

令和 2 年 7 月 1 日現在

機関番号：32621

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2019

課題番号：16K05636

研究課題名(和文) 高振動励起水素分子の電子分光法による核融合周辺プラズマ診断

研究課題名(英文) Peripheral plasma diagnostics by electron spectroscopy of vibrationally-excited hydrogen molecules

研究代表者

星野 正光 (Hoshino, Masamitsu)

上智大学・理工学部・教授

研究者番号：40392112

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：核融合周辺プラズマにおける電子・金属壁・中性水素分子間の相互作用を含む原子分子素過程を理解するため、先行研究における高温金属と水素分子の相互作用で生成された振動励起分子の電子衝突による衝突断面積の定量測定を計画した。まず、室温で純粋な気相水素分子とその同位体である重水素分子の電子衝突断面積を精密に測定し基準値とした。続いて、高温金属内中を透過した水素分子の電子衝突断面積を定量的に測定し基準値と比較すると、ボルツマン分布から予測される高温気相水素分子とは異なる衝突断面積の傾向が観測された。引き続き、再現性を確認すると同時に、重水素置換による同位体効果についても考察し成果報告を行う。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまで核融合周辺プラズマや半導体プロセスにおけるプラズマモデリングの基礎データとして様々な原子分子衝突過程の衝突断面積が用いられてきた。特に電子衝突断面積については、純粋な気相原子分子標的、類似標的に対する理論値や予測値が主に使用され、定量的な実験データの少なさが問題であった。そこで今回、金属表面と水素分子の相互作用で生成された励起水素分子の電子衝突断面積の定量データ、および室温で測定された基準となる純粋気相分子の精密データを測定し、高精度なプラズマモデリングを実行する上で必要不可欠なデータを得ることで、今後より現実に近いシミュレーションに基づいたプラズマの詳細な理解が期待される。

研究成果の概要(英文)：In order to understand atomic and molecular fundamental processes in the low-temperature plasmas around nuclear fusion including the interactions among electrons, metal surfaces, and neutral hydrogen molecules, electron collision cross sections for vibrationally-excited molecules generated by interacting between metal surfaces and hydrogen molecules were measured quantitatively. First, the collision cross sections of pure gas phase hydrogen molecules and its isotope deuterium molecules at room temperature were more precisely measured than previous works as the reference values. Then, when the electron collision cross sections of hydrogens penetrated through the high temperature metal cylinder were also measured and compared with the reference values, the different trend of the cross sections have been clearly observed between the present results and that for the pure gaseous hydrogen predicted from the Boltzmann distribution at high temperature.

研究分野：原子分子

キーワード：電子分光 衝突断面積 プラズマ素過程 加熱分子

1. 研究開始当初の背景

(1) 国際熱核融合実験炉 (ITER) 計画により、人類は核融合反応を使い数十万 kW のエネルギーを発生させ、高温プラズマ状態を維持し続けるための研究を開始した。この ITER のように磁場で閉じ込められた核融合プラズマ中において、緩やかな拡散現象により荷電粒子が主プラズマ外部へ逃げ出し周囲の壁と相互作用する。それに伴い壁材は劣化し、さらに壁から放出された不純物が核融合プラズマ中に混入することで、プラズマ温度を減少させる問題が懸念されている。そこで、主プラズマから漏れ出した荷電粒子を積極的に壁と衝突させることで中性化させ、効率よく排気することを目的としてダイバータが製作された。このダイバータは、核融合炉構成機器の中で唯一直接プラズマ粒子と接する固体壁であり、最も厳しい熱・粒子負荷に曝されている。そのダイバータの壁材として、高温や放射線照射に対して強度が劣化しないタングステンをはじめ様々な金属が候補として提案されている。

このような背景の下、近年国内外問わず、プラズマ中の荷電粒子と壁材との相互作用により壁から放出されたタングステン多価イオンの分光研究が開始された。しかしながら、ダイバータ周辺の中心温度に比べて比較的低温中のプラズマの挙動を理解するには、電子・イオン等の荷電粒子・ダイバータ壁材・

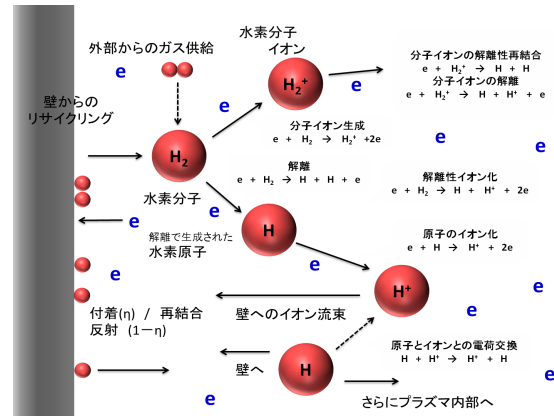


図 1: ダイバータ周辺プラズマにおける原子・分子素過程の模式図[1]

(重) 水素原子や水素分子等の間の複雑な相互作用を含む原子分子過程をあらゆる側面から定量データを得ることが重要である (図 1)。

(2) そこで本申請者は、ダイバータ周辺のプラズマ素過程の詳細な理解を目指し、これまで行ってきた気相原子・分子、および金属表面を標的とした低エネルギー電子分光実験を高温の金属表面と中性水素分子の相互作用で生成された高振動励起分子標的へ拡張する計画を立案した。金属壁周辺では、荷電粒子だけではなく核融合炉に導入された電氣的に中性の水素・重水素も電場や磁場で制御できないことから高温になった壁材と相互作用する。先行研究[2]において、高温タングステンと水素分子が相互作用とすると再結合過程を得てボルツマン分布とは異なる高振動励起状態の水素分子が形成されることが示され、壁材と中性気体分子との相互作用で生成される振動励起分子とプラズマ中の荷電粒子との衝突過程も周辺プラズマ中では無視できないことがわかってきた。しかしながら、現在行われているプラズマモデリングでは励起分子を標的とした衝突素過程は考慮されておらず、より精密なモデルと構築するためには、高振動励起分子とプラズマ温度を支配する電子との相互作用における衝突断面積データが必要不可欠となる。

(3) そのような背景に基づき、本申請者らが行ってきた低エネルギー電子と原子・分子の衝突断面積の定量測定手法を高振動励起状態の水素分子標的へ拡張することで、より現実に近いプラズマモデリングを実施するための高精度な基礎データの測定、提供を目指し、本着想に至った。高振動励起状態の生成は先行研究で質量分析法による定性的な測定のみで確認されているが、低エネルギー電子分光実験を用いた定量測定、と検証は本申請が始めての試みである。

2. 研究の目的

以上の経緯を踏まえ、本申請では次世代クリーンエネルギーとして注目される核融合プラズマ、特にダイバータ周辺の低温プラズマの原子分子過程に注目した。この周辺プラズマ中では、電子・イオン等の荷電粒子、高温のダイバータ炉壁、および中性（重）水素原子・分子が複雑に相互作用する。これまで周辺プラズマの挙動を理解するために様々なプラズマモデリングが行われてきたが、プラズマ中で生成された励起状態、特に振動励起分子と荷電粒子との衝突過程は含まれないのが一般的であった。しかしながら、近年先行研究[2]による高温金属壁と相互作用した水素分子の高振動励起が重要な過程の一つである報告を受け、高振動励起状態の水素分子標的に対する電子衝突断面積の精密測定を行うことで、より現実に近いプラズマモデリング、および診断を実行するための基礎データを提供すると同時に、周辺プラズマの新たな原子・分子素過程の理解を目的とした。

3. 研究の方法

(1) 本申請では、申請者が行っているビーム交差法による低エネルギー電子分光装置に新たに開発・設置した分子加熱用ガスノズルを組み合わせ、高温金属と水素分子、および重水素分子の相互作用で生成された振動・回転励起分子と電子の衝突において、ある角度に散乱された電子のエネルギー損失スペクトルを測定した（図2・図3）。ここで、開発された加熱用ガスノズルは、既存の分光器の幾何学的な大きさや残留磁場の観点から図2の構造と異なり、水素との触媒効果が期待されるパラジウム粉末を導入しヒーター加熱する方法に変更された。

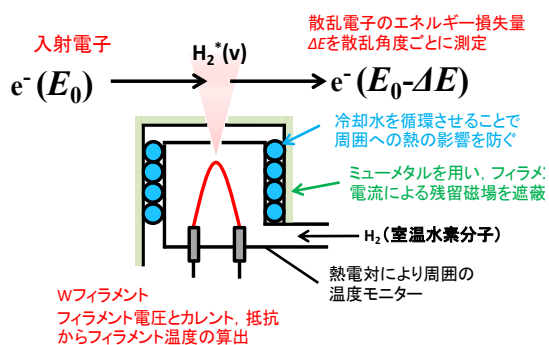


図2：水素分子加熱炉の模式図



図3：水素分子加熱炉の写真

(2) 角度分解電子エネルギー損失スペクトルの測定では、散乱電子のエネルギー損失が0である弾性散乱過程と0でない非弾性散乱過程とに分離でき、本研究における非弾性散乱過程には標的水素分子の振動・回転励起過程が含まれる。仮に高温金属表面と水素分子の相互作用により高振動励起状態が形成されていれば、エネルギー損失が負の値、すなわちエネルギー利得として励起水素分子から入射電子がエネルギーを受け取り散乱される超弾性散乱と呼ばれる現象として直接観測される利点がある。

(3) 先行研究[2]では、四重極質量分析器を用い衝突で解離した水素負イオンから高振動励起状態の振動分布を間接的に相対強度として測定した。一方、本申請で用いた電子エネルギー損失分光法では、弾性散乱、非弾性散乱の電子衝突断面積の定量値を基準となる純粋な気体標的と比較して直接見積もることができる。また衝突断面積の絶対値化には、金属表面の相互作用により影響を受けないヘリウム原子の断面積に対する規格化を用いることから、純粋な気体と金属表面と相互作用した分子の電子衝突断面積の定量値を直接比較できる点でも優れている。

4. 研究成果

(1) 平成 30 年度までに行われた装置開発、動作テストの段階で実験室・装置の移転が実施されたことに伴い、期間を延長し装置の復旧作業と安定測定の確認を兼ねて、はじめに本研究で基準となる室温における純粋な気相水素(H_2)分子、およびその同位体である重水素(D_2)分子の電子衝突における弾性散乱と非弾性散乱について衝突断面積の定量測定を高精度で実施した。例として図 4 に測定で得られた非弾性散乱の中でも振動励起断面積の散乱角度と入射エネルギー依存性を示した。化学的性質が同じで質量が異なる同位体分子間でも衝突断面積にわずかな大きさの違いが色合いの濃淡で観測された。このように衝突断面積の定量測定における同位体効果についてもはじめて系統的に測定されたことから、まずは基準として精密に測定された純粋標的に対する衝突断面積とその同位体効果についての成果報告を計画している。

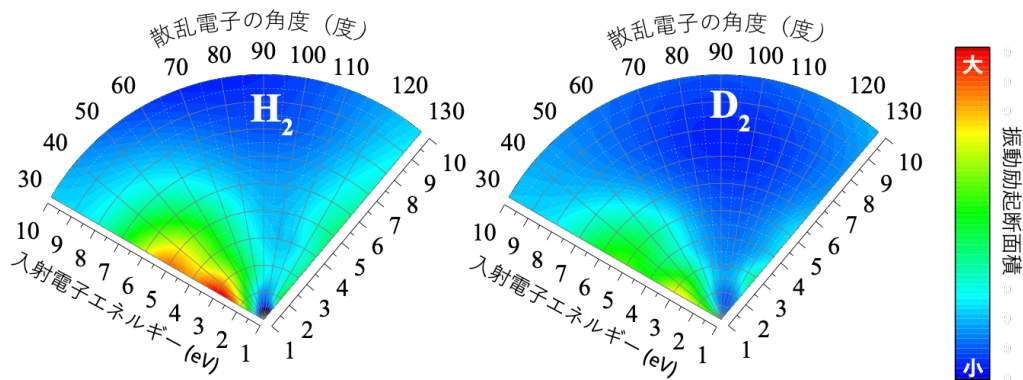


図 4: 電子衝撃による水素(H_2)分子と重水素(D_2)分子の振動励起断面積の散乱角度と入射電子エネルギー依存性。

(2) 次に、高温パラジウム(Pd)金属表面との相互作用で生成された水素分子の電子衝突実験の実施と基準データとの比較を行った。高温 Pd 表面と相互作用した水素分子標的の測定において、先行研究のような高振動励起状態からの散乱電子の信号は現段階では観測されていない。しかしながら、基底状態からの振動励起および回転励起断面積の温度依存性において、従来の分子加熱法で得られるボルツマン分布による振動・回転分布の見積もりとは異なった衝突断面積の傾向が観測された。引き続き、定量性や再現性の確認実験を実施し Pd の触媒効果の検証を行うと同時に、重水素置換による同位体効果についても考察し成果報告を行う予定である。

(3) これまで核融合周辺プラズマモデリングの基礎データとして電子衝突断面積が用いられてきたが、純粋な気相原子分子標的、類似標的に対する理論値や予測値が主に使用されていた。そこで今回、金属表面と水素分子の相互作用で生成された励起水素分子の電子衝突断面積の定量データと室温における基準となる純粋気相分子の精密データを測定し、高精度なプラズマモデリングを実行する上で必要不可欠な定量データを得たことで、現実に近いシミュレーションに基づいたプラズマの詳細な理解が期待され、エネルギー問題の観点からも社会的に大きな意義が示せたと考えられる。

<引用文献>

- [1] 浜口 智志、村上 泉、加藤 太治、プラズマ核融合学会編、「プラズマ原子分子過程ハンドブック」、大阪大学出版会、2011、311
- [2] R. I. Hall, et al., Phys. Rev. Lett. 60, 1988, 377

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 N. Hishiyama, M. Hoshino, F. Blanco, G. Garcia, and H. Tanaka	4. 巻 147
2. 論文標題 Absolute cross section measurements for the scattering of low- and intermediate-energy electrons from PF3. I. Elastic scattering	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 224308-1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5009482	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 N. Hishiyama, M. Hoshino, F. Blanco, G. Garcia, and H. Tanaka	4. 巻 148
2. 論文標題 Absolute cross section measurements for the scattering of low- and intermediate-energy electrons from PF3. II. Inelastic scattering of vibrational and electronic excitations	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 084313-1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5012844	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 S. Ohtomi, M. Hoshino, A. Suga, H. Kato, D. Dufлот, P. Limao-Vieira, and H. Tanaka	4. 巻 120
2. 論文標題 Studies on GeF4 Valence and Rydberg States by Electron Impact Spectroscopy and Ab Initio Calculations	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry A	6. 最初と最後の頁 9170-9177
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpca.6b09138	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 M. Hoshino, D. Dufлот, P. Limao-Vieira, S. Ohtomi, and H. Tanaka	4. 巻 146
2. 論文標題 Experimental scaling of plane-Born cross sections and ab initio assignments for electron-impact excitation and dissociation of XF4 (X = C, Si, and Ge) molecules	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 144306-1-16
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.4979299	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17件(うち招待講演 3件/うち国際学会 4件)

1. 発表者名 菱山直樹、大富翔平、田中敦也、星野正光、田中大
2. 発表標題 PF3分子の電子分光II:非弾性散乱過程
3. 学会等名 日本物理学会第72回年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 A. Tanaka, H. Kato, M. Hoshino, and H. Tanaka
2. 発表標題 Experimental scaling of plane-Born cross sections for the electron-impact excitation to the b1 u state of N2 molecule
3. 学会等名 30th International Conference on Photonic, Electronic, Atomic Collisions (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 N. Hishiyama, M. Hoshino, F. Blanco, G. Garcia, and H. Tanaka
2. 発表標題 Absolute elastic differential cross sections for PF ₃ molecule by electron impact: A comparative study with XF ₃ (X =B, C, N and CH) molecules
3. 学会等名 30th International Conference on Photonic, Electronic, Atomic Collisions (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 菱山直樹、星野正光、田中大
2. 発表標題 e- + PF ₃ 衝突における励起断面積の絶対値測定
3. 学会等名 原子衝突学会 第42回年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 田中敦也、加藤英俊、星野正光、田中大
2. 発表標題 電子衝突によるN2分子のb1 u状態に関する励起断面積
3. 学会等名 原子衝突学会 第42回年会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 田中敦也、加藤英俊、星野正光、田中大
2. 発表標題 電子衝撃によるN2分子のb1 u状態の電子励起断面積測定
3. 学会等名 日本物理学会 2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 星野正光、菱山直樹、田中大
2. 発表標題 低エネルギー電子とフッ素化合物の衝突における励起素過程と衝突断面積データセット
3. 学会等名 「原子分子過程研究と受動・能動分光計測の高度化のシナ効果によるプラズマ科学の展開」, 「原子分子データ応用フォーラムセミナー」 ジー 合同研究会 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 星野正光
2. 発表標題 Low energy electron spectroscopy of fluorine containing molecules
3. 学会等名 Research frontier on atomic elementary processes in peripheral plasmas (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 奥村拓馬, 赤坂博史, 江尻智一, 穂坂綱一, 北島昌史, 小田切丈, 星野正光
2. 発表標題 HDの超低エネルギー電子衝突全断面積
3. 学会等名 日本物理学会 第73回年次大会(2018年)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 菱山直樹, 山崎義基, 尾形昌洋, 石塚雅典, 大富翔平, 田中敦也, 星野正光, 田中大
2. 発表標題 NH ₃ 分子の低エネルギー電子分光: 弾性散乱過程
3. 学会等名 原子衝突学会 第41回年会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 菱山直樹, 大富翔平, 田中敦也, 星野正光, 田中大
2. 発表標題 電子衝撃によるPF ₃ 分子の弾性散乱微分断面積の絶対値測定
3. 学会等名 原子衝突学会 第41回年会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 大富翔平, 菅惇史, 加藤英俊, 星野正光, D. Duflot, P. Lim o-Vieira, 田中大
2. 発表標題 EELSによるXF ₄ 分子(X = C, Si, Ge)の電子励起状態とab initio計算
3. 学会等名 原子衝突学会 第41回年会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 菱山直樹, 大富翔平, 田中敦也, 星野正光, 田中大
2. 発表標題 PF3分子の電子分光I: 弾性散乱過程
3. 学会等名 日本物理学会 2016年秋季大会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 菱山直樹, 大富翔平, 田中敦也, 星野正光, 田中大
2. 発表標題 PF3分子の電子分光II: 非弾性散乱過程
3. 学会等名 日本物理学会 第72回年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 要藤明洋, 北島昌史, 星野正光
2. 発表標題 低エネルギー電子衝撃によるH2とD2分子の部分断面積に現れる同位体効果
3. 学会等名 原子衝突学会 第44回年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 要藤明洋, 北島昌史, 星野正光
2. 発表標題 低エネルギー電子分光法を用いたH2とD2分子の電子衝突断面積における同位体効果の検証
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 星野正光
2. 発表標題 Absolute cross section measurements in collisions of low- and intermediate-energy electrons with polyatomic molecules
3. 学会等名 International workshop on atomic and molecular data for plasma applications (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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