

JAERI - M
93-229

電子ビーム加熱で生成したガドリニウム
原子蒸気中のプラズマの上昇速度

1993年12月

大場 弘則・小倉 浩一・柴田 猛順

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1993

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 原子力資料サービス

電子ビーム加熱で生成したカドリニウム原子蒸気中のプラズマの上昇速度

日本原子力研究所東海研究所燃料研究部
大場 弘則・小倉 浩一・柴田 猛順

(1993年11月1日受理)

電子ビーム加熱で生成した原子蒸気には蒸発部で発生したプラズマが含まれており、これが原子蒸気とともに上昇する。カドリニウム蒸気を生成させたときに蒸発部で発生するカドリニウムプラズマの上昇速度を測定した。上昇する蒸発部生成プラズマ内において平行平板電極にパルス負電圧を印加すると、平行平板間のプラズマ密度が低下し、この部分がプラズマの流れとともに上昇する。電極の上部に設けた三個のラングミュアプローブに入る飽和イオン電流はパルス電圧印加後、一定時間して減少する。この時間遅れからプラズマの上昇速度を求めた。プラズマは1200~1300 m/sで上昇し、原子蒸気の上昇速度の1.2~1.4倍であった。測定値は蒸発部生成プラズマの空間電位差でプラズマ内イオンが加速されるとして計算した値と良く一致した。

Drift Velocity of Gadolinium Plasma in Gadolinium
Atomic Vapor Produced by Electron Beam Heating

Hironori OHBA, Koichi OGURA and Takemasa SHIBATA

Department of Chemistry and Fuel Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received November 1, 1993)

Drift velocity of gadolinium plasma contained in gadolinium vapor, which was produced by an electron beam heating, was measured. When a pulsed negative voltage was applied to parallel plate electrodes set in the plasma flowing upward, ions in the plasma were extracted the electrodes and the low density plasma region was formed between the parallel plate electrodes. The low density region flowed upward with the drift velocity of the plasma. Ion saturation currents were monitored by three Langmuir probes, which were put above the electrodes. The drift velocity was obtained from the delay time of a decrease in ion saturation currents. The drift velocity was $1200 \sim 1300 \text{m/s}$ and $1.2 \sim 1.4$ times higher than the atomic vapor velocity. This value agreed well with that estimated on the assumption of ion acceleration by an electric potential difference in the plasma.

Keywords: Drift Velocity, Plasma, Gadolinium, Electron Beam Heating,
Langmuir Probe, Removal Electrode.

目 次

1. はじめに	1
2. 実 験	1
3. 実験結果	2
4. 考 察	4
5. おわりに	7
謝 辞	8
引用文献	8

Contents

1. Introduction	1
2. Experiments	1
3. Experimental Results	2
4. Discussion	4
5. Conclusion	7
Acknowledgement	8
References	8

1. はじめに

原子法レーザー同位体分離では原子蒸気にレーザー光を照射して目的同位体のみをイオン化し、これを電場で電極に回収する¹⁾。電子ビーム加熱は蒸気圧の低いウラン等の高融点金属でも容易に原子蒸気を作ることができるので、原子法レーザー同位体分離用原子蒸気生成に用いられている。しかし、電子ビーム加熱で金属を蒸発させると蒸発部近傍で電子ビームにより蒸発原子が部分的にイオン化されてプラズマが発生する²⁾。蒸発部で発生したプラズマが原子蒸気とともに同位体分離部まで流れ込むと、プラズマ中のイオンはレーザーでイオン化された目的同位体イオンとともに電極に回収される。蒸発部生成プラズマ中のイオンの同位体比は天然同位体比なので、回収されたイオンの同位体濃縮度が低下してしまう。このため同位体分離部への蒸発部生成プラズマの流入を抑える必要がある。プラズマ流入抑制のためには、蒸発部生成プラズマの特性を知ることが重要である。

著者等は、蒸発部生成プラズマの特性の測定^{3, 4, 5)}、蒸発部生成プラズマの同位体分離部への流入を抑える実験^{6, 7, 8, 9)}を行ってきた。その結果、磁場偏向型電子銃を用いた場合、蒸発部近傍で生成したガドリニウムプラズマの電子温度は0.08 eVで蒸発面温度2400 Kに比べ非常に低いこと、原子蒸気中のイオンの割合は1%を越え、その値は蒸発原子の加熱用電子ビームによる衝突電離として推定した値と一致することを報告した^{3, 4)}。また、直進型電子銃でガドリニウムを大量に蒸発させた時のプラズマ特性も測定し、電子温度が蒸発面温度2540 Kに比べて非常に低く、蒸発量を増加させるにしたがって0.06 eVまで低下すること、原子蒸気中のイオンの割合は0.4%程度であり、磁場偏向型電子銃を用いた場合と同様に電子ビームによる衝突電離として推定できることを報告した⁵⁾。プラズマの流入を抑えるプラズマ除去試験では、原子蒸気に沿って設置した平行平板の除去電極に負電圧を印加すると、効率良くプラズマ除去ができること、必要印加電圧は測定したプラズマ特性を用いて推定できることを示した⁶⁾。一方、西尾等^{10, 11)}は電子ビーム加熱生成ウラン原子蒸気中のウランプラズマの電離度測定から、プラズマ内のイオンがプラズマの空間電位差で加速されるため、プラズマは原子蒸気よりも速く上昇すると推定している。しかし、プラズマ上昇速度自体は測定していない。このため著者等は、蒸発部で生成したガドリニウム蒸気中のプラズマの上昇速度を、除去電極とラングミュアプローブを用いる新しい飛行時間法を考案して測定を試みた。結果の一部を既に速報として報告している¹²⁾が、ここではその詳細について述べる。

2. 実験

実験装置の概略をFig. 1に示す。水冷銅るつぼ内のガドリニウムを電子ビーム加熱（日本真空技術（株）製磁場偏向型電子銃EGK-35、加速電圧10 kV、最大出力5

1. はじめに

原子法レーザー同位体分離では原子蒸気にレーザー光を照射して目的同位体のみをイオン化し、これを電場で電極に回収する¹⁾。電子ビーム加熱は蒸気圧の低いウラン等の高融点金属でも容易に原子蒸気を作ることができるので、原子法レーザー同位体分離用原子蒸気生成に用いられている。しかし、電子ビーム加熱で金属を蒸発させると蒸発部近傍で電子ビームにより蒸発原子が部分的にイオン化されてプラズマが発生する²⁾。蒸発部で発生したプラズマが原子蒸気とともに同位体分離部まで流れ込むと、プラズマ中のイオンはレーザーでイオン化された目的同位体イオンとともに電極に回収される。蒸発部生成プラズマ中のイオンの同位体比は天然同位体比なので、回収されたイオンの同位体濃縮度が低下してしまう。このため同位体分離部への蒸発部生成プラズマの流入を抑える必要がある。プラズマ流入抑制のためには、蒸発部生成プラズマの特性を知ることが重要である。

著者等は、蒸発部生成プラズマの特性の測定^{3, 4, 5)}、蒸発部生成プラズマの同位体分離部への流入を抑える実験^{6, 7, 8, 9)}を行ってきた。その結果、磁場偏向型電子銃を用いた場合、蒸発部近傍で生成したガドリニウムプラズマの電子温度は0.08 eVで蒸発面温度2400 Kに比べ非常に低いこと、原子蒸気中のイオンの割合は1%を越え、その値は蒸発原子の加熱用電子ビームによる衝突電離として推定した値と一致することを報告した^{3, 4)}。また、直進型電子銃でガドリニウムを大量に蒸発させた時のプラズマ特性も測定し、電子温度が蒸発面温度2540 Kに比べて非常に低く、蒸発量を増加させるにしたがって0.06 eVまで低下すること、原子蒸気中のイオンの割合は0.4%程度であり、磁場偏向型電子銃を用いた場合と同様に電子ビームによる衝突電離として推定できることを報告した⁵⁾。プラズマの流入を抑えるプラズマ除去試験では、原子蒸気に沿って設置した平行平板の除去電極に負電圧を印加すると、効率良くプラズマ除去ができること、必要印加電圧は測定したプラズマ特性を用いて推定できることを示した⁹⁾。一方、西尾等^{10, 11)}は電子ビーム加熱生成ウラン原子蒸気中のウランプラズマの電離度測定から、プラズマ内のイオンがプラズマの空間電位差で加速されるため、プラズマは原子蒸気よりも速く上昇すると推定している。しかし、プラズマ上昇速度自体は測定していない。このため著者等は、蒸発部で生成したガドリニウム蒸気中のプラズマの上昇速度を、除去電極とラングミュアプローブを用いる新しい飛行時間法を考案して測定を試みた。結果の一部を既に速報として報告している¹²⁾が、ここではその詳細について述べる。

2. 実験

実験装置の概略をFig. 1に示す。水冷銅るつぼ内のガドリニウムを電子ビーム加熱（日本真空技術（株）製磁場偏向型電子銃EGK-35、加速電圧10 kV、最大出力5

kW)で蒸発させた。この電子銃はこれまで蒸発部生成プラズマの特性、プラズマ除去試験を行ったものと同じである。蒸発面から345mmの位置に間隔15mmの平行平板で作った除去電極を設けた。除去電極は、幅80mm、長さ17mmである。除去電極上端から20mm、70mm、120mmの高さに三個のタングステン製リングミュアプローブ(直径0.7mm、長さ3mm)P1、P2、P3を取付けた。Fig. 2は測定部の側面図で、上部のプローブが下部のプローブの影に入らないように、各プローブを除去電極長手方向にずらして取付けた。蒸発面から425mm上方に設けた水晶振動子型膜厚計で蒸発量をモニターした。測定は電子ビーム入力1.5~3kWで行った。なお、除去電極については、その長さの影響をみるため長さ50mmのものを用いた実験も行った。

Fig. 3にはプラズマ上昇速度を測定した飛行時間法の概念を示す。Fig. 3(a)はプラズマが除去電極を通過できないように、除去電極に十分な負電圧を印加した場合で、プラズマ中のイオンが除去電極に引出されてしまう。この状態で同位体分離などの実験を行ってきた。本測定は通常負電圧印加する除去電極にパルス負電圧を印加した。Fig. 3(b)は除去電極電位がアース電位のと看で、プラズマの一部は除去電極間隙を抜けてプローブ付近にも流れ出してくる。プローブには負電圧を印加してプラズマの飽和イオン電流を測定する。アース電位にしている除去電極にパルス負電圧を電極両側に印加してプラズマからパルスの的にイオンを除去電極に引出して、除去電極間隙にあるプラズマの幅を減少させる(Fig. 3(c))。パルスの的にプラズマの幅が減少した部分はプラズマの流れとともに広がりながら上昇するので、プラズマ密度が他の部分に比べ減少する(Fig. 3(d))。負電圧を印加した各プローブに流れる飽和イオン電流はパルス電圧印加の一定時間後に減少する。各プローブの飽和イオン電流の変化をオシロスコープで観測し、イオン電流減少の時間遅れ、すなわち低密度プラズマ領域の飛行時間からプラズマの上昇速度を求めた。

3. 実験結果

Fig. 4は除去電極に-100V、10 μ sのパルス負電圧を印加したとき、-75Vを印加した各プローブに流れる飽和イオン電流の時間変化の測定例で、除去電極長が17mm、蒸着速度が20.5nm/sのときのものである。パルス電圧印加前後の飽和イオン電流の定常値は上ほど小さくなっているが、これはプラズマが膨張しながら上方に流れているので上ほどイオン密度が小さくなっているためである。パルス負電圧が印加されてから15 μ s後にP1に流れるイオン電流が減少し、P2、P3ではそれぞれ57 μ s、98 μ s後にイオン電流が減少し始めている。また、P1、P2およびP3に流れるイオン電流が最小となる時間はパルス負電圧印加後それぞれ31 μ s、73 μ s、118 μ s後である。Fig. 5は上記の時間と各プローブの位置の関係をプロットしたもので、●印はイオン電流が減少し始めた時間、▲印はイオン電流が最小となる時間である。●印、

kW)で蒸発させた。この電子銃はこれまで蒸発部生成プラズマの特性、プラズマ除去試験を行ったものと同じである。蒸発面から345mmの位置に間隔15mmの平行平板で作った除去電極を設けた。除去電極は、幅80mm、長さ17mmである。除去電極上端から20mm、70mm、120mmの高さに三個のタングステン製リングミュアプローブ(直径0.7mm、長さ3mm)P1、P2、P3を取付けた。Fig. 2は測定部の側面図で、上部のプローブが下部のプローブの影に入らないように、各プローブを除去電極長手方向にずらして取付けた。蒸発面から425mm上方に設けた水晶振動子型膜厚計で蒸発量をモニターした。測定は電子ビーム入力1.5~3kWで行った。なお、除去電極については、その長さの影響をみるため長さ50mmのものを用いた実験も行った。

Fig. 3にはプラズマ上昇速度を測定した飛行時間法の概念を示す。Fig. 3(a)はプラズマが除去電極を通過できないように、除去電極に十分な負電圧を印加した場合で、プラズマ中のイオンが除去電極に引出されてしまう。この状態で同位体分離などの実験を行ってきた。本測定は通常負電圧印加する除去電極にパルス負電圧を印加した。Fig. 3(b)は除去電極電位がアース電位のと看で、プラズマの一部は除去電極間隙を抜けてプローブ付近にも流れ出してくる。プローブには負電圧を印加してプラズマの飽和イオン電流を測定する。アース電位にしている除去電極にパルス負電圧を電極両側に印加してプラズマからパルスの的にイオンを除去電極に引出して、除去電極間隙にあるプラズマの幅を減少させる(Fig. 3(c))。パルスの的にプラズマの幅が減少した部分はプラズマの流れとともに広がりながら上昇するので、プラズマ密度が他の部分に比べ減少する(Fig. 3(d))。負電圧を印加した各プローブに流れる飽和イオン電流はパルス電圧印加の一定時間後に減少する。各プローブの飽和イオン電流の変化をオシロスコープで観測し、イオン電流減少の時間遅れ、すなわち低密度プラズマ領域の飛行時間からプラズマの上昇速度を求めた。

3. 実験結果

Fig. 4は除去電極に-100V、10 μ sのパルス負電圧を印加したとき、-75Vを印加した各プローブに流れる飽和イオン電流の時間変化の測定例で、除去電極長が17mm、蒸着速度が20.5nm/sのときのものである。パルス電圧印加前後の飽和イオン電流の定常値は上ほど小さくなっているが、これはプラズマが膨張しながら上方に流れているので上ほどイオン密度が小さくなっているためである。パルス負電圧が印加されてから15 μ s後にP1に流れるイオン電流が減少し、P2、P3ではそれぞれ57 μ s、98 μ s後にイオン電流が減少し始めている。また、P1、P2およびP3に流れるイオン電流が最小となる時間はパルス負電圧印加後それぞれ31 μ s、73 μ s、118 μ s後である。Fig. 5は上記の時間と各プローブの位置の関係をプロットしたもので、●印はイオン電流が減少し始めた時間、▲印はイオン電流が最小となる時間である。●印、

▲印とも、一直線上にのっている。これはパルス負電圧印加により定常状態よりイオン密度が低くなったプラズマが一定速度で流れており、それが検出されていることを示している。▲印で示したイオン電流が最小となる時間を用いてその速度を求めると 1170 m/s である。これは●印で示したイオン電流減少開始時間で求めた速度 1210 m/s とほぼ一致している。両者の平均で上昇速度を求めると 1190 m/s が得られる。

Fig. 6は除去電極長を 50 mm にしたときの各プローブの飽和イオン電流測定例である。このときの蒸着速度は 14.6 nm/s で、プローブ印加電圧は -75 V である。Fig. 7はFig. 5と同様にイオン電流減少の時間とその位置の関係を示している。イオン電流減少開始時間の●印、イオン電流最小時間の▲印はいずれも直線にのっており、その傾きから出した速度の平均で上昇速度を求めると 1240 m/s となる。

上記の2例は飽和イオン電流を測定するために、プローブ印加電圧を -75 V としている。しかし、印加電圧を大きくするとプローブ周りのシース厚が大きくなり広い領域からイオンを補集してしまいイオン電流の減少時間測定に影響を及ぼす可能性がある。このため、プローブ印加電圧を -1.5 V にした場合も測定した。Fig. 8は除去電極長が 17 mm 、蒸着速度が 18.3 nm/s の場合の測定例である。Fig. 9はFig. 7と同様に図示したもので、上昇速度は 1240 m/s と求まった。

Fig. 10に求めたプラズマ上昇速度の蒸着速度依存性を示す。図中○印は除去電極長さが 17 mm 、プローブ印加電圧が -75 V を、△印は除去電極長さが 50 mm 、プローブ印加電圧が -75 V 、□印は除去電極長さが 17 mm 、プローブ印加電圧が -1.5 V の場合の測定例をそれぞれ示している。測定された上昇速度は除去電極長、プローブ印加電圧に依存しないことがわかる。蒸着速度が 5.5 nm/s 以下では生成プラズマの密度が低くアース電位の除去電極を通過する間にプラズマが消滅したり密度が非常に低くなるため本方法でプラズマ上昇速度を測定できなかった。Fig. 10には真空天秤およびラングミュアプローブで測定した原子蒸気速度¹³⁾も示す。プラズマ上昇速度が測定できた範囲では、プラズマの上昇速度は蒸着速度にあまり依存せず $1200\sim 1300\text{ m/s}$ で原子蒸気速度の約 $1.2\sim 1.4$ 倍であった。

Fig. 5、Fig. 7、Fig. 9の縦軸は除去電極の上端を 0 cm としている。●印の直線を時間 $0\text{ }\mu\text{s}$ のところまで点線のように伸ばすと、縦軸の 0 cm 付近、すなわち除去電極の上端付近で交わる。これはパルス負電圧が印加されてプラズマ密度が薄くなり始めたところがプラズマの流れに乗って動いていることを示している。また、イオン電流が最小になる時間▲印の直線を伸ばすと、除去電極の下端付近になる。除去電極下端部の電極に接するプラズマのイオン密度が最も高いため、除去電極に引出されるイオン電流密度が大きいこと、この部分はパルス負電圧が印加されている $10\text{ }\mu\text{s}$ の間ずっと除去電極間を上昇しているため、イオン電流が最も減少する部分となっていると考えられる。

Fig. 4、Fig. 6、Fig. 8に示した除去電極から離れたプローブP2、P3の飽和イオン電流の減少波形には、△印で示す小さいピークが見られる。この小さいピー

クの時間を Fig. 5、Fig. 7、Fig. 9 に△印でプロットした。△印を結ぶ線の傾きから速度を求めると、1000 m/s である。また各プローブのイオン電流の減少が終了する時間についても Fig. 5、Fig. 7、Fig. 9 に○印でプロットすると、○印も一直線上になる。この直線の傾きから速度を求めると、△印とほぼ同じ約 1000 m/s である。△印、○印の直線を点線のように伸ばすと、おおよそではあるが△印は除去電極上端部に、○印は除去電極上端部の時間がちょうどパルス負電圧印加終了時すなわち $10 \mu\text{s}$ のところになっている。これは蒸発部生成プラズマには上昇速度が 1200 m/s の速い成分の他に約 1000 m/s の遅い成分もあることを示している。特に、パルス負電圧印加終了時に除去電極下端部にあったプラズマのうち、遅い成分がプローブ電流減少の終了時間に対応する。

4. 考 察

電子ビーム加熱蒸発部で生成したプラズマが原子蒸気よりも速く上昇していることがわかった。ここで、西尾等^{10, 11)}と同様にプラズマの速度を推定し、実験値と比較してみた。

Fig. 11 にプラズマの上昇速度を推定したモデルを示す。電子密度 n_e とプラズマ空間電位 V の間にはボルツマンの関係式¹⁴⁾が成立し、しかもプラズマ内では電子密度とイオン密度 n_i が等しいので

$$n_i = n_e \propto \exp\left(\frac{eV}{kT_e}\right) \quad (1)$$

となる。ここで、 k はボルツマン定数、 e は電子の電荷、 T_e は電子温度である。蒸発面近傍での蒸発原子間の衝突が頻繁な衝突領域で蒸発原子は膨張冷却して加速される^{15, 16)}。その後原子密度が低下して原子間衝突のない無衝突領域になると、原子は一定速度で上昇する。一方、プラズマ中のイオンは衝突領域では中性原子との頻繁な衝突で原子蒸気と同じ速度まで加速される。イオンはさらに無衝突領域ではプラズマ電位差による加速が起こる、と西尾等^{10, 11)}と同様に仮定する。衝突領域から無衝突領域に遷移する点が、蒸発面からの距離 r_0 にあるとする。距離 r_0 でのイオン密度を n_{i0} 、プラズマ電位を V_0 とし、蒸発面から距離 r にある無衝突領域でのイオン密度を n_{ir} 、プラズマ電位を V_r とすれば、(1) 式より

$$\begin{aligned} \frac{n_{ir}}{n_{i0}} &= \exp\left(\frac{eV_r}{kT_e}\right) / \exp\left(\frac{eV_0}{kT_e}\right) \\ &= \exp\left\{\frac{e(V_r - V_0)}{kT_e}\right\} \end{aligned} \quad (2)$$

となる。従って、イオンは距離 r_0 から r までで (2) 式で決まる次の電位差で加速され

クの時間を Fig. 5、Fig. 7、Fig. 9 に△印でプロットした。△印を結ぶ線の傾きから速度を求めると、1000 m/s である。また各プローブのイオン電流の減少が終了する時間についても Fig. 5、Fig. 7、Fig. 9 に○印でプロットすると、○印も一直線上になる。この直線の傾きから速度を求めると、△印とほぼ同じ約1000 m/s である。△印、○印の直線を点線のように伸ばすと、おおよそではあるが△印は除去電極上端部に、○印は除去電極上端部の時間がちょうどパルス負電圧印加終了時すなわち10 μs のところになっている。これは蒸発部生成プラズマには上昇速度が1200 m/s の速い成分の他に約1000 m/s の遅い成分もあることを示している。特に、パルス負電圧印加終了時に除去電極下端部にあったプラズマのうち、遅い成分がプローブ電流減少の終了時間に対応する。

4. 考 察

電子ビーム加熱蒸発部で生成したプラズマが原子蒸気よりも速く上昇していることがわかった。ここで、西尾等^{10, 11)}と同様にプラズマの速度を推定し、実験値と比較してみた。

Fig. 11 にプラズマの上昇速度を推定したモデルを示す。電子密度 n_e とプラズマ空間電位 V の間にはボルツマンの関係式¹⁴⁾が成立し、しかもプラズマ内では電子密度とイオン密度 n_i が等しいので

$$n_i = n_e \cdot \exp\left(\frac{eV}{kT_e}\right) \quad (1)$$

となる。ここで、 k はボルツマン定数、 e は電子の電荷、 T_e は電子温度である。蒸発面近傍での蒸発原子間の衝突が頻繁な衝突領域で蒸発原子は膨張冷却して加速される^{15, 16)}。その後原子密度が低下して原子間衝突のない無衝突領域になると、原子は一定速度で上昇する。一方、プラズマ中のイオンは衝突領域では中性原子との頻繁な衝突で原子蒸気と同じ速度まで加速される。イオンはさらに無衝突領域ではプラズマ電位差による加速が起こる、と西尾等^{10, 11)}と同様に仮定する。衝突領域から無衝突領域に遷移する点が、蒸発面からの距離 r_0 にあるとする。距離 r_0 でのイオン密度を n_{i0} 、プラズマ電位を V_0 とし、蒸発面から距離 r にある無衝突領域でのイオン密度を n_{ir} 、プラズマ電位を V_r とすれば、(1) 式より

$$\begin{aligned} \frac{n_{ir}}{n_{i0}} &= \exp\left(\frac{eV_r}{kT_e}\right) / \exp\left(\frac{eV_0}{kT_e}\right) \\ &= \exp\left\{\frac{e(V_r - V_0)}{kT_e}\right\} \end{aligned} \quad (2)$$

となる。従って、イオンは距離 r_0 から r までで (2) 式で決まる次の電位差で加速され

る。

$$V_0 - V_r = \frac{k T_e}{e} \ln \left(\frac{n_{i0}}{n_{ir}} \right) \quad (3)$$

イオン密度が原子密度と同様に蒸発面からの距離の二乗に反比例するとすれば、

$$\frac{n_{ir}}{n_{i0}} = \left(\frac{r_0}{r} \right)^2 \quad (4)$$

なので

$$V_0 - V_r = \frac{2 k T_e}{e} \ln \left(\frac{r}{r_0} \right) \quad (5)$$

となる。蒸発面からの距離 r_0 の点でのイオン速度 v_{i0} は原子蒸気速度 v_a に等しいとすれば、蒸発面からの距離 r でのイオン速度 v_{ir} は

$$\frac{1}{2} m v_{ir}^2 - \frac{1}{2} m v_a^2 = e (V_0 - V_r) \quad (6)$$

$$= 2 k T_e \ln \left(\frac{r}{r_0} \right) \quad (7)$$

より

$$v_{ir} = \sqrt{v_a^2 + \frac{4 k T_e}{m} \ln \left(\frac{r}{r_0} \right)} \quad (8)$$

として求めることができる。ここで、 m はイオンの質量である。距離 r での v_{ir} は v_a 、 T_e 、 r_0 がわかればよい。原子蒸気速度 v_a 、電子温度 T_e はいずれも測定してある。

遷移点 r_0 は明確に定義できるものではないが、蒸発原子の平均自由行程 λ が原子蒸気の広がり程度すなわち特性長 D に等しくなる点として求める。原子の平均自由行程は、

$$\lambda = \frac{1}{\sqrt{2 \pi d^2 n_a}} \quad (9)$$

である。ここで d はガドリニウムの原子直径で、ゴルトシュミットの原子半径から 0.36 nm とした^{17, 18)}。 n_a は原子密度で、蒸発源からの距離 r の二乗にほぼ反比例するので、

$$n_a = \frac{K}{r^2} \quad (10)$$

と書ける。ここで、 K は比例定数で水晶振動子膜厚計の蒸着速度と原子蒸気速度より推定できる。(10)式を(9)式に代入すると

$$\lambda = \frac{r^2}{\sqrt{2\pi} d^2 K} \quad (11)$$

となる。蒸発源からの蒸気の広がりには正確にはわからない。ここでは仮に広がり距離 r の $1/2$ 程度と考え、特性長 D を $r/2$ として、

$$\lambda = D = \frac{r}{2} \quad (12)$$

となる r すなわち r_0 を求めると、(11)式から次のようになる。

$$r_0 = \frac{\pi d^2 K}{\sqrt{2}} \quad (13)$$

プラズマ上昇速度を測定した P1、P2、P3 の中心点 P2 でのイオン速度すなわちプラズマの上昇速度を推定してみる。P2 の高さは $r = 4.2$ cm である。例えば蒸着速度 18.3 nm/s のとき、 $K = 1.0 \times 10^{15}$ cm⁻¹ で遷移点は蒸発面から 2.9 cm 上となる。またこのときの原子蒸気速度 985 m/s¹³⁾ とプラズマの電子温度 0.08 eV³⁾ を代入すると $e(V_0 - V_r)$ は 0.43 eV で、推定上昇速度 1230 m/s を得る。また、この計算を蒸着速度 $5 \sim 21$ nm/s について行った結果を Fig. 10 中の実線で示す。

上記の計算例ではイオン密度が(4)式のように r^2 に反比例するとして上昇速度を推定したが、イオンは加速されながら広がる。このため(4)式は近似式で、正しくはイオンフラックス $n_{ir} v_{ir}$ が r^2 に反比例して次のようになる

$$\frac{n_{ir} v_{ir}}{n_{i0} v_{i0}} = \left(\frac{r_0}{r} \right)^2 \quad (14)$$

(4)式でなく(14)式を用いた場合、(5)、(7)、(8)式は成立しないが(3)、(6)式は成立する。このとき(8)式のように v_{ir} を既知の値から直接算出できないが(3)、(12)、(6)式より

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} m v_{ir}^2 - \frac{1}{2} m v_i^2 &= k T \cdot \ln \left(\frac{v_{ir}}{v_{i0}} \right) \left(\frac{r}{r_0} \right)^2 \\ &= 2 k T \cdot \ln \left(\frac{r}{r_0} \right) + k T \cdot \ln \left(\frac{v_{ir}}{v_{i0}} \right) \end{aligned} \quad (15)$$

が得られる。これは v_{ir} についての方程式になっており、数値解を求めることができる。

(7) 式と (15) 式の違いは (15) 式右辺の第 2 項 $k T \cdot \ln(v_{ir}/v_{io})$ のみである。 v_{ir}/v_{io} は 1.2 ~ 1.4 であるので $\ln(v_{ir}/v_{io})$ は約 0.3 で、このときの加速エネルギーの変化は 0.02 eV にしかならない。したがって、(14) 式でなく (4) 式を用いても推定上昇速度はほとんど変化しない。

この推定法で最も不確かなところは、衝突領域から無衝突領域への遷移点 r_0 の算出である。ここでは (12) 式から r_0 を求めたが、特性長を仮に $r/2$ でなく r としてみると r_0 は 2 倍の 5.8 cm になり、電位差で加速されるエネルギーは上記の計算例では 0.32 eV に減少する。しかし、推定上昇速度は約 5% 遅くなるだけである。また、測定した電子温度に ± 0.01 eV のずれがあったとしても、推定上昇速度のずれは $\pm 2\%$ にしかならない。以上のように推定速度の算出に 5% 程度の不確定があるが推定値は測定値とほぼ一致している。これは蒸発部で生成したプラズマ内のイオンがプラズマの電位差で加速されていることを示していると考えられる。このプラズマ加速機構が正しいことを直接確認するには遷移点付近にプローブを置いてその電位を測定する必要があるが、蒸発面から 2 cm 上では加熱用電子ビームが通過しておりプローブが溶けてしまう。今後、電子ビームが通過しない範囲でできるだけプローブ位置を蒸発面に近づけてプラズマ電位の測定を試みる予定である。

Fig. 4、Fig. 6、Fig. 8 では約 1000 m/s で上昇するプラズマが観測された。なぜ、この遅い上昇速度のイオン流れが生ずるのかはまだ理解できていない。一つの可能性として、イオンおよび原子蒸気が蒸発部から測定部へと上昇する過程で加速されたイオンが原子を超越するとき電荷交換反応が起こり、この反応で生成した原子ビーム速度のイオンがそこから加速されることが考えられる。電荷交換反応で遅いイオンができたとすると、その生成場所は衝突領域から無衝突領域への遷移する点から計測する場所までの広い範囲にわたっている。遅いイオンはプラズマの空間電位で加速されるエネルギーが生成場所で異なる。したがってそのエネルギー分布は広くなると考えられる。しかし、遅いイオンのエネルギーの分布は非常に狭いのでエネルギー分布を矛盾なく説明できない。遅い上昇速度のイオン流れが生じる原因についてはさらに調べていきたい。

5. おわりに

電子ビーム蒸発部で発生したガドリニウムプラズマの上昇速度を飛行時間法より求めた。その結果、プラズマは 1200 ~ 1300 m/s で上昇し、原子蒸気よりも 1.2 ~ 1.4 倍速いことがわかった。また、測定値はプラズマの空間電位差で加速されるとして計算した値とほぼ一致した。なお、プラズマ流入の抑制に必要な除去電極印加負電圧の推定には、ここで求めた上昇速度も用いて行っている⁶⁾が、その推定値は実験で求めた必要印加電圧と良く一致した。

(7)式と(15)式の違いは(15)式右辺の第2項 $kT \cdot \ln(v_{ir}/v_{io})$ のみである。 v_{ir}/v_{io} は1.2~1.4であるので $\ln(v_{ir}/v_{io})$ は約0.3で、このときの加速エネルギーの変化は0.02 eVにしかならない。したがって、(14)式でなく(4)式を用いても推定上昇速度はほとんど変化しない。

この推定法で最も不確かなところは、衝突領域から無衝突領域への遷移点 r_0 の算出である。ここでは(12)式から r_0 を求めたが、特性長を仮に $r/2$ でなく r としてみると r_0 は2倍の5.8 cmになり、電位差で加速されるエネルギーは上記の計算例では0.32 eVに減少する。しかし、推定上昇速度は約5%遅くなるだけである。また、測定した電子温度に ± 0.01 eVのずれがあったとしても、推定上昇速度のずれは $\pm 2\%$ にしかならない。以上のように推定速度の算出に5%程度の不確定があるが推定値は測定値とほぼ一致している。これは蒸発部で生成したプラズマ内のイオンがプラズマの電位差で加速されていることを示していると考えられる。このプラズマ加速機構が正しいことを直接確認するには遷移点付近にプローブを置いてその電位を測定する必要があるが、蒸発面から2 cm上では加熱用電子ビームが通過しておりプローブが溶けてしまう。今後、電子ビームが通過しない範囲でできるだけプローブ位置を蒸発面に近づけてプラズマ電位の測定を試みる予定である。

Fig. 4、Fig. 6、Fig. 8では約1000 m/sで上昇するプラズマが観測された。なぜ、この遅い上昇速度のイオン流れが生ずるのかはまだ理解できていない。一つの可能性として、イオンおよび原子蒸気が蒸発部から測定部へと上昇する過程で加速されたイオンが原子を超越するとき電荷交換反応が起こり、この反応で生成した原子ビーム速度のイオンがそこから加速されることが考えられる。電荷交換反応で遅いイオンができたとすると、その生成場所は衝突領域から無衝突領域への遷移する点から計測する場所までの広い範囲にわたっている。遅いイオンはプラズマの空間電位で加速されるエネルギーが生成場所で異なる。したがってそのエネルギー分布は広くなると考えられる。しかし、遅いイオンのエネルギーの分布は非常に狭いのでエネルギー分布を矛盾なく説明できない。遅い上昇速度のイオン流れが生じる原因についてはさらに調べていきたい。

5. お わ り に

電子ビーム蒸発部で発生したガドリニウムプラズマの上昇速度を飛行時間法より求めた。その結果、プラズマは1200~1300 m/sで上昇し、原子蒸気よりも1.2~1.4倍速いことがわかった。また、測定値はプラズマの空間電位差で加速されるとして計算した値とほぼ一致した。なお、プラズマ流入の抑制に必要な除去電極印加負電圧の推定には、ここで求めた上昇速度も用いて行っている⁶⁾が、その推定値は実験で求めた必要印加電圧と良く一致した。

謝 辞

本研究を行うにあたり、有益な議論をして頂いた西村昭彦氏に感謝いたします。

引 用 文 献

- 1) P. T. Greenland: Contemporary Physics, 31(1990)405.
- 2) Yu. D. Klevanov and L. V. Kashuba: Fizika i Khimiya Obrabotki Materialov, 2(1984)136.
- 3) H. Ohba, T. Arisawa, A. Nishimura, K. Ogura and T. Shibata: Atomic Collision Research in Japan, 17(1991)101.
- 4) 大場弘則、西村昭彦、柴田猛順 : JAERI-M 92-194(1992).
- 5) H. Ohba, A. Nishimura and T. Shibata: to be published in Jpn. J. Appl. Phys., 32 (1993).
- 6) 柴田猛順、小嶋章、小倉浩一、吉原清次、有沢孝 : 日本原子力学会 (1989年秋の大会) 予稿集、G 27.
- 7) 大場弘則、西村昭彦、柴田猛順 : 日本原子力研究所 研究報告書 JAERI-M 92-216(1992).
- 8) H. Ohba, A. Nishimura, K. Ogura and T. Shibata: submitted to Rev. Sci. Instrum.
- 9) 大場弘則、有沢孝、西村昭彦、小倉浩一、柴田猛順 : 真空 35(1992)286.
- 10) 西尾良司、鈴木一道 : 日本原子力学会 (1991年秋の大会) 予稿集、L 19.
- 11) R. Nishio, K. Tsuchida, M. Tooma and K. Suzuki: J. Appl. Phys., 72(1992)4548.
- 12) 大場弘則、小倉浩一、柴田猛順 : 真空 35(1992)1001.
- 13) 小倉浩一、大場弘則、柴田猛順 : 真空 36(1993)207.
- 14) F. F. Chen著 (内田岱二郎訳) : プラズマ物理入門 (1977、丸善、東京) p61.
- 15) 西村昭彦、有沢孝、大場弘則、小倉浩一、柴田猛順 : 真空 35(1992)637.
- 16) A. Nishimura, H. Ohba and T. Shibata: J. Nucl. Sci. Technol., 29(1992)1054.
- 17) "Smithells Metals Reference Book", 6th Edition, edited by E. A. Brandes, (1983, Butterworths, London)4-27.
- 18) A. Nishimura, H. Kaburaki, H. Ohba and T. Shibata: J. Nucl. Sci. Technol., 30(1993)270.

謝 辞

本研究を行うにあたり、有益な議論をして頂いた西村昭彦氏に感謝いたします。

引 用 文 献

- 1) P. T. Greenland: Contemporary Physics, 31(1990)405.
- 2) Yu. D. Klevanov and L. V. Kashuba: Fizika i Khimiya Obrabotki Materialov, 2(1984)136.
- 3) H. Ohba, T. Arisawa, A. Nishimura, K. Ogura and T. Shibata: Atomic Collision Research in Japan, 17(1991)101.
- 4) 大場弘則、西村昭彦、柴田猛順 : JAERI-M 92-194(1992).
- 5) H. Ohba, A. Nishimura and T. Shibata: to be published in Jpn. J. Appl. Phys., 32 (1993).
- 6) 柴田猛順、小嶋章、小倉浩一、吉原清次、有沢孝 : 日本原子力学会 (1989年秋の大会) 予稿集、G 27.
- 7) 大場弘則、西村昭彦、柴田猛順 : 日本原子力研究所 研究報告書 JAERI-M 92-216(1992).
- 8) H. Ohba, A. Nishimura, K. Ogura and T. Shibata: submitted to Rev. Sci. Instrum.
- 9) 大場弘則、有沢孝、西村昭彦、小倉浩一、柴田猛順 : 真空 35(1992)286.
- 10) 西尾良司、鈴木一道 : 日本原子力学会 (1991年秋の大会) 予稿集、L 19.
- 11) R. Nishio, K. Tsuchida, M. Tooma and K. Suzuki: J. Appl. Phys., 72(1992)4548.
- 12) 大場弘則、小倉浩一、柴田猛順 : 真空 35(1992)1001.
- 13) 小倉浩一、大場弘則、柴田猛順 : 真空 36(1993)207.
- 14) F. F. Chen著 (内田岱二郎訳) : プラズマ物理入門 (1977、丸善、東京) p61.
- 15) 西村昭彦、有沢孝、大場弘則、小倉浩一、柴田猛順 : 真空 35(1992)637.
- 16) A. Nishimura, H. Ohba and T. Shibata: J. Nucl. Sci. Technol., 29(1992)1054.
- 17) "Smithells Metals Reference Book", 6th Edition, edited by E. A. Brandes, (1983, Butterworths, London)4-27.
- 18) A. Nishimura, H. Kaburaki, H. Ohba and T. Shibata: J. Nucl. Sci. Technol., 30(1993)270.

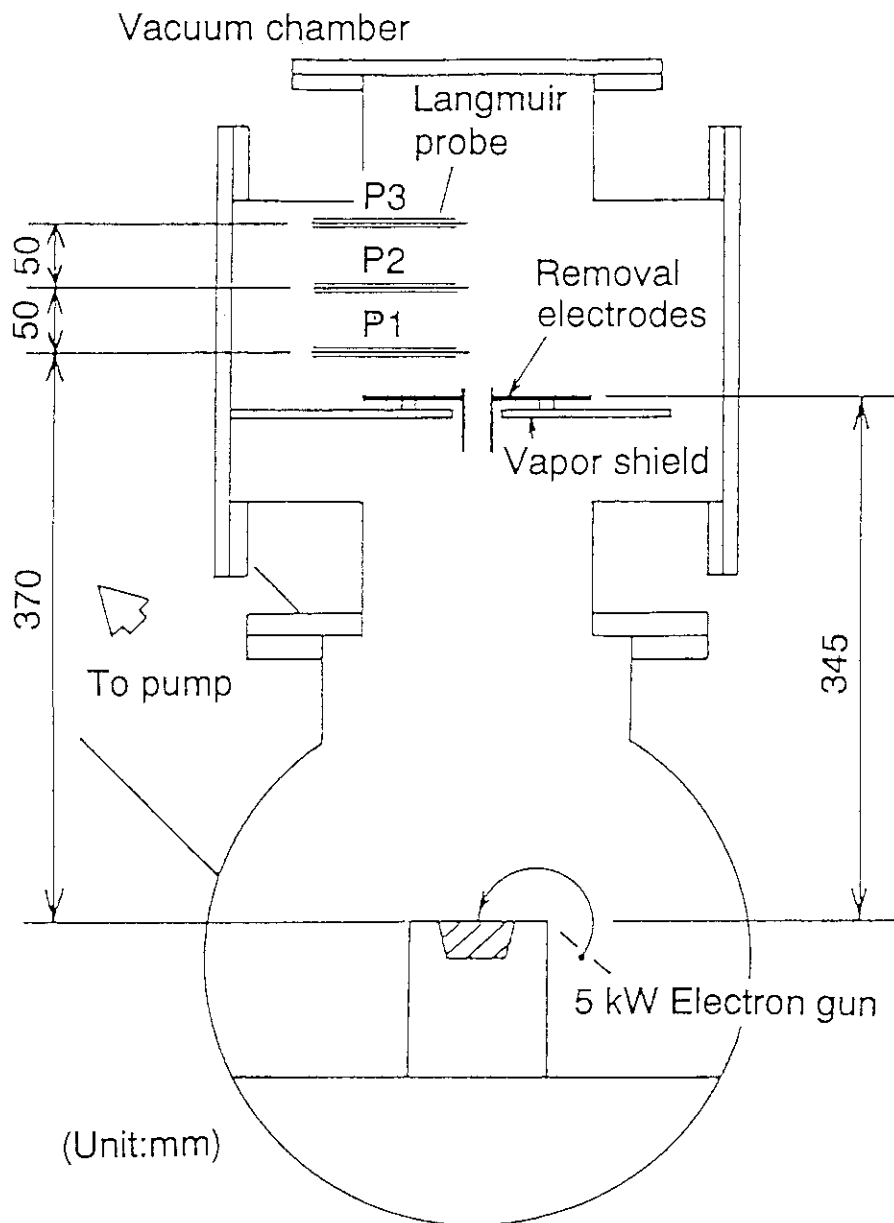


Fig.1 Schematic diagram of experimental apparatus.

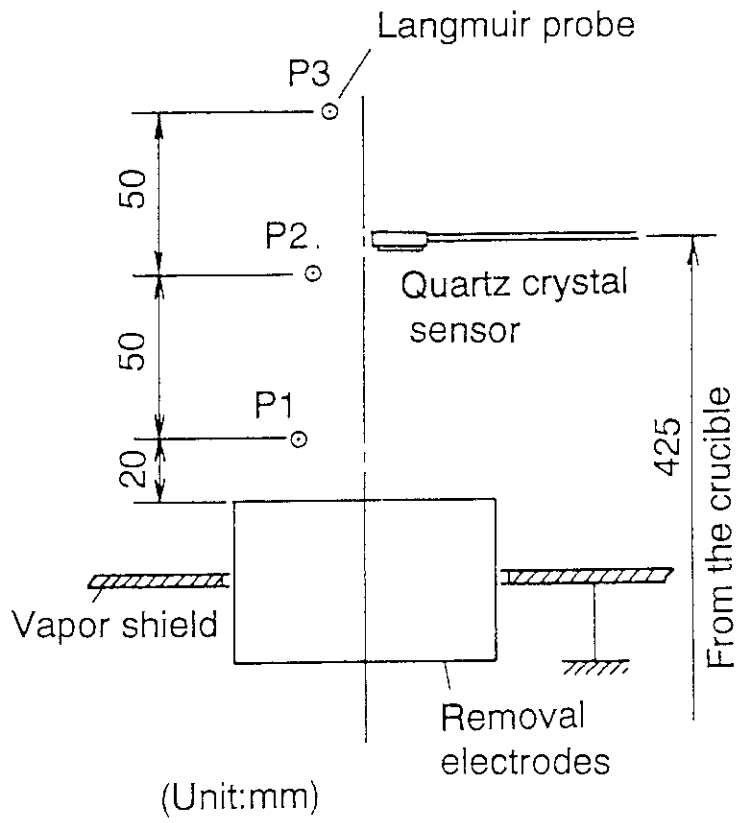


Fig.2 A side view of removal electrodes and Langmuir probes. The position of a quartz crystal sensor is also shown.

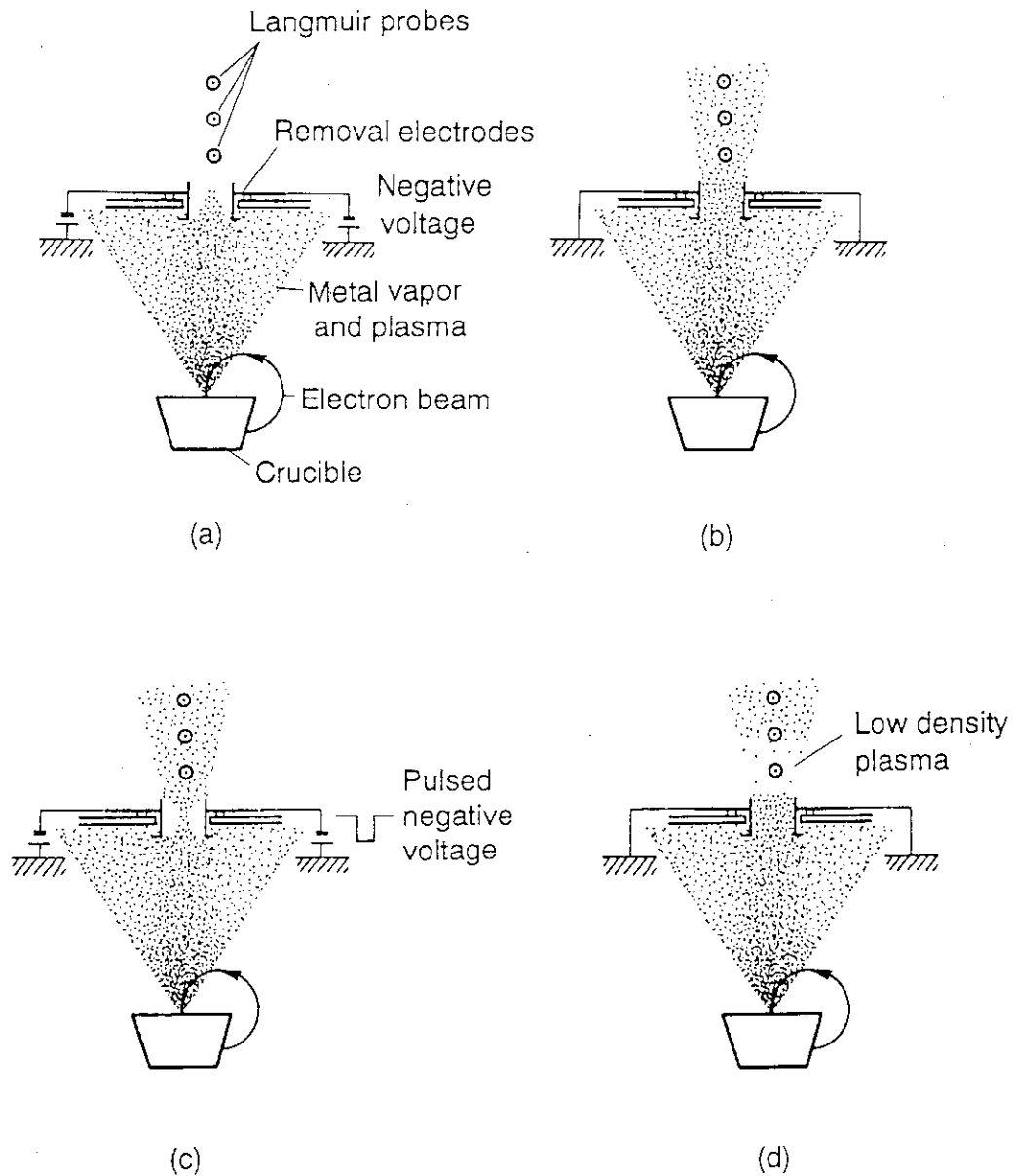


Fig.3 Schematic drawing of drifting plasma generated in the vicinity of the electron beam evaporation source. (a) Ions in the drifting plasma are extracted on the negatively biased removal electrodes and the plasma is removed. (b) When the removal electrodes are grounded, the plasma flows upward between the removal electrodes. (c) When the removal electrodes are pulse-biased negatively, the low density plasma region is produced, (d) and it reaches the probes. Measurements of the delay time of a decrease in ion saturation currents to the probes allow the computation of the plasma drift velocity.

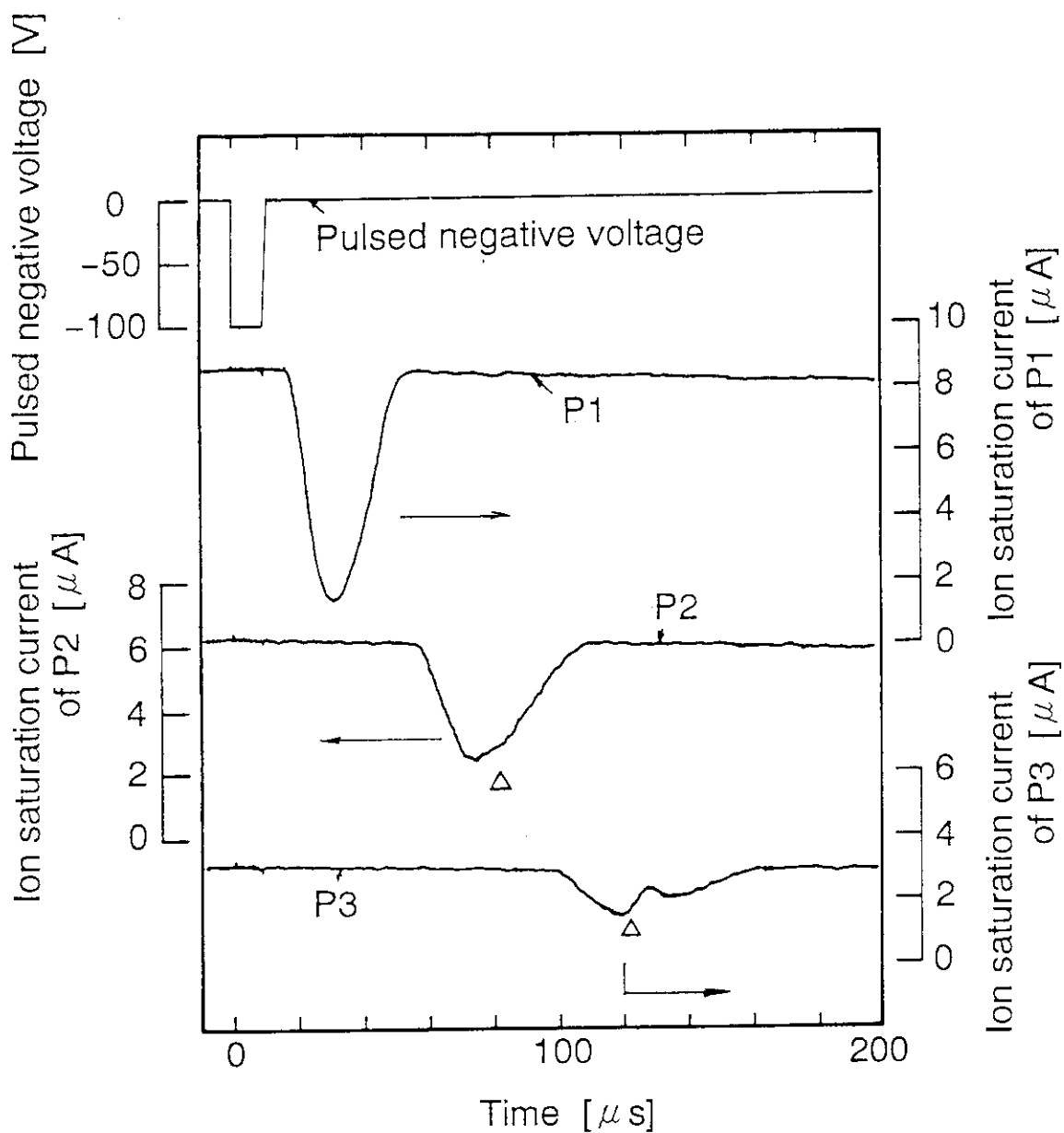


Fig.4 Time variation of ion saturation current at each probe at the deposition rate of 20.5nm/s under following experimental conditions: the removal electrode length L is 17mm, the pulsed negative voltage V_R is -100V, the pulse width t_w is 10 μs , the applied voltage to Langmuir probe V_p is -75V.

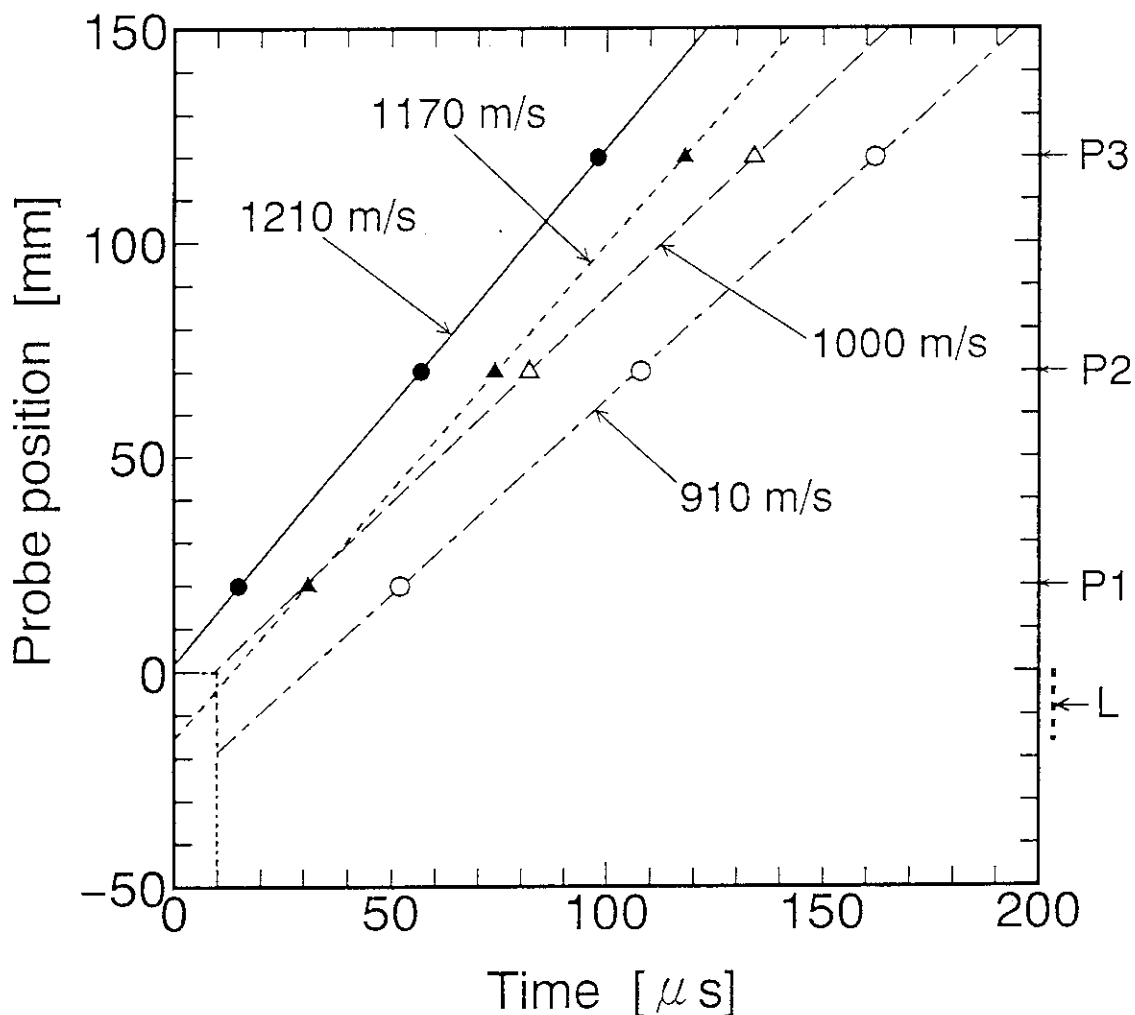


Fig.5 Relationships between probe positions and delay times of decrease in the ion saturation currents for the case of Fig.4. The scale of the probe position is the distance from the upper end of the removal electrodes. The position of the removal electrodes and three Langmuir probes are also shown. The time scale is the same as that in Fig.4. Closed circles show the beginning of decrease in the ion saturation currents. Closed triangles show the time when the ion saturation currents had minimum values. Open triangles indicate the delay time of small peak showing after the minimum value of decrease in the ion saturation currents. Open circles show the end of decrease in the ion saturation currents.

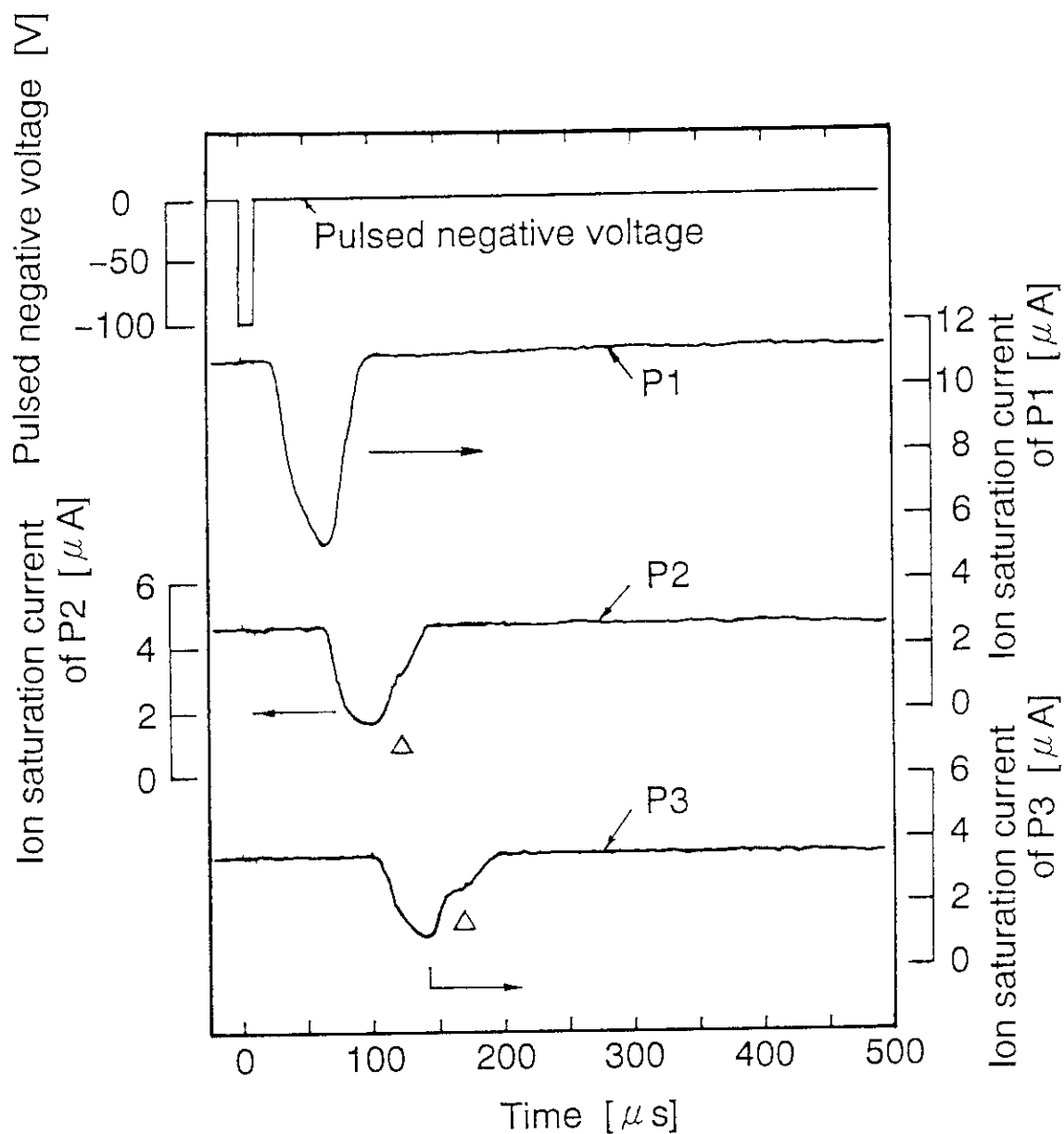


Fig.6 Time variation of ion saturation current at each probe at the deposition rate of 14.6nm/s under following experimental conditions: $L=50\text{mm}$, $V_R=-100\text{V}$, $t_W=10\mu\text{s}$, $V_P=-75\text{V}$.

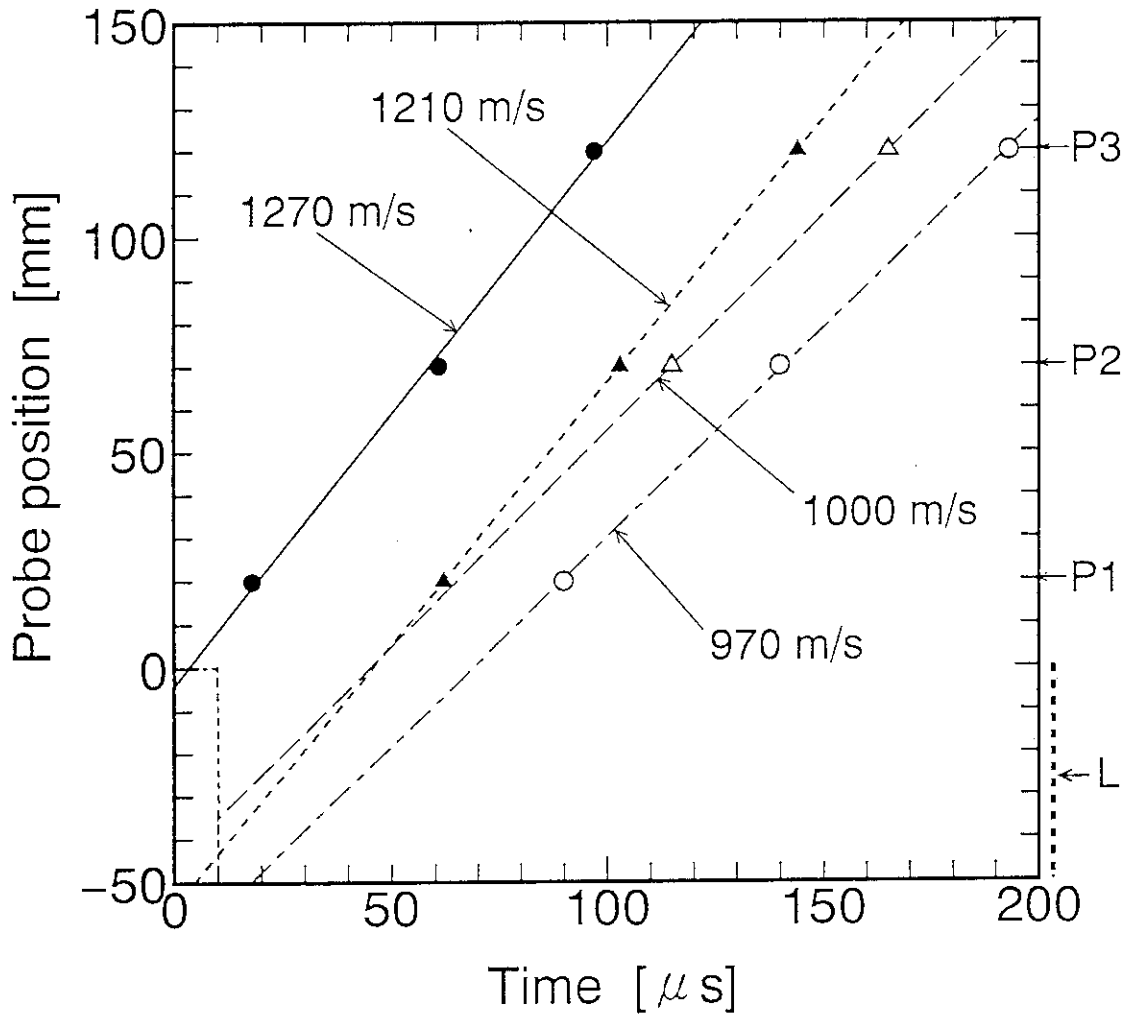


Fig.7 Relationships between probe positions and delay times of decrease in the ion saturation currents for the case of Fig.6. The scales and symbols are the same as those in Fig.5.

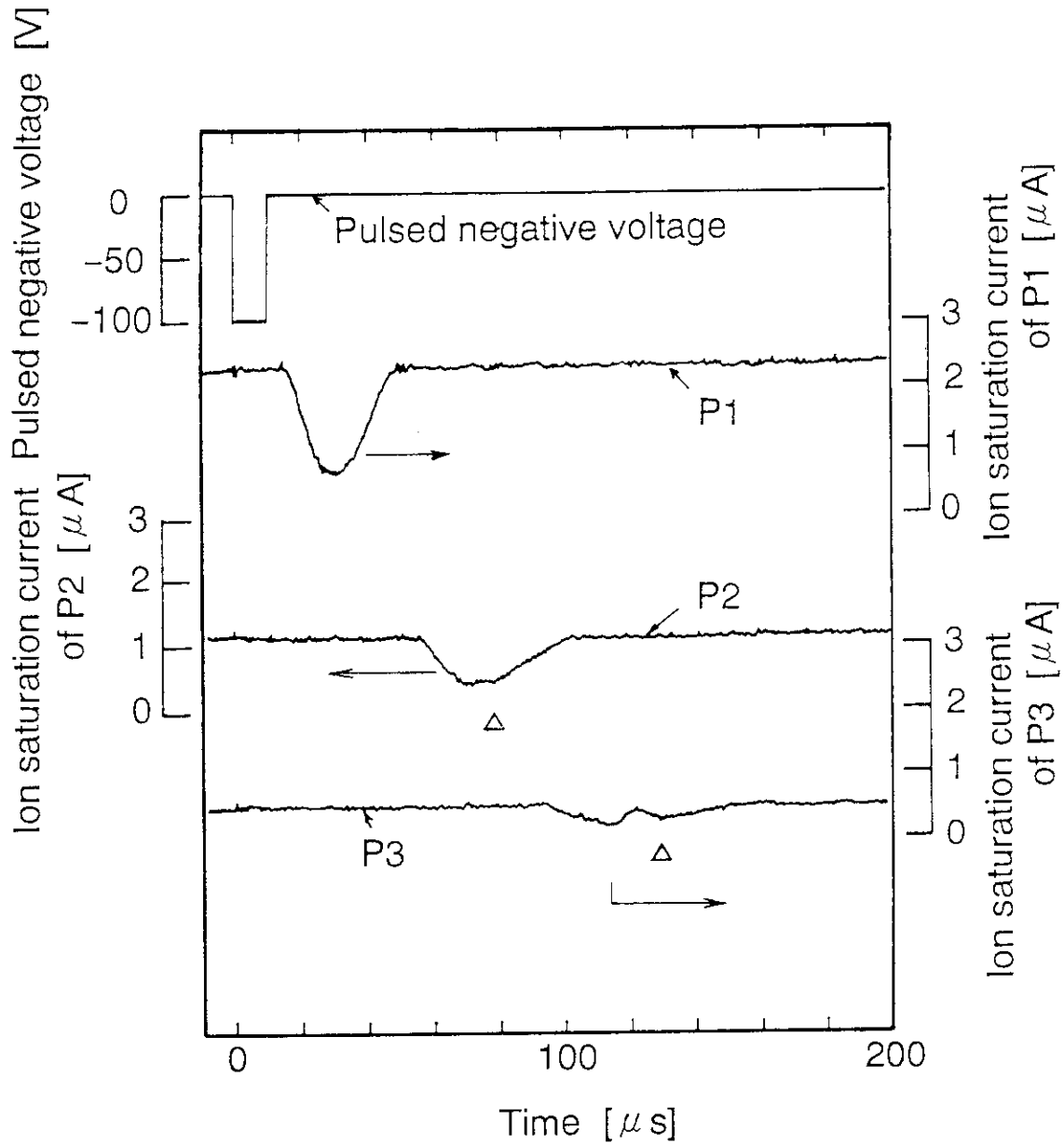


Fig.8 Time variation of ion saturation current at each probe at the deposition rate of 18.3nm/s under following experimental conditions: $L=17\text{mm}$, $V_R=-100\text{V}$, $t_W=10\mu\text{s}$, $V_P=-1.5\text{V}$.

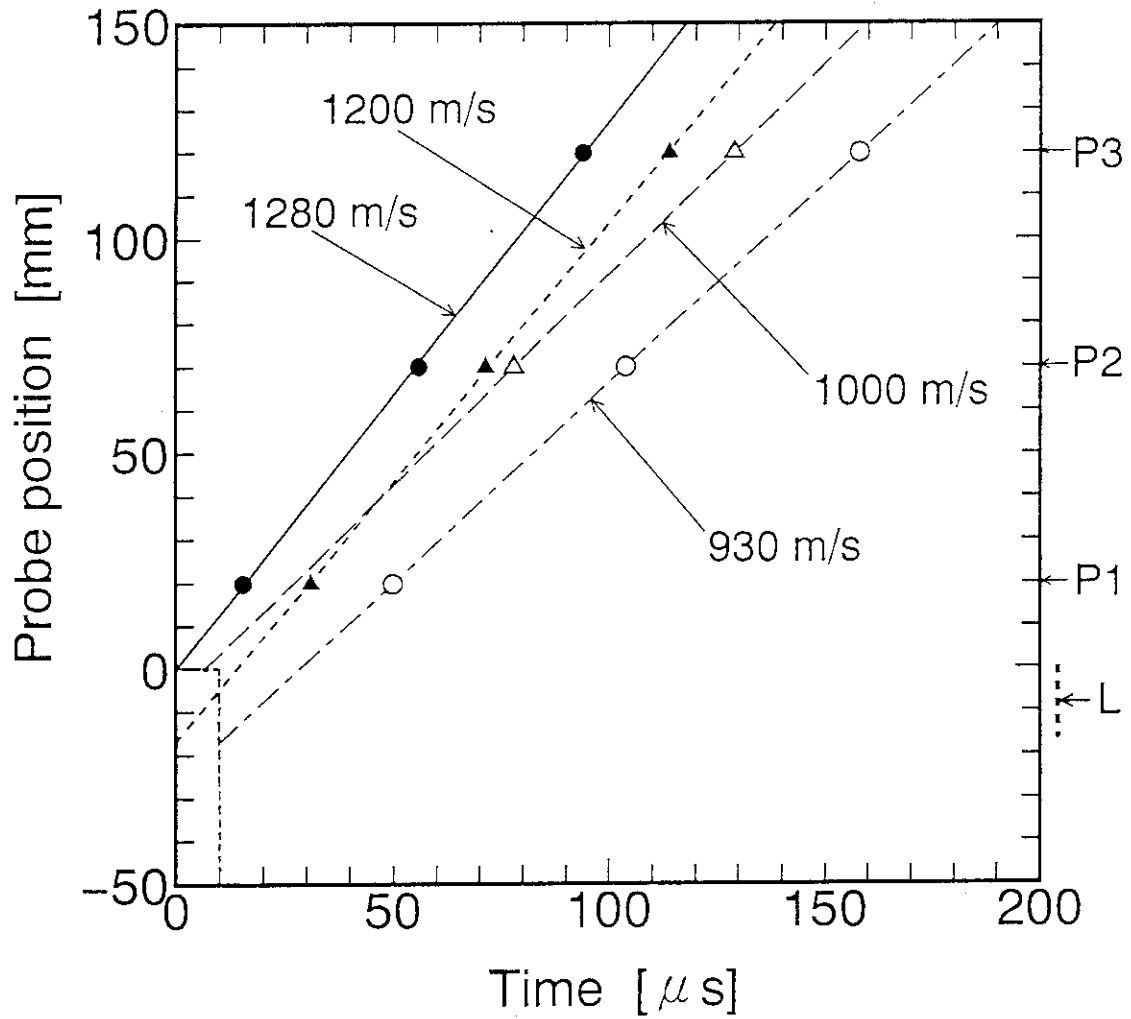


Fig.9 Relationships between probe positions and delay times of decrease in the ion saturation currents for the case of Fig.8. The scales and symbols are the same as those in Fig.5.

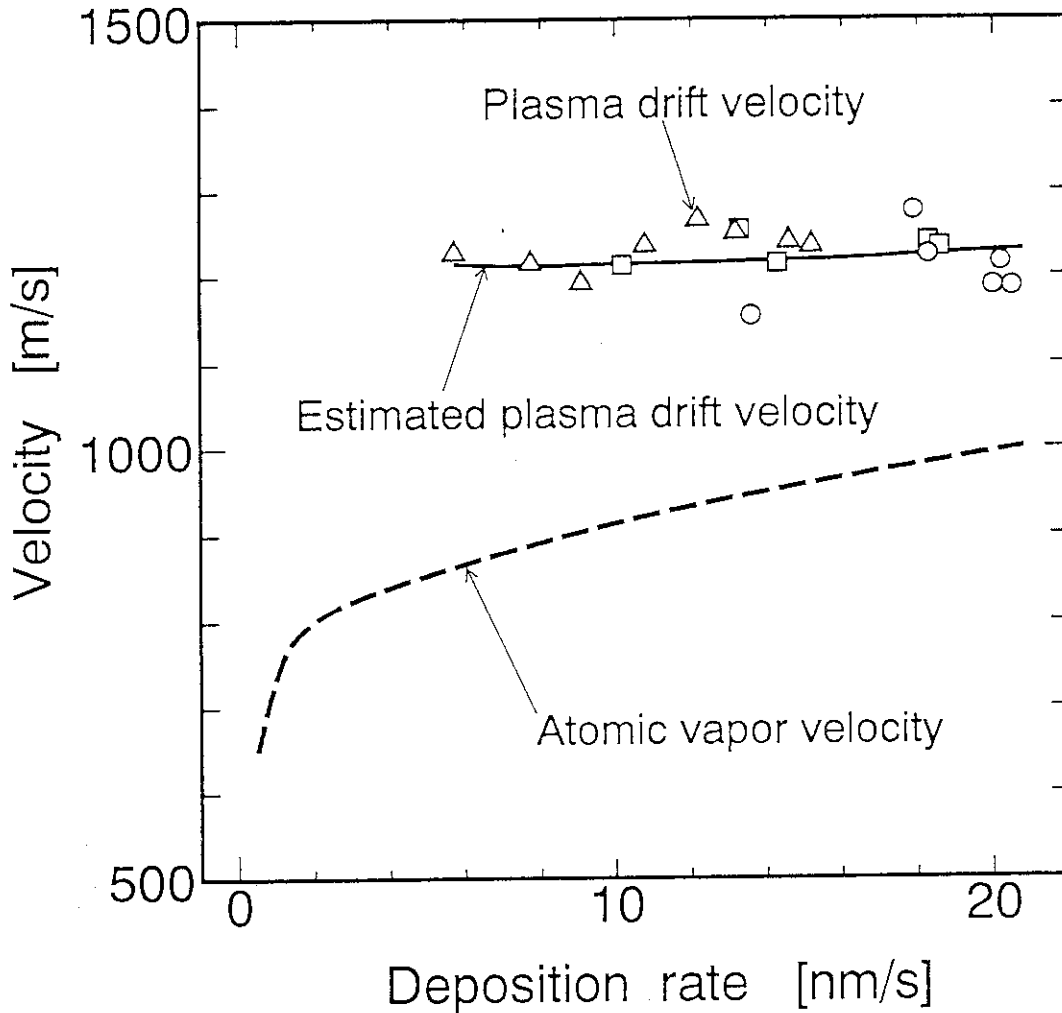


Fig.10 Plasma drift velocity as a function of the deposition rate. Open circles, open triangles, and open squares are show the drift velocities obtained from the following experimental conditions respectively, $L=17\text{mm}$ $V_p=-75\text{V}$, $L=50\text{mm}$ $V_p=-75\text{V}$, and $L=17\text{mm}$ $V_p=-1.5\text{V}$. The estimated plasma drift velocity is shown by solid line. The atomic vapor velocity¹³⁾ measured using vacuum micro balance and Langmuir probes is also shown by dashed line for comparison.

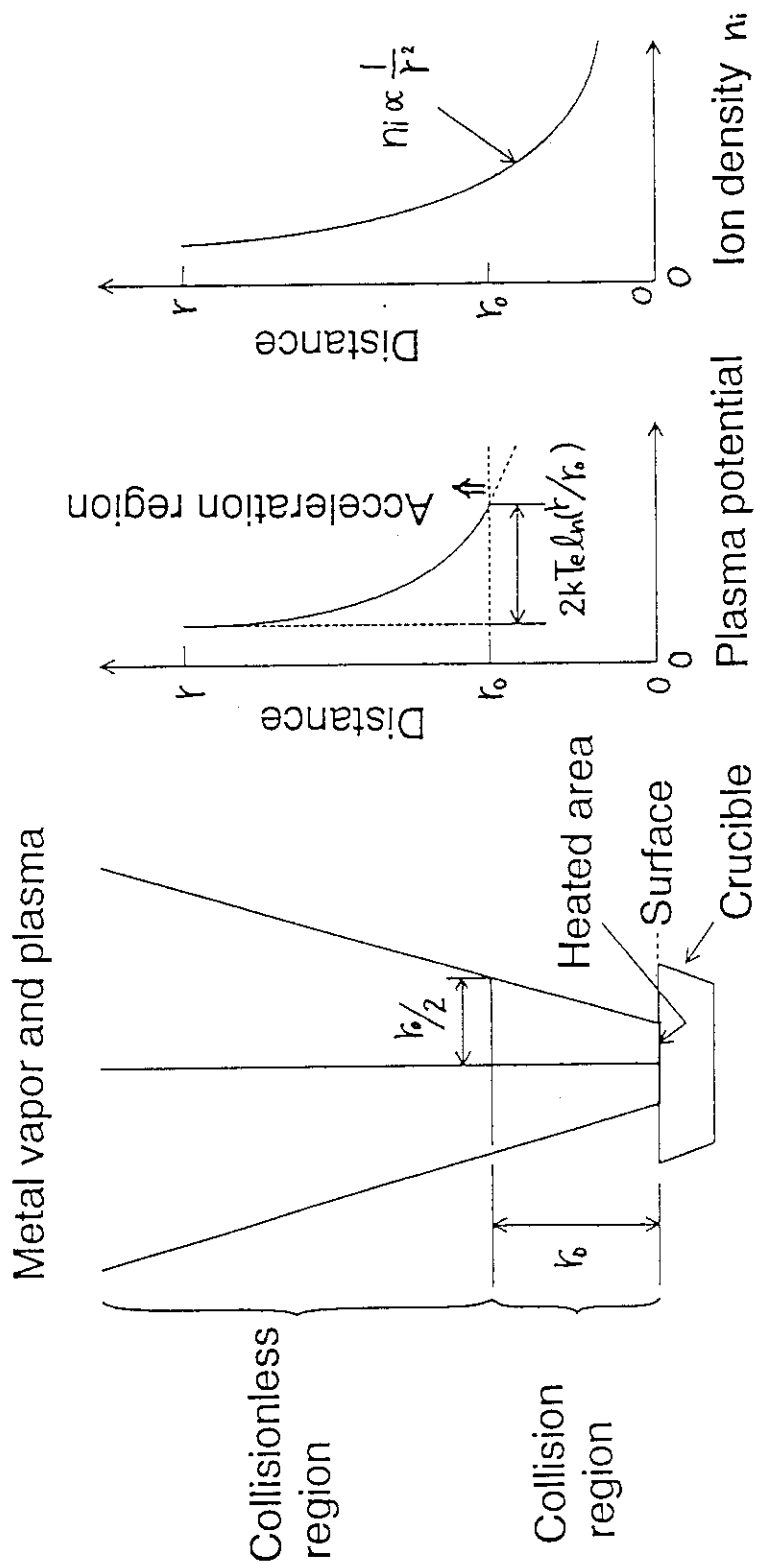


Fig.1.1 Sketch of ion acceleration model for the estimation of the plasma drift velocity.