電開始が容易になる作用、を持っている。

後者の効果は、有る符号のパルス電圧によってある場所にフィラメント状の不均一な放電がいったん生じると、次の異符号パルスが印加されたときには、そこで放電を好むこのむことを意味しており、不均一化を助長するメカニズムになっている。従って、この不均一化を助長している蓄積電荷をいったんリセットすることで、放電開始場所をランダムにすれば、パルス周波数の時間スケール以上で観測する限りにおいては、均一な放電に見える事になる。この結果は、物理的には、完全なグロー状態をとはいないが、工業用途的には、均一な表面処理などを得るための一つの指針として役立つものと考えられる。

1.3 ポッケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

前節で述べたように、誘電体バリア放電において誘電体に蓄積される電荷は、放電の様式を左右する重要なパラメータであり、評価方法を確立する必要があると考えられる。そこで、誘電体として電気光学結晶を用い、ポッケルス効果によって誘電体に蓄積された電荷の時空間分布の計測を行った。

1.3.1 空間分解能の予備検討

ポッケルス効果は、図 1.6 のように電圧の印加された電気光学結晶に偏光を通過させると、偏光状態が変化するというものであり、古くから知られている現象である [33]。この効果を用いれば、誘電体に印加された電圧を光学的に非接触で測定できることが日高等によって提案されている [28]。

誘電体バリア放電において誘電体の代わりとして、この電気光学結晶を用いれば、電荷 Q の蓄積によって $Q = CV$ によって決まる電圧が印加されることになる。従って、既知の偏光を通過させれば、その偏光状態

1 研究成果

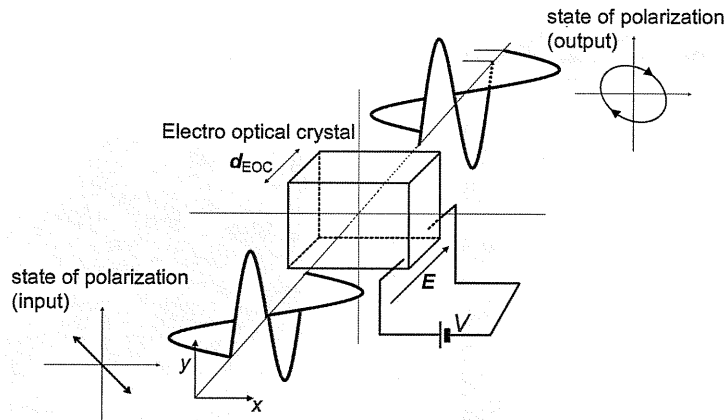


図 1.6 ポッケルス効果による誘電体印加電圧の測定原理. 電気光学結晶にかかる電圧 (本研究では電荷の蓄積による電圧) によって, 結晶の屈折率に異方性が生じ, 直線偏光 (電磁波の X 成分と Y 成分が同位相) を導入すると, X 成分と Y 成分の間に位相差が生じ, 楕円偏光になる. なお本研究では, 感度を向上させるために, 入射光は直線偏光ではなく, あらかじめ 90° の位相差を持った円偏光を入射している.

の変化から結晶にかかっている電圧を逆算することができ, 蓄積された電荷量を「評価」することが可能となる.

なお, この手法には重大な制限がある. 即ち,

- 測定を必要とするデバイスで用いられている誘電体と異なる誘電率を持つ電気光学結晶を用いなければならないこと,
- 電荷分布を与えれば電位分布 (電界分布) が一意に決定されるが, その逆は不可能であること,

である.

前者は, 実験結果が得られたとしても, 実際のデバイスの動作特性との定量的な比較に若干の問題があることを意味する. 一般的にバリア放電で用いられている誘電体 (ガラス; 誘電率 4) よりも電気光学結晶の誘電率は大きい (後述の BSO で 56). これを実験結果の解釈の際に考慮することで, 誤った結論に至ることを防ぐことができると考えられる.

後者については, ある点の電位は, 理論上, その点を取り囲む全ての空間に存在する電荷によって決定されるため, 何らかの仮定をおかなければ電位分布から電荷分布を求めることは原理的に不可能であることを意味する [34]. そこで, どのような条件下で電位分布と電荷分布を対応づけられるかを検討した. その方法として, ある厚みの誘電体に不均一に表面電荷が分布した際に, 誘電体の厚み方向の電位差 (計測される物理

1.3. ポツケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

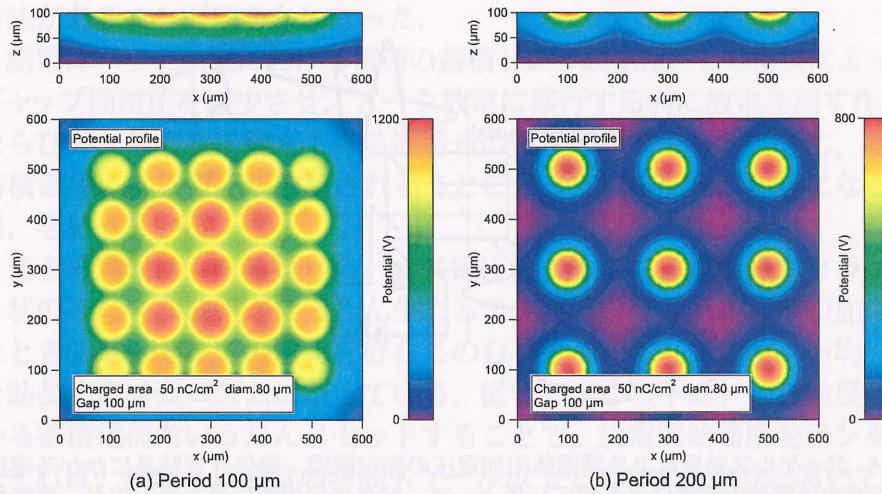


図 1.7 誘電体表面に不均一に分布した電荷による厚み方向の電圧の分布 (1). 比較的薄い厚み $100\ \mu\text{m}$ の BSO 結晶表面上に、周期的な直径 $80\ \mu\text{m}$ の電荷蓄積 ($50\ \text{nC}/\text{cm}^2$) が生じた場合の電位分布. (a) 周期 $100\ \mu\text{m}$, (b) 周期 $200\ \mu\text{m}$.

量に対応する)がいかなる分布となって観測されるのかを計算によって予測した.

計算においては誘電体の誘電率を仮定する必要があるが、その値として、本研究で用いた電気光学結晶である $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ (略称: BSO) の誘電率 56 を用いた. 蓄積される表面電荷密度については、後述の簡便な電流波形の積分値から求めた蓄積電荷密度がおおよそ $40\sim 80\ \text{nC}/\text{cm}^2$ であったことから $50\ \text{nC}/\text{cm}^2$ とした. また、誘電体の厚みと表面電荷分布の空間的な周波数の関係が正確な測定の是非に関わるため、誘電体厚みとして $100\ \mu\text{m}$ と $1000\ \mu\text{m}$ を、表面電荷分布の空間周波数 (空間周期) として $1/100\ \mu\text{m}$ と $1/200\ \mu\text{m}$ を用いて計算した.

結晶の厚みが薄い $100\ \mu\text{m}$ の場合における計算結果を図 1.7 に、比較的厚い $1000\ \mu\text{m}$ ($1\ \text{mm}$) の場合の計算結果を図 1.8 に示す.

この図より、誘電体の厚みが薄くなれば表面電荷密度の分布と電圧の分布はほぼ等しくなるが、厚い場合には注目した箇所の電荷以外からの寄与が多くなり、全体として平滑化されたような電位分布となることがわかる. この結果より、空間周波数が $1/100\ \mu\text{m}^{-1}$ 程度の蓄積電荷密度分布を計測結果に反映させるためには、厚み $100\ \mu\text{m}$ 程度の BSO 結晶を用いればよいことがわかる.

一方、厚み $1\ \text{mm}$ 程度になると、 $1/200\ \mu\text{m}^{-1}$ 程度の空間周波数であれば辛うじて追従しているが、 $1/100\ \mu\text{m}^{-1}$ になると計測結果には全く電荷

1 研究成果

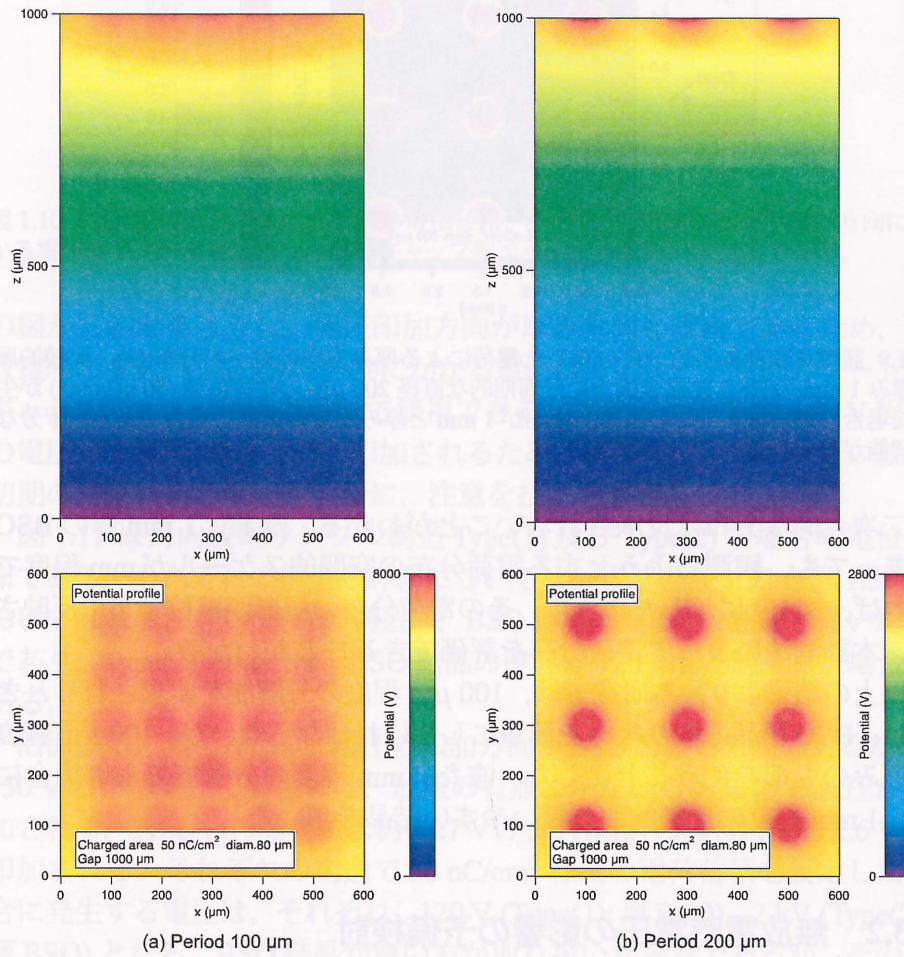


図 1.8 誘電体表面に不均一に分布した電荷による厚み方向の電圧の分布 (2). 比較的厚い厚み 1 mm の BSO 結晶表面上に、周期的な直径 80 μm の電荷蓄積 (50 nC/cm²) が生じた場合の電位分布. (a) 周期 100 μm , (b) 周期 200 μm .

1.3. ポッケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

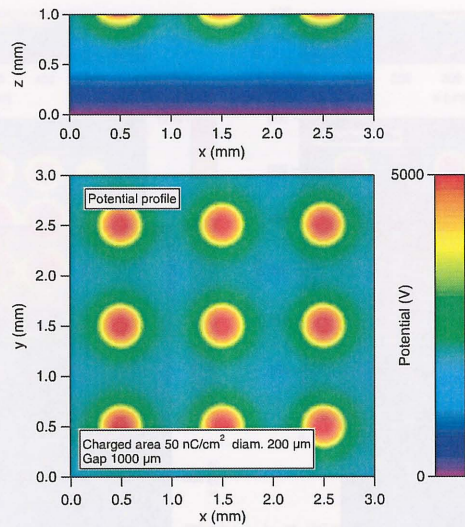


図 1.9 誘電体表面に不均一に分布した電荷による厚み方向の電圧の分布 (3). 比較的厚い厚み 1 mm の BSO 結晶表面上に、周期的な直径 $200 \mu\text{m}$ の電荷蓄積 (50 nC/cm^2) が生じた場合の電位分布. この図は、周期が 1 mm と厚み程度の周期の場合であり、十分な分解能が得られる.

の二次元的な分布は反映されないことがわかる. なお, 1 mm 厚の BSO であっても, 観測しようとする電荷分布の空間的スケールが mm 程度であれば, 図 1.9 に示したように, その電荷分布の概形が電位分布に反映され, 本計測法によって電荷分布を評価できることがわかる.

以上の結果より, 本研究では, $100 \mu\text{m}$ 程度の分解能を要求される場合には, BSO 結晶の取り扱いを慎重にしなければならないが, $100 \mu\text{m}$ 程度の厚みのものを使うことにした. また, mm 程度の分解能でよい場合には, 1 mm 程度の比較的取り扱いやすい結晶を用いた.

1.3.2 無放電時電圧の影響の予備検討

ポッケルス効果は, 電圧が電気光学結晶の厚み方向に電位差があれば電荷の蓄積の有無にかかわらず, 透過光に影響を及ぼす. 従って, 無放電時であっても印加電圧 (の分圧) の影響を受けることになる. その程度をあらかじめ見積もっておく必要がある.

図 1.10 は本研究で最初に測定に成功した沿面放電サンプル構造 (後述の図 1.16) に近い構造を仮定して計算した電位分布である. アノード (陰極) 側底面は接地され, カソード (陽極) 側底面は 750 V が印加されている. こ

1 研究成果

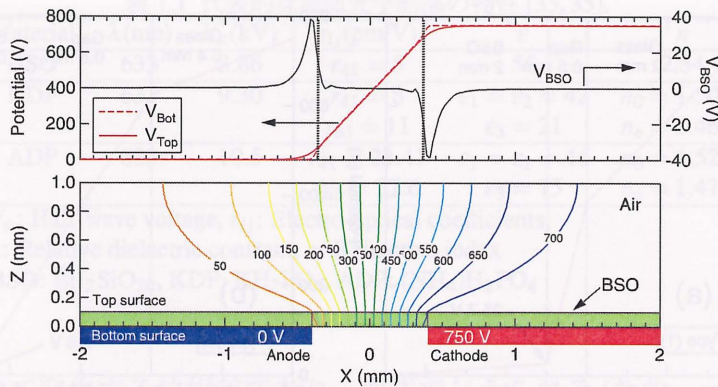


図 1.10 PDP 型放電セルの無放電時の電位分布. 無放電時の BSO 結晶の厚み方向にかかる電圧はアノード及びカソードのギャップ側エッジ付近を除いて無視できる.

の図からわかるように, 電圧印加方向が厚み方向と垂直であるため, 無放電時の BSO 結晶の厚み方向にかかる電圧は, アノード及びカソードのギャップ側エッジ付近を除いて無視できる. エッジ付近では, 40 V 程度の電圧が BSO の厚み方向に印加されるため, 蓄積電荷密度が小さい放電初期の実験結果を解釈する際に, 注意を払う必要がある.

図 1.11 は対向放電サンプル構造 Type(1) 及び Type(2) の場合の電位分布である. それぞれの構造の詳細については, 後述の図 1.32 と図 1.35 において触れるが, Type(1) の構造は, BSO 結晶の厚みが 2 mm と厚い場合であり, Type(2) の構造は, BSO 結晶の厚みが 120 μm と薄くした場合である.

沿面放電方式と異なり, 電圧の印加方向が BSO の厚み方向であるため, 750 V の印加電圧の場合には, 放電の有無にかかわらず BSO に電圧が印加される. Type(1) の場合には約 25.7 V が, Type(2) の場合には約 2.6 V が印加される. それぞれの構造で 50 nC/cm^2 程度の電荷蓄積を仮定した場合に発生する電圧は, それぞれ, 120 V (Type(1); 厚 BSO), 2 kV (Type(2); 薄 BSO) となる. BSO 結晶が厚い方が取り扱いが容易であるが, その反面, 蓄積される電荷によって発生する電圧が小さいために, 無放電時の電圧によるポッケルス効果が重畳していることを考慮しなければならないという難点がある. 薄い BSO の場合には, 3 桁以上小さい蓄積電荷でも十分な感度があると言えるが, サンプル構造を製作する際や, 放電中の BSO の破損などに注意を払う必要がある. なお, 後述のように, 本研究では両方を試みたが, 結果としては薄い BSO を用いた方が有効であった.

1.3. ポッケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

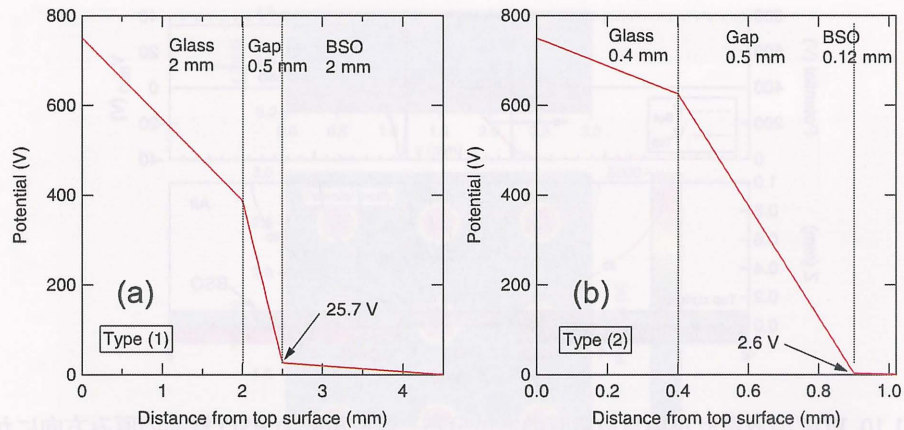


図 1.11 対向型放電セル (a)Type (1)(BSO 厚 2mm) と、(b)Type (2)(BSO 厚 120 μm) の無放電時の電位分布. 厚さ 2 mm の BSO 結晶の場合には、電荷蓄積の有無に寄らずその厚み方向に約 26 V の電圧が印加される. 一方、薄い 120 μm の BSO の場合には、印加電圧の影響はほぼ無視できる.

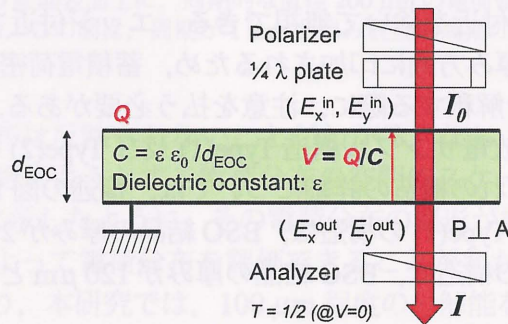


図 1.12 ポッケルス効果を用いて蓄積電荷量を評価するための光学系の概念図.

1.3.3 測定感度の予備検討

ポッケルス効果によって電圧が印加された電気光学結晶を通過する偏光に位相差が発生することは図 1.6 に示した通りであるが、実際の測定においては、位相差の発生によって生じる検出光強度の変化を測定している. 即ち、出射光の後段に入射偏光と直交した検光子を設置し、透過光の強度を測定する. 図 1.12 にその概念図を示す.

図 1.12 において、透過光強度は次式で与えられる [33],

$$I = I_0 \frac{1}{2} \sin^2 \left(\frac{\phi + \pi/2}{2} \right). \quad (1.1)$$

ここで、 ϕ は光の進行方向 (z 方向とする) と並行に結晶に印加された電圧

1 研究成果

表 1.1 代表的な電気光学結晶の物性 [33, 35].

Material	λ (nm)	V_π (kV)	r_{ij} (pm/V)	ε	n
BSO	633	3.86	$r_{41} = 5$	56	2.54
KDP	633	9.30	$r_{41} = 8$	$\varepsilon_1 = \varepsilon_2 = 42$	$n_0 = 1.5074$
			$r_{63} = 11$	$\varepsilon_3 = 21$	$n_e = 1.4669$
ADP	633	10.5	$r_{41} = 23.41$	$\varepsilon_1 = \varepsilon_2 = 46$	$n_0 = 1.5220$
			$r_{63} = 27.6$	$\varepsilon_3 = 15$	$n_e = 1.4773$

V_π : Half-wave voltage, r_{ij} : Electro-optical coefficients,

ε : Relative dielectric constant, n : Refractive index

BSO: $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$, KDP: KH_2PO_4 , ADP: $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$

V によって発生する位相差であり, 次式で与えられる(なお, $\pi/2$ の因子は, 後述の感度向上のために挿入された $\lambda/4$ 波長板によるオフセットである).

$$\phi = \frac{2\pi}{\lambda} n_0^3 r_{41} V \quad (1.2)$$

ここで, λ は光の波長, n_0 は無電界時の結晶の屈折率, r_{41} は結晶の電気光学係数である.

z 方向の電界が不均一な場合については, 光が $z=0$ から $z=d_{\text{EOC}}$ (結晶の厚み)に至るまでに受ける位相差は, z と $z+dz$ の間のポテンシャル差で受ける位相差 $d\phi$ の単純な積分となる.

$$\phi = \int_0^\phi d\phi = \frac{2\pi}{\lambda} n_0^3 r_{41} \int_0^V dV = \frac{2\pi}{\lambda} n_0^3 r_{41} V. \quad (1.3)$$

従って, z 方向の電界に不均一があっても, 最終的に結晶を通過した光が受ける位相差 ϕ は, 入射面と出射面の電位差 V だけで決まり, 途中を考慮する必要がないことがわかる.

透過光強度は, 以下のような規格化透過率(最大値が1となるようにしている)によって評価した.

$$T = 2 \times \frac{I}{I_0} \quad (1.4)$$

ポッケルス効果を用いた測定に用いられる代表的な電気光学結晶とその物性を表 1.1 に示す. V_π は $\phi = \pi$ となる電圧である. 本研究では, 電気光学結晶として $\text{Bi}_{12}\text{SiO}_{20}$ (略称: BSO)を用いた. この場合の透過光強度の特性を図 1.13 に示す.

まず, 表 1.1 の中で BSO を選択した理由を述べておく. BSO は電気光学結晶としては単純な構造をしており, 誘電率や屈折率の異方性がなく, 電気光学係数としては r_{41} だけを有している. また, 入射した偏光の位相

1.3. ポッケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

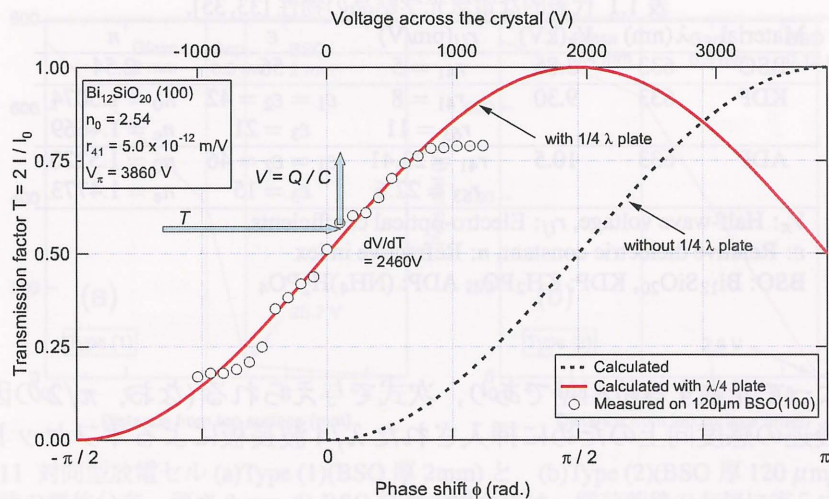


図 1.13 ポッケルス結晶と検光子を透過した光の強度の理論曲線(破線). 実線は, 偏光子を通してポッケルス結晶に入射する前に, 1/4 波長板を設置し, 偏光の 2 成分間に 1/4 波長のずれを生じさせた場合の透過光強度である.

が半波長ずれる電圧 V_π は他の結晶よりも小さい. 蓄積される電荷によって発生する電圧が小さい場合には, この V_π が小さい方が感度が高い. 逆に, 発生する電圧が V_π よりも大きくなる可能性がある, 同じ透過率になる電圧が二つあるために, 不確実性が生じるという問題はある. これについては, 蓄積電荷の空間分布はわからないが全蓄積電荷量がわかるリサーチ法によって計測した蓄積電荷量に対応する電圧が V_π を越えないことをあらかじめ計算等にて予測しておいた. $\text{KDP}(\text{KH}_2\text{PO}_4)$ は, 高い V_π であるため, 比較的感度が低く, かつ, 潮解性を有するため大気中での取り扱いに注意を有することから, 選択しなかった. $\text{ADP}((\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4)$ も, BSO と比べて高い V_π となっていることから, 低感度と判断し, 選択しなかった.

なお, 電圧が小さい場合には, 電圧変化量に対する透過率の変化が緩慢であるため(図 1.13 中の破線), 結晶への入射前に 1/4 波長板を通過させ, 直交する 2 つの成分があらかじめ 1/4 波長の位相ずれを持った偏光(円偏光)を入射するようにした. これにより, 実線のような特性となり, 電圧零付近での電圧変化に対する透過率変化が高感度化する.

実際の測定データの解析時には, 図 1.13 の右図のようなチャートを用いて光の透過率を結晶にかかる電圧 V に変換した. また前節で述べたように若干の問題は残るが, 測定箇所が存在する単位面積あたりの電荷 Q とこの BSO にかかる電圧 V の間に $Q = CV$ の関係が成り立っていると仮

1 研究成果

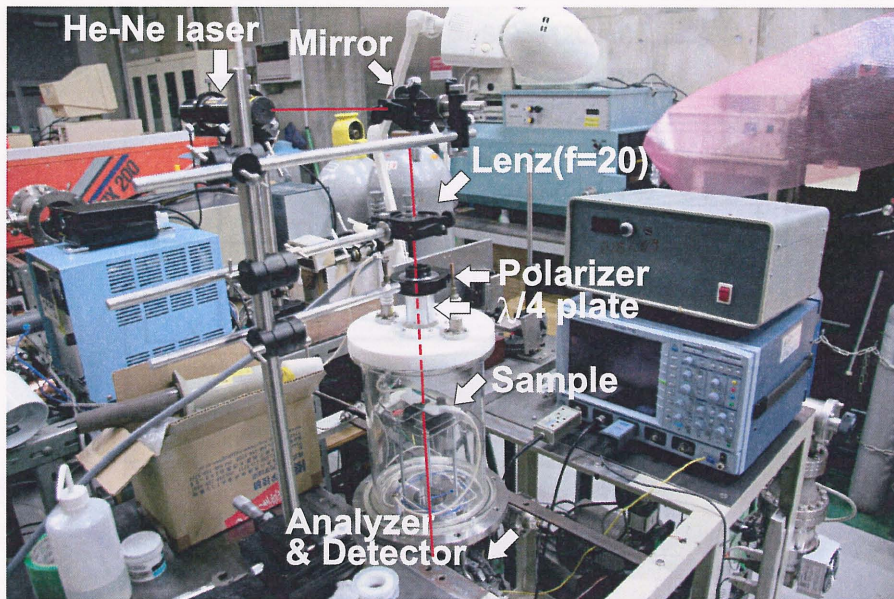


図 1.14 本研究で製作したポッケルス効果測定装置の外観図.

定して電荷密度を計算した. ここで, C は結晶の厚み方向の単位面積あたりの容量であり, 表 1.1 の BSO の誘電率 ϵ と厚み d とから, $C = \epsilon\epsilon_0/d$ によって求めた. 本研究では, 厚さ 2 mm と $120\text{ }\mu\text{m}$ の二つの BSO 結晶を用いており, それぞれの単位面積あたりの容量は, $2.48 \times 10^{-11}\text{ F/cm}^2$ (2 mm), $4.13 \times 10^{-10}\text{ F/cm}^2$ ($120\text{ }\mu\text{m}$) である.

1.3.4 ポッケルス効果を用いた蓄積電荷評価装置

実際に構築した実験装置の外観図を図 1.14 に, その概略図を図 1.15 に示す.

今回, 最初に用いた電気光学結晶は厚み $120\text{ }\mu\text{m}$ の BSO であるが, 実際の誘電体 (SiO_2 : 比誘電率 4) とは異なるため, 厳密性を欠く. しかし, 現在のところ本手法以外に有効な表面電荷評価法がないため, 電気光学結晶自身を誘電体として用いた.

印加電圧波形は, 周波数 5 kHz , $\text{duty } 50\%$ のユニポーラ矩形波である. 用いた電極の構造を図 1.16 に示す. 透明電極 ITO (Indium Tin Oxide) が蒸着された厚さ 4 mm のガラス基板を用い, 同図のようになるようにパターンニングした. 電極の極性は, 印加電圧と蓄積された電荷量によって時間的に変化するが, 便宜上, 接地電極をアノード, 高電圧 (正電圧) に接続

1.3. ポッケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

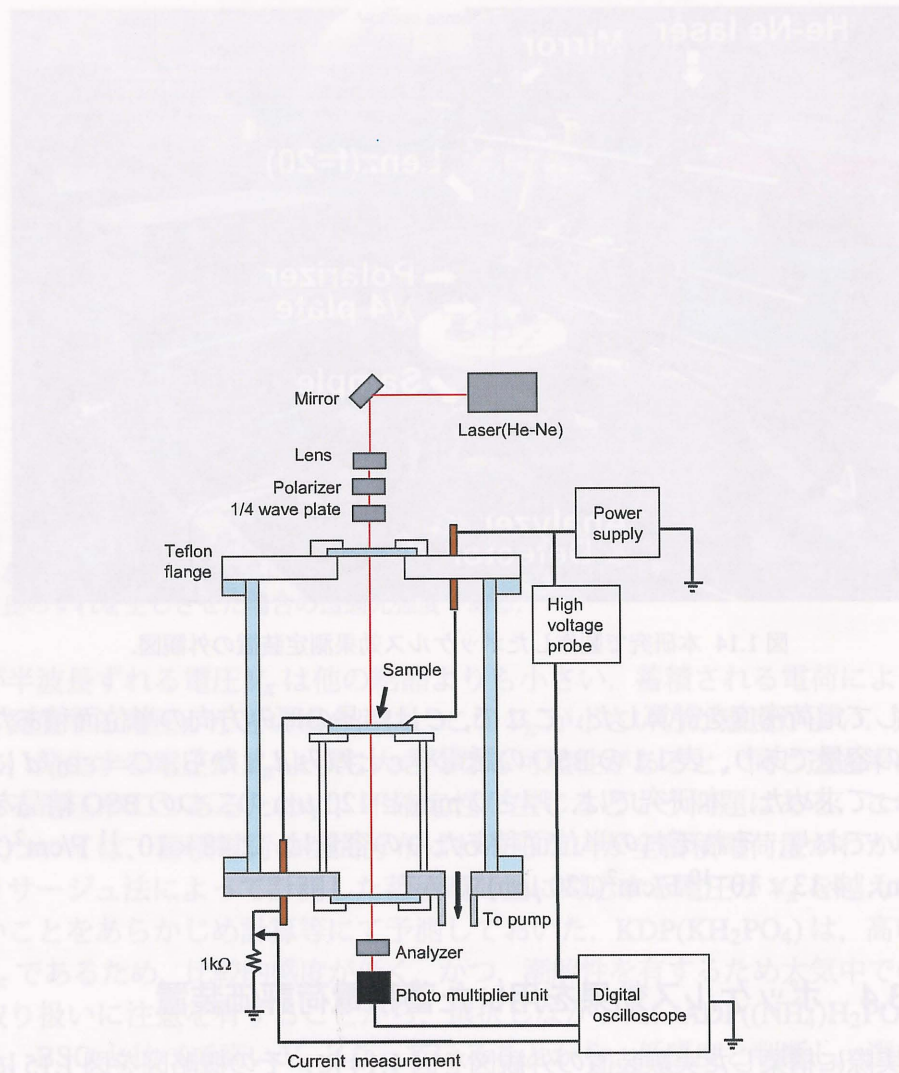


図 1.15 本研究で製作したポッケルス効果測定装置の概念図.

1 研究成果

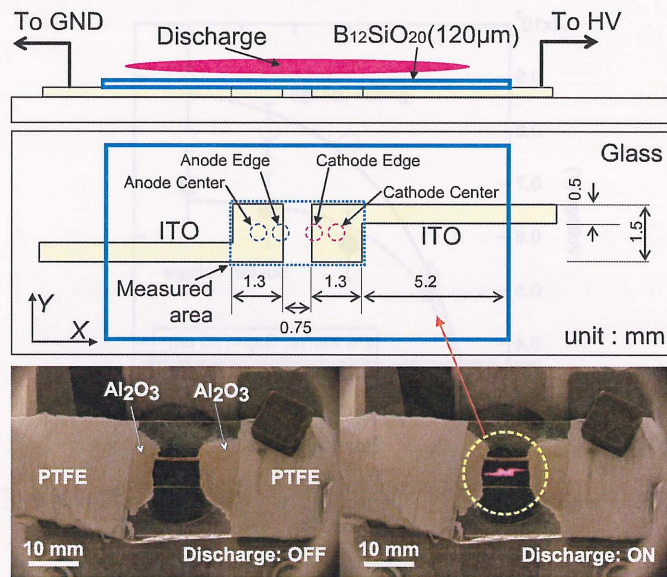


図 1.16 ポッケルス効果の測定のための沿面放電用電極構造.

された電極をカソードと呼ぶ事にする．後に必要となるアノード側およびカソード側の実効的な電極面積は，

$$S = 1.3 \times 1.5 + 0.5 \times 5.2 = 4.55 \text{ mm}^2 \quad (1.5)$$

である．この ITO 電極の上に BSO 結晶が接着されている．接着にはウレタン変性アクリレート系の光学接着剤(アーデル社製, オプトクレープ HR154)を用いた．可視光硬化が可能であり, 硬化後の屈折率は 1.519, 透過率は 91.4~91.6% (550~750 nm) であり, 十分計測可能な透過率を確保している．なお, 厳密には, この光学接着剤層が BSO に対して直列容量として働くことになるが, 十分に薄いと仮定し, 解析の際には光学接着剤層の存在は無視した(測定周波数領域の誘電率が未知であるが, アクリレート系であることから, 2~3 の誘電率であると推定され, 厚みがサブミクロン程度になっていれば, 十分無視できる容量であると考えられる)．

なお, 実際の PDP では放電開始・維持電圧の低減やスパッタ防止のために MgO 薄膜が誘電体上にコーティングされているが, 今回のサンプルには MgO がコーティングされていない．そのため, 一般的な PDP の放電開始電圧である 100~200 V と比べると, 放電開始・維持電圧は図 1.17 のように高くなっており, 本実験では, 圧力依存性を調べる範囲内で放電が可能ないように 750V とした．

1.3. ポツケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

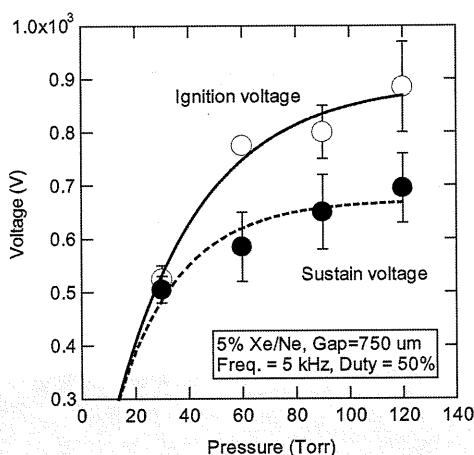


図 1.17 放電ガス=5%XeNe, ギャップ間隔=750 μm の見かけの放電開始電圧と放電維持電圧.

測光波長は, BSO の電気光学応答の良い He-Ne レーザーの 633 nm とした. 光学的な空間分解能に相当する集光後のレーザー光半径は 51 μm である. X, Y 方向の測定間隔は, それぞれ 20 μm , 200 μm とし, 図 1.16 中の破線で示された長方形内を測定した. 受光素子としては, 高速応答 (0.78 ns) の光電子増倍管モジュール (浜松ホトニクス製, H5783-01) を用いており, 十分な時間応答特性を持っている.

1.3.5 5%Xe/Ne 沿面放電の電荷蓄積特性

まず, 図 1.18 に放電の様子 of 圧力依存性を示す. 今回実験した範囲内では, 放電領域が電極上とギャップ間に集中しており, 電圧を印加するための線路部分でも放電が生じてしまっていることをのぞけば, PDP の動作特性とほぼ同様の放電が確認できる. 放電の進展と蓄積電荷の関係をわかりやすくするために, 印加電圧と変位電流を除去した放電電流の波形を求めておいた. 前後するが, その波形を図 1.22, 図 1.23, 及び図 1.24 の中に示した. なお, 放電電流の算出に必要な変位電流を求める方法としては, 放電が生じない圧力まで高圧化した条件で測定した電流が変位電流に等しいと仮定し, 計測によって求めた.

旧来は, 蓄積電荷量を評価するには, 同図の放電電流波形の積分値を用いて得られる値だけしかわからなかった. ちなみに, これらの電流波形から求められる各圧力における蓄積電荷密度は, 表 1.2 に示した通り

1 研究成果

図 1.18 放電ガス=5%XeNe, 印加電圧=750 V, ギャップ間隔=750 μm の放電の様子.

圧力 (Torr)	放電形状による (mC/cm ²)	放電形状による (mC/cm ²)
120	1.01 - 1.01	1.01 - 1.01
90	1.01 - 1.01	1.01 - 1.01
60	1.01 - 1.01	1.01 - 1.01
24	1.01 - 1.01	1.01 - 1.01

図 1.18 は、5%XeNe 放電ガスを用いた放電の様子を示している。図 1.18 (a) から (d) は、60 Torr から 240 Torr までの異なる圧力での放電の様子を示している。図 1.18 (a) は、60 Torr での放電の様子を示している。図 1.18 (b) は、90 Torr での放電の様子を示している。図 1.18 (c) は、120 Torr での放電の様子を示している。図 1.18 (d) は、240 Torr での放電の様子を示している。図 1.18 (a) から (d) までの放電の様子を比較すると、圧力が増えるにつれて放電の形状が変化していることがわかる。図 1.18 (a) のように、60 Torr では放電が比較的単純な形状をしているが、90 Torr (図 1.18 (b))、120 Torr (図 1.18 (c))、240 Torr (図 1.18 (d)) と圧力が増えるにつれて、放電の形状が複雑になり、先端が鋭くなる傾向がある。

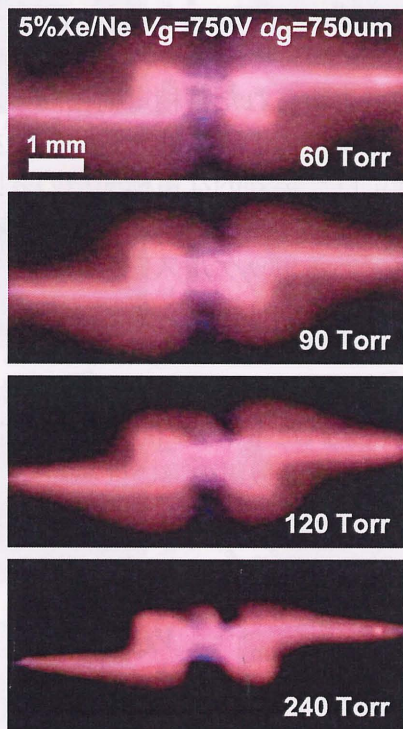


図 1.18 放電ガス=5%XeNe, 印加電圧=750 V, ギャップ間隔=750 μm の放電の様子.

1.3. ポッケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

表 1.2 電流の積分値から求めた蓄積電荷密度とポッケルス効果から求めた蓄積電荷密度 (最大値と最小値) の比較 (5% Xe/Ne ガスの場合).

圧力 (Torr)	60	90	120
電流積分法による (nC/cm ²)	76	54	43
ポッケルス法による (nC/cm ²)	+40.8/-42.9	+40.2/-40.1	+42.6/-43.1

である. これに対しポッケルス効果を用いた場合には, 図 1.19, 図 1.20, 図 1.21 に示すような蓄積電荷の空間分布, 並びにその動的挙動を明らかにすることができた. これにより得られた蓄積電荷密度の絶対値は, 表 1.2 に示した通り, 最大で約 40 nC/cm² となり, おおむね電流波形の積分値から得られる電荷密度と同じオーダーとなった.

しかし, 電流波形から求められた蓄積電荷密度とポッケルス効果により求められた蓄積電荷密度は, 正確には一致していない. 電流波形から電荷密度を算出する際には, 実効的な電極面積の変動の影響があり, また, 変位電流を含む電流波形から強引に放電電流を抽出している. 従って, より直接的な測定であるポッケルス効果によって得た電荷密度の方が, より信憑性が高いと考えられる.

ポッケルス効果によって得られる蓄積電荷密度は, BSO の厚み方向にかかる電圧 V_{BSO} から算出されたものであり, その値は約 80 V である. この電圧から, 誘電体で挟まれたギャップ間にかかる電圧 V_{Gap} を知る事が出来る. 即ち, 対向放電と沿面放電の違いはあるが, 図 1.1 及び図 1.2 の概念図を参考にすると, 以下の様になる.

$$V_{Gap} | \text{Phase 3: Termination} = V_{App} - 2V_{BSO} \sim 590 \text{ V}, \quad (1.6)$$

$$V_{Gap} | \text{Phase 4: Ignition} = V_{App} + 2V_{BSO} \sim 910 \text{ V}. \quad (1.7)$$

ここで, 印加電圧 V_{App} は 750 V である.

より詳細にギャップ間の電圧の挙動を調べるために, アノード側とカソード側の BSO 結晶上のポテンシャル差を用いてアノード・カソード間のギャップ間電圧の時間変化を求めた. ここで, 接地されたアノード電極上の BSO 結晶表面のポテンシャルは, 蓄積電荷による電圧のみで決まり, 外部印加電圧が加わるカソード電極上の BSO 結晶表面のポテンシャルは, 蓄積電荷と外部電圧の和であるとした. 図 1.22, 図 1.23, 及び図 1.24 にその計算結果を示す.

カソードに正電圧 (750 V) が印加される前の状態では, ギャップ間の電圧は, 誘電体に蓄積された電荷による電圧の差の分 (約 160 V) だけの電圧が印加されている. 外部電圧がカソードに印加され始めると, ギャップ間

1 研究成果

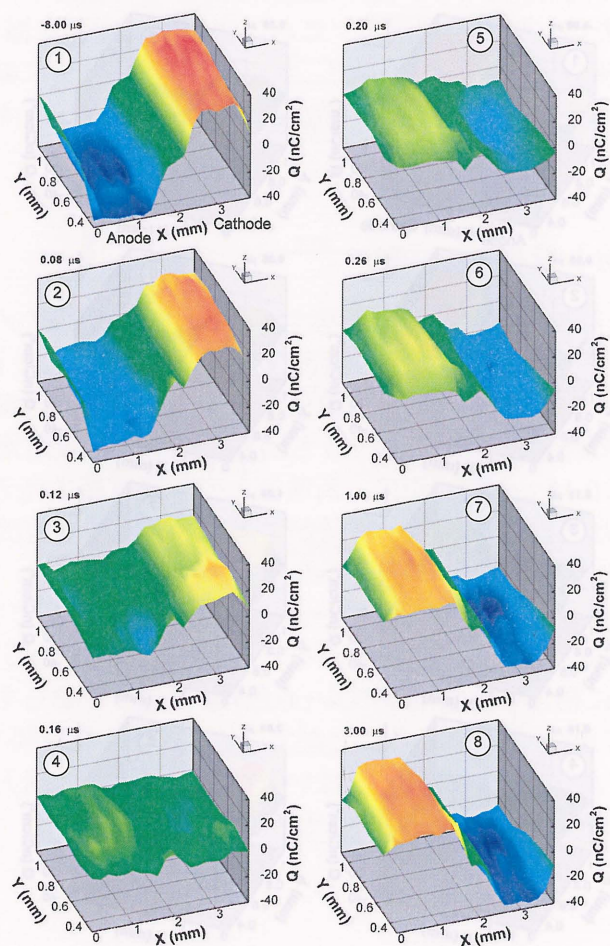


図 1.19 放電ガス=5%XeNe, 印加電圧=750 V, ギャップ間隔=750 μm , 圧力 60 Torr における誘電体表面上の蓄積電荷分布の時間発展.

1.3. ポツケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

表 1.2 電流の積分値から求めた蓄積電荷密度とポツケルス効果から求めた蓄積電荷密度 (最大値と最小値) の比較 (5% XeNe ガスの場合)

圧力 (Torr)	60	90	120
電流積分法による ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	76	54	43
ポツケルス法による ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	+40.8/-42.9	+40.2/-40.1	+42.6/-43.1

である、これに対してポツケルス効果を用いた蓄積電荷分布は、図 1.19、図 1.20、図 1.21 に示すように、蓄積電荷密度の分布が、電流積分法による蓄積電荷密度の分布と一致していることが確認された。また、蓄積電荷密度の分布が、より正確に電流積分法による蓄積電荷密度の分布と一致していることが確認された。

しかし、電流積分法による蓄積電荷密度の分布は、電流積分法による蓄積電荷密度の分布と一致していることが確認された。また、蓄積電荷密度の分布が、より正確に電流積分法による蓄積電荷密度の分布と一致していることが確認された。

より求められた蓄積電荷密度を算出した。また、蓄積電荷密度の分布が、より正確に電流積分法による蓄積電荷密度の分布と一致していることが確認された。

また、蓄積電荷密度の分布が、より正確に電流積分法による蓄積電荷密度の分布と一致していることが確認された。また、蓄積電荷密度の分布が、より正確に電流積分法による蓄積電荷密度の分布と一致していることが確認された。

ポツケルス効果を用いた蓄積電荷分布の時間発展を示す。図 1.20 に示すように、蓄積電荷密度の分布が、電流積分法による蓄積電荷密度の分布と一致していることが確認された。

この電圧から、蓄積電荷密度の分布が、より正確に電流積分法による蓄積電荷密度の分布と一致していることが確認された。また、蓄積電荷密度の分布が、より正確に電流積分法による蓄積電荷密度の分布と一致していることが確認された。

ここで、印加電圧が 750 V のとき、蓄積電荷密度の分布が、より正確に電流積分法による蓄積電荷密度の分布と一致していることが確認された。また、蓄積電荷密度の分布が、より正確に電流積分法による蓄積電荷密度の分布と一致していることが確認された。

より詳細に蓄積電荷密度の分布を評価するために、図 1.20 に示すように、蓄積電荷密度の分布が、電流積分法による蓄積電荷密度の分布と一致していることが確認された。

ソード側の蓄積電荷密度の分布が、より正確に電流積分法による蓄積電荷密度の分布と一致していることが確認された。また、蓄積電荷密度の分布が、より正確に電流積分法による蓄積電荷密度の分布と一致していることが確認された。

のギャップ間隔に蓄積電荷が蓄積される。また、蓄積電荷密度の分布が、より正確に電流積分法による蓄積電荷密度の分布と一致していることが確認された。

ここで、印加電圧が 750 V が印加される前の状態では、ギャップ間の電圧は、誘電体に蓄積された電荷による電圧の差の分 (約 160 V) だけの電圧が印加されている。外部電圧がカソードに印加され始めると、ギャップ間

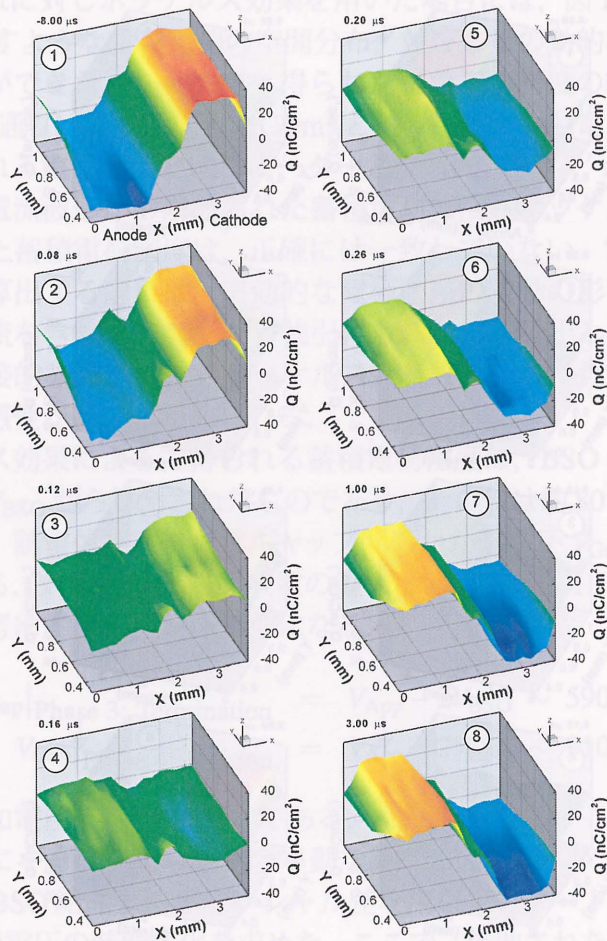


図 1.20 放電ガス=5%XeNe, 印加電圧=750 V, ギャップ間隔=750 μm , 圧力 90 Torr における誘電体表面上の蓄積電荷分布の時間発展.

1 研究成果

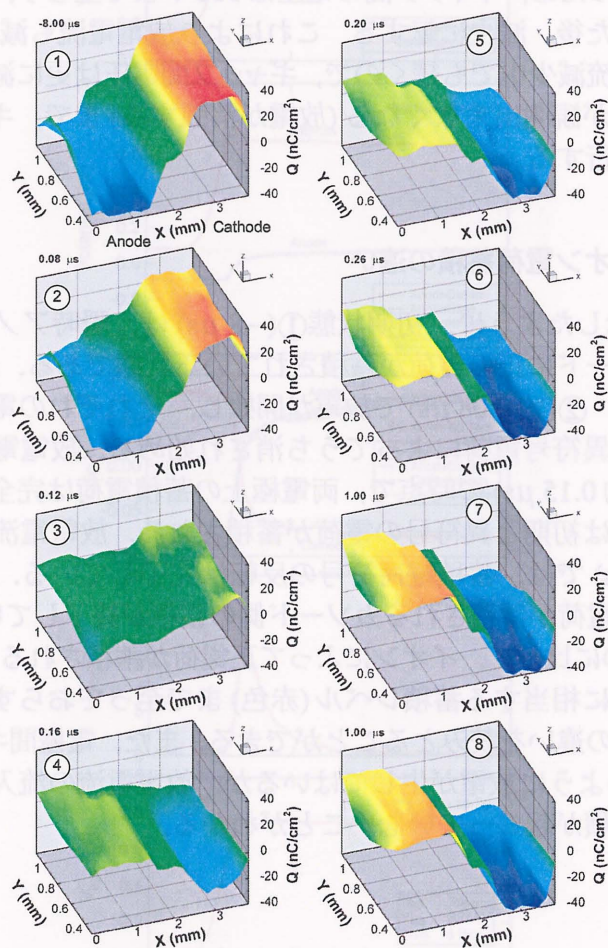


図 1.21 放電ガス=5%XeNe, 印加電圧=750 V, ギャップ間隔=750 μm , 圧力 120 Torr における誘電体表面上の蓄積電荷分布の時間発展.

1.3. ポッケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

の電圧が同時に増加するが、放電が開始するまでは、常にギャップ間の方が 160 V だけ大きな電圧が印加されている。上述の簡単な計算では、この 160 V が印加電圧の 750 V に加わった電圧 (910 V) が印加されて放電が開始することになっている。しかし、実際には、外部印加電圧が最大値の 750 V に達する前に放電が開始し、放電電流による V_{BSO} の符号反転が開始する。そのため、ギャップ間の電圧は 910 V まで至らず、約 800 V で極大をむかえた後、減少に転ずる。これにより放電電流も減少はするが、その蓄積は電流減少中でも続くので、ギャップ間電圧は更に減少し、最後には放電電流が観測出来なくなる (放電が消弧する) まで、ギャップ間電圧の減少が進行する。

電子蓄積とイオン電荷蓄積の違い

図 1.19 に示したように、初期状態① ($-8 \mu\text{s}$) は、瞬時アノードに負の電荷が、カソードに正の電荷が蓄積されている状態である。 $t=0$ での電圧印加後、② (約 $0.08 \mu\text{s}$) で放電が開始し、それぞれの電極の蓄積電荷が流れ込む異符号電荷によってうち消され始める。放電電流がピークを迎える③ (約 $0.15 \mu\text{s}$) の時点で、両電極上の蓄積電荷は完全にキャンセルされ、以降は初期と異符号の電荷が蓄積される。放電電流がほぼゼロになる④ ($1 \mu\text{s}$) では、蓄積電荷符号の反転は完了している。ただし、電子によって負電荷が蓄積されるカソード側の蓄積が終了している (青色になっている) のに比べて、イオンによって正電荷が蓄積されるアノードは、まだ初期状態に相当する蓄積レベル (赤色) まで至っておらず、電子とイオンの移動度の違いを読みとることができる。また、電極間ギャップ上では、図 1.18 のように放電が生じてはいるが、放電電流の流入が無いために、電荷の蓄積が起こっていないことがわかる。

圧力依存性

次に、圧力による差異を見るために、60 Torr と 120 Torr の場合の表面電荷密度の空間分布の時間発展に注目する。

圧力が高い 120 Torr の図 1.21 を見ると、60 Torr の場合と比較して、蓄積電荷がほぼゼロになる時刻が④の $0.16 \mu\text{s}$ から③の $0.12 \mu\text{s}$ へと短くなっており、電荷蓄積のスピードが速くなっていることがわかる。この違いは、放電電流ピークの半値幅の若干の減少として現れているが、表面電荷を実際に評価することでより明確に観測されている。また、蓄積

1 研究成果

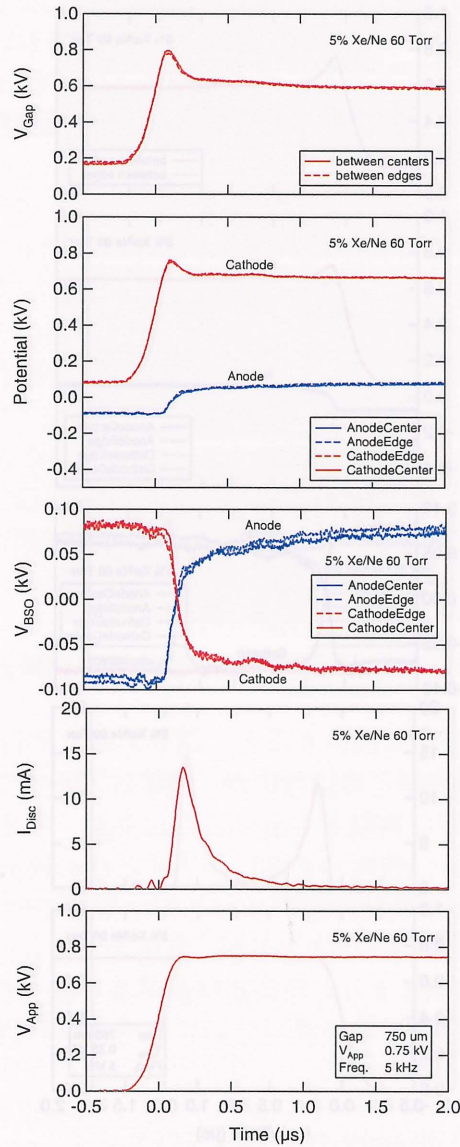
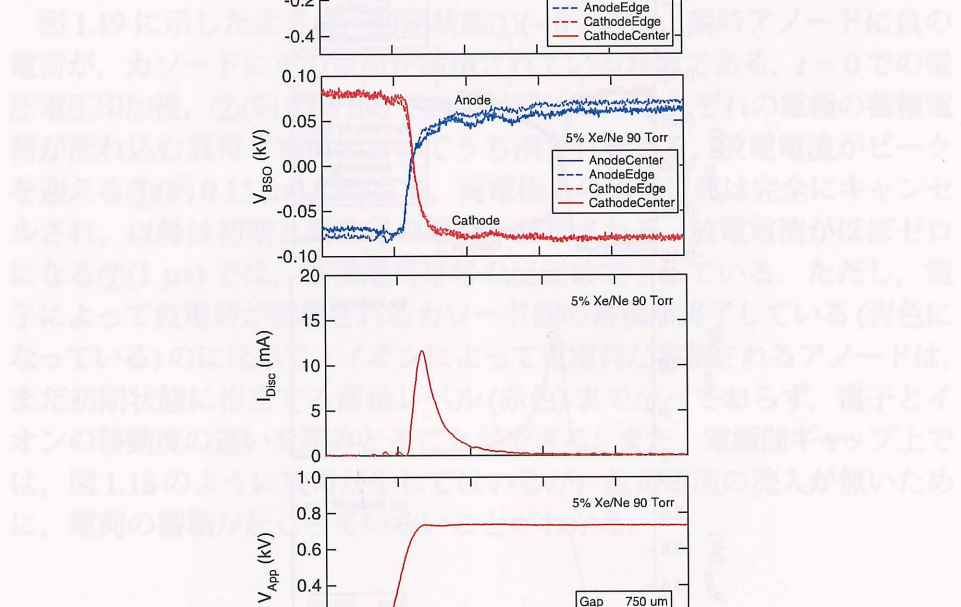


図 1.22 放電ガス=5%XeNe, 印加電圧=750 V, ギャップ間隔=750 μm, 圧力=60 Torr の電流電圧波形. アノード上(中央部と端部)とカソード(中央部と端部)上の BSO 結晶にかかる電圧 V_{BSO} と印加電圧を考慮した両電極上の電位の差から, 実際にギャップ間にかかっている電圧 V_{Gap} を算出した.

1.3. ポツケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

の電圧が同時に増加するが、放電が開始するまでは、常にギャップ間の方が160 Vだけ大きな電圧が印加されている。上述の簡単な計算では、この160 Vが印加電圧(90 V)に加わった電圧(160 V)が印加されて放電が開始することになる。実際には、印加電圧が最大値の750 Vに達する前に、電極間の電圧は90 Vまで低下し、約800 Vで極大をむかえた後、その蓄積は電流減少に伴って徐々に減少し、最終的には放電電流がほぼゼロになるまで、ギャップ間電圧の減少が進行する。

電子蓄積とイオン蓄積の両方がある。アノードに負の電荷が、カソードに正の電荷が蓄積される。この電荷の蓄積は、電圧印加後、電極間の電圧が減少する(約0.1 μs)を避ける(約0.1 μs)を避ける。これは、電極間の電圧が減少する(約0.1 μs)を避ける。これは、電極間の電圧が減少する(約0.1 μs)を避ける。



次に、圧力による蓄積電荷密度の空間分布の時間変遷に注目する。5% Xe/Ne 90 Torr の場合の表面電荷密度の空間分布の時間変遷に注目する。

図 1.23 放電ガス=5%XeNe, 印加電圧=750 V, ギャップ間隔=750 μm, 圧力=90 Torr の電流電圧波形. アノード上(中央部と端部)とカソード(中央部と端部)上の BSO 結晶にかかる電圧 V_{BSO} と印加電圧を考慮した両電極上の電位の差から、実際にギャップ間にかかっている電圧 V_{Gap} を算出した.

すなわち、放電電流ピークの半値幅の若干の減少として現れているが、表面電荷を実際に評価することでより明確に説明されている。また、蓄積

1 研究成果

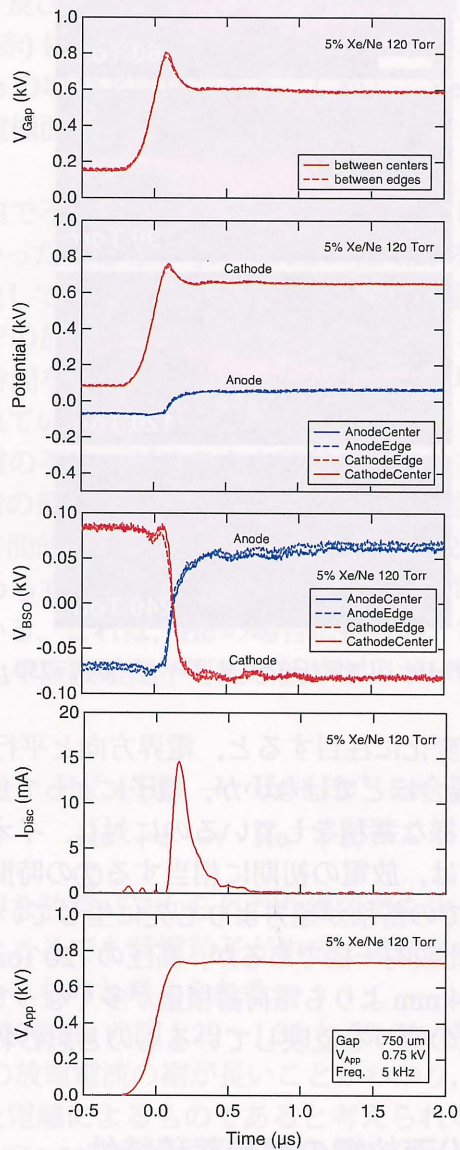


図 1.24 放電ガス=5%XeNe, 印加電圧=750 V, ギャップ間隔=750 μm , 圧力=120 Torr の電流電圧波形. アノード上(中央部と端部)とカソード(中央部と端部)上の BSO 結晶にかかる電圧 V_{BSO} と印加電圧を考慮した両電極上の電位の差から, 実際にギャップ間にかかっている電圧 V_{Gap} を算出した.

1.3. ポツケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

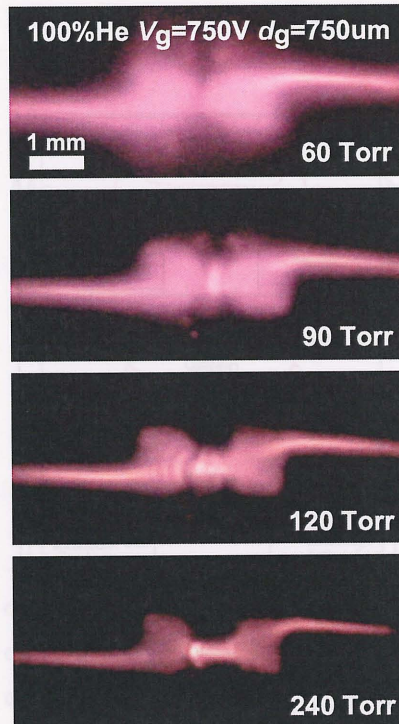


図 1.25 放電ガス=100%He, 印加電圧=750 V, ギャップ間隔=750 μm の放電の様子.

の差異の空間分布の変化に注目すると、電界方向と平行な X 方向については、後述の He の場合ほどではないが、電子によって負に帯電してゆくカソードが比較的一様な蓄積をしているのに対し、イオンによる蓄積がなされるアノードでは、放電の初期に相当する②の時間領域では、電極ギャップに近い領域での蓄積が遠方よりも先に生じていることがわかる。 Y 方向については、比較的一様であるが、高圧の 120 Torr については $Y=1$ mm 近傍の方が $Y=0.4$ mm よりも電荷蓄積量が多くなっており、図 1.18 における Y 方向の放電の偏りを反映しているものと思われる。

1.3.6 100%He 沿面放電の電荷蓄積特性

ガス種による違いを比較するために、放電特性の異なる He 放電の場合についても計測を行った。図 1.25 に放電の様子を示す。

図 1.26, 図 1.27, 及び図 1.28 が蓄積電荷分布の測定結果である。ガス種以外は 5% Xe/Ne の場合と同一条件とした。また、アノード (中央部と端

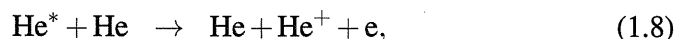
1 研究成果

部)とカソード(中央部と端部)の間のギャップ間電圧の算出も行い先の印加電圧と放電電流とあわせて, 図 1.29, 図 1.30, 及び図 1.31 に示した¹.

図 1.26, 図 1.27, 及び図 1.28 より電子が蓄積され負(青)に帯電する方が, イオンにより正(赤)に帯電するよりも時間的に早いことがわかり, 基本的な傾向は Xe/Ne の場合と同様である. しかし, Xe/Ne の場合と比べると, 電荷蓄積が電極面内で均一に生じていないという大きな差異が見られた.

電荷蓄積が面内で不均一に起こった原因については, ITO の導電率の面内均一性が悪かったこと等が考えられる. 図 1.25 を見ると, 60 Torr の放電の様子は拡散してわかりにくい, 120 Torr の場合には, 電極ギャップの一部分の間での放電発光強度が強いことがわかる. また, 測定に必要な十分な放電時間を維持出来なかった 240 Torr の場合には, その不均一性が明確に現れている.

なお, この放電の不均一がそのまま蓄積電荷の分布に反映されるのであれば, 電荷分布の最終プロファイルも不均一なままであるはずである. しかし, 放電の時間的アンサンブルを見ている図 1.25 に不均一性が見えているにもかかわらず, 十分に時間が経った後は, 電荷はほぼ均一に面内に蓄積されている. これは, He の場合に特有の, 電子を必要としないペニングイオン化や直接電離不可能な低エネルギー電子でも電離が生じる累積電離;



が電界の強い主要な放電パスから外れた場所でも生じており, 発光が観測されていないところでも荷電粒子が生成・輸送され, 電極上への電荷蓄積に寄与しているものと考えられる.

実際に, この 100% He の図 1.29~1.31 と 5% Xe/Ne の図 1.22~1.24 との比較から, He の放電電流の裾が長いことがわかり, これは, He の準安定原子が関与した電離によるものであると考えられる.

なお, 図 1.29, 図 1.30, 及び図 1.31 を見ると, 5% Xe/Ne の場合に, 印加電圧の立ち上がりとともに放電電流が流れ, 蓄積電荷の符号反転も開始しているのに対して, 100% He の場合には, 時間遅れが生じている. また, 印加電圧の立ち上がりとともに, 放電電流波形には大きな変動が見られないにも関わらず, V_{BSO} に若干の増加(アノード側)及び減少(カソー

¹ここで, 端部とは, ギャップ近傍の端部を意味する

1.3. ポッケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

ド側)が見られる。この V_{BSO} の変動は、事前検討の節で述べた無放電時の電圧によるポッケルス効果とも考えられる。しかし、その効果が大きいはずの電極端部(ギャップ側)とその効果が小さい電極中央部で、ほぼ同様の傾向が現れていることから、無放電時の電圧の影響ではないことがわかる。むしろ、主放電が起こる前に、大量の変位電流が流れたときとほぼ同時に、微弱な放電電流が1回だけ流れているのではないかと考えられる。

1.3.7 自己組織化フィラメント放電の蓄積電荷評価

本研究が開始される前に、誘電体バリア放電のフィラメントが自己組織化し、規則正しく並ぶことを報告した [36]。本研究の最終目標は、通常はランダムに発生・運動しているフィラメントが自己組織化して位置が固定されることに注目し、従来は困難であったフィラメント1本の電荷蓄積に関する知見を得ることであった。前節までに説明したように、本研究にて計画通り蓄積電荷の評価装置を構築し、実際に機能することを明らかにした。そこで本節では、自己組織化フィラメントに対して測定を試みた結果について報告する。

図 1.32 は用いた放電セルの構造であり、ガラス基板に BSO を埋め込み、その片面に ITO を蒸着したものを向かい合わせている。埋め込まれた BSO の厚みは 2 mm である。この方式によって得られた結果を図 1.33 に示す。放電ガスは Ar (400 Torr) とし、印加電圧の周波数は 1.3 kHz、電圧は 1 kV とした。自己組織化が不十分でフィラメント放電の移動が観測されたが、ある程度組織化した放電パターンが得られた。

この放電パターンの放電スポットに光軸をあわせて測定をした結果、図 1.34 に示すように、フィラメントの中心部分とフィラメントの間の暗い部分との間に偏光の透過率に差が生じ、各領域での蓄積電荷密度を評価することが可能になった。暗領域での透過率の変動から算出される電圧は約 30 V (蓄積電荷密度換算で 0.6 nC/cm^2) であり、理論的に予測した無放電時に印加される電圧とほぼ一致している。従って、実効的に蓄積された電荷密度を算出するには、この無放電時の電圧を除いた電圧で蓄積電荷を算出する必要がある。このようにして求めた蓄積電荷密度は、図 1.34(b) に示した通りであり、約 0.5 nC/cm^2 となった。

なお、この放電セル構造では、BSO 結晶の厚みが厚すぎたため、感度が悪かった。そこで、沿面放電で用いた $120 \mu\text{m}$ の BSO 結晶を用い、図

1 研究成果

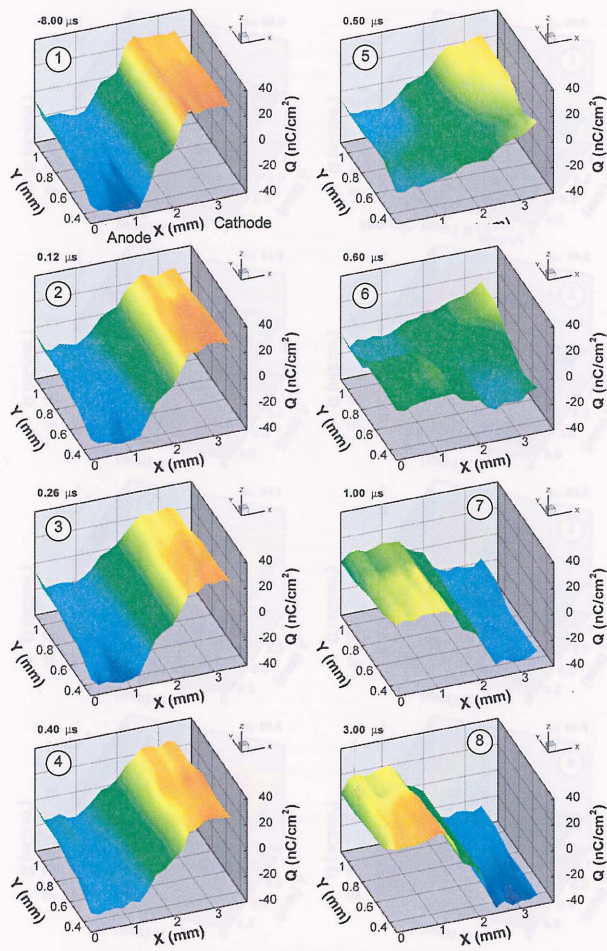


図 1.26 放電ガス=100%He, 印加電圧=750 V, ギャップ間隔=750 μm , 圧力 60 Torr における誘電体表面上の蓄積電荷分布の時間発展.

1.3. ポッケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

図1.27が見られる。この V_{app} の変動は、事前検討の際で述べた無放電時の電圧によるポッケルス効果とも考えられる。しかし、その効果が大きいはずの電極先端(ギャップ側)とその効果が小さい電極中央部で、ほぼ同様の傾向が現れていることから、無放電時の電圧の影響ではないことがわかる。むしろ、主放電が起こる前に、大量の変位電流が流れたときとほぼ同時に、微少な放電電流が1回だけ流れているのではないかと考えられる。

1.3.7 自己組織化

本研究が目的とする自己組織化は、規則正しく配列した電極が固定される。通常はランダムに形成される自己組織化は、位置が固定される。蓄積に関する研究にて計測結果を明らかにした。本研究が目的とする自己組織化を試みた結果、図1.32は用いた電極の自己組織化の様子を示す。放電セルの構造は、図1.33に示す。放電ガスは100%Heとし、印加電圧は1kVとした。この放電セルを用いて蓄積電荷を評価した結果、図1.34(a)に示した通りであり、約0.5 nC/cm²となった。

なお、この放電セル構造では、BSO結晶の厚みが厚すぎたため、感度が悪かった。そこで、表面放電で用いた120 μ mのBSO結晶を用い、図1.34(b)に示した通りであり、約0.5 nC/cm²となった。

この放電セルを用いて蓄積電荷を評価した結果、図1.34(a)に示した通りであり、約0.5 nC/cm²となった。

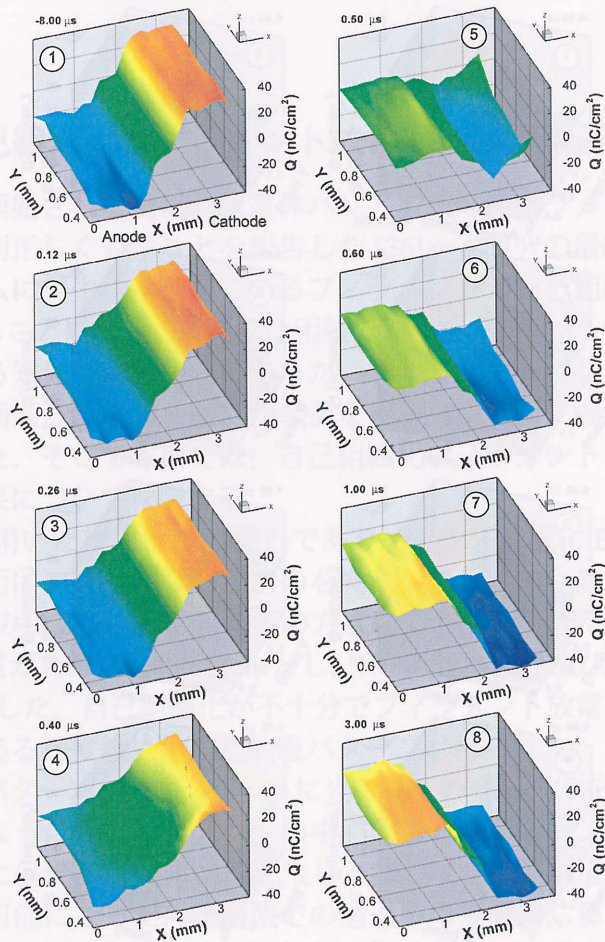


図 1.27 放電ガス=100%He, 印加電圧=750 V, ギャップ間隔=750 μ m, 圧力 90 Torr における誘電体表面上の蓄積電荷分布の時間発展。

1 研究成果

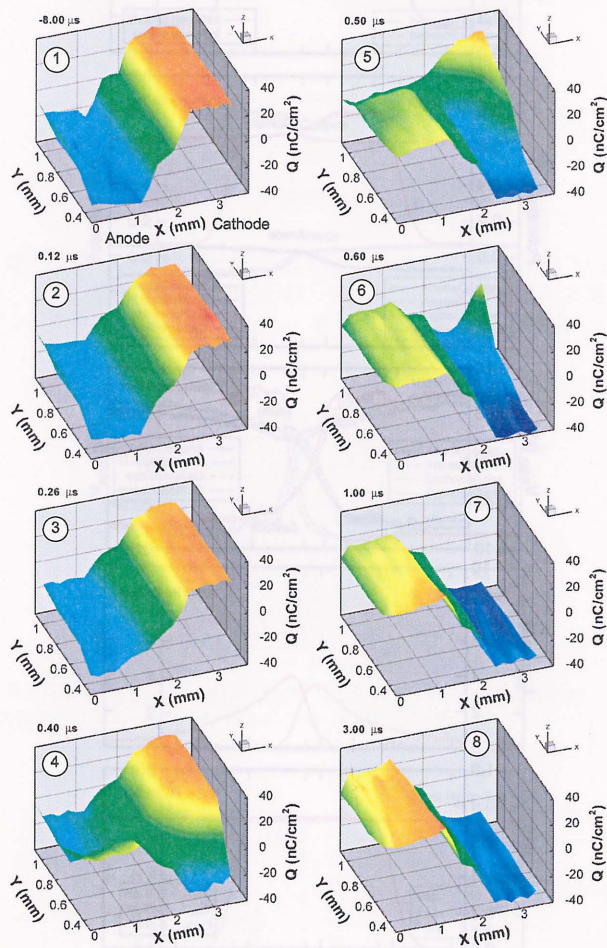


図 1.28 放電ガス=100%He, 印加電圧=750 V, ギャップ間隔=750 μm , 圧力 120 Torr における誘電体表面上の蓄積電荷分布の時間発展.

1.3. ポッケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

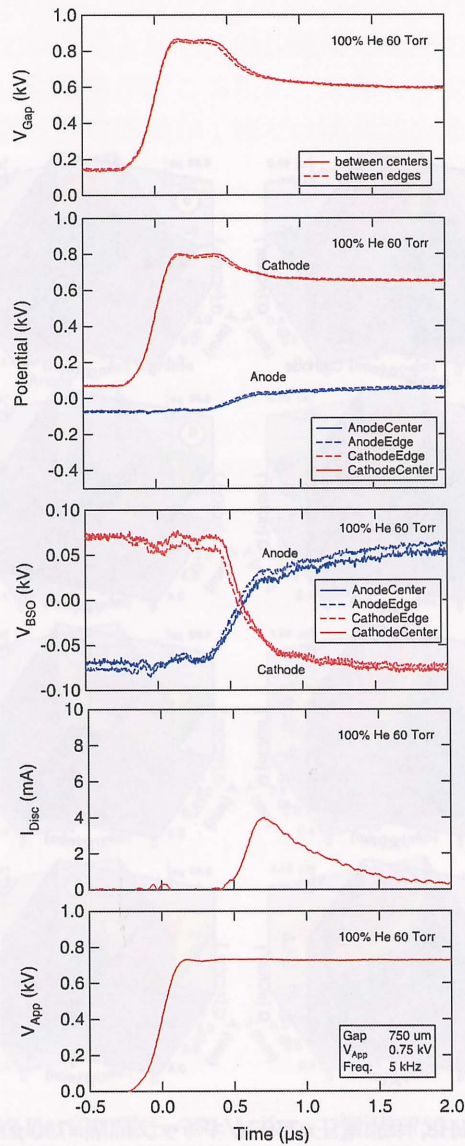


図 1.29 放電ガス=100%He, 印加電圧=750 V, ギャップ間隔=750 μm, 圧力=60 Torr の電流電圧波形. アノード上(中央部と端部)とカソード(中央部と端部)上のBSO結晶にかかる電圧 V_{BSO} と印加電圧を考慮した両電極上の電位の差から, 実際にギャップ間にかかっている電圧 V_{Gap} を算出した.

1 研究成果

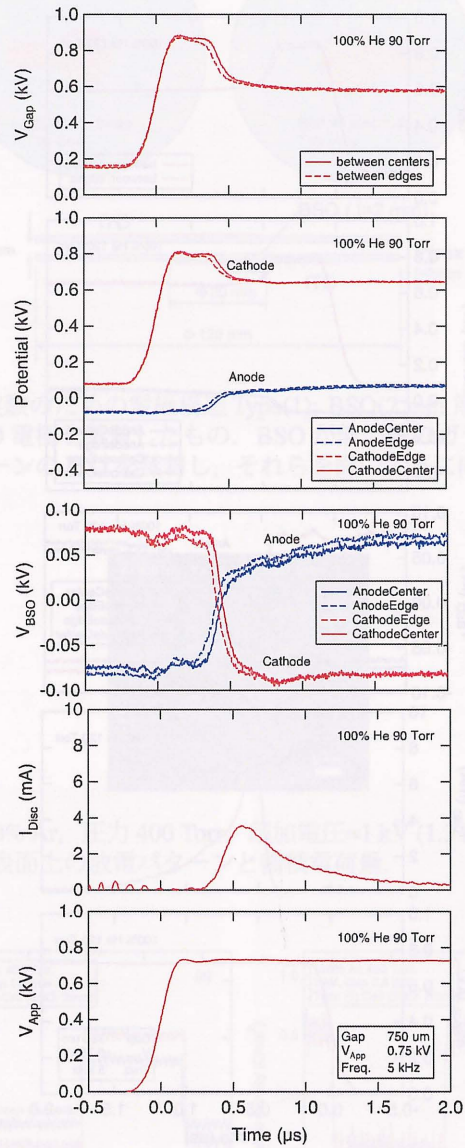


図 1.30 放電ガス=100%He, 印加電圧=750 V, ギャップ間隔=750 μm, 圧力=90 Torr の電流電圧波形. アノード上(中央部と端部)とカソード(中央部と端部)上の BSO 結晶にかかる電圧 V_{BSO} と印加電圧を考慮した両電極上の電位の差から, 実際にギャップ間にかかっている電圧 V_{Gap} を算出した.

1.3. ポッケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

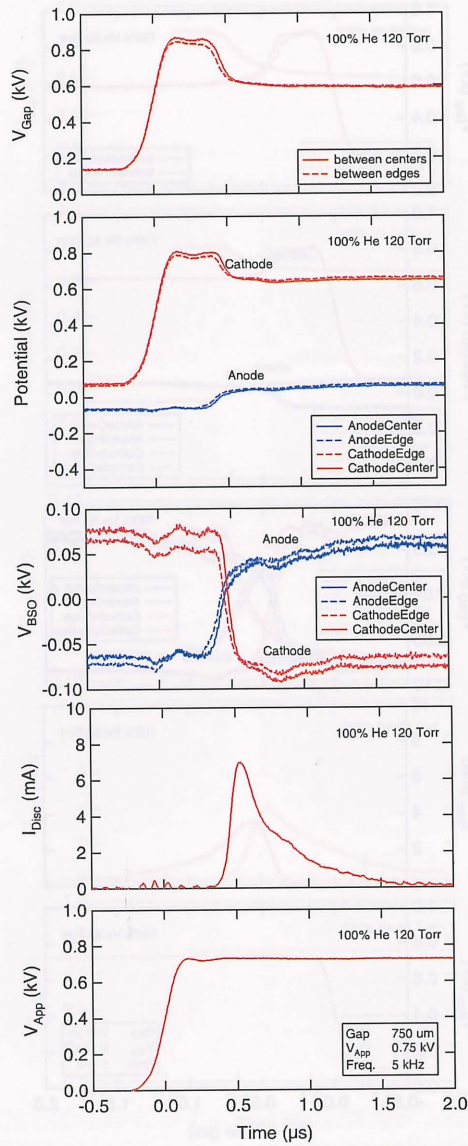


図 1.31 放電ガス=100%He, 印加電圧=750 V, ギャップ間隔=750 μm , 圧力=120 Torr の電流電圧波形. アノード上(中央部と端部)とカソード(中央部と端部)上の BSO 結晶にかかる電圧 V_{BSO} と印加電圧を考慮した両電極上の電位の差から, 実際にギャップ間にかかっている電圧 V_{Gap} を算出した.

1 研究成果

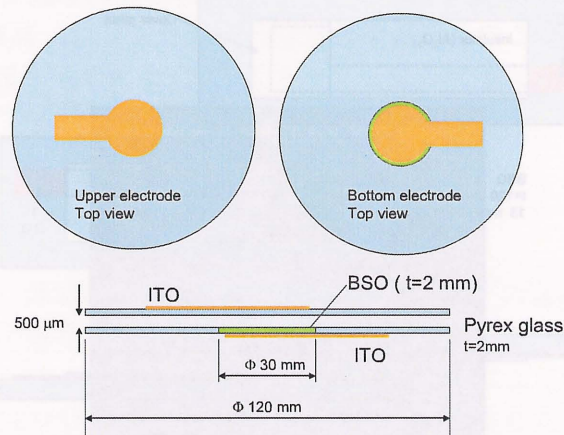


図 1.32 対向放電型実験のための電極構造 Type(1): BSO(2 mm 厚)を 2 mm 厚のガラス基板に埋め込み, ITO 電極を蒸着したもの. BSO が無い側のガラス基板には, BSO 有りの場合と同じパターンの ITO を蒸着し, それらを図のように向かい合わせた.

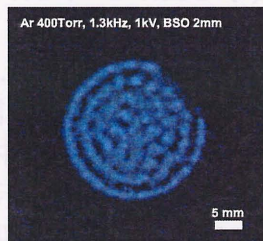


図 1.33 放電ガス=100% Ar, 圧力 400 Torr, 印加電圧=1 kV (1.3 kHz), ギャップ間隔=0.5 mm, における誘電体表面上の放電パターンと蓄積電荷量.

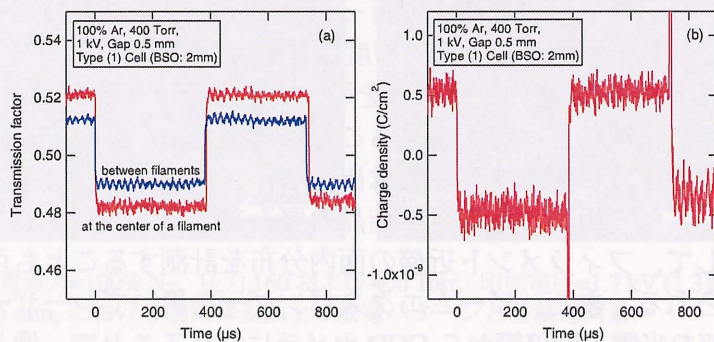


図 1.34 電極構造 Type(1) を用いて測定した 100% Ar の自己組織化フィラメント中心部とフィラメント間の偏光の透過率特性, 及びそこから導き出される電荷密度の時間依存性.

1.3. ポツケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

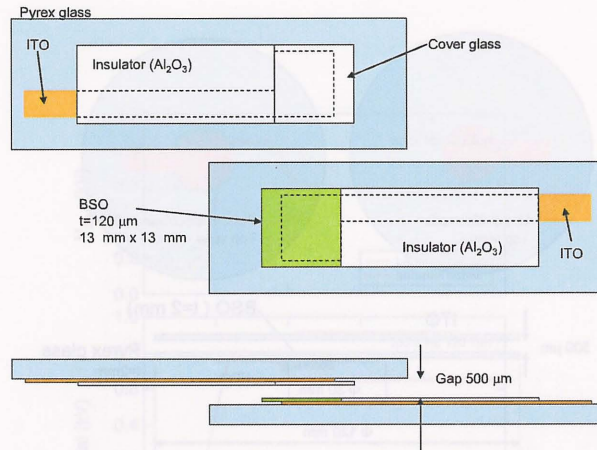


図 1.35 対向放電型実験のための電極構造 Type(2): ガラス基板に ITO 電極を蒸着し、その上に BSO(120 μm 厚)を光学接着剤で貼り付けた。対向する電極は、BSOの代わりにカバーガラス(厚み: 400 μm)を用いた。

1.35のような放電セル Type(2)を製作して、対向放電における自己組織化フィラメントの蓄積電荷評価を試みた。

Arを用いて同様の実験を行ったところ、図 1.36 に示したように、一様な放電となってしまった。そこで、各種ガスを試みた結果、 N_2 を用いることで自己組織化したフィラメントが測定条件内において得られることがわかった。図 1.37 にその際の放電の様子を示す。この場合には、放電フィラメントは完全に停止しており、自己組織化していた。その際のフィラメント 1 本当当たりの蓄積電荷密度は、 67 nC/cm^2 となった。

蓄積電荷量が Ar の場合と比べて大きいのは、蓄積される BSO の結晶の厚みが小さくなり、容量 C が大きくなったためである。一方、フィラメントが存在しない領域の測定を行ったところ、光透過率の変化は計測限界以下であり、換算される電荷密度は 0 nC/cm^2 となった。

今回の測定では、1 本のレーザーを用いて測定を行ったため、フィラメント 1 本の蓄積電荷密度を測定することは出来たが、その空間分布を沿面放電の時のように測定することは出来なかった。測定法自体の空間分解能に関しては、用いる電気光学結晶の厚みを十分に薄くすることで高分解能化して、フィラメント近傍の面内分布を計測することも可能であると考えられる。また、ビームエクspanderを用いてレーザー光を広げ、受光部を光電子増倍管から CCD カメラに替えることで、像として蓄積電荷の挙動を測定することも可能である。しかし、誘電体バリア放電の放電点滅の時間スケールが ns オーダーであるため、通常の CCD カメ

1 研究成果

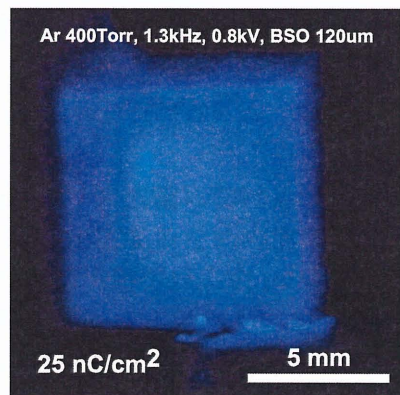


図 1.36 放電ガス=100% Ar, 圧力 800 Torr, 印加電圧=0.8 kV (1.3 kHz), ギャップ間隔=0.5 mm, における誘電体表面上の放電パターンと蓄積電荷量.

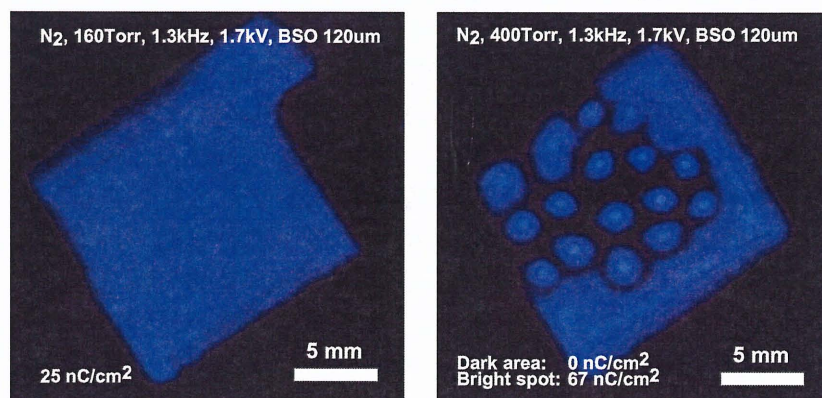


図 1.37 放電ガス=100% N₂, 圧力 160 および 400 Torr, 印加電圧=1.7 kV (1.3 kHz), ギャップ間隔=0.5 mm, における誘電体表面上の放電パターンと蓄積電荷量.

1.3. ポッケルス効果を用いた蓄積電荷分布の評価

ラの ms 程度のシャッター速度では、蓄積電荷の動的挙動を観測することは不可能である。このような実験を遂行するためには、高額ではあるが、ゲーテッドイメージインテンシファイア CCD カメラが必要となる。



2 まとめと展望

本研究では、誘電体バリア放電における誘電体上の蓄積電荷の挙動と放電形態との関係を明らかにするための実験を行った。リング部を持つ印加電圧を用いた放電実験では、第1のパルスによる放電の後に、第2の比較的小さいパルスによって第1パルス放電で生じた表面蓄積電荷を消滅させて初期化することにより、フィラメント状ではない様な放電様式が得られることを明らかにした。更に、このように放電様式を左右する蓄積電荷の評価方法として、ポッケルス効果を用いた蓄積電荷の評価装置を構築し、沿面放電の解析に適用することによって、世界で初めてPDP形式の沿面放電における蓄積電荷の二次元空間分布の動的挙動を観測することに成功した。PDP用のXe/Neガス放電では、二次元分布は比較的一様となり、本評価装置の特質を活かすことはできなかったが、Heを用いた場合には、電極面内において電荷蓄積が局所的に開始し、徐々にその蓄積領域を広げてゆく現象を観測することができた。最後に、この手法を当初目的であった、自己組織化フィラメントの放電形式に適用し、完全に動きが停止した自己組織化フィラメントの場合には、フィラメントが存在しない箇所での蓄積電荷量がゼロであり、フィラメントが存在する箇所では、1本あたり 67 nC/cm^2 という電荷密度が蓄積されていることを明らかにした。

なお、将来展望としては、本手法の空間分解能は用いる電気光学結晶の厚みによって決まっていることが予備検討によって明らかにされているため、より薄い結晶を用いることによって、細いフィラメント近傍の蓄積電荷の空間分布を測定することが可能になることを挙げたい。また、時間分解測定については、高速のゲート動作が可能なイメージインテンシファイア CCDカメラを併用することによって、フィラメント1本に関する蓄積電荷の二次元空間分布の動的挙動を明らかにすることが可能であるということを提案し、本研究計画終えるものとする。

参考文献

- [1] R. Prat, Y. J. Koh, Y. Babukutty, M. Kogoma, S. Okazaki, and M. Kodama: *Polymer* **41** (2000) 7355.
- [2] 澤田康志, 相馬誠: *静電気学会誌* **26** (2002) 258.
- [3] T. Nozaki, Y. Miyazaki, Y. Unno, and K. Okazaki: *J. Phys. D : Appl. Phys.* **34** (2001) 3383.
- [4] R. B. Gadri, J. R. Roth, T. C. Montie, K. K. Wintenberg, P. P. Tsai, D. J. Helfritsch, P. Feldman, D. M. Sherman, F. Karakaya, and Z. Chen: *Surf. Coat. Technol.* **131** (2000) 528.
- [5] M. Laroussi: *IEEE Trans. Plasma Sci.* **24** (1996) 1188.
- [6] S. Kanazawa, M. Kogoma, T. Moriwaki, and S. Okazaki: *J. Phys. D : Appl. Phys.* **21** (1988) 838.
- [7] S. Okazaki, M. Kogoma, M. Uehara, and Y. Kimura: *J. Phys. D: Appl. Phys.* **26** (1993) 889.
- [8] Y. Sawada, S. Ogawa, and M. Kogoma: *J. Phys. D : Appl. Phys.* **28** (1995) 1661.
- [9] U. Kogelschatz: *Pure Appl. Chem.* **62** (1990) 1667.
- [10] U. Kogelschatz, B. Eliasson, and W. Egli: *Pure Appl. Chem.* **71** (1999) 1819.
- [11] E. E. Kunhardt: *IEEE Trans. Plasma Sci.* **28** (2000) 189.
- [12] U. Kogelschatz and J. Salge: *Low Temperature Plasma Physics* (Wiley-VCH, Berlin, 2001) p. 331.

- [13] U. Kogelschatz: IEEE Trans. Plasma Sci. Technol. **30** (2002) 1400.
- [14] U. Kogelschatz: Plasma Chem. Plasma Process. **23** (2003) 1.
- [15] J. P. Boeuf: J. Phys. D: Appl. Phys. **36** (2003) R53.
- [16] R. A. Haas: Phys. Rev. A **8** (1973) 1017.
- [17] W. L. Nighan and W. J. Wiegand: Appl. Phys. Lett. **25** (1974) 633.
- [18] W. L. Nighan and W. J. Wiegand: Phys. Rev. A **10** (1974) 922.
- [19] C. H. Shon and J. K. Lee: Phys. Plasmas **8** (2001) 1070.
- [20] J. K. Lee, S. Dastgeer, C. H. Shon, M. S. Hur, H. C. Kim, and S. Cho: Jpn. J. Appl. Phys. **40** (2001) L528.
- [21] F. Massines, A. Rabehi, P. Decomps, R. B. Gadri, P. Segur, and C. Mayoux: J. Appl. Phys. **83** (1998) 2950.
- [22] N. Gherardi, G. Gouda, E. Gat, A. Ricard, and F. Massines: Plasma Sources Sci. Technol. **9** (2000) 340.
- [23] N. Gherardi and F. Massines: IEEE Trans. Plasma Sci. **29** (2001) 536.
- [24] F. Massines, P. Segur, N. Gherardi, C. Khamphan, and A. Ricard: Surf. Coat. Technol. **174-175** (2003) 8.
- [25] F. Tochikubo, T. Chiba, and T. Watanabe: Jpn. J. Appl. Phys. **38** (1999) 5244.
- [26] Z. Falkenstein and J. J. Coogan: J. Phys. D: Appl. Phys. **30** (1997) 817.
- [27] H. E. Wagner, R. Brandenburga, K. V. Kozlovb, A. Sonnenfeldc, P. Michela, and J. F. Behnkea: Vacuum **71** (2003) 417.
- [28] K. Hidaka and H. Fujita: J. Appl. Phys. **53** (1982) 5999.
- [29] Y. Zhu, T. Takada, K. Sakai, and D. Tu: J. Phys. D : Appl. Phys **29** (1996) 2892.
- [30] K. Sugimoto, H. Takahashi, O. Shimomura, and T. Sakurai: J. Phys. D : Appl. Phys. **36** (2003) 2887.

- [31] D. C. Jeong, H. S. Bae, and K. W. Whang: *J. Appl. Phys.* **97** (2005) 013304.
- [32] D. Trunec, A. Brablec, and J. Buchta: *J. Phys. D : Appl. Phys.* **34** (2001) 1697.
- [33] S. Huard: *Polarization of Light* (John Wiley & Sons, New York, 1997).
- [34] S. Hamada and T. Takuma: *Trans. IEE Jpn.* **120-B** (2000) 69.
- [35] A. J. Iverson: Montana State University Master Course Thesis (2004).
- [36] T. Shirafuji, T. Kitagawa, T. Wakai, and K. Tachibana: *Appl. Phys. Lett.* **83** (2003) 2309.

発表論文抄録

1. S. N. Abolmasov, T. Shirafuji and K. Tachibana: “*Submillimeter dielectric barrier discharges at atmospheric pressure: edge effect*”, IEEE Trans. Plasma Science, **33**, 941–948 (2005).
2. T. Somekawa, T. Shirafuji, O. Sakai, K. Tachibana and K. Matsunaga: “*Effects of self-erasing discharges on the uniformity of the dielectric barrier discharge*”, J. Phys. D: Appl. Phys., **38**, 1910–1917 (2005).
3. S. N. Abolmasov, T. Shirafuji and K. Tachibana: “*Different discharge modes in 1-bar dielectric barrier discharges: edge, temperature and quantum effects*”, The 7th asia pacific conference on plasma science and technology (APCPST-7) and The 17th symposium on plasma science for materials (SPSM-17), Fukuoka, Japan, June 29-July 2, 2004, 01P-39, p.393 (2004).
4. S. N. Abolmasov, T. Shirafuji and K. Tachibana: “*Surface charge density measurement in dielectric barrier discharge with stabilized filaments: pockels technique*”, The 7th asia pacific conference on plasma science and technology (APCPST-7) and The 17th symposium on plasma science for materials (SPSM-17), Fukuoka, Japan, June 29-July 2, 2004, 01P-40, p.394 (2004).
5. S. N. Abolmasov, T. Shirafuji and K. Tachibana: “*Pattern formation in unipolar-pulsed dielectric barrier discharges*”, The 22nd symposium on plasma processing (SPP-22), Nagoya, Japan, January 26-28, 2005, P2-34, pp.285–286 (2005).
6. S. N. Abolmasov, T. Shirafuji and K. Tachibana: “*Experimental study of pattern formation in unipolar-pulsed dielectric barrier discharges*”, The 17th international symposium on plasma chemistry (ISPC-17), Toronto, Canada, August 7-12, 2005, G4, 6 pages in CDROM (2005).

7. R. Abo, S. N. Abolmasov, T. Shirafuji and K. Tachibana: “*Spatio-temporal surface charge measurement in two types of dielectric barrier discharges using pockels effect*”, The 6th international conference on reactive plasmas (ICRP-6) and The 23rd symposium on plasma processing (SPP-23), Matsushima/Sendai, Japan, January 24-27, 2006, P-1B-43, pp.365–366 (2006).
8. R. Abo, S. N. Abolmasov, T. Shirafuji and K. Tachibana: “*Spatiotemporal surface charge measurement in two types of dielectric barrier discharges using pockels effect*”, Jpn. J. Appl. Phys. (2006); accepted for publication.