



# 微小重力下低温プラズマにおける基礎物理化学

東京工業大学 石川正道

## Physics and Chemistry of Low-temperature Plasma under Microgravity

Masamichi Ishikawa

Tokyo Institute of Technology 4259 Nagatsuta, Midori-ku, Yokohama 226-8502  
(ishikawa@iem.titech.ac.jp)

**Abstract:** A diagnostic study of hydrogen-methane plasma was applied to the DC excited glow discharge at the condition of diamond CVD synthesis under microgravity, using Japanese free-flyer (SFU, Space Flyer Unit) and drop shaft at Toki. The effect of microgravity was observed in the pattern formation of the positive column near anode. The plasma temperature was estimated based on two-line radiance ratio method. We also found the remarkable difference of the electron temperature of the positive column between microgravity and normal gravity. The pattern formation dynamics was discussed according to the change of electron density fluctuation and temperature.

**Key words;** Non-equilibrium plasma, Self-organization, Plasma diagnostics, Microgravity

### 1. はじめに

非平衡熱力学の創始者としてよく知られているイリヤ・プリゴジンは、微小重力下の物理化学研究に重要な示唆を与えた。非平衡系においては微視的なゆらぎは時空間発展し巨視的なスケールをもつパターンに自己組織的に成長する。これによって時間と共に空間スケールが増し、結果的に時間スケールも格段に長くなることから必然的に重力場や電場、磁場など弱い外部場に対しても敏感であるという直感を理論的に裏付けたものである [1], [2]。我々は、ダイヤモンド化学気相成長 (CVD) で一般的なメタン混合水素プラズマを中心に、放電現象に及ぼす微小重力の効果を落下塔、航空機、衛星を用いた微小重力実験により研究を進めてきた [3]-[7]。放電現象は、複数の素励起反応が複雑に組み合わさる典型的な非平衡現象であり、プリゴジンの非平衡理論が正しければ、微小重力の効果がまさしく顕著に現れると予想した。本論文は、このような観点から行われた微小重力実験の成果をもとに、水素低温プラズマを中心とした放電および発光特性に関して重力が作用する物理化学過程について見出された興味深い特性について以下に報告する。

### 2. 実験方法

プラズマ発生に用いた反応容器は、ダイヤモンドの気相成長が可能であることを前提として構成した。反応容器は、アルミ製の円筒状 (275 mm 直径 × 183.5 mm 高さ) とし、同心円状に陽極および陰極をそれぞれ 6 対配置してプラズマ観察実験およびダイヤモンドの気相成長実験を連続して行なえる構造とした。容器へは水素 - メタン混合ガスを供給し圧力および流量制御が可能である。放電方式は、ダイヤモンドの成長速度を大きくとれる直流放電とした。6 対の電極のうち一対は、分光器による発

光分光が可能な配置した。陽極はタンタル製であり、他電極間との放電をなくすために石英製の被いを設けた。陰極にはモリブデン製のメッシュを用いることによって水素ガスの流れを阻害せず、かつ電極の面積を大きくとることによって均一なプラズマグローの形成を可能とした。陰極 - 陽極間の距離は 10.25 mm であり、陽極は直径 4 mm、メッシュ陰極は陽極に対して 8×8 mm の面積とした。実験条件は、電力 100W (260mA, 385V) ~ 128W (294mA, 435V)、圧力は 20~50 Torr、メタン濃度 0.8 % および 1.0 % とした。

プラズマの放電構造は、CCD カメラによって観測した。取得された画像 (カラー) を 256 階調のグレイスケールに変換し、陽極 - 陰極間の中心を結ぶ座標軸に対して発光の強度分布としてプロットした。発光分光用測定装置は、水素 - メタン混合ガスの放電による水素原子、水素分子、C<sub>2</sub>、CH などの励起種を観測することを目的として 400~700 nm の波長範囲が測定できる仕様とした。発光の計測位置は、スリットにより陽極からの直接の光を避け、陽極の上方 1.5 mm の部分であり、水平方向に 4 mm、鉛直方向に 0.5 mm とした。ダイヤモンドは陽極に堆積することから、陽極に近いプラズマの発光特性はダイヤモンド成長に関与する化学種の追跡に重要である。微小重力実験は、落下塔、航空機および宇宙実験・観測フリーフライヤ (SFU, Space Flyer Unit) を用いて実施した。

### 3. プラズマ自己組織化に及ぼす微小重力効果

直流放電では、陰極から放出される電子が陽極に引き付けられる過程において気体分子を励起することによって発光の空間構造 (放電構造) が現れる。実際に微小重力実験で観測された画像を Fig. 1 に示した。陰極および陽極での強い発光に加えて、陽極上部に見られるドーム状の淡い発光が特徴的であ

る。ダイヤモンド合成条件でメタンを1%程度含む水素プラズマではしばしばドーム状のグローが現れ、内部に構造をもつ自己組織化パターンが形成される。

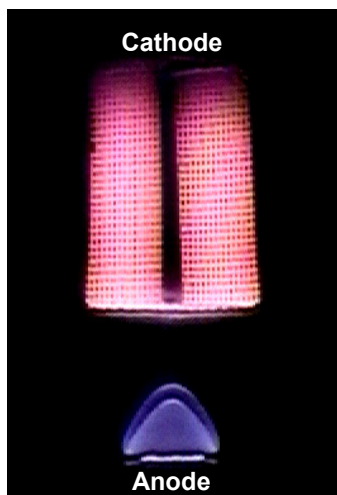


Fig. 1 Configuration of cathode and anode electrodes and discharge pattern under microgravity.

発光パターンの形成は次のように説明される。電子は陰極から放出され電場によって加速されることから陰極発光 (Cathode glow) が生じる。電子が水素分子の励起に十分なエネルギーにまで加速されて分子の励起断面積が極大を越えて小さくなり発光は止まり陰極暗部 (Cathode dark space) となる。陰極暗部では電子が高速のためイオン化が進み、イオン化層によって電場が下がるため電子の加速エネルギーが減少することによって再び励起断面積が増加し、負グロー (Negative glow) と呼ばれる発光領域を生じる。その後、電場の低下によって電子は急激にエネルギーを失い、ファラデー暗部 (Faraday dark space) が形成される。ファラデー暗部中では陽極に向かって次第に電場が増加し、陽光柱 (Positive column) を形成する。陽光柱は電子の運動エネルギーのゆらぎに起因するプラズマ不安定化を示し、条件に応じて静止あるいは動きのある縞状発光パターンを示すことが知られている。さらに、陽極近傍では電子が強く加速されるために再び励起断面積が減少し、陽極暗部 (Anode dark space) が生じ、その後は陽極発光を呈する。

次に微小重力下で見出された顕著なプラズマの自己組織化を示す。ドーム状の陽光柱に現われた内部構造について、微小重力実験の結果を Fig. 2 に示した。ドームは多重構造をもち、最外ドームと二番目のドームが顕著であった。また、詳細に分析した結果、これらのドームのピーク位置は陽極を原点として相似関係にあり、近接して外側にあるドーム座標に対してある定数を

乗じると次のドームの位置になるという関係があることが分かった。すなわちドームは互いに自己相似な関係にある入れ子構造をもつ。自己相似比は、0.73~0.79 の範囲にあり、メタン濃度が高く、電力が大きくなるほど増加する傾向にあることが分かった。地上実験では、最外ドームは形成されるものの、内部構造は明瞭ではなく、自己相似比も大きくばらつき値を求めることは困難であった。さらに興味深い結果は、微小重力実験で得られた最外ドームのサイズは圧力の増大と共に顕著に大きくなるのに対して、地上実験で得られた結果は、その依存性が小さかった。これらの結果から、ドームの形成が電子の運動エネルギー (すなわち電子温度) のゆらぎに起源があることを考慮すると、微小重力は電子温度に影響を与えることが示唆される。

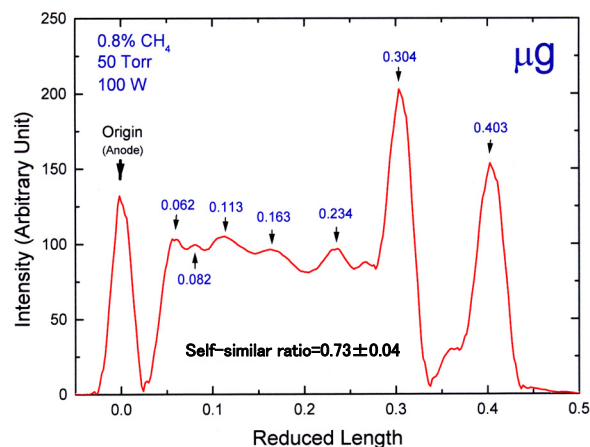


Fig. 2 Pattern formation in the positive column under microgravity.

#### 4. プラズマ発光分光

フリーフライヤ (SFU) を用いた微小重力実験によりメタンを含む水素ガスプラズマについて、ガス圧力、放電電力、メタン濃度およびガスの輸送条件を体系的に変化させ、プラズマグローの発光スペクトルに及ぼす微小重力の効果を調べた。実験条件の詳細は文献[8]および[9]を参照された。微小重力下でのスペクトルの例を Fig. 3 に示した。スペクトルから読み取られた微小重力下に特徴的な傾向は次のとおりである。1)  $H_{\alpha}$  線の強度が大きい、2)  $H_{\beta}$  線は強度が小さい、3) 水素分子に起因するスペクトル (520~630 nm) が複雑、4) 450 nm 以下の紫外域の発光が強い。特に  $H_{\alpha}$  線および  $H_{\beta}$  線には強い重力効果が見出された。

微小重力実験と地上実験で違いが大きかった  $H_{\alpha}$ 、 $H_{\beta}$  線を用いた2線比較法によりプラズマの電子温度を推定した[10], [11]。算出結果を Fig. 4 に示した。微小重力実験で得られた温度は地上実験と比べて一様に低く、その温度差は低圧側で大きく

1500K にも及び、圧力の上昇と共に温度差は減少する傾向にあった。重力対流の効果は、圧力が高い程顕著であるが、この結果は予想に反して低圧程重力の影響が強くなることを示している。

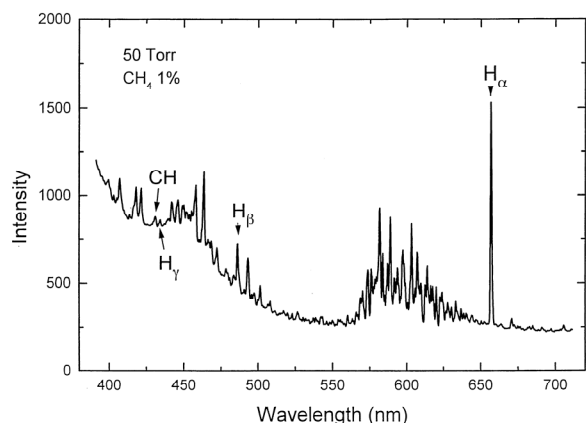


Fig. 3 Emission spectrum of hydrogen-methane (1%) plasma under microgravity.

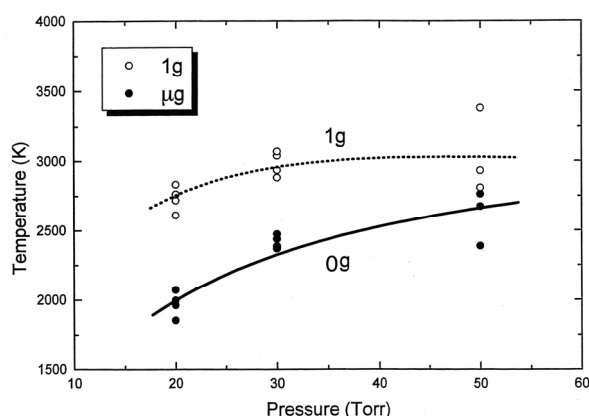


Fig. 4 Electron temperature of positive column near anode as a function of pressure.

## 5. 重力がプラズマ不安定性に影響を及ぼす効果

直流放電では陽光柱に自己組織的な放電構造が現れることが知られており、細長いガラス管中に生じる縞状発光 (Striation) が代表的な例である [12]。我々の実験では、陽極 - 陰極間の距離が短く、周囲に境界がないことから陽極形状を反映したドーム状の陽光柱が形成されたと考えられる。このような現象は、弱電離した非平衡プラズマに特徴的に現れ、プラズマの不安定化の一種とみなされている。非平衡プラズマでは、ガス温度は電子温度に比べて低いため、分子のイオン化反応は電子温度によって支配される。一方、プラズマ中では、イオンと電子の移動度が異なることによるプラズマ振動とよばれるゆらぎが絶えず生じており、次のようなプロセスが累積的にフィードバックすることにより巨視的なスケールに及ぶ空間電

荷のゆらぎが形成される。1) 微視的な電荷のゆらぎが生じると、陽極側に電子、陰極側に陽イオンが引き付けられてゆらぎの周辺で電場が遮蔽される、2) 電場の低下により電子の加速が弱まり電子温度が下がる、3) 電子温度が下がることにより、イオン化速度が減少し空間に発光分布のゆらぎが生じる。このような複数のプロセスをもつ化学反応系は非線形な自己組織化過程が働き、散逸構造と呼ぶ空間パターンが生じる。実験で観測された陽光柱内部の相似なドーム構造は、このような現象に起源があると考えられる [5]。

微小重力実験ではプラズマの電子温度が 700 ~ 1500 K も低下する結果が得られた。この電子温度が低下する現象は、陽光柱の中での空間電荷のゆらぎによって次のように説明できる。電子の運動速度は、自由な電子の場合 ~ 100 m/s にも及び、対流の速度と比べて桁違いに速いため対流は電子の運動に影響を及ぼすことはない。しかし、プラズマ中では電子はイオンとの両極性拡散によって相互に束縛し合いながら運動するために、拡散係数は著しく低下する [12]。実際に水素プラズマでは両極性拡散係数は、100 cm<sup>2</sup>/s 程度であり、実験条件において実測された対流流速が 26 cm<sup>2</sup>/s と拮抗する [3]。このような状況において熱対流は電子の拡散輸送と複合し、放電構造に伴う電子密度のゆらぎが平均化され、結果として電子温度のゆらぎが解消され、電子温度に変化をもたらしたといえる。

## 6. まとめ

低温プラズマにおける放電現象は、非平衡化学反応系の一種と考えられている。非平衡系における自己組織化が重力場に敏感であるというプリゴジンの予測は、本研究では、プラズマ電子温度のゆらぎの変化として確認されたと考えてよい。微小重力場は、プラズマの自己組織化を安定に維持する方向に作用すると結論することができる。プラズマプロセスでは、プラズマの発生とこれを安定に維持するために多くの努力を費やすことは周知の事実であろう。このような観点から、プラズマ過程が複雑な非線形現象であると考えれば、重力輸送を消去できることは単純化の方向にあることは間違いない。少なくともプラズマ不安定性の要因の解明には大いに役立つと考えている。我が国では、落下塔および航空機が簡易微小重力実験手段として整備されている。プラズマ現象は高速に応答するためこれら実験手段とプラズマ診断を組み合わせたモデリング研究の蓄積によって、プラズマプロセスに対する制御性の向上に貢献することになると期待したい。

謝辞

GDEF 実験の実施にあたっては佐藤洋一郎氏（当時、無機材質研究所）、宇宙航空研究開発機構（JAXA）、住友電気工業、三菱総合研究所、NECをはじめ、多くの方々と関係機関の協力をいただいた。ここに深く謝意を表する。

#### 引用文献

- [1] 石川正道：日本マイクログラビティ応用学会, **17**, 14 (2000).
- [2] 石川正道：先端化学シリーズ〈4〉理論・計算化学／クラスター／スペースケミストリー, 丸善 (2003).
- [3] 亀井信一、石川正道、渋谷喜和夫、村上敬司、太田進啓、藤森直治、犬塚直夫、佐藤洋一郎：日本マイクログラビティ応用学会誌, **9**, 206 (1992).
- [4] M. Ishikawa, S. Kamei, Y. Sato, N. Fujimori, N. Koshikawa, K. Murakami, and T. Suzuki: Adv. Space Res., **24**, 1219 (1999).
- [5] M. Ishikawa, S. Kamei, N. Koshikawa, N. Fujimori, Y. Sato: SPIE, **3792**, 283 (1999).
- [6] M. Ishikawa, S. Kamei, N. Koshikawa, N. Fujimori and Y. Sato: Space Forum, **6**, 203 (2000).
- [7] 亀井信一、和田謙一郎、石川正道、越川尚清、藤森直治、佐藤洋一郎：日本マイクログラビティ応用学会, **18**, 169 (2001).
- [8] 石川正道：プラズマ・核融合学会誌, **83**, (2007)印刷中.
- [9] 宇宙開発事業団：気相成長基礎実験装置（GDEF）実験成果報告, NASDA-TMR-970004 (1998).
- [10] R.H. Tourin: Spectroscopic gas temperature, Elsevier (1966).
- [11] K. Suzuki, A. Sawabe, T. Inuzuka: Jpn. J. Phys., **29**, 153 (1990).
- [12] Yu P. Raizer: Gas discharge physics, Springer-Verlag (1991).