

## 小特集

ダストプラズマの現状と課題

### 3. 強結合ダストプラズマの結晶化と遷移

林 康 明

(京都工芸繊維大学工学部)

(1997年9月9日受理)

#### Crystalization and Transition of Strongly Coupled Dusty Plasmas

HAYASHI Yasuaki

*Faculty of Engineering and Design, Kyoto Institute of Technology, Kyoto 606, Japan*

(Received 9 September, 1997)

#### Abstract

In glow discharge plasmas, fine dust particles are negatively charged with thousands of elementary electric charges and can be easily ordered like a crystal, *i.e.*, to form a Coulomb crystal. This report describes recent studies on the structures and transition of these crystals. To date, body-centered cubic, face-centered cubic, simple-hexagonal, and hexagonally close-packed crystals have been described. Three-dimensional Coulomb crystals are here shown to change to two-dimensional, simple-hexagonal crystals with the growth of particles. It has been suggested that an attractive force acts on particles in the direction perpendicular to an electrode. It is further demonstrated that a two-dimensional Coulomb crystal melts, with the decrease of gas pressure or the increase of discharge power, through the hexatic phase and flow and floe states.

#### Keywords:

Coulomb crystal, dusty plasma, strongly coupled plasma, phase transition, melting, fine particles, glow discharge, Mie scattering

#### 3.1 はじめに

ダストプラズマの結晶化の現象、すなわちクーロン結晶については、すでに本誌72巻第1号において解説しているが[1]、本稿ではその後の進展などを中心に述べることにする。

強結合プラズマとは、プラズマを構成する同種荷電粒子間のクーロン相互作用が大きくて、その影響を摂動論的に取り扱うことができず、弱結合の場合とは異なった性質を示すプラズマのことをいう。弱結合と強結合を区別する場合、クーロンポテンシャルのエネルギーと熱運動のエネルギーとの相対的な大小関係が用いられる。つまり、荷電粒子間の平均距離がデバイ長よりも十分小さくて逆符号の電荷を空間的に一様な背景電荷とみなすこ

とができる一成分プラズマの場合、クーロン結合係数  $\Gamma$  を

$$\Gamma = \frac{Q^2}{4\pi\epsilon_0 a k_B T} \quad (1)$$

と定義し、 $\Gamma \ll 1$  の場合が弱結合プラズマ、 $\Gamma \geq 1$  の場合が強結合プラズマとなる[2]。なおここで、 $Q$  は荷電粒子の帯電量、 $a$  は荷電粒子の占める平均体積を球とした場合の半径（その密度を  $N$  とすると、 $[4\pi N/3]^{-1/3}$ ）、 $T$  は絶対温度、 $\epsilon_0$  は真空の誘電率、 $k_B$  はボルツマン定数である。弱結合プラズマはちょうど気体の状態と同様で、強結合プラズマは液体の状態に相当すると考えるこ

とができる。したがって  $\Gamma$  がさらに大きくなれば、固体の状態になることも可能であり、荷電粒子が格子状に配列する、いわゆる結晶化が起きる。長さ  $a$  がデバイ長  $\lambda_D$  程度以上の場合、荷電粒子による電界を逆符号の電荷が遮蔽して、クーロン相互作用のエネルギーが低下する。この場合は湯川型ポテンシャルとなるが、一般にはクーロン結合係数  $\Gamma$  を(1)式のようにし、 $\Gamma^*$ として

$$\Gamma^* = \frac{Q^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{e^{-a/\lambda_D}}{k_B T} \quad (1)$$

と定義する。両式を見てわかるように、 $\kappa (= a/\lambda_D) = 0$  のとき  $\Gamma^* = \Gamma$  となる。液体-固体間の相転移における値は、 $\Gamma$  では  $\kappa$  とともに増大するが、 $\Gamma^*$  についてはゆるやかに変化する[3]。

ダストプラズマは電子とイオンと大きく負に帯電したダストからなるが、強結合プラズマとして扱う場合、クーロン相互作用を行う荷電粒子は負帯電したダスト、それを取り巻いて電界を遮蔽する逆符号の荷電粒子は正イオンである。

### 3.2 ダストプラズマ中のクーロン結晶の研究

電子とイオンのみからなるプラズマにおいて上で述べた  $\Gamma$  や  $\Gamma^*$  の値を 1 以上にするには桁外れな高密度にしなければならないが、ダストプラズマのように負帯電した微粒子が中に存在するときは、1,000個を超える電子がその表面に付着することが可能なため、クーロン相互作用が大きくて結晶化が容易である。これは、1980年代に Ikezi によって理論的に示された[4]。実験上は、その数年後に、世界の3カ所（日本の京都工芸繊維大学、台湾の National Central University、ドイツの Max-Planck-Institut）で独立してほぼ同時期に確認され、1994年にその結果が発表された[5-7]。こうした状態は一般にはクーロン結晶（格子）といわれるが、プラズマ結晶、ダスト結晶、あるいは微粒子結晶などと呼ぶ人もいる。

放電には3者ともにRF放電を用いているが実験の方法はそれぞれ異なっている。京都工芸繊維大学では平行平板型装置のメタンプラズマ中で成長する水素化アモルファスカーボンの球形微粒子（粒径約  $3\mu\text{m}$  まで）が、台湾の National Central University では  $\text{SiH}_4/\text{O}_2/\text{Ar}$  プラズマ中で発生・成長し接地電極に設けたリング状の溝の中にトラップされる  $\text{SiO}_2$  の微粒子（粒径約  $10\mu\text{m}$ ）が、Max-Planck-Institut ではアルゴンプラズマ中に外部か

ら導入した球形のメラミン樹脂（粒径  $7\mu\text{m}$ ）が、負帯電微粒子として用いられた。

その後、Max-Planck-Institut のグループと同様の方法でドイツの Kiel University や[8]、同グループの中の一人が米国の University of Iowa で独立して研究を進めている[9]。また、最近、ロシアの High Energy Density Research Center では熱プラズマ中で試みられた[10]。国内でも、東北大学[11]や名古屋大学[12]でDC放電を利用した実験が進められている。

理論的には、実験の結果に刺激されて、湯川型クーロンポテンシャルを用いた計算機シミュレーションなどの研究が盛んになってきた。米国の IBM Thomas J. Watson Research Center では、分子動力学計算法によるシミュレーションから液体や結晶の体心立方 (BCC) 構造、面心立方 (FCC) 構造の  $\Gamma$  と  $\kappa$  を座標軸とした相図が作成されている。それによれば、 $\Gamma$  の増加にしたがって、 $1.066 < \kappa < 4.28$  では液体から BCC 構造の固体を経て FCC 構造へと変化するが、 $\kappa \geq 4.28$  では液体から FCC 構造の固体へと直接、遷移することが示されている[13]。また、微粒子に働くシース電界からの力、イオン粘性力、重力などの方向性のある外力を考慮した粒子シミュレーションが、岡山大学[14]や米国の Los Alamos National Laboratory [15]で行われており、外力の働く方向に垂直な面に平行（電極面に平行）に層をなして微粒子が配列することや、面内の微粒子配列などが議論されている。さらに外力の働く方向に微粒子が直列する理由に関連して、イオン流による正のポテンシャル形成の計算機シミュレーションが行われている[16,17]。

### 3.3 クーロン結晶の構造

ダストプラズマ中のクーロン結晶の構造として、これまで報告されたものには、BCC 構造、FCC 構造、六方最密 (HCP) 構造や単純六方構造などがある。しかし、前三者については一方向のみの画像から判断されている場合もあり、体心正方（あるいは斜方）、面心斜方、非最密の六方構造などの可能性もあることを考慮する必要がある。

二方向からの画像による格子定数比から確認された例としては、電極方向に(100)面を向けた BCC 構造や[18]、同じく(111)面を向けた FCC 構造がある[19]。(110)面を電極方向に向けた体心構造は、面内の結合がそれに垂直な方向より強く、完全な BCC 構造となっていない場合もある。しかし、クーロン相互作用の大きさは微粒子の粒径や密度に依存するので、一般的には議論

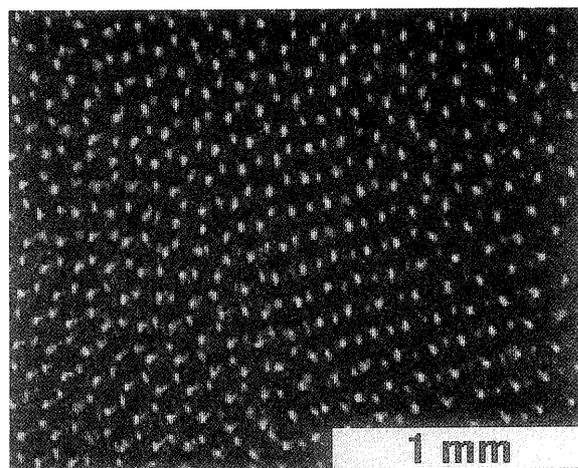


Fig. 1 Video image of top view of a three-dimensional Coulomb crystal [19]. Bright and dimmed spots show particles in the first and second layers to an electrode respectively.

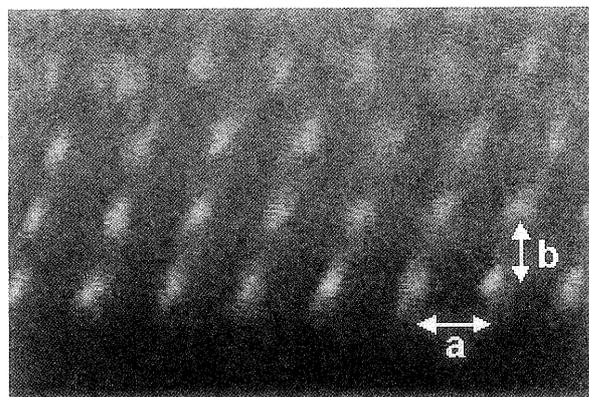


Fig. 2 Video image of side view of an FCC Coulomb crystal [19].

できない。Fig. 1は電極に垂直な方向から電極近くの2層に存在する微粒子を示した画像である(明るい点が第1層目内の微粒子、やや明るい点が第2層目内の微粒子を示す)。この面から見た限り、画像の左側では最密構造(FCCまたはHCP)的な配列が、右側では体心構造の(110)面が観察される。Fig. 2に、電極に水平な方向から撮影し奥行き方向に並んだ微粒子の画像を示す。この場合、層間隔と横方向の粒子間隔の比 $b/a$ は、 $(8/9)^{1/2}$ に極めて近い値となっており、部分的にFCC構造を形成していることが報告されている。

Fig. 3に示すような単純六方構造は、多くの実験結果で報告されている(Fig. 1と同様の方法で撮影)。層内では最密に配列しているが、三次元的な構造ではなく、層に垂直な方向に整列するように重なりあって並んでいる。

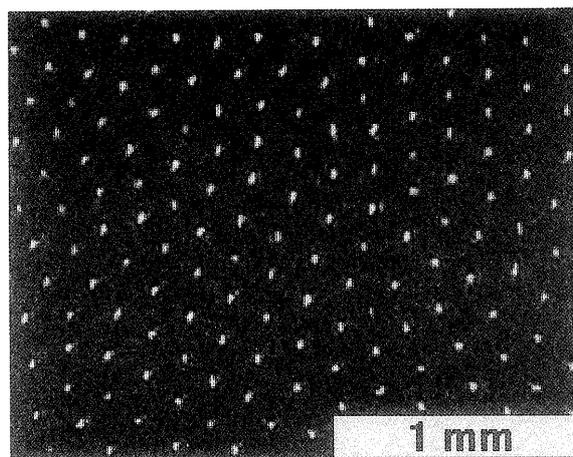


Fig. 3 Video image of top view of a two-dimensional Coulomb crystal. Indicated particles are in the two nearest layers to an electrode.

このような単純六方格子を形成する理由については、その方向に何らかの引力が働いているためと考えられる。微粒子が一直線に整列する方向は、電極に対して垂直であり、イオン流やシース電界、重力などの影響が考えられるが、現在のところ、計算によってその説明に成功しているのは、電極方向に向かうイオン流によって下流側に正電位のウエイク・ポテンシャルが形成されて微粒子が一行に並ぶとする説である[16, 17, 20]。

### 3.4 クーロン結晶の遷移過程

#### 3.4.1 微粒子の成長に伴う構造の変化

微粒子の粒径とクーロン結晶の構造との関係が、プラズマ中で成長する球形で単分散の微粒子を利用して調べられている[21]。成長過程における微粒子粒径の時間変化はミー散乱エリプソメトリ[22]によって予め求められ、クーロン結晶の時間変化から粒径と結晶構造との関係が議論されている。微粒子の配列には、微粒子間相互に働く力や外力の大きさが関係し、微粒子の密度、存在する位置、プラズマの状態などにも依存するので一般には粒径に対する相関は定量的にはあるとはいえないが、傾向として理解されている。

それによれば、粒径が小さい間(この実験においては $1.5\mu\text{m}$ 程度まで)は結晶は三次元的な配列を成しBCC様あるいはFCC様の構造となるが、それ以降は一旦配列が乱れた後、今度は二次元的な単純六方構造となる[19, 21, 23]。Fig. 4はその過程を示す画像である。Top Viewは電極に平行な面内の電極に近い2層内にある微粒子の配列を示し、その位置の下約5mmのところ

地電極がある。電極に最も近い層内に存在する微粒子の配列について2体分布関数を求め、モンテカルロ法による計算機シミュレーションの結果との比較から、クーロン相互作用の大きさを表す係数 $\Gamma^*$ の時間変化が見積もられた。その結果、三次元固体は一旦液体に変化した後、また固体になることがわかっている。

結晶構造が変化する理由については、微粒子に働く力の関係が変わったためと考えられている。すなわち、微粒子粒径の増大に伴い負帯電量が大きくなり、微粒子とそれを取り囲む正イオンからなる電極シース電界によって生じる電気双極子どうしが、ポテンシャルエネルギーが最低となるように並んだ結果、微粒子が電極垂直方向に整列するとの推測がなされている。しかし、上で述べたようなウエイク・ポテンシャルによる可能性も否めない。

結晶構造が変化する過程において一旦結晶の配列が乱れる理由については、電極平行方向より垂直方向の微粒子どうしの繋がりが大きくなった結果、電極より離れた位置にある液体状態の微粒子が影響を与えたものと推測されている。電極より遠い方が液体となりやすい訳は、上の微粒子からの圧縮力が小さくクーロン相互作用が小さいためと考えられている。そのため、別の力の影響を

受けやすく、電極垂直方向の整列化は上の方から進行するものと考えられる (Fig. 4, 45 min SIDE VIEW を参照)。そして、垂直方向に固い棒状に連結すると、その全体が二次元的構造をなし、帯電量が増加して再度結晶化するものと推測されている。

### 3.4.2 クーロン結晶の溶解

液体の状態から巨視的なスケールのクーロン結晶が形成されたり、一旦形成されたクーロン結晶が溶解する過程を観察することにより、相転移現象を構成粒子個々の運動の変化からつぶさに解析することが可能となる。そこで、単純な系として単純六方格子のクーロン結晶の溶解過程が調べられた。

圧力を徐々に低下させて溶解させた実験では、静止したクーロン結晶の中に流れるように運動する部分が生じ (ちょうど流水の流れのようであるので、flow and floe と呼ばれている)、その次に微粒子振動の振幅が大きくなって流れの部分が明確でなくなり、最後に乱雑な液体の配列へと移行していく様子が観察された[24]。二次元の結晶では、固相と液相との間にヘキサティック相と呼ばれる状態があり、粒子の秩序が動径方向には短距離的であるが結合角方向には長距離的であるとする、KTHNY 理論[25]が適用される場合が多い。この例では、固相から flow and floe の状態になるまでの過程においてヘキサティック相になっていると判断されている。

RF 放電電力の増大過程における微粒子配列の変化も調べられており、結晶の配列が乱れる最初の段階において、上と同様に微粒子が静止している部分と大きく回転するように流れている部分があることが観察されている [26]。

### 3.5 おわりに

ダストプラズマにおける結晶化と遷移についての最近の研究を簡単にまとめた。疑似的結晶の例は他に多くあるが、微粒子によるプラズマ中のクーロン結晶は、巨視的であり、三次元構造にもなり得、結晶化や溶解の変化を速やかにかつ容易に実現でき、結合が強いなど、結晶の相転移現象を研究するためのモデルとして様々な有利な点を有する。プラズマ物理学の立場からも多くの興味ある現象を提供することが期待され、注目すべき研究対象の一つとなっている。今まさに立ち上がらんとしており、今後の研究の展開が楽しみである。

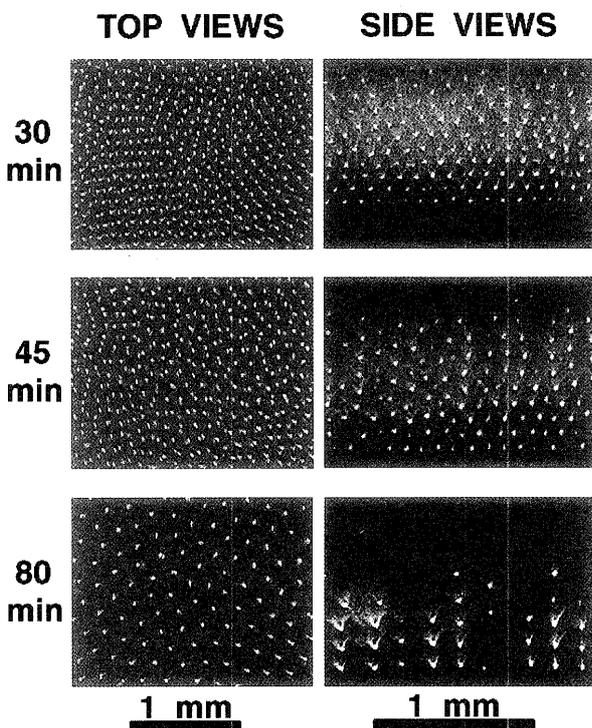


Fig. 4 Changes of top and side views of particle arrangement [23]. Indicated particles of top views are in the two nearest layers to an electrode.

## 参考文献

- [1] 林 康明, 橘 邦英: プラズマ・核融合学会誌 **72**, 70 (1996).
- [2] S. Ichimaru, Rev. Mod. Phys. **54**, 1017 (1982); 一丸 節夫: 日本物理学会誌 **41**, 775 (1986).
- [3] R. T. Farouki and S. Hamaguchi, J. Chem. Phys. **101**, 9885 (1994); S. Hamaguchi, R. T. Farouki and D. H. E. Dubin, J. Chem. Phys. **105**, 7641 (1996).
- [4] H. Ikezi, Phys. Fluids, **29**, 1764 (1986).
- [5] Y. Hayashi and K. Tachibana, Jpn. J. Appl. Phys. **33**, L804 (1994).
- [6] J. H. Chu and Lin I, Phys. Rev. Lett. **72**, 4009 (1994).
- [7] H. Thomas, G. E. Morfill, V. Demmel, J. Goree, B. Feuerbacher and D. Mohlmann, Phys. Rev. Lett. **73**, 652 (1994).
- [8] A. Melzer, T. Trottenberg and A. Piel, Phys. Lett. A **191**, 301 (1994); A. Melzer, V. A. Schweigert, I. V. Schweigert, A. Homann, S. Peters and A. Piel, Phys. Rev. E **54**, R46 (1996).
- [9] J. B. Pieper, J. Goree and R. A. Quinn, J. Vac. Sci. Technol. A **14**, 519 (1996).
- [10] V. E. Fortov, A. P. Nefedov, O. F. Petrov, A. A. Samarian and A. V. Chernyshev, Phys. Lett. A **219**, 89 (1996); V. E. Fortov, A. P. Nefedov, O. F. Petrov, A. A. Samarian and A. V. Chernyshev, Phys. Rev. E **54**, R2236 (1996).
- [11] 内田儀一郎, 飯塚 哲, 佐藤徳芳: 日本物理学会第52回年会講演予稿集, 28p-YG-8 (1997).
- [12] S. Nunomura, N. Ohno and S. Takamura, Jpn. J. Appl. Phys. **36**, L949 (1997).
- [13] S. Hamaguchi, R. T. Farouki and D. H. E. Dubin *to be published in* Phys. Rev. E.
- [14] H. Totsuji, T. Kishimoto, Y. Inoue, C. Totsuji and S. Nara, Phys. Lett. A **221**, 215 (1996); H. Totsuji, T. kishimoto and C. Totsuji, Phys. Rev. Lett. **78**, 3113 (1997); H. Totsuji, T. Kishimoto and C. Totsuji, Jpn. J. Appl. Phys. **36**, 4980 (1997).
- [15] M. S. Murillo *et al.*, *to be published in Strongly Coupled Coulomb Systems*, G. K. Kalman, K. B. Blagoev and J. M. Rommel ed. (Plenum, New York, 1998).
- [16] F. Melandsø and J. Goree, Phys. Rev. E, **52**, 5312, (1995); F. Melandsø and J. Goree, J. Vac. Sci. Technol. A **14**, 511 (1996); F. Melandsø, Phys. Rev. E **55**, 7495, (1997).
- [17] V. A. Schweigert, I. V. Schweigert, A. Melzer, A. Homann and A. Piel, Phys. Rev. E **54**, 4155 (1996).
- [18] J. B. Pieper, J. Goree and R. A. Quinn, J. Vac. Sci. Technol. A **14**, 519 (1996).
- [19] Y. Hayashi, K. Takahashi and K. Tachibana, *to be published in Advances in Dusty Plasmas*, P. K. Shukla, D. A. Mendis and T. Desai ed. (World Scientific, Singapore, 1997).
- [20] M. Nambu, S. V. Vladimirov and P. K. Shukla, Phys. Lett. A **203**, 40 (1995); S. V. Vladimirov and M. Nambu, Phys. Rev. E **52**, R2172 (1995); 南部充宏: 日本物理学会誌 **52**, 412 (1997).
- [21] Y. Hayashi and K. Tachibana, J. Vac. Sci. Technol. A **14**, 506 (1996).
- [22] Y. Hayashi and K. Tachibana, Jpn. J. Appl. Phys. **33**, L476 (1994); Y. Hayashi and K. Tachibana, Jpn. J. Appl. Phys. **33**, 4208 (1994).
- [23] Y. Hayashi and K. Takahashi, Jpn. J. Appl. Phys. **36**, 4976 (1997).
- [24] H. M. Thomas and G. E. Morfill, Nature **379**, 806 (1996).
- [25] J. Kosterlits and D. Thouless, J. Phys. C **6**, 1181 (1973); B. Halperin and D. Nelson, Phys. Rev. Lett. **41**, 121 (1978); A. Young, Phys. Rev. B **19**, 2457 (1979).
- [26] Lin I, W. Juan, C. Chiang and J. H. Chu, Science **272**, 1626 (1996).