

二体衝突近似にもとづいた粒子－物質相互作用の
数値シミュレーション

加藤 周一

2015年11月

目次

Abstract	1
第1章 序論	4
1.1 核融合炉におけるダイバータ	4
1.2 ダイバータ周辺の粒子-物質相互作用を巡る諸問題	6
1.3 水素-タングステン系の課題	12
1.4 加速器中でのビーム-物質相互作用	14
1.5 粒子-物質相互作用シミュレーション研究の現状	15
1.6 本論文の構成	17
参考文献	19
第2章 二体衝突近似法	20
2.1 二体衝突近似法	20
2.2 二体衝突理論による原子核散乱	21
2.3 二体間ポテンシャル	29
2.4 電子阻止能	32
参考文献	34
第3章 タングステンへの水素イオンビーム照射によるイオン反射特性の解明	35
3.1 はじめに	35
3.2 実験系の解説と実験方法	36
3.3 結果・考察	44
3.4 結論	48
参考文献	50

第 4 章	材料内蓄積水素同位体の粒子照射誘導放出	51
4.1	はじめに	51
4.2	シミュレーションモデル	52
4.3	結果	54
4.4	考察	59
4.5	結論	63
参考文献		66
第 5 章	BCA の高エネルギー領域での応用	68
5.1	はじめに	68
5.2	HBC フォイル	70
5.3	γ 線計測実験	71
5.4	BCA による透過角度のシミュレーション	72
5.5	考察と結論	74
参考文献		76
第 6 章	BCA-KMC ハイブリッドシミュレーションによるタングステン内の水素吸 蔵研究	77
6.1	BCA の新展開分野	77
6.2	BCA-KMC ハイブリッドシミュレーション	79
6.3	ハイブリッドシミュレーションコードの開発	81
6.4	BCA-KMC ハイブリッドコードのシミュレーション結果	96
6.5	結論	97
参考文献		103
第 7 章	総括	104
謝辞		107

Abstract

The interaction between hydrogen isotopes and solid materials is important for the nuclear fusion science and the high-energy physics. In the present study, the simulation of binary collision approximation (BCA) had been applied into the problems in these research fields. Moreover, the validity of traditional model of the BCA simulation had been discussed, and then a new hybrid simulation method in which is BCA is combined with kinetic Monte-Carlo (KMC) simulation method have been developed.

In the Chapter 1, the motivation of plasma-material interaction (PMI) problems in the research field of the nuclear fusion science and high-energy physics is described. In the Chapter 2, the model of BCA simulation is described.

In the Chapter 3, the reflection properties of hydrogen isotopes, H^+ , H_2^+ and H_3^+ , onto a polycrystalline W surface were investigated by comparison between laboratory experiment and the BCA simulation. The feature of the laboratory experiment is that angle-resolved intensity and energy distributions of both scattered H^+ and H^- ions are measured by using a magnetic momentum analyzer. We have detected only atomic ions reflected from the surface, but molecular ions are unobserved within our detection limit. The reflected hydrogen ion energy becomes approximately a half of and one-third of the beam energy of incident H_2^+ and H_3^+ , respectively. Other reflection properties are very similar to those of monoatomic H^+ ion injection.

Experimental results are compared to the classical trajectory simulations using the ACAT code based on the binary collision approximation. In the Chapter 4, the removal of hydrogen isotopes retained in a tungsten material by exposure to other hydrogen isotope plasma was investigated to solve the problem of tritium retention in a nuclear fusion reactor. The balance equation between the absorption and desorption of the hydrogen isotope atoms in the tungsten material was considered where the parameter in the balance equation, the absorption ratio and the desorption yield, were

estimated from the BCA simulation. Consequently, the decrease of the retained hydrogen isotope atoms by the hydrogen plasma irradiation can be regarded as approximately exponential decay. The decay rate in the case that retained deuterium atoms are removed by light hydrogen irradiation was two thirds of the decay rate in the case that retained tritium atoms are removed by deuterium irradiation.

In the Chapter 5, the BCA simulation was applied into the analysis of charge-exchange multiple injection system employed in the 3-GeV Rapid Cycling Synchrotron (RCS) of Japan-proton accelerator research complex (J-PARC). In RCS J-PARC, Hybrid type thick Boron-doped Carbon (HBC) stripping foils are applied, because they are robust and show a high stripping efficiency. The activation of the surrounding structures and that of the foil itself is the problem to be solved. The ACAT (Atomic Collision in Amorphous Target) code has been modified to calculate the angle distribution of the transmission beam by multiple collisions in the foil and the supporting structures. The results did not show any substantial deterioration of the beam optics due to the foil and the supporting structure. The gamma spectra obtain during a shutdown period the RCS has been analyzed to see the correlation with the beam transport in the system.

In the Chapter 6, a hybrid simulation method with BCA and KMC (BCA-KMC hybrid) was newly developed. In PMI, not only particle collisions in injection process but also thermal diffusion process of retained particles in target materials play important roles because the non-equilibrium phenomena in PMI is determined by the balance between influx and efflux of plasma particles in the target materials. In traditional PMI simulation approaches, the injection process have been represented by the BCA, while the thermal diffusion process have been calculated by solving diffusion equation, so that the diffusion equation vanishes atomic level information and does not give enough accuracy in the case of low concentration of retained atoms. Here, we were developed BCA-KMC hybrid simulation, the thermal diffusion process was represented by KMC simulation, which can treat atomic level migration. More important point is that the BCA-KMC hybrid simulation can calculate under realistic low flux and high fluence conditions corresponding to laboratory experiments. In existing PMI simulations, by the limit of the calculation speed, the flux 10^6 to 10^{10} times higher than that in laboratory experiments. The dependence of hydrogen retention in the tungsten materials on flux and temperature is very strong. Therefore, the estimation of dynamic hydrogen retention in ITER divertor environment (flux $> 10^{24} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$) is not simply extrapolated from the existing experiments with lower flux ($< 10^{22} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$). BCA-KMC and more

hybridized simulation have possibility to become powerful tool to evaluate hydrogen retention in ITER and future reactor environments.

第 1 章

序論

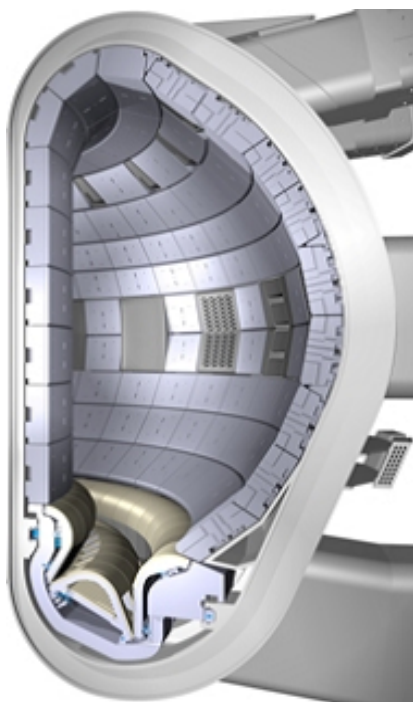
水素，あるいはその同位体粒子と材料の相互作用は様々な分野，特に核融合と高エネルギー物理学の分野において重要である．本研究では二体衝突モデルに基づいた新しい計算手法を開発し，これらの分野の問題に適用した．その上で計算モデルの有効性について議論した．本序論では核融合分野と高エネルギー分野での研究の背景について概説する．

1.1 核融合炉におけるダイバータ

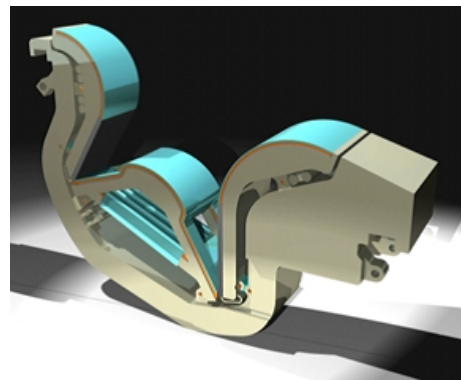
ダイバータは磁場閉じ込め方核融合炉内において，磁力線に沿って飛来してくる荷電粒子を中性不純物ガスとして排気ポートに導くことで，粒子制御を行いプラズマの純度を保つ重要な役割を担う．ダイバータ表面に入射するプラズマ粒子は，表面で相互作用し荷電交換することで中性ガスになると同時に，プラズマ粒子の持つ運動エネルギーが熱としてダイバータへと輸送される．そのためダイバータは，核融合装置の炉内機器で最も高い熱負荷を受ける部分とされる．ここで図 1.1 に，日本を含めた 7 つの国・地域 (EU, ロシア, アメリカ, 中国, 韓国, インド) による国際協力で行われているトカマク型の国際熱核融合実験炉 (International Thermonuclear Experimental Reactor; ITER) の断面図と，ITER で採用予定の閉構造ダイバータを示した．図 1.2 には ITER 運転時のダイバータ周辺の拡大模式図を示す．

核融合炉運転中，ダイバータには炉内に存在する荷電粒子や中性粒子が連続的に入射してくるためダイバータ表面はスパッタリングにより損耗する．スパッタリングで表面付近から放出された粒子の一部はイオン化され，不純物としてプラズマ中に混入される．その結果プラズマの閉じ込め性能の低下や，プラズマの温度低下を招いてしまうことから，ダイバータには高熱負荷への耐久性と同時に表面の損耗を抑制できる性能が必要とされる．加えて ITER のような D-T 核融合反応による燃焼を行う核融合装置では，核反応で生成された

中性子の照射に耐えると共に、それに伴い発生する核反応による発熱を除去することも要求される。また燃料である水素同位体がプラズマ対向材料中に吸蔵（リテンション）されると、材料表面から水素同位体が放出され、境界領域プラズマと壁面で行き来するようになる。このような現象は水素リサイクリングと呼ばれ、これが活発になるとプラズマパラメータで重要となるエネルギーの閉じ込め時間が減少してしまう。このためダイバータには水素吸蔵量を小さく抑える性能も要求され、ダイバータ設計は困難なますます要求が課せられることになる。



[a] ITER 断面図。



[b] ITER で採用予定の閉構造ダイバータ。

図 1.1 トカマク型国際熱核融合炉 ITER の断面図とダイバータ。

1.1.1 タングステン製ダイバータ

従来、ダイバータ板材料のとして炭素材が積極的に選定され、炭素材ダイバータを備えた核融合炉実験装置が建造されてきた。国内では LHD (Large Helical Device) があり、図 1.3 には実際の LHD の炭素材ダイバータの画像を示す。

しかし近年では、ITER を含めた将来の核融合炉のダイバータ材料候補としてタングステン材料が最有力候補とされている。タングステンは全金属中で最も高い 3695 K の融点を持ち耐熱性に優れている。物理スパッタリングの起こる閾値エネルギーも高く、化学スパッタ

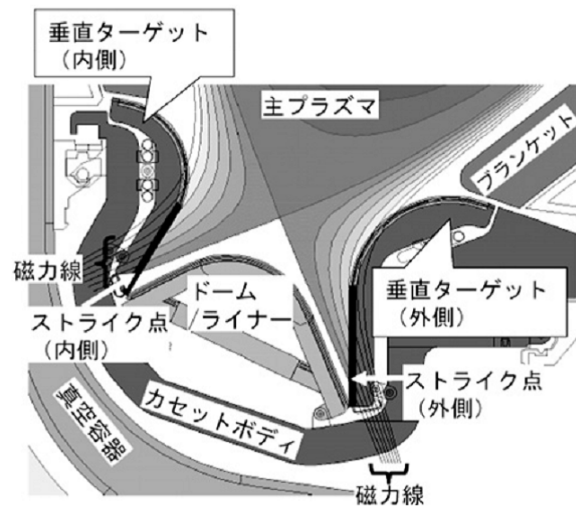


図 1.2 ITER でのダイバータ周辺部拡大図 [2].

リングも防止できることから、炭素と比較しても表面損耗を抑えることが可能である。タングステンは原子番号 74 の高 Z 材のため、プラズマ中に放出された場合には炭素よりも放射損失が大きくなる短所が挙げられるが、正味の放射冷却は炭素に比べタングステンの損耗率が下回るため小さいとされる。またダイバータ板へ入射する水素などの反射率も高く、水素同位体の吸蔵量を炭素材使用時と比較しても数桁抑えこむことができることに加え、イオン衝撃時に入射粒子から材料に輸送されるエネルギーの輸送効率も炭素よりも小さいことからダイバータ板へのエネルギー付与を小さくできる長所もある。以上の長所から、ダイバータ板材料の第一候補としてタングステンが世界的に注目されることになった。

1.2 ダイバータ周辺の粒子－物質相互作用を巡る諸問題

本説ではダイバータの抱えている粒子－物質相互作用 (Particle-Material Interaction; PMI) に関連した問題を説明する。特に水素プラズマとダイバータに関する諸問題は次節に説明する。また核融合炉工学では PMI のことを、プラズマと炉壁面との相互作用としてプラズマ－壁面相互作用 (Plasma-Wall Interaction; PWI) とも呼ぶ。PWI にはダイバータとしてのタングステン材料の寿命や、熱伝導特性の劣化、炉心プラズマへの不純物放出、燃料粒子バランス、トリチウム吸蔵などがあり、照射欠陥や結晶構造変化が重要な基礎過程になる。

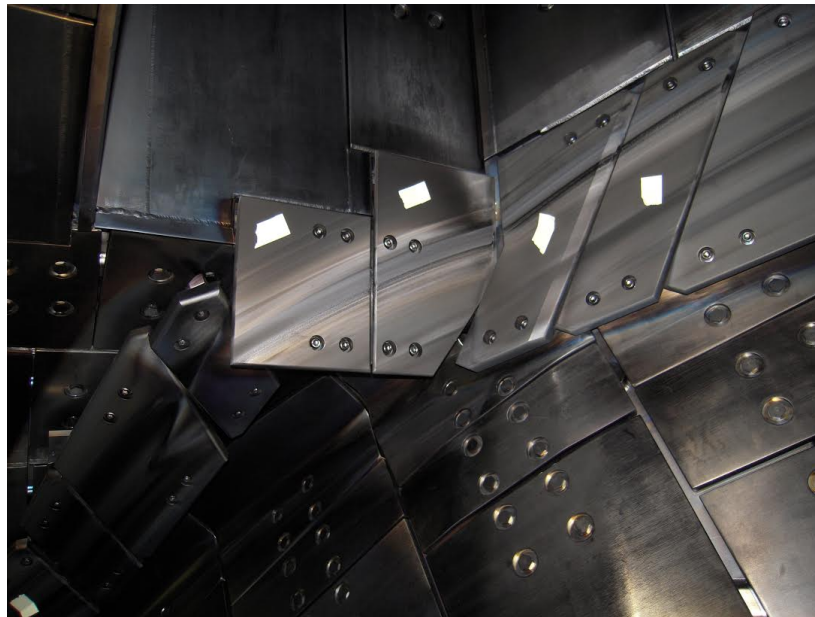


図 1.3 LHD に設置されている炭素ダイバータ板 [1].

1.2.1 タングステンナノ構造形成

D-T 核融合反応で生成されたヘリウム灰 (α 粒子) は、スパッタリング以外の物理的過程でタングステン・ダイバータ板の表面の脆化を招くことが懸念されている。これは表面タングステン原子のスパッタリング閾値以下の低エネルギー領域でも起こる現象である。現象の発生に必要となる最低エネルギーは約 6 eV と低く、この閾値エネルギーはヘリウムがタングステン材料内部に取り込まれるのに必要となる最低エネルギーと考えられている。ヘリウムの取り込み現象はタングステン表面にヘリウムプラズマを照射することで繊維状のナノ構造が形成される特異な現象を起こすことで知られるようになり、Takamura らグループの、核融合炉壁での基礎研究を線型磁場装置で模擬したプラズマ対向材料に関する研究で実験的に発見された [4]。プラズマ照射によりタングステン内部のヘリウム濃度を自然界では存在し得ない高濃度まで高めることで、ヘリウム原子がタングステン内部で凝集することで、ヘリウムバブルと呼ばれる数十 nm のクラスタが大量にできる。このとき、バブル内部の圧力は数 GPa にまで及ぶとされており、ヘリウム照射を続けると、表面に穴ができ始める。やがてタングステン材料表面に図 1.4 に示すような太さ数十 nm の fuzz と呼ばれる繊維状ナノ構造が形成される。この繊維状構造体の内部にもバブルが形成されていることが判明しており、ナノ構造層は照射時間の平方根に比例して成長することも明らかになっている。参考までに図 1.5 に実験的に明らかにされたタングステンナノ構造の形成温度範囲と閾

値エネルギーの関係を示した。この現象は、PWI 分野では近年の内で最も精力的に研究された対象である。

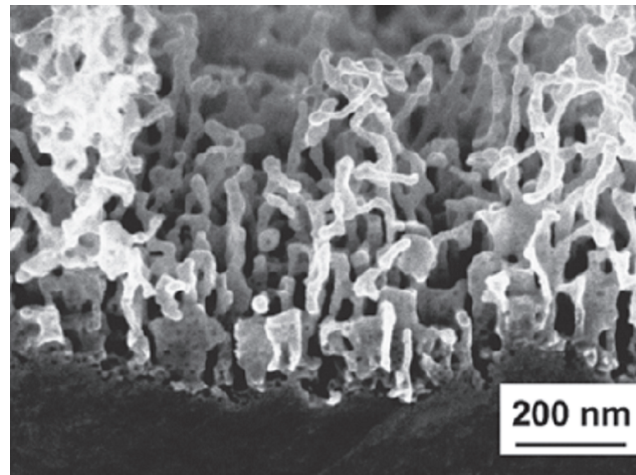


図 1.4 He プラズマにより W 材料表面に形成されたナノ構造 [5].

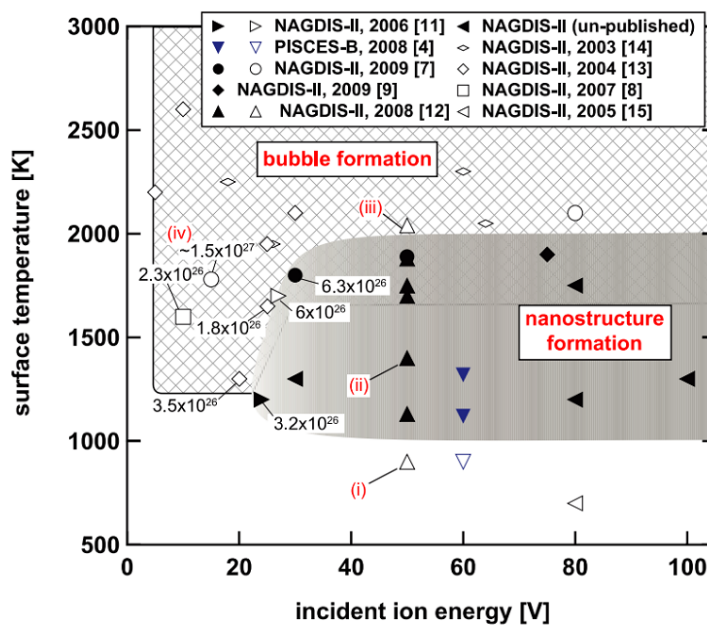


図 1.5 タングステンナノ構造の形成温度範囲と閾値エネルギーの関係 [5].

1.2.2 熱負荷

熱負荷問題に関しては先に若干触れたが、ここでより詳細に説明する。現在 ITER では、炉心プラズマで 1 秒間当たり発生するエネルギーは 300-400 MW とされている。核融合反応で生成されたヘリウム灰などが入射することで、ダイバータへは 1 秒間に約 150-300 MW のエネルギーが排出されると想定されていることから、ダイバータの受ける熱負荷を低減させる工夫が必要になる。そこで磁力線に対して受熱面を傾ることで受熱面有効面積を増加させ、局所的な熱負荷を軽減させる方法が工学的立場で取られている。またアルゴンやネオン、窒素などの不純物ガスをダイバータ領域に混入することで、放射冷却によるプラズマ粒子のエネルギーを減衰させ、プラズマとダイバータ表面を非接触状態（この非接触プラズマ状態はデタッチドプラズマ状態とも呼ばれる。）にすることで熱負荷を低減するガスパフと呼ばれる技術が採用されている。

ダイバータ領域のプラズマは複雑になっており、一般に内外での非対称性が現れ、部分非接触状態となる [6, 7, 8]。ITER での外側ダイバータにおける非接触状態のストライク点付近では、熱負荷、粒子負荷、電子温度、電子密度はそれぞれ、 5 MW/m^2 、 $\sim 2 \times 10^{24} \text{ particles/m}^2\text{s}$ 、 $1\text{-}2 \text{ eV}$ 、 $\sim 2 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ と予測されており、熱負荷がピークとなる 7-8 cm 外側では 10 MW/m^2 、 $\sim 10^{23} \text{ particles/m}^2\text{s}$ 、 10 eV 、 $\sim 10^{21} \text{ m}^{-3}$ と急激に変化する。更に熱負荷が 10 MW/m^2 の場合、ダイバータの表面温度は、アーマーの厚みを 10 mm とした場合に約 1373 K と算出されており、 20 MW/m^2 の場合は 2273 K となる。このレベルの熱負荷は、図 1.6 に示すように、これまでの工学機器において経験がない大きさである。参考までに LHD 実験中に熱負荷を受けている炭素材ダイバータの IR 画像と、実験後に損傷したダイバータの画像を図 1.7 に示す。画像よりダイバータ表面が集中的に熱負荷を受けていることが確認できる。

1.2.3 パルス熱負荷照射によるタングステン材料の溶解と亀裂 [3]

ELM (Edge Localized Mode) とはトカマク型核融合実験装置の H モードプラズマにおいてペデスタルと呼ばれる高エネルギー密度領域に蓄積されたエネルギーが間欠的に放出される現象のことを指す。ELM が発生すると短時間に多大なエネルギーがダイバータ板に照射されることになる。ITER では、Type-I と呼ばれる ELM のパルスエネルギーによりダイバータ板が受ける熱負荷密度は、 $1\sim 2 \text{ MJ/m}^2$ で、パルス幅は $\sim 0.2 \text{ ms}$ 程度と想定されている [10]。タングステンは、パルスエネルギーによる熱負荷密度が $\sim 1 \text{ MJ/m}^2$ (パルス幅 0.5 ms) を越えると表面が溶融する。これを溶融限界と呼び、これを防止するために

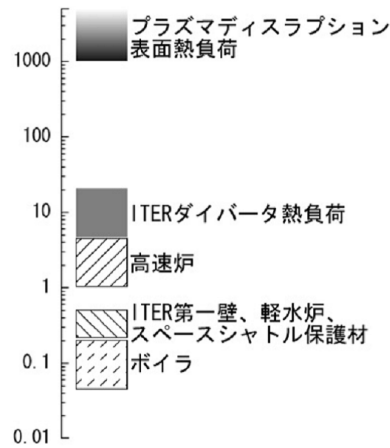


図 1.6 ダイバータと他の工学機器における熱負荷比較 [2] [7] [9].

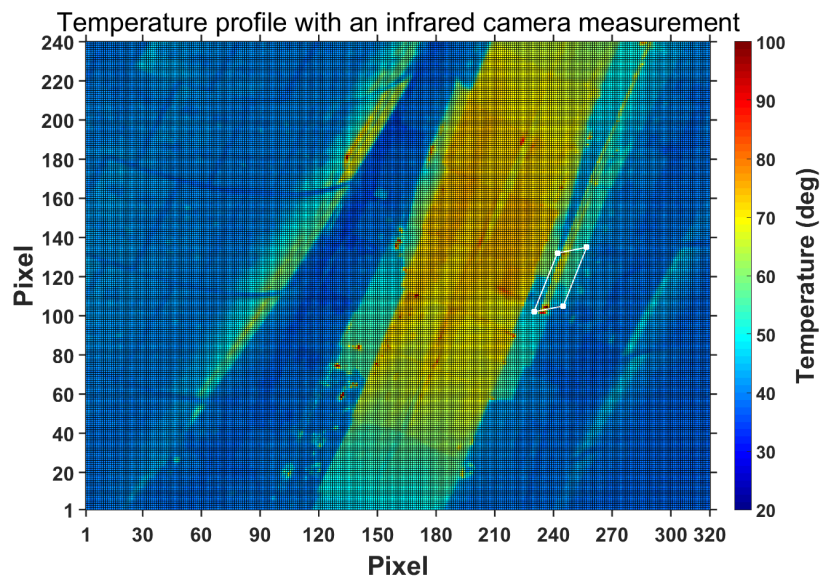


図 1.7 実際に熱負荷を受ける LHD 内のダイバータの IR 画像 [1].

ELM の熱負荷密度を 0.5 MJ/m^2 以下に低下させる手法が検討されている。

パルス熱負荷が繰り返しダイバータ表面に照射されると、表面の溶融に加えて亀裂が発生する。図 1.9 にパルスプラズマ照射，すなわちパルス熱負荷照射実験で溶融限界を 20 % 程度越えた場合（パルス幅 0.2 ms）の表面近傍の亀裂の発生の様子を示した。熱パルスの繰り返し照射により，タングステン表面近傍温度は，上昇と下降を繰り返す。それに伴い膨張と収縮が繰り返されることで，熱疲労現象による亀裂が発生する。亀裂には結晶粒の粒界に沿って成長し，数 $100 \mu\text{m}$ の深さまで達する亀裂（Major crack）と，結晶粒内に発生し，



図 1.8 LHD 実験後の損傷後した炭素材ダイバータ [1].

結晶粒界を越えて成長しない亀裂 (Minor crack) の 2 種が存在する.

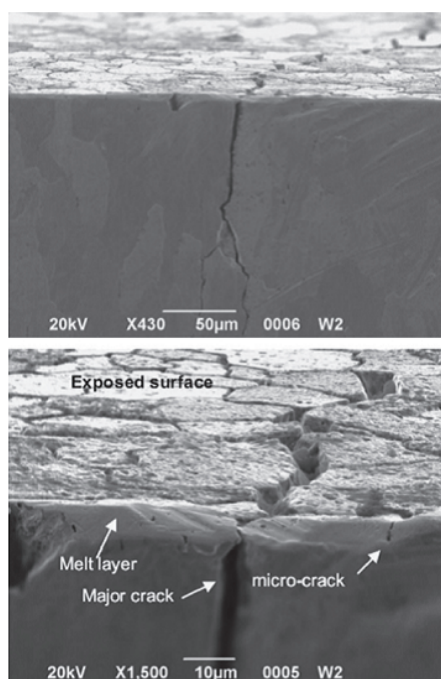


図 1.9 パルス熱負荷入射により発生したタングステン溶融層の挙動 [11].

1.2.4 中性子損傷

D-T 核融合反応で発生する粒子は 14.1 MeV の中性子と 3.5 MeV の α 粒子である。後者は荷電粒子のため磁場によって曲げられ、燃料粒子（重水素，三重水素）と衝突することでこれらに運動エネルギーを付与するアルファ加熱が起きる。しかし燃焼によって生成された中性子は通常の化学反応で生ずるエネルギーの約数千万倍に相当する運動エネルギーを有しており，この中性子が壁面材料内に荷電による減速を受けずに入射し侵入することで，材料内では特有な現象が生じ結果として材料物性や材料特性を劣化させる。

例えば，中性子損傷による水素同位体の吸蔵量増加が懸念される。高エネルギーでタングステン材料内に侵入した中性子は，固体内でタングステン原子と衝突する。これにより弾き出し損傷が起こることで，材料内で次々に空孔が形成されることになる。一方で材料内に侵入し，十分に熱的過程まで減速した水素同位体は速やかに材料内を拡散するが，中性子によって形成された空孔はこれら水素同位体を捕獲・吸蔵し，拡散している水素同位体のトラッピングサイトとなることから，材料内での水素同位体吸蔵量の増加が懸念されている。

1.3 水素－タングステン系の課題

1.3.1 水素リサイクリング [12]

磁場閉じ込め核融合装置で D-T 燃焼中に磁場により閉じ込められたプラズマが安定状態で定常的になっている場合には，プラズマと周囲の壁面を含む系でエネルギーと粒子バランスが成立する。エネルギーは核反応により生成された α 粒子によるプラズマ加熱と，生成中性子によるトリチウム増殖，プラズマ粒子による制動放射，およびサイクロトロン放射など多様な形態で消費される。炉内プラズマでのエネルギー損失を熱伝導やプラズマ粒子の拡散 P_L ，およびプラズマ粒子による放射損失 P_R で表し， P_T を核融合反応出力（生成エネルギー）， P_H を加熱入力（エネルギー消費）とすれば，炉心プラズマにおけるエネルギーバランスは以下のようなになる [13]。

$$\frac{d(3nkT)}{dt} = \eta P_T + P_H - P_L - P_R \quad [\text{Wm}^{-3}] \quad (1.1)$$

ここで η は核反応によるエネルギーがプラズマ加熱へと消費される比率を示しており， n はプラズマ密度とした。 k はボルツマン定数である。熱脱離，反射，再放射，およびスパッタリング過程により，プラズマ対向材料表面を経由してプラズマ中に混入する中性粒子には，水素同位体の原子・分子や材料の構成元素などの不純物，およびこれらの化合物が存在し，イオン化などの相互作用は中性粒子がプラズマに入射する際の化学形，およびそのエネ

ルギー分布や励起状態により異なるので、上記のエネルギーバランス式の放射損失項の項を評価する際に必要なデータとなる。このような観点から、水素リサイクリングを議論する上で、再放出あるいは反射される水素の化学形やエネルギー状態に関するデータの蓄積が必要となる。

1.3.2 トリチウム吸蔵

プラズマ対向壁へのトリチウム吸蔵は、核融合炉の運転における安全性や、燃焼の燃料であるトリチウムのリサイクリングに対して重要な問題となってくる [14]。重水素放電のみで稼働している核融合装置内においても D-D 反応によるトリチウムが生成される。このためプラズマ対向壁に照射し、材料内部に吸蔵されたトリチウムの分布定量をイメージングプレートにより計測することに成功事例も報告されており、将来の D-T 燃焼炉におけるトリチウム挙動予測に有効であると考えられている。

ITER においては炉内トリチウム吸蔵量に制限が設けられており、その許容値は 350 g 程度とされている。また炭素材ダイバータなどで考えると、単位時間あたり数 nm で蓄積する炭素再堆積膜中に T/C 比が 0.1~0.4 の割合で蓄積すると、わずか数十回のフル D-T 放電で制限量を越え、その都度トリチウムを除去する作業が必要となる。このトリチウム蓄積量の見積もりは大型プラズマ装置で得られた結果を基にしているが、その多くは低温度で運転している他の核融合装置のデータである。従って ITER の運転スケジュールに大きな影響を与えることになるプラズマ対向壁に蓄積するトリチウムの挙動を調べることは極めて重要である。

1.3.3 ブリスタリング

ブリスタリングとは、材料に照射され侵入したガスが表面近傍の結晶粒界や空孔などに高圧局所集合し、材料表皮を持ち上げる現象のことを指す。ダイバータ材料がタングステンの場合、燃料粒子である水素同位体照射に伴うブリスタリングの発生が古くから懸念されている [3]。

ブリスタリングが発生し、内部ガスが表皮を持ち上げる圧力が、材料の破断応力を超えると、表皮の剥離（フレーキング）が起こり表皮ごと不純物として真空容器内へと放出されることとなる。ブリスタリングはナノメートル～ミリメートルスケールまで様々なサイズで出現する。また近年の研究では、重水素の保持量とブリスタリング形成がヘリウムの照射によって抑制されることが報告されている [15] [16]。

1.4 加速器中でのビーム－物質相互作用

粒子－物質相互作用研究は高エネルギー物理学の分野でも重要である．J-PARC (Japan Proton Accelerator Research Complex) では，素粒子物理，原子核物理，物質科学，生命科学，原子力など幅広い分野の最先端研究を行うための大強度陽子加速器群と実験施設群を保有している．J-PARC 加速器では，LINAC で加速された水素負イオン (H^-) ビームを図 1.10 に全体を示した RCS (Rapid Cycle Synchrotron) に入射させ，3 GeV まで加速し，最大 1 MW のビームエネルギーで取り出す仕様になっている．RCS へのビーム入射には，3 枚の非結晶性炭素荷電変換フォイル [20] を使用した荷電変換多重入射方式が採用されており，加速器運転時には荷電変換フォイルは大強度ビーム照射を受ける [19]．よってフォイルの劣化問題は加速器の安定運転のために重要な問題となる．フォイル劣化は，熱的負荷やマイクロからマクロへと発展する構造破壊により起こると考えられているが，劣化メカニズムの解明が求められている．また，ビームをフォイルに透過させる際に，大角度散乱によるビーム損失が発生することで周囲の装置を放射化させている可能性があり，安定軌道を外れた H^+ ビームの一部は真空ダクトに衝突して失われ，核反応により大量の二次粒子を発生させ装置を放射化させることも懸念されている．核反応による効果を除けば，ビーム粒子のフォイル透過現象などは，これまでに解説してきた粒子－物質相互作用と原理的には等しいと考えられることから，核融合分野のみではなく，加速器のような高エネルギー物理学の分野での応用も期待できる．

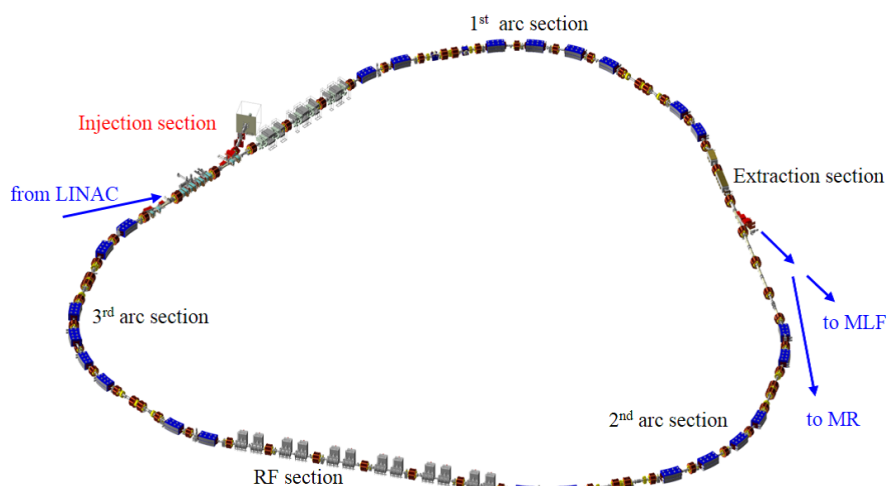


図 1.10 J-PARC RCS の全体図．

1.5 粒子－物質相互作用シミュレーション研究の現状

粒子が照射された材料表面および内部は、様々な物理現象が複合的に発生する系となっている。固気界面における気体と比較した場合、照射するプラズマは非常に希薄ながらも、一粒子あたりのエネルギーが高い為に、材料表面へ与える熱負荷も大きくなる。同時にプラズマ粒子の材料への侵入率も高くなり、材料中の不純物（ここでは照射された粒子を不純物と呼ぶ。）の濃度も自然界では起こりえないものとなる。これにより、材料内部ではプラズマ照射下特有の変形や破壊、場合によっては組織形成が起こる。核融合研究において PWI 現象を取り扱う場合には、炉内壁と接する周辺プラズマ挙動シミュレーションと、プラズマ照射を受けた材料内部の挙動を扱うシミュレーションがある。本論文の PWI シミュレーションでは後者を扱う。炉内壁でもダイバータ材料に関する課題が PWI 研究の中心であり、核融合炉の進化に伴うダイバータ材料の移り変わりに合わせて、研究課題も大きく変化してきた。ここでは現状の PWI シミュレーションの一端に触れ、シミュレーション手法と合わせてその外観を解説する。

現在、PWI シミュレーションで一般的に用いられる手法には二体衝突近似 (Binary Collision Approximation; BCA), 分子動力学 (Molecular Dynamics; MD), KMC (Kinetic Monte Carlo; KMC), 密度汎関数理論 (Density Functional Theory; DFT) がある。PWI シミュレーションでは現象を粒子の照射過程と拡散過程に分けて考える。

歴史的に見て、まず初めに普及したシミュレーション技法が BCA である。BCA は粒子の照射によって起こる材料内での衝突過程を、最も相互作用の強い二体問題に近似して解いていく方法である。散乱断面積が小さくなる高エネルギーでの粒子間照射のシミュレーションでは、この手法が有効とされる。計算速度が早く、十分な回数の粒子照射の計算ができることから統計量が算出できるため、シミュレーション結果を実験と比較することもできる。一方で、粒子間相互作用を二体に近似し多体効果を無視するために低エネルギー領域での計算精度は低い。低エネルギーの粒子照射シミュレーションには MD が有効になる。

MD はダイバータ材として炭素材が使用されるようになり、化学スパッタリングがひとつの重要な課題となったときに普及した。MD では計算で考慮する全粒子のハミルトニアンを算出し、各粒子の運動を逐次的に時間について解く。そのため、ポテンシャルモデルに則った化学結合などを考慮した計算ができる。BCA と異なり、極めて詳細な個々の粒子挙動を知ることができ、材料の変形なども取り扱うことができる。しかし高エネルギー粒子照射の計算には、考慮できる空間の制限の観点で MD は不利になる。また原理的には拡散も取り扱うことが考えられるが、MD で拡散現象の時間スケールのシミュレーションを行うことは、現在の計算機資源では極めて難しい。

拡散は KMC で取り扱われるのが主流である。KMC は照射過程のシミュレーションを行う BCA や MD とは異なり、材料内での粒子拡散を取り扱うための手法である。KMC では材料内を格子で区切り、ミクロ情報に乗っ取り法則づいたある移動確率を持って、拡散粒子が格子間をランダムにジャンプする。MD では実現困難な長時間シミュレーションも、KMC ならば可能である。しかし材料を指定した格子に区切ることから、KMC では材料の変形を取り扱うことができない。

KMC で使用するミクロ情報に大きなヒントを与えるのが DFT である。DFT は量子論に基づいた近似を用いることにより、電子状態を計算することで様々な物性値を算出できる手法である。計算できる系の空間スケールには強い制限を受け、計算コストも大変高いが、KMC で使用する局所安定構造を探したり、拡散粒子の移動障壁エネルギーの見積もりなどを可能にする。DFT は、実験を含め、他のシミュレーション手法では得られないようなミクロ情報の取得を容易に可能にする。また DFT でミクロ情報を得られることで、その情報を現象理解に繋げていけるとともに、KMC のモデル構築以外にも、例えば MD のポテンシャルモデル作成の応用にも利用でき、他の手法の発展にも繋がる強力な手法となる。

以上の手法には一長一短があり、ひとつの手法では様々な複合過程から成る PWI 現象を説明することはできない。従って単一の手法によるシミュレーションには限界があることから、近年では各手法の持つ弱点を補い合い、無矛盾で接続しハイブリッド化することで大きな成果を残した。

近年の PWI 分野では、先ほど説明したヘリウムプラズマ照射時に形成されるナノ構造形成の原理解明が実験のみではなく、理論の分野でも最も精力的に研究されてきた。しかし、バブル形成以降の最終段階過程に当たる表面での繊維状ナノ構造形成は、材料の変形を取り扱うことのできる MD シミュレーションのみでは再現することができなかった。結論から言えば、繊維状ナノ構造の形成の再現のためには、実験と同等の粒子フラックス下で、実験と同等の照射フルエンスに達するまで計算し続ける必要がある。計算の遅い MD を用いてこの問題に適用すると、先に述べたように入射フラックスを実験よりも数桁以上大きく設定する必要がある。そのため、ヘリウム原子が材料中で拡散する前に、表面付近のヘリウム濃度が上がり過ぎ、非現実的な表面層の剥離が起こってしまう。一方で、計算の早い MC でランダムウォーク様の計算を行えば、実験同様の入射フラックス下でのヘリウム原子の拡散を扱える。しかし、表面の構造成長のメカニズムがわかっていない状況では、表面部分の MC 計算に必要な物理的に妥当なルールを与えることができない。そこでヘリウムの拡散を MC にランダムウォークとして扱い、ヘリウムバブルが発生する応力によるタングステンの変形を MD で扱う MD-MC ハイブリッド手法が Ito らにより開発された [17, 18]。一定ステップ毎に MD と MC を入れ替えながら時間発展させることで、時々刻々変わるタングステン形状を反映して、ヘリウム原子の拡散可能な経路が変わる。

結果として、図1のように繊維状ナノ構造が形成される様子を再現されたのである。

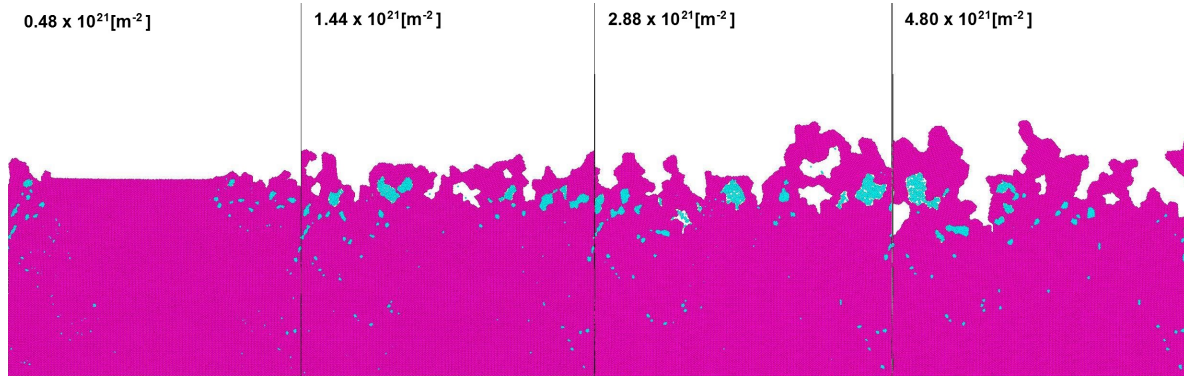


図 1.11 MD-MC ハイブリッドシミュレーションによるヘリウムプラズマ照射下でのタングステン繊維状ナノ構造の形成。紫色および水色の粒子はそれぞれタングステン原子およびヘリウム原子を示している。左から右方向へ向かって入射フルーエンスの増加，すなわち時間発展を示している [17].

MD-MC ハイブリッド法の重要な点は、実験と同等の入射フラックス $1.4 \times 10^{22} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ を採用しつつも、 $0.5 \times 10^{22} \text{ m}^{-2}$ という高い入射フルーエンスを 24 時間で達成できたという点である。参考までに MD シミュレーションだけを用いて、この入射フラックス条件でこの入射フルーエンスを達成しようとするると 10 万年の計算時間が必要となる。時間スケールの異なる二つの手法をハイブリッドに運用することで、計算時間の壁を越えて現象の再現が可能になったと言える。

1.6 本論文の構成

本論文では BCA シミュレーションを応用し、粒子-物質相互作用の研究をすると同時に、BCA の発展性や応用可能性についても検討していく。次章では一般の BCA シミュレーションに用いられている理論を概観し、第 3 章から実際に応用する。第 3 章では低エネルギー水素分子イオンビームをタングステンに照射するビーム実験をし、タングステン表面から反射されてくる水素イオンを実験的に計測することで分子-固体相互作用の基礎過程の一部を明らかにした。加えて BCA で実験と同様のシミュレーションを行うことで実験とシミュレーションの比較検討もした。第 4 章では水素同位体がタングステン材料内部に吸蔵されている系に同位体粒子照射を BCA で行い、粒子衝撃による吸蔵された同位体の誘導放出に関する同位体効果を議論した。第 5 章では MeV オーダーの高エネルギー領域の粒子間衝突への応用として、J-PARC RCS のビーム入射部に設置してある荷電変換フォイ

ル周辺で起こっている放射化の問題を, BCA で高エネルギービームのフォイル透過シミュレーションを行い, その結果と実際に収集された γ 線スペクトルデータと比較をすることで加速期の放射化の原因の特定を試みた. 続く第6章では, 第3章から第5章で行われた BCA シミュレーションの課題点を言及し, 特に低エネルギー領域で重要となってくる拡散現象を取り込むことで, 照射過程と拡散過程を粒子スケールで同時にシミュレーションできる BCA-KMC ハイブリッドシミュレーションを提唱しコード開発した. コードはプログラムとして十分な機能を有しており, BCA の新分野を開拓した.

参考文献

- [1] 渡邊 一平 氏 (総合研究大学院大学) 提供.
- [2] T. Suzuki, S. Akiba, M. Saito, *J. Plasma Fusion Res.* **82**, No.10 (2006) 699.
- [3] M. Tokitani, Y. Ueda, *J. Plasma Fusion Res.* **87**, No.9 (2011) 591.
- [4] S. Takamura, N. Ohno, D. Nishijima *et al.*, *Plasma Fusion Res.* **1**, (2006) 051.
- [5] S. Kajita, W. Sakaguchi, N. Ohno *et al.*, *Nucl. Fusion* **49**, (2009) 095005.
- [6] A. S. Kukushkin *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **887**, (2001) 290.
- [7] G. Federici *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **260**, (2001) 290.
- [8] G. Federici *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **11**, (2003) 313.
- [9] 遠藤修司, 大竹邦彦, 航空宇宙技術研究所資料, TM-716 (1997).
- [10] R. Raffray *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **21**, (2003) 313.
- [11] I. E. Garkusha *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **415**, (2003) 565.
- [12] 芦田 完, 水素リサイクリングとトリチウムインベントリ, プラズマ・核融合学会誌 **75**, (1999) 394.
- [13] 小間 篤 他編, 表面工学ハンドブック, 丸善, 1987.
- [14] Y. Oya *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **469**, (2001) 290.
- [15] D. Nishijima, H. Iwakiri, K. Amano *et al.*, *Nucl Fusion* **45**, (2005) 669.
- [16] M. Miyamoto, D. Nishijima, Y. Ueda *et al.*, *Nucl. Fusion* **49**, (2009) 065035.
- [17] A. M. Ito, A. Takayama, Y. Oda, T. Tamura *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **463**, (2015) 109.
- [18] A. M. Ito, A. Takayama, Y. Oda, T. Tamura *et al.*, *Nuclear Fusion* **55**, (2015) 073013.
- [19] M. Yoshimoto *et al.*, *Journal of Physics: Conference Series*, **417**, (2013) 012073.
- [20] I. Sugai *et al.*, *Nucl. Instr. and Meth.* **A561**, (2006) 16.

第 2 章

二体衝突近似法

2.1 二体衝突近似法

荷電粒子・固体相互作用あるいは固体内原子衝突過程をシミュレーションする手法のうちの一つに二体衝突近似 (Binary Collision Approximation:BCA) がある。この近似モデルは、多体系の効果を無視できるような散乱断面積の小さな高エネルギー粒子相互作用を取り扱う系において有効であり現象を良く説明する。逆に分子動力学 (Molecular Dynamics:MD) による取り扱いが適切な低エネルギー領域の衝突過程では散乱断面積が大きくなることから二体衝突近似の精度は悪くなる。計算コストの観点で考えれば、BCA は MD よりも遥かに小さい計算コストで十分な数の粒子入射の計算が可能である。従って結果に対し実験との対比が可能なほどの十分な統計量を得られるという利点を持つ。

一般に固体内で運動する粒子は原子核と電子との衝突過程によって運動の軌道偏向とエネルギー損失による減速過程を繰り返す。BCA 理論に基づくシミュレーションをするにあたり、電子との衝突では微小角度散乱による軌道偏向は無視できるが、励起やイオン化に関連して起こるエネルギー損失は考慮しなければならない。しかし原子核との衝突では軌道偏向とエネルギー損失の両方を古典的二体衝突理論を用いて見積もる必要がある。

本章では一般的な二体衝突近似法で特に重要となる古典的な二体散乱の取り扱い方法と、それを解くのに必要になる二体間ポテンシャル、減速過程に重要となる電子阻止能について解説する。

2.2 二体衝突理論による原子核散乱

以下、参考文献 [1] を参考に議論を進める。

2.2.1 実験室系

質量 M_2 の標的原子は衝突前に静止しているものとし、入射粒子は質量 M_1 、初速度 v_0 、初期エネルギー E_0 であるとする。また標的原子あるいは入射粒子または両方のイオン化や電子の励起に伴う非弾性エネルギー損失を Q とする。このとき非相対論的なエネルギー保存則は実験室 (L) 系にて

$$E_0 = E_1 + E_2 + Q \quad (2.1)$$

$$\frac{1}{2}M_1v_0^2 = \frac{1}{2}M_1v_1^2 + \frac{1}{2}M_2v_2^2 + Q$$

のように与えられる。 E_1 、 v_1 と E_2 、 v_2 はそれぞれ衝突後の入射粒子と標的原子（反跳原子）のエネルギーと速度である。運動量保存則は以下ようになる。

$$M_1v_0 = M_1v_1 \cos \vartheta_1 + M_2v_2 \cos \vartheta_2 \quad (2.2)$$

$$0 = M_1v_1 \sin \vartheta_1 + M_2v_2 \sin \vartheta_2$$

図 2.1 から明らかなように、 ϑ_1 と ϑ_2 は入射粒子と反跳標的原子の入射粒子の初期運動方向を基準として定義される散乱角度である。非弾性エネルギー損失量 Q は、片方もしくは両方の衝突原子の電子励起に伴う内部エネルギーの増加や、電子ガス中の電子などとの衝突に由来するもので、その時の運動量輸送量は電子の質量が小さいため無視するという暗黙の仮定がなされている。

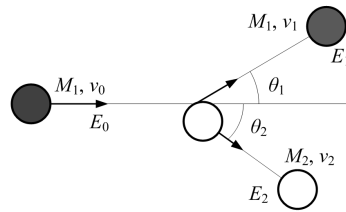


図 2.1 二体散乱の簡略図。

式 (2.1) と式 (2.2) を用いれば、以下の関係式が成り立つ。

$$\cos \vartheta_1 = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_1}{E_0}} (1 + A) + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_0}{E_1}} \left[1 - A \left(1 - \frac{Q}{E_0} \right) \right] \quad (2.3)$$

$$\cos \vartheta_2 = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_2}{E_0}} \frac{(1+A)}{\sqrt{A}} + \frac{1}{2} \sqrt{\frac{E_0}{E_2}} \frac{1}{\sqrt{A}} \frac{Q}{E_0} \quad (2.4)$$

$$A = \frac{M_2}{M_1}$$

2.2.2 質量中心系

ここで式 (2.1) の非弾性損失エネルギー Q について簡単に触れておく。二体衝突近似では非弾性散乱過程を，二粒子間の相対距離のみに依存した保存的中心力で起こる弾性散乱と非弾性（電子的）エネルギー損失に分けて評価する。これを非弾性散乱の準弾性散乱的取り扱いと呼ぶ。準弾性散乱過程では非弾性エネルギー損失は近日点で起こるものと考え，原子核との衝突イベント毎に Q を見積もる Q の見積もりには後に解説する局在モデルが用いられる。局在モデルでは $Q = Q(s, E_0)$ と表現でき質量中心の運動には依存しない。 s は衝突パラメータで衝突前の二粒子間の相対位置で決まる。従って準弾性散乱では質量中心の運動と粒子間の相対運動は完全に独立であることから質量中心 (center of mass; CM) 系を考えることで問題を簡単化できる。

CM 系におけるエネルギーと速度にはバー，プライムは衝突後を指すものとする，CM 系でのエネルギーと運動量保存則は以下のように表される。

$$\bar{E}_1 + \bar{E}_2 = \bar{E}_1' + \bar{E}_2' + Q \quad (2.5)$$

$$\frac{1}{2} M_1 \bar{v}_1^2 + \frac{1}{2} M_2 \bar{v}_2^2 = \frac{1}{2} M_1 \bar{v}_1'^2 + \frac{1}{2} M_2 \bar{v}_2'^2 + Q$$

$$M_1 \bar{v}_1 + M_2 \bar{v}_2 = M_1 \bar{v}_1' + M_2 \bar{v}_2' \quad (2.6)$$

また質量中心の速度を \mathbf{V} とすれば， $\mathbf{v}_2 = -\mathbf{V}$ ， $\mathbf{v}_1 = \mathbf{v}_0 - \mathbf{V}$ であるから，式 (2.6) から \bar{v}_1 ， \bar{v}_2 は以下のようなになる。

$$V = \frac{1}{1+A} v_0 \quad (2.7)$$

$$\bar{v}_1 = \frac{A}{1+A} v_0, \quad \bar{v}_2 = -\frac{1}{1+A} v_0 \quad (2.8)$$

相対エネルギー E_r は式 (2.6)，式 (2.8) を用いれば以下のようなになる。

$$E_r = \bar{E}_1 + \bar{E}_2 = \frac{A}{1+A} E_0 \quad (2.9)$$

2.2.3 質量中心系における散乱角

二粒子の相対距離を r とした場合，保存的中心力が作用した系では E_r は保存される．また角運動量も保存されるために，衝突は特定の平面上で制限され起こる．従って $(x, y) \rightarrow (r, \vartheta)$ の座標変換をすればエネルギー保存の式は下のようになる．

$$\frac{\mu}{2}(\dot{r}^2 + r^2\dot{\varphi}^2) = E_r \quad (2.10)$$

式 (2.5) と式 (2.10) を比較すると式 (2.10) では Q の項を無視し弾性散乱であるかのように取り扱っている．これは電子の質量は十分に小さいため，CM 系の衝突を考える際に無視しても問題となる誤差を生じないからである．ここで角運動量保存の式は

$$r^2\dot{\varphi} = -v_0s \quad (2.11)$$

で与えられる．式 (2.10)，式 (2.11) により r の時間発展を表す微分方程式が得られる．

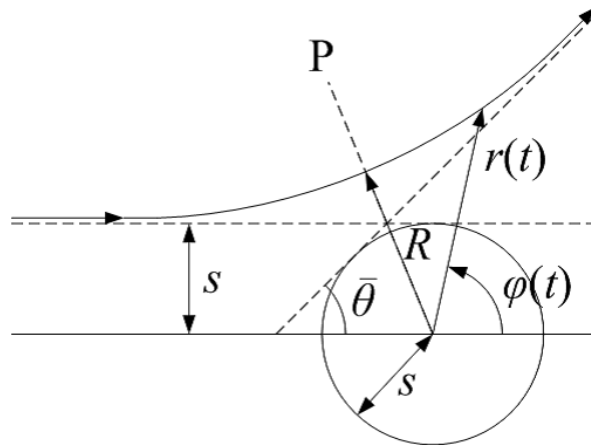


図 2.2 CM 系での散乱過程の概略図．距離 R のとき再近接になる．

$$\begin{aligned} \dot{r} &= \pm \sqrt{\frac{2}{\mu}[E_r - V(r)] - \frac{v_0^2 s^2}{r^2}} \\ &= \pm v_0 \sqrt{1 - \frac{V(r)}{E_r} - \frac{s^2}{r^2}} \end{aligned} \quad (2.12)$$

$\mu = M_1 M_2 / (M_1 + M_2)$ は換算質量， $V(r)$ は相互作用ポテンシャルである． \dot{r} の符号は \dot{r} の点で変化する．すなわち，負符号は最近接点に到達する前に適用できる．最近接距離 R は式 (2.13) の解として導出される．

$$g(R) = 0 \quad (2.13)$$

$$g(r) = \sqrt{1 - \frac{V(r)}{E_r} - \frac{s^2}{r^2}}$$

で求まる。ここで式 (2.11) と式 (2.10) より

$$\frac{d\varphi}{dr} = \pm \frac{s}{g(r)r^2} \quad (2.14)$$

であるから CM 系での散乱角 $\bar{\vartheta}$ は弾性衝突の軌道は線 P について鏡映となることを利用すると、 $\bar{\vartheta}$ は式 (2.8) で見積もることができる。

$$\begin{aligned} \int_{\pi}^{\bar{\vartheta}} d\varphi &= 2s \int_R^{\infty} [r^2 g(r)]^{-1} dr \\ \bar{\vartheta} &= \pi - 2s \int_R^{\infty} [r^2 g(r)]^{-1} dr \end{aligned} \quad (2.15)$$

この積分計算の手続きに関しては後の節で解説する。ここでは少し解析的に解ける一例として剛体球の場合を考えると、剛体球ポテンシャルは以下で与えられる。

$$\begin{aligned} V(r) &= 0 \quad \text{for } r > R' \\ V(r) &= \infty \quad \text{for } r < R' \end{aligned} \quad (2.16)$$

ここで R' は 2 つの剛体球の半径の和である。このとき散乱角は、

$$\begin{aligned} \bar{\vartheta} &= \pi - 2s \int_{R'}^{\infty} \frac{dr}{r^2 \sqrt{1 - p^2/r^2}} \\ &= \pi - 2 \arcsin \frac{s}{R'} \end{aligned} \quad (2.17)$$

となる。

2.2.4 質量中心系から実験室系への散乱角の変換

L 系での散乱角は CM 系での散乱角 $\bar{\vartheta}$ で決定できる。ここでは先に考えた CM 系から L 系への変換式を求める。衝突後の入射粒子の CM 系と L 系での速度には以下の関係が成り立つ。

$$\begin{aligned} \bar{v}'_1 \sin \bar{\vartheta} &= \bar{v}_1 \sin \vartheta_1 \\ \bar{v}'_1 \cos \bar{\vartheta} + V &= \bar{v}_1 \cos \vartheta_1 \end{aligned} \quad (2.18)$$

これから

$$\tan \vartheta_1 = \frac{\sin \bar{\vartheta}}{\cos \bar{\vartheta} + \frac{V}{\bar{v}'_1}} \quad (2.19)$$

を得る. 式 (2.5), 式 (2.6), 式 (2.7) を用いると

$$\left(\frac{\bar{v}'_1}{\bar{v}_1}\right)^2 = 1 - \frac{1+A}{A} \frac{Q}{E_0} = 1 - \frac{Q}{E_r} = f^2 \quad (2.20)$$

が導かれ, これと式 (2.7), 式 (2.8) から

$$\frac{V}{\bar{v}'_1} = (fA)^{-1} \quad (2.21)$$

$$\tan \vartheta_1 = \frac{Af \sin \bar{\vartheta}}{1 + Af \cos \bar{\vartheta}} \quad (2.22)$$

が得られる. これを $\bar{\vartheta}$ に関して解けば,

$$\sin \bar{\vartheta} = \sin \vartheta_1 \left(\frac{\cos \vartheta_1}{Af} \pm \sqrt{1 - \left(\frac{\sin \vartheta_1}{Af}\right)^2} \right) \quad (2.23)$$

ただし式 (2.21) の根号前の符号は, $Af < 1$ のとき負符号が不適となるため注意が必要である. また, これを更に $\bar{\vartheta}$ に関して解くと以下の式を得る.

$$\bar{\vartheta} = \vartheta_1 + \arcsin [(Af)^{-1} \sin \vartheta_1] \quad (Af \geq 1)$$

$$\bar{\vartheta} = \vartheta_1 - \arcsin [(Af)^{-1} \sin \vartheta_1] + \pi$$

ϑ_2 に関しても ϑ_1 の時と同様な手順から,

$$\frac{V}{\bar{v}'_2} = f^{-1}, \quad \frac{\bar{v}'_2}{\bar{v}_2} = f \quad (2.24)$$

を用いれば

$$\tan \vartheta_2 = \frac{\sin \bar{\vartheta}}{1 - f \cos \bar{\vartheta}} \quad (2.25)$$

$$\sin \bar{\vartheta} = \frac{\sin \vartheta_2}{1 - (1 - f^2) \sin^2 \vartheta_2} \left(\cos \vartheta_2 \pm f \sqrt{1 - (2 - f^2) \sin^2 \vartheta_2} \right) \quad (2.26)$$

この時も式 (2.21) と同じように, $f < 1$ のとき負符号が不適となる. 式 (2.20), 式 (2.23) から, CM 系から L 系への散乱角の変換公式は以下で表現できる.

$$\cos \vartheta_1 = \frac{1 + Af \cos \bar{\vartheta}}{\left(1 + 2Af \cos \bar{\vartheta} + A^2 f^2\right)^{1/2}} \quad (2.27)$$

$$\cos \vartheta_2 = \frac{1 - f \cos \bar{\vartheta}}{\left[2 - 2f \cos \bar{\vartheta} - (1 - f^2) \cos^2 \bar{\vartheta}\right]^{1/2}} \quad (2.28)$$

2.2.5 衝突イベント後のエネルギー

また式 (2.3), 式 (2.4) を用いれば, 実験室系の散乱角 ϑ_i を用いて原子核衝突による入射粒子の弾性エネルギー損失 T を見積もることができる.

$$\frac{E_1}{E_0} = \frac{1}{(1+A)^2} \left(\cos \vartheta_1 \pm \sqrt{Af^2 - \sin^2 \vartheta_1} \right) \quad (2.29)$$

$$\frac{E_2}{E_0} = \frac{A}{(1+A)^2} \left(\cos \vartheta_2 \pm \sqrt{f^2 - \sin^2 \vartheta_2} \right) \quad (2.30)$$

これはまた, CM 系での散乱角 $\bar{\vartheta}$ を用いて以下のように表すことができる.

$$\frac{E_1}{E_0} = \frac{1}{(1+A)^2} \left((1+Af)^2 - 4Af \sin^2 \frac{\bar{\vartheta}}{2} \right) \quad (2.31)$$

$$\frac{E_2}{E_0} = \frac{1}{(1+A)^2} \left((1-f)^2 + 4f \sin^2 \frac{\bar{\vartheta}}{2} \right) \quad (2.32)$$

ここで標的原子が受け取る最大運動エネルギー T_m は $f = 1, \vartheta_2 = 0$ のときであり,

$$T_m = \frac{4A}{(1+A)^2} E_0 = \frac{4}{1+A} E_r \quad (2.33)$$

で与えられる. 従って, 入射粒子から強敵粒子への運動エネルギー輸送量 T は,

$$T = E_2 = T_m \left(f \sin^2 \frac{\bar{\vartheta}}{2} + \frac{1}{4} (1-f)^2 \right) \quad (2.34)$$

で与えられる. 以上より, 衝突イベント後の入射粒子のエネルギー E_1 は電子的エネルギー損失量 Q も考慮して以下のようなになる.

$$E_1 = E_0 - T - Q \quad (2.35)$$

2.2.6 実験室系における粒子の漸近軌道

L 系での実際の粒子の軌道は曲線を描くと考えられるが, 二体衝突理論ではその軌道を漸近線として近似する. ここで, CM 系において φ の r 依存性を調べる. すでに近日点は通過しているものとするとき式 (2.14) より φ は,

$$\int_{\pi}^{\varphi(r)} d\varphi = s \int_{\infty}^r [r^2 g(r)]^{-1} dr \quad (2.36)$$

$$\begin{aligned}
\varphi(r) - \pi &= s \int_R^{\varphi(r)} [r^2 g(r)]^{-1} dr - s \int_R^r [r^2 g(r)]^{-1} dr \\
&= -s \int_R^{\varphi(r)} [r^2 g(r)]^{-1} dr - s \int_R^\infty [r^2 g(r)]^{-1} dr + s \int_r^\infty [r^2 g(r)]^{-1} dr \\
\varphi(r) &= \pi - 2s \int_R^\infty [r^2 g(r)]^{-1} dr + s \int_r^\infty [r^2 \bar{g}(r)]^{-1} dr
\end{aligned} \tag{2.37}$$

ここで,

$$g[r, V(r) = 0] = \sqrt{1 - \frac{s^2}{r^2}} \tag{2.38}$$

とし, 漸近軌道 ($r \gg s$) において $V(r) \simeq 0$ とみなせることを用いた. 結局, 式 (2.17) を使うと

$$\varphi(r) = \vartheta + \arcsin \frac{p}{r} \simeq \vartheta + \frac{p}{r} \tag{2.39}$$

を得る.

ここで r の時間依存性について考えると, 衝突後は式 (2.7), 式 (2.19), 式 (2.22) から $\bar{v}'_1 - \bar{v}'_2 = v_0 f$ が成り立つことと式 (2.12) から,

$$\int_0^t dt = -\frac{1}{v_0} \int_{r(0)}^R [g(r)]^{-1} dr + \frac{1}{f v_0} \int_R^r [g(r)]^{-1} dr, \quad r > R \tag{2.40}$$

$$\begin{aligned}
v_0 t &= \int_R^\infty \{[g(r)]^{-1} - [\bar{g}(r)]^{-1}\} dr + \int_R^{r(0)} [\bar{g}(r)]^{-1} dr \\
&\quad + \frac{1}{f} \left(\int_R^\infty \{[g(r)]^{-1} - [\bar{g}(r)]^{-1}\} dr + \int_R^r [\bar{g}(r)]^{-1} dr \right)
\end{aligned} \tag{2.41}$$

$r(0)$ は $t = 0$ のときの r を表し, $r(0) \gg s, R, r \gg s, R$ が満足されているとする. また下の積分と時間積分という物理量 τ を定義すれば, 式 (2.38) は式 (2.41) となる.

$$\int_R^r \{[\bar{g}(r)]^{-1}\} dr = \sqrt{r^2 - s^2} - \sqrt{R^2 - s^2} \tag{2.42}$$

$$\tau = \sqrt{R^2 - s^2} - \int_R^\infty \{[g(r)]^{-1} - [\bar{g}(r)]^{-1}\} dr \tag{2.43}$$

$$v_0 t \simeq r(0) - \tau + f^{-1}(r - \tau) \tag{2.44}$$

$$r(t) \simeq f v_0 t + (1 + f)\tau - f r(0)$$

ここで以下の CM 系での運動量保存則を用いると各粒子の漸近運動を決定することができる。

$$\begin{aligned} M_1 x_1(t) + M_2 x_2(t) &= M_1 v_0 t - M_1 r(0) \\ M_1 y_1(t) + M_2 y_2(t) &= M_1 p \end{aligned} \quad (2.45)$$

式 (2.39) と式 (2.45) より,

$$\begin{aligned} x_1 + A x_2 &= v_0 t - r(0) \\ x_1 - x_2 &= r \cos \varphi \simeq r \cos \left(\vartheta + \frac{p}{r} \right) \simeq \cos \vartheta - p \sin \vartheta \end{aligned} \quad (2.46)$$

式 (2.44) を使えば以下のようなになる。

$$\begin{aligned} (1+A)x_1 &= v_0 t(1 + Af \cos \vartheta) + A(1+f)r \cos \vartheta - pA \sin \vartheta \\ &\quad - r(0)(1 + Af \cos \vartheta) \\ (1+A)x_2 &= v_0 t(1 + f \cos \vartheta) - (1+f)r \cos \vartheta - p \sin \vartheta \\ &\quad - r(0)(1 - f \cos \vartheta) \end{aligned} \quad (2.47)$$

同様に式 (2.39) と式 (2.45) より,

$$\begin{aligned} y_1 + A y_2 &= p \\ y_1 - y_2 &= r \sin \varphi \simeq r \sin \left(\vartheta + \frac{p}{r} \right) \simeq \sin \vartheta + p \cos \vartheta \end{aligned} \quad (2.48)$$

式 (2.48) と式 (2.44) から y は以下のようなになる。

$$\begin{aligned} (1+A)y_1 &= v_0 t A f \sin \vartheta + A(1+f)\tau \sin \vartheta - p(1 + A \cos \vartheta) \\ &\quad - r(0) A f \sin \vartheta \\ (1+A)y_2 &= -v_0 t f \sin \vartheta - (1+f)\tau \sin \vartheta + p(1 - \cos \vartheta) \\ &\quad + r(0) f \sin \vartheta \end{aligned} \quad (2.49)$$

ここで添字の 1 は入射粒子の漸近線を表し、添字の 2 は標的粒子の漸近線を表す。また、入射粒子の漸近軌道と x 軸, y 軸との交点は以下のようなになる。

$$\begin{aligned} \hat{x}_1 &= -\frac{p}{1+A} \frac{1+A^2 f + A(1+f) \cos \vartheta}{A f \sin \vartheta} - \frac{\tau}{1+A} (1 + f^{-1}), \quad y_1 = 0, \\ x_1 = 0, \quad \hat{y}_1 &= -\frac{p}{1+A} \left(1 + \frac{A f (A f + \cos \vartheta) + A^2 f (1-f) \cos^2 \vartheta}{1 + A f \cos \vartheta} \right) + \frac{\tau}{1+A} \frac{A(1+f) \sin \vartheta}{1 + A f \cos \vartheta} \end{aligned} \quad (2.50)$$

標的粒子に対しては

$$\begin{aligned} \hat{x}_2 &= \frac{1+f^{-1}}{1+A} (p \tan \frac{\vartheta}{2} - \tau), \quad y_2 = 0, \\ x_2 = 0, \quad \hat{y}_2 &= \frac{1+f}{1+A} \left(p \frac{1-\cos \vartheta}{1-f \cos \vartheta} - \tau \frac{\sin \vartheta}{1-f \cos \vartheta} \right) \end{aligned} \tag{2.51}$$

更に $y = s$ と漸近軌道との交点は,

$$\begin{aligned} x_{1s} &= -\frac{1}{f(1+A)} (p(Af - 1) \tan \frac{\vartheta}{2} + \tau(1 + f)) \\ x_{2s} &= x_{2s} - p(1 - f^{-1}) / \sin \vartheta \end{aligned} \tag{2.52}$$

となることが分かる.

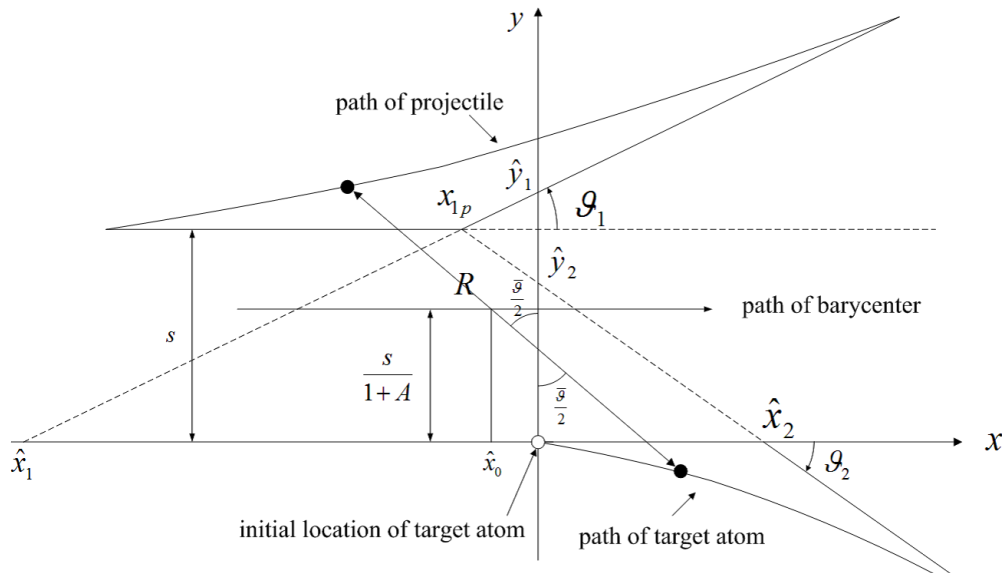


図 2.3 実験室系での入射粒子と反跳粒子の軌道と漸近軌道.

2.3 二体間ポテンシャル

2.3.1 遮蔽クーロンポテンシャル

イオン注入や表面改変などのエネルギー領域で相互作用しているイオンと原子は相対速度が低い領域とみなせることからイオンと原子が相互作用する際に最接近する距離では、正の相互作用ポテンシャルは2原子間に働く斥力となる。原理的にこのポテンシャルに効いてくるのは、(1) 静電的な正電荷を持った原子核間の斥力と、(2) パウリの排他律を破ることなく原子の周辺の同じ空間領域にある電子を保持するために必要なエネルギーの増加である。

電子は互いに同じ位置に存在することができないため、2つの原子の接近による電子の波動関数の重なりは、電子をまだ占有されていないいくつかの高いエネルギー準位へと上げることになる。沢山の電子が影響することになるため、これに必要とされるエネルギーは互いの原子が近づくと連れ増加することになる。

BCA で問題となる程度の2原子の接近では、最内殻電子の空間電荷によって原子核の電荷が遮蔽されるためにクーロンポテンシャルの減衰がある。これを表すポテンシャルは、遮蔽クーロンポテンシャルとよばれ、以下の式で表される。

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \chi(r) \quad (2.53)$$

ここで、 $\chi(r)$ は遮蔽関数で、位置 r での実際の原子ポテンシャルとクーロンポテンシャルの比として定義されたものである。

イオンと原子の相互作用をどの距離でも表現できるように $\chi(r)$ は適切にクーロンポテンシャルを和らげる。長距離では $\chi(r)$ はゼロになるべきであり、一方で近距離では1になるべきである。そのような特徴は一組の原子間のポテンシャルエネルギーを記述し、全体の衝突過程の記述を可能にする。

2.3.2 Thomas-Fermi 遮蔽モデル

遮蔽クーロンポテンシャルを記述するモデルのひとつに、Thomas-Fermi の半古典的理論モデルが存在する。Hartree 近似や Hartree-Fock 近似では、計算した結果が単純な解析的表現で得ることができない。これに対して Thomas-Fermi 近似では、しばしば原子番号 Z を変えたことによって生じる現象の変化を、見通しよく理解することができる。Thomas-Fermi 近似では電子の波動関数及び束縛エネルギーを全ての原子に適用できる還元された量を用いて表すため、いろいろな現象の原子番号依存性について、見通しのよい結果を得ることができる。Thomas-Fermi モデルでは、電子は統計力学的に Fermi-Dirac 分布則に従うものとされる。電子はエネルギー E を持った理想気体のように振る舞い、正の電荷を持つ原子核周辺のポテンシャル井戸を満たしているのである。自由電子ガスの状態密度 $n(E)$ は、周期境界条件を適用し、長さ L のセルで規格化すれば以下の式で表現できる。

$$n(E) = \frac{L^3}{2\pi^2 \hbar^3} (2m_e)^{3/2} E^{1/2} \quad (2.54)$$

ここで、 \hbar はディラック定数で $\hbar = h/2\pi$ である。ただし h はプランク定数とする。気体のエネルギーの増加につれ、電子の個数が増す。電子の集合に対し、ある点 r での電子の個数

を $N(r)$ とすれば, $N(r)$ は

$$\begin{aligned} N(r) &= \int_0^{E_F(r)} n(E) dE = \frac{L^3 (2m_e)^{3/2}}{2\pi^2 \hbar^3} \int_0^{E_F(r)} E^{1/2} dE \\ &= \frac{L^3 (2m_e)^{3/2}}{3\pi^2 \hbar^3} \end{aligned} \quad (2.55)$$

となる. ここで $E_F(r)$ は位置 r における集団の電子エネルギーの最大値に関連する量である.

フェルミエネルギー E_F は単純に満たされている状態のうちで最も高いエネルギーの値である. 我々が取り扱う多体系電子では, 電子の全エネルギー E_r は E_k を運動エネルギーとすれば $E_r = E_k + V(r)$ のようになる. 核に束縛されている電子は $E_r \leq 0$ であり, これは電子の最大エネルギーに対して $E_F = -V(r)$ を要請する. 式 (2.55) から電荷密度は,

$$\rho = \frac{N(r)}{L^3} = \frac{(2m_e)^{3/2}}{3\pi^2 \hbar^3} [-V(r)]^{3/2} \quad (2.56)$$

であることが導出される. ここで無矛盾となる条件は, 式 (2.56) の電子の電荷密度と共に核の電荷によって適切に形成されるポテンシャルが, ポテンシャルエネルギー $-V(r)$ を再現することである. 従って結果的に電荷密度 $-e\rho$ と静電ポテンシャル $-V(r)/e$ はポアソン方程式を満足せねばならない. すなわち

$$-\frac{1}{e} \nabla^2 V = -4\pi(-e\rho) \quad (2.57)$$

または

$$\begin{aligned} \nabla^2 V &= \frac{1}{r^2} \frac{d}{dr} \left(r^2 \frac{dV}{dr} \right) = -4\pi e^2 \rho \\ &= \frac{-4e^2 [-2m_e V(r)]^{3/2}}{3\pi \hbar^3} \end{aligned} \quad (2.58)$$

を満足せねばならない. 方程式 (2.22) と (2.24) は ρ と V に関し, 以下の境界条件を用いて解くことができる. まず, r がゼロに近づくほど, ポテンシャルエネルギーに近づく部分は原子核によるものにならなければならない. そのため $V(r)$ は $-Ze^2/r$ に漸近すべきである. また, r が無限に近づく場合は, 半径 r の球内の正味の電荷はゼロであるから, V は $1/r$ よりも速く収束し, $rV(r)$ はゼロに漸近せねばならない.

式 (2.22) と上記で与えられた境界条件は, Z, E, m_e, h はスケール因子のみにしか現れない無次元化された形式で表される. ここで,

$$V(r) = \frac{Ze^2}{r} \chi(r) \quad (2.59)$$

と表せば、以下のように変数変換を施したことになる。

$$r = a_{TF}x \quad (2.60)$$

ここで、 a_{TF} は Thomas-Fermi 遮蔽長で以下のように与えられる。

$$a_{TF} = \frac{1}{2} \left(\frac{3\pi}{4} \right)^{3/2} \frac{\hbar^2}{m_e e^2 Z^{1/3}} = \frac{0.885 a_0}{Z^{1/3}} \quad (2.61)$$

ここで a_0 はボーア半径で $a_0 = \hbar^2/m_e e^2$ である。この表式は、遮蔽クーロンポテンシャル (2.19) と大変似ており、単純なクーロンポテンシャルを $\chi(r)$ によって遮蔽していることを示している。簡単な微分代数学から、無次元の Thomas-Fermi 方程式が導かれる。

$$\chi^{1/2} \frac{d^2 \chi}{dx^2} = \chi^{3/2} \quad (2.62)$$

この式を満足する $\chi(r)$ の解は様々考案されており、本研究ではその中でも代表的な Moriele の近似解（後述）を使用することとする。

2.3.3 原子間ポテンシャル

さて、上の議論は単原子ポテンシャルに限定していた。そこで、これを遮蔽クーロンポテンシャルの形式を使って原子番号 Z_1 と Z_2 の原子間ポテンシャルへと拡張しよう。この場合、遮蔽関数 $\chi(r)$ を使った原子間ポテンシャルは r を 2 原子間の距離とすれば、以下のように与えられる。

$$V(r) = \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \right) \chi(r) \quad (2.63)$$

r は 2 原子間の距離である。2 原子の位置関係が与えられれば、原子間遮蔽関数は

$$\chi(r) = \frac{V(r)}{Z_1 Z_2 e^2 / r} \quad (2.64)$$

2.4 電子阻止能

固体内で運動する粒子の減速過程の要因で重要となるものに、固体内での電子との相互作用によるエネルギー損失がある。二体衝突近似法では、電子に依るエネルギー損失の見積もりに 2 つのモデルが採用される。第一に運動粒子の軌道に依存するモデルである。このモデルによるエネルギー損失を ΔE_e とすれば、

$$\Delta E_e = L_m N S_e(E) \quad (2.65)$$

である。ここで L_m は衝突間に対象とする粒子が固体内で運動した距離である。 $S_e(E)$ は電子による阻止断面積である。阻止能を見積もるための理論は存在するが、ここでは特に水素とヘリウムに対して過去に実験的に得られたフィット関数を導入する。

先ず、以下に水素の阻止能を与える式を示す [2].

$$S_e^{-1}(E) = (S_{\text{LOW}}^{\text{H}})^{-1} + (S_{\text{HIGH}}^{\text{H}})^{-1} \quad (2.66)$$

ここで、

$$\begin{aligned} S_{\text{LOW}}^{\text{H}} &= A_1 E^{0.45}, \\ S_{\text{HIGH}}^{\text{H}} &= (A_2/E) \ln [1 + (A_3/E) + A_4] \end{aligned} \quad (2.67)$$

次にヘリウムに対しては以下の式で阻止能を見積もることができる [3].

$$S_e^{-1}(E) = (S_{\text{LOW}}^{\text{He}})^{-1} + (S_{\text{HIGH}}^{\text{He}})^{-1} \quad (2.68)$$

ここで、

$$\begin{aligned} S_{\text{LOW}}^{\text{He}} &= A'_1 \bar{E}^{A'_2}, \\ S_{\text{HIGH}}^{\text{He}} &= (A'_3/\bar{E}) \ln [1 + (A'_4/\bar{E}) + A'_5 \bar{E}] \end{aligned} \quad (2.69)$$

である。 \bar{E} の単位は keV であることに注意が必要である。

重いイオンに対しては Lindhard-Scharff モデルが一般によく適用される [4]. すなわち

$$S_e(E) = K_L E^{1/2} \quad (2.70)$$

ここで Lindhard の阻止能係数 K_L は以下の式で与えられる。

$$K_L = \frac{1.212 Z_1^{7/6} Z_2}{Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}} M_1^{1/2} \quad (2.71)$$

次に入射粒子が標的粒子と衝突する際の衝突パラメータと最近接距離にのみに依存する Oen-Robinson モデルも提唱されている [5]. このモデルではエネルギー損失は二体間衝突時に起こるものとされ、損失エネルギーは

$$\Delta E_e = \frac{0.045}{\pi a^2 (1 - \alpha)} S_e(E) \exp[-0.3 r_0(s, E)/s] \quad (2.72)$$

で見積もることができる。 α は以下で定義される。

$$\alpha = (1 + 0.18611 R_0/a) \exp(-0.18611 R_0/a) \quad (2.73)$$

式中の R_0 は固体材料の原子個数密度の三乗根の逆数を示し、 a は Thomas-Fermi ポテンシャルの遮蔽長である。

参考文献

- [1] W. Eckstein, *Computer Simulation of Ion-Solid Interactions*, Springer Ser. Mater. Sci **10**, (1991).
- [2] H. H. Andersen and J. F. Ziegler, *Hydrogen Stopping Power and Ranges in all Elements*, Pergamon, New York (1977).
- [3] J. F. Ziegler, *Helium Stopping Power and Ranges in all Elements*, Pergamon, New York (1977).
- [4] J. Lindhard, M. Scharff, H. E. Schitt, K. Dan. Vidensk. Selsk., Mat.-Fys. Medd. **14** (1963) 33.
- [5] O. S. Oen, M. T. Robinson, Nucl. Instrum. Methods **132** (1976) 647.

第 3 章

タングステンへの水素イオンビーム照射によるイオン反射特性の解明

3.1 はじめに

ダイバータ表面は、原子、分子、単原子イオン、分子イオン状態での水素同位体の照射を受けることが予想される。加えて D-T 反応により生成されたヘリウム灰や、その他の不純物粒子照射も受ける。現在はダイバータ板の熱負荷低減の為に設けられたガスパフ技術などの開発が進み、ダイバータ板に降り注ぐ粒子のエネルギーは主に数十 eV 程度と予想されているが、実際には最大で MeV の領域までの高エネルギー粒子から、低いものでは 1eV 以下の低エネルギー粒子の照射を受けるため、境界領域での現象は複雑となる。

核融合炉運転時には通常の世界では想定できない規模の高粒子フラックス照射による熱負荷を受けるため、近年の核融合炉開発における重要課題に、ダイバータ材料の選定と、ダイバータ自体の設計がある。

そのためタングステン材料を対象としたエロージョンやナノ構造形成に関する調査のための基礎実験が集中してなされてきた [1]。しかしダイバータ設計のためのデータベースは未だなお不足している。核融合炉内でのプラズマと壁面との境界領域でおこる粒子リサイクリングは、炉全体の運転性能に大きな影響を及ぼすことは第 1 章で説明したが、これと関連して、水素分子がタングステン材料表面に照射されたときの反射に対する調査も不十分とされる [2]。

水素と固体表面相互作用解明の実験的アプローチとして、以前より数 keV 以下の低エネルギー水素イオンビーム照射によって固体表面から反射されてくる水素イオンの強度角度分布とエネルギー角度分布などを計測する実験が行われてきた [3, 4, 5, 6, 7]。過去に対象となった材料はモリブデン [3]、タングステン [4]、バナジウム合金 [5]、カーボンナノウォール

1 [8] などの様々で、正・負の水素単原子イオンビームが材料表面に照射されたときの反射特性が報告されている。また固体の表面形状が反射に与える影響の調査を行った報告もなされている [9]

本研究では標的材料を多結晶タングステンとした水素分子イオンビーム照射実験を行うことで、水素-タングステン材料表面相互作用の基礎過程の一端を明らかにすることを目的とする。水素分子イオンの振る舞いは境界領域プラズマにおいても重要な役割を担っている。一方で分子イオンの解離反応などで起こる種々の反応過程を調べる意味でも本研究は興味深い。また H_2 と H_3 イオンはもちろんのこと比較実験のために H , He イオンの照射もタングステンへと行った。そのときの反射イオンの強度角度分布とエネルギー角度分布を磁気運動量アナライザーで計測した。議論をより深いものにするため実験で計測する反射強度角度分布と反射エネルギー角度分布を二体衝突近似法に基づいた Atomic Collisions in Amorphous Target (ACAT) コード [10] で見積もり、実験と理論との比較もした。

3.2 実験系の解説と実験方法

本研究で使用した表面実験装置 [5, 6] はその外観として、イオン源、イオンビーム輸送系、アナライザーチェンバーから成り立っている。図 3.1 と図 3.2 に装置全体の写真と概略図を示す。アナライザーチェンバーは特に重要で、主要測定要素として磁気アナライザー (Magnetic momentum analyzer: MMA) と、試料ホルダーとから構成される。MMA と試料ホルダーは各々独立に回転機構を有し、材料から反射されたイオンの反射特性を特定の角度について計測したり、材料に対するビームの入射角度の変更ができる。本研究では図 3.3 に示すように入射角度 α をイオンの入射方向とターゲット表面の成す角度として定義し、反射角度 β を反射イオンとターゲット表面の成す角度と定義した (一般の入射角度の定義とは異なることに注意.)。イオン源内で水素やヘリウムのプラズマを発生させ、 H^+ , H_2^+ , H_3^+ と He^+ イオンビームを 2 keV で引き出す。イオン源から引き出されたイオンビームは、ディフレクターによってビーム進行方向を微調整され、そのすぐ下流にある最初のアインツェルレンズ 1 (静電レンズ) である程度の調整を行う。セレクターマグネットでは、ローレンツ力によりビームを偏向し、ターゲットに照射したいイオン種を選別することでビームの純度を上げる。アインツェルレンズ 2, 3 とディフレクターにより、ビームは更に微調整されながらアナライザーチェンバーへと輸送され、ターゲットに照射される。本研究で使用した MMA は試料表面から散乱された正・負イオンを散乱角度とエネルギーに分解して反射強度を測定でき、同時に正と負両方のイオンを検出できる点で優れている。

また、装置自体には入射ビームに対して 45° の位置に time of flight (TOF) 装置が設置されているが、これは散乱された中性粒子測定のために設けられたラインであるため本研究

では使用しない。

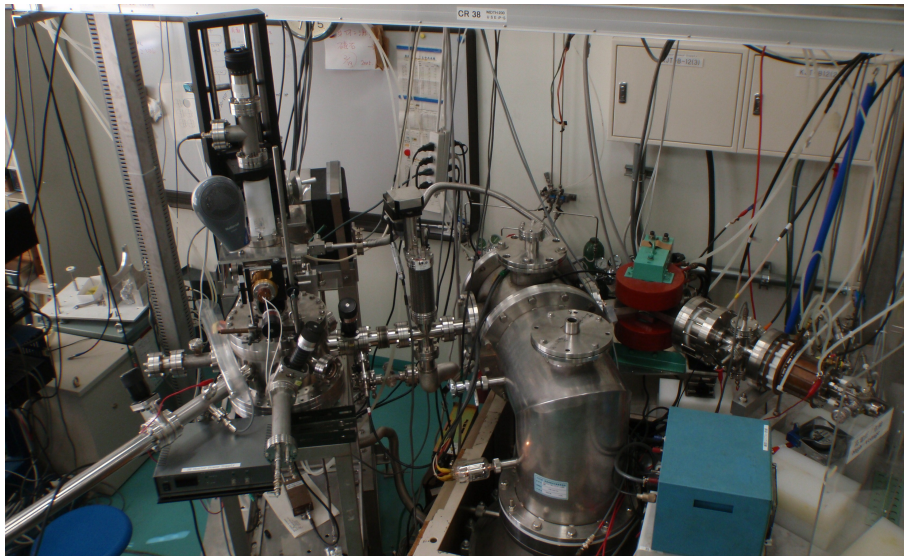


図 3.1 ビーム反射実験装置全体写真.

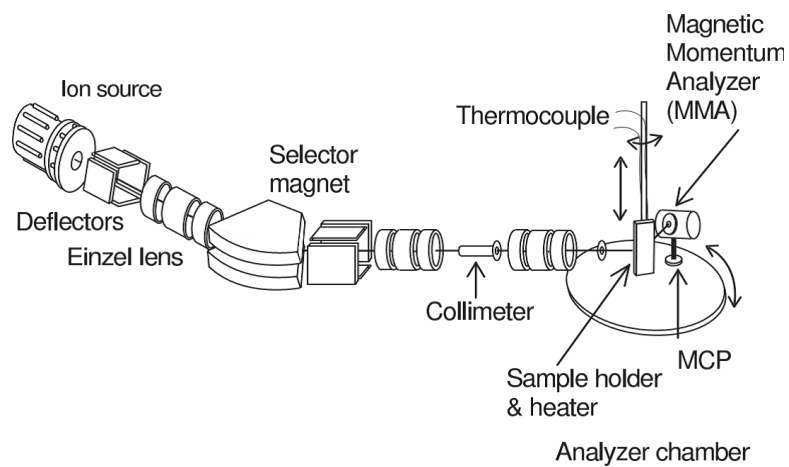


図 3.2 ビーム反射実験装置概略図.

3.2.1 イオンビームの生成と輸送系

イオン源

本研究で使用したイオン源を図 3.4 に示す。イオン源の駆動法は様々あるが、本研究で使用したイオン源はフィラメント型イオン源と呼ばれるものである。フィラメント型イオン源は図 3.5 に示されるようなイオン源内に設置されたタングステンフィラメントを加熱し、

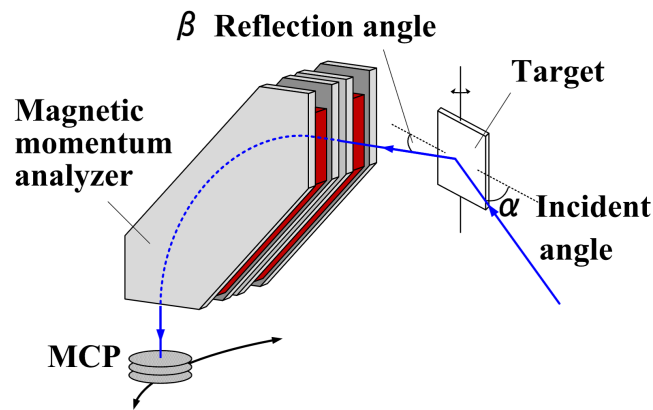


図 3.3 入射角度 α と反射角度 β の定義. α と β の誤差はそれぞれ $\pm 2^\circ$ と $\pm 1^\circ$ である.

表面から放出された熱電子の加速により中性原子と電子が衝突することで連続的に電離が生じる（熱陰極放電）。それにより生成されたプラズマからイオンを引き出す。図 3.5 では直径 0.2 mm のタングステン線を 2 本並列に並べて 11 A 程度の電流を流し加熱する。

イオン源内で生成されたプラズマはマルチカusp磁場により閉じ込められる。引き出しはプラズマ電極，電子を追い返す減速電極，アース電極の 3 枚の電極からなる。引き出し穴は、直径 6 mm の単孔である。イオンの引き出しはイオン源本体を高電圧に浮遊させて行う。イオン源から引き出された正，または負イオンは，ディフレクター，アインツェルレンズ系，セレクトターマグネットなどを通過してアナライザーチェンバーまで輸送される。典型的な電流値は，1.0-2.0 keV のビームエネルギーで数 10 nA である。

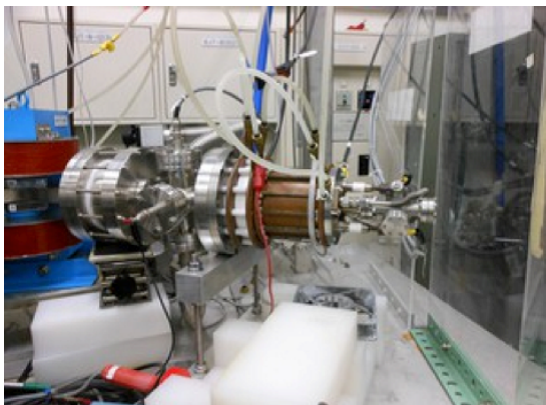


図 3.4 マルチカuspイオン源.

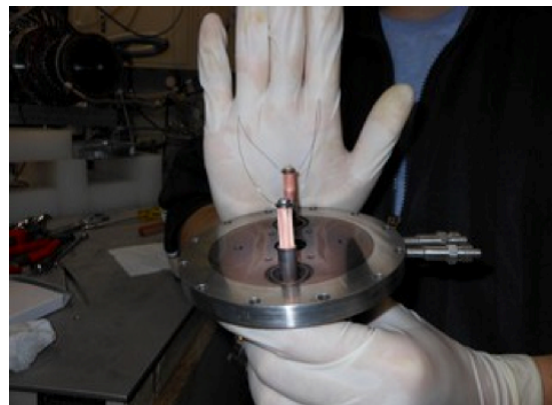


図 3.5 イオン源内の W フィラメント.

ディフレクター

ディフレクターとは図 3.6 のように 2 枚の対向平行板を 2 組配置したものである。片方の平行板に負電圧を印加し、他方の平行板には正電圧を印加する。これを上下左右 4 枚にすることによりイオンビームの進行方向を調整する。理想的には、この平行平板電極をビームラインに沿ってふたつ並べれば、ビームを曲げるだけでなく平行移動することができる。

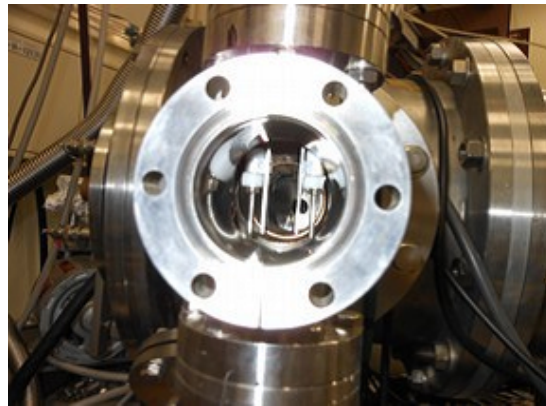


図 3.6 ディフレクター。

セレクターマグネット

例えばイオン源に供給されるガスが水素ガスであるとする。このときイオン源から引き出される正イオンには H^+ 、 H_2^+ 、 H_3^+ などが考えられる。この他にも O^+ などが混入されている場合がある。酸素は元々大気中に含まれていた水蒸気や壁面に吸着していた水などの様々な不純物混入ルートが考えられる。このようなビーム中の不純物を取り除きビームの品質を上げるためにも、ビームのエネルギーは保存したままでイオン種を 1 種類に選別可能な手段が必要になる。本研究では図 3.7 の写真のようなセレクターマグネットがその役割を果たす。電磁石によって磁場を発生させ、イオンビームを偏向させる。この偏向角度がイオンの質量に依存することから、欲しいイオン種に対応した電流を電磁石に流すことでイオン種を選別することが可能になる。

アインツェルレンズ

アインツェルレンズは図 3.9 のように 3 枚の電極を平行に並べ、右端と左端の電極をアースし、中央の電極を正または負にすることによってビームを収束させる静電レンズである。ビームがあたかも凸レンズのような作用を受ける。

アインツェルレンズ 1 はセレクターマグネットに入る前に設置されている。ビームのエネ

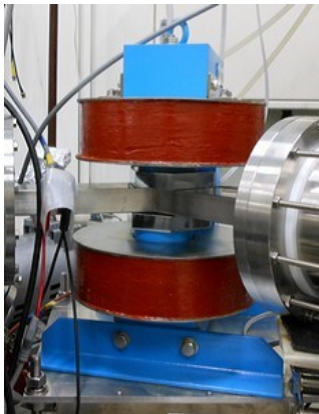


図 3.7 セレクターマグネット

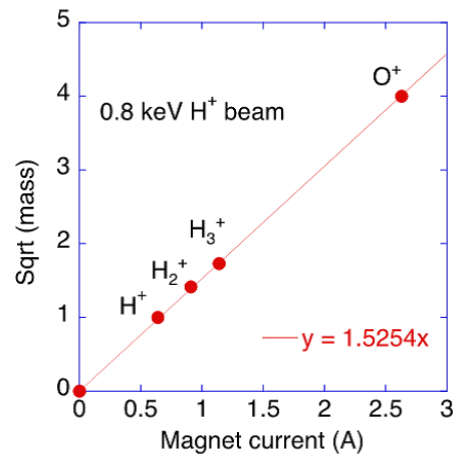


図 3.8 セレクターマグネット電流と質量の関係.

ルギーが低いと発散しやすいため，本実験装置ではセレクターマグネットより下流側にアイ
ンツェルレンズ 2, 3 が設置されており，これらが更にビームを取束させる。



図 3.9 アインツェルレンズ.

3.2.2 アナライザー系

磁気質量分析装置 (Magnetic momentum analyzer: MMA)

試料表面にビームが入射したとき，そこから散乱されてくるイオンは MMA により真
空中で捕集され検知される．MMA での粒子軌道の曲率半径を r とすると次の関係がある．

$$E = \frac{1}{2}mv^2, \quad evB = \frac{mv^2}{r} \quad (3.1)$$

これらの関係式より粒子のエネルギーは以下のように導かれる。

$$E = \frac{r^2 e^2 B^2}{2m} \quad (3.2)$$

なお本研究で使用した MMA は $r = 0.07$ m であるように設計されている。

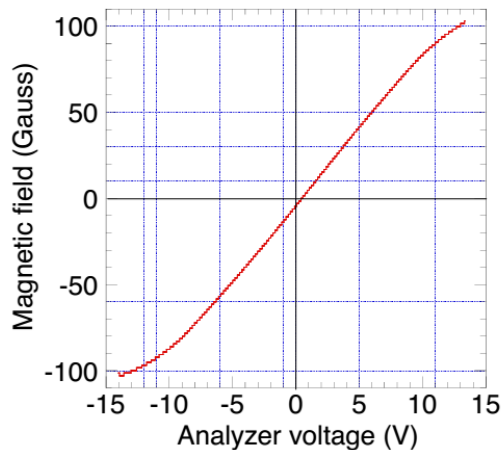


図 3.10 MMA に印加される電圧と磁場との関係。

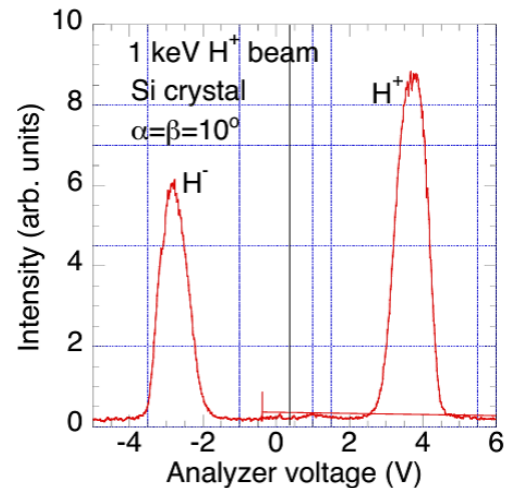
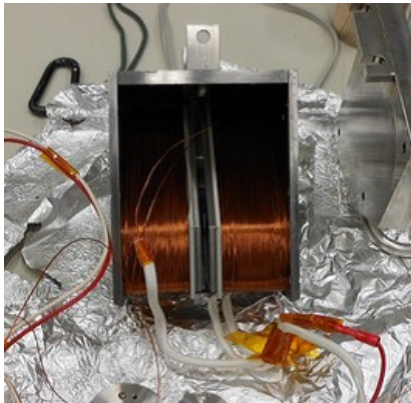


図 3.11 1 keV H^+ ビームをシリコン単結晶材料に照射したときの水素単原子イオンの反射スペクトル。

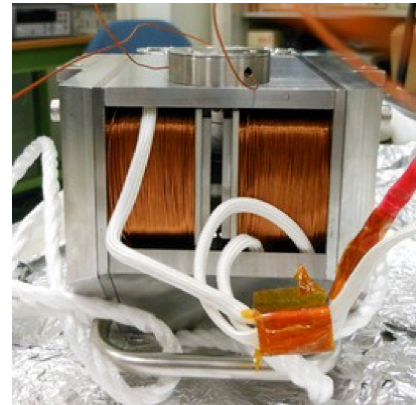
図 3.10 と図 3.11 より、捕集し検出された反射粒子のエネルギーを MMA のコイルに印加された電圧から算出する必要がある。この算出には非常に電流値の低い正と負イオンビームをダイレクトに MMA に入れてエネルギー校正式を導出して行う。アナライザのエネルギー分解能は E と δE をそれぞれエネルギーとエネルギーの広がりとするれば $E/\delta E = 45$ となるように設計されている。実際には δE は反射エネルギーの 10-20 % である。図 3.11 は、生のモニター信号強度であり、最終的に信号をフィットし、その積分値を反射強度として概算する。図 3.12 はアナライザのコイルの概観を示している。各コイルの導線の巻数は 3000 であり、それが両サイドに 2 つある。この 2 つのコイルの間には 2-3 mm の隙間があいている。コイルに電流を流すことで発生する熱を冷却するため、コイルを覆う水冷式のラジエータのジャケットが備え付けてある。上方にある 2 つの管は水の通り道である。

ターゲット

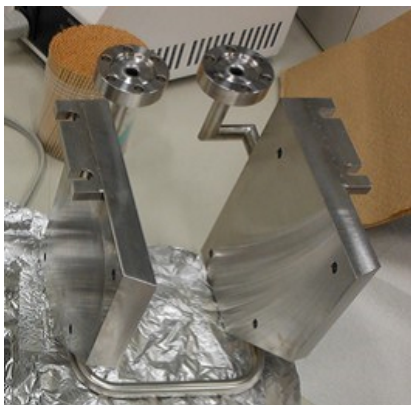
図 3.13 にターゲットをつけたターゲットホルダーの写真を示す。ターゲット部分には熱電対が装着されており、ターゲットを希望の温度に設定しセラミックヒータで昇温させることができる。ヒータでターゲット加熱する理由は、材料の温度依存性を調べるためと、計



[1] アナライザーコイル.



[2] アナライザー下部に MCP が備え付けてある.



[3] 水冷ジャケット.



[4] MMA 組立後.

図 3.12 磁気質量分析装置.

測前に標的材料表面の表面をベーキングするためである。イオン電流はターゲット表面で計っている。本研究ではターゲット試料に多結晶タングステンをを用いた。

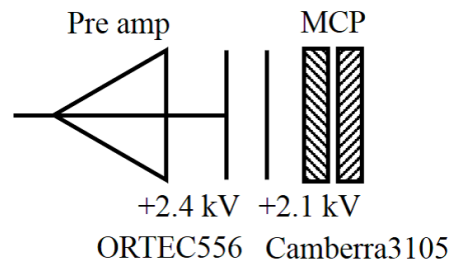
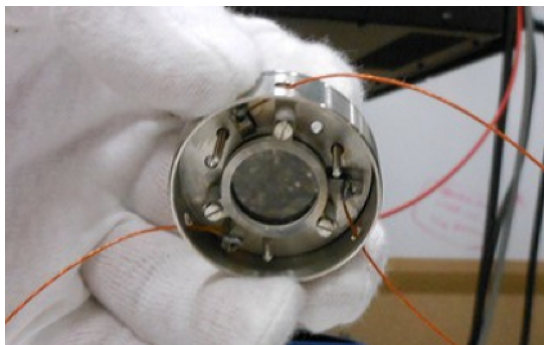


図 3.13 ターゲットホルダー.

マイクロチャンネルプレート (Micro channel plate: MCP)

MCP は入射してきたイオンが光電面に当たってできる電子を増倍させ電気信号パルス/電流を発生する検出器である。MCP は小さな光電子倍增管を束ねたような構造をして

おり、イオンが MCP の内壁に衝突すると 2 次電子が放出される。この 2 次電子が再び内壁に衝突を繰り返すアバランシェ効果により、入射粒子の強度は MCP を通すことによつて 10^6 倍程度に増幅される。このように MCP は、イオンや中性粒子を検知するのによく用いられる。ただし電流として測定できるような強い強度の粒子を測定するには向かない。MCP 表面に汚れや水分が付着すると感度が著しく低下することにも注意が必要である。ベーキングをする際にも MCP の耐熱を考慮しなければいけない。実験に用いた MCP の概観を図 3.14 に示す。また図 3.15 には MMA 系の配線図を示す。



[1] MMA の下部に取り付けられた MCP.

[2] MCP 配線図.

図 3.14 マイクロチャンネルプレート.

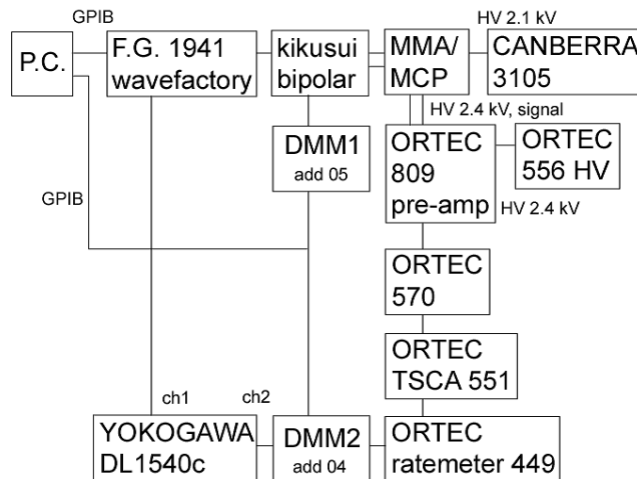


図 3.15 MMA 系配線図.

3.3 結果・考察

図 3.16 は H^+ , H_2^+ , H_3^+ と He^+ を照射したとき、タングステン材料表面から反射されたイオンの反射強度の入射角度 α と反射角度 β 依存性を表した 2 次元マップである。図中の実線は $\alpha = \beta$ となる鏡面反射を表している。ここで、 He^+ の反射がないことには注意したい。これはヘリウムの電子親和力は 0.077 eV [11] でヘリウム負イオンの生成率が極端に低いためである。また図 3.17 は実際の実験で得られた反射イオンの信号であるが、実験では分子イオンの反射はどの場合にも確認されなかった。実験の結果から、少なくとも 3 keV 程度までの入射では、反射される水素正イオンは通常水素負イオンの反射強度より大きくなることが分かった α が小さい低角度入射時では、粒子反射強度は鏡面反射付近で最大値をとる。僅かに鏡面反射からずれるのは、照射ビームの入射角度自体に若干の広がりがあり、低角度入射成分の反射率の方が高いためと考えられる。一方で α が大きくなると反射強度の最大値は鏡面反射からずれ、 $\alpha > \beta$ の位置で最大値を取るようになる。

次に反射角度と反射エネルギーの関係を表した結果を図 3.18 に示す。ここで H_3^+ を入射した際の単原子イオンの反射エネルギーは H^+ を照射したときの約 1/3 になっている。同様に H_2^+ を入射した際の単原子イオンの反射エネルギーは H^+ を照射したときの約 1/2 になっていることが分かる。これは、分子イオン状態での反射が無かったことも合わせれば、タングステン材料表面での衝突過程で殆どの分子が原子状態に解離し、解離した水素原子のエネルギーは元の水素分子が持っていたエネルギーが等分配された値になることを示唆している。更に反射エネルギーは β に対して単調減少している。この β に対する単調減少は古典的な二体衝突理論で説明することができる。粒子間衝突を弾性的であると仮定すると、一回の衝突による入射粒子のエネルギーの変化は散乱角の関数として次式で表現できる [12]。

$$\frac{E_f}{E_0} = \frac{\cos \theta \pm \sqrt{A^2 - \sin^2 \theta}}{1 + A} \quad (3.3)$$

ここで $A = M_2/M_1$ である。 E_0 , E_f はそれぞれ入射粒子と反跳粒子のエネルギー、 M_1 と M_2 は入射粒子と標的粒子の質量である。 θ は、 $\theta = \alpha + \beta$ である。式 (3.3) の実際の計算値を示したものが図 3.18 中の実線である。実験では水素分子イオン照射時に反射される単原子水素イオンは、反射強度角度分布、反射エネルギー角度分布など、全体として水素単原子イオン照射時の反射特性と同一の傾向を示す。この特徴は、原子状態に解離される瞬間に、初期状態に分子であった情報が失われるためであると考えられる。

反射角度と反射エネルギーで分解した反射強度を ACAT で計算しまとめた。その結果を

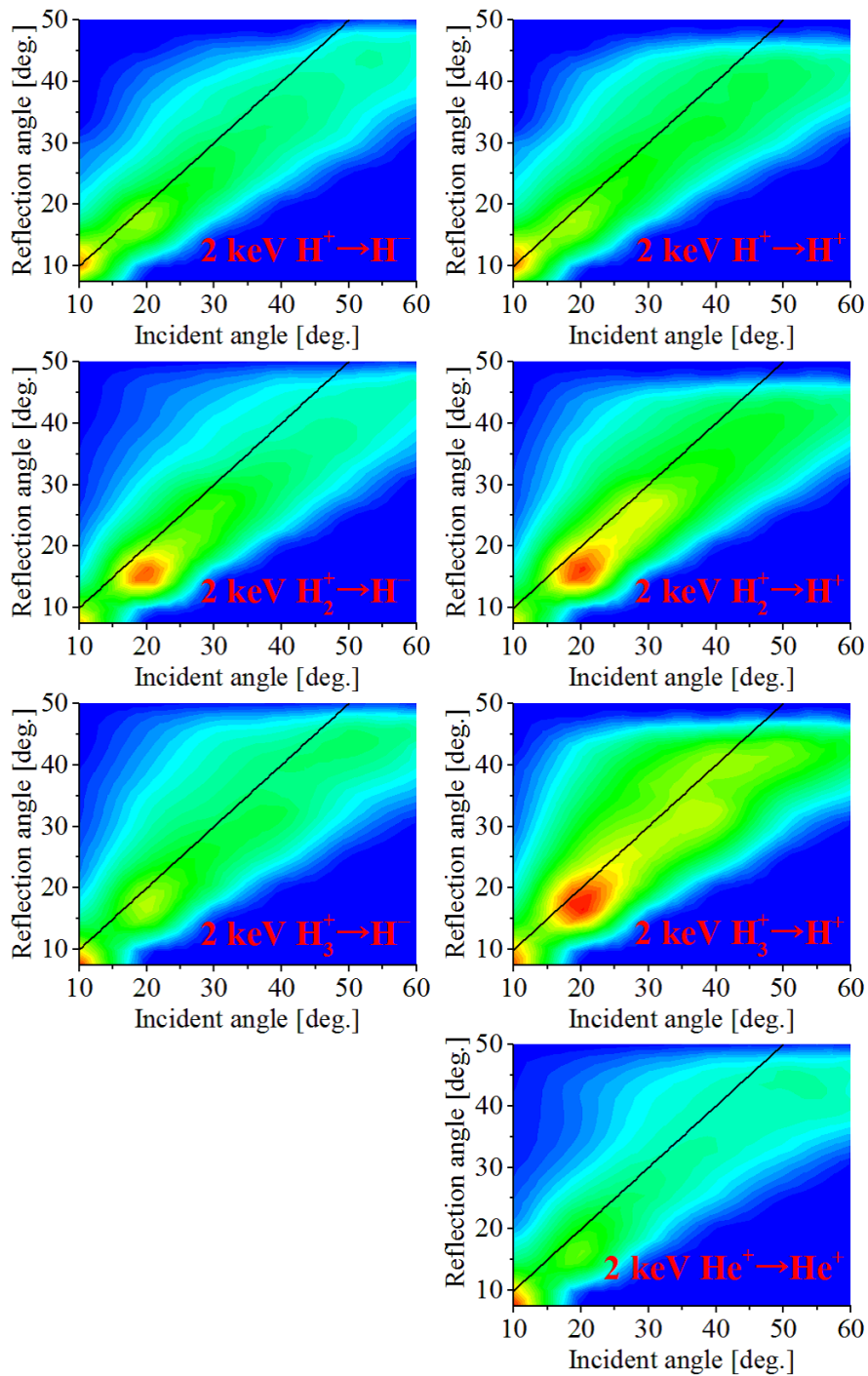


図 3.16 W 表面へ H^+ , H_2^+ , H_3^+ ビームを照射した際の H^+ , H^- イオン反射強度の入射角, 反射角依存性を示した 2 次元マップ. He^+ を照射したときの He^+ の反射についても示した. 入射エネルギーは 2 keV である. 実線は鏡面反射を表す.

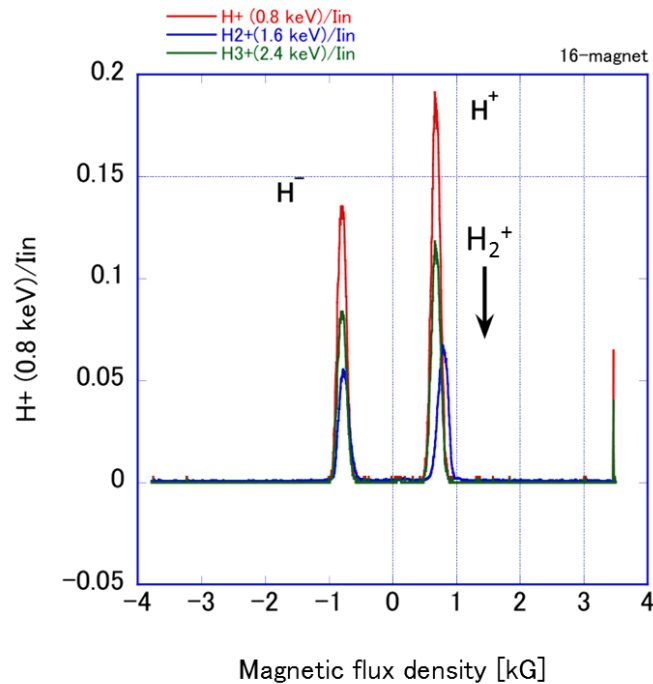


図 3.17 実験で反射イオンスペクトル．図中の矢印はイオンの信号がでるものと予測されるピーク位置を示すが，分子イオンの反射は確認できない．

図 3.19(a)-(c) に示す．入射角度が $\alpha = 10^\circ$ である場合，計算結果では β が小さい領域と高い反射エネルギーの領域で鋭いピークをもつ．一方で $\alpha = 25^\circ$ のときは低エネルギー成分が $\alpha = 10^\circ$ のときと比較して劇的に増加しており， $\beta = 90^\circ$ を中心として周辺の広い角度に分布している．高エネルギー成分は急速に小さくなっている．入射角度を増加させ， $\alpha = 60^\circ$ の時は高エネルギー反射成分が更に減少し，低エネルギー成分が $\alpha = 25^\circ$ のときと比較して残ることが分かる．ここで入射角度 α を大きくすることで相対強度が一桁下がっていることに注意したい．これらの結果は，低エネルギー反射成分がより多くの衝突を経験して表面から離脱したものから成ることを示していることが考えられ，入射角度のメモリーロスが起きていると考えられる．

図 3.19(d) には，2 keV の H^+ ビーム照射によりタンングステン表面から反射された H^+ の反射特性の結果を再度示した．図 3.19(e) は ACAT のシミュレーション結果から得た反射強度の 2 次元マップである．これは反射される全水素粒子に対して算出された反射強度角度分布である．先ほどと同様に図中の実線は鏡面反射を示している．この計算結果は，実験の結果と比較しても大まかには全体の傾向として似ているものの，実験結果の細部の特性を再現できず現象を説明しきれていない．そこで図 3.19(f) では ACAT シミュレーションにおいて 1.6 keV 以上で反射されてきた水素粒子のみに限定し角度分布を算出した．これは実験

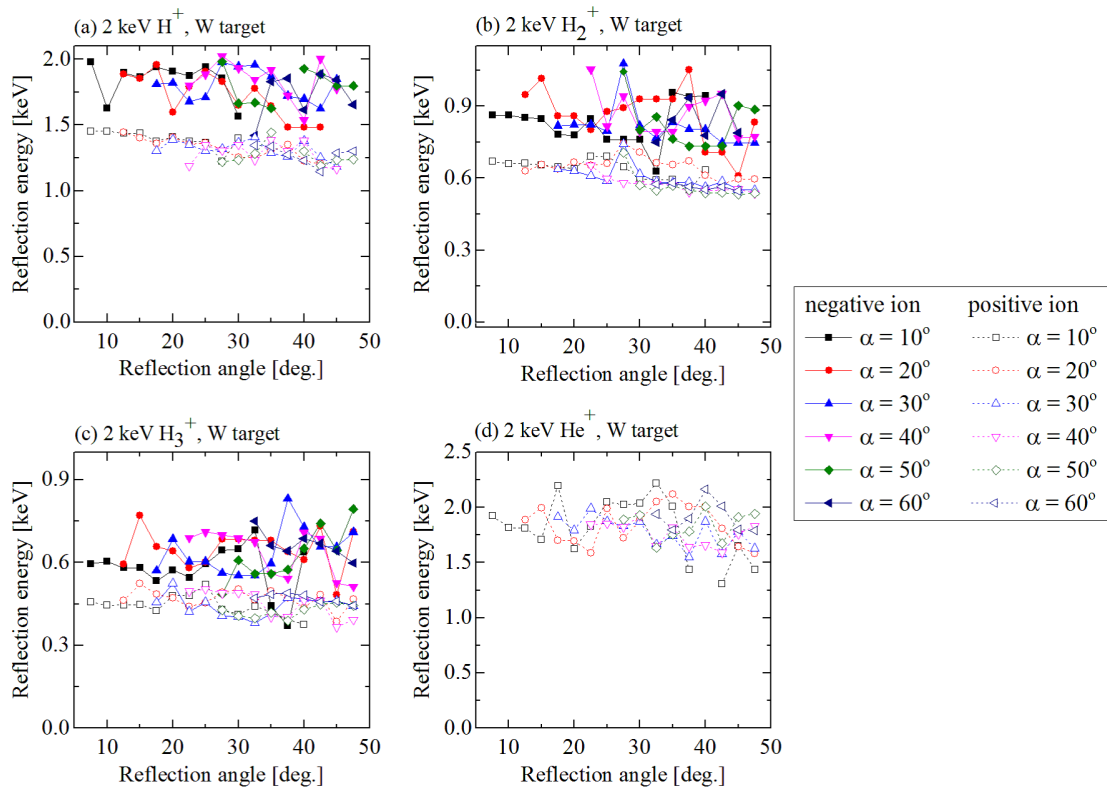


図 3.18 反射された単原子イオンのエネルギーの反射角度依存性.

とのより現実的な条件での比較となる．実験では 2 keV の H^+ ビーム照射で反射される水素イオンのエネルギーは，図 3.18 から明らかなように入射エネルギーと同じオーダーであり，エネルギー損失が小さい成分しか検出されていないためである．図 3.19(f) の結果と図 3.19(d) の結果を比較すれば，共通の特性として等高線が鏡面反射を示す実線と直交している点が挙げられる．更に，実験で鏡面反射からずれた成分強度が急速に下がるのは MMA に設置してあるスリットの効果であると考えられることもでき，図 3.19(f) のシミュレーション結果は実験で得られた結果を説明できるものに近づいた．ここで実験とシミュレーションで大きく異なるのは，実験では MCP の検出効率にエネルギー依存性が存在し，シミュレーションでは検出効率に反射エネルギーの依存性がないことである．つまり実験では，図 3.19(b)，(c) にあるような低エネルギー反射成分が検出できていない可能性があると言える．ただし，ACAT コードは中性粒子間の衝突計算のみしか取り扱うことができない．一方で本研究で計測しているのはイオンの反射のため，それ故イオンに対するポテンシャルの開発や，荷電交換現象などの現実起こりうる現象の効果も本来であれば考慮すべきである．

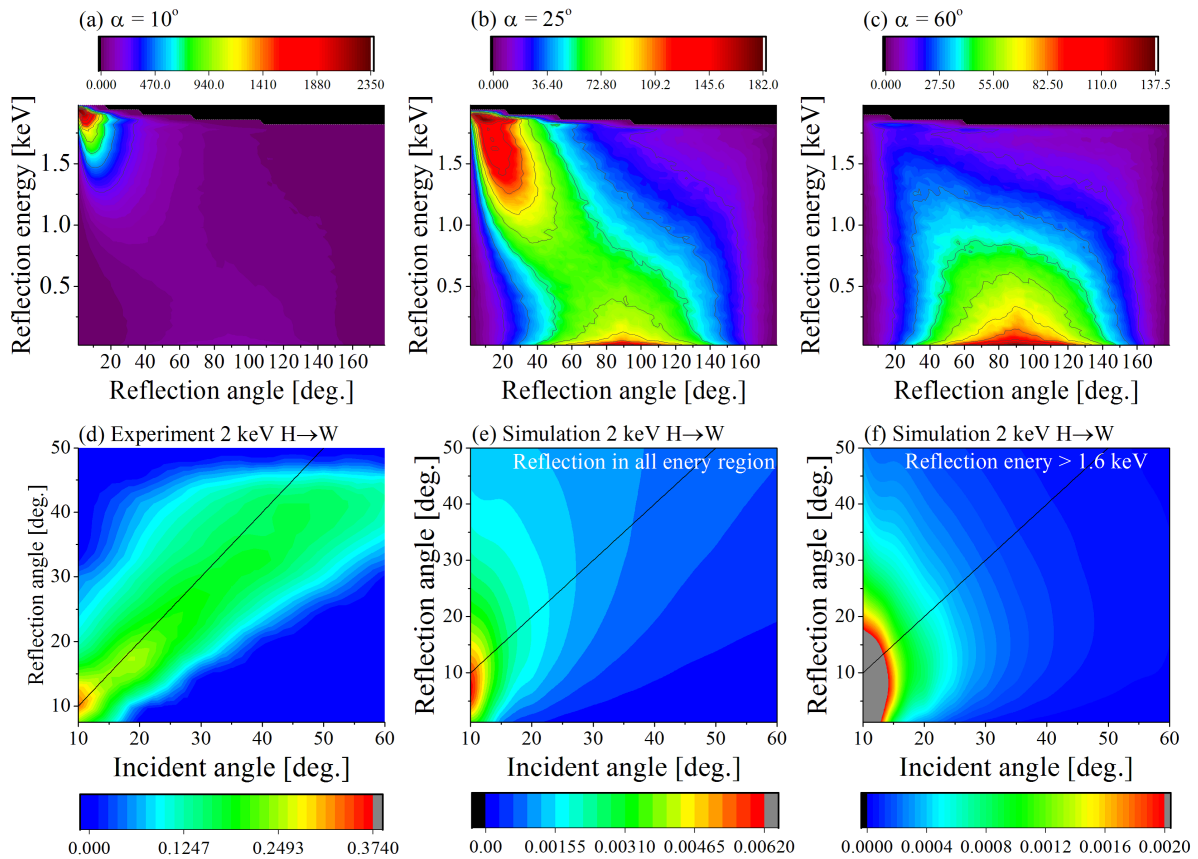


図 3.19 ACAT による (a) $\alpha = 10^\circ$, (b) $\alpha = 25^\circ$, (c) $\alpha = 50^\circ$ のときの反射強度の計算結果と, (d)2 keV の H⁺ 照射時の H⁺ 反射強度を表した入射角度と反射角度に関する 2 次元マップ, 及び (e), (f) ACAT で見積もった同様の 2 次元マップ. ただし (e) は全反射粒子, (f) については 1.6 keV で反射してきた水素のみ考慮している.

3.4 結論

本章では水素-タングステン材料相互作用の基礎課程理解の一環として, 2 keV 程度の水素分子イオンビームを多結晶タングステン材料へと照射したときそこから反射される水素イオンの反射強度角度分布と反射エネルギー角度依存性を実験的に計測した. この研究で明らかとなったのは, 材料表面と衝突時に水素分子イオンは即座に解離され原子状態となり, それまで分子状態であったという情報を失ってしまうということと, 解離によって生成された水素原子のエネルギーは, 元々の水素分子が持っていたエネルギーが等分配されたエネルギーに相当するということである. すなわち 1.8 keV の H₃⁺ ビームをタングステンに照射した場合と, 1.2 keV の H₂⁺ ビームをタングステンに照射した場合の材料表面から反射されてくる水素単原子イオンの反射特性は 0.6 keV の H⁺ ビームをタングステンに照射した場合の

特性に近いものになるということが結論付けられた。

また実験と ACAT によるシミュレーションの結果を比較することで、実験では低エネルギー粒子反射を計測できていない可能性が初めて指摘することができた。よってシミュレーションの重要性もここで合わせて強調しておく。

参考文献

- [1] S. Kajita, W. Sakaguchi, N. Ohno, N. Yoshida, T. Saeki Nucl. Fusion **49**, (2009) 095005.
- [2] N. Ohno, N. Ezumi, S. Takamura, S. I. Krasheninnikov, A. Yu. Pigarov, Phys. Rev. Lett. **81**, (1998) 818.
- [3] H. Yamaoka, Y. Matsumoto, M. Nishiura, K. Nishimura, M. Sasao, M. Wada, J. Nucl. Mater. **337-339**, (2005) 942.
- [4] H. Yamaoka, Y. Matsumoto, M. Nishiura, K. Tsumori, H. Sugawara, S. Takeuchi, K. Shinto, M. Sasao, M. Wada, Rev. Sci. Instrum. **73**, (2006) 03C301.
- [5] H. Yamaoka, N. Tanaka, Y. Matsumoto, M. Nishiura, K. Tsumori, H. Sugawara, S. Takeuchi, S. Shinto, A. Okamoto, M. Sasao, M. Wada, J. Nucl. Mater. **363-365**, (2007) 1304.
- [6] H. Yamaoka, N. Tanaka, K. Tsumori, M. Nishiura, T. Kenmotsu, M. Hirouchi, M. Kasaki, K. Shinto, M. Sasao, Y. Matsumoto, M. Wada, Rev. Sci. Instrum. **79**, (2008) 02C701.
- [7] M. Wada, T. Kenmotsu, Y. Matsumoto, M. Nishiura, M. Sasao, K. Tsumori, H. Yamaoka, Plasma Device and Operations **17**, (2009) 132.
- [8] N. Tanaka, H. Yamaoka, M. Nishiura, K. Tsumori, T. Nagamura, M. Sasao, T. Kenmotsu, Y. Matsumoto, M. Wada, J. Nucl. Mater. **390-391**, (2009) 1035.
- [9] N. Tanaka, S. Kato, T. Miyamoto, M. Nishiura, K. Tsumori, Y. Matsumoto, T. Kenmotsu, A. Okamoto, S. Kitajima, M. Sasao, M. Wada, H. Yamaoka, Rev. Sci. Instrum. **85**, (2014) 02C311.
- [10] Y. Yamamura, Nucl. Instrum. & Methods B **51**, (1990) 407.
- [11] V. Bunge, C. F. Bunge, Phys. Rev. A **19**, (1979) 452.
- [12] H. Niehus, W. Heiland, E. Taglauer, Surf. Sci. Rep. **17**, (1993) 213.

第 4 章

材料内蓄積水素同位体の粒子照射誘導放出

4.1 はじめに

核融合炉発電の実現へ向け、核融合炉内のダイバータが抱える諸問題は多岐に渡る。その中でも、特に重要とされている問題のひとつに、水素の放射性同位体であるトリチウムの吸蔵がある。国際熱核融合炉 International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER) ではフルタングステンでのダイバータ建造が決定されている [1, 2]。その理由の一つに、従来使用されてきた炭素材料と比較して、タングステン材料はトリチウム吸蔵量を少なく抑えられることが期待されていることがある。

リサイクリングと、運転時の安全性の面でトリチウム蓄積量を減少させるために、ダイバータ内のトリチウム吸蔵量は定量的に見積もられるべきである [3]。核融合炉運転時には、水素同位体がダイバータに向かって飛来し、その一部は固体内に吸蔵され、結果ダイバータ板内の水素濃度が上昇することとなる。これと同時に、材料中に吸蔵されていた水素同位体が、飛来してきた粒子との衝突によって固体外へと弾き出し（スパッタリング）が起こることによって濃度の減少に繋がる現象も同時に起こることになり、大変複雑になる。また現在、実験室でも同位体交換に関する研究が精力的に行われている。同位体交換実験とは、初期状態として材料内にある水素同位体 i ($i = \text{H, D, T}$) を吸蔵させておき、その材料に j ($j \neq i$) の水素同位体を照射することで、材料内の水素同位体 i を除去し、 i と j を入れ替える実験のことである。従って水素照射によりどのような現象の発生が見込まれるかなどの定量的な議論が求められる。プラズマ粒子の照射過程は、プラズマ-壁面相互作用の分野において伝統的には二体衝突近似法 (BCA) によってシミュレーションされてきた。

過去に BCA 理論に基づき開発された代表的なシミュレーションコードには、TRansport

of Ions in Matter (TRIM.SP) [4], MARLOWE [5, 6], Atomic Collisions in Amorphous Target (ACAT) [7, 8] がある。これらのコードは初期の段階で非結晶材料への粒子の打ち込みしか取り扱うことができなかったが、結晶への打ち込みや、ある程度の時間発展を動的に取り扱えるダイナミックコードへと発展した [9, 10, 11, 12, 13]。一方で更に精度の高いシミュレーション技法として分子動力学 (MD) がある。近年ではコンピュータの進歩と共に PWI 分野でも盛んに採用されている [14, 15, 16]。PWI 分野では、しばしばプラズマ粒子が固体表面へと照射され反射してきた割合を示す反射率や、材料原子の弾き出しの収率を示すスパッタリング収率などの物理量がシミュレーションと実験の結果で比較検討を行うときがある [17, 18]。ところが実験値と対比するためにはシミュレーションにおいて一般的に 10^7 個以上の粒子を固体に入射させ、十分な統計量を算出する必要がある。その点では計算精度が高い分、計算コストの高い MD は、統計量を得るのに十分な入射数を実現するのは極めて難しい。一方、BCA コードであれば一日で最大 10^8 個程度の計算が可能である。また MD は対象とする系に適切なポテンシャルを採用する必要がある、どのような複雑系をも計算できるわけではなく、運用面で厳しい制限を受ける。この点でも、BCA は MD には無い利点を持ち、Thomas-Fermi ポテンシャルによって全原子の組み合わせを解くことが可能な汎用性を持つ。他にも BCA のみを持つ様々な利点があるが、BCA シミュレーションは今日でも PWI シミュレーション分野において大きな役割を担っているのは間違いない。

本研究では水素同位体が吸蔵されたタングステン材料に、それと同種、もしくは異種の水素同位体を照射した際の同位体交換について議論をする。このため、まずはタングステン材料の単位表面積当たりの水素同位体の個数を与えるバランス方程式を導入することにする。第二に、バランス方程式中のパラメータとなる脱離収率と吸収率を、BCA モデルをベースに山村らによって開発された ACAT コードで見積もる。

4.2 シミュレーションモデル

4.2.1 バランス方程式

水素同位体プラズマ照射下でのタングステン中の水素同位体の粒子バランス方程式を考える。まず、単位面積あたりに吸蔵されている水素同位体種 i の個数を N_i と定義する。即ち N_i の単位は m^{-2} である。更に吸収率を A_i 、脱着収率を D_{ij} とし、入射フラックスを ϕ_i とする。ここで i と j は同位体の種類を示す添字である。特に D_{ij} のひとつ目の添字はタングステン材料中に吸蔵されている水素の同位体の種類を示し、ふたつ目の添字は入射する水素同位体の種類を示すものとする。 ϕ_i の単位は $\text{m}^{-2}\text{s}^{-1}$ であり、 A_i と D_{ij} は無次元量である。このときバランス方程式は以下で与えられる。

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} N_H \\ N_D \\ N_T \end{pmatrix} = \left[\begin{pmatrix} A_H & 0 & 0 \\ 0 & A_D & 0 \\ 0 & 0 & A_T \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} D_{HH} & D_{HD} & D_{HT} \\ D_{DH} & D_{DD} & D_{DT} \\ D_{TH} & D_{TD} & D_{TT} \end{pmatrix} \right] \begin{pmatrix} \phi_H \\ \phi_D \\ \phi_T \end{pmatrix} \quad (4.1)$$

この方程式を用いて、タングステン材料中に吸蔵されている水素同位体と異種の水素同位体を照射した際の同位体交換について議論する。

4.2.2 二体衝突近似法

今回のシミュレーションでは二体衝突近似法に基いて開発された ACAT を用いる。ACAT では複数あるポテンシャルから適宜ユーザーが選択し使用することができる。本研究ではモリエールが導いた近似解 [19] を Thomas-Fermi ポテンシャル [20, 21] のクーロン遮蔽項として採用した。従って本シミュレーションにおける二体間ポテンシャルは a を遮蔽長 [22] とすれば以下のようなになる。

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \chi\left(\frac{r}{a}\right) \quad (4.2)$$

$$\chi(x) = \sum_{i=0}^3 \alpha_i \exp(-\beta_i x) \quad (4.3)$$

ここで Z_1 と Z_2 は原子の元素番号であり、 $(\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3) = (0.35, 0.55, 0.1)$, $(\beta_1, \beta_2, \beta_3) = (0.3, 1.2, 6.0)$ である。BCA シミュレーションは計算に登場する全粒子が以下の条件を満足したときに終了する。

1. 固体内で運動する粒子が原子核と電子的阻止能により徐々に減速していき、運動エネルギーが 1 eV 未満になった場合。
2. 固体内で運動する粒子が固体表面へ到達し、表面結合エネルギーを打ち破るのに十分なエネルギーを持って真空領域へと放出された場合（反射またはスパッタリング）。

表面結合エネルギーは反射やスパッタリングに寄与するが、今回はバルクの結合エネルギーを採用した。ACAT コードは非結晶固体内で起こる原子の衝突カスケードを二体衝突で模擬しシミュレーションする。標的原子はランダムに配置され非結晶材料を模擬する。ただし、ひとつの材料原子が平均体積 V_0 を占めるように配置される。 V_0 は以下の式で決定される。

$$V_0 = \left(\sum r_i n_i \right)^{-1} \quad (4.4)$$

上式中の n_i は該当の材料が純物質状態での一般の原子個数密度である。 r_i は材料を合金とした場合の構成比を示しており、 $\sum r_i = 1$ を満たすものとする。オリジナルの ACAT のモデルでは、標的材料を複数元素の混合物に設定する場合、合金のような物質しか取り扱うことができない。つまり式 (4.4) のように材料原子を配置してしまえば、例えばタングステン中の水素同位体の蓄積濃度を上げていくとタングステンの個数密度が減少してしまう。

今回のシミュレーションでは上の例でも示したようなリテンションの問題を扱う。即ち、想定する材料物質は ACAT のような合金系ではない。近年の第一原理計算や分子動力学計算などにより、タングステン材料内に吸蔵されている水素同位体はタングステン原子の格子に存在することが分かっている。またタングステンの結晶構造は周辺に水素が吸蔵されていても殆ど歪められないことも報告されている。従って、タングステン材料中の水素の蓄積濃度に関わらず、タングステンの個数密度は一定に保たれるべきである [23]。よって本研究では ACAT の標的原子生成法をタングステンの個数密度が水素の吸蔵量に依存しないよう改良を行った。具体的には $c_i (i = \text{H, D, T})$ をタングステン材料中の水素同位体濃度とし、タングステンとは独立なパラメータとする。この時、全体としての粒子個数密度は $n_W(1 + \sum c_i)$ と表現でき、先ほどの一粒子が占める平均体積 V_0 は、

$$V_0 = \left[n_W \left(1 + \sum c_i \right) \right]^{-1} \quad (4.5)$$

と再定義できる。このコード修正により、水素同位体の個数密度である $n_W c_i$ が増えても、タングステンの個数密度 n_W は不変に保たれる。図 4.1 には水素の蓄積濃度を変更した時の V_0 の三乗根の値の変化を示した。

本シミュレーションモデルでは、標的材料の初期状態として H/D/T 原子のいずれか一種の水素同位体が非結晶タングステン材料内に一様に分布しているものと仮定する。水素同位体の蓄積濃度は 0.1-10 % とする。このような材料に水素同位体を 0.1-10 keV のエネルギーで表面に直入射させる。照射された入射粒子は表面から離脱するか、固体内でエネルギーを損失して堆積する。この過程の中で原子衝突の効果で真空中へと放出された吸蔵粒子も解析する。

4.3 結果

今回の BCA シミュレーションでは、入射粒子として軽水素 (H)、重水素 (D)、三重水素 (T) を選択し、十分な統計量を算出するために 10^7 回の水素同位体の入射イベントが繰り返される。ここで粒子が固体に入射された際に起こる現象を分類すれば以下のような

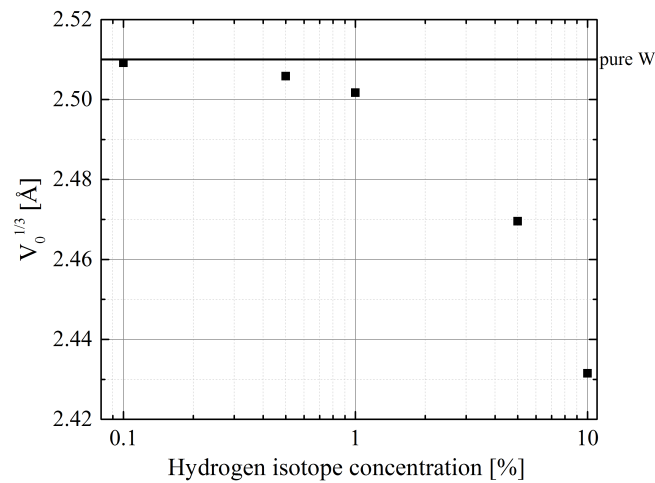


図 4.1 変更を加えた ACAT での材料原子が占める平均体積 V_0 の材料中の水素同位体濃度依存性. 水素の濃度の増加に伴い, タングステン原子の数密度を一定に保つよう V_0 は小さくなる.

る. まず入射粒子に関して, 入射粒子が固体内へ侵入し, 材料原子との衝突を繰り返した後, 固体物質内部から真空領域へと脱出した場合, それは反射として判定される. 逆に固体内での衝突により入射粒子が減速し運動エネルギーが 1 eV 未満となった場合, その状態を吸収と判定する. 原理的に反射と吸収の割合は, それらの和は 1 になるはずであるが, 反射と吸収の各々の割合は当然ではあるが粒子の入射エネルギーとタングステン材料内の水素同位体の蓄積濃度に依存しているはずである. 表面の粒子配置などにも依存してくる. ACAT では前粒子との衝突が終わり, 次粒子との衝突が起こる度に衝突対象を 2 節で解説した手順で生成されるため, 入射の度に別の表面に入射していることになる. 一方, 材料内に吸蔵されている水素同位体粒子は粒子の衝突の効果より運動エネルギーを得て固体表面に到達し, 真空領域へ弾き出される場合がある. 本研究ではこの現象を脱離と判定する. 一般的には粒子間衝突の結果, 弾き出しにあい真空中へ放出された粒子はスパッタされたと表現するが, それは元の母材を構成する原子が弾き出された場合に適用するのが自然なため, 吸蔵されている水素同位体を取り扱う本研究では言葉を使い分けることにする.

図 4.2 は吸収率と脱離収率のエネルギー依存性についてまとめた結果である. 図中には 9 つのケースがあるが, これは入射粒子と吸蔵されている水素同位体カップルに対応している. 全ての場合で入射エネルギーが大きくなれば吸収率も大きくなるのが分かる. 図 4.3 は図 4.2 の結果を水素同位体の蓄積濃度依存性としてまとめ直したものである. この図から全ての場合において, 吸収率はタングステン内に吸蔵されている水素同位体の濃度にはほぼ

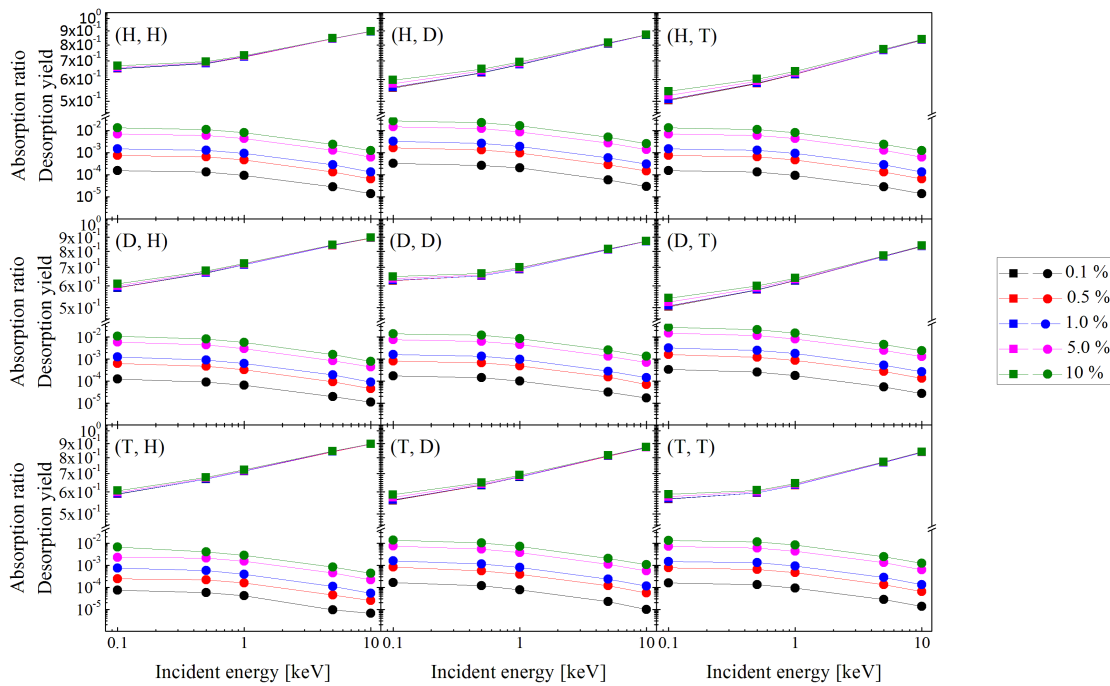


図 4.2 水素同位体の吸収率と脱離収率の入射エネルギー依存性. 四角と丸のシンボルはそれぞれ吸収率と脱離収率を示す. 図中の (X, Y) の X は材料中に吸蔵されている水素同位体の種類を, Y は入射粒子の種類を表す.

依存しないことが確認された. ここで示される吸収率は, 材料内の水素同位体の照射による増加を見積もるために重要な量となる. これと対を成す量として脱離収率があるが, これは粒子照射下でタングステン内の水素の減少を見積もるために必要とされる量である. 今回の BCA シミュレーションでは脱離収率のシミュレーションも行った. ここで改めて本研究における脱離収率を解説すると, 粒子の入射イベントが 1 回起こった際にタングステン内の吸蔵粒子が衝突の効果でエネルギーを受け取り, 弾き出しに合うことで固体内から真空中へ放出される割合を示す量である. 図 4.2 から, 入射粒子と吸蔵されている水素同位体の種類に関する全組み合わせに関して脱離収率は入射エネルギーに対して単調減少することが分かる. 全ての入射粒子の場合に共通して, タングステン材料内に吸蔵されている水素同位体が軽水素場合, 脱離収率は重水素, 三重水素が吸蔵されているときよりも小さくなる. また, 図 4.3 を見れば水素同位体の蓄積濃度を増加させれば, 脱離収率も増加することが分かる. ここで図 4.3 の脱離収率に関する水素同位体の濃度依存性を示すプロファイルに対し, 線形フィッティング解析を適用してみる. その結果, 各プロファイルの傾きは 0.93-0.98 となっ

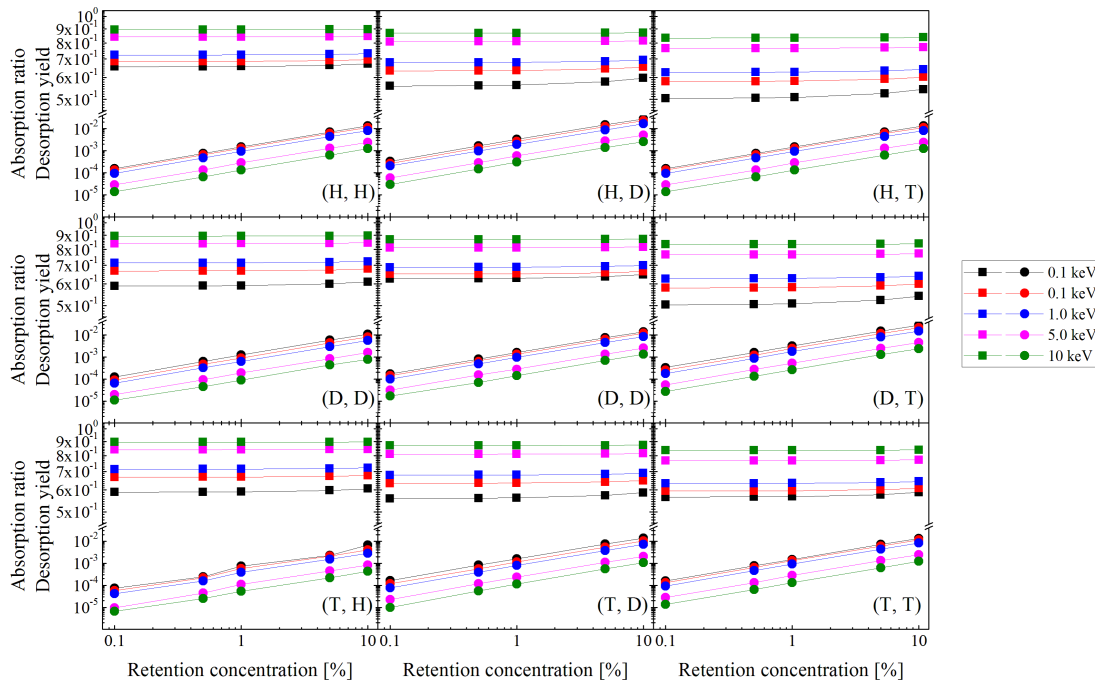
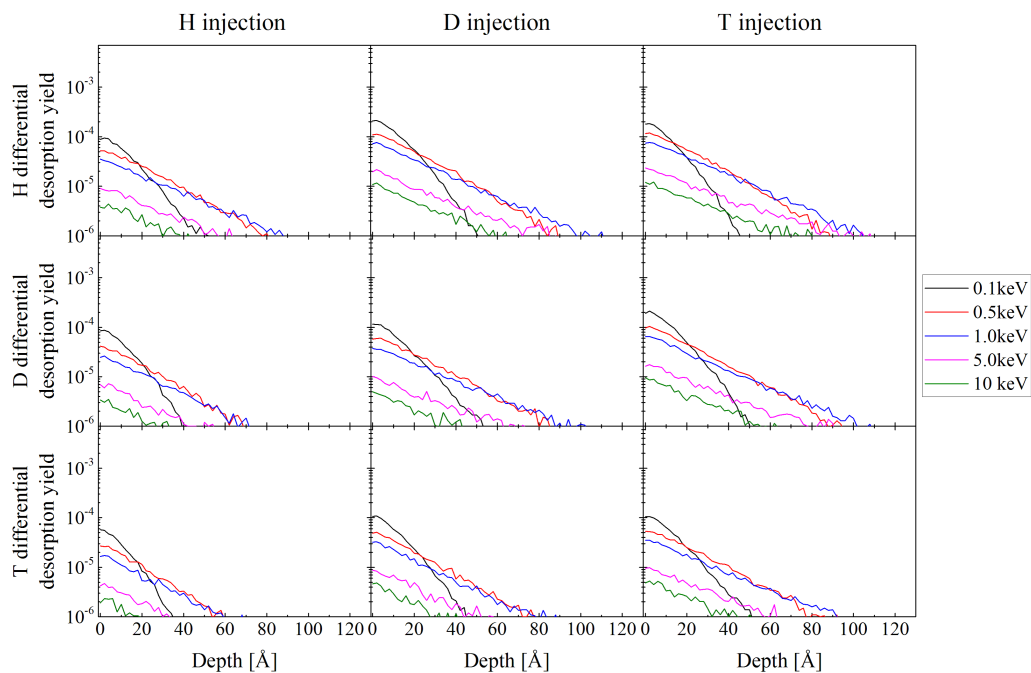


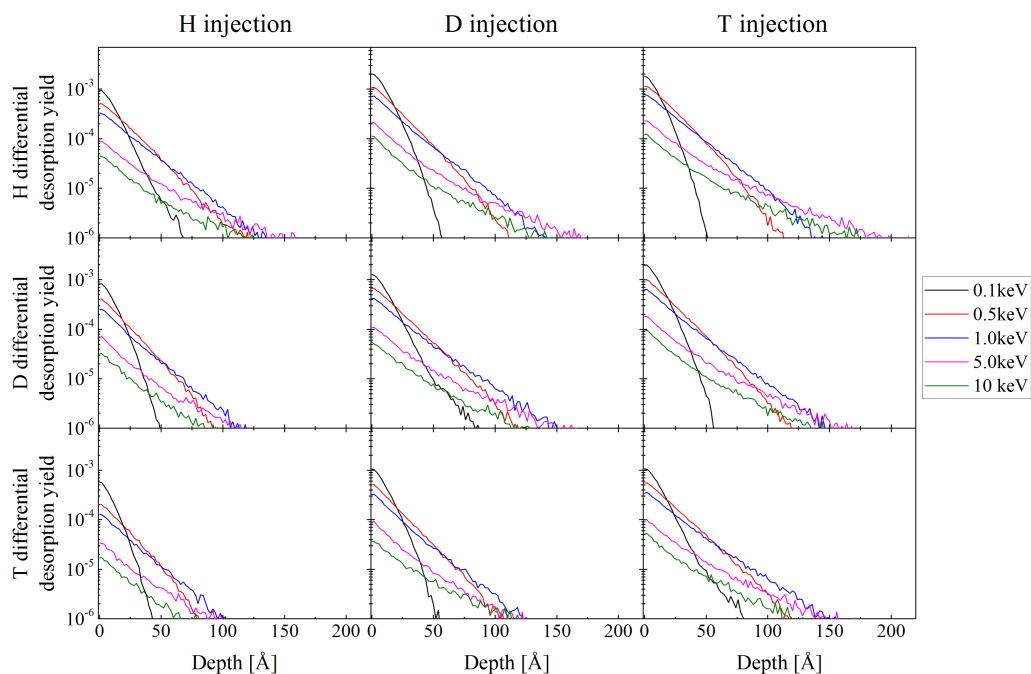
図 4.3 水素同位体の吸収率と脱離収率の材料内の水素同位体の蓄積濃度依存性．四角と丸のシンボルはそれぞれ吸収率と脱離収率を示す．図中の (X, Y) の X は材料中に吸蔵されている水素同位体の種類を，Y は入射粒子の種類を表す．

た．すなわち，脱離収率はタングステン材料内の水素同位体濃度にほぼ比例するということが結論付けられる．

ここで微分脱離収率を定義する．これは真空中に放出された水素同位体のうち，初期状態で $z-z + dz$ の深さに堆積していたものをカウントした量であり，この微分脱離収率を最表面からの深さについて $0-\infty$ で積分したものが脱離収率となる．図 4.4 はこの微分脱離収率を示した結果となっており図中の (a), (b) は，それぞれ蓄積濃度が 1.0 % のものと 10 % の結果である．全ての入射粒子と吸蔵されている水素同位体の種類の組み合わせにおいて，入射がより低エネルギーになれば浅い深さ吸蔵されていた水素同位体の寄与が大きくなるのが分かる．特に図 4.4(b) に傾向が顕著に表れているが，入射粒子と吸蔵された粒子の種類が等しく，入射エネルギーが 100 eV と低い場合，微分脱離収率プロファイルにテールが存在し，その他の場合と比較してより深くに吸蔵される水素同位体の取り出しが可能となる



[a] 蓄積濃度 1.0 %



[b] 蓄積濃度 10 %

図 4.4 水素同位体の初期吸蔵深さに関する微分脱離収率

ことが分かる。

4.4 考察

図 4.2 に示されるように、水素同位体の脱離収率が低エネルギー照射時に増加するのは以下の理由が考えられる。一般に衝突時に入射粒子から標的粒子へと輸送されるエネルギーの輸送効率は、高エネルギー衝突のときよりも低エネルギーの衝突のときに高くなる。従って入射エネルギーが低い場合には表面から浅い部分でエネルギー輸送効率の大きい衝突が起こることになる。このため表面付近で反跳粒子が発生する確率が増加する。結果として表面付近で発生した反跳粒子は固体内深くで発生したものよりも大きなエネルギー損失を経験せず、スパッタされるのに十分なエネルギーを持った状態で物質最表面に到達し表面に放出される頻度が増えるためであることが考えられる。図 4.4 の結果も同様の理由で説明ができる。次は逆の場合として入射エネルギーが高い場合を考えよう。この場合エネルギー輸送効率が高い衝突は入射粒子が十分減速した固体内深くで起こることが考えられる。そのため、水素同位体反跳粒子は固体内深くから材料表面を目指すことになり、真空中へ放出される確率は低くなってしまう。また同位体の質量依存性は二体間衝突時のエネルギー輸送効率のもたらす結果として説明できる。

ここで、式 (4.1) の右辺にある A_i , D_{ij} は入射エネルギーと材料の数密度に依存している。いま、簡単のために以下の近似を適応する。まず第一に図 4.3 の結果から吸収率 A_i はタングステン内に吸蔵されている水素同位体の数密度にほとんど依存していないことから、定数とみなすことができるであろう。ここで入射粒子と吸蔵された粒子の同位体の種類に関する全組み合わせに対し、0.1-10 keV の入射エネルギーの場合に 0.1-10 % の蓄積濃度に関して平均値を取った結果を図 4.5 に示した。

低エネルギー照射時には、吸収率は照射と吸蔵された両方の粒子の種類に依存しているが、一方で高エネルギー照射時には、吸収率は照射する水素同位体の種類にのみ依存し、初期にリテンションしている粒子の種類には依らないことが分かる。より正確な見積もりは複数種類の水素同位体が入射するタングステン材料に対して与えられるであろう。ところで、前節では脱離収率 D_{ij} に対してタングステン材料内の水素同位体の数密度 N_i の一次関数として線形フィッティング解析をした。その結果、フィット直線の傾きは先述の通り全ての場合において 0.93-0.98 であったため、ここで第二の仮定として、脱離収率 D_{ij} は N_i に正比例するものとする。このとき D_{ij} は以下の形で表現可能である。

$$D_{ij} = g_{ij}N_i \quad (4.6)$$

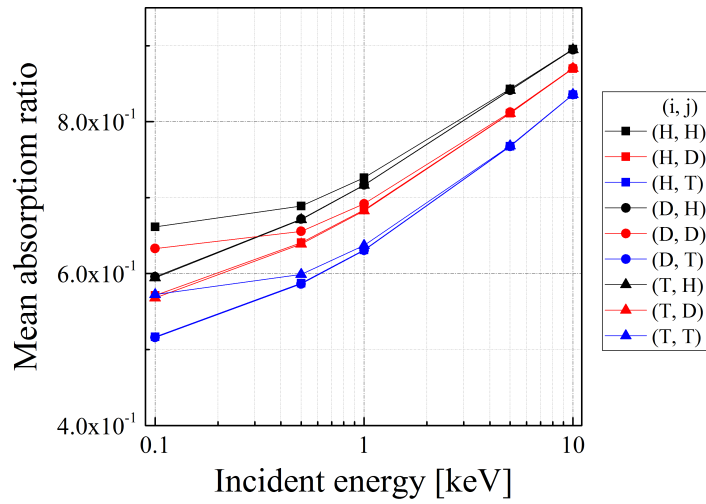


図 4.5 水素同位体の平均吸収率. 高エネルギー照射下では吸収率は吸蔵されている同位体の種類には依らないことが分かる. 図中 i と j はそれぞれ吸蔵されている水素同位体と材料に照射される水素同位体の種類を示している.

ここで g_{ij} は, 図 4.3 の解析で見積もられる比例定数である. 実際に g_{ij} の解析で得られた結果は図 4.6 に示す.

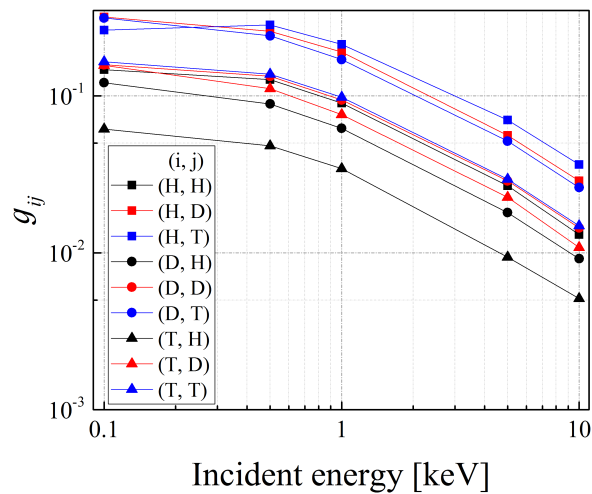


図 4.6 g_{ij} の入射エネルギー依存性. 図中 i と j はそれぞれ吸蔵されている水素同位体と材料に照射される水素同位体の種類を示している.

吸蔵された水素同位体の濃度を示す N の増減は, 例えば材料内の同位体の除去などを議論

するために見積もられるであろう。式(4.1)の右辺の第一項は吸収率に関する量であるから、この項が材料内の水素同位体濃度の増加の原因となっている。また、第二項は脱離収率であるから、第一項とは逆に材料内の水素同位体濃度の減少を招くことになる。ここで水素同位体照射により材料内の同位体濃度変化について幾つかの具体例を挙げれば、例えば何も吸蔵していないタングステン材料に軽水素照射を行えば、図4.2から $A_H > D_{HH}$ のため、照射中は軽水素濃度が増加することが分かる。次に初期状態で重水素が吸蔵している系に軽水素照射を行う場合の重水素濃度の増減を考える。すなわち、初期条件は $N_D > 0, N_H = N_T = 0$ かつ、 $\phi_H > 0, \phi_D = \phi_T = 0$ のものを考えることにする。この場合、式(4.1)は N_D の時間発展を表す形として以下のように書き直すことができる。

$$\frac{d}{dt}N_D = -g_{DH}\phi_H N_D \quad (4.7)$$

従って N_D は時定数 $\tau_{DH} = (g_{DH}\phi_H)^{-1}$ で指数関数で減少することは明らかである。同様に N_i も時定数 $\tau_{ij} = (g_{ij}\phi_j)^{-1}$ で指数関数減少をする。ここで τ_{ij}/τ_{kl} ($i \neq j, k \neq l$) を、時定数 τ_{ij} と時定数 τ_{kl} の比として定義し、同位体効果に関して考察しておくことにする。 $\phi_j = \phi_l$ の条件が成り立っている場合、 τ の定義より τ_{ij}/τ_{kl} は g_{kl}/g_{ij} に等しい。そのとき、図4.6にある g_{ij} の結果から τ_{ij}/τ_{kl} は1にはならない。即ち、水素同位体種である H/D/T の中から選択できる全て組み合わせに対し、照射による固体内からの除去という点で同位体効果が確認されたことになる。例として、同じフラックス照射下であると仮定した場合の時定数の比として、 τ_{DH}/τ_{HD} , τ_{TD}/τ_{DT} , τ_{TH}/τ_{HT} , τ_{TH}/τ_{DH} , τ_{TD}/τ_{DH} を図4.7に示した。

最初の3つは吸蔵されている水素同位体の種類を他の同位体照射によって置き換える場合を示している。4つ目の例は、照射する同位体の種類は共通だが、初期に吸蔵している種類が異なる場合を示している。最後の5つ目の例は、現実に実験室での使用が困難なトリチウムを用いた D-T 実験を、例えば H-D 実験との対比で代替できないかを提案するために示されたものである。 τ_{ij}/τ_{kl} によって表される同位体効果は、相互作用をする同位体同士の質量の違いによって生じたものであると考えられるが、これに関する詳細は後に譲ることにしよう。さて、一般的には脱離収率は反跳粒子の発生数と共に増加するものと考えても差し支えは無いであろう。ACAT コード内では、反跳のイベントは運動粒子から非衝突粒子へとエネルギーが輸送され、非衝突粒子が受け取ったエネルギーがある閾値エネルギーを超えた場合、非衝突粒子は反跳したものとして判定される。従って、脱離収率は二体間衝突時に標的原子に輸送されるエネルギーの期待値と共に増加することが予想できる。ここで考えている二体間衝突イベントが弾性的であることを仮定すれば、BCA 理論により標的粒子に輸送されるエネルギー T_{ij} は

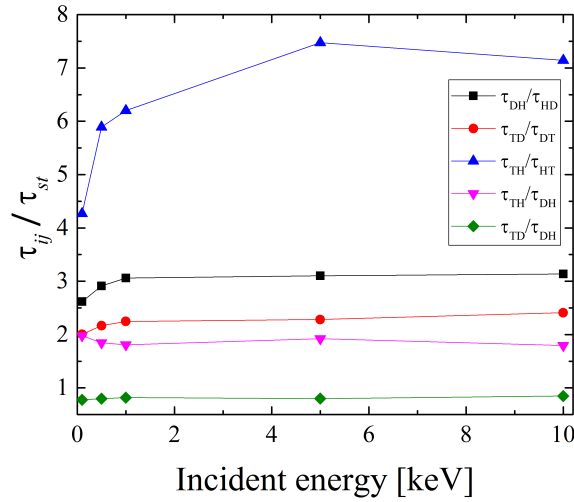


図 4.7 等フラックス ($\phi_j = \phi_l$) 下での τ_{ij}/τ_{kl} の入射エネルギー依存性. τ_{ij} の最初の添字はタングステン中に吸蔵されている同位体の種類を表し, 第二の添字は照射する同位体の種類を示す.

$$T_{ij} = \frac{4m_i m_j}{(m_i + m_j)^2} E_0 \sin^2 \frac{\theta_c(E_c(m_i, m_j, E_0), b)}{2} \quad (4.8)$$

で与えられる. ここで, m_i と m_j はそれぞれ運動粒子と標的粒子の質量である. また b は衝突パラメータで E_0 は運動粒子の実験室系での初期エネルギー値である. 質量重心系での正味のエネルギーを $E_c(m_i, m_j, E_0)$ とすれば, E_c は m_i , m_j と E_0 の関数である. また実験室系での散乱角を $\theta_c(E_c(m_i, m_j, E_0), b)$ とすれば, こちらは $E_c(m_i, m_j, E_0)$ と b の関数となる. 以上から衝突時に標的粒子へ輸送されるエネルギーは水素同位体の質量に依存している. エネルギー輸送値 T_{ij} は以下の積分で与えられる.

$$\langle T_{ij} \rangle = \frac{\int_0^{b_{max}} T_{ij}(b) b db d\theta}{\int_0^{b_{max}} b db d\theta} \quad (4.9)$$

b_{max} は実際の材料内での有効衝突断面積の半径として定義された量である. つまり b_{max} は以下の条件を満足するように定められた量とする.

$$\pi b_{max}^2 = R_0^2 \quad (4.10)$$

また R_0 は式 (4.4) で用いた V_0 の三乗根である．参考までに水素同位体同士の二体散乱時に，標的原子に輸送されるエネルギーの期待値 $\langle T_{ij} \rangle$ を見積もった結果を図 4.8 に示す．図中の同位体間の種類が等しい場合エネルギー依存性がほぼ同一であることが分かる．ところで定義より時定数 τ_{ij} は脱離収率 D_{ij} に逆比例している．更にここでエネルギー輸送の期待値 $\langle T_{ij} \rangle$ は簡単に D_{ij} に比例するものと仮定する． $\langle T_{ij} \rangle$ が増加すれば当然材料からのスパッタは増える．このとき $\langle T_{ij} \rangle$ は時定数 τ_{ij} に逆比例することになる．以上の仮定が正しいものとするれば，エネルギー輸送値の期待値の比 $\langle T_{kl} \rangle / \langle T_{ij} \rangle (i \neq j, k \neq l)$ は，時定数の比である τ_{ij} / τ_{kl} に等しくなる．図 4.9 は図 4.7 で示された τ_{ij} / τ_{kl} に対応した照射粒子と吸蔵された粒子の組み合わせと同一なエネルギー輸送値の比 $\langle T_{HD} \rangle / \langle T_{DH} \rangle$ ， $\langle T_{DT} \rangle / \langle T_{TD} \rangle$ ， $\langle T_{HT} \rangle / \langle T_{TH} \rangle$ ， $\langle T_{DH} \rangle / \langle T_{TH} \rangle$ ， $\langle T_{DH} \rangle / \langle T_{TD} \rangle$ をまとめた結果である．これと図 4.7 の結果を比較すると， $\langle T_{kl} \rangle / \langle T_{ij} \rangle$ は τ_{ij} / τ_{kl} にほぼ一致していること確認される．従って時定数 τ_{ij} に関する同位体効果は二体間衝突時に標的粒子に輸送されるエネルギーの，入射粒子と吸蔵された粒子の質量依存性を用いて説明することができることが結論付けられたことになる．ただし上記の議論は，入射粒子の飛程外よりも飛程内に十分な数の吸蔵された粒子が存在する場合に対して正しいものと考えられる．そして固体内で吸蔵している粒子の一部は拡散による効果でより深い領域へと拡散するものも存在するために，式 (4.1) は常に満足されているというわけではないことに注意が必要である．

4.5 結論

本研究では水素同位体プラズマ照射下でのタングステン材料内に蓄積された水素同位体のビーム衝撃に伴う放出について調査をした．材料に照射され侵入した水素同位体と材料構成原子の軌道は，材料内での水素濃度を可変にしても，タングステン原子の数密度は不変となるように変更を加えた BCA 理論に基づく ACAT コードで計算した．そこで粒子のバランス方程式を考案し．この方程式中に含まれる吸収率と脱離収率の見積もりをした．その結果，入射された水素同位体の吸収率は吸蔵されている水素同位体濃度に対し殆ど依存しておらず定数となることが分かった．一方で水素同位体の脱離収率は，材料中の水素同位体の濃度にほぼ比例することが分かった．従って，材料中に吸蔵されている水素同位体を，他の種類の水素同位体で取り出す場合，その取り出し効率は濃度に対し指数関数的になることも導き出された．特に今回の結果では，例えば重水素の打ち込みで吸蔵されたトリチウムを取り出す場合の時定数と，軽水素の打ち込みで吸蔵された重水素を取り出す場合の時定数の比である τ_{TD} / τ_{DH} は $2/3$ となった．また，軽水素の打ち込みでリテンションしたトリチウムを取り出す場合の時定数と，軽水素の打ち込みで吸蔵された重水素を取り出す場合の時定数である τ_{TH} / τ_{DH} は， $1.80-1.98$ であった．加えて， τ_{ij} / τ_{kl} は殆ど $\langle T_{kl} \rangle / \langle T_{ij} \rangle$ に一致すること

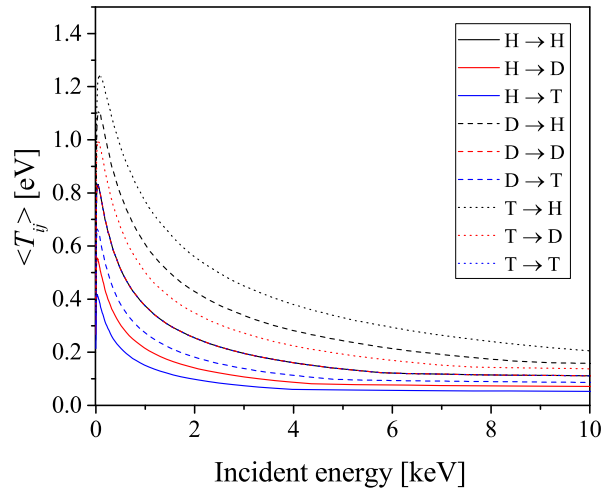


図 4.8 二体衝突時に入射粒子から標的粒子に輸送されるエネルギーの期待値の入射エネルギー依存性.

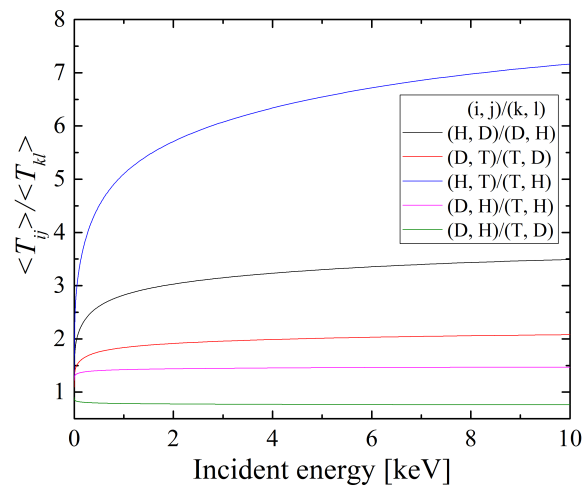


図 4.9 $\langle T_{kl} \rangle / \langle T_{ij} \rangle$ の入射エネルギー依存性. i と k が標的になる同位体の種類を表し, j と l は照射される同位体の種類を表している.

も明らかになった。すなわち時定数 τ_{ij} は入射粒子と吸蔵されている原子の質量の関数である衝突時の輸送エネルギーに依存することが示されことになる。

ただし、本シミュレーションでは粒子拡散過程や表面での再結合過程を考慮していないため注意が必要である [24, 25, 26, 27, 28]。例えば水素同位体の拡散過程は、タングステン内に吸蔵された水素が熱拡散により表面に到達し表面から水素が放出されることで脱離収率は本計算結果のものよりも増大することになる。

参考文献

- [1] N. Asakura *et al.*, J. Plasma Fusion Res. **90**, (2014) 200.
- [2] R. A. Pitts, S. Carpentier *et al.*, J. Nucl. Mater. **438**, 548 (2013).
- [3] NATO Science Series, *Hydrogen Recycling at Plasma Facing Materials*, C.H. Wu ed., Kluwer Academic Publishers, (2000).
- [4] J. P. Biersack, W. Eckstein, Appl. Phys. **34**, (1984) 73.
- [5] M. T. Robinson, I. M. Torrens, Phys. Rev. **B9**, (1974) 5008.
- [6] M. T. Robinson, Nucl. Instrum. Methods **B67**, (1992) 396.
- [7] W. Takeuchi, Y. Yamamura, Nucl. Instrum. Methods **B2**, (1984) 814.
- [8] Y. Yamamura and Y. Mizuno, IPPJ-AM-40 (Ins. Plasma Physics, Nagoya University, 1985).
- [9] Y. Yamamura, W. Takeuchi, Nucl. Instrum. Methods **B29**, (1987) 461.
- [10] Y. Yamamura, T. Muramoto, Nucl. Instrum. Methods **B93**, (1994) 26.
- [11] Y. Yamamura, I. Yamada, T. Takagi, Nucl. Instrum. Methods **B37/38**, (1989) 902.
- [12] A. Takayama, S. Saito *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **50**, (2011) 01AB03.
- [13] W. Miller, W. Eckstein, Nucl. Instrum. Methods **B2**, (1984) 814.
- [14] A. Ito, H. Nakamura, J. Plasma Phys. **72**, (2006) 805.
- [15] A. M. Ito, Y. Yoshimoto, S. Saito, A. Takayama, H. Nakamura, Phys. Scr. **T159**, (2014) 014062.
- [16] A. M. Ito, A. Takayama, Y. Oda *et al.*, J. Nucl. Mater. **463**, (2015) 109.
- [17] S. Kato, N. Tanaka, M. Sasao *et al.*, J. Nucl. Mater. **463**, (2015) 351.
- [18] N. Tanaka, S. Kato, T. Miyamoto *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **85**, (2014) 02C311.
- [19] G. Moliere, Z. Naturforsch. **A2**, (1947) 133.
- [20] L. H. Thomas, Proc. Cambridge Philos. Soc. **23**, (1927) 542.
- [21] E. Fermi, Z. Phys. **48**, (1928) 73.
- [22] O. B. Firsov, Sov. Phys. JETP **6**, (1958) 534.

-
- [23] A. Takayama, A. M. Ito, Y. Oda, H. Nakamura, J. Nucl. Mater. **463**, (2015) 355.
- [24] Y. Yamamura, Nucl. Instrum. Methods **B28**, (1987) 17.
- [25] T. Ono, T. Kenmotsu, T. Muramoto, T. Kawamura, J. Nucl. Mater. **390**, (2009) 713.
- [26] T. Kenmotsu, T. Kawamura, Zhijie. Li, T. Ono, Y. Yamamura, J. Nucl. Mater. **266**, (1999) 557.
- [27] W. Eckstein, V. I. Shulga, J. Roth Nucl. Instrum. Methods B **153**, (1999) 415.
- [28] J. Roth, W. Mller, Nucl. Instrum. Methods B **13**, (1986) 409.

第 5 章

BCA の高エネルギー領域での応用

5.1 はじめに

J-PARC (Japan-Proton Accelerator Research Complex) の 3-GeV Rapid Cycling Synchrotron (RCS) 入射部には、高エネルギー・高強度の陽子 (H^+) ビームが透過する荷電交換フォイルが設置されている [1]。RCS は直前の線形加速器 (LINAC) で加速された 400 MeV の水素負イオンビーム (H^-) を荷電変換部で (H^+) ビームへと変換し、エネルギー 3 GeV, 25 Hz で 8.3×10^{13} protons/pulse で加速するように設計されている。これは 1 MW のビームパワーに相当し、フォイルは加速器運転時に大きな負荷を受けることになるため徐々に損傷していく。ここで RCS のビームパラメータを表 5.1 と、ビーム照射によって損傷していくフォイルの様子を図 5.1 に示した。

表 5.1 3-GeV RCS ビームパラメータ。

Circumference	348.333 m
Superperiod	3
Harmonic number	2
Injection energy	181 MeV (400 MeV)
Extraction energy	3 GeV
Repetition rate	25 Hz
Particles per pulse	8.30E+13
Average current	333 mA
Output beam power	~0.3 MW (1 MW)

現在の LINAC からの入射ビームエネルギーは 181 MeV であり、RCS で 3 GeV まで加速されることで引き出されるエネルギーは 0.6 MW まで到達する。RCS で採用されている荷電変換多重入射方式と呼ばれる入射機構の概略図を図 5.2 に示す。入射された H^- ビーム



図 5.1 ビーム照射によって劣化していくフォイルの様子 [2].

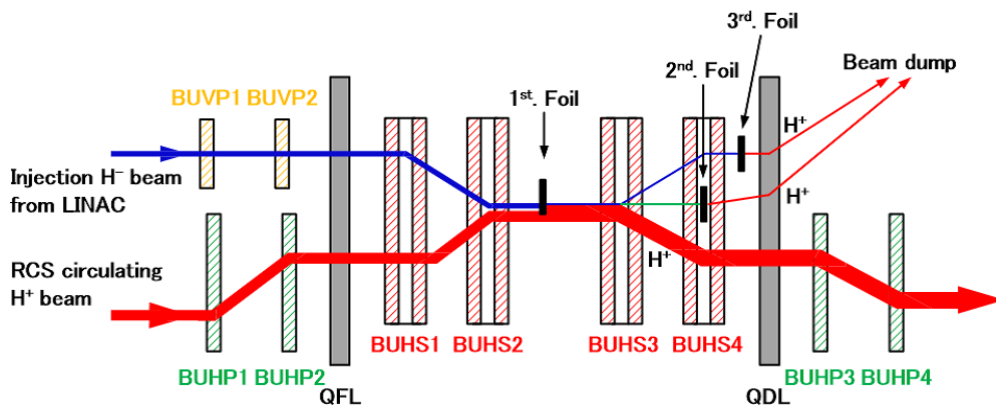


図 5.2 RCS で採用されている荷電変換多重入射方式の概略図.

バンチは、照射周期中にのみ作動する水平バンプマグネットによって軌道偏向され、周回ビーム軌道上に合流し、第1荷電変換フォイルに照射されることで2つの電子が脱離され H^+ ビームとなる。入射ビームの一部は電子が完全に脱離されず、第1フォイル透過後も H^0 や H^- の状態で存在する。そのため、これらを制御するために第2, 3三フォイルが第1フォイルよりも下流側に設置されている。図 5.2 に示すように、第1フォイルで H^- に荷電変換されなかった水素は、この第2, 第3フォイルで完全に H^+ へと変換されることで最終的に H^0 ダンプへと破棄される。荷電変換フォイルは加速器の安定的運転のために長寿命であることが要求される。そのためある程度の厚みが必要とされるが過度の厚みはビームの損失に繋がる。よってフォイルの最適な厚みの検討が求められる。またビームがフォイル透過時に起こるビームの散乱が、周辺の装置を放射化させる問題がある。従ってビーム散乱に伴う放射化抑制のためには、フォイル中で起こる高エネルギー入射粒子の多重弾性散乱過程を調べる必要がある。

そこで本研究では、高エネルギー粒子衝突に有利とされる BCA シミュレーション (ACAT コード [6]) を用いて実際に J-PARC で採用されている HBC フォイルを模擬してシミュレーションする。その際、フォイルの自立のサポートのために使用される SiC ファイバーの

構造物による効果も含め考慮する。計算を行うに当たり、核反応や連続的に起こる放射化を取り扱える大規模コードの使用も考えられる。代表的なコードに GEANT4 [3], PHITS [4], MCNP Transport [5] などが挙げられるが、このような正確な構造物を考慮できる小スケールのシミュレーションもフォイル中での散乱過程の基本理解には必要である。また実験装置の放射化の観測結果は放射化の原因を特定する上で大変重要になることから、本研究では RCS で行われた γ 線スペクトル観測の解析作業をし、その結果を元に実際に起こる可能性のある放射化の原因を調査した。

5.2 HBC フォイル

J-PARC では荷電変換炭素フォイルにホウ素がドーパされた HBC フォイルが採用されている。HBC とは Hybrid type thick Boron-doped Carbon (HBC) の略であり、Sugai によりアーク蒸着法で製造されている [7, 8]。ホウ素の含有量は約 20 % とされており、膜厚は $1 \mu\text{m}$ で、 $200 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ に相当している [9]。実際に使用されるときフォイルサイズは $40 \text{ mm} \times 110 \text{ mm}$ であり、ビームはフォイルの端周辺部分の直径 16 mm のエリアに照射される。図 5.4 から分かるように、フォイルはアルミニウム製のフレームに装着され、直径 $10 \mu\text{m}$ の SiC ファイバーのサポートによって自立する。ファイバーはフォイルと比較して分厚く、炭素よりも高 Z である Si を含むことから、ビームはファイバーを透過する際に大角度散乱を起こして周囲を放射化させている可能性も懸念される。

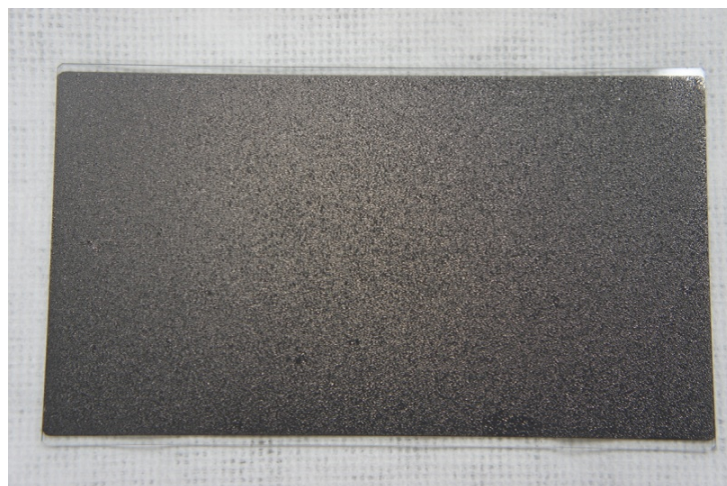


図 5.3 HBC フォイル。写真ではガラス基板上に成膜されているが、ガラスとフォイルの間層は水溶性の剥離剤になっており、使用前はこの剥離剤を水で溶かすことでガラス基板からフォイルを剥がす作業を行う。

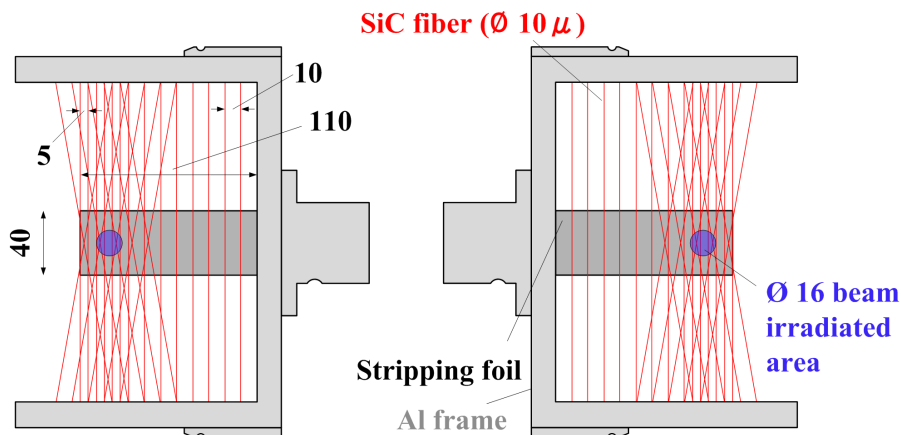


図 5.4 HBC フォイルとファイバーの取り付け方法。フォイルはアルミフレームにマウントされ、自立できるように SiC ファイバーでサポートされる。

5.3 γ 線計測実験

Kinsho ら担当グループは、2010 年 12 月に RCS がシャットダウン後、約 54 時間後の放射線の計測をポータブル Ge 検出器で RCS 周辺 12 か所について行った。うち 3 か所は入射部 (DQN08, QFX16, 3-50-QDS2-QFS2) から離れているが、2 か所は荷電変換フォイルチェンバーの付近であり、その他は上流セパレータ (ISEP, INJ-ISEP), H^0 セパレータ, H^0 ダンプと、下流オプティクス (COL2, INJ-QFM03) である。

本研究では得られた γ 線スペクトルの解析をした。その結果、観測して得られた全実験データに ^{44}Sc (1157 keV, 59 hrs.), ^{46}Sc (889 keV, 1120 keV, 84 day), ^{48}V (983 keV, 1312 keV, 16 day), ^{51}Cr (320 keV, 27.7 day), ^{52}Mn (744 keV, 935 keV, 1434 keV, 5.6 day), ^{54}Mn (835 keV, 312 day), ^{59}Fe (1292 keV, 44.6 day) が共通して観測された。加えて入射部付近では、 ^{56}Co (1238 keV, 77 day) と ^{60}Co (1173 keV, 1333 keV, 1925 day) のピークが確認できた。しかし、これらの放射能を生成するのに起こり得る核反応は、現状で全てを断定できていない。更に真空度の改善によりフォイルに対して上流側のスペクトル強度が大幅に減衰したことから考えると、残留ガスとの衝突時に荷電交換して生成された中性粒子も、周囲を放射化させている原因のひとつになっている可能性も考えられる一方で、フォイルより下流側の改善が小さかったため、フォイル透過時のビーム粒子の大角度散乱による放射化の可能性が高まった。

荷電変換フォイルチェンバーの付近では、 ^7Be (477.6 keV, 53.2 day) と ^{22}Na (1274 keV, 2.6 y) のピークも観測されているがフォイル交換システムによってフォイルがホルダーと共に検出器から遠ざけられたとき、 ^7Be のピークは消え、 ^{22}Na は半分までに減衰する結果

が得られた。ここで実際に観測され、解析をした γ 線スペクトルのデータを図 5.5 (フォイル挿入時) と図 5.6 (フォイル未挿入時) に示す。

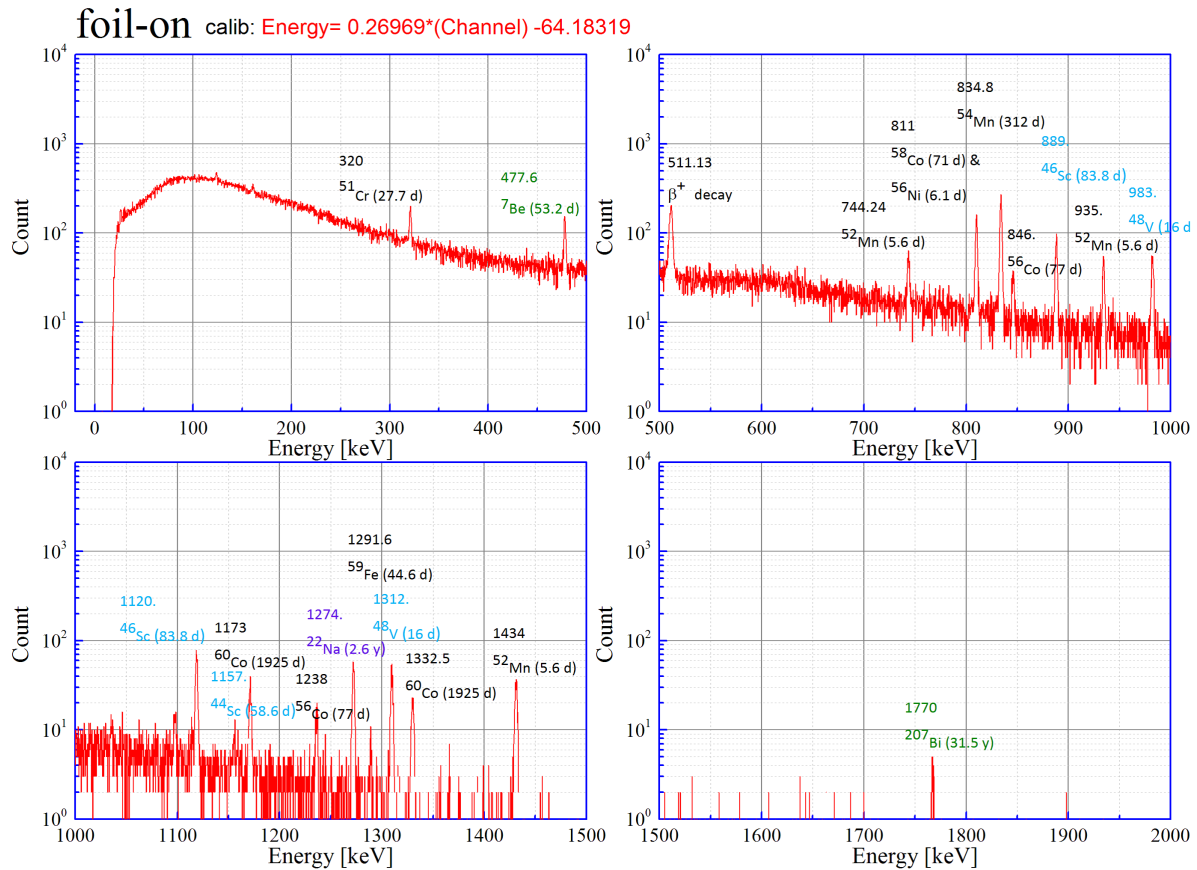


図 5.5 フォイル挿入時の γ 線スペクトルデータ。

${}^7\text{Be}$ からの放射は ${}^{10}\text{B}(p, \alpha){}^7\text{Be}$ の反応で生成される。この核反応の反応断面積は 100-200 MeV の領域では 10 mb と報告されている [10]。また ${}^7\text{Be}$ の正味のドーズ量への寄与は真空チェンバーの外で約 30 % 占めている。

5.4 BCA による透過角度のシミュレーション

今回の ACAT シミュレーションでは、二体間ポテンシャルの Thomas-Fermi ポテンシャルの近似式のうち Ziegler の式を採用した。本シミュレーションでは、フォイル透過によるビームのスカートを調べる。すなわち、透過強度角度分布としてフォイル透過による陽子ビームスカートの再分布をシミュレーションする。そのため ACAT コードに変更を加え、材料の透過や、SiC ファイバーの構造物を考慮した標的への打ち込みを考慮できるようにコードに変更を加えた。

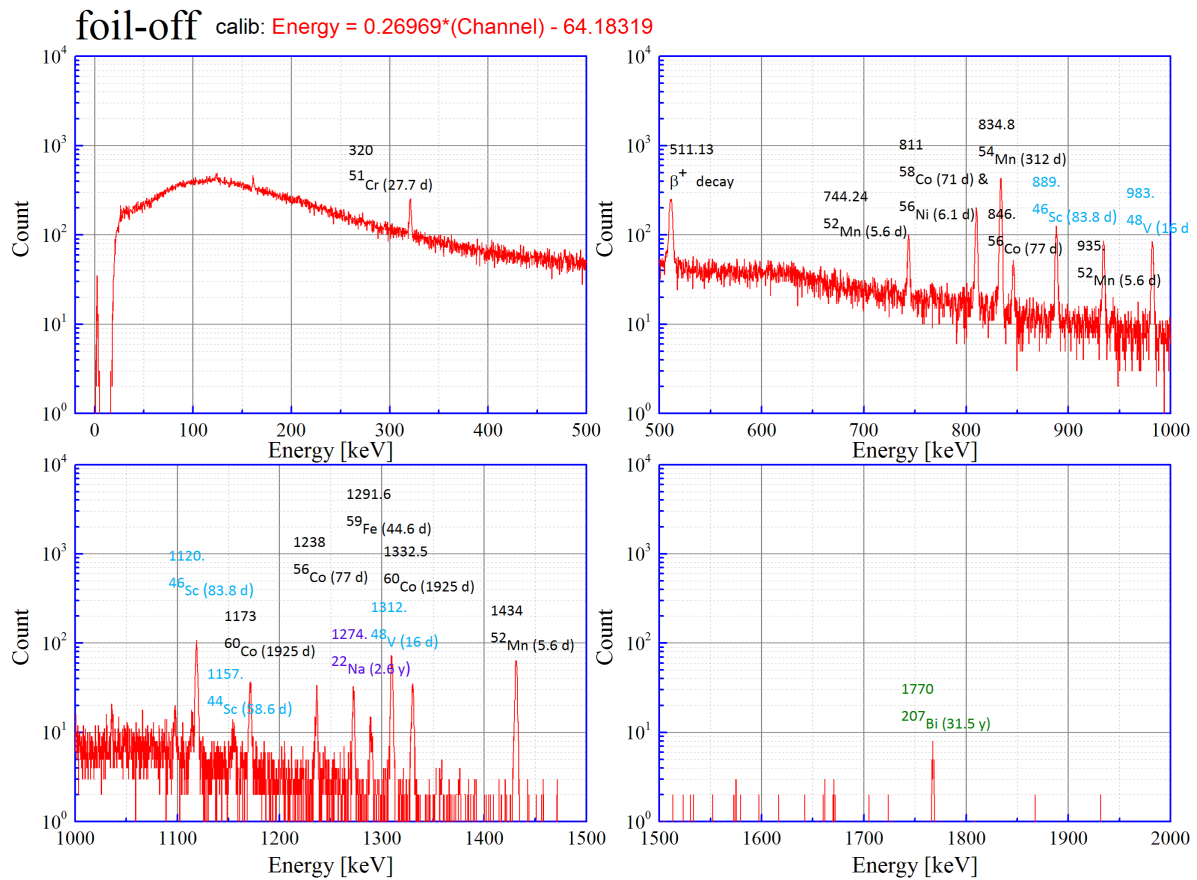


図 5.6 フォイル未挿入時の γ 線スペクトルデータ.

5.4.1 シミュレーションモデル

加速器運転時，ビームは SiC ファイバーに覆われていない部分と覆われた部分の表面に照射される．そこでシミュレーションをするに当たり，図 5.7 に示すような 2 通りのモデルを考慮した．第一に，(i) ファイバー構造物のない，通常の平坦な表面への入射モデルと，(ii) フォイル表面にファイバーのあるモデルである．簡単のため，入射粒子である水素はフォイルに対して直入射するものとし，入射エネルギーは J-PARC 計画の 1st ステージと 2nd ステージを想定して，それぞれ 181 MeV と 400 MeV とした．透過角度は図に示すように，フォイル表面とフォイル透過後の入射粒子の軌道の成す角度として定義した．ビーム照射を受けているフォイルの表面上で SiC ファイバーの正射影部分は全ビームスポットうちの約 0.6 % であるから，最終的な結果は (i) と (ii) の計算結果の線形結合で与えられるものとする．

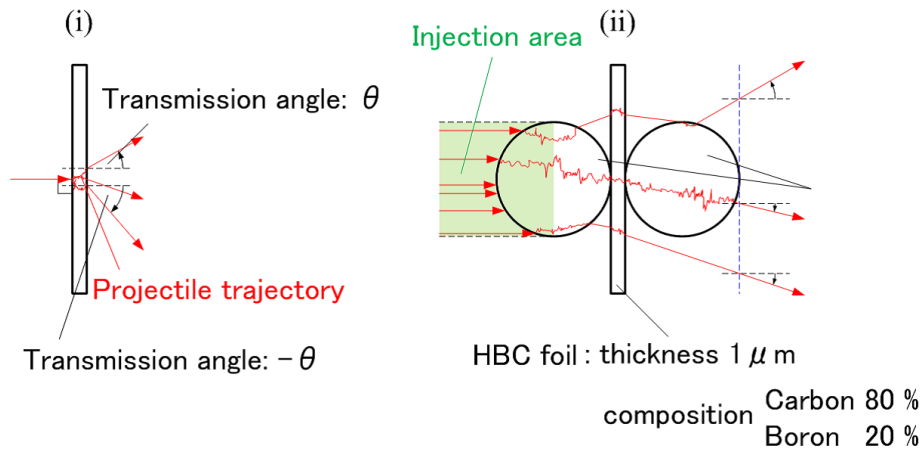


図 5.7 2 種の計算モデル.

5.4.2 シミュレーション結果

計算結果を図 5.8 に示した. SiC ファイバーはフォイルの主成分よりも高 Z 材料となる Si を含んでいるにも関わらず, 水素の透過角度は全て 1° 未満になっている. よって SiC ファイバーの構造物を考慮しても原子核散乱だけでは大角度散乱発生の可能性は極めて低いことが分かった. また 400 MeV でのアップグレードでより直進して透過する成分が増加するため, 大角度散乱による直接の放射化は小さくなるということが考えられる.

5.5 考察と結論

^7Be ピークが検出されたことから, フォイル中で生成される放射能の見積もりがうまくいける. $^{10}\text{B}(p, \alpha)^7\text{Be}$ の反応断面積を先ほどの 10 mb とし [10], フォイルに照射される全入射粒子数 2.24×10^{20} と, フォイルの膜厚, フォイル中のボロンの含有率を使って実際に見積もりをしたところ, 計測よりも 1-2 桁高い桁の ^7Be 放射能が算出された. 従ってビームラインのコンポーネント材料内で起こる γ 線の減衰の考慮も入れた, より正確な放射能の評価や, 検出器の校正式も更に高精度なものが必要になる.

フォイルの周辺以外にも放射線源が検出された理由としては, ビーム粒子の直接的な衝突によって起こる核反応によるものと, その核反応で生成された中性子や荷電粒子の二次的なものによる衝突が考えられる. これらの可能性は, より詳細な γ 線計測で明らかされるべきである. 中性子の寄与は, Al, Cu, Ni, In, Auなどをサンプルとした放射実験によって確認できるであろう.

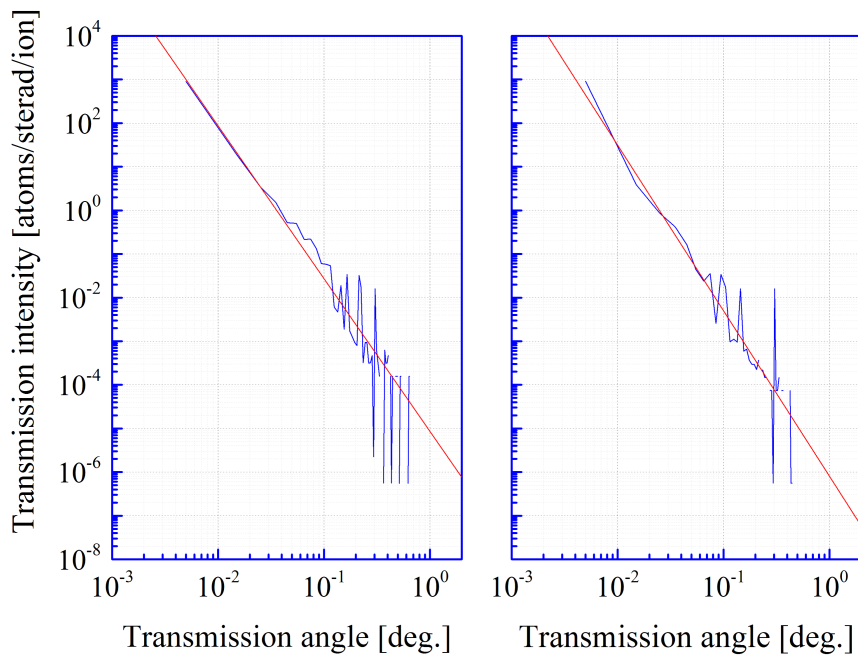


図 5.8 変更した ACAT コードでの計算による透過強度角度分布の計算結果. 左の結果は入射エネルギーが 181 MeV のとき. 右の結果は 400 eV での入射の場合の結果である. 実線と点線は, 各々 ACAT で算出された結果と線形フィットによる直線を表している.

ACAT の計算結果から陽子ビームのスカート部分の衝突が直接の原因となって誘発される放射化の可能性は小さいことが分かった. しかし, 散乱時には荷電変換プロセスの考慮をせねばならない. 荷電交換は比較的小さな衝突パラメータで起こるため, 電子が脱離される最中に起こるエネルギー輸送によって大角度散乱が起こるためである. 低エネルギー領域ではあるが, 荷電交換を伴う場合の散乱角のスペクトルは, 通常の荷電交換を伴わない多重散乱のものよりも広くなることが実験・理論の両方の観点で研究され判明している [11]. 更に正確な計算のためには, 今後は荷電交換衝突過程を考慮した角度分布のシミュレーションが必要とされる.

参考文献

- [1] M. Yoshimoto *et al.*, Journal of Physics: Conference Series, **417**, (2013) 012073.
- [2] I. Sugai, Y. Takeda, Nucl. Instr. and Meth. A **561**, (2006) 16.
- [3] <http://geant4.cern.ch/>
- [4] <http://phits.jaea.go.jp/index.html>
- [5] <http://mcnp.lanl.gov/>
- [6] Y. Yamamura *et al.*, Report IPPJ-AM-40, Institute of Plasma Physics, Nagoya University, (1985).
- [7] I. Sugai *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. **A613**, (2010) 457.
- [8] I. Sugai *et al.*, Nucl. Instr. and Meth. **A561**, (2006) 16.
- [9] Y. Yamazaki *et al.*, Journal of Physics: Conference Series, **417**, (2013) 012071.
- [10] L. Valentin *et al.*, Physics letters, Volume 7, Issue 2, 1 November 1963, Pages 163164.
- [11] A. Taniike, PhD thesis 1995, The Graduate University for Advanced Studies.

第 6 章

BCA-KMC ハイブリッドシミュレーションによるタングステン内の水素吸蔵研究

6.1 BCA の新展開分野

第 3 章では実験で得られた水素粒子反射特性を ACAT の計算結果と比較することでシミュレーションの重要性について言及した。第 4 章では核融合炉におけるダイバータに着目し、衝突効果のみによる吸収、脱離の水素同位体効果に関する議論をした。第 5 章では、ACAT で MeV オーダーのエネルギーを持った粒子の材料透過をシミュレーションすることで、加速器分野のような高エネルギー領域での応用もした。特に第 4 章では既存の ACAT の材料模擬方法に変更を加え、付加価値を付けて計算をしている。

ここで低エネルギー領域での BCA の応用に着目し、第 3 章と第 4 章でしたシミュレーションの問題点を考える。第 3 章ではタングステン材料にビームを照射し続けている系のシミュレーションにも関わらず、暗黙に材料内の蓄積水素を無視することで、標的材料には純粋なタングステン材料を想定した計算をしていた。第 4 章では標的材料として、水素同位体が吸蔵されたタングステン材料を対象としていたが、水素の蓄積分布は一様と過程して取り扱った。これは実験的に直接材料内の水素の蓄積分布を調べることができないためである。また、濃度も初期設定値として指定した値でシミュレーションした。第 4 章の結果から、例えば水素同位体のスパッタリング収率は図??より、材料内の水素濃度に大きく依存することがわかる。これは材料内の水素の濃度だけではなく、その分布も大変重要になることを示している。

ここで、体心立方格子 (BCC) 結晶のタングステン材料に、水素を BCA で連続照射した

場合、水素が材料内でどのように蓄積されるのか考える。一般に水素粒子が結晶構造のある金属材料に照射されると、飛来した水素粒子の多くは自身の運動エネルギーを失い、十分減速するまで格子間をほぼ直線的に移動するチャネリングと呼ばれる現象を起こして材料内に侵入する。チャネリングは 100 eV 程度以上の入射エネルギーで起こる現象で、このときの粒子の侵入深さは殆ど阻止能によって決まる。材料内部での損失エネルギーは、材料内部での粒子の移動距離と阻止能の積に比例するため、飛来してくる水素の入射エネルギーが等しければ、チャネリングを起こして材料内に侵入する水素の殆どは同じ深さで止まる。実際に BCA で入射位置だけを変えて連続入射を行った結果を図 6.1 に示す。図 6.1 は BCC 結晶タングステンの (100) 面に、500 eV の水素を 10000 個直入射させた結果である。図中の青い球が水素を表す。この結果から材料中に蓄積した水素は、確かにある一定の深さで止まることが確認できる。材料に吸蔵された水素を深さ方向について分布を取った結果を図 6.2 に示す。表面から浅い部分にある小さなピークは、入射時にチャネリングをせず、多重散乱を起こして減速した成分である。深い部分にある鋭いピークがチャネリングによるものである。現実にはチャネリングによる鋭いピークが示す局所的な水素の粒子溜まりができれば材料の割れなどを引き起こしてしまうことから、この鋭いピークは現実には起こり得ないものであると考えられる。

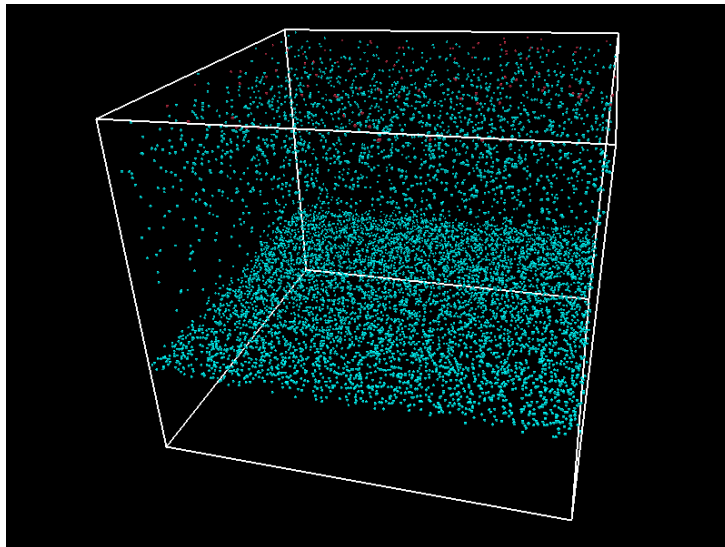


図 6.1 BCA で材料に連続照射をした結果。500 eV の水素を BCC 結晶のタングステンの (100) 表面に直入射させている。図中、青い球が水素を表し、赤い球が原子衝突によって形成された空孔を表す。ある一定の深さに水素が集中して蓄積してしまふことが分かる。

このような非現実的なピークが形成されるのは、水素の拡散が無視されているからであ

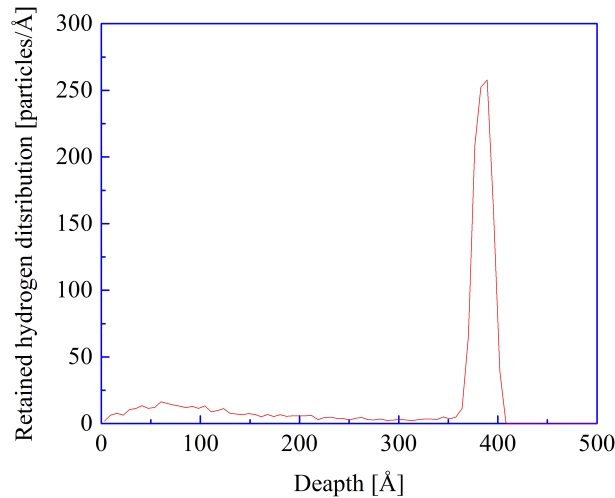


図 6.2 水素の堆積深さ分布. チャネリングの効果で明らかな非現実的水素溜まりができています.

る. 現実には, 次の粒子が飛来するまでに先の粒子は拡散して別の場所に移動するはずである. 従って BCA でより現実に近い状況を模擬するためには, 拡散を考慮した連続照射シミュレーションを行う必要がある. 他の物理モデルとの統合に伴い, BCA 計算モデルの応用範囲を拡大させる.

6.2 BCA-KMC ハイブリッドシミュレーション

PWI 分野の大きな諸問題には, 水素リサイクリングやトリチウム吸蔵などがあることは既に第 1 章で概説した. これらを現象論的に理解するためには, 水素プラズマ粒子の材料への入射過程は勿論のこと, 材料内で起こる不純物粒子などの拡散現象の理解も必要になる. また ITER や将来計画されている DEMO 炉では, ダイバータ板に降り注ぐ粒子照射フラックスが $10^{24} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 以上となることや, 長時間の炉運転も予想されるために, 実験室規模での再現実験が困難になるところまで来ている. 以上の背景から, PWI 現象の解明にはシミュレーションによる貢献が今後増々重要になる. よって第 1 章で MD-MC を例に述べた, 実験と同等のフラックスとフルエンスを実現し, 照射と拡散過程を同時に取り扱うことのできる新しいシミュレーション技術の開発が必要になる. ここで改めて PWI シミュレーションの各々の手法に関する特徴など整理して考えることで新シミュレーション手法の提案から開発に至る経緯を解説する.

プラズマ照射によって材料内部に侵入した不純物粒子は周辺との相互作用で減速し, やがて熱的拡散過程へと移行する. 照射過程は BCA と MD での取り扱いが考えられる. とこ

ろが BCA は時間の概念を考慮できないため、粒子の拡散を取り扱うことができず、MD では拡散のような長い時間スケールの計算は取り扱うことができない。結局 BCA, MD 共に拡散過程を考慮することができない。

過去に、この課題を解決するためのひとつの手法として、BCA である程度の粒子数を照射したら、それで得られた材料中の不純物濃度を連続的な場とみなして拡散方程式を解くハイブリッド手法が開発された。国内では Yamamura らにより提案された ACAT-DIFFUSE [1] がある。これは TDS 実験をあるレベルで再現できる等、一定の成功を収めた。しかし、拡散方程式を解くという都合上、BCA で得られた原子レベルのミクロな粒子分布情報を密度場に変換するため一度消してしまうため、一貫した粒子スケールシミュレーションができない。更に拡散方程式を解くためには拡散粒子濃度は連続的な場になっていなければならない。このために ITER のような高フラックス粒子照射時や、第1章で説明したヘリウムバブルなどの局所的濃度不連続性が伴う場合は拡散方程式を解くことができなくなり、取り扱いのできる計算条件に強い限定を受けてしまう問題がある。最大の問題は、拡散方程式に採用される拡散係数は実験によって得られた実効的な拡散係数であり、実験によっては数桁の誤差があるため、どの拡散係数をシミュレーションに採用すれば良いのか分からない点である。

ここで実際に核融合の現場で起こり得るタングステン材料内での水素やヘリウムの拡散を考えてみよう。一般にヘリウムプラズマ照射によってヘリウムの吸蔵が起こると、ヘリウムの凝集効果によりタングステンの結晶構造が大きく歪められてしまうことが知られている。しかし一方で、タングステン結晶構造内に水素が吸蔵しても水素は凝集せず、母材の構造変化を殆ど起こさないことが分かっている。よって照射により材料内部に固溶した水素は、空孔などのトラッピングサイトに捕獲されたり、水素同士の反発力を受けながら格子を殆ど歪ませること無くタングステン中を拡散することになる。ただし、粒界がある場合はそこがトラッピングサイトになり、ブリストリングの原因となると考えられることから、いまは理想的な結晶系のタングステンのみを考えて議論をしている。母材内部の構造を殆ど変化させることなく不純物が材料内を拡散する場合には、動的モンテカルロ法 (KMC) による取り扱いが適当とされる。KMC はランダム・ウォークモデルを更に発展させたもので、ある確率を持って金属格子構造内の局所安定サイト間で拡散粒子をジャンプさせる方法で粒子移動を比較的よく再現したモデルを構築できる。移動モデル構築に必要な物理パラメータとして移動障壁エネルギー (活性化エネルギー) が必要となるが、現在なら DFT によって 0.1 eV 以内での高精度な算出が可能である。よって近年の PWI シミュレーションでは、DFT から算出したパラメータから KMC モデルを作り、集団運動として解く流れが主流となっている。

しかしながら KMC シミュレーションのみではプラズマ照射の効果を反映できない。実際には水素粒子の飛来により母材金属内に空孔が形成されたり、既に吸蔵されている水素を

含めたスパッタリングなどの現象も起こるはずである。また水素の拡散は水素濃度にも大きく依存するはずで、それはプラズマ照射下における水素濃度の変化を如実に反映する。実験でいえば、照射下の動的なリテンションと、非照射下の静的なリテンションが大きく異なるということに繋がる。以上より、水素リテンションを議論するには、やはり実験と同等の入射フルーエンスによるシミュレーションが重要となる。

そこで本研究では、水素イオンの入射過程を BCA が担当し、粒子照射過程で材料内に吸蔵された水素や粒子衝突で形成された原子空孔などの拡散過程を KMC で取り扱う BCA-KMC ハイブリッド手法を世界で初めて考案しシミュレーションコードを開発した。入射過程を MD ではなく BCA で扱うことにした理由は、ひとえに計算時間のためである。BCA の計算速度は MD の 10 万倍以上であり、高速な KMC と結合しても律速にならない。また今回開発した BCA-KMC ハイブリッド法を用いると、原子レベルのミクロな記述のまま、水素プラズマ照射下の拡散現象を扱うことができる。特に、水素濃度が連続とみなせないほど非常に低い場合の扱いや、例えば水素同士の二体相関の効果などの扱いにおいては過去の手法よりも優れていると考えられる。

6.3 ハイブリッドシミュレーションコードの開発

6.3.1 ハイブリッドに向けた BCA コードの開発

前章で使用した ACAT も BCA 理論に基づいたシミュレーションコードであった。しかし ACAT コードでは照射材料として非結晶合金が想定される。また MD とは異なり、BCA には周期境界条件という概念が存在しない。これは空間に制限を設けず、大空間を必要とする数百 keV の粒子打ち込みの計算に対応するためであった。

従って KMC とのハイブリッド化のためには (1) 結晶構造を持った材料への粒子照射と (2) 周期境界条件を考慮できる BCA コードの開発が必要であり、本研究では ACAT コードを参考に新たに開発した。一般的に MD などでは、考える材料原子全てをメモリ空間に記録し計算を進めていく方法が取られるが、今回は (1) に関して、メモリ空間を最小限に抑え計算速度も高速になるように、結晶構造を自動生成できるようにした。その代わり、照射により材料内に残留した不純物の位置情報と形成された空孔情報はメモリ空間に記録され、次の粒子打ち込みに対して系の構造変化を反映できる仕様にした。また、本研究で開発したコードは、ACAT と同じ非結晶材料への打ち込みであれば、ACAT コードと比較して約 10 倍の計算速度の向上も実現している。参考までに、開発したコードでシミュレーションした粒子軌道を可視化したものを示す。図 6.3 はタングステン (100) 表面に 300 eV の水素を数個直入射した時のものである。シミュレーションボックスサイズは (95 nm × 95 nm × 158 nm) であり、真空層を上から 16 nm 取った。図 6.3 から明らかなように、固体内では

ぼ直進しながら進入（チャネリング）する水素の軌道が確認できる．表面付近で反射し，真空中に放出されている粒子も確認できる．粒子の軌道は不自然に不連続になっているのは，周期境界条件によるものであることに注意されたい．

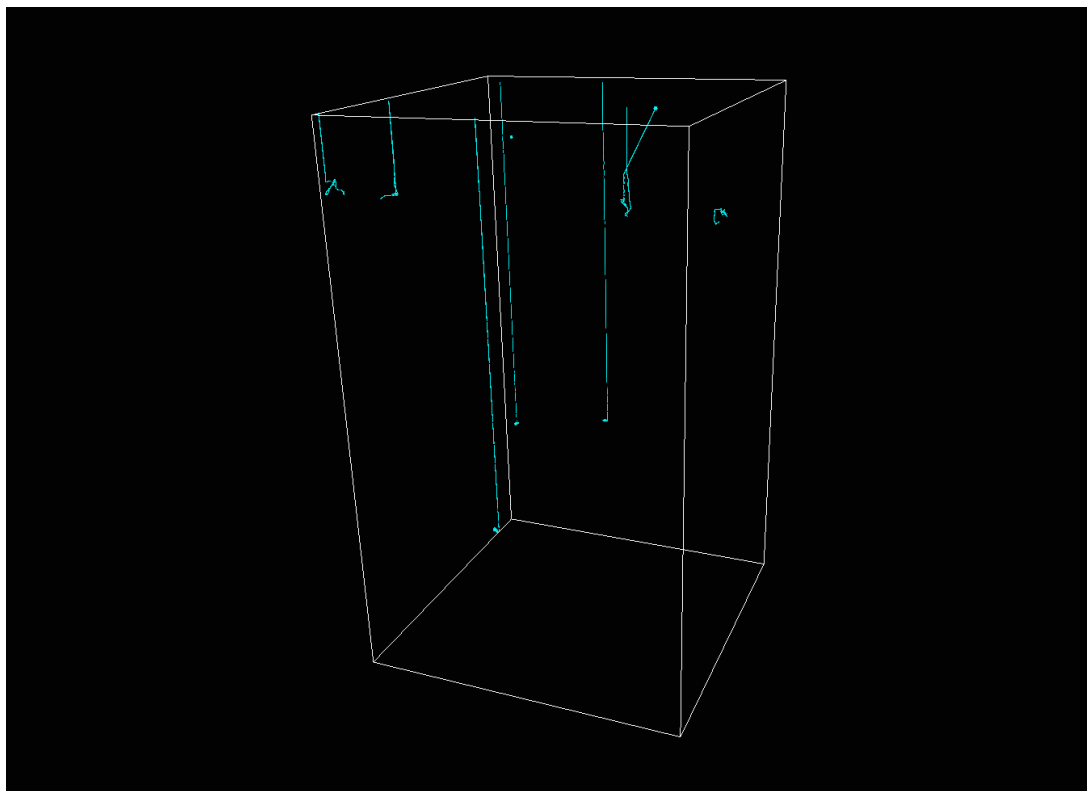
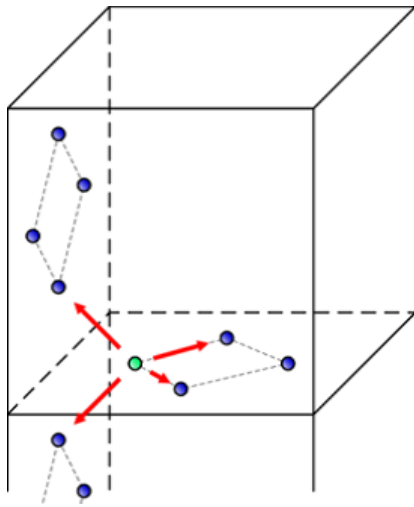


図 6.3 ハイブリッド化のため新たに開発した BCA コードの結果．水色がタングステン内に侵入した水素の軌道を表している．

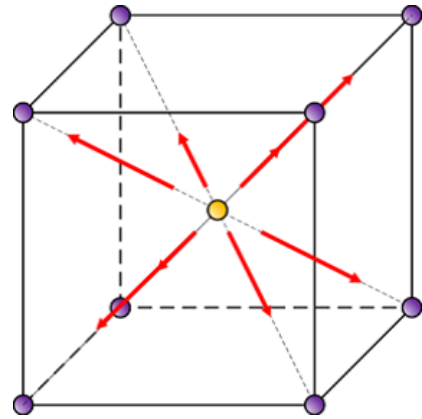
6.3.2 水素－タングステン系への KMC コードの開発

水素－タングステン系への KMC コードの開発にあたり，メモリ空間の節約のため，タングステン粒子の代わりに空孔擬似粒子が拡散するものと考え，タングステン内で水素粒子と空孔擬似粒子が拡散する KMC を開発した．DFT 計算によると，BCC 結晶タングステン材料内での局所安定点は T サイトであることが分かっているため，水素は図 6.4 に示すような T サイトを移動し，空孔はタングステン結晶格子を移動するものとした．

図 6.5 のようにある粒子が位置 A から B へと移動するのに必要な障壁エネルギーを



[1] 水素は T サイトを拡散する.



[2] 空孔はタングステン格子を拡散する.

図 6.4 KMC における拡散サイト.

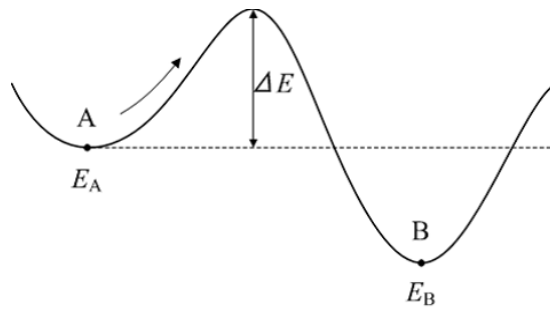


図 6.5 ハイブリッド化のため新たに開発した BCA コードの結果. 水色がタングステン内に侵入した水素の軌道を表している.

ΔE とした場合, その移動イベント i の起こる確率を以下のように定める.

$$R_i = P^0(T) \exp(\Delta E/kT) \quad (6.1)$$

ここで $P^0(T)$ はプリファクターと呼ばれる量で単位は $[s^{-1}]$ である. いま, 考えている系全体で起こりえる粒子の移動イベントの確率の総和を R_{tot}^{mig} とすれば, R_{tot}^{mig} は,

$$R_{tot}^{mig} = \sum_i R_i \quad (6.2)$$

となる. あるステップで選ばれる移動 (migration) イベントは, 一様乱数 r を用いて以下の式を満足するものが選択される.

$$\sum_i^n \frac{R_i}{R_{tot}^{mig}} < r \leq \sum_i^{n+1} \frac{R_i}{R_{tot}^{mig}} \quad (6.3)$$

この時の経過時間は以下の式で表現できる.

$$\Delta t = -\frac{1}{R_{tot}^{mig}} \ln(r) \text{ [s]} \quad (6.4)$$

また本研究で用いるプリファクター $P^0(T)$ は水素の T サイト間の移動を考慮すると

$$P^0(T) = \frac{3D(T)}{l^2 \exp(-\beta\Delta E)} \quad (6.5)$$

のようになる. ただし $\beta = (kT)^{-1}$. ここで $D(T)$ は水素の拡散係数で本研究では大阪大学の上田グループの実験によって得られた温度依存性のある式 $D(T) = 3.0 \times 10^{-9} \exp(0.26/kT)$ を採用した. l は BCC 結晶構造のタングステンの格子定数である. また各イベントの発生確率は, 後に示す詳細釣り合いの原理を満足するように決定されなければならない.

6.3.3 水素-タングステン系における格子エネルギーモデル

全エネルギーを

$$E = E_H + E_V + E_{HH} + E_{VV} + E_{HV} \quad (6.6)$$

で定義する.

ここで E_H は水素がタングステン内部に固溶し存在することによるエネルギーである. 系内全ての H の数を N_H としたとき,

$$E_H = N_H \varepsilon_H \quad (6.7)$$

とする. ここで ε_H は H の固溶エネルギーであり,

$$\varepsilon_H = E(W_{128}H) - \{E(H) + E(W_{128})\} \quad (6.8)$$

で定義される. 一般に $\varepsilon_H < 0$ である.

次に E_V は空孔が存在することによるエネルギーである. 系内すべての空孔の数を N_V としたとき,

$$E_V = N_V \varepsilon_V \quad (6.9)$$

とする. ここで ε_V は空孔形成エネルギーであり,

$$\varepsilon_V = E(W_{127}V) - \frac{127}{128} E(W_{128}) \quad (6.10)$$

とする.

E_{HH} は水素間の相互作用エネルギーである. 水素は空孔内外に関わらず T サイト相当

の場所に位置するという条件が課されている。このとき、ある T サイトから見て第一隣接の T サイトは 4 つある。そこで、ある水素 i に対して、第一隣接に存在する水素の数を $n_i (= 0, \dots, 4)$ とする。このとき水素間相互作用エネルギー E_{HH} を次式で定義する。

$$E_{\text{HH}} = \frac{1}{2} \sum_i^{\text{H}} n_i \varepsilon_{\text{HH}} \quad (6.11)$$

ここで ε_{HH} は水素が 2 つ隣り合ったときの相互作用エネルギーである。実際には ε_{HH} は水素の位置が空孔の内外かで値が異なるが、今回の簡略モデルではバルク内のエネルギーで統一する。すなわち、

$$\varepsilon_{\text{HH}} = \{E(\text{W}_{128}\text{H}_2) + E(\text{W}_{128})\} - 2E(\text{W}_{128}\text{H}) \quad (6.12)$$

である。

E_{VV} は空孔間の相互作用エネルギーである。空孔は BCC 格子点にだけ存在できる。ある BCC 格子点から見て再隣接の BCC 格子点の数は 8 である。ある空孔 i に対して第一隣接にある空孔の数を $m_i (= 0, \dots, 8)$ とすれば、 E_{VV} を次のように定義する。

$$E_{\text{VV}} = \frac{1}{2} \sum_i^{\text{V}} (m_i + 1) v_{\text{VV}} \quad (6.13)$$

ここで v_{VV} は空孔の結合エネルギーであり、

$$v_{\text{VV}}(x) = \{E(\text{W}_{128-x}\text{V}_x) + (x-1)E(\text{W}_{128})\} - xE(\text{W}_{127}\text{V}) \quad (6.14)$$

とする。ただし、 $\text{W}_{128-x}\text{V}_x$ という状態は、図 6.6 においてサイト 0 にすでに空孔があり、 $m_i = x - 1$ の値に応じてサイト 1 から 8 まで順に空孔が増えていくものとする。図 6.6 では m_i に対して空孔数は $x = m_i + 1$ である。また、式 (6.14) は $x = 1$ のとき $v_{\text{VV}}(1) = 0$ を満たす。

E_{HV} は水素-空孔間の相互作用エネルギーである。ある水素 i から見て、再隣接の BCC 格子点は 4 つある。そこである水素 i の再隣接の BCC 格子点に存在する空孔の数を $a_i (= 0, \dots, 4)$ とすれば、 E_{HV} は次のような a_i の関数とする。

$$E_{\text{HV}} = \sum_i^{\text{H}} v_{\text{HV}}(a_i) \quad (6.15)$$

ここで v_{HV} は空孔と水素の結合エネルギーであり、

$$a_i = 1 \text{ のとき, } v_{\text{HV}}(1) = \varepsilon_{\text{HV}} \quad (6.16)$$

ここで ε_{HV} は下式で定義される。

$$\varepsilon_{\text{HV}} = \{E(\text{W}_{127}\text{VH}) + E(\text{W}_{128})\} - \{E(\text{W}_{127}\text{V}) + E(\text{W}_{128}\text{H})\} \quad (6.17)$$

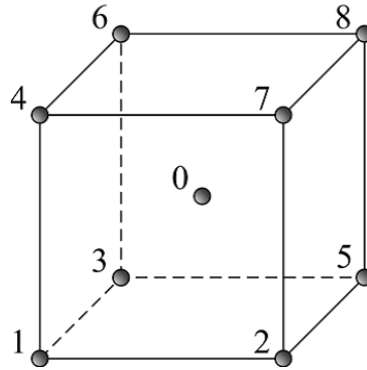


図 6.6 KMC モデルで考慮する空孔の増加順序.

一般には $\varepsilon_{\text{HV}} < 0$ (local minimum state) である. T サイトに水素があるとき, 最隣接の BCC 格子点は 4 か所あり, 本モデルでは, 水素周辺の空孔の個数のみにエネルギーモデルが依存するものと仮定する. 例えば, $a_i = 2$ のとき, 恐らく 2 通りの状態を考える必要があるが, 今回は区別をしない. また $a_i \geq 3$ ならば一般的に次が成り立つ.

$$v_{\text{HV}}(4) > v_{\text{HV}}(3) > v_{\text{HV}}(2) > 0 \quad (6.18)$$

ここで, $a_i = 4$ のとき, 水素 i の周りには金属原子がないので, そこは真空中と変わらないとみなせば, 水素の solution energy をキャンセルするように

$$v_{\text{HV}}(4) = -\varepsilon_{\text{H}} > 0 \quad (6.19)$$

とする. ここから, $a_i \geq 2$ においては

$$v_{\text{HV}}(a_i) = -\frac{a_i}{4}\varepsilon_{\text{H}} > 0 \quad (6.20)$$

と定める. また, もちろん

$$v_{\text{HV}}(0) = 0 \quad (6.21)$$

である.

さて, 式 (6.20) は空格子点での議論が抜けている. 単空孔における水素の結合エネルギーは, 後に示す図 6.11 に示すように水素数が 1-6 の場合に約 1 eV であるので全結合エネルギーは $1 \text{ eV} \times (\text{水素数})$ となる. 個々の水素に独立な視点で式 (6.20) において $\varepsilon_{\text{HV}} = 1 \text{ eV}$ とすることは妥当と考えられる. しかし, 単空孔内の水素数が 7 以上の場合を考えると, この場合には成り立たない. 単空孔内の水素数が 7 以上では図 6.11 の様に binding energy はほぼ 0 eV のなるべきであるが, 式 (6.20) ではそうはならない.

空孔周りの水素数を数える場合, 空孔 i の最隣接の T サイトは 24 ある. そこで, 最隣接

の T サイトにいる水素の数を b_i とし,

$$E_{\text{HV}} = \sum_i^{\text{H}} v_{\text{HV}}(a_i) + \sum_i^{\text{V}} v_{\text{VH}}(b_i) \quad (6.22)$$

のように第 2 項を加え,

$$v_{\text{HV}}(b_i) = \begin{cases} 0 & \text{if } b_i \leq 6, \\ -(b_i - 6) \varepsilon_{\text{HV}} & \text{otherwise} \end{cases} \quad (6.23)$$

6.3.4 詳細釣り合いの原理 [2]

マスター方程式と孤立系の詳細釣り合いの条件

孤立系 A を考える. 系 A に関するハミルトニアンを

$$H = H_0 + V \quad (6.24)$$

としよう. ただし V は摂動項で, H_0 に比べ十分に小さいものとし, ハミルトニアン H_0 により系 A が取り得る量子状態を r で示し, 対応するエネルギー準位を E_r とする. $V = 0$ であれば, これらの状態は全ハミルトニアンの量子状態に対応することとなり, 系 A はこれらの状態のうち 1 つに停留し続けることになると考えられる. しかし摂動項 V がハミルトニアンに付与されれば, これが様々な非摂動状態 r 間の遷移を引き起こす可能性があるため, V が有限な場合はそうはならない. V が小さく, 系が取り得るエネルギー準位が殆ど連続的に分布しているとして適当な (あまり短すぎない) 時間間隔をとってみると, 系 A の非摂動状態 r から非摂動状態 s への単位時間あたりの遷移を表す個別の遷移確率 W_{rs} が存在することになる. エネルギー保存則によって W_{rs} は $E_r \neq E_s$ のとき $W_{rs} = 0$ となる. さらに, この遷移と状態 s から状態 r への逆遷移とを関係づける対称性があり,

$$W_{rs} = W_{sr} \quad (6.25)$$

が要請される. このことは量子力学によって

$$W_{rs} \propto |\langle s|V|r\rangle|^2 = \langle s|V|r\rangle^* \langle s|V|r\rangle \quad (6.26)$$

であるという事実から導き出される. ただし $\langle s|V|r\rangle$ は状態 r と状態 s の間の行列要素である. V はエルミットであるから $\langle s|V|r\rangle = \langle r|V|s\rangle^*$ であり, 上の関係が直ちに得られる.

系 A が時刻 t において与えられた状態 r に見い出される確率を $P_r(t)$ とする. P_r は時間的に増加する傾向と減少する傾向をもっている. すなわち, 他の状態にある系が状態 r へ遷

移するために時間とともに増加し、また、状態 r にある系が他の状態 s へ遷移するために時間的に減少する。したがって、 P_r の時間依存性は方程式

$$\frac{dP_r}{dt} = \sum_s (P_s W_{sr} - P_r W_{rs}) \quad (6.27)$$

によって記述される。もし N 個の状態があれば、それらの状態に応じて N 個の未知の P_r に対応する N 個のこのような方程式が得られる。したがって、遷移確率 W_{rs} を知っていれば確率 P_r を時間の関数として算出することができる。上の式はマスター方程式と呼ばれている。

もし孤立系が平衡にあれば、アприオリ等確率に関する基本的公準はすべての r と s に対して

$$P_r = P_s \quad (6.28)$$

を要求する。そうすると、対称性 (6.25) によって、マスター方程式 (6.27) の右辺は

$$P_s W_{sr} - P_r W_{rs} = P_s (W_{sr} - W_{rs}) = 0 \quad (6.29)$$

を与えるので、式 (6.27) から全ての r に対して $dP_r/dt = 0$ となる。このように式 (6.27) は平衡の条件を正しく記述している。

関係式 (6.29) は詳細釣り合いの条件を表している。それによると、任意の遷移が生じる割合はそれに対応する反転遷移が生じる割合に等しい。すなわち、($W_{rs} \neq 0$ であるような) 同じエネルギーの状態は関係式

$$P_r W_{rs} = P_s W_{sr} \quad (6.30)$$

によって結ばれている。これは確かにすべての r に対して $dP_r/dt = 0$ であることを保証する十分条件である。しかし、それは必要条件にはならない。いま示したように、条件 (6.29) は平衡において満たされている。しかしながら、 $dP_r/dt = 0$ によって定義される非平衡定常状態に出くわすことがあり得る。そういう状態では条件 (6.29) が満たされていない。

詳細釣り合いの条件が $P_r = P_s$ の成り立つ平衡の状況において成立することを仮定すると、条件 (6.29) から直ちに $W_{sr} = W_{rs}$ が結論できる。遷移確率 W はその系が平衡にあるとかないとかの如何によらない力学的な量であるから、たとえ A が平衡になくても、関係式 $W_{sr} = W_{rs}$ は全く一般的に成立しなければならない。このようにして、再び条件 (6.25) の結果に到達する。

熱溜に接した系

系 A がそれよりずっと大きい系 A' と熱的に接しているとしよう。結合系 $A^{(0)} = A + A'$ の全ハミルトニアンは

$$H = H_0 + H' + V \quad (6.31)$$

である。ここで、 H_0 は系 A のハミルトニアンであり、 H' は熱溜 A' のそれであって、 V は非情に小さくて A と A' の間の弱い相互作用を記述している。 $V = 0$ であって相互作用がないときに状態 r における A のエネルギーを E_r で、状態 r' における A' のエネルギーを $E_{r'}$ で示すことにしよう。相互作用 V があるとき、これらの状態間に遷移がおり、 A と A' の間の平衡をもたらす原因になる。 A が状態 r にある確率を P_r とし、それに対応して A' が状態 r' にある確率を $P_{r'}$ としよう。結合系 $A^{(0)}$ の状態は数 r および r' の組によって記述される $A^{(0)}$ がこの状態にある確率は $P^{(0)}_{rr'} = P_r P_{r'}$ である。この結合系において相互作用 V は状態間の遷移を引き起こす。前節で導入した仮定と同様な仮定をおくと、単位時間あたりに状態 rr' から ss' への遷移を表す明確に定義された遷移確率 $W^{(0)}(rr' \rightarrow ss')$ が存在することになる。エネルギー保存によって

$$E_r + E_{r'} \neq E_s + E_{s'} \text{ のときは } W^{(0)}(rr' \rightarrow ss') = 0 \quad (6.32)$$

である。その上、孤立系 $A^{(0)}$ に対しては式 (6.25) が対称性の条件

$$W^{(0)}(ss' \rightarrow rr') = W^{(0)}(rr' \rightarrow ss') \quad (6.33)$$

を与える。まず最初、平衡のときに成立する関係式を思い出そう。そうすると、 A が与えられた状態 r にあることがわかっていれば、 P_r は $A^{(0)}$ に許される状態の総数に比例する。したがって、

$$P_r \propto 1 \cdot \Omega'(E^{(0)} - E_r) \propto \exp(-\beta E_r) \quad (6.34)$$

であることがわかる。ここで $\Omega'(E')$ は A' がエネルギー E' をもつときに A' に許される状態の数であり、 $E^{(0)}$ は $A^{(0)}$ の全エネルギーを表す定数である。また $\beta \equiv \partial \ln \Omega' / \partial E'$ (ただし、 $E' = E^{(0)}$) は熱溜 A' の温度パラメータである。また平衡では詳細釣り合いの条件が支配的であり、さらに A と A' の間に存在する相互作用が A のすべての状態間の遷移を引き起こすことを仮定することによって、系 A に対するカノニカル分布式 (6.34) を得ることができる。その場合は

$$P_r P_{r'} W^{(0)}(rr' \rightarrow ss') = P_s P_{s'} W^{(0)}(ss' \rightarrow rr') \quad (6.35)$$

と書くことができる。ただし、 $W^{(0)} \neq 0$ である。等式 (6.33) を用いると、これは

$$\frac{P_r}{P_s} = \frac{P_{s'}}{P_{r'}} \quad (6.36)$$

となる。しかし、 A' 自身はカノニカル分布を満たしている。なぜなら A' の平衡は A' の温度 β の熱溜りに接しても乱されないからである。したがって、

$$\frac{P_r}{P_s} = \frac{e^{-\beta E'_{s'}}}{e^{-\beta E'_{r'}}} = e^{-\beta(E'_{s'} - E'_{r'})} \quad (6.37)$$

となる。エネルギー保存則を式 (6.35) に適用すると

$$E_r + E'_{r'} = E_s + E'_{s'} \quad \text{あるいは} \quad E'_{s'} - E'_{r'} = -(E_s - E_r) \quad (6.38)$$

でなければならない。したがって式 (6.37) は

$$\frac{P_r}{P_s} = e^{-\beta(E_s - E_r)} = \frac{e^{-\beta E_r}}{e^{-\beta E_s}} \quad (6.39)$$

となり、再び系 A に対するカノニカル分布式 (6.34) を得る。

さて、一般の非平衡の状況を考えることにしよう。しかし、熱溜り A' は非常に大きくて、 A が何をしようとも A' はつねに内部的に平衡に留まっているものと仮定する。したがって、 A' がある時刻に持っている全エネルギーの大きさには関係なく、 A' はつねに一定のパラメータ β をもったカノニカル分布にしたがって分布しているものと仮定される。こうした状況のもとで、単位時間あたりに部分系 A が状態 r から状態 s へ移る正味の遷移確率 W_{rs} を求めることにしよう。 $W_{rs} \neq W_{sr}$ ということは明らかである。

遷移確率 W_{rs} は結合系 $A^{(0)}$ に対する遷移確率 $W^{(0)}(ss' \rightarrow rr')$ に A' がある特定の状態 r' にある確率 $P'_{r'}$ を乗じて、 A' が見出され得るすべての可能な初期状態 r' と A' が落ち着き得るすべての可能な状態 s' について和をとることによって得られる。このようにして

$$W_{rs} = \sum_{r's'} P'_{r'} W^{(0)}(rr' \rightarrow ss') = C \sum_{r's'} e^{-\beta E'_{r'}} W^{(0)}(rr' \rightarrow ss') \quad (6.40)$$

となる。なぜなら、 $P'_{r'} = C \exp(-\beta E'_{r'})$ である。ただし、 C はある定数である。同様に、

$$W_{sr} = C \sum_{r's'} e^{-\beta E'_{s'}} W^{(0)}(ss' \rightarrow rr') \quad (6.41)$$

となる。しかし、エネルギー保存則の式 (6.32) は $E'_{s'} = E'_{r'} + E_r - E_s$ であることを示している。したがって、対称性の関係式 (6.33) を用いると、式 (6.41) より

$$W_{rs} = C e^{-\beta(E_r - E_s)} = \frac{e^{-\beta E_r}}{e^{-\beta E_s}} \quad (6.42)$$

を得る。 $\beta > 0$ であるような通常の場合、 $E_s > E_r$ であれば $W_{sr} > W_{rs}$ である。このように、系 A では低いエネルギーの状態への遷移のほうが反対向きの遷移より起こりやすい。

これはもちろん A に熱平衡分布をもたらすために要求される関係である。実際、平衡において詳細釣り合いの条件が支配的であることを仮定すると、

$$P_r W_{rs} = P_s W_{sr} \quad (6.43)$$

となる。その場合カノニカル分布の式 (6.39) から直ちに遷移確率の間の関係式 (6.42) が導かれる。

関係式

$$e^{-\beta E_s} W_{sr} = e^{-\beta E_r} W_{rs} \equiv \lambda_{rs} \equiv \lambda_{sr} \quad (6.44)$$

によって定義される量 $\lambda_{rs} = \lambda_{sr}$ を導入することによって関係式 (6.42) を明白にしておく
と便利である。そうすると、

$$W_{sr} = e^{\beta E_s} \lambda_{sr}, \quad W_{rs} = e^{\beta E_r} \lambda_{rs} \quad (6.45)$$

と書くことができ、 $\lambda_{rs} = \lambda_{sr}$ であるから式 (6.42) が自動的にでてくる。

系 A に対する確率はやはりマスター方程式 (6.27) を満たしている。

$$\frac{dP_r}{dt} = \sum_s (P_s W_{sr} - P_r W_{rs}) = \sum_s \lambda_{sr} (P_s e^{\beta E_s} - P_r e^{\beta E_r}) \quad (6.46)$$

さらにまた、平衡が支配的であり、したがって、系 A に対してカノニカル分布の式 (6.34) が成り立つ場合には、式 (6.42) の右辺が消え当然であるがすべての r に対して $dP_r/dt = 0$ となる。

6.3.5 第一原理計算による必要パラメータの決定

現在、核融合分野を筆頭に、様々な研究グループにおいて密度汎関数理論 (DFT) によりタングステン内での水素の局所安定サイトや移動に必要なエネルギー障壁などが計算されている。本研究では、それらのデータを参考にしつつ、モデル構築に必要な不足データ分を補う方向で OpenMX [3] を用いて独自に計算を行った。ここでは、実際にモデル構築を行った DFT 計算の一部と、コード内で使用したパラメータを用いて粒子の移動の確率モデルの一部を紹介する。

なお水素の例で示せば図 6.7 のような最も単純な水素と空孔の移動障壁には、それぞれ 0.2 eV [4] と 1.78 eV [5] を採用した。以下に示す DFT の計算結果は、全てタングステン原子 128 個を構成する ($4 \times 4 \times 4$) スーパーセルとする。OpenMX での見積もりの結果、タングステンの格子定数は 3.186 Å であった。

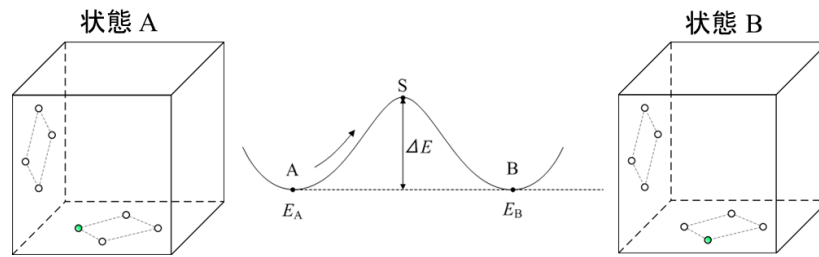


図 6.7 KMC モデル内での最もシンプルな水素の移動. 状態 A から状態 B に状態遷移を起こす時のバリアは 0.2 eV である. 図中の緑の点はその状態での水素の位置を示している.

水素の固溶エネルギー

タングステン内の水素の固溶エネルギーの算出には, 式 (6.8) を用いる. $E(W_{128}H)$ は下図のように, 水素がタングステン結晶格子内の局所安定サイトである T サイトに存在する場合を想定している. この見積の結果, ε_H は -1.3 eV である事がわかった. つまり水素単原子は真空中に単体で存在するよりもタングステン材料内に存在していた方がエネルギー的に安定となることがわかる.

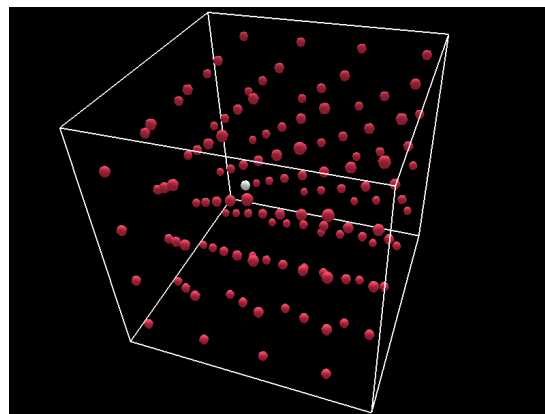


図 6.8 DFT で計算した BCC タングステン結晶中に水素がひとつある場合の局所安定状態. 水素は T サイトにある.

空孔形成エネルギー

空孔形成エネルギーの算出には式 (6.10) を用いる. $W_{127}V$ は下図のように W_{128} の結晶構造から, タングステン原子を一つ取り出し, 空孔とした状態である. この見積り

果, 空孔形成エネルギー ε_V は 3.5 eV である事がわかった。

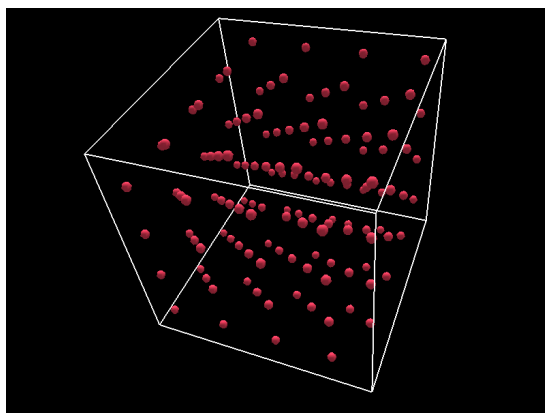
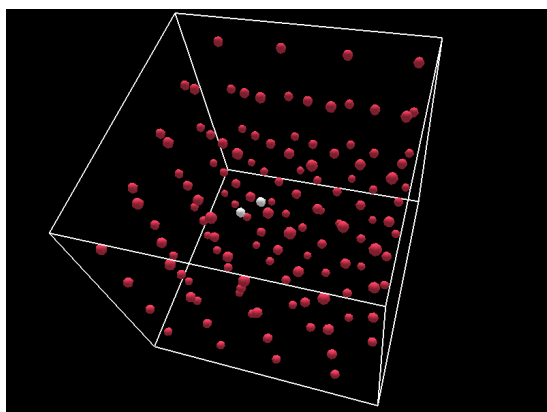


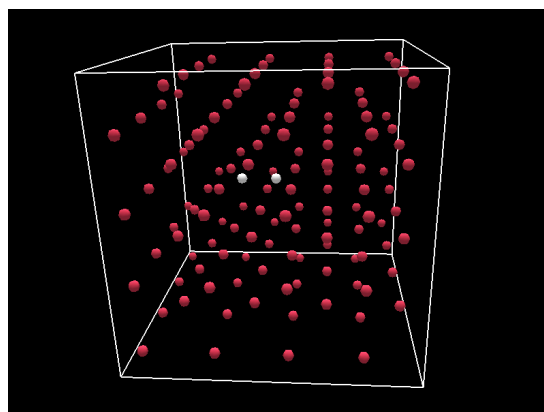
図 6.9 単空孔がある場合に DFT で見積もった構造安定状態. タングステンの BCC, 結晶は殆ど歪まない。

水素間の反発エネルギー

タングステン材料内での水素の相互作用を調べた。第一隣間での水素間のポテンシャルエネルギーは 0.49 eV であった。また、第二隣接間での水素のポテンシャルエネルギーは 0.15 eV であった。ただし今回の KMC モデルでは第二隣接からの寄与は無視するモデルとした。ここで水素間の距離に関して言及しておくが、[a] の計算結果では 1.54 Å であり、[b] の計算結果では 1.8 Å であった。また、同様に DFT で算出した結果では、 H_2 分子の原子間距離は 0.74 Å であったため、原子間距離が十分に距離が離れることから、材料内部では水素は分子として存在しないとする。



[a] 第一隣接間での相互作用。



[b] 第二隣接間での相互作用。

図 6.10 第一隣接と第二隣接間にそれぞれ水素がある場合の安定状態。

単空孔の水素トラップエネルギー

空孔に水素がトラップされた場合の水素-空孔間の結合エネルギーに関して調査を行った。結合エネルギーとは一言で言えば、原子が一つ増えた際のエネルギーの利得を意味する。結合エネルギーが正ならより安定化して凝集が進むことを意味し、負なら不安定化するため凝集がそれ以上進まないことを意味する。図 6.11 に示した DFT の算出結果によると、水素は 6 原子までは正であるが、7 原子目から殆ど 0 になり、自己凝集が止まる。これを反映したモデルが KMC のエネルギーモデルの中の E_{HV} に反映されている。

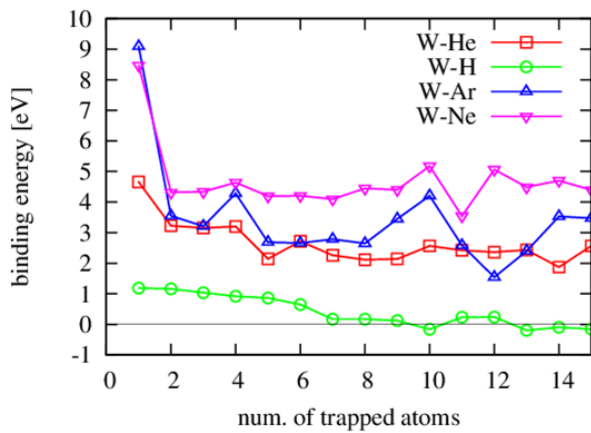


図 6.11 水素と単空孔の結合エネルギー [6].

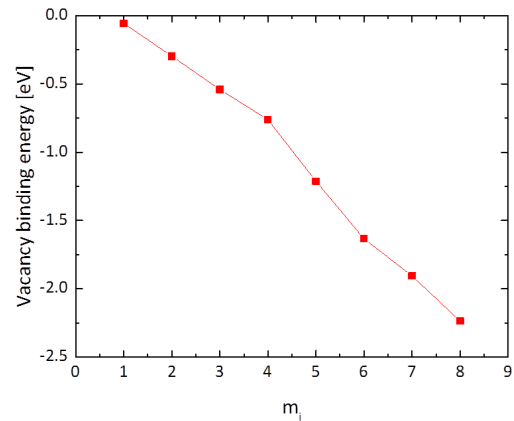


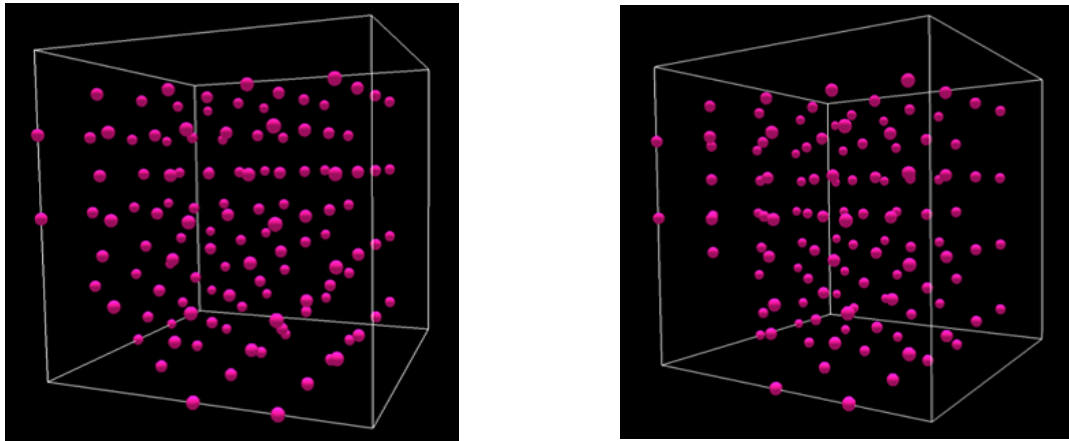
図 6.12 空孔間の結合エネルギー。

空孔の結合エネルギー

空孔間の結合エネルギーも KMC モデルにある式 (6.13) として算出した。図 6.12 にその結果を示す。図 6.13 に $m_1 = 4$ と $m_1 = 8$ の場合の DFT で計算した安定構造を示す。空孔を $m_1 = 8$ まで増やしても、周辺のタングステン結晶構造は殆ど歪まないことは驚きである。

6.3.6 BCA-KMC ハイブリッドシミュレーションコードの開発

さて、今まではハイブリッド用の BCA コードの開発と、KMC の開発に関して解説をしてきた。ここではハイブリッドの方法を解説しよう。先程も一般の KMC のアルゴリズムを紹介したが、改めてそのアルゴリズムを図 6.14 に示す。BCA-KMC ハイブリッドシミュレーションでは、BCA による 1 粒子の入射を、この図中の KMC のイベントとして考える



[a] $m_i = 4$.

[b] $m_i = 8$.

図 6.13 空孔クラスターがある場合の安定構造. BCC 結晶格子に殆ど歪みはない.

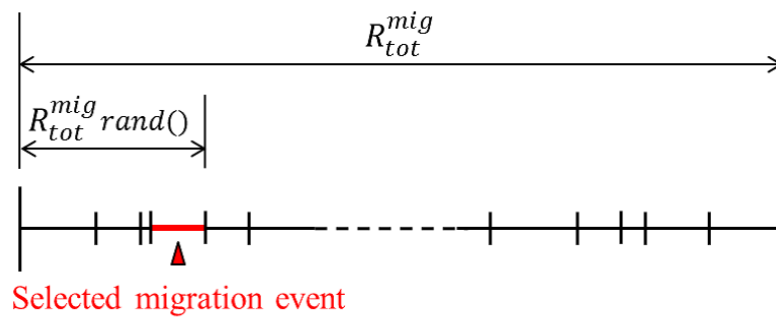


図 6.14 通常の KMC のアルゴリズムを表した図.

のである. 次はその概念図を図 6.15 に示した.

1つの入射粒子が1秒間に飛来する確率は, $R_{BCA} = S\phi$ で表現できるから, これを全移動パターンの確率の総和に足し込み, KMC を繰り返すのである. ここで, ϕ は粒子の照射フラックスで, S は考えている標的材料の表面積である. 勿論, 粒子入射によって位置が移動したものや, 新たに材料内に堆積した粒子, 形成された空孔などは次のイベントに反映され, このイタレーションを繰り返し, 衝突と拡散過程を長時間に渡り同時にシミュレーションできる新技法を考案し開発した.

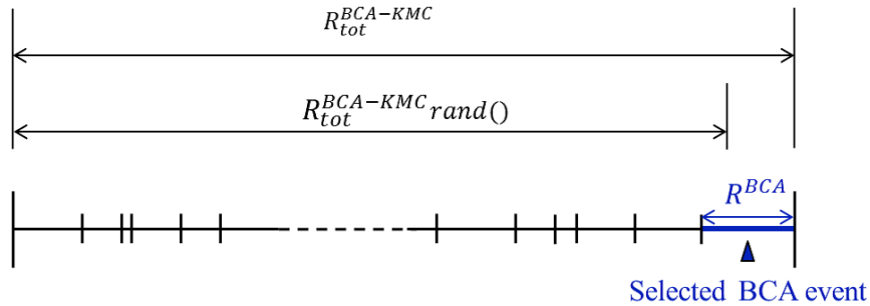


図 6.15 ハイブリッドコードのアルゴリズム. BCA による粒子入射を KMC のイベントとして取り扱う.

6.4 BCA-KMC ハイブリッドコードのシミュレーション結果

本研究で開発した BCA-KMC ハイブリッドコードでシミュレーションをした結果を示す. ここでは例として, 材料内に吸蔵された水素分布のフラックスと材料温度の 2 つの依存性について議論する.

6.4.1 フラックス依存性

水素粒子フラックスが ITER を想定した $1.0 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ と, 実験室で実現可能なフラックスの最高値である $1.0 \times 10^{22} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ での計算結果の比較をした. 水素は BCC(100) 表面のタングステンに 300 eV (空孔形成閾値未満のため, 本シミュレーション条件では空孔は形成されない.) で直入射され, 材料温度は 1000 K とした.

また考慮するシミュレーションボックスサイズは $(63.3 \text{ nm} \times 63.3 \text{ nm} \times 1 \text{ }\mu\text{m})$ で, 大きな空間スケールでのシミュレーションが可能である. 図 6.16 と図 6.17 に材料内の水素分布を可視化した結果を示す. 更にこの結果を解析し, 吸蔵水素の深さ分布としてまとめたものを図 6.18 に示した. フルーエンスが共通でも, $1.0 \times 10^{22} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の方が時間の経過が大きく十分に拡散するため, 濃度も $1.0 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の場合の照射と比較して一桁下がり, 水素は材料背面まで到達している. BCA による打ち込みの効果で起こる多重散乱とチャネリングの効果による分布の概形も, $1.0 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の方では途中まで確認できるが, $1.0 \times 10^{22} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ のシミュレーションでは確認できない. また, 吸蔵量と脱離総量, 反射総量のフルーエンス依存性を図 6.19 に示した. 今回行ったシミュレーションにスパッタは起こらなかったが, $1.0 \times 10^{22} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の場合, 時刻 0.12 msec までに $1.7 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$

の透過があった。図 6.19 から $1.0 \times 10^{22} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ のフラックス照射下では材料内の水素濃度は飽和し始めている傾向も確認できる。フルーエンスが同じでも、フラックスが異なれば材料内の水素分布は大きく変わることが確認できた。

6.4.2 材料温度依存性

次に、材料温度をそれぞれ 300 K, 1000 K に設定し、水素を入射エネルギー 300 eV, フラックス $1.0 \times 10^{22} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ で BCC(100) 表面に直入射させ材料内の水素分布の違いを検証した。考慮するシミュレーションボックスサイズは (63.3 nm × 63.3 nm × 1 μm) である。

図 6.20 と図 6.21 に材料内の水素分布を可視化した結果を示す。また図 6.20 と図 6.21 の結果を深さ分布にまとめ直したものを図 6.22 に示した。照射開始からの経過時間が同じでも材料温度が 300 K の場合は拡散による効果が小さいため、BCA によって起こる鏡面付近で起こるチャネリングを起こさずに堆積する水素とチャネリングを起こして材料内の深くに堆積する成分に別れており、材料内での水素分布は BCA による打ち込みの影響を強く受ける。しかし、材料温度が 1000 K の場合は粒子が照射される時間間隔に十分拡散をし表面から多くの水素が脱離するために 300 K の場合の水素分布の外形とは大きく異なり、フラックスが同じでも同時刻の濃度は二桁下がる。

6.5 結論

第 6 章では、BCA と KMC のハイブリッド手法である BCA-kMC を提唱してコード開発することで BCA の応用範囲の拡大をした。BCA-kMC ハイブリッドシミュレーションでは本来粒子の照射過程しか取り扱うことのできない BCA に kMC で拡散を考慮することで照射過程と拡散過程を同時にシミュレーションする。加えて BCA と kMC の高速計算により実験相当のフラックスで実験と同等のフルーエンスが達成できる。この BCA-kMC により、従来使用されてきた BCA と拡散方程式を解くハイブリッド手法が抱えていた問題の解決がされ、過去に前例のなかった ITER のような高フラックス粒子照射下でのタングステン材料中の水素のリテンション挙動に関するシミュレーションできるようになった。本論文の計算結果で、実験では知ることのできない材料内部の水素の吸蔵分布を定量的に明らかにし、それがフラックスや材料温度に強く依存することを示した。材料内の水素分布はフラックスと材料温度に強く依存することが示された。また、ITER や将来の DEMO 炉で想定される $10^{24} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 以上の粒子フラックスは通常の実験室では再現が困難なため、ITER の外挿には本コードが有効であると考えられる。

ただし本研究の KMC には正確な表面モデルが考慮されておらず、例えば表面再結合

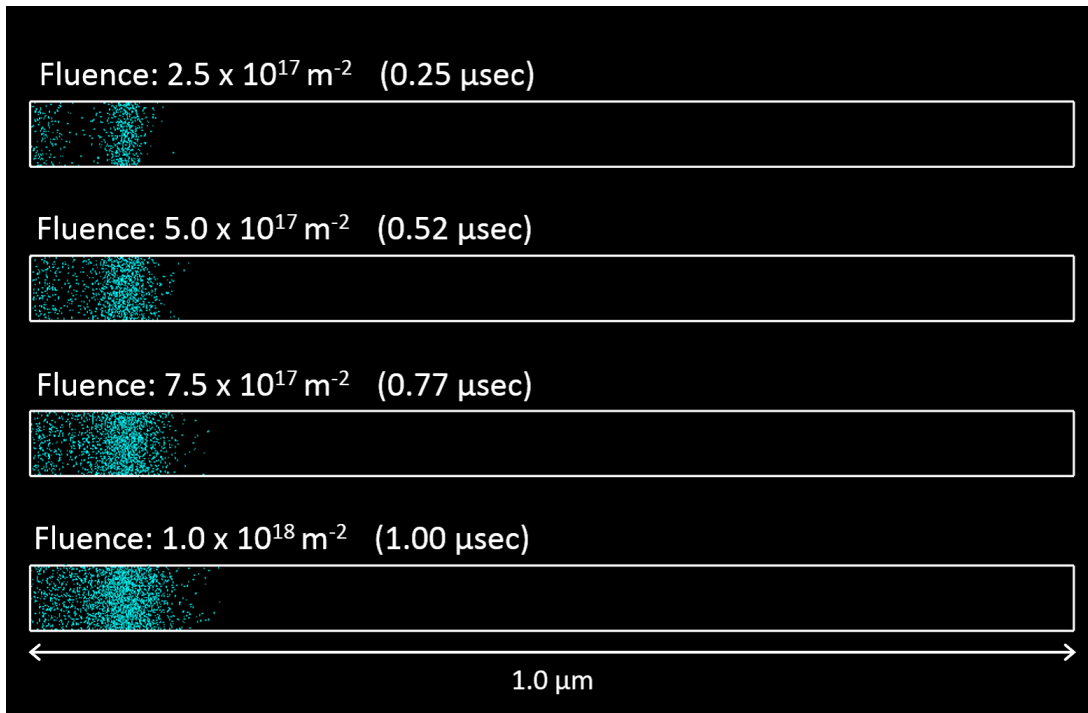


図 6.16 フラックス $1.0 \times 10^{24} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ での拡散の様子.

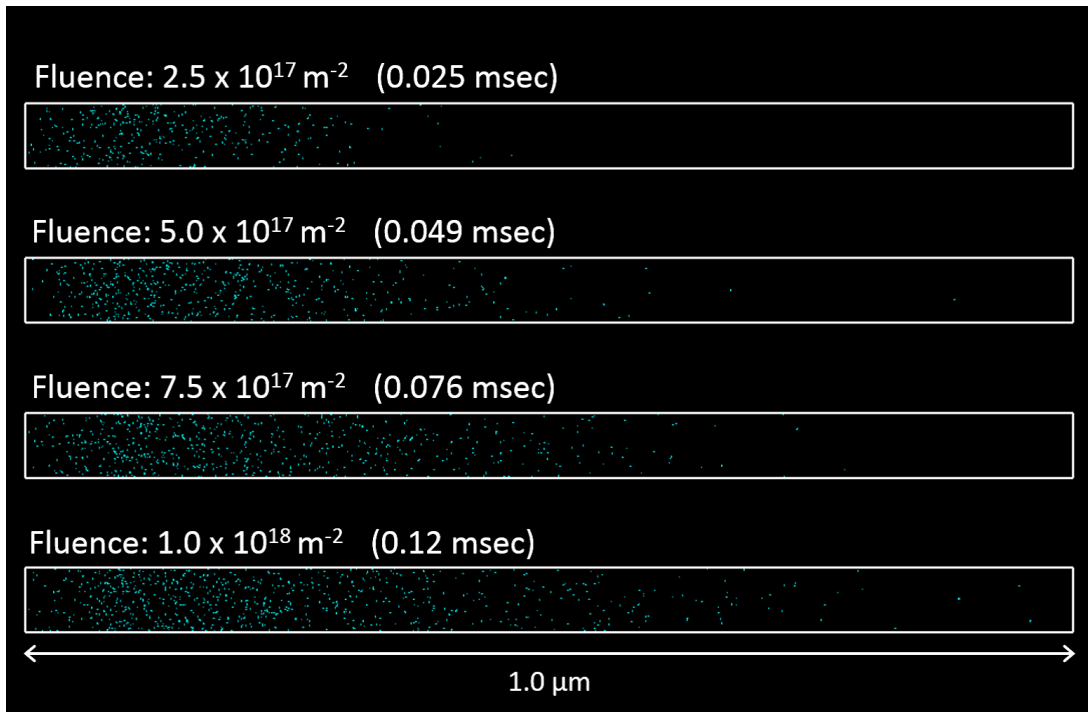


図 6.17 フラックス $1.0 \times 10^{22} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ での拡散の様子.

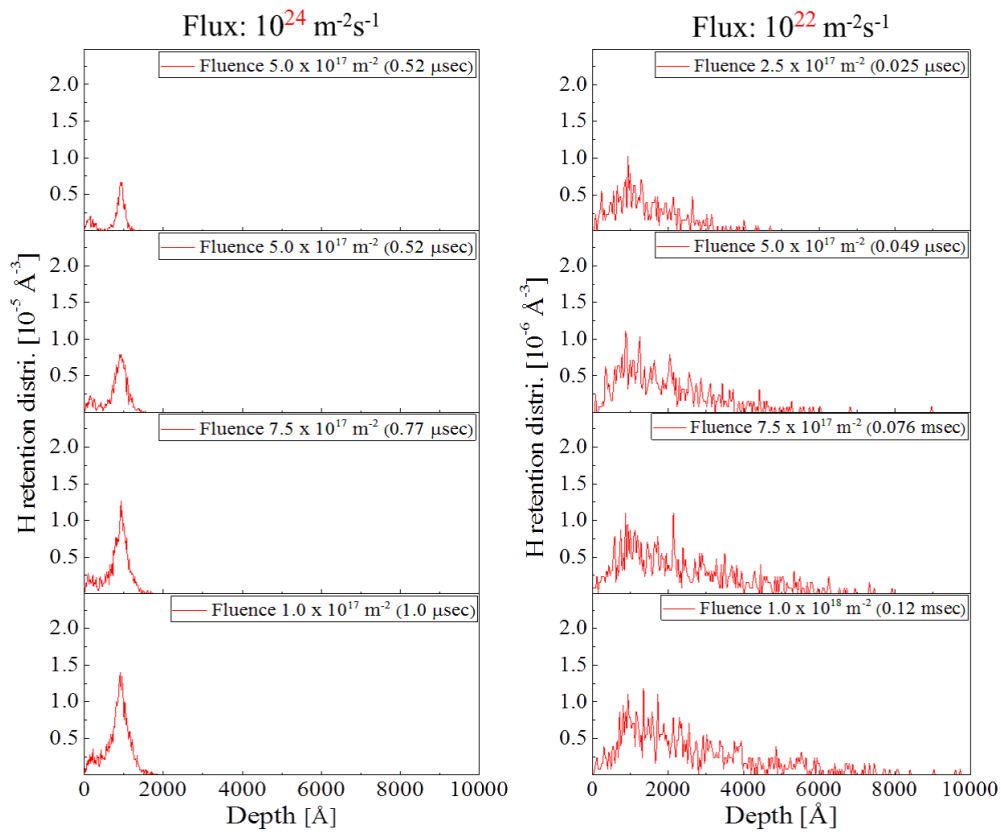


図 6.18 深さ方向に取った水素の分布プロファイルのフラックス依存性.

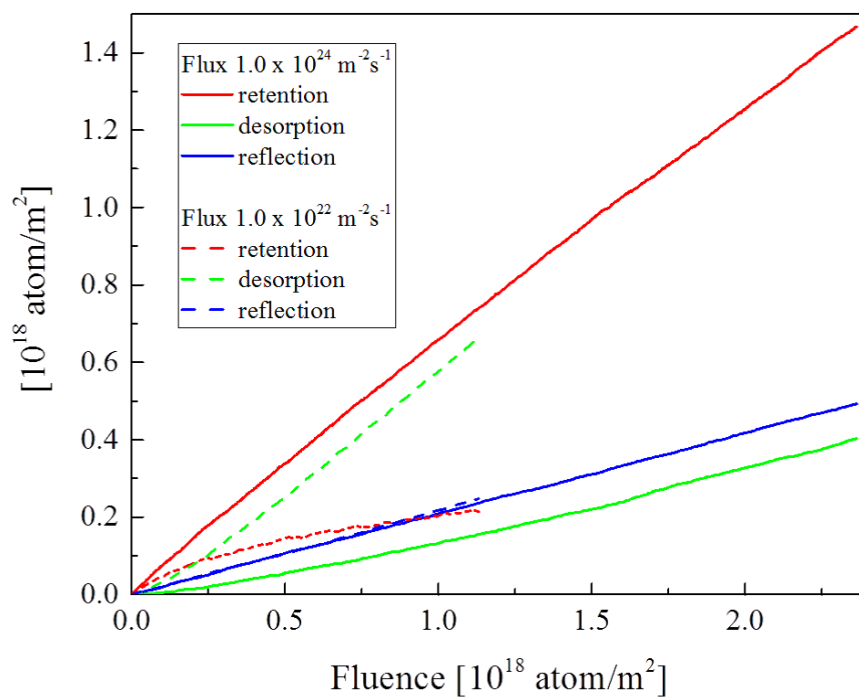


図 6.19 リテンション量, デソープション量, 反射量のフルーエンス依存性.

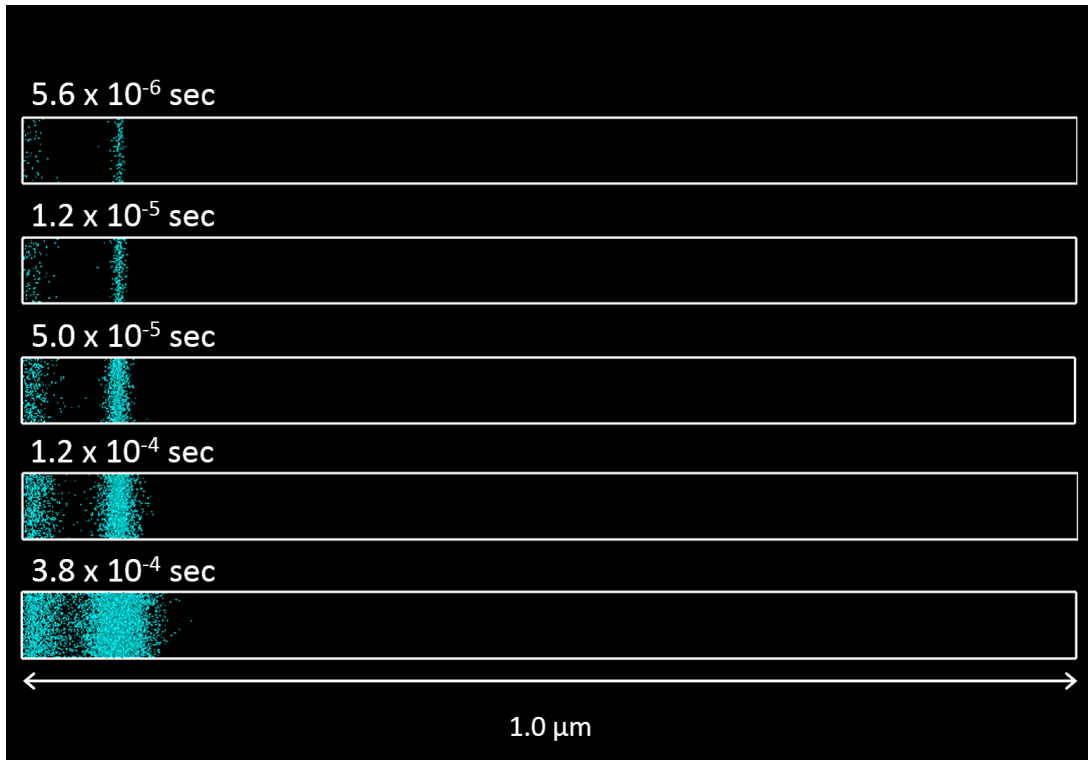


図 6.20 材料温度 300 K での拡散の様子.

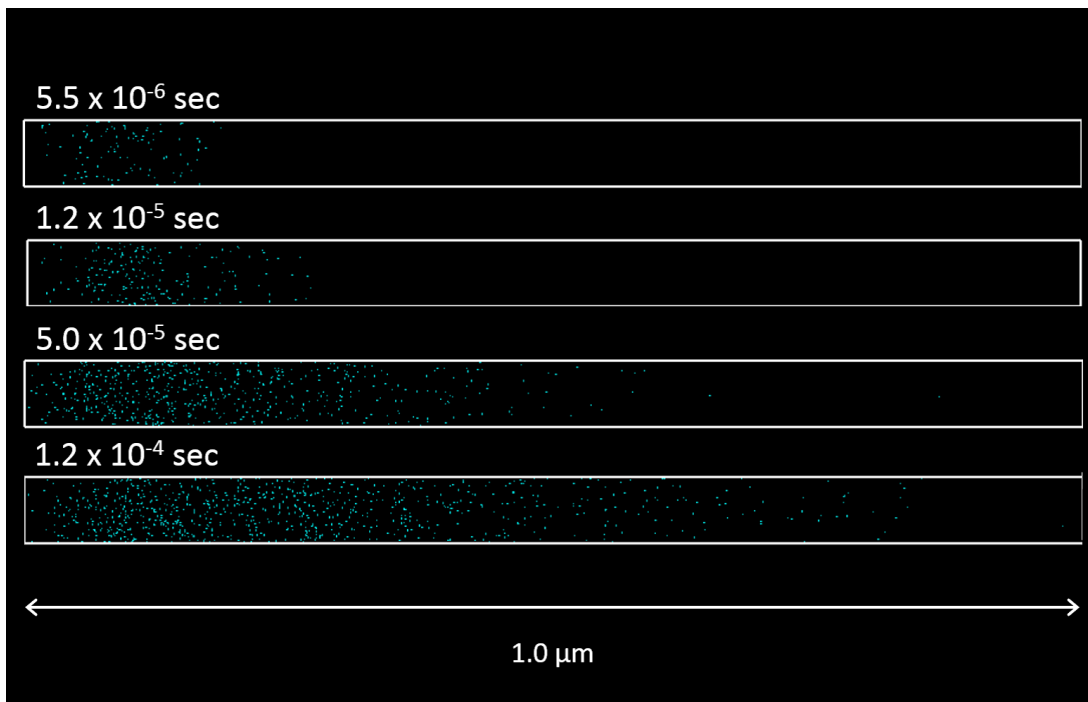


図 6.21 材料温度 1000 K での拡散の様子.

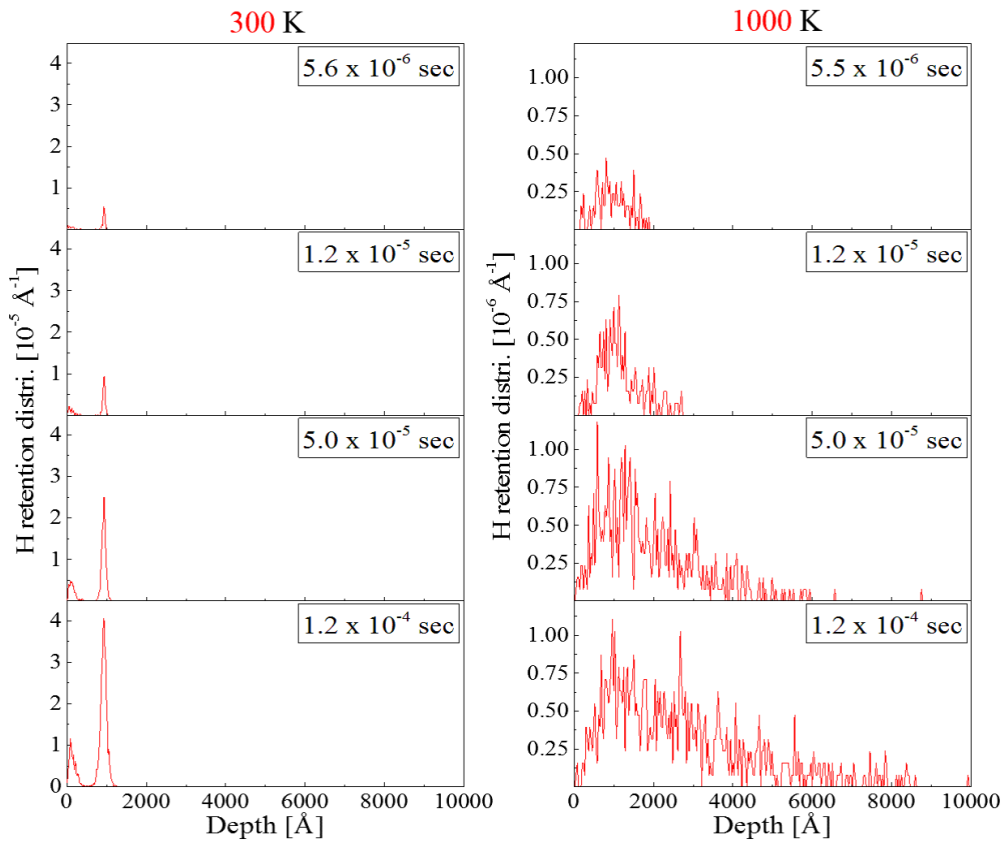


図 6.22 深さ方向に取った水素の分布プロファイルの材料温度依存性。

などが考慮できない。拡散して表面に到達した水素は無条件に脱離と判定している。材料内部に関しては様々なグループが研究を行っており、本研究でも DFT で詳細情報を得た上で KMC モデルを考案している。しかし表面に関しては複雑で、未だ吸着と脱離の物理プロセスは詳しく調べられていないのが現状である。よって今後は DFT で表面付近のポテンシャルを調査し、そこから表面の KMC モデルを新規構築することで、脱離に関してより精度の高い計算ができると期待される。一方でプログラムとしての観点で言えば、KMC の並列化技法などを開発することで、より長時間のシミュレーションを実現することも今後の課題として挙げられる。

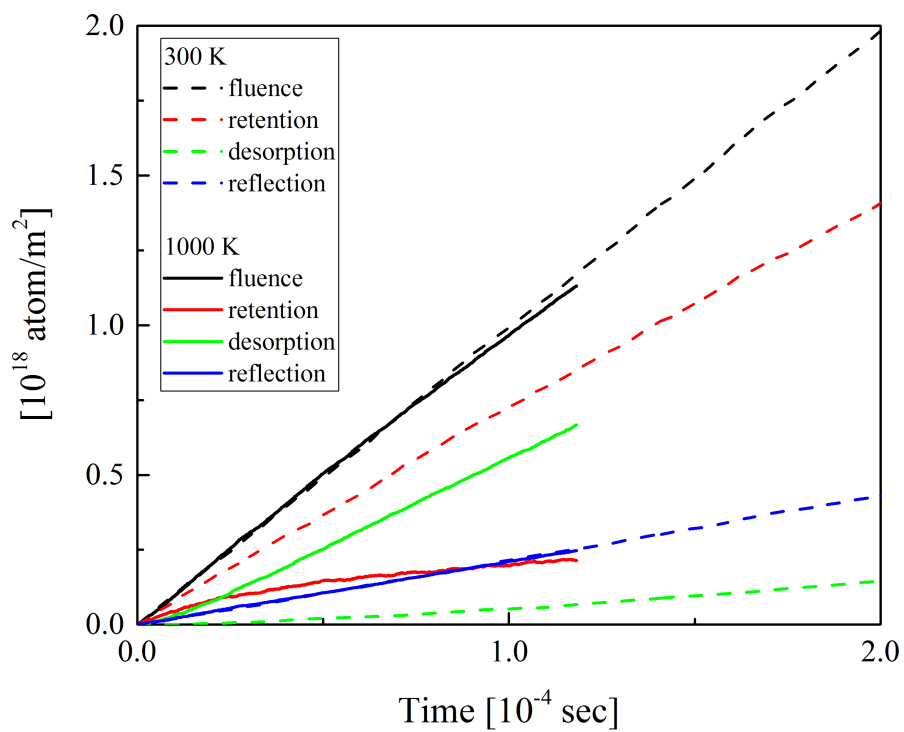


図 6.23 フルーフレンス, リテンション量, デソープション量, 反射量の時間変化.

参考文献

- [1] Y. Yamamura, Nucl. Instrum. & Methods **B28**, (1987) 17-26.
- [2] F. Reif, Fundamentals of Statistical and Thermal Physics, Waveland Pr Inc (2008).
- [3] OpenMX web-site:<http://www.openmx-square.org/>
- [4] Yue-Lin Liu, Ying Zhang, G.-N. Luo, Guang-Hong Lu, J. Nucl. Mater. **390391** (2009) 1032.
- [5] Y. Oda, A. M. Ito *et al.*, J. Plasma Phys. **9** (2014) 3401117.
- [6] A. M. Ito, A. Takayama, Y. Oda, T. Tamura *et al.*, J. Nucl. Mater. **463** (2015) 109.

第7章

総括

本論文では核融合分野と高エネルギー物理学分野にある PMI, 特に水素-物質相互作用について BCA を応用し研究を行うことで, 最終的に BCA の応用範囲を拡張した BCA-KMC ハイブリッドシミュレーションの開発に成功した.

第1章では核融合炉内のダイバータ周辺で起こる低エネルギー領域での PMI と, J-PARC 加速器の RCS 入射部における高エネルギー領域の PMI について概説し, 現在行われている最新の PMI シミュレーションについても説明し, MD-MC を例に PMI シミュレーションにおいて実験相当の粒子照射フラックスとフルーエンスを再現することは重要になることを示した.

第2章では一般に普及している BCA コードに採用されている理論, 特に非弾性散乱を考慮した二体衝突の解法や全元素の組み合わせに対応した汎用性を持つ Thomas-Fermi の二体間ポテンシャル, 電子阻止能について解説した.

第3章では, 数 keV 程度の水素分子イオンビームをタングステン材料表面に照射したとき, そこから反射されてくる水素イオンの反射強度角度分布と反射エネルギー角度分布について実験的に計測し, BCA シミュレーションの計算結果と比較した. 実験の結果, 材料表面に照射された分子は原子に即座に解離され, 単原子イオンの状態で反射されることが分かった. また H_n^+ 分子の入射エネルギーを E_0 としたとき, 反射される水素単原子イオンのエネルギーと反射強度角度分布は, 水素単原子イオンを E_0/n で照射したときのものに近くなることから, 初期に分子状態であった情報が失われることも分かった. また, ACAT コードを用いた BCA シミュレーションの結果を詳細に解析した結果, 実験では低エネルギー反射成分が検出できていない可能性を指摘できた. これは実験で用いた MCP の検出効率がエネルギーに依存しているためであると考えられ, シミュレーションの重要性についても言及した.

第4章では核融合炉で重要となる水素吸蔵問題に関して, タングステン材料内に吸蔵され

た水素同位体の誘導放出に関する定量的議論をした。議論するに当たり、材料内の同位体原子の粒子バランス方程式を提唱し、BCA シミュレーションでその方程式中に含まれる吸収率と脱離収率の見積もりをした。シミュレーションは、合金材料への粒子照射を想定して開発された ACAT コードを、水素吸蔵問題も取り扱えるよう変更を加えたコードで行った。その結果、材料内に吸蔵されたある種類の同位体を、異種の同位体打ち込みによる効果で材料内部から真空中へと放出させる場合、誘導放出効率は濃度に対し指数関数的になることが分かった。この時定数は、入射粒子と吸蔵されている原子の質量の関数である衝突時の輸送エネルギーに依存することも示された。

第5章では高エネルギー領域での BCA の応用として、J-PARC 加速器で用いられている荷電交換フォイルに水素粒子が数百 MeV の高エネルギーで入射して透過したときの透過強度角度分布のシミュレーションをし、その結果と実際に行われた RCS 入射部の γ 線スペクトルデータを解析したものを比較することで RCS 入射部周辺の放射化の原因を調査した。シミュレーションにはフォイルと共に設置されているファイバーを考慮しても、BCA シミュレーションでは大角度散乱による放射化の影響は小さいと結論付けられた。

第6章では、BCA と KMC のハイブリッド手法である BCA-KMC を提唱してコード開発することで BCA の応用範囲の拡大をした。BCA-KMC ハイブリッドシミュレーションでは本来粒子の照射過程しか取り扱うことのできない BCA に KMC で拡散を考慮することで照射過程と拡散過程を同時にシミュレーションする。加えて BCA と KMC の高速計算により実験相当のフラックスで実験と同等のフルーエンスが達成できる。この BCA-KMC により、従来使用されてきた BCA と拡散方程式を解くハイブリッド手法が抱えていた問題の解決がされ、過去に前例のなかった ITER のような高フラックス粒子照射下でのタングステン材料中の水素のリテンション挙動に関するシミュレーションできるようになった。本論文の計算結果で、材料内の水素分布はフラックスと材料温度に強く依存することが示された。また、ITER や将来の DEMO 炉で想定される $10^{24} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 以上の粒子フラックスは通常の実験室では再現が困難なため、ITER の外挿には本コードが有効であると考えられる。

本論文では BCA-KMC ハイブリッドシミュレーションの実現を代表し、低エネルギー領域から高エネルギー領域までの幅広い分野で BCA の発展と応用の可能性を提示した。今後とも BCA は様々な分野で活用されることになると期待でき、本論文はその一助となるであろう。

謝辞

名古屋大学大学院 工学研究科 エネルギー理工学専攻 教授ならびに自然科学研究機構 物理科学研究科 核融合科学研究所 教授 中村浩章 博士には、博士後期課程 2 年次生から本論文完成に至るまで、充実した研究環境と計算機資源の確保、研究に関する貴重な御意見を賜り支えて頂き謹んで感謝の意を表します。

自然科学研究機構 核融合科学研究所 物理科学研究科 准教授 伊藤篤史 博士には、研究者としての姿勢とプラズマ-壁面相互作用に関するシミュレーションに関して辛抱強くご指導くださり謹んで感謝の意を表します。

同志社大学 笹尾眞実子 博士には、本研究を進めるにあたり貴重な御意見を賜り支えて頂き、また精神面でも強く支えてくださいました。大変御世話になり、心より感謝致します。

理化学研究所 山岡人志 氏には、共同実験を通じ実験の基礎や研究の遂行の仕方を教えて頂きました。深く感謝申し上げます。

指導教員である同志社大学院理工学研究科電気電子工学専攻教授 和田元 先生には、学部 4 年次生から本論文完成まで、研究着手から研究段階、論文作成まで終始熱心にご指導、ご助言頂き心から感謝し厚くお礼申し上げます。

日頃より多くの御助言、御協力を頂きました日本 IBM 柳川琢省 博士，トヨタテクニカルディベロップメント株式会社 小田泰丈 博士，総合研究大学院 物理科学研究科 渡邊一平 氏，名古屋大学 理学研究科 佐藤竜馬 氏に深く感謝致します。

最後に、生活面で大変御世話になり、また、長い学生生活の間、常に体調と生活の状況を気遣い支えてくれた家族に心から感謝致します。