

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 22 日現在

機関番号：13301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25289336

研究課題名(和文)核融合周辺プラズマにおけるアーク現象と共堆積膜中への水素同位体吸蔵に関する研究

研究課題名(英文) Arc Discharge Properties and Hydrogen Isotope Absorption in Co-deposited Films at Remote Fusion Plasmas

研究代表者

上杉 喜彦 (UESUGI, YOSHIHIKO)

金沢大学・電子情報学系・教授

研究者番号：90213339

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：将来の磁場閉じ込め熱核融合炉においてトリチウムの炉内吸蔵の抑制手法の開発を目的として、グラファイト材と周辺プラズマ中への窒素ガス導入による炭素堆積膜中へのトリチウム吸蔵抑制に関する研究を行い、以下の結果を得た。(1)水素または重水素プラズマ中にメタンまたは重水素化ベンゼンを導入し、H(D)/Cが混合した低温プラズマ中に窒素ガスを導入することで水素化炭素膜成長が顕著に抑制されることを見いだした。(2)窒素ガス導入による水素化炭素膜成長の抑制は、化学反応系がCH_xなどの凝集性炭化水素系分子からHCNやNH₃などの揮発性分子生成系へと変わる事が主たる要因である。

研究成果の概要(英文)：A simultaneous addition of nitrogen with carbon impurities into D₂ plasmas can strongly suppress the hydrogenated carbon film growth at low surface temperature of T_s=310-400 K. Nitrogen scavenger effects on carbon film formation and growth are dominantly related to slow chemical reactions of nitrogen in the hydrogenated carbon films(~50 min), such as diffusive penetration of atomic nitrogen and formation of new chemical equilibrium. Carbon film growth with nitrogen shows a nonlinear feature with the amount of added nitrogen that the film growth rate suddenly drops at N/C=0.8-1. Volatile DCN and ND_x formation and release from the deposited films contributed to reduce the hydrogen isotope retention in the deposited hydrogenated carbon film. Rough estimation of deuterium retention showed that the ratio of the total number of deuterium atoms absorbed in the hydrogenated carbon films to the total carbon atoms introduced into the chamber is D/C=1.2-1.8 without nitrogen addition.

研究分野：プラズマ理工学

キーワード：トリチウム吸蔵制御 不純物堆積膜 核融合周辺プラズマ 反応性プラズマ 不純物制御

1. 研究開始当初の背景

(1) 学術的背景

磁場閉じ込め熱核融合炉において、Type-I ELM やディスラプション発生時にミリ秒スケールで 100 MW/m²~数 GW/m² の過渡的かつ局所的熱流入によるダイバータ板等のプラズマ対向材の溶融・損耗の問題が重要視されている。この問題に対して、ITPA Topical Group on SOL and Divertor Physics の場で既存装置のデータをもとに活発に議論されている。一方、過渡的な熱・粒子流入制御手法の1つとして Vapor Shielding や重相（プラズマ-気相-液相-固相混相）構造プラズマの考え方が、J. G. Gilligan や A. Hassanein らによって理論的に検討され、ロシアでは高エネルギー密度を有するパルスプラズマガンを用いたディスラプション模擬実験研究が進展している。他方、我が国では兵庫県立大学と名古屋大学のグループを中心に同様の研究実施に向けて準備が行われているのみである。

(2) 研究の位置付け

本研究で用いる大電流安定化アーク放電は、ディスラプション時に相当する~GW/m² の熱負荷を有するプラズマを制御性よく過渡的あるいは定常で生成できるユニークな特徴を有しており、他のディスラプション模擬研究に例を見ないものである。不純物放出に用いるアーク電極材を変えることで、タングステンなどの高融点不純物からアルミなどの低融点不純物まで幅広い不純物をプラズマ中に導入することが可能であることを利用して、ダイバータ板への過渡的熱流入によるダイバータ板溶融・蒸発・液滴飛散→ダイバータプラズマへの混入→遠隔領域プラズマへの拡散輸送→炉壁への再堆積・共堆積過程を模擬研究するとともに共堆積膜中への水素同位体吸蔵を抑制するための Scavenger 粒子を探索することで、核融合炉開発研究に資するものである。

2. 研究の目的

大電流密度アークプラズマが有する GW/m² 級の超高熱流プラズマ-対向壁（電極）相互作用により、超高熱流アークプラズマ-固体壁界面領域に形成される「重相（プラズマ-気相-液相-固相混相）構造プラズマ」を利用して、磁場閉じ込め熱核融合炉におけるディスラプションや ELM 発生時のダイバータ板の動的損耗過程（溶融、沸騰、液滴飛散現象）の解明を行うとともにクラスター・液滴不純物が混入したプラズマ中へ反応性不純物除去粒子(Scavenger)を微量混入させた場合の共堆積過程および水素同位体吸蔵制御に関する知見を得ることを目的とした研究である。

3. 研究の方法

プラズマ切断機用に開発された 150 A~300 A 級大電流安定化アークプラズマ生成用アークトーチを不純物放出源として用いて、現有の Heliotron-DR 装置に組み込むことでいかなる研究を実施する。

(1)アーク放電により形成される重相構造プラズマの安定生成・制御および各種電極不純物の定常および過渡的放出過程の実験的解明を行う。

(2)放出された金属不純物の再堆積・共堆積過程の解明を行うとともに、不純物の違いによる水素同位体の吸蔵特性の差異を明らかにする。

(3)共堆積膜中への水素同位体吸蔵を抑制する Scavenger 粒子を探索し、その効果を検証する。

4. 研究成果

(1)アーク放電による炭素/金属不純物導入

水素または重水素プラズマ中に炭素あるいは金属不純物を簡便に供給する手法として、当初、直流アーク放電による陰極材不純物導入を検討して、同軸あるいは平行棒電極を用いて実験を行った。その結果、図1に示すようにアーク放電により電極不純物は導入されるものの安定なアーク放電の維持が困難で、数時間に渡って安定に不純物を納入する事が出来なかった。

(2)アーク放電に代わる炭素不純物導入法

安定的な炭素不純物導入法として、メタン等の炭化水素ガスを用いる事が良く用いられている。核融合炉では、燃料ガスとして重水素およびトリチウムが用いられることから、これら水素同位体の吸蔵などを調べるためには、軽水素混入の少ないプラズマを生成することが求められる場合が多い。我々は、純度の高い重水素プラズマ中に炭素不純物を導入するために重水素化ベンゼン(C6D6)を用いる手法を採用した。



図1 グラファイト同軸電極を用いたアーク放電形成と炭素不純物放出

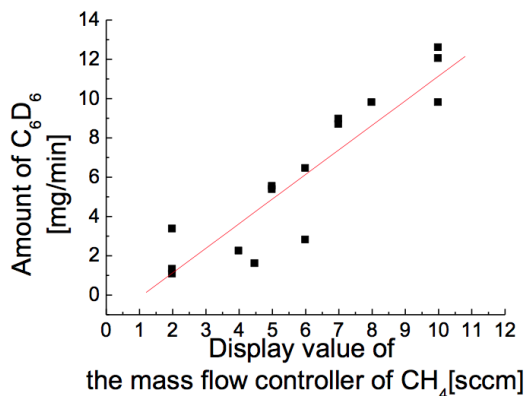


図2 重水素ベンゼンによる炭素不純物導入

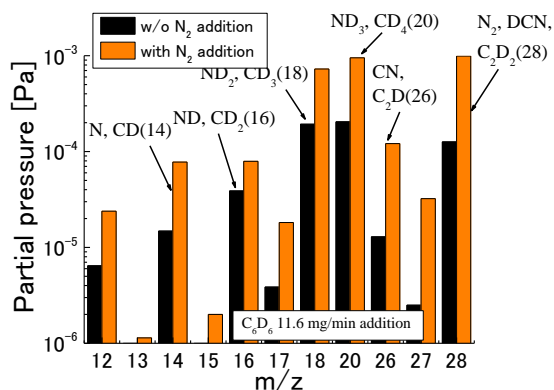


図3 重水素プラズマに重水素ベンゼンを導入した時に生成される粒子スペクトル

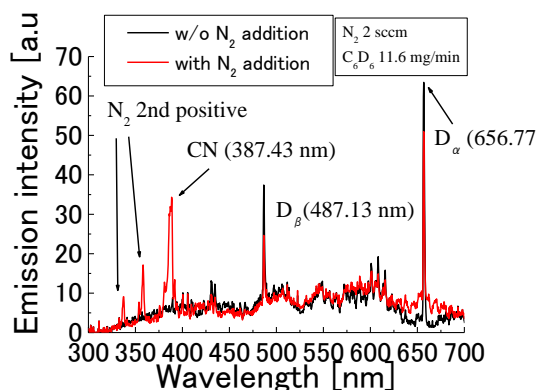


図4 重水素プラズマに重水素ベンゼンを導入した時に生成される発光スペクトル

常温では、重水素化ベンゼンは液体であるため、低圧気化させてガス用マスフローコントローラーで流量制御した。その結果を図2に示す。多少ばらつきはあるものの、ガス用マスフローコントローラーで制御できることを確認した。

- (3) 重水素ベンゼン導入時の粒子及び発光スペクトル観測
 図3に重水素/重水素化ベンゼンプラズマ

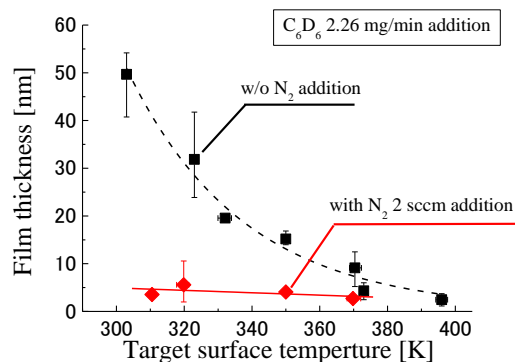


図5 水素化炭素膜厚の照射 Si サンプル表面温度依存性

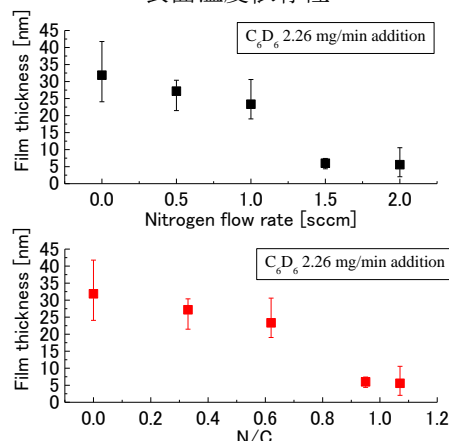
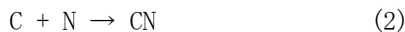


図6 水素化炭素膜厚の窒素導入量依存性

への窒素導入有無による分圧値比較を示す。ND₃、CNなどのNを含む粒子の分圧値の増加が見られる。図4に重水素/重水素化ベンゼンプラズマへ窒素導入した際の分光観測結果を示す。窒素導入することでN₂(358.17 nm)やCN(387.43 nm)といった発光が確認された。これらの粒子は重水素/重水素化ベンゼンプラズマ中へ導入され、解離したNラジカルがプラズマ中また壁表面で、



といった化学反応が起きたと考えられる。図5に重水素/重水素化ベンゼンおよび重水素/重水素化ベンゼン/窒素プラズマでの試料の堆積膜厚の試料表面温度依存性を示す。窒素導入なしにおいて、低温領域(<340 K)では膜が非常に堆積していることが分かる。また、試料温度を上げていくと堆積膜厚が減少していく。一方、窒素導入時には、低温領域においても堆積膜厚が数 nm と非常に薄いことが分かる。図6に堆積膜厚の窒素導入量および窒素原子と炭素原子の個数比依存性を示す。窒素の導入量を増やすと、堆積膜厚が減

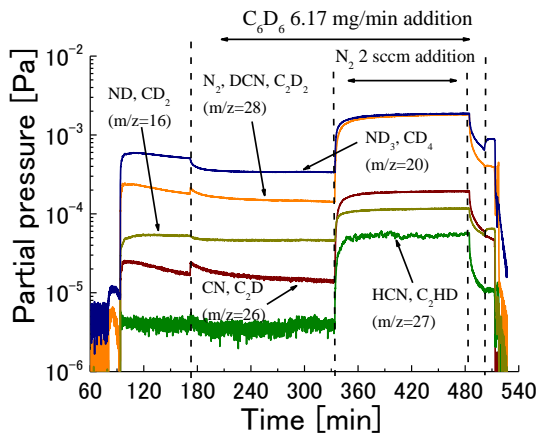


図7 窒素導入による主要粒子分圧の時間変化

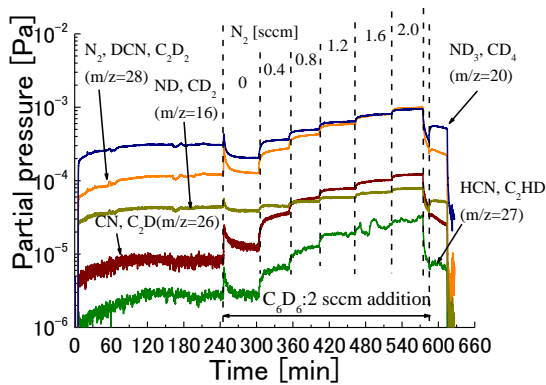


図8 窒素導入をステップ的に変化した時の主要粒子分圧の時間変化

少していることが分かる。炭素原子に結合する窒素原子が増えると、炭素原子が優先的に窒素原子と結合して、揮発性分子であるCN系粒子が生成される状態へ遷移したと考えられる。このように、膜形成の抑制によって膜に含まれる水素同位体吸蔵量も抑制されると考えられる。

図7に重水素プラズマに重水素化ベンゼンおよび窒素を順次導入した際の分圧時間変化を示す。重水素化ベンゼン導入時に比べて窒素導入時の分圧値変化が遅いことがわかる。プラズマ中へ導入した際のゆっくりとした時間変化は反応の早い気相中では見られないため、つまり窒素導入時の反応は気相中の反応でなく、プラズマと壁表面での反応が主であると考えられる。重水素/重水素化ベンゼンへの窒素導入量を変化させた際の分圧値の時間変化を図8に示す。窒素導入量を増やしていくと窒素を含む粒子の分圧値が増加していくことが分かる。

重水素/重水素化ベンゼンプラズマへの窒素導入量を変化させた際の水素同位体の分圧値の時間変化を図9に示す。また、図

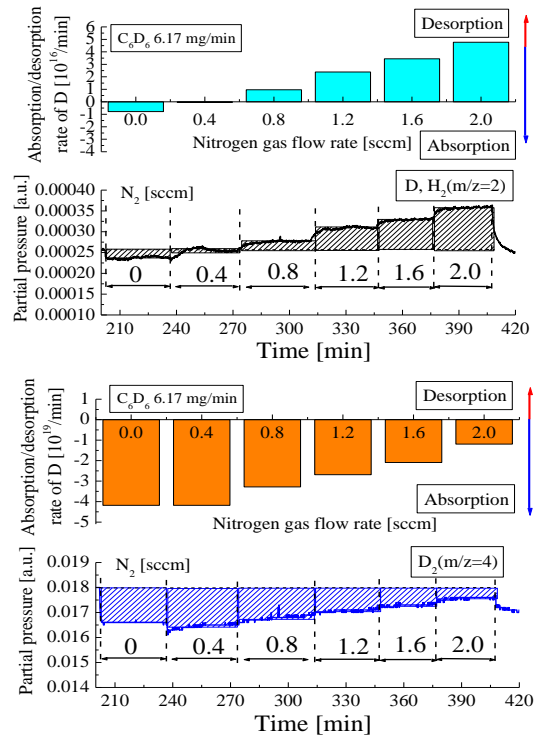


図9 窒素導入量をステップ的に変化した時の水素同位体の粒子分圧（上図）と吸蔵量（下図）の変化

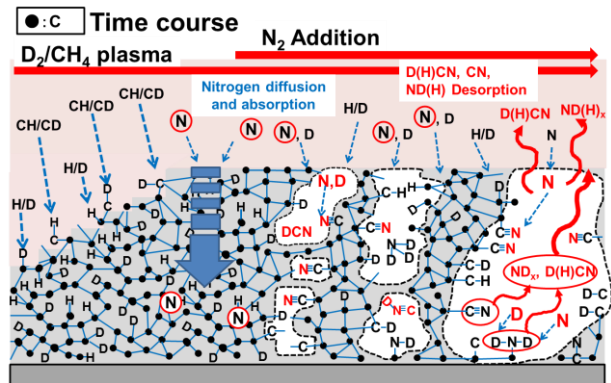


図10 窒素導入による水素化炭素膜除去と水素吸蔵抑制のモデル

9 下図に重水素プラズマのみの場合の分圧値より減少した分圧値分全て壁に吸蔵されたとすると、窒素導入することで吸蔵量がどのように変化していくかを示す。なお、上部のグラフの縦軸は吸蔵/放出量を表し、負の値は吸蔵量を示し、正の値は放出量を示す。重水素化ベンゼンを導入すると、水素同位体の分圧値が減少していることが分かる。解離した重水素化ベンゼンと水素同位体が結合、そして炭化水素が生成され、壁表面へ堆積したためと考えられる。窒素導入量を増やしていくと $m/z=2$ の分圧値が増加して、また、 $m/z=4$ でも窒素導入量

に応じて分圧値が増加している。さらに D, H₂(m/z=2)の吸蔵/放出量は窒素導入量を 0.4 sccm 以上にすると吸蔵が放出に遷移していることが分かる。このことから、窒素導入することで水素同位体の吸蔵を抑制できると考えられる。

図 10 に堆積過程時の窒素導入による膜堆積および水素同位体吸蔵量の抑制のメカニズムを示す。炭化水素が膜を形成している際に窒素原子が膜中へ拡散または吸蔵されることで膜中へ侵入する。次に膜中で窒素原子が炭素原子や水素同位体と結合することで揮発性の分子である CN 系や ND 系を生成する。その際に炭素原子が膜から取り除かれるので、膜中に孔（ポアラス）が空いてしまい、その孔は窒素を導入するにつれて孔は広がり、最終的には膜自体が無くなるほどの孔となることで膜形成および水素同位体吸蔵が抑制されると考えられる。

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) K. Iida, M. Notani, Y. Uesugi, Y. Tanaka, T. Ishijima, "Suppression of hydrogenated carbon film deposition and hydrogen isotope retention by nitrogen addition into cold remote H/D and CH₄ mixture plasmas", J. Nucl. Mater., Vol. 463, pp. 693-696, 2015, 査読有。

(2) 平良 優介、上杉 喜彦、田中 康規、石島達夫、「双方向トリガーダイオードを用いて生成した低気圧円筒型誘電体バリア放電動作特性」、電気学会論文誌 A、135 巻、pp. 182-188, 2015, 査読有。

(3) A. Sasaki, Y. Takai, Y. Uesugi, Y. Tanaka, T. Ishijima, S. Masuzaki, "Removal of carbon deposited film and hydrogen retention control by low temperature H-C-N reactive plasmas", J. Nucl. Mater., Vol. 438, pp. 1092-1095, 2013, 査読有。

[学会発表] (計 13 件)

(1) 山崎 嵩朗、加藤 拓郎、坂口 達哉、高嶋 亮輔、上杉 喜彦、田中 康規、石島 達夫、西島 大輔、「レーザー誘起ブレイクダウン分光法を用いた堆積膜組成と水素吸蔵のその場診断」、日本物理学会 2016 年秋季大会、2016 年 9 月 13 日-16 日、金沢大学角間キャンパス (石川県金沢市)

(2) 山崎 嵩朗、加藤 拓郎、上杉 喜彦、田中 康規、石島 達夫、西島 大輔、「レーザー

誘起ブレイクダウン分光法による堆積膜組成のその場分析」、第 11 回核融合エネルギー連合講演会、2016 年 7 月 14 日-15 日、九州大学伊都キャンパス (福岡県福岡市)

(3) 加藤 拓郎、山崎 嵩朗、水上 愛、上杉 喜彦、田中 康規、石島 達夫、「低温水素/炭素混合プラズマへの窒素添加による堆積膜成長および水素同位体吸蔵の抑制」、プラズマ・核融合学会 年会、2015 年 11 月 24 日、名古屋大学 東山キャンパス (愛知県名古屋市)

(4) 山崎 嵩朗、加藤 拓郎、水上 愛、上杉 喜彦、田中 康規、石島 達夫、西島 大輔、「レーザー誘起ブレイクダウン分光法 (LIBS) を用いた重水素化炭素堆積膜の組成評価および水素同位体吸蔵量の計測」、プラズマ・核融合学会第 32 回年会、2015 年 11 月 24 日、名古屋大学東山キャンパス (愛知県名古屋市)

(5) 加藤 拓郎、山崎 嵩朗、水上 愛、上杉 喜彦、田中 康規、石島 達夫、「重水素 / 炭素混合プラズマへの窒素添加による炭素膜成長と重水素吸蔵の抑制」、電気学会 基礎・材料・共通部門大会、2015 年 9 月 18 日、金沢大学 角間キャンパス (石川県金沢市)

(6) 加藤 拓郎、山崎 嵩朗、水上 愛、上杉 喜彦、田中 康規、石島 達夫、「軽水素フリー重水素/炭素混合プラズマへの窒素添加による水素化炭素膜成長の抑制」、平成 27 年度電気学会全国大会、2015 年 3 月 24 日~26 日、東京都市大学 世田谷キャンパス (東京都世田谷区)

(7) Masahiro Notani, Kazuya Iida, Takuro Kato, Yoshihiko Uesugi, Yasunori Tanaka, Tatsuo Ishijima, "Carbon Impurity Seeding to Deuterium Plasma Using a Deuterated Benzene C₆D₆.", Plasma Conference 2014, November 11-18, 2014, Niigata Convention Center, (Niigata, Niigata).

(8) Kazuya Iida, Masahiro Notani, Takuro Kato, Yoshihiko Uesugi, Yasunori Tanaka, Tatsuo Ishijima
"Suppression of Deuterium Absorption in Deuterated Carbon Film by Nitrogen Addition", Plasma Conference 2014, , November 11-18, 2014, Niigata Covention Center (Niigata, Niigata).

(9) 野谷 昌弘、飯田 和也、上杉 喜彦、田中 康規、石島 達夫、「窒素添加による炭素堆積膜中の水素同位体吸蔵量抑制に対する窒

素量依存性」第 10 回核融合エネルギー連合講演会、2014 年 6 月 19 日-20 日、筑波国際会議場（茨城県つくば市）

(10) 飯田 和也, 野谷 昌弘, 上杉 喜彦, 田中 康規, 石島 達夫、「窒素添加による炭素堆積膜中の水素同位体吸蔵量抑制に対する窒素量依存性」、第 10 回核融合エネルギー連合講演会 2014 年 6 月 19 日-20 日、筑波国際会議場（茨城県つくば市）

(11) K. Iida, M. Notani, Y. Uesugi, Y. Tanaka, T. Ishijima, "Suppression of hydrogenated carbon film deposition and hydrogen isotope retention by nitrogen addition into cold remote H/D and CH₄ mixture plasmas", 21th International Conference on Plasma Surface Interactions, May 26-30, 2014, Ishikawa Ongakudo (Kanazawa, Ishikawa).

(12) 佐々木彩、飯田和也、野谷昌弘、上杉喜彦、田中康規、石島達夫、増崎 貴、「メタンを含んだ低温水素/重水素プラズマ中における炭素膜成長に窒素が及ぼす影響」、プラズマ・核融合学会第 30 回年会、2013 年 12 月 3 日-6 日、東京工業大学大岡山キャンパス（東京都目黒区）

(13) A. Sasaki, K. Iida, M. Notani, Y. Uesugi, Y. Tanaka, T. Ishijima, S. Masuzaki, "Effects of nitrogen injection on carbon film growth in low temperature hydrogen or deuterium plasmas with methane", 9th Asia Plasma and Fusion Association Conference (APFA 2013), Gyeongju, Korea, November 5-8, 2013.

〔その他〕

ホームページ：

<http://epel.w3.kanazawa-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

上杉 喜彦 (UESUGI, Yoshihiko)

金沢大学・理工研究域・電子情報学系・教授
研究者番号：90213339

(2) 研究分担者

田中 康規 (TANAKA, Yasunori)

金沢大学・理工研究域・電子情報学系・教授
研究者番号：90303263