超臨界・液体窒素中のカーボンナノチューブ電極による放電の発光分光測定

Optical Emission Spectroscopy of Discharges with Carbon Nanotube Electrodes in Supercritical and Liquid Nitrogen

東大院新領域 °宗岡 均，黒田 知暉，伊藤 剛仁，寺嶋 和夫
The Univ. of Tokyo , °Hitoshi Muneoka, Tomoki Kuroda, Tsuyohito Ito, Kazuo Terashima
E-mail: muneoka@plasma.k.u-tokyo.ac.jp

【背景・目的】 近年、液体や超臨界流体(SCF: Supercritical fluid)状態を含む高密度媒体中におけるプラズマは、その応用範囲の広さから盛んに研究されている[1]。一般にこのような高密度媒体中での放電には高い印加電圧が必要とされるが、本研究室ではこれまでにカーボンナノチューブ(CNT)を電極として用いて電界電子放出を促進することで、気体から液体にわたる 2~3 桁以上の広い流体密度範囲において、一定の印加電圧で安定した放電を達成した[2]。これまでに高密度 N_2 中において、不純物とみられる酸素原子との結合による ON_2 エキシマー様の発光（557 nm 付近）の強度は窒素密度に大きく依存しないことを示した[3]。

一方、一般にこのような高密度空間における低電圧の放電は、局所的に熱化し、低密度な気体となっている部分で放電が発生することが多い。CNT 電極を用いた放電においても、熱化せず高密度流体を保っているかは確かめられていなかった。これに対し、凝縮相 N_2 中での O 原子の発光はスペクトル形状が気相 N_2 中とは異なることが報告されており[4]、O 原子をプローブと捉え、スペクトル形状の解析により放電空間中の流体（N_2）の密度を評価できる可能性があると考えた。

以上を背景として、本研究では、CNT 電極による放電空間の熱化有無や、放電メカニズムの気液遷移の解明を目的とし、SCF・液体状態を含む高密度窒素において発光分光測定を実施した。

【実験方法】 銀ペーストと CNT シートの間にガラスを挿入して作製した誘電体バリア放電電極（Fig.1）を、クライオスタット内の高圧セルに設置した。純度 99.99995%の N_2（臨界点：126.2 K、3.4 MPa、67×10^{20} cm^{-3}）を 110～130 K の一定温度で保持し、圧力を 0.6→7.7 MPa の範囲で徐々に変化させながら、交流電圧(周波数 5 kHz、電圧 3.25 kV)を印加して放電を生成し、発光分光測定（OES）を行った。

【結果・考察】 最大値で規格化した ON_2 様の発光スペクトルを Fig.2(a)に示す。N_2 密度の上昇に伴い、ピーク波長の短波長側へのシフト、広がり幅の拡大、特に長波長側の強度上昇が確認された。Fig2.(b)に ON_2 様発光ピークの半値全幅（FWHM）の密度依存性を示す。臨界温度よりも低い 110 K、121 K では気液の遷移が存在した一方、臨界温度以上の 130 K では密度が連続的に上昇し、気体・液体を連続的に繋げることが示された。この結果から、放電空間が熱化せず凝縮相を保つことが示唆された。本発表では、より詳細なスペクトルの形状解析などの考察を含め、更なる結果と共に詳細を報告する。

【謝辞】 本研究の一部は JSPS 科研費 21K18614 の助成を受けたものである。

【引用文献】 [1] S Stauss, H Muneoka, and K. Terashima. Plasma Sources Sci. Technol. **27** (2018) 023003.
[2] H. Muneoka R. Ohta, S. Stauss, and K. Terashima, Plasma Sources Sci. Technol. **28** (2019) 075014.
[3] 黒田 知暉, 宗岡 均、伊藤 剛仁、寺嶋 和夫、第 83 回応用物理学会秋季学術講演会、2022 年 9 月 20 日、20a-A105-2.
[4] G. Black, R. L. Sharpless, and D. C. Lorents, J. Chem. Phys. **72** (1980) 484.

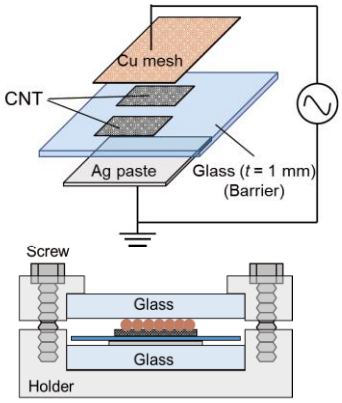

Fig.1 Schematic of electrodes using carbon-nanotube (CNT) electrode

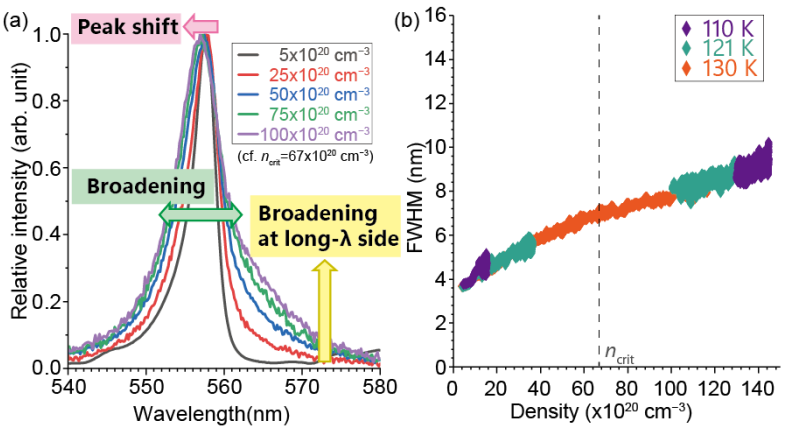

Fig.2 (a) Normalized spectra of ON_2-like emission, (b) Density dependence of peak width of ON_2-like emission in gas, liquid, and SCF.