

Title	高粒子束ビーム照射による炭素材の損耗挙動に関する研究
Author(s)	大塚, 裕介
Citation	大阪大学, 1998, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3144025
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

高粒子束ビーム照射による
炭素材の損耗挙動に関する研究

1997年12月

大塚 裕介

高粒子束ビーム照射による
炭素材の損耗挙動に関する研究

1997年12月

大塚 裕介

目次

第1章 序論	1
1.1 研究の背景	1
1.2 研究の目的と論文の構成	4
参考文献	6
第2章 高粒子束ビームの生成と損耗量の測定	11
2.1 ビームの高粒子束化	11
2.2 高粒子束ビーム装置	12
2.2.1 バケット型イオン源とビーム引き出し電極	14
2.2.2 試料ホルダー	16
2.2.3 カロリーメータ	19
2.2.4 質量分析器	20
2.3 スパッタ粒子測定装置	20
2.3.1 装置構成	21
2.3.2 スパッタ粒子の信号量	22
2.4 試料へ入射する粒子束の評価	23
2.5 ビームに含まれる粒子成分比の測定	25
2.5.1 測定原理	26
2.5.2 ビームに含まれる粒子種	26
2.6 照射試料	32
2.7 損耗量の測定	34
2.8 まとめ	35
参考文献	36
第3章 炭素材における化学スパッタリング	37
3.1 化学スパッタリングのメカニズム	37
3.2 損耗率の温度依存性と粒子束依存性	38
3.3 低粒子束領域の損耗率との比較	43
3.4 高粒子束領域で損耗率が減少する要因	47
3.5 まとめ	51
参考文献	51

第4章 炭素材における照射促進昇華	54
4.1 照射促進昇華のメカニズム	54
4.2 照射促進昇華による炭素材の損耗	55
4.2.1 温度依存性	55
4.2.2 粒子束依存性	57
4.2.3 ビーム入射角依存性	61
4.3 照射促進昇華のモデル	65
4.4 実験結果とモデルとの対応	68
4.5 モデルの問題点	77
4.6 まとめ	81
参考文献	81
第5章 炭素複合材の損耗挙動	83
5.1 はじめに	83
5.2 Ti添加炭素材 RG-Ti	83
5.2.1 RG-Tiの性質	83
5.2.2 高温におけるRG-Tiの損耗	86
5.2.3 照射効果による表面形状の変化	89
5.3 ボロン添加炭素材とB ₄ C	94
5.4 スパッタボロンの測定	95
5.5 まとめ	105
参考文献	105
第6章 総括	108
謝辞	110
発表論文	111

第1章 序論

1.1 研究の背景

エネルギーの確保は、生活水準の維持や文化の向上のために必要不可欠である。世界のエネルギー需要は当面問題なく推移するが、発展途上国の中でもアジア諸国の経済成長は著しく、エネルギー需要の急増が見込まれている。予測では、エネルギー需要は途上国で年率4~5%の高い伸びが継続し、2010年には世界全体で1.5倍になるとされている。このように、今後増加していくエネルギー需要に対応して、新エネルギーの開発を急ぐ必要がある。風力発電や太陽光発電は、地球環境問題の面からは非常に優れているが、残念ながらエネルギー密度が低いため、安定的なエネルギー供給源とはなりにくい。そのため、飛躍的な技術革新がない限り、エネルギーの一部を補完する役目としての位置づけとなっている。一方、核融合は研究開発が精力的に進められている発電方法の一つであり、今後のエネルギー需要の増加にも十分対応できる方式である。現段階では、多くの技術的な問題が山積しているが、着実な研究によって、それがすみやかに解決されることが望まれている。

核融合開発は、1960年代後半にトカマク型の装置がソ連で開発されて以来、世界中がトカマク型に向かって走り出すことになった。それから30年の間にプラズマ温度で数百倍、プラズマ密度と閉じ込め時間の積で表現できるローソン数は約千倍もの進歩があり、臨界プラズマ条件に達するまでになっている[1]。このようなプラズマ性能の向上には、磁場配位の改善に加えて、炉壁から混入する不純物をいかに低減していくかということと密接な関連がある。当初不純物の低減のため、グロー放電[2]、ECR放電[3]、テイラー放電[4]といった活性水素をつくりだし炉壁の表面に付着している炭素や酸素を化学的に反応させて除去する方法がベーキングとあわせて行われた。それによって、プラズマ中に含まれる酸素不純物は極めて低い水準まで減少した[2]。プラズマの閉じ込め特性は良くなったが、その一方で容器そのものが損耗してプラズマに混入する高Z不純物の増加につながった。その結果、プラズマからの輻射損失が大きくプラズマ温度を高温に維持することが困難となっていた。1977~78年にかけて、PLT(Princeton Large Torus)のタングステンリミターを炭素リミターに交換した結果、不純物による輻射損失が大幅に低下し、それまで2keVが最高

だったプラズマ温度が7keVまで上昇した[5]. 1980年以降, 大型トカマク装置では, 次々とプラズマ対向壁に炭素が使われるようになり, プラズマの性能が大幅に向上した[6-14].

しかし, 炭素の使用によって新たな問題が生まれた. もともと物理スパッタリングが不純物発生の原因の1つだったが[15], それに加えて化学スパッタリングが発生するようになったからである[16]. 炭素でコーティングした炉壁は, 燃料である水素同位体や不純物としてプラズマに残った酸素と化学反応を起こす. そして, CD_4 やCOといった揮発性分子が壁から放出されプラズマに混入することによって, プラズマ中の炭素不純物が増加する. JT-60では, 炭素壁の温度がある適当な温度になると炭素不純物が増加するのを観測している[16].

炭素材の損耗は, 低粒子束のビーム実験によって調べられてきている[17-24]. その結果, 物理スパッタリングに加えて, 400~1000Kで損耗率が大きく変化する化学スパッタリング[17-21], 1200K以上で損耗率が急激に増加する照射促進昇華という損耗過程の存在が明らかとなった[21-24].

化学スパッタリングによる損耗は, 水素同位体と基板の炭素原子が化学的反応によって結合し揮発性炭化水素を生成することで生じる. 1keVの H^+ や D^+ をビーム種として炭素材に照射すると, 損耗率は約800Kで最大となり, そしてその損耗率はほぼ等しく約0.1 C/H,Dである[21]. これらの損耗率は, 物理スパッタリングより1桁大きい値である. 化学スパッタリングは入射粒子のしきいエネルギーはなく, 熱エネルギー程度の H^0 でも揮発性炭化水素を生成する[25-27]. H^0 による揮発性炭化水素の生成量は H^+ に比べると小さいが, H^+ と同時に照射すると相乗効果によって H^0+H^+ による損耗量は H^+ での損耗量に近づく[27-29]. この相乗効果は, H^0 を Ar^+ , O^+ , C^+ といった水素同位体ではない粒子と同時に照射したときでも確認されている[26,30-32]. この効果は, 化学スパッタリングが表面層に注入されたエネルギーに依存することを示している[32].

一方, 照射促進昇華は水素同位体以外の He^+ や Ar^+ といった不活性な粒子に対しても生じる現象である[33,34]. そのエネルギー依存性は物理スパッタリングとよく似ており, しきいエネルギーが存在する. H^+ の場合, 50eVの以上のエネルギーで照射促進昇華が観測されている[24]. したがって, 照射促進昇華の反応過程は物理スパッタリングと同じように入射粒子が格子原子をはじき出して起こると考えられている. しかし, 照射促進昇華は物理スパッタリングとは違い, 試料から放出された炭素原子のエネルギー分布がThompson分布ではなくMaxwell分布していることが明らかに

なっている[23,35]。したがって、化学スパッタリングと照射促進昇華による損耗は、温度に対して損耗率が変化する点では同じであるが、反応過程は全く異なっている。このような炭素材の損耗現象はビーム照射によって理解されてきているが、低粒子束ビームでは粒子束が $\sim 10^{20} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ であり、実機環境下の粒子束に比べると2~3桁低いのが現状である。

次期核融合装置の国際熱核融合炉(ITER)では、定常運転で1000秒の自己点火状態の実現を目指しており、今まで以上にプラズマ対向壁には厳しい条件が課せられていくことになる[36]。第1壁はプラズマを閉じ込める磁力線とほぼ並行に設置されることからプラズマからの放射熱や中性粒子が主な負荷となる。これに対して磁力線と交差するように設置されるダイバータ板は磁力線に沿ってプラズマ中の荷電粒子が直接入るため高い熱負荷や粒子束にさらされる。それゆえ、第1壁とダイバータ板での粒子束はそれぞれ $10^{20} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 以下と $10^{24} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 以下になると予測されている[36]。プラズマ対向壁として使用する材料はそれぞれ使用する場所の負荷条件にあわせて、ダイバータ板には炭素繊維強化材料(CFC材)とタングステンが選ばれている。定常運転時の炭素材の表面温度は 1500°C 以下に設定されているが、表面温度によっては化学スパッタリングや照射促進昇華によって損耗が促進し、プラズマ中の不純物の増加につながる。また損耗量が多くなることは、プラズマ対向材としての寿命にも影響してくる。ITERでは約3年間の寿命がもつようにスパッタリングやディスラプションに対して損耗量等を評価して、炭素材では20~30mmの厚さを要求している[36]。しかしながら、寿命の見積もりは低粒子束ビーム照射($< 10^{20} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$)や電子ビーム装置で得られた損耗率や熱衝撃のデータから行われている[37]。スパッタリングによる損耗を考えた場合、化学スパッタリングや照射促進昇華は温度依存性ばかりでなく粒子束依存性も示す[24,38-42]。それゆえ、炭素材が使われる粒子束領域は低粒子束ビーム照射よりも3桁以上高い粒子束領域であるのにもかかわらず、低粒子束領域で得られた粒子束依存性を外挿して損耗率を求めることに関して疑問視されていた。

例えば照射促進昇華の場合、低粒子束のビーム装置で調べられた $1 \times 10^{20} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 以下の粒子束領域において照射促進昇華の粒子束依存性は、1keVの D^+ ビームや5keVの Ar^+ ビームで、 $\phi^{-0.07 \sim -0.09}$ [24,40,41]であることが確認されている。また、ビームエネルギーが100eVという低いエネルギーであっても、その依存性には変化が見られない[24,40]。しかしながら、高粒子束におけるトカマク装置での結果は、低粒子束の結果を外挿して予測した値と必ずしも一致していない。例えば、TFTRやJETではカーボンブルームという現象が観察されているが、その発生温度や活性化エネルギーは

ビーム照射の結果と相違がある[43,44]. またTEXTORのテストリミターでは, 2300K以下の温度ではプラズマ中のC原子の密度はほとんど変化していない[45]. しかしその一方で, TEXTORのメインリミターや Tore Supra の実験では, 1300K以上の温度で, プラズマ中のC原子の密度が急激に増加するのを観察している[46,47]. また, そのときの活性化エネルギーの値もビーム実験の結果と似ている. このようなビーム実験による予測とトカマク実験での結果にばらつきがある理由の一つとして, 入射粒子束の違いがある. トカマク装置の対向壁は, $10^{22}\sim 10^{23}\text{ m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ の重水素プラズマによってたたかれるが, ビーム装置では $10^{20}\text{ m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ 以下であるからである.

1.2 研究の目的と論文の構成

プラズマ対向材の一つである炭素材には次に示す特徴がある. 長所として, 原子番号が低くプラズマ中に混入したときの輻射損失が小さいこと, 熱伝導性が高いこと, 昇華点が高いためディスラプションによる熱負荷による損耗量の低減が期待できることがあげられる. しかし, 水素を吸蔵するため水素リサイクリングが生じること, 化学スパッタリングや照射促進昇華が起こるとプラズマ中への不純物の混入量が多くなるという短所がある.

炭素材の損耗について, 低粒子束ビーム実験とトカマク実験によって調べられてきているが, 図1-1に示すようにそれぞれの実験によるデータのもつ意味合いは異なっている. トカマク装置では, 粒子にエネルギー分布があり再堆積も生じるなど様々な現象が複合的に起きているため, 損耗過程を正確に理解するのは非常に困難である. ビーム装置では, 特定の粒子種をビーム粒子のエネルギーと粒子束を別々に制御して照射を行えるという利点があり, 損耗の基本的な反応過程を調べるのに適している. しかし従来の実験においては粒子束はたかだか $10^{20}\text{ m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ までしか達しない.

トカマク装置では, エネルギー分布はもつものの $10^{22}\text{ D m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ 以上の粒子束での照射結果が報告されている. しかし, 粒子束に着目するとビーム実験とトカマク実験をつなぐ $10^{20}\sim 10^{22}\text{ D m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ の粒子束での実験は行われおらず, その領域での損耗のメカニズムを明らかにすることが急務となっている. 本研究では, 当研究室で開発されたビーム装置を使いながら[48], 従来の低粒子束ビーム装置よりも2桁高い $\sim 1\times 10^{22}\text{ D m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ で照射を行い, 高粒子束領域における炭素材の損耗挙動を明らかにしている. これによって, 従来の粒子束依存性がトカマク環境下での粒子束領域まで明らかになり, 複雑な反応が生じるプラズマと壁との相互作用を理解する上で基

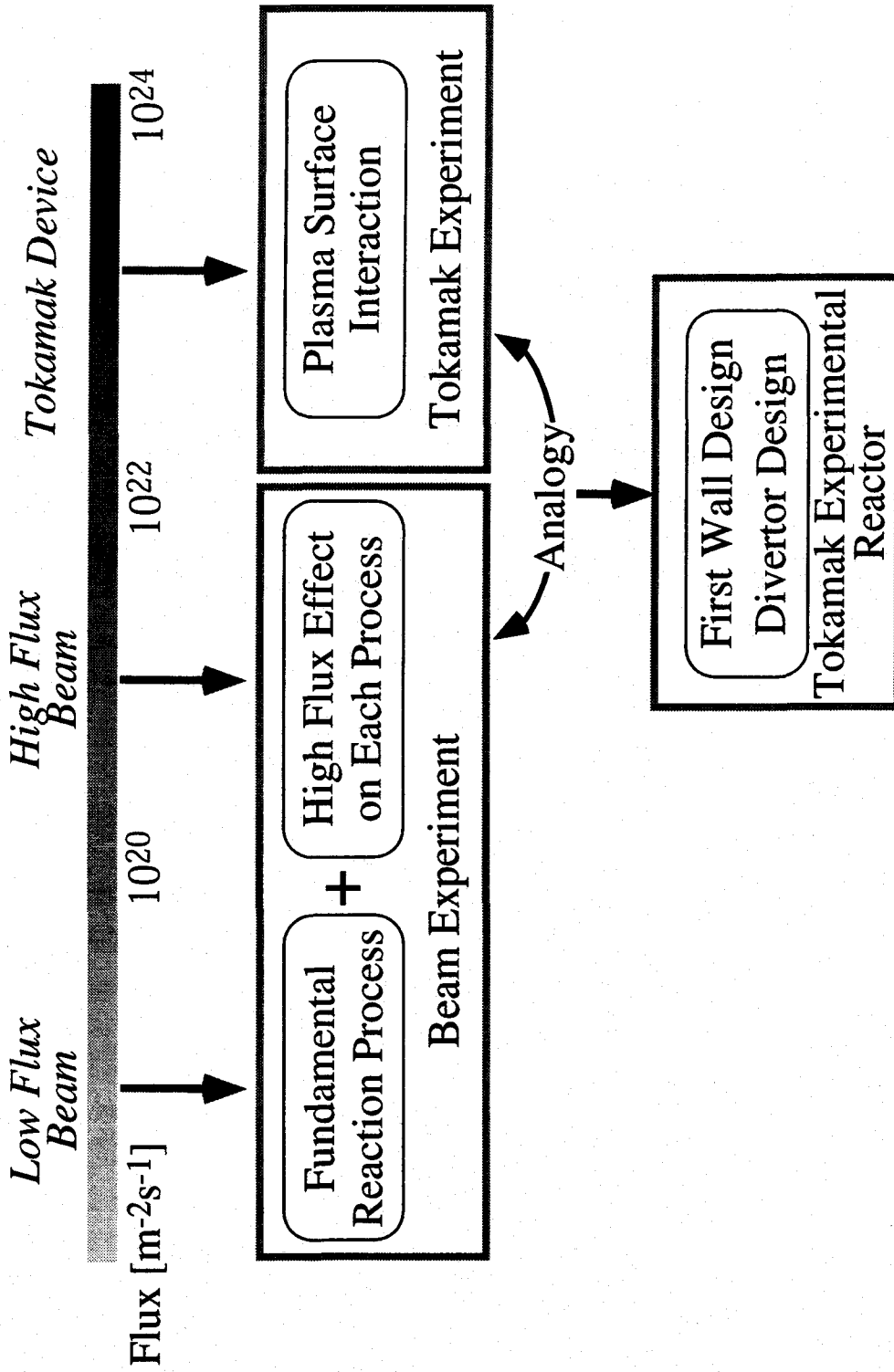


図1-1 それぞれの粒子束における実験の意義と炉設計への適用.

本的な情報を与える。さらに、高粒子束下での損耗率は核融合炉の設計に対して重要な因子の1つとなる。

本論文は6章で構成されている。第3章、第4章は炭素材の損耗挙動について示しているが、化学スパッタリングや照射促進昇華は発生の温度や損耗過程が異なる。それゆえ、それぞれの現象について考えた方が理解しやすく別々の章でまとめている。第1章以降の本論文の構成は以下の通りである。

第2章では、ビームの高粒子束化の方法として球面電極を用いることで高粒子束のビームを生成できることを説明する。また、照射試料の損耗率を求めるための測定法についても述べる。

第3章では、高粒子束領域での炭素材の化学スパッタリングによる損耗について示す。まずフルエンス、温度、粒子束に対する依存性を調べ、高粒子束領域でも化学スパッタリングが生じることを明らかにする。また、低粒子束領域と高粒子束領域における損耗率の比較を行って、高粒子束領域では化学スパッタリングが抑制されることを示す。

第4章では、高粒子束領域での炭素材における照射促進昇華の温度、粒子束、そしてビーム入射角の依存性を調べている。そして、高粒子束領域では照射促進昇華の損耗率が大きく減少することを明らかにする。また、ビーム照射によって生成した格子間原子が空孔あるいはシンクとの再結合によって消滅する照射促進昇華の反応過程を提案し、実験結果との比較を行う。

第5章では、炭素にチタンやボロンを添加した炭素複合材へ高粒子束ビームを照射して、その損耗挙動を調べている。炭素複合材は、低粒子束領域では炭素材特有の損耗を抑制する効果がある。しかし炭素材の損耗は粒子束効果によって高粒子束領域では低粒子束領域より減少しており、そのような状況下における炭素複合材の損耗挙動を明らかにする。

第6章では本研究のまとめを示す。

参考文献

- [1] Y. Koide and the JT-60 Team, "Progress in confinement and stability with plasma shape and profile control for steady-state operation in the Japan Atomic Energy Research Institute Tokamak-60 Upgrade", *Phys. Plasma* **4** (1997) 1623-1631
- [2] K. J. Dietz, "Start up and initial operation of JET", *J. Nucl. Mater.* **128&129** (1984)

- [3] Y. Sakamoto, Y. Ishibe, K. Yano, H. Oyama, Y. Tanaka, N. Fujisawa, Y. Matsuzaki, N. Suzuki, K. Haeno, T. Yamaoto and K. Yokokura, "Electron cyclotron resonance discharge cleaning of JFT-2 tokamak (JAERI)", *J. Nucl. Mater.* **93&94** (1980) 333-337
- [4] L. Oren and R. J. Taylor, "Trapping and removal of oxygen in tokamaks", *Nucl. Fusion* **17** (1977) 1143-1151
- [5] J. Hosea, R. Goldston, P. Colestock, "The Princeton Large Torus (PLT)", *Nucl. Fusion* **25** (1985) 1155-1160
- [6] F. Waelbroeck, et al., "Origin of low Z impurities in TEXTOR with an "all carbon" surrounding", *J. Nucl. Mater.* **145-147** (1987) 665-670.
- [7] J. Winter, "Carbonization in Tokamaks", *J. Nucl. Mater.* **145-147** (1987) 131-144.
- [8] R. J. Bickerton, "Latest results from JET", *Plasma Phys. and Contr. Fusion*, **28** (1986) 55-69
- [9] P. H. Rebut, K. J. Dietz and P. P. Lallia, "Experience with wall materials in JET and implications for a future ignited tokamak", *J. Nucl. Mater.* **162-164** (1989) 172-183
- [10] The Net team, "Impurity accumulation in plasma regimes with high energy confinement", *J. Nucl. Mater.* **162-164** (1989) 14-23
- [11] U. Samm, P. Bogen, H. Hartwig, E. Hintz, K. Höthker, Y. T. Lie, A. Pospieszczyk, D. Rusbüldt, B. Schweer and Y. J. Yu, "Plasma edge physics in the TEXTOR tokamak with poloidal and toroidal limiters", *J. Nucl. Mater.* **162-164** (1989) 24-37
- [12] H. F. Dylla, M. Ulrickson, M. G. Bell, D. K. Owens, D. Buchenauer, R.V. Budny, K. W. Hill, S. J. Kilpatrick, D. M. Manos, P. H. LaMarche, A. T. Ramsey, G. L. Schmidt and M. Zarnstorff, "First-wall conditioning for enhanced confinement discharges and the DT experiments in TFTR", *J. Nucl. Mater.* **162-164** (1989) 128-137
- [13] K. J. Dietz, "Experience with limiter- and wall materials in JET", *J. Nucl. Mater.* **155-157** (1988) 8-14
- [14] H. Takatsu, T. Ando, M. Yamamoto, T. Arai, K. Kodama, M. Ohkubo, M. Shimizu and JT-60 Team, "Present knowledge about the materials behavior in JT-60", *J. Nucl. Mater.* **155-157** (1988) 27-40
- [15] G. M. McCracken, "Impurity production and transport in the boundary layer of tokamaks", *Plasma Physics and Controlled Fusion* **29** (1987) 1273-1284
- [16] The JT-60 Team, "Characteristics of the JT-60 divertor and limiter plasmas with high power auxiliary heating", *J. Nucl. Mater.* **162-164** (1989) 93-104

- [17] E. Vietzke, K. Flaskamp and V. Philipps, "Hydrocarbon formation in the reaction of atomic hydrogen with pyrolytic graphite and the synergistic effect of argon ion bombardment", *J. Nucl. Mater.* **111&112** (1982) 763-768
- [18] R. Yamada, K. Nakamura and M. Saidoh, "Chemical sputtering yield of pyrolytic graphite bombarded with 3 keV H_3^+ under atomic hydrogen atmosphere", *J. Nucl. Mater.* **98** (1981) 167-172
- [19] R. Yamada, "Chemical sputtering yields of graphite", *J. Nucl. Mater* **145-147** (1987) 359-363
- [20] J. Roth and J. Bohdanky, "Sputtering of graphite with light ions at energies between 20 and 1000 eV", *Nucl. Instr. Meth.* **B23** (1987) 549-551
- [21] J. Roth, J. Bohdanky and K. L. Wilson, "Erosion of carbon due to bombardment with energetic ions at temperatures up to 2000 K", *J. Nucl. Mater.* **111&112** (1982) 775-780
- [22] J. Roth, J. B. Roberto and K. L. Wilson, "Enhanced sputtering of graphite at high temperature", *J. Nucl. Mater.* **122&123** (1984) 1447-1452
- [23] E. Vietzke, K. Flaskamp, M. Hennes and V. Philipps, "The enhanced sputtering yield of graphite at elevated temperatures: The energy of the released carbon atoms", *Nucl. Instr. and Meth.* **B2** (1984) 617-622
- [24] A. A. Haasz and J. W. Davis, "Flux and energy dependence of radiation-enhanced sublimation of graphite", *J. Nucl. Mater.* **151** (1987) 77-80
- [25] J. Bohdanky and J. Roth, "Synergisms in surface erosion: session summary", *Radiat. Eff.* **89** (1985) 49-62
- [26] J. Roth, E. Vietzke and A. A. Haasz, "Erosion of graphite due to particle impact", in *Atomic and Plasma-Material Interaction Data for Fusion, Suppl. J. Nucl. Mater.* **Vol.1** (1991) 63-78
- [27] A. A. Haasz, A. Auciello, P. C. Stangeby and I. S. Youle, "Ion-induced synergistic effects for CH_4 production from carbon under H^+ , H^0 and H_2 impact", *J. Nucl. Mater.* **128-129** (1984) 593-596
- [28] J. W. Davis, A. A. Haasz and P. C. Stangeby, "Hydrocarbon formation due to combined H^+ ion and H^0 atom impact on pyrolytic graphite", *J. Nucl. Mater.* **155-157** (1988) 234-240
- [29] A. A. Haasz, J. W. Davis, O. Auciello, P. C. Stangeby, E. Vietzke, K. Flaskamp and

- V. Philipps, "Synergistic methane formation on pyrolytic graphite due to combined H^+ ion and H^0 atom impact", *J. Nucl. Mater.* **145-147** (1987) 412-416
- [30] E. Vietzke, K. Flaskamp and V. Philipps, "Differences in the CH_3 and CH_4 formation from graphite under bombardment with hydrogen ions and hydrogen atoms / argon ions", *J. Nucl. Mater.* **128&129** (1984) 545-550
- [31] E. Vietzke, V. Philipps and K. Flaskamp, "Chemical reactivity of atomic hydrogen on graphite pre-irradiated by hydrogen and argon ions", *J. Nucl. Mater.* **162-164** (1989) 898-903
- [32] A. A. Haasz and J. W. Davis, "Synergistic chemical erosion of graphite due to simultaneous bombardment by H^+ and other low-Z ions using a dual-beam accelerator", *Nucl. Instr. and Meth.* **B83** (1993) 117-124
- [33] R. E. Nygren, J. Bohdansky, A. Pospieszczyk, R. Lehmer, Y. Ra, R. W. Conn, R. Doerner, W. K. Leung and L. Schmitz, "Low energy data on radiation enhanced sublimation of graphite", *J. Nucl. Mater.* **176&177** (1990) 445-449
- [34] V. Philipps, E. Vietzke, R. P. Schorn and H. Trinkaus, "Flux dependence of radiation induced sublimation of graphite at elevated temperatures", *J. Nucl. Mater.* **155-157** (1988) 319-323
- [35] M. W. Thompson, "The energy spectrum of ejected atoms during the high energy sputtering of gold", *Philos. Mag.* **18** (1968) 377-414
- [36] "ITER設計報告", プラズマ核融合学会誌 **73** (1997) 219-228
- [37] 「核融合燃焼条件下のプラズマ表面相互作用」研究専門委員会, "核融合燃焼条件下のプラズマ表面相互作用", 日本原子力学会誌 **39** (1997) 854-862
- [38] C. García-Rosales, "Erosion processes in plasma-wall interactions", *J. Nucl. Mater.* **211** (1994) 202-214
- [39] E. Vietzke and V. Philipps, "Hydrocarbon formation on carbon surfaces facing a hydrogen plasma", *Fusion Technol.* **15** (1989) 108-117
- [40] A. A. Haasz and J. W. Davis, "Flux dependence of the radiation-enhanced sublimation of graphite due to D^+ irradiation", *J. Nucl. Mater.* **224** (1995) 141-145
- [41] V. Philipps, E. Vietzke and H. Trinkaus, "Radiation enhanced sublimation of carbon and carbon related materials", *J. Nucl. Mater.* **179-181** (1991) 25-33
- [42] J. W. Davis, A. A. Haasz, "Impurity release from low-Z materials under light particle bombardment", *J. Nucl. Mater.* **241-243** (1997) 37-51

- [43] R. Reichle, D. D. R. Summers and M. F. Stamp, "Carbon yields and influxes as a function of target temperatures in JET X-point discharges", *J. Nucl. Mater.* **176&177** (1990) 375-380
- [44] A. T. Ramsey, C. E. Bush, H. F. Dylla, D. K. Owens, C. S. Pitcher and M. A. Ulrickson, "Enhanced carbon influx into TFTR supershots", *Nucl. Fusion* **31** (1991) 1811-1825
- [45] V. Philipps, U. Samm, M. Z. Tokar, B. Unterberg, A. Pospieszczyk and B. Schweer, "Evidence of hot spot formation on carbon limiters due to thermal electron emission", *Nucl. Fusion* **33** (1993) 953-961
- [46] S. J. Tobin, J. T. Hogan, C DeMichelis, C. C. Klepper, M. Mattioli, P. Monier-Garbet, D. Guilhem, W. R. Hess and R. C. Isler, "Global carbon production and transport in Tore Supra", *Plasma Phys. Control. Fusion* **38** (1996) 251-263
- [47] A. Pospieszczyk, V. Philipps, L. Könen and U. Samm, "High temperature erosion of graphite during extreme limiter loads in TEXTOR", *J. Nucl. Mater.* **176&177** (1990) 180-185
- [48] M. Nishikawa, Y. Ueda and S. Goto, "Development of high current density neutral beam injector with a low energy for interaction of plasma facing materials", *Fusion Eng. Des.* **16** (1991) 351-356

第2章 高粒子束ビームの生成と損耗量の測定

2.1 ビームの高粒子束化

イオンビームを生成するにはプラズマからイオンを静電的に引き出す必要があるが、その電流密度は引き出し電圧の3/2乗に比例する空間電荷制限電流密度で制限される。そのため単純な引き出し系では、低エネルギーで高電流密度、すなわち高粒子束のビームを引き出すことができない。それを解決するため、大面積の球面形状多孔電極を使ってビームを幾何学的に収束させ、さらに電極構成を正電極、負電極、接地電極の3電極方式として等価的な引き出し電圧を大きくすることにより、高粒子束化を図ることにした[1]。そのためには、大面積から一様にイオンビームを引き出す必要がある。この条件を満たすイオン源として、核融合プラズマの加熱用として採用されているバケット型イオン源を用いている。

高粒子束のビームを幾何学的収束によって得るためには、焦点距離を短くする必要がある。その方法として、引き出し電極孔の位置をずらして静電レンズ効果を利用する方法と、さきほど述べた電極全体を球面化する方法がある。前者の方法は焦点距離と電極孔の変位量が反比例の関係にあるため、短焦点化を試みると電極孔の変位量が大きくなりすぎビームの引き出しに支障をきたすことになる。したがって、焦点距離が短い高粒子束のビームを生成するには球面電極を用いる方法が適当である。

バケット型イオン源から球面電極を使って引き出されるビーム中心軸の粒子束 ϕ は、

$$\phi = \frac{2\phi_0}{\omega} \int_0^{\theta_0} \frac{\sin\theta}{\left(1 - \left(1 - \frac{z}{R}\right)\cos\theta\right)^2} \exp\left[-\frac{\left(1 - \frac{z}{R}\right)^2 \sin^2\theta}{\omega^2 \left(1 - \left(1 - \frac{z}{R}\right)\cos\theta\right)^2}\right] d\theta \quad (2.1)$$

で与えられる。ここで、 ϕ_0 はビーム引き出し面における電流密度、 ω はビームの発散角である。また、 θ_0 は電極の曲率中心から電極をみた場合の仰角である。図2-1は(2.1)式で計算したビーム中心軸での電流密度分布を示す。粒子束の最大値は発散角が小さくなると急激に増加する。したがって、高い粒子束を得るためには発散角を

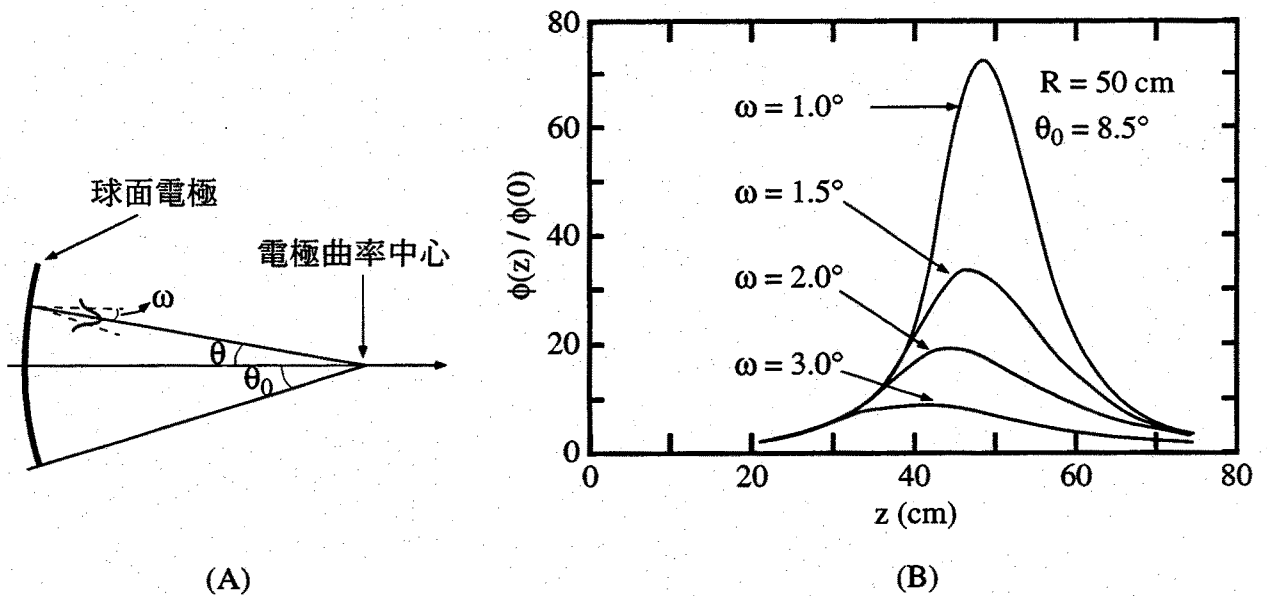


図2-1 球面電極ビーム引き出し系(A)とビーム中心での電流密度(B).

小さくすることが重要であるといえる。そのため、ビームは輸送空間中の残留ガスと荷電交換反応により80%以上が中性化することでビームの発散を抑えている。その結果、ビームの収束点ではビーム引き出し面の20倍近い粒子束密度となり、従来のビーム照射装置に比べて2桁高い粒子束を得ることができる。

2.2 高粒子束ビーム装置

バケット型イオン源を備えた高粒子束ビーム照射装置を図2-2に示す。この装置は、球面電極をもつ大口径バケット型イオン源、試料ホルダーやカロリメータを取り付ける照射チャンバー、ビームに含まれる粒子を調べる磁場偏向型質量分析器で構成されている。

イオン源に入れるガスは、ガスボンベからSUS管を通して直接導入する。SUS管の途中には、ニードルバルブとピエゾバルブが取り付けられており、2通りの方法でガスを入れることができる。ニードルバルブは、微量のガス流量を制御することができ、イオン源の内壁を放電洗浄するときに使用する。ピエゾバルブは、ピエゾ素子に印加する電圧の大きさによってガスの流量を決めることができ、ビーム照射を行うときに使用する。

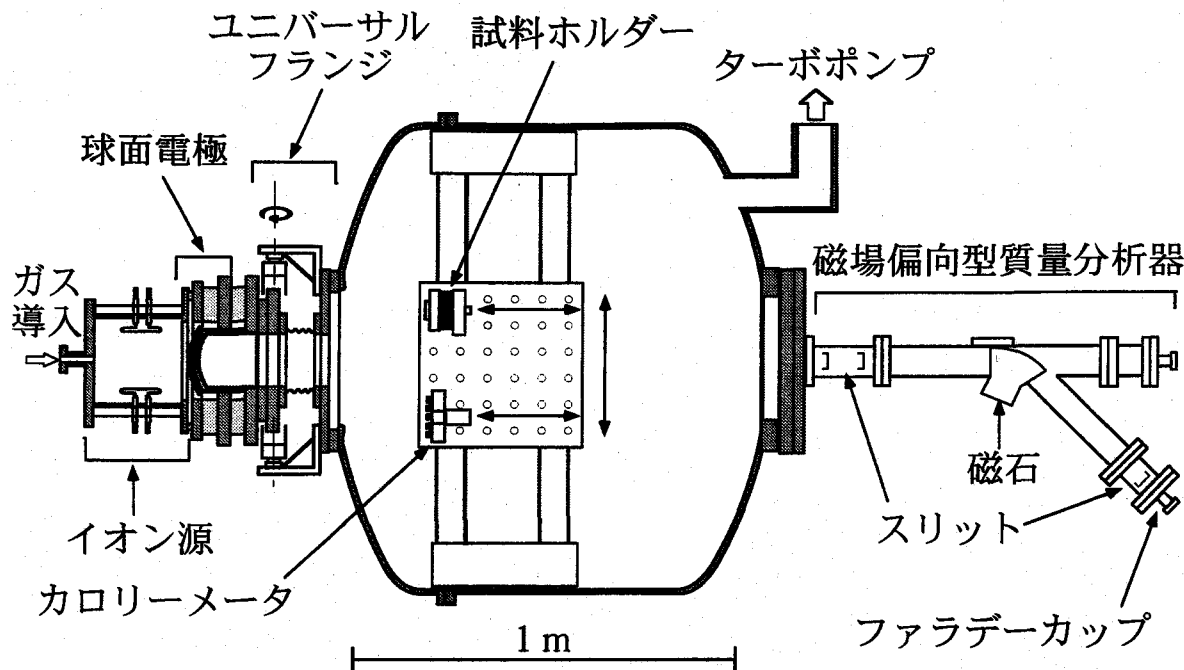


図2-2 高粒子束ビーム照射装置全体図。

ビームの引き出し時間は最大2秒であり、60-120秒の間隔で繰り返し照射する。ビームの引き出し方向の微調整は、ユニバーサルジョイントとベローズを介してイオン源の向きを変えることで行える。

照射チャンバーには、真空を保つために実効排気速度が 200 l/s のターボ分子ポンプが取り付けられている。しかしながら、大口径イオン源のガス圧をアーク放電が行える 5 mtorr 以上に保つと、大量のガスがイオン源から照射チャンバーに流れ込み、そのガスをターボポンプでは一度に排気することができない。そこで、 1100 l という大容積の照射チャンバーを使うことで、その中に一時的にガスを蓄え、ターボポンプで徐々に排気している。したがって、照射チャンバーのベースの真空度は 10^{-6} torr であるが、ビーム照射中は数 mtorr まで低下する。

照射チャンバーにある移動台は、真空を保ったままビームの進行方向に対して垂直にスライドする。この移動台は、試料加熱のときに熱輻射や熱伝導による台の温度上昇を抑えることができるように水冷式の構造になっており、この台の上に試料ホルダーとカロリメータを取り付ける。そして、必要に応じて移動台をスライドすることによって、同じ照射環境で、試料へのビーム照射、パワー測定、ビームの粒子成分比測定を行うことができる。試料の表面温度は赤外放射温度計を使い、材

質がBK-7である照射チャンバーのビューイングポートから測定する。使用した放射温度計は测温範囲が523Kから1073Kまでの単色温度計と1273Kから3273Kまでの2色温度計（ともにチノー製）である。

2.2.1 バケット型イオン源とビーム引き出し電極

図2-3に大口径バケット型イオン源と引き出し電極の全体図を示す。イオン源の大きさは内径が26cm、深さが22cmである。イオン源外側の底面には、Co-Smの磁石が9本配置してあり、側面にはイオン源の中心軸に沿って24本配置してある。これらの磁石によってイオン源内部にカusp磁場配位を生みだし、プラズマの閉じ込めを向上させている。イオン源の内側には、熱陰極フィラメントとしてT型形状をしたφ1mm、長さ13cmのタングステンフィラメントが8本取り付けられている。T型フィラメントに1本当たり50~60Aの電流を流すことで熱電子を放出させ、ピエゾバルブを通してガスをいれイオン源を数mtorrのガス圧にした後、熱陰極フィラメントとイオン源の間に電圧を印加しアーク放電を発生させる。ガスに重水素を使用したときの典型的なアーク放電の電圧値、電流値はそれぞれ30V、45Aである。図2-4にはイオン源と引き出し電極への配線図を示す。

ビームの引き出し電極は、3枚の無酸素銅を用いた多孔電極系で構成されている。アークプラズマに近いほうから、ビームを引き出すために加速電圧を印加する正電極、2次電子が正電極へ流れ込むのを防ぐために減速電圧を印加する負電極、そして接地電極である。正電極と負電極間の距離は5.5mm、負電極と接地電極間の距離は2.5mmとなっている。電極の厚みは1.5mmでφ3.8mmの電極孔が637個あり、蜂の巣状に配置している。最外殻の電極孔間の距離は14cmである。この電極は曲率半径が50cmの球面形状で仰角は約8degである。

ビーム中に含まれる酸素や炭素などの不純物の低減を目的として、不純物の発生源であるイオン源の内壁と電極のグロー放電洗浄を行っている。アノードには、アーク放電のためのフィラメントと同一形状のものを使用している。また、熱陰極にはφ0.4mm長さ40cmのタングステンをコイル状にしたフィラメントを3本用意し、90度の間隔でイオン源の内側の端子に取り付けている。熱陰極フィラメントは、放電洗浄時に直列接続にして使用する。放電ガスには水素を使い、ニードルバルブを通してイオン源に導入する。そしてイオン源のガス圧が3mtorrになるように流量を定めた後で、アノードに180Vの正電圧を印加し、グロー放電を発生させ2時間洗浄を行う。さらに洗浄効果をあげるため、2.3節で示す装置構成にしたときは、Heガスを使って

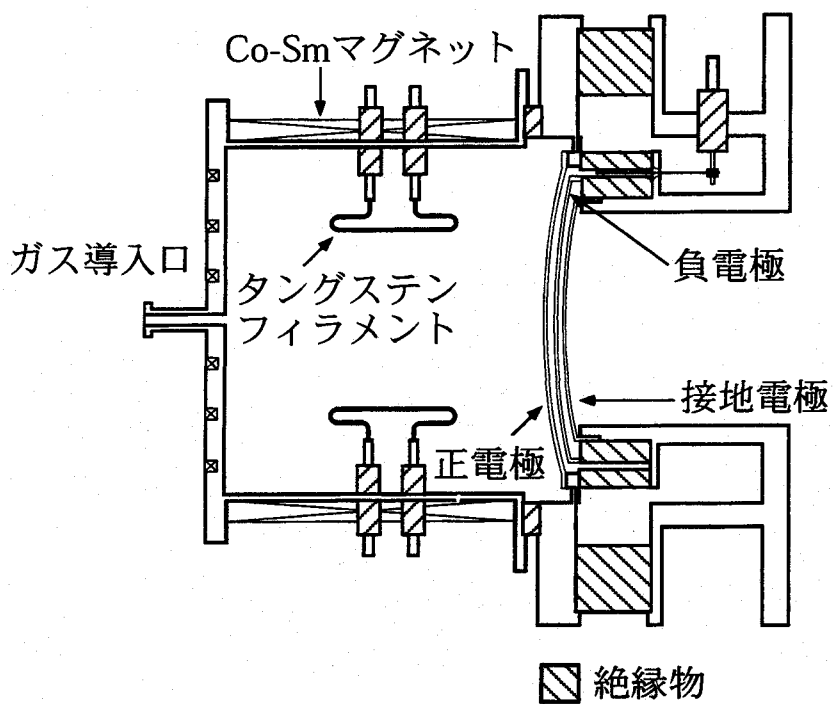


図2-3 バケツ型イオン源.

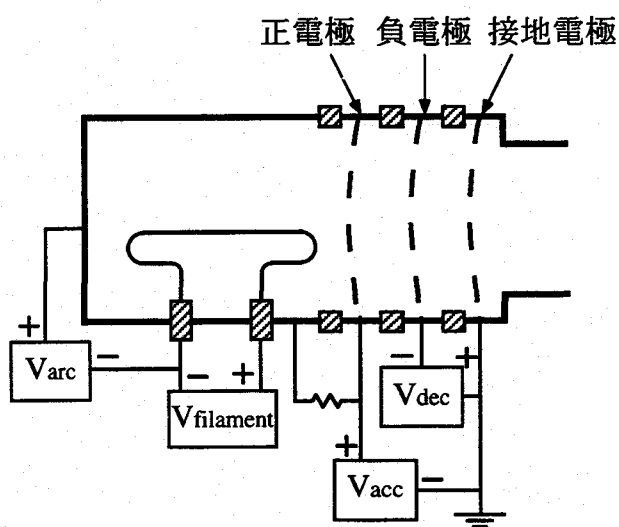


図2-4 イオン源と電極への配線図.

放電洗浄を行っている。放電電圧は200V、ガス圧は9~14mtorr、そして放電時間は6時間以上である。

2.2.2 試料ホルダー

図2-5は試料温度が1080K以下で使用する中温用ホルダー、そして図2-6は主に1780K以上の温度で使用する高温用ホルダーを示している。まず、中温用ホルダーについて説明する。このホルダーは、試料台、ヒーター、そして背面から熱が逃げるのを防ぐ4枚の反射板から構成されている。試料の加熱は、ヒータに電流を流し試料台を加熱することで間接的に行う構造になっている。ヒーター部分の材質は炭素であり、試料の表面温度を最大1080Kまで加熱することが可能である。試料台にはモリブデンを用い、その基板温度を白金-ロジウム系の熱電対を用いて測定する。この試料台に20x20x5mm³の試料を置き、モリブデンマスクで押さえつけて固定する。試料へのビーム照射面は、マスクによって直径15mmの円となる。

一方、高温用ホルダーは試料に直接電流を流して加熱するタイプである。試料はその両端を炭素材で挟み、さらにタンタルで挟みネジ止めする。試料押さえに炭素材を使用するのは、試料と熱膨張係数の等しい材質を使うことで、高温下でも熱接触の良い状態を保つためである。そして、この試料保持部分を電気絶縁が高いセラミックの枠に固定して支柱へ取り付け。試料前面にはモリブデン製のアパーチャが取り付けられており、ビーム照射面を幅17mmに制限している。試料へ入射するビームの角度を変更するには、セラミックの枠と支柱への取り付け角を0度から75度まで変えることで行える。

試料温度によって試料ホルダーを使い分けたのは、ビーム照射による試料表面温度の変化をできるだけ少なくするためである。中温用ホルダーを使用してビーム照射するときは、まず試料を加熱するヒータへの電流を止める。試料の厚さも5mmとすることでビームによる入熱を試料表面からバルク内部へ熱伝導によって拡散させ、表面温度の上昇が少なくなるようにしている。しかし、それでも温度変化が大きいので照射時間を短くして試料への入熱量を減らし、表面温度の上昇を100K以下に抑えている。図2-7(a)は、炭素にボロンを3%添加したGB-103に、5keVの重水素ビームを $9 \times 10^{20} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の粒子束で照射したときの温度変化を示している。この粒子束では、0.2秒の照射時間で表面温度は100K上昇する。粒子束が低いときは試料への入熱が少なくなるため、図2-7(a)よりも表面の温度上昇は緩やかとなる。その場合は、ビーム照射時間を0.2sよりも長くして照射を行う。

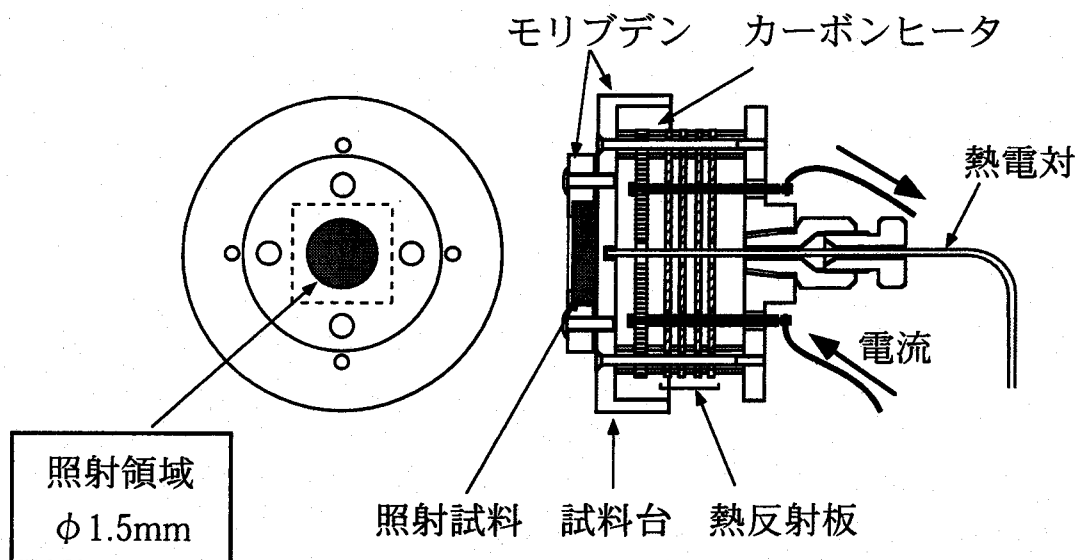


図2-5 中温用ホルダー.

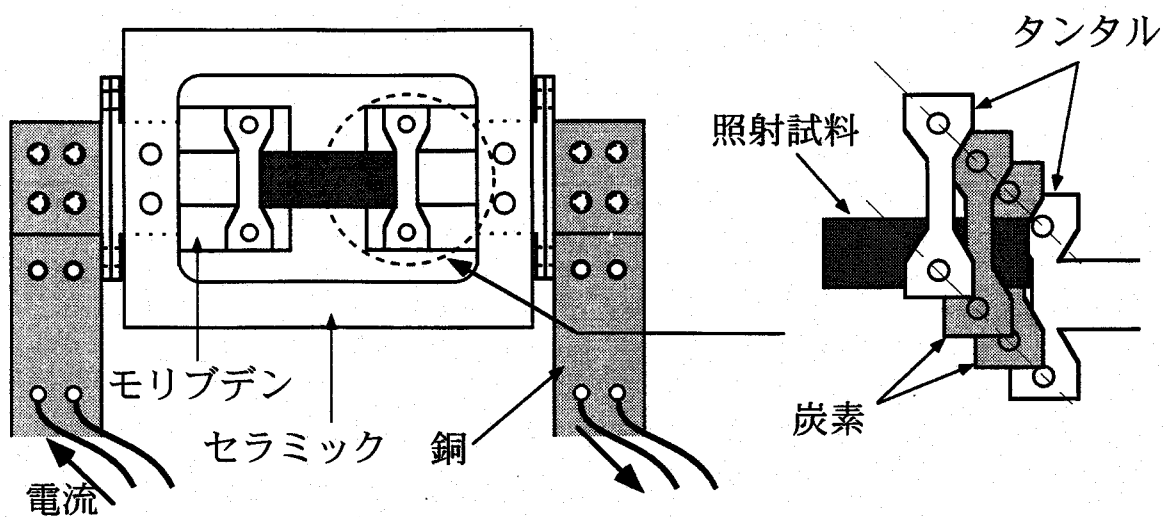
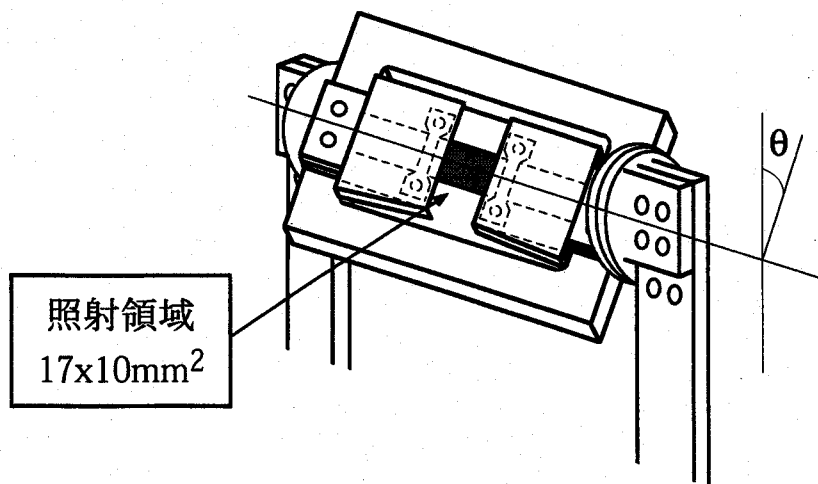
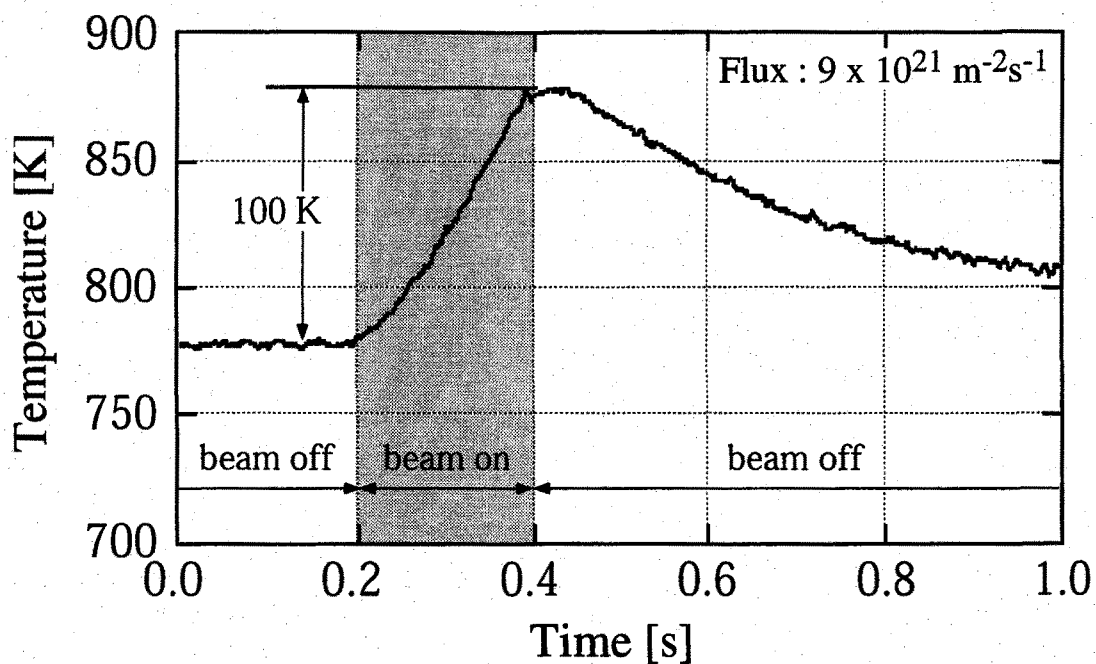
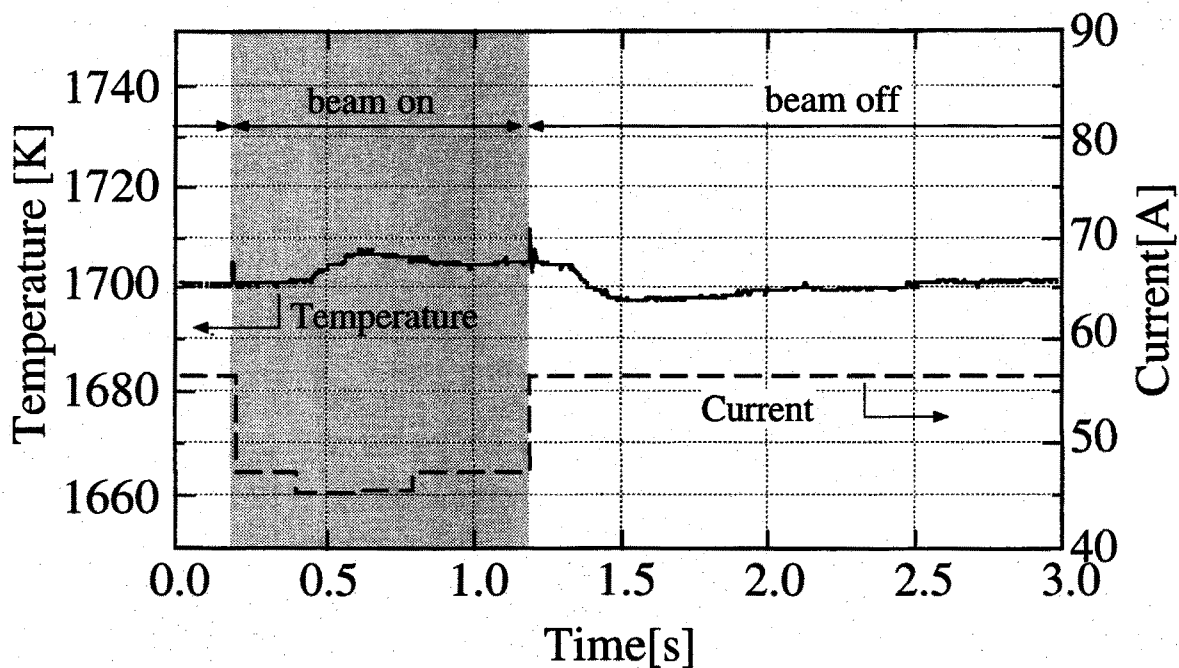


図2-6 回転式高温用ホルダー.



(a) 中温用ホルダーでのビーム照射による温度変化.



(b) 高温用ホルダーでのビーム照射による温度変化.

図2-7 ビーム照射による表面温度の変化.

次に、高温用ホルダーを使用する場合について述べる。高温領域では、通電加熱、ビームによる入熱、そして輻射による熱損失とのバランスによって、試料温度が決まる。したがって、試料への入熱がビーム照射に関係なく一定であれば、試料温度は変化しない。高粒子束領域でも試料温度が1500K以上になると、ビーム照射をしていないときの通電加熱による入熱が、ビーム照射による入熱よりも大きくなる。このような状況においては、ビーム照射をしている間ビーム加熱に相当する分の電流値を下げることによって、全入熱量を一定に保つことができる。図2-7(b)は、試料温度を1980Kにしたときの試料の温度と、通電加熱のための電流値の変化を示している。放射温度計は温度変化の時間応答が0.3秒であるものを使用しているため、表示温度にはその影響が多少でているが、ビームを照射している間、電流値を56Aから47Aに減少することで、試料温度は一定に保たれている。このように、試料を高温にする場合は、電流量を制御することで照射時間を長くすることができ、0.8~2秒で照射を行っている。また、直接通電による加熱の利点は、電流量に対する試料温度の変化の時間応答がよく、間接的に加熱するよりも効率的に高温領域まで試料を加熱できることである。

2.2.3 カロリーメータ

試料へ照射するビームの粒子束は、カロリーメータを使って評価する。既に述べたように、ビームは輸送空間中の中性ガスと荷電交換反応をすることによって、試料ホルダーがある位置では、イオンが中性化したビームになっている。カロリーメータは、イオンと中性粒子の種類に関係なく粒子のもつエネルギーを熱エネルギーに変換して測定できる。また、ビームの粒子束は従来のビーム装置よりも2桁高いので、カロリーメータの受熱対の温度上昇が十分見込め、精度の良い測定が期待できる。図2-8にカロリーメータの構造を示す。カロリーメータは、十字形をした5個の受熱体をもつ2次元構造となっている。受熱体は、1辺の長さが10mmである立方体の銅を使用しており、15mm間隔でホルダーに取り付けている。受熱体とそれを支持するホルダーとの間は、熱絶縁を確保するため厚さ5mmのテフロンが挟み込んである。受熱体の温度は、シース形クロメル-アルメル熱電対によって測定する。ビーム照射している間、受熱体の温度は急激に上昇し、照射を終えた後温度上昇に比べて十分に長い時間で低下する。それゆえ、受熱対の熱絶縁は十分であり、粒子束は照射前の温度と照射後のピーク温度の差から求めることができる。

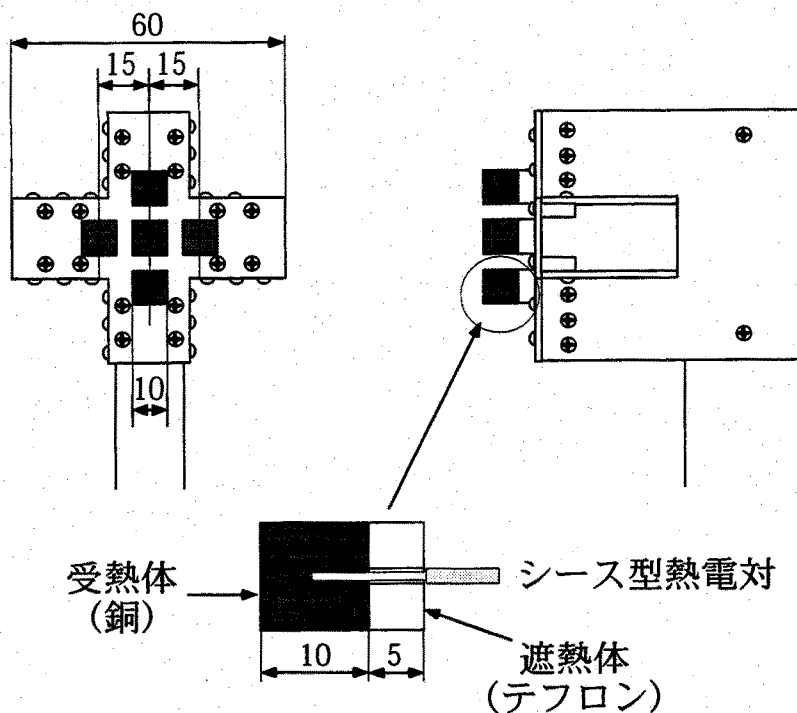


図2-8 2次元カロリメータ。

2.2.4 質量分析器

質量分析器の全体図は、ビーム照射装置とともに図2-2に示している。質量分析器には最大0.2Tの磁場を発生できる電磁石があり、その磁場中をビームが通過することによって、イオンは偏向しファラデーカップで測定される。この質量分析器で測定できる質量数は30までである。ファラデーカップの前面には、二次電子を抑制するグリットがある。検出する質量スペクトルの分解能を向上させるため、スリットがビーム偏向前に2つ、偏向後に1つあり、スリット幅はそれぞれ0.4, 0.5, 1.5mmとなっている。接地電極からファラデーカップまでの距離は270cmである。

2.3 スパッタ粒子測定装置

ビーム照射前後の重量測定から損耗率を求める実験では、照射中の損耗現象を捉えることができない。それゆえ、損耗のメカニズムをさらに詳しく調べるためには、照射中の損耗の情報をもっているスパッタ粒子の検出は欠かせないことである。この節では、スパッタ粒子を直接測定のための装置とその方法について示す。

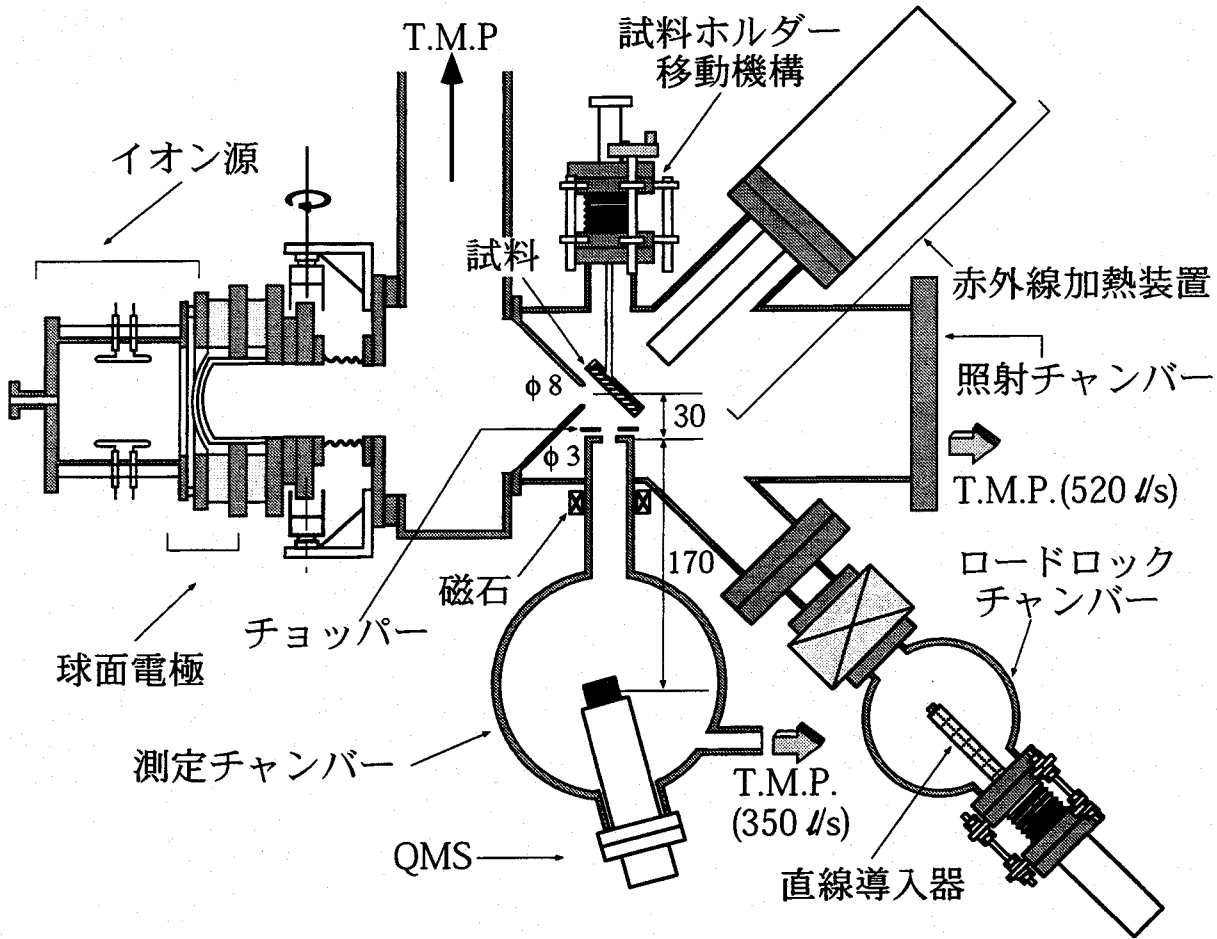


図2-9 スパッタ粒子測定装置.

2.3.1 装置構成

図2-9は、スパッタ粒子測定装置の概略図を示している。照射を行っている間も高真空が保てるように、照射チャンバーと測定チャンバーを、それぞれ520 μ sと350 μ sのターボ分子ポンプで排気している。ビームは、照射チャンバーとイオン源の間にある $\phi 8$ のアーチャーによって制限され、そしてビーム進行方向に対して45度の角度で試料に打ち込まれる。ビーム照射によって試料からスパッタされた粒子は、試料から30mm離れた $\phi 3$ のスリットを通過して、さらに170mm離れた四重極質量分析器(QMS)で測定される。QMSはスパッタ粒子の飛行方向に対して、15度の角度で取り付けられているが、これは試料表面で反射したビーム粒子を、QMSで測定しないようにするためである。試料とスリットの間スパッタ粒子をチョッピングする回転板があり、適当な周期でスパッタ粒子が測定チャンバーに入るのを遮断する。こ

れによって、QMSで測定する信号に含まれる残留ガスの信号を差し引くことができる。また、取り外し可能な磁石も取り付けられている。照射チャンバーの真空度は、ガスを入れてから2秒後には 2×10^{-4} torrまで低下する。しかしこの真空度での平均自由行程は、例えばボロンの場合だと400mm以上あることから、大部分のボロン粒子は、残留ガスと衝突する前にQMSヘッドを通過することが可能である。

黒化処理したCuの試料ホルダーに取り付ける試料は、赤外放射加熱装置を使ってCuに赤外線をあてることで、間接的に加熱している。試料の温度は赤外放射温度計で測定する。試料の交換は、試料ホルダーをロードロックチャンバーまで移動し、この部分だけを大気開放して行う。それゆえ、イオン源は大気で汚染されることがなくなり、装置のベーキングとイオン源内壁のHe放電洗浄により、2.2節で示した装置構成のときよりも、不純物が少ないビーム照射を行うことが可能となっている。

2.3.2 スパッタ粒子の信号量

QMSで検出できるスパッタ粒子は、QMSヘッドでの粒子密度に比例する。この密度は、

$$n_d = \frac{\phi_s}{v} \propto \frac{Y\phi_i}{v} \quad (2.2)$$

で与えられる。ここで、 ϕ_s はQMSヘッドを通り抜ける粒子束、 ϕ_i は入射粒子の粒子束、 Y は損耗率、 v はQMSヘッドでのスパッタ粒子の速度である。物理スパッタリングによるスパッタ粒子のエネルギー分布はThompson分布で与えられ[2]、

$$\phi_{ps}(E)dE \propto \frac{E}{(E+E_B)^3} dE \quad (2.3)$$

である。 E_B は基板原子の表面結合エネルギーであり、炭素の場合は7.4eV[3]、ボロンの場合は5.4eV[4]である。QMSで検出できる信号 Q_s は、スパッタ粒子の検出感度がエネルギーに依存しないとすると、

$$Q_s = R \int_0^{E_i} \phi_{ps} n_d dE = R Y \phi_i \int_0^{E_i} \frac{\sqrt{E}}{(E+E_B)^3} dE + Q_R \quad (2.4)$$

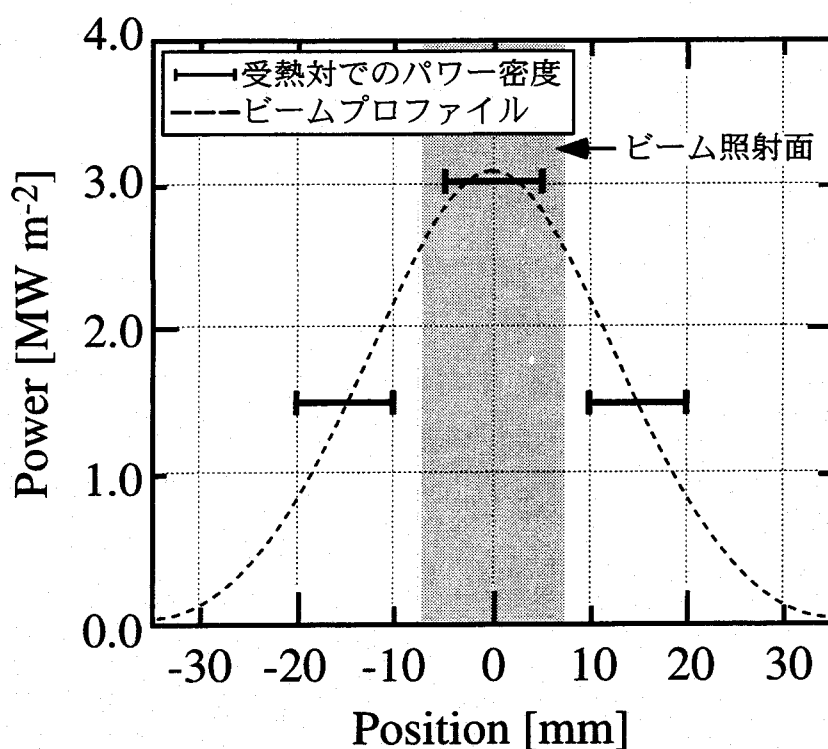


図2-10 ビームのパワー密度とそのプロファイル。

となる。ここで、 Q_R は残留ガスからの信号、 E_i はQMSのイオンソースに印加したイオンエネルギー、 R と R' は定数である。したがって、損耗率はQMSで検出した信号だけでは求まらず、重量測定から求めた損耗率と比較することが必要である。

2.4 試料へ入射する粒子束の評価

入射粒子束に相当するパワー密度 P は、照射時間と受熱対の温度上昇から計算しており、その温度上昇を ΔT とすると、

$$P = \frac{C \Delta T}{S \tau} \quad (2.5)$$

で与えられる。ここで C (J/K)は受熱体の熱容量、 S (cm²)は受熱体の照射面積、 τ (s)はビーム照射時間である。図2-10は、重水素ビームを照射したときのビーム収束点におけるパワー密度プロファイルを示している。横軸はカロリメータの中央にある

受熱対の中心を原点としたときのそれぞれの受熱対の相対的な位置関係を表している。したがって、-20~-10mm, -5~5mm, 10~20mmの位置に受熱対が存在することになる。中央の受熱対では、最大 3MW m^{-2} のパワー密度が得られている。アルゴンビームの場合は 1.2MW m^{-2} である。球面電極を使ってイオン源から引き出されたビームの輸送特性は、電極面から一様に引き出される微少ガウス分布の重ね合わせで考えることができる。点線で示したビームプロファイルは、それぞれの受熱対で得られたパワー密度をもとにして、ガウス分布でフィッティングをした結果である。試料へ入射するパワー密度は、そのビームプロファイルのうち網掛けした部分の平均値であるとした。網掛けした領域は、中温用ホルダーでは-7.5~7.5mm, そして高温用ホルダーでは-8.5~8.5mmとなるため、照射領域のエッジでのパワー密度は、中心に比べて約20%ほど低い。

入射粒子束 ϕ_{in} は、電極から引き出し直後のビームが1価の陽イオンで構成されていると仮定すると、

$$\phi_{in} = N \frac{P}{e V_{acc}} \quad (2.6)$$

で与えられる。ここで V_{acc} はビームの引き出し電圧、 e は素電荷、 N は1個のビーム粒子が何個の原子で構成されているかを表している。例えば、重水素ビームの場合、ビーム中には D_3 が多く含まれていて、そのときのエネルギーを E とすれば、3個の D が $E/3$ のエネルギーで照射されたのと等価であると考えられる。このように、パワー密度をビームの引き出し電圧で割った値は、 D_3 のような分子の状態にある粒子の個数を表しており、それに N を掛け合わせることで、等価的に試料と相互作用する粒子束を評価することができる。重水素ビームの場合、 D_3 が最も多く存在しており N は約3、アルゴンビームの場合は1である。

試料へ入射する粒子束は、試料ホルダーを置く位置によって変化する。図2-11は、ビーム進行方向(z 方向: z は電極からの距離)のパワー密度分布を示している。接地電極からの試料ホルダーの距離がビームの収束点よりも離れるにつれて、徐々にパワー密度が減少していき、ビームは半値幅の広いプロファイルになっていく。実験装置の構造上から、試料ホルダーはビーム収束点である $z=475\text{mm}$ から $z=725\text{mm}$ の範囲にしか置けない。試料ホルダーの位置を変えて粒子束を変える方法は、イオン源を常に同じ状態で放電して粒子束を変化させることができるため、質量分離をせず照射

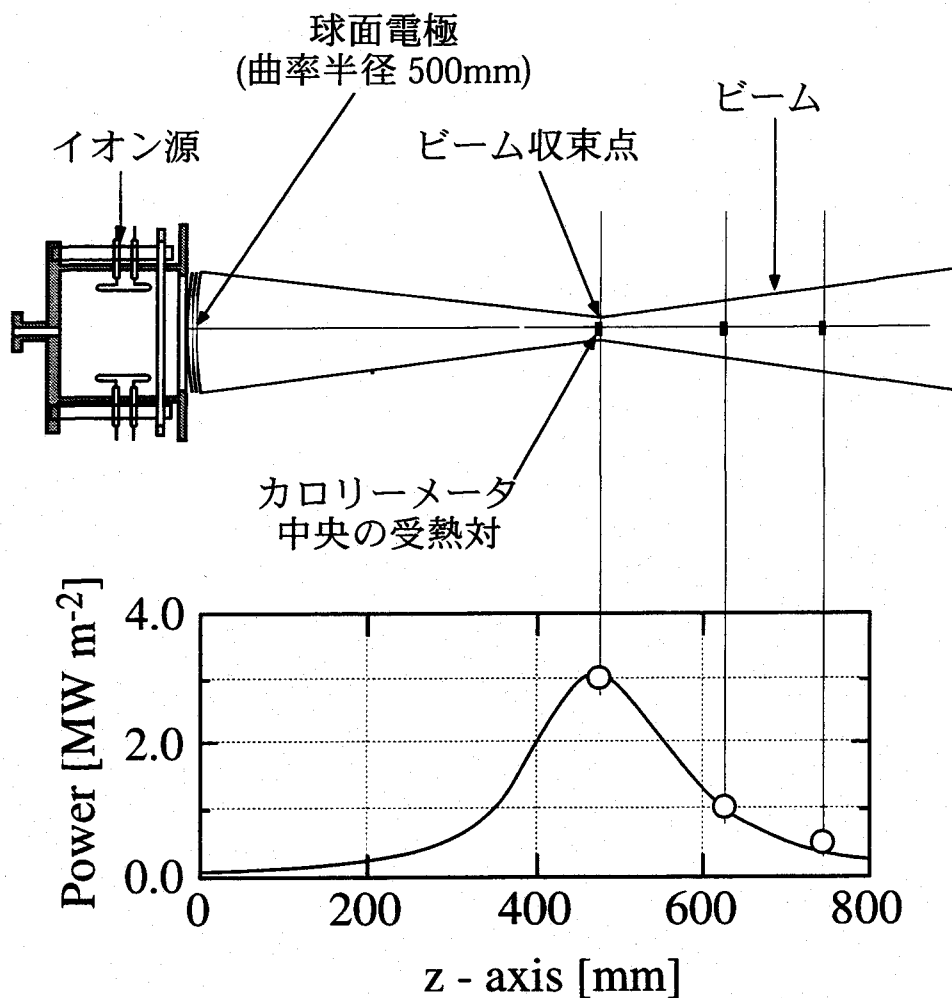


図2-11 z軸方向のビームプロファイル。

している実験装置では大きな利点となる。なぜなら、プラズマ生成条件は同じであるので、ビーム中の粒子成分比を同じ状態に保ち、粒子束だけ変えた照射条件でビーム照射できるからである。

2.5 ビームに含まれる粒子成分比の測定

実験では、引き出したビームを質量分離をせずに試料に照射しているため、ビーム中には酸素や炭素の不純物が混入している。特に酸素不純物は、化学スパッタリングを生じ、重水素に比べて損耗率が高い。そのため、不純物による損耗率への影響を知るために、ビーム中での存在量を正確に把握しておく必要がある。

2.5.1 測定原理

イオン源から引き出されたイオンビームは、ビーム輸送空間中で中性ガスと荷電交換反応をしながら中性化していく。イオンが残留ガスと反応して中性粒子となるための荷電交換断面積は粒子種によって異なるため、質量分析器にあるファラデーカップで検出したイオン電流の粒子成分比とビーム引き出し面での粒子成分比とは一致しない。そのため、ビーム粒子種の荷電交換断面積を調べて、ビーム引き出し面での粒子成分比を求めなければならない。ビーム中のイオンは接地電極から距離 z だけ進む間に荷電交換反応を生じ指数関数的に減少していく。一度中性化したビーム粒子の再電離の影響は小さく無視できると仮定すると、

$$I = I_0 \exp(-n\sigma z) \quad (2.7)$$

が成立する。ここで、 I は接地電極から距離 z 離れた位置でのイオン電流、 I_0 は引き出し面でのイオン電流、 n は残留ガスの密度、 σ は荷電交換断面積である。残留ガスの密度はビーム輸送空間でのガス圧から求めることができ、イオン源にガスを入れてからビームを引き出すまでの時間 t_d を適当に選ぶことで、ビーム照射中の残留ガスの密度を変えることができる。図2-12は、ビーム照射のためのオペレーションを示している。荷電交換断面積は、残留ガスの密度と質量分析器のファラデーカップで検出したイオン電流との関係を調べることで求まる。

2.5.2 ビームに含まれる粒子種

まず、重水素ビームに含まれる粒子種について述べる。図2-13(a)は、質量数が8ま

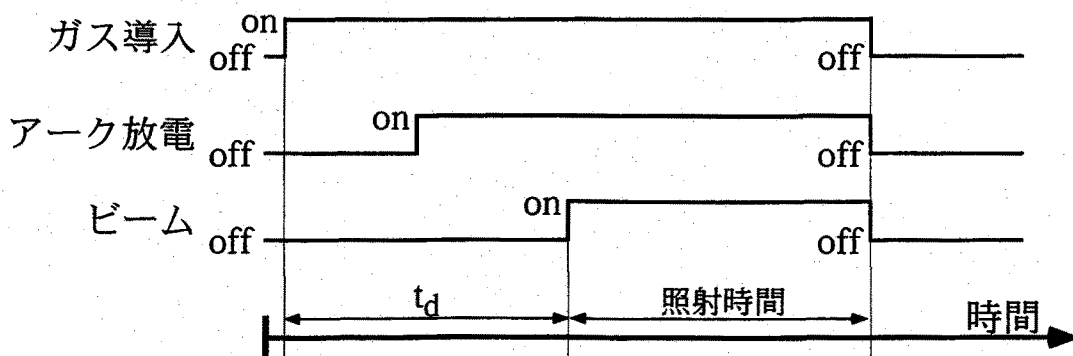


図2-12 ビーム照射のためのオペレーション。

でのイオン電流スペクトルを示す。ビームの引き出しエネルギーEをもつイオンの他に、ビーム輸送空間中でビーム粒子が中性ガスと衝突して解離することで、エネルギーがE/2やE/3となった重水素イオンも検出されている。また、放電洗浄を行ったときの水素や水分子がイオン源内壁に吸着していたらしく、重水素と水素の化合物イオン(D₂H⁺)を検出している。D⁺(E)を測定している質量数は、H₂⁺(E)のイオン種である可能性もある。しかしながら、H₂⁺(E)の解離によって生成するH⁺(E/2)はほとんど検出されていないため、H₂⁺(E)は成分比を推定するときに考慮していない。したがって、重水素ビームには主成分としてD₃⁺が最も多く含まれ、その他にD₂H⁺、D₂⁺、D⁺が存在している。質量数が7~13までのイオン電流は検出感度以下であった。図2-13(b)は、質量数が14~22までの間のイオン電流スペクトルを示している。質量数14以上のイオン電流は、主に酸素不純物が重水素と結合してできた化合物イオンであると考えられる。ただし、質量分析器の性能から、イオン電流は図2-13(a)で得られたような波形とは異なり、重畳したプロファイルとして検出されたので、この状態では化合物イオンの成分比を推定できない。

重畳したプロファイルを各質量数ごとに分離するため、まず質量分析器の装置関数を考える。ファラデーカップの直前にあるスリットはある有限の幅をもっており、そのスリット中心を通る粒子のラーマ半径をRとすると、R±ΔRで偏向するイオンを検出する。そのイオンの質量数Mに対応するイオン電流プロファイルの半値幅をΔMとすると、

$$\frac{\Delta R}{R} \propto \frac{\Delta M}{M} \quad (2.8)$$

の関係が成立する。ΔR/Rは装置関数であると考えることができ、その値は一定である。そこで、図2-12(b)に示す重畳したプロファイルは、ΔM/Mが等しいイオン電流の重ね合わせで得られているとして、酸素不純物を含む化合物イオンの推定を行っている。その際、質量数16~20のうち質量数17,19のイオン種は存在しないとしてイオン電流量を同定している。質量数17,19が存在しないとしたのは、図2-11(a)をみてもわかるように、酸素と化合物を生成するH⁺(E)やDH⁺(E)は無視できる程度にしか存在していないからである。図2-13(b)に分離した結果を点線で示す。それぞれ質量数におけるイオン電流を足しあわせるとほぼ重畳したプロファイルと等しくなる。質量数17,19ではイオン種が存在しないとしたためプロファイルと違いが大きい、こ

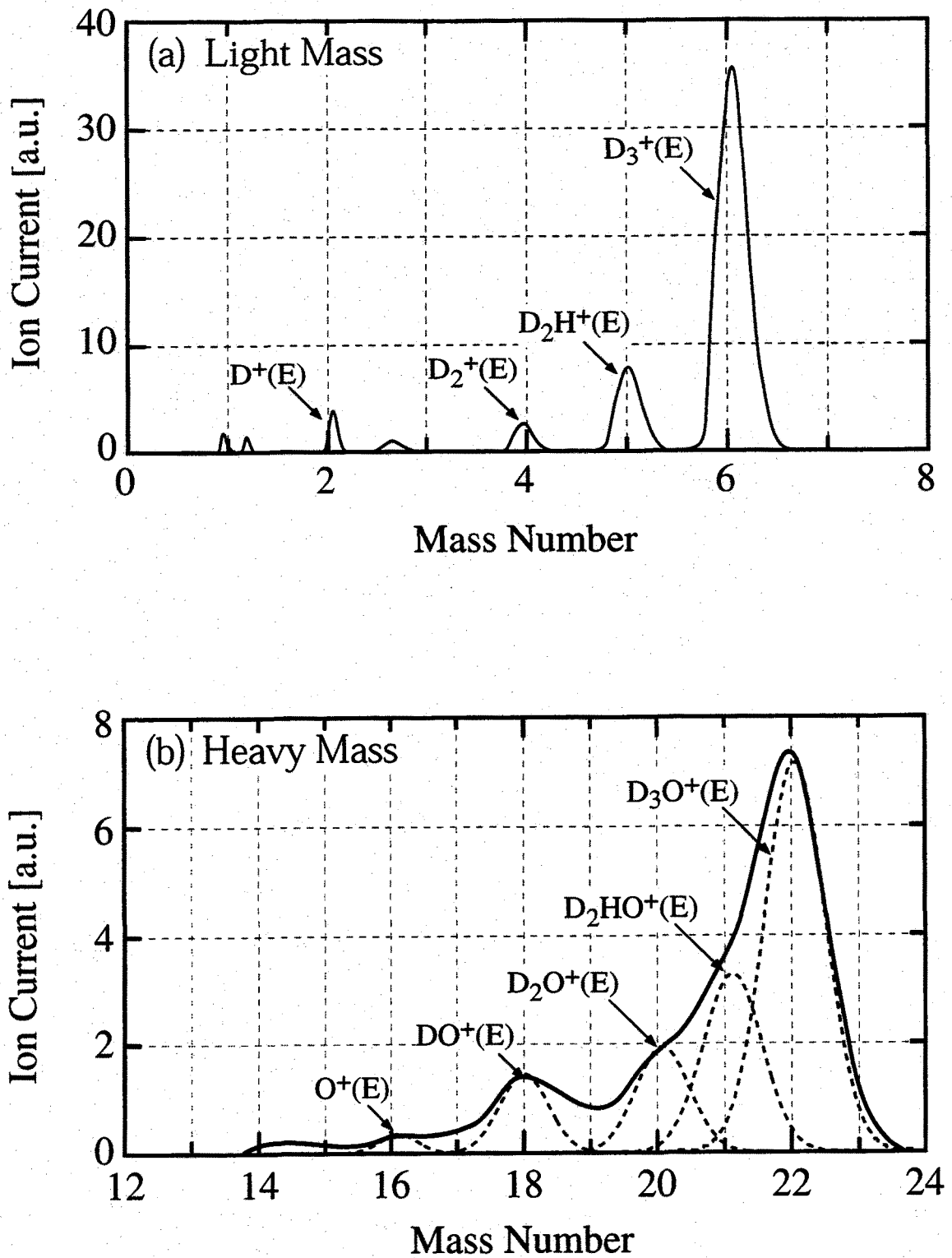


図2-13 質量分析器のファラデーカップで検出した重水素ビームの質量スペクトル。(a)質量数8まで(b)質量数12~24までのスペクトルである。点線は重畳したスペクトルをガウスフィッティングで各質量数ごとに分離した結果を示している。

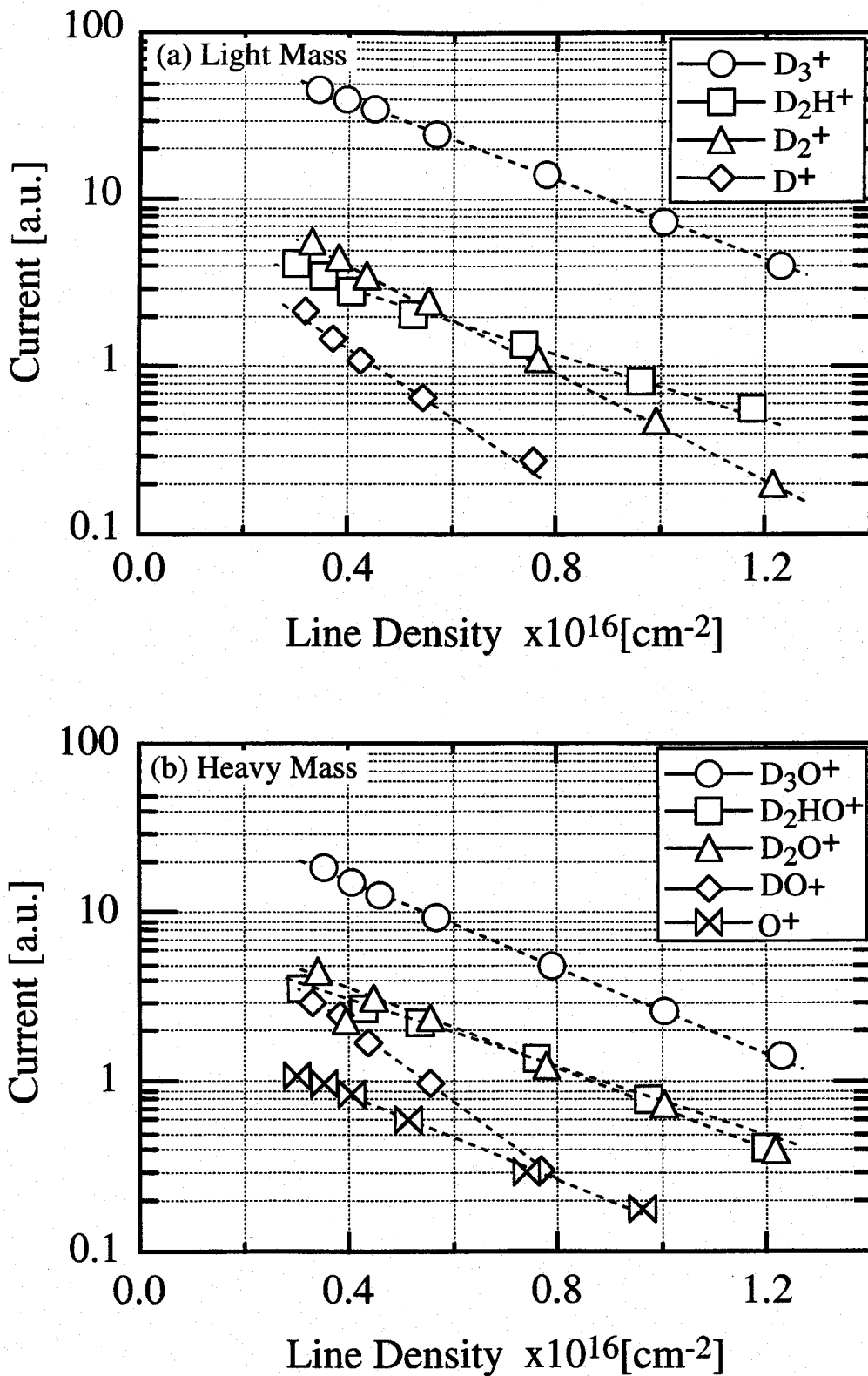


図2-14 線密度に対するイオン電流の変化. (a)質量数8まで(b)質量数12~24までのイオン電流を示している.

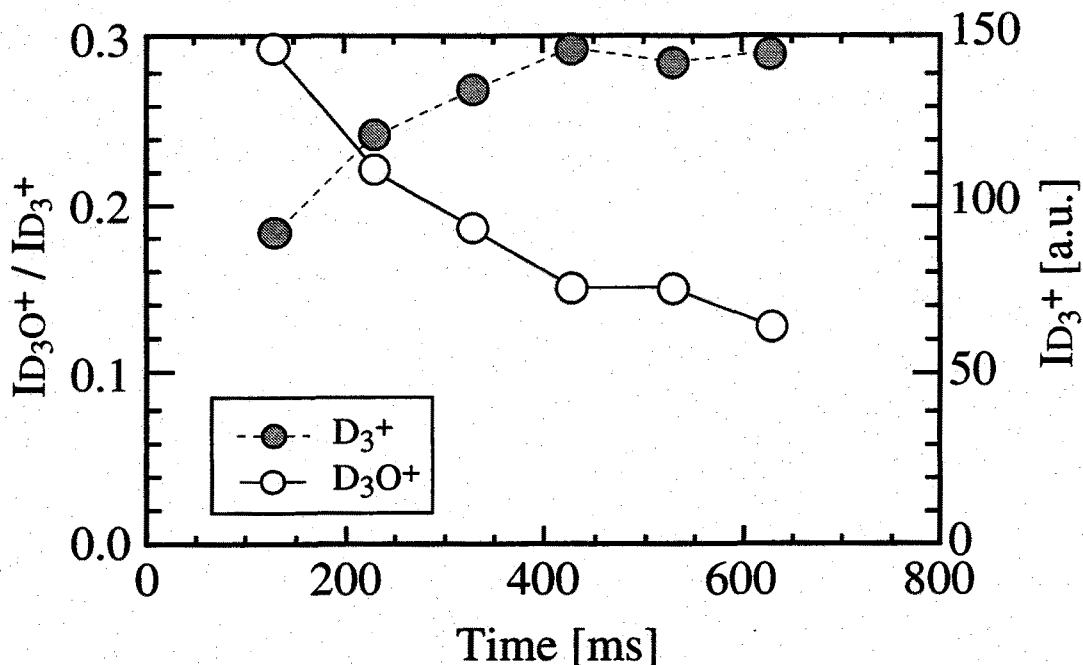


図2-15 グロー放電洗浄を行った場合の D_3^+ と D_3O^+ の電流量の時間変化. 時間の経過とともに, D_3O^+ の電流量の割合は減少している.

これらの質量数で検出されたイオン電流は, むしろ $D_2HO^+(E)$ が解離して生成した $D_2O^+(20E/21)$ や $DHO^+(19E/21)$ によるものと考えられる.

図2-14は, ビーム主成分と酸素不純物成分の電流量 I を線密度の関数として示している. ここで, 線密度はビーム輸送空間の中性ガス密度 n と引き出し電極からの距離 z の積で与えられる. どの粒子種についても線密度に対してほぼ指数関数的にイオン電流量が減衰している. このことから, 一度中性化した粒子が再電離してイオン化する影響は小さく, (2.7)式で実験値をフィッティングして荷電交換断面積を求めても問題はない. ビームの粒子成分比は, 図2-14から求めた荷電交換断面積を使い, ビームの引き出し面($z=0$), すなわち線密度が零となる位置でのイオン電流を見積もることで与えられる.

次にグロー放電洗浄の効果について示す. 図2-15は, グロー放電洗浄を行った場合の D_3^+ の電流量と, 酸素不純物の中で最も多く存在する D_3O^+ を D_3^+ で規格化した値の時間変化を示している. 放電洗浄を行わなかった場合, D_3O^+ の割合はほぼ一定で D_3^+ の電流量の約60%存在していたが, 水素で放電洗浄を行いイオン源のコンディションを整えることで D_3O^+ の電流量は減少していき, 約10%まで低減する. 表2-1は,

表2-1 重水素ビームの成分比の一例.

質量数	粒子種	割合(%)	エネルギー(keV)
6	D ₃ ⁺	56	5
5	D ₂ H ⁺	7	
4	D ₂ ⁺	5	
2	D ⁺	5	
22	D ₃ O ⁺	14	
21	D ₂ HO ⁺	2	
20	D ₂ O ⁺	7	
18	DO ⁺	3	
16	O ⁺	1	
	D atom	88	
	H atom	3	1.0 (D ₂ H ⁺)
	O atom	9	3.6 (D ₃ O ⁺)

粒子種のイオン成分比と、ビームに含まれる重水素と酸素の割合、そして等価的な粒子のエネルギーを示す。重水素ビームでは最大で $1 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の粒子束を得ることができ、1.7keVのD原子が最も多く存在しているとみなすことができる。ヘリウムで放電洗浄した場合はさらに不純物を低減することができ、ビーム種として存在したのはD₃とD₃Oのみであり、そのうち95%がD₃になっている。

Arビームは質量分析器の性能からAr⁺を測定することができない。そのため、ビームに含まれる粒子成分比をNeビームに含まれる不純物を参考にしておおよその割合を見積もっている。ビーム電流量は質量数に反比例するので、ビーム中に含まれる不純物成分の影響を無視できるならば、

$$I_{Ar} = \sqrt{\frac{M_{Ne}}{M_{Ar}}} I_{Ne} \quad (2.9)$$

とすることができる。ここで、 I_{Ar}, I_{Ne} はArとNeの電流量、 M_{Ar}, M_{Ne} はArとNeの質量数を示している。この式から、Arビームの電流量を推定する。また不純物成分についてはNeビームを質量分析した結果、不純物として炭素と酸素を多く検出している。Arビームも同様に測定を行い、質量数が30以下では不純物として炭素が最も多く含

まれている。Arビーム中に最も多く含まれていた炭素を基準として、その他の不純物成分はNeビームと同じ割合で存在しているとする、Arビームの不純物量は6%存在しているの見積もられる。この見積もりは、Arビームの電流量を実際には測定していないために大きな不確定要因を含んでいる。しかしながら、Arプラズマを生成するためのアーク電圧は、Neプラズマの場合より低い。放電電圧が低くなった分、イオン化する不純物粒子の量はNeビームより少なくなり、Arビームに含まれている不純物量は6%以下になると考えられる。

2.6 照射試料

照射試料には、プラズマ対向材である炭素材と炭素複合材を使用している。それを表2-2にまとめて示す。ここで用いた炭素材は、等方性黒鉛であるPD-330S(日立化成)、ISO-630,IG-430(東洋炭素)、熱分解性黒鉛(Union Carbide)とGBシリーズのうちボロンを混合していないGB-100(東洋炭素)である。熱分解性黒鉛は、等方性黒鉛と比べると密度が高く、結晶配位がかなりそろっており異方性である。それゆえ、熱伝導性は結晶面に沿った方向では非常に高いが、結晶面に垂直方向では極めて低い。また、同じ等方性黒鉛でも種類によって熱伝導性に優劣がある。使用した熱分解性黒鉛については、今後P.G.(pyrolytic graphite)と呼ぶ。

炭素複合材には、チタン添加炭素材RG-Ti (NII Grafit)、ボロン添加炭素材GB-103, GB-110(東洋炭素)、コンバージョン B_4C /PD330S(日立化成)、そしてボロンコーティング材を用いている。RG-Tiは、炭素粉末に1.7at%Tiを混合し、2270Kの温度でホットプレスして作る。ボロン添加炭素材は、炭素と0~20at%の B_4C を混合し焼結して作成したものであり、添加したボロンはバルク中でボロンおよび B_4C の形で存在している。コンバージョン B_4C /PD330Sは B_2O_3 気相中に炭素材を加熱しておき、ボロンと炭素の置換反応により生成される。コンバージョン B_4C の膜厚は約100 μm である。

ボロンコーティング材は、真空蒸着法で、炭素材にボロン膜を成膜したものを使用している。炭素材は、表面の凹凸が比較的少ないP.G.と熱伝導性の良いISO-630とIG-430を選んでいる。ボロン膜の成膜は、 10^{-6} torrまで排気した真空容器の中に、ボロン純度が99.9%の固体ボロンを坩堝に入れ、そこから14cm離れた位置に炭素材を取り付ける。その後、試料を580Kまで加熱する。そして、電子銃でボロンを加熱、蒸発させることで成膜を行う。膜厚は水晶発振式膜厚計でモニターし、電子銃の出力を制御することで蒸着速度を調整する。蒸着速度は、 $0.1nm\ s^{-1}$ 以下と $0.5nm\ s^{-1}$ 以上で行っている。

表2-2 照射試料.

材料	種類	密度 (g cm ⁻³)	熱膨張係数 (10 ⁻⁶ K ⁻¹)	熱伝導率 (W m ⁻¹ K ⁻¹)
PD330S	等方性黒鉛	1.85	4.5	181
ISO-630	等方性黒鉛	1.82	5.2	70
IG-430	等方性黒鉛	1.82	4.8	139
P.G.	熱分解性黒鉛	2.18-2.22	-0.1 / 2 (// / ⊥)	394 / 2.3 (// / ⊥)
GB-100	0 at% B	1.80	5.7	54 / 26 (// / ⊥)
GB-103	3 at% B	1.85	5.3	33 / 26 (// / ⊥)
GB-110	10 at% B	1.82	4.9	35 / 28 (// / ⊥)
B ₄ C	conversion B ₄ C	1.82		22 ¹⁾
RG-Ti	1.7 at% Ti	2.20-2.26	10.0-10.5 / 2.1-3.1 293-1273K	219 / 46 (// / ⊥) at 770K

ボロンコーティング膜

基板	膜厚 (nm)	蒸着速度 (nm s ⁻¹)	蒸着方法
ISO-630	1500	0.08-0.5	真空蒸着
P.G.	1500	0.09-0.7	
IG-430	400	0.06-0.5	
P.G.	400	0.06-0.5	

¹⁾ B₄C/PCC-2Sでの熱伝導率を示している. [5]

2.7 損耗量の測定

損耗率を求めるまでの一連の手順を図2-16に示す。照射を行う前に、測定分解能が $10\mu\text{g}$ の電子天秤を使って、試料の重量を測定しておく。その後、試料に吸着した H_2O などの吸着ガスを脱離するために、真空中でプレヒートを行う。その際、試料を加熱する温度は、ビーム照射するときの試料温度と同じかそれ以上に保ち、中温用ホルダーを使用したときは最高1080K、高温用ホルダーのときは最高1980Kに設定し、1時間以上その温度を保つ。そして再び、重量測定を行う。それから、十分な重量損失量を得られるまで、適当な照射時間で繰り返し試料にビームを照射する。照射終了後に、試料温度が1080K以下の場合にはポストヒートを行い、試料中に打ち込まれたビーム種を再放出させる。その後、その試料を重量測定し、プレヒート後の重量との差からビーム照射による重量損失量を求める。ビームのパワー密度測定は、試料へ照射を行う前と行った後に必ず測定している。また必要に応じて、照射途中のパワー密度測定やビームの質量分析も行っている。

重量測定を行う際は、照射試料と同じ材質である未照射の試料を選び、同様に重量測定することで、測定環境の変化による影響を少なくしている。ビーム照射による重量損失量を ΔM とすると、

$$\Delta M = M_4 - M_2 - \frac{m_2 - M_2}{m_2} m_4 \quad (2.10)$$

で与えられる。ここで、 M, m はそれぞれ照射試料と参照試料の重量を表しており、添字の2, 4はプレヒート後と照射後の測定であることを意味している。この重量変化量より、試料から放出される粒子束は、

$$\phi_{out} = \frac{\Delta M \times N_A}{M_c \times S \times T_b \times n} \quad (2.11)$$

となる。ここで N_A はアボガドロ数、 M_c は試料を構成する原子の質量数、 S は照射面積、 T_b は1回あたりの照射時間、 n は照射回数を表している。したがって、損耗率は(2.6)式、(2.11)式より求まる値の比、すなわち入射粒子束に対する試料から放出される粒子束の比で与えられる。














		重量測定から損耗率評価		スパッタ 粒子測定
		参照試料	照射試料	
重量測定	大気中			
プレヒーティング	真空中			
重量測定	大気中			↓
照射	真空中			
重量測定	大気中			
ポストヒーティング (1080K以下の場合)	真空中			
重量測定	大気中			

図2-16 試料の取り扱いフロー図.

2.8 まとめ

この章では、高粒子束ビーム照射装置と試料へビーム照射を行うために必要な機器について説明を行った。この装置を使うことによって、5keVのD₃ビームでは最大 $1 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の粒子束が得られることがわかった。この粒子束は、従来のイオンビーム装置よりも2桁高い粒子束であり、プラズマ対向壁が受ける粒子負荷に匹敵する値である。本研究では、このような高粒子束ビーム照射装置を使い、高粒子束領域における炭素材の損耗を調べているが、使用する試料と照射手順についてもこの章で説明した。照射の結果については、第3章以降にまとめている。

参考文献

- [1] M. Nishikawa, Y. Ueda and S. Goto, "Development of high current density neutral beam injector with a low energy for interaction of plasma facing materials", *Fusion Eng. Des.* **16** (1991) 351-356
- [2] M. W. Thompson, "The energy spectrum of ejected atoms during the high energy sputtering of gold", *Philos. Mag.* **18** (1968) 377-414
- [3] E. Vietzke, K. Flanskamp, M. Hennes and V. Philipps, "The enhanced sputtering yield of graphite at elevated temperatures: The energy of the released carbon atoms", *Nucl. Instr. and Meth.* **B2** (1984) 617-622
- [4] E. Pasch, P. Bogen and Ph. Mertens, "Sputtering of amorphous C:H and C/B:H layers by argon ions", *J. Nucl. Mater.* **196-198** (1992) 1065-1068
- [5] Y. Gotoh, T. Yamaki, T. Ando, R. Jimbou, N. Ogiwara, M. Saidoh and K. Teruyama, "Sputtering characteristics of B₄C-overlaid graphite for keV energy deuterium ion irradiation", *J. Nucl. Mater.* **196-198** (1992) 708-712

第3章 炭素材における化学スパッタリング

3.1 化学スパッタリングのメカニズム

化学スパッタリングは、入射粒子と基板原子との間の化学的な反応によって生成した揮発性分子が基板から放出されることで生じ、温度依存性、粒子束依存性、エネルギー依存性の存在が知られている。炭素基板では、水素を打ち込むと揮発性炭化水素が生成され、入射エネルギーによって400Kから1000Kにかけて損耗率が変化する[1]。化学スパッタリングは物理スパッタリングや照射促進昇華とは異なり化学的反応に起因した損耗現象のため、入射エネルギーのしきい値はない。

化学スパッタリングの発生機構にはいくつかモデルがある[2-4]。Erentsらは、メタンの発生は表面の水素密度と生成レートとの積で表現できると提案した[2]。その中で、表面に存在する水素密度はバルクから表面に拡散する水素、ビームによる水素の脱離、そして再結合による水素の再放出でバランスすると主張した。一方、Haaszらは水素の状態についてももう少し詳細に考えたモデルを提案した[3]。そのモデルでは、まずビーム照射によって炭素が損傷を受け化学的に活性状態の炭素が生成され、その量は適当な水準で一定となる。そして、その炭素と水素が結びつくことによってC-H結合を形成する。さらに、水素が結合していくことで、 CH_2 , CH_3 を形成していく。また、逆反応としてC-H結合が切れる過程も存在する。最終的には、 CH_3 がビーム照射によって CH_3 ラジカル、あるいは水素がさらに結合して CH_4 として放出されるという反応過程を示した。また、このモデルでは $\text{H}^0 + \text{H}^+$ といった相乗的な反応についても実験結果と一致することを示した。Wittmannらは炭素と水素の結合状態に注目したモデルで化学スパッタリングを説明している[4]。これら全てのモデルは、バルクに存在する水素と深い関わりがある。

バルク中の存在する水素については、水素リテンションの観点から数多く研究されてきている[5-9]。バルクに打ち込まれた水素は、活性状態の水素と捕獲水素の状態にある。活性状態の水素はバルク中を拡散することができ、再結合によって試料から再放出したり、捕獲サイトに捕獲されて捕獲水素となる。それに対して捕獲水素は、熱的またはビーム照射によって脱捕獲し活性状態の水素となる。500K以下では捕獲サイトに捕獲された水素はH/Cの原子比で約0.4である[9,10]。しかし、フルエ

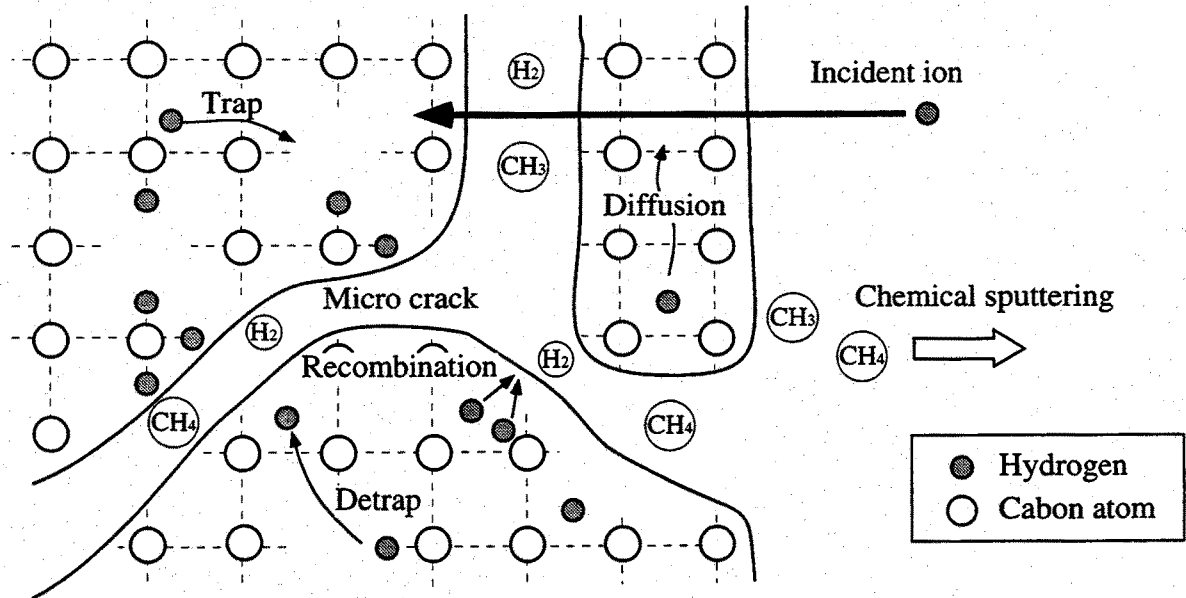


図3-1 化学スパッタリングの模式図.

ンスが増加しても $H/C=0.4$ 以上にはならない. これは, Haaszらのモデルで活性状態の炭素がある割合で飽和することと対応していると考えられる. また捕獲水素は, 試料温度が $500K$ 以上では捕獲水素の脱捕獲が起こるようになりメタンや水素分子として再放出してしまうため, バルク中の水素は $H/C=0.4$ より低い値となる.

これまで水素リテンションのモデルでは水素分子の再放出しか考慮に入っていなかったが[5,6,9], 最近では昇温脱離によるメタン放出を定式化する試みがされている[11,12]. 基本的に水素リテンションは化学スパッタリングと同様バルク中での水素と炭素の化学的反応に起因していると考えられ, その反応過程は良く似ている. 反応過程の違いはビーム照射による効果が含まれていないことであるが, その効果は化学スパッタリングに対しては重要な因子の一つである.

図3-1は化学スパッタリングの反応を模式的に表している. バルク中の水素は拡散, 捕獲, 脱捕獲, 再結合する. また, 生成した揮発性炭化水素は炭素材内部のクラックを通してすぐに試料から放出される.

3.2 損耗率の温度依存性と粒子束依存性

まず, 試料の個体差, 実験の再現性を確認しておくため, $770K$ と $970K$ に加熱した等方性黒鉛PD-330Sをそれぞれ2枚ずつ用意し, $5keV$ の D_3 ビームを $5 \times 10^{23} D m^{-2}$ のフルエンスまで照射した. そしてビーム照射によって損耗した重量損失量は, どちらの

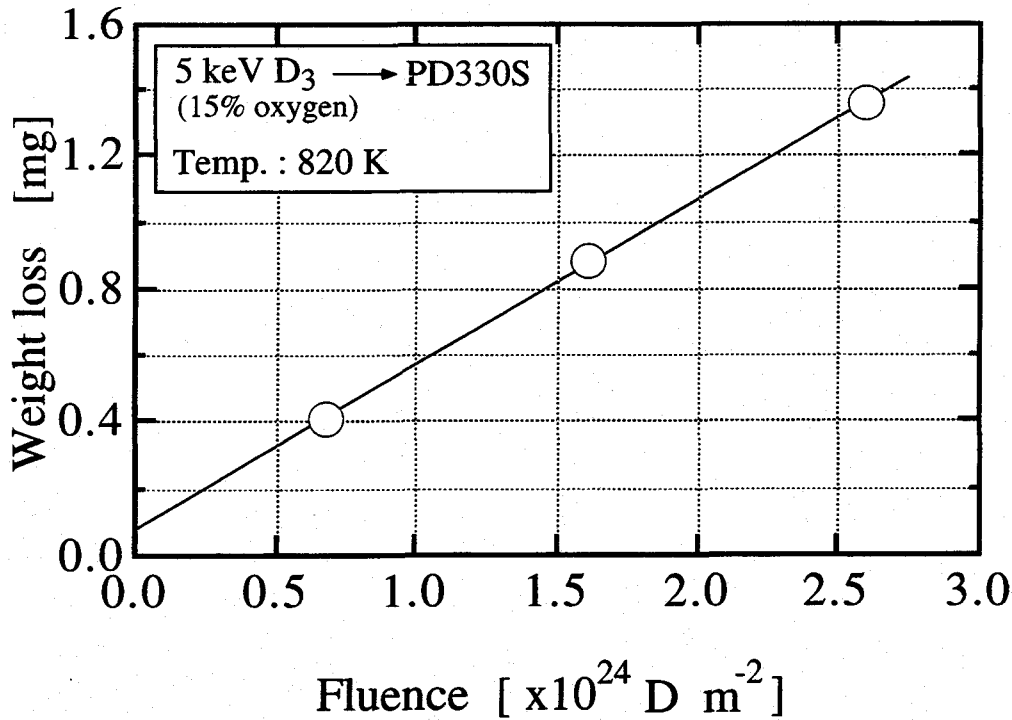


図3-2 フルエンスに対する重量損失量の変化.

温度に対しても $10 \mu\text{g}$ の差しかないことがわかった. 図3-2は, 5keVの D_3 ビームをPD-330Sに照射したときのフルエンスに対する重量損失量の変化を示している. ビームの粒子束は $1.5 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ であり, ビーム中には酸素不純物が15%含まれている. ビーム照射による重量損失量はフルエンスに対して直線的に増加しており, ビームをパルス的に照射したり, 大気中で重量測定を行うことは大きな問題にならないことがわかった. また, ビーム照射前の試料温度は770Kであるがビーム照射によって図2-7に示したように表面温度は約100K上昇する. そこで照射前の温度を T_s としたとき試料温度を $T_s+50\text{K}$ として今後示していく.

図3-3は, 酸素不純物を9%程度含む5keVの D_3 ビームをPD-330Sに対して照射したときの全損耗率の温度依存性について示している. 粒子束は $2 \times 10^{21} \sim 1 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ である. 全損耗率はすべて0.1を超えており, 820Kから1020Kにかけて損耗率が最大となっている. 全損耗率が高いのは, ビームに酸素不純物が D_3O という形で含まれているからである. ビームの主成分は D_3 であるので, 代表的な粒子のエネルギーはDが1.7keV, Oが3.6keVである. それぞれのエネルギーでの炭素に対する重水素と酸素の物理スパッタリングは, $Y_{\text{D,phys}}=0.02$, $Y_{\text{O,phys}}=0.5$ である[13,14]. したがってビー

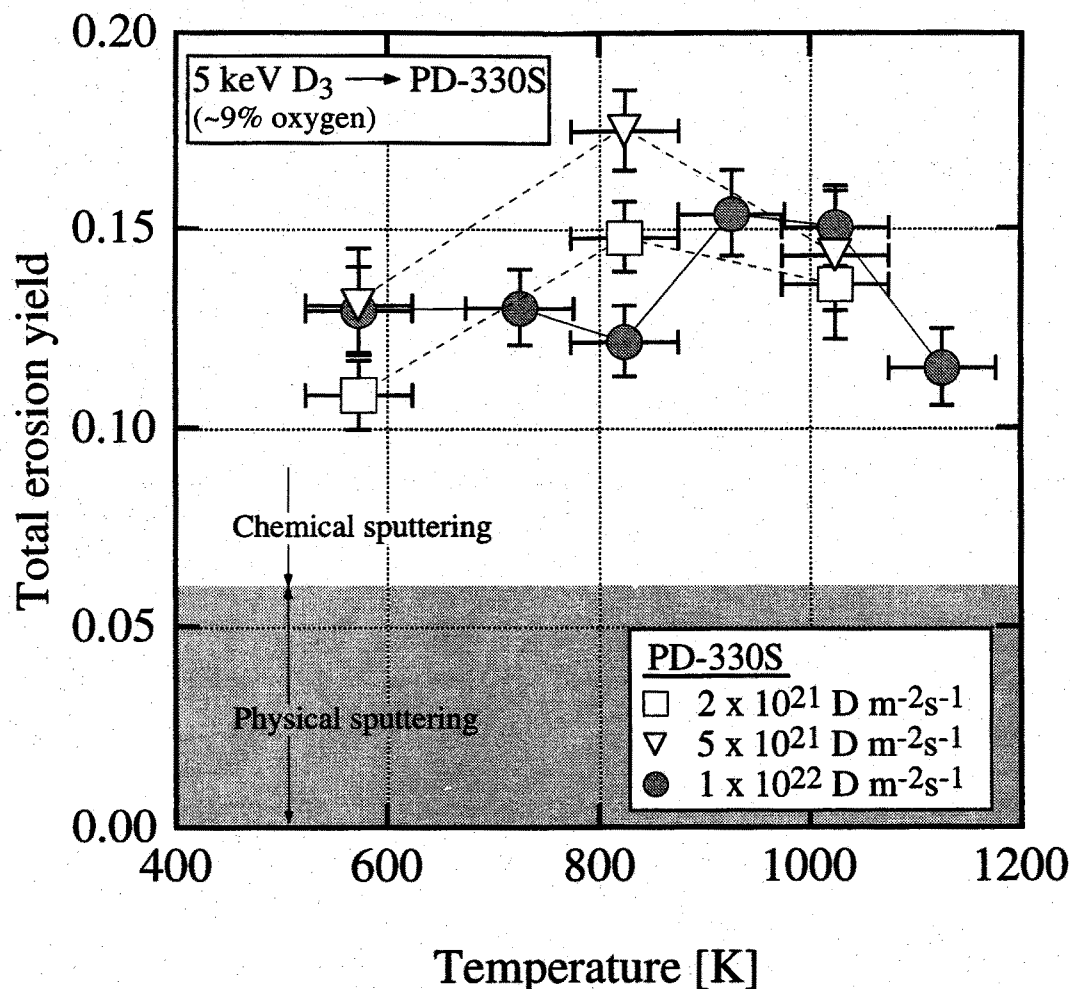


図3-3 5keVのD₃ビームを照射したときの全損耗率の温度依存性。粒子束は2x10²¹~1x10²² D m⁻²s⁻¹である。ビーム中には酸素不純物が約9%含まれている。また、ビーム照射による試料の表面温度の上昇は100K以下となっている。

μ照射による物理スパッタリングは、酸素が9%とすると約0.06になると見積もられる。実験値はこの値より大きく、化学スパッタリングが広い温度範囲にわたって生じていることが明らかとなった。ただし、2x10²¹ D m⁻²s⁻¹の粒子束では損耗率が他の粒子束での実験結果に比べて損耗率が低いように思われる。1つの要因としては放電洗浄によるコンディショニングが良くビーム中に含まれる酸素不純物が少なかったことが考えられる。しかし、酸素による炭素材の化学スパッタリングは温度に対して弱い依存性しか示さないの[14]、後ほど述べるように重水素による化学スパッタリングを考える上では、損耗率に対する酸素による相乗的な効果がなければそれほ

ど問題にはならないと思われる。

化学スパッタリングは、炭素が水素同位体や酸素と反応することで生じ、 CD_4 やCOといった揮発性分子を生成する。揮発性分子は、化学的な反応過程を経て試料から放出されるため、重水素と酸素がバルク中に同時に存在するときは反応過程が複雑になると予想される。重量測定から求めた損耗率では、その反応過程を明らかにするのは困難であるが、いくつかの検討を行い酸素が損耗率へ与える影響について考察してみた。

図3-4は、炭素に重水素と酸素を打ち込んだときの飛程分布を示している。エネルギーはそれぞれ1.7keV(D)と3.6keV(O)としてTRIM-92で計算している。重水素は平均すると試料表面から40nmの深さまで打ち込まれるが、酸素は平均飛程距離が10nmであり、重水素に比べて0.25倍の距離である。この図から、重水素の分布に酸素の分布が重なっている割合は約20%となっている。次にバルクに打ち込まれた水素同位体がバルク中のどの位置でメタンを生成かについては、水素と重水素のバルク中での飛程分布を変化させ、試料から再放出される分子を測定することで調べられている[15]。それによれば、水素と重水素の飛程分布を完全に重ならないようにした場合、放出されるメタンはただ1種類の水素同位体から構成されている。すなわち、メタンはバルク中の水素同位体が拡散しながら生成されるのではなく、試料に打ち込まれた深さで生成されていることを示している。このように、化学スパッタリングに対する粒子の拡散の寄与が極めて低いと仮定できるならば、メタン生成に対する酸素の影響は、重水素と酸素の分布が重なっている部分に限定される。その場合、バルク中に存在する約80%の重水素は酸素の影響を受けず、高粒子束で不純物のない重水素を照射したときと同じ結果が得られていると考えられる。

図3-5は酸素不純物に対する全損耗率の変化を示している。酸素不純物は、放電洗浄によって15%から6.5%まで低減している。実線は、低粒子束のデータを使い820Kでの重水素と酸素のそれぞれの全損耗率を酸素の割合をかえて足しあわせた値である。計算値より820KでのPD-330Sの損耗率が低いのは、高粒子束領域で化学スパッタリングが低減したためと考えられる。この点については後ほどとりあげる。酸素不純物が6.5%から15%に増加するとPD-330Sの損耗率は40~50%増加し、計算値も同様に变化している。このことから、酸素が存在することによる相乗的な効果が全損耗率に含まれているようには見えない。

一方、酸素による炭素の損耗には重水素が影響していると思われる。その理由として、バルク中の酸素と重水素の分布が重なっているからである。例えば、重水素

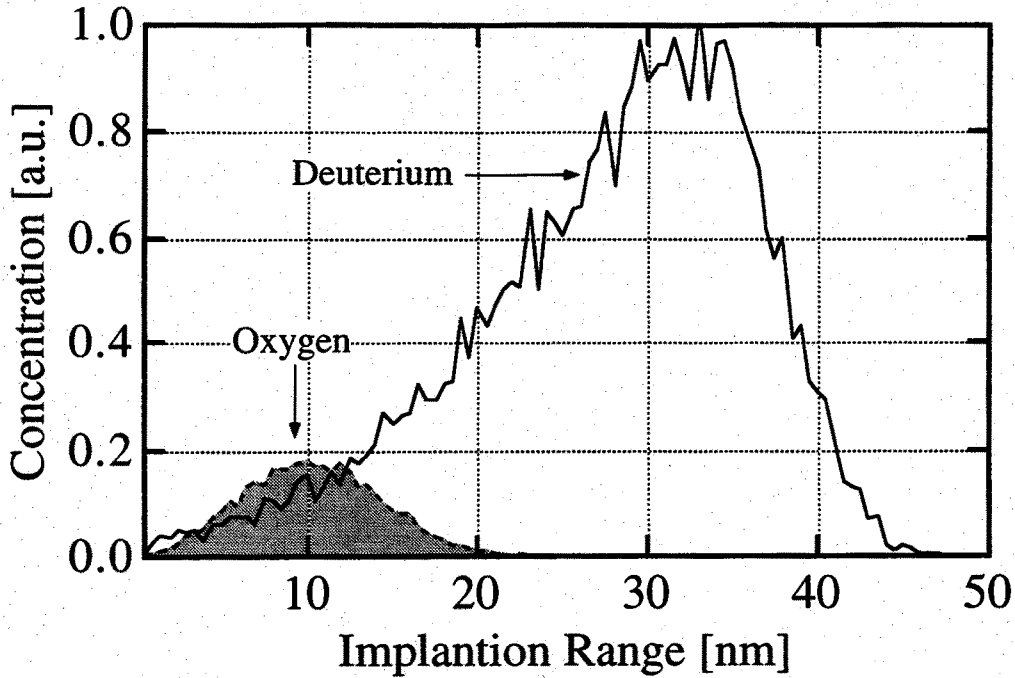


図3-4 TRIM-92で計算した1.7keVの重水素と3.6keVの酸素を炭素材に照射したときの飛程分布. 重水素の分布を実線で, 酸素の分布を点線で示している. 縦軸は重水素, 酸素の密度を表しており, 粒子成分比が重水素91%, 酸素9%として重水素の最大値で規格化している.

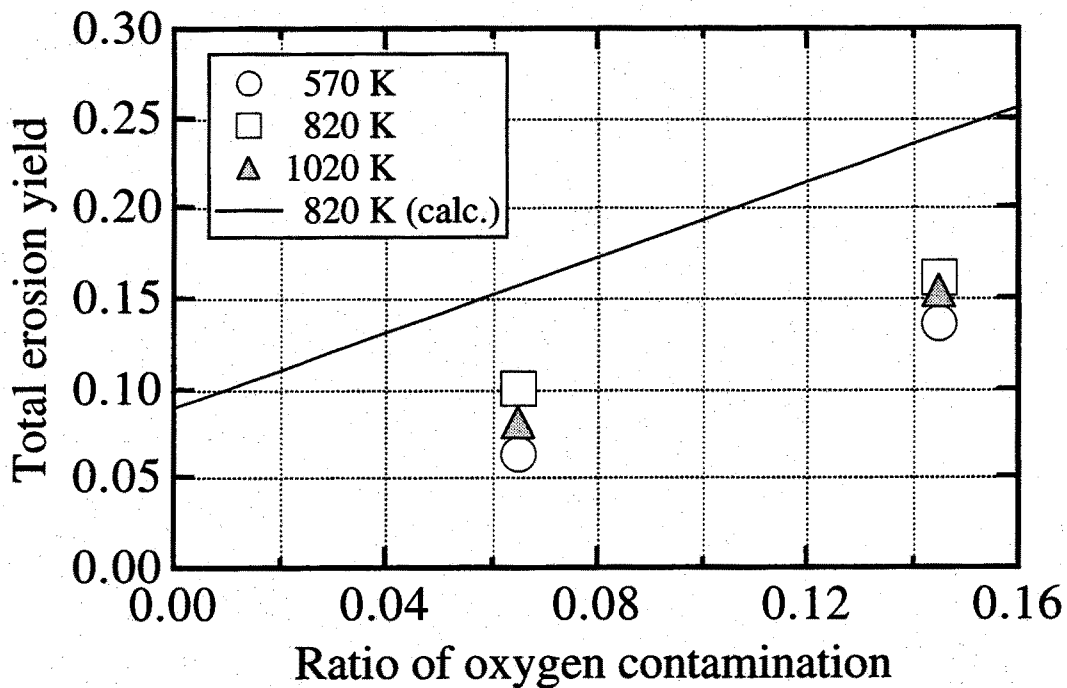


図3-5 酸素の比率に対する全損耗率の変化. 低粒子束での見積もりは, 炭素に対する酸素と重水素の損耗率を足しあわせて求めている.

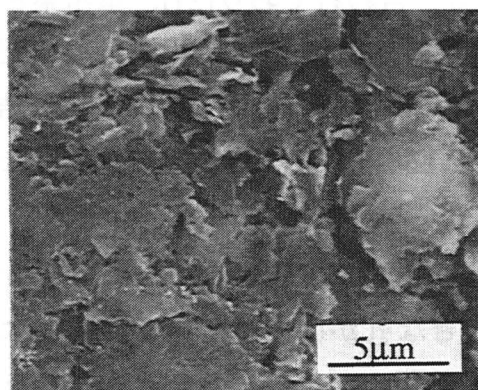
と酸素を同時に照射した場合 D_2O が生成されると言われており[21], 重水素と酸素が互いに反応する過程が新たに生じたと考えられる. また, COの生成は酸素だけ照射したときと H^+ も照射したときでは異なるという報告がある[1]. しかし実験結果にどの程度相乗的な効果があるかはわからないが, 図3-5からはその効果はそれほど大きくないと考えられる.

図3-6はビーム照射前後のPD-330Sの表面状態をSEMで観察した結果である. ビーム照射前の形状は, 平坦であるが部分的に大きな孔が存在していて多孔質な材質であることがわかる. ビーム照射前に1070Kで2時間のプレヒートを行っているが, それによる表面形状の変化は生じていない. また570Kでビーム照射した表面形状は照射前とあまり違いがないが, その一方1020Kの場合は非常に凸凹している. 図3-7は, 試料温度を820Kとして $5 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ と $1 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の粒子束で照射したときの表面形状である. 損耗率は大きく異なっているにも関わらず表面形状には違いがない. 570Kと1020Kの場合も同様に表面形状は粒子束に無関係である. したがって, 試料温度が上昇すると表面はしだいに粗くなっていくが, そのことが損耗に与える影響は少ないと考えられ, 炭素の水素リテンションが表面の粗さに依存しないことと似ている[17].

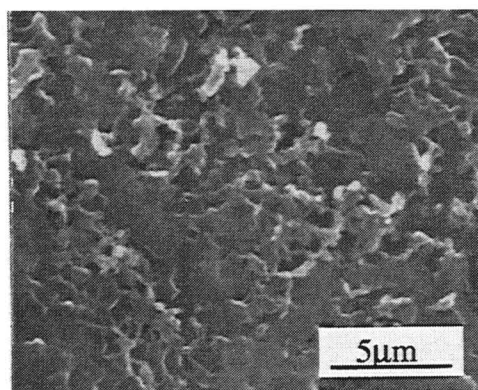
3.3 低粒子束領域の損耗率との比較

この節では, 低粒子束領域で得られているデータと高粒子束領域での損耗率を比較する. そのために, これから示す2つのことを考慮に入れる必要がある. 1つ目はビームには酸素が9%含まれていること, 2つ目はビーム照射による表面温度の変化である. 酸素に対しては, これまでの議論で相乗的な効果は少ないと考えられることを示してきた. そこで, 低粒子束領域での全損耗率は, 酸素の割合が9%として炭素に対する重水素と酸素の損耗率を単純に足しあわせることで表すことができると仮定する. 温度の変化に対しては, ビーム照射によって表面温度は約100K上昇している. 表面温度が一定の場合と変化する場合で損耗率にどの程度違いが生じるかははっきりとしていないが, おおよその評価としてある温度 T_{es} に対して $\pm 50\text{K}$ の幅の温度領域を考え, そしてその温度領域での損耗率を平均した値が T_{es} での損耗率であると仮定する. また, 化学スパッタリングはエネルギーにも依存するので, ビーム照射した重水素と酸素のエネルギーに近いデータとして, 図3-8に示した損耗率を見積もりに使う[13,14].

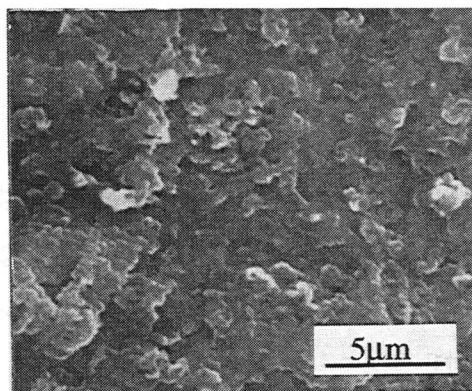
図3-9は, 炭素材に酸素が9%含まれる重水素を照射したときの全損耗率の温度依



(a) 照射前

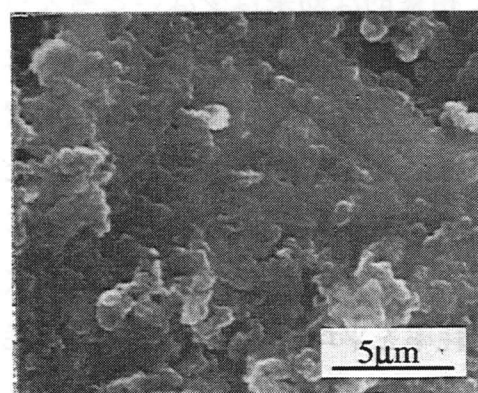


(b) 570 K

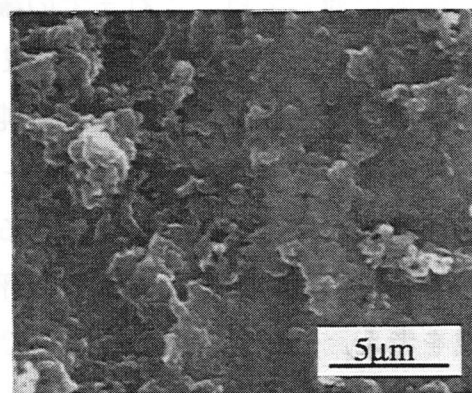


(c) 1020 K

図3-6 照射前と $1 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ で照射した後のPD-330Sの表面形状.



(a) $5 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$



(b) $1 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$

図3-7 試料温度を820Kとして照射した後のPD-330Sの表面形状.

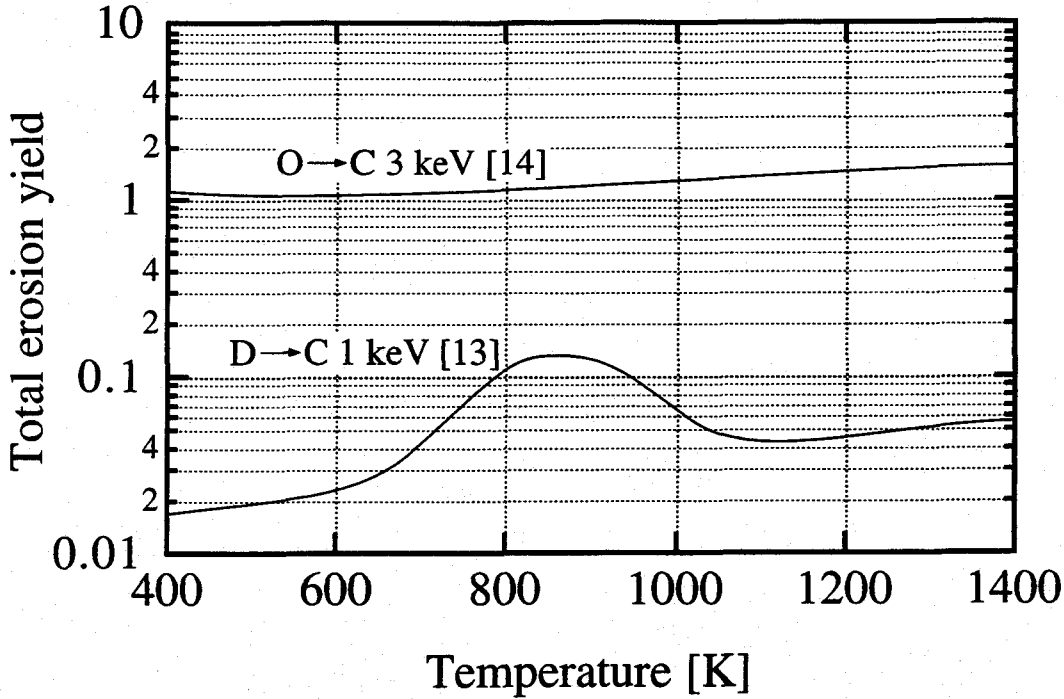


図3-8 低粒子束領域で得られた損耗率のデータ。これらのデータを使って、ビーム中に酸素が9%含まれるときの低粒子束領域における損耗率を見積もっている。

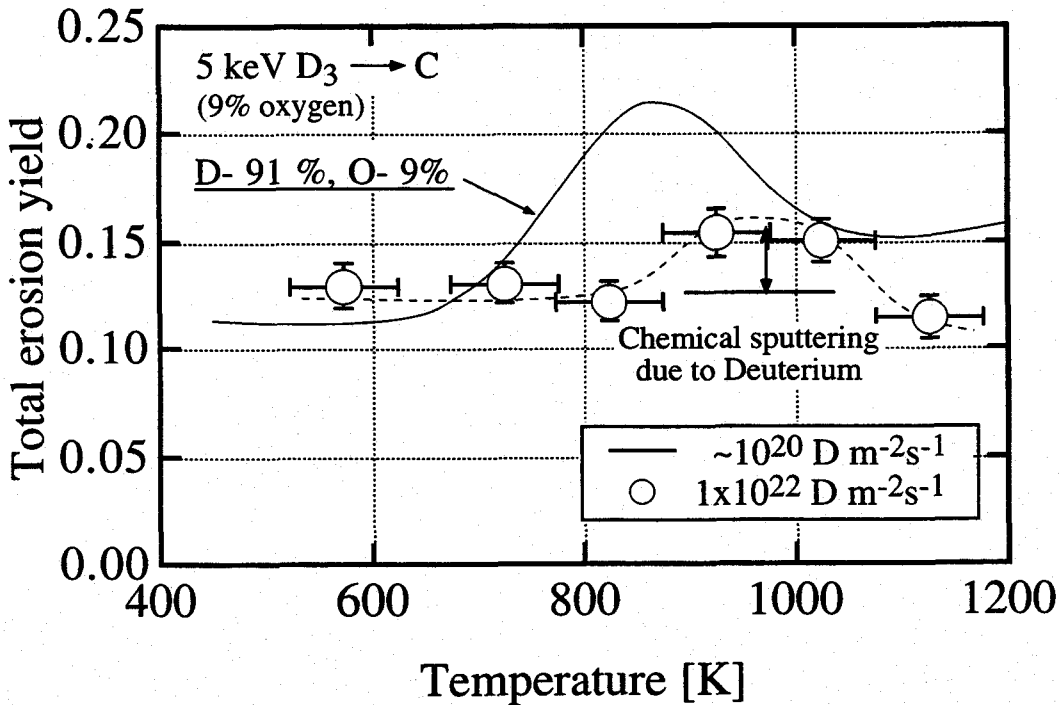


図3-9 全損耗率の温度依存性。高粒子束での損耗率は、低粒子束領域に比べて低く、損耗率が最大となる温度も高温側へ移動している。

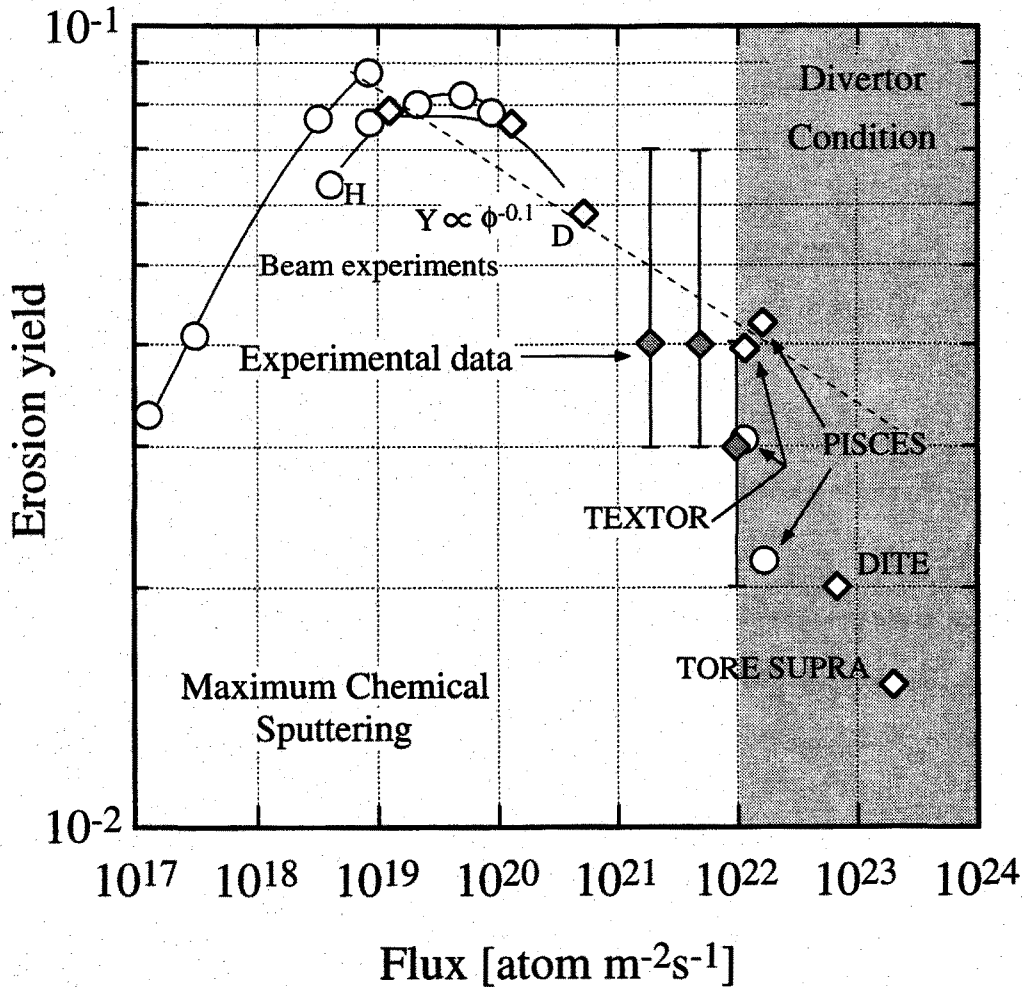


図3-10 化学スパッタリングの粒子束依存性. それぞれの粒子束における化学スパッタリングの最大値を示している. ビーム実験とプラズマ実験から集められたデータでエネルギーが250eVから2000eVの範囲にある. (○)は水素, (◇)は重水素を表している.

依存性を示している. 低粒子束の見積もりでも, 700Kから1000Kにかけて全損耗率が変化するという化学スパッタリングの現象を見ることができる. また, 酸素が含まれていても570Kでの損耗率とピーク温度での損耗率の差は0.1であり, 重水素による化学スパッタリングの値と非常に近い値である. そこで, $1 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ において全損耗率の最大値と570Kでの損耗率の差を求めると $Y_{D, \text{max}} = 0.03 \pm 0.01$ となる. この値は低粒子束領域に比べて約70%減少しており, 損耗率が最大となる温度も高温側へシフトしている. 粒子束に対してピーク温度がシフトする結果は低粒子束ビーム実験によっても確認されている[18]. また, 920Kでの重水素による化学スパッタリン

グを $Y_{D,max}$ とし、全損耗率から $Y_{D,max}$ と物理スパッタリングを差し引くと、その温度における9%の酸素による化学スパッタリング $Y_{O,9\%}=0.06$ となる。したがって酸素による化学スパッタリングは $Y_{O,chem}=0.7$ となり、 $Y_{O,phys}=0.5$ を足しあわせると920Kにおける低粒子束領域のデータとあまり差がない。 $2 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ と $5 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の粒子束では十分な結果がないが、 $1 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の粒子束で行った方法で、それぞれの粒子束における化学スパッタリングの最大値を見積もってみた。化学スパッタリングが最大となる損耗率の粒子束依存性を図3-10に示す。(○)は水素、(◇)は重水素によるデータである[19]。低粒子束ビーム実験では得られなかった高粒子束領域での結果は、誤差は大きいが高粒子束になると化学スパッタリングが減少することがわかる。

3.4 高粒子束領域で損耗率が減少する要因

これまで示してきた結果から、化学スパッタリングは高粒子束領域で減少することが明らかになった。この節では、水素リテンションの挙動を定式化した質量平衡方程式を参考にして[11,12]、図3-11のような反応過程を考え化学スパッタリングが減少する要因について検討する。

図3-11で示す化学スパッタリングの反応では、まずビーム照射によって打ち込まれた水素はバルク中では活性状態の水素として存在する。その水素が、捕獲サイトに捕獲されることでC-H結合を形成する。ただし、捕獲できる水素は原子比で $H/C=0.42$ を上限としている。C-H結合した炭素にさらに水素が結合することによって CH_2, CH_3 が形成し、C- CH_3 の結合が熱的に切れることで CH_3 ラジカルがバルク中か

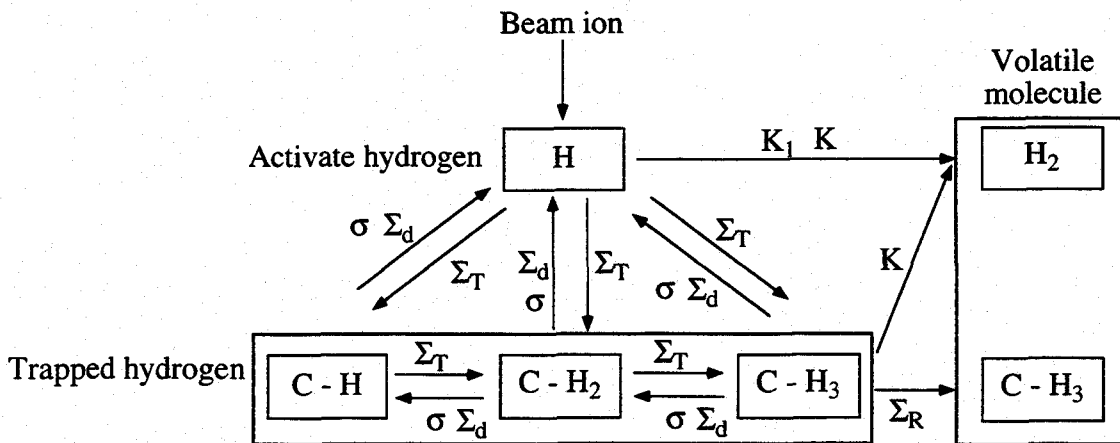


図3-11 化学スパッタリングに対する反応過程。

らすみやかに放出される。CH₃ラジカルの放出は実験的に確かめられている[20]。逆反応としてはC-H結合が切れる脱捕獲過程があり熱的あるいはビーム照射による粒子衝撃によって生じる。H₂分子の再放出については、ビーム照射していないときは活性状態の水素同士の再結合が支配的であるが、ビーム照射しているときは捕獲された水素と活性状態の水素との再結合が支配的であるとする実験結果と良く一致することが示されている[21]。ここではその両方を取り入れ、活性状態の水素は活性状態の水素あるいは捕獲水素と再結合することによって再放出するとした。この反応を定式化すると(3.1)式～(3.5)式のようになる。

$$\begin{aligned}
 \frac{dN_H}{dt} = & S - \Sigma_T N_H (N_T^0 - N_{CH} - 2N_{CH_2} - 3N_{CH_3}) - \Sigma_T N_H (N_{CH} + N_{CH_2}) \\
 & + \Sigma_d (N_{CH} + N_{CH_2} + N_{CH_3}) - K N_H (N_{CH} + N_{CH_2} + N_{CH_3}) - 2K_1 N_H^2 \quad (3.1)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \frac{dN_{CH}}{dt} = & \Sigma_T N_H (N_T^0 - N_{CH} - 2N_{CH_2} - 3N_{CH_3}) - \Sigma_T N_H N_{CH} - \Sigma_d (N_{CH} - N_{CH_2}) \\
 & - K N_H (N_{CH} - N_{CH_2}) \quad (3.2)
 \end{aligned}$$

$$\frac{dN_{CH_2}}{dt} = \Sigma_T N_H (N_{CH} - N_{CH_2}) - \Sigma_d (N_{CH_2} - N_{CH_3}) - K N_H (N_{CH_2} - N_{CH_3}) \quad (3.3)$$

$$\frac{dN_{CH_3}}{dt} = \Sigma_T N_H N_{CH_2} - \Sigma_d N_{CH_2} - K N_H N_{CH_3} - \Sigma_R N_{CH_3} \quad (3.4)$$

$$\phi_{CH_3} = \Sigma_R N_{CH_3} \quad (3.5)$$

ここで、 $N_T^0, N_H, N_{CH}, N_{CH_2}, N_{CH_3}$ はそれぞれ捕獲サイト、活性状態の水素、CH, CH₂, CH₃の密度を表しており、炭素の密度 N_c で規格化している。また、Sは生成項、 Σ_T は捕獲係数、 Σ_R はメタン生成レート、 Σ_d は脱捕獲係数、 σ は粒子衝撃による脱捕獲断面積、 ϕ は粒子束、Kは活性状態にある水素と捕獲水素の再結合係数、 K_1 は活性状態の水素同士の再結合である。これらの式から定常状態における化学スパッタリングの温度依存性を求める。図3-12は温度に対するバルク中での N_{CH_3} の密度とメタンの生成レート Σ_R を示している。 K_1 以外の反応係数は文献から引用しておりその値を表3-1にまとめて示す。温度が低いときは Σ_d が極めて小さく、 $\Sigma_d \ll \Sigma_T N_H$ の関係が成り立つ。したがって活性状態の水素は次々と捕獲サイトに捕獲されていく。しかし、ビーム照射による脱捕獲が温度に関係なく生じるので、 N_{CH_3} はビームによ

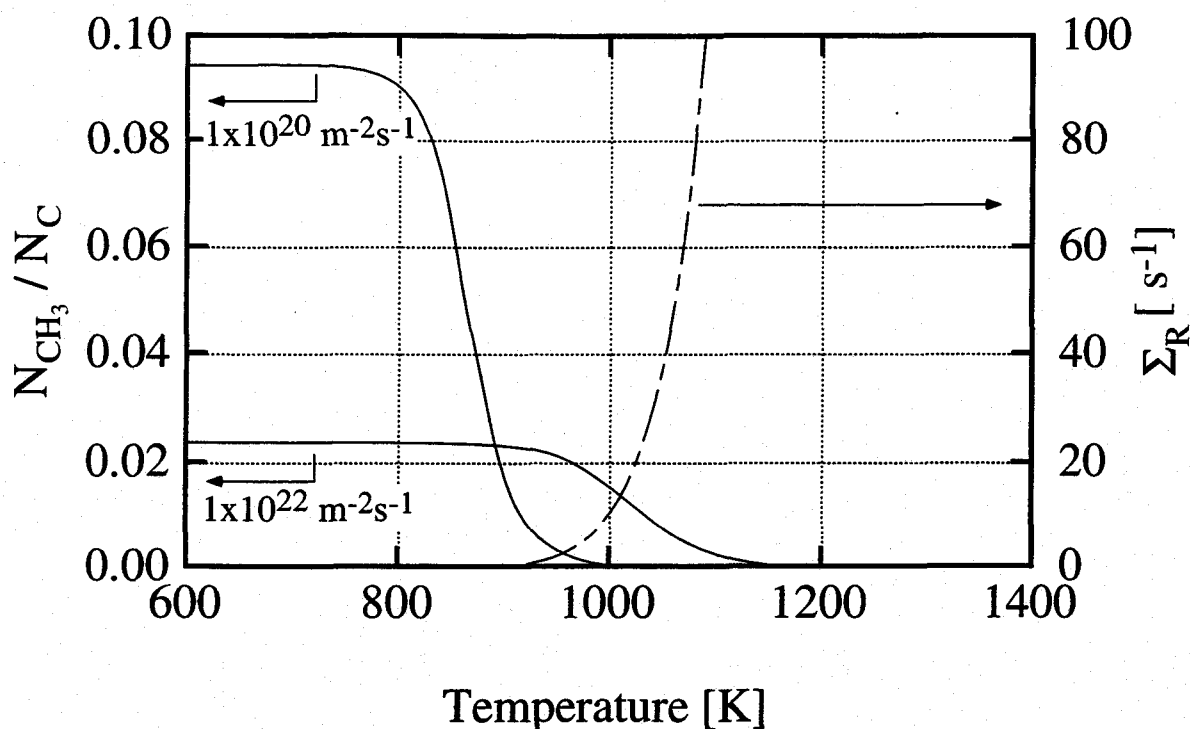


図3-12 温度に対する N_{CH_3} と Σ_R の変化. 低温側では低粒子束の方が N_{CH_3} の密度が高いが900K以上では高粒子束の方が高くなっている.

表3-1 使用した反応係数

パラメータ			参考文献
捕獲係数	$\Sigma_T [s^{-1}]$	$4.6 \times 10^3 \exp(-0.25/kT)$	[21]
脱捕獲係数	$\Sigma_d [s^{-1}]$	$1 \times 10^{13} \exp(-2.7/kT)$	[22]
メタン生成係数	$\Sigma_R [s^{-1}]$	$1 \times 10^{13} \exp(-2.4/kT)$	[4]
活性状態の水素同士の再結合係数	$K [s^{-1}]$	$4.6 \times 10^2 \exp(-0.25/kT)$	[22]
活性状態の水素と捕獲水素との再結合係数	$K_1 [s^{-1}]$	$2 \times 10^5 \exp(-0.5/kT)$	
脱捕獲断面積	$\sigma [cm^2]$	2.8×10^{-17}	[22]
炭素密度	$N_c [cm^{-3}]$	9.3×10^{22}	

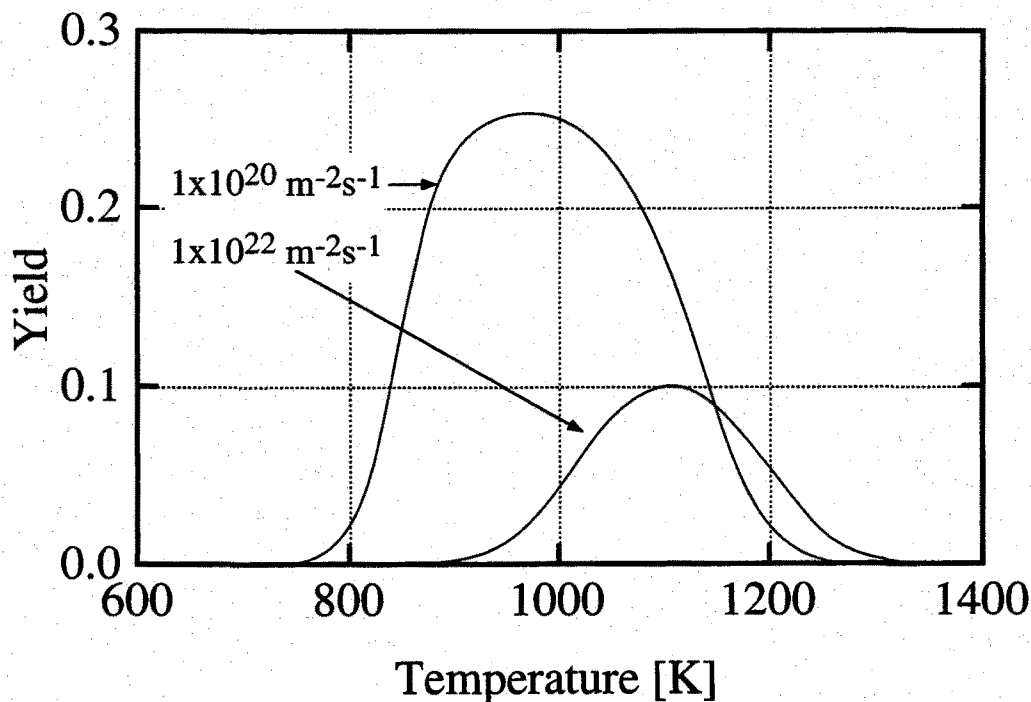


図3-13 全損耗率の温度依存性. 低粒子束での損耗率は, 高粒子束領域に比べて大きく, 損耗率が最大となる温度も高温側へ移動している.

る脱捕獲がない場合のときよりは低い量で一定となる. 温度が上昇してくると Σ_d の値がしだいに大きくなる. つまり, 熱的な脱捕獲が起こるようになり, バルク中に捕獲された水素は減少していくという変化を示す.

粒子束が異なっても N_{CH_3} の温度分布は似ているが, N_{CH_3} の密度は高温, 高粒子束側で高くなっている. 粒子束が高くなると活性状態にある水素の生成数が増える. 当然, 粒子衝撃による脱捕獲も多くなり低温側では N_{CH_3} は低い密度で飽和する. しかしその一方, 温度が多少高くなっても低粒子束側より N_{H} は多く存在するので, 熱的に脱捕獲する水素よりも捕獲サイトに水素が多く捕獲される. その結果, N_{CH_3} の密度は高温では低粒子束側より高くなる. CH_3 ラジカルの放出が $\Sigma_{\text{R}}N_{\text{CH}_3}$ に比例するならば, $1 \times 10^{20} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ と $1 \times 10^{22} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の粒子束における化学スパッタリングの温度依存性は図3-13のようになり, ピーク温度は150Kほど高温側へシフトする. また, 損耗率の最大値は約60%減少しており, 計算結果と実験結果は同じような傾向で損耗率に変化している. 高粒子束側で損耗率が減少するのは, CH_3 ラジカルの放出量が増加してもそれ以上に入射粒子が増加したためである.

これまで化学スパッタリングの反応過程を考え、高粒子束領域で損耗率が減少しピーク温度が高温側へシフトすることを定性的に示した。しかし、図3-13で示すように計算で求めた化学スパッタリングは、実験値よりも高温側にあり損耗率も大きいといった定量的な評価は十分ではない。その理由の1つとして引用した反応係数が必ずしも最適でなかったためと考えられる。それゆえ、定量評価を行っていくためには最適な反応係数を求める必要があるが、現状の結果からは困難である。

3.5 まとめ

高粒子束領域での化学スパッタリングを調べるため、 $2 \times 10^{21} \sim 1 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の粒子束で5keVのD₃ビームを等方性黒鉛PD-330Sに照射し、重量損失量から損耗率を求めた。温度に対する全損耗率は、 $2 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ と $5 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の粒子束では820Kで全損耗率が大きくなり、 $1 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ では920~1020Kにかけて最大となることがわかった。そして、この温度領域での損耗率の変化は重水素による化学スパッタリングが生じたためと考えられることを示した。また、低粒子束のデータと $1 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の粒子束での全損耗率を比較すると、高粒子束になると重水素による化学スパッタリングが減少しピーク温度が高温側にシフトすることが明らかになった。

化学スパッタリングが減少する要因を検討するため、化学スパッタリングの反応過程を考え、温度に対するバルク中の捕獲水素の密度を計算して求めた。高粒子束側では活性状態の水素が低粒子束側より多く存在するため、多少温度が高くなっても活性状態の水素が捕獲されやすい状態にある。その結果、高温側で低粒子束よりも捕獲水素の密度が高くなるため、ピーク温度が高温側へシフトし放出量も多くなる。しかし、入射粒子がそれ以上に増加しているので損耗率としては減少すると考えられることを示した。

参考文献

- [1] J. W. Davys and A. A. Haasz, "Impurity release from low-Z materials under light particle bombardment", *J. Nucl. Mater.* **241-243** (1997) 37-51
- [2] S. K. Erents, C. M. Braganza and G. M. McCracken, "Methane formation during the interaction of energetic protons and deuterons with carbon", *J. Nucl. Mater.* **63** (1976) 399-404
- [3] A. A. Haasz and J. W. Davis, "Synergistic methane formation kinetics for hydrogen impact on carbon", *J. Chem. Phys.* **85** (1986) 3293-3299

- [4] M. Wittmann and J. Küppers, "A model of hydrogen impact induced chemical erosion of carbon based on elementary reaction steps", *J. Nucl. Mater.* **227** (1996) 186-194
- [5] A. A. Haasz, P. Franzen, J. W. Davis, S. Chiu and C. S. Pitcher, "Two-region model for hydrogen trapping in and release from graphite", *J. Appl. Phys.* **77** (1995) 66-86
- [6] K. Morita, K. Ohtsuka and Y. Hasebe, "Dynamic measurements of depth profiles of hydrogen implanted into graphite at elevated temperatures", *J. Nucl. Mater.* **162-164** (1989) 990-996
- [7] K. Ashida, K. Ichimura, M. Matsuyama, H. Miyake and K. Watanabe, "Trapped states of deuterium implanted into graphite and the thermal desorption", *J. Nucl. Mater.* **111&112** (1982) 769-774
- [8] B. Tsuchiya and K. Morita, "Retention of H and D in graphite by simultaneous H⁺ and D⁺ ion implantation", *J. Nucl. Mater.* **227** (1996) 195-202
- [9] W. Möller, "Hydrogen trapping and transport in carbon", *J. Nucl. Mater.* **162-164** (1989) 138-150
- [10] J. Winter, H. G. Esser, P. Wienhold, V. Philipps, E. Vietzke, K. H. Besocke, W. Möller and B. Emmoth, "Properties of carbonization layers relevant to plasma-surface interactions", *Nucl. Instr. and Meth.* **B23** (1987) 538-543
- [11] M. Yamawaki, K. Yamaguchi, M. Satoh and S. Tanaka, "Chemical interaction of hydrogen with graphite in regard of hydrogen recycling and chemical erosion of fusion reactor first wall material", *J. Nucl. Mater.* **191-194** (1992) 326-329
- [12] K. Morita and Y. Muto, "Calculations of thermal desorption spectra of hydrogen molecule and hydrocarbon molecule from graphite using the mass balance equations", *J. Nucl. Mater.* **220-222** (1995) 1038-1042
- [13] E. Gauthier, W. Eckstein, J. László and J. Roth, "Physical sputtering of low-Z materials", *J. Nucl. Mater.* **176&177** (1990) 438-444
- [14] E. Vietzke, T. Tanabe, V. Philipps, M. Erdweg and K. Flaskamp, "The reaction of energetic O₂⁺, thermal O₂, and thermal O₂/Ar⁺ on graphite and the use of graphite for oxygen collector probes", *J. Nucl. Mater.* **145-147** (1987) 425-428
- [15] S. Chiu and A. A. Haasz, "Subsurface methane formation in graphite due to exposure to H⁺ and D⁺", *J. Nucl. Mater.* **208** (1994) 282-292
- [16] J. Roth, E. Vietzke and A. A. Haasz, "Erosion of graphite due to particle impact", in *Atomic and Plasma-Material Interaction Data for Fusion, Suppl. J. Nucl. Mater.* **Vol.1**
- [17] A. A. Haasz and J. W. Davis, "Fluence dependence of deuterium trapping in graphite", *J. Nucl. Mater.* **209** (1994) 155-160
- [18] J. W. Davis, A. A. Haasz and P. C. Stangeby, "Flux and energy dependence of methane

- production from graphite due to H^+ impact", J. Nucl. Mater. **145-147** (1987) 417-420
- [19] C. García-Rosales, "Erosion processes in plasma-wall interactions", J. Nucl. Mater. **211** (1994) 202-214
- [20] E. Vietzke, K. Flaskamp and V. Philipps, "Differences in the CH_3 and CH_4 formation from graphite under bombardment with hydrogen ions and hydrogen atoms / argon ions", J. Nucl. Mater. **128&129** (1984) 545-550
- [21] K. Morita and Y. Hasebe, "A new model for release of hydrogen isotopes from graphite", J. Nucl. Mater. **176&177** (1990) 213-217
- [22] W. Möller and B. M. U. Scherzer, "Modeling of hydrogen implantation into graphite", J. Appl. Phys. **64** (1988) 4860-4866

第4章 炭素材における照射促進昇華

4.1 照射促進昇華のメカニズム

照射促進昇華は炭素材で観察されており、一般的に次に示すような過程によって生じると考えられている[1]。まず、入射粒子が試料に打ち込まれると、格子間原子と空孔の対が生成される。生成した格子間原子は、温度が高くなると試料の中を拡散し空孔やシンクとの再結合によって消滅する。また、表面に達したものは通常の格子原子に比べて結合エネルギーが低いことから容易に昇華する。したがって、熱昇華よりも低い温度で基板原子が昇華していくことになる。照射促進昇華の様子を図4-1に示す。この現象は、炭素材をプラズマ対向材として使用したときに観測されている。

この章では、主に5keVのArビームを $1 \times 10^{21} \text{ Ar m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の粒子束まで照射して、高粒子束領域における炭素材の照射促進昇華について明らかにしている。照射促進昇華は、ビーム照射による格子間原子の生成と拡散に支配されており、ビーム種に関係

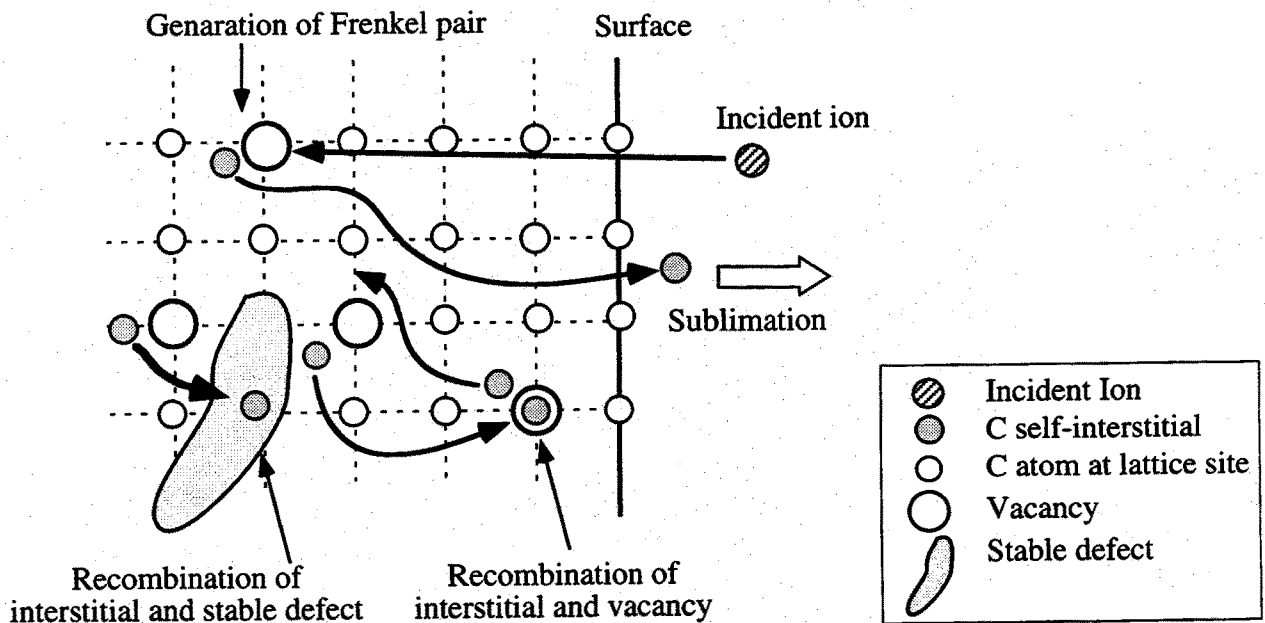


図4-1 照射促進昇華の模式図。

なく起きる。そのため、実際には炭素材は水素同位体の粒子によってたたかれているが、照射促進昇華を調べるならば、DビームよりもArビームを使う方が不純物に影響されにくく有利である。なぜなら、Arは炭素や酸素の不純物よりも質量数が大きいため、粒子のエネルギーが同じとすると1個のArが生成するフレンケル対の数は不純物粒子よりも多いからである。

4.2 照射促進昇華による炭素材の損耗

照射促進昇華の特徴は、温度に対して指数関数的に損耗率が増加することである。そこでまず、高粒子束領域での損耗率の温度依存性について示し、そして粒子束とビーム入射角度に対する依存性について順次説明していく。

4.2.1 温度依存性

図4-2は、粒子束が $5.0 \times 10^{20} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ と $1.2 \times 10^{21} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ である5keVのArビームを、等方性黒鉛ISO-630に照射したときの、温度に対する全損耗率の依存性を示している。全損耗率は、温度が高くなるにつれて急激に大きくなっている。2.2.2節で述べたように、試料温度が1500 K以上では温度制御を行って、ビーム照射中でも試料温度を一定に保っている。また、室温からの照射では、試料温度は1070 Kまでしか上昇しないように1ショットあたりの照射時間を短くしており、この温度範囲で得られた損耗率は、照射促進昇華による影響をほとんど無視できる。さらに、Arビームでは化学スパッタリングも生じないので、物理スパッタリングのみによる損耗であると言える。図4-2には、5keVのArビームを熱分解性黒鉛P.G.に照射したデータも示している[2]。ビームの粒子束は $4 \times 10^{18} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ であり、高粒子束ビームの粒子束より2桁低い値である。P.G.とISO-630の温度依存性は非常によく似ているが、損耗率には差違がある。このことは、炭素材の密度が違うなどの材料特性の違いの他に、照射している粒子束が異なっていることも大きな一因となっている。粒子束の違いによる効果は、1980 Kに加熱したISO-630に $5.0 \times 10^{20} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ と $1.2 \times 10^{21} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の粒子束で照射したときの損耗率の値から確認できる。

次に高粒子束領域での照射促進昇華の活性化エネルギーを求める。全損耗率 Y_{total} は、物理スパッタリング Y_{phys} と Y_{RES} による損耗率の和で与えることができると仮定し、 Y_{RES} のみが温度に依存するならば、

$$Y_{total} = Y_{phys} + Y_{RES} = Y_{phy} + Y_0 \exp\left(\frac{-U_a}{kT}\right) \quad (4.1)$$

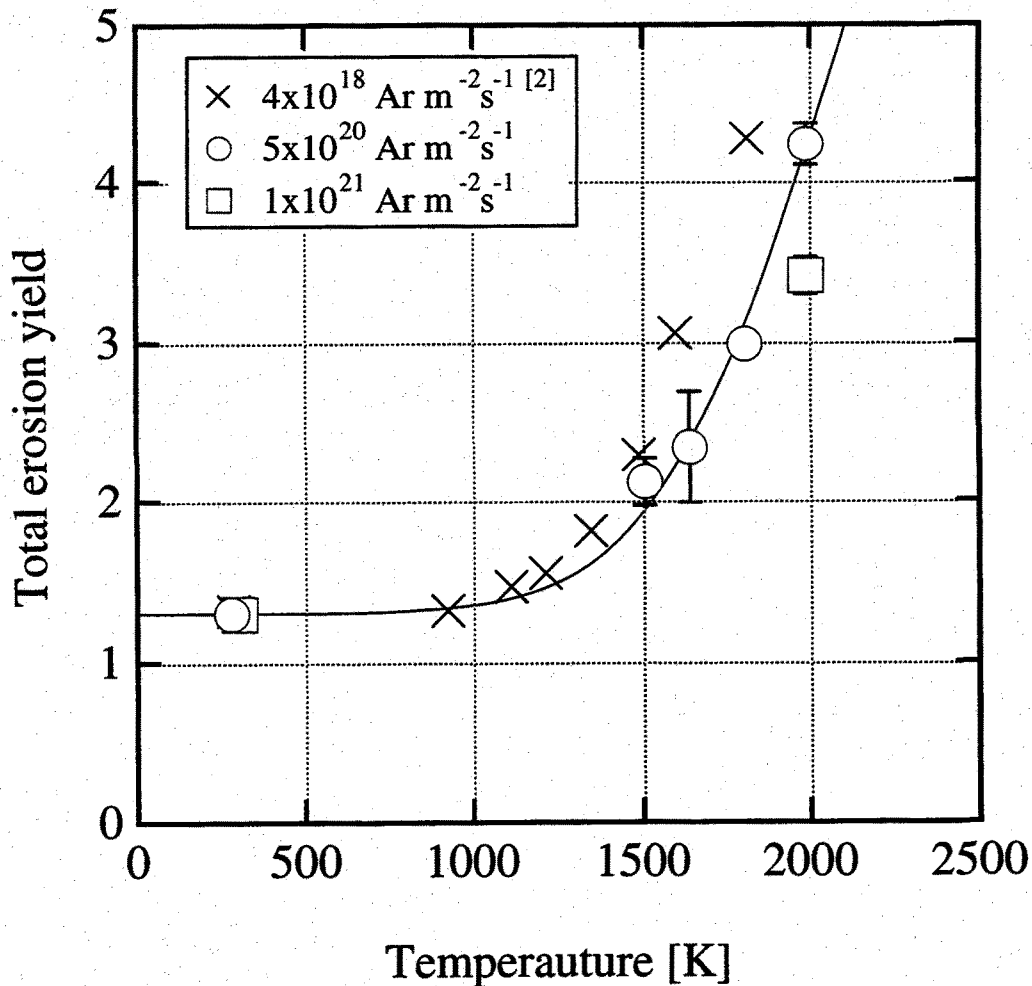


図4-2 等方性黒鉛ISO-630に5keVのArビームを照射したときの全損耗率の温度依存性。(O,□)は高粒子束領域 ($\phi > 10^{20} \text{ Ar m}^{-2} \text{ s}^{-1}$) の結果であり,(X)は低粒子束領域 ($\phi < 10^{19} \text{ Ar m}^{-2} \text{ s}^{-1}$) のデータである。

で与えられる。ここで、 U_a は活性化エネルギーである。粒子束が $5.0 \times 10^{20} \text{ Ar m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の場合に得られた損耗率をこの式にあてはめると、 $U_a = 0.77 \text{ eV}$ となる活性化エネルギーが得られる。 $4 \times 10^{18} \text{ Ar m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の粒子束で得られたデータでは $U_a = 0.86 \text{ eV}$ であり、活性化エネルギーは非常に似かよった値となっている。Rothらは、照射条件を変えたときの照射促進昇華の活性化エネルギーを調べており[1]、その値はビームの種類とエネルギーによって多少異なり0.5eVから1.1eVの範囲であることを示している。図4-2で示した損耗率の活性化エネルギーは、この範囲に含まれている。このように、従来のビーム照射($\sim 10^{19} \text{ Ar m}^{-2} \text{ s}^{-1}$)に比べて、2桁高い粒子束($\sim 1 \times 10^{21} \text{ Ar m}^{-2} \text{ s}^{-1}$)でも、

照射促進昇華の活性化エネルギーには大きな変化がなく、照射促進昇華の基本的な反応過程は高粒子束領域でも同じであると言える。

4.2.2 粒子束依存性

図4-3は、試料温度が1980Kの炭素材に5keVのArビームを照射したときの全損耗率の粒子束依存性について示している。ここで使用した炭素材は、熱分解性黒鉛P.G.と等方性黒鉛ISO-630,IG-430の3種類である。全損耗率は、粒子束が高くなるにつれて急激に減少している。例えばISO-630の場合、 $3.5 \times 10^{19} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の粒子束で全損耗率は5.9であるのに対して、 $1 \times 10^{21} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の粒子束では約3であり、粒子束 ϕ に対して $\phi^{-0.19}$ の依存性を示している。P.G.やIG-430の損耗率も同じような粒子束依存性である。しかし、損耗率の値は、炭素材の種類によって異なっている。P.G.の場合、低粒子束側ではISO-630よりも大きな損耗率であるように見える。その傾向は、特に $5 \times 10^{19} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ではっきりしている。同じ等方性黒鉛のIG-430もISO-630より少し損耗率が高めになっている。

高粒子束領域における物理スパッタリングについても図4-3に示す。P.G.とIG-430の損耗率は、 $9 \times 10^{21} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の粒子束ではほぼ等しい。また、ISO-630について $2.5 \times 10^{20} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ から $1.2 \times 10^{21} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の粒子束の範囲で調べており、粒子束が高くなると若干損耗率は減少している。 $3 \times 10^{16} \sim 3 \times 10^{19} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の粒子束領域においてR.T.でArビームを照射したとき、 $\phi^{-0.05}$ の粒子束依存性が得られるという報告もあるが[3]、物理スパッタリングは衝突カスケードによって基板原子がはじき出される現象であり、粒子束には無関係であるように思われる。現在のところ、粒子束に対する物理スパッタリングを明確に説明できないので、物理スパッタリングが粒子束に対して依存する場合と依存しない場合について、照射促進昇華に与える影響を検討した。図4-4は、これら2つの場合についてのISO-630の照射促進昇華による損耗率を示している。照射促進昇華の損耗率は(4.1)式を使って、全損耗率から物理スパッタリングによる損耗率を差し引いて求めている。照射促進昇華の粒子束依存性は、 ϕ_{phys} が一定のときは $\phi_{\text{RES}}^{-0.29}$ であり、 $\phi_{\text{phys}}^{-0.11}$ では $\phi^{-0.23}$ である。照射促進昇華の粒子束依存性は $\phi^{-0.2} \sim -0.3$ になると言われており[4]、図4-4で示した結果は、この範囲に含まれている。確かに物理スパッタリングが粒子束に依存するかどうかは、照射促進昇華の粒子束依存性にも影響しているが、低粒子束領域での粒子束に対する弱い依存性 $\phi^{-0.07}$ に比べると[3,5,6]、どちらの場合も高粒子束領域では粒子束に強く依存しているということには違いがない。それゆえ、今後は物理スパッタリングが

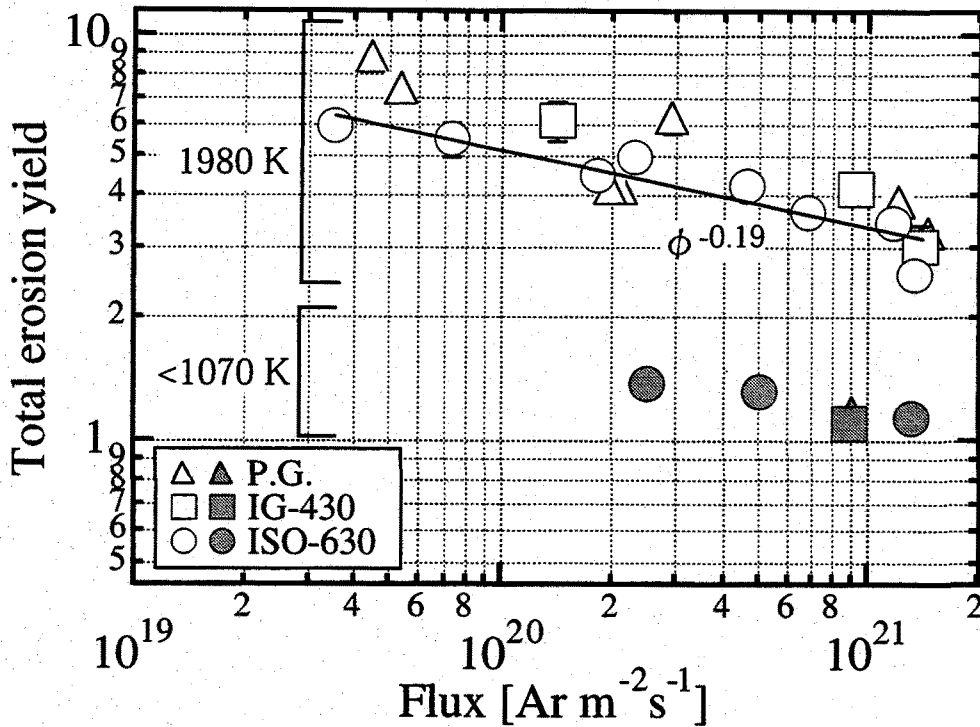


図4-3 等方性黒鉛ISO-630,IG-430,熱分解性黒鉛P.G.に5keVのArビームを照射したときの全損耗率の粒子束依存性. ビーム照射したときの試料温度は, (○,□,△)が1980Kであり, (●,■,▲)は1070K以下である.

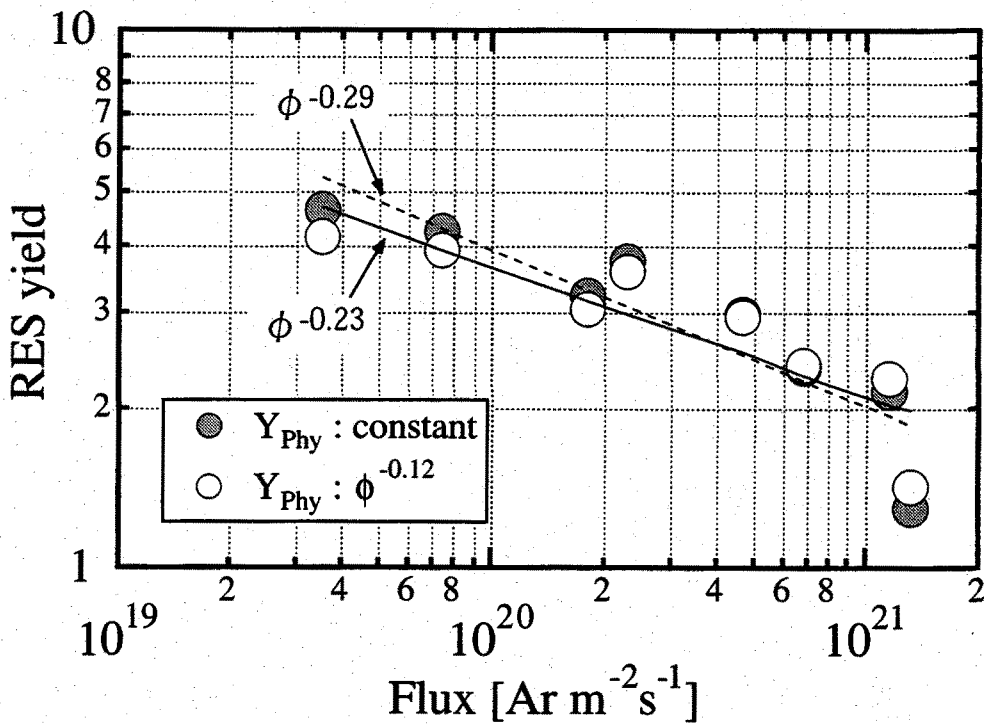


図4-4 物理スパッタリングが粒子束に依存する場合と依存しない場合の照射促進昇華の粒子束依存性. 粒子束に対して, $\phi^{-0.23} \sim -0.29$ の依存性を示す.

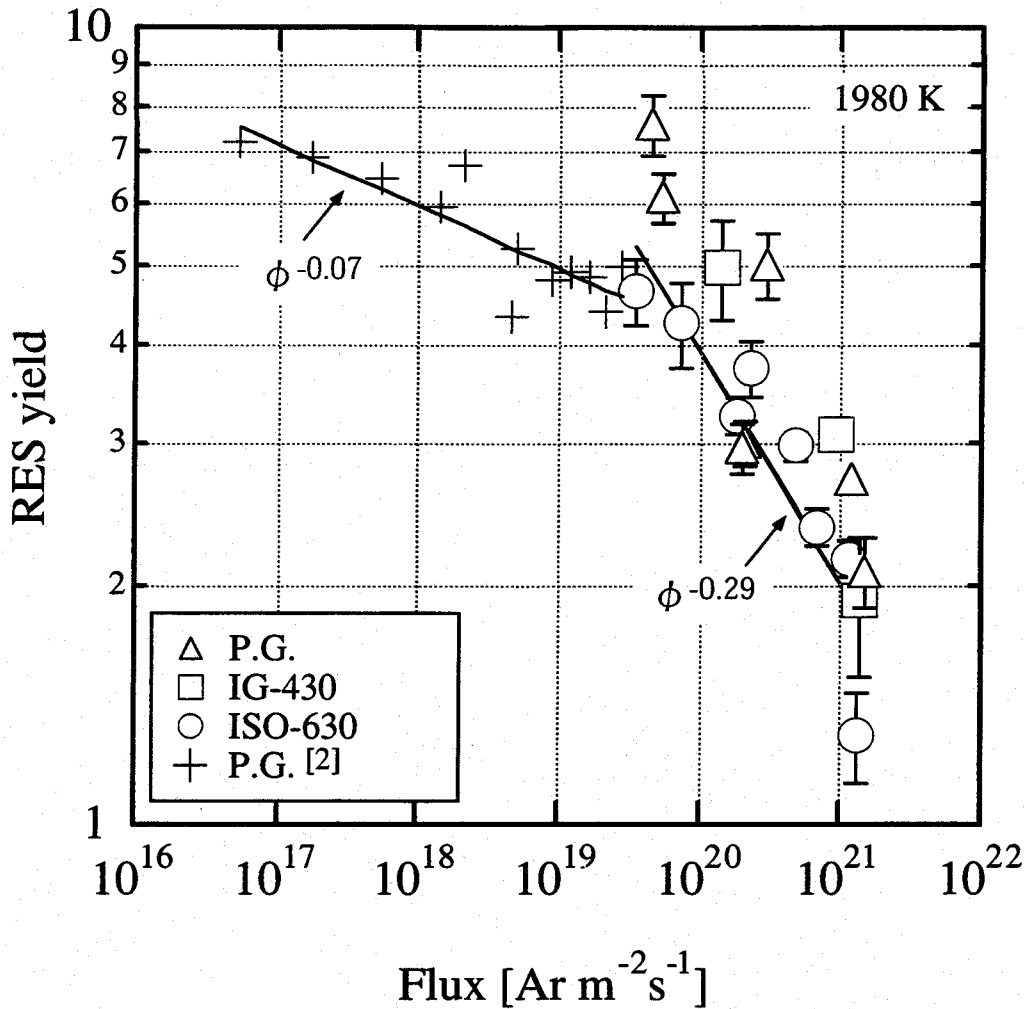


図4-5 等方性黒鉛ISO-630,IG-430,熱分解性黒鉛P.G.の照射促進昇華による損耗率の粒子束依存性. 試料温度が1980Kである炭素材に, 5keVのArビームを照射した. 低粒子束領域では照射促進昇華の粒子束依存性は $\phi^{-0.07}$ であるが, 高粒子束領域になると $\phi^{-0.29}$ となっている.

粒子束に対して一定であるという条件で議論を進めていくことにする.

図4-5は, ISO-630,IG-430,P.G.の照射促進昇華による損耗率の粒子束依存性について示している. 粒子束が $3 \times 10^{19} \text{Ar m}^{-2} \text{s}^{-1}$ 以下のデータは文献から引用している[2]. 文献のデータは試料温度が1820Kで規格化した値であったので, $3 \times 10^{19} \text{Ar m}^{-2} \text{s}^{-1}$ における損耗率がISO-630の値とほとんど等しいとして仮定して示している. ISO-630の粒子束依存性は $\phi^{-0.29}$ であり, IG-430やP.G.もそれに近い依存性を示している. それに

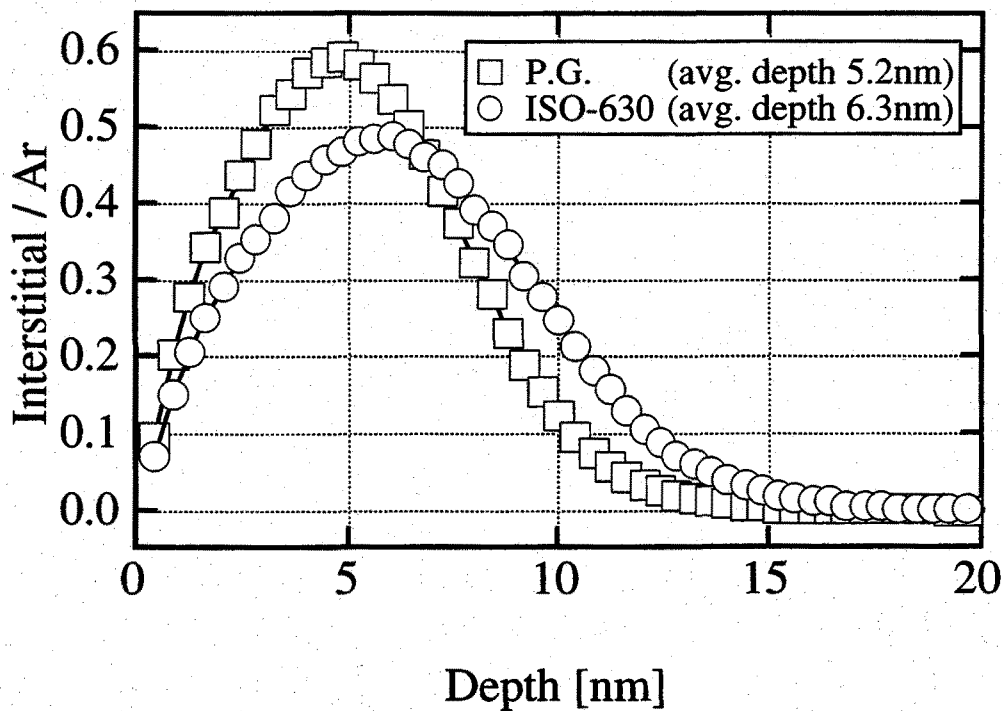


図4-6 ビーム照射によって生成する格子間原子の深さ分布. 5keVのArビームをP.G.とISO-630に打ち込むとしたときの格子間原子の分布をTRIM-92で計算した.

対して, 低粒子束でのデータは $\phi^{-0.07}$ である. このような粒子束依存性の違いは, 低粒子束領域と高粒子束領域では, 照射促進昇華を支配するメカニズムが異なることを示唆している.

次に材料の種類と照射促進昇華の関係について述べる. 図4-5で示したように, $5 \times 10^{19} \text{ Ar m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の粒子束におけるP.G.の損耗率は, ISO-630よりも50%高い値となっている. 同様の結果が, $10^{19} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ で重水素ビームを照射したときでも得られている[7]. このように同じ炭素材での損耗率の違いは, 材料の結晶密度と結晶構造に起因していると考えられる.

まず結晶密度は, フレンケル対が生成する深さ分布に影響する. 図4-6はTRIM-92で計算した結果であり, 5kVのArビームをP.G.とISO-630に打ち込むとしたときの格子間原子の深さ分布を示している. Ar粒子1個あたり生成する格子間原子の個数は等しいが, P.G.ではより表面に近いところに格子間原子が分布することから, 表面層での格子間原子の密度は熱分解性黒鉛の方が高くなる. このことが, 熱分解性黒鉛

から多くの格子間原子の放出につながったことの原因の1つとして考えられる。

次に結晶構造であるが、これは格子間原子の拡散に影響すると思われる。図4-7は、ビーム照射前後のISO-630とP.G.の表面形状を示している。ビーム照射前、ISO-630の表面はあちこちに多くの孔があり凸凹した形状をしている。一方、P.G.は炭素六角網面が層状に積み重なっており比較的平らな形状である。ビーム照射後、P.G.の表面にのみ絨毛のような局所的に炭素と思われる密集したひだが見られる。これらのSEM像から炭素材の種類が違っていると、ビーム照射したときの試料表面での炭素原子の動きに相違があることがわかる。また文献によれば、熱分解性黒鉛の基底面に垂直に照射したときの損耗率は、水平に照射したときよりも高い値が得られると報告されている[7,8]。同じ結晶構造をもつ熱分解性黒鉛でさえ、基底面に対する照射方向を変えることによって損耗率に差違がでてくることから、格子間原子の表面への拡散は炭素六角網面の並び方に依存していることになる。したがって、P.G.とISO-630の損耗率の違いは結晶構造の相違も影響していると考えられる。

ところが、粒子束が増加するにつれて損耗率は等しい値に近づいている。すなわち、低粒子束領域では材料の種類の違いが格子間原子の拡散に影響するのに対して、粒子束が高くなると高粒子束効果によってさほど影響しなくなることを示している。しかしながら、高粒子束が試料にどのような効果をもたらすかは、現時点でははっきりとはわかっていない。

4.2.3 ビーム入射角依存性

周辺プラズマは磁力線に沿って動きプラズマ対向壁にあたる。その入射角は $T_i = T_e$ を仮定した場合平均65度であると言われている[9]。そのため、ビーム入射角を変えたとき損耗率の変化を知っておくことは大切である。図4-8は、試料温度が1070K以下と1980KであるIG-430とP.G.の全損耗率の角度依存性について示している。今までと同様に、室温からの照射では物理スパッタリングのみが生じ、1980Kではそれに加えて照射促進昇華も生じている。

室温からの照射では、IG-430の全損耗率は入射角度が大きくなるにつれて増加し、75度の角度では垂直入射に比べて全損耗率は1.8倍高い値となっている。入射角度が0度と60度としたときの熱分解性黒鉛の損耗率は、IG-430の全損耗率と等しい。物理スパッタリングの入射角依存性は、次に示すYamamuraの式によって定式化されている[10]。

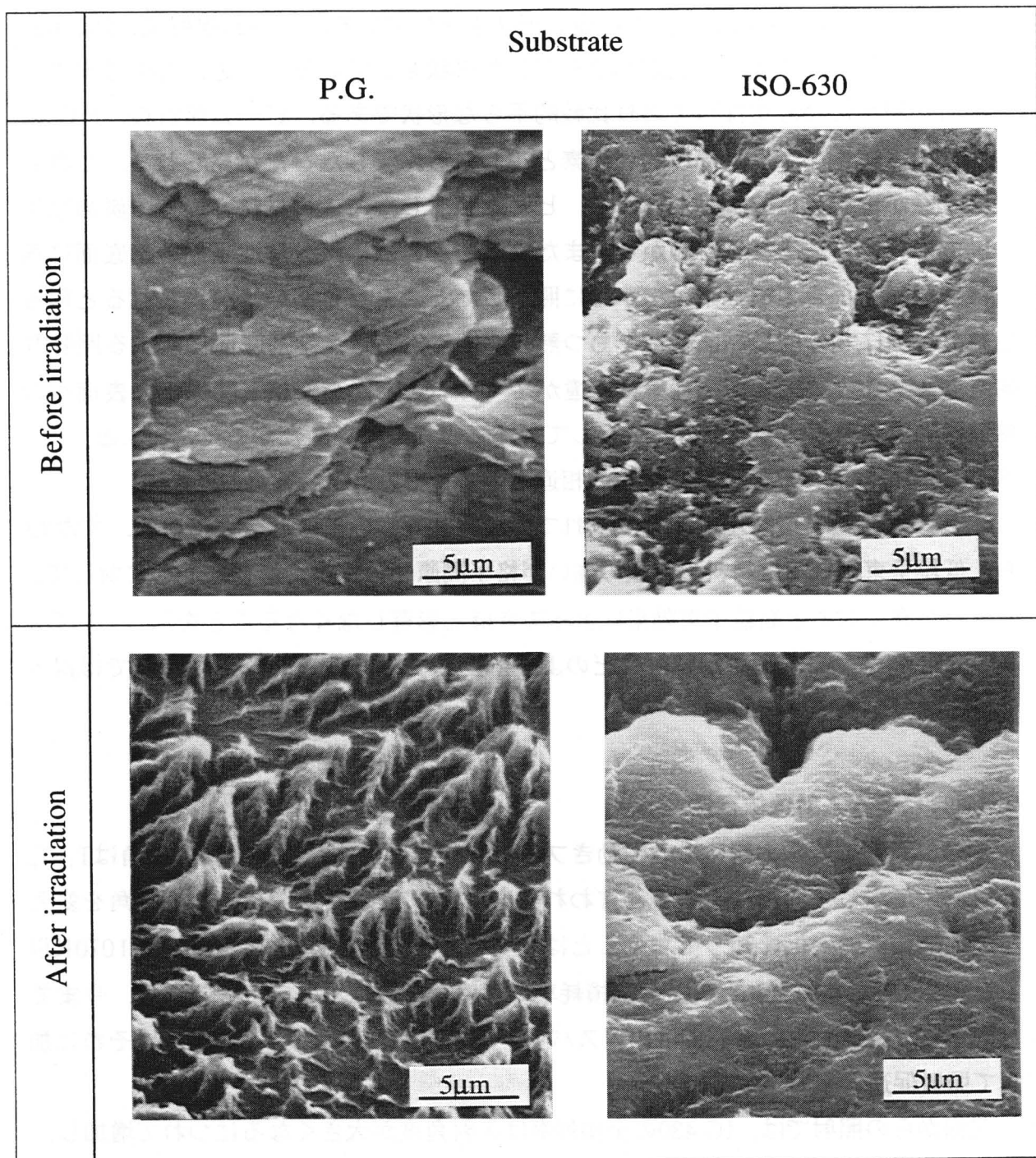


図4-7 ビーム照射前後の表面形状.

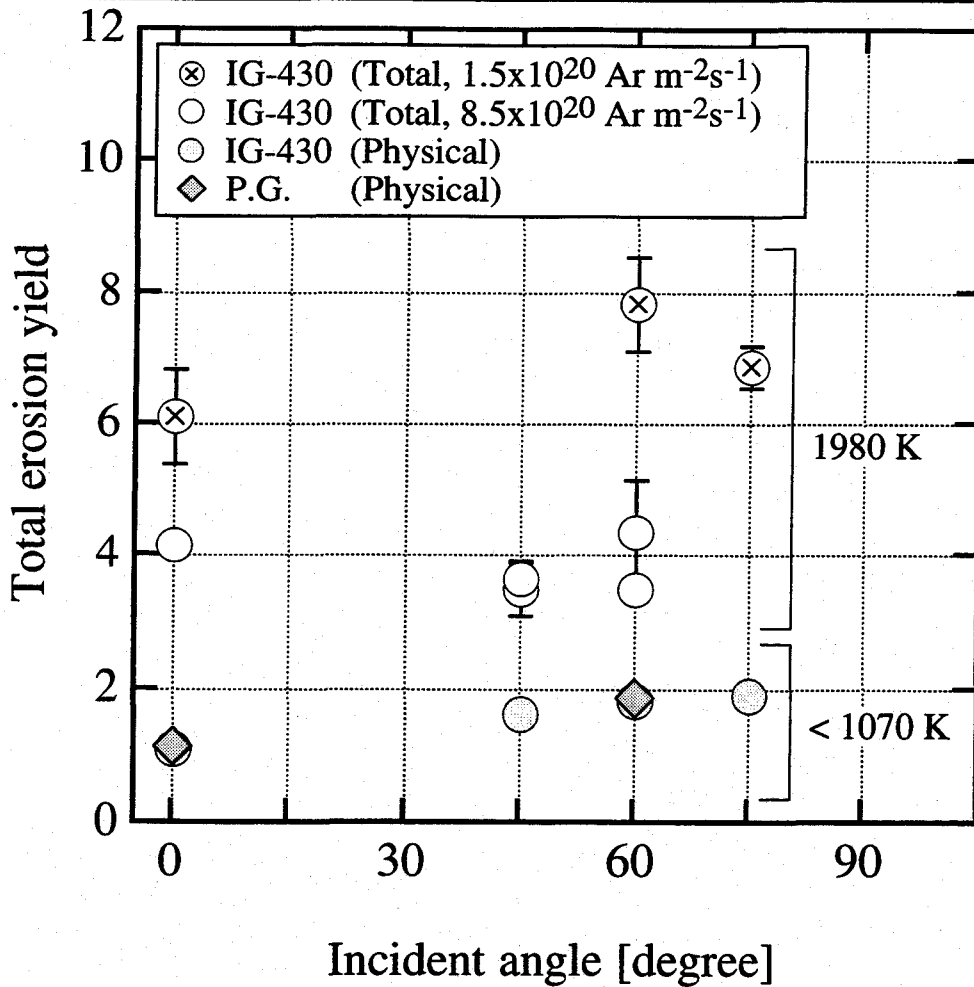


図4-8 5keVのArビームを照射したときのIG-430とP.G.の損耗率のビーム入射角度依存性. 試料温度は1070K以下と1980Kである. 試料温度が1980Kでは, 1.5x10²⁰ Ar m⁻²s⁻¹ と8.5x10²⁰ Ar m⁻²s⁻¹ の粒子束で照射を行っている.

$$\frac{Y(\theta)}{Y(0)} = (\cos\theta)^{-f} \exp(-\Sigma((\cos\theta)^{-f} - 1)) \quad (4.2)$$

ここで θ は入射角であり, Arビームを炭素に照射する場合, $f=2.63$, $\Sigma=0.707$ である. 図4-9で示すように, この式から得られる物理スパッタリングの角度依存性は, $\theta=0$ 度としたときの損耗率を1と規格化したとき, 75度で最大値4.6をとる. それに対して, 室温で照射したISO-630やP.G.の損耗率は, 入射角に対して弱い依存性を示

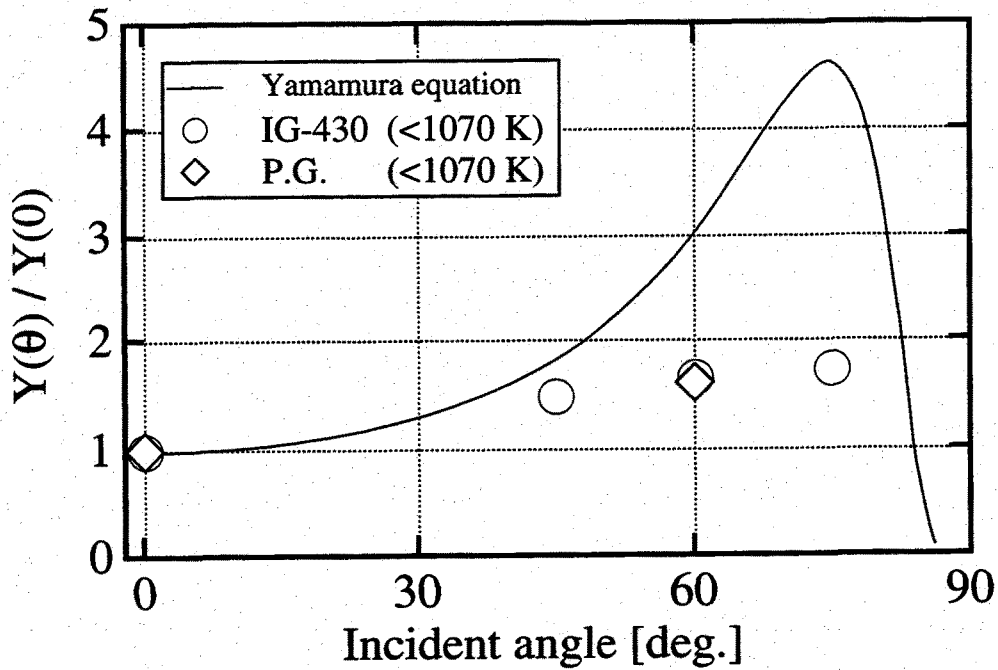


図4-9 物理スパッタリングの角度依存性. $\theta=0$ 度としたときの損耗率を1と規格化したときのIG-430とP.G.の損耗率とYamamuraの式から得られる損耗率を示している.

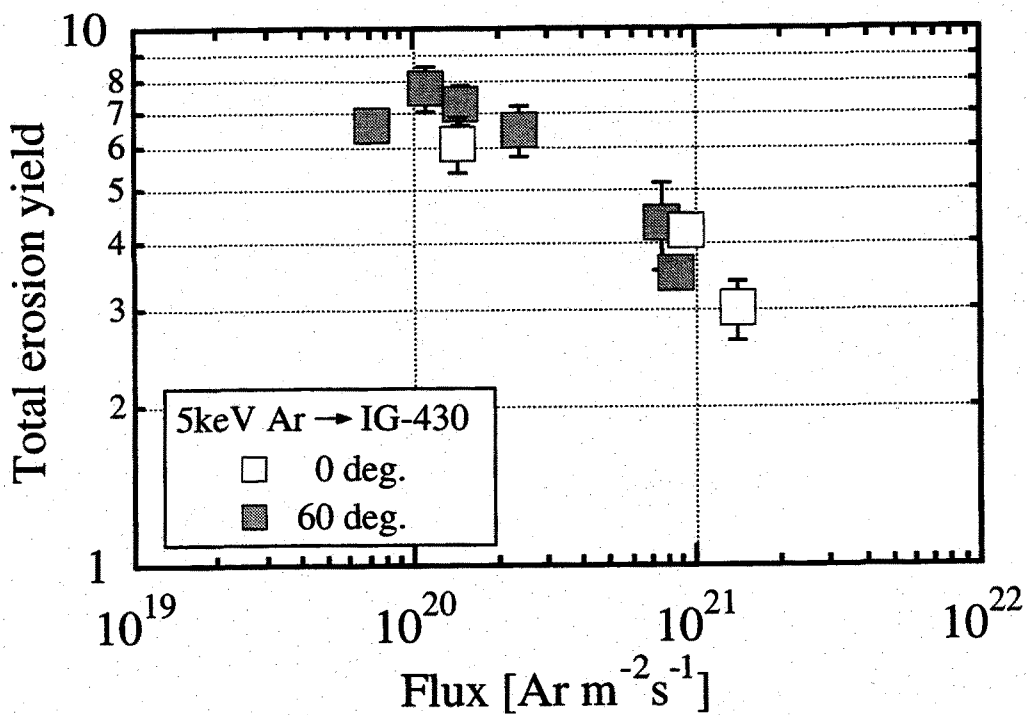


図4-10 等方性黒鉛IG-430に5keVのArビームを照射したときの全損耗率の粒子束依存性. ビームの入射角は0度と60度である.

している。この相違の1つの理由として、試料の表面形状が影響していると考えられる。文献によれば、炭素材の物理スパッタリングは入射角が大きくなるにつれて損耗率が増加していくが、その変化量は炭素材の種類などによって大きく異なるからである[11]。

一方、試料温度が1980Kの場合、図4-8で示しているように、 $8.5 \times 10^{20} \text{Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の粒子束におけるIG-430の全損耗率は、高粒子束効果によって $1.5 \times 10^{20} \text{Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の粒子束での損耗率よりも低い値となっている。しかし、角度に対する依存性は粒子束にほとんど関係なく、入射角度が大きくなると低粒子束側では全損耗率はわずかに増加し、そして高粒子束側ではほぼ一定である。高温で損耗率が粒子束にほとんど依存しないのは、Rothらの結果と似ている[12]。図4-10は、入射角が0度と60度で5keVのArビームをIG-430に照射したときの粒子束依存性である。60度入射でも0度入射と同様に損耗率は減少していくが、この図からも損耗率の角度依存性が小さいことがわかる。

4.3 照射促進昇華のモデル

これまで提案されてきた照射促進昇華のモデルは、格子間原子の消滅が空孔との再結合によって起こるとしており、その粒子束依存性は $\phi^{-0.25}$ であった[3,6]。しかし、低粒子束のビーム実験による結果では $\phi^{-0.07}$ であり[3,5,6]、モデルと一致していなかった。この不一致は、ビーム実験での粒子束が低いために生成する空孔の数が少なく、格子間原子がもともと存在していたシンクで消滅しているためと考えられる。そこで、これから示す照射促進昇華のモデルは、従来のモデルに格子間原子や空孔が安定なシンクと再結合して消滅する項を加えた形となっている。

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = D_i \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} + P(x) - K_{iv} C_i C_v - K_{si} S_i C_i \quad (4.3)$$

$$\frac{\partial C_v}{\partial t} = D_v \frac{\partial^2 C_v}{\partial x^2} + P(x) - K_{iv} C_i C_v - K_{sv} S_v C_v \quad (4.4)$$

ここで、添字の*i,v*はそれぞれ格子間原子と空孔を意味している。また、 C_i, C_v は炭素材の密度 C_c で規格化した格子間原子と空孔の密度、 $P(x)$ はビーム照射によって生成する格子間原子と空孔の分布を示しており、その分布は等しいと仮定している。 S_i, S_v は C_c で規格化した格子間原子と空孔に対する安定なシンクの実効的な密度を表して

いる。 D_i, D_v は拡散係数、 K_{iv} は格子間原子と空孔との再結合係数、そして K_{si}, K_{sv} はシンクとの再結合係数を表しており、以下に示す式で与えられる。

$$D_i = \alpha_i \nu_i a_i^2 \exp\left(-\frac{U_i}{kT}\right) \quad (4.5)$$

$$D_v = \alpha_v \nu_v a_v^2 \exp\left(-\frac{U_v}{kT}\right) \quad (4.6)$$

$$K_{iv} = 4\pi R_{iv} \rho (D_i + D_v) \quad (4.7)$$

$$K_{si} = 4\pi R_{si} \rho D_i \quad (4.8)$$

$$K_{sv} = 4\pi R_{sv} \rho D_v \quad (4.9)$$

ここで、 $\nu_{i,v}$ は格子間原子と空孔の振動数、 $a_{i,v}$ は平均的な一回の移動距離、 $\alpha_{i,v}$ は幾何学的係数、 U_i, U_v は格子間原子と空孔が拡散するために必要な活性化エネルギーを示している。また、 ρ は炭素の数密度、 R_{iv}, R_{si}, R_{sv} はそれぞれ格子間原子と空孔の再結合半径、シンクでの格子間原子と空孔の再結合半径を示している。定常状態において、

$$\frac{K_{si} S_i}{D_i} = \frac{K_{sv} S_v}{D_v} \quad (4.10)$$

$$D_i \frac{dC_i}{dx} = D_v \frac{dC_v}{dx} \quad (4.11)$$

そして、表面では $C_i = C_v = 0$ とすると

$$D_i \frac{d^2 C_i}{dx^2} + P(x) - K_{si} S_i C_i - \frac{K_{iv} D_i}{D_v} C_i^2 = 0 \quad (4.12)$$

が得られる。 $P(x)$ が深さ方向に対して一定、すなわち $P(x) = P_0$ とし、 C_{i0} が(4.12)式で $d^2 C_i / dx^2 = 0$ としたときの解とすると

$$\frac{K_{iv} D_i}{D_v} C_{i0}^2 + K_{si} S_i C_{i0} - P_0 = 0 \quad (4.13)$$

となる。したがって C_{i0} は

$$C_{i0} = \sqrt{\frac{P_0 D_v}{K_{iv} D_i} \left(\sqrt{1 + \frac{S_i^2 K_{si}^2 D_v}{4P_0 K_{iv} D_i}} - \sqrt{\frac{S_i^2 K_{si}^2 D_v}{4P_0 K_{iv} D_i}} \right)} \quad (4.14)$$

で与えられる。また(4.13)式を使って(4.12)式は

$$\frac{d^2 C_i}{dx^2} = \frac{K_{iv}}{D_v} \left\{ \left(C_i + \frac{S_i K_{si} D_v}{2K_{iv} D_i C_{i0}} \right)^2 - \left(C_{i0} + \frac{S_i K_{si} D_v}{2K_{iv} D_i C_{i0}} \right)^2 \right\} \quad (4.15)$$

となる。境界条件として、 $x=0$ で $C_i=0, dC_i/dx>0$ とすると(4.15)式の解は

$$C_i = C_{i0} \left\{ 1 - \frac{12A \left(\frac{S_i K_{si} D_v}{2K_{iv} D_i C_{i0}} + 1 \right)}{(A \exp(X) + \exp(-X))^2} \right\} \quad (4.16)$$

となる。ここで、

$$A = \left(\sqrt{\frac{3S_i K_{si} D_v}{2K_{iv} D_i C_{i0}} + 3} + \sqrt{\frac{3S_i K_{si} D_v}{2K_{iv} D_i C_{i0}} + 2} \right)^2 \quad (4.17)$$

$$X = x \sqrt{\frac{K_{iv} C_{i0}}{2D_v} \left(\frac{S_i K_{si} D_v}{2K_{iv} D_i C_{i0}} + 1 \right)} \quad (4.18)$$

である。さて、照射促進昇華は、表面に拡散してきた全ての格子間原子が放出することで生じると仮定する。このときの照射促進昇華の損耗率 Y_{RES} は

$$Y_{RES} = \frac{D_i \frac{dC_i}{dx} \Big|_{x=0}}{\phi} = \frac{24A(A-1)D_i C_{i0}}{(A+1)^3 \phi} \sqrt{\frac{K_{iv} C_{i0}}{2D_v} \left(\frac{S_i K_{si} D_v}{2K_{iv} D_i C_{i0}} + 1 \right)^3} \quad (4.19)$$

で与えることができる。ここで、 ϕ はビームの入射粒子束を表している。もし、安定なシンクが無視できるならば、(4.14)式、(4.17)式は

$$A = (\sqrt{3} + \sqrt{2})^2, C_{i0} = \sqrt{\frac{D_v}{K_{iv} D_i}} \sqrt{P_0} \quad (4.20)$$

となる。\$P_0\$は1個の粒子が生成するフレンケル対の数を\$G\$、平均飛程距離を\$x_0\$とすると、

$$P_0 = \frac{G}{x_0 n_c} \phi \quad (4.21)$$

で与えられるので、(4.19)式は、

$$Y_{RES} = \frac{2}{\sqrt{3}} D_i \sqrt{\frac{K_{iv}}{D_v}} (C_{i0})^{0.75} / \phi = \frac{2}{\sqrt{3}} \left(\frac{D_i D_v G^3}{K_{iv} x_0^3 n_c^3} \right)^{0.25} \phi^{-0.25} \quad (4.22)$$

となり損耗率は粒子束に対して\$\phi^{-0.25}\$で依存することになる。

4.4 実験結果とモデルとの対応

この節では、4.2節で示した実験結果とモデルとの比較を行う。図4-11は、\$5.0 \times 10^{20} \text{Ar m}^{-2} \text{s}^{-1}\$の粒子束における照射促進昇華の損耗率とモデルを使って計算した損耗率の温度依存性を示している。計算で使った条件は、表4-1にまとめて示す。\$U_v\$は、空孔が拡散するために必要な活性化エネルギーであり、文献によれば2.7~3.5eVの範囲にある[1,7]。この\$U_v\$を3.2eVとしたとき、モデルから計算される照射促進昇華の活性化エネルギー\$U_a = U_{cal}\$は、図4-2で示した\$U_a = 0.77\text{eV}\$と等しくなる。また、\$U_{cal}\$は、粒子束が変化しても一定である。\$U_{cal}\$が一定なのは、(4.25)式で示されているように、粒子束に関する変数が\$\phi\$のみであり、さらに\$\phi\$は温度には無関係であるからである。この点においてモデルは、照射促進昇華の活性化エネルギーが高粒子束領域でも変化しないことと対応している。

しかし、実験値と計算値を比較すると損耗率には明らかな違いが存在する。この違いは、モデルの解がいくつかの仮定のうえに成り立っていることで生じたと考えられる。照射促進昇華の反応過程を考える上で重要なことの一つに、バルク中でのフレンケル対の分布があるが、仮定では、生成されるフレンケル対の深さ分布は一定としている。それに対して、TRIM-92を使った計算によるフレンケル対の分布は、図4-6で示したように、ビーム粒子飛程距離近傍で最大値をとっている。このようにTRIM-92の計算値と仮定でのフレンケル対の深さ分布の違いが、損耗率の差として現れた理由の一つとして考えられる。

照射促進昇華の損耗を考える上で大切なのは、ビーム照射によってフレンケル対

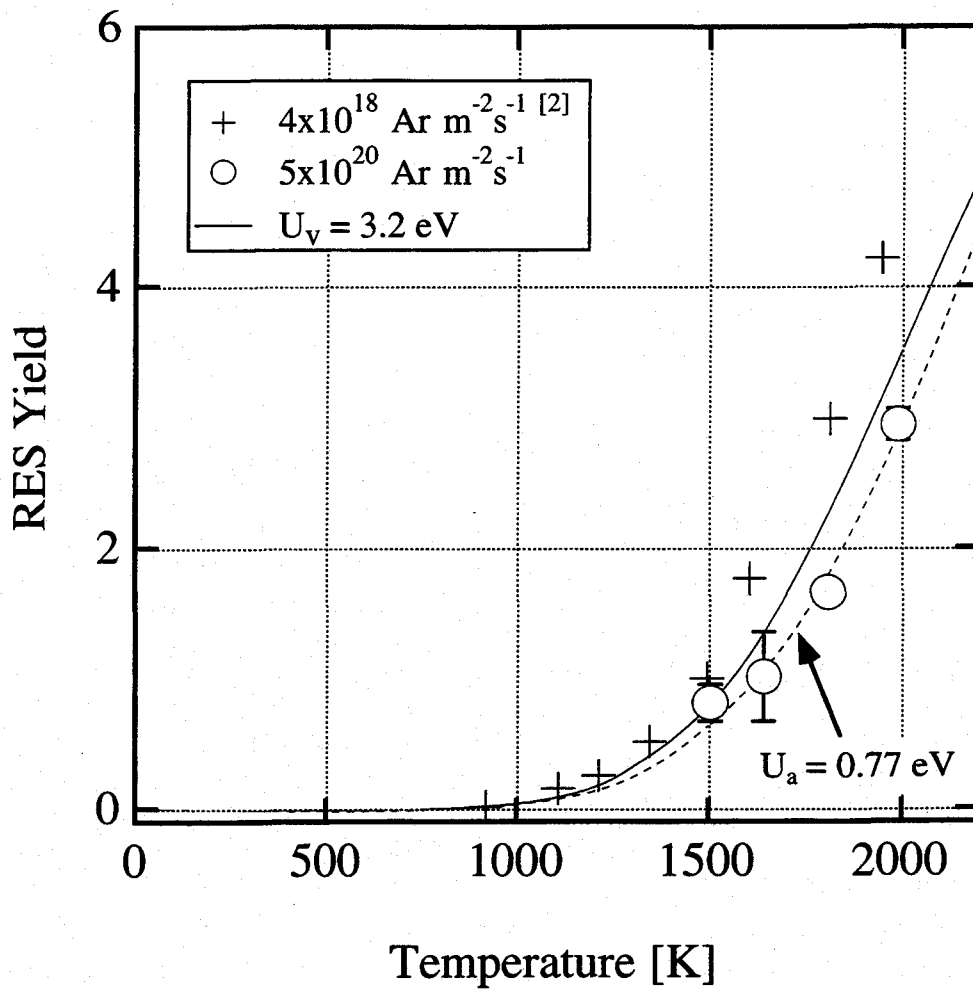


図4-11 $5.0 \times 10^{20} \text{ Ar m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の粒子束における照射促進昇華の損耗率とモデルを使って計算した損耗率の温度依存性. $U_v = 3.2 \text{ eV}$ としたとき, モデルから計算される U_a は実験値より得られた活性化エネルギー $U_a = 0.77 \text{ eV}$ とほぼ等しい.

表4-1 計算パラメータ

空孔が拡散するために必要な活性化エネルギー	U_v	3.2 eV
格子間原子が拡散するために必要な活性化エネルギー	U_i	0.3 eV
幾何学的係数と格子間原子, 空孔の振動数の積	$\alpha_i \nu_i, \alpha_v \nu_v$	$1.7 \times 10^{12} \text{ s}^{-1}$
平均的な1回の移動距離	a_i, a_v	$2.1 \times 10^{-8} \text{ cm}^{-3}$

がどれだけ生成し、そのうち表面から放出される格子間原子がどの程度になるかである。そうした意味から、単位体積時間あたりに生成されるフレンケル対の割合 P_0 が、TRIMの計算結果とモデルの条件で等しくなるように P_0 を設定している。このようにして求めた P_0 の妥当性を確認するために、様々な条件で照射した低粒子束のデータ[1]とモデルとの比較を行った。その結果を図4-12に示す。ビーム種は水素、重水素、ヘリウム、アルゴンで、ビームの入射エネルギーは0.5~4keVである。また、表4-2には、TRIM-92で計算した様々な条件で照射したときのフレンケル対の平均生成深さと1個の入射粒子によって生成する数、そして P_0 を示している。平均生成深さは、0.5keVのArビームが最も浅く1.3nmであり、それに対して4keVのHeビームでは28nmとなっている。一方、フレンケル対の生成数は、1keVのHビームが0.8個と少なく、最大が4keVのHeビームの20個である。データと最も相違が生じたのは、0.5keVのArビームを照射した場合である。これは、フレンケル対の大半が、表面から比較的浅い3~4原子層のあたりに生成されるため、物理スパッタリングの損耗過程と競合したことに原因があるのかもしれない。しかしその結果を除けば、フレンケル対の生成数や平均生成深さが違うにもかかわらず、モデルから求めた損耗率の温度依存性はデータと非常によく似ている。

高粒子束領域においてもビーム種とエネルギーを変えて照射を行うことで、 P_0 と損耗率の関係を調べている。図4-13は、試料温度を1980Kとしたときの等方性黒鉛IG-430にArビームとNeビームを照射したときの結果である。Neビームのエネルギーは3keVと5keVであり、Arビームでは5keVである。また、粒子束はともに $9 \times 10^{20} \text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$ である。3keVと5keVのNeビームをIG-430に照射したときの損耗率は等しく、5keVのArビームを照射したときの半分である。次に照射促進昇華の損耗率を求めるため、ArとNeによる物理スパッタリングの損耗率を見積もる。図4-13は、ArとNeを炭素材に照射したときの物理スパッタリングの計算値を示しているが、5keVのArビームによるIG-430の物理スパッタリングと計算値はほぼ等しい。もし、Neビームによる損耗率も計算値と等しいとするならば、照射促進昇華の損耗率は $Y_{\text{RES,Ar}}=3.1$ 、 $Y_{\text{RES,Ne}}=1.4$ となる。Arによる照射促進昇華の損耗率は、Neで照射するよりも2.3倍大きい。Arの方が質量数が大きく、格子間原子を生成しやすかったためである。

NeビームとArビームを炭素材に照射したときの格子間原子の分布を図4-14に示す。TRIM-92を使って計算した。3keVのNeビームと5keVのArビーム照射では、格子間原子の深さ分布は等しく平均生成深さは6nmである。入射粒子1個あたりの格子間原子の生成数は、5keV Arビームの方が1.7倍多い。それに対して5keVのNeビーム照射では、

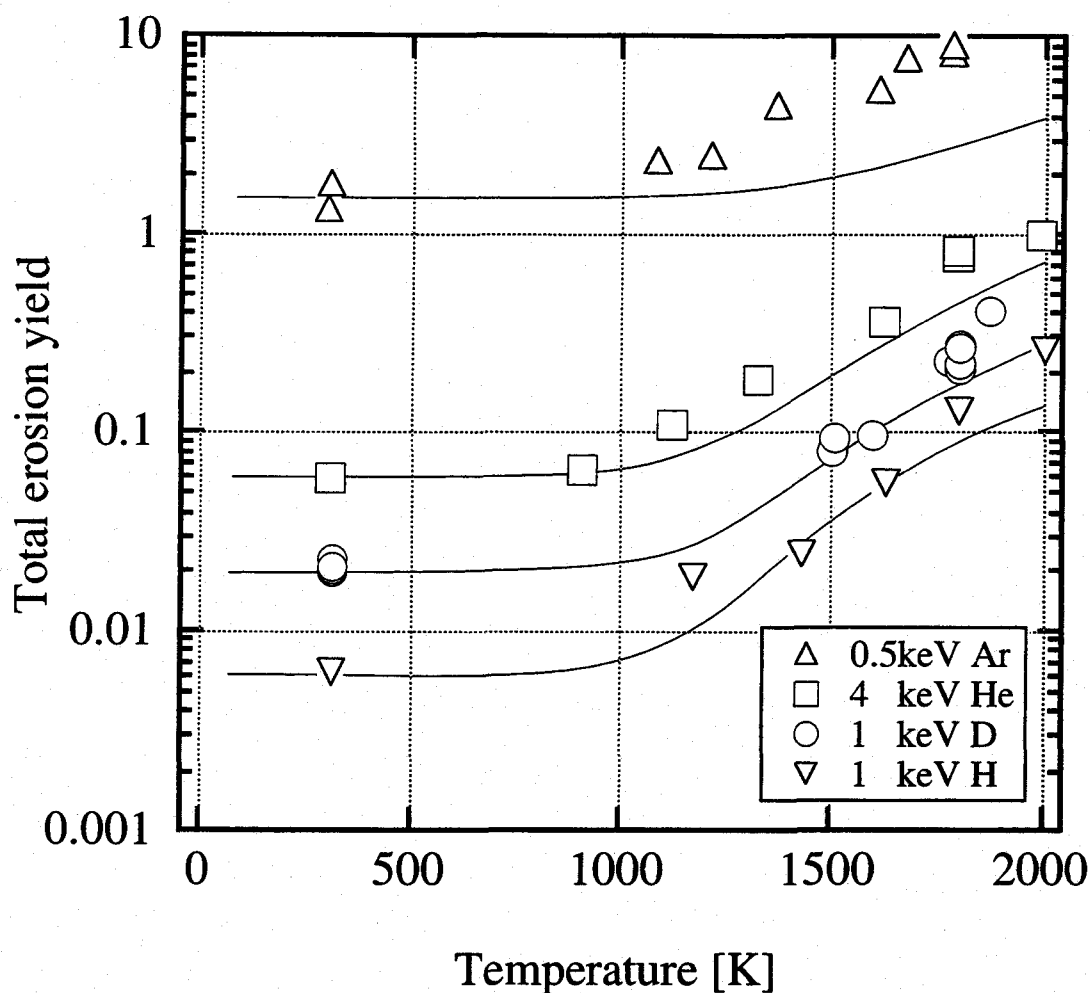


図4-12 モデルによる全損耗率の温度依存性. 実験データは文献から引用している[1]. 全損耗率は, 物理スパッタリングが実験データのR.T.での値と等しいとして, 照射促進昇華の損耗率に加えて見積もった.

表4-2 TRIM-92で計算した平均生成数と平均生成深さ. P_0 は粒子束が $1 \times 10^{20} \text{m}^{-2}\text{s}^{-1}$ として計算している.

ビーム種	格子間原子/イオン	平均生成深さ (nm)	P_0 ($\text{m}^{-3}\text{s}^{-1}$)
1keVD	2.1	9.6	2.2×10^9
1keVH	0.84	8.8	9.5×10^8
4keV He	20	28	7.1×10^9
0.5keV Ar	5.1	1.3	3.8×10^{10}

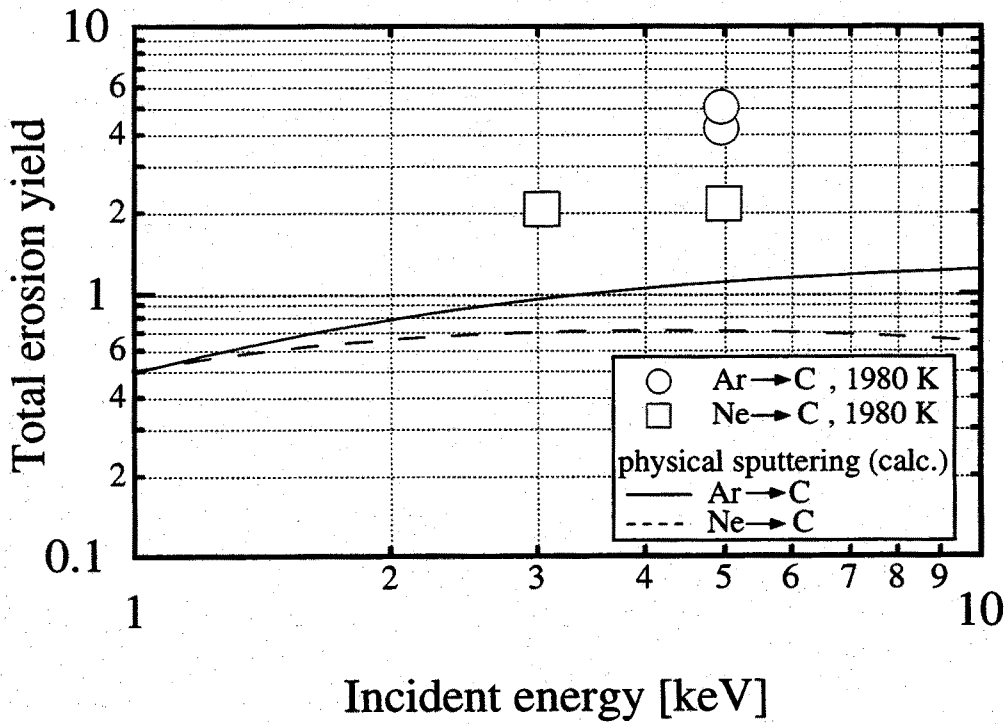


図4-13 1980Kの等方性黒鉛IG-430にArビームをNeビームを照射したときの全損耗率。物理スパッタリングは計算によって求めている。

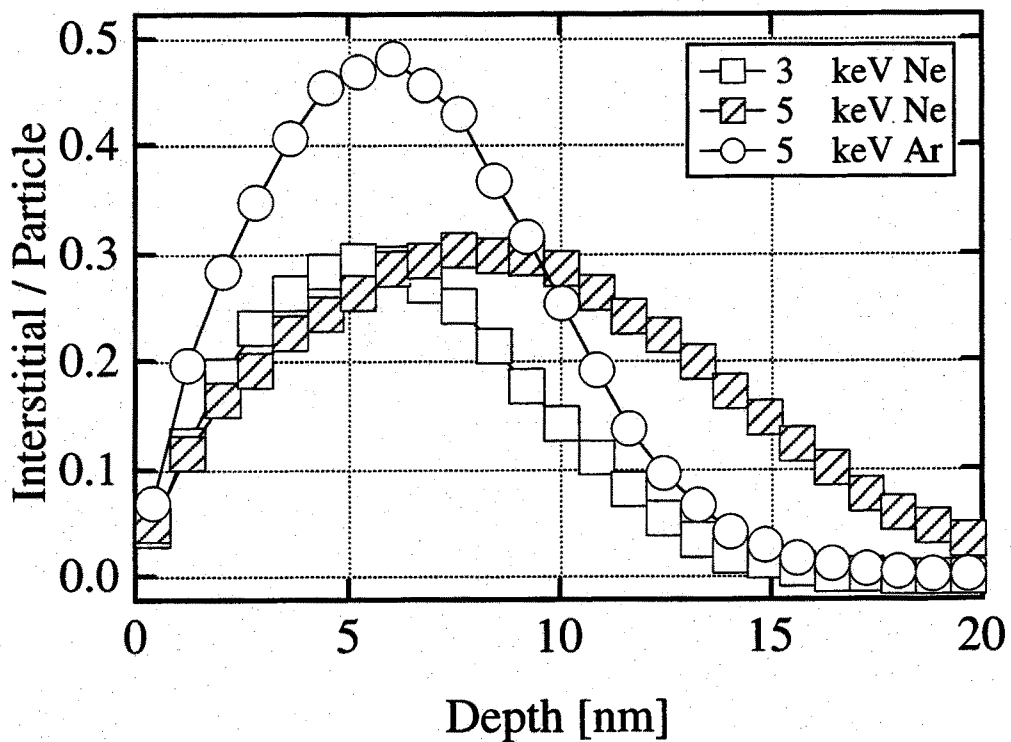


図4-14 TRIM-92を使って計算した格子間原子の深さ分布。

試料表面から深いところに格子間原子が分布しており、平均生成深さは9nmそして格子間原子の生成数は3keVのNeビーム照射よりも1.5倍多い。しかしながら、単位時間あたりの平均生成深さに対する格子間原子の割合 P_0 は3keVのNeビームと等しい。TRIM計算によって得られた P_0 を(4.24)式に代入して照射促進昇華の損耗率を見積もると、Arビーム照射はNeビーム照射に比べて1.5倍ほど損耗率が大きくなる。この比率は、実験から求められた値とかなり近いと思われる。また、3keVと5keVのNeビーム照射の計算結果は実験結果と良く一致する。このことから、 P_0 を深さ方向に一定として扱っても、定性的には大きな問題にならないと考えられる。また、定量的についても実験値の差は2倍程度の範囲に収まっている。

図4-15は、ISO-630, P.G.そして計算によって得られる照射促進昇華の粒子束依存性を示している。これまでの照射促進昇華のモデルでは格子間原子は空孔と再結合することによって消滅するとしており、 $S_i=0$ に対応する。その場合の照射促進昇華の粒子束依存性は、高粒子束領域での実験結果と良く一致する。しかしながら、 $1 \times 10^{19} \text{Ar m}^{-2} \text{s}^{-1}$ 以下では粒子束依存性が明らかに異なっている。すなわち、低粒子束領域における格子間原子の消滅は空孔との再結合が支配的であるというわけではないことを示唆している。

炭素材の内部には多数の微細なクラックが存在していて、そのようなクラックが格子間原子の消滅につながるシンクとして作用すると考えられている。したがって、格子間原子の再結合は、格子間原子の対として生成する空孔あるいはバルク中に最初から存在しているシンクで生じる。空孔はビーム照射によって生成されるため、その密度は粒子束に強く依存するが、その一方でシンクは材料に最初から存在するものであり、粒子束依存性はあっても弱いと考えられる。そのため、粒子束が低いときは生成される空孔の数も少なく、シンクに比べると空孔の密度は低い。しかし、粒子束が高くなるにつれ空孔の数が増加していき、やがてシンクよりも空孔密度が高い状態が生じてくるようになると考えられる。そこで、照射促進昇華の反応過程にシンクによって格子間原子が消滅する効果を取り入れると、高粒子束領域とは異なり低粒子束領域では格子間原子は空孔よりもシンクと消滅する割合が高く、弱い粒子束依存性を示すようになる。実験結果を説明するには、シンク密度と基板の原子密度との比率を $S_i/C_c=2 \sim 5 \times 10^{-3}$ の値にすることが適当であると思われる。このようにバルク中に存在する空孔とシンクの密度の割合が、照射促進昇華の粒子束依存性に大きな影響を与えているといえる。

図4-16は、炭素の密度を 1.85 g cm^{-3} と 2.2 g cm^{-3} としたときの粒子束依存性である。

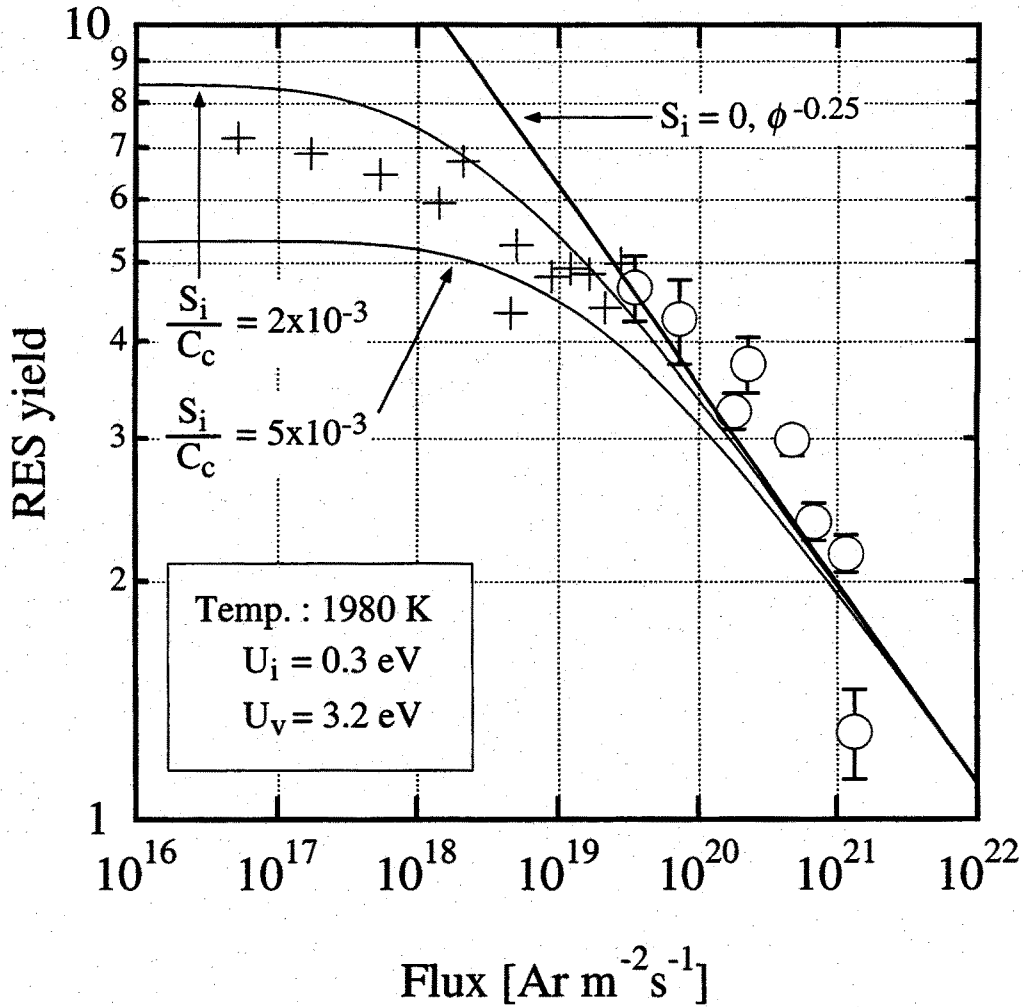


図4-15 シンク密度を変化させたときの照射促進昇華の粒子束依存性。 $S_i=0$ のとき $\phi^{-0.25}$ の依存性を示し、 $S_i/C_c=2\sim 5\times 10^{-3}$ のとき低粒子束側で弱い粒子束依存性を示す。

それぞれの密度は、ISO-630とP.G.に対応している。炭素の密度が高いと図4-6で示したように、格子間原子の平均生成深さは表面の方へ移動する。それによって、 P_0 はP.G.の方が高くなるため、全ての粒子束でP.G.の損耗率は大きくなっている。この計算結果は、低粒子束側での実験結果と定性的に一致する。しかし、高粒子束側で炭素材の種類に関係なく損耗率が同じような値になることを満たしていない。損耗率を求めるときの P_0 が単純に格子間原子の生成数とその生成深さから求めており、照射による結晶構造の変化の効果が含まれていないためと考えられる。

モデルによる損耗率の角度依存性を調べるため、5keVのArを0度と88度の入射角で

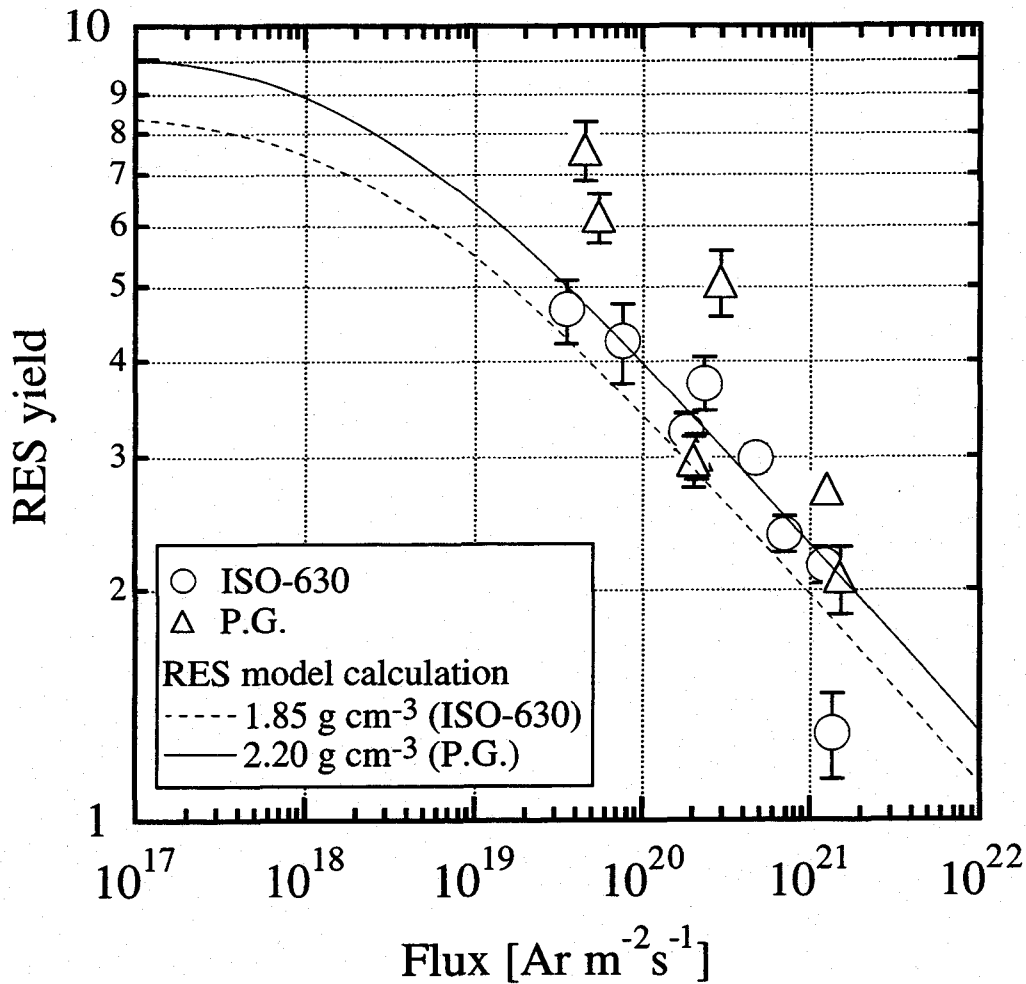


図4-16 炭素の密度を 1.85 g cm^{-3} (ISO-630)と 2.2 g cm^{-3} (P.G.)としたときの照射促進昇華の粒子束依存性。損耗率は密度が高い方が大きい。

IG-430に打ち込むときに生成する格子間原子の深さ分布をTRIM-92で計算した。その結果を図4-17に示す。入射角を大きくしていくと格子間原子の分布は表面へ移動する。それによって、表面近くでの格子間原子の生成数は増加するが、反射粒子も多くなってくるためAr粒子1個あたりの格子間原子の生成数は減少する。図4-18は、入射角に対するAr粒子1個あたりの格子間原子の生成数と平均生成深さを示している。1個のAr粒子によって生成する格子間原子は、入射角が60度まではほとんど一定で約40個であるが、それ以上の角度では急激に減少し90度近くでは約10個程まで少なくなる。一方、平均生成深さは、入射角が大きくなるにしたがって徐々に小さくなっ

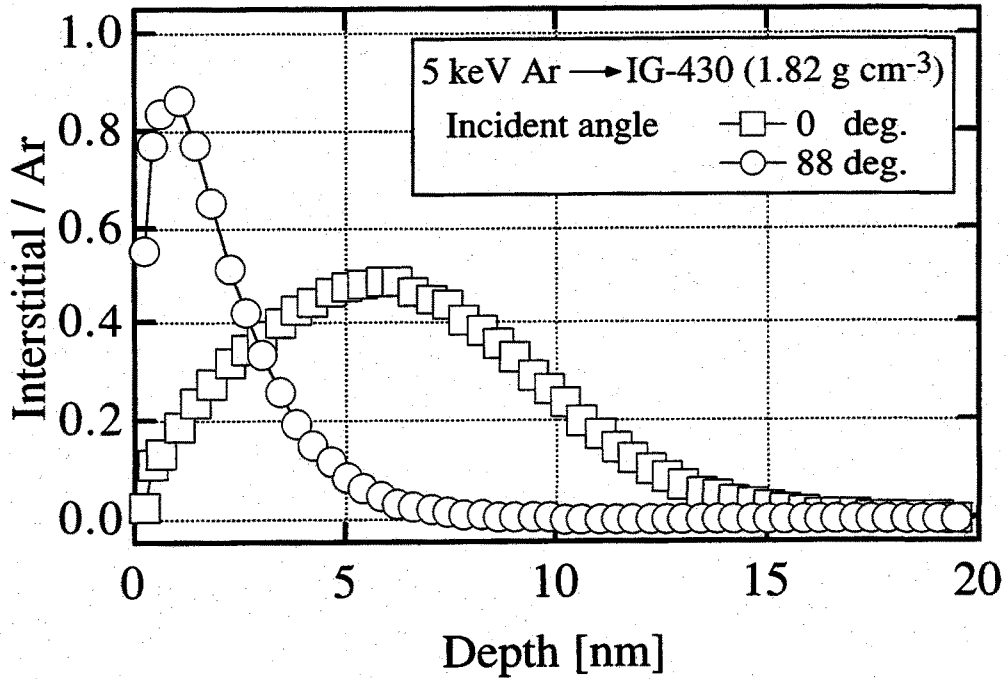


図4-17 IG-430に5kVのArビーム照射することで生成する格子間原子の深さ分布. Arビームの入射角を0度と88度としてTRIM-92で計算した.

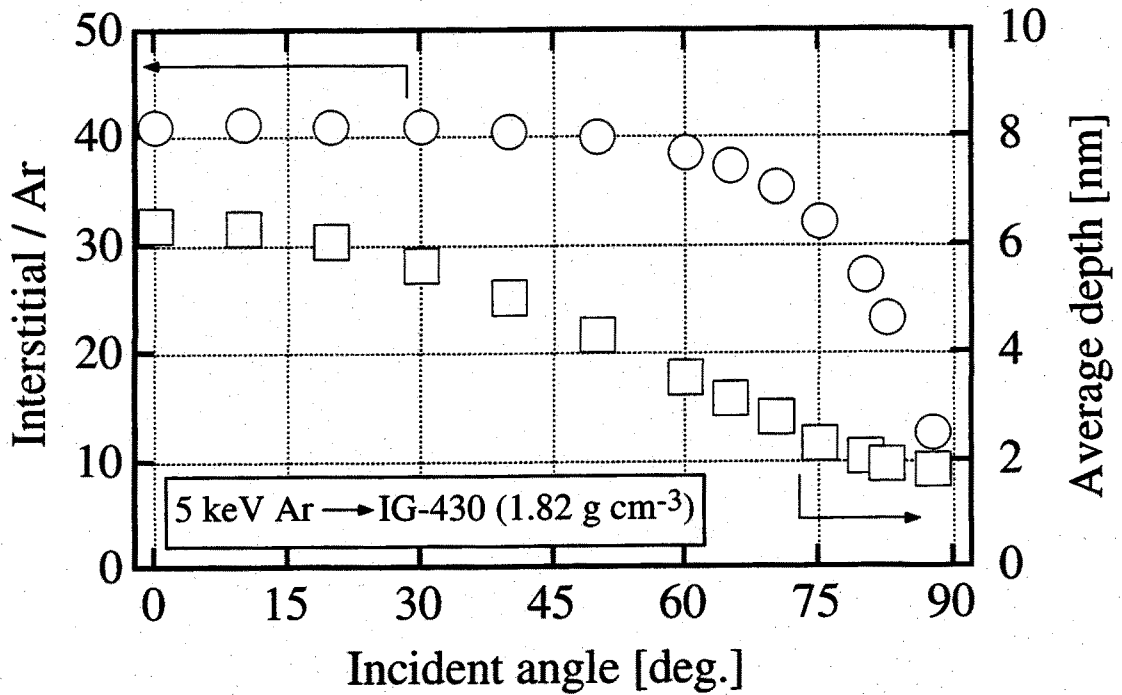


図4-18 入射角に対するAr粒子1個あたりの格子間原子の生成数と平均生成深さ. TRIM-92を使って計算した.

ていき、0度入射の6nmから90度近くでの2nmまでになっている。したがって、 P_0 は入射角が大きくなると初め増加し、約75度から減少するという変化を示す。

図4-18で示した関係から P_0 を求め、入射角に対する照射促進昇華の損耗率を計算した。それを図4-19に示す。 $1.5 \times 10^{20} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ と $8.5 \times 10^{20} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の粒子束では、ともに入射角に対して損耗率はさほど変化していない。また、モデルによる損耗率も、Yamamuraの式から得られる物理スパッタリングの角度依存性に比べてその変化の割合は小さい。確かに、 $8.5 \times 10^{20} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の粒子束では、照射促進昇華による損耗率は入射角に対して減少する傾向を示しているように見えるが、モデルでは増加している。この点においては、モデルではその結果を説明することはできないが、実験結果とモデルは入射角に対して弱い依存性を示していることでは一致している。

ここまでは5keVのArビームについて示してきたが、ダイバータでの粒子負荷を考えた場合、ビーム種を重水素として考えることが必要である。図4-20は、5keVのArビームと0.5keVのDビームを炭素材に照射するとき生成する格子間原子の分布を示している。0.5keVのDビームによる格子間原子の深さ分布は5keVのArビームと等しく、生成する格子間原子の数はArビームの約1/40である。したがって、粒子束が $1 \times 10^{21} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の5keV Arビームは $4 \times 10^{22} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の0.5keVのDビームと等価であると考えることができる。図5-21は5keVのArビームと0.5keVのDビームを1980Kの炭素材に照射したときの損耗率を照射促進昇華のモデルを使って計算した結果を示している。低粒子束領域では物理スパッタリングより照射促進昇華の損耗率は大きい。ダイバータが受ける粒子負荷条件下では照射促進昇華の損耗率は物理スパッタリングと同程度になると推測される。また、ITERの定常運転時の炭素材の最高使用温度は1780Kであり、図5-21で示したよりも低い温度での使用条件下では、高温においても物理スパッタリングの影響が大きくなることを示している。

4.5 モデルの問題点

ここまでは、モデルが定性的に、照射促進昇華の温度依存性と良く一致することを示してきたが、次にモデルでは対応できない点について説明する。

十分なフルエンスを照射して損耗現象が平衡状態にあるとき、(4.3)式、(4.4)式の左辺は $d/dt=0$ となる。そのときの空孔密度は、ビーム照射による空孔の生成と拡散、そして再結合による消滅によってバランスしている。空孔は、拡散するための活性化エネルギー U_v が格子間原子の U_i よりも大きいため、格子間原子と比べると拡散しにくい。例えば、試料温度が2000Kで10nm拡散するのに要する時間は、格子間原子が

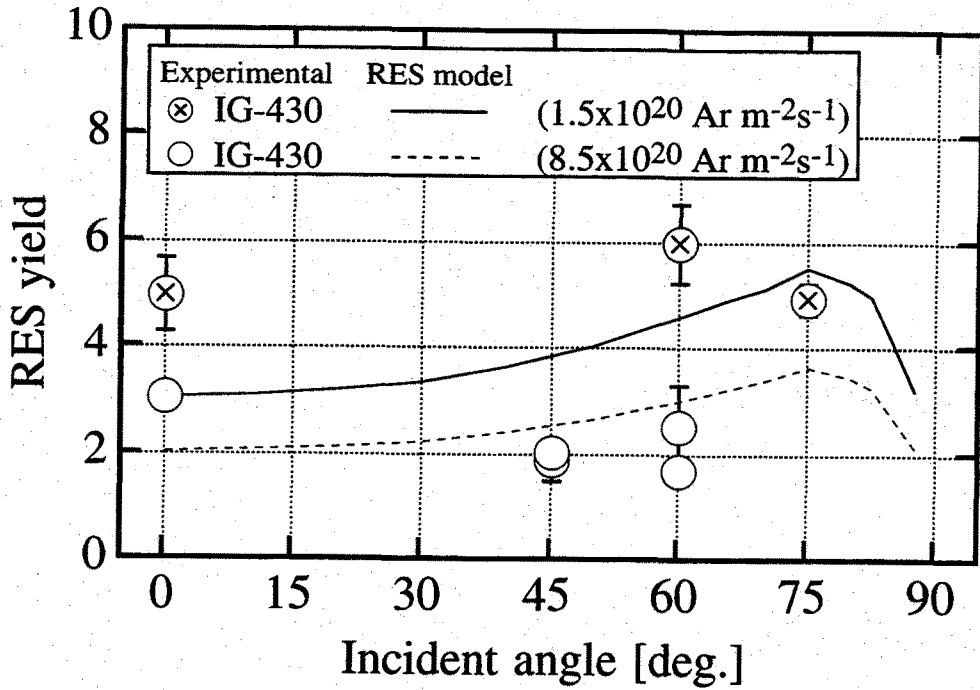


図4-19 入射角に対する照射促進昇華の依存性. IG-630に 1.5×10^{20} Ar $m^{-2}s^{-1}$ と 8.5×10^{20} Ar $m^{-2}s^{-1}$ の粒子束で照射した結果と同じ粒子束でのモデルによる照射促進昇華の損耗率を示している.

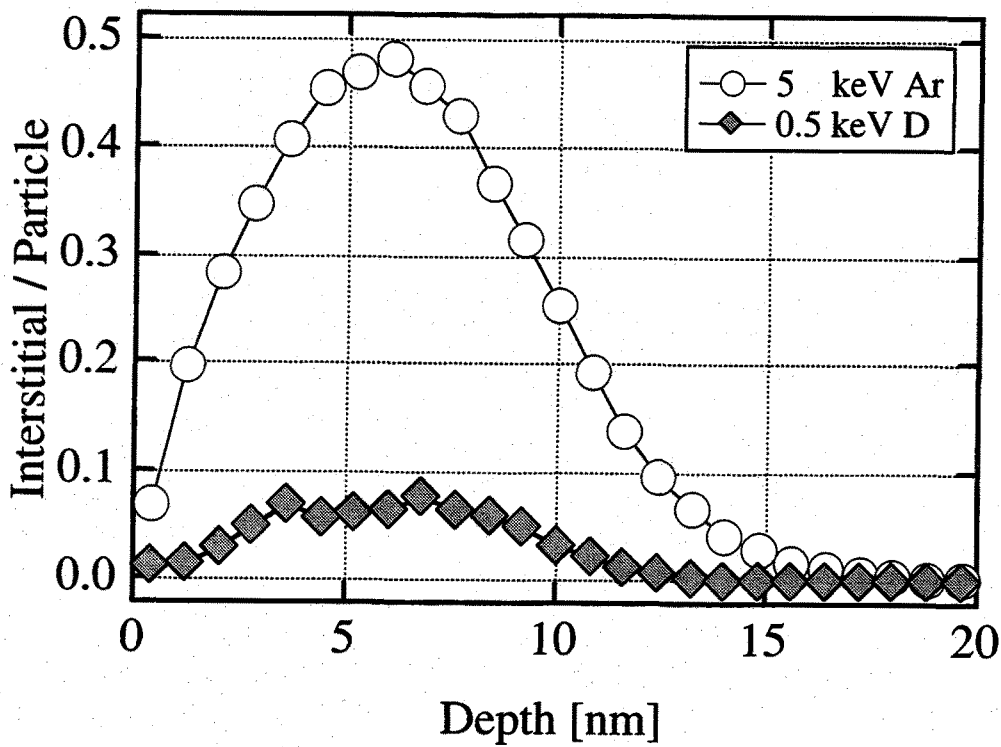


図4-20 TRIM-92を使って計算した格子間原子の深さ分布.

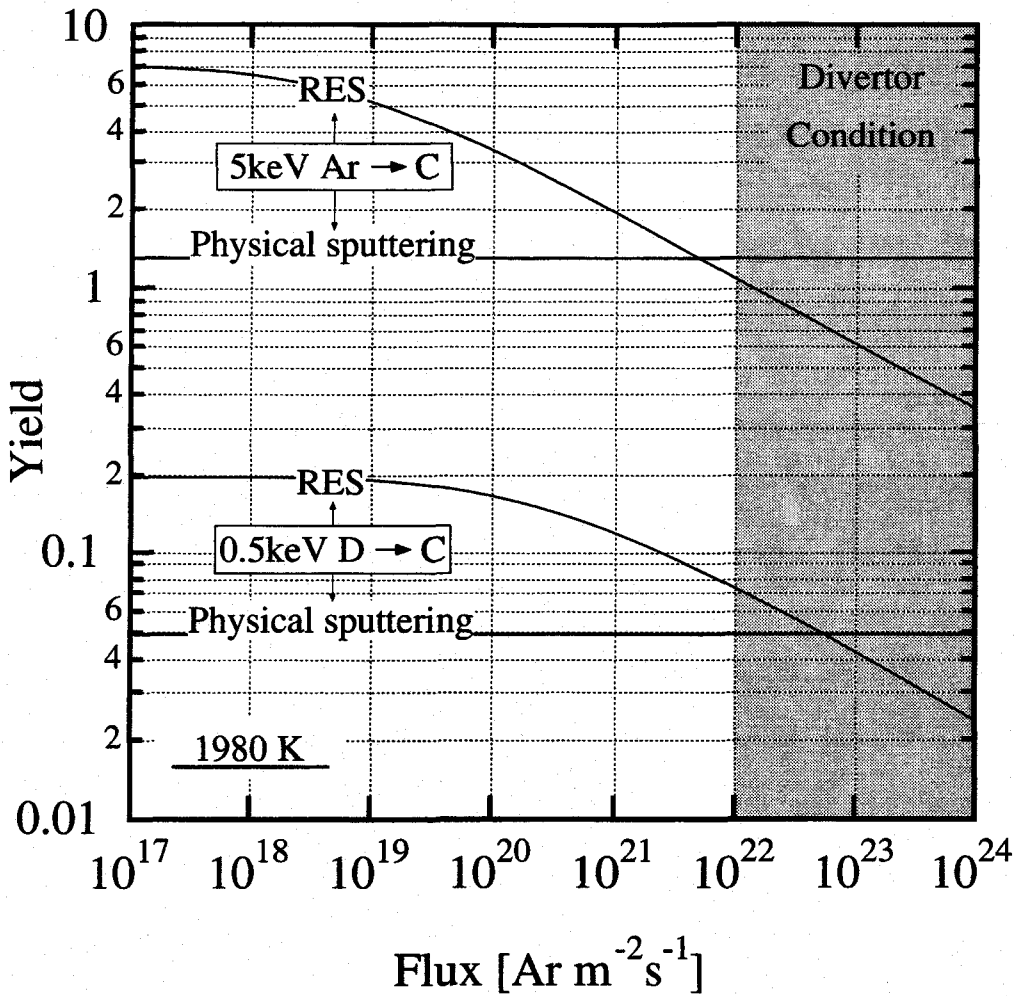


図4-21 RESモデルから計算される照射促進昇華の粒子束依存性. 5keVのアルゴンと0.5keVの重水素を1980Kの炭素材に照射したときの場合について示している. 重水素とアルゴンの物理スパッタリングも示している.

1x10⁻⁸秒であるのに対して空孔は約1秒かかる. このように, 空孔の拡散速度は格子間原子に比べて極めて遅い.

空孔の拡散が遅いことは, バルク中での空孔密度が非常に高くなることを意味している. (4.4)式の拡散項D_vを無視すると, 空孔密度は生成項と消滅項のバランスによって決まる. 空孔の生成項は, 炭素の密度, ビーム種, 粒子束等によって決まり温度には依存しない. それに対して消滅項は, 空孔や格子間原子の密度, 再結合係数K_{iv}, K_{sv}の値によって決まり, 全ての変数が温度に依存する. 特に照射促進昇華が起き始める1200Kあたりの温度では再結合係数の値が小さいために, 空孔密度を高

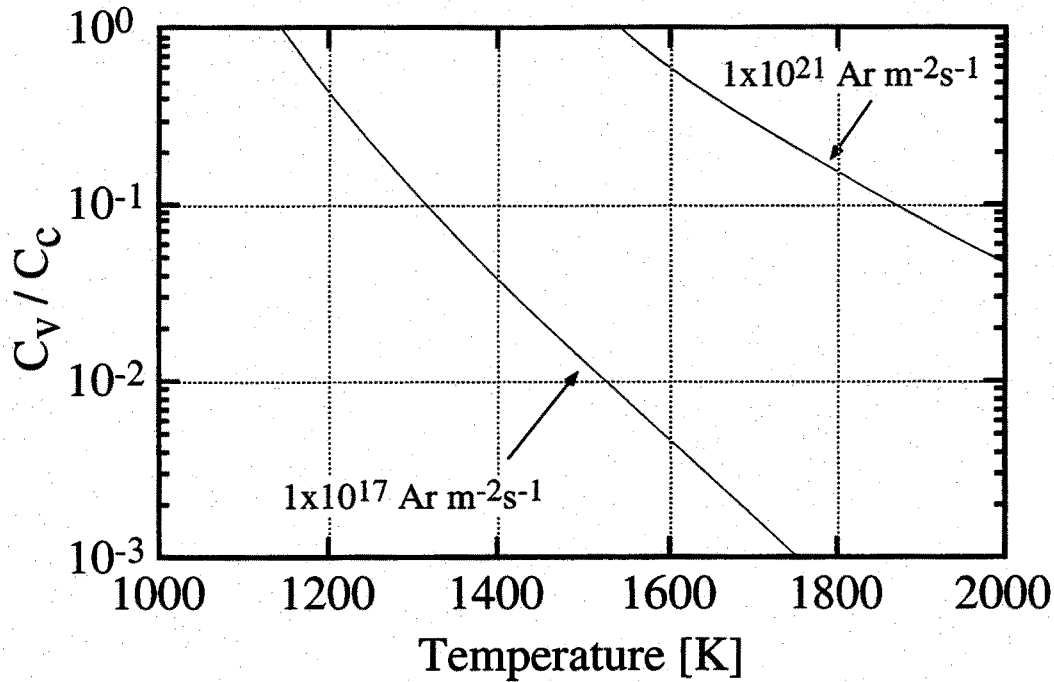


図4-22 モデルから計算される空孔密度の温度依存性。粒子束が高くなるにつれて空孔密度も増加していく。

くとらないと生成項とバランスしない。図4-22には、モデルから計算した空孔密度の温度に対する依存性を示している。空孔密度は温度が高くなるにつれて減少していき、また粒子束が増えると同じ温度でも増加する。 $1 \times 10^{21} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の粒子束では、試料温度が2000Kでも $n_v/C_c = 0.05$ である。しかし、実際には空孔密度が1を超えることはあり得えない。シンクの項を含んでいない他の照射促進昇華のモデルでは、空孔の集まりがつぶれて消滅する等の効果をいれた空孔同士の再結合による消滅項を入れている[1,7]。Franzenらは、そのモデルを使って $10^{19} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の粒子束領域での照射結果にフィッティングしており、 $10^{23} \text{ ions m}^{-2}$ のフルエンスになっても室温での空孔密度は1%以下になると述べている[7]。すなわち、高粒子束領域では空孔の生成数も多くなっていくため、シンクや格子間原子との再結合による空孔の消滅だけを考慮しては不十分であると思われる。4.3節で示したモデルは P_0 の分布を単純化しており、今後はその点も含めて空孔の密度を十分に考慮に入れ、定量的にも照射促進昇華を説明できるモデルを構成していく必要がある。

4.6 まとめ

照射促進昇華の反応過程を解明していくため、最大 $1 \times 10^{21} \text{ Ar m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ となる高粒子束領域で5keVのArビームを3種類の炭素材に照射し、重量損失量から損耗率を調べた。高粒子束領域でも、低粒子束のビーム実験と同じように、損耗率は温度とともに指数関数的に増加しており、照射促進昇華の基本的な反応過程は変わらないことが明らかとなった。しかしその一方で、粒子束に対する損耗率の依存性は異なっていた。低粒子束領域で $\phi^{-0.07}$ の粒子束依存性を示した損耗率は、 $10^{20} \sim 10^{21} \text{ Ar m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の粒子束領域では $\phi^{-0.29}$ に依存していた。ビームの入射角に対する照射促進昇華の損耗率は、弱い角度依存性しか示さなかった。

実験結果を説明するため、格子間原子がシンクで再結合して消滅する項を含む照射促進昇華のモデルを提案した。従来からのモデルは $\phi^{-0.25}$ の粒子束依存性を示しており、低粒子束の結果と整合性がなかったが、シンクの項をとり入れることで、低粒子束から高粒子束にわたる広い範囲で実験結果と一致した。このことから、低粒子束側では格子間原子はシンクとの再結合によって消滅するが、粒子束が高くなると生成する空孔の数が増え、空孔との再結合による消滅が支配的であることがわかった。その結果、高粒子束での照射促進昇華の損耗率は $\phi^{-0.29}$ の粒子束依存性を示して大きく減少することが明らかになった。

参考文献

- [1] J. Roth and W. Möller, "Mechanism of enhanced sputtering of carbon at temperatures above 1200 °C", Nucl. Instrum. Methods **B7/8** (1985) 788-792
- [2] V. Philipps, E. Vietzke, R. P. Schorn and H. Trinkaus, "Flux dependence of radiation induced sublimation of graphite at elevated temperatures", J. Nucl. Mater. **155-157** (1988) 319-323
- [3] V. Philipps, E. Vietzke and H. Trinkaus, "Radiation enhanced sublimation of carbon and carbon related materials", J. Nucl. Mater. **179-181** (1991) 25-33
- [4] J. W. Davis and A. A. Haasz, "Impurity release from low-Z materials under light particle bombardment", J. Nucl. Mater. **241-243** (1997) 37-51
- [5] A. A. Haasz and J. W. Davis, "Flux and energy dependence of radiation-enhanced sublimation of graphite", J. Nucl. Mater. **151** (1987) 77-80
- [6] A. A. Haasz and J. W. Davis, "Flux dependence of the radiation-enhanced sublimation of graphite due to D^+ irradiation", J. Nucl. Mater. **224** (1995) 141-145

- [7] P. Franzen, J. W. Davis and A. A. Haasz, "Line-of-sight measurements of the radiation-enhanced sublimation of graphite", *J. Appl. Phys.* **78** (1995) 817-827
- [8] B. Söder, J. Roth and W. Möller, "Anisotropy of ion-beam-induced self-diffusion in pyrolytic graphite", *Phys. Rev.* **B37** (1988) 815
- [9] R. Chudora, "Numerical analysis of plasma-wall interaction for an oblique magnetic field", *J. Nucl. Mater.* **111&112** (1982) 420-423
- [10] Y. Yamamura, Y. Itikawa and N. Itoh, "Angular dependence of sputtering yields of monoatomic solids", Institute of Plasma Physics, Nagoya University, **IPPJ-AM-26** (1983)
- [11] A. A. Haasz, J. W. Davis and C. H. Wu, "Angle of incidence dependence of light ion physical sputtering of carbon", *J. Nucl. Mater.* **162-164** (1989) 915-919
- [12] J. Roth, J. Bohdanský and K. L. Wilson, "Erosion of carbon due to bombardment with energetic ions at temperatures up to 2000 K", *J. Nucl. Mater.* **111&112** (1982) 775-780

第5章 炭素複合材の損耗挙動

5.1 はじめに

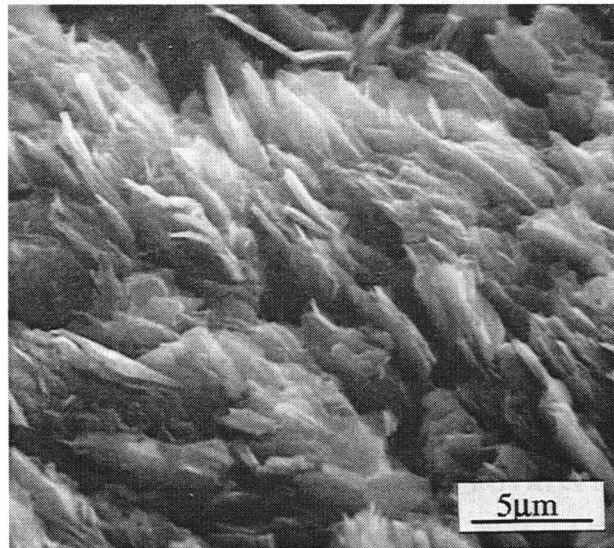
これまでの章では高粒子束領域における炭素材の損耗について示してきた。その中で、化学スパッタリングや照射促進昇華は高粒子束領域でも生じることが明らかになった。このような炭素材特有の損耗に対してチタンやボロンなどを添加した炭素材が、その欠点を補える材料として候補に挙げられている。低粒子束のビーム実験では、これらの材料の損耗率は、炭素材よりも低くなるという結果が得られている[1-4]。しかし、炭素材と同様、高粒子束領域で損耗を調べる手段は限られており、 $10^{21} \sim 10^{22} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の粒子束領域のデータはほとんど存在しない。この章では、高粒子束効果によって化学スパッタリングや照射促進昇華が低減している状況下で、チタンやボロンを加えた炭素複合材に高粒子束ビームを照射したときの損耗挙動について示す。

5.2 Ti添加炭素材 RG-Ti

この節では、炭素材にチタンを入れても高熱伝導性が保てるRG-Tiに焦点をあて、高粒子束領域における損耗について説明していく。

5.2.1 RG-Tiの性質

RG-Tiは1.7at%Tiを含んだTi添加炭素材である。図5-1(a)は、RG-Tiを超音波洗浄器で純水を使って洗浄し、それから1980Kでプレヒートした後、SEMを使って表面観察したものである。RG-Tiの結晶構造は、薄い小片が層状に積み重なった形状をしていて、一見すると剥がれやすそうに見える。プレヒートによる表面形状の変化はみられなかった。図5-1(b)は、エネルギー分散型X線分析装置EDXを使い、図5-1(a)で示した表面から放出されるTiの特性X線の分布を示している。白い部分にTiが多く存在している。このように、RG-Tiに含まれているTiはバルク中に均一に分布しているのではなく、むしろ局所的にコロニーを形成している。文献によれば、RG-Tiに含まれるTiはTiCを形成して存在していることから[5]、このコロニーはTiC粒塊であり、粒塊の平均的な大きさは約4 μm であると推定できる。EDXの測定結果より、粒塊以外



(a) a軸方向



(b) Ti分布

図5-1 ビーム照射前のRG-Tiの表面とその表面から放出されるTiの特性X線の分布.

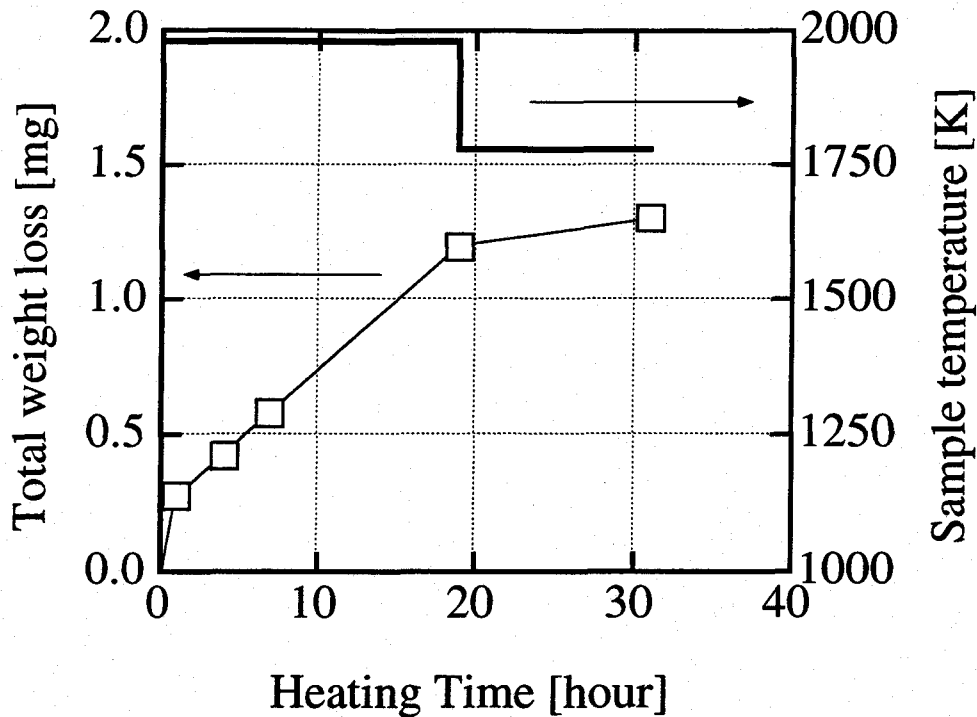


図5-2 加熱時間に対する全重量損失量の変化. 初めの19時間は1980Kで加熱し, その後12時間は1780Kで加熱している.

ではTiの存在が確認できていないので, RG-Tiは炭素部分とTiC粒塊で構成されていることがわかる. また, SEM像とEDXの測定結果を比較することで, 薄い小片は炭素部分に相当し, TiCが存在すると思われる表面の非常にごくわずかな領域に, 薄片とは異なる特徴をもつ粒塊が存在している. この結晶がおそらくTiC粒塊の一部である. しかしながら, 表面の大部分が炭素の小片で覆われていたことから, TiC粒塊は表面よりむしろバルク中に分散して存在していることになる. 表面に存在していたTiC粒塊は, 表面研磨や試料の洗浄によって, 剥がれ落ちてしまったのかもしれない. 今後, a軸方向あるいはc軸方向からビーム照射するRG-Tiを, それぞれ"RG-Ti edge", "RG-Ti base"と呼ぶことにする.

炭素材は1980Kでもほとんど熱昇華が起きないのに比べ, RG-Tiは1480Kでも熱昇華を生じる. 図5-2は, 同一のRG-Tiを1980Kで加熱して重量測定することを繰り返す行い, 最後に1780Kで12時間加熱して重量測定したときの結果を示している. 1回目の加熱では熱昇華に加えて吸着ガスの脱離も起こるために重量損失量は大きかったが, それ以降は一定の速度で熱昇華が起こっており, その速度は約 $50 \mu\text{g/h}$ となって

いる。このように高温でRG-Tiを加熱すると熱昇華が起こるが、その一方で、Tiの深さ分布は、2010Kまで加熱した後でも加熱前と同じであることが報告されている[6]。それゆえ、プレヒートとして試料温度を1980Kに保っても問題は生じないと考えられる。しかし、昇華量が多くそれを抑えるため、試料温度を200K下げて1780Kにした場合では、12時間加熱しても重量損失量は100 μg となる。つまり、熱昇華速度は1980Kのときと比べて20%以下にまで低減することができる。

5.2.2 高温におけるRG-Tiの損耗

RG-Tiへのビーム照射は、他の照射試料と同様に、1ショットの照射時間が1~2秒のビームを60~90秒の間隔に1回の割合で照射している。試料温度を1980Kとして照射を行った場合、1回の照射サイクルの間に熱昇華で損失する重量は、ビーム照射で損耗する重量と比べて無視できない量である。それゆえ、照射促進昇華の反応過程に対する熱昇華の影響を少なくするため、ビーム照射をするときの試料温度を1780Kとした。これによって、全重量損失量に占める熱昇華量は10%以下となっている。

図5-3は、試料温度が1780KであるRG-Tiへ5keVのArビームを照射したときの、フルエンスに対する重量損失量の変化を示している。重量損失量はビーム照射による損耗分であり、全重量損失量から熱昇華による重量損失量を差し引いてある。この結果が示すように、RG-Tiの重量損失量はフルエンスに対して比例しておらず、むしろ重量損失量の増分は、フルエンスに対して低下する傾向があるように見える。

図5-4は、3keVの D_3^+ を1700KのRG-Tiへ照射したときの損耗率の損耗質量依存性を示している[6]。このデータは、RG-Tiの損耗率の過渡特性を理解するうえで参考になる。損耗質量は、単位面積あたり損耗した重量を表しており、損耗質量を損耗率で割った値がフルエンスと比例する。図5-4で示したデータの場合、損耗質量が増加すればフルエンスも増えることになる。したがって、横軸をフルエンスに置き換えてデータを見直すと、照射初期には高い損耗率が得られるが、その後急激に低下し、適当なフルエンス以上になると損耗率は一定になることを示している。このデータはビーム種が重水素ではあるが、照射促進昇華の基本的な損耗のメカニズムはビーム種には依存しないので、ArビームをRG-Tiに照射した結果も同様な損耗率のフルエンス依存性が得られるべきであり、図5-3で示した低フルエンス側でフルエンスに対する重量損失量が大きくなっている結果と一致する。

図5-5は、"RG-Ti base"と"RG-Ti edge"の粒子束に対する全損耗率の変化と物理スパッタリングによる損耗率を示している。また、1980Kでの等方性黒鉛ISO-630の全

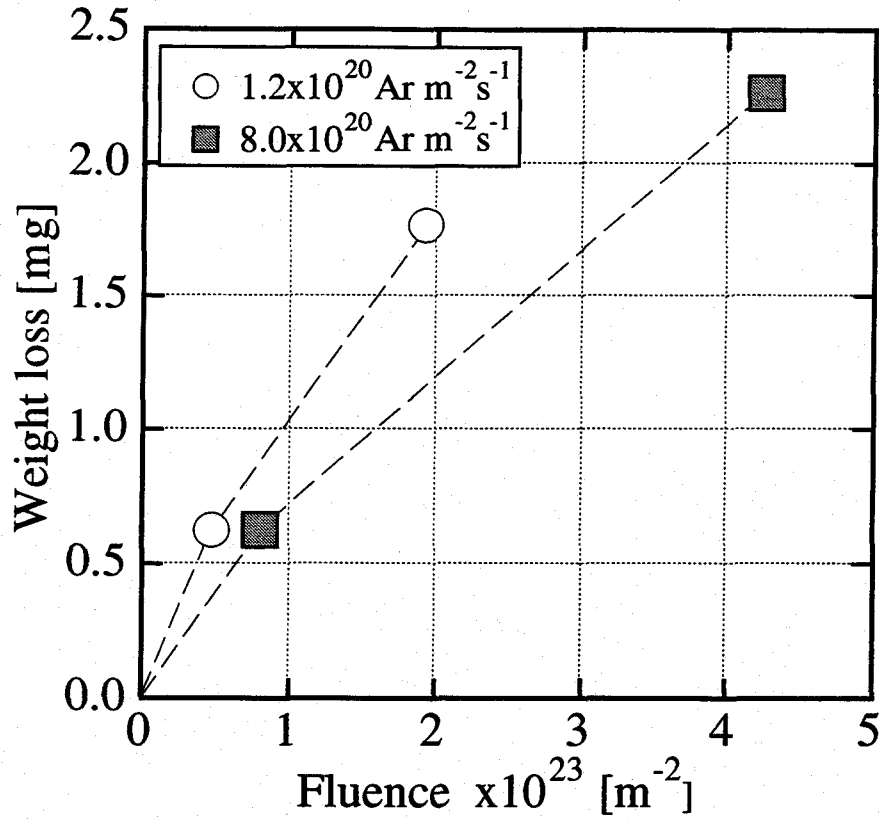


図5-3 1780KのRG-Tiに5keVのArビームを照射したときのフルエンスに対する重量損失量の変化. 全重量損失量から, 熱昇華による重量損失量を差し引いてある.

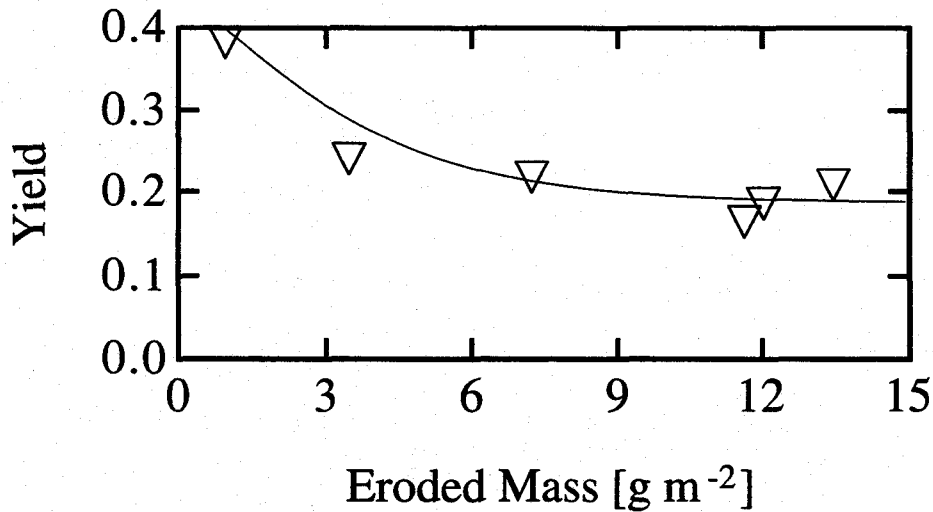


図5-4 3keVのD₃ビームを1700KのRG-Tiへ照射したときの損耗質量に対する損耗率の変化[6].

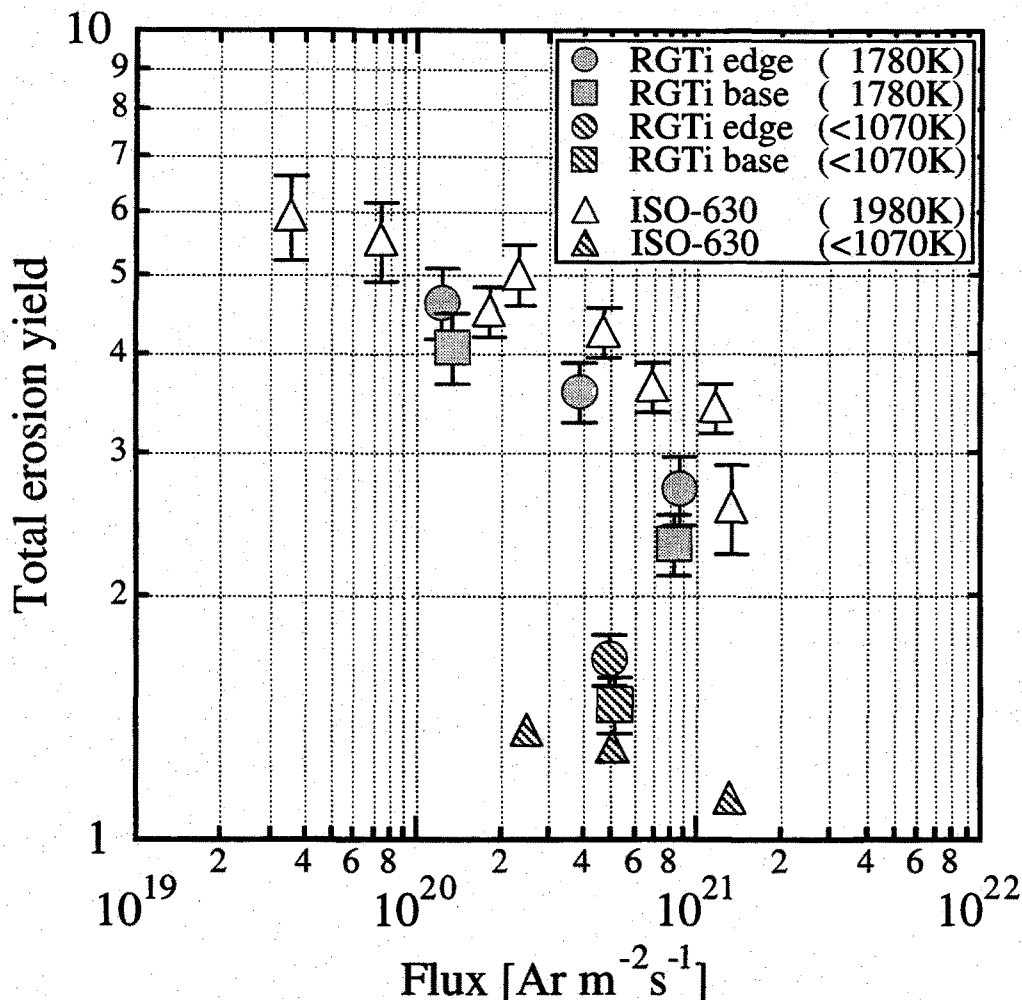


図5-5 粒子束に対するRG-Tiの損耗率. (⊙, ●)は"RG-Ti edge", (⊞, ■)は"RG-Ti base", (▲, △)は等方性黒鉛ISO-630の損耗率を示している. 試料温度は, 1070K以下と1780~1980Kである.

損耗率も示している. 試料へ照射したフルエンスは $0.5 \sim 1 \times 10^{23} \text{ Ar m}^{-2}$ とばらつきがあり, 損耗率は過渡状態での値である. しかし, RG-Tiの損耗の過渡現象は, 後で示すように, RG-Ti表面の炭素部分が削れそしてTiC粒塊が表面に現れてくることに起因していると考えられる. その意味では, どの試料も0.6mg前後というほぼ等しい重量損失量, つまり表面が削れた深さが等しいという点で, それぞれの条件で照射して得られた損耗率は, 同じような過渡変化の状態にあると考えても大きな問題はないと思われる. 1780KにおけるRG-Tiの全損耗率は, 高粒子束領域では, ISO-630の全損耗率の粒子束依存性 $\phi^{-0.19}$ と同様に, 粒子束が増えると大きく減少している. 室温

からの照射の場合、RG-Tiの損耗率はISO-630に照射したときよりも高い。

RG-Tiと等方性黒鉛ISO-630の損耗率を比較するためには、次の2つのことを考慮に入れなければならない。1つ目は定常状態におけるRG-Tiの損耗率を見積もることであり、2つ目はRG-TiとISO-630の照射温度が異なることである。RG-Tiの損耗率はビーム照射初期に特に大きな過渡変化をする。そのため、重量損失量から求めた損耗率では、必ず過渡変化の影響が含まれてしまう。この影響をできるだけ少なくするために、過渡特性に試料の個体差がないことを仮定して、高フルエンス照射したRG-Tiの重量損失量から低フルエンス照射したときの重量減少量を差し引いた。このような方法で、定常状態でのRG-Tiの損耗率を推定している。照射温度の違いについては、1780KにおけるISO-630の損耗率を見積もっている。ISO-630の全損耗率は、物理スパッタリングと照射促進昇華の損耗率の和で与えられ、照射促進昇華による損耗だけが温度に対して依存性を示す。図4-2より、ISO-630の活性化エネルギーは $U_a=0.77\text{eV}$ が得られている。したがって、1780KでのISO-630の全損耗率は

$$Y_{1780\text{K}} = Y_{\text{phys}} + Y_{1980\text{K}} \exp\left(\frac{U_a}{k} \left(\frac{1}{T_{1980\text{K}}} - \frac{1}{T_{1780\text{K}}}\right)\right) \quad (5.1)$$

で与えられる。ここで、 Y_{phys} は物理スパッタリングによる損耗率を表しており、ここでは $Y_{\text{phys}}=1.3$ とした。1780KのISO-630の全損耗率は、1980Kのときより約40%低い値となる。図5-6は、試料温度が1780KであるRG-TiとISO-630の損耗率の粒子束に対する変化を示している。RG-Tiの損耗率はISO-630よりも20~30%低い値となっている。RG-Tiの全損耗率が過渡特性をもつという不確定な要素を含んでおりその点については今後詳しく調べる必要があるが、定常状態に向かってRG-Tiの全損耗率が低下することを考えれば、RG-Tiの全損耗率はISO-630よりも確実に低くなる。

5.2.3 照射効果による表面形状の変化

RG-Tiの表面状態は、ビーム照射したときの試料温度によって大きく異なっている。図5-7は、室温と1780Kで照射した後の表面形状を示している。炭素材と同様に、室温からの照射では物理スパッタリングのみが生じており、それに対して試料温度が1780Kでは、物理スパッタリングに加えて照射促進昇華による損耗も生じている。試料温度を1780Kとして照射した場合、照射前には見られなかった炭素部分とは性質が明らかに異なる粒塊が表面に現れている。この粒塊を調べるために、EDXを使って

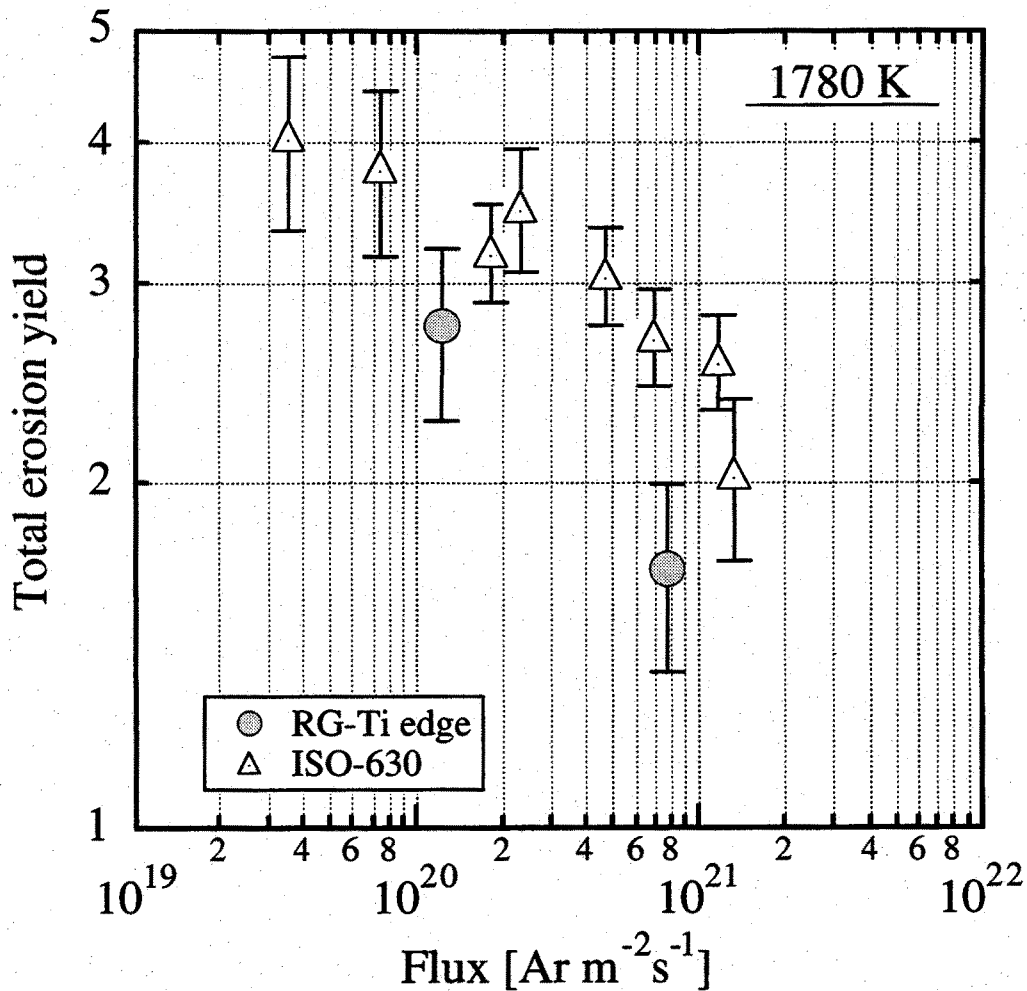
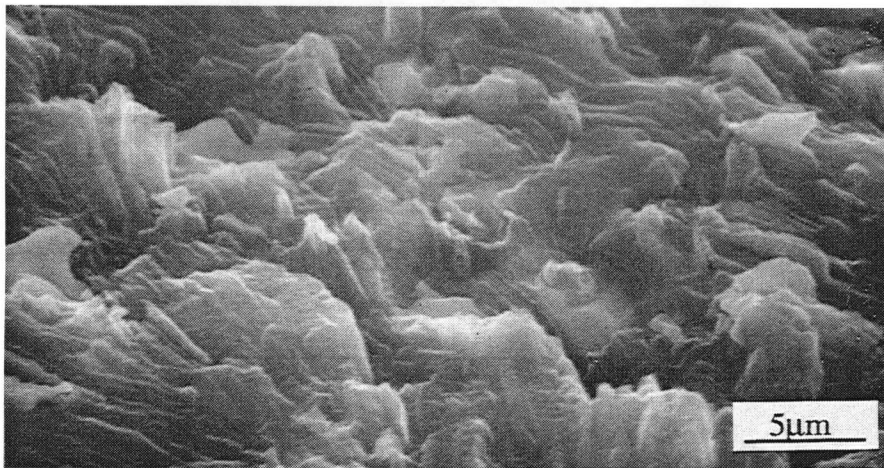


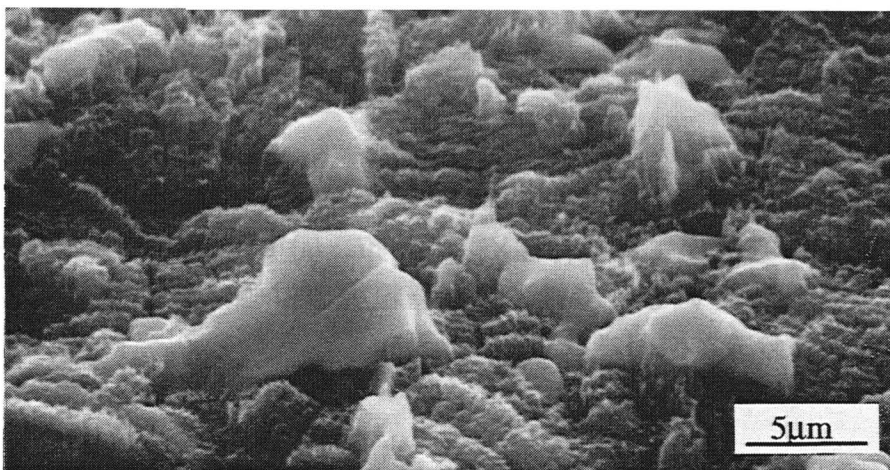
図5-6 1780Kでの"RG-Ti edge"とISO-630の全損耗率. "RG-Ti edge"の損耗率は低フルエンスと高フルエンスを照射したときの重量損失量の差から求めている. また, ISO-630の損耗率も1980Kでの全損耗率から見積もっている.

表面分析を行った. 図5-8で示しているように, 粒塊では必ずTiから放出された特性X線を検出しているが, 炭素部分ではほとんど検出されていない. したがって, この粒塊がTiCで構成されており, 照射前バルク中に存在していたTiC粒塊が表面に現れてきたことを示している.

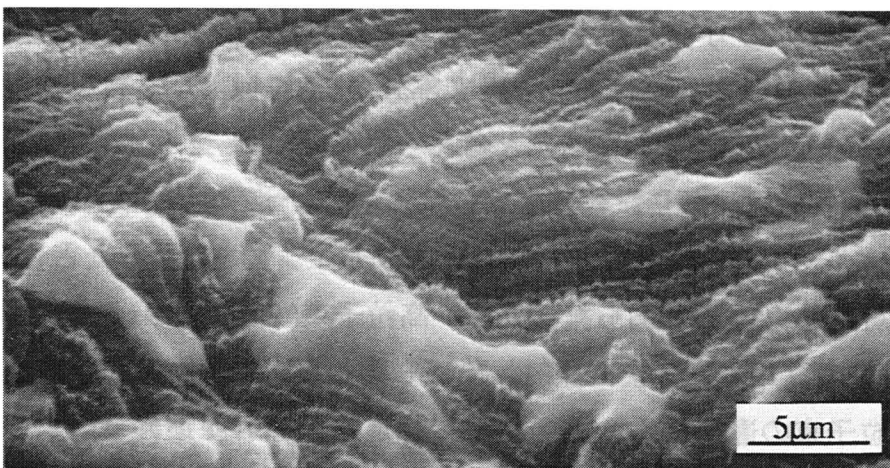
室温と1780Kで照射した後の表面形状を比較すると, TiC粒塊が表面に存在する割合は明らかに異なっている. このような違いは照射促進昇華による損耗が影響していると考えられる. まず, RG-Tiの炭素部分は照射促進昇華によって損耗する. その一方, TiCが照射促進昇華で損耗するかは明らかではないが, TiCへ重水素ビームを照射したときの損耗率は1200Kから1400Kの温度で一定であるという報告はある[7].



(a) 物理スパッタリングによる損耗

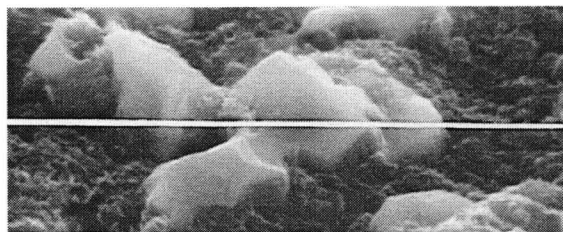


(b) 1780K, $1.2 \times 10^{20} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ での損耗

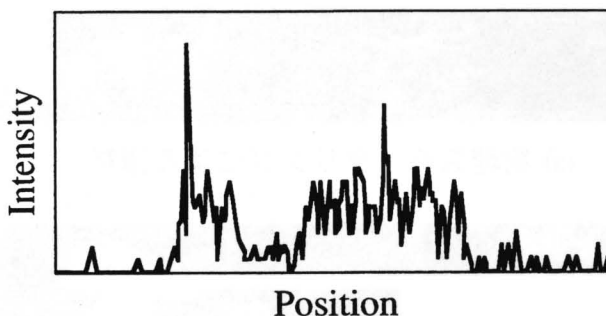


(c) 1780K, $8.0 \times 10^{20} \text{ Ar m}^{-2}\text{s}^{-1}$ での損耗

図5-7 5keVのArビームを照射した後の"RG-Ti edge"の表面形状.



(a) ビーム照射後のRG-Tiの表面



(b) Ti分布

図5-8 Tiから放出された特性X線の分布. (a)で示した線上をEDXを使って分析している. 特性X線は, 粒塊では強く検出されているが, 炭素部分では検出されない.

少なくとも, 試料温度を1400Kで加熱しても照射促進昇華は生じないことを意味している. 実際のビーム照射では試料温度を1780Kとしているが, この温度でもTiC粒塊の損耗は物理スパッタリングが支配的であると思われる. それゆえ, 図5-7で示すように1780Kでは照射促進昇華によって炭素部分がTiC粒塊よりも激しく損耗したために, TiC粒塊が表面に多く現れてきたと考えられる.

RG-Tiの表面状態は, 同じ試料温度でも粒子束によって違いが見られる. 低粒子束 ($1.2 \times 10^{20} \text{ Ar m}^{-2} \text{ s}^{-1}$) の場合, $1.9 \times 10^{23} \text{ Ar m}^{-2}$ のフルエンスを照射したときのTiC粒塊の表面からの高さは約 $3 \mu\text{m}$ であった. 一方, 高粒子束 ($8.0 \times 10^{20} \text{ Ar m}^{-2} \text{ s}^{-1}$) の場合は $4.2 \times 10^{23} \text{ Ar m}^{-2}$ のフルエンスまで照射したにも関わらず, 表面の凹凸は小さかった. このような粒子束の違いによる表面状態の相違は, 照射促進昇華による炭素部分の損耗率が粒子束が高くなるにつれて減少していき, TiC粒塊の損耗率と差違がなくなってくることによって生じたと思われる. 粒子束による表面状態の違いを検証するため, 粒子束によってTiC粒塊が表面からどの程度の高さまで現れてくるかを計算

によって見積もってみる。RG-Tiは、TiC粒塊と炭素部分とははっきりと分かれている。もし、TiC粒塊が物理スパッタリングによってのみ損耗するならば、その損耗率は粒子束に対してほとんど変化しない。ところが、図5-6で示したように、RG-Tiの全損耗率は強い粒子束依存性を示していることから、炭素部分は、TiC粒塊の存在に関係なく他の炭素材料と同じような粒子束依存性で損耗していることになる。そこで、炭素部分の損耗率を1780KにおけるISO-630の損耗率と等しいと仮定する。TiC粒塊の損耗率は、TiCへ5keVのArビームと熱エネルギー程度のH⁰原子を同時に照射した結果から求めている[2]。この文献によれば物理スパッタリングによる損耗率はC原子とTi原子に対して0.56C/Ar, 0.5Ti/Cである。Arビームを照射しているときのH⁰の存在は、化学スパッタリングに対しては相乗的な効果を生み出すが、物理スパッタリングにはほとんど貢献しないと考えられる。またArによるC原子とTi原子の損耗率は異なるが、フルエンスが増加してもその損耗率は変化しないと仮定して、ビーム照射によって損耗するTiC粒塊の深さを見積もっている。TiCの密度は $4.9 \times 10^3 \text{ kg m}^{-3}$ であるので[8]、低粒子束($1.2 \times 10^{20} \text{ Ar m}^{-2} \text{ s}^{-1}$)の粒子束で $1.9 \times 10^{23} \text{ Ar m}^{-2}$ のフルエンスを照射したときTiCは $2.1 \mu\text{m}$ 損耗し、高粒子束($8.0 \times 10^{20} \text{ Ar m}^{-2} \text{ s}^{-1}$)で $4.2 \times 10^{23} \text{ Ar m}^{-2}$ のフルエンスを照射したときは $4.6 \mu\text{m}$ 損耗する。炭素部分も同様に見積もると $4.8 \mu\text{m}$ と $6.5 \mu\text{m}$ となる。したがって、炭素部分とTiC粒塊の削れた深さの差から試料表面に現れるTiC粒塊の高さはそれぞれ低粒子束では $2.7 \mu\text{m}$ 、高粒子束では $1.9 \mu\text{m}$ であると見積もることができる。

計算結果と実験結果は低粒子束では一致するが、高粒子束では計算値と異なる。高粒子束での相違は、TiC粒塊の大きさを考慮していなかったためである。TiC粒塊は約 $4 \mu\text{m}$ の大きさであるため、照射前に表面近く存在していたTiC粒塊は、高フルエンス照射をすることによって完全に損耗してしまう。そこで、TiC粒塊の大きさを考慮にいと、表面からのTiC粒塊の高さは最大でも $1.7 \mu\text{m}$ にしかなりえない。このように、たとえ高フルエンス照射したとしても、高粒子束では低粒子束ほど顕著にTiC粒塊は試料表面に現れてこない。なぜなら、高粒子束領域では照射促進昇華による損耗率が大きく減少するからである。

RG-Tiの損耗の過渡変化も、ビーム照射による表面状態の変化と関係があると考えられる。照射前、炭素で覆われていたRG-Tiの表面は、照射促進昇華によって損耗を受ける。そのうち、表面が削れていくことによってバルク中に存在していたTiC粒塊が表面に現れてくるようになる。TiC粒塊で覆われた炭素部分は、粒塊の大きさがビームの飛程距離に比べて十分に大きいときは損耗しない。その結果、表面に存在する

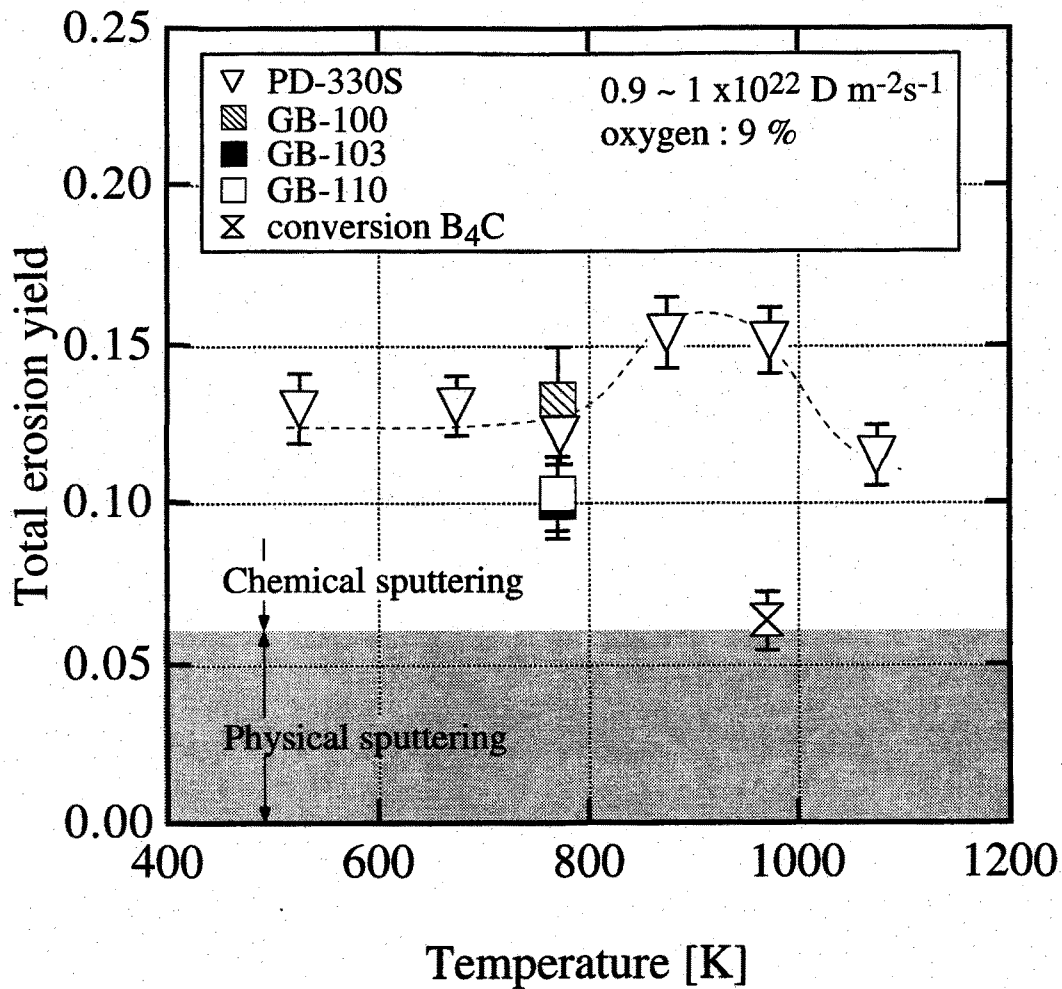


図5-9 5keVD₃ビームを照射したときの温度に対するボロン添加炭素材とB₄Cの全損耗率. 酸素が9%含まれている. また, PD-330Sの全損耗率も示している.

TiCの割合が増加するにつれて, 照射促進昇華で損耗する実効的な炭素部分の照射面積がしだいに減る. そのことが損耗率の過渡的減少につながり, 炭素材よりも損耗率が低くなった理由の1つと考えられる.

5.3 ボロン添加炭素材とB₄C

図5-9はボロン添加炭素材(GB-100,GB-103,GB-110)とB₄Cに5keVのD₃ビームを照射したときの全損耗率を示している. ボロン添加炭素材は770Kで照射している. この温度は, 高粒子束領域($\sim 10^{22}$ D m⁻²s⁻¹)では重水素による炭素の損耗が顕著になり始

め低粒子束領域($10^{16} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$)では損耗がピークとなる温度である。ボロンが含まれていないGB-100は、PD-330Sと同程度の損耗率になっている。また、ボロンを添加することで損耗率はGB-100よりも30%程度低減している。B₄Cの照射温度は970Kではあるが、ボロン添加炭素材よりさらに損耗率は低い。ビーム中には9%の酸素が含まれており、重水素と酸素の同時照射による相乗効果がないと仮定して、炭素の物理スパッタリングを見積もると約0.06となる。B₄Cの損耗率はこの物理スパッタリングの値と同じであり、ほとんど化学スパッタリングは起きていないと考えられる。また、低粒子束で照射したデータでも、B₄Cの損耗率は炭素材のような温度に対して強い依存性を示していない[9,10]。それに対して、ボロン添加炭素材はB₄Cの損耗率に比べると損耗率の減少幅が小さい。これは、酸素による化学スパッタリングが影響したためと考えられる。文献によれば、室温で酸素を等方性黒鉛EK-98やボロン添加炭素材に打ち込みその後昇温脱離(TDS)した結果、EK-98とGB-103から放出されたCOの温度分布は600-1200Kの温度範囲ではほぼ等しく、B₄Cから放出されたCOはGB-103の1/10以下であった[11]。このようにB₄Cは炭化水素が形成するのを妨げるばかりでなく、酸素による化学スパッタリングも抑制している[12]。

図5-10は、ボロンの添加量を変えたときの全損耗率の変化を示している。ボロンを3wt%B加えると損耗率が減少し、それ以上加えても損耗率は変わらない。この結果は、PISCESで得られた結果と一致する[13]。EK-98とGB-103から放出されたCOの温度分布がほぼ等しいことから[11]、等方性黒鉛とGB-103の酸素に対する損耗が等しいと仮定できるならば、ボロンを微量添加することによる全損耗率の減少は、COよりはむしろ炭化水素の放出が抑制されていることを示している。すなわち、ボロンの添加によって重水素による化学スパッタリングは減少する。ボロンは炭素の格子原子と3%まで置換型で固溶すると言われており[14]、そのことによってC-H結合エネルギーが低下することで、バルク中の水素トラップ量の減少につながる水素の捕獲と脱捕獲の過程に影響を与えたと考えられる[15,16]。

5.4 スパッタボロンの測定

前節で化学スパッタリングがボロンの添加によって抑制されることを示した。この効果はボロンの添加量が増加しても有効である[17]。そのボロンがビーム照射によってどのような状態で損耗していくのかを、ボロン膜から放出された粒子を直接四重極質量分析器(QMS)で測定することにより調べた。

ボロン膜は熱分解性黒鉛(P.G.)と等方性黒鉛(ISO-630,IG-430U)を基板として、真

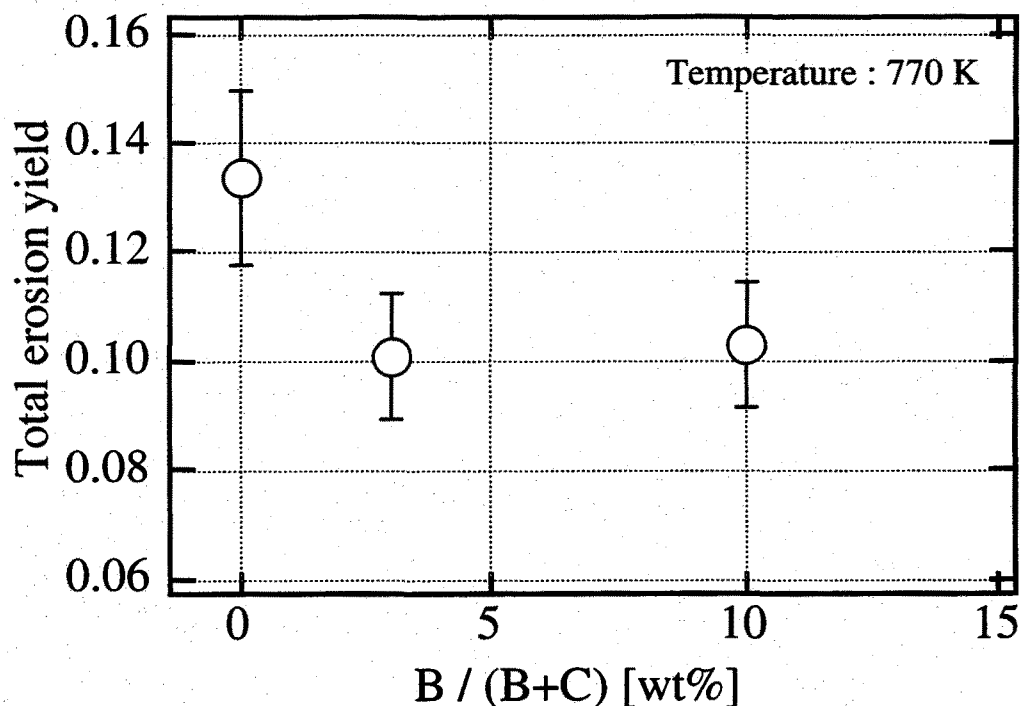


図5-10 ボロンの添加量が違う試料を使ったときの770Kにおける全損耗率の変化.

空蒸着法で蒸着速度を変えて成膜している。成膜したボロンの膜厚は、 $0.4\mu\text{m}$ 、 $1.5\mu\text{m}$ の2通りである。図5-11は、炭素材に成膜したボロン膜の表面形状を観察したものである。 $1.5\mu\text{m}$ のボロン膜を成膜した場合、P.G.では蒸着速度が遅いと $1\mu\text{m}$ 程度の球台上の粒塊が表面に一様に点在している。それに対して蒸着速度が速いと、ところどころに球台上の粒塊が見られる程度であった。ISO-630では $1\sim 2\mu\text{m}$ の粒塊が不規則に存在している。一方、 $0.4\mu\text{m}$ のボロン膜を成膜した場合、蒸着速度に関係なく成膜前の基板形状がそのまま保たれている。成膜したボロン膜の熱的安定性を調べるため、基板がISO-630であるボロン膜に対して直接通電して加熱したが、熱負荷によって表面形状が変化することはなく膜の剥離も起こっていない。

スパッタ粒子の直接測定を行うにあたり、まず試料とQMSの間にあるチョッパーを回転させながら $M/e=11$ の信号を検出した。その結果を図5-12に示す。チョッパーの回転にあわせて周期的に信号量は変化しており、チョッパーでスパッタ粒子の飛行を妨げているときに得られる信号はビーム照射前の値とほとんど変化がない。つまり、残留ガスの影響は極めて少ないことを示している。スパッタ粒子の飛行が妨

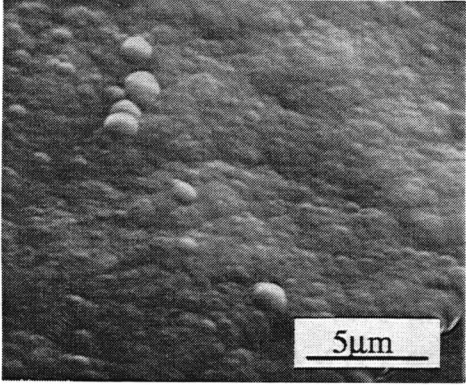
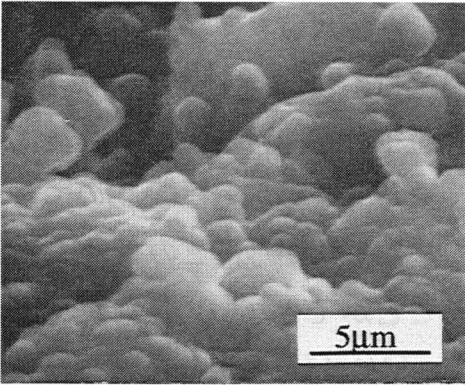
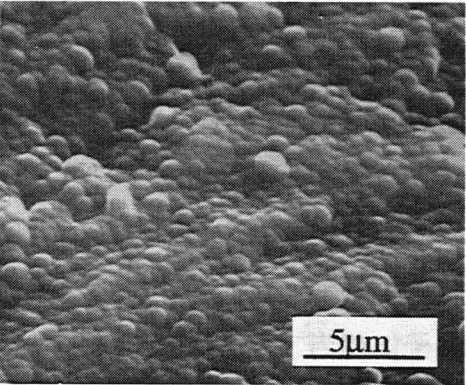
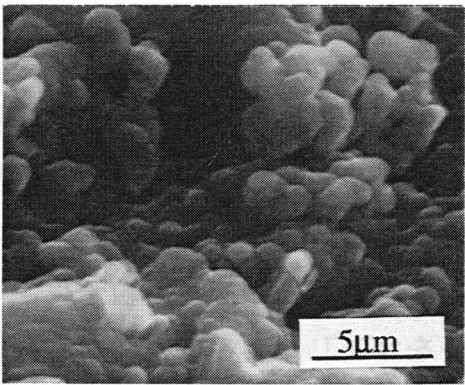
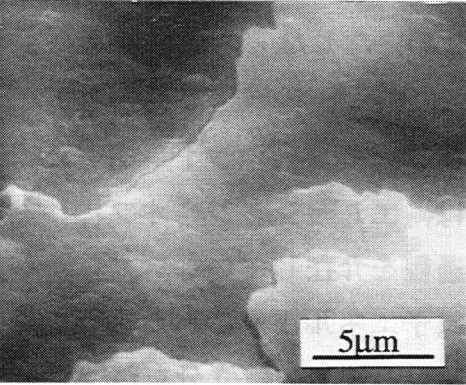
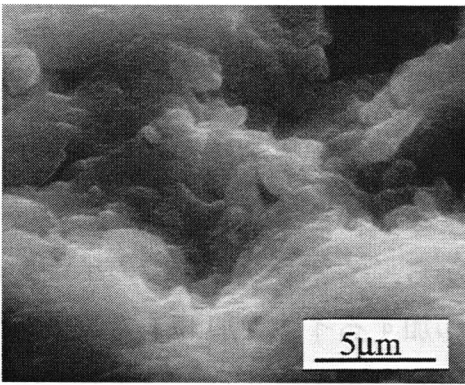
thickness	deposition rate	Substrate	
		P.G.	ISO-630
1.5 μm	0.46 ~ 0.66 nm/s		
	0.08 ~ 0.09 nm/s		
0.4 μm	0.48 nm/s	P.G. 	IG-430 

図5-11 ビーム照射前の炭素材に成膜したボロン膜の表面形状.

げられていないときは、ビーム照射によってスパッタされたボロンを検出している。スパッタされたボロンは、QMSで検出されたのを除き真空容器の内壁に再堆積しているかポンプによって排気されることで残留ガスとしては貢献していないと考えられる。

図5-13は、約700Kに加熱したボロン膜に5keVの D_3^+ ビームを照射したとき、QMSで測定したスパッタ粒子 ($M/e=11$)の信号の時間変化を示している。ビーム照射中、試料温度は870Kまで上昇する。試料とQMSの間に磁石を配置しなかった場合、スパッタ粒子の信号はショット直後に最大値をとり、そののち指数関数的に減少していく。また、この信号はQMSのエミッション電流をオフにしても、ほとんど変化しない。しかしながら、この信号は $M/e=11$ に現れたが、 $M/e=12$ のような質量数では検出することができない。反射粒子による信号は、質量数に無関係に検出されるのに対して、 $M/e=11$ で検出した信号は質量分離された信号であることから、ボロンイオン(B^+)を検出したものといえる。一方、試料とQMSの間に磁石を配置した場合、信号量は1桁減少する。おそらく、 B^+ が磁場によって偏向したために、検出しなくなったためと考えられる。このときの信号波形は、磁石を配置しなかった時とは異なり、ビーム照射している間ほぼ一定であるが、エミッションをオフにすると信号量は1/3まで減少する。エミッションをオフにしたときに検出した信号は、質量数に関係なく検出されていたので反射粒子によるものである。それゆえ、磁石を配置しエミッションをオンしたときの信号から反射粒子に相当する信号を差し引けば、中性粒子としてスパッタされたボロンの信号(B^0)が求められる。このように、ボロン膜にビームを照射すると、中性粒子のボロンに加えて、イオンの形でボロンがスパッタしていることが明らかになった。しかしながら、図5-13で示している中性粒子とイオンの信号量を単純に比較することはできない。なぜなら、信号を検出する過程が B^0 と B^+ では異なっているからである。図5-14に B^0 と B^+ の検出過程を示す。 B^0 の場合、イオンソースで B^0 をイオン化し、そのイオンを四重極ロッドへ引き込まなければ検出することができない。一方、 B^+ の信号は、エミッションをオフにしても変化がないことから、イオンソースでのイオン化過程を介在していない。しかし、イオンソースに印加するイオン加速エネルギーや電子エネルギーのパラメータを変化させると B^+ の信号量も変化する。つまり、イオンソースでの電位分布が B^+ の動きに作用することでその飛行軌道が偏向し、四重極ロッドに入ったイオンを検出していると考えられる。 B^0 と B^+ の定量的な比較をするためには、それぞれの粒子束を得ることが必要であるが、現状ではまだその段階に至っていない。

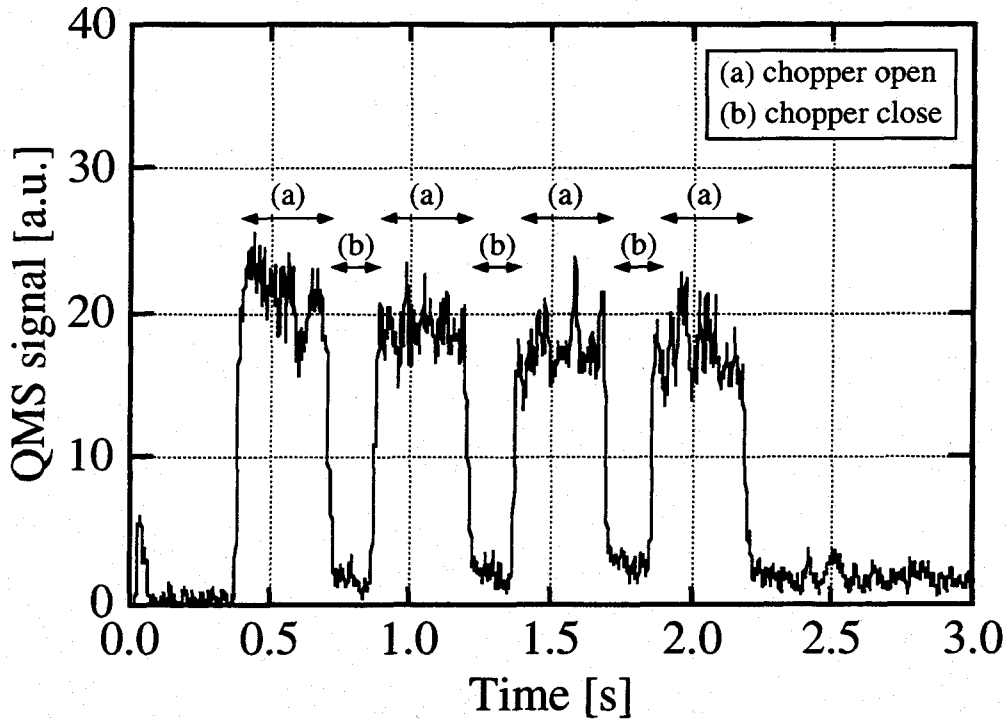


図5-12 チョッパーを回転させながらビーム照射したときのボロン (M/e=11)の信号。チョッパーの回転にあわせて周期的に信号量は変化している。

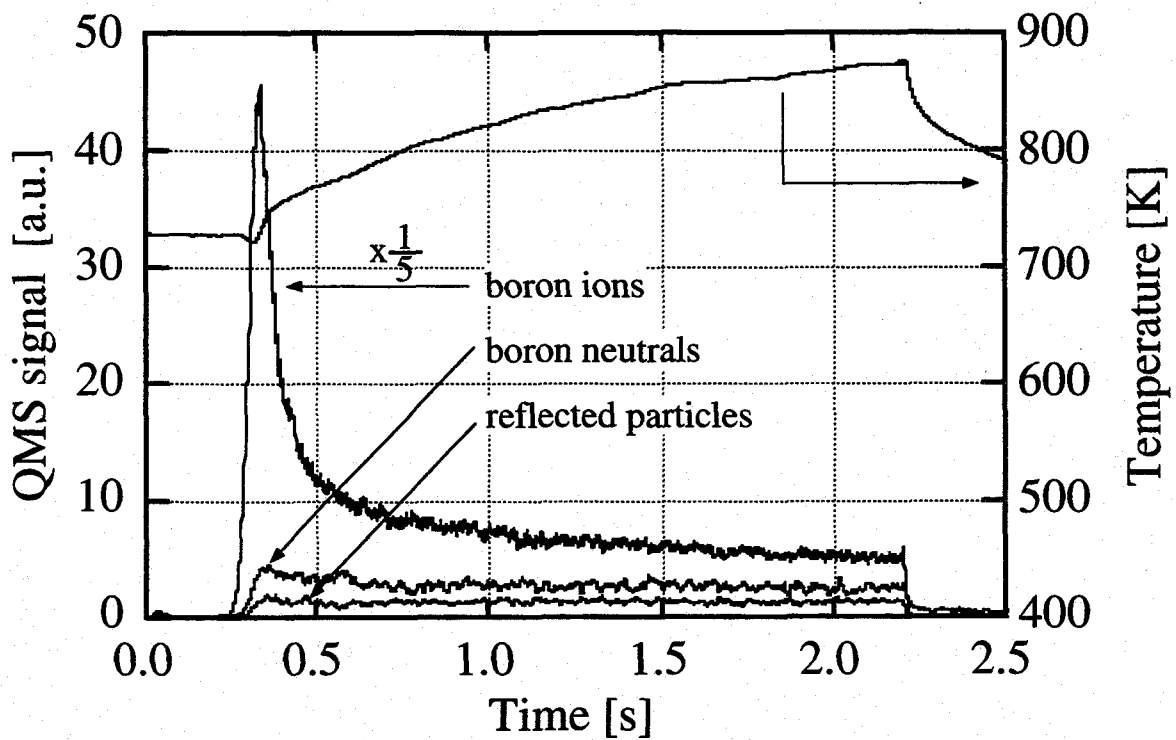


図5-13 スパッタ粒子 (M/e=11)の信号と表面温度の時間変化。ボロンはイオン(B⁺)と中性粒子(B⁰)の形でスパッタされている。試料表面で反射した粒子も検出している。

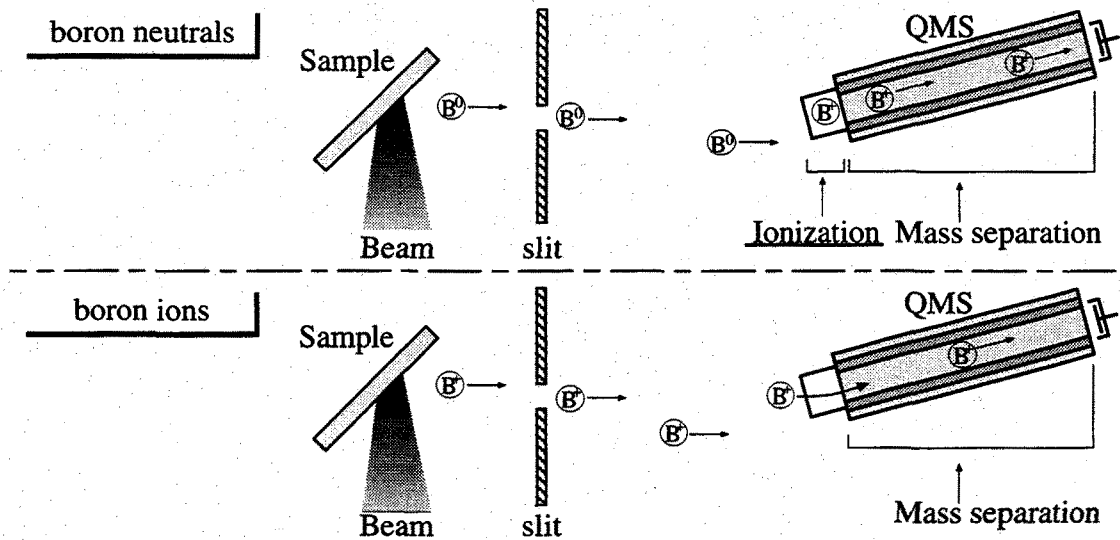


図5-14 B^0 と B^+ の検出過程. B^0 はイオンソースでイオン化するが, B^+ はイオン化することなく直接四重極部分に入り込んでいる.

図5-15は, IG-430Uに蒸着したボロン膜(蒸着速度0.5nm/s)からスパッタされた B^+ の信号変化を3,10,20,40ショット目について示している. ボロン膜へ照射したショットのうち, この図で示していないショットも, B^+ の信号は同じ様な信号変化をしており, ショット直後のピークは消えることはない. また, ピークの信号量は, 照射間隔が同じである限り, 照射回数が増えるにつれて減少していき, やがて一定となる. しかしながら, 一定になった後に照射間隔を十分にとって照射すると, 再びピークの信号量は増加する. 図5-16は, スパッタされたボロンの信号をフルエンスの関数として示している. この図から明らかなように, B^0 と B^+ のフルエンス依存性は大きく違っている. B^0 による信号は, フルエンスに対してもほとんど変化がない. 一方, B^+ の信号は, 各ショットで照射を終える直前の信号量をプロットしているが, それでもフルエンスが増加するにしたがって急激に減少し, やがて一定になる傾向を示している. このように B^+ の信号の過渡変化が生じるのは, 1つにはボロン膜の表面に存在する酸素と何らかの関係があると思われる. 実際, SIMSの使用方法として, 2次イオンの生成効率を向上させるために酸素を用いている[18-20]. SIMSを使った例では, 酸素ガスを試料近くに導入して測定したり[18], 酸素がもともと存在する酸化層の中で測定した報告があるが[19], いずれの場合についても, 酸素が介在することで2次イオンの生成効率は向上している. この報告をふまえて考えるならば, ボロン

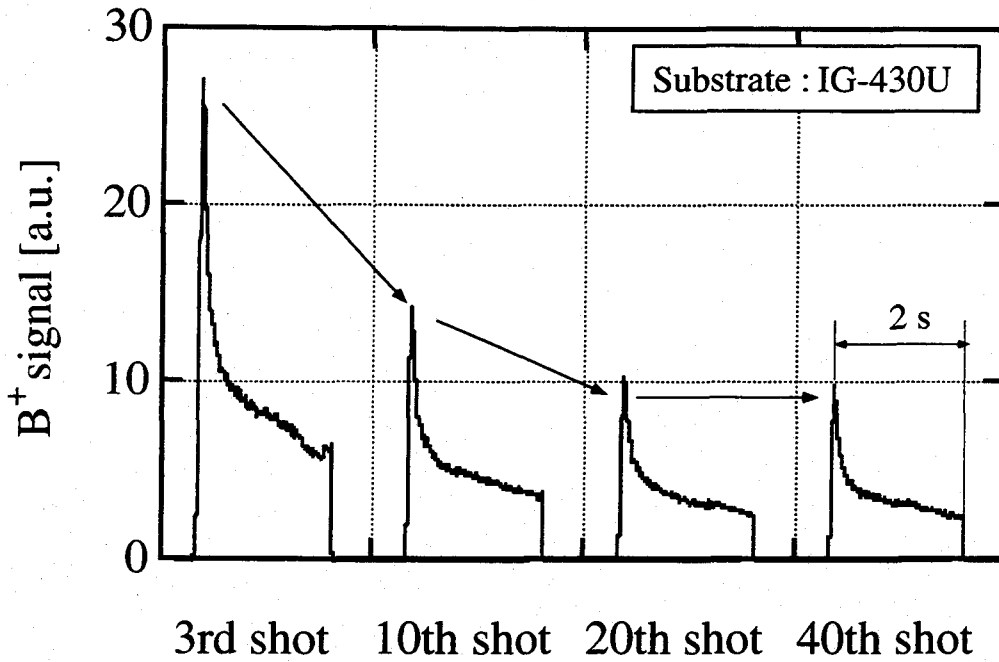


図5-15 3,10,20,40ショット目におけるB⁺の信号の時間変化.

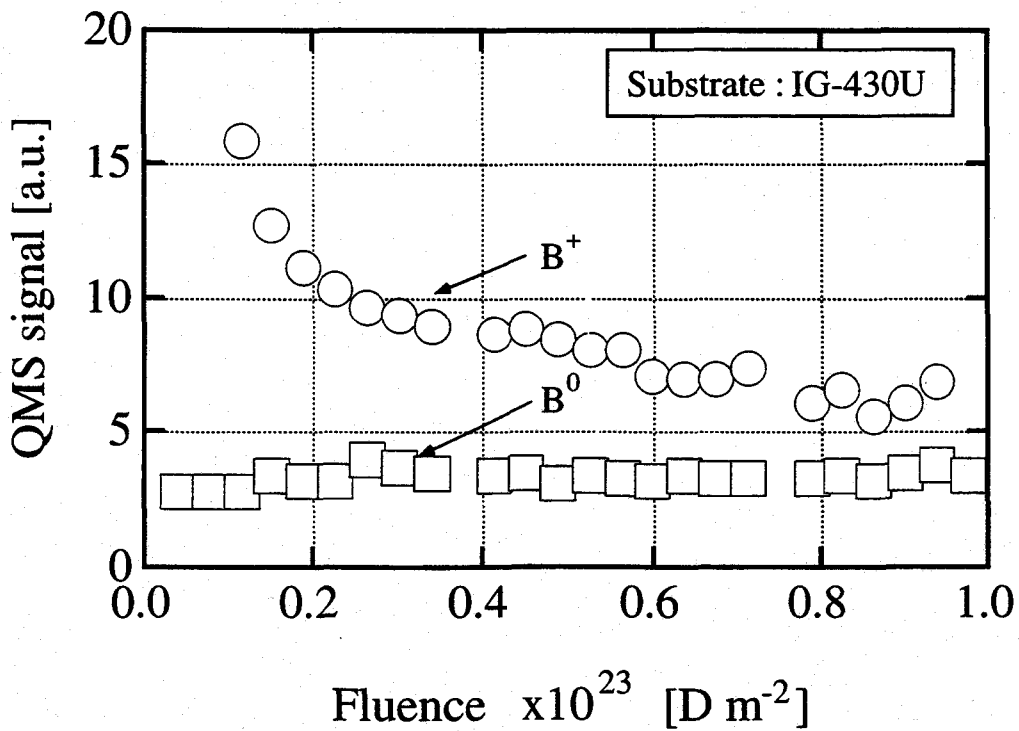


図5-16 IG-430Uに蒸着したボロン膜からスパッタされたB⁺とB⁰のフルエンス依存性.

膜の表面に酸素が存在すると、 B^+ の形でスパッタされる数が促進されることになる。また、ボロンは強い酸素ゲッターの効果があることから、ビーム照射していない90~120秒の照射間隔の間に残留ガスとして存在する酸素をゲッターリングしている可能性は十分にある。そのためショット直後にはピークが現れ、特に最初の数ショットでのピークの信号量は定常状態での信号量に比べ1桁大きい値となったと考えられる。

通常試料からスパッタリングによって放出される粒子は、中性粒子に加えてイオン衝撃の条件により 10^{-5} ~ 10^{-2} のイオンが存在していると考えられている[21]。種々の原子のうちボロンは O^- イオンを試料に打ち込むと炭素に比べて2桁以上もイオンとして放出されやすいことが知られている[20]。実験において照射しているビーム種は重水素であるが、ボロンが酸素をゲッターリングしやすい材料であること、そして炭素のスパッタ粒子の 10^{-5} 程度がイオンであるとしそれよりも2桁多い 10^{-3} 程度のイオンがボロン膜から定常的に放出されていると仮定できるならば、ショット直後ではスパッタしたボロンのうち数%がイオンとして放出されていることになる。 B^0 はスパッタされるとそのままコアプラズマへ混入してしまうが、 B^+ は周辺プラズマでの磁場の影響を受けすぐにはコアプラズマに入らず、壁に再堆積することもあり得る。その場合、見かけ上の損耗率は低下し、ボロンによる化学スパッタリングの抑制効果が持続することにつながると考えられる。

図5-17は、定常状態における異なる基板、蒸着速度での B^0 と B^+ の信号量を示している。 B^0 の信号は、蒸着速度や基板の種類によって若干の違いしかない。このように B^0 の信号は、温度、フルエンス、基板の種類や蒸着速度にも依存しない。表5-1は、P.G.とISO-630に成膜したボロン膜に5keVのArビームを照射したときの重量損失量から求めた損耗率を示している。損耗率は、基板の種類や蒸着速度に関して違いはない。この傾向は、スパッタ粒子測定による B^0 の信号と良く似ており、 B^0 の信号はボロン膜がビーム照射によって物理的にスパッタされたボロンの様子を捉えていると言える。一方、 B^+ の信号は B^0 とは異なった振る舞いをしている。蒸着速度については、IG-430とP.G.の両方とも蒸着速度が遅い方が信号量が多い。基板の違いでは、IG-430に成膜したボロン膜からスパッタされた B^+ の信号量は、基板がP.G.のものより1.5倍多い。同時に成膜したIG-430とP.G.でも B^+ の信号量に違いがあるのは、ボロン膜の表面形状が影響していると思われる。図5-18は、ビーム照射後の表面をSEMで観察した様子を示している。1.5 μm の厚さのボロン膜の場合、P.G.では照射前にあった細かい凸凹はなくなり平らで滑らかになっている。ISO-630は小さな結晶粒が

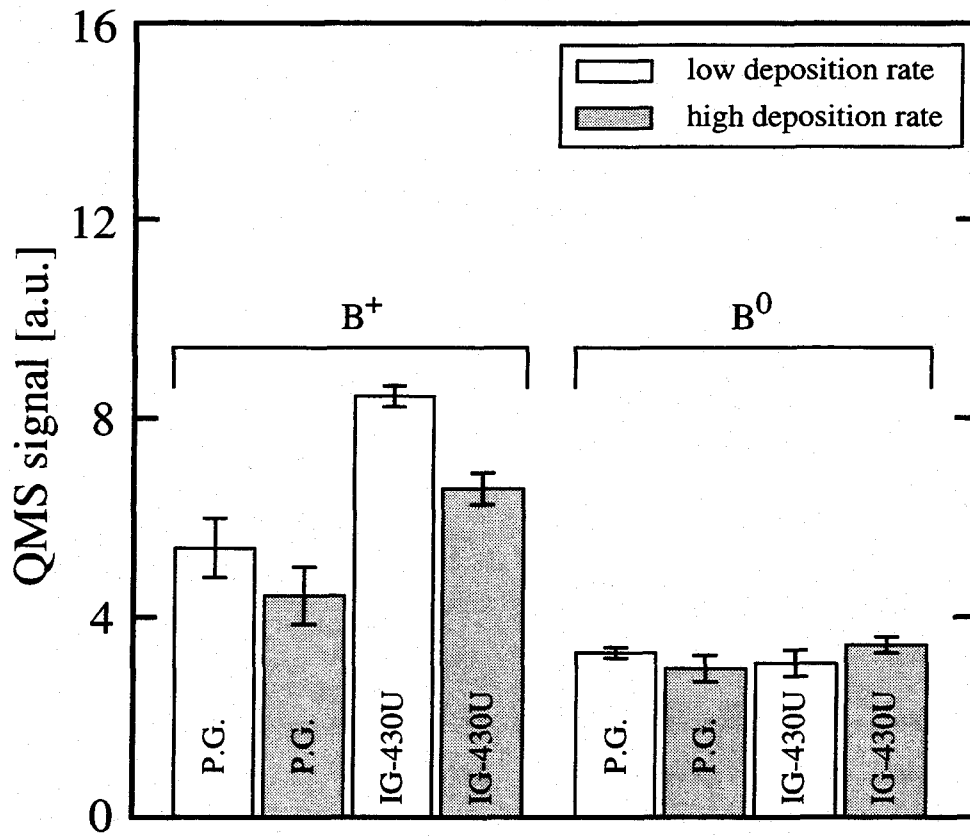


図5-17 定常状態における異なる基板，蒸着速度でのB⁰とB⁺の信号量.

表5-1 P.G.とISO-630に成膜したボロン膜に5keVのArビームを照射したときの損耗率.

deposition rate (nm/s)	Substrate	
	P.G.	ISO-630
0.08~0.09	1.0±0.3	1.0±0.2
0.46~0.66	0.9±0.3	1.1±0.5

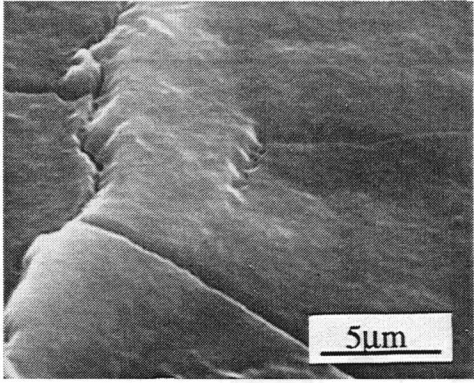
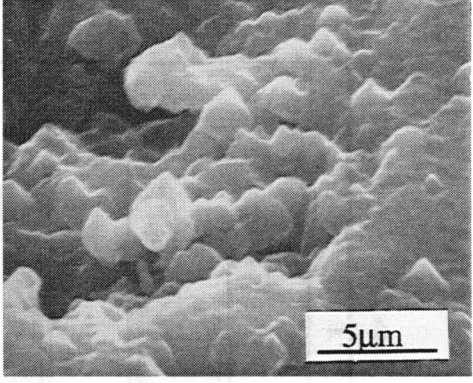
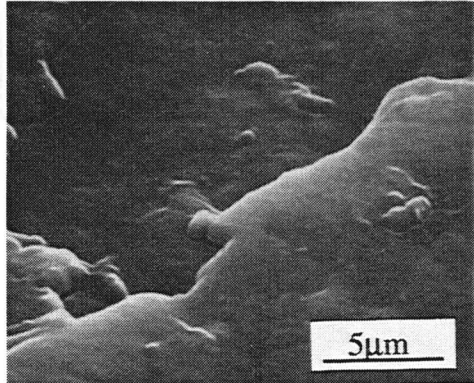
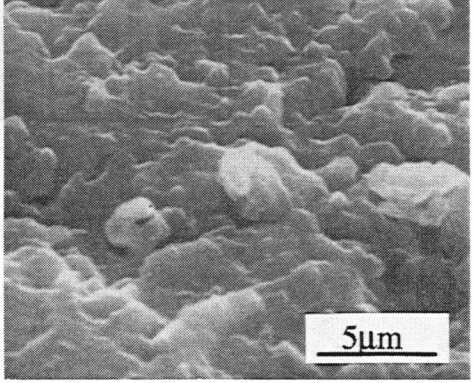
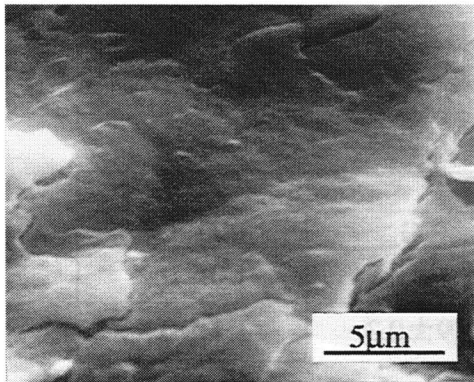
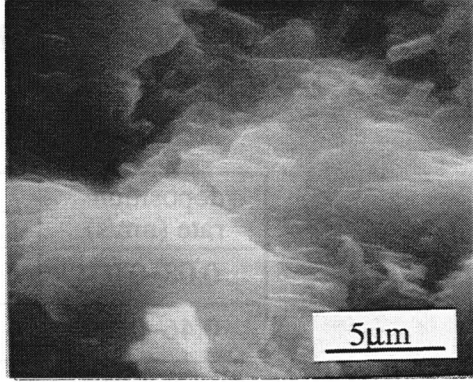
thickness	deposition rate	Substrate	
		P.G.	ISO-630
1.5 μm	0.46 ~ 0.66 nm/s		
	0.08 ~ 0.09 nm/s		
0.4 μm	0.48 nm/s		

図5-18 ビーム照射後の炭素材に成膜したボロン膜の表面形状.

ならされた状態になっている。0.4 μm の厚さのボロン膜の場合、P.G.とIG-430に成膜したボロン膜の表面形状は照射前と変化が見られていない。しかしながら、膜の厚さに関係なく、P.G.の表面は比較的平らであり、IG-430やISO-630は凸凹した表面形状をしている。このように定常状態においても、表面形状や蒸着速度によってスパッタされる B^+ 割合は変化する。 B^+ で放出される割合が多いとプラズマに与える影響が少なくなると考えられ、詳細な定量評価を含めた今後の展開が重要である。

5.5 まとめ

チタン添加炭素材RG-Ti, ボロン添加炭素材 B_4C , ボロン膜に高粒子束ビームを照射してその損耗挙動を調べた。

熱伝導性の良いRG-Tiを1980Kに加熱し5keVのArビームを照射したとき、RG-Tiの全損耗率は $2 \times 10^{23} \text{Ar m}^{-2}$ 以上のフルエンスでは等方性黒鉛ISO-630よりも20~30%低い値であった。また、 $1 \times 10^{20} \text{Ar m}^{-2} \text{s}^{-1}$ の高粒子束領域において、RG-Tiの損耗率はISO-630と同様に強い粒子束依存性を示した。照射後のRG-Tiの表面形状は温度や粒子束によって違いがあった。1780Kで照射するとRG-Tiの炭素部分が照射促進昇華によって損耗していくため、バルク内部に存在していたTiC粒塊が表面に現れてくるようになり、特に低粒子束側で顕著であった。また、1780Kでの粒子束の違いによるRG-Tiの表面形状の相違は、照射促進昇華が高粒子束領域で大きく減少することから説明できることを示した。

一方、ボロン添加炭素材や B_4C は1000K以下で5keVの D_3 ビームを照射した。そして、 $9 \times 10^{21} \text{D m}^{-2} \text{s}^{-1}$ の粒子束では重水素による化学スパッタリングが抑制されることがわかった。しかし、ボロンの添加量が3 wt% Bから10 wt% Bと変化しても全損耗率には変化が見られなかった。 B_4C は酸素による化学スパッタリングも抑制していた。

高粒子束領域でも化学スパッタリングを抑制する効果のあるボロンがスパッタしていく様子を、ボロン膜に5keVの D_3 ビームを照射しスパッタ粒子を四重極質量分析器で測定して調べた。ボロンはイオンと中性粒子の形でスパッタされており、 B^+ の信号量はショット直後にピーク値を示した。また、定常状態でも成膜条件や基板の種類によって B^+ の信号量は変化することが明らかとなった。

参考文献

- [1] Y. Gotoh, T. Yamaki, T. Ando, R. Jimbou, N. Ogiwara, M. Saidoh and K. Teruyama, "Sputtering characteristics of B_4C -overlaid graphite for keV energy deuterium ion

- irradiation", J. Nucl. Mater. **196-198** (1992) 708-712
- [2] E. Vietzke, K. Flaskamp and V. Philipps, "Dose dependence of TiC erosion by D⁺ and H⁰/Ar⁺ irradiation (synergistic effect), J. Nucl. Mater. **128&129** (1984) 564-569
- [3] J. W. Davis and A. A. Haasz, "Chemical erosion of sintered boron carbide due to H⁺ impact", J. Nucl. Mater. **175** (1990) 117-120
- [4] C. García-Rosales and J. Roth, "Chemical sputtering of pyrolytic graphite and boron doped graphite USB15 at energies between 10 and 1000 eV", J. Nucl. Mater. **196-198** (1992) 573-576
- [5] V. N. Chernikov, A. P. Zakharov, H. Ullmaier and J. Linke, "Microstructure of RGT graphite before and after helium implantation", J. Nucl. Mater. **209** (1994) 148-154
- [6] C. García-Rosales, J. Roth and R. Behrisch, "Sputtering and surface composition modifications of Ti doped graphite RG-Ti at temperatures up to 2000 K", J. Nucl. Mater. **212-215** (1994) 1211-1217
- [7] A. Santaniello, J. Appelt, J. Bohdansky and J. Roth, "Light-ion sputtering yield measurements of Ti and TiC under O₂ exposure at high temperature", J. Nucl. Mater. **162-164** (1989) 951-956
- [8] H. Th. Klippel, "Thermal behavior of bare and coated first walls under severe plasma-distribution conditions", Fusion Eng. Des. **9** (1989) 49-53
- [9] E. Gauthier, W. Eckstein, J. László and J. Roth, "Physical sputtering of low-Z materials", J. Nucl. Mater. **176&177** (1990) 438-444
- [10] J. Roth and W. Möller, "Mechanism of enhanced sputtering of carbon at temperatures above 1200 °C", Nucl. Instrum. Methods **B7/8** (1985) 788-792
- [11] A. Refke, V. Philipps, E. vietzke, M. Erdweg and J. von Seggern, "Interaction of energetic oxygen with different boron / carbon materials", J. Nucl. Mater. **212-215** (1994) 1255-1259
- [12] T. Yamaki, Y. Gotoh, T. Ando, K. Teruyama, "Erosion characteristics of B₄C-converted CFC composite", J. Nucl. Mater. **220-222** (1995) 771-775
- [13] Y. Hirooka, R. Conn, R. Causey, D. Croessmann, R. Doerner, D. Holland, M. Khandagle, T. Matsuda, G. Smolik, T. Sogabe, J. Whitley and K. Wilson, "Bulk-boronized graphite for plasma-facing components in ITER", J. Nucl. Mater. **176&177** (1990) 473-480
- [14] 田辺 哲朗, 宮原 昭, "プラズマ-壁相互作用とプラズマ対向材料",

日本原子力学会誌 **32** (1990) 544-554

- [15] R. Jumbou, N. Ogiwara, M. Saidoh, K. Morita, K. Mori and B. Tsuchiya, "Surface compositional change of B₄C under D₂⁺ implantation in high and low vacua and its effect on hydrogen retention", J. Nucl. Mater. **220-222** (1995) 869-872
- [16] Y. Yamauchi, Y. Hirohata, T. Hino, T. Yamashina, T. Ando, M. Akiba, "Hydrogen retention of B₄C converted graphite", J. Nucl. Mater. **220-222** (1995) 851-855
- [17] J. Roth, "Sputtering of limiter and divertor materials", J. Nucl. Mater. **176&177** (1990) 132-141
- [18] H. Gnaser and F. G. Rüdener, "Evaluation of a liquid metal ion source for secondary ion mass spectrometry", Nucl. Instr. and Meth. **218** (1983) 303-306
- [19] J. G. Newman, "Gallium beam SIMS depth profiling of dielectrics for the semiconductor", Secondary ion mass spectrometry **VII** (1990) 479-482
- [20] H. A. Storms, K. F. Brown and J. D. Stein, "Evaluation of a Cesium positive ion source for secondary ion mass spectrometry", Anal. Chem. **49** (1977) 2023-2030
- [21] 中村勝吾, "表面の物理", 共立出版株式会社

第6章 総括

核融合炉のプラズマ対向材である炭素材は非常に高い粒子負荷を受ける。その粒子負荷による損耗は、主に物理スパッタリングや化学スパッタリング、そして高温では照射促進昇華によって生じる。化学スパッタリングや照射促進昇華には粒子束依存性の存在が知られており、核融合炉周辺で想定される粒子束と同程度の高粒子束領域におけるビーム実験が切に望まれていた。本研究では、当研究室で開発された球面電極を備えるバケット型イオン源を使い、ダイバータでの粒子負荷条件に近い高粒子束ビームを炭素材に照射し、その損耗挙動について調べた。以下に得られた知見を示す。

第3章では、高粒子束領域における炭素材の化学スパッタリングについて調べ、 $1 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の粒子束では920~1020Kにかけて損耗率が最大となることがわかった。また、重水素による化学スパッタリングの最大値は 0.03 ± 0.01 であると見積もった。この値は低粒子束($\sim 10^{20} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$)での損耗率よりも約70%低くなっており、温度依存性において化学スパッタリングが最大となる温度は高温側へシフトすることを明らかにした。これらの結果を説明するため、バルク中の水素密度に基づく質量平衡方程式から化学スパッタリングを表現した。そして、高粒子束では高温側で低粒子束よりも捕獲サイトにある水素の密度が高くなるためピーク温度は高温側にシフトするが、粒子束の増加ほど揮発性炭化水素の放出量が増えないために損耗率は減少していくことを示唆した。

第4章では、照射促進昇華による炭素材の損耗について調べた。 $5 \times 10^{20} \text{ Ar m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ の粒子束においても照射促進昇華は生じ、温度に対する損耗率は活性化エネルギーが0.77eVで指数関数的に増加した。この活性化エネルギーは低粒子束領域での値とほぼ等しく、基本的な現象は高粒子束領域でも同じであることが明らかとなった。しかし、粒子束 ϕ に対する照射促進昇華の損耗率は、低粒子束での $\phi^{-0.07}$ とは異なり、高粒子束領域では粒子束に強く依存し $\phi^{-0.29}$ であることがわかった。ビームの入射角に対しては損耗率はほとんど依存性を示さなかった。これらの結果を説明するため、照射促進昇華の反応過程にビーム照射によって生成した格子間原子が空孔あるいはシンクとの再結合によって消滅する過程を取り入れると、低粒子束から高粒子束に

わたる広い粒子束で照射促進昇華の損耗率と一致することがわかった。それゆえ、低粒子束では格子間原子はシンクとの再結合が支配的なため弱い粒子束依存性を示すが、粒子束が高くなるにつれて空孔との再結合による消滅が支配的になり、損耗率は強い粒子束依存性を示して大きく減少することを明らかにした。

第5章では、チタンやボロンを炭素材に加えた炭素複合材の損耗挙動について調べた。まずチタンを炭素材に添加したRG-Tiの照射促進昇華による損耗は炭素材より20~30%減少することを示した。また、ビーム照射後のRG-Tiの表面形状は温度や粒子束によって違っていた。この違いは、チタンを含まない炭素部分が照射促進昇華によって損耗し、その損耗率が高粒子束で大きく減少するということが説明できることを述べた。一方、ボロンを3wt%B添加した炭素材は化学スパッタリングを抑制するが、それ以上ボロンの添加量を増やしても損耗率は変化しないことを示した。また、ボロンの損耗挙動をビーム照射中のボロン膜から放出されたスパッタ粒子を直接検出することで調べ、 B^+ の形でもスパッタされていくことを明らかにした。

以上により、本研究での結論は次の通りである。

炭素材特有の損耗現象である化学スパッタリングや照射促進昇華は、高粒子束領域($\sim 10^{22} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$)では従来の低粒子束ビーム実験の結果より損耗率が低減していた。特に、照射促進昇華は低粒子束領域での弱い粒子依存性よりも大きく損耗率が減少しており、高粒子束領域では粒子束効果が含まれた損耗過程を考慮に入れる必要がある。また高粒子束領域においても、チタンやボロンを炭素材に加えると損耗率がさらに抑制されることを示した。この結果は、プラズマ対向壁の設計に対して有用な情報を与えると考えられる。

最後に本研究で行った損耗の評価は、主に照射前後の重量損失量から求めた損耗率から行っている。そのため、この方法では照射中に試料で起きている損耗現象を捉えることができていない。しかし、さらに詳細な損耗のメカニズムを明らかにしていくためには、定常状態の損耗ばかりでなく過渡的な反応についても調べていく必要がある。したがって今後の課題として、プラズマ対向壁の粒子負荷環境に近いエネルギーでの高粒子束ビーム照射を行い、試料からスパッタされた粒子を検出することで、損耗現象のダイナミックな反応を調べるということが重要であるといえる。

謝辞

本研究は大阪大学大学院工学研究科電磁エネルギー工学専攻博士後期課程としての研究を西川雅弘教授の御指導の下に行ったものである。本研究の終わりに鑑み、博士前期課程入学以来6年間の長きにわたり絶えず懇切なる御指導と御鞭撻を賜りました西川雅弘教授に深く感謝の意を表すとともに心より厚く御礼申し上げます。

本学大学院工学研究科原子力工学専攻桂正弘教授ならびに同電子情報エネルギー工学専攻飯田敏行教授には、本論文作成にあたって細部にわたりご検討していただき、貴重な御意見を頂きました。ここに厚く御礼申し上げます。

本学大学院在学中において御指導、御教示を頂きました中井貞夫教授、青木亮三名誉教授、三宅正宣名誉教授、権田俊一教授、中塚正大教授、三間圀興教授、堀池寛教授に心より謝意を表します。

また、本学工学研究科原子力工学専攻助手として採用されて以来、大変お世話になりました同専攻竹田敏一教授、高橋亮人教授、宮崎慶次教授、山本忠史教授に心より謝意を表します。

本学大学院工学研究科電子情報エネルギー工学専攻上田良夫助教授には、本研究遂行の指針についての御教示や有益な御指摘を頂きました。ここに心より深く御礼申し上げます。

本学大学院工学研究科電子情報エネルギー工学専攻助手磯部倫郎氏には、実験遂行にあたり有益な御助言、御助力して頂きました。ここに深く御礼申し上げます。

若狭湾エネルギー研究センター伊藤義文博士、産業技術短期大学里見憲男助教授には本学大学院電子情報エネルギー工学専攻在任中に貴重な御教示を頂き、心より深く御礼申し上げます。

本研究の遂行にあたり御助力して頂いた、篠永春彦氏、中野香織さん、大橋準平氏、塩田佳代子さん、北村泰彦氏、また研究生生活を共にした電子情報エネルギー工学専攻電磁エネルギーコース超高温工学講座の大坪秀和氏、辻雅薫氏をはじめとする学生の皆様に感謝いたします。

なお、本研究遂行に対して日本育英会より奨学金を、また日本学術振興会からは研究奨励金を、文部省より科学研究費補助金による援助を頂きました。各機関に御礼申し上げます。

発表論文

- [1] Flux dependence of sputtering yield for C and B₄C by high flux neutral beam
Y. Ohtsuka, M. Isobe, K. Nakano, Y. Ueda, S. Goto and M. Nishikawa, J. Nucl. Mater. **220-222** (1995) 886-889
- [2] Erosion of pyrolytic graphite and Ti-doped graphite due to high flux irradiation
Y. Ohtsuka, J. Ohashi, Y. Ueda, M. Isobe and M. Nishikawa, J. Nucl. Sci. and Technol. **34** (1997) 792-798
- [3] The property of boron coatings deposited on graphite materials and its ion irradiation effect
Y. Ohtsuka, Y. Kitamura, Y. Ueda, M. Isobe and M. Nishikawa, Proceeding of 8th Int. Conf. on Fusion Reactor Materials (submitted)
- [4] Erosion yield of graphite and B₄C irradiated by high flux deuterium beams
M. Isobe, Y. Ohtsuka, H. Shinonaga, Y. Ueda, B. Kyoh and M. Nishikawa, Fusion Eng. Des. **28** (1995) 170-175
- [5] Reduction of Radiation Enhanced Sublimation of Graphite under High Flux Beam Irradiation
Y. Ueda, K. Nakano, Y. Ohtsuka, M. Isobe, S. Goto and M. Nishikawa, J. Nucl. Mater. **227** (1996) 251-258
- [6] Reduction of Erosion yield of graphite Materials under high flux beam irradiation
Y. Ueda, Y. Ohtsuka, M. Isobe and M. Nishikawa, Proceeding of 16th Int. Conf. on Fusion Energy, IAEA (to be published)
- [7] Detailed study of radiation enhanced sublimation of graphite under high flux beam irradiation
Y. Ueda, K. Shiota, Y. Kitamura, Y. Ohtsuka, M. Isobe and M. Nishikawa, Fusion Eng. Des. (submitted)
- [8] Erosion and surface morphology of graphite materials under high flux beam irradiation
Y. Ueda, K. Shiota, Y. Ohtsuka, M. Isobe and M. Nishikawa, Proceeding of 8th Int. Conf. on Fusion Reactor Materials (submitted)