

平成22年 5月20日現在

研究種目：基盤研究(B)
 研究期間：2007～2009
 課題番号：19360417
 研究課題名（和文）長時間プラズマ・壁相互作用時の壁表面改質とその水素リサイクリングに与える影響
 研究課題名（英文）Surface modification during long duration plasma-wall interaction and its impact on hydrogen recycling
 研究代表者
 坂本 瑞樹 (SAKAMOTO MIZUKI)
 九州大学・応用力学研究所・准教授
 研究者番号：30235189

研究成果の概要（和文）：小型のプラズマ生成装置を用いて、核融合炉のプラズマ対向材候補であるタングステン材料について、材料表面での光反射率計測やエリプソメトリー計測等の分光学的手法を用いて、プラズマ・壁相互作用に起因した材料表面改質の実時間計測に成功した。プラズマが照射されている材料表面近傍のプラズマ分光計測を行い、リサイクリング粒子の励起状態を明らかにするとともに、ヘリウムバブルが形成された試料及び堆積層が存在する試料等の表面改質試料の水素吸蔵特性を明らかにした。

研究成果の概要（英文）：A monitor of surface modification of tungsten that is an important candidate among plasma-facing materials for a fusion reactor has been succeeded using spectroscopic methods such as optical reflectivity measurement and ellipsometry. Spectroscopic measurement of plasma near surface of a sample revealed excitation states of recycling neutral hydrogen isotopes. And also deuterium absorption properties of samples with helium bubbles and a deposited layer were brought out.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	7,300,000	2,190,000	9,490,000
2008年度	5,600,000	1,680,000	7,280,000
2009年度	2,400,000	720,000	3,120,000
年度			
年度			
総計	15,300,000	4,590,000	19,890,000

研究分野：プラズマ理工学

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、水素リサイクリング、プラズマ・壁相互作用、表面改質、水素吸蔵、エリプソメトリー

1. 研究開始当初の背景

プラズマ・壁相互作用は、核融合炉実現を目指した長時間定常プラズマや高性能プラズマを達成するための重要な課題のひとつ

である。特に壁やダイバーター板からのリサイクリング粒子束の制御が重要となる。一般的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。また、トリチウムインベントリの原因となる壁の水素吸蔵のメカニズムを理解するためにも長時間プラズマ中の壁の表面状態の理解が重要である。

プラズマ対向壁の表面状態は、損耗、再堆積、照射損傷、バブル形成等のプラズマ・壁相互作用により、放電時間とともに変化する。これまで行われてきた一般的な壁表面状態の把握は、壁近傍に設置した材料試料または壁タイルやダイバーター板を実験後に取り出して、材料学的分析手法により観察することにより行われる。しかし、プラズマ閉じ込め装置実機では運転条件（プラズマの状態）が実験テーマ毎に様々に変わることで、また長時間放電中にもプラズマの状態が変化する等々の理由により、実験後の材料試料の観察だけではその複合的な状態とプラズマとの因果関係を明確にすることは困難である。この解決のためには、実機でのプラズマ対向壁表面状態の実時間その場計測と実験後の材料学的分析とを組み合わせた解析が重要であるが、その手法は確立されていなかった。

これまでに、研究代表者は長時間プラズマと壁との相互作用に関する研究を行い、水素リサイクリングやプラズマ対向壁の壁飽和現象に関する研究を進めてきた。その一環として、プラズマ計測用窓上に形成される堆積層の厚さの実時間計測法（堆積層中のレーザー光の干渉の原理に基づく）を開発し、堆積層の成長と壁の水素吸蔵量との関係を明らかにしてきた。さらにプラズマ・壁相互作用に関する研究を進展させるためには、実機での壁表面改質の実時間その場計測法の開発と実験後の材料学的分析との組み合わせによる研究及び壁表面改質が水素リサイクリングや材料の水素吸蔵などに与える影響等についてのデータベースを構築することが必要かつ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・壁相互作用に起因する現象を微視的観点と巨視的観点とからマルチスケールで理解することが必要不可欠である。プラズマとの相互作用により壁の表面状態は時々刻々と変化（改質）していく。そして、この壁表面の微視的な変化が水素リサイクリングのような巨視的特性を大きく左右することがこれまでの研究から明らかとなってきた。本研究では、プラズマ・壁相互作用による壁表面改質を分光学的手法により実時間その場観察することと壁表面改質が水素リサイクリングや材料の水素

吸蔵に与える影響について明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

本研究は、プラズマ・壁相互作用模擬実験装置 APSEDAS (Advanced PWI Simulation Experimental Device and Analysis System) を用いて実施した。図1に APSEDAS の概念図を示す。真空容器は、直径約 280mm、高さ約 310mm であり、水冷却のために二重構造となっている。また、真空容器上部に外径 50mm、長さ 310mm 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水冷型の無酸素銅製ステージが設置され、その上に材料試料が固定される。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。プラズマ生成用のガス（水素、重水素、ヘリウム）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。真空容器の回りにはプラズマ閉じ込め用の磁場コイル（内径 $\sim\phi$ 450mm）2個が設置されている。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り、試料設置領域（ $\phi < 20$ ）ではほぼ一様な磁場強度となっている。ヘリカルアンテナに 13.56MHz の高周波（ < 5 kW）を印加することによりヘリコン波（ $m=+1$ モード）を励起し、高密度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材料試料に照射される。また、真空容器内部には、タングステンやモリブデン等の金属フィラメントが設置され、そのフィラメントに通電加熱することで、フィラメントから原子を蒸発させ、材料試料表面上に水素との共堆積層を形成させること

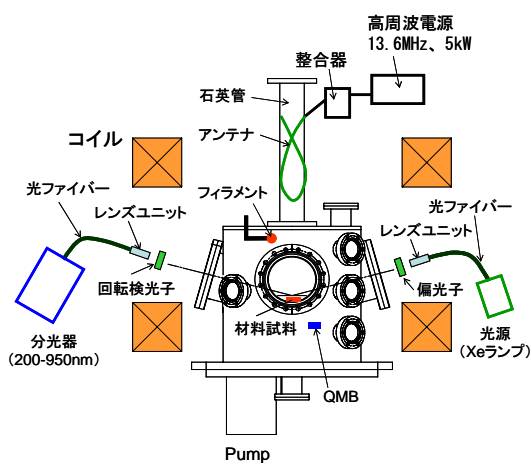


図1 プラズマ・壁相互作用模擬実験装置 APSEDAS の概念図

が可能となっている。真空容器の斜めポートは、光反射率測定ならびに分光エリプソメトリー計測のために、材料試料 (Mo, W 等) の可視光領域でのブリュスター角を考慮して中心軸から 75 度傾けた構造となっている。分光エリプソメトリー計測では、材料試料表面の法線面に対して 45 度の角度を有する直線偏光の光 ($\Delta=0^\circ$, $\Psi=45^\circ$) を材料表面に照射し、反射光を分光器にて測定する。この反射光は材料表面特性 (複素屈折率) に依存して楕円偏光となる。ここで、 Δ は p 偏光と s 偏光の位相差、 Ψ は p 偏光と s 偏光の振幅比 R_{ps} で決められる角度 ($\Psi=\tan^{-1}R_{ps}$) である。

さらに、水素リサイクリング特性を把握するために試料直近のプラズマ分光測定を実施し、試料の水素吸蔵特性を把握するために昇温脱離法 (TDS) を用いた重水素プラズマ照射後の試料中の重水素吸蔵量の評価を実施した。

4. 研究成果

(1) 分光学的手法による表面改質計測

プラズマ照射中の材料表面改質の実時間計測として、実時間分光エリプソメトリー計測を行った。図 2 に、鏡面研磨された厚さ 1mm のタングステンにヘリウムプラズマを照射

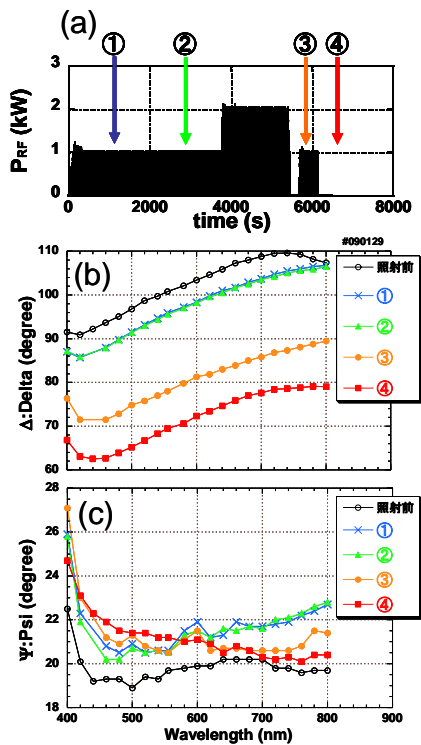


図 2 (a) タングステン試料へのヘリウムプラズマ照射時の RF パワーの時間変化。(a) の矢印で示した時刻に測定した (b) Δ と (c) Ψ のスペクトル。

した時の分光エリプソメトリー計測結果を示す。図 2(a) に示した矢印の時刻で分光エリプソメトリー計測を行った。①から④の時刻でのヘリウム照射フルエンスは、それぞれ $3.6 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$ 、 $8.5 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$ 、 $3.5 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ 、 $3.7 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ であった。 Δ は 400nm~800nm の波長領域において照射量の増加とともに一様に増加するが、 Ψ は照射中に 20 度~22 度の範囲で大きく変化しないことが明らかとなった。これらの変化は、タングステン表面にヘリウムバブルが形成されたことに起因していると考えられる。

(2) 材料近傍でのプラズマ分光計測

タングステン表面での水素リサイクリング特性を把握するために、水素プラズマをタングステン試料に照射し、Balmer 系列及び水素分子 Fulcher- α 帯の発光強度の軸方向空間分布を詳細に計測した。この時のプラズマ生成条件は、真空容器内圧力 $P = 20\text{mTorr}$ 、中心磁場 $B = 0.032\text{T}$ 、高周波出力 $P_{RF} = 800\text{W}$ であり、プラズマの電子密度 $n_e = 1.1 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$ 、電子温度 $T_e = 8\sim 9\text{eV}$ であった。タングステンに入射するイオンエネルギーは空間電位より約 20eV と評価され、イオン粒子束は約 $2 \times 10^{21} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ であった。計測は分光器とレンズ、光ファイバーを用いて 2mm の空間分解能で行った。図 3 に Balmer 線及び水素分子 Fulcher- α 帯の発光強度の Z 軸方向分布を示す。ここで、Z 軸の 0 点は試料表面となっている。また、発光強度は $Z = 50\text{mm}$ の位置で規格化している。Fulcher- α 帯の発光強度は同定した Q 枝 18 本の線スペクトル強度の積分値である。発光強度は試料に近づくにつれて減少することが明らかとなった。別の実験において、プラズマの電子密度が試料に近づくにつれて減少していることが観測されて

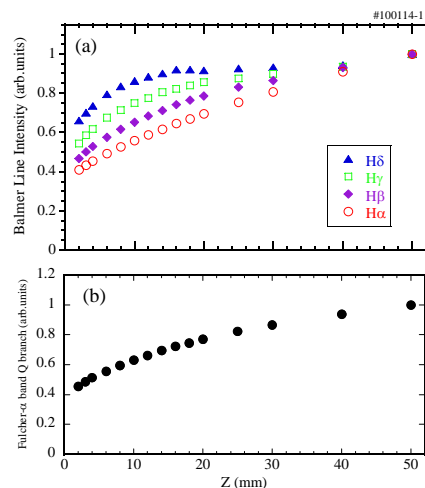


図 3 水素プラズマ照射中の (a) Balmer 線及び (b) 水素分子 Fulcher- α 帯の発光強度の空間分布

おり、発光強度の減少は密度の空間分布に起因しているものと考えられる。また、Balmer線強度の空間分布形状は、高エネルギーの放射ほど試料近傍でふくらみを持つことが分かった。この空間分布形状の変化は試料表面から約 40mm 以内で起こっている。これは、水素リサイクリング過程において、材料に衝突した水素イオンが材料表面で中性化され原子となって反射される際に、その原子中の電子の励起状態に関して高い準位のポピュレーションが相対的に高くなることを示している。

(3) 材料表面改質が水素吸蔵に与える影響

プラズマ・壁相互作用に起因して起こる材料表面改質が水素リサイクリングや材料の水素吸蔵に及ぼす影響は、長時間プラズマの安定維持のために重要な課題である。ここでは、タングステン材料に注目して、核融合炉内で発生が予想されるヘリウムバブルならびに堆積層が水素吸蔵に及ぼす影響に関する研究を行った。

厚さ 0.1mm の多結晶タングステン試料に低エネルギーのヘリウムプラズマを照射し、表面改質状態を調べた。この時のヘリウムプラズマのパラメータを直接測定することはできなかったが、別の実験結果からイオンエネルギーは 20~40eV 程度で、フルエンスはおよそ $4 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ であったと考えられる。また、プラズマ照射中のタングステン表面温度は、約 1750 K であった。この試料表面の走査型電子顕微鏡 (SEM) 画像を図 4 (a) に示す。数

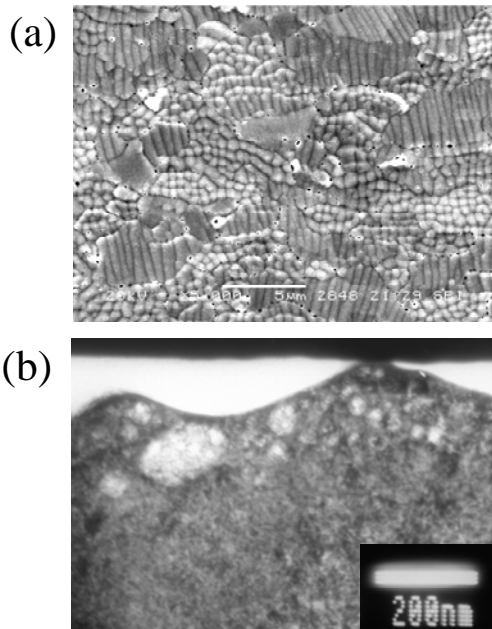


図 4 (a)ヘリウムプラズマ照射後のタングステン表面形状と (b)断面画像

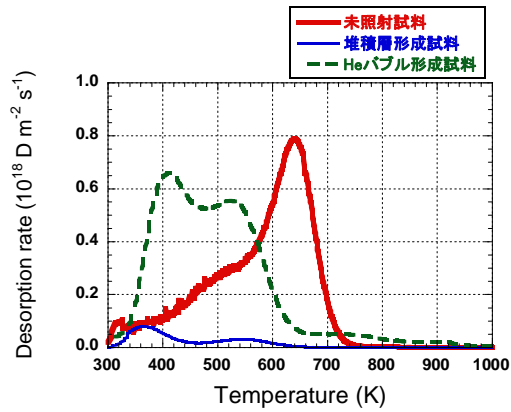


図 5 未照射試料、He バブル形成試料、堆積層形成試料へ低エネルギー重水素プラズマを照射した後の TDS 測定により得られた重水素分子放出スペクトル。

μm 以下の凹凸が試料表面に形成されていることが分かった。この試料を集束イオンビーム (FIB) 加工により切り出し、その断面を透過型電子顕微鏡 (TEM) で観測した画像を図 4 (b) に示す。10nm~200nm 程度のバブルが表面に発生しており、このバブル形成に起因して表面形状変化が生じたと考えられる。

また、図 1 に示すタングステンフィラメントを通电加熱することによりタングステン試料表面上にタングステンの堆積層を形成した。堆積層の厚さは、真空容器内に設置された水晶発振式膜厚計 (QMB) の結果及びタングステン試料と QMB との幾何学的配置から計算され、約 30nm であった。

上記のヘリウムバブル形成試料及び堆積層形成試料に低エネルギーの重水素プラズマを照射し、その後 TDS 測定を行った結果を図 5 に示す。照射に用いた重水素プラズマは、電子密度 $\sim 2.4 \times 10^{17} \text{ m}^{-3}$ 、電子温度 $\sim 8\text{eV}$ 、イオンエネルギー $\sim 28\text{eV}$ であり、フルエンスは約 $4 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ であった。図 5 に示されている未照射タングステン試料への重水素プラズマ照射後の TDS 結果と比較して、ヘリウムバブル形成試料と堆積層形成試料ともに、重水素放出が低温側で起きていることが明らかとなった。また、今回の実験ではヘリウムバブル形成試料の重水素吸蔵量は、未照射試料に比べて、約 1.6 倍高くなっているが、これは再現性の範囲内であり、ヘリウムバブル形成試料が未照射試料と比べてほぼ同程度か若干高い値となっていることが分かった。さらに、堆積層形成試料に関しては、重水素吸蔵量が未照射試料に比べて、約 1/5 に減少していることが明らかとなった。

今回の実験におけるイオンエネルギー ($\sim 28 \text{ eV}$) でのタングステンへのイオンの入射飛程 ($\sim 2.3 \text{ nm}$) は、堆積層の厚さ ($\sim 30 \text{ nm}$) よ

りも短いため、プラズマ照射により入射された重水素原子はまず堆積層中に留まり、直接基板のタングステンに入射されることはないと考えられる。堆積層形成試料での重水素吸蔵量の減少は、堆積層とタングステン基板との界面が重水素の拡散障壁となって、堆積層に入射した重水素がタングステン基板まで進入することができなかつたことに起因していると考えられる。この時、吸蔵された重水素原子がすべて堆積層にあると仮定すると、堆積層での原子比D/Wは約0.015となる。この堆積層形成試料での重水素吸蔵量減少は、核融合炉でのトリチウムインベントリを減少させるための方策を示唆するものであり、重要な結果と考えられる。

以上に示したように、小型のプラズマ生成装置を用いて、プラズマ・壁相互作用時の材料表面改質の実時間計測、水素リサイクリング過程、表面改質材料の水素吸蔵特性に関して、重要な成果を上げることができた。

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6件)

- ① Y. Higashizono, M. Sakamoto, T. Miyazaki, K. Tokunaga (10 番目), 他 10 名, Axial Profile of Balmer-Alpha Emission near a Tungsten Target in the Compact PWI Simulator APSEDAS, Plasma and Fusion Research, 査読有, Vol.4, 2009, No.043.
 - ② Y. Higashizono, M. Sakamoto, K. Ogawa, K. Tokunaga (8 番目), 他 8 名, Spatial Structure of Plasma and Neutral Particles near Tungsten Target in the Compact PWI Simulator APSEDAS, Proc. of XXIX International Conference on Phenomena in Ionized Gases, Cancún, 査読無、2009.
 - ③ M. Sakamoto, T. Miyazaki, Y. Higashizono, K. Tokunaga (10 番目), 他 10 名, Surface Modification of Tungsten Mirrors due to Low Energy Helium Plasma Irradiation in the Compact PWI Simulator APSEDAS, Physica Scripta, 査読有, Vol.T138, 2009, No.014043.
 - ④ 東園雄太, 坂本瑞樹、宮崎俊昌、徳永和俊 (9 番目)、他 9 名、低温プラズマ照射における金属表面近傍の可視光二次元分布計測、応用力学研究所所報、査読無、第 136 号、2009、pp. 45-48.
 - ⑤ M. Sakamoto, M. Ogawa, Y. Higashizono, 他 9 名, Erosion and Re-deposition of Plasma-Facing material in Long Duration Discharges on TRIAM-1M, Reports of Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu, University, 査読無、Vol.136、2009、pp.19-22.
 - ⑥ 坂本瑞樹、宮崎俊昌、庄司多津男、芦川直子、徳永和俊、他 4 名、プラズマ・壁相互作用模擬実験のためのヘリコン波プラズマの特性、応用力学研究所所報、査読無、第 134 号、2008、pp. 61-64.
- [学会発表] (計 15 件)
- ① 小川和真, 坂本瑞樹, 東園雄太, 徳永和俊(12 番目), 他 11 名、PWI 模擬実験装置 APSEDAS における金属表面近傍の Balmer 線強度の空間分布計測、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
 - ② 東園雄太, 坂本瑞樹、小川和真、徳永和俊(11 番目)、他 11 名、可視分光計測に基づくタングステン表面近傍の電子密度及び中性粒子密度の評価、プラズマ・核融合学会第 26 回年会、2009 年 12 月 3 日、京都市国際交流会館
 - ③ M. Sakamoto, T. Miyazaki, Y. Higashizono, K. Tokunaga(10 番目), 他 10 名, In situ measurement of surface modification of tungsten due to low energy helium plasma irradiation, US-Japan Workshop on "Interaction between plasma and high Z material towards steady state operation", 2009 年 11 月 10 日, Massachusetts Institute of Technology, USA
 - ④ M. Sakamoto, Y. Higashizono, T. Miyazaki, K. Tokunaga(10 番目), 他 10 名, Surface modification of tungsten irradiated by low energy plasma in the compact PWI simulator APSEDAS, 7th General Scientific Assembly of the Asia Plasma and Fusion Association, 2009 年 10 月 28 日, Aomori
 - ⑤ 東園雄太, 坂本瑞樹、小川和真、徳永和俊(11 番目)、他 10 名、PWI 模擬実験装置 APSEDAS における可視光分布測定に基づく金属試料近傍の中性粒子挙動解析、日本物理学会 2009 年秋季大会、2009 年 9 月 25 日、熊本大学黒髪キャンパス
 - ⑥ Y. Higashizono, M. Sakamoto, K. Ogawa, K. Tokunaga (8 番目), 他 8 名, Spatial Structure of Plasma and Neutral Particles near Tungsten Target in the Compact PWI Simulator APSEDAS, Proc. of XXIX International Conference on Phenomena in Ionized Gases, 2009 年 7 月 16 日, Cancún, México
 - ⑦ 坂本瑞樹、東園雄太、宮崎俊昌、徳永和俊 (9 番目)、他 9 名、PWI 模擬実験装置 APSEDAS における共堆積層形成実験、第 25 回プラズマ・核融合学会、2008 年 12 月 5 日、栃木県総合文化センター

- ⑧ 宮崎俊昌、坂本瑞樹、東園雄太、徳永和俊 (10 番目)、他 10 名、PWI 模擬実験装置 APSEDAS におけるプラズマ照射時の金属表面反射率の測定、第 25 回プラズマ・核融合学会、2008 年 12 月 5 日、栃木県総合文化センター
- ⑨ 東園雄太、坂本瑞樹、宮崎俊昌、他 10 名、PWI 模擬実験装置 APSEDAS における高速カメラ計測に基づく中性粒子挙動解析、第 25 回プラズマ・核融合学会、2008 年 12 月 5 日、栃木県総合文化センター
- ⑩ 坂本瑞樹、宮崎俊昌、東園雄太、徳永和俊 (10 番目)、他 9 名、PWI 模擬実験装置 APSEDAS のプラズマ特性、日本物理学会 2008 年秋季大会、2008 年 9 月 23 日、岩手大学上田キャンパス
- ⑪ M. Sakamoto, Y. Higashizono, K. Tokunaga (10 番目)、他 10 名、Study of surface modification due to plasma-wall interaction in APSEDAS, International Congress on Plasma Physics 2008, 2008 年 9 月 9 日、Fukuoka International Congress Center
- ⑫ Y. Higashizono, M. Sakamoto, K. Tokunaga (10 番目)、他 11 名、Neutral particle behavior in the compact PWI simulator "APSEDAS, International Congress on Plasma Physics 2008, 2008 年 9 月 9 日、Fukuoka International Congress Center
- ⑬ T. Miyazaki, M. Sakamoto, Y. Higashizono, K. Ogawa, K. Ozaki, K. Tokunaga, 他 8 名、Real time measurement of optical reflectivity on material surface during plasma irradiation, International Congress on Plasma Physics 2008, 2008 年 9 月 9 日、Fukuoka International Congress Center
- ⑭ 宮崎俊昌、坂本瑞樹、徳永和俊、他 4 名、プラズマ照射による金属材料表面の反射率変化、第 7 回核融合エネルギー連合講演会、2008 年 6 月 19 日、青森市男女共同参画プラザ
- ⑮ 坂本瑞樹、宮崎俊昌、徳永和俊 (5 番目)、他 6 名、プラズマ壁相互作用模擬実験のためのヘリコン波プラズマ源の特性、プラズマ・核融合学会 第 24 回年会、2007 年 11 月 30 日、イーグレ姫路

6. 研究組織

(1) 研究代表者

坂本瑞樹 (SAKAMOTO MIZUKI)
九州大学・応用力学研究所・准教授
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