

水素放電による負イオン生成に関する数値計算 (I)

— H^- 生成機構 —

福政 修, 佐伯 節夫

(山口大学工学部)

(1985年9月21日受理)

Numerical Simulation on Volume Production of
Negative Ions in Hydrogen Plasmas (I)— the Mechanism of H^- Production —

Osamu Fukumasa and Setsuo Saeki

(Received September 21, 1985)

Abstract

In order to study the mechanism of H^- production caused by hydrogen discharges and the dependence of H^- production on plasma parameters, a comprehensive model is presented. The model considers important processes for the production of both H^- and positive ions. A set of particle balance equations in a steady state hydrogen plasma is solved numerically. The calculated results have confirmed that H^- ions are generated by dissociative attachment to highly vibrationally excited hydrogen molecules (vibrational level $v''=5-10$) and these molecules are produced by electrons with energies in excess of 30 eV.

1. はじめに

高速の中性粒子ビーム入射 (Neutral Beam Injection, NBIと略す) によるプラズマ加熱は, 炉心プラズマの追加加熱法として有力な方法である¹⁻³⁾。しかし, 今後の大型核融合装置において加熱効率を上げるためには, NBI装置のビーム特性として①一成分のビームであること, ②ビームエネルギーは150~200 keV程度などが要求されている。

現在稼働中のNBI装置では, 必要とする中性粒子ビームはすべてイオン源で生成・加速された正イオンビームをガスセルを通して中性化する方式により得られている。水素プラズマ中には原子イオン H^+ および分

子イオン (H_2^+ , H_3^+) が存在するので、特性①を得るには H^+ イオンの比率 (プロトン比) の高いプラズマ生成が必要となる。NBI 用の大電流イオン源として数種のものが開発されているが^{3, 4)}、磁気多極型 (バケット型) イオン源を改良することでプロトン比 90% 以上のプラズマが得られるようになっている⁵⁻⁷⁾。しかし、ビームエネルギーが 50 keV 以上になると正イオンの中性化効率は急激に低下する傾向を示し、特性②のエネルギー範囲ではその効率は 10% 以下の低い値となる³⁾。

これに対して水素負イオンの中性化効率は同じエネルギー範囲にて中性ガスセル中でも 60%、光分離セル (photodetachment) の場合にはエネルギーによらず一定で 95% 程度にもなる^{8, 9)}。更に、負イオンとしては H^- イオンのみと考えられる。この理由から、核融合研究においては大電流水素負イオン源の開発が重要な課題となっている。

負イオン生成には表面変換型 (surface conversion)、電荷交換型 (charge exchange method)、体積生成型 (volume production)、透過型 (permeation type) 等の方式があり^{4, 9)}、負イオン源の開発に向けて精力的に研究が進められている。このうち、体積生成型は水素放電プラズマ中に生成された H^- イオンを直接引き出す方式である。水素放電により全正イオンに対する H^- イオンの比率が 30% にも達するプラズマ生成の可能なことが報告され^{10, 11)}、体積生成による負イオン源の開発が特に注目されている。

これは、体積生成型では (i) 表面変換型で用いるようなセシウムを塗布した金属板をプラズマ中に置く必要がないこと、(ii) 動作が安定しており、構造が簡単でスケールアップが容易なこと、(iii) 現在使用中の NBI 設備を極性を変えるだけでそのまま使用出来る等の利点を持つためと考えられる。但し、難点は、この方式で生成される H^- イオンのエネルギーがプラズマ電子のエネルギーと同程度であるため、 H^- イオンと電子との分離が難しいことである。これまでの実験的研究は低密度領域 (電子密度が高々 10^{11} cm^{-3} 程度) でのものが殆どであるが、バケット型での水素放電プラズマ¹²⁻¹⁷⁾、シートプラズマ^{18, 19)} およびフレックス型放電プラズマ²⁰⁾ 等を用いて負イオン源の研究 (プラズマ特性、 H^- 電流の引出し) が進んでいる。特にバケット型プラズマ源では H^- 密度の電子密度依存性を始めとする H^- 生成とプラズマパラメータとの関係が詳細に検討されるようになってきた^{4, 15)}。

ところで、この異常に高い H^- イオンの生成を説明するには、水素分子 H_2 とプラズマ電子 e との解離付着 ($H_2 + e \rightarrow H^- + H$) や分子イオンの解離衝突 ($H_2^+ + e \rightarrow H^- + H^+$) 等の反応過程¹⁰⁾ だけでは不十分である。そのため、 H^- 生成機構の解明を目指した理論的研究も数多くなされた²¹⁻²⁵⁾。その結果、 H^- 生成には振動励起準位にある水素分子 H_2^* 、 H_2^* を作る高速電子 e_f (エネルギー $E_{fe} \geq 30 \text{ eV}$) が関与し、 $H_2 + e_f \rightarrow H_2^* + e_f$; $H_2^* + e \rightarrow H^- + H$ の 2 段階過程が H^- 生成にとって重要な過程とされている。

実際に水素プラズマを負イオン源に応用するには、定常状態でのイオン種組成が重要な問題となる。プラズマ中には前述の粒子 (H_2 , H_2^* , H^- , e , e_f) 以外に水素原子 H 、各種正イオン (H^+ , H_2^+ , H_3^+) も存在しており、これらの粒子間には各種衝突過程を通して複雑な相互作用がある。そして、電子密度 n_e 、電子温度 T_e 、水素ガス圧 p 等の関数として定常水素プラズマ中のイオン種組成が決まると考えられる。しかし、

このような観点からの H^- 生成機構の考察および H^- 生成のプラズマパラメータ依存性については、数値的な検討は殆どなされていない²⁵⁾。

本研究では、正・負両イオンを含めたレート方程式を基礎とする負イオン源のモデルを提案し、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水素プラズマの負イオン源および正イオン源としての最適化条件などの検討を試みた^{26, 27)}。この論文Ⅰ(別にⅡを予定)では、モデルの詳細および①を中心とした計算結果について報告する。

2. 数値計算のモデル

計算に用いたモデルについて説明する。以前プロトン比に及ぼす壁の作用について議論する際に、水素プラズマ中の正イオン種組成比とプラズマパラメータとの関係を数値計算により求めたが^{28, 29)}、本研究ではこのモデルを H^- イオン生成の場合にまで拡張する。即ち、正イオン生成過程、 H^- イオン生成過程など水素プラズマ中の主な反応素過程を同時に扱うことにより、各種粒子の生成・消滅に関する釣合の方程式をたてる。そして、これらの式とプラズマの準中性の条件および全粒子数保存の条件の2つの条件式を連立させたものである。

対象とする粒子は次の9種類で、中性粒子として H 、 H_2 および H_2^* を、イオン種として H^+ 、 H_2^+ 、 H_3^+ および H^- を、そして電子として e と e_f をそれぞれ考える。なお、本論文Ⅰは H^- 生成に及ぼす H_2^* の効果を解明するのが主目的であるため、モデルの簡単化のために、或る振動準位 v'' にある H_2^* が1種あるという扱い方をする。

2.1 水素放電プラズマ中の諸反応素過程

本モデルで考慮した素過程およびその反応率の記号法を以下に示す。まず最初に正イオン生成に関連する反応をあげる。

反応素過程	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)



イオン源内で一定ガス圧のもとに定常的にプラズマが生成されている場合には、電子成分としてはマックスウェル分布した e が大部分を占める。過程(1)~(3)、(5)~(8)は e の関与する衝突過程である。一方、イオン源内プラズマには熱陰極(フィラメント)から飛び出した一次電子に起因する e_f がわずかではあるが必ず存在する。過程(10)~(14)は e_f による衝突過程を示す。

図1に本計算で用いた(1)~(7)の各素過程の反応率 α_j の値を T_e の関数として示す³⁰⁻³³⁾。 α_4 は H_2^+ と H_2 の相対速度の関数であるが³⁰⁾、本計算では $\alpha_4 = 1.5 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ で一定とし、他の反応率との比較のために同じく図1に示した。 α_9 および α_{10} に対しては文献33の値を用いた。また図2には(10)~(14)の各素過程の反応率 α_{fj} の値を e_f のエネルギー E_{fe} の関数として示す³¹⁾。

次に H^- 生成に関連する反応をあげる。

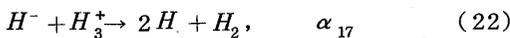
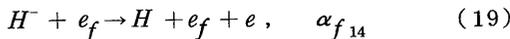
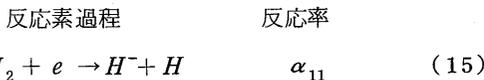


図3に各種反応率 α_j の値を T_e の関数として示す。

$\alpha_{15}, \alpha_{16} \sim \alpha_{17}$ は T_e には殆ど依存しないが、他の反応

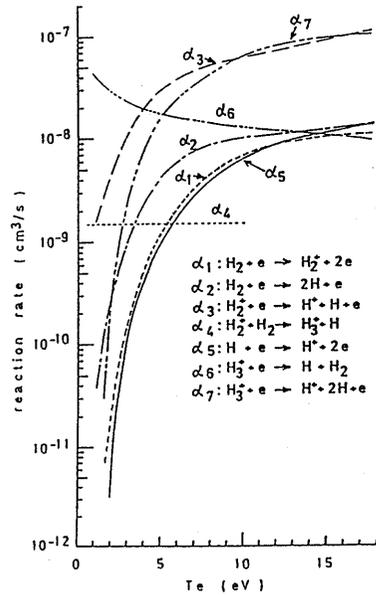


図1. 正イオン生成に関与する諸反応過程の反応率と電子温度 T_e の関係。

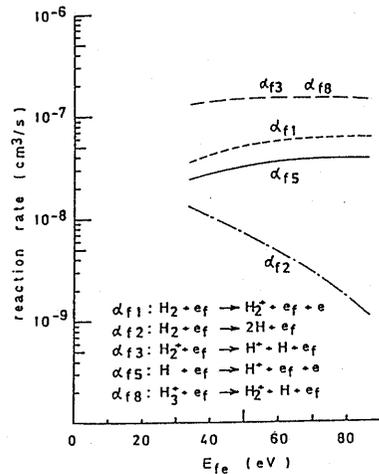


図2. 高速電子の関与する正イオン生成過程の反応率と電子エネルギー E_{fe} の関係。

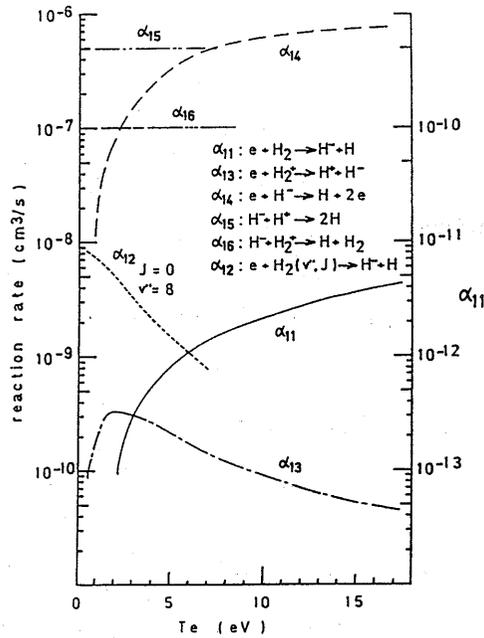
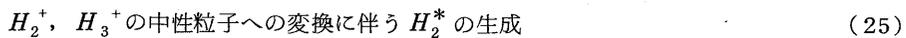
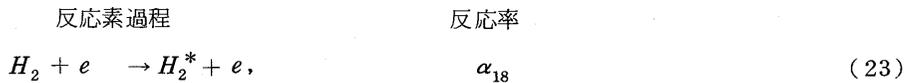


図3. H^- 生成に関する諸反応過程の反応率と T_e の関係。

率との比較のために示しておく。 α_{f14} については文献 34 の断面積と e_f の速度 v_f との積として直接求めた。なお、 α_{12} の値は理論値で振動励起準位 $v'=8$ の状態の H_2^* (但し、回転励起準位 $J=0$) と e との反応例が示してある²¹⁾。ここで注目すべき点は、 $T_e = 2 \sim 4$ eV の範囲で α_{11} と α_{12} とを比較すると、 H_2^* による H^- 生成が基底状態の H_2 による H^- 生成に対して反応率で4桁以上も大きくなっている点である。但し、 α_{12} は v' に強く依存し、 v' が小さくなれば α_{12} も小さな値となる。 $v'=2$ では、 $\alpha_{12} \cong 6.4 \times 10^{-12}$ cm³/s 程度にまで下がる²¹⁾。

最後に H^- 生成にとって重要と考えられる H_2^* の生成に関連して述べる。素過程として次の4過程を考慮する。



(電荷交換反応 $H_2^+ + H_2 \rightarrow H_2 + H_2^+$, $\alpha_{19} \cong 3 \times 10^{-10}$ cm³/s も含める)



反応(23)は v' が1, 2等の低い準位の時に重要となるが、その反応断面積は文献 35 を参考にした。反応(24)の衝突断面積 σ に関しては実測値がない。本計算では σ の値として文献 22 の理論値を用いた。 σ

の値は H_2^* の準位 v'' により大きく変化するが、同一準位を対象にすると E_{fe} が 30 eV 以上であればほぼ一定に近い値となっている²²⁾。反応(25)については、例えば H_2^+ , H_3^+ が反応(21), (6), (22) によりそれぞれ H_2 に変換されるが、そのうち或る確率 (H_2^+ に対しては p_1 , H_3^+ に対しては p_2 とする) で H_2^* が生じると仮定する。過程(26)の反応率 α_{20} については文献 23, 36を参考にした。

2. 2 基礎方程式および数値計算法

H , H_2 , H_2^* , H^+ , H_2^+ , H_3^+ , H^- , e および e_{fe} の密度をそれぞれ N_1 , N_2 , N_2^* , n_1 , n_2 , n_3 , n_- , n_e および n_{fe} とする。衝突過程(1)~(26)を考慮すると H , H_2^* , H^+ , H_2^+ , H_3^+ , H^- に対する連続の式は次式となる(定常状態を考える)。

$$\begin{aligned} H: & 2(N_2 + N_2^*)(n_e \alpha_2 + n_{fe} \alpha_{f_2}) + n_2(n_e \alpha_3 + n_{fe} \alpha_{f_3} + 2n_e \alpha_9) \\ & + n_3(n_e \alpha_6 + 2n_e \alpha_7 + n_{fe} \alpha_{f_8}) + n_2(N_2 + N_2^*)(\alpha_4 + \alpha_{10}) \\ & + N_2 n_e \alpha_{11} + N_2^* n_e \alpha_{12} + n_-(n_e \alpha_{14} + n_{fe} \alpha_{f_{14}}) + 2n_1 n_- \alpha_{15} \\ & + n_2 n_- \alpha_{16} + 2n_3 n_- \alpha_{17} - N_1(n_e \alpha_5 + n_{fe} \alpha_{f_5}) - r_1 \frac{N_1}{T_1} = 0, \end{aligned} \quad (27)$$

$$\begin{aligned} H_2^*: & N_2(n_e \alpha_{18} + n_{fe} \alpha_{f_{18}}) + p_1 \left(n_2 N_2 \alpha_{19} + n_2 n_- \alpha_{16} + \frac{n_2}{\tau_2} \right) \\ & + p_2 (n_3 n_e \alpha_6 + n_3 n_- \alpha_{17}) - N_2^* (2n_e \alpha_{12} + n_e \alpha_1 + n_{fe} \alpha_{f_1} + n_e \alpha_2 + n_{fe} \alpha_{f_2}) \\ & - N_2^* n_2 \alpha_4 - N_2^* N_2 \alpha_{20} - (1-p_1) n_2 N_2^* \alpha_{19} - r_2 \frac{N_2^*}{T_2} = 0, \end{aligned} \quad (28)$$

$$\begin{aligned} H^+: & N_1(n_e \alpha_5 + n_{fe} \alpha_{f_5}) + n_2(n_e \alpha_3 + n_{fe} \alpha_{f_3} + n_e \alpha_{13}) \\ & + n_3 n_e \alpha_7 + n_2(N_2 + N_2^*) \alpha_{10} - n_1 n_- \alpha_{15} - \frac{n_1}{\tau_1} = 0, \end{aligned} \quad (29)$$

$$\begin{aligned} H_2^+: & (N_2 + N_2^*)(n_e \alpha_1 + n_{fe} \alpha_{f_1}) + n_3 n_{fe} \alpha_{f_8} - n_2(n_e \alpha_3 + n_{fe} \alpha_{f_3} + n_e \alpha_9 + n_e \alpha_{13}) \\ & - n_2(N_2 + N_2^*)(\alpha_4 + \alpha_{10}) - n_2 n_- \alpha_{16} - \frac{n_2}{\tau_2} = 0, \end{aligned} \quad (30)$$

$$H_3^+: n_2(N_2 + N_2^*) \alpha_4 - n_3(n_e \alpha_6 + n_e \alpha_7 + n_{fe} \alpha_{f_8}) - n_3 n_- \alpha_{17} - \frac{n_3}{\tau_3} = 0, \quad (31)$$

$$\begin{aligned} H^-: & N_2 n_e \alpha_{11} + N_2^* n_e \alpha_{12} + n_2 n_e \alpha_{13} - n_-(n_e \alpha_{14} + n_{fe} \alpha_{f_{14}}) \\ & - n_1 n_- \alpha_{15} - n_2 n_- \alpha_{16} - n_3 n_- \alpha_{17} - \frac{n_-}{\tau_-} = 0, \end{aligned} \quad (32)$$

更に、準中性の条件と粒子数保存の条件から、次の2式が得られる。

$$n_1 + n_2 + n_3 = n_e + n_{fe} + n_-, \quad (33)$$

$$N_1 + 2(N_2 + N_2^*) + n_1 + 2n_2 + 3n_3 + n_- = 2N_0, \quad (34)$$

ここで T_1 , T_2 は H , H_2^* の容器内の走行時間, τ_1 , τ_2 , τ_3 , τ_- はそれぞれ H^+ , H_2^+ , H_3^+ , H^- の閉じ込め時間を表す。(27)式中 r_1 は容器壁での H の再結合係数であり, 容器材質の違い³⁷⁾ あるいは同じ材質でも壁面状態の違い^{28, 29)} によってその値が変化しうる。壁との相互作用の影響を H_2^* にも考慮して, (28)式に示すようにパラメータ r_2 を導入した。これは H_2^* が壁と衝突する際にどの程度の確率で他準位の H_2^*

あるいは H_2 に変換されるかを示している²³⁾。

発生した H , H_2^* はそのまま壁に飛び込むと考えると T_1 , T_2 を $4V/(v_0 A)$ で評価する。 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。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ものとする。従って, イオンの閉じ込め時間に関しては, $\tau_1: \tau_2: \tau_3 = 1: \sqrt{2}: \sqrt{3}$ を仮定して, τ_1 のみを未知数として扱う。また τ は T_1 に対する比として与える。

計算の手順は次のとおり。水素ガス圧 p を指定することにより $N_0 (= p/(\kappa T_0))$; κ はボルツマン定数, T_0 は室温) が決まる。 T_e および E_{fe} を指定すれば図1~3より $\alpha_1 \sim \alpha_7$, $\alpha_{f1} \sim \alpha_{f8}$ および $\alpha_{11} \sim \alpha_{16}$ の各反応率が決まる。そして n_e を定め, (27)~(34)式を連立させて解くことにより $N_1, N_2, N_2^*, n_1, n_2, n_3, n_-$ および τ_1 が求まる。なお n_{fe} は n_e に対する比として与える。

3. 計算結果および考察

3.1 粒子組成と電子密度の関係

H^- 生成機構の検討に入る前に, 連立方程式系 (27)~(34) の数値解の具体例を図4, 5に示す。これは, $T_e = 2 \text{ eV}$, $p = 5 \times 10^{-3} \text{ Torr}$, $V/A = 5 \text{ cm}$, $E_{fe} = 40 \text{ eV}$, $n_{fe}/n_e = 0.03$, $r_1 = 1.0$, $r_2 = 0.1$, $v'' = 8$, $p_1 = p_2 = 0.1$ で一定として n_e を変化させて求めた結果であり, 各粒子の n_e 依存性を表している。

ここで, 中性粒子と壁との相互作用を示す r_1, r_2 の値について簡単に説明しておく。 r_1 は H の壁面での再結合の割合を示すが, これは壁面に衝突する全 H に対する壁面で再結合して H_2 となる H の割合として定義される。即ち $r_1 = 1 - f_{out}/f_{in}$ (f_{in}, f_{out} はそれぞれ H の壁への流入束および壁からの流出束) であり, 壁に衝突した H の一部が反射される場合には $r_1 < 1$ となる。 r_1 の値は材質によって大きく変化し, 石英・パイレックス等 ($r_1 \ll 1$) に比較すると金属では1に近い。しかし, 金属であってもその材質や表面温度の違いにより, $1 \sim 0.02$ 程度には変化しうる³⁷⁾。一方, H_2^* に対する r_2 は壁との衝突による H_2^* の脱励起に関係するが, H に対する r_1 と同様の定義が可能である。励起準位の低いもの ($v'' = 1$) については r_2 の値が壁の材質により変化し

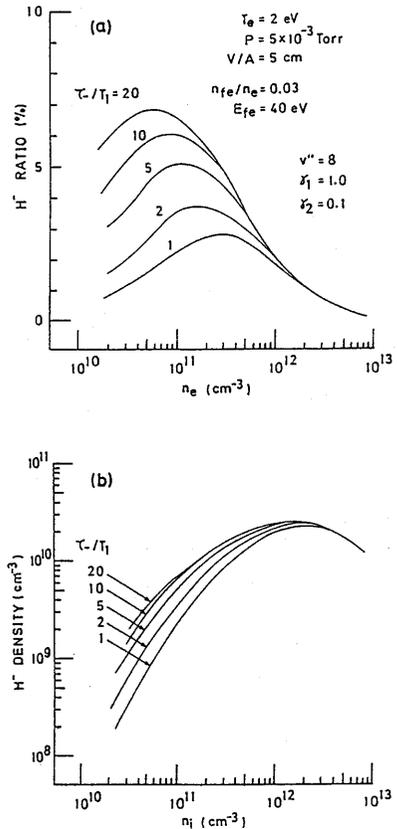


図4. H^- 生成の電子密度依存性; (a) H^- 比率, $H^- / (H^+ + H_2^+ + H_3^+)$, と電子密度 n_e の関係, (b) (a) より求めた H^- 密度と全正イオン密度 n_1 の関係。

うるとの結果が得られており、その値は1より十分小さなものとなっている³⁸⁾。しかし、高い励起準位の H_2^* に対する実験的研究はまだなく、シミュレーションによる検討のみである^{25, 39)}。その結果によれば、 v'' が大きくなる程ここで定義する r_2 の値は1に近くなる傾向を示す。

本論文では $r_1 = 1.0$ 、 $r_2 = 0.1$ にしているが、 r_1 および r_2 の違いによる H^- 生成の変化、即ち H^- 生成に及ぼす壁の作用については論文Ⅱで詳しく検討していく。

図4(a)には H^- 比率(H^- イオン密度 n_- の全正イオン密度、 $n_i = n_1 + n_2 + n_3$ 、に対する比)の n_e 依存性を、同じく(b)には n_- と n_i の関係を示す。パラメータは τ_-/T_1 である。この結果で注目すべき点は H^- 比率もしくは n_- を最大にする n_e にはある最適値が存在することであり、それ以上 n_e が増加しても逆に n_- は減少するようになる。

図5には図4に対応した正イオン種組成比および中性粒子密度の n_e 依存性を示す。但し、組成比および粒子密度ともに τ_-/T_1 の値を変化させてもその値は殆ど影響を受けないため、ここでは $\tau_-/T_1 = 10$ の結果を例として示す。 n_e の増加に伴って H は直線的に増大し続けるが、 H_2^* は飽和する傾向にある。また

n_e が 10^{12} cm^{-3} を越えるあたりから H^+ が急激に増大している。これらの傾向と図4に示した H^- 生成が飽和することとは互いに関連がある。即ち、 n_e の増大と共に H_2^* は飽和するため H^- 生成過程は反応が鈍くなるのに対して、 H および H^+ は n_e と共に増えるので $H^+ + H^- \rightarrow 2H$ などの H^- 消滅過程が盛んとなる。従って、 H^- 生成に対して n_e にはある最適値が存在する。また、 H_2^* の消滅過程として $H_2^* + H$ の衝突が重要であるとの指摘もあるが²⁵⁾、この点も n_e の増大と共に H^- 生成が低下する要因となる。

以上に示すように、定常水素放電プラズマ中にかなりの量の H^- イオンが存在しうることがわかる。そこで、この H^- 生成にはどの反応過程が重要であるかを以下に示す。

3.2 H^- 生成と高速電子の関係

図6に高速電子 e_f の量をパラメータとした場合の H^- 生成と n_e の関係を示す。プラズマパラメータ等は

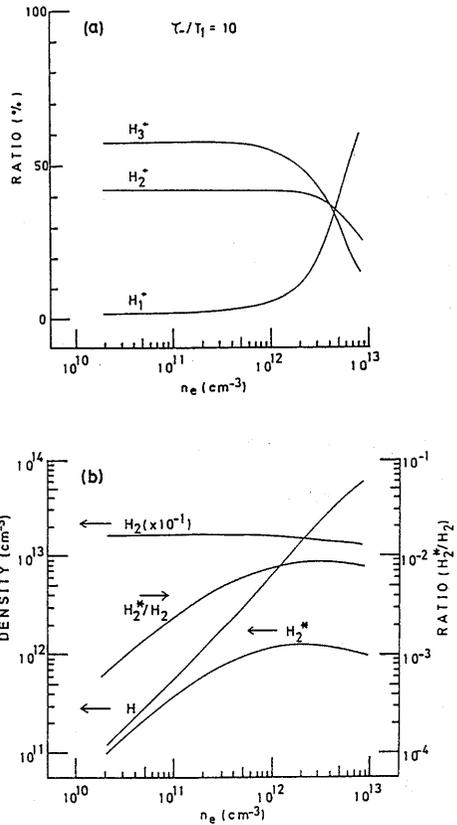


図5. 図4に対応した正イオンおよび中性粒子と n_e の関係；
(a) 正イオン種組成比の n_e 依存性、
(b) 中性粒子密度および密度比 H_2^*/H_2 の n_e 依存性。

図4の場合と同じである。 e_f が零であれば H^- 比率は殆ど零になり ($\sim 10^{-2}$ %程度), わずかでも e_f が存在すれば H^- 生成量は急激に増える。図(b)から明らかなように, n_e の最適値のあたりで ($n_i \approx 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ あたり) n_- を比較すると, 2%前後の e_f の有無により n_- には2桁以上の差が生じる。なお e_f が零の場合でも, H_2^* の生成過程として分子イオンの中性化に伴う H_2^* の生成過程(25)が含まれている。逆に $p_1 = p_2 = 0$ として計算しても, $n_{fe}/n_e = 0.03$ で n_e の最適値付近で H^- 比率が5%にも達することを確認している。以上のことを考慮すると, 図6の結果は H_2^* の生成ひいては H^- の生成にとって, e_f の存在, 即ち過程(24), が重要であることを示している。

H^- 生成に対する e_f のエネルギー依存性を示す一例として, $E_{fe} = 80 \text{ eV}$ での結果を図7に示す。他の

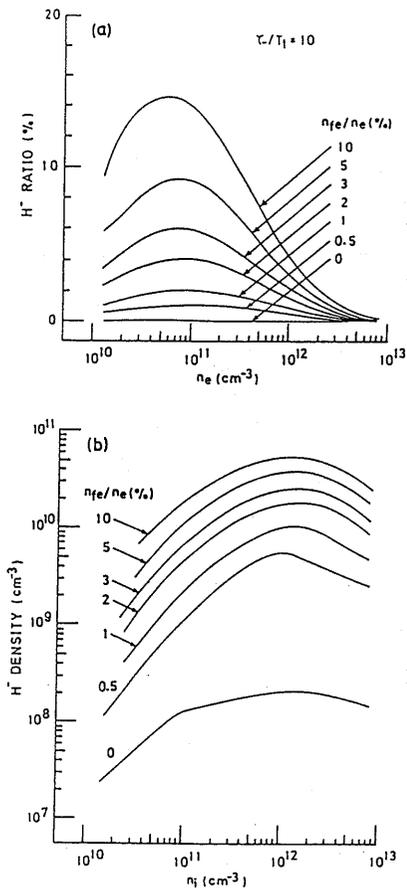


図6. H^- 生成に及ぼす高速電子 e_f の作用 (プラズマパラメータ等の数値は図4に同じ);
(a) H^- 比率の n_e 依存性,
(b) H^- 密度と n_i の関係。

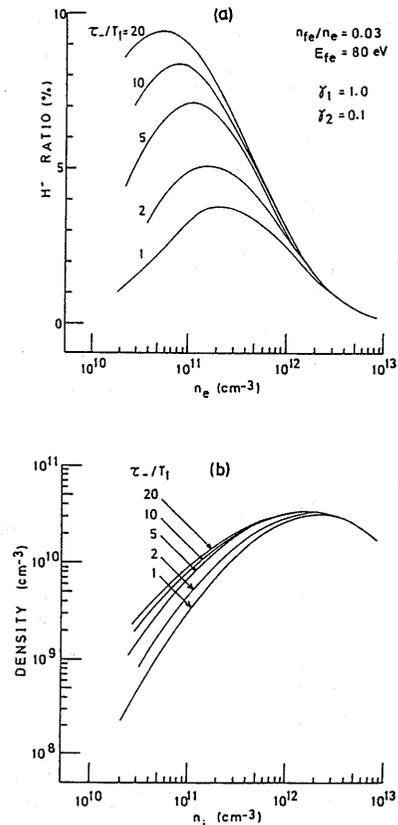


図7. H^- 生成における高速電子のエネルギー E_{fe} の効果 ($E_{fe} = 80 \text{ eV}$ を除き, 他の数値条件はすべて図4の場合と同じ);
(a) H^- 比率の n_e 依存性,
(b) H^- 密度と n_i の関係。

プラズマパラメータは図4の場合と同じ。図4の結果と比較すると、 n_e の最適値付近での H^- 密度は図7の結果の方が約40%程度高くなっている。文献22によれば、ある振動準位 v'' に着目すると、過程(24)の衝突断面積 σ は E_{fe} が30~100 eVの範囲でその値をあまり大きく変えないが、 $E_{fe} = 40$ eV 付近で最大となっている。しかし、反応率 α_{f18} は σv_f で決まるので E_{fe} が高いほど v_f の影響で α_{f18} が大きくなる。この効果が図7の結果に現れているものと考えている。

3.3 H^- 生成と励起水素分子の関係

図4, 6, 7に示したように、振動準位への励起水素分子 H_2^* を含めたモデル計算によって、かなりの量の H^- 生成が可能であることが判明した。 H^- 生成に及ぼす H_2^* の影響を明らかにするため、 H_2^* を考慮しないモデルによる計算結果の例を図8, 9に示す。モデルは H_2^* に関連する反応過程を除いたものであり、(27)~(34)式のうち(28)式を除いたものに相当している。なお、プラズマパラメータ等は図4と同じ値で計算した。図8では e_f が零で図9では3%の e_f が存在する場合であるが、両者とも H^- 比率は大幅に減少

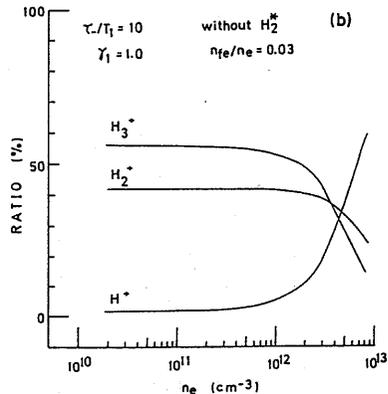
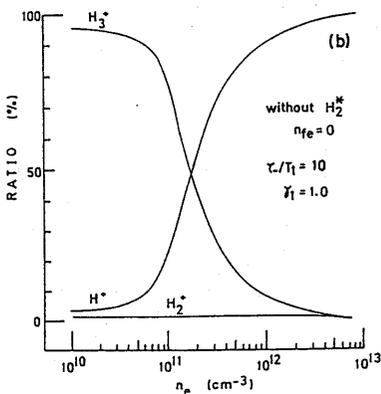
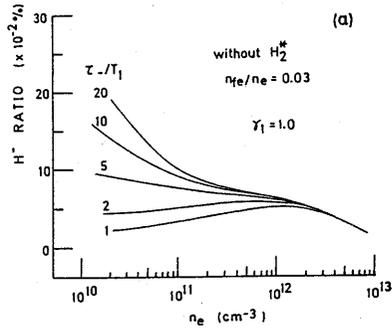
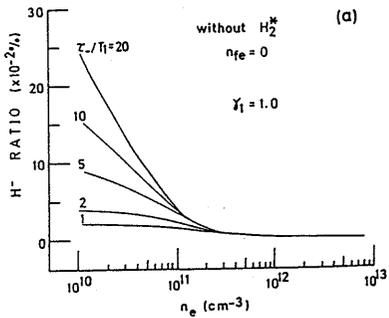


図8. 励起分子 H_2^* および e_f を除いたモデルによる計算結果(数値条件は図4と同じ);
(a) H^- 比率の n_e 依存性,
(b) 正イオン種組成比の n_e 依存性。

図9. 励起分子 H_2^* のみを除いたモデルによる計算結果(数値条件は図4と同じ);
(a) H^- 比率の n_e 依存性,
(b) 正イオン種組成比の n_e 依存性。

している。 n_e の $10^{11} \sim 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ 範囲で図4の結果と比較すると、 H^- 比率は2桁程度も小さな値となっている。このような極端な H^- 比率の減少は、 H^- 生成過程(15)と(16)との反応率 α_{11} および α_{12} の違いに起因する。従って、図6, 8, 9の結果を総合すると、 H^- の殆どは $H_2^* + e \rightarrow H^- + H$ の過程で生成され、更に H_2^* は $H_2 + e_f \rightarrow H_2^* + e_f$ の過程により生成されると要約出来る。

ここで図8(b)と図9(b)とを比較すると、正イオン種組成に関して大変興味深い現象が見られる。図8では $n_e = 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ あたりから H^+ が急激に上昇するのに対して、図9では $n_e = 3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ あたりになって H^+ が急上昇しはじめている。 n_e が増せばそれに伴って H^+ も増大するが、図8と図9で H^+ の変化の様子が大きく異なるのは e_f の有無に起因している²⁹⁾。従って、水素放電プラズマを正イオン源として用いる場合には e_f を除去してプロトン比の高いプラズマにする必要がある⁶⁾、負イオン源として用いる場合には図6の結果でわかるように e_f が存在しなければならない。また、 H^+ が多量に生成されること自体が H^- 生成を妨げている。これら e_f の振舞を中心にしたイオン源の最適化に関する詳細については別報にて論ずる予定である⁴⁰⁾。

ところで、 H_2^* には14準位があり、それら相互間の反応が複雑に絡み合っ H_2^* としてのある定常分布が得られる²³⁾。しかし、本研究では非常な簡単化を行って、 H_2^* としてはある一つの準位だけがあるものとしている。理論的検討によれば、 $H_2^* + e \rightarrow H^- + H$ の反応率 α_{12} および $H_2 + e_f \rightarrow H_2^* + e_f$ の衝突断面積

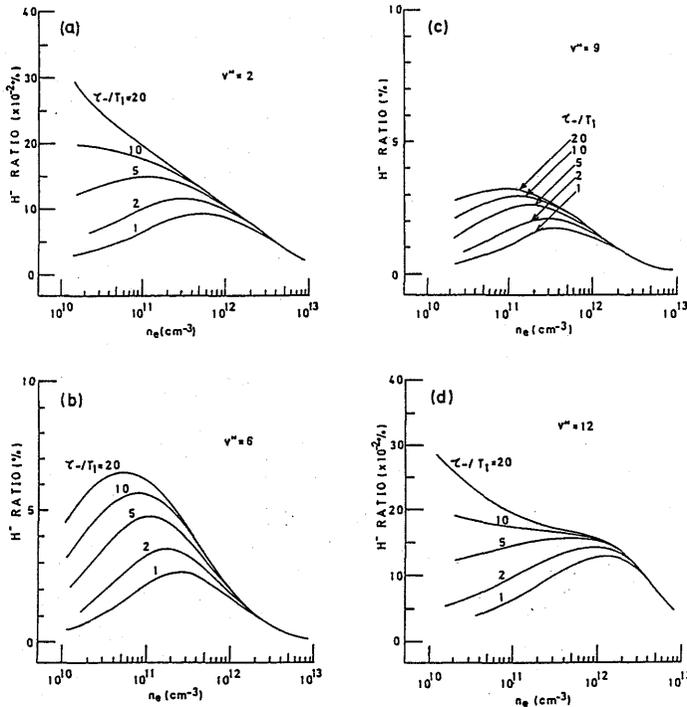


図10. H^- 生成と H_2^* のエネルギー準位 v'' の関係 (v'' を除き、他の数値条件は図4に同じ) ;
(a) $v'' = 2$, (b) $v'' = 6$, (c) $v'' = 9$, (d) $v'' = 12$.

σ は共に振動準位 v'' の値に強く依存している^{21, 22)}。これまでの計算では $v''=8$ に固定していたので、最後に H^- 生成に対する v'' 依存性についてふれる。

図10に v'' を2, 6, 9および12とした場合の H^- 比率と n_e の関係を示す。また、これに対応した中性粒子密度の変化を図11に示す。他のプラズマパラメータは図4と同じである。なお、正イオン種組成比に関しては、図5(a)に示す傾向と殆ど同じ n_e 依存性を示した。

図4の結果を含めて図10を考察すると、 H^- 生成にとって v'' にはある最適値の存在することがわかる。具体的には $v''=8$ 付近が最も H^- 生成に寄与している。表1に計算に用いた各 v'' に対する σ および α_{12} の値を示す。この σ および α_{12} の v'' 依存性を考慮すると、図10の結果は定性的には以下のように説明出来る。 σ は v'' が低い準位の際には大きな値となり、 v'' が高くなるにつれて小さくなる。即ち、 v'' が高くなる程 H_2^* の生成は困難になる。この傾向は図11の H_2^* の密度および比 H_2^*/H_2 の値にはっきりと現れている。一方、 α_{12} は v'' が低い時は非常に小さく、 v'' が高くなるにつれて異常に大きくなる。 H^- 生成は先に述べたように $H_2 + e_f \rightarrow H_2^* + e_f$, $H_2^* + e \rightarrow H^- + H$ の2段階過程をとるので、 σ および α_{12} ともある程度大きな値を持つ中間の v'' ($=5 \sim 10$) で最も H^- 生成が促進されることになる。

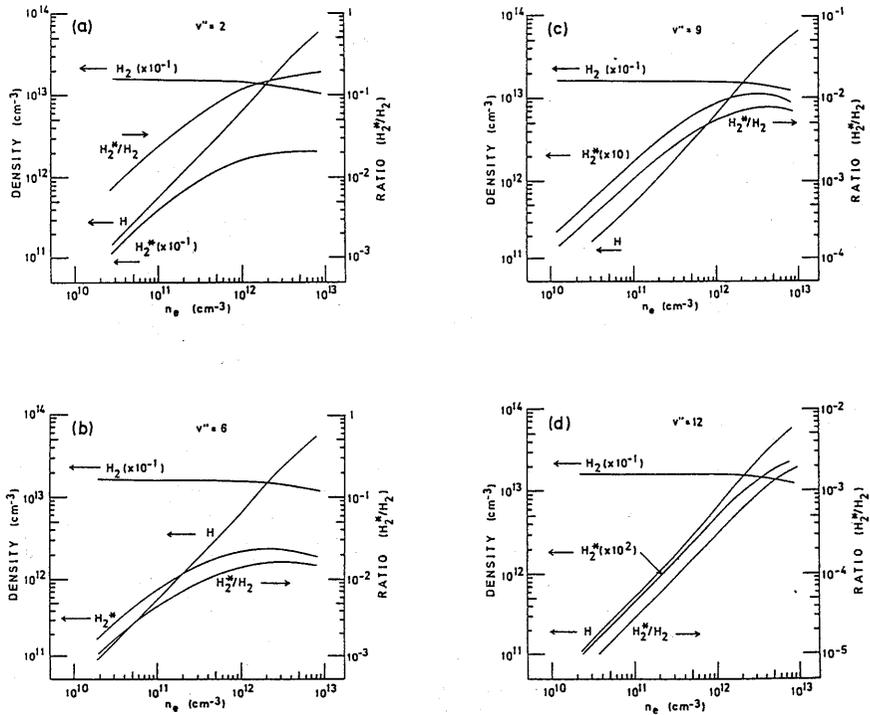


図11. 図10に対応した中性粒子密度および密度比 H_2^*/H_2 の n_e 依存性;

(a) $v''=2$, (b) $v''=6$, (c) $v''=9$, (d) $v''=12$ 。

表 1. H_2^* 生成過程の衝突断面積 σ および H^- 生成過程の反応率 α_{12} と振動エネルギー準位 v との関係。但し σ は $E_{fe} = 40 \text{ eV}$ の高速電子に対する値であり, α_{12} は $T_e = 2 \text{ eV}$ のプラズマ電子に対する値である。

v	$\sigma (\times 10^{-18} \text{ cm}^2)$	$\alpha_{12} (\times 10^{-9} \text{ cm}^3 / \text{sec})$
2	5.45	6.4×10^{-3}
6	4.85	2.27
8	3.95	4.8
9	3.45	4.8
12	1.58	4.8

3.4 H^- 生成のプラズマパラメータ依存性

H^- 生成あるいは H^- 密度のプラズマパラメータ依存性, H^- 生成に対する壁の影響等の数値計算結果の詳細な検討および実験結果との比較は, モデルの拡張も含めて, 論文 II に譲る。ここでは H_2^* としてある準位のもの 1 種類のみ含んだ本モデルを用いて得られた H^- 生成の n_e , T_e , p 依存性について簡単に述べる。

H^- 生成の n_e 依存性の例を図 4, 6 等に示したが, その特徴は H^- 生成に対して n_e にはある最適値が存在することである。これらの図では $n_e \approx n_i = (1 \sim 2) \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ 付近で H^- 密度が最大となっている。Bacal 等の実験では $n_e \lesssim 2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ の範囲で H^- 密度の n_e 依存性が調べられている¹⁴⁾。この範囲では H^- 密度はまだ飽和していないが, n_e の低密度領域での H^- 密度の上昇割合に比べて高密度領域 ($n_e \geq 10^{11} \text{ cm}^{-3}$) になるにつれて H^- 密度の上昇割合が小さくなる傾向を示している。一方, Okumura 等は H^- 電流の引出しの実験を行い¹⁵⁾, H^- 電流がプラズマ密度に強く依存し, プラズマ密度が 10^{12} cm^{-3} 付近で H^- 電流が最大となることを示した。これら 2 つの実験結果と数値計算の結果とは定性的によく一致している。

図 12 に H^- 生成と T_e の関係を示す。 H^- 比率は T_e の上昇と共に単調に減少している。正イオン種組成は H^+ がわずかしか含まれず殆どが分子イオンであり, 一番反応率の高い H^- の消滅過程 (20) ($\alpha_{15}; H^- + H^+ \rightarrow 2H$) の影響が零に等しい。また H^- と正イオンとの再結合過程の反応率 α_{15} , α_{16} , α_{17} はいずれも T_e には殆ど依存しない。更に, H^- 生成に必要な H_2^* は T_e と共に増大する傾向にある。従って, T_e の上昇と共に H^- 生成が低下するのは, α_{12} の T_e 依存性 (図 3 を参照) に起因している。なお, T_e の上昇と共に H^- 生成が低下することは実験的にも確かめられている¹⁵⁾。

図 13 に H^- 生成とガス圧 p との関係を示す。全般的傾向として, p の上昇と共に H_2^* が増大するので H^- 生成も増加する。しかし, ある程度以上 p が高くなると H_2^* は H_2 との衝突による消滅が強くなり, H^-

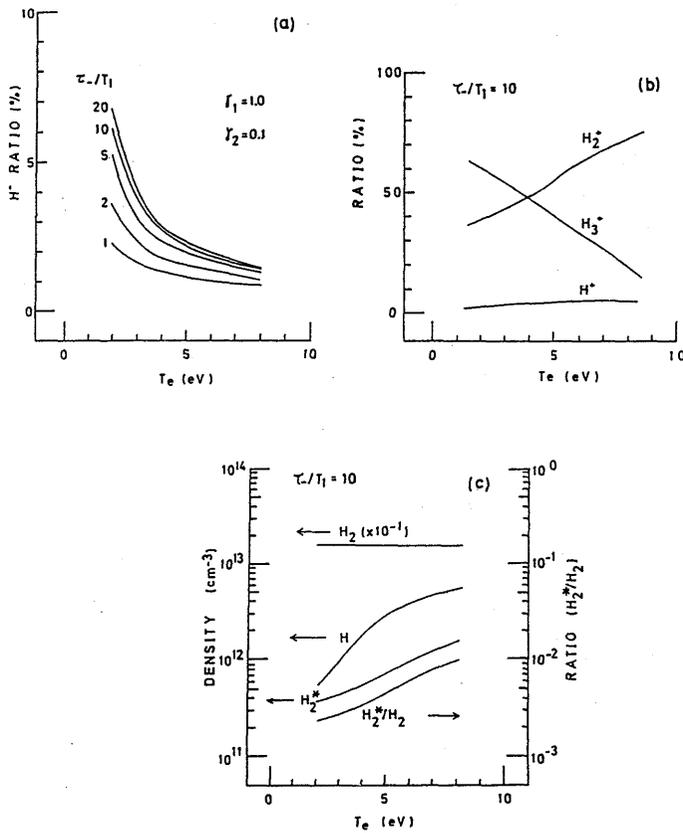


図12. H^- 生成の電子温度依存性 (数値条件はすべて図4の場合と同じ, 但し $n_e = 1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$); (a) H^- 比率の T_e 依存性, (b) 正イオン種組成比の T_e 依存性, (c) 中性粒子密度および H_2^*/H_2 の T_e 依存性。

生成は飽和する傾向にある。一方、実験では H^- 生成に対して p には最適値が存在し、ある値で H^- 比率が最大となる結果が得られている^{14, 15)}。従って、図13に示す結果と実験結果との間には、あまり良い一致は得られていない。本モデルでは H^- の消滅過程に関して、 $H^- + H_2 \rightarrow H + H_2 + e$ の過程を無視している。しかし、この反応断面積は約 10^{15} cm^2 と大きな値を持つ。このことが不一致の原因の1つに考えられるので現在検討中である。

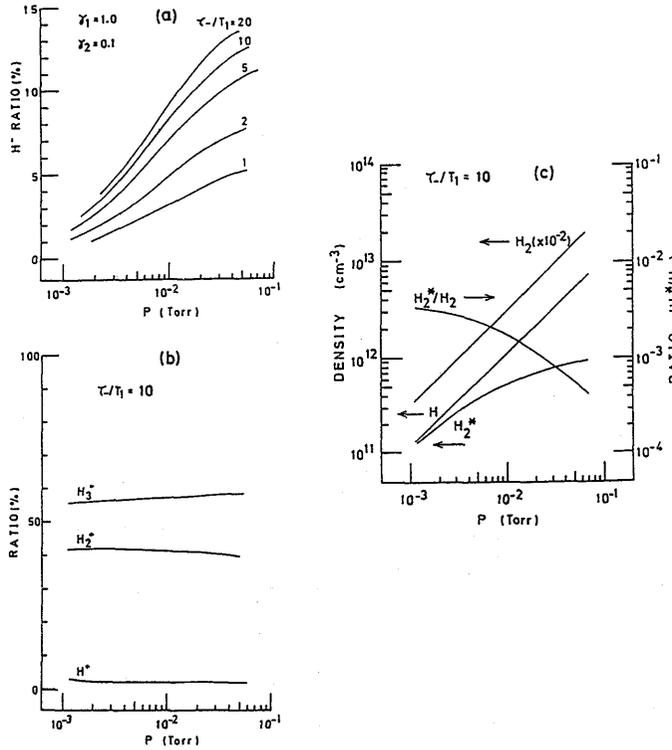


図13. H⁻ 生成の水素ガス圧依存性 (数値条件はすべて図4の場合と同じ, 但し $n_e = 1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$); (a) H⁻ 比率の p 依存性, (b) 正イオン種組成比の p 依存性, (c) 中性粒子密度および H₂^{*}/H₂ の p 依存性。

3. 5 モデルに関する検討

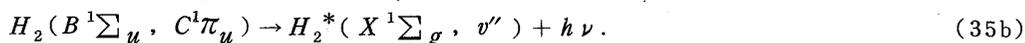
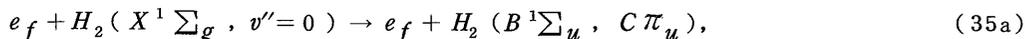
H⁻ 生成にとって重要と考えられる H₂^{*}, H₂⁺ の生成に必要な e_f を含め電子, 正イオン種, 中性粒子種および H⁻ が放電容器内に共存している場合を想定して (27)~(34) 式よりなるモデル方程式を構成した。

イオンの閉じ込め時間 ($\tau_1, \tau_2, \tau_3, \tau_-$) はイオン源の動作効率を決定する重要な量である。ここで取り扱うプラズマパラメータの範囲内では自由落下の理論が良い近似で成り立つものと仮定して, $\tau_1: \tau_2: \tau_3$ は質量の平方根の比 $1: \sqrt{2}: \sqrt{3}$ になるとして τ_1 のみを未知数に選んだ。また τ_- については, バケット型イオン源 (プラズマ電位が容器壁, 陽極, の電位より正となり H⁻ はプラズマ中に捕捉された状態になっている) を想定して τ_-/T_1 をパラメータとして扱った。しかし, これら各種イオンの閉じ込め時間に関しては, 対象とするイオン源でのイオンの壁への損失についての実験結果を基に理論的に更に検討する必要がある。

今回の計算結果でもわかるように, H⁻ 生成には $H_2 + e_f \rightarrow H_2^* + e_f; H_2^* + e \rightarrow H^- + H$ の2つの過程が重要である。ところが, これら2過程の衝突断面積に関しては利用しうる実験値はなく, 本計算に用

いた衝突断面積あるいは反応率はいずれも理論値である。これらの値に関して少し補足しておく。

まず H_2^* の生成は H_2 と e_f との衝突によるが、これは次に示すように一度電子励起状態を経由して作られている。



このうち(35b)に示す $B^1\Sigma_u$ および $C^1\Pi_u$ 準位から基底状態 $X^1\Sigma_g$ への遷移に伴う放射 $h\nu$ はそれぞれライマン系列およびウェルナー系列にあたり、その波長は真空紫外域となる。最近 H_2^* の励起機構を解明する目的で低圧水素プラズマからの真空紫外線放射が測定され、その実測値より $v'' \geq 5$ 以上の H_2^* の生成率が評価された。そしてその結果はHiskesの理論計算と一致するとの報告がある⁴¹⁾。

一方、 H^- を生成する解離付着過程の反応率は基底状態の水素分子 H_2 (回転準位 $J=0, v''=0$)に対してよりも回転励起状態($J \neq 0, v''=0$)或いは振動励起状態($J=0, v'' \neq 0$)の分子に対しての方がその値が増加することが示された。図3にその一例を示したが、本計算では振動励起状態にある水素分子 H_2^* に対する反応率を用いている²¹⁾。最近の研究によると²⁴⁾、回転—振動励起分子($J \neq 0, v'' \neq 0$)に対する反応率の理論計算より、①反応率は回転準位或いは振動準位の別なく分子の全内部エネルギーの大きさに依存している、②その反応率の値は最高 $10^{-8} \text{ cm}^3/\text{sec}$ 程度になる、等の結果が得られている。この結果は振動励起分子 H_2^* ($v''=5 \sim 10$)の H^- 生成にとっての重要性を弱めるものでは決してない。ただ、低い振動準位の分子でも回転準位で内部エネルギーが高くなればそれに応じて反応率も高くなることを意味し、 H^- 生成にとって重要となる励起分子の自由度が増したことになり好都合な結果である。

4. おわりに

以上述べてきたように、本論文では水素放電による H^- イオンの生成機構について検討した。使用したモデルは H^- 生成に重要と考えられる H_2^* 、 H_2^* 生成に必要な e_f を含め、電子、正イオン、中性粒子および H^- が放電容器内に同時に存在する場合を想定しており、(27)～(34)式からなる方程式系で構成されている。

本研究によって得られた結果を要約すると以下ようになる。

- (1) H^- 生成機構としては、① $H_2 + e_f \rightarrow H_2^* + e_f$ 、② $H_2^* + e \rightarrow H^- + H$ の2段階過程が主要な過程であり、30 eV以上の高速電子 e_f および振動準位への励起分子 H_2^* が必要である。
- (2) H^- 生成量は H_2^* の振動準位 v'' に大きく依存し、 $v''=5 \sim 10$ 程度の $H_2^*(v'')$ が H^- 生成にとって最も重要である。
- (3) H^- 生成に対して電子密度にはある最適値が存在する。また、電子温度の上昇は H^- 生成を低下させる。

本研究に用いたモデルは非常に単純化されたものである。しかしながら、本モデルにより H^- 生成機構として何が重要な過程であるかが明確にされ、数値的にも負イオン比率の実測値(10～35%)¹⁴⁾に近い値が

得られた。さらに, H^- 生成の n_e , T_e , p 依存性についても簡単に触れたが, H^- 生成のプラズマパラメータ依存性および H^- 生成に及ぼす壁の作用等についても本モデルで議論できる^{27, 42)}。我々は次の論文で, 本モデルを H^- 生成に必要な $H_2^*(v'')$ をすべて含むモデルに拡張し, H^- 生成のプラズマパラメータ依存性や壁の作用について詳しく検討する予定である。

謝 辞

日頃ご指導ご助言いただく京都大学の板谷良平教授に深謝の意を表わす。また, 本研究に御協力いただいた荒瀬誠之(現安藤電気), 磯兼誠司(大学院生), 上田貢(現三菱電機)の各氏に感謝する。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, 本研究は文部省科学研究費の援助を受け, 名古屋大学プラズマ研究所との共同研究としても行われた。

参 考 文 献

- 1) 松田慎三郎: 日本原子力学会誌 16 (1974) 459.
- 2) 杉原 亮, 金子 修: 応用物理 49 (1980) 1162.
- 3) M. M. Menon: Proc. IEEE 69 (1981) 1012.
- 4) 表 碩喜: 応用物理 51 (1982) 1013.
- 5) T. Obiki, A. Sasaki, F. Sano and K. Uo: Rev. Sci. Instrum. 52 (1981) 1445.
- 6) K. W. Ehlers and K. N. Leung: Rev. Sci. Instrum. 52 (1981) 1452.
- 7) Y. Okumura, H. Horiike and K. Mizuhashi: Rev. Sci. Instrum. 55 (1984) 1.
- 8) J. H. Fink, W. L. Barr and G. W. Hamilton: IEEE Trans. Plasma Sci. PS-7 (1979) 21.
- 9) K. W. Ehlers: J. Vac. Sci. Technol. A1 (1983) 974.
- 10) E. Nicolopoulou, M. Bacal and H. J. Doucet: J. Phys. (Paris) 38 (1977) 1399.
- 11) M. Bacal and G. W. Hamilton: Phys. Rev. Lett. 42 (1979) 1538.
- 12) M. Bacal, A. M. Bruneteau, W. G. Graham, G. W. Hamilton and M. Nachman: J. Appl. Phys. 52 (1981) 1247.
- 13) K. N. Leung, K. W. Ehlers and M. Bacal: Rev. Sci. Instrum. 54 (1983) 56.
- 14) M. Bacal, A. M. Bruneteau and M. Nachman: J. Appl. Phys. 55 (1984) 15.
- 15) Y. Okumura, Y. Ohara, H. Horiike and T. Shibata: JAERI-M84-098 (1984).
- 16) K. N. Leung, K. W. Ehlers and R. V. Pyle: Rev. Sci. Instrum. 56 (1985) 364.
- 17) M. Bacal, F. Hilion and M. Nachman: Rev. Sci. Instrum. 56 (1985) 649.

- 18) 浦本上進 : 真空 27 (1984) 600.
- 19) 浦本上進 : 真空 27 (1984) 610.
- 20) K. Jimbo : Phys. Fluids 27 (1984) 2752.
- 21) J. M. Wadehra : Appl. Phys. Lett. 35 (1979) 917.
- 22) J. R. Hiskes : J. Appl. Phys. 51 (1980) 4592.
- 23) J. R. Hiskes, A. M. Karo, M. Bacal, A. M. Bruneteau and W. G. Graham : J. Appl. Phys. 53 (1982) 3469.
- 24) J. M. Wadehra : Phys. Rev. A 29 (1984) 106.
- 25) J. R. Hiskes and A. M. Karo : J. Appl. Phys. 56 (1984) 1927.
- 26) O. Fukumasa and S. Saeki : J. Phys. D : Appl. Phys. 18 (1985) L21.
- 27) O. Fukumasa and S. Saeki : Proc. 9th Symp. ISIAT '85 (1985, Tokyo) p.111.
- 28) O. Fukumasa, R. Itatani, S. Saeki, K. Osaki and S. Sakiyama : Phys. Lett. 100A (1984) 186.
- 29) O. Fukumasa, R. Itatani and S. Saeki : J. Phys. D : Appl. Phys. 18 (1985) 2433.
- 30) A. R. Martin : Culham Report, CLM-R157 (1976).
- 31) A. R. Martin and T. S. Green : Culham Report, CLM-R159 (1976).
- 32) 田中 茂, 柴田猛順 : JAERI-M 7966 (1978).
- 33) P. H. deHann, G. C. A. M. Janssen, H. J. Hopman and E. H. A. Granneman : Phys. Fluids 25 (1982) 592.
- 34) K. Prelec and Th. Sluyters : Rev. Sci. Instrum. 44 (1973) 1451.
- 35) P. D. Burrow and G. J. Schulz : Phys. Rev. 187 (1969) 97.
- 36) M. Capitelli, M. Dilonardo and E. Molinari : Chem. Phys. 20 (1977) 417.
- 37) B. J. Wood and H. Wise : Proc. 2nd Int. Symp. on Rarefied Gas Dynamics (Academic Press, 1961) p. 51.
- 38) G. Black, H. Wise, S. Schechter and R. L. Sharpless : J. Chem. Phys. 60 (1974) 3526.
- 39) A. M. Karo, J. R. Hiskes and R. J. Hardy : J. Vac. Sci. Technol. A3 (1985) 1222.
- 40) O. Fukumasa and S. Saeki : Technology Reports of the Yamaguchi University 3 (1984) 257.
- 41) W. G. Graham : J. Phys. D : Appl. Phys. 17 (1984) 2225.
- 42) 福政 修, 佐伯節夫, 大崎 堅, 崎山智司 : 電気学会, プラズマ研究会, 資料番号 EP-84-37 (1984).