3. 加熱脱ガスと放電洗浄

坂 本 雄 一

(理化学研究所)

(1985年12月27日受理)

Bake-out and Discharge Cleaning

Yuichi Sakamoto

(Received December 27, 1985)

Abstract

In order to reduce light impurities in hot plasmas in nuclear fusion devices, we have two techniques established, bake-out and discharge cleaning. Here is given a short lecture on these techniques. We are confronting increase in engineering complexity to construct fusion machines. This trend led the author to take a view point searching possibility of "decrease in baking temperature, or rather room-temperature-pumping". Concerning the discharge cleaning, description is focused on utilization of hydrogen plasma of low electron temperature.

1. はじめに

酸素によって代表される軽い不純物は、核融合装置における高温プラズマの生成に困難を与え、更に生成後には線放射及び制動放射による冷却を惹き起こすので、その低減のために細心の配慮がなされている。高温水素プラズマと第一壁との相互作用による軽不純物の放出を満足すべきレベルに迄減少させるために、通常壁の加熱脱ガスと放電洗浄が行われる。ここを流れている思想は、第一壁表面近くの軽不純物を予め充分に減らしておこうという事である。これとは違う思想として、第一壁表面近くに不純物は存在するけれども、それらと表面との結合のエネルギーが大きく、容易に表面から脱離することができない様にし、その結果としてプラズマ中の軽不純物量を減らそうという行き方があり、チタン・ゲッターリングや、ステンレス鋼表面での Cr_2O_3 の形成がその典型と言えよう。核融合装置が大型化され、精密化されてその加熱脱ガスは難しく

なり，加熱温度の低減乃至は更に徹底した要求として常温排気が望まれる様になりつつある。従ってここでは視点を少し変え，従来の加熱脱ガス法の記述よりは「表面改質による加熱脱ガスの簡略化の可能性の指摘」に重心を移すこととする。

放電洗浄に関しては，核融合装置に関連しての話であるから，水素プラズマを使う場合に限ることとする。

2. 加熱脱ガス

体積 V ，実効排気速度 S の系の圧力は時間を t とすれば，時間と共に $\exp\left(-\frac{St}{V}\right)$ に比例して下がる筈であるが，実際には圧力が 10^{-1} Pa 台から大きく外れ，定性的には図 3.1 に示す様に变化する。指数関数的変化からはずれた所で，残留ガス分析計でガス成分を測ってみると，大部分は水であり大気成分とは全く違っている。汚れた大気に長時間曝された様な場合には種々な炭化水素も観測される事になる。図 3.1 の直線部分（指数関数的に圧力が下がる）では排気の対象になるのは容器内空間にもともと存在していた分子である。直線から外れ横に寝てくるにつれて容器壁表面から脱離する分子が主な排気対象となるのである。

さて表面に吸着されている分子，原子は，その機構の違いによって物理吸着と化学吸着に分かれる。物理吸着とは，ファン・デル・ワールス力及び静電

力（双極子及び 4 重極子と表面の相互作用）に基づく吸着であり，化学吸着とは共有結合やイオン結合などに関連する化学結合力に基づく吸着である。これらはその機構が質的に異なっているから，吸着エネルギーの大きさにおいては桁の違いがある。表 3.1 に吸着熱の比較を示しておくので違いを認識していただきたい¹⁾。加熱によって脱離排気できるのは，物理吸着している分子と一部の化学吸着している分子（脱離の活性化エネルギーの低いもの）であると言う事ができる。

ここで加熱脱ガスに関する基本的な考え方を定量化し，その判断の指針を得る事としよう。今着目している分子は解離せずに，時刻 t に単位面積当り σ 個吸着しているとする。脱離の活性化エネルギーを E_d ，壁温を TK ，分子の脱離速度定数（滞留時間の逆数）を ν とすると，脱離速度は，

$$-\frac{d\sigma}{dt} = \sigma \nu \exp\left(-\frac{E_d}{RT}\right) \quad (1)$$

図 3.1 真空容器を排気した場合の時間と圧力の関係。圧力が 10^{-1} Pa 位から指数減少から外れる。

表 3. 1 物理吸着と化学吸着の吸着熱の違い。¹⁾

物理吸着の吸着熱 [†] [KJ・mol ⁻¹]								
吸着媒	He	H ₂	Ne	N ₂	Ar	Kr	Xe	文献
多孔質ガラス	2.8	8.25	6.45	17.8	15.8			13
サラン活性炭	2.6	7.83	5.36	15.5	15.3			"
カーボンブラック	2.5		5.69		18.2			"
アルミナ					11.7	14.5		"
黒鉛化カーボンブラック					10.3	13.8	17.7	"
W					約 8	約 19	33~38	12
Mo							約 33	"
Ta							約 22	"
蒸発熱 [KJ・mol ⁻¹]	0.084	0.900	1.80	5.61	6.52	9.03	12.6	14

[†] 吸着量の少ない場合[1KJ・mol⁻¹ = 0.2389 Kcal・mol⁻¹]初期化学吸着熱[†] と化合物の生成熱

固体-気体	初期化学吸着熱 [KJ・mol ⁻¹]	化合物	生成熱 [KJ・mol ⁻¹]	文献
W-O ₂	812	WO ₂	561	15
W-N ₂	355	W ₂ N	144	"
W-CO	527	W(CO) ₆	176	4 a
Mo-O ₂	720	MoO ₂	548	"
Mo-CO	310	Mo(CO) ₆	152	"
Ni-O ₂	448	NiO	486	"
Ni-CO	176	Ni(CO) ₄	147	"
Fe-O ₂	569	Fe ₃ O ₄	561	"
Fe-CO	193	Fe(CO) ₂	117	"
Al-O ₂	883	Al ₂ O ₃	1110	"
Ti-O ₂	988	Ti ₃ O ₂	984	"
Ta-O ₂	887	Ta ₂ O ₅	808	"
Cr-O ₂	728	Cr ₂ O ₃	766	"
Rh-O ₂	318	RhO	201	15
Ge-O ₂	552	GeO	540	"
Si-O ₂	963	SiO ₂	879	"

[†] 吸着量 0 のときの化学吸着熱[1KJ・mol⁻¹ = 0.2389 Kcal・mol⁻¹]

で与えられる。ここで R は気体定数である。 E_d が σ によらないと仮定すれば (1) 式の解は

$$\sigma = \sigma_0 \exp \left\{ -\nu \exp \left(-\frac{E_d}{RT} \right) t \right\} \quad (2)$$

となり、 σ が $1/e$ に落ちる時間 τ_b が加熱脱ガスに要する時間の目安となる。即ち

$$\tau_b = \left\{ \nu \cdot \exp(-E_d/RT) \right\}^{-1} \quad (3)$$

がそれである。例えば、後に出てくるが、 $E_d = 130 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 、 $T = 150^\circ \text{C}$ とすると

$\exp(-E_d/RT) \simeq 8 \times 10^{-17}$ となり、 ν は通常 $10^{13} \cdot \text{sec}^{-1}$ の桁であり $\tau_b \sim 10^3 \text{ sec}$ となるので、加熱

脱ガスは時間の桁の長さ行う必要がある。

装置が小型で、構造が簡単な場合には加熱脱ガス温度を必要且つ充分に高くとって超高真空を得る事ができる。装置が大型となり、構造が複雑になり、種々の材料が使われる様になると、加熱脱ガスの温度は真空技術的要求のみでは決められなくなってくる。例えばインコネルで特徴的な寸法が3 mの容器を25℃から500℃迄上げると線膨張は16 mm となり、これによる構造材中のストレスや計測系の狂い等に対処しなければならぬし、不可能な場合は加熱温度を下げざるを得なくなる。更に一般的に大型装置の均一な昇温は不可能で局部応力が種々の問題を起す。材料の一部にアルミニウムを使う様な場合は150℃が上限温度となろう。こうした事を考えると、核融合装置の壁面は常温排気で超高真空が得られる性質のものが好ましくなってくる²⁾。我が国の研究の中には、この要請に答え得るであろう芽があり、少なくとも科学的には相当程度実証されている。それらについて触れてみようと思う。

その一つは東大生研の本間等によって始められ発展させられている、ステンレス鋼の真空中加熱による表面改質である³⁾。SUS 304を用いる彼等の実験の主要な結論は次の通りである。

- 1) 真空中で高温加熱した SUS 304 鋼表面には硫黄とクロムが共偏析し、水と水素の放出に関して偏析のない表面と異なる挙動を示す。
- 2) 水はS表面に対して吸着し難い。
- 3) 水素は770 K 程度迄の温度領域においてはS表面によって拡散放出を阻害されていると考えられる。

表面近くの原子組成のオージェ分析結果を図3.2に、昇温脱離実験の結果を図3.3に示す³⁾。電解研磨の場合(S偏析なし)とS偏析した面のガス放出特性の挙動の違いが明らかに判る。

他の一つの研究は高エネルギー物理研の石丸等のアルミ合金チェンバーに関する一連のものである⁴⁻⁶⁾。彼等はKEK-TRISTAN計画の超高真空システムの開発を目的として図3.4に示す様に⁶⁾、アルミ合金を $Ar + O_2$ を内部に充填しつつ押出すことによって、表面に25 Å程度の酸化層を形成する事に成功し、その表面の水の脱離の活性化エネルギーが $109 \sim 130 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ と非常に低くなる事を見出している。先に示した様に $130 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ は150℃の加熱脱ガス数時間で超高真空が得られる事を示している。図3.5に通常押し出しをしたアルミ合金管(a)と、特殊押し出ししたもの(b)のオージェ分析結果を示す⁶⁾。又図3.6の(a)は通常押し出しの(b)は特殊押し出しのアルミ合金管の表面の原子組成の観察。

図3.2 SUS 304 サンプルを電解研磨したもの(硫黄の析出なし)の真空中で加熱し硫黄が析出したものについてのオージェ電子分光による深さ方向の原子組成の観察。³⁾

図 3.3 表面に硫黄の析出しない（電解研磨）試料と、析出している（真空中加熱）試料の昇温脱離曲線。³⁾

図 3.4 アルミ合金の特殊押し出し法。⁶⁾

(a)

(b)

図 3.5 (a) 通常押し出し, (b) 特殊押し出したアルミ合金表面附近のオージェ分析。⁶⁾

(a)

(b)

(c)

図 3.6 (a) 通常押し出し, (b) 特殊押し出したアルミ合金管の室温における排気特性。⁴⁾
(c) は特殊押し出したものを 150°C で加熱脱ガスした後の排気特性。⁵⁾

ルミ合金管の室温における排気特性を示し⁴⁾, (c)⁵⁾は特殊押し出しのものを150°C加熱脱ガスした後の排気特性を示すものである。これらはアルミ合金表面の酸化層がガス放出特性を著しく改善する事を示している。

以上の2例で示した様に今後表面の改質によって加熱温度の低減乃至は室温排気を図る路線が主要なものになって行く様に思われる。

3. 放電洗浄

3.1 放電洗浄の意義

ガス放電によって真空容器表面の不純物が減少すると言う事実はかなり以前から知られている⁷⁾。然しその機構は良く理解されていず、約10年前迄は荷電粒子による表面原子層の物理的スパッタリングのモデルで考えられていた。

放電洗浄のプラズマ化学的側面は、核融合研究の分野でR. J. Tayler等⁸⁾によって発見され、その重要性が強く認識され、洗浄方法はこの為に革命的に一変した。即ち電子温度が10 eV以下のプラズマを洗浄に適用することにより、それ以前の1 keV前後のプラズマによる洗浄に比べ凡そ100倍洗浄速度を上げる事に成功した。核融合研究の分野で、このような基本的に重要な発見が行われたのは偶然ではない。トカマク等の核融合装置の第一壁は水素の重負荷を負う。例えばJT-60では最終的には平均として $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ の水素束が第一壁に達すると予想される。従って極めて良い到達真空度が得られている場合でも、若し壁表面にFeO等の結合エネルギーの小さい酸化層が存在する場合には、表面の酸素原子は、入射してくる水素原子と反応してH₂Oの形で気相に脱し、プラズマ中に入れば、解離、電離して放射損失を惹き起こす事になる。永い間、いういふ不純物に悩まされた事が上記の発見に至る原動力となり、表面分析技術の最近の著しい進歩と相俟って、効率の良い洗浄法を確立するに至ったのである。核融合研究の分野で確立されたこの表面洗浄技術は、今では他の広範な分野に波及しつつある。

すでに良いレビュー論文があるので⁹⁻¹¹⁾、文献等の詳細はこれらに譲ることとする。又筆者はかつてECR型の放電洗浄法¹²⁾の開発に従事したので、以下の記述中にそのデータを使う事も多く、我田引水的色あいも混ると思うが、事の本質を読み取っていただきたい。

3.2 水素プラズマによる洗浄の機構

洗浄機構の説明に入る前に吾々が相手にする不純物の姿を一つの例で示してみよう。図3.7は直径約10 cm長さ約1 mのSUS304の管を長期間大気に曝した後真空排気し、放電洗浄を行った場合その前後における残留ガス分析器でガス成分を観測した結果を示している。放電洗浄前の $S = 10^{-9}$ Aのスペクトラムから判る様に、 $m/e = 18$ (H₂O), 28 (CO, C₂H₄), 44 (CO₂)等が主要な放出ガスである。また $S = 10^{-12}$ Aのスペクトラムは $m/e > 44$ の領域を示すが、 m/e が1つつ違った「草の葉状」のスペクトラムが観測される。これは壁表面が炭化水素で汚れている場合に特徴的に表われる。 m/e が1つつ違うというのはHの

数が1つつづれている事を示している(クラッキング)。洗浄後には、感度を1桁上げて $S=10^{-13}$ Aとしても、これら炭化水素のスペクトラムは見られない。因みに $m/e=93$ の大きなピークは分析管に使ってあるレニウム・フィラメントからくると思われる Re^{+2} であろう。さて洗浄後の一群のスペクトラムを感度に注意し乍ら眺めてみると、主要なガスは水素となり、不純物の著しい減少が認められる。この測定に使用したステンレス管はここ数年使っている、所謂「枯れた」ものであるが、大気に長時間曝すと H_2O 、 CO 等の外に炭化水素で汚染される事が判る。

放電洗浄前後のこの様な質量スペクトルの変化は、図3.8に示す様な模型から説明でき、表面計測でも実証されている¹⁰⁾。図3.8はステンレス鋼の大気に曝された後の表面(a)と、放電洗浄中の変化(b)を示している。バルクの表面上 200Å 程度は酸化層で蔽われ、しばしば化学吸着層と呼ばれ、その中に炭素や水も含んでいる。酸化層の上には物理吸着層があり、この厚さは 30Å 以下位で、水や炭化水素が吸着されている。通常この層は加熱脱ガスで除くことができる。こうした面に接して水素プラズマを作ると、壁に向かってイオン(H^+ , H_2^+)や中性原子(H)が流入し、比較的短時間のうちに物理吸着層を CH_4 、 C_2H_4 、 CO 、 H_2O として気相に放出し、これらが真空ポンプで排気される。こうして酸化層が表われると、今度は FeO の様に結合エネルギーの低い酸化物は入射するラジカルと化学反応し、水酸化物を経て最後に酸素が H_2O に変換されて気相に出て排気される。 Cr_2O_3 の様に結合エネルギーの大きいものは変化せずに残る。又炭素は水素原子を拾って CH_4

図3.7 長期間大気に曝した SUS 304 管の放電洗浄前後の残留ガス分析器による質量スペクトル。

図3.8 放電洗浄の機構の説明。(a)はステンレス鋼表面の吸着層、(b)水素プラズマの放電洗浄で起こる変化。¹⁰⁾

(時には C_2H_2) となって気相に出て排気される。

水素プラズマによる放電洗浄過程を残留ガス分析器で追った実例を紹介しよう。この実験は核融合装置ではなく、サイクロトロンで用いられる電磁石にはさまれる真空箱の模型に対して行われた¹³⁾。この真空箱は加熱脱ガスが不可能であり、かつ排気のコンダクタンスが小さいので、放電洗浄の成否の判定が重要であった。装置を模式的に図 3.9 に示す。電磁石間に加熱脱ガスが不可能という条件をシミュレートするために、ベーキング・ヒーターは残留ガス分析計近くに限った。図 3.10 は実験の全過程における残留ガス分析計の信号の変化であり、放電洗浄によって炭化水素や水が放出され、洗浄後は著しく減少しているのがみられる。約 6.5 時間の洗浄中、プラズマから壁にエネルギーが伝

達され、マグネット間の真空箱内壁は最高 100℃ 迄上昇した。実験中の全圧力の変化を図 3.11 に示す。放電洗浄の前後を比べると真空度は約 2 桁改善されているのが判る。

放出ガスの以上の様な変化に対応して壁表面の変化を知るのに最も多く用いられるのがオージェ電子分光 (AES) 観測である。SUS304 サンプルを 10 時間程度水素プラズマで放電洗浄した場合、その前後のオー

M.G : Microwave Generator
Frequency : 2.45 GHz, Power : 800 W CW max
I.G : Ion Gauge
D.G : Diaphragm Gauge
QMA : Quadrupole Mass Analyser
B.H : Baking Heater
M.P : Magnet Pole

図 3.9 サイクロトロン電磁石部真空箱放電洗浄の模型実験装置。¹³⁾

図 3.10 図 9 の装置で放電洗浄を行った時の残留ガス成分の時間変化。¹³⁾

図 3.11 図 9 の装置の放電洗浄によって、全圧力は約 2 桁改善された。¹³⁾

ジェ電子スペクトルの一例を図 3.12 に示す。

この測定は名大プラズマ研究所の JIPPT-II U 装置で行われたもので¹⁴⁾、プラズマは水素圧力 $2.9 \times 10^{-2} \text{ Pa}$ 、マイクロ波電力 1 kW ($f = 2.45 \text{ GHz}$) で作られた。プラズマの電子密度と温度は夫々約 $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ 、4~5 eV であった。著しい変化は炭素の大幅な減少とカーバイド化及び鉄の増加である。同様のデータを時間を追ってとり、原子組成比に直したのが図 3.13 である。最初の 10 分間程の間に炭素が著しく減少し、酸素が一度増加しているが、これは物理吸着していた炭化水素が急速にとれ、酸化層が露出するためと考えられる。又鉄の比率が始めの 30 分で急上昇するのに対し、クロムは左程増加しない。

これらの実験結果は前記の洗浄モデルの妥当性を示している。

図 3.12 JIPPT-II U 装置の放電洗浄時に挿入された SUS 304 サンプルの表面の変化の AES 観察。¹⁴⁾

図3.13 JIPP-ⅡU装置の放電洗浄時に挿入された
SUS 304 サンプルの表面原子組成の時間
変化。¹⁴⁾

3.3 洗浄設計

放電洗浄の過程は複雑なものであるから、精度の高い設計は不可能である。然し単純化したモデルによって、或程度定量的な目安を求める事はできる。さて今除去したい不純物原子の1原子層当たりの密度を N_i atoms-monolayer⁻¹·cm⁻² (通常 $\sim 2 \times 10^{15}$), 洗浄したい原子層数を N_m (経験的には10原子層位), 洗浄にあずかる粒子の壁に向かう粒子束 ϕ atoms·sec⁻¹·cm⁻², 反応の実効確率を η , 気相に出る分子の形を $C_x I_y$, 但し C, I は夫々洗浄及び不純物の元素, x, y は原子の個数 (例えば H₂O) とすれば, 必要な洗浄時間 t は

$$\eta \phi t \cdot \frac{y}{x} = N_i \cdot N_m \quad (4)$$

の関係から

$$t = x N_i \cdot N_m / (y \cdot \eta \cdot \phi) \quad (5)$$

で求める事ができる。ここで一番問題になるのは、反応の実効確率 η であり, これは反応確率そのものの他,

生成分子の解離確率や真空排気系の実効排気速度も含んでいる訳であり、トーラス装置の経験では 10^{-2} をとると、現実からそう遠くない。話を判り易くするためにTEXTORの ECR 洗浄の場合の例を示そう¹²⁾。必要な装置パラメーターは、大半径 $R = 1.75$ m, リミター半径 $a = 0.5$ m, プラズマの幅 $W = 0.4$ m (プラズマは高域混成共鳴のできるでリミター内に一様に出来ず、弓形にでき又 $E \times B$ ドリフトで外方に向かって動くので、密度分布は非対称の鐘型になる)で、典型的なプラズマパラメーターとして、水素圧力 5×10^{-3} Pa 即ち分子密度 $n_0 = 1.2 \times 10^{12}$ cm⁻³で、電子密度 $n_e = 2 \times 10^{10}$ cm⁻³, 電子温度 $T_e = 7$ eV 従って電子衝突による水素分子の解離の速度 $\langle \sigma v_e \rangle_{\text{dis}} = 7 \times 10^{-9}$ cm³ · sec⁻¹¹⁵⁾。

不純物は酸素で $N_i = 2 \times 10^{15}$ monoatomic layer⁻¹ · cm⁻², $N_m = 10$ 当然プラズマから水素原子が壁に行き水が出来るから $x = 2$, $y = 1$, 又 $\eta = 1 \times 10^{-2}$ を仮定する。次に ϕ を評価する。フランク・コンドン過程で出来る原子は電磁界の影響を受けず等方的に壁に向かうから、 ϕ は近似的に

$$\phi = 2 n_e \cdot n_0 \cdot \langle \sigma v_e \rangle_{\text{dis}} \cdot V_p / A_w \quad (6)$$

で求められる。但し V_p はプラズマ体積で $V_p = 2\pi R w \cdot 2a$ A_w はライナーの内表面積で、
 $A_w = 2\pi r \cdot 2\pi R$ ここで r はライナー小半径 $r = 0.55$ m で夫々 $V_p = 4.4 \times 10^6$ cm³ $A_w = 3.8 \times 10^5$ cm²。

$$\begin{aligned} \text{従って } \phi &= 2 \times 2 \times 10^{10} \times 1.2 \times 10^{12} \times 7 \times 10^{-9} \times 4.4 \times 10^6 / 3.8 \times 10^5 \\ &= 3.9 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}. \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{これから } t &= 2 \times 2 \times 10^{15} \times 10^2 / (1 \times 1 \times 10^{-2} \times 3.9 \times 10^{15}) \\ &= 1 \times 10^4 \text{ sec} \simeq 2.8 \text{ hr} \end{aligned}$$

通常夜間 12 hr の連続洗浄で、目立った洗浄効果があらわれている。

3. 4 主な洗浄法 (プラズマ生成法) とそれらの特徴

現在最も良く使用されている洗浄法には 3 種類のものがある。これらを一括して表 3.1 に示す。以下にこれらについてやや詳しく述べる事とする。

3. 4. 1 グロー放電洗浄¹⁶⁾

洗浄すべき面を陰極とし、適当な陽極を挿入し、適当なガス圧力と両極間に直流電圧を与えてグロー放電を発生させる事ができる。核融合研究用の装置の寸法は桁として 10~100 cm であり、陰極面の最適電流密度 $10 \mu\text{A} \cdot \text{cm}^{-2}$ をとると印加電圧は凡そ 300~1000 V になる。一方放電洗浄の本質は、壁面上の不純物を蒸発性の分子に変えて、これらを気相に追い出しポンプで排出する事にあるから、ポンプの排気速度を大きくとりたい。ターボ分子ポンプ等との両立性を考えると、ガス圧力は 10^{-1} Pa 以下にとらないと高い排気速度がとれない。しかしこうした低圧力では前記の印加電圧で放電が起こらない。これに対する工夫として、陽極を高周波コイルで形成し、このコイルに例えば 13.56 MHz の高周波 100 W 程度を投入して、たねプラズマを作り、 10^{-1} Pa でグロー放電を起こせる様になった。グロー放電洗浄においては、洗浄に効いているのは H_2^+ であると信じられているが、原研の JET-2 の実験では、試料に正のバイアス電圧をかけてイオンの

流入を止めても洗浄効果があることから彼等はHが主な役割を演じていると結論している¹⁷⁾。どんな不純物が除去できるかは、オージェ電子分光による表面観察が直接的に答えてくれる^{17, 18)}。結果はC, Oである。グロー放電洗浄の特徴の1つは、陰極面に達するイオンが、陰極降下部で加速され、数百電子ボルトのエネルギーを持っている事である。このためカーバイドの様に金属と強く結びついたCでも除去できる事である。しかし反面、物理的スパッタリングによる問題を惹き起こす危険がある事も銘記すべき事である。も一つ記憶しておくべき危険は、グローからアークへの移行の問題であり、大面積洗浄を行う場合には、安全抵抗の挿入では解決できない(安全抵抗は全電流の大きさを抑える事はできてもその電流が陰極面の局部に集中することを妨げる事はできない)。アークはデリケートな計測装置等を破損する危険を持っている。最後に、グロー放電洗浄は、装置が簡単に広範に利用できる事は当然であるが、陽極から見て電界が遮蔽される様な面の洗浄はできないことを指摘しておこう。

3. 4. 2 Tayler 型放電洗浄⁸⁾

先にも指摘した通り、放電洗浄におけるプラズマ化学的反応の重要性を発見し、これを積極的に取入れ、放電洗浄の方法を革命的に変えたという意味で歴史的な意義は大きい。プラズマは誘導放電によって作られ、通常ガス圧力は $10^{-2} Pa$ の桁であるから真空ポンプとの面立性に問題はなく、電子温度も $T_e < 10 \text{ eV}$ になる様に誘導電界が調節される。この場合電子密度は桁として 10^{12} cm^{-3} となり洗浄効果のある H^+ , Hの壁面に向かうフラックスは $10^{15} \sim 10^{16} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ に達する。従って洗浄効果も大きい。誘導電界は壁にも電流を流すから、壁温上昇との両立性に注意を払う必要があり、特に溶接部等では温度勾配にともなう歪が破壊的にならない様な制御も必要である。又トーラス装置を離れての応用は難しい。

3. 4. 3 ECR 型放電洗浄¹²⁾

所謂ECRプラズマを洗浄に用いる方式である。電磁波をエネルギー源に使うので、大気側から真空側に電磁波を導入する窓を設け、伝送部に遮断が起こらない様配慮する必要がある。通常の核融合装置では、水素圧力を $10^{-3} \sim 10^{-2} Pa$ 程度に設定し、真空容器内の或場所で印加磁界 $B (T)$ が使用する電磁の周波数 f と電子サイクロトロン共鳴条件 $f = f_{ce} = e B / (2\pi m_e) \doteq 28 B \text{ GHz}$ を満たす様にすると容易にプラズマが発生する。一度プラズマが発生すると、プラズマ電子の集団運動の効果のために、電磁波の吸収は高域混成共鳴 (upperhybrid resonance) 条件で起こる。ここで高域混成共鳴条件とは

$$f = f_u = \sqrt{f_{ce}^2 + f_{pe}^2} \quad (7)$$

ここで f_{pe} は電子プラズマ振数で

$$f_{pe} = \{ n_e e^2 / 4 \pi^2 \epsilon_0 m_e \}^{1/2} \doteq 8.97 \cdot \sqrt{n_e} \quad \text{Hz}$$

但し n_e : 電子密度 m^{-3} , e : 電子電荷 Q

ϵ_0 : 真空の誘電率, m_e : 電子質量 kg

である。

ECR放電洗浄の特徴の1つは、その動作圧力が低くとれる事であり、真空ポンプとの両立性は問題なく又ガスの消費量も極めて少ない。又洗浄に効くのはフランク・コンドン中性原子でそのエネルギーは4 eV程度なので物理的スパッタリングを惹き起こさない。他方水素イオンはシースで加速されて洗浄すべき面をたたくが、電子温度 T_e eVのプラズマが作るシース電圧は

$$V_{sh} = T_e \ln [M_i (1 - \Gamma)^2 (2\pi m_e)]^{1/2} \text{ volts} \quad (8)$$

で与えられる¹⁹⁾。ここで M_i はイオン質量、 Γ は壁面の実効2次電子放出係数である。因みに $T_e = 10\text{ eV}$ とし、 $\Gamma = 0$ としても $V_{sh} = 28\text{ V}$ となり、普通の金属では物理的スパッタリングは問題にならない。従ってECR放電洗浄は極めてソフトな洗浄法と言える。ソフトであるという事は逆に或種のカーバイドの炭素の様に結合エネルギーの大きいものの除去ができないという欠点にもなり得る。こうした場合には酸素プラズマの使用等の工夫が必要となる。第1表の最下段で単一でない壁と言う項は、プラズマ側からみて裏側がある又は影のできる様な場合の事を意味するが、ECR洗浄では、共鳴磁界が存在すれば、裏や影の部分にもプラズマが発生し洗浄が可能という事を意味している²⁰⁾。

3.5 放電洗浄に伴う物理的及び化学的スパッタリング

放電洗浄の目的は必要な面を必要な純度に達せしめることである。然し洗浄の過程を通じて予想外の変化が起こり得るから一応考慮に入れて置かなければならない。特にグロー放電洗浄においては、物理的及び化学的スパッタリングを検討する必要がある。

3.5.1 物理的スパッタリング

放電洗浄では当然の話ではあるが、その初期に多量の不純物が壁から出てプラズマ中に入るから、 C^+ や O^+ の様な不純物イオンが発生する。壁を構成する原子と入射イオンの質量比 M_1/M_2 は、 H^+ の場合より C^+ 、 O^+ の場合の方が小さいので、スパッタリング率は大きくなる。図3.14には、 H^+ 、 C^+ 、 O^+ が Ni に入射した場合のスパッタリング率をイオンのエネルギー400 eV迄の範囲で計算した結果が示されている。このエネルギー範囲はグロー放電洗浄に関連しているが、 H^+ と C^+ 、 O^+ の間にはスパッタリング率で2桁の違いがある事が分かる。先にも指摘したが、ECR洗浄では粒子エネルギーが小さいので問題にならない筈である。この予測はシミュレーション及び実験で確かめられている²²⁾。

図3.14 Niに H^+ 、 C^+ 、 O^+ イオンを照射する場合のスパッタリング率。

3. 5. 2 化学的スパッタリング

水素プラズマは化学活性の高い H , H^+ 等を壁面に供給するから, 化学反応が盛んに起こり, 壁を構成する原子の一部(又は全部, 例えばグラファイトの場合)は揮発性ガスになって気相に出て排気される。これを化学的スパッタリングというが, 放電洗浄自身も C や O に関する化学的スパッタリングである。然しここでは否定的な意味で使う。たとえば, $T_i C$ や $S_i C$ は第一壁の有力な候補であるが, これらをグロー放電洗浄する場合, 構成原子の C は H と反応して CH_4 や C_2H_4 として抜け出し表面は次第に T_i 又は S_i の多い表面へと変化して行く²³⁾。

4. おわりに

核融合研究に関連する真空技術の基本的な手法として, 加熱脱ガスと放電洗浄について述べた。前者については, 従来の加熱脱ガス法を説明する立場を離れて, 表面の改質によってこれを軽減する方向を指摘することに力点をおいた。後者については水素プラズマによる洗浄に話を絞り, 確立されている三つの方法についてのべ, 幾つかの問題点を指摘した。新しい候補材に対しては加熱脱ガスと放電洗浄は必ず吟味しなければならない項目であろう。

参 考 文 献

- 1) 近角聴信, 蓮沼 宏, 石黒浩三, 能谷寛夫, 三宅静雄企画編集: 実験物理講座4 真空技術(林主税責任編集, 共立出版社, 1985)第2章吸着と脱離(辻 泰 著) P.31.
- 2) 富永五郎, 中村和幸, 村上義夫: JAERI-M83-112, 常温排気法に関する調査, (日本原子力研究所, 1983年7月)。
- 3) 田中彰博, 藤田大介, 本間禎一: 真空 28 (1985) 296.
- 4) 成島勝也, 石丸 肇: 真空 25 (1982) 172.
- 5) 成島勝也, 石丸 肇: 真空 26 (1983) 353.
- 6) 成島勝也, 石丸 肇: 真空 27 (1984) 457.
- 7) S. Dushman and J. M. Lafferty, editor: Scientific Foundation of Vacuum Technique (John Wiley and Sons Inc. New York, London 1962) Chap 9.
- 8) L. Oren and R. J. Taylor: Nucl. Fusion 17 (1977) 1143.
- 9) G. M. McCracken and P. E. Stot: Nucl. Fusion 19 (1979) 889.
- 10) H. F. Dylla: J. Nucl. Mater. 93 & 94 (1980) 61.

- 11) 石井成行 : 物理学会誌 38 (1983) 489.
- 12) Y. Sakamoto : *Proc. 9th Intern. Vacuum Congress and 5th Intern. Conf. on Solid Surfaces, Invited Speakers' Vol.* (Madrid Spain 1983) 716.
- 13) K. Ikegami, S. Nakajima, Y. Oikawa, Y. Ishibe, H. Oyama, Y. Sakamoto, S. Motonaga and H. Kamitsubo : *Sci. Papers I.P.C.R* 77 (1983) 78.
- 14) 堀洋一郎, 壁谷善三郎, 野田信明, 青木高之, 赤石憲也, 宮原 昭, 坂本雄一 : 核融合研究 55 (1986) 62.
- 15) E. M. Jones : Culham Laboratory Report CLM-R175 (1977).
- 16) F. Waelbroeck, J. Winter, I. Ali-Khan, P. Wienhold, B. Brandt and K. J. Dietz : JUL-1692 (KFA Jülich, 1980).
- 17) 横倉賢治, 松崎 誼, 谷 孝志, 菊地一夫, 梶沢 稔, 長谷川浩一, 岡野文範, 樫村隆則, 鈴木紀男, 木島 滋, 大塚英雄 : 真空 26 (1983) 300.
- 18) R. E. Clausing and L. Heatherly : *J. Nucl. Mater.* 128 & 129 (1984) 855.
- 19) G. D. Hobbs and J. A. Wesson : *Plasma Phys.* 9 (1967) 85.
- 20) S. Ishii, K. Okazaki, Y. Sakamoto and K. Yano : *Jpn. J. Appl. Phys.* 22 (1983) L403.
- 21) 坂本雄一 : 電気学会プラズマ研究会資料 EP-84-51 (電気学会, 1984年11月17日)
- 22) 堀洋一郎, 壁谷善三郎, 野田信明, 赤石憲也, 宮原 昭, 大山 等, 坂本雄一 : 核融合研究 54 (1985) 462.
- 23) Y. Sakamoto, H. Oyama and S. Kakinuma : *J. Nucl. Mater.* 128 & 129 (1984) 867.