

クライオプラズマ中のパターン形成

物質系専攻 47-096009 江波戸 宣仁

指導教員: 寺嶋 和夫 (教授)

キーワード: クライオプラズマ、マイクロプラズマ、自己組織化、発光分光測定

緒言

プラズマは固体、液体、気体に続く物質の第4の状態であり物質合成などのプロセスに用いられるプラズマを特にプロセスプラズマと呼ぶ。プロセスプラズマはそのガス温度により熱プラズマ及び低温プラズマに分類することができる。熱プラズマはガス温度数千K以上の温度を持ち、アーク溶接や核融合に用いられる。また、低温プラズマは数百から千 K 程度のガス温度を持ちエッチングやプラズマTVに用いられる。

一方、当研究室では熱プラズマ、低温プラズマに続く第3の温度領域のプラズマであるクライオプラズマの生成に成功している[1]。クライオプラズマとは室温から極低温までのガス温度を持つプラズマであり、ガス温度をパラメータとして連続的に制御できるという特徴がある。クライオプラズマの初期の研究において作製されたジェットタイプのプラズマにおいては温度の低下にともない発光種が変化することが室温から 5 K まで確認された[2]。

クライオプラズマではある温度領域においてプラズマ中に規則正しく並んだ放電が観測されている。このようなプラズマの自己組織化については例えば印加電圧に依存して発生することが知られている[3]。クライオプラズマでは電圧以外にガス温度に依存した自己組織化が見られ、三角格子状のパターンが形成されることが示されている(Fig. 1)[4-5]。自己組織化の様子は Fig.3 に示す Indium Tin Oxide (ITO)透明電極を用いることにより ITO に垂直な方向から観測できる。この様子は室温から 78 K までの温度領域で研究されてきた [4-5]。ガス温度が室温付近の領域ではプラズマは暗く一様であるが、温度の低下とともに先ずプラズマの色が明るく変化していく。これはヘリウム中に不純物として存在する窒素からの放射が温度低下とともに増加するためである。そしてある温度に達するとフィラメント放電の三角格子が形成される。さらに温度を下げてゆくと再び空間的に一様なプラズマに変化する。本研究ではクライオプラズマの持つ特性の理解を深めることを目的として、自己組織化によるパターン形成について今まで調べられていなかった 78 K 以下の温度について実験を行った。

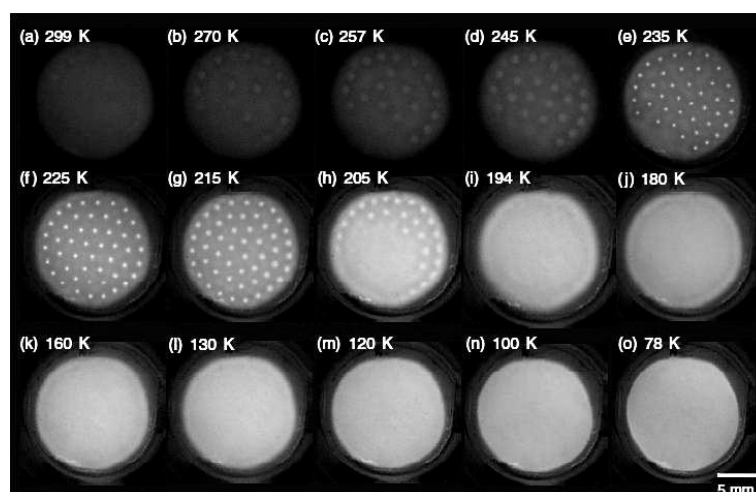


Fig.1 DBD-クライオプラズマのパターンの温度依存性 [4]

実験方法

ヘリウムは約 4.2 K まで気体として存在し、幅広い温度領域でプラズマを発生させることができるため、クライオプラズマを発生させるための雰囲気ガスとしてヘリウムを用いた。ガス温度はチャンバー下方に設置された冷凍機とヒーターを用いて制御した (Fig.2)。電極には ITO 薄膜を堆積させたガラスを用いた (Fig.3)。本実験では放電モードがアークに移行することを防ぐことができるため低温プラズマの生成によく用いられている、誘電体バリア放電 (Dielectric Barrier Discharge:DBD) 電極を採用した。放電の様子の観察は電極上部からデジタルカメラおよび Intensified Charge-Coupled Device (ICCD) カメラで観察し、撮影した。電極間距離は 100 μm 、電極半径は 5 mm でありこのように比表面積を大きくすることによりプラズマの放熱効率の向上が期待できる。

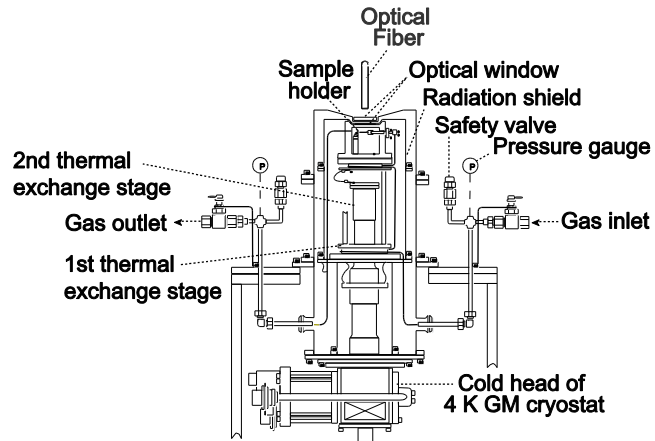


Fig.2 クライオチャンバーの装置図

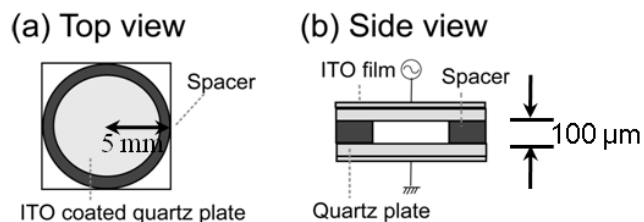


Fig.3 ITO を用いた DBD 電極

雰囲気ガスの圧力は室温において大気圧とし、粒子数密度を保ったまま温度を変化させた。その結果 25 K では 10^4 Pa まで下降したが、今回の実験の圧力はマイクロプラズマの適切な圧力である $10^4 \sim 10^7$ Pa に含まれている[6]。

電源は高電圧の交流電源を用いた。電圧は数 kV、周波数は 9-30 kHz とした。交流電源を用いるのはガス温度が低温ながらも高い電子密度の実現が期待できるためである。またこのときの活性種の変化を Optical Emission Spectroscopy (OES) により調べた。そのほか電流-電圧測定からプラズマの放電モードについても調べた。

結果・考察

本実験では、ガス温度をパラメータとして 78 K 以下のプラズマを生成し、電圧や周波数を変えずに温度のみを制御して変化を観察したところ、40K 付近を境にプラズマの色が大きく変化した。そのため、発光種の変化を観察するために、色の変化の前後、70K と 30K において OES 測定を行った。Fig.4(a)がガス温度 70 K、(b)が 30 K での発光種のグラフである。40 K 付近から窒素のピークが急激に低下し 30 K においてはヘリウムからの放射のみが観測された。この発光種の変化の温度依存性はジェットタイプのクライオプラズマの先行研究の結果[2]と一致している。このことから、プラズマの発光種は電極の構造に依存しないと考えられる。

またプラズマを発生させたまま温度を低下させ、窒素からの発光が見られなくなった後に、電圧一定の下でさらに温度を下げるとガス温度が 30 K 以下の領域でプラズマの自己組織化が観察された。また、温度一定の下で電圧の上昇に伴い、一様な放電が発生し、その状態から逆に電圧を低下させると一様なプラズマから格子点が暗点である三角格子状のプラズマ、そして帯状のプラズマへと変化した。その様子が Fig.5(a)-(f)である。パターンの発生は電極中心付近の一点に暗点が生成し、その周囲から成長していき

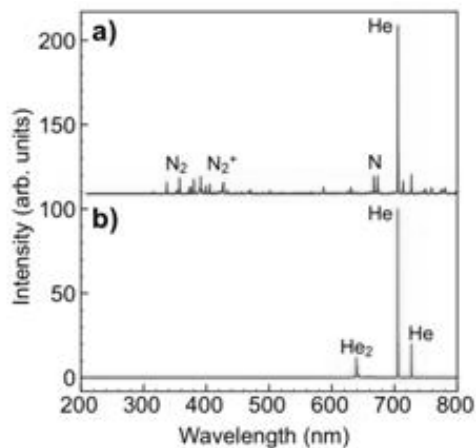


Fig.4 ガス温度 70 K と 30 K での OES

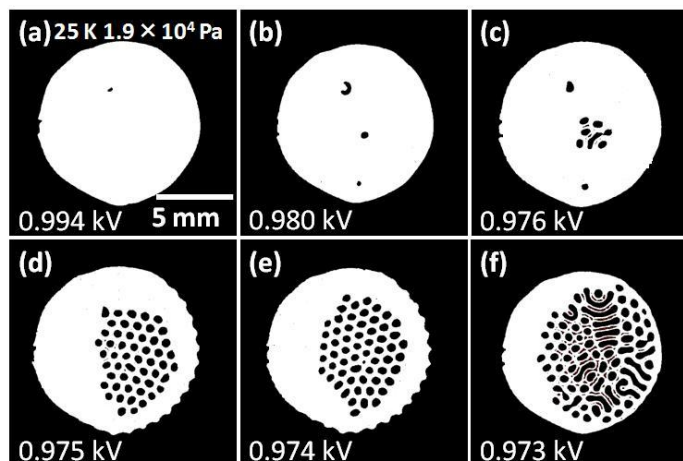


Fig.5 DBD-クライオプラズマの印加電圧依存性
温度 25 K、圧力 1.9×10^4 Pa、周波数 20 KHz、電圧 0.973-0.994 kV

徐々に三角格子を形成していった。さらに電圧を変化させると三角格子が不安定になり帯状のパターンへと変化した。一様なプラズマとパターン発生時の発光種の違いを調べるために OES による測定を行ったが発光種の差は見られず、ヘリウム原子およびヘリウムダイマー (He_2) の発光のみが観察された。このことから、パターンの発生にはヘリウムガスのみが関わっていると考えられる。

以上のように、先行研究と本研究においてともに雰囲気ガスの温度変化により自己組織化が観測されたがこれらには2つの異なる特徴がある。1つは従来のパターンにおいて格子点は輝点であり強い発光を示したが本研究で得られたパターンはそれとは異なり格子点ではプラズマが見られず格子点が暗点となっている。もう1点は電圧に対する振る舞いの違いがある。先行研究においては電圧を変化させると三角格子状の放電から一様な放電に変化した。今回のパターンにおいては印加電圧を低下させてゆくと、一様なプラズマ、暗点の三角格子、帯状のプラズマへと2回変化をする。これは従来のプラズマのパターンでは観測されていなかった振る舞いである。先行研究と本実験で得られたパターンにおいてプラズマの明暗と振る舞いが異なる理由としては、従来のプラズマでは発生に多種類のガスやガス中に含まれる水分が関わっているのに対し本研究においては得られたパターンはヘリウムのみがその発生に関わっておりプラズマ中での反応が異なるためだと考えられる。

結言

ガス温度 78 K 以下の温度領域についてクライオプラズマの自己組織化パターンの観察に新たに成功した。これはガス種の変化や印加電圧の依存性違いから先行研究におけるものとは発生の原因が異なると考えられる。

参考文献

- [1] D. Ishihara, Y. Noma, S. Stauss, M. Sai, T. Tomai, and K. Terashima: *Plasma Sources Sci. Technol.* **17** (2008) 035008
- [2] Y. Noma, J. H. Choi, T. Tomai, and K. Terashima: *Appl. Phys. Lett.* **93** (2008) 101503.
- [3] L. Stollenwerk, Sh. Amiranashvili, J. -P. Boeuf, and H. -G. Purwins: *Eur. Phys. J. D* **44**, (2007) 133
- [4] J. H. Choi, Y. Noma and K. Terashima: *Plasma Sources Sci. Technol.* **18** (2009) 025023
- [5] J. H. Choi, Y. Noma, M. Sano and K. Terashima: *J. Appl. Phys.* **43** (2010) 072001
- [6] 橘 邦英, 寺嶋 和夫, 白藤 立, 石井 彰三 : マイクロプラズマ 基礎と応用 3, オーム社.
- [7] S. Kondo and R. Asai: *Nature* **376** (1995) 765
- [8] L. Stollenwerk, Sh. Amiranashvili, J. -P. Boeuf, and H. -G. Purwins: *Phys. Rev. Lett.* **96** (2006) 255001