



小特集 放射線照射環境下における材料物性値のその場測定

2. 材料の物性値に対する放射線照射誘起効果

2. Radiation-Induced Effects in Physical Properties of Materials

2.5 イオンビームを用いたプラズマ照射下その場水素濃度計測

2.5 In-situ Measurement of Hydrogen Retention under Plasma Exposure by Using Ion Beam

大野 哲 靖, 松波 紀 明^{1)*}

OHNO Noriyasu and MATSUNAMI Noriaki^{1)*}

名古屋大学大学院工学研究科, ¹⁾名古屋大学エコトピア科学研究所 (*現 名城大学)

(原稿受付: 2013年11月5日)

核融合プラズマの長時間保持のためにはプラズマ対向壁での粒子制御が鍵である。特に水素同位体の装置の内壁および構造材料での動的挙動を予測することが重要である。本研究では、小型高密度直流プラズマ源とバンデグラフィオンビーム加速器を結合した装置を用いて、プラズマ照射環境下および直後の水素リテンション量のその場計測を行い、炭素材中の動的吸蔵過程と重水素・軽水素置換の動的挙動を観測した。

Keywords:

in-situ measurement, plasma-wall interaction, divertor plasma simulator, ion beam analysis, dynamic hydrogen retention, carbon, tungsten

2.5.1 はじめに

環状磁場閉じ込め核融合装置において、プラズマ照射中には炉壁に吸蔵された燃料粒子である水素同位体が絶えず真空容器内に放出される。そのため、炉内の燃料粒子バランスを的確に制御し、安定なプラズマ生成を実現するためにも、炉壁に吸蔵される水素同位体の挙動を把握することが重要な課題となっている。

これまでの研究により、二種類の水素吸蔵(リテンション)があることがわかってきている。一つ目は静的(static)リテンションである。こちらは、水素が空孔やボイドなどの材料中の結晶欠陥等に捕捉され続ける、すなわち、プラズマ照射を停止した後も水素が欠陥に強く結合しており、材料から放出されにくいという特性をもつ。もう一つは動的(dynamic)吸蔵量と呼ばれ、水素がプラズマ照射中または直後において材料中を移動し、プラズマ照射等の粒子の供給が絶たれると材料中から再放出される。プラズマ照射中にはこれらの動的、静的吸蔵量の合計が材料全体の吸蔵量となる。

動的吸蔵量に関しては、プラズマ照射下での材料中の水素吸蔵量のその場計測が可能な装置を開発することが難しく研究例がほとんどないというのが現状であるが、これまでいくつかの装置でプラズマ照射中の水素吸蔵量の観測が試みられている[1-4]。しかし、これらの装置では、試料温度の制御がなされていないものや、プラズマの粒子束が

核融合炉で想定されるものよりも低いものがあり、そのため、将来の核融合炉で想定されるプラズマ条件を模擬可能な水素吸蔵量その場計測装置の開発が求められている。

以上の背景のもと、プラズマ照射前後および照射環境下でのプラズマ壁-相互作用をより詳細に研究するため、プラズマ照射装置とイオンビーム解析装置が一体となった装置PS-DIBA (Plasma Surface Dynamics with Ion Beam Analysis)を開発した。本装置では、高粒子束のプラズマ照射と同時に核反応分析法(Nuclear Reaction Analysis: NRA)を用いて、動的環境下での材料中における重水素の吸蔵量変化の定量分析が可能である。

本節では、開発したPS-DIBA装置の詳細について述べるとともに、本装置を用いた重水素プラズマ照射下での炭素材での動的吸蔵量現象の直接観測結果ならびに重水素・軽水素プラズマの連続照射実験で得られた水素同位体置換現象について報告する。

2.5.2 PS-DIBA 装置の概要

図1にPS-DIBAの概観図を示す[5,6]。本装置は、LaB₆製熱陰極と水冷式銅陽極を用いた小型直流プラズマ源、さらに磁場コイル、加熱・磁場・放電電源、試料チャンバー、半導体検出器、真空排気用のポンプ類を用いて構成されている。

イオンビームラインを除いた本装置の大きさは縦1m×

Corresponding author's address: Nagoya University, Nagoya, AICHI 464-8603, Japan

Corresponding author's e-mail: ohno@ees.nagoya-u.ac.jp

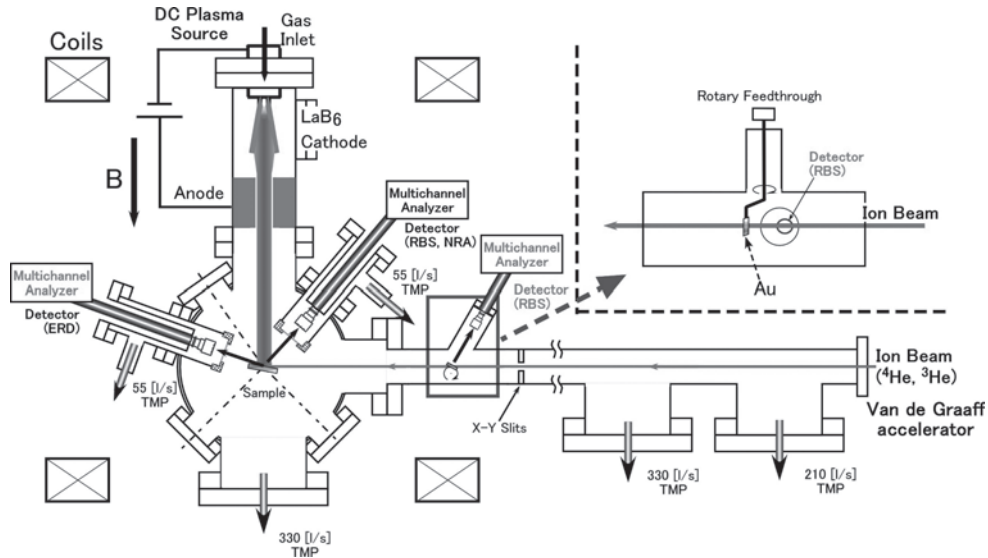


図1 PS-DIBA (Plasma Surface Dynamics with Ion Beam Analysis) 装置の概要。

横 0.8 m × 高さ 1.5 m 程度であり、通常用いられている直線型ダイバータプラズマ模擬試験装置の大きさの数分の一の大きさである。この小型化の要因としては、新しい設計された直流プラズマ源の小型化の効果が非常に大きい。

LaB₆製熱陰極の構造を図2に示す。フィラメント状の上下二枚のLaB₆製熱陰極に電極から給電して直接通電させることにより、傍熱型熱陰極に比べて効率良くLaB₆製熱陰極を加熱し、熱電子放出をさせることができる。上下二枚のLaB₆陰極はプラズマ生成方向(磁力線方向)に向けてV字型構造で設置されている。これにより、プラズマ生成に関して、陰極の面積を実効的に大きくすることが可能となり、高密度プラズマ生成が可能となる。また熱陰極はBN製の円筒に覆われている。BN製円筒は、熱陰極からの熱を遮蔽する役割とともに、上下二枚のLaB₆製熱陰極の間から導入された放電用ガスを放電領域に閉じ込め、放電効率を高める役割も果たしている。

図3に開発した小型プラズマ源により生成した重水素および軽水素、ヘリウムプラズマの電子密度 n_e 、電子温度 T_e の放電電力依存性を示す。陽極径に相当する半値幅約

20 mm のプラズマが生成される。電子密度は放電電力にほぼ比例して増加しており、磁場を高めることによってより高密度のプラズマが生成された。磁場 20 mT の特性において、電子密度はまだまだ上昇傾向にあり、現在は放電電源の定格電力により密度の上限が制限されている。電子温度に関しては、放電電力に対して大きく依存せず、おおよそ 5 eV 前後であった。放電電力約 1.8 kW で $5.0 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$ の高密度重水素プラズマの生成を実現した。軽水素およびヘリウムプラズマの場合においては 10^{19} m^{-3} を超える高密度プラズマの生成可能なことを確認した。

核反応分析法では、バンデグラフ加速器を用いて発生させた 1.0 MeV の ³He を試料に照射し、試料中の重水素 D との核反応により発生した α 粒子およびプロトン粒子を半

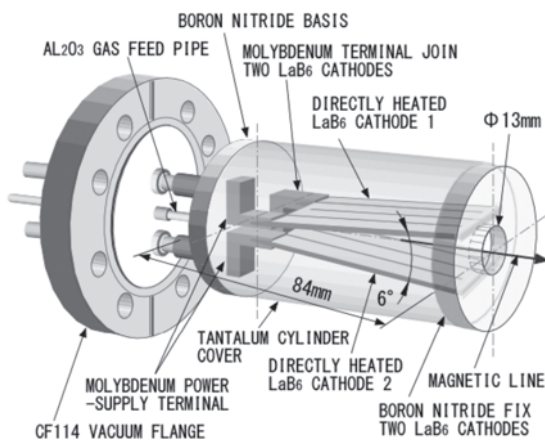


図2 小型直流プラズマ源のLaB₆製熱陰極の構造。

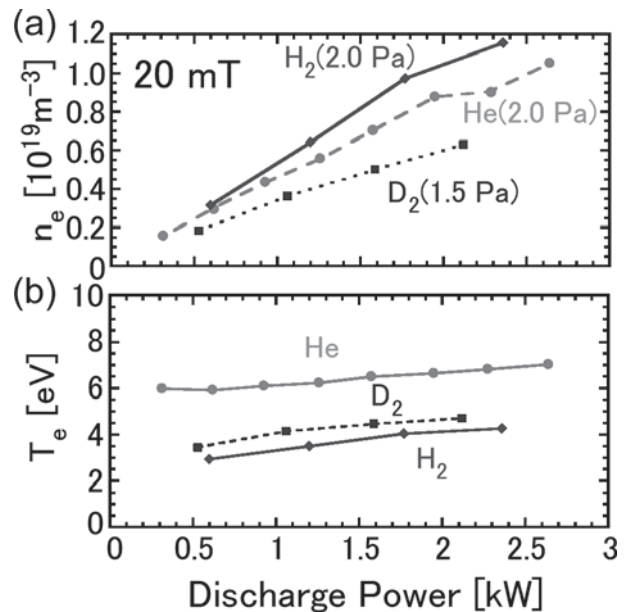


図3 小型プラズマ源を用いて生成した重水素および軽水素、ヘリウムプラズマの電子密度 n_e 、電子温度 T_e の放電電力依存性。

半導体検出器により検出し、重水素吸蔵量を計測する。

プラズマ照射下でイオンビーム計測が可能な環境の実現にはいくつかの解決すべき課題が存在する。一つ目は、プラズマ放電時の低真空度（～1 Pa）における半導体検出器の動作環境の維持、二つ目はイオンビーム照射量のモニタリングである。プラズマ照射時には放電用ガスを導入するため、照射用試料が設置されたチャンバー内の圧力～1 Pa程度に達する。核反応で発生した α 粒子やプロトン粒子を検出する半導体検出器は通常高真空環境下で使用される。1 Pa という圧力で半導体検出器を使用すると、放電を起こし破損する恐れがある。また、放電ガス粒子、不純物粒子に曝されるため、検出器表面が劣化する可能性もある。さらに、ライマン α 光などのプラズマからの光子が半導体検出器に入ると、誤差の原因になる。このため、図4に示すように検出器とターゲットの間にマイラー膜（6 μm ）、Al膜（12 nm）を設置した。マイラー膜を導入し検出器の領域を差動排気することで、プラズマ照射環境下においても 10^{-4} Pa と高真空を維持することに成功した。さらに、Al膜によりプラズマ光を遮断し、またプラズマ粒子の流入を抑えることで、検出器の精度向上に貢献している。マイラー膜およびAl膜の有無による NRA 計測結果の差異を図5に示す。膜がない状態(a)では、核反応 $D(^3\text{He}, p)\alpha$ により生成された α 粒子およびW表面を示す後方散乱された $^3\text{He}^+$ が検出されている。NRAにおいては、通常 α 粒子を計測することにより重水素吸蔵量を求めるが、膜を設置(b)することで、2つの粒子は透過することができず検出が不可能となる。しかし、核反応によるもう一つの生成粒子であるプロトンは高エネルギーで生成されるため膜を透過して検出器まで到達する。このプロトン粒子を検出することで重水素吸蔵量の測定が可能となる。

また、図1右側に示されるように、イオンビームラインに2つの複合分子ポンプが設置されている。この2つのポンプにより差動排気を行っており、放電環境下でもビームラインの真空度はイオンビーム解析が十分可能な 10^{-4} Paを維持している。

イオンビーム解析を行う場合には、試料に入射したイオンビームの照射量を計測することが必要不可欠である。照射量計測は、イオンビームが試料に照射されたときに試料を流れる電流を計測することで算出される。しかし、ビーム電流は数nAであり、プラズマ照射中、試料にはプラズマによる電流が数 mA 以上流れるため、ビーム電流の計測は不可能である。そこで、ビームラインにビーム照射量を計測するモニタリングシステムを構築することでこの問題を解決した(図1)。ビームモニタ試料は、回転導入器上部に取り付けたモータにより一定間隔(数 Hz)で回転するようになっている。具体的には、まず吸蔵実験を行う前に、ビームモニタ用の試料と吸蔵実験用の試料にイオンビームを照射し、ラザフォード後方散乱計測(Rutherford backscattering spectrometry: RBS)をし、ビームモニタ用試料からの後方散乱により検出されたカウント数と吸蔵実験用の試料からの後方散乱により検出されたカウント数との比をとるなどビーム照射量較正用データを取得する。プ

ラズマ照射時において、モニタでのRBS収量をビーム照射量に較正している。

2.5.3 重水素動的リテンション計測実験

試料に等方性黒鉛 ETU-10 (IBIDEN CO., LTD) を用いて、重水素吸蔵実験を行った。図6に試料温度 400 K, 450 K, 500 K, 550 K において、重水素プラズマを照射した際の重水素吸蔵量の変化を示す。図中プロットは10分間隔である。図中斜線部において重水素イオン粒子束 $\Gamma_D = 1.0 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、入射イオンエネルギー 33 eV の重水素プラズマを照射している。その他の部分では電子加熱を用い

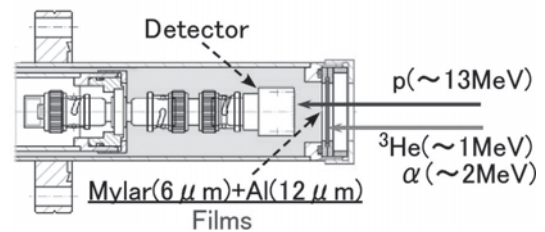


図4 マイラー膜とアルミ膜でシールドされた半導体検出器の構造。

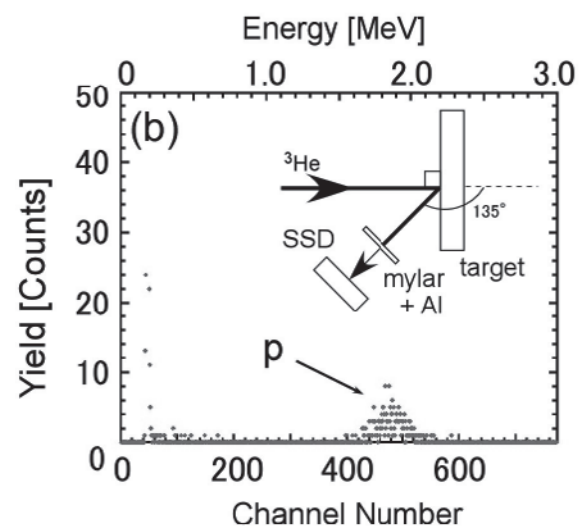
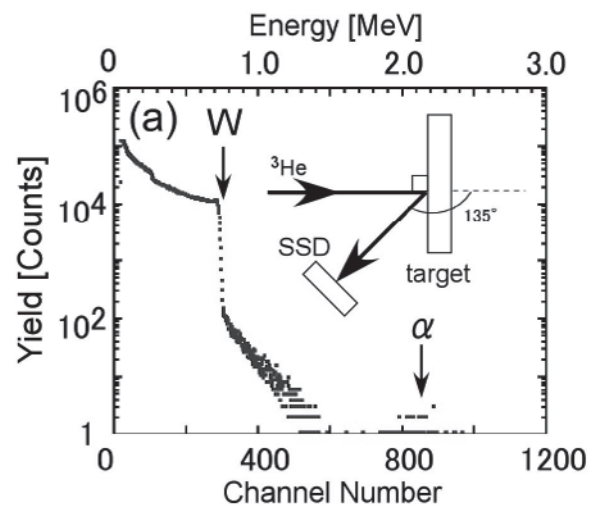


図5 (a)マイラー膜およびAl膜がない場合、(b)ある場合の NRA 計測結果。

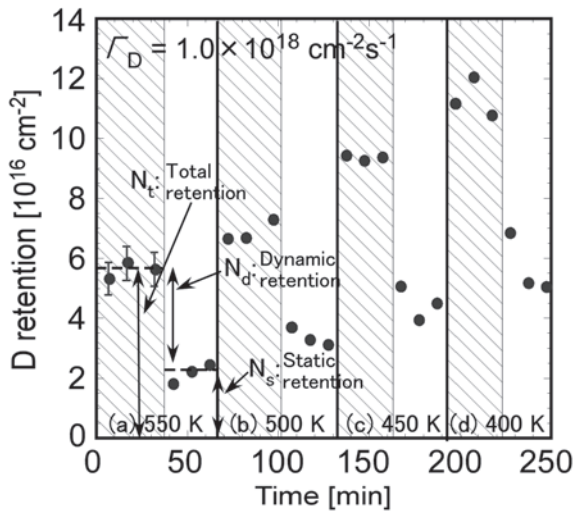


図6 様々な温度におけるプラズマ照射中、照射停止後の重水素吸蔵量。

て試料温度を直前のプラズマ照射時と同じ温度に保っている。

まず、550 Kでの吸蔵量に着目すると、プラズマ照射開始後すぐに $5.6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ の吸蔵量（合計の吸蔵量 N_t ）に達し、飽和していることがわかる。そして、プラズマ照射を停止すると吸蔵量が急激に減少していることが分かる。この急激な減少分 $3.5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ が動的吸蔵量 N_d であると考えられ、プラズマ照射停止後に材料中に保持されている $2.1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ の吸蔵量が静的吸蔵量 N_s に対応する。その他の 500 K, 450 K, 400 K の温度においても同様の傾向が観測された。そして、温度が低いほど吸蔵量が増加するという傾向が観測された。また、本実験では同一試料に対してプラズマを照射しながら試料温度を変化させているが、吸蔵量が飽和していれば、先の照射の履歴は反映されないことを確認している。すなわち、図6の400 Kの実験の後に再度試料温度を550 Kに変化させて吸蔵量を計測すると、図中(a)と同程度の吸蔵量となる。いずれの試料温度においても、プラズマ照射停止前後において、吸蔵量が大きく変化しており、動的吸蔵量が観測できていることがわかる。

図7は重水素プラズマ粒子束に対する動的吸蔵量の関係を示したグラフである。図から、動的吸蔵量は重水素プラズマ粒子束に比例していることが分かる。動的吸蔵量がどの程度の時間スケールで放出されているのかを以下のモデル式を用いて考察した。

$$\frac{dN_d}{dt} = \Gamma_D - \frac{N_d}{\tau}, \quad (1)$$

ここで τ はプラズマ照射中における動的吸蔵量の放出時間である。定常状態において、上式は

$$N_d = \Gamma_D \tau, \quad (2)$$

と書くことができる。そこで、図7のグラフにおいて、横軸を粒子反射係数を考慮した粒子束とした傾きから放出時間 τ を見積もった。Emmothの実験結果[3]では試料の温度制御が困難であったため、放出時間を573 K以下で

$\tau = 56 \text{ ms}$ としている。一方、本実験では重水素イオン粒子束と、試料の温度制御が可能であるため、350 Kで106 ms、400 Kで74 ms、450 Kで60 msという動的吸蔵放出時間の温度依存性を確認することが可能である。

2.5.4 水素同位体置換実験

材料中に吸蔵されたトリチウムの除去手段の一つとして考えられている、水素同位体置換現象に着目した。図8に重水素プラズマ、軽水素プラズマ照射による試料中の重水素吸蔵量の時間変化を示す。図中プロットは、軽水素プラズマ照射時においては時間間隔5分、それ以外は10分である。図8の斜線部において重水素もしくは軽水素プラズマを照射しており、その他の部分は電子加熱を行っている。また、実験全体を通して試料温度は350 Kに固定されている。重水素プラズマの粒子束は $8.7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 、入射イオンエネルギーは33 eV、軽水素プラズマの粒子束は $2.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ である。軽水素プラズマ照射による同位体置換現象を明確にするために、はじめに試料中の重水素吸蔵量が飽和するまで重水素プラズマを照射し、その後プ

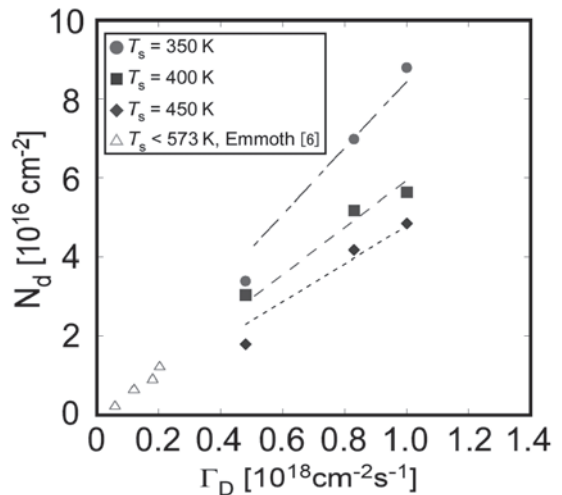


図7 動的重水素吸蔵量の重水素イオン粒子束依存性。

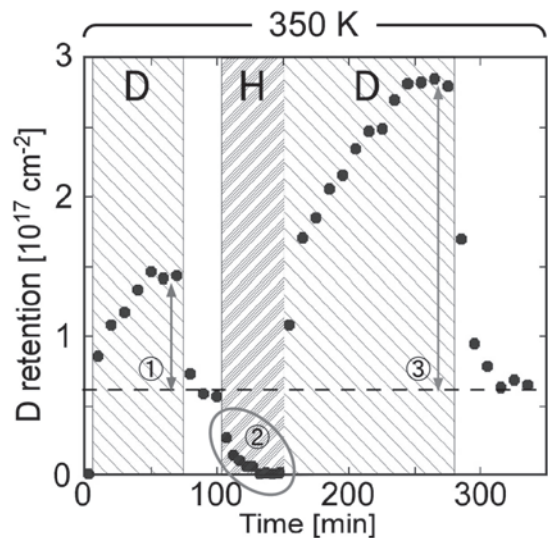


図8 重水素プラズマ、軽水素プラズマ照射による試料中の重水素吸蔵量の時間変化。

ラズマ照射を停止し、静的吸蔵のみにしてから軽水素プラズマを照射した。

軽水素プラズマを照射すると重水素吸蔵量が急激に減少することを確認した。また、図の①と③との比較から、軽水素プラズマ照射後、重水素プラズマを再度照射すると、軽水素プラズマ照射前と比べて照射中の重水素吸蔵量が増加した。この現象の詳細な原因は未解明であるが、静的吸蔵量は変化せず、動的吸蔵量のみが変化していることから、軽水素粒子束が試料に何らかの影響を与え、試料における重水素の拡散係数もしくは再結合係数が変化した可能性が考えられる。

この実験を異なる二つの粒子束 ($2.1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, $1.2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) で行うと共に、比較のために電子加熱による重水素吸蔵量の減少を計測した。図9は各水素プラズマ粒子束を照射した際の重水素吸蔵量の減少率を示す。図9から、軽水素プラズマ照射によって重水素吸蔵量は指数的に減少しており、粒子束が大きいほどより急激に減少していることがわかる。このことから、材料中のトリチウムを除去するにはより高粒子束で水素同位体プラズマを照射することが効果的であると考えられる。

2.5.5 まとめ

本節では、重水素プラズマの動的リテンションが計測可能な高熱流プラズマ照射・イオンビーム解析複合装置 Plasma Surface Dynamics with Ion Beam Analysis (PS-DIBA) の概要と最近の研究成果を紹介した。本装置を用いることにより、今まで不可能であったダイバータ領域での水素同位体動的吸蔵現象について実験的に検証することが可能となった。プラズマ照射環境下におけるプラズマ-壁相互作用の理解は、核融合発電実現に向けて避けることのできない課題であり、本装置は、今後のプラズマ-壁相互作用研究を大きく進展させようと考えている。

謝辞

PS-DIBA 装置の製作は、核融合科学研究所 LHD 計画共

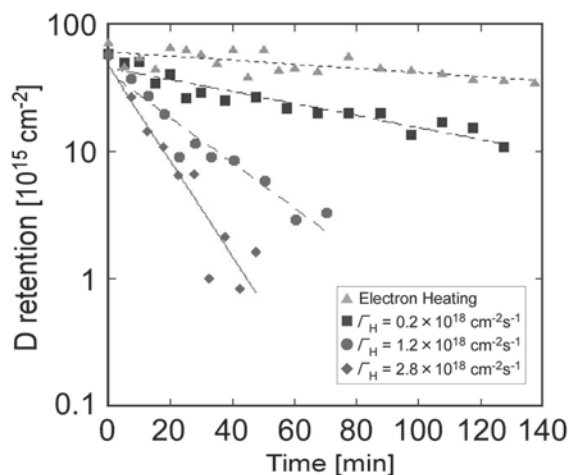


図9 各軽水素イオン照射量に対する重水素吸蔵量の時間変化。

同研究 (NIFS13KOBFO26, NIFS11KLEF003) の支援により行われた。また、本研究成果の一部は、科学研究費補助金 (萌芽研究 (No.23656573)) の支援を受けた。また、装置の設計・開発において、核融合科学研究所 相良明男教授、時谷政行助教、さらに名古屋大学 高木誠技術補佐員から多大なる支援をいただきました。心から感謝いたします。さらに、名古屋大学大学院エネルギー理工学専攻の山際正人氏ならびに中村祐貴氏に、本研究遂行にあたり多大なご助力を頂きました。また、本節の作成について山際氏の博士論文 (名古屋大学)、中村氏の修士論文 (名古屋大学) を参考にさせていただきました。あわせて感謝申し上げます。

参考文献

- [1] G.M. Wright *et al.*, J. Nucl. Mater. **363-365**, 977 (2007).
- [2] M. Langhoff *et al.*, J. Nucl. Mater. **245**, 60 (1997).
- [3] B. Emmoth *et al.*, J. Nucl. Mater. **241-243**, 1022 (1997).
- [4] I. Takagi *et al.*, J. Nucl. Mater. **386-38**, 682 (2009).
- [5] M. Yamagiwa *et al.*, Phys. Scr. T145, 014032 (2011).
- [6] Y. Nakamura *et al.*, J. Nucl. Mater. **438**, S1036 (2013).