

## プラズマ・ジェット装置を用いた非平衡凝縮実験

田辺俊彦\*

### まずははじめに

なぜプラズマ・ジェットなどというものを使って実験を行なうかについて述べなくてはなるまい。

赤外線による天体観測は、固体微粒子による輻射や吸収のバンドを様々な領域で発見してきたが、これらのバンドは幅が広く、細かい構造が見られず非晶質（アモルファス）な物質に起因すると考えられるようになってきた。理論的な平衡凝縮計算では結晶質の粒子ができると予想されており、このことは天体における微粒子生成の場が熱力学的平衡からはずれていることを示唆していると思われる。このような場での凝縮過程を扱う理論は現在のところ確立されておらず、凝縮実験を行なうことが非平衡での凝縮過程の解明及び天体の固体微粒子を同定するための唯一の手段といえる。

しかしながら、非平衡といっても平衡に近い状態から平衡と大きくかけ離れた状態まで様々な状態が考えられるだろう。今までなされた実験、たとえばディヤドンなどによる微粒子生成実験は、このような議論はなされていないが、次の 2 点からどちらかというと平衡に近い非平衡での凝縮実験であると考えられる。(1) その方法は適当な熱源で原料物質を蒸発させ、それを急冷させるといういわゆるガス蒸発法と呼ばれるものであって、熱源がそれほど強力でないため原料物質を構成する分子が解離せず分子状態からの凝縮実験となっている。(2) その原料物質は珪素、酸素を主成分とするものと、炭素、珪素を主成分とするものとに 2 分され、酸素に富む領域と炭素に富む領域での凝縮を想定している (CO 分子が非常に安定であるという平衡計算の結果に基づいたもの)。我々は非平衡での凝縮過程を解明するためには、むしろ平衡から大きくはずれた場合を扱うことが重要であると考え、そのような場での凝縮過程を調べることにした。そのためには原料物質を完全に原子状態にするための強力な熱源と、原料物質をかなり自由に、理想的には宇宙元素比に近い物質を選べるような装置が必要であった。プラズマ・ジェット装置はそのような目的のために開発されたものである。このような装置は天文ではあまりないじみがないので、次に

### 実験装置

について簡単に説明する。なおこの装置は、東大の上篠

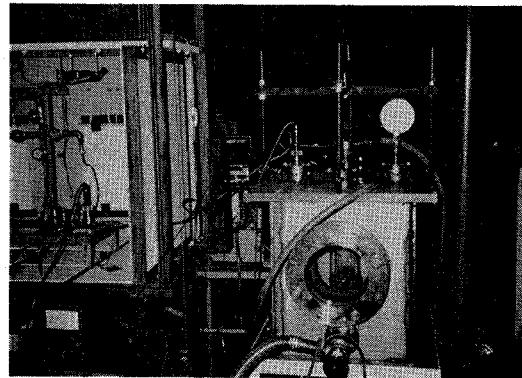


図 1 プラズマ・ジェット装置。一辺 50 cm の立方体が真空反応槽、その上面中央部円形のものがプラズマ・ジェットトーチ。左側に見えるのが原料気体供給系。

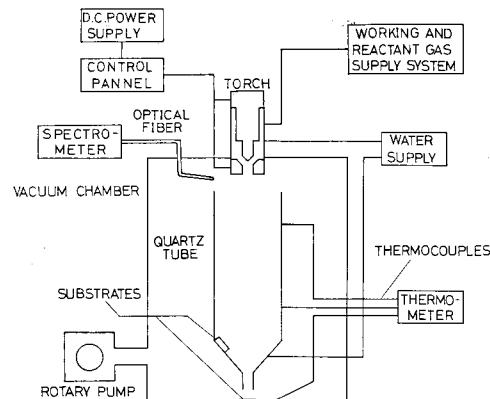


図 2 プラズマ・ジェット装置の概略図。

氏、尾中氏、電通大の坂田氏、和田氏と共同で開発したものである。

図 1 に実験装置の写真を、図 2 に装置全体の概略図を示す。この装置は基本的には、原料気体供給系、プラズマジェットを発生させる DC プラズマトーチ、真空の反応槽、及びプラズマの発光スペクトルを得る分光器からなる。プラズマジェットとは、DC プラズマトーチの電極間にアーカープラズマを発生させ、陽極にあけた穴（ノズル）からそれをジェットとしてとり出したものである。熱的ピンチと磁気的ピンチという 2 つのピンチ効果により、このジェットは集中度が高く安定である。トーチには移行式と非移行式の 2 種類あるが、我々の用いたものは後者である。またプラズマを発生させるための気

\* 東京大学東京天文台 Toshihiko Tanabé: The experiment of the Non-Equilibrium Condensation by a Plasma Jet Apparatus

体（ワーキングガス）としては Ar を使った。我々は原料気体とワーキングガスをトーチの手前で混合させ、さらにこれらガス供給系とプラズマトーチを低圧で働くような構造にし、真空反応槽と結合させ、凝縮実験装置を作った。反応槽の中にはプラズマの光を分光器に導くための光ファイバーケーブル、できた微粒子が飛び散らないようにするための石英管、各部の温度を測定するための熱電対を設置し、さらに粒子を調べるための電子顕微鏡写真用のメッシュと吸収測定用のサブストレートを反応槽下部に置いた。プラズマジェットの温度は 1 万度にもなるので、原料物質は完全に原子状態になる。このことはジェットの発光スペクトルからも確かめられた。今回行なった

## 実験

は、珪素、酸素、炭素、水素を含む混合気体をアルゴン気体 200 トルの雰囲気中で急冷凝縮させ、微粒子を作るというものである。この実験は、今までになされた実験に対し次の 2 点において全く新しいものである。(1) 原子状態から出発した凝縮実験であること。(2) 硅素、酸素、炭素を同時に含むこと。ここに用いた元素は天体の固体微粒子の骨格を形成するものである。またプラズマ・ジェットの急冷過程では、200 トルの雰囲気における冷却と粒子同士の衝突のタイムスケールの比は 100 度となる。この値は天体の微粒子生成の場では小さい方の極限で、新星爆発時の微粒子生成の場の物理状態に対応すると考えられる (Yamamoto and Hasegawa, 1977, *Prog. Theor. Phys.* 58, 816.)。図 3 にノズルから吹き出るプラズマ・ジェットの写真を示す。

微粒子生成においては凝縮を起こす気体の元素比、特に酸素、炭素比が重要と考えられているので、ジェットの発光スペクトルを紫外可視域の分光器で測定し、ジェット中では熱平衡を仮定し、原子線の強度から励起温

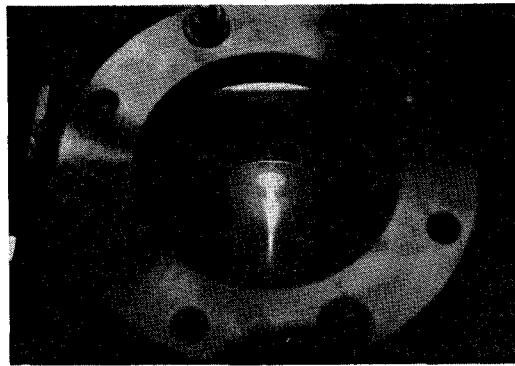


図 3 ノズルから吹き出るプラズマ・ジェットを反応槽にとりつけた窓から見たところ。ジェットの光がゆがんで見えるのは、反応槽の中に置かれた石英管を通して見ているため。

度、原子の相対比を決定した。図 4 にジェットのスペクトルを示す。ここでは原料気体の O/C 比の異なる 10 のケースについて実験を行なった。表 1 に 10 のケースに分けた組成比を示す。なお励起温度はどのケースでもあまり変化は見られず、ノズル付近で 7000-8000 K であった。できた粒子の形状、大きさは電子顕微鏡で、組成、構造については X 線ディフラクтомーターで調べた。また粒子のついたサブストレートは、紫外から赤外域 (200 nm-25 μm) の分光器にかけ吸収測定を行なった。赤外域では、吸収の絶対値を得るために 1 サンプルを除いて、通常の KBr 法による測定は行なわなかった。

## 実験の結果

を列挙すると次のようになる。

- (1) 電子顕微鏡写真で粒子を調べた結果、形状、大きさについてケースによる違いは見られなかった。またそれぞれのケースにおいても、異なる種類の粒子は見いだされなかった。図 5 (表紙の図) に電子顕微鏡写真の 1 例を示す。粒子径はどのケースでも 20 nm 以下と小さく、不規則な形状であることがわかった。
- (2) できた粒子の X 線回折線は凝縮する前の組成によって異なり、異なる組成の粒子ができるることを明らかにした。酸素を含まないケースでは、SiC と Si の存在が、逆に酸素の多いケースでは SiC と SiO<sub>2</sub> の存在が示

表 1 プラズマジェットの原料原子の相対比。

| CASE | $\log(O/C)$ | $\log(Si/C)$ | $\log(H/C)$ | $\log(Ar/C)$ |
|------|-------------|--------------|-------------|--------------|
| I    | -           | -            | 2.0         | 4.8          |
| II   | -           | -1.4         | 2.6         | (no data)    |
| III  | -           | -0.7         | 0.7         | 3.7          |
| IV   | 1.5         | -0.8         | 1.4         | 4.1          |
| V    | 1.7         | -0.9         | 1.3         | 4.8          |
| VI   | 1.7         | -1.4         | 1.4         | 4.6          |
| VII  | 2.2         | -0.6         | 1.9         | 5.0          |
| VIII | 2.3         | -0.9         | 1.9         | 5.1          |
| IX   | 3.0         | -1.2         | 2.9         | 6.2          |
| X    | 3.6         | -0.3         | 2.1         | 5.2          |

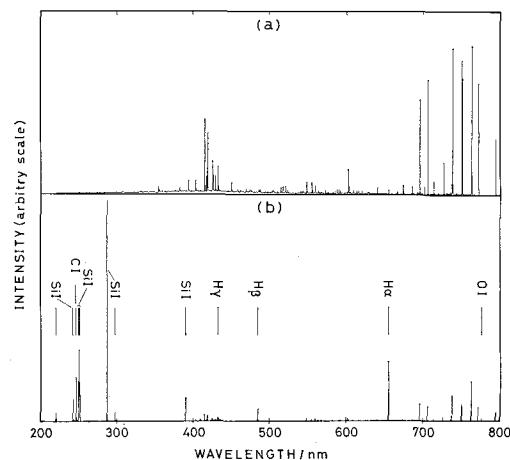


図 4 プラズマ・ジェットの発光スペクトル。(a) はワーキングガス (Ar) のみ。(b) はそれに反応ガスが含まれている場合。

れた。しかし回折線はいずれも幅が広く、ケースによらずできた粒子は非晶質であることを示唆している。

(3) できた粒子の吸収測定の結果は、どのケースでも紫外可視域では短波長側に向かってかなり急激に吸収量が増大している。赤外域では組成比によるが、Si, O, C, H 全てを含む気体から凝縮した粒子にはシリケイトによる 9.4, 22  $\mu\text{m}$  付近のバンドと SiC による 12  $\mu\text{m}$  付近のバンドが同時に見られ、さらに 3.0, 3.4, 4.6, 5.9, 7.9  $\mu\text{m}$  付近にも吸収バンドが見られた。図 6 に赤外域の吸収測定の結果を 3 つのケースについて示す。縦軸は、 $\tau = -\ln(T)$ ,  $T$  は透過率で定義される量である。ケース II (図 6a) では O を含んでいないため、Si-O の結合による吸収は見られないのにに対し、ケース X (図 6c) では逆に Si-C の結合による吸収が見られなくなっている。これらのバンドはいずれも幅が広く、結晶質なシリケイトや SiC の吸収とは異なり、やはり粒子が非晶質であることを示している。

(4) 生成された粒子の赤外域バンドの吸収量の絶対値を得るために、1 つのケースについて KBr 法による吸収測定を行ない質量吸収係数を得た。その結果、シリケイトあるいは SiC のバンドはピークで 1000-2000  $\text{cm}^2/\text{g}$  という値であった。この値は結晶質の値よりも 1 衍以上小さく、バンドの形だけではなく吸収の強さからもできた粒子が結晶質とは異なることがわかった。さらにこの値は報告されている非晶質な SiO や  $\text{SiO}_2$  の値よりも小さく、かなり秩序の乱れた構造であることを示している。

これら得られた実験結果から

#### 非平衡凝縮過程の特徴

について考えてみたい。

まず我々は、赤外域のバンドがそれぞれ何らかの化学結合によってもたらされるとし、そのバンドの強さ、 $I$ 、を次のように定義した。

$$I = S/\tau_{\text{cont}}(\lambda_p)$$

ここで、 $S$  は  $\tau-\lambda$  図において、バンドの前後で適当に仮定したコンティニウム、 $\tau_{\text{cont}}(\lambda)$ 、とバンドとが囲む面積、 $\lambda_p$  はバンドのピーク波長である。

このように定義したのち、原料気体の組成比、バンドどうしの強度の関係及び各バンドの位置から、これらのバンドに関与する化学結合を推定してみた。その結果を表 2 に示す。これらの結果から幾つかの化学結合が同時にできることができることがわかったが、これらは 1 つの粒子中に存在しているのだろうか、それとも別々の粒子として存在しているのだろうか。正確なところは粒子を化学分析してみなくてはわからない。しかし X 線回折線の形、赤外バンドの形や特にその強さなどからは、1 つの粒子の中に様々な化学結合が混在し、かなり秩序の乱れた構造の

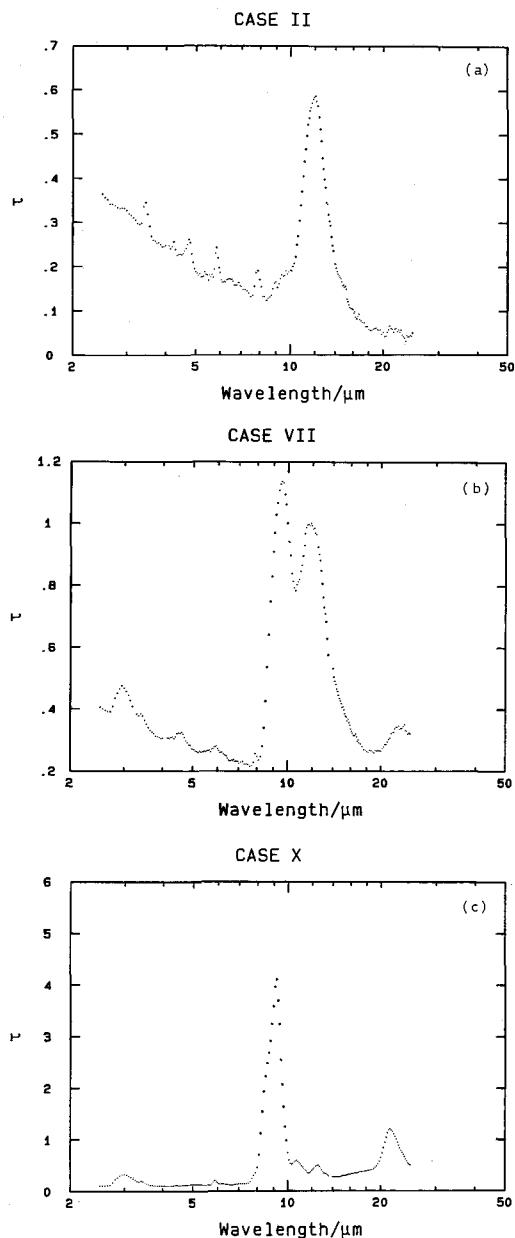
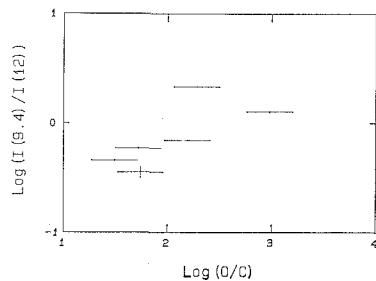


図 6 得られた微粒子の赤外域吸収スペクトルの例。縦軸は  $\tau = -\ln(T)$ ,  $T$  は透過率で定義される量。(a) ケース II, (b) ケース VII, (c) ケース X。縦軸のスケールに注意。

表 2 微粒子の赤外域吸収バンドの同定。

| Wavelength ( $\mu\text{m}$ ) | Chemical bond |
|------------------------------|---------------|
| 3.0                          | O-H           |
| 3.4                          | C-H           |
| 4.6                          | C=C or C=O    |
| 5.9                          | C=C or C=O    |
| 7.9                          | C-C or C-H    |
| 9.4                          | Si-O          |
| 12.0                         | Si-C          |
| 22.0                         | O-Si-O        |



‘ダーティー’な粒子となっているのではないかと考えられる。

よく知られているように、平衡凝縮過程では CO 分子の安定性のため、 $O/C > 1$  の領域ではシリケイト系鉱物が、 $O/C \leq 1$  ではグラファイトや SiC 粒子ができるとされている。しかしこの実験では Si-O 結合と同時に Si-C 結合や他の炭素を含む結合を持つ粒子が、 $O/C > 1$  でもできることがわかった。そこで我々は凝縮する気体の組成とできた粒子との関係をさらに詳しく見るために、横軸に O/C 比、縦軸に Si-O 結合による  $9.4 \mu\text{m}$  バンドと Si-C 結合による  $12 \mu\text{m}$  バンドの強さの比（どちらも対数）をプロットしてみた。図 7 にそれを示す。この図から、できる Si-O 結合と Si-C 結合との比が平衡計算で期待されるように急激に変わることではなく、ゆっくり変化し、 $O/C$  が  $10^3$  度でもシリケイト系結合のほかに Si-C 結合ができることが示された。このことは、非平衡では CO 分子が微粒子生成において重要ではないことを意味している。さらに、上に述べたように、できた粒子が様々な化学結合を含んでいる可能性のある、かなり乱れた結晶構造を持っているという事実は、非平衡での微粒子生成が高温気体中でのカイネティクプロセスに直接支配され、高温での原⼦どう

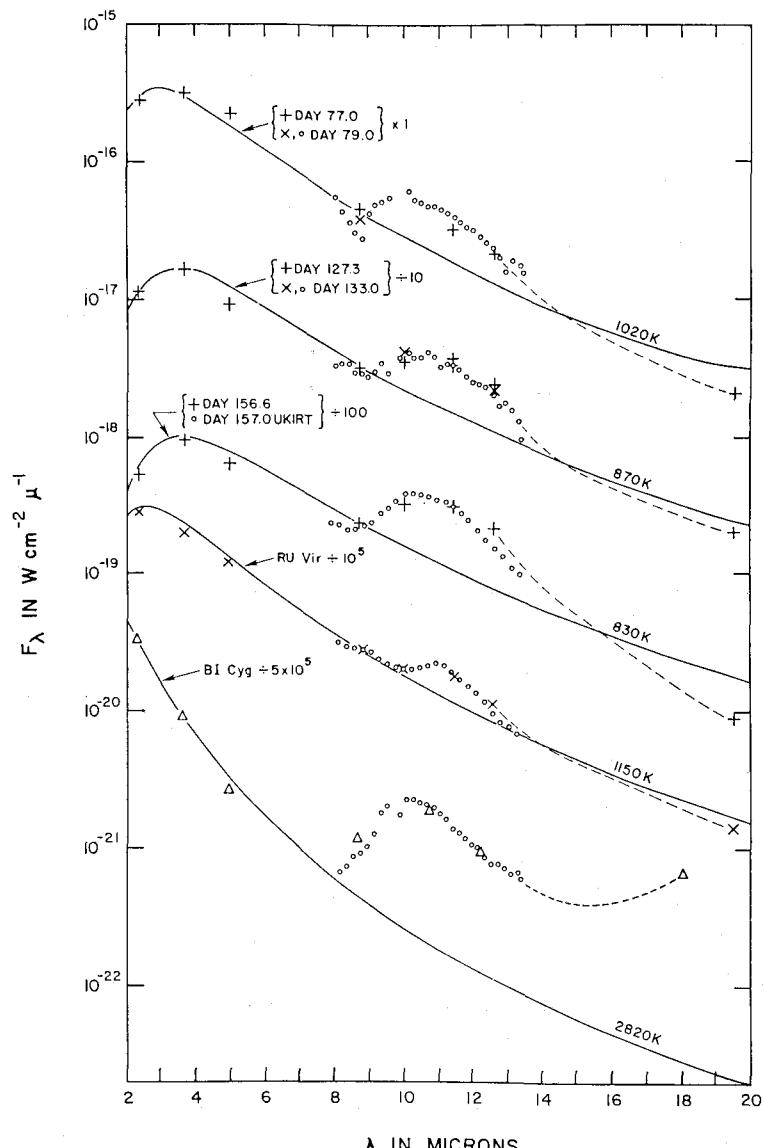
しの結びつきやすさによってできる粒子が決定されることを示唆しているものと思われる。

では実際の  
天体における微粒子生成の場

についてこれら得られた結果からどんなことが言えるだ

► 図 7 原料気体中の酸素、炭素比に対する微粒子中の Si-O, Si-C バンドの比。

▼ 図 8 Nova Aql. 1982 の赤外観測。DAY 77.0 は発見後 77.0 日の観測。比較のため RU Vir (C-rich) と BI Cyg (O-rich) のスペクトルも示されている。  
(Gehrz, R. D., Ney, E. P., Grasdalen, G. L., Hackwell, J. A., and Thronson, Jr. H. A. 1984, *Astrophys. J.* 281, 303)



らうか。得られた微粒子の赤外の吸収バンドと観測される天体の赤外輻射とを比較して簡単に議論してみる。

まず、固体微粒子の存在する通常の領域では、 $O/C > 1$  であればシリケイトによるバンドが、 $O/C < 1$  ならば SiC のバンドが観測され、化学組成についてはほぼ平衡

計算の結果と一致する。これは我々の実験した非平衡での凝縮の結果とは明かに異なっている。しかし一方、非晶質という性質は平衡凝縮では説明できない。従って、星の周りなど通常の天体における微粒子生成は、粒子の化学組成はほぼ平衡過程で決定されるが、結晶性についてはある程度の非平衡が関与するという、穏やかな非平衡のもとに起こるものと考えることができるのではないか。

しかし炭素星と分類される星の周りの領域で、シリケイトのバンドを示すものや、SiC のバンドと同時に 9  $\mu\text{m}$  付近にもバンドのあるものなど、10  $\mu\text{m}$  付近で‘異常’を示すものが、IRAS LSR (Low Resolution Spectrograph) スペクトルで最近見つけられた (F.J. Willems, 1985, Contribution to the ‘Light on dark matter’). さらに詳しい観測が必要であるが、このような異常なスペクトルは非平衡凝縮過程によって説明できるかもしれない。

この他に新星爆発のように、かなり非平衡な場で微粒子生成が起こると考えられる天体も存在する。もともと我々の実験は、冷却状態として新星爆発時の微粒子生成の場を想定しているので、赤外域での観測データの豊富な Nova Aql 1982 をとりあげて我々の実験結果と比較してみた。この新星は発見 (=爆発時) から 37 日以内に微粒子による赤外輻射の増大が観測され、その後 10  $\mu\text{m}$  付近にかなり幅の広いバンド構造が現われた。このバンド構造は今まで通常の天体で観測された 10  $\mu\text{m}$  付

近のどのバンドよりも幅が広く滑らかである。図 8 にゲルツらの赤外観測の結果を示す。我々はこの新星の赤外域での輻射が optically thin なダストの熱輻射によると考え、非晶質シリケイトと SiC の粒子の吸収データを用いたモデルフィッティングを行ない、それぞれ単独では説明できないという結論を得た。またどちらの成分も存在するとし、それぞれの量を適当に仮定した 2 成分モデルでもやはりうまく合わせることは難しいことがわかった。我々の実験で得られた粒子は 9.4  $\mu\text{m}$  と 12  $\mu\text{m}$  付近にバンドを持ついわば 2 成分モデルであるのではりフィットは難しく、組成についてはわからない。しかし、非平衡過程では O/C 組成比によらずいろいろな化学結合を持った粒子ができるという我々の実験結果は、このバンドの解明に新しい視点を与えるものである。我々は、この滑らかで幅広いバンド構造に関与する粒子が非晶質であって、爆発後の急冷過程、従って何らかの非平衡過程によって形成されたと考えている。

我々の実験は原料気体が 4 種に限られていたが、その他に天体では存在比が大きく、微粒子形成にとって重要なと思われる窒素、マグネシウム、鉄などを含めればこのような幅の広いバンド構造をうまく再現できるかもしれない。多種の元素を含んだ原料気体を用いた実験、理想的には宇宙元素比に近い原料気体を用いたこの種の実験がさらに面白い結果をもたらしてくれるものと期待している。また異なる冷却状態での実験も行なう必要があると考えている。

## お知らせ

### A. 東京天文台助教授公募

東京天文台では下記の要領で 助教授 1 名 を公募します。

1. 分 野: 赤外線天文学
2. 勤務地: 東京天文台 (主として三鷹)
3. 着任時期: 決定後出来るだけ早い時期
4. 提出書類: 履歴書および研究歴,  
論文リストおよび主要論文別刷り各 1 通,  
研究計画。
5. 書類提出期限: 1986 年 8 月 9 日 (土) 必着
6. 問い合せ先: 小平桂一 (内線 209)
7. 書類提出先: 〒181 三鷹市大沢 2-21-1  
東京天文台 日江井栄二郎

封筒の表に「赤外天文応募書類在中」と朱記し、郵送の場合は書留で送付のこと。適任者のいない場合は決定を保留することあります。

### B. 東京天文台助教授公募

東京天文台では下記の要領で 助教授 1 名 を公募します。

1. 分 野: 電波天文学
2. 勤務地: 東京天文台野辺山宇宙電波観測所
3. 着任時期: 決定後出来るだけ早い時期
4. 提出書類: ①履歴書, ②研究歴及び研究計画,  
③論文リスト, ④主要論文別刷り各 1 通 (共著の場合は役割分担を示すこと)
5. 書類提出期限: 1986 年 9 月 1 日 (月) 必着
6. 問い合せ先: 森本雅樹  
〒384-13 長野県南佐久郡南牧村  
野辺山字二ツ山 411
7. 書類提出先: 〒181 三鷹市大沢 2-21-1  
東京大学東京天文台 古在由秀  
野辺山宇宙電波観測所  
(Tel. 0267-98-2831)

封筒の表に「電波天文応募書類在中」と朱記し、郵送の場合は書留で送付のこと。適任者のいない場合は決定を保留することができます。