OVERVIEWS (1)

トカマク型核融合装置と表面科学・技術

村 上 義 夫

日本原子力研究所, 東海研究所, 核融合研究センター 〒311-02 茨城県那珂郡那珂町向山

(1984 年 4 月 6 日 受理)

Surface Science and Technology Relating to Tokamak Fusion Devices

Yoshio MURAKAMI

Fusion Research Center, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai
Research Establishment, Naka-machi, Naka-gun, Ibaraki-ken, 311-02

(Received April 6, 1984)

Plasma-surface interaction study, suitable surface materials and surface processing are some of the most important issues in the tokamak fusion program. This article starts with an outline of the major problems in plasma-surface interaction study, and then describes coating of wall with low-Z materials, discharge cleaning and long-term maintenance of cleaned surfaces giving typical examples of recent surface materials and processing development. Some topics on sputtering and techniques for surface analysis of the wall are also presented.

1. はじめに

核融合の研究開発は、現在トーラス形磁場閉じ込めを主流として進められている。なかでもトカマク方式では、臨界プラズマ条件の達成を数年後に控えており、また次期実験炉の設計検討も開始されている¹⁾。

トカマク型核融合装置(炉)と表面科学・技術との係りは、主にプラズマ壁相互作用の研究とプラズマを取り囲む壁表面の作成技術においてみることができる。最近わが国の真空工学の研究者のあいだで「ホットバキューム」という言葉が用いられるようになったが²⁾、核融合装置(炉)における表面の問題はまさにホットバキュームを取り扱う装置の壁の問題であるといえよう。トカマク型核融合装置(炉)では、燃料となる水素同位体の高温プラズマを強力な磁場で閉じ込めるが、このときプラズマからの放射光やエネルギー粒子がプラズマに面する壁を直撃する。これが引き金となって、壁の表面近傍では種々の原子過程が同時に進行し、また壁は大きな熱負荷を甘受する。これらは、プラズマ特性を左右する壁からの不純物の発生や燃料粒子のリサイクリングと密接な関係があるほか、壁の寿命を決定する重要な因子となる。このため、まずプラズマ壁相互作用の実体をよく把握すること

が必要になる。次に核融合装置(炉)開発の立場から、他の特性とのバランスも考慮しながら、より優れた壁表面を作成するための材料技術面の研究を進めることが要請される。

これらの研究は現在精力的に進められているが、本稿ではまず核融合装置(炉)のプラズマに面する壁の諸問題について概観し、次に現在行われている壁面の制御の具体例として、低Z(原子番号)材料の被覆、放電洗浄とエージングおよび清浄表面の長時間維持について述べる。また壁の侵食の主因と考えられるスパッタリングについて最近の話題を二三紹介するとともに、壁表面の評価に有効な分析技術について触れる。

2. 核融合装置(炉)第一壁の諸問題

トカマク型核融合装置(炉)では、高温高密度の水素同位体プラズマを真空容器内に強力な磁場で閉じ込めるが、このときプラズマからの放射光やスクレイプオフプラズマの粒子がプラズマに面する壁を直撃する。実際にDT反応を起こさせる炉では、このほかに多量の14 MeV中性子が発生し壁に入射する。われわれはこのようなプラズマから直接熱、粒子及び中性子負荷を受ける壁を総称して「第一壁」と呼んでいる。

実際の装置の第一壁は、リミタ方式の場合には、プラズマ中心側にいくぶん突き出た固定リミタとプラズマ中心から少し遠い位置にあるブランケット壁とから構成されている。固定リミタには、プラズマの形状を定める役割のほか、排気ダクトと組み合わせることによりプラズマ粒子を系外に排出する機能を持たせることができる。固定リミタは直接スクレイプオフプラズマと接するのでプラズマとの相互作用が特に大きい。磁気リミタ（ダイバータ）方式の場合には、スクレイプオフプラズマを磁力線に沿って主プラズマ室から磁気リミタ（ダイバー

タ）室に導き、そこに設けられた磁気リミタ（ダイバータ）板と呼ばれる部分でプラズマからの粒子負荷の大部分を処理する。第一壁の形状や構造は、その機能により異なるのは当然であるが、装置の設計によっても多種多様である。一例として、Fig.1 に日本原子力研究所で建設中の臨界プラズマ試験装置 JT-60 の第一壁の構成を示す³⁾。第一壁は、トロイダル方向に連なる 17 列の固定リミタ、中性粒子突抜部防護壁、ライナ、磁気リミタ板などからなり、インコネル 625 製の真空容器の内面にボルトで固定されている。

Fig. 1 Cross sectional view of the JT-60 vacuum vessel.

Fig. 2 Fundamental processes in plasma-wall interactions.

第一壁がプラズマからの放射光やエネルギー粒子に衝撃されると、表面層に吸着または吸蔵している物質が脱離し、壁構成材料がスパッタリング、プリスタリング、蒸発などにより侵食される。このとき壁から放出された物質はその一部がプラズマの中心部に混入し、水素プラズマの不純物となる。壁表面は、一様に侵食されるだけでなく、アーキングやプラズマの異常消滅に伴う蒸発により局所的に損傷を蒙ることもある。表面侵食とともに、いったんプラズマに混入した壁材不純物が再び壁表面に堆積することも考慮しなければならない。一方、壁表面に入射したスクレイプオフプラズマの粒子は、一部は表面で反射するが、残りは表面層にいったん捕捉され拡散や後続の粒子による弾性的なはじき出しなどによって表面側に再放出される。第一壁は大きな熱負荷を受けるので高温になるとともに壁内に温度勾配が生じる。現在運転中または建設段階にあるトカマク装置では、間欠的にプラズマを作るので、繰り返し加熱による熱疲労が問題になる。結晶格子原子のはじき出しや核変換などの中性子照射損傷はバルクの反応であり材料の寿命に関係する。

Fig. 2 にこれらのプラズマと表面の相互作用のあらましをまとめて記す。プラズマ表面相互作用は、プラズマの不純物制御、壁の寿命、燃料のリサイクリングやインベントリなどと密接な関係があるので、重要な研究課題である。第一壁に要求される特性は、第一壁の機能のほか、核融合装置(炉)開発の段階や設計のフィロソフィーによりその優先順位が若干異なるが、おおむね Table 1 のようになる。

以上述べたように、核融合装置(炉)開発ではプラズマと直接作用する第一壁において特に表面科学・技術との係りが深い。ここで注意しなければならないことは、核融合装置(炉)で取り扱う表面は材料の最表面のほかにプラズマの放射光やエネルギー粒子の作用が直接及ぶ数 μm 程度の深さまでのいわゆる表面層を含むことである。核融合装置(炉)開発でのもう1つの特徴は、対象とする材料の多くが実用的な工業材料であり、それが侵食されたり堆積したりして新たな表面がたえず作られているということである。このことは、溶鉱炉の壁の耐火レンガが鋼中の微量成分を左右するのと同様に、第一壁の表面材料*も核融合プラズマ反応系の微量成分として無視できないことの裏返しであり、このことから表面材料の選択が重要視される。

* 第一壁のプラズマに面した側で少なくともプラズマからの放射光やエネルギー粒子の影響が直接及ぶ範囲に使用される材料。第一壁の機械的強度や除熱機能を受け持つ構造材と区別して用いる。

Table 1 Major properties required for the first wall.

Objective	Properties
Impurity control	Low or medium atomic number, Low sputtering yield, Low evaporation rate
Thermal and mechanical integrity	High melting point, High thermal conductivity, High yield strength
Long life	Low erosion rate, Low thermal fatigue, Resistant to neutron irradiation
Others	Low outgassing rate, Low tritium retention and permeation, Low activation

3. 第一壁表面の作製

3.1 低Z材の被覆

水素プラズマ中に不純物が混入すると放射損失が増大してプラズマの冷却を招き閉じ込めが不安定になる。不純物原子1個あたりの放射損失量は原子番号Zに関係し、おおむねZの3乗に比例する⁴⁾。したがって、プラズマ中に許容できる不純物濃度はZが低いほど大きい。不純物の発生は主に第一壁に吸着または吸蔵している酸素などのガス成分の脱離と壁材のスパッタリングや水素との化学反応に起因する。前者はベーキングや放電洗浄によりかなり低減できるが、後者は本質的に避けることが困難である。

プラズマの不純物問題を軽減する方法には、大別して、装置に磁気リミタ(ダイバータ)を組み込む方法と第一壁表面材料を低Z化する方法とが考えられている。前者は壁で発生した不純物を磁気リミタ室に導くとともに磁気リミタ室で発生した不純物を主プラズマに逆流しないようにする一種の遮蔽効果を有している⁵⁾。後者は材料面からのアプローチで、上述のような理由から第一壁の表面材料に低Z材を使用するというものである。

ここで再びJT-60の例を引こう。JT-60では、磁気リミタ運転を行うとともに、磁気リミタを使用しない固定リミタ運転も行っている。このため、第一壁には熱特性の優れたモリブデンなどの基材に耐熱性低Zセラミック材料を被覆した複合材料を用いる。原研では昭和55年頃からモリブデンとインコネル625基材に耐熱性の低Z材料を被覆する技術の検討を進めてきたが、

57 年末までに $20\text{ }\mu\text{m}$ 厚の炭化チタンを被覆する技術の確立に成功した^{2,6)}。この成果に基づき、現在総数約 1 万枚に及ぶ第一壁の被覆作業を実施している。この開発試験は主に筆者の属する研究室で行われたので、もう少し詳しく述べてみたい。

JT-60 の第一壁は、縦 15 cm 、横 30 cm 、板厚 $0.5\sim 2\text{ cm}$ 程度のものが総数およそ 1 万枚からなる。これらに膜厚 $20\text{ }\mu\text{m}$ の炭化チタンを被覆する。被覆膜は、厚さ、組成などが均一で、大きな熱負荷を繰り返し受けても剥離しないようなものでなくてはならない。一方、炭化チタン被覆工程においては、基材の機械特性の劣化を避けなければならない。特に再結晶や析出時効硬化を防止するため、モリブデンに対しては 950°C 以下で、またインコネルに対しては 600°C 以下で被覆処理を行うことが要求される。筆者らはその開発試験において製膜法、組成などの異なる数種の試料について 2 kW/cm^2 熱衝撃試験⁷⁾、熱疲労試験⁸⁾、スパッタリング収率測定などの評価試験を実施し、モリブデン基材の被覆法としては膜の密着性が特に優れているプラズマ CVD (化学気相成長) 法を、インコネル基材の被覆法として 500°C 以下で処理が可能な活性化反応蒸着法を採用することにした⁹⁾。

炭化チタンはダイヤモンドなどに次いで硬い材料であるため、最近切削工具などの製造分野で CVD 法による炭化チタンの被覆技術が利用されている。しかし、被覆する部分は高々数 cm 程度の大きさで膜厚も薄く、また通常の CVD 法では成膜に 1000°C 以上の高温を必要とするので、この技術をそのまま第一壁に応用することはできない。一方、低温成膜が可能なプラズマ CVD 法は半導体集積回路の表面不動態化などに利用されているが、これは平面の基板にしか適用できない。筆者らが開発試験で苦心した点の 1 つは、これら既存の工業技術を改良し、いかにして第一壁被覆の条件に適合する技術を確立するかであった。今回開発に成功した新しいプラズマ CVD 法では、長さ 30 cm 程度の三次元形状をした基材に 900°C 以下の温度で炭化チタンを均一に被覆することができる¹⁰⁾。この技術は画期的なもので、今後各方面への波及効果が期待される。

インコネル基材の炭化チタン被覆では、基材と被覆膜の熱膨張係数の差が比較的大きいなど、モリブデン基材の場合とは異なる困難な課題を含んでいる。これに対して筆者らは膜内に生じる応力が緩和できる蒸着法を考案し、大型基材に $20\text{ }\mu\text{m}$ 厚の被覆膜を形成する技術を確立した¹¹⁾。

Fig. 3, Fig. 4 に第一壁の炭化チタン被覆に使用しているプラズマ CVD 装置と活性化反応蒸着装置を示す。また Fig. 5 はこれらの装置を用いて被覆した第一壁の

写真である。

米国の大型トカマク装置 TFTR には、黒鉛基材に通常の CVD 法により $20\text{ }\mu\text{m}$ 厚の炭化チタンを被覆したタイル状の第一壁が使用される¹²⁾。このためいくつかの中型トカマク装置において同材料の試験が実施された。また最近、黒鉛基材に流動床を用いた CVD 法で約 $200\text{ }\mu\text{m}$ 厚の C-SiC 合金を被覆した複合材料が GA テクノロジー社で開発され¹³⁾、各方面でその評価試験が行われている。

これらの低 Z 材被覆第一壁を核融合装置に使用する場合、使用条件下における被覆膜の健全性に関心が持たれる。被覆膜と基材とは異質のものであるから、膜は界面で剥離しやすいと一般に考えられている。しかし、炭化チタンとモリブデンの場合は接着がきわめて強固で、大きな熱負荷が加わっても基材のモリブデンが溶融するまでは膜が剥離しない。Fig. 6 は 2 kW/cm^2 の水素イオンビームを炭化チタン被覆モリブデンに照射し基材の一

Fig. 3 Plasma-assisted CVD apparatus for depositing TiC on molybdenum substrates (Courtesy of Sumitomo Electric Industries).

Fig. 4 Activated reactive evaporation apparatus for depositing TiC on Inconel substrates (Courtesy of Ulvac Corporation).

部を融点に至らしめたものであるが、溶融部の周辺の被覆膜には殆んど変化が生じていないことがわかる⁷⁾。また Fig. 7 は 200°C $\rightleftharpoons$ 1400°C の熱履歴を繰り返し加えたときの炭化チタン被覆モリブデン表面の走査型電子顕微鏡写真である。被覆膜には微細な割れが発生しその間隙

(a)

(b)

(a) armor plate, (b) liner.
Fig. 5 TiC-coated first walls.

(a)

(b)

(a) whole view, (b) periphery of the melt.
Fig. 6 TiC-coated molybdenum subjected to a 2 kW/cm² pulsed hydrogen beam. It exhibited no remarkable failures until the melting of the substrate.

(a) As deposited

(b) After 100 cycles

(c) After 3,000 cycles

Fig. 7 Scanning electron micrographs of TiC-coated molybdenum before and after heat cycles (200°C $\rightleftharpoons$ 1400°C).

が熱サイクル数とともに次第に大きくなるが、剥離は認められていない⁸⁾。

ところで 20~200 μm 厚の低 Z 材被覆膜は、JT-60 や TFTR などの臨界プラズマ試験装置の目的には適うとみられるが、次段階の実験炉には十分とは言えない。このため、中性子照射損傷も考慮した材料の検討と、ミリメートルオーダーの厚膜被覆技術や低 Z 材-金属接合技術の開発が望まれる¹⁴⁾。最近この目的の低 Z 材料としてベリリウムが注目されている¹⁵⁾。

3.2 放電洗浄とエージング

大気中に放置されている実用材料の表面は、Fig. 8 に示すように、種々の物質から構成されていると考えられる¹⁶⁾。これを真空容器に入れて排気すると、まず弱く吸着しているガス分子、有機低分子、水分子などが表面から蒸発する。さらにベーキングを施すと、比較的強く吸着している有機高分子や水酸基 (OH 基) も脱離する。しかし化学的な結合が強い酸化物、炭化物、塩、一部の有機性有機高分子などはそのまま表面に残留する。通常の超高真空装置の壁では、排気ベーキングの結果ガス放出の少ない表面が達成できれば、酸化物の存在を妨げない。しかし核融合装置などのホットバキュームを取り扱う装置においては、上述のような表面状態ではまだ十分とは言えない。核融合装置の第一壁には、プラズマ側から放射光や電子、イオンなどのエネルギー粒子が多量に入射するので、光や粒子の衝撃を受けてもガス放出が少なくという条件が必要である。

このようなことから、ホットバキュームを取り扱う装置の壁には放電洗浄という表面処理が適用される。放電洗浄は、本番の運転や実験に先立って本番と同等かまたはそれに代りうる状態を一定時間その場で作り、光や粒子の入射により脱離する物質をあらかじめ表面から除去しておくという考えに基づいている。

トカマク型核融合装置の場合には、洗浄時に本番と同

Fig. 8 Spontaneously adsorbed layers on a metal surface.

等な強いトカマク放電を行うことは適当でなく、弱電流テイラー式パルス放電 (TD)¹⁷⁾、電子サイクロトロン共鳴を利用した連続放電 (ECRD)¹⁸⁾、高周波を併用したグロー放電 (GD)¹⁹⁾ などが用いられる*。TD や ECRD の電子温度は 10 eV 以下である。

放電ガスに酸素を用いると、オゾンや紫外線が発生する。オゾンは強い酸化作用を有し、紫外線には化学結合を断ち切る作用があるので、これらの照射により表面に付着している炭素や不揮発性の有機高分子物質は揮発性の低分子物質となって除去される¹⁶⁾。酸素による放電洗浄は、装置完成後や長期間大気開放後に最初に行う表面処理として有効である。ただし金属は表面が酸化するので注意を要する。

核融合装置には燃料として水素が用いられるので、その放電洗浄にも水素が多用される。この場合、水素分子は放電によって原子 (解離) やイオン (電離) となり第一壁表面に供給される。これらの化学的に活性な水素粒子が表面に残留している「除去可能な」酸素や炭素と結合し、 H_2O 、 CH_4 、 CO などのかたちで系外に排出されるという仕組みである。

これからわかるように、核融合装置の酸素や水素による放電洗浄では主に活性粒子の化学作用が利用されている。上述の「除去可能な」物質とは、この化学作用により除去できるものを指している。ステンレス鋼や炭化チタンを例にとると、除去可能な物質は酸化したステンレス鋼表面の Fe や Ni に結合した酸素と炭化チタン表面の遊離炭素とであり、Cr に結合した酸素や炭化物を構成している炭素は容易に除去できない。

トカマク放電時には、いわゆる化学的活性粒子のほかに粒子衝撃脱離 (スパッタリング) を引き起こす高エネルギー粒子が共存するので、これらの複合効果により化学作用だけでは結合が切れないような O や C も壁表面から脱離してプラズマに混入する可能性がある。したがって、TD や ECRD だけでは本番のトカマク放電に備える洗浄法として不十分であることは否めない。この解決法として最近注目されているのは、第一壁に -200~-500 V のバイアス電圧を印加する方式のグロー放電 (GD) である。この場合には加速されたイオンが壁表面に入射するので、先の複合効果が期待できる。

Table 2 に、TD、ECRD、GD の特性の比較を示す²⁰⁾。すでに述べたように、いずれの方法においても洗浄の主

* 高温高密度のトカマク放電を用いると、壁面で生成した揮発性分子は真空容器の排気口に到達する以前にイオン化されてしまうので、壁面の反応生成物を系外に排出することが難しい。このため、電離効率が比較的低い TD、ECRD、GD などが使用される。

Table 2 Comparison of Taylor discharge cleaning, ECR discharge cleaning and glow discharge cleaning.

Item	TD	ECRD	GD
Operation with cold walls	yes*	no	no
Removal of chemically stable oxides	no	no	yes
Elimination of auxiliary high power discharges	no	no	yes
Machine accessible during cleaning process	no	no	yes
Area of attack adjustable	no	yes	no

* only machines without isolating break

役は活性な水素原子やイオンの化学作用である。したがって、壁面の洗浄効果、すなわち水素粒子と壁表面物質との反応速度や反応生成物の表面からの脱離速度は壁温に強く依存する。室温では酸素は CO のかたちで除去される。しかし、表面の遊離炭素が欠乏するとこのような形で脱離は停止する。壁面の酸素を H_2O のかたちで除去するためには $100^\circ C$ 以上の温度が必要である。一方壁温が高すぎると H_2O による再酸化が起こる場合がある。結局最適温度は $200\sim 300^\circ C$ である。壁温と H_2O 生成速度の関係を調べた実験例を Fig. 9 に示す¹⁹⁾ 放電洗浄時に壁を適温に保つために、ECRD および GD では外部ヒータによる加熱が不可欠である。TD の場合には、真空容器に電流が誘起されるので、これにより壁を昇温することができる。Fig. 10 には、GD による壁面の炭素の除去過程の例を示す²¹⁾。

TD や ECRD では粒子衝撃脱離 (スパッタリング) が期待できないので、洗浄時にトカマク放電や GD を併用することも考えられている。大型装置に GD を適用する場合には、局所的なアーク放電が起こらぬよう配慮する必要がある。

放電洗浄はほとんど全てのトカマク装置に採用されているが、プラズマ表面相互作用の研究を主目的とした中型トカマク装置 TEXTOR では3種の洗浄法の比較試験が行われている。JT-60 では、TD と GD の採用が計画されている。

トカマク装置には、ジュール加熱により 2 keV 程度にまで達したプラズマをさらに昇温するため、中性粒子入射加熱装置や高周波加熱装置が用いられる。高周波電力の導波管やランチャーを構成する壁面は電磁波の作用を受ける。影響の及ぶ表皮厚さ δ は、透磁率を μ 、電気伝導度を σ 、高周波の角振動数を ω とすると、 $\delta = \sqrt{\frac{2}{\mu\sigma\omega}}$ の程度である。このような高周波電力を取り扱う装置の壁面に対しては、ふつう「エージング」と呼ばれる操作

Fig. 9 Variation of discharge cleaning rate (H_2O formation rate) with wall temperature of a stainless steel vessel. **Fig. 10** Partial pressures of the residual gases CH_4 and CO/C_2H_4 produced within the PDX torus during H_2 glow discharge cleaning of the vacuum vessel during March 1979; and (b) shows the second major cleaning period which followed completed installation of the internal divertor hardware in October 1979.

が施される。これは電磁波との相互作用により上記の表皮厚さから放出されるガス成分をあらかじめ同じ周波数の電磁波を当てて十分に除去しておこうとするもので、やはり放電洗浄の考えに似ている。一般に、最初は弱い電力から始め、次第に電力を増加して本番の値にまで達せしめる。**Fig. 11** は、銅メッキをした真空容器のエージングによるガス放出の減衰の様子を示したものである²²⁾。

以上核融合装置壁の放電洗浄とエージングについて概説したが、本来放電洗浄とエージングは装置にとって必要悪である。したがって、これらに費やされる時間や労力をいかにして減少させるかが表面科学技術者に課せられた重要な問題であると思われる。

3.3 清浄表面の長時間維持

放電洗浄等によりいったん清浄化された表面は、長時間にわたってその状態が維持されることが望ましい。表面の汚染には気相側からのガスや蒸気の吸着によるものと固体内部から拡散によりもたらされるものとがあるが、一般に表面が清浄であればあるほど汚染されやすいものである。

清浄な金属表面では酸素や一酸化炭素などの活性ガスの吸着確率は 0.1~1 の範囲であるから²³⁾、漏れや周辺機器からの逆流等により活性ガスが真空容器内に流入するとそれは直ちに表面に吸着する。トカマク装置では、真空容器の内表面積に占める排気口面積の割合が 10^{-2} ~ 10^{-3} と小さいため、排気系側に流出する量はきわめて少ない。このようなことから、プラズマに面する壁の表

面積が 100 m^2 以上もあるような JT-60 の場合には、漏れなどによるガスの流入量を毎秒 10^{15} 分子以下または $3 \times 10^{-5} \text{ Torr} \cdot \text{l/s}$ 以下に抑制する必要があるという見方もある。壁面が黒鉛の場合には活性ガスの吸着確率が極めて小さいという報告があるが^{24,25)}、炭化チタンの場合にそのような特性があるかどうかは明らかでない。いずれにしても、現在稼動している多くのトカマク型核融合装置では、流入した不純物ガスは真空容器内に蓄積される一方であると考えてよい (**Fig. 12** 参照)。現在稼動している装置で超高真空技術が必要とされる所以である。固体内部からの拡散に起因する表面の汚染は、高温になると問題になる場合があるが、壁材にあらかじめベーキングを施したりエージングを行っておくかなりの程度まで低減できる。

次世代の長パルス運転または連続運転できるトカマク型核融合実験炉では、ダイバータまたはポンプリタのような不純物排出機構が不可欠であるから、装置自身がガス不純物に対する自己浄化作用を有し、問題は少なくなると考えられる。

4. 第一壁表面のスパッタリング

スパッタリングは、ある閾値以上の運動エネルギーを有するイオンや原子が固体に入射したとき、固体内の原子のカスケード衝突の結果その材料を構成する原子を空間にはじき出す現象をいう。スパッタリング収率〔はじき出された原子数と入射イオン(原子)数の比〕は、入射イオン(原子)の種類、エネルギー、入射角、ターゲット

Fig. 11 Variation of outgassing rate with aging time of a copper-plated RF wave guide.

Fig. 12 Ratio of the adsorption rate of a gas onto the wall to the influx rate of the gas into the vacuum vessel as a function of the sticking probability. S: sticking probability, K: clausius factor.

材料などに依存するが、最近では、数多くの実験データや理論的考察から、種々の系に適用できるスパッタリング収率導出の経験式が得られている^{26,27)}。核融合炉では燃料の重水素やトリチウムのイオンによるスパッタリングとガス不純物や壁材不純物のイオンによるスパッタリングが問題になる。後者の収率は前者のそれに比して1~2桁大きいので、不純物イオンの密度が小さくてもその影響は無視できない。**Fig. 13**に種々のイオン種によるモリブデンのスパッタリング収率を²⁸⁾、**Fig. 14**に同じくベリリウムのスパッタリング収率²⁹⁾を入射エネルギーの関数として示す。

黒鉛や耐熱性低Zセラミック材料の場合には、上述のカスケード衝突によるスパッタリングのほかに、固体表面で化学反応が誘起され揮発性のガス分子が生成される。この現象は、カスケード衝突に起因する物理的なスパッタリングと区別するために、化学スパッタリングと呼ばれている。黒鉛は、水素同位体イオン(原子)の照射を受けると揮発性のメタンなどが生成し、表面が侵食される。メタン生成速度(化学スパッタリング収率)は入射エネルギーならびに温度に強く依存し、**Fig. 15**に示すように、入射エネルギー1 keV前後、温度500~600°Cで極大になる³⁰⁾。この値はカスケード衝突から予想されるスパッタリング収率より1桁以上大きい。

炭化チタンや炭化珪素などの化合物の化学スパッタリングは、黒鉛の場合に比して現象がさらに複雑である。

炭化チタンの場合は水素との反応生成物はメタンなどの炭化水素だけであるから、炭化チタンの表面は炭素欠乏の状態になる傾向がある³¹⁾。化学スパッタリング収率は、2 keV付近で極大となる入射エネルギー依存性を有するが、700°C以下の温度依存性は僅少である(**Fig. 16**参照)³²⁾。炭化チタンの全スパッタリング収率はこの化学スパッタリング収率とチタンのスパッタリング収率とを加え合せた値にほぼ近い³³⁾。このことから、炭化チタンの表面では化学スパッタリングで炭素原子が失われ、残ったチタン原子が物理的なスパッタリングにより除去されることがわかる。炭化チタン表面におけるメタンの生成速度は黒鉛表面の値より1桁以上も小さい。

炭化珪素の場合には、炭素、珪素ともに水素と反応して揮発性の化合物を生成することが知られている。米国GAテクノロジー社が開発したC-SiC合金(被覆膜)は、炭素が主体であるにもかかわらず化学スパッタリング収率が黒鉛単体の値に比して著しく小さい¹³⁾。

最近、水素、重水素およびヘリウムのイオンを1000°C以上に熱した黒鉛に照射する実験が行われ、イオン照射下における黒鉛の表面侵食が昇温とともに著しく増大することが明らかにされた³⁴⁾。この場合には、炭化水素の生成は観測されないで、化学スパッタリングとは全く異なった機構によるものと考えられている。

Fig. 13 Energy-dependent physical sputtering yields for molybdenum.

Fig. 14 Energy-dependent physical sputtering yields for beryllium.

Fig. 15 Chemical sputtering yields of the basal plane of pyrolytic graphite as a function of temperature.

Fig. 16 Chemical sputtering yields of chemical-vapor-deposited TiC as a function of temperature.

5. 第一壁の表面分析

核融合装置の第一壁には、究極的には、プラズマのパラメータを向上させ、燃料の水素同位体の滞留量が少なく、スパッタリング等による侵食が少なく、長期間にわたって熱的・機械的特性が劣化しないことなどが要求される。しかし第一壁は、最初の状態がそのまま維持されることはなく、長期間使用するうちに、プラズマ粒子により表面が侵食され、また他の壁面から飛来した物質が再付着するなどして、その表面層が次第に変質する。そこで、トカマク装置実機において、スクレイプオフプラズマから第一壁表面に流入する粒子の数やエネルギー、スクレイプオフプラズマにおける物質移動のしくみ、第一壁の表面状態（組成、形態）の経時変化などに関する理解を深めることが必要になる。プラズマ表面相互作用の研究では、このような目的で各種の表面分析法が使用されあるいは計画されている³¹⁾。

トカマク型核融合装置実機の第一壁の表面分析では、壁をいちいち切り出して調べることはできないので、スクレイプオフプラズマに接する第一壁の位置に小さいプローブ（壁材または特殊な材料で作られた小片）を挿入し、これを「その場（in-situ）」で真空を破らずに分析器の位置に移動して測定する。また、プラズマに露出し

たプローブを真空マニプレータで真空スーツケースに移しかえ、これを大気に触れさせずに研究室の分析装置まで運んで測定に供することも検討されている。このような分析法はコレクタープローブ法と呼ばれている。この分析法を用いれば、長期間のうちに壁表面の状態がどのように変化するかを調べることができるばかりでなく、1回のトカマク放電中にプローブが捕捉する燃料粒子や不純物粒子から入射粒子の数やエネルギー分布、さらにはその時間的変化も評価することが可能である。コレクタープローブ法がスクレイプオフプラズマの研究に特に有用であるといわれるのは、スクレイプオフプラズマの粒子には低エネルギーの中性粒子が多く含まれているため、他の方法では測定が困難なためである。この方法は、プローブに種々の工夫を施せばトカマク装置実機の第一壁表面をかなりの程度まで模擬することも可能であり、実機のプラズマ表面相互作用を理解するうえでもっとも有効な手段であると考えられる。**Fig.17** に時間分解能を有する円筒形プローブの例を示す³⁵⁾。これは ISX トカマクに使用されたもので、回転円筒の周囲に十数枚の珪素板でできたコレクタープローブが設置されており、トロイダル磁場に直角に明けられたスリットから飛び込んだスクレイプオフプラズマの粒子が順次コレクタープローブに捕捉されるようになっている。

Fig. 17 Exposure geometry for a time-resolved impurity deposition experiment in ISX-B showing silicon collection samples mounted on a rotating drum.

スクレイブオフプラズマに露出したコレクタープローブの表面近傍の情報を詳細に読みとるためには、広範囲の元素についてその種類、濃度、深さ方向分布、面内分布、化学結合状態などが測定できる分析法が必要である。イオンビーム、電子ビームなどを使用した表面分析法はこれらの目的によく適合し、トカマクに露出した試料の分析に広く利用されている。

イオンビームを使用した表面分析法の主要なものを列挙すると、次の通りである。

- 入射イオンの散乱分光 (ISS)
- ・イオン散乱分光 (ISS)
- ・ラザフォード後方散乱 (RBS)
- 核反応分析 (NRA)
- 二次イオン質量分析 (SIMS)

これらの分析法の詳細については、いくつかの文献^{36,37)}に解説があるのでここでは省略するが、RBS, NRA, SIMSの長所と短所を比較した結果を **Table 3** に示す³⁸⁾。

電子ビームを使用した表面分析法の主要なものには次のようなものがある。

- オージェ電子分光 (AES)
- 電子プローブマイクロアナライザ (EPMA)

Table 3 Comparison of the advantages (+) and disadvantages (-) of using RBS, NRA or SIMS for near surface analysis.

Characteristic	RBS	NRA	SIMS
Low Z sensitivity	-	+	+
High Z sensitivity	+	-	+
Depth resolution-surface	+/-	+/-	+/-
Depth resolution-bulk	-	-	+
Detection of all elements	-	-	+
Elemental specificity	+/-	+	+
Isotopic information	-	+	+
Chemical information	-	-	+/-
Multi-element analysis	+	-	+
Quantitative with standards	+	+	+
Quantitative without standards	+	+	-
Depth scale with standards	+	+	+
Depth scale without standards	+	+	-
Matrix effects	+	+	-
Simple spectra	+	+	-
Lattice location information	+	+	-
Matrix elemental analysis	+	+	-
Trace elemental analysis	-	-	+
Non-destructive	+	+	-
Rapid	+	-	+
Ion beam induced artifacts	+	+	-

- 走査型電子顕微鏡 (SEM)
 - 電子衝撃脱離 (ESD) + 残留ガス分析 (RGA)
- またその他の分析法のなかでは、
- X線光電子分光 (XPS) または ESCA
 - 赤外分光 (IRS)
 - 昇温脱離 (TD) + 残留ガス分析 (RGA)

などが使用されている。XPS (ESCA), IRS を用いると化学結合状態の分析が可能である。これらについても詳細な文献^{39~42)}があるので省略する。

6. おわりに

本稿では、現在核融合開発の主計画として進められているトカマク型核融合装置 (炉) と表面科学・技術の係りについて、いくつかの具体的な問題をあげて概説した。核融合装置 (炉) 開発においてプラズマに面する壁の問題は、超電導磁石の開発や真空技術の開発などとともに、もっとも重要な課題の1つになっている。最後に、表面科学・技術に関する今後の問題について二三考えを述べておこう。

(1) 第一壁の表面には、原子番号が低いこと、スパッタリング収率が小さいこと、耐熱 (衝撃) 性がすぐれていること、トリチウムとの両立性がよいことなど、たがいに相容れないような条件が要求されているが、それらの優先順位は一般に装置 (炉) の設計や第一壁の機能により異なる。したがって、プラズマ表面相互作用の研究やこれに関連する第一壁表面材料の開発は、プラズマ物理、材料工学技術、真空技術などの進展を睨み合わせながら行う必要がある。

(2) トカマク装置では、長パルス運転になるにしたがって、スパッタリングの問題がますます顕在化しプラズマの不純物制御に大きな影響がでるほか、壁の侵食、堆積が1年間に数 mm にも達すると予想されている。個々の材料のスパッタリングについてはよく調べられているが、今後は長期間のプラズマ照射を受けた材料の表面特性がどうなるか、再付着した物質の組成、構造が健全なものであるかどうか、などについて調査する必要がある。ここでは、新しい表面分析技術が利用されると思われる。

(3) 3.1 節で述べた炭化チタン被覆は JT-60 の目的には好適であるが、次段階の装置 (炉) では表面侵食が数~十数 mm の厚さに及ぶ可能性があるため、薄い被覆膜では対応できないと考えられる。今後は、厚膜被覆技術や表面材料 (バルク) と除熱構造体との接合技術などの開発が重要になろう。

文 献

- 1) 例えば, 核融合研究開発の現状 1983, 日本原子力研究所.
- 2) 明石和夫, 河内正行, 河野 昌, 小林正典, 中山勝矢, 藤井幹男, 本間慎一, 水町実忠, 宮原 昭, 村上義夫, 戴本政男: 真空 **26** (1983) 677.
- 3) Y. Murakami: Proc. 9th Intern. Vac. Congr. & 5th Intern. Conf. on Solid Surfaces, Madrid, 1983 (A. S. E. V. A., 1983), p. 532.
- 4) R. V. Jensen, D. E. Post, W. H. Grasberger, C. B. Tarter and W. A. Lokke: Nucl. Fusion **17** (1977) 1187.
- 5) Y. Shimomura and H. Maeda: J. Nucl. Mater. **76 & 77** (1978) 45.
- 6) 阿部哲也, 村上義夫, 小原建治郎, 広木成治, 中村和幸, 伊藤 裕, 溝口忠憲, 梶浦宗治, 佐川準基: 真空 **27** (1984), 印刷中.
- 7) K. Nakamura, R. Yamada, M. Saidoh and Y. Murakami: J. Nucl. Mater. **111 & 112** (1982) 852.
- 8) R. Yamada, K. Nakamura, M. Saidoh and Y. Murakami: *ibid*, p. 856.
- 9) Y. Murakami, T. Abe and H. Nakamura: *ibid*, p. 861.
- 10) N. Fujimori, T. Yashiki, A. Doi, T. Abe, Y. Murakami, T. Mizoguchi and Y. Itou: to be published in Proc. 11th Intern. Conf. on Metallurgical Coatings, San Diego, 1984.
- 11) K. Inagawa, K. Watanabe, I. Tanaka, A. Itoh, T. Abe, Y. Murakami and T. Mizoguchi: to be published in Proc. 6th Intern. Conf. on Plasma Surface Interactions in Controlled Fusion Devices, Nagoya, 1984.
- 12) J. L. Cecchi: J. Nucl. Mater. **93 & 94** (1980) 28.
- 13) G. Hopkins, P. Trester and J. Whitley: J. Nucl. Mater. **103 & 104** (1981) 211.
- 14) D. M. Mattox: Proc. 9th Intern. Vac. Congr. & 5th Intern. Conf. on Solid Surfaces, Madrid, 1983 (A. S. E. V. A., 1983), p. 309.
- 15) INTOR Group: Nucl. Fusion **23** (1983) 1513.
- 16) K. L. Mittal: Surface Contamination (ed. K. L. Mittal) Vol. 1 (1979), Plenum Press, p. 3.
- 17) L. Oren and R. J. Taylor: Nucl. Fusion **17** (1977) 1143.
- 18) Y. Sakamoto: Proc. 9th Intern. Vac. Congr. & 5th Intern. Conf. on Solid Surfaces, Madrid, 1983 (A. S. E. V. A., 1983), p. 716.
- 19) F. G. Waelbroeck, J. Winter, P. Wienhold, L. Könen, T. Banno, L. Grobusch, E. Rota, K. G. Tschersich and TEXTOR team: *ibid*, p. 693.
- 20) K. J. Dietz: *ibid*, p. 706.
- 21) H. F. Dylla, S. A. Cohen, S. M. Rossnagel, G. M. McCracken and Ph. Staib: J. Vac. Sci. Technol. **17** (1980) 286.
- 22) 斉藤芳男, 穴見昌三, 福田茂樹, 設楽哲夫, 本間博幸, 中尾克己, 花木博文: 第24回真空に関する連合講演会予稿集 (1983), 日本真空協会 p. 121.
- 23) 例えば, P. A. Redhead: Trans. Farad. Soc. **57** (1961) 641; J. A. Becker: Solid State Physics Vol. 7 (1958), Academic Press, p. 379; R. E. Clausing: 1961 Trans. 8th Natl. Vac. Symp., 2nd Intern. Vac. Congr. (ed. L. E. Preuss) (1962), Pergamon Press, p. 345.
- 24) G. A. Beitel: J. Vac. Sci. Technol. **9** (1972) 370.
- 25) S. Sengoku, T. Matsuda, H. Matsumoto, T. Abe, H. Ohtsuka, T. Arai, K. Ohasa, S. Yamamoto, K. Odajima, H. Kimura, S. Kasai, K. Kumagai, K. Takahashi and Y. Shimomura: J. Nucl. Mater. **93 & 94** (1980) 178.
- 26) J. Bohdanský, J. Roth and H. L. Bay: J. Appl. Phys. **51** (1980) 2861; J. Bohdanský: J. Nucl. Mater. **93 & 94** (1980) 44.
- 27) N. Matsunami, Y. Itikawa, N. Itoh, Y. Kazumata, S. Miyagawa and R. Shimizu: Radiat. Eff. **57** (1980) 15.
- 28) 曾根和穂: 核融合炉設計及び研究開発の現状と課題 (核融合炉物理・工学及び核融合炉燃料・材料研究専門委員会編) (1983), 日本原子力学会, p. 653.
- 29) M. A. Abdou, T. Hiraoka, H. Iida, R. F. Mattas, P. Schiller, D. V. Serebrennikov and G. E. Shatalov: INTOR Phase Two A, part 1 (1983) IAEA, p. 225.
- 30) R. Yamada, K. Nakamura, K. Sone and M. Saidoh: J. Nucl. Mater. **95** (1980) 278.
- 31) T. Yamashina: Proc. 9th Intern. Vac. Congr. & 5th Intern. Conf. on Solid Surfaces, Madrid, 1983 (A. S. E. V. A., 1983), p. 614.
- 32) R. Yamada, K. Nakamura, K. Sone and M. Saidoh: J. Nucl. Mater. **111 & 112** (1982) 744.
- 33) J. Bohdanský, H. L. Bay and W. Ottenberger: J. Nucl. Mater. **76 & 77** (1978) 163.
- 34) J. Roth, J. Bohdanský and K. L. Wilson: J. Nucl. Mater. **111 & 112** (1982) 775.
- 35) R. A. Zuhr, J. B. Roberto and S. P. Withrow: J. Nucl. Mater. **103 & 104** (1981) 315.
- 36) Proc. 5th Intern. Conf. on Ion Beam Analysis, Nucl. Inst. and Methods **191** (1981) and references therein.
- 37) Ion Beam Handbook for Materials Analysis (ed. J. W. Mayer and E. Rimini) (1977), Academic Press.
- 38) R. A. Zuhr, J. B. Roberto and B. R. Appleton: ORNL/TM-8815 (1983).
- 39) S. A. Cohen, H. F. Dylla, S. M. Rossnagel, S. T. Picraux, J. A. Borders and C. W. Magee: J. Nucl. Mater. **76 & 77** (1978) 459.
- 40) J. N. Smith, C. H. Meyer and J. S. deGraisie: J. Vac. Sci. Technol. **20** (1982) 1279.
- 41) Ph. Staib and G. Staudenmaier: J. Nucl. Mater. **63** (1976) 37.
- 42) Ph. Staib, H. F. Dylla and S. M. Rossnagel: J. Vac. Sci. Technol. **17** (1980) 291.