

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 23 日現在

機関番号：13101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26400529

研究課題名(和文) 回転結合による電荷交換反応断面積の水素同位体効果

研究課題名(英文) Isotope effect with rotational coupling on charge exchange cross sections

研究代表者

副島 浩一 (Soejima, Koichi)

新潟大学・自然科学系・教授

研究者番号：50283007

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：放射損失量の大きい重金属多価イオンの核融合炉内主プラズマへの侵入防止法を開発するための輸送シミュレーションの精度向上のために原子分子基礎データとしてタングステン多価イオンと水素、重水素、ヘリウム原子との衝突における電荷交換反応断面積の絶対値の測定を試み、ヘリウム標的に関しては衝突エネルギー500eV～2keVで1電子交換および2電子交換断面積の絶対値測定に成功した。また、標的の中性子数の違いが電荷交換反応ダイナミクスに与える影響、すなわち同位体効果を実験的に観測できる多価イオンと水素および重水素原子衝突実験装置の開発をおこなった。

研究成果の概要(英文)：We try to measure absolute cross sections of charge exchange processes for tungsten multiply charged ions with hydrogen, deuterium and helium atoms, which data are useful for a simulation revealed transfer processes into main plasma of heavy elements. In addition, we have developed an apparatus to measure relative cross sections for hydrogen and deuterium atom targets. We have plan to observe an isotope effect on charge exchange processes using the apparatus.

研究分野：原子分子物理学

キーワード：タングステン多価イオン 電荷交換反応 同位体効果 核融合開発

1. 研究開始当初の背景

(1) 国際熱核融合実験炉 ITER 開発

2017 年からフランスで建設が開始される熱核融合実験炉 ITER では、不純物プラズマを排出する領域であるダイバータや主プラズマが閉じ込められるメイン炉の炉壁材料としてタングステン W が用いられる予定である。高質量元素である W 多価イオンは、内部エネルギーを光放出でクエンチングさせるため、プラズマ温度を著しく下げる放射損失量が大きい不純物元素として知られている。そのため、ITER 開発において、プラズマ中心へ W が輸送されないような炉壁周辺および主プラズマの制御法の開発が急務となっている。特に自己点火条件を目指す ITER ではプラズマ温度も高温になることから、電離度が進んだ W 多価イオンの影響が顕著に表れることが予想される。このような炉壁周辺および主プラズマでの W 多価イオンの挙動解明には、実験的には多価イオンからの発光線強度の空間分布計測をおこなうことが重要である。一方、種々の基礎的原子データを使った不純物多価イオンの輸送過程の精度の高いシミュレーションも必要になる。比較的低温の周辺プラズマでのイオンの発光は、電子衝突励起過程に加え、中性粒子との荷電交換反応による励起過程の寄与が重要であることが知られており、基礎的原子データとして不純物多価イオンと中性原子との電荷交換反応断面積の絶対値が必要になる。

(2) 電荷交換反応における同位体効果

数程度の核間距離で生じる電荷交換反応に、 $10^{-4}$  小さな原子核内の構造、中性子数の違い、が関与するとは最近まで誰も予想していなかった。しかし、Stolterfohtら【Phys. Rev. Lett. **99**, 103201, (2007)】が、半古典近似計算により  $1\text{keV}/\text{amu}$  以下の低エネルギー領域で、 $\text{He}^{2+}$ -H, D, T 系の電荷交換反応に強い同位体効果が現れること示した。衝突エネルギーが数  $10 \sim$  数  $100 \text{ eV}/\text{amu}$  においては H 標的に比べて D, T 標的の電荷交換反応断面積が  $2 \sim 3$  桁も大きくなっている。多価イオンの電荷交換反応に現れる同位体効果を理解することは、純粋な原子分子物理学の動力学的な興味以外にも、実用面で非常に重要である。特に重水素 - 三重水素熱核融合反応で自己点火条件を目指している ITER 開発においては、H 標的に対して D, T 標的の電荷交換断面積が桁違いに大きくなるのが事実であれば、不純物多価イオンによる放射損失の影響が、限られたエネルギー領域ではあるが、桁違いに大きくなることを意味し、ITER 開発に大きな障害になる。さらに、理論的に予想されている同位体効果発現のメカニズムが、多価イオン - 原子系における遠心力効果、いわゆる回転結合の寄与、が原因であるなら、換算質量が大きくなる重元素になるほど同位体効果は強く現れることになり、W 多価イオンが不純物として主プラズマに混入する可能性のある ITER にとってはさらに深刻な

問題となる可能性がある。このように回転結合の効果が原因で大きな同位体効果が生まれるという理論予測がなされたが、現時点ではまだ実験的な証明はなされていない。衝突径数が小さい軌道でのみ大きな遷移確率を有する回転結合が、電荷交換反応断面積に大きな寄与を与えることに疑問を呈している研究者も多い。この問題に決着をつけるためには、早急に実験的な検証が必要である。

2. 研究の目的

(1) 重元素多価イオンの電荷交換反応断面積データの収集

炉内プラズマ中での不純物多価イオンの挙動を定量的に解析するプラズマ拡散モデル構築のために重要な基礎原子データの収集をおこなう。従来型の衝突箱をつかう電荷交換反応断面積の絶対値測定装置をつかって、タングステン多価イオンを含む重元素多価イオンの絶対電荷交換反応断面積の衝突エネルギー依存性を測定することが目的である。それと同時に、ビーム交差法をつかう水素原子標的衝突実験装置で得られる相対断面積の絶対値化に必要な絶対断面積収集もおこなう。

(2) 水素原子標的衝突実験用装置の開発

水素原子を標的にした衝突実験、特に低エネルギー領域での実験をおこなうため、熱解離型水素原子源とイオンビームガイド法を組み合わせた実験装置の開発をおこなう。この装置を使用することで、多価イオン - 水素原子系の電荷交換反応断面積の絶対値測定を  $0.1\text{eV} \sim 10\text{keV}$  という 5 ケタにわたる広い衝突エネルギー領域で精度よくおこなうことを目指す。

3. 研究の方法

本研究は、主に以下の 3 つの研究方法によって遂行した。

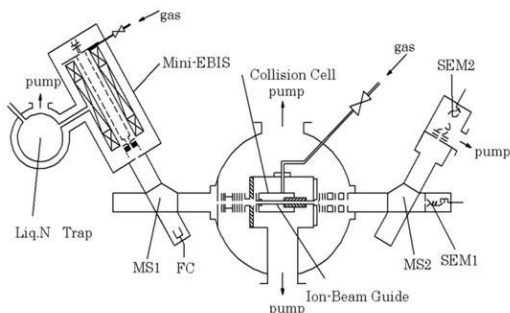
(1) W 多価イオンビームの安定生成

多価イオンの生成には EBIS 型多価イオン源を使用した。この多価イオン源は大学の実験室規模でも定常的に使用できるように通常の多価イオン源より大幅にコンパクトな作りになっているが、Ar までの低質量元素であれば完全電離することができる性能を有している。この多価イオン源に金属錯体である  $\text{W}(\text{CO})_6$  を導入することで W 多価イオンの生成を試みた。 $\text{W}(\text{CO})_6$  は室温程度でも数 Pa の蒸気圧を持つため、そのままイオン源内に導入が可能である利点を持つ。また、ECR 型多価イオン源では  $\text{W}(\text{CO})_6$  を試料ガスとして利用し 20 価前後の W 多価イオンの安定生成に成功している。そのため、EBIS 型多価イオン源でも  $\text{W}(\text{CO})_6$  を導入すればすぐに W 多価イオンが安定生成できると予想した。しかし予想以上に EBIS 型多価イオン源での W 多価イオンの生成は捗らず、電場や磁場を調整することで種々のイオン閉じ込め条件を試したが W 多価イオンの生成には至らなかった。試行錯誤

の末、 $W(CO)_6$ がイオン源内に上手く導入されていないことが判明した。これは $W(CO)_6$ 蒸気圧の強い温度依存性によるものと予想し、イオン源内へのガス導入配管系の温度管理を徹底しておこなった。W多価イオンの質量同定は、質量スペクトル中のW多価イオンの分裂しているピークの強度比が、Wの自然同位体存在比とほぼ一致するか否かを確認することでおこなっている。

### (2) 電荷交換反応絶対値断面積測定

図1に電荷交換反応断面積の測定装置の模式図を示す。この実験装置は(1)で説明した小型のEBIS型多価イオン源とタンデム型質量分析器から構成されている。質量分析器は磁場偏向型質量分析器MS1, MS2の2台を図のようにタンデム型に接続しており、1台目の質量分析器で入射イオンを選択し、2台目の質量分析器で電荷交換反応によって生じた生成イオンの質量分別をおこなうことができる。電荷交換断面積の絶対値は、初期成長法を使って測定した。すなわち、電荷交換反応で生成した生成イオン強度の標的ガス圧依存を実験的に測定し、そのガス圧依存の傾きから断面積の絶対値を決定した。実験室系における入射イオンの衝突エネルギーは、EBIS型多価イオン源のイオン引き出し電圧2.5kV(固定)と衝突箱の中心電位 $V_c$ (可変)との差 $V (=2500-V_c)$ と入射イオンの電価数 $q$ から $q \cdot V$  [eV]となる。



【図1】断面積測定装置概略図

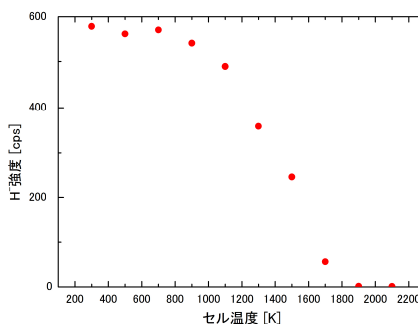
この装置の大きな特徴は、衝突箱に低速イオンビームの発散を防ぐイオンビームガイド法を導入していることである。これは、8本のモリブデン製円柱電極(オクタポール型)に位相が $180^\circ$ 異なる振幅が数百V、周波数が数十MHz程度の高周波を印加することでイオンの持つ空間電荷によるビーム径方向の発散を抑える効果を利用する手法である。これにより、これまでイオン衝突実験が困難であった衝突エネルギー100eV以下の衝突実験が可能になる。

### (3) 相対流量法

低エネルギー領域での水素原子を標的にした衝突実験のためには、(2)で説明した従来の衝突箱を使った断面積測定法では対応できない。そのため、熱解離型水素原子源とイオンビームガイド法を組み合わせたビーム交差法による断面積測定装置を新たに開発した。水素原子を生成するために、熱解離型水素原子源、Tetra社水素クラッカーセ

ルを導入した。この水素原子源は電子衝撃方式でタンゲステン製のノズルセルを最高2200Kまで加熱することできる。水素ガス圧 $10^{-6}$  Pa,セル温度2000 Kの動作条件で、カタログ値によると解離度100%の達成が保証されている。また、同動作条件で電荷交換反応断面積の絶対値測定には十分な $10^{15} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ オーダーの流量が確保できる。水素原子源に付属した熱電対でノズルセルの温度を間接的に測定でき、熱電対測定温度600Kでノズルの最高到達温度2200 Kとなる。この水素クラッカーセルと組み合わせたイオンビームガイドは(2)で性能がされている同じオクタポール型にした。これにより、同位体効果が顕著に表れる衝突エネルギー100eV以下の衝突実験が水素原子標的で可能になる。

ビーム交差法の難点は、ビーム交差領域の標的ガス密度を実験的に決定することが非常に困難な事である。そこで、本研究では、それを回避するために相対流量法を採用した。これは、絶対断面積が既知の衝突系と同一の実験条件下でビーム交差法による相対断面積測定を実行し、既知の絶対断面積を使って、相対断面積を絶対値化する方法である。誤差の見積りの複雑化などの問題はあがるが、すべての衝突系でこの方法による相対断面積の絶対断面積化が基本的には可能である。しかし、水素分子を解離させて水素原子標的を準備する場合には注意が必要である。それは、ビーム交差領域での水素の解離度が必要になる点である。このビーム交差領域での水素解離度の実験的決定のために、次のような二電荷交換反応を利用することにした； $H^+ + H_2$ 、 $H^+ + (H_2)^{2+}$ 。すなわち、水素分子解離度が低くビーム交差領域で水素分子が存在する場合は水素負イオンが生成される、水素負イオン強度と水素分子解離度が反比例することを利用する。図2はこの2電荷交換反応を利用して得られた、キャプラリーセルと水素負イオン強度の相関図である。セル温度が1800K程度になるとほぼ水素負イオン強度がゼロになることから、ビーム交差領域においてもカタログ値同様の水素解離度100%が達成できていることが実験的に確認できた。



【図2】水素負イオン強度の温度依存

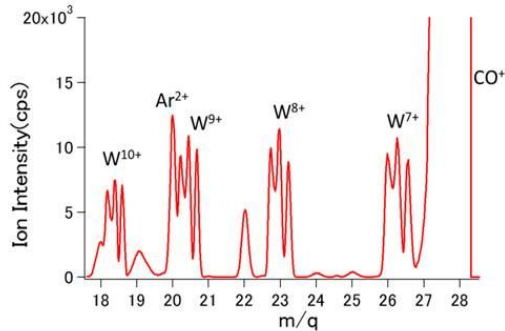
ただし、この方法の難点は、プロトンの二電荷交換反応断面積が非常に小さいために、負イオン強度が小さく、セル温度-負イオン強度相関図の再現性が悪い点である。入射イ

オン強度の減衰を利用する解離度決定などほかの方法も検討しているが今のところ解決していない。

#### 4. 研究成果

##### (1) W 多価イオンの安定生成

EBIS 型多価イオン源への試料ガス導入系の温度管理を徹底することで図3に一部示すように、5価~20価までのW多価イオンの安定生成に成功した。



【図3】W多価イオンの質量スペクトル

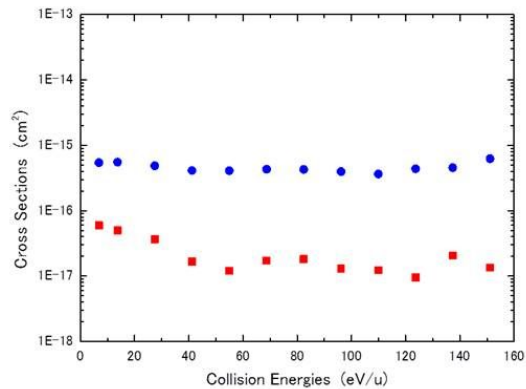
絶対断面積の測定をおこなうには十分なイオン強度を確保できており、試料ガス導入系の温度管理の徹底によりW(CO)<sub>6</sub>によるW多価イオンビーム生成が、電価数によっては強度不足な場合もあるが、可能であることが実験的に確認できた。今後は、よりイオン強度を稼ぐことができる動作条件の探索が課題となる。また、W(CO)<sub>6</sub>によるイオン源構成部品の腐食対策も早急に進める必要がある課題である。

##### (2) Xe<sup>9+</sup>-He 系の絶対断面積測定

1keV以上の衝突エネルギー領域では、多価イオンの電荷交換反応断面積は入射イオンの電価数にのみ依存することが知られている。すなわち、多価イオンの電価数で決まる強いクーロンポテンシャルの相互作用領域は広く、多価イオンの電子構造は電荷交換反応に本質的な寄与をしない。そこで、多価イオンビームの安定生成が実験的に困難でイオン源部品にダメージを与えるタングステンのかわりに、高質量原子で多価イオンの生成が容易なキセノン、Xe、の多価イオンがW多価イオンの代わりに成りうるかの検証を、これまでに測定をおこなったW<sup>8+</sup>-He系の電荷交換反応断面積の衝突エネルギー依存性、測定を行ったエネルギー領域では、絶対断面積値が1電子交換反応で5~6×10<sup>-15</sup> cm<sup>2</sup>、2電子交換反応で1~2×10<sup>-15</sup> cm<sup>2</sup>とほぼ一定で、ともに衝突エネルギー依存性がほとんどない、を指標にして行うこととした。ただし、Xe<sup>8+</sup>は0<sup>+</sup>と質量電荷比が近く、質量スペクトルピークの分離が悪いため、電荷交換反応断面積のエネルギー依存性の測定はXe<sup>9+</sup>を対象にしておこなった。

図4にXe<sup>9+</sup>-He系の電荷交換反応断面積の衝突エネルギー依存性の測定結果を示す。横軸が衝突エネルギーで、実験室系における1核子あたりのエネルギーが単位になってい

る。縦軸が絶対断面積値である。青丸が1電荷交換反応の、赤四角が2電荷交換反応の電荷交換反応断面積である。測定を行ったエネルギー領域では、1、2電荷交換反応断面積ともに衝突エネルギー依存性がほとんどないことがわかる。

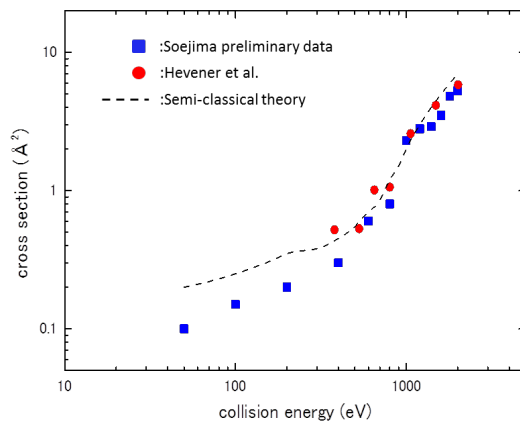


【図4】Xe<sup>9+</sup>-He系電荷交換反応断面積

W<sup>8+</sup>-He系の測定結果と比較すると、絶対断面積値が1電子交換反応では1桁、2電子交換反応では2桁ほど小さな値になることがわかった。この原因の詳細な考察は現在行っている最中であるが、少なくとも、キセノン多価イオンの電荷交換反応断面積の測定結果をそのままタングステン多価イオンの電荷交換反応断面積として使用することは数百 eV/u 程度の低エネルギー領域ではできないことが判明した。

##### (3) 相対流量法をつかった試験的測定

今回新たに開発をおこなった、ビーム交差法をつかった衝突実験装置の性能、特にイオンビームガイドの動作確認、を評価するために、試験的な電荷交換反応断面積の測定をHe<sup>2+</sup>-H系においておこなった。その結果を図5に示す。横軸が実験室系における衝突エネルギー縦軸が断面積値である。今回の試験的な測定結果は青四角で表示されており、赤丸はHevenerらの測定結果である。点線は半古典的複素解析法による計算結果である。



【図5】He<sup>2+</sup>-H系電荷交換反応断面積

我々のデータは断面積の絶対値化をおこなっておらず、Hevenerら【Phys. Rev. A, 71, 042707 (2005)】のデータをつかって絶対値に焼直していることに注意が必要である。今回の測定は試験的なものであるが、400eV 付

近に現れる電荷交換反応断面積の衝突エネルギー依存性の大きな変化の発見など、予期せぬ成果が得られたと共に、開発した装置が設計通りの性能を発揮していることが実験的に確認できた。

#### 5. 主な発表論文等

〔学会発表〕(計 2件)

早川 諒, 副島浩二

「 $W^{9+}$ -He の電荷交換反応断面積」

原子衝突学会第 41 回年会

2016 年 12 月 10 日

富山大学五福キャンパス(富山市)

佐藤駿丞, 副島浩二

「水素負イオン測定による水素解離度の決定」

原子衝突学会第 41 回年会

2016 年 12 月 10 日

富山大学五福キャンパス(富山市)

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

副島 浩一 (SOEJIMA, Kouichi)

新潟大学・自然科学系・教授

研究者番号: 50283007

##### (2) 研究分担者

なし

##### (3) 連携研究者

坂上 裕之 (SAKAUE, Hiroyuki)

核融合科学研究所・助教

研究者番号: 40250112

島倉 紀之 (SHIMAKURA, Noriyuki)

新潟大学・名誉教授

研究者番号: 40111314

##### (4) 研究協力者

早川 諒 (HAYAKAWA, Ryo)

佐藤 駿丞 (SATO, Syunsuke)