

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月15日現在

機関番号：12102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2009～2011

課題番号：21656235

研究課題名（和文） 分光学的手法を用いた動的酸素リテンション実時間計測法の開発

研究課題名（英文） Development of real time measurement of dynamic oxygen retention using spectroscopic method

研究代表者

坂本 瑞樹 (SAKAMOTO MIZUKI)

筑波大学・数理物質系・教授

研究者番号：30235189

研究成果の概要（和文）：酸素透過粒子束の実時間測定システムを製作し、厚さ0.1mmのタングステン試料に重酸素プラズマを照射して、試料表面状態の変化に起因していると考えられる酸素透過フラックスの減少を観測した。また、厚さ0.1mmのタングステン基板に約280nmのイットリウム薄膜と約20nmのパラジウム薄膜を蒸着させた試料を作成し、試料表面への酸素導入に対して光反射率が可逆的に変化することを示した。酸素透過フラックスシステムとの組み合わせにより実時間の動的リテンション計測が可能となることを示すことができた。さらに、結晶粒の伸びの方向が表面に対して垂直のタングステン試料の重酸素吸蔵量は、平行の試料よりも重酸素吸蔵量が2～10倍高いことを明らかにした。これは結晶粒界を通じた実効的拡散係数の違いに起因していると考えられる。

研究成果の概要（英文）：Real-time measurement system of deuterium permeation flux has been built. Using this system, the decrease in the deuterium permeation flux was observed during deuterium plasma irradiation to the tungsten sample with the thickness of 0.1 mm. This seems to be attributed to modification of the surface condition. It is found that optical reflectivity of a tungsten sample with 280 nm yttrium film and 20 nm palladium film was reversibly changed when hydrogen gas was supplied and pumped. Moreover, it was revealed that deuterium retention of a tungsten sample with grains of which elongation direction was perpendicular to the surface was 2~10 times higher than that of parallel elongation. This seems to be attributed to difference in the effective diffusion along the grain boundary.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,900,000	0	1,900,000
2010年度	700,000	0	700,000
2011年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	210,000	3,510,000

研究分野：プラズマ工学

科研費の分科・細目：総合工学・核融合学

キーワード：プラズマ・核融合、酸素、プラズマ・壁相互作用、酸素透過、光学反射率、酸素拡散、タングステン

1. 研究開始当初の背景

長時間定常プラズマや高性能プラズマの

達成のための重要な要素のひとつがプラズマ・壁相互作用であり、特に壁やダイバータ

板からのリサイクリング粒子束の制御が重要となる。一般に水素リサイクリング率はプラズマ端を境界条件とした粒子バランスから得られるが、水素リサイクリングの理解のためには研究対象の領域をプラズマ端からプラズマ対向壁まで拡張する必要に迫られる。このプラズマ対向壁ではプラズマからのイオンおよび中性粒子が照射され、それらの粒子の一部は反射され、一部は壁中に吸蔵される。プラズマが生成されている最中には壁の水素吸蔵量は高くなり、この時の水素吸蔵量が動的リテンションと呼ばれる。また、プラズマ消滅後には壁に取り込まれていた水素の一部が壁から再放出され、一部がそのまま壁中に長く保持される。この時の水素吸蔵量が静的リテンションと呼ばれる。動的リテンションはプラズマ生成中の粒子制御に対する重要な要素であり、静的リテンションはトリチウムインベントリーの原因となる要素である。動的リテンションの計測としては、真空容器内の粒子バランスをとることにより実時間計測が可能であるが、この粒子バランスから求められる水素吸蔵量は巨視量であり、プラズマ対向壁で何が起きているかを把握することは難しい。また、静的リテンションは、真空容器内に挿入した材料試料をプラズマ実験後に取り出して材料中に含まれる水素量を評価して求めることができるが、この方法で評価される水素吸蔵量は時間積分値であり、プラズマとの因果関係を理解することは難しい。この壁の水素吸蔵・保持（リテンション）のメカニズムを理解するためにも長時間プラズマ中の静的リテンションおよび動的リテンションの実時間その場計測が重要な課題となっていた。

2. 研究の目的

核融合炉実現のためには長時間定常プラズマを安定に維持することが必要である。このためには、プラズマと壁とを循環する水素の特性（水素リサイクリング特性）を理解することが重要である。

本研究では、この水素リサイクリング特性の壁側の現象に着目し、国際熱核融合実験炉での使用が検討されているタングステン材料の水素吸蔵特性（静的水素リテンション）を理解し、分光学的手法と水素透過フラックス測定手法を組み合わせ、実時間の動的な水素リテンションの計測手法を開発することを目的としている。

3. 研究の方法

本研究は、プラズマ・壁相互作用実験装置 APSEDAS (Advanced PWI Simulation Experimental Device and Analysis System) を用いて実施した。APSEDAS の概念図を図 1 に示す。真空容器は直径約 280 mm、高さ約 310

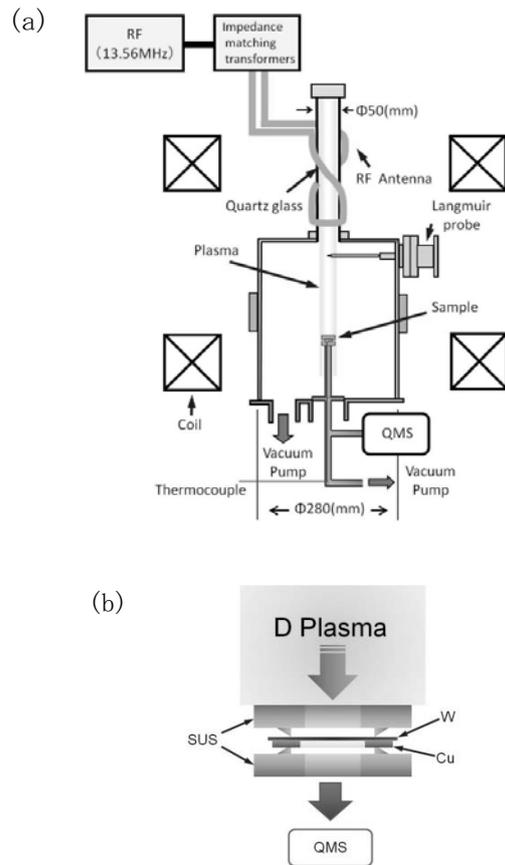


図 1 (a)PWI 模擬実験装置 APSEDAS の概略図、(b)水素透過ステージでの材料ターゲット固定の概略図

mm であり、水冷却のために二重構造となっている。また、真空容器上部に外形 50 mm、長さ 310 mm の石英管とヘリカルアンテナが設置されている。真空容器中心部には、目的に応じて水冷型無酸素銅製ステージと水素透過ステージが設置される。真空容器下部には排気ポートがあり、手動ゲートバルブとターボ分子ポンプ (300L/s) が設置されている。到達真空度は約 2×10^{-7} Torr である。プラズマ生成用の水素ガスは、真空容器上部から流量調節器を経て真空容器内部に供給される。供給ガス流量と手動ゲートバルブの開度を調整することにより、真空容器内圧力を数 mTorr から数 10 mTorr に設定する。真空容器の周りにはプラズマ閉じ込め用の磁場コイル (内径 $\sim \phi 450$ mm) 2 個が設置されており、真空容器中心部で平均約 0.05T の磁場を生成することが可能である。ヘリカルアンテナに 13.56MHz の高周波 (<5kW) を印可することにより定常プラズマを生成することが可能である。石英管部で生成されたプラズマは、真空容器中央部に設置されたターゲット材料に照射される。

水素透過実験のための試料は、図 2 に示すように内径 16mm のステンレス製ヘッドと銅

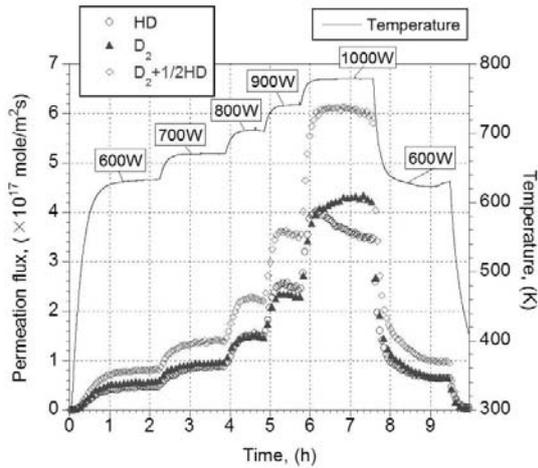


図2 RF パワーを段階的に変化させた際にタングステン試料を透過したD₂、HD、(D₂+HD)のフラックスと試料温度の時間変化。

ガasketで固定され、試料によってプラズマ入射側と透過側に分けられる。この実験に用いた試料は直径 20mm、厚さ 0.1mm、純度 99.99%のアライドマテリアル社製の多結晶タングステンである。プラズマ照射中は入射側の重水素ガス圧は約 2.0×10^{-2} Torr、透過側の圧力は約 3.0×10^{-7} Torr に維持される。プラズマ照射中の試料表面温度は試料背面に接触させた熱電対を用いて計測した。試料を透過したガスの量は、図1に示すように試料より下流側に設置した四重極質量分析器(QMS)を用いて計測した。また、タングステンの水素吸蔵特性を評価する際には水冷型無酸素銅製ステージを使用し、タングステン材料をステージに固定してプラズマ照射を行った。プラズマ照射中のプラズマパラメータは、試料より 100mm 上方に設置されたラングミュアプローブを用いて計測した。

4. 研究成果

図1に示す水素透過ステージを用いて、プラズマ照射に対するタングステン材料の水素透過特性を調べた。図2にプラズマ生成のためのマイクロ波のパワー(RF パワー)を600Wから1000Wまで段階的に変えた際のタングステンを透過した水素フラックスの時間変化を示す。この時のプラズマの電子温度は、RF パワー600Wでは約10eV、それ以外のパワーでは約6eVであった。電子密度、材料への粒子フラックスはRF パワーとともに増加する傾向があり、それぞれ $1.6 \times 10^{17} \text{m}^{-3}$ から $4.5 \times 10^{17} \text{m}^{-3}$ 、 $2.3 \times 10^{21} \text{D}/\text{m}^2 \text{s}$ から $4.5 \times 10^{21} \text{D}/\text{m}^2 \text{s}$ の範囲であった。また、材料に照射される水素イオンのエネルギーは20eV~30eVであった。図2に示すようにRF パワーとともに透過フラックスも増加していることが分かる。

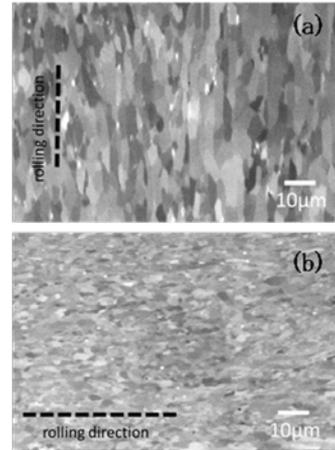


図3 圧延方向の異なる2種類のタングステン材料を表面から垂直に切断した断面の走査型電子顕微鏡写真。図中の破線が圧延方向を示しており、試料表面は図の水平方向である。(a)結晶粒の伸びの方向が試料表面に対して垂直(W-perp試料)、(b)結晶粒の伸びの方向が試料表面に対して平行(W-para試料)。

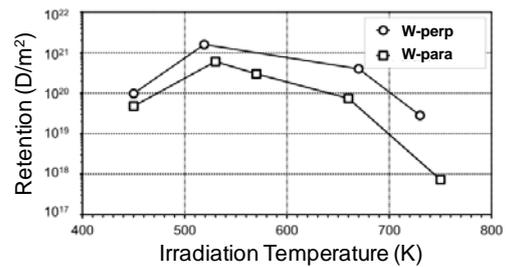


図4 2種類のタングステン試料(W-perp, W-para)の重水素吸蔵量の照射温度依存性。

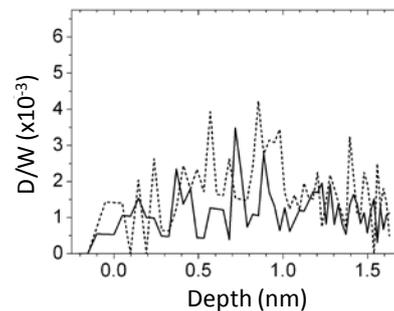


図5 W-para(実線)とW-perp(破線)の重水素濃度の深さ分布。

これは試料温度により拡散係数が増加したためだと考えられる。RF パワーが600W、700Wでの照射では透過フラックスは定常状態で一定となっているが、RF パワーが高くなると試料温度一定状態において透過フラックス

の減少が見られた。この原因としては、プラズマによって試料表面の酸化膜等が除去され再結合係数が上昇したこと、もしくは、プリスタリング等生成により表面改質が生じ、それが拡散障壁となって材料内部への水素の拡散を阻害したことが考えられる。また、水素透過のシミュレーションの結果、今回用いたタングステンの水素捕獲サイトの捕獲エネルギーは 1.4eV、捕獲サイトの濃度は 0.001%であることが示唆された。このように水素透過フラックスの測定により、タングステン材料の表面状態を実時間で把握することができる可能性が示された。

次にタングステン材料の水素吸蔵特性（静的リテンション）を評価するために、図3に示すような2種類の試料を用意してプラズマ照射実験を行った。この2種類はタングステン試料作製段階での圧延方法が異なり、図3(a)はロッド状に圧延した材料を切り出したものであり、図3(b)は板状に圧延した材料を切り出したものである。図3から分かるようにロッド状に圧延した試料では、結晶粒の伸びの方向が試料表面に対して垂直方向であり、板状に圧延した試料では、結晶粒の伸びの方向は表面に対して平行方向である。以後、図3(a)の試料を W-perp、図3(b)の試料を W-para と呼ぶ。図4にプラズマ照射に対する W-perp と W-para の重水素吸蔵量の照射温度依存性を示す。この実験での試料への重水素フラックスは $3 \times 10^{21} \text{D/m}^2 \text{s}$ であり、フルエンスとして $2 \times 10^{25} \text{D/m}^2$ まで照射された。また、材料に照射される水素イオンのエネルギーは 20eV~30eV であった。重水素吸蔵量は昇温脱離法により評価した。2種類の試料ともに、照射温度の増加とともに重水素吸蔵量が増加し、照射温度が約 520K 付近で最大値を持ち、その後試料温度増加とともに減少する特性を有すること、W-perp の重水素吸蔵量の方が W-para に比べて 2~10 倍高いこと

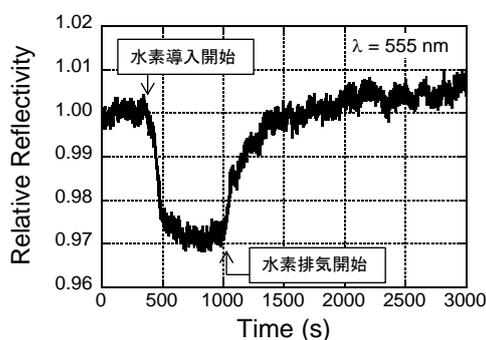


図6 厚さ $100 \mu\text{m}$ のタングステン基板に対して、約 280nm のイットリウム薄膜蒸着後に約 20nm のパラジウム薄膜を蒸着させた試料を水素雰囲気にした際の光反射率（水素導入前の値で規格化）の時間変化。

が明らかとなった。照射温度 520K 付近での重水素吸蔵量の増加は、プラズマ照射による新たな水素捕獲サイトの生成を示唆している。その後の重水素吸蔵量の減少は、試料温度の増加に伴う捕獲サイトからの水素の離脱が優勢になったことによると考えられる。図5に核共鳴反応法（NRA）によって評価した重水素濃度 D/W の深さ分布を示す。試料表面から $1 \mu\text{m}$ までの水素濃度は約 0.1% のオーダーであった。この領域に吸蔵されている重水素量は TDS により評価された総重水素吸蔵量よりも約 1桁小さいものである。これはプラズマ照射中に水素は材料深くまで拡散していったことを示している。また、図4に示すように、結晶粒が表面に対して垂直方向に伸びている試料の方が重水素吸蔵量が多いことから、結晶粒界に沿った拡散により重水素が試料のより深いところまで到達して重水素吸蔵量が増加したことが示唆される。

次に、“Switchable Mirror”の原理を適用した壁表面改質の実時間計測法の適用性を確認するために、厚さ 0.1mm のタングステン基板に対して、約 280nm のイットリウム薄膜を蒸着後に厚さ約 20nm のパラジウム薄膜を蒸着させた試料を作成し、水素雰囲気にした際の波長 555nm の光反射率（角度=75度）の時間変化を示す。水素導入により光反射率が約 3% 減少し、水素排気に対して光反射率が可逆的に変化することが明らかとなり、水素リテンション実時間計測に適用可能であることが確認できた。

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1件）

- ① A. Rusinov, M. Sakamoto, 他 6 名, Deuterium trapping in rolled polycrystalline tungsten exposed to low energy plasma, Plasma and Fusion Research, 査読有, 2012, 掲載確定

〔学会発表〕（計9件）

- ① 本多耕一郎, A. Rusinov, 坂本瑞樹, 他 7 名, PWI 模擬実験装置 APSEDAS におけるタングステン試料の重水素透過実験, Plasma Conference 2011, 2011年11月24日, 石川県立音楽堂
- ② A. Rusinov, K. Honda, M. Sakamoto, 他 4 名, Simulation of deuterium trapping and thermal desorption from W exposed to low energy high flux plasma, Plasma Conference 2011, 2011年11月24日, 石川県立音楽堂

- ③ 坂本瑞樹、他 8 名、タングステンの重水素吸蔵に対する表面改質効果、Plasma Conference 2011、2011 年 11 月 22 日、石川県立音楽堂
- ④ 坂本瑞樹、他 16 名、PWI 模擬実験装置 APSEDAS における分光学的手法を用いたプラズマ照射時の材料表面改質の実時間計測、第 27 回プラズマ・核融合学会年会、2010 年 11 月 30 日、北海道大学
- ⑤ 大山亮平、坂本瑞樹、他 14 名、PWI 模擬実験装置 APSEDAS におけるタングステン表面のヘリウムバブル形成と重水素吸蔵に関する実験、第 27 回プラズマ・核融合学会年会、2010 年 11 月 30 日、北海道大学
- ⑥ 轟昭太郎、坂本瑞樹、他 12 名、PWI 模擬実験装置 APSEDAS における水素同位体交互プラズマ照射における可視分光計測、第 27 回プラズマ・核融合学会年会、2010 年 11 月 30 日、北海道大学
- ⑦ M. Sakamoto, Y. Higashizono, K. Tokunaga (10 番目) 他 11 名、Surface Modification of Tungsten and Its Impact of Deuterium Retention, 19th International Conference on Plasma Surface Interactions in Controlled Fusion Devices, 2010 年 5 月 27 日, San Diego, USA
- ⑧ 轟昭太郎、坂本瑞樹、徳永和俊 (9 番目) 他 12 名、PWI 模擬実験装置 APSEDAS における水素および重水素プラズマ交互照射時の可視分光計測、プラズマ・核融合学会九州・沖縄・山口支部大会、2009 年 12 月 22 日、山口大学常盤キャンパス
- ⑨ 尾崎和基、坂本瑞樹、東園雄太、徳永和俊 (12 番目)、他 8 名、PWI 模擬実験装置 APSEDS におけるタングステンの水素吸蔵特性、プラズマ・核融合学会第 26 回年会、2009 年 12 月 2 日、京都市国際交流会館

6. 研究組織

(1) 研究代表者

坂本 瑞樹 (SAKAMOTO MIZUKI)
筑波大学・数理物質系・教授
研究者番号：30235189

(2) 研究分担者

徳永 和俊 (TOKUNAGA KAZUTOSHI)
九州大学・応用力学研究所・准教授
研究者番号：40227583