

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 19 日現在

機関番号：63902

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2011～2013

課題番号：23246165

研究課題名(和文) プラズマ中のタングステンイオン不純物挙動研究への原子過程からのアプローチ

研究課題名(英文) Approach based on atomic processes to study tungsten impurity behavior in plasma

研究代表者

村上 泉 (MURAKAMI, Izumi)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・教授

研究者番号：30290919

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 38,900,000円、(間接経費) 11,670,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、国際熱核融合実験炉や将来の核融合炉におけるプラズマ対向材料候補のタングステンのプラズマ中での挙動を分光計測手法で調べるため、原子分光モデルの構築とモデルの基礎である原子データの理論及び実験による生産と検証を行った。LHDプラズマで計測したタングステンスペクトルを解析し分光モデルで再現できた。また、スパッタリング実験でタングステン励起原子の運動量を計測し、プラズマへの放出過程を調べた。これにより、タングステンの発生から輸送までの総合的な挙動の理解とその制御へつなげる成果を得た。

研究成果の概要(英文)：Tungsten is a candidate of plasma-facing material for ITER and future fusion reactors and we need to study tungsten behavior in plasmas by spectroscopy. We produced and validated basic atomic data of tungsten theoretically and experimentally, and constructed a tungsten spectroscopic model to reproduce tungsten spectra measured in LHD. We also measured momentum of excited tungsten atom sputtered from a tungsten target to examine ejecting processes of tungsten into plasma. These studies can extend to understand the tungsten behavior from production to transport in plasmas to find out a control method in plasmas.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・核融合学

キーワード：炉心プラズマ 不純物挙動 プラズマ・核融合 原子・分子物理 分光計測 タングステン プラズマ
原子過程

1. 研究開始当初の背景

将来の代替エネルギー源としての核融合実現にむけて、熱負荷に強く、損傷・損耗の少ないプラズマ対向材料としてタングステンが有望視されているが、プラズマ中に水素以外の不純物が存在するとタングステンのスパッタ収率は増大してプラズマ中へ放出されてしまう(Thoma et al. 1997)。不純物としてプラズマ中心部に蓄積したタングステンは大きな放射損失量によりプラズマを冷却し、核融合反応効率の低下を招くため、プラズマ中心へ蓄積しないような制御が必要である。すでに、ドイツの ASDEX Upgrade トカマク装置や日本原子力研究開発機構の JT-60U ではプラズマ中心へのタングステンの蓄積が報告されている (Neu et al. 2005, Dux et al. 2009, Nakano et al. 2009)。

核融合科学研究所の大型ヘリカル装置 (LHD) では、タングステンペレット(またはトレーサー内蔵ペレット TESPEL)を入射して極端紫外 (EUV) 分光計測を行い、 W^{21+} ~ W^{37+} イオンによると考えられるスペクトルを得た。しかし、プラズマの状態による違いなどの詳細な検討を行なうだけのデータはそろっていなかった。

LHD では、イオン内部輸送障壁が起こると、不純物ホールが形成され、軽元素不純物は中心より外側へ掃き出されていることが、荷電交換分光計測から明らかにされたが (Ida et al. 2009, Yoshinuma et al. 2010)、タングステンのような重元素の挙動はわかっていない。タングステンは、プラズマ中では広いイオン価数分布が予想されるため、イオン密度計測に荷電交換分光は適当な手段とはいえない。タングステンの不純物挙動を調べるための定量的な分光計測法が必要であり、そのためには、分光モデルと詳細かつ精度の高い原子データが必須である。

2. 研究の目的

タングステンのダイバータ板からのスパッタリングによる発生からプラズマ中の挙動までを原子過程の観点から明らかにするため、(1)イオンビームを用いたスパッタリングの詳細実験を行い、タングステンのインフラックス及び運動量の計測によるプラズマへの放出量を評価し、(2)分光計測及び分光撮像を組み合わせることでタングステンイオン分布を計測して挙動を調べるため、原子過程を考慮した分光モデルを精度の高い原子データによって構築し、LHD プラズマでの計測結果を解析することによりタングステンイオン分布を定量的に求める。これらを用い、ヘリカル型プラズマでのプラズマの状態とタングステンの挙動と蓄積に関する関係を定量化し、不純物制御に対する指針を明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

本研究の目的を達成するため、テーマごと

にグループを組み、課題に取り組んだ。

グループ 1 は、実験および理論で原子データの生成を担当し、電子ビームイオントラップ装置 (EBIT) や電子サイクロトロン共鳴イオン源 (ECR) を用いて選択的にタングステンイオンを生成して EUV および可視分光計測を行い、分光基礎データを取得した。また、原子構造や原子過程の原子データを理論計算により求めた。

グループ 2 は、タングステン標的にイオンビームを照射してスパッタされた励起原子からの可視発光線を計測し、運動量やインフラックスの評価を担当した。

グループ 3 は、原子データを整備してイオン価数分布計算や分光解析に使える衝突輻射モデルの構築を担当した。

グループ 4 は、LHD を使ったプラズマ分光計測を行い、様々なプラズマ状態に対する分光データの整備を担当した。

グループ 5 はタングステンイオンの空間発光分布を計測するための装置の開発及び計測を担当した。

グループ 6 は、LHD の様々な計測データを利用してタングステンの輸送解析を行い、プラズマ中のタングステン原子・イオンの輸送過程、蓄積量とプラズマの状態との関係を明らかにすることを目指した。

4. 研究成果

(1) EBIT 分光実験

小型 EBIT 装置 (CoBIT) を用い、広範囲な電離状態のタングステン多価イオンを生成し、その放射過程の波長計測を行った。CoBIT は電子エネルギーを変化させることで生成される多価イオンの価数を制御でき、100eV から 2keV 程度まで変化させることで、5価~35価のタングステンイオンの発光スペクトルを得ることができた。

極端紫外~軟 X 線スペクトルは、電子エネルギーを 540eV から 1370eV まで変化させて測定した。CoBIT の電子エネルギーが高くなるに従い、発光線が短波長側にシフトする結果を得た。これは、多価イオンの価数増加によりエネルギー準位間隔が次第に大きく

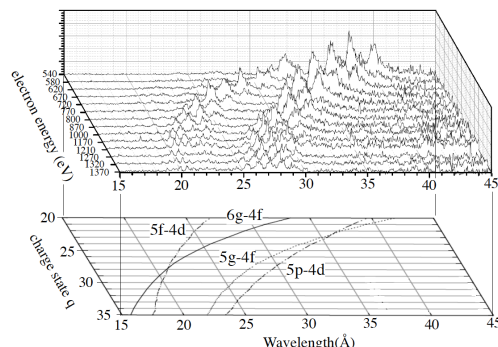


図 1. CoBIT で電子ビームエネルギーを変えて計測したタングステン EUV スペクトル (上図) と理論計算による 5g-4f 遷移などの発光線の波長の価数依存性 (下図)。

なっていくことに起因している。衝突輻射モデルの計算と比較し、各ピーク群の価数と遷移を同定することに成功した(Sakaue et al. 2012)。

可視域発光線の計測も行い、電子エネルギー225-940eVの範囲で計測し、8 価から 28 価の未同定ラインを 100 以上同定した (Komatsu et al. 2012)。

(2) 荷電交換実験

ECR イオン源を使い低価数タングステニオンと酸素等ガスターゲットとの衝突による荷電交換過程により、価数の明らかな未同定ラインの分光計測を試みた。W¹⁸⁺イオンと酸素分子との荷電交換反応による EUV スペクトルを計測し、W¹⁷⁺イオンによる波長 15nm 付近に 1nm 程度幅のブロードな発光を計測した。イオン強度が弱く S/N は十分ではないが、発光スペクトルを得ることができた。今後、再現実験や価数を変化させた実験を系統的に行う必要がある。

(3) 原子構造、磁気双極子遷移の理論計算

CoBIT 装置により計測された可視域発光線を同定するため、多配置ディラック-フォック法-相対論的配置換相互作用法である GRASP コードを用いて、タングステン多価イオンの原子構造、微細構造のエネルギーレベルと輻射遷移確率を高精度で計算し、発光線の同定を行った。389nm の発光線は、W²⁶⁺基底状態の微細構造準位間の磁気双極子(M1)遷移であることが分かった(Ding et al. 2011; Ding et al. 2012)。

(4) タングステン表面からスパッタされた励起原子の可視分光

重イオンをタングステン標的に入射し、スパッタされたタングステン励起原子の発光線を可視分光計測し、発光強度と表面からの垂直方向の距離との関係を調べ、垂直方向の運動量を計測した。その結果、垂直方向の速度は入射イオンのエネルギーにはよらず、発光線の上準位からの電離エネルギーとタングステンの仕事関数との差 ΔU に依存している結果を得た (図 2)。この差が小さいと励起原子の再イオン化が起こりやすく、結果とし

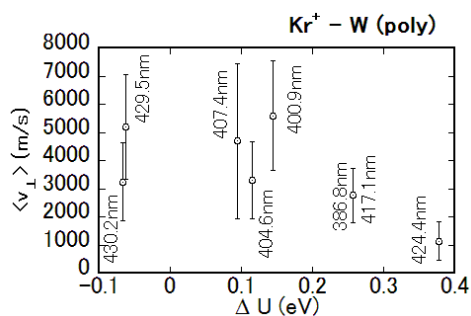


図 2 各ピークから算出された平均速度と W の仕事関数とその遷移の上準位からのイオン化エネルギーとの差 ΔU の関係。

て速度の速い原子のみが生き残って観測され、平均速度が高く見積もられると考えられる (Motohashi et al. 2012)。

(5) プラズマ EUV 分光計測

LHD で生成される水素プラズマに、ペレット入射装置を用いてタングステンを導入し、EUV 領域の分光計測を実施した。タングステンを導入すると、プラズマの電子温度は 3 keV 程度までとなり、タングステニオンの電離エネルギーから 45 価の銅様イオン付近までの価数のタングステニオンからの発光が期待される。

EUV 領域の 3 nm 付近、5 nm 付近および 18 nm 付近のタングステンのスペクトルを計測した。このうち 5 nm 付近の発光が最も強い。図 3 に示すように、電子温度が高い場合は、離散的なスペクトルが支配的であるのに対し、電子温度が下がると、一見連続的なバンド構造(UTA) が支配的となる。これらは、主量子数 $n=4-4$ 遷移による発光と同定できた。

短波長の 1.5-3.5nm 領域では、CoBIT で発見した $n=4-5$ および $n=4-6$ 遷移によるピーク列が観測された。理論解析と比較し、各ピークの価数が同定できた。18nm 付近では、 $n=5-5$ 遷移による UTA が観測された(Suzuki et al. 2011)。

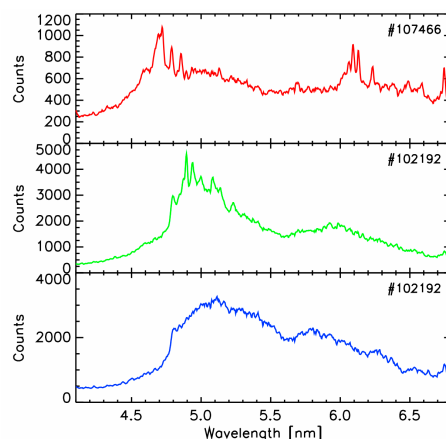


図 3 LHD で計測した EUV スペクトル。上から順に、中心電子温度は 3.5keV, 1.1keV, 0.5keV の場合。

(6) LHD での M1 遷移の可視分光計測

LHD でタングステンペレットを入射した際に、可視分光計測を行い、CoBIT で発見した W²⁶⁺イオンの M1 遷移 389.4nm の観測に成功し、プラズマ中心付近で発光していることを空間分布計測により発見した (図 4)。同時に、W²⁴⁺イオンと考えられる発光線も計測した (Kato et al., 2013)。

(7) LHD での分光空間分布計測

W⁴⁴⁺イオンの 6.09nm 発光線を使い、空間分解 EUV 分光器を用いてこの発光線の径方向分布を観測した。分光器の絶対感度は制動

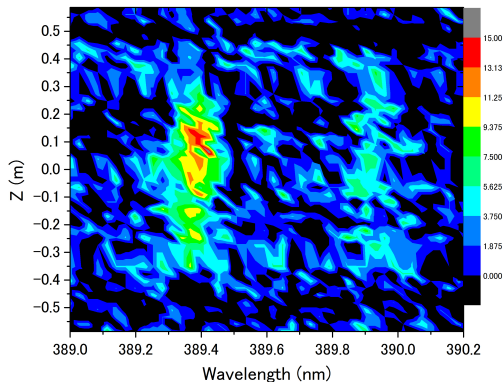


図 4 LHD での可視分光計測で計測した W^{26+} イオン 389.4nm 発光線と W^{24+} イオンと考えられる発光線 (389.9nm) の空間 Z 方向の発光分布。横軸は波長、縦軸は空間 Z 方向。

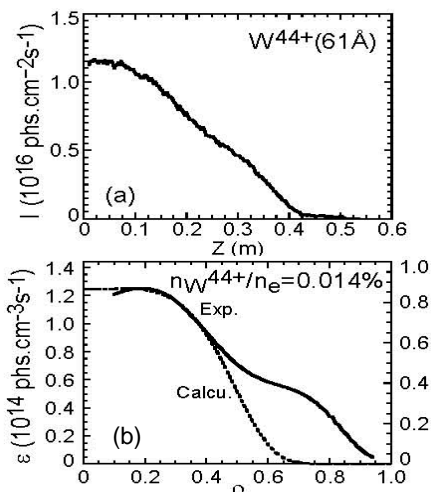


図 5 (a) W^{44+} イオンの 6.09nm の径方向発光強度分布、(b)変換後の W^{44+} 局所発光強度分布。実線は実験値、点線は理論計算値。

放射連続光分布を利用して精度よく求めた。計測した強度分布はプラズマ中心にピークを持ち、 W^{44+} イオンがプラズマ中心部に局在していることを示す (図 5a)。同一磁気面上での発光強度が均一であるとして逆変換により局所発光強度分布を求めた。1次元不純物輸送コードに、LHD における不純物イオンの拡散係数と対流速度 ($D = 0.2\text{m}^2/\text{s}$ および $V = -1\text{m/s}$) を用いてイオン密度分布を計算した (図 5b)。計算値と実験値との比較から W^{44+} のプラズマ中でのイオン密度は電子密度の 0.014 % と推測できた。すなわち $n_e = 4 \times 10^{19}\text{m}^{-3}$ の電子密度に対して W^{44+} イオン密度 $n(W^{44+})$ は $5.6 \times 10^{15}\text{m}^{-3}$ となる。これをもとにプラズマ中に混入したタングステンイオン全量を求めると $3.5 \times 10^{16}\text{m}^{-3}$ ($n_w/n_e = 8.8 \times 10^{-4}$) と見積もることができた (Morita et al. 2013)。

(8) 大規模衝突輻射モデルによるタングステンの価数、放射損失の評価

HULLAC コードでエネルギー準位、電子

衝突や輻射による電離、励起のレートを計算して、大規模な衝突輻射モデルを構築し、核融合プラズマに相当する条件において、プラズマの価数や輻射損失の計算を行った。モデル構築にあたり、エネルギー準位を、ひとつのコア状態に一電子が加わった状態ごとにグループ化し、グループの数を変えて価数や輻射損失の収束計算を行った。ひとつのイオン状態毎に 30~50 のグループを考慮することで、ほぼ結果の収束を得た。このような複雑な計算を行うためには、電子配置を表す文字列をコンピュータアルゴリズムで生成し、それを用いて原子データの計算と衝突輻射モデルの計算を行うことが、多数の原子状態を落ちや重なりなしに生成し、計算の再現性を高めるために有効であることを示した (Sasaki and Murakami 2013)。

(9) FAC による衝突輻射モデルと解析

LHD で計測した EUV スペクトルの解析に、FAC 原子コードを用いて構築した衝突輻射モデルを適用して解析を行った。電子温度 3keV のプラズマの 4-7nm の EUV スペクトルに対し、 $W^{45+} \sim W^{39+}$ の孤立した発光線のほか、連続光的な発光は W^{14+} までの広い価数分布を仮定する必要があることを見出した。

(10) 詳細衝突輻射モデルと解析

分光解析を行うために、原子構造を詳細に

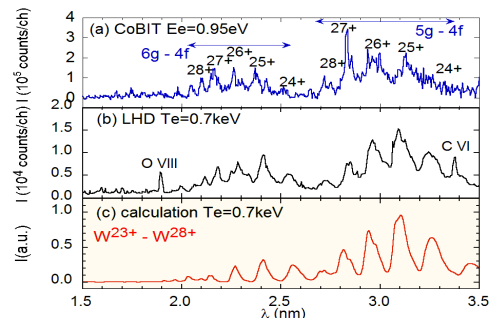


図 6 (a) CoBIT および (b) LHD で計測した EUV スペクトルと、(c) LHD のスペクトルを再現した理論計算。

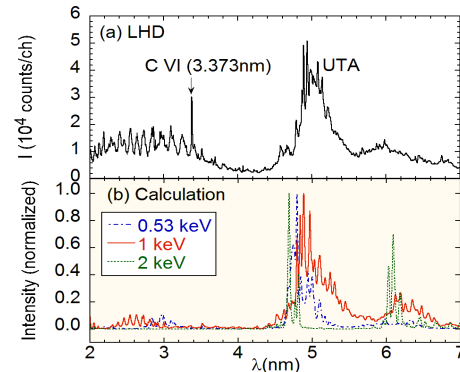


図 7 (a) LHD で計測した EUV スペクトルと、(b) 詳細衝突輻射モデルで計算したスペクトル。電子温度 1keV の電離平衡分布で計算したスペクトルが計測された特徴を良く再現できた。

考慮し、HULLAC コードで原子データを計算して衝突輻射モデルを構築した。各価数に対し最大 2 万の微細構造レベルを組み込んだ。このモデルを使い、CoBIT や LHD で計測したスペクトルの解析を行った。図 6 は 1.5-3.5nm のピーク列の CoBIT、LHD での計測、LHD を再現したモデル計算を示す。

また、大規模衝突輻射モデルで計算した電離平衡時の価数分布を用いて、2-7nm の EUV スペクトルを計算し、LHD の計測と比較した。図 7 に示すように、5nm と 6nm 付近に見られる二山のピークを再現することができた。特に、6nm のピークは他の原子モデルでは再現できていない。本研究により、このピークは $W^{29+} \sim W^{34+}$ イオンの $4p^6 4d^n - 4p^5 4d^{n+1}$ といった内殻励起状態からの $4p-4d$ 遷移でおこることが分かった。

今後、モデルを使って分光解析を更に進め、プラズマ中のタングステン挙動と制御に関して研究を進めていく。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 41 件)

- ① 村上泉, 「研究最前線 高温プラズマにおける高 Z 多価イオンの分光と原子構造に関する研究最前線 9. タングステンイオンのモデリング」, 査読無、プラズマ・核融合学会誌、89 巻第 5 号、2013、314-317.
- ② N. Nakamura, X.-B. Ding, C.-Z. Dong, H. Hara, D. Kato, F. Koike, I. Murakami, T. Nakano, H. Ohashi, H.A. Sakaue, H. Watanabe, T. Watanabe and N. Yamamoto, “EBIT spectroscopy of highly charged heavy ions relevant to hot plasmas.”, 査読有、*AIP Conference Proceedings*, 1545, 2013, 64-71. DOI: 10.1063/1.4815841
- ③ A. Sasaki and I. Murakami, “Algorithm-based modelling of fractional ion abundance and rates of ionization and recombination for tungsten plasmas”, 査読有、*J. Phys. B* At. Mol. Opt. Phys.* 46, 2013, 175701 (11pp). DOI: 10.1088/0953-4075/46/17/175701
- ④ D Kato, M Goto, S Morita, I Murakami, H A Sakaue, X B Ding, S Sudo, C Suzuki, N Tamura, N Nakamura, H Watanabe and F Koike, “Observation of visible forbidden lines from highly charged tungsten ions at the large helical device”, 査読有、*Physica Scripta*, T156, 014081 (2013) (3pp). DOI: 10.1088/0031-8949/2013/T156/014081
- ⑤ K. Motohashi, K. Nogami, Y. Sakai, H. A. Sakaue, D. Kato, and T. Kenmotsu, “Mean velocity of $5d^5 6p$ excited tungsten atoms sputtered by Kr^+ ion bombardment”, 査読有、*Nuclear*

Instruments and Methods in Physics Research B, 2012, 59-62. DOI: 10.1016/j.nimb.2012.04.016

- ⑥ H. A. Sakaue, D. Kato, X. B. Ding, I. Murakami, F. Koike, T. Nakano, H. Ohashi, J. Yatsurugi and N. Nakamura, “Spectroscopy of Highly Charged Tungsten Ions with Electron Beam Ion Traps”, 査読有、*AIP Conference Proceedings*, 1438, 2012, 91. DOI: 10.1063/1.4707861
- ⑦ X.-B. Ding, I. Murakami, D. Kato, H. A. Sakaue, F. Koike and C.-Z. Dong; “Collisional-Radiative Modeling of W^{27+} ”, 査読有、*Plasma and Fusion Res.* 7, 2012, 2403128. DOI: 10.1585/pfr.7.2403128
- ⑧ A. Komatsu, J. Sakoda, M. Minoshima, H. Sakaue, X. Ding, D. Kato, I. Murakami, F. Koike, N. Nakamura, “Visible Transitions in Highly Charged Tungsten Ions: 365 – 475 nm”, 査読有、*Plasma and Fusion Research*, 7, 2012, 1201158. DOI: 10.1585/pfr.7.1201158
- ⑨ X.-B. Ding, F. Koike, I. Murakami, D. Kato, H. A. Sakaue, C.-Z. Dong, N. Nakamura, A. Komatsu and J. Sakoda, “*Ab initio* multi-configuration Dirac-Fock calculation of M1 visible transitions among the ground state multiplets of the W^{26+} ion”, 査読有、*Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical. Physics*, 44, 2011, 145004 (6pp). DOI: 10.1088/0953-4075/44/14/145004
- ⑩ C Suzuki, C S Harte, D Kilbane, T Kato, H A Sakaue, I Murakami, D Kato, K Sato, N Tamura, S Sudo, M Goto, R D’Arcy, E Sokell and G O’Sullivan, “Interpretation of spectral emission in the 20 nm region from tungsten ions observed in fusion device plasmas”, 査読有、*Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical. Physics*, 44, 2011, 175004 (7pp). DOI: 10.1088/0953-4075/44/17/175004

[学会発表] (計 61 件)

- ① 村上泉、加藤太治、坂上裕之、鈴木千尋、森田繁、後藤基志、佐々木明、山本則正、小池文博、LHD 実験グループ、“タングステン多価イオンの衝突輻射モデル構築と極端紫外スペクトル解析”、日本物理学会第 69 回年次大会、2014 年 3 月 27-30 日、東海大学 (平塚市)
- ② 加藤太治、坂上裕之、後藤基志、森田繁、村上泉、鈴木千尋、田村直樹、須藤滋、中村信行、小池文博、X. Ding、佐々木明、“LHD でのタングステン多価イオン M1 遷移の観測と電離/再結合係数データ評価 II”、日本物理学会第 69 回年会、2014 年 3 月 27-30 日、東海大学 (平塚市)
- ③ 酒井康弘、加藤太治、剣持貴弘、坂上裕之、古屋謙治、本橋健次、“イオンビーム照射によりタングステン表面から後方散

乱する励起原子の発光分光”、日本物理学会 2013 年秋季大会、2013 年 9 月 25-28 日、徳島大学 (徳島)

- ④ C. Suzuki, F. Koike, I. Murakami, N. Tamura, S. Sudo, H. A. Sakaue, N. Nakamura, S. Morita, M. Goto, D. Kato, T. Nakano, T. Higashiguchi, C. S. Harte, G. O’Sullivan, “Observations of EUV spectra from tungsten and lanthanide ions in LHD”, 11th International Colloquium on Atomic Spectra and Oscillator Strengths for Astrophysical and Laboratory Plasmas, 5-9 August 2013, Mons, Bergium. (招待講演)
- ⑤ I. Murakami, C. Dong, H. Hara, D. Kato, M. Kato, F. Koike, S. Morita, N. Nakamura, A. Sasaki, H. A. Sakaue, S. Sudo, C. Suzuki, N. Tamura, T. Watanabe, N. Yamamoto; “Validation of Fe and W ion spectroscopic models for solar and fusion plasmas and atomic and molecular database at NIFS”, Japan-Australia Commemorative Workshop, (June 23 – 25, 2013, Cambera, Australia) (招待講演)
- ⑥ 仲野友英, 村上泉, 鈴木千尋, “Analysis of spectra from multiply ionized W ions by atomic structure code FAC”, プラズマ・核融合学会第 29 回年会, 2012 年 11 月 30 日
- ⑦ N. Nakamura et al., “EBIT spectroscopy of highly charged heavy ions relevant to hot plasma”, 8th International Conference on Atomic and Molecular Data and Their Applications (ICAMDATA2012), (Sep. 30 - Oct. 4, 2012, Gaithersburg, USA) (招待講演)
- ⑧ 村上泉, 「タングステンイオンのモデリング」、日本物理学会第 67 回年次大会、2012 年 3 月 25 日、関西学院大学
- ⑨ 本橋健次, 加藤太治, 剣持貴弘, 酒井康弘, 坂上裕之, 野上慶祐, 古屋謙治, 「タングステン表面でのスパッタ原子の発光分光」、応用物理学会 (山形大学) 2011 年 8 月 29~9 月 2 日。
- ⑩ H. A. Sakaue et al., “Spectroscopy of Highly Charged Tungsten Ions with Electron Beam Ion Traps”, The 17th International Conference on Atomic Processes in Plasmas, Queen’s University Belfast, 19-22 July 2011 (招待講演)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

村上 泉 (Murakami, Izumi)
核融合科学研究所・ヘリカル研究部・教授
研究者番号：30290919

(2) 研究分担者

加藤 太治 (KATO, Daiji)
核融合科学研究所・ヘリカル研究部・准教授
研究者番号：60370136

後藤 基志 (GOTO, Motoshi)
核融合科学研究所・ヘリカル研究部・准教授
研究者番号：00290916

坂上 裕之 (SAKAUE, Hiroyuki A.)
核融合科学研究所・ヘリカル研究部・助教
研究者番号：40250112

鈴木 千尋 (SUZUKI, Chihiro)
核融合科学研究所・ヘリカル研究部・助教
研究者番号：30321615

中村 信行 (NAKAMURA, Nobuyuki)
電気通信大学・レーザー新世代研究センター・准教授
研究者番号：50361837

田沼 肇 (TANUMA, Hajime)
首都大学東京・理工学研究科・教授
研究者番号：30244411

佐々木 明 (SASAKI, Akira)
日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用部門・研究副主幹
研究者番号：10215709

小池 文博 (KOIKE, Fumihiro)
上智大学・理工学部・客員教授
研究者番号：90095505
(平成 25 年度より連携研究者)

仲野 友英 (NAKANO, Tomohide)
日本原子力研究開発機構・核融合研究開発部門・研究副主幹
研究者番号：50354593
(平成 23 年と 25 年度は連携研究者)

(3) 連携研究者

酒井 康弘 (SAKAI, Yasuhiro)
東邦大学・理学部・教授
研究者番号：90235127

本橋 健次 (MOTOHASHI, Kenji)
東洋大学・理工学部・准教授
研究者番号：50251583

渡邊 鉄哉 (WATANABE, Tetsuya)
国立天文台・ひのでプロジェクト・教授
研究者番号：60134631

山本 則正 (YAMAMOTO, Norimasa)
中部大学・藤原洋記念超電導・持続可能エネルギー研究センター・研究員
研究者番号：40350326

舟場 久芳 (FUNABA, Hisamichi)
核融合科学研究所・ヘリカル研究部・助教
研究者番号：40300727