

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 13 日現在

機関番号：21401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25400536

研究課題名(和文) 低真空アーク金属表面処理のエネルギー効率改善に向けた陰極点挙動解析

研究課題名(英文) Analysis of Cathode Spots Behavior in Steel Surface Treatment with Low Vacuum Arc to Improve Energy Efficiency

研究代表者

杉本 尚哉 (Sugimoto, Masaya)

秋田県立大学・システム科学技術学部・教授

研究者番号：20291784

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：低真空アーク放電で発生する陰極点の特性を利用する金属平板表面の酸化膜層除去に関して、エネルギー効率向上を目指して陰極点挙動解析を行ってきた。陰極点は金属平板の陽極に対向する面上だけでなく、反対側の面にも移動し酸化膜を除去する。陰極点は時々酸化膜層が除去された陽極側の面に戻るが、そこでの移動速度は酸化膜層がある時の100倍以上にも達する。

電極間に発生するプラズマの様子は陰極点が金属平板のどちら側にあるかによって大きく異なるが、測定の結果この原因は陰極点からの高エネルギー電子によるものと考えられる。また、陰極点が電極間側に無い場合でも陰極の材料物質が電極間に放出されていることも分かった。

研究成果の概要(英文)：Behavior of cathode spots in removal of oxide layer on steel plate surface using characteristics of those spots has been studied aiming to improve removal energetic efficiency. The cathode spots are able to be not only on the side faced to the anode but also on another side and strip the oxide layer there. They are sometimes back to the surface to the anode, where the oxide layer removal has completed, and move quickly with over 100 times large velocity on the oxide layer.

Appearance of the inter-electrodes plasma is changed in accordance with the steel plate side on which the cathode spots exist. It can be expected that the high energy electrons originated from the cathode spots cause such a difference in inter-electrodes plasmas. In addition, it is revealed that the cathode material is supplied to the inter-electrodes space even though no cathode spot is observed on the inter-electrodes side of the steel plate.

研究分野：プラズマ工学

キーワード：陰極点 低真空アーク 酸化膜除去 金属平板陰極

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 数 10Pa 程度の低真空中でアーク放電を発生させると、陰極上に明るい輝点(陰極点)が現れて陰極上を動き回る。陰極点は非常にエネルギー密度が高く、陰極表面が溶融・揮散するので、真空アークスパッタリング等の材料表面に利用されている。

(2) 本研究では、この方法を金属表面の酸化膜層や加工によって付着した油脂汚れに対する洗浄法として利用し、陰極点の高速移動による表層の溶融固化に伴う表面粗さの増加や、清浄度の高い金属表面の露出により、密着性の高い皮膜形成に有効な前処理法として利用する。金属表面の洗浄処理としては、硬い粒子をブラストする機械的方法や化学的に処理する方法があるが、これらに代わる洗浄法として普及させるためには、作業効率やエネルギー効率の向上が求められる。

(3) 作業効率の向上に関して、真空容器の排気回数を減らして作業効率を上げることを目的として、全面が酸化膜(膜厚 $\sim 5\mu\text{m}$ )に覆われた金属平板を試験片とし、平板の片側の面を洗浄する従来の電極配置のまま裏側の面も真空中に露出させ、一度にその両面を処理しようと試みる実験を進めてきた。平板試験片の陽極に対向する面上に発生した複数の陰極点は初め、その面の酸化膜のみを除去し、その後試験片の端を通して反対側の面に移動し、その面上で酸化膜を除去し続ける。そのとき、すべての陰極点がどちらか一方の側の同じ面上にあること、すべての陰極点が陽極とは反対側の面上にあっても放電は維持され陽極側の面には陰極点よりも微小で高速移動する輝点「微小高速輝点」が目視で観察されること、陽極と陰極点の間の距離が大きくなって放電電圧はせいぜい 10%程度しか上昇しないこと、陽極と反対側の面の中央部付近には陰極点が到達しにくいことなどがわかっていた。

## 2. 研究の目的

(1) 通常の酸化膜上を移動していく陰極点であれば、試験片上の陰極点の軌跡からそのサイズや移動速度を求めるのは容易であるが、微小高速輝点は酸化膜が除去された後の基材が露出した部分に見られるので、軌跡を追うことができない。本研究では微小高速輝点の高速度撮影を行って、そのサイズや移動速度、それらの放電条件への依存性を明らかにする。

(2) 陰極点は放電電流が集中しているためにエネルギー密度が極めて高い領域であり、そこから陰極材物質が蒸気や液滴となって放電空間中に放出され、一部は電離して電極間プラズマとなると考えられている。陰極点が試験片の陽極に対向している面上にあるときはこの説明も理解可能であるが、その反対側の面上に陰極点がある場合には、陽極との間の電流経路は予測できない。本研究では、電極間プラズマや陰極からの浮遊物と陰極

点の位置との関連を調べて、放電維持のメカニズムの変化を明らかにする。

## 3. 研究の方法

(1) 内径 250mm、長さ 300mm の円筒形ステンレス製真空チャンバー内に、陽極および陰極を設置する。陽極はステンレス製で、直径 100mm の円筒形であり、陰極は表面処理用の試験片で、表面を厚さが約  $5\mu\text{m}$  の酸化膜で覆われた、 $100\text{mm} \times 100\text{mm} \times 3\text{mm}$  の SS400 平板である。真空チャンバー内上方に陽極、下方に陰極があり、陽極と陰極との間の距離は、50mm である。試験片は、平板面と円筒形陽極の底面が平行となるように、さらに下方にある銅製の試験片固定台から伸びる支柱に固定する。支柱はステンレス製の寸切りボルトで、試験片の対角線上の 2 箇所の直径 7mm の穴に通して試験片をナットで固定することにより、試験片下側にも上側と同様の空間を確保する。以後、試験片の陽極と面している側を「表側」、その反対側を「裏側」とする。支柱はアーク放電が発生しないよう、石英管を被せてガラステープを巻くことで絶縁処理を施している。真空チャンバー内は、ULVAC 製メカニカルブースターポンプ排気装置(MBS-050)と油回転ポンプ(GLD-200)を用いて、10Pa まで排気する。真空アーク放電用の直流電源には、大阪電気社製インバータ制御エアープラズマ切断機用電源(CUT TAC SC-120P)を使用する。本研究では、アーク電流値を 50~100A で変化させ、200s 間の酸化膜除去処理を行う。アークの点弧は、電極間に設置した亜鉛線に大電流を流すことにより亜鉛線の一部が溶融し、亜鉛線が電極から離れることで行う。

(2) 放電中の真空チャンバー内の様子は、円筒形の底面部分を透明なアクリル窓にすることで観測することが可能となっており、デジタルカメラ(Canon EOS Kiss X5)を用いた動画撮影や、ハイスピードカメラ(Photron FASTCAM MC2)による 2000fps の高速度撮影を行った。

(3) 放電中に発生する電極間プラズマについて調べるため、真空チャンバー内に Langmuir プローブを挿入しプローブ電流を観測した。Langmuir プローブは、直径 1mm のタングステン線であり、先端部分は試験片表側から 25mm 上方にあって、試験片表面と平行な方向に可動である。Langmuir プローブは  $1\text{k}\Omega$  の抵抗を介してアースに接続しており、抵抗間の電圧を National Instruments 製の NIDAQ(USB-6251 BNC)と Lab View Signal Express 2012 を用いて、放電開始から終了まで、サンプリング周波数 1000Hz で記録した。測定されたプローブ信号とハイスピードカメラで撮影した動画は、同期再生が可能である。

(4) 放電中に電極間に浮遊している物質を採取して、元素分析を行った。浮遊物質は、試験片表側上方に、 $10\text{mm} \times 10\text{mm}$  のスライド

ガラスを設置して放電を行って採取した。スライドガラス表面の付着物質に対して、SEM-EDS を用いて元素分析を行った。

#### 4. 研究成果

##### (1)陰極点と微小高速輝点の速度差



図1 酸化膜を除去中の陰極点

図1は、酸化膜が試験片表面に残っているときの陰極点の様子である。陰極点はほぼ試験片全体に散らばって分布して、時々分裂し再び合体しながらランダムに移動しながら、酸化膜を除去していく。試験片表側の酸化膜がほぼ除去されたのち、陰極点は試験片周辺部を通して試験片裏側に移動し、試験片周辺部から中心部に向かって酸化膜を除去しながら進んで行く。

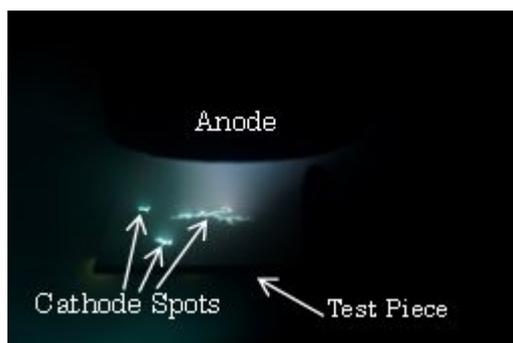


図2 酸化膜除去後の陰極点

試験片裏側に移動した陰極点は、時々試験片表側に戻りそこでしばらく滞在することがある。図2は、試験片表側に戻ったときの陰極点の様子である。図1の陰極点に比べて、微小で高速で移動する「微小高速輝点」である。

図3は、図1の場合と同様、酸化膜上でのアーク放電開始直後の陰極点の移動の様子を高速度撮影したものである。写真中の白線は10mm×10mmの格子を表し、4枚の写真の時間間隔は12.5msである。矢印で示した移動の様子から得られる陰極点の移動速度は、約0.13m/sである。一方図4は、図2の場合と同様、酸化膜除去後の試験片表面上でアーク放電を開始した直後の微小高速輝点の移動の様子を高速度撮影したものである。

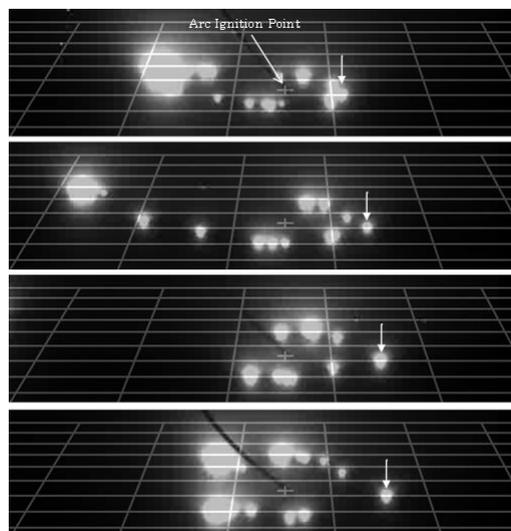


図3 酸化膜上での陰極点移動の高速度撮影写真

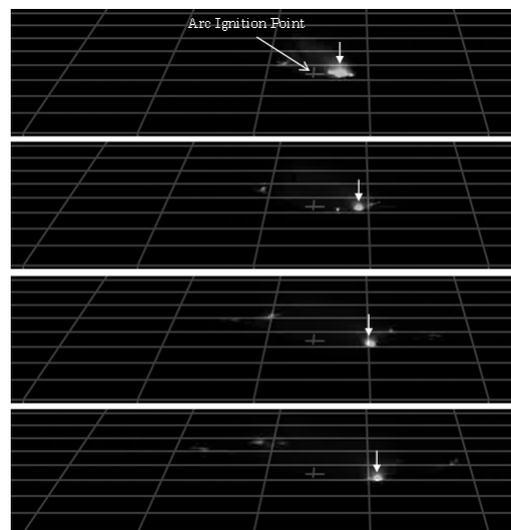


図4 酸化膜除去後の試験片表面上での微小高速輝点移動の高速度撮影写真

写真中の白線は図3の場合と同様であるが、写真の時間間隔は0.125msである。よって、矢印で示す移動の様子から得られる微小高速輝点の移動速度は、約17.1m/sであり、微小高速輝点は酸化膜を除去している陰極点の約130倍の高速度で移動していることが明らかとなった。

##### (2)プローブ電流と陰極点位置との関係

図5は、すべての陰極点が試験片裏側にあり酸化膜を除去しているときの、電極間の様子である。図1や図2に示すように、陰極点や微小高速輝点が試験片表側にあるときは、電極間部分の発光が弱いのに対し、陰極点がすべて試験片裏側にあるときは、電極間部分の発光は非常に強い。陰極点が、試験片表側の酸化膜除去を完了して裏側に移動するのは、アーク電流値にも依るが、放電開始後約85s～130sである。

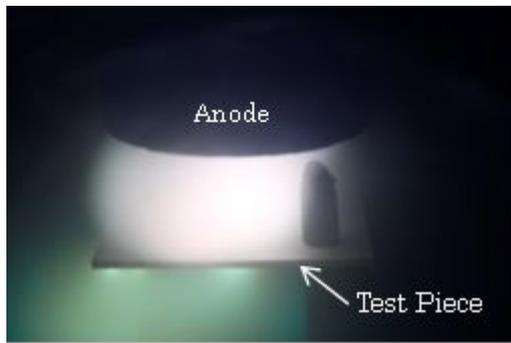


図5 陰極点がすべて試験片裏側にある時の電極間の様子

図6は、アーク電流が60Aのときに試験片中心上で測定したプローブ電流の時間変化(実線部分)と、その10s間平均値(白線丸)をプロットしたものである。プローブ電流は、放電開始から約110sまでは、約-4mAと約0mAの間で変動しているのに対し、それ以降では、約-5mAと約5mAの間の比較的大振幅

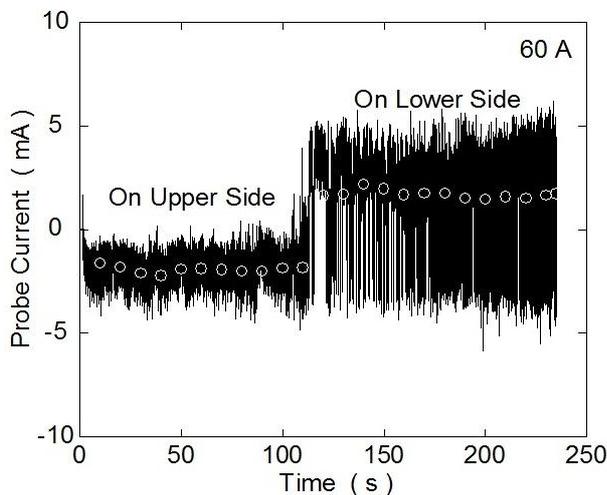


図6 プローブ電流の時間変化

で変動している。また、プローブ電流の10s間平均値の時間変化は、放電開始から約110sまでは約-2mAでほぼ一定で、直後に負の値から正の値へ急激に変化して、それ以降は約1mAから約2mAでほぼ一定となっている。

図7に、放電開始から50s、100s、150s後の、プローブ電流の10s間平均値のアーク電流に対する変化を示す。放電開始から50s後では、アーク電流値に関係なくプローブ電流の10s間平均値は負の値であり、図6に見られるプローブ電流の急激な変化は起こっていない。一方、放電開始後150sではアーク電流値に関係なくプローブ電流の10s間平均値は正の値であり、これはプローブ電流の急激な変化が起こった後である。放電開始後100sの場合は、アーク電流値が50Aから70Aではプローブ電流の10s間平均値は負の値であり、アーク電流値が増加すると正の値へと変化している。つまり、これはアーク電流値が増加するとプローブ電流の10s間平均値の負の値から正の値への急変化が起こるまで

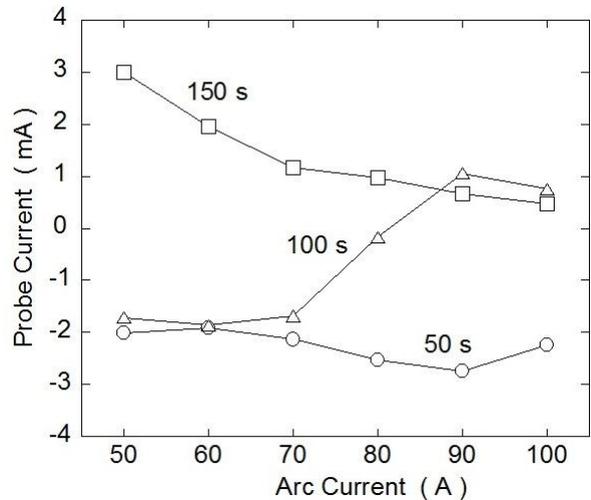


図7 プローブ電流のアーク電流に対する変化

の時間が短くなっていることを示している。この実験結果と、プローブ電流の10s間平均値の急変化が起こる時間が100s前後という、陰極点が試験片表側の酸化膜除去を完了して裏側に移動する放電開始後約85sから約130sに近い時間帯であることから、図6中に示すように、陰極点が試験片の表側にあるときはプローブ電流は負の値で変動が小さく(“On Upper Side”の部分)、試験片の裏側にあるときは正と負の値で変動が大きい(“On Lower Side”の部分)と考えられる。

図8は、陰極点がすべて試験片表側にある場合(On Upper Side)と裏側にある場合(On Lower Side)の、プローブ電流の10s間平均値の、試験片に平行方向の分布を示したものである。図1のように陰極点がすべて表側にあつて酸化膜を除去している場合、プローブ電流値は試験片の中心部分で最大で、試験片の周辺部分に近づくとも減少する。一方、図5のように陰極点がすべて裏側にあつて酸化膜を除去している場合、プローブ電流は試験片全面にわたってほぼ一定であり、試験片の端より外側でもあまり減少していない。これらプローブ電流の分布は、図1や図5に見ら

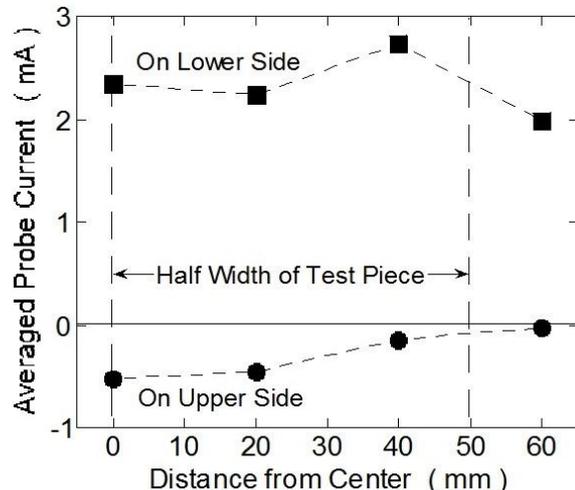


図8 試験片に平行方向のプローブ電流の分布

れる電極間の発光部分の様子とはほぼ一致する。陰極点ではアーク電流が集中しており、陰極点からは電極間へ高エネルギー電子流があると予想される。陰極点が試験片の表側にある場合、陰極点からの高エネルギー電子の一部がプローブへ流入するため、プローブ電流は負の値となり、また陰極点は試験片上にしか存在できないので、試験片の周辺部分ではプローブ電流値の負の成分が減少すると考えられる。一方、陰極点が試験片の裏側にある場合は、陰極点からの高エネルギー電子がプローブに流入することがないため、プローブ電流は電極間プラズマ（発光強度が大きい部分）からのイオン電流成分が主で正の値となり、試験片全面にわたって電極間プラズマが一樣に広がっていると考えられる。しかし、陰極点と電極間プラズマの発光強度との関係については、未解明である。

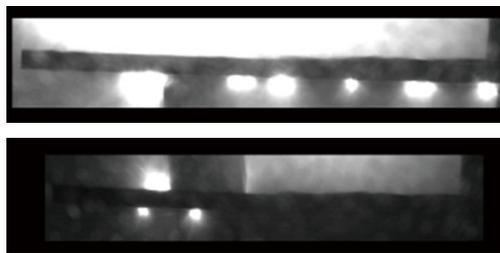


図 9 陰極点が試験片裏側にある状態（上）から両側にある状態(下)に変化したときの様子

図 9 は、陰極点がすべて試験片裏側にある状態で、一部の陰極点が試験片の表側に発生したときの様子を高速撮影したものである。陰極点がすべて試験片裏側にある状態では、図 5 にも示すように電極間に非常に発光強度が大きいプラズマが発生しているのに対し、陰極点が試験片の両側にあるような状態では発光強度の大きな電極間プラズマは消滅している。

図 10 に、陰極点がすべて試験片の裏側に

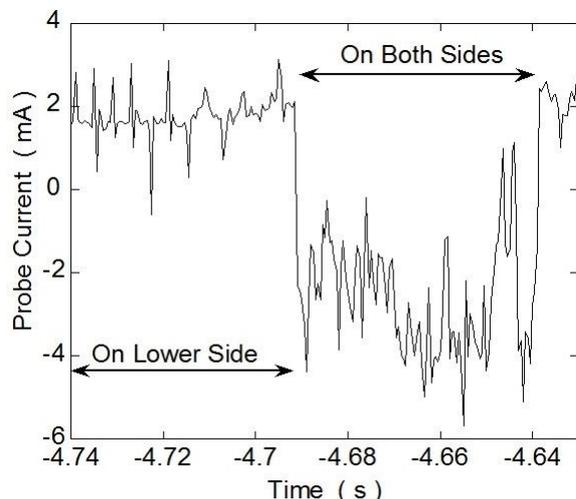


図 10 陰極点が試験片裏側にある状態から両側にある状態へ変化するときのプローブ電流の時間変化

ある状態 (“ On Lower Side ” 部分) から、試験片の両面に存在している状態 (“ On Both Sides ” 部分) に変化するときのプローブ電流の時間変化を示す。陰極点がすべて試験片の裏側にある状態では、プローブ電流は約 2mA であるのに対し、試験片の両面に陰極点がある状態へ変化するときには、プローブ電流は約-4mA まで急激に減少している。また、このような場合の電流変化が起こる時間は約 50ms と非常に短時間であることが明らかとなった。

### (3)電極間プラズマ中浮遊物質の SEM-EDS による元素分析結果

図 11 は、陰極点が試験片の表側にある場合と裏側にある場合に、電極間プラズマ中浮遊物質に対し、SEM-EDS を用いて元素分析を行って得られた結果である。電極間プラズマ中の浮遊物質を付着させたのはガラス板であるから、以後シリコンによる X 線強度を基準にして考察すると、陰極点が試験片表側にある場合、鉄と酸素による X 線強度が非常に大きい。これは、陰極点が試験片表側の酸化膜を除去しているためであり、電極間プラズマ中の浮遊物質が陰極から出ていることを示している。一方、陰極点が試験片裏側にある場合、鉄と酸素からの X 線強度は減少し、特に酸素からの X 線強度の減少が大きい。これは、陰極点が試験片裏側に移動するのは試験片表側の酸化膜の除去が終了した後であることから、酸素からの X 線強度の減少が大きくなるためと考えられる。しかし、陰極点が試験片裏側にある状態でも陰極から鉄が放出され電極間プラズマ中に浮遊していることを示しており、陰極点とは関係がない、異なる機構で陰極材料物質が電極間中に供

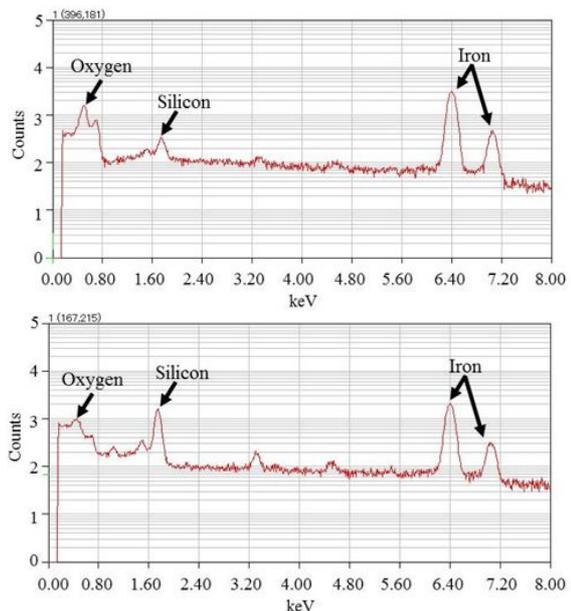


図 11 陰極点が試験片表側にある場合（上）と裏側にある場合（下）の電極間プラズマ中浮遊物質の元素分析結果

給されてプラズマとなっていると考えられる。陰極点無しでの陰極材料物質の電極間への放出機構については、本研究期間では詳細は明らかになっていない。陰極点無しでの真空アーク放電に関する研究もこれまでに進められてはいるが、本研究よりも電流密度がかなり高い場合であり、今後はこの従来研究を参考にさらに研究を続ける必要がある。

#### (4)まとめ

最後に、本研究で得られた研究成果をまとめる。

試験片表側の酸化膜除去を完了した陰極点は、試験片裏側へと移動し酸化膜除去が継続するが、時々試験片表側へと戻り非常に高速で移動しながら試験片表側に滞在する。酸化膜が無い所での陰極点である微小高速輝点は、酸化膜上での陰極点の場合の約 130 倍の高速で移動していることがわかった。

陰極点が試験片表側にある場合、電極間には陰極点からの高エネルギー電子流が存在していると考えられる。

陰極点が試験片裏側にある場合に見られる非常に発光強度の大きい電極間プラズマは、試験片全面にわたってほぼ一様に広がっていると思われる。

陰極点が試験片裏側にある場合に、陰極点の一部が試験片表側に発生することがあり、そのときには電極間の発光強度の大きな電極間プラズマは消滅し、プローブ電流は正の値から負の値へと急激に変化する。

陰極点が試験片両面にある状態は数 10ms 程度と非常に短時間で、その後陰極点は試験片裏側にまた戻る。

陰極点が試験片の裏側にある場合でも、陰極から電極間へと陰極材料物質が供給されている。

#### 5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 4 件)

Masaya Sugimoto, Shugo Iha, Low Vacuum Cathodic Arc Plasma during Removal Treatment of Oxide Layer on Cathode Surface, Abstract Book of International Conference on Advanced Technology in Experimental Mechanics 2015, 査読有, 2015, 270

Shugo Iha, Masaya Sugimoto, Measurement of Inter Electrodes Plasmas by Langmuir Probe during Removal of Steel Surface Oxide Layer with Vacuum Arc, Proceedings of 2015 Annual Conference of Fundamentals and Materials Society IEE Japan, 査読無, CD-ROM, 2015, 212 - 217

Masaya Sugimoto, Shugo Iha, Relations between Cathode Spots Behavior and Inter Electrode Phenomenon in Low Vacuum Arc

Discharge, Proceedings of PLASMA2014, 査読有, USB, 2015, 20PB-061

Masaya Sugimoto, Shinichi Takasugi, Strange Collective Behaviors of Cathode Spots in Low Vacuum Arc, Journal of Physics: Conference Series, 査読有, Vol. 550, 2014, 012013

DOI:10.1088/1742-6596/550/1/012013

〔学会発表〕(計 6 件)

伊波周吾、杉本尚哉、真空アーク金属表面酸化膜除去時の陰極点の位置と発生するプラズマとの関係、平成 28 年電気学会基礎・材料・共通部門大会、平成 28 年 9 月 5 日、「九州工業大学(福岡県北九州市)」

伊波周吾、杉本尚哉、Investigation of Inter-Electrodes Plasma Composition in Removal of Oxide Layer from Steel Surface by Vacuum Arc, The 14<sup>th</sup> High-Tech Plasma Processes Conference (HTPP14)、平成 28 年 7 月 5 日、「Munich (Germany)」

杉本尚哉、伊波周吾、Low Vacuum Cathodic Arc Plasma during Removal Treatment of Oxide Layer on Cathode Surface、International Conference on Advanced Technology in Experimental Mechanics 2015、平成 27 年 10 月 7 日、「Loisir Hotel Toyohashi (愛知県豊橋市)」

伊波周吾、杉本尚哉、Langmuir Probeによる真空アーク金属表面酸化膜除去時の電極間プラズマの測定、平成 27 年電気学会基礎・材料・共通部門大会、平成 27 年 9 月 17 日、「金沢大学(石川県金沢市)」

杉本尚哉、伊波周吾、低真空アーク放電での陰極点挙動と電極間現象との関係、Plasma Conference 2014、平成 26 年 11 月 20 日、「朱鷺メッセ(新潟県新潟市)」

杉本尚哉、高杉伸一、Strange Collective Behaviors of Cathode Spots in Low Vacuum Arc, The 13<sup>th</sup> High-Tech Plasma Processes Conference (HTPP13)、平成 26 年 6 月 24 日、「Toulouse (France)」

#### 6 . 研究組織

(1)研究代表者

杉本 尚哉 (SUGIMOTO, Masaya)

秋田県立大学・システム科学技術学部・教授

研究者番号：20291784