

水素放電による正・負イオンの生成に及ぼす壁の作用

磯兼誠司*・上田 貢**・福政 修***・佐伯節夫***

Wall Effects on the Production Processes of Positive and Negative Ions in Hydrogen Plasmas

Seiji ISOKANE, Mitsugu UEDA, Osamu FUKUMASA and Setsuo SAEKI

Abstract

Positive and negative ion species ratios in hydrogen plasmas are calculated numerically as a function of plasma parameters by using the particle balance model. The model considers important processes for the production of both H^- and positive ions. Particular attention has been paid to wall effects on volume production of H^- ions. Therefore, the recombination coefficient γ_1 for H and the de-excitation parameter γ_2 for vibrationally excited molecules H_2^* at the wall surface are treated as numerical parameters.

The calculated results have confirmed that H^- ions are generated by dissociative attachment to highly excited H_2^* (vibrational level $v'' = 5-10$) and these molecules are produced by fast electrons with energies in excess of 30 eV. The most significant point is that ion species ratios depend strongly not only on plasma parameters but also on wall parameters, γ_1 and γ_2 . With decreasing γ_1 , i.e. $\gamma_1 < 1$, H and H^+ increase while H^- ratio decreases because of the attenuation of H_2^* and the enhanced loss process, $H^- + H^+ \rightarrow 2H$.

1. はじめに

プラズマを用いて制御熱核融合反応を達成するには、まずプラズマがローソン条件¹⁾を満たす必要がある。D-T反応を想定した場合のローソン条件は、プラズマ密度 n と閉じ込め時間 τ の積 $n\tau$ が $10^{14} \text{ cm}^{-3} \cdot \text{sec}$ 以上で、プラズマのイオン温度 T_i が 10 keV 程度である。しかしながらジュール加熱による T_i の上昇は、1.5 keV 程度である²⁾。そのため、炉心プラズマの追加加熱が重要な課題となっている。

プラズマ追加加熱の有力な方法の1つに、標的プラズマへ高エネルギー中性粒子ビームを入射させる方式(NBI加熱)がある³⁾。この方法によって、現在 T_i の世界最高の値として 7 keV が、プリンストンの PLT 装置において得られている⁴⁾。ところで、これらの中性粒子ビームは、水素イオン源で生成・加速した正イオンビームと中性ガスとの荷電交換によってえらている。水素プラズマ中にはプロトン (H^+) の外に分子イ

オン (H_2^+ , H_3^+) が生じるため、標的プラズマの加熱効率を上げるためにはイオン源内の H^+ 比を高くする必要があり⁵⁾。現在数種の大電流イオン源が開発されているが⁶⁾、バケット型イオン源を改良することによって H^+ 比が90%以上のプラズマが得られている⁵⁻⁷⁾。

一方、将来の大型核融合装置では、150~200 keV 程度のビームエネルギーが要求されている。このエネルギー範囲での H^+ の中性化効率は10%以下になる^{3,8)}。これに対して、負イオン (H^-) の中性ガスとの中和効率は同じエネルギー範囲で60%程度となり、光分離セル (Photodetachment) による効率はエネルギーによらず一定で95%程度である⁸⁾。このため、 H^- を用いる方が有利になり、多量の H^- ビームが生成可能なイオン源の開発が強く望まれている。

ところで、これまでにバケット型水素イオン源によって全正イオンに対する H^- の比率が30%にもなるプラズマ生成の結果が報告されており⁹⁾、それ以後このような多量の H^- 生成の機構について種々検討されてきた^{8,10-13)}。反応断面積の理論計算によれば、この異常に高い H^- 生成には振動準位への励起分子 H_2^* とそれを作る高速一次電子 e_f (30 eV 以上) が関与し、 $H_2 + e_f \rightarrow H_2^* + e_f$; $H_2^* + e$ (低速のプラズマ電子) $\rightarrow H^-$

* 大学院電気工学専攻

** 電気工学科 (現・三菱電機)

*** 電気工学科

+H の過程が有力とされている。¹⁰⁻¹²⁾

著者等は、水素プラズマ中のイオン種組成とプラズマパラメータ (電子密度 n_e , 電子温度 T_e , 水素ガス圧 P) との関係を一連の方程式の数値計算によって求め、① H^- 生成機構, ② H^- 生成のプラズマパラメータ依存性, ③イオン種組成に及ぼす壁の作用等について検討してきた。¹⁴⁻¹⁶⁾ その結果, H^- 生成には $H_2 + e_f \rightarrow H_2^*(v'') + e_f$; $H_2^*(v'') + e \rightarrow H^- + H$ の二段階過程が重要であることを数値的に明らかにし, 更に振動準位 v'' が 5 ~ 10 の励起分子 $H_2^*(v'')$ が H^- 生成に必要であることを見出した。それと同時に, イオン種組成に壁の影響が強く現れることも見出したが, これは中性粒子である H および $H_2^*(v'')$ と壁との相互作用が原因である。^{15, 17)} この事実はプラズマパラメータが同一であっても放電容器の材質や表面状態により粒子組成が変化することを示しており, 最近の低温プラズマを応用したプラズマ CVD 等においても重要と考えられる。¹⁸⁾

そこで本論文では, $H_2^*(v'')$ として或る特定の準位のもの一種が存在すると仮定した前回のモデル^{15, 16)} を H^- 生成に重要な $H_2^*(v'')$ 全てを考慮したモデルに拡張して, H^- 生成のプラズマパラメータ依存性および正・負イオン生成に及ぼす壁の作用について再度検討すると共に,¹⁷⁾ 現時点で得られている実験結果^{13, 19)} との比較検討を行った。

2. 数値解析モデル

水素放電による H^- の生成機構を検討した前回のモデル^{15, 16)} を拡張して, H^- 生成に重要な振動準位が 5 ~ 10 の励起分子 $H_2^*(v'')$ 6 種を全て加えたモデルとした。従って, 本モデルで考慮している粒子は, 中性粒子として原子 H, 基底状態にある分子 H_2 , 振動準位 v'' が 5 ~ 10 の $H_2^*(v'')$, 正イオンとして原子イオン H^+ , 分子イオン H_2^+ 及び H_3^+ , 負イオンとして H^- , そして電子としてプラズマ電子 e と高速一次電子 e_f の計 14 種である。これらの粒子による水素放電中の主な反応過程を同時に扱うことにより各種粒子に対する連続の式を立て, プラズマの準中性条件及び粒子数保存の式を連立させて水素プラズマ中の粒子組成を求める。

2.1 水素放電中の諸反応過程

本モデルで考慮している反応過程を以下に示す。まず正イオンの生成・消滅に関する反応過程を (1) ~ (14) に示す。

反応過程	反応率
$H_2 + e \rightarrow H_2^+ + 2e$, α_1 (1)
$H_2 + e \rightarrow 2H + e$, α_2 (2)
$H_2^+ + e \rightarrow H^+ + H + e$, α_3 (3)
$H_2^+ + H_2 \rightarrow H_3^+ + H$, α_4 (4)
$H + e \rightarrow H^+ + 2e$, α_5 (5)
$H_3^+ + e \rightarrow H + H_2$, α_6 (6)
$H_3^+ + e \rightarrow H^+ + 2H + e$, α_7 (7)
$H_2^+ + e \rightarrow 2H$, α_9 (8)
$H_2^+ + H_2 \rightarrow H + H^+ + H_2$, α_{10} (9)
$H_2 + e_f \rightarrow H_2^+ + e_f + e$, α_{f1} (10)
$H_2 + e_f \rightarrow 2H + e_f$, α_{f2} (11)
$H_2^+ + e_f \rightarrow H^+ + H + e_f$, α_{f3} (12)
$H + e_f \rightarrow H^+ + e_f + e$, α_{f5} (13)
$H_3^+ + e_f \rightarrow H_2^+ + H + e_f$, α_{f8} (14)

次に負イオンの生成・消滅に関する反応過程を (15) ~ (22) に示す。

反応過程	反応率
$H_2 + e \rightarrow H^- + H$, k_1 (15)
$H_2^+ + e \rightarrow H^+ + H^-$, k_2 (16)
$H^- + e \rightarrow H + 2e$, k_3 (17)
$H^- + H^+ \rightarrow 2H$, k_4 (18)
$H^- + H_2^+ \rightarrow H + H_2$, k_5 (19)
$H_2^*(v'') + e \rightarrow H^- + H$, $k_6(v'')$ (20)
$H^- + H_3^+ \rightarrow 2H + H_2$, k_7 (21)
$H^- + e_f \rightarrow H + e_f + e$, k_{f3} (22)

反応過程 (20) の反応率 $k_6(v'')$ は, Wadehra による理論値を用いた。¹⁰⁾ その他の (1) ~ (22) の反応率については, 以前の計算と同じ値を用いた。¹⁵⁾

最後に振動励起分子の生成・消滅に関する反応過程を (23) ~ (26) に示す。

反応過程	反応率
$H_2 + e_f \rightarrow H_2^*(v'') + e_f$, $k_{0,v''}$ (23)
$H_2^*(v'') + H_2 \rightarrow H_2^*(v'' \pm 1) + H_2$, $P_{v'',v'' \pm 1}$ (24)
$H_2^*(v'') + H_2^*(w-1) \rightarrow H_2^*(v''-1) + H_2^*(w)$, $P_{v'',v''-1}^{w,w-1}$ (25)

H_2^+ , H_3^+ の中性粒子への
変換に伴う $H_2^*(v'')$ の生成 (26)

v'' および w は, 励起分子の振動準位を示している。(23) の反応率 $k_{0,v''}$ は, Hiskes による衝突断面積 σ の理論値¹¹⁾ と e_f の速度 v_f の積より求めた。(24), (25) の反応率 $P_{v'',v'' \pm 1}$ と $P_{v'',v''-1}^{w,w-1}$ は, Capitelli 等と同様の手法²⁰⁾ をもちいて以下の関係式より求めた。

$$P_{v'',v''-1}^{w,w-1} = Z_{11} P_{11} T_e [v'' / (1 - \delta v'')] F(x_{v'',v''-1}) \quad (27)$$

$$P_{v'',v''+1} = P_{v''+1,v''} \exp[(E_{v''} - E_{v''+1})/\kappa T_g] \quad (28)$$

上式中の $E_{v''}$ は振動準位が v'' である励起分子のエネルギーであり、 κ はボルツマン定数である。

$$P_{v'',v''-1}^{w_1} = Z_{11} Q_{11} T_g [v''/(1-\delta v'')] \times [w/(1-\delta w)] F(y_{v'',v''-1}^{w_1}) \quad (29)$$

Z_{11} は、 H_2-H_2 間の衝突数 (cm^3/s) で次式により得られる。

$$Z_{11} = 4 \sigma_{11}^2 (\pi \kappa T_g / 2 m_{11})^{1/2} \quad (30)$$

$$\sigma_{11} = \sigma_{H_2-H_2} = 2.93 \text{ \AA} \quad (31)$$

$$F(x) = 1/2 \times [3 - \exp(-2x/3)] \exp(-2x/3) \quad (32)$$

$$x_{v'',v''-1} = (1/2)^{3/2} (\theta'_{11}/T_g)^{1/2} (1-2\delta v'') \quad (33)$$

$$y_{v'',v''-1}^{w_1} = 2\delta (1/2)^{3/2} (\theta'_{11}/T_g)^{1/2} |v''-w| \quad (34)$$

ただし、 $\delta = 0.0278$, $\theta'_{11} = 3.48 \times 10^6 \text{ K}$ である。

また、 P_{11} と Q_{11} は、(27), (29)式より求まる値を実験データと合わせるための無次元の補正係数である。反応過程(26)は、例えば H_2^+ , H_3^+ がそれぞれ(19), (6)の反応過程により H_2 に変換されるが、そのうちある確率 (H_2^+ に対しては P_1 , H_3^+ に対しては P_2 とする) で $H_2(v'')$ が生じると仮定したことに対応している。更に反応過程(26)の中には荷電交換反応、 $H_2^+ + H_2 \rightarrow H_2 + H_2^+$ も含め、その反応率を $\beta_1 = 3 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{sec}$ とした。この(26)の反応過程により生じた $H_2^*(v'')$ は、各振動準位に同じ割合で分配されるものとする、

なお、(1)~(22)の反応過程において、 e はマクスウェル分布しているとして、 e の関与する反応率は分布関数で平均化した値であり、 T_e の関数となる。また、イオン源内のフィラメントから飛び出した電子が e_f の役割をになうが、ここでは全ての e_f は同じエネルギーを持っていると仮定した。

2.2 基礎方程式及び数値計算法

(1)~(26)の反応過程と中性粒子 ($H, H_2^*(v'')$) の壁での作用を考慮して、水素放電中の定常状態における $H, H^+, H_2^+, H_3^+, H^-, H_2^*(v'')$ ($v'' = 5 \sim 10$) の各粒子に対する連続の式を立てる。(35)~(44)式にそれを示す。

$$\begin{aligned} H: & \{N_2 + \sum N_2^*(v'')\} (2n_e \alpha_2 + 2n_{fe} \alpha_{f2} + n_2 \alpha_4 \\ & + n_2 \alpha_{10}) + N_2 n_e k_1 + \sum n_e N_2^*(v'') k_6(v'') \\ & + n_2 (n_e \alpha_3 + n_{fe} \alpha_{f3} + 2n_e \alpha_9) \\ & + n_3 (2n_e \alpha_7 + n_e \alpha_6 + n_{fe} \alpha_{f8}) - N_1 (n_e \alpha_5 \\ & + n_{fe} \alpha_{f5}) + n_- (n_e k_3 + 2n_1 k_4 + n_2 k_5 + 2n_3 k_7 \\ & + n_{fe} k_{f3}) - \gamma_1 N_1 / T_1 = 0 \end{aligned} \quad (35)$$

$$\begin{aligned} H^+: & N_1 (n_e \alpha_5 + n_{fe} \alpha_{f5}) + \{N_2 + \sum N_2^*(v'')\} n_2 \alpha_{10} \\ & + n_2 (n_e \alpha_3 + n_{fe} \alpha_{f3} + n_e k_2) + n_3 n_e \alpha_7 \end{aligned}$$

$$-n_1 (1/\tau_1 + n_- k_4) = 0 \quad (36)$$

$$\begin{aligned} H_2^+: & \{N_2 + \sum N_2^*(v'')\} \{n_e \alpha_1 + n_{fe} \alpha_{f1} - n_2 (\alpha_4 + \alpha_{10})\} \\ & + n_3 n_{fe} \alpha_{f8} - n_2 (n_e \alpha_3 + n_{fe} \alpha_{f3} + n_e \alpha_9 + n_e k_2 \\ & + n_- k_5 + 1/\tau_2) = 0 \end{aligned} \quad (37)$$

$$\begin{aligned} H_3^+: & \{N_2 + \sum N_2^*(v'')\} \{n_2 \alpha_1 - n_3 (n_e \alpha_6 + n_e \alpha_7 + n_{fe} \alpha_{f8}) \\ & + n_- k_7 + 1/\tau_3\} = 0 \end{aligned} \quad (38)$$

$$\begin{aligned} H^-: & N_2 n_e k_1 + n_2 n_e k_2 + \sum n_e N_2^*(v'') k_6(v'') \\ & - n_- (n_e k_3 + n_1 k_4 + n_2 k_5 + n_3 k_7 + n_{fe} k_{f3} \\ & + 1/\tau_-) = 0 \end{aligned} \quad (39)$$

$$\begin{aligned} H_2^*(v''): & \text{SUM1} + N_2 n_{fe} k_{0,v''} + N_2^*(v''+1) \{N_2 P_{v''+1,v''} \\ & + \sum_{w^*} N_2^*(w) P_{v'',w-1}^{w^*}\} + N_2^*(v''-1) \{N_2 P_{v''-1,v''} \\ & + \sum_{w^*} N_2^*(w) P_{w,w-1}^{w^*}\} - N_2^*(v'') \{\text{SUM2} + 2n_e \{k_6(v'') \\ & + N_2 (P_{v'',v''-1} + P_{v'',v''+1}) + \sum_{w^*} N_2^*(w) P_{v'',w-1}^{w^*} \\ & + \sum_{w^*} N_2^*(w) P_{w,w-1}^{w^*} - N_2^*(v'')\} = 0 \end{aligned} \quad (40)$$

ここで

$$\begin{aligned} \text{SUM1} = & \{N_2 n_2 P_1 \beta_1 + n_2 (n_- P_1 k_5 + P_1 / \tau_2) \\ & + n_3 P_2 (n_e \alpha_6 + n_- k_7)\} / 6 \end{aligned} \quad (41)$$

$$\begin{aligned} \text{SUM2} = & n_e (\alpha_1 + \alpha_6) + n_{fe} (\alpha_{f1} + \alpha_{f2}) \\ & + n_2 (\alpha_4 + \alpha_{10}) + \gamma_2 / T_2 \end{aligned} \quad (42)$$

更に準中性の条件と粒子数保存の条件より次の2式が得られる。

$$n_1 + n_2 + n_3 = n_e + n_{fe} + n_- \quad (43)$$

$$N_1 + 2 \{N_2 + \sum N_2^*(v'')\} + n_1 + 2n_2 + 3n_3 + n_- = 2N_0 \quad (44)$$

ただし、 $N_1, N_2, N_2^*(v''), n_1, n_2, n_3, n_-, n_e, n_{fe}$ は、それぞれ $H, H_2, H_2^*(v''), H^+, H_2^+, H_3^+, H^-, e, e_f$ の密度である。また N_0 は、放電前の中性粒子密度であり、水素ガス圧 P およびガス温度 T_g を決めることより求まる。 $\sum N_2^*(v'')$ は放電容器内の v'' が $5 \sim 10$ の $H_2^*(v'')$ 密度の総和である。 T_1, T_2 は $H, H_2^*(v'')$ の容器内の走行時間であり、発生した $H, H_2^*(v'')$ がそのまま壁へ飛び込むと仮定して、 $4 \text{ V}/(v_0 A)$ で標値する。 V は容器体積、 A は容器表面積、 v_0 は中性粒子の平均速度である。 $\tau_1, \tau_2, \tau_3, \tau_-$ は、それぞれ H^+, H_2^+, H_3^+, H^- の閉じ込め時間である。ところで、ここで扱うプラズマパラメータの範囲では、プラズマは無衝突的であり、自由落下の理論が成り立つ。従ってイオンの閉じ込め時間は、 $\tau_1 : \tau_2 : \tau_3 = 1 : 2^{1/2} :$

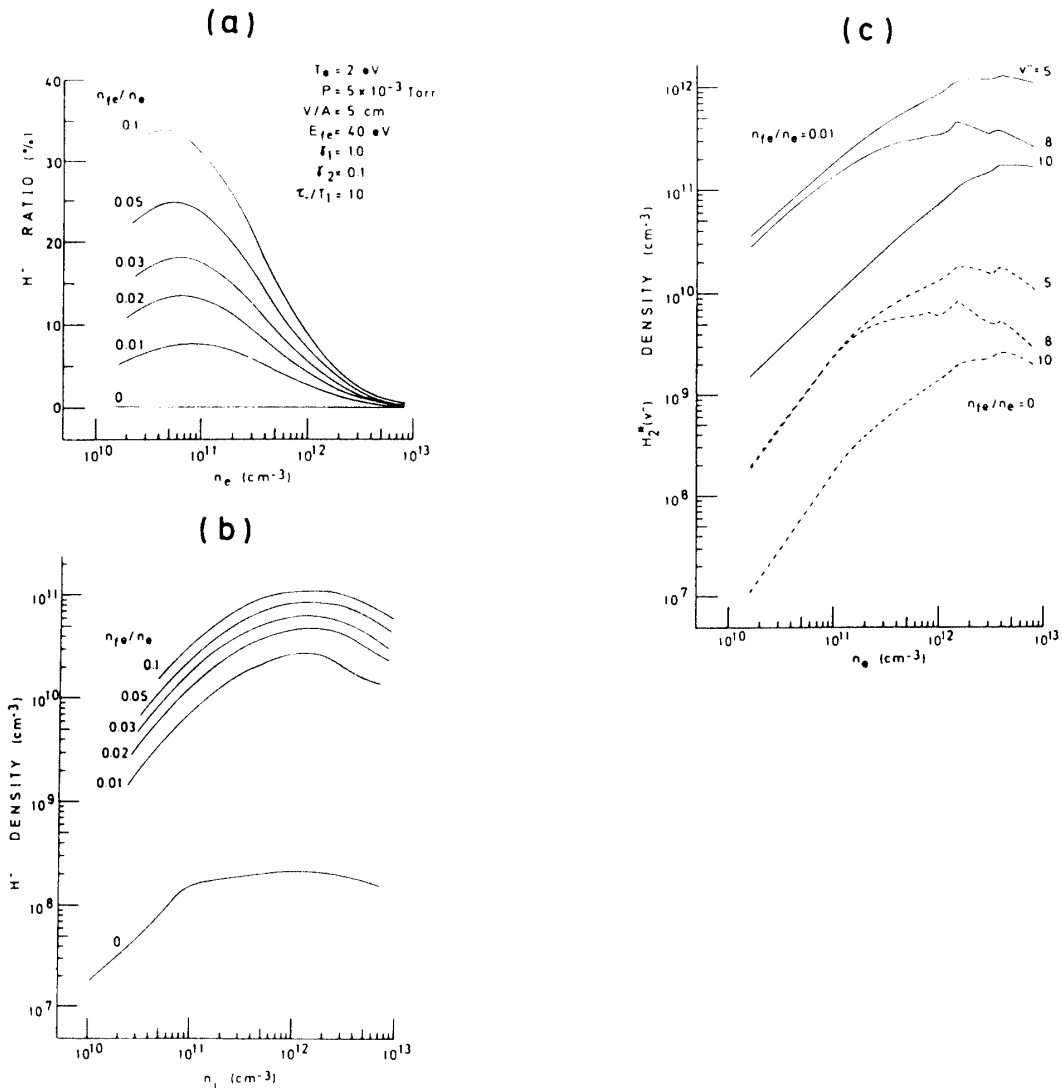


Fig. 1 (a) Variation of H⁻ ratio, H⁻/(H⁺+H₂⁺+H₃⁺), vs electron density n_e , (b) variation of H⁻ density vs total density of positive ions n_i and (c) variation of H₂^{*}(v'') density vs n_e . The parameter in (a) and (b) is the ratio of fast electron to plasma electron density n_{fe}/n_e . Plasma parameters are shown in the figure, and other conditions are $p_1 = p_2 = 0.1$.

$3^{1/2}$ と仮定し、 τ_1 は未知数とした。 τ_2 は、 T_1 に対する比として与えた。 γ_1 は H の壁面での再結合係数で、 $\gamma_1 = 1 - f_{out}/f_{in}$ (f_{out} , f_{in} は各々 H の壁からの流出束及び壁への流入束) で定義され、壁に衝突した H の一部が反射される場合には、 $\gamma_1 < 1$ となる。 γ_2 は H₂^{*}(v'') の壁での衝突係数であり、壁との衝突により H₂ 又は他の振動準位への変換に要する衝突回数の逆数である。

以下に計算手順を示す。 圧力 P を定めることにより N_0 を求め、電子温度 T_e と高速一次電子のエネルギー E_{fe} を決めることにより反応率が得られる。そして、 n_e を指定して(35)~(44)式を連立して解くことにより、 $N_1, N_2, N_2^*(v''), n_1, n_2, n_3, n_-, \tau_1$ を求める。

3. 計算結果及び考察

3.1 正・負イオン生成のプラズマパラメータ依存性

Fig. 1 に H⁻ 生成の n_e 依存性および H⁻ 生成に対する e_f の役割に関する結果を示す。 (a) には H⁻ 比率 (全正イオンに対する H⁻ の比率) と n_e の関係を、(b) には (a) の結果から求めた H⁻ 密度と n_i (全正イオン密度) の関係を示す。パラメータは、ともに n_{fe}/n_e である。また、(c) には $n_{fe}/n_e = 0$ と 0.01 の時の H₂^{*}(v'') 密度と n_e の関係を示す。図には $v'' = 5, 8, 10$,

の $H_2^*(v'')$ 密度しか示していないが、他の振動準位の $H_2^*(v'')$ 密度も $v'' = 5 \sim 10$ の間にある。これらの図より、わずかの e_f の存在が H^- 生成に強く影響すること、および n_e は H^- 生成に対して或る最適値を持つことがわかる。 e_f の存在により H^- 生成量が増加するのは、(c) から明らかなように e_f が少しでも存在すると H^- 生成に一番寄与している $H_2^*(v'')$ 密度が増加するためである。しかしながら、 $H_2^*(v'')$ 密度は $n_e = 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ 付近で飽和する傾向にあるため、 $H_2^*(v'')$ からの H^- 生成量は飽和する。さらに次節 (3.2) でも述べるが、 n_e の上昇とともに H^+ 比が増加するため、 H^- 消滅過程の中で一番反応率の高い過程 (18), $H^- + H^+ \rightarrow 2H$, の影響により高密度領域で H^- は減少する。従って、 n_e は H^- 生成に対して最適値をもつ。

Fig. 2 に H^- 生成の P 依存性について示す。(a) に H^- 比率と P , (b) に正イオン種組成比と P , (c) には $H_2^*(v'')$ 密度と P の関係を示している。(a) のパラメータは τ_-/T_1 であり、 H^- 比率は τ_- が大きくなるに従って増加している。本研究で対象としているバケット型イオン源は、プラズマ電位が容器壁の陽極電位より正になっているため、 H^- はプラズマ中に捕捉された状態にある。従って、 $\tau_-/T_1 = 20$ でも H^- の閉じ込め評価としては、不自然ではないと考えられる。正イオン種組成と $H_2^*(v'')$ 密度は、 τ_-/T_1 を変えてもほとんど影響を受けないため、代表例として $\tau_-/T_1 = 2$ の場合を示す。(b), (c) に示しているように P の増加により $H_2^*(v'')$ 密度は上昇するが、このプラズマパラメータ範囲では正イオン種組成はほとんど分子イオンである。このため、 H^- の一番反応率の高い消滅過程 (18) は、ほとんど影響しない。また、 P の上昇とともに $H_2^*(v'')$ 生成量は増加し、(a) に示すよ

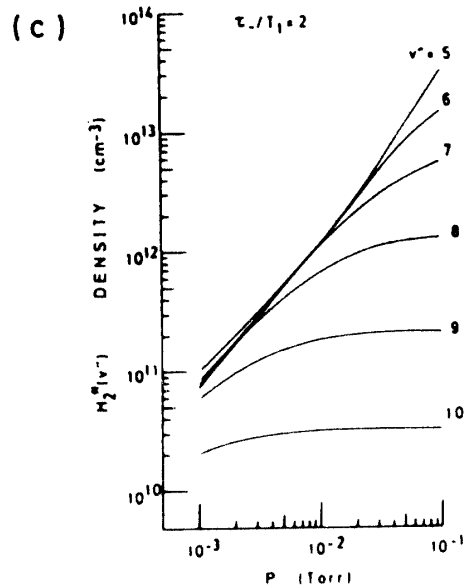
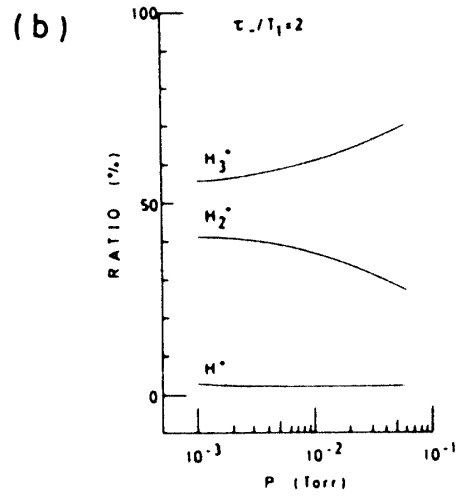
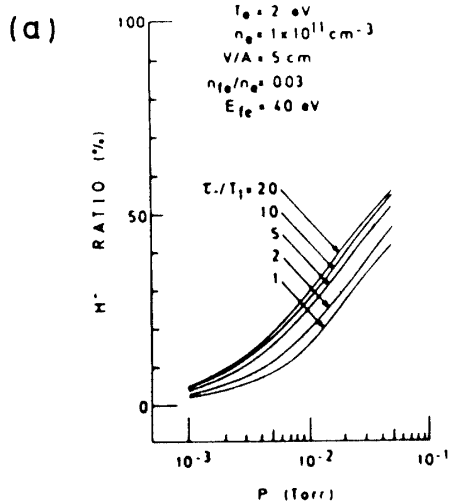


Fig. 2 Pressure dependence of (a) H^- ratio, (b) positive ion species ratio and (c) $H_2^*(v'')$ density. The parameter is the ratio of the confinement time of H^- to the transit time of H , τ_-/T_1 . As varying τ_-/T_1 from 1 to 100 produces little change in positive ion species ratios and $H_2^*(v'')$ density, only the result ($\tau_-/T_1 = 2$) is plotted.



うに H^- 比率は P の上昇とともに増加する。しかしながら、 P の上昇により H_2 密度も増加し、 $H_2^*(v'') + H_2 \rightarrow H_2^*(v''-1) + H_2$ の反応が盛んになるため v'' の高い $H_2^*(v'')$ 密度は飽和している。従って、 P がより高くなると、 H^- 比率は飽和すると考えられる。

Fig. 3 に H^- 生成の T_e 依存性を示す。(a) に示した H^- 比率は、 T_e の上昇とともに減少している。(b) に示した正イオン種組成比は、ほとんどが分子イオンで H^+ イオンはわずかしかな含まれない。また、(c) に示した $H_2^*(v'')$ 密度は、 T_e の上昇とともにわずかながら上昇する傾向にある。一方、有力な H^- の生成過程

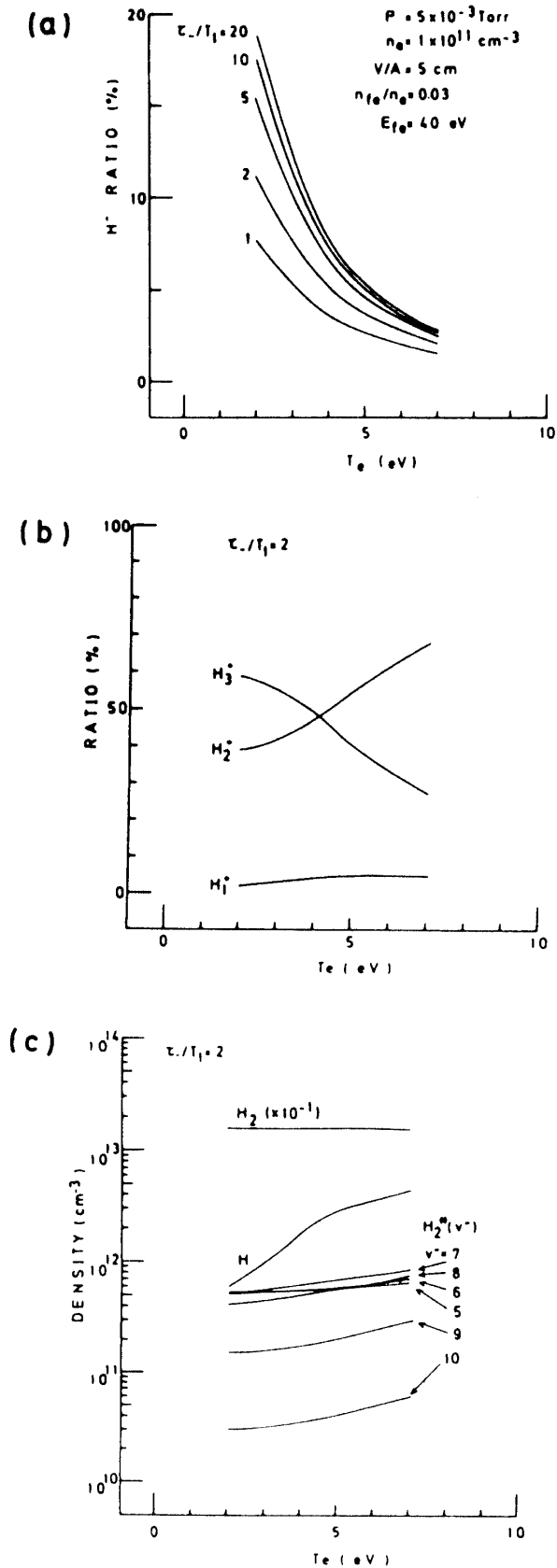


Fig. 3 Electron temperature dependence of (a) H^- ratio, (b) positive ion species ratio and (c) H_2 , H and $H_2^*(v'')$ densities. The value of τ_-/T_1 is two in (b) and (c).

(20) の反応率 $k_6(v'')$ は, T_e の上昇とともに減少する¹⁰⁾ 従って, T_e の上昇による H^- 比率の減少は, 反応過程 (20) の反応率 $k_6(v'')$ の T_e 依存性に起因している。

3.2 正・負イオン生成に及ぼす壁の作用

H および $H_2^*(v'')$ と壁との相互作用が正・負イオン生成に及ぼす影響について γ_1, γ_2 を変化させて検討した。

まず, Fig. 4 (a) に $\gamma_1 = 1.0$ の時の H^- 密度と n_e の関係を, (b) に正イオン種組成比と n_e の関係を, そして (c) に中性粒子密度 ($H, H_2, H_2^*(v'')$) と n_e の関係を示す。正イオン種組成比において, H^+ 比は $n_e = 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ 以上で急増している。また, 中性粒子密度において, H 密度は n_e の上昇とともに直線的に増加するが, $H_2^*(v'')$ 密度は $n_e = 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ 付近で飽和する傾向がある。このため, n_e が上昇すると H^+ が増加することにより H^- の消滅過程が増加し, H^- 生成量は飽和する。従って, 前にも述べた (3.1節) が, (a) に示すように n_e は H^- 生成に対して最適値をもつ。

次に, H の壁での再結合係数 γ_1 がイオン種組成に及ぼす影響を検討するために, Fig. 5 に $\gamma_1 = 0.01$ とした場合の Fig. 4 に対応する結果を示す。 γ_1 が減少することによって H 密度は n_e の低密度側で 2 桁程度も上昇し, H^+ 比も $n_e = 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ 付近より急増し始める。これに対し, $H_2^*(v'')$ 密度はほとんど変化がなく, H^- 密度は減少している。これは, γ_1 が減少すると H の壁での損失が減少して H 密度が上昇するため, H^+ の生成過程 (5) が盛んになり H^+ 比が増加する。一方, H^+ 比が増すと H^- の消滅過程 (18) が増加し, H^- 生成量は減少する。従って, γ_1 が 1 に近い程 H^- 生成量は増加する。本文では $\gamma_1 = 1.0$ と 0.01 の場合について示しているが, 実際に γ_1 は容器壁の材質によって大きく変化する。パイレックス・石英等に比較すれば, 金属は 1 に近い。しかし, 金属でもその種類により 1 ~ 0.02 の範囲で変化するという実験例がある²¹⁾ 更に, 同じ金属であってもその表面状態 (金属中の H 密度を含む) によっても実効的な γ_1 は変化するという報告もある^{22, 23)} 従って, γ_1 を 1 ~ 0.01 の範囲で変化させることは, そう非現実的なことではない。

最後に, Fig. 6 に $H_2^*(v'')$ と壁との相互作用が, H^- 生成に及ぼす影響について示す。(a) には H^- 比率と n_e の関係, (b) には H^- 密度と n_e の関係を示す。パラメータは, ともに $H_2^*(v'')$ の壁での衝突係数 γ_2 であ

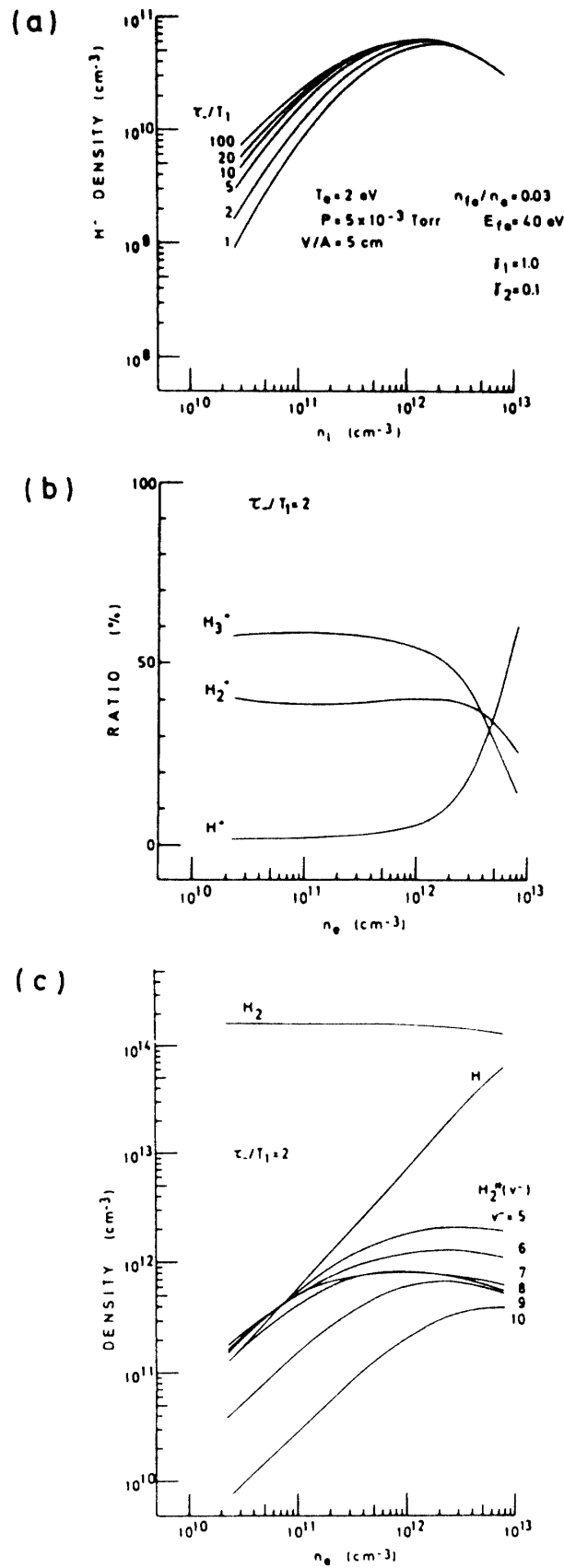


Fig. 4 (a) Variation of H^- density vs n_i , (b) variation of positive ion species ratio vs n_e and (c) variation of H_2 , H and $H_2^*(v'')$ densities vs n_e . Wall parameter for H , χ_1 , is 1.0. Plasma parameters are the same as ones in Fig. 1, except that n_{i0}/n_e is 0.03 and τ_-/T_1 is a parameter.

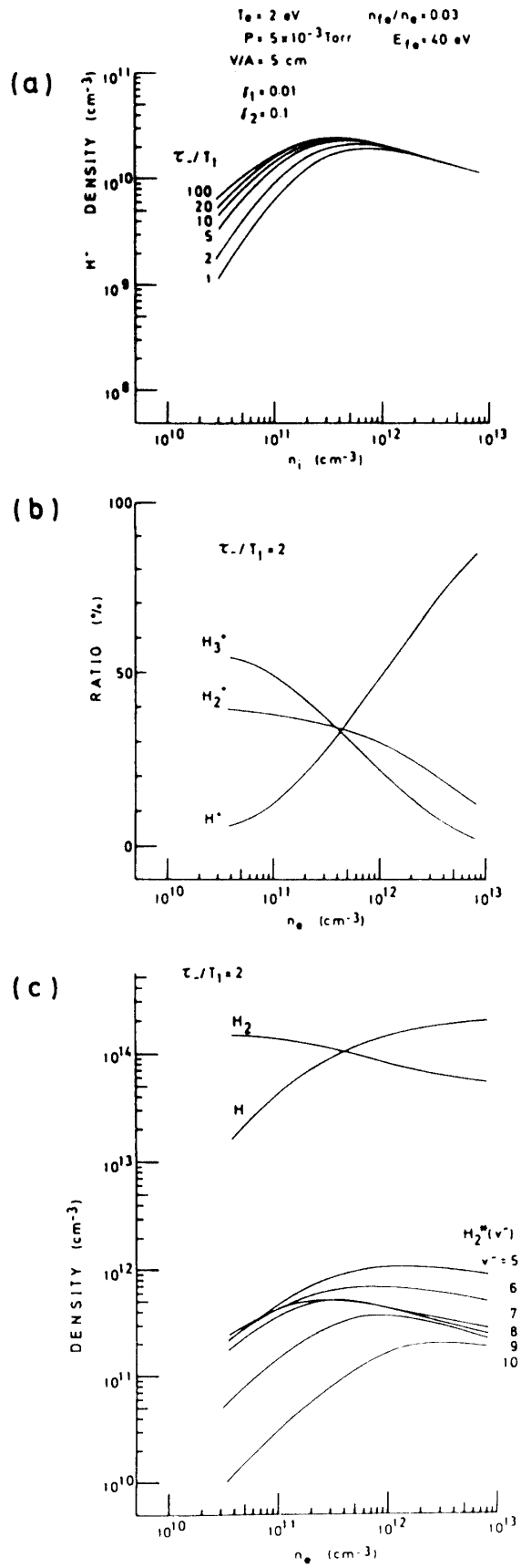


Fig. 5 (a) Variation of H^- density vs n_i , (b) variation of positive ion species ratio vs n_e and (c) variation of H_2 , H and $H_2^*(v'')$ densities vs n_e . Numerical conditions are the same as ones in Fig. 4 except that $\chi_1 = 0.01$.

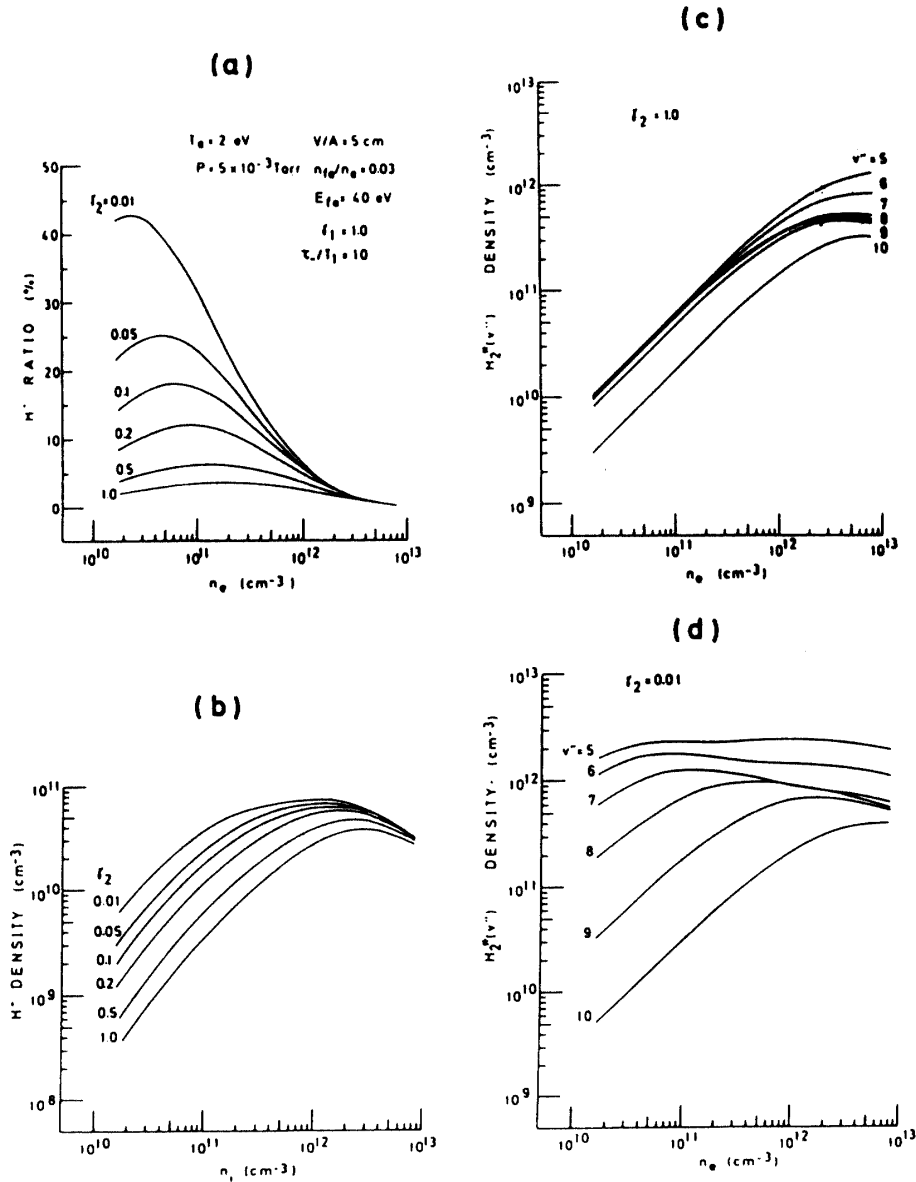


Fig. 6 Illustration of the effect of γ_2 on H^- production: (a) Variation of H^- ratio vs n_e , (b) variation of H^- density vs n_e , (c) variation of $H_2^*(v'')$ density vs n_e for $\gamma_2 = 1.0$ and (d) variation of $H_2^*(v'')$ density vs n_e for $\gamma_2 = 0.01$.

る。また、(c)、(d)には、各々 $\gamma_2 = 1.0$ と 0.01 の時の $H_2^*(v'')$ 密度と n_e の関係を示す。 γ_2 を小さくすると、 $H_2^*(v'')$ の実効的な閉じ込め時間が長くなるため、 $H_2^*(v'')$ 密度は増加している。従って、 γ_2 が小さい程 H^- 比率、 H^- 密度ともに増加している。対象となる励起分子の振動準位が $5 \sim 10$ と比較的高いので、励起分子が壁との1回の衝突により基底状態に遷移するとは考え難い。そこで本計算では、任意に γ_2 の値を $1 \sim 0.01$ の範囲で変化させ $H_2^*(v'')$ に対する壁の作用を検討してみた。 γ_2 の値が1以下になることを示唆するシミュレーション結果もあるが、²⁴⁾ 実験的な裏付けはまだない。

3.3 実験結果との比較

前回のモデルでは、^{15,16)} 14の振動準位の中で或る1つの準位の励起分子のみが存在すると仮定していたが、本モデルでは H^- 生成に必要な複数個($v'' = 5 \sim 10$)の振動準位の励起分子を考慮している。本モデルに改良することにより H^- 比率は数倍上昇した。更に、 H^- 生成に対して n_e は最適値をもつことを再度確認し、 P の上昇により H^- 生成は飽和する傾向が見られた。また、計算結果よりプラズマパラメータが $T_e = 2eV$, $P = 5 \times 10^{-3} Torr$, n_i/n_e が $0.02 \sim 0.1$ の範囲で、 H^- 比率は最適の電子密度($n_e \approx 10^{11} cm^{-3}$)において約 $13 \sim 35\%$ 程度になった。このような水素プラズマ中

のイオン種組成についての検討は、実験的にも多くなされている。^{13,19,25-27)} 以下では、本研究で対象としているバケット型イオン源を用いて水素プラズマ中の負イオン生成についての研究を行った Bacal 等による実験結果を一例として挙げ、¹³⁾ 上述の計算結果と比較検討する。彼らの報告によると10~50%の H^- 比率のプラズマが得られ、 $P = 3.3 \times 10^{-3}$ Torr, $T_e \cong 0.5$ eV, $n_e \cong 10^{11}$ cm⁻³ のプラズマパラメータにおいて H^- 比率は15%程度であった。また H^- 生成に対して P は、最適値をもつことが報告されている。これらの実験結果は、 γ_2 という任意パラメータを含むものの本研究で得られた計算結果と定性的には十分に、また定量的にもよく一致している。

また、本モデルを用いた計算結果では、 H^- 生成効率を上げるためには H の壁での再結合係数 γ_1 が1に近い方がよいという結果を得た。壁の作用に関する例として Bacal 等による実験結果では、 γ_1 が非常に小さいガラス容器よりも γ_1 が1に近いステンレス容器の方が H^- 比率が低くなっている。しかしながら、Graham の実験報告では、¹⁹⁾ ステンレス容器の方がパイレックス容器よりも H^- 密度が高い結果が示されている。また、Hiskes 等による理論計算においても H^- 生成効率は、 γ_1 が大きい程よいことが示されているが、筆者等も H^- 生成に及ぼす壁の作用について実験的に検討する予定であるが、²⁰⁾ 現在までの結果を総合すると H の壁での再結合係数が1に近い程 H^- 生成には、有利と考えられる。

4. まとめ

水素プラズマ中のイオン種組成とプラズマパラメータとの関係をレート方程式を用いて検討した。特に、 H^- 生成に注目し、 H^- 生成にとって重要と考えられる振動準位 $v'' = 5 \sim 10$ の励起分子6種を含めてモデルを構成した。本研究によって得られた結果を以下に列挙する。

(1) H^- 生成機構としては、 $H_2 + e_f \rightarrow H_2^*(v'') + e_f$; $H_2^*(v'') + e \rightarrow H^- + H$ の二段階過程が主要であり、高速一次電子 e_f (30 eV 以上) と v'' が5~10の励起分子 $H_2^*(v'')$ が H^- 生成に必要なことを再度確認した。更に、本モデルにより H^- 比率は13~35%程度になり、Bacal 等による実験値 (10~50%)¹³⁾ とほぼ等しい値が得られた。

(2) H^- 生成に対するプラズマパラメータ依存性は、以下の傾向にある。 n_e は、 H^- 生成に対して最適値をもつ。これは、 n_e の上昇とともに H^+ が増加し、 H_2^*

(v'') は飽和するため、 H^- 生成量は飽和するのに対し反応率の一番高い H^- の消滅過程 ($H^+ + H^- \rightarrow 2H$) が増加するためである。 P は高い程 H^- は、多くなる。これは、 P の上昇とともに $H_2^*(v'')$ が増加するためである。しかしながら、 P がより高くなると $H_2^*(v'')$ は飽和する傾向にあるため、 H^- においても飽和すると考えられる。これらの結果は、Bacal 等による実験結果¹³⁾ とよく一致している。また、 T_e が高い程 H^- は少なくなる。これは、有力な H^- の生成過程 ($H_2^*(v'') + e \rightarrow H^- + H$) の反応率の T_e 依存性に起因している。

(3) 正・負イオン生成に対して中性粒子 (H , $H_2^*(v'')$) と壁との相互作用は大きく影響する。 γ_1 を小さくすると H と H^+ が増すため、 $H^+ + H^- \rightarrow 2H$ の反応が盛んとなり、 H^- は減少する。従って、 H^- 比を上げるためには γ_1 を小さく ($\gamma_1 \ll 1$)、 H^- 生成効率を上げるためには γ_1 を大きく ($\gamma_1 \cong 1$) する必要がある。また、 γ_2 を小さくすると $H_2^*(v'')$ の実効的閉じ込め時間が長くなるため、 H^- 生成には γ_2 の小さいものがよい。

(4) 正・負イオン生成に対するプラズマパラメータ依存性および壁の作用等を考慮すると、水素放電プラズマを正イオン源として最適化する条件と負イオン源として最適化する条件は、互いに相反している。

謝 辞

本研究の数値計算は、山口大学情報処理センターの ACOS-850 により行った。また、本研究は昭和59年度の文部省科学研究費 (一般研究C) の補助を受けて行われた。ここに記して感謝する。なお、本研究の一部は、名古屋大学プラズマ研究所との共同研究の一環としても実施された。

参 考 文 献

- 1) J. D. Lawson: Proc. Phys. Soc. (London), **B70**, 6 (1957)
- 2) 杉原, 金子: 応用物理, **49**, 1165 (1980)
- 3) M. M. Menon: Proc. IEEE, **69**, 1012 (1981)
- 4) H. Eubank et al.: Proc. Plasma Physics and Controlled Nuclear Fusion Research, **1**, 167 (IAEA, Vienna, 1979)
- 5) T. Obiki, A. Sasaki, F. Sano & K. Uo: Rev. Sci. Instrum., **52**, 1445 (1981)
- 6) K. W. Ehlers & K. N. Leung: Rev. Sci. Instrum., **52**, 1452 (1981)
- 7) Y. Okumura, H. Horiike & K. Mizuhashi: Rev. Sci. Instrum., **55**, 1 (1984)
- 8) K. W. Ehlers: J. Vac. Sci. Technol., **A1**, 974 (1983)

- 9) E. Nicolopoulou, M. Bacal & H. J. Doucet: *J. Phys. (Paris)*, **38**, 1399 (1977)
- 10) J. M. Wadehra: *Appl. Phys. Lett.*, **35**, 917 (1979)
- 11) J. R. Hiskes: *J. Appl. Phys.*, **51**, 1592 (1980)
- 12) J. R. Hiskes & A. M. Karo: *Proc. Int. Ion Engineering Congress*, **1**, 77 (1983, Kyoto)
- 13) M. Bacal, A. M. Bruneteau & M. Nachman: *J. Appl. Phys.*, **55**, 15 (1984)
- 14) 福政, 佐伯: 山口大学工学部研究報告, **35**, 159 (1984)
- 15) 福政, 佐伯, 大崎, 崎山: 電気学会プラズマ研究会, 資料番号 EP-84-37 (1984)
- 16) O. Fukumasa & S. Saeki: *J. Phys. D (Appl. Phys.)*, **18**, L21 (1985)
- 17) 福政, 佐伯, 磯兼: プラズマ・核融合学会 第2回年会講演予稿集 183 (1985)
- 18) 「電子材料」編集部編: 超 LSI 時代のプラズマ化学, 工業調査会 (1983) P. 17
- 19) W. G. Graham: *J. Phys. D (Appl. Phys.)*, **16**, 1907 (1983)
- 20) M. Capitelli, M. Dilonardo & E. Molinari: *Chem. Phys.*, **20**, 417(1977)
- 21) B. J. Wood & H. Wise: *2nd Int. Symp. Rarefied Gas Dynamics*, 51(Academic Press, 1961)
- 22) O. Fukumasa, R. Itatani, S. Saeki, K. Osaki & S. Sakiyama: *Phys. Lett.* **100A**, 186 (1984)
- 23) O. Fukumasa, R. Itatani, S. Saeki, K. Osaki & S. Sakiyama: *Research Report IPPJ 687*, Institute of Plasma Physics, Nagoya Univ. (1984)
- 24) A. M. Karo, T. M. DeBoni & J. R. Hiskes: *Proc. 2nd Int. Symp. on the Production and Neutralization of Negative Hydrogen Ions and Beams* (Brookhaven National Laboratory, 1980) P. 74.
- 25) K. N. Leung, K. W. Ehlers & M. Bacal: *Rev. Sci. Instrum.*, **54**, 56 (1983)
- 26) J. Uramoto: *Research Report IPPJ-645*, Institute of Plasma Physics, Nagoya Univ. (1983)
- 27) K. Jimbo: *Phys. Fluids*, **27**, 2752 (1984)
- 28) J. R. Hiskes & A. M. Karo: *J. Appl. Phys.*, **56**, 1927 (1984)
- 29) 上田 貢: 山口大学工学部 昭和59年度 学上論文 (1985)

(昭和60年4月15日受理)