

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 31 日現在

機関番号：12608

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26610190

研究課題名(和文)原子分子過程の非平衡性を積極的に利用する窒素ダイバータプラズマ

研究課題名(英文) Nitrogen divertor plasma actively applying non-equilibrium characteristics of atomic and molecular processes

研究代表者

赤塚 洋 (Akatsuka, Hiroshi)

東京工業大学・原子炉工学研究所・准教授

研究者番号：50231808

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：大気圧定常アーク放電で得た窒素混合気体プラズマを、陽極ノズルから弱い縦磁場下の低圧風洞中に定常噴出することで低温高密度プラズマを生成した。その結果、窒素アークジェットプラズマは低温再結合状態となっており、熱的な解離過程のため膨張の前段階から原子を主成分とするプラズマ状態となっていると結論された。窒素原子の Boltzmann プロットを作成した所、典型的な再結合プラズマの数密度分布を示す事が確認され、電子温度はプローブ計測と矛盾の無い事が確認された。また窒素分子が殆ど存在せず、窒素原子イオンの再結合により窒素原子の励起状態の発光が卓越するプラズマである事が確認された。

研究成果の概要(英文)：We generate recombining nitrogen plasma plume by expansion of nitrogen arc into lower pressure vessel with a weak longitudinal magnetic field in a steady state. Spectroscopic observation reveals that the plasma has almost no component of molecular band spectra. Meanwhile, atomic nitrogen lines are observed with considerable intensity. The reason for this spectroscopic peculiarity is discussed in terms of chemical thermodynamics of the nitrogen thermal arc plasma and of non-equilibrium characteristics.

We also examined the dynamic characteristics of the nitrogen plasma. We experimentally examined its acceleration phenomena and potential drop along the open magnetic field line flowing supersonically. We found that admixture of nitrogen into helium increases the flowing velocity and moderates the potential drop.

研究分野：プラズマ理工学

キーワード：再結合プラズマ ダイバータプラズマ 窒素プラズマ 原子分子過程 非平衡性 核融合炉周辺領域

1. 研究開始当初の背景

磁場閉込核融合炉ダイバータに関して、現在の研究結果をそのままスケールアップしたのでは、実用炉の熱負荷に対して堪える材料の開発は困難を極めると予想されている。このため、ダイバータ領域に積極的に重い希ガスを導入し、輻射冷却による熱負荷低減が研究された。しかし、希ガスよりも窒素等の分子気体プラズマのほうが輻射冷却に有利と研究代表者は考える。なぜなら、下準位の振動・回転励起のために個々の準位密度が低下し、輻射の再吸収が少ないからである。また、エネルギー移行の観点からは、振動・回転励起準位間のエネルギー差の少ない窒素が水素よりも優れている。研究代表者はこの数年、プロセスプラズマの立場で窒素プラズマの発光分光特性と、励起状態の原子分子過程を研究してきたが、この研究がダイバータでの輻射冷却に応用が可能と着想するに至った。

現在、核融合分野では、窒素プラズマの原子分子過程を研究の対象としている様には見受けられない。特に核融合の研究界では、電子エネルギー分布関数が Maxwell 型であることが暗黙の了解となる事が多いが、実際には、かなり Maxwell からはかけ離れた格好となる。このような報告は応用物理学会や電気学会など応用系プラズマ研究界では今や常識とされるに至っている。従って、反応速度係数の計算に際しても、この特性を理解してモデル化すべきである。窒素プラズマは材料工学や革新的絶縁膜などの電子工学応用など、プロセスプラズマやプラズマエレクトロニクス分野でこの10年程度飛躍的に研究が進んだ分野であり、従来の核融合分野の研究者が十分動向を調査しきれていない分野でもある。わずかに存在する JAEA の類似研究も、窒素特有の振動励起状態の扱いや EEDF の非 Maxwell 性を含めておらず、応用物理学会で蓄積した知見から判断するといささかレベルが低いといわざるを得ない。本研究代表者は、研究活動初期には物理学会やプラズマ・核融合学会をベースに低温水素・ヘリウムの分光計測・原子過程の研究に従事したが、その後活動拠点を応用物理学会にも求め、窒素プラズマの発光分光特性の研究と窒素プラズマ内部の原子分子過程を長く研究し、EEDF の非 Maxwell 性を当然として扱うプロセスプラズマ分野など応用物理学会や電気学会などプラズマ応用系の学会で議論を重ね、業績を上げてきた。ダイバータ領域の現象は非平衡化学としての原子分子過程を扱う学際研究であり、本研究代表者の経験が生きる分野である。応用物理学的な非平衡プラズマ化学の成果を核融合炉の基礎に活かそうという試みは殆どなされておらず、その意味でもチャレンジングで、プラズマ学際連携の新たな形とも考えている。

2. 研究の目的

我々の研究室では、弱い磁場を印加した希薄気体風洞中にアークジェットを定常膨張させる装置を開発して、開放端磁場におけるマッハ数変化や空間電位の変化、電子温度・密度の変化等をプローブ計測により検討し、電磁流体としての低電離度希薄アークジェット流の物理的特性について様々に考察を加えてきた。さらに、流れを弱電離プラズマの希薄流と捉え粒子法による数値シミュレーションを行ない、理論的な理解にも努めてきた。

本研究では、希ガスではなく、従来と同一の装置を用いて窒素膨張アークジェットを発生し、その特性を前報同様に測定し考察を行う事とする。その際、最も重要な特徴は、窒素が2原子分子であることであるから、まずは膨張窒素プラズマの発光分光特性を詳細に実験的に検討し、分子気体放電プラズマとしての特性を把握することを本研究の第一の目的とする。窒素分子としての解離特性について考察し、発光分光特性がプロセス用の窒素プラズマと異なるか否か、異なるとすればどのような特徴が有るのかについて議論する事とする。また、発光分光特性の検討から求められるプラズマパラメータと、従来通りのプローブ計測により求めたプラズマパラメータを比較検討し、両者の一致を確認し、もし異なるようであればその原因の考察も行い、弱電離の希薄電磁流体としての本プラズマのパラメータ変化を理解することも目的とする。

3. 研究の方法

3.1 発光分光計測実験

実験装置は希薄気体風洞、真空排気装置、プラズマジェット発生部、電磁石、プローブ計測システム、光ファイバヘッド、分光計測システム、トラバース装置、から構成されている。プラズマ膨張チェーンバとして使用する希薄気体風洞の概略図を図1に示す。これは内径1.2 m、長さが2 mであり、風洞内は真空排気装置により約 10^{-4} Torrまで排気できるが、今回は予備実験との位置づけから、油拡散ポンプは使用せず、最終段の真空ポンプはメカニカルブースターポンプとして到達真空度は 10^{-3} Torr程度であった。到達真空度

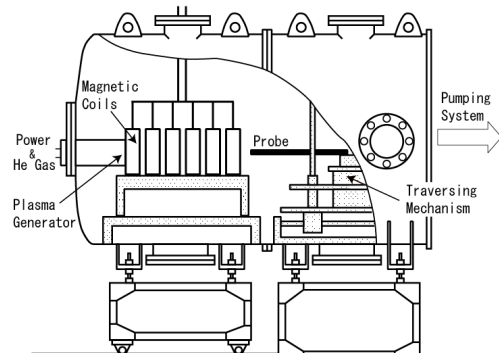


図1 プラズマ膨張チェーンバとしての希薄気体風洞。

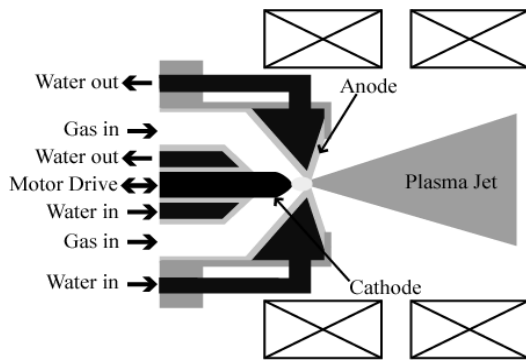


図2 プラズマジェット発生用の電極構成と生成されたプラズマの模式図。

はこの程度であるが、この寸法から理解される様にコンダクタンスが大きく、大排気速度であることが長所である。プラズマジェット発生部を図2に模式的に示す。ここでは陽極と陰極の間でアーク放電を定常発生させる。放電条件は直流アーク電流 120 A、直流アーク電圧 25 V、作動ガスは窒素 100%でのアーク放電の安定発生が困難であったため、窒素:アルゴンの圧力比を 10:1 とするようアルゴンガスをバッファとして加えた。ただ、本研究では、窒素が主成分となっているという意味で、この割合の混合気体を共有して生成したプラズマの事を、膨張窒素プラズマ、あるいは窒素アークジェットと呼ぶ事とする。全ガス供給流量はおよそ 2.0 l/min である。放電室圧力は 50 - 760 Torr、放電時のプラズマ計測空間の気圧は 2.0×10^{-2} Torr 程度である。磁場は 6 個の電磁石を用いて作られる。それぞれの電磁石は内径が 80 mm、厚さが 60 mm である。

プラズマの発光部は主にマグネット内部に有り、今回は膨張空間の背圧があまり低くない事から、今回は開放端ではなく、電磁石内部のプラズマパラメータにも着目して計測を行う。すなわち、電磁石の間隙からプラズマ流方向(z 方向)に直交する方向(以下 r 方向と言う)を見込むように凹面集光ミラーを配置し、光ファイバーでチェンバー外部へ取り出し、その後焦点距離 50 cm のツェルニーター型可視紫外域分光器(日本分光 SS50、解説格子は 1200 lines/mm、プレズ波長 390 nm、高次回折光カット用フィルタ付)で発光分光計測を行う。270 Hz でチョッピングの後、測定対象光を分光器に導き、回折分光後光電子増倍管で受光、光電信号変換後プリアンプに導きさらにロックインアンプでチョッピング信号とともに増幅後、A/D 変換して計測用パーソナルコンピュータで分光信号を記録する。なお、分光計測系全体は、集光部のヘッドを対象として幾何学的条件まで含めて、標準光源により絶対較正を施している。

3.2 プローブ計測実験

本実験においては、開放端磁場付近を流れるプラズマ流の挙動を把握するために、そのプラズマパラメータを測定しなければならない。ただし、本研究のプラズマは定常的に

生成されており、時間分解能が優れている必要はない。また、本実験では開放端磁場付近での、電磁石コイル中心軸上でのプラズマパラメータを測定したいため、空間分解能に優れているプローブ計測法を用いることが必然的に必要となってくる。プラズマは直流アーク放電で生成されるのでプローブの基準電位を陽極とすることが可能である。したがって、プローブ計測法の中でもシングルプローブ計測法を用いることができる。シングルプローブ計測法により、プラズマに微小電極を挿入し、基準電極に対する電流電圧特性からプラズマパラメータを局所的に測定することとする。

また、プラズマのマッハ数の測定には、マッハプローブを適用する。本研究で採用したマッハプローブは 2 つの平板型シングルプローブから成っており、プラズマ流方向に対してそれぞれ平行方向(para)と垂直方向(perp)に向いている。各々より得られた電流電圧特性よりイオン飽和電流($I_{is}(para)$ と $I_{is}(perp)$)を求め、それらの比からイオンマッハ数 M_i を得ることができる。

今回使用した para-perp 型マッハプローブは、セラミック 2 つ穴あき絶縁管にタングステン電極を挿入して作成した。先端部はタングステン電極のみを露出させるように、セメントで覆うことで para、perp 共に同じ捕集面積を確保した。

4. 研究成果

4.1 発光分光計測結果

発光分光計測結果を示し考察する。図 3 (a) - (b)に、窒素プラズマジェットを側面方向から side-on にて観察した場合の発光分光スペクトルを波長 390 - 680 nm, 680 - 800 nm の範囲にわたってそれぞれ示す。放電条件等は図のキャプションに示した。図 3 から解る事として、通常、窒化物生成や表面処理プロセス用として用いられる窒素プラズマのスペクトルとは大きく異なり、540 - 800 nm 程度の広い可視波長域でプロセスプラズマでは明瞭に観察される窒素分子励起状態である $B^3\Pi_g$ 状態から $A^3\Sigma_u^+$ 状態への遷移に対応する第 1 正帯(First Positive System; 1PS)のスペクトルが全く見られず、さらに 370 - 500 nm 付近に現れるはずの窒素分子イオン励起状態である $B^2\Pi_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+$ の遷移である第 1 負帯(First Negative System; 1NS)も見られない点が、今回測定したアークジェット窒素プラズマの特筆すべき特徴である。さらに、図 4 には紫外～可視波長域にあたる 365 - 385 nm の波長領域の発光分光スペクトルを示す。この波長領域でも同様に、プロセス用やエレクトロニクス用に用いられる窒素プラズマではその回転温度の測定からガス温度の推定に頻繁に使用されることで有名な、 $C^3\Pi_u \rightarrow B^3\Pi_g$ の遷移に伴う第 2 正帯(Second Positive System; 2PS)のスペクトルが卓越するはずで

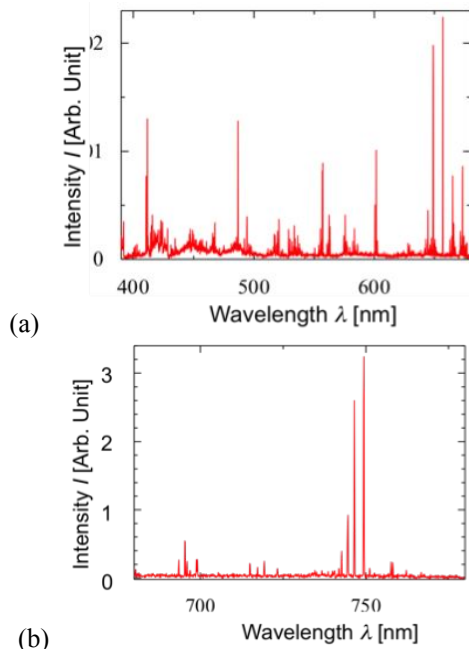


図3 窒素アークジェットの発光分光スペクトル。(a) 390 – 680 nm, (b) 680 – 800 nm. 放電条件：アーク電流 120 A, アーク電圧 15 V, 放電室圧力 76 Torr, 膨張空間(プラズマの存在する空間)の圧力 2.6×10^{-2} Torr, 電磁石電流 300 A, 陽極ノズルからの距離 $z = 110$ mm.

あるにも関わらず、殆ど見る事はできない。さらに、図3(b)の740 – 750 nmの波長範囲の拡大図を図5に示す。図5には、窒素原子の励起状態としてN Iの $3p^4S_{3/2} \rightarrow 3s^4P_{1/2, 3/2, 5/2}$ の遷移に対応する 742.36, 744.23, 746.83 nmの3本の遷移線が明瞭に観察される。これらは同一の上準位に由来し、強度比としても適切な値が観察されている。これらの発光線スペクトルはプロセス用の低気圧窒素放電プラズマの発光分光計測においても、窒素原子密度のアクチノメトリ測定用に利用されている信号であり、その意味でも原子励起状態が存在している事を示している。即ち、既に我々が先行研究で示した通りであるが、これら3本の窒素原子線は、プロセス用として通常用いられる窒素プラズマでは、窒素分子

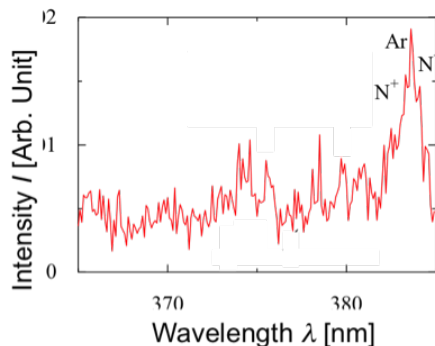


図4 窒素アークジェットの発光分光スペクトル、365 – 385 nm. 放電条件は図3のキャプションと同様。

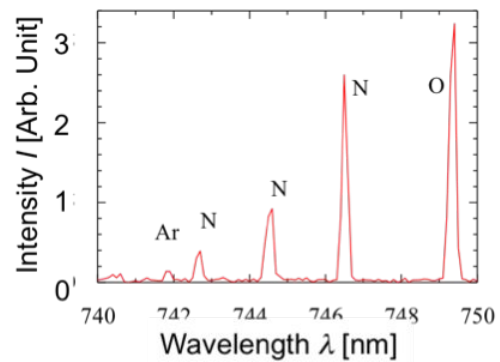


図5 図3(b)に示した窒素アークジェット発光分光スペクトルの740 – 750 nmの拡大図。

1 PS のバンドスペクトルに強く覆い隠されてしまい、1 PS と分離して計測する事は一般に困難な事で知られている。プロセスプラズマで窒素原子線を明瞭に抽出するには、複雑な形状の1PS スペクトルを、振動・回転温度を入力として理論計算し実測スペクトルから減算する事が必要で、減算の結果ようやく図5のような窒素原子スペクトルが得られるのが常である。しかるに、本プラズマのアークジェットの場合、窒素分子1PSは740 – 750 nmの波長範囲には全く見出すことはできず、その一方、窒素原子線は明瞭に検出されている。このような事情からも、本研究で調べた膨張窒素アークジェットプラズマでは、窒素分子励起状態の存在は、窒素原子に比べて無視できる程度と考えられる。

4.2 プローブ実験(1)電子温度と電子密度

分光計測で求めた励起状態数密度について種々議論を行なう際には、Boltzmann プロット、すなわち、励起状態のエネルギー準位に対して、統計的重率で除した数密度を片対数表示すると便利である。今回計測した窒素原子線すなわち N I のシステムについて、Boltzmann プロットの1例を図6に示す。再結合プラズマの場合、十分に励起された準位については LTE が成立する事が既に確立しているため、それらの準位の Boltzmann プロットの傾きから電子温度 T_e を直ちに求めることができる。この図の場合は $T_e = 0.42$ eV となり、かなり低電子温度の窒素プラズマが得られている事が理解できる。このような低電子温度の再結合プラズマでは、Byron 境界よりも上準位では LTE にあり、それ以下の準位では反転分布が生じる事が理論的に示され、また実験的にも様々なプラズマで検証されているが、本研究の窒素アークジェットプラズマにおいても、同様に、低励起準位間での反転分布も確認された。

電子温度について、プローブ測定結果と分光計測結果を比較する。本研究の発光分光計測では、アーベルインバージョンは施さず、視線方向線積分値として平均値としての励起状態密度を用いて Boltzmann プロットを作成し、それを用いて径方向にわたっての平均

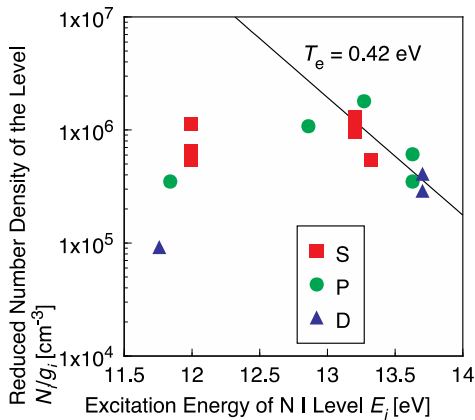


図6 本実験の窒素プラズマにおいて求められたN I準位の Boltzmann プロットの1例。計測条件： $I_{\text{arc}} = 120 \text{ A}$ ， $V_{\text{arc}} = 15 \text{ V}$ ， $\text{Ar} : \text{N}_2 = 1 : 10$ ， $P_{\text{arc}} = 76 \text{ Torr}$ ， $P = 2.6 \times 10^{-2} \text{ Torr}$ ，電磁石電流 300 A 。

的な電子温度を求め分光による電子温度測定結果とした。図7に電子温度測定結果をまとめて示す。図には、N I の励起状態数密度から求めた電子温度と、放電安定のために加えた Ar による Ar I の励起状態数密度から求めた電子温度を併記している。プローブ計測は、一般にファクター2程度の誤差は通常避けがたいもので、従ってプローブ計測と発光分光計測による電子温度の測定結果は、おおよそ一致したと考えられる。以上の事からも、窒素原子の発光について、一般の原子励起状態数密度に関する再結合プラズマの理論が適用でき、結果として求められる電子温度も、プローブ計測と矛盾の無いものであった事からも、本研究で対象とした窒素アークジェットプラズマが、中性窒素原子、窒素原子イオンを主たる構成要素とするプラズマである事を示していると結論できよう。

4.3 プローブ実験(2)マッハ数変化および空間

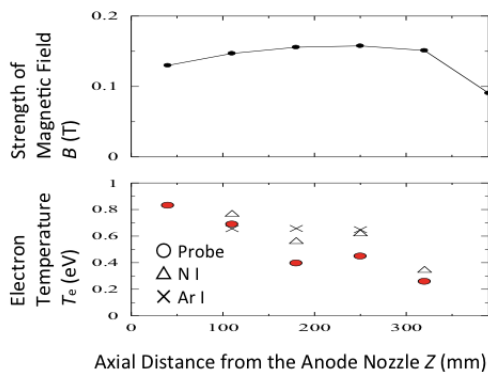


図7 ラングミュアシングルプローブにより測定した電子温度、および窒素原子 N I ならびにアルゴン原子 Ar I の高励起準位の発光分光計測により求めた電子温度の比較。磁束密度変化も併せて示した。放電条件：Discharge condition $\text{Ar} : \text{N}_2 = 1 : 10$ ， $P_{\text{arc}} = 114 \text{ Torr}$ ， $P = 2.0 \times 10^{-2} \text{ Torr}$ ，電磁石電流 300 A 。

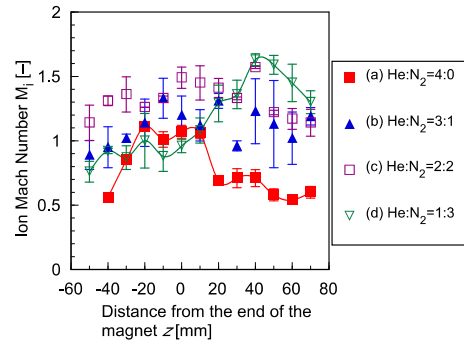


図8 実験により求めたプラズマジェット軸上でのイオンマッハ数。

電位

本セクションでは、ヘリウムと窒素の混合比をパラメータとして測定を実施した。その混合比について、プラズマ生成部への供給気体の分圧比として $\text{He} : \text{N}_2 = 4:0, 3:1, 2:2, 1:3$ の4通りとし、それらを以下、ケース(a), (b), (c), (d) と称することとする。図8-9に、イオンマッハ数、空間電位の測定結果を示す。図に示した値は測定結果の平均値であり、図のエラーバーはその標準偏差を表示したものである。

図8で、条件(a), (c)に注目すると、ヘリウムプラズマに窒素プラズマを加えたことにより開放端磁場 ($z = 0$) でのマッハ数が $0.1 \sim 0.2$ 増加し、下流域 ($z = 0 - 70 \text{ [mm]}$) のマッハ数の減少幅は(a)が 0.6 程度であるのに対して、(c)では 0.3 程度と小さくなっていることがわかる。さらに窒素の混合比率を上昇させていくにつれて、下流域でのマッハ数は上昇し(d)ではマッハ数の最大値が $z = 0$ ではなく、 $z = 40 \text{ mm}$ の辺りに遷移している。

空間電位(図9)については、 z 軸正方向について電位が単調減少していることがわかり、その電位降下は 1 eV ($4 \text{ eV} \rightarrow 3 \text{ eV}$) 程度であった。窒素を加えていくと上流域 ($z = -40 - 0 \text{ [mm]}$) での電位は $3.4 - 3.2 \text{ eV}$ 程度と減少するが、電位降下幅は $0.2 - 0.4$ 程度であり、(d)では下流域に向けての電位降下があまり見られなかった。

本研究のプラズマの加速現象について、その主たる要因を考えてみる。電磁石コイル内

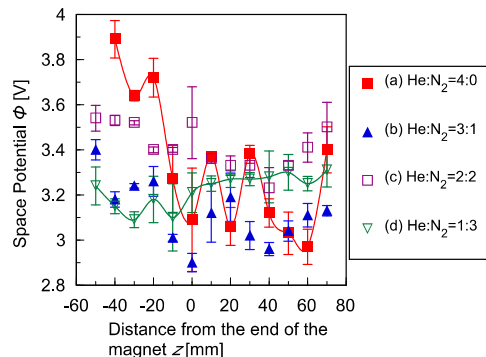


図9 実験により求めたプラズマジェット軸上での空間電位。

でイオンマッハ数 $M_i = 1$ となっていることから、プラズマ断面積 A が増加することによって、気体力学的加速でイオンマッハ数が増加すると考えられる。プラズマ断面積 A の増加は磁力線の広がりに関係していると考えられる。磁力線が広がっている開放端磁場において、電子は磁力線とともに運動しており、クーロン力によってこの電子に引き付けられ、イオンもほぼ磁力線に沿って運動していると考えられる。これより、イオン流の断面積は増加しており、ランキン・ユゴニオの関係式で説明がされるとおり、流速が上昇すると考えられる。

一方、空間電位の変化も、イオンを加速する原因の一つとなると考えられる。条件(a)の空間電位変化をよく見ると、電位降下の様子が顕著に見られるため、この条件下では z 軸正方向の加速に貢献していると考えられる。実験結果によると、窒素の混合比率を増加させていくことによって、電位降下幅が減少し、条件(d)では電位降下が小さくなっていることがわかる。しかし、この条件でもイオンマッハ数とイオン流速は上昇していることから、本実験において、電場による加速よりも、気体力学的加速の方が大きな要因であると考えられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 3件)

1. H. Akatsuka, M. Hatcho, and H. Matsuura, "Spectroscopic Characteristics of Supersonically Expanding Nitrogen Arc-Jet Plume—Strong Atomic Lines and Weak Molecular Band Spectra", IEEE T. Plasma Sci., IEEE, **42**, [12], pp. 3691-3697, (2014).

2. Y. Ohno, A. Nezu, H. Matsuura, and H. Akatsuka, "Spectroscopic study of recombination continuum in arc-heated cold expanding plasma jet", Progress in Nuclear Energy, **82**, pp. 130 - 135, (2014).

3. H. Akatsuka, T. Shibata and A. Nezu, "Discussion on Population Kinetics and Number Densities of Excited Species of Low-Pressure Discharge Nitrogen Plasma", IEEJ Trans. Elec. Electron. Eng., **11**, [S1], accepted for publication (2016).

[学会発表](計 7件)

1. 津野 聡, 中秋 健志, 根津 篤, 松浦 治明, 赤塚 洋, "開放端磁場における希薄弱電離プラズマの超音速流シミュレーション", 電気学会研究会資料 プラズマ研究会, PST-14-20, pp. 5 - 11, May. 2014.

2. K. Yoshida, H. Ichii, Y. Nagahara, K. Tajima, R. Yamashiro, A. Nezu, H. Matsuura, and H.

Akatsuka, "Weakly-Ionized Rarefied Arc-Jet Flowing Supersonically along Diverging Magnetic Field (1) Experiments", Book of Abstracts, ISEHD2014, p. 7, (2014).

3. S. Tsuno, T. Nakahagi, A. Nezu, H. Matsuura, and H. Akatsuka, "Weakly-Ionized Rarefied Arc-Jet Flowing Supersonically along Diverging Magnetic Field (2) Numerical Simulation", Book of Abstracts, ISEHD2014, p. 34, Jun. 2014.

4. 津野 聡, ラーオスタラ アンパン, 根津 篤, 松浦 治明, 赤塚 洋, "開放端磁場における希薄弱電離プラズマ超音速流のハイブリッドシミュレーション (2) 背圧・初期イオン温度の影響", 平成 26 年度 電気学会 基礎・材料・共通部門大会要旨集, 一般社団法人電気学会, p. 131, (2014).

5. H. Akatsuka, S. Tsuno, A. Laosunthara, A. Nezu, and H. Matsuura, "Numerical Simulation of Acceleration and Deceleration of Weakly-Ionized Rarefied Arc-Jet along Diverging Magnetic Field", Bull. Am. Phys. Soc., **59**, [16], p. 75, (2014).

6. Y. Honda, A. Nezu, H. Matsuura and H. Akatsuka, Spectroscopic measurement of Fulcher- α band of microwave discharge H_2/D_2 plasmas, 32nd International Conference on Phenomena in Ionized Gases (ICPIG), P2-58 (2015).

7. 山城 龍太郎, 根津 篤, 赤塚 洋, 開放端磁場を流れる窒素アークジェットプラズマの特性, 電気学会プラズマ研究会, 電気学会研究会資料 プラズマ研究会, 一般社団法人電気学会, PST-15-50, pp. 25-30 (2015).

[図書](計 0件)

[産業財産権]

○出願状況(計 0件)

○取得状況(計 0件)

[その他]

ホームページ等～とくになし

6. 研究組織

(1)研究代表者

赤塚 洋 (Akatsuka, Hiroshi)

東京工業大学・原子炉工学研究所・准教授
研究者番号: 50231808

(2)研究分担者 なし

(3)連携研究者 なし