

タングステン表面へのイオン衝撃による発光分析で探るスパッタリング過程

五十嵐 裕雪（原子過程科学教室）

核融合研究は「地上に太陽をつくる」とも言うべき新しいエネルギー源として期待されて進められている。地上で核融合を実現させるには、太陽にとっての宇宙空間に相当する真空容器が必要になる。この容器の中で、燃料になる重水素と三重水素を高温のプラズマ（物質が電子とイオンにわかれた状態）にして磁力線で閉じ込めることで、核融合反応を起こす。プラズマがこの容器の内壁に触れると、高速の荷電粒子が核融合炉壁に衝突することがあり、それは炉壁の固体結晶構造を損傷し、材料原子を空間中に放出させてしまう。この現象はスパッタリングと呼ばれる。すなわち、イオンや電子などの荷電粒子が固体表面に入射した際に、固体を構成する粒子を弾き飛ばす現象を指し、半導体製造などの分野では真空蒸着のためのターゲット蒸発プロセスとして、また表面改質を行うプロセスとしても広く用いられているものもあるが、熱核融合の分野では負のイメージが強い。放出された固体原子の多くは電氣的に中性な粒子であるため、電場と磁場を用いて閉じ込められたプラズマ中にたやすく侵入してしまうからである。プラズマ中で高エネルギー荷電粒子との衝突を繰り返し受けた粒子は、電離や励起と脱励起を繰り返してプラズマ内のエネルギーを光としてプラズマ外へ放出し、結果的にプラズマを冷却してしまう。このため、高温かつ高密度なプラズマの維持が要求される熱核融合炉において、スパッタリング粒子の量や挙動についての知見、すなわちスパッタリング過程の情報を得ることは重要である。また、荷電粒子と表面の相互作用といった基本的な理論の理解のためにも必要である。本研究では、このような観点からタングステン表面へのイオン衝撃によって起こるスパッタリング過程について研究を行った。

タングステンはその高い融点とスパッタリングされにくいという性質により、フランスで建設されている国際熱核融合実験炉 ITER や日本の核融合科学研究所（岐阜県土岐市）の LHD のプラズマ対向材料(PFM)に採用されている。プラズマ対向材料とは、核融合炉内の内壁を構成しプラズマが直接接触することのある部分に用いられるものである。このためタングステンを標的としたスパッタリングに関する知見が求められている。本研究の目的は、スパッタリングにより放出されるタングステン原子の運動量や占有分布等に関する知見を得ることである。そのためにタングステン表面へのイオン衝撃実験を行い、その発光を観測することでスパッタリングされるタングステン粒子の表面垂直方向の速度成分を見積もった。それは、スパッタリングされた粒子の遷移に伴う発光の減衰からスパッタリングの速度を測定するもので、この手法は LHD などの熱核融合装置でも用いられている。しかし、従来の手法である光ファイバを利用する方法や機械的に観測点を変化させる方法は測定間隔が大きく、測定誤差も大きくなる。そこで、本研究ではそのような欠点を解消するために複数の測定領域を同時に、しかも小さな誤差で測定するためにバンドパスフィルターと二次元 CCD を用いた二次元観測を行う手法を開発した。さらに、軸対称を仮定したアーベル変換によって発光空間の三次元的発光密度を測定することに成功した。

ポアンカレ蛍光精密分光に向けた透明電極イオントラップ開発

市川 弘起 (原子過程科学教室)

近年、宇宙空間の様な孤立環境下にある分子の冷却過程研究から『ポアンカレ蛍光』の存在が確認された。ポアンカレ蛍光とは、分子が電子励起状態から電子基底状態へシフトし、脱励起エネルギーを分子振動に分配する内部転換の逆過程である逆内部転換、つまり高振動励起した電子基底状態の分子が振動エネルギーを用いて電子励起状態へ再帰し放出する蛍光であり、再帰蛍光とも呼ばれる。孤立環境下で電子脱離閾値近傍の内部エネルギーを持つ負イオンを例に考えると、ポアンカレ蛍光放出は電子脱離(典型的に時定数 ms オーダー)や振動輻射(典型的に時定数 100 ms オーダー)など他の冷却過程と比べ速く、結果電子脱離で中性化する前に負イオンのまま安定となる。そのため、宇宙空間での分子安定化という点からポアンカレ蛍光スペクトルのイオン内部エネルギー依存性やポアンカレ蛍光の波長ごとの放出速度の研究が望まれる。

東邦大学原子過程科学教室では、ポアンカレ蛍光放出が既に確認されている炭素鎖分子負イオン C_n^- を線型 RF イオントラップ内の小さな領域に数 ms のあいだ閉じ込め、その間にイオンが放出するポアンカレ蛍光の高効率検出から精密分光を目指している。生成イオン収量の制限からポアンカレ蛍光は観測強度が極めて弱く、そのため精密分光には光検出効率の向上が必須である。具体的には、イオントラップ用電極として透明導電体である酸化インジウムスズ (ITO) を外径表面に蒸着した直径 20 mm の半割ガラス管を用いる。透明電極を用いることにより電極方向からの大立体角光検出を実現する。

本研究では、透明電極イオントラップ(IT)を実現すべく、始めに IT 周辺装置の開発を行った。透明電極固定用の治具などを製作し透明電極イオントラップ(T-POT)を組み立てた。さらに出入口電極用のスイッチ回路や透明四重極電極用の RF 発振回路を製作した。真空装置内でのおよそ 3 MHz, 600 V_{p-p} の高周波高電圧印加時の発熱テストを行い設置した銅アダプタにより発熱が抑えられていることを確認した。

次に生成したイオンの装置各部への輸送状況を確認した。レーザーアブレーションイオン源で生成されたイオンは各電極で軌道修正、集束した後、90° ディフレクタにより偏向される。その後イオンはアインツェルレンズにより集束され T-POT 内へと輸送され T-POT 下流の検出電極までのイオン輸送を確認した。イオン検出にはイオンが電極に衝突した時に生じるイオン電流をアンプで増幅しオシロスコープで測定した。さらに、イオンが RF 電圧を印加された透明四重極電極間を通過中に IT 出入口電極にパルス電圧を印加して T-POT への閉じ込めを試みたところ、イオンは検出できなかった。そこで、イオン光学設計ソフトによるシミュレーション計算にて装置の状況を再現した上で、イオントラップへの印加電圧など最適な状況を模索した。

ウラン汚染廃棄物とウラン汚染水の分析に適した

ハイブリッド蛍光 X 線分析装置の開発

高村 晃大 (原子過程科学教室)

東京電力福島第一原子力発電所の廃炉過程では、核分裂生成物や核燃料物質に汚染された様々な廃棄物や汚染水等を処理しなければならない。 ^{137}Cs (セシウム (Cs)) のような核分裂生成物は γ 線計測により、定量可能であるが、 γ 線放出割合の低い核種では、 α 線計測法や β 線計測法が行われる。しかし、 α 線放出核種のウラン (U) は半減期が非常に長く、単位質量当たりの放射能が極めて低いため、 α 線計測法では多量の試料や長時間の測定が必要となり、迅速な定量分析が難しい。そのため、廃炉現場では、U を迅速に定量する新しい方法が求められている。また、福島第一原子力発電所の廃炉作業現場では狭い分析室で多数のサンプルの分析を行わなければならない。

そこで、本研究では、U を迅速に定量分析する方法として、原子数を測定対象とする蛍光 X 線 (X-ray fluorescence : XRF) 分析法に着目し、U 汚染瓦礫を XRF 分析法で U 汚染水を全反射蛍光 X 線 (Total reflection X-ray fluorescence: TXRF) 分析法で分析することを想定し、これらの分析を一台で行うハイブリッド装置の開発を目的とした。本修士論文では、装置開発及び性能評価実験の結果を報告する。

本研究では XRF、TXRF 分析法どちらも入射 X 線と検出器の位置関係が 90° であるため、同じような X 線管と検出器の配置において、試料の角度を入射 X 線に対して $40\sim 45^\circ$ にすれば XRF 測定を、 $0.04\sim 0.1^\circ$ にすれば TXRF 測定を行うことができる。そこで、X 線の漏えいを防ぐ措置の取られた筐体の中に、X 線管、検出器、試料を設置し、このうち試料は回転できるようにした。また、TXRF 測定では検出器を試料に近づけられるよう、検出器のスライド機能も備えさせた。X 線管の前面には、XRF 分析用の円形コーリメーターと TXRF 分析用のスリット型コーリメーターを設置できるようにした。XRF 分析においては、一次 X 線フィルターによりバックグラウンド信号の低減を図るため、これも取り付けられるようにした。これらのパーツの取り付け治具は、すべて蛍光 X 線分析において影響を与えにくいアルミニウムで製作した。

性能評価実験では、まず U が含まれる標準サンプルを作製し、XRF 分析と TXRF 分析それぞれで長時間測定した。得られたスペクトルにガウス関数でピークフィッティングを行い、U L α 線に対する半値幅を決定した。その後、標準サンプルを 10 分間測定し、得られたスペクトルを決定した半値幅を組みこんだガウス関数によってピークフィッティングを行い、検出下限を算出、評価した。また、実際に発生しうる U 汚染瓦礫モデルや U 汚染水モデルを作製し、それぞれを XRF 分析と TXRF 分析を行った。

標準サンプルを測定した結果から得られた検出下限は XRF 分析では 28 ng、TXRF 分析では 3.7 ng となった。TXRF 分析の方が微量分析を可能とするが、液体滴下のような試料表面が非常に平滑なものに試料が限られる。XRF 分析は TXRF 分析よりも検出下限が 1 桁以上悪いが、基本的に試料状態を問わないため、試料表面が平滑でないものには有効な分析法である。このことから、汚染瓦礫のような固体は XRF 分析、汚染水のような液体は TXRF 分析によって U の分析を行うべきであると考えられる。

U 汚染瓦礫モデルでは、コンクリート由来の元素のピークが見られ、特にストロンチウム (Sr) のピークが顕著に見られ、U のピーク観測を妨げる問題が見つかった。U 汚染水モデルでも同様に、コンクリート由来の元素のピークが見られたが、Sr の強烈なピークは見られなかった。これは、瓦礫から水に Sr がほとんど溶けださなかったためと考えられる。そのため、U 汚染水モデルでは、共存元素によって U のピーク観測を妨げず、標準サンプルを測定した場合と同程度の検出下限となった。