小特集 核融合炉材料のヘリウム損傷

4 . 低エネルギー高粒子束ヘリウム/重水素プラズマ照射による タングステン表面のメソスケール損傷

高 村 秀 一

(名古屋大学大学院工学研究科)

Mesoscale Erosion of Tungsten Surface
due to Low-Energy High-Flux Helium/Deuterium Plasma Irradiation

TAKAMURA Shuichi

Graduate School of Engineering, Nagoya University, Nagoya 464-8603, Japan

(Received 16 November 2004)

Experimental studies on mesoscale erosion of tungsten surface due to low-energy and high-flux helium/deuterium exposure are systematically described. Following the historical description of the accidental finding of helium bubbles and holes, possible changes in tungsten properties like the A coefficient and the work function of thermo electron emission, the emissivity and the energy reflection coefficient are discussed in terms of thermal bifurcation. Multi-dimensional parameter area for He bubble formation is identified in the space of tungsten temperature, ion fluence and incident ion energy. In particular, the threshold energy was surprisingly found to be as low as 6 eV, in association with which the formation mechanism is proposed. Finally, the effect of bubbles and holes formation on deuterium retention is quantitatively clarified.

Keywords:

tungsten, plasma-surface interaction, helium bubble, thermal vacancy, low-energy high-flux plasma, deuterium retention

本特集では核融合炉材料のヘリウム照射による劣化に関する研究成果をわかりやすく解説することがねらいの一端である。「材料専門家でない研究者や大学院生にも理解してもらえるよう平易な文章表現を心がける」と編集担当の森下先生よりご注意をいただいている。小生は根っからのプラズマ屋であり、錚々たる材料専門家の執筆者の中に異端分子が混在していることをお許しいただきたい。したがってご注意の前半は私にとって意味がなくなり、もっぱら院生・学生にも理解できるようにという点に留意すればよい。このため、小稿を研究の発展の時系列に沿ってやや物語風にアレンジすることを試みた。しかし全体としては素人目に結構体系的にまとまっているのではないかと恐いもの知らずの素人の強みで、勝手に考えている。研究成果は私共の研究室で修士の学生であった徳永一成、福田真哉、森口恵吾、包原 洋、杉本喬紀の諸君、博士課程の学生だった桑原竜弥博士、現在博士課程の西島大君、Max-Planck 研究所の叶民友博士、技官の高木誠さんそして大野哲靖助教授の皆さんと一緒に得られたものであることをあらかじめお断りするとともに皆さんに感謝します。

4.1 ヘリウムバブルの発見

根っからのプラズマ屋と書いたが、大学学部4年の時に
author's e-mail: takamura@ees.nagoya-u.ac.jp

固体(特に半導体)物性に興味を持ち、久保・永宮編「固体物理の歩み [1]」という解説書の中の久保亮五先生担当分「固体物理の話」を読んでいる時に、これからは多体効果が重要であると書かれてあることから、プラズマに魅かれ出し、卒業研究は中庸をとって「固体プラズマ」の調査であった。修士以降はどっぷりと古典プラズマに浸ってきた。しかし、プラズマ-壁相互作用ではプラズマだけではなく壁材料のことも知りたいと、名大の森田健治先生に弟子入りし、金属材料中の炭素偏析の実験と解析を行ったのが平成2~10年頃のことである。当時プラズマ-壁相互作用の一環として材料表面への高熱流プラズマの熱流入過程を直線型ダイバータ模擬実験装置 NAGDIS-I 号機を用いてタングステン(W)を標的板にして実験を行っていた。叶さんがタングステンの温度と電位測定ならびに掃引プローブによるプラズマパラメータ計測を担当し、私の方は放電電流をがんがん上げて行き、熱的非線形分岐の実験を行った[2]。直流放電電源の定格に近いところまで行ったので NISTAC の電源はうんうん音をたてていた。こうしてなんとか実験は無事終了した(Fig. 1 参照)のであるが、取り出したタングステン板を見て驚いてしまった。中心が溶融して穴が空いていたからである。タングステンの融点は 3,660 K であり、放射温度計は 3,200 K にとどまっていたからである。さ

Fig. 1 Experimentally observed thermal bifurcation on tungsten plate in helium plasma. At $t = 24$ min, corresponding to $I_p = 98$ A, $V_p = 190$ V, $n_e = 4.0 \times 10^{18} \text{ m}^{-3}$, the plate is heated up to a temperature of 2,600 K, sufficient for thermo electron emission, and a mode transition occurs.

らに不思議に思ったのは溶融した穴のまわりが同心状に黒ずんでいたことである (Fig. 2). 浅はかにもなぜ炭素がタングステン板に堆積したのかと考えた. NAGDIS-I 号機にはグラファイトを一切使用していなかったからである. 当時, 走査型電子顕微鏡 (SEM) が研究室になかったので, 他研究室で SEM 像を撮影して 2 度びっくり, ミクロンサイズのでこぼこと多数の穴があいていたのである. バブルと孔 (hole) である. 黒ずんでいたのはこのため光の反射率が減少したためと納得した.

以上の実験はヘリウムプラズマを用いて行ったが, 高熱流水素プラズマの場合は様相が一変した. ヘリウムの場合よりタングステンに流入する粒子束が多い 3.3×10^{22} イオン (m^2s) で照射したにもかかわらず, このようなバブルは全く見られず測定温度 2,800 K が再結晶温度以上のため, 再結晶化し数十ミクロンのグレインが明瞭に現れた. いずれの場合もタングステン板は電氣的に浮遊の状態にあり, シースを通してのイオンの加速エネルギーは 50 eV 以下であり, 物理的に欠陥を発生させるような高い入射エネルギーにはなく, 「低エネルギー」であることが特徴の一つである. なぜこのように低いエネルギーのヘリウムイオンが固いタングステンに損傷をもたらすかが材料の面からの重要な疑問であった.

4.2 物性定数への効果

温度計測と溶融との不整合等よりタングステン表面に形成されたミクロン大のヘリウムバブルはタングステンの物性定数に大きな変化をもたらしているのではないかと推定している. 非線形熱分岐の零次元数値解析は Fig. 3 で示されるようにシース端プラズマ密度が $1.5 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$ を超えないと高温状態への遷移が生じないと予測していた. しかし, 実験で得られた密度は最高で $0.5 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$ 程度であり, シース端では $0.3 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$ となり, 理論と実験で 5 倍もの差がある. これは密度評価の誤差をはるかに超える差である.

実は, 実験で用いられた NAGDIS-I で生成されたプラズ

Fig. 2 (a) SEM micrograph of W surface before plasma irradiation ($\times 1,000$), (b) Picture of W plate after the He plasma irradiation with $2.4 \times 10^{22} \text{ He}^+ \text{ ions}/(\text{m}^2\text{s})$, the surface temperature of bright region arrived up to nearly 3,200 K. (c) and (d) SEM micrographs of W surface at gray area of the picture (b), $\times 1000$ and 5000 , respectively.

Fig. 3 Analytically obtained thermal bifurcations S curves for tungsten plate temperature T , plasma heat flux to the plate surface q , electron temperature T_e , and the sheath voltage ϕ as a function of He plasma density at the sheath edge. $A = 6.0 \times 10^5 \text{ A/(m}^2\text{K}^2)$, work function, $\phi_{WF} = 4.54 \text{ eV}$, emissivity, $\epsilon = 0.4$ and the ion energy reflection coefficient, $R_{ie} = 0.5$.

マは磁場を横切る径方向に深い電位井戸を持ち、これがプラズマ熱流を中心に集中する効果をもたらす[3]。この結果熱的遷移を生じる密度は零次元で求めた密度値より低くなる。電位井戸の効果を過大に見積もってもシース端での臨界プラズマ密度は $0.7 \sim 0.8 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$ であり、実験値に近づくがまだ2倍以上の差がある。この差はタングステン材料の熱電子放出にかかわる物性定数である A 係数と仕事関数 ϕ_{WF} 、またエネルギー平衡に大きな影響を及ぼす放射率 ϵ 、イオンのエネルギー反射係数 R_{ie} 、熱容量、熱伝導係数等がヘリウム照射により変化したのではないだろうか。まず、可視光の鏡面反射率の測定結果を Fig. 4 に示す。核融合科学研究所の佐藤國憲先生にお世話になった。照射前に 30~40% あった反射率が約 2% と著しく減少することがわかった。しかし拡散反射率が増加している可能性があるため、この事が直接放射率の変化を示すとは限らない。そこで、光エネルギーの吸収率の増大を確かめるために、ルビーレーザーを試料面の法線に対して 48 度の角度で照射した。試料の温度上昇の結果を Fig. 5 に示す。試料温度を 1,200 K に保ったままヘリウムプラズマを 2 時間照射した後、その場でタングステン板を約 80 度回転して Q スイッチをはずしたルビーレーザー光を 31 J 照射した[4]。同図(a)に示すように未照射面より照射した面は 200 K 程度高い温度上昇を示した。2 次元熱伝導モデルを用いて解析し、実験結果を同図(b)のように再現すると 200 K の温度差は 3 倍ものエネルギー吸収率の差に対応していることがわかった。タングステン表面からの電子放出電流はシース電圧を

Fig. 4 Solid line shows the reflectivity for a virgin tungsten surface, while the dashed curves correspond to those for the irradiated samples at 1,770 K, with the fluences of 1: $2.7 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$, 2: $5.4 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ and 3: $1.1 \times 10^{26} \text{ m}^{-2}$.

Fig. 5 Surface temperature increased by a pulsed ruby-laser irradiation with the energy of 31 J on virgin tungsten surface and tungsten surface irradiated by helium plasma (a) experiment and (b) numerical analysis.

低くし、プラズマ電子に対するエネルギー障壁を下げ、プラズマ電子の熱流入を著しく増加する。したがって、放出電流を正しく評価することが求められる。温度制限熱電子放出電流はリチャードソン・ダッシュマンの式

$$j = AT^2 \exp\left(-\frac{e\phi_{WF}}{T}\right) \quad (1)$$

で表される．タングステンの A 係数，仕事関数 ϕ_{WF} はデータ表で明らかにされているが，これらは照射により何らかの影響を受けているはずである．特に仕事関数 ϕ_{WF} は少しの変化で放出電流に大きく影響することに注意する必要がある．これらは未解決の課題である．

4.3 ヘリウムバブルが発生する照射条件

タングステン材料が低エネルギー高粒子束のヘリウムプラズマ照射により著しい表面損傷を受けることは大変な驚きであった．実はヘリウムのみならず温度が低い時には水素はもっと大きな水ぶくれのようなプリスターを作ることがその後わかり，二重の驚きをもたらした[5]．この点については大変興味深いお話があるが，本稿では紙数が限られているので別の機会とし，文献をあげるにとどめる[6]．ヘリウムと水素の相乗効果については次々節で触れることにする．

どのような照射条件下でヘリウムバブルがタングステン表面に形成されるのであろうか？これは研究の出发点となる疑問である．タングステン板の温度，入射ヘリウム粒子束，フルーエンス，ヘリウムイオンの入射エネルギーそしてタングステン材料の種類（製造法）が主要なパラメータである．ダイバータプラズマ模擬実験装置を用いて高密度ヘリウムプラズマを長時間生成することにより，温度とフルーエンスの2次元パラメータ上に Fig. 6 に示すように明らかにバブル形成領域を同定することができた[7]．

温度 1,400 K 以上の高温領域でフルーエンスが $2 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ を超える時にバブルが発生する．ただ，粒子束依存性は必ずしも明らかになっていないことに注意しよう．これまで使用してきた試料は粉末冶金焼結タングステン (PM-W) であり，ヘリウムイオンエネルギーは約 50 eV である．

Fig. 6 Parameter boundary discriminating bubble formation from no bubble production.

4.4 入射エネルギーの閾値

照射条件でもう一つ重要なパラメータは入射エネルギーである．keV 以上の高エネルギーの場合には，はじき出し等により空格子や格子間原子などの格子欠陥がつくられ，ヘリウムバブルを生成するに至ることは古くから知られていたが，50 eV のようにスパッタリングの閾値よりはるかに低いエネルギーでどうしてバブルや空孔をつくり出すのであろうか，不思議なことであった．興味はどのくらい低いエネルギーのところからでき始めるのかを突き止めることである．現在博士課程に在学中の西島大君が大野先生の指導の下，NAGDIS-II ダイバータ模擬実験装置を用いて取り組み，見事に明らかにした[8]．Fig. 7 はその結果を示すものである．イオンエネルギーはプラズマと試料の電位差で決定される．イオンの熱エネルギーの寄与は小さいが，電位が電子温度 ~5 eV 程度揺動し，不確かさをもたらす．しかし閾値エネルギーはほぼ 6 eV と見極めることができた．このような低いエネルギーで高粒子束のイオン照射はプラズマの力を借りて初めて実現したことを強調したい，材料屋さんが通常用いるイオンビームでは不可能である．この 6 eV 程度というエネルギーは，ヘリウムイオン（原子）がタングステンの材料の中に入り込むために必要な表面障壁エネルギーと考えている[9]．

これでエネルギー閾値は決定されたが，タングステン内に入り込んだヘリウム原子がなぜバブルや空孔をつくるかが不明であった．それを解く鍵は試料の温度による空孔等のできる表面数密度の変化と，何よりも単結晶タングステンへのヘリウム照射の実験であった．もはや驚くべきではないかもしれないが，九州大学の吉田研よりいただいた単結晶タングステンを注意深くヘリウム照射しても同様に空孔等ができてしまい，粉末焼結タングステンと同様であった．この背景には，粉末焼結タングステンは多くの初期欠陥があり，そこにヘリウムが集まりバブルをつくり圧力が高まり，空孔に至るのではないかと考えていたからである．初期欠陥のほとんどない単結晶ではできないのかもと考えられたが，それは誤りであった．Fig. 6 でははっきりしないが，試料温度，イオン粒子束，イオンエネルギー，フルーエンスをほぼ一定に保ち，タングステンの再結晶化温度 (1,400 - 1,500 K) 前後で温度を変化させて SEM と TEM で測定すると，温度上昇とともに欠陥とバブルの数が著しく増大することが観測された．このことにより熱励起された空格子がヘリウム原子の捕捉サイトとなり，これらがヘリウム原子とともに拡散で動きやすくなり，ナノスケールのバブルが互いに再結合して成長していき，ミクロンサイズの大きさに達するというのが現在の我々の理解である．

以上の結果は，国際トカマク物理活動 (ITPA) においても高く評価され，ITPA の下で編集作業が行われている Nuclear Fusion 誌への投稿論文，「トカマク物理基礎 (TPB: Tokamak Physics Basis)」でも記述される見込みである．

Fig. 8 は Fig. 7 で示した試料の W1 の断面の拡大図である．ヘリウムが如何に表面から深く損傷を与えているかわかる印象的な写真である．バブル形成はグレイン境界に沿って深く及んでいる[10]．

Fluence Ion flux Time Temperature	$2.6 \times 10^{27} / \text{m}^2$ $3.7 \times 10^{23} / \text{m}^2\text{s}$ 7200 s 2100 K	$0.9 \times 10^{27} / \text{m}^2$ $1.2 \times 10^{23} / \text{m}^2\text{s}$ 7200 s 2600 K	$0.8 \times 10^{27} / \text{m}^2$ $1.1 \times 10^{23} / \text{m}^2\text{s}$ 7200 s 2200 K	$0.8 \times 10^{27} / \text{m}^2$ $1.1 \times 10^{23} / \text{m}^2\text{s}$ 7200 s 2950 K
Surface
Cross section

Fig. 7 Dependence of incident ion energy for bubble and hole formation on the PM-W surface irradiated by low-energy and high-flux He plasma. Heavy hole formation are seen on the surface as well as the cross sections of the samples W1 (~ 30 eV) and W2 (~ 10 eV). Smaller ones are seen in the sample W3 (~ 5 eV) and no hole and bubble is observed in the sample W4 (~ 1 eV). Magnification for all eight photos is the same ($\times 5,000$).

Fig. 8 Cross section of the sample W1 in Fig. 7 which shows the hole or pass to neighbor bubbles at the bubble wall.

4.5 重水素吸蔵への効果

プラズマ対向壁材料としてのタングステン採用の可能性を検討する際のポイントは3つある。1) ディスラプションやELMに伴う壁への熱流入による溶融の危険性, 2) タングステン原子が炉心プラズマに不純物として混入するか, 3) 水素リサイクリングへの効果。最後の点の基礎になる特性をここでは論ずる[11]。

Fig. 9は3つの試料の昇温脱離スペクトルを示す。粉末冶金焼結タングステンの未照射のものをW1とし、W2は低温度700 KにてHeフルーエンス $1.8 \times 10^{26} \text{ m}^{-2}$ で前照射したもの、W3は高温度1,600 K、 $9.0 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ のフルーエンスで得た試料である。これらに重水素プラズマを照射量 $3.0 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ 、温度550 Kの条件下で後照射を行った。昇温脱離測定には九大の吉田研究室の装置を使用させてもらった。重水素の脱離総量はW1で $R_{D2W1} = 9.2 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}$

Fig. 9 Thermal desorption spectra of (a) deuterium and (b) helium for the W samples pre-exposed by He plasma (W2 and W3) with the temperature of 700 and 1,600 K, respectively and the sample without He pre-exposure (W1).

に対して W3 のそれは $R_{D2W3} = 5.1 \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$ と約 6 倍増加していることがわかった。 $R_{D2W2} = 2.0 \times 10^{19} \text{ m}^{-2} < R_{D2W1}$ であるが、これは初期欠陥に He が捕捉され、重水素の捕捉を妨げたと解釈されている。この場合、水素のプリスターの形成がヘリウムの打ち込みにより抑制される発見もなされていることを付け加えたい。次に、W3 と W1 の比較をする。4.4 節まで述べてきたヘリウムバブルや空孔等の表面の複雑な損傷により吸蔵量が著しく増加したことを示す。わかりやすいいえば壁の見かけの面積が 6 倍に増加したことになる。水素リサイクリングに少なからぬ影響を及ぼすことを認識しなければならない。超長時間照射下では一体どうなるのであろう。未知の課題である。核燃焼プラズマではヘリウム灰が水素同位体と混在する。本結果は両者の材料への相乗効果を示す一つであると位置づけられよう。

プラズマ対向壁としての採用を考える場合、冒頭の 2) と関連し、Fig. 8 の写真より想像されるように表面から深部への熱伝達は著しく悪くなるため過渡的熱負荷により溶融が起こり大きな損傷のみならず不純物源になる危険性もあることを強調したい。

4.6 まとめ

プラズマ屋が、タングステン材料のヘリウムによる損傷に関する研究に思わぬことからたずさわって、材料屋にない、プラズマ屋の立場から材料研究の一端に寄与できたのではないかと期待している。損傷の粒子束依存性、超長時間におけるタングステン表面の様相、バブル・空孔がプラズマ熱流入に与える効果、物性定数へ与える効果の定量化、炭素などの材料混成がある場合におけるタングステン

カーバイトの偏析の効果、さらには将来の材料である低放射化フェライト鋼への照射など、研究すべき課題は広がりつつある。

参考文献

- [1] 久保亮五, 永宮建夫編:「固体物理の歩み」(岩波書店, 1962)。
- [2] M.Y. Ye, S. Takamura and N. Ohno, J. Nucl. Mater. 241-243, 1243 (1997).
- [3] T. Kuwabara, K. Kudose, M.Y. Ye, N. Ohno and S. Takamura, Contrib. Plasma Phys. 38, 349 (1998).
- [4] M. Ye, S. Fukuta, N. Ohno, S. Takamura, K. Tokunaga and N. Yoshida, J. Plasma Fusion Res. SERIES 3, 265 (2000).
- [5] M.Y. Ye, H. Kanehara, S. Fukuta, N. Ohno and S. Takamura, J. Nucl. Mater. 313-316, 72 (2003).
- [6] D. Nishijima, T. Sugimoto, M. Ye, N. Ohno and S. Takamura, Jpn. J. Appl. Phys. 44, 380 (2005).
- [7] K. Moriguchi, S. Fukuta, M.Y. Ye, N. Ohno and S. Takamura, *Proc. of 25th ICPIG* (2001), Nagoya, Vol.1, p.83.
- [8] D. Nishijima, M.Y. Ye, N. Ohno and S. Takamura, J. Nucl. Mater. 329-333, 1029 (2004).
- [9] H. Ullmaier, Nucl. Fusion 24, 1039 (1984).
- [10] D. Nishijima, M.Y. Ye, N. Ohno and S. Takamura, *Proc. 30th EPS Conf. on Contr. Fusion and Plasma Phys.*, St. Petersburg, 2003, ECA Vol.27A, p-2.163.
- [11] D. Nishijima, T. Sugimoto, M.Y. Ye, T. Iwakiri, N. Yoshida, N. Ohno and S. Takamura, "Characteristic Changes of Deuterium Retention on Tungsten Surface with Low-Energy Helium Plasma Pre-Exposure" accepted for publication in J. Nucl. Mater.