

令和 4 年 4 月 13 日現在

機関番号：17201

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K03784

研究課題名(和文) スモラッコウスキー効果によるネオリングホロー磁化放電の確立と負イオン生成

研究課題名(英文) Development of Neo-ring-shaped hollow magnetized discharge by Smoluckowski effect and production of negative ions

研究代表者

大津 康德(Ohtsu, Yasunori)

佐賀大学・理工学部・教授

研究者番号：50233169

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では水素を用いた次世代エネルギー源として期待されている核融合発電プラズマに関する研究である。具体的には、水素燃料を供給するために用いられている注入法の課題、即ち高密度水素プラズマ生成を実現させるための基礎的研究である。本研究の成果として、ダブルリングホロー溝を有する電極を用い高周波水素プラズマの生成に成功した。水素ガス圧力30Pa以上で、高密度が期待できる水素プラズマを生成できた、しかしながら、数Pa程度では、一部のホロー溝のみで高密度プラズマが生成することが明らかとなった。数値シミュレーションにより、実験結果を再現できる結果が得られた。今後は低圧力での高密度プラズマ生成が課題である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

学術的な意義として、以下の成果が得られた。(1)ダブルリングホロー磁化放電により、高密度水素プラズマを生成できることを明らかにできた。(2)ガス圧力により、プラズマの分布が影響を受けることを見出した。(3)その結果は数値シミュレーションでも再現できることがわかった。社会的意義として、水素を用いたクリーンな次世代エネルギー源として期待されている核融合発電の実現に貢献できる研究成果が得られた。

研究成果の概要(英文)：This work is based on a study of a nuclear fusion power generation expected as a next energy generation source using hydrogen gas. The nuclear fusion plasma has some problems. One of them is an injection method of hydrogen gas into the fusion plasma. This is owing to a low-density plasma. The objectivity of this work is to develop the high-density plasma production using hydrogen gas. It is found that the high-density plasma is attained for a higher pressure of 30 Pa, whereas for a lower pressure of a few Pa it is difficult to produce it. It is indicated that the numerical simulation of PIC-MCC method can reappear the experiments. Their results can contribute to realize the nuclear fusion.

研究分野：プラズマ科学

キーワード：ネオリングホロー 磁化放電 スモラッコウスキー効果 イオン飽和電流 PIC-MCC法

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

核融合プラズマを加熱電流駆動する中性粒子ビーム入射装置 (NBI) では高出力の負イオン源 (ITER の場合 : 1MeV、40A、1 時間、JT-60SA の場合 : 0.5MeV、22A、100 秒) が必要とされている。NBI 用負イオン源の条件として、低気圧 (1Pa 以下) かつ高密度 (10^{12}cm^{-3}) のプラズマ生成が必要不可欠である。現在、ITER では誘導結合放電方式、JT-60SA では熱陰極フィラメントによる直流アーク放電方式を用いた高性能負イオン源の研究開発が精力的に行われている。

しかしながら、従来の負イオン源の放電方式には以下のような課題が残されている。(1) 負イオン生成に、低い仕事関数を有するアルカリ金属セシウム蒸気を導入しているため、その蒸気が容器壁に付着し、誘導結合放電方式ではヘリカルアンテナを設置する絶縁管内壁 (又は絶縁板の真空側表面) に付着し、直流アーク放電方式では熱陰極フィラメント表面に付着することにより、長時間安定放電が困難となる。(2) 誘導結合放電方式では高密度 (10^{12}cm^{-3}) であるが、直流アーク放電方式に比べて、電子温度が高い (10eV 程度) ため、負イオン生成効率が低い。(3) 直流アーク放電方式では熱陰極フィラメントを用いており、フィラメントが短寿命であるため劣化に伴い、メンテナンスが頻繁に必要となる。

2. 研究の目的

固体表面では、1 原子層から数原子層の段差に相当するステップ、ステップの折れ曲がる点に相当するキックがあり、平らな面のテラス、テラスの面に空孔や欠損、付加原子がある。走査トンネル顕微鏡でみた金属単結晶表面には、多数のステップが観測されている。たくさんのステップを持つと、仕事関数が減少し、電子を外に取り出しやすくなる。それをスモラッコウスキー (Smoluckowski) 効果と呼ぶ。また、面方位により仕事関数が異なることも明らかになっている。即ち、金属表面の構造によって、仕事関数が変化することを示唆している。スモラッコウスキー効果を積極的に利用するために、非アルカリ金属表面を多ステップ化し、仕事関数を低下させることができるので、アルカリ金属セシウムに変わる負イオン生成の代替材料として期待できる。更に、電子放出しやすくなるため、プラズマ生成時における電子供給源としても作用する。

本研究では、「スモラッコウスキー効果を利用した非アルカリ金属表面の多ステップ化」により、「アルカリ金属フリー」、「高密度・低電子温度」、「メンテナンスフリー」を実現させるネオリングホロー磁化放電を確立し、負イオン生成を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 2019 年度研究方法及び研究計画

アルミニウムやシリコンウェハなどの非アルカリ金属表面に多数のステップが形成できるかどうかを検討するために、非アルカリ金属表面のスパッタ処理を実施するプラズマ装置の評価を実施する。スパッタ処理に使用するプラズマは、これまでに開発していたリングホロー磁化放電装置である。その後、プラズマ放電開始電圧の圧力依存性、プラズマ密度や発光の空間分布の計測を静電プローブ法やデジタルカメラによる画像計測により実施する。

(2) 2020 年度研究方法及び研究計画

ダブルリング溝を有するホロー電極の裏側に永久磁石を配置し、溝内部で電子を閉じ込める構造とした。その電極構造を用いて水素プラズマを発生させた。シリコンウェハの非アルカリ金属表面に多数のステップが形成できるかどうかを検討する前に、水素プラズマの空間分布を静電プローブを用いて詳細に計測した。リング状のホロー溝を形成しているため、軸対称を仮定することにより、静電プローブを半径方向及び軸方向に移動させてイオン飽和電流 (プラズマ密度に比例) の空間分布を計測した。イオン飽和電流計測では、静電プローブへ -70V にバイアスした際に流入する電流を抵抗の電圧降下として変換しデジタルオシロスコープにより時間平均を行い高精度に計測した。

(3) 2021 年度研究方法及び研究計画

高純度アルミニウムをターゲットとしてスパッタ法により、ホロー溝内へ結晶性の高いアルミニウム薄膜合成を行う予定であったが、新型コロナウイルス拡大の影響を受けて、純度の高いアルミニウムの入手が困難となった。そこで、Particle in Cell (粒子法) を用いたダブルリングホロー磁化放電による水素プラズマの数値シミュレーションを実施し、プラズマ分布を検討した。スモラッコウスキー効果を 2 次電子放出係数の増加と仮定し、計算を実施した。

4. 研究成果

(1) 2019 年度研究成果

リングホロー磁化放電プラズマ装置の安定放電試験を実施し、安定放電を実現できた。その後、プラズマ放電開始電圧の圧力依存性、プラズマ密度や発光の空間分布の計測を静電プローブ法やデジタルカメラによる画像計測により実施した。その結果、ガス圧力によって、磁石による磁

界の閉じ込め効果の寄与が異なることを見出した。数10 Pa 以上では、プラズマ生成機構において、リングホロー効果のみが支配的に作用し、磁界閉じ込め効果はほとんど期待されなかった。一方、数 Pa 程度の圧力領域では、磁界閉じ込め効果が寄与するプラズマ密度分布やプラズマ発光分布の実験結果が観測された。

(2)2020 年度研究成果⁽¹⁾

水素ガス圧力を変化させることにより、放電電圧や電子ホールパラメータの圧力依存性、プラズマ密度の空間分布を計測し、その分布を明らかにした。図1に放電電圧 V_{rf} (peak-to-peak 値)、電子ホールパラメータ h_e の水素ガス圧力 p_{H_2} 依存性を示す。ここで、比較のため、磁石無しの結果も載せている。放電開始電圧はデジタルオシロスコープに高電圧プローブ(100:1)を介して計測した。磁石無しの電圧は、ガス圧力が増加するとともに、304 から 232Vpp へ単調に減少している。一方、磁界ありでは、圧力 2 から 30Pa へ減少すると、296 から 260Vpp へ急激に減少し、その後緩やかに減少し、250Vpp 程度の値になっている。即ち、ガス圧力 30Pa より大きい場合、磁石ありの放電電圧は磁石無しのそれより、高くなっている。その結果を議論するために、電子ホールパラメータ h_e を次式より算出した。

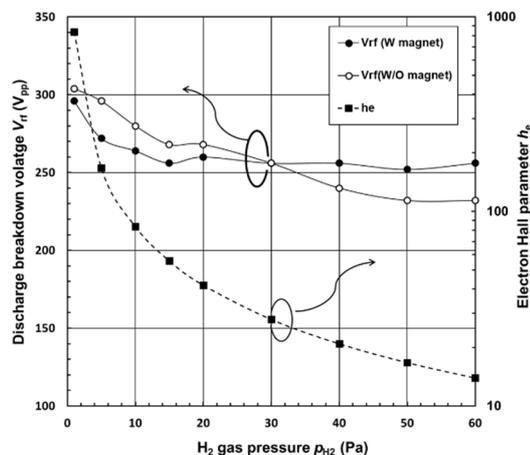


図1 放電電圧 V_{rf} 、電子ホールパラメータ h_e と水素ガス圧力 p_{H_2} との関係

$$h_e = \omega_{ce} \tau_e \quad (1),$$

ここで、 ω_{ce} と τ_e はそれぞれ、電子のサイクロトロン角周波数と電子水素分子の衝突時間を示す。電子ホールパラメータはガス圧力に反比例していることがわかる。水素ガス圧力 30Pa では、30 程度である。即ち、電子は 30Pa 以上で磁化し始めていることを示唆している。従って、ガス圧力が高い領域では、ホロー溝内での電子磁気閉じ込めは減少し、ホロー溝内での電子の電力吸収が増大したものと考えられる。同時に、プラズマ抵抗が磁界無しに比べて磁界有の方が高くなる。従って、磁界有の放電電圧が磁界無しに比べて高圧領域で高くなったものと考えられる。

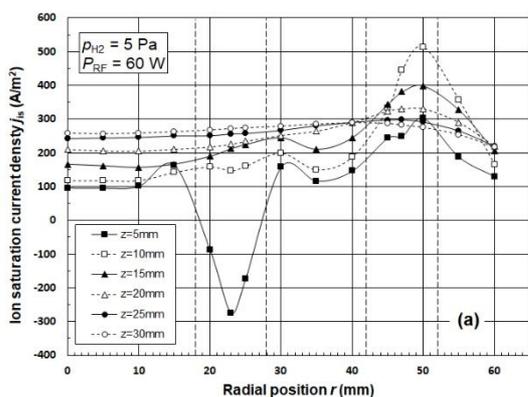


図2 $p_{H_2}=5\text{Pa}$ における j_{is} の半径分布

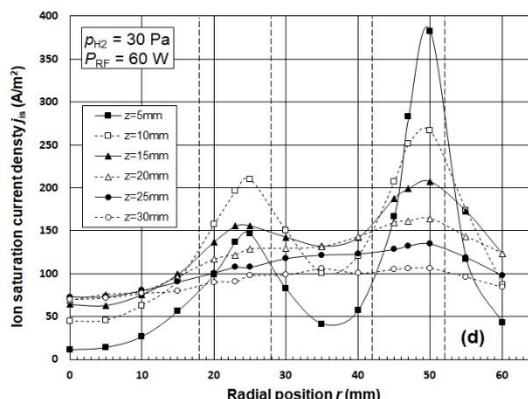


図3 $p_{H_2}=30\text{Pa}$ における j_{is} の半径分布

図2と図3にそれぞれ、圧力5 Paと30 Paにおけるイオン飽和電流密度 j_{is} の半径方向分布を示す。電極表面からの距離 $z = 5$ から 30 mm の範囲で計測した。図2より、内側のホロー溝付近のイオン飽和電流密度はピークを示していない。一方、 $40 \leq r \leq 52$ mm の外側のホロー溝では、ピーク値を示している。そのピーク値は $z=10\text{mm}$ まで増加し、その後減少している。最大値は、プラズマ密度で、 $2.8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ 程度である。従って、空間分布は $z = 30 \text{ mm}$ でほぼ均一に近づいている。

図3より、30Paでは、イオン飽和電流密度はすべて位置で正の値を示している。即ち、ダブルリングプラズマが実現されている。その最大値は 380 A/m^2 で、プラズマ密度では $2.8 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ に相当する。ダブルピークは、電極からの距離が大きくなると減少し、均一分布に近づいていることがわかる。ダブルピークの起源は、電子磁化閉じ込め効果ではなく、ホロー陰極効果に起因するものである。図3に示したように、電子ホールパラメータも圧力の増加とともに減少している。

ガス圧力30Paが電子の磁化効果を減少させる臨界圧力と考えられる。

(3)2021 年度研究成果

ペガサスソフトウェア社 PIC-MCC を用いて、ダブルリングホロ 磁化プラズマの数値シミュレーションを実施した。水素ガス圧力を変化させて数値実験を実施した。図 4 に水素ガス圧力 30Pa における電子密度の空間分布を示す。ダブルリングホロ 溝の位置が高密度となるダブルピークを持つプラズマ分布が得られているのがわかる。即ち、図 3 で示した実験結果とほぼ同様な結果となっている。

図 5 に水素ガス圧力 1Pa における電子密度の空間分布を示す。1Pa 程度の圧力では、外側のリングホロ 溝内では高密度を維持し、内側のリングホロー溝では、殆どプラズマ維持ができないことがわかる。即ち、シングルピークを持つプラズマ分布が得られた。2次電子放出係数を通常の 10 倍以上の値 0.1 ~ 0.2 程度に設定したが、内側リングホロー溝ではプラズマ維持が困難であることがわかった。低圧力では、スモラッコウスキー効果が期待できるホロ 溝サイズがあることが明らかとなった。

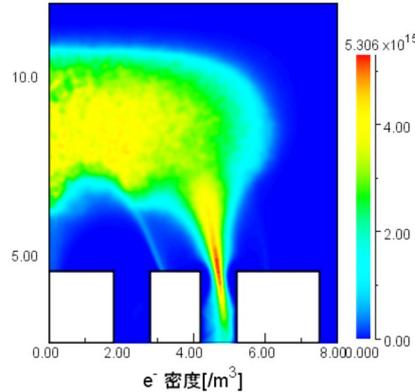
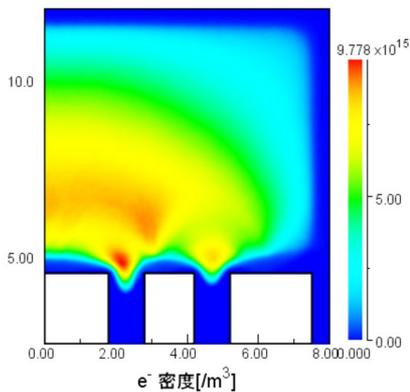


図 4 $p_{H_2}=30\text{Pa}$ における電子密度の空間分布

図 5 $p_{H_2}=1\text{Pa}$ における電子密度の空間分布

< 引用文献 >

- (1) Ohtsu Yasunori, Imoto Shoma, Takemura Shunya and Schulze Julian, “Characteristics of a radio frequency magnetized double-ring-shaped hollow cathode plasma source with permanent magnets for high-density hydrogen plasma generation”, Vacuum, Vol.193(2021)pp.110531.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Ohtsu Yasunori, Nakashima Takahiro, Tanaka Rei, Schulze Julian	4. 巻 181
2. 論文標題 Characteristics of a rotational windmill-shaped radio frequency magnetron sputtering plasma for effective target utilization	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Vacuum	6. 最初と最後の頁 109593 ~ 109593
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.vacuum.2020.109593	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Ohtsu Yasunori, Tanaka Rei, Nakashima Takahiro	4. 巻 60
2. 論文標題 Development of rotational maze-shaped RF magnetron plasma for successful target utilization and thin-film preparation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SAAB01 ~ SAAB01
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/abb758	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Yasunori Ohtsu, Masaya Takasaki and Julian Schulze	4. 巻 52
2. 論文標題 Spatial structure of radio-frequency capacitive discharge plasma with ring-shaped hollow electrode using Ar and O ₂ mixture gases	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics D: Applied Physics	6. 最初と最後の頁 355202-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6463/ab2862	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Yasunori Ohtsu, Yusuke Takada, Kosei Sugawara, Yuki Fujio, and Tatsuo Tabaru	4. 巻 58
2. 論文標題 Treatment of a polycarbonate plate for a next-generation vehicle window by radio frequency magnetron plasma sputtering using a PVDF target	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SEED03-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab0c72	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Md. Amzad Hossain, M. A. Majed Patwary, M. M. Rahman Bhuiyan, Yutaro Nakamura, Kosei Sugawara & Yasunori Ohtsu	4. 巻 174
2. 論文標題 Observation of ring-shaped pulsed DC discharge plasma source using single pole magnet setups for material processing	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Radiation Effects and Defects in Solids Incorporating Plasma Science and Plasma Technology	6. 最初と最後の頁 380-396
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/10420150.2019.1596105	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計14件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 安田 洸也、大津 康徳
2. 発表標題 ターゲット有効利用のための新規磁石配置による回転型高周波マグネトロンスパッタリング装置の開発
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 井野 雄太、大津 康徳、安永 健、池上 康之
2. 発表標題 アンバランスマグネトロンスパッタ装置の構築と ポリカーボネート板への PTFE 撥水性薄膜合成
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 坂田豪大, 大津康徳
2. 発表標題 対向円筒型ターゲットを用いた高周波プラズマスパによる透明導電膜の合成とその空間分布
3. 学会等名 プラズマ・核融合学会 九州・沖縄・山口支部 第24回支部大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 安田洸也、大津康徳
2. 発表標題 高周波マグネトロンスパッタにおける回転型新規磁石配置によるターゲット浸食分布の改善
3. 学会等名 プラズマ・核融合学会 九州・沖縄・山口支部 第24回支部大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 井野雄太、大津康徳、安永健、池上康之、田原竜夫、藤尾侑輝
2. 発表標題 アンバランスマグネトロンスパッタによるポリカーボネート板へのPTFE撥水性膜合成及び評価
3. 学会等名 プラズマ・核融合学会 九州・沖縄・山口支部 第24回支部大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yasunori Ohtsu, Rei Tanaka and Takahiro Nakashima
2. 発表標題 Development of rotational maze-shaped RF magnetron plasma for successful target utilization and the thin film preparation
3. 学会等名 ISPlasma2020/IC-PLANTS2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 田中黎, 中嶋崇博, 大津康徳
2. 発表標題 回転迷路型高周波マグネトロンスパッタ装置の開発とその評価
3. 学会等名 プラズマ・核融合学会 九州・沖縄・山口支部 第23回 支部大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 本田進之介, 井野雄太, 福永悠人, 大津康徳
2. 発表標題 アルゴン・酸素混合ガスを用いた高周波ホロー陰極放電プラズマアッシングの酸素濃度依存性と分光特性
3. 学会等名 プラズマ・核融合学会 九州・沖縄・山口支部第23回 支部大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 安田洸也, 井野雄太, 大津康徳
2. 発表標題 高周波マグネトロンスパッタリングによる金属板表面へのPVDF薄膜合成
3. 学会等名 プラズマ・核融合学会 九州・沖縄・山口支部第23回 支部大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 井野雄太, 安田洸也, 大津康徳
2. 発表標題 アンバランスマグネトロンスパッタによる次世代自動車窓材プラスチック板への撥水性薄膜合成
3. 学会等名 プラズマ・核融合学会 九州・沖縄・山口支部第23回 支部大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Ohtsu, K. Kawabata, K. Aso and J. Schulze
2. 発表標題 Production of double ring-shaped magnetized radio-frequency hydrogen high-density plasma
3. 学会等名 2019 International Symposium on Dry Process (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田中 黎、大津 康德、中嶋 崇博
2. 発表標題 ターゲット利用率向上 を目的とした回転迷路型 RF マグネトロンスパッタ装置の開発 とその評価
3. 学会等名 2019年第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 本田 進之介、大津 康德、井野 雄太、福永 悠人
2. 発表標題 アルゴン・酸素混合ガスを用いた高周波ホロー陰極放電プラズマの生成と分光特性
3. 学会等名 2019年第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 井野 雄太、大津 康德、安田 洸也
2. 発表標題 次世代自動車窓材プラスチック板への撥水性薄膜合成のための高周波マグネトロンスパッタ装置の開発
3. 学会等名 2019年第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 穂積、大津 他24名	4. 発行年 2021年
2. 出版社 サイエンス&テクノロジー	5. 総ページ数 280
3. 書名 超撥水・超撥油・滑液性表面の技術(第2巻)	

1. 著者名 Yasunori Ohtsu and Takashi Sumiyama	4. 発行年 2019年
2. 出版社 NOVA Science Publishers	5. 総ページ数 16
3. 書名 ZnO Thin Films: Properties, Performance and Applications Chapter 6 Development of Novel RF Sputtering Plasma Source and Preparation of Al-Doped ZnO Thin Films for Transparent Conductive Oxide Applications	

〔産業財産権〕

〔その他〕

プラズマエレクトロニクス研究室 http://www.ee.saga-u.ac.jp/plasma/index.html 教員活動データベース（大津康徳） http://research.dl.saga-u.ac.jp/profile/ja.22219f9ca69d58c4.html

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------