

低ガス圧酸素プラズマと水ジェットの界面反応による 水素分子の生成および酸素分子の損失

Production of molecular hydrogen and destruction of molecular oxygen
due to reactions at interface between low-pressure oxygen plasma and water jet

北大工¹ ◯(M1)高橋 仁¹, 佐々木 浩一¹

Hokkaido Univ.¹, ◯Jin Takahashi¹ and Koichi Sasaki¹

E-mail: aporo2030@eis.hokudai.ac.jp

【本研究の背景及び目的】

最近、浮遊電位の水ジェットと低ガス圧ヘリウムプラズマの界面において、無電流であるにもかかわらず酸化還元反応が同時に生じ、水素分子および酸素分子が生成されることが見出された[1]。酸化還元反応に必要なエネルギーは、プラズマから輸送されるヘリウムイオンの中性化によってまかなわれていると考えられる。本講演では、ヘリウムプラズマを酸素プラズマに変えた場合の結果を報告する。酸素分子の電離電圧は水の酸化還元電位を超えているので、ヘリウムプラズマの場合と同様の酸化還元反応が生じると予想される一方、酸素分子はヘリウムとは異なり化学反応性を持つので、ヘリウムプラズマの場合とは異なる反応が生じる可能性もある。以下に述べる実験結果は、プラズマ気液界面における酸化還元反応の特異性を示唆している。

【実験方法】

水とプラズマを相互作用させる実験では大気圧プラズマが広く用いられているが、本実験では、低ガス圧誘導結合プラズマにジェット状の水を入射する装置を用いた。直径 50 μm のノズルを用いて水ジェットを発生すること、真空排気で大排気速度のターボ分子ポンプを用いること、および、真空容器内に液体窒素温度に冷却したトラップを設置することにより、真空容器内の水蒸気分圧を 2 mTorr まで低減した。水蒸気分圧が 2 mTorr の真空容器にマスフローコントローラを用いて酸素を供給し、その分圧を 10-14 mTorr とした。以上のガス条件において、真空容器に取り付けたパイレックスガラス管の周囲に巻いた 2 ターンのスパイラルアンテナに 13.56 MHz の高周波電力を供給することによってプラズマを生成した。高周波アンテナに対向する位置に設置した差動排気した真空容器に四重極質量分析器を取り付

け、オリフィスを介してプラズマ中のガスをサンプリングし、その組成を分析した。

【実験結果及び考察】

ヘリウムプラズマの場合と同様に水素分子の生成が確認された。文献[1]で報告したように、水素分子の生成は水蒸気を起源とする気相反応によるのではなく、プラズマと水ジェットの界面における還元反応に起因すると考えられる。酸素分圧を 10-14 mTorr の範囲で変化させても、ラングミュアプローブで測定したプラズマ密度および電子密度に変化はみられなかったが、水素分子の生成速度は酸素ガス圧に対して増加した。一方、酸素分子については、ヘリウムプラズマの場合とは逆に、プラズマの生成によってその分圧が低下することが観察され、酸素分子の損失速度は酸素分圧に対して増加した。

ヘリウムプラズマの場合の酸化還元反応は、 $2\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{O}_2 + 4\text{H}^+ + 4\text{e}^-$ 、 $4\text{H}_2\text{O} + 4\text{e}_p \rightarrow 2\text{H}_2 + 4\text{OH}^-$ 、および、 $4\text{He}^+ + 4\text{e}^- \rightarrow 4\text{He}$ であると考えられている[1]。ただし e_p はプラズマから輸送される電子をあらわす。実験結果によれば、酸素プラズマの場合には $2\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{O}_2 + 4\text{H}^+ + 4\text{e}^-$ が生じないか、生じたとしてもそれを上回る速度で O_2 が損失していることになる。損失した O_2 は、1)原子状酸素となってプラズマの気相に存在している、2)真空容器壁に吸着(または反応)している、3)プラズマ気液界面での反応によって消失している、の三つの可能性があり得る。水ジェットを用いず水蒸気のみを 2 mTorr の分圧で供給したときにはプラズマの生成による O_2 の損失がみられないことから、1)および2)の可能性は低いと考えているが、現在、念のため、閾値イオン化法を用いて原子状酸素密度の変化を調べている。

[1] T. Ito, T. Sakka, and K. Sasaki, Plasma Sources. Sci. Technol. **31**, 06LT02 (2022).