

令和元年度博士論文

高エネルギーイオン照射による
核融合プラズマ対向材の内部損傷に関する研究

長岡技術科学大学 大学院 工学研究科 博士後期課程
エネルギー・環境工学専攻

内田雄大

論文内容の要旨 Abstract of Dissertation

エネルギーの長期安定供給を実現する次世代のエネルギー源として、核融合が注目されている。国際的な協力によって進められる核融合エネルギーによる原型炉 DEMO 以降の磁場閉じ込め型核融合システムにおいて、プラズマ対向壁の候補材料であるタングステンの表面は種々の粒子の入射により損傷する。特に、燃料である高温のプラズマから不純物を排気するダイバータへのヘリウムイオン照射の影響については、keV 以下の低エネルギー領域で盛んに研究されており、試料表面 (~ 100 nm) にヘリウムバブルや繊維状ナノ構造が生成されることが明らかにされてきた。しかし、燃料プラズマを閉じ込める磁場配位により高エネルギー粒子が燃料プラズマから損失するトロイダルリップロスのため、MeV 級の高エネルギーヘリウムイオンが第一壁に入射し、材料深部 ($\sim \mu$ m) で欠陥層が生成されることが予測されている。高エネルギーのヘリウムイオンを材料に照射するとプリスターと呼ばれる水ぶくれ状の表面剥離が生成される。このような損傷はプラズマ対向壁の減肉、機械的性質の劣化、放射損失による燃料プラズマの冷却を引き起こす可能性がある。金属へのヘリウムイオン照射によるプリスター生成に関しては 50 年以上前から広く研究がなされているが、プラズマ対向材にタングステンの使用が検討され始めたのが 30 年前であり、特に第一壁への使用が注目されたのは最近であるといった歴史的背景から、室温でのタングステンへの MeV 級のヘリウムイオン照射による研究は少ない。そのため、将来の核融合システム設計のためには、プラズマ対向材としてタングステンのプリスター生成機構を明らかにする必要がある。本研究では、MeV 級のヘリウムイオン照射がタングステン内部に及ぼす影響を調査し、プリスター生成特性を明らかにすることを目的とする。

本論文は全 6 章で構成される。

第 1 章では、本研究の背景と目的について述べる。磁場閉じ込め型核融合装置の概要について説明し、プラズマ対向材であるダイバータと第一壁に入射するヘリウムイオンの粒子フラックス、フルエンス、運動エネルギー分布などについて述べる。また、ヘリウムイオン照射により発生するヘリウムバブル、再結晶脆化、プリスターについて説明する。

第2章では、本研究で構築したヘリウムイオン照射と内部損傷を観察するための実験系・観測系について述べる。静電加速器により MeV 級のヘリウムイオンビームをタングステン板材に照射する実験系を構築した。測定したイオン電流から、粒子フラックス、フルエンスなどを計算した。また、照射中の試料表面の温度の時間発展を熱電対により測定した。照射後のタングステン試料を集束イオンビーム装置 (FIB) により加工し、走査電子顕微鏡 (SEM)、透過電子顕微鏡 (TEM) により内部の損傷を観察する実験の流れを構築した。

第3章ではブリストア発生時の臨界フラックスと拡散との関係について調査する。ブリストア発生時の臨界フラックスが粒子フラックスによるヘリウムの流入とタングステン中のヘリウムの拡散による流出との兼ね合いであることを理論的に見積もり、ヘリウムイオン照射実験の結果と比較したところ、見積もられた臨界フラックスが実験結果とおおよそ一致することを確認した。これは、同じフルエンスでも運動エネルギー、および粒子フラックスの違いにより、現象が大きく異なり、核融合システム設計で見積もられている不純物の燃料プラズマへの混入や第一壁の損傷が予想よりも深刻な影響を及ぼす可能性を示唆する。臨界フラックスを導いたことにより、将来の核融合システム設計において、ブリストア発生時の有無を予測できる可能性がある。

第4章ではヘリウムイオン照射によるタングステン内部の構造変化について述べた。ヘリウム照射後のタングステン試料内部の同一箇所を TEM と SEM で観察できる FIB 加工を行い、TEM によりヘリウム照射後のタングステン試料内部を観察し、電子回折像から結晶粒径が増加していることを確認した。SEM によりヘリウム照射後のタングステン試料内部を観察し、電子線後方散乱 (EBSD) から結晶粒径が増加していることを確認した。これは、ヘリウムイオン照射によって、タングステンの温度が局所的に上昇し再結晶化した可能性を示唆している。

第5章ではブリストアの生成機構・ブリストア膜厚とヘリウムイオンビームの飛程との関係について述べた。ブリストア生成機構の一つである内圧モデルについて説明し、ブリストアの観測された実験条件が内圧モデルと矛盾しないことを示した。また、ブリストア

膜厚が飛程よりも大きいことを明らかにした。これは、将来の核融合システム設計において、第一の肉厚を考える際に、従来のスパッタリングによる減肉や飛程の計算結果に基づく設計では、過小評価である可能性を示唆する。

第6章では、前章までに得られた知見をまとめ、本論文の総括とした。

目次

第1章 序論	2
1.1 はじめに	3
1.2 エネルギー問題	3
1.3 核融合発電システム	4
1.4 磁場閉じ込め型核融合におけるプラズマ対向壁	5
1.4.1 ダイバータ	5
1.4.2 第一壁への高エネルギーヘリウムイオンの入射	7
1.5 タングステン損傷評価の重要性と課題	8
1.5.1 再結晶脆化	8
1.5.2 ヘリウムバブル	9
1.5.3 ブリスター	10
1.6 研究目的	12
第2章 ヘリウムイオン照射と内部損傷を観察するための実験系・観測系の構築	13
2.1 はじめに	14
2.2 高エネルギーヘリウムビーム照射による損傷生成	14
2.2.1 タンデム型静電加速器	14
2.2.2 損傷を模擬するためのビーム照射時間の検討	16
2.2.3 実験条件	16
2.3 薄膜加工および内部損傷の観察手法	18
2.3.1 集束イオンビーム (Focused Ion Beam: FIB)	18

2.3.2	損傷観察に必要な加工すべき試料の深さおよび厚さの検討	20
2.3.3	実験条件および実験工程	20
2.3.4	透過電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscope: TEM)	26
2.3.5	走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope:SEM)	30
第 3 章	ブリストア発生 の臨界フラックスと拡散との関係	34
3.1	はじめに	35
3.2	ブリストア発生の臨界フラックスの理論的見積もり	35
3.3	ヘリウム照射実験結果	36
3.3.1	ヘリウム照射後のタングステンの表面	36
3.4	見積もられた臨界フラックスと実験結果との比較	41
第 4 章	ヘリウムイオン照射によるタングステン内部の構造変化	43
4.1	はじめに	44
4.2	照射後のタングステン試料の内部観察	44
4.3	TEM によるヘリウム照射箇所と未照射箇所の比較	45
4.4	TEM と SEM によるヘリウム照射箇所と未照射箇所の比較	45
4.5	ヘリウム照射によるターゲットの温度上昇の見積もり	47
4.5.1	タングステン試料のみの温度上昇	50
4.6	見積もられたターゲットの温度上昇と実験結果との比較	50
第 5 章	ブリストアの生成機構・ブリストア膜厚と飛程との関係	52
5.1	はじめに	53
5.2	ブリストアの駆動力	53
5.2.1	内圧モデル	53
5.2.2	ブリストア内部にあるヘリウムの数	55
5.2.3	内圧モデルと実験結果との比較	55
5.3	ブリストアの膜厚と飛程との関係	57

5.3.1	ブリスター膜厚の測定	57
5.3.2	ブリスター膜厚と飛程との比較	60
第 6 章	結論	64
	謝辞	74

目 次

1.1	磁場閉じ込め型核融合における発電、ブランケットの概念	6
1.2	ITER におけるダイバータ磁場配位 [15]	7
1.3	再結晶化による結晶粒径の増加の概略図	9
1.4	ヘリウムバブルの概略図	10
1.5	プリスターの概略図	11
2.1	タンデム型静電加速器の概略図	15
2.2	イオンコレクタとタングステン試料 [33]	17
2.3	FIB を用いたタングステン試料の薄片加工の概念図	19
2.4	タングステン中のヘリウムの入射エネルギーに対する飛程	21
2.5	タングステン試料のサンプリング箇所	22
2.6	表面加工および W デポジション (保護膜) の例 (工程番号:1,2)	26
2.7	周辺加工の例 (工程番号:3-7)	26
2.8	底切の例 (工程番号:8)	27
2.9	W デポジション (プローブ) の例 (工程番号:10)	27
2.10	アーム切断の例 (工程番号:11)	27
2.11	W デポ (試料台) の例 (工程番号:12)	27
2.12	プローブ切断の例 (工程番号:13)	28
2.13	粗加工の例 (工程番号:14,15)	28
2.14	中加工 1 の例 (工程番号:16-17)	28
2.15	中加工 2 の例 (工程番号:18-19)	28

2.16	中加工 3 の例 (工程番号:20-25)	29
2.17	ダメージ除去加工の例 (工程番号:26-27)	29
2.18	生物用光学顕微鏡 (a) と透過型電子顕微鏡 (b) の比較 [39]	30
2.19	透過波と回折波の経路	31
2.20	単結晶を観察した際の TEM 像のイメージと回折像のイメージ図	31
2.21	4 つの単結晶を観察した際の TEM 像のイメージと回折像のイメージ図	32
2.22	細かい粒径の多結晶を観察した際の TEM 像のイメージと回折像のイメージ図	32
2.23	入射電子による試料からの情報 [40]	33
3.1	タングステン中に注入されたヘリウムの数密度の深さ分布	37
3.2	タングステンの深さ方向に対する局所的なヘリウムの流入と流出	37
3.3	入射イオンフラックスとタングステン中のヘリウムの流出との比 J_{in}/J_{out} の J_{in} 依存性.	38
3.4	典型的なビーム電流とタングステンの表面温度の時間発展 [33]	39
3.5	照射前後のタングステン表面の写真 [33]	40
3.6	図中のプリスター周辺の拡大写真 [33]	40
3.7	ヘリウム照射後のタングステン試料の表面の写真	42
4.1	FIB による TEM/SEM で同箇所を作成するための加工手法	46
4.2	ヘリウム未照射箇所の明視野像 (a) と電子回折像 (b) [56]	46
4.3	ヘリウム照射箇所の明視野像 (a) と電子回折像 (b) [56]	47
4.4	TEM と EBSD によるヘリウム未照射箇所のタングステンの深さ方向の観察結果	48
4.5	TEM と EBSD によるヘリウム未照射箇所のタングステンの深さ方向の観察結果 (生データ)	48
4.6	TEM によるヘリウム照射箇所と未照射箇所の明視野像	49
4.7	イオンコレクタの概略図 (単位:mm)	51

5.1	ブリストア断面の概略図	54
5.2	タングステン表面に生成されたブリストアの画像 (Sample003)	58
5.3	タングステン試料の断面観察の説明図	58
5.4	SEM によるタングステン断面の二次電子像 (Sample003)	59
5.5	ブリストアの膜の概略図	59
5.6	ブリストア膜厚と 4 MeV ヘリウムのタングステンへの飛程	62
5.7	ヘリウムバブルの結合とブリストア生成の概略図	62
5.8	TRIM で計算した 4 MeV ヘリウム照射後のタングステンの dpa 深さ分布	63
5.9	ヘリウム照射によるタングステンの降伏応力の深さ依存性	63

表 目 次

2.1	典型的な高エネルギーヘリウムビーム照射実験の条件	17
2.2	電子顕微鏡試料作製のための FIB を用いたタングステンの加工工程の例 . .	23
2.3	加速電圧 40kV の場合のレンズモードとビーム制限アパーチャの組み合わせ例	24
3.1	タングステン試料への 4MeV He ²⁺ の照射条件とプリスターの数	39
5.1	N_i と N_b との比較結果	56

第 1 章

序論

1.1 はじめに

エネルギーの長期安定供給を実現する次世代のエネルギー源として、核融合が注目されている。国際的な協力によって進められる核融合エネルギーによる原型炉 DEMO 以降の磁場閉じ込め型核融合システムにおいて、プラズマ対向壁の候補材料であるタングステンの表面は種々の粒子の入射により損傷する。将来の核融合システム設計のためには、プラズマ対向材として検討されているタングステンのプリスター生成機構を明らかにする必要がある。

本章では、本研究の背景と目的について述べる。磁場閉じ込め型核融合装置の概要について説明し、プラズマ対向材であるダイバータと第一壁に入射するヘリウムイオンの粒子フラックス、フルエンス、運動エネルギー分布などについて述べる。また、ヘリウムイオン照射により発生するヘリウムバブル、再結晶脆化、プリスターについて説明する。

1.2 エネルギー問題

産業革命以降の人類のエネルギー消費によって、資源の枯渇が問題となっている [1]。石油 [2]、石炭 [2]、天然ガス [2]、ウラン [3] の可採年数はそれぞれ、53 年、109 年、56 年、93 年で資源は有限である。また、化石燃料の消費によって地球温暖化 [4] などの環境問題が懸念されている。しかし、今後もエネルギー消費量は、人口とともに増加することが予測される。そこで、ほぼ永続的に利用でき、二酸化炭素 (CO₂) の排出量が少ない (製造、建設時の CO₂ 排出量も含む) エネルギー源が注目されている。太陽光発電、風力発電などの再生可能エネルギーは、発電時に CO₂ を排出しない。しかし、天候に左右されるため、安定的なエネルギー供給が難しい。水力発電や地熱発電も同様に CO₂ を排出しないが、開発箇所に限りがあり、新たな発電所の建設は難しい。核分裂反応を利用した原子力発電は、社会的受理性や高レベル放射性廃棄物の超長期的な処分の問題を解決する必要がある [5]。これらの問題を解決するため、供給安定性、安全性を有する新たな発電方式の一つとして核融合発電が期待されている。核融合発電には以下のような利点がある [6]

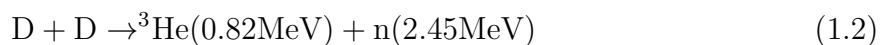
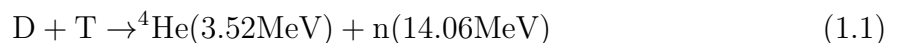
- 燃料である重水素 (D) は、海水からほぼ無尽蔵に取得できる。また、リチウムは鋳

石、海水中に存在する。

- 二酸化炭素などの環境問題の原因となる生成物を排出しない。
- 超長期にわたる廃棄物の処理がない。
- 炉心の暴走がない。固有の安全性を有する。

1.3 核融合発電システム

核融合は、軽い原子同士が衝突した際により重い元素へと核変換する反応である。このとき、質量欠損分のエネルギーが放出される [7]。核融合をエネルギー源として利用する際には、燃料の断面積（反応確率）と反応にともなうエネルギー放出が大きいことが要求される。そこで、現在の核融合開発において、D-T 反応と D-D 反応と呼ばれる 2 つの核反応が有用視されている。D-T 反応は、重水素 (D: Deuterium) と三重水素 (T: Tritium) の反応である。また、D-D 反応は、重水素同士の反応である。以下に D-T 反応と D-D 反応の核融合反応式をそれぞれ示す。ここで、式中の () は、それぞれの粒子の運動エネルギーである。D-D 反応によって生成される核種は、 ^3He , n の場合と T, p の場合の 2 通りがある。また、それらの反応頻度は同じである。



核融合反応を発生させるには、クーロン障壁を乗り越えて原子核を核力が作用する程度まで近づける必要がある。そこで、燃料原子を高温・高密度の電離気体（プラズマ）にすることで衝突確率を上げ、反応効率を高める熱核融合方式が検討されている。現在の核融

合研究は、その閉じ込め方式の違いから、磁場閉じ込め型と慣性閉じ込め型に大きく分類される [8,9]。本論文では、磁場閉じ込め型に着目する。磁場閉じ込め型は、サイクロトロン運動を利用してプラズマを磁力線の籠に閉じ込める方式である。閉じ込め磁場の形状からトカマク型、ヘリカル型などに分類される。トカマク型は、トーラス(ドーナツ状)に沿ったトロイダル磁場とプラズマ中をトーラス方向に流れる電流が作る磁場で軸対称のプラズマを閉じ込める方式である。トカマク装置の代表例として、ITER [10]、JET [11]、JT-60U [12] などがある。ヘリカル型は、トーラス状の容器に沿って螺旋状に巻きつけたコイル(ヘリカルコイル)によって生成される非軸対称の螺旋磁場を用いてプラズマを閉じ込める方式である。この方式はステラレータ型とも呼ばれる。例として、LHD [13]、Wendelstein 7-X [14] などがある。

図 1.1 に磁場閉じ込め型核融合における発電、ブランケットの概念 [10] を示す。DT 反応によるエネルギーの 80% は 14MeV 中性子の運動エネルギーとして発生する。この中性子の運動エネルギーを発電に利用するために、プラズマを取り囲むブランケットと呼ばれる構造物で中性子を受け止めて、その運動エネルギーを熱エネルギーに変換する。熱を取り出すために、液体または気体の冷却溶媒を循環させ、軽水炉や火力発電と同様の蒸気タービンによって電気エネルギーへ変換する。燃料である三重水素は自然界に少ないため、中性子とブランケット内の液体リチウムとの反応を利用して三重水素を増殖する。生成された三重水素はブランケットから取り出され、燃料として炉心へ供給される。

1.4 磁場閉じ込め型核融合におけるプラズマ対向壁

1.4.1 ダイバータ

磁場閉じ込め型核融合装置において、燃焼プラズマの主な加熱源は、DT 反応で生成される 3.5MeV のヘリウムイオン(α 粒子)である。一方で、衝突によってエネルギーを失ったヘリウムイオン(He 灰)は、プラズマを希釈し、反応効率を下げる。さらに、炉心プラズマから逃げ出した荷電粒子が周辺の壁をスパッタリングし、不純物がプラズマの温度を下げる恐れがある。しかし、これらの He 灰や不純物はイオンとなり磁力線に束縛され

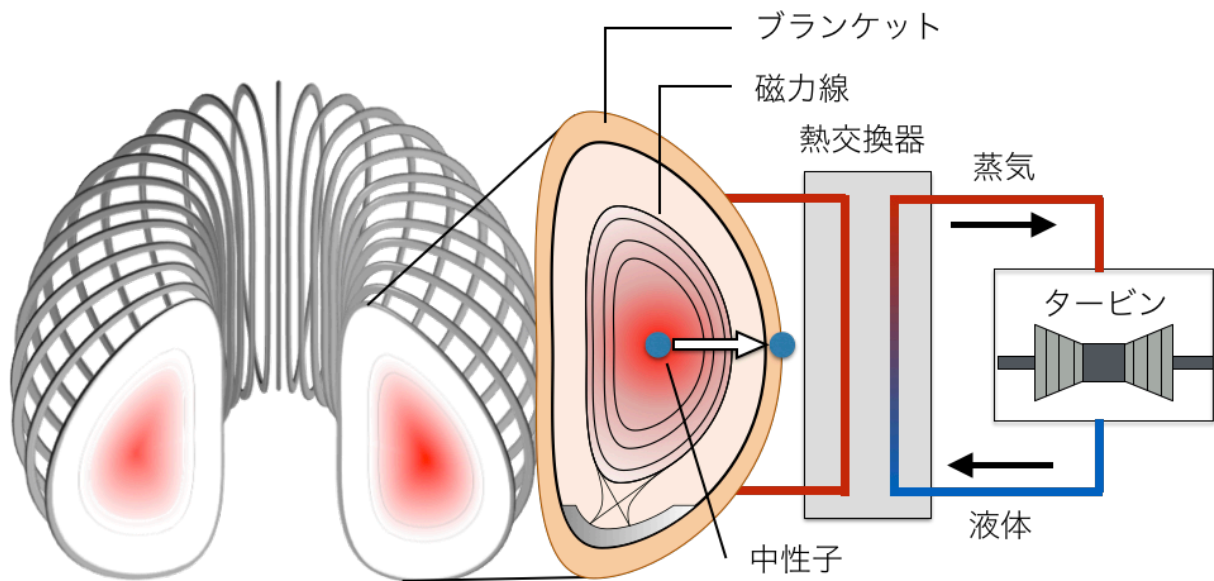


図 1.1 磁場閉じ込め型核融合における発電、ブランケットの概念 [10]。

るため、炉心プラズマの外に取り出すことが難しい。そこで炉心プラズマから周期的なプラズマの吐き出し (Edge Localized Mode: ELM) 等によってスクレイプ・オフ層まで移動した粒子を、磁力線によって固体壁表面まで導き、真空ポンプで排気する方法が考案された。この磁力線と交わる部分に設置されるプラズマ対向機器のことをダイバータと呼ぶ。図 1.2 に ITER におけるダイバータ磁場配位を示す [15]。固体壁と交差せずに磁力線が織り込まれる最外殻磁気面をセパトリクスと呼ぶ。セパトリクス内部の閉じた同心円状で囲まれる領域を炉心プラズマ (Region I に相当する)、セパトリクス周辺を周辺プラズマ (Region II に相当する)、セパトリクス外側をスクレイプ・オフ層 (SOL: Scrape-Off Layer) (Region III に相当する) と呼ぶ。セパトリクスを横切って炉心プラズマから SOL 層に流出した荷電粒子は、磁力線に沿ってダイバータへと導かれる。

Behrisch らは、電荷交換により炉壁へ入射する中性粒子フラックスと平均の運動エネルギー分布を計算している [16]。その結果、ダイバータに位置する領域で、最大 $10^{19} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 程度の粒子フラックスの鋭いピークが確認された。また、それらの運動エネルギーは 1–100 eV 程度である。

このように、ダイバータの表面には、荷電粒子や中性粒子が常に入射するため、高い熱

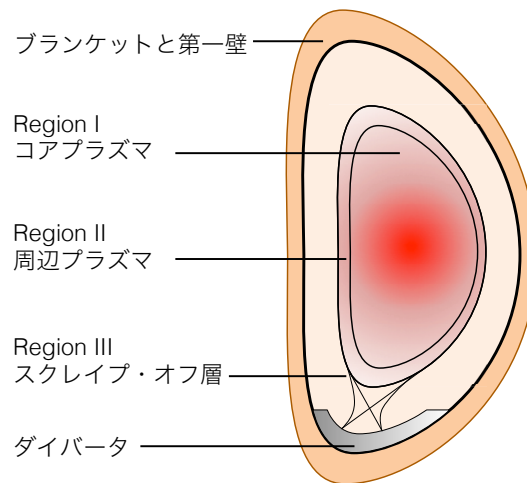


図 1.2 ITER におけるダイバータ磁場配位 [15]。

負荷、粒子負荷に曝される。よって、ダイバータ材には、以下の特性が要求される。

- 荷電粒子や高速中性子照射によるスパッタリングが少ないこと
- 耐熱性が高いこと
- 燃料である重水素、三重水素の吸蔵が少ないこと
- 中性子に対する耐久性が高いこと

これらの要求を満たすダイバータ材の候補として、炭素材、タングステンなどが検討されている。ITER では、タングステン材料の採用が決定している [17]。炭素材と比較してタングステンは高 Z 材であるため、スパッタリングによりプラズマ中に混入した場合、放射損失が大きい。しかし、水素による化学スパッタリングが発生せず、水素吸蔵が小さいなどの長所を有する。

1.4.2 第一壁への高エネルギーヘリウムイオンの入射

DT 反応によって生成されたヘリウムイオンは、電子やイオンとの衝突によって減速するとともに炉心プラズマを加熱する。しかし、ヘリウムイオンは、そのエネルギーを炉心プラ

ズマへ与える前に磁力線の籠から放出することがある。原型炉において検討が必要な高エネルギー粒子の輸送機構として、トロイダルリップル輸送やMHD(Magnetohydrodynamics)不安定性による輸送が挙げられる。特に、トロイダルリップルによる輸送は、炉壁に局所的な熱負荷、粒子負荷を与えることが数値計算によって予測されている。

Tobitaらは、トロイダルリップロスによる α 粒子の第一壁への損失について計算している[18]。ヘリウムの運動エネルギー分布は3.5MeVに鋭いピークをもち、ヘリウムは第一壁に局所的に入射する事がわかっている。また、その粒子フラックスは最大で $2 \times 10^{14} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ で、熱流束は 0.4MW/m^2 程度である。この見積もりでは、2年間の運転でフルエンス 10^{22}cm^{-2} に達する。特に1MeV以上では $5 \times 10^{21} \text{cm}^{-2}$ 、3MeV以上では、 $2 \times 10^{21} \text{cm}^{-2}$ に達する。

また、ELMやディスラプションなどの周期的、パルス的なエネルギーの排出によって、熱負荷とともに高エネルギー粒子がダイバータへと入射すると予想される。ヘリウム照射による粒子負荷と、溶融やアブレーションを伴う熱負荷が炉壁に与える影響を検証するためには、それぞれが損傷に寄与する過程を明らかにすることが重要である。

1.5 タングステン損傷評価の重要性と課題

ダイバータの候補材であるタングstenは、熱負荷や粒子負荷によって損傷する。特にヘリウムイオン照射によって再結晶脆化、ヘリウムバブルやプリスター生成などの損傷を引き起こす。これらの損傷は低エネルギー領域($< \text{keV}$)については知見が多いが、高エネルギー領域($\sim \text{MeV}$)について知見が乏しい。以下に再結晶脆化、ヘリウムバブル、プリスターについて述べる。

1.5.1 再結晶脆化

タングstenは、高融点(3695 K)、低スパッタリング率、低水素同位体蓄積、低中性子損傷などの利点からプラズマ対向材として期待されている。しかし、一般にタングsten焼結体の延性-脆性遷移温度(DBTT: Ductile-Brittle Transition Temperature)は600-700

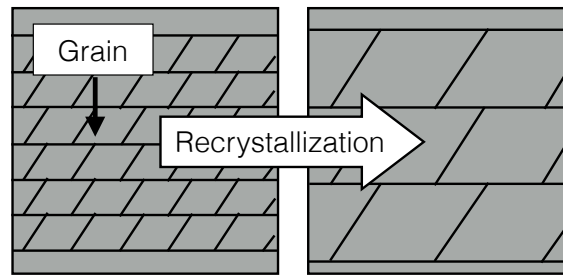


図 1.3 再結晶化による結晶粒径の増加の概略図。

K [19] といわれており、その温度以下では脆性が高い。また、タングステンは 1400 K 以上 [20] でも再結晶化により結晶粒径が増加する。図 1.3 に再結晶化による結晶粒径の増加のイメージ図を示す。Tuchida らはタングステンをアニールした際の結晶粒径の変化を EBSD により観察した [20]。受け入れまま材は 900°C で 20 分間アニールしており、その他のアニール条件は各温度で 1 時間である。1300°C から観察領域の一部の結晶粒径が増加し、1400°C からは全体に対して粒径の増加が確認された。このような再結晶化による結晶粒径の増加は延性-脆性遷移温度の増加を引き起こし、低温での機械的強度を劣化させる。

炉心プラズマからのパルスの熱負荷によるタングステンの再結晶脆化や熱応力による亀裂の発生、進展などが懸念される。そのため、ダイバータ板に流入するプラズマからの熱や粒子による影響が研究されている。ELM 様繰り返しレーザーパルス熱負荷試験によって、熱流束パラメータ (Heat flux parameter [$\text{MJ}/\text{m}^2\text{s}^{1/2}$]) とタングステンの結晶粒の大きさとの関係が調べられている [21]。

1.5.2 ヘリウムバブル

核融合装置の第一炉壁は、重水素、三重水素、ヘリウム、中性子などの核融合プラズマからの種々の粒子負荷に曝される。特に、タングステンへのヘリウムイオン照射によって、ヘリウムバブル [22,23] の生成が確認されている。Iwakiri らはタングステンへ 0.25 eV の He^+ を照射した際のヘリウムバブル生成の温度依存性を確認している [22]。図 1.4 にヘリウムバブルの概略図を示す。ヘリウムイオン照射後のタングステンを透過電子顕微鏡

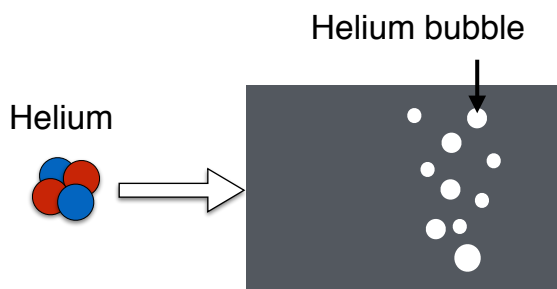


図 1.4 ヘリウムバブルの概略図。

(TEM) によって観察した結果、室温で $5.0 \times 10^{20} \text{He}^+/\text{m}^2$ からヘリウムバブルが確認された。また、試料温度の上昇に従ってヘリウムバブルの直径が増加することが確認された。

ヘリウムは原子半径が小さいため、ほとんどの金属において格子間に位置するヘリウムは 200 K 以上の温度で移動できる [24]。また、ヘリウムは原子空孔やバブルとの結合力が極めて強く、材料の融点に近い高温まで乖離しない [24]。つまり、ヘリウムバブルは以下のように形成されると考えられる。まず、金属材料中に照射されたヘリウムは格子間を移動し、原子空孔を核として互いに集合し、ヘリウム-空孔集合体を形成する。次に空孔での捕獲量が増加し、ヘリウム-空孔集合体の圧力が一定値 (数 GPa) を超えた際に、ヘリウム-空孔集合体が結晶格子を構成する原子を弾き出す。弾き出された原子は、格子間位置に集合し格子間型の転位ループが形成される。

1.5.3 ブリスター

金属材料中にヘリウムイオンを照射するとヘリウムバブルが生成されることを述べた。ヘリウムなどのガス粒子が表面付近で生成され、そのガス圧が十分に大きい場合、バブルは材料表面を塑性変形させ、水ぶくれ上の表面剥離現象を引き起こす。このような表面変形のことをブリスターと呼ぶ。図 1.5 にブリスターの概略図を示す。Gilliam らはヘリウム照射後の多結晶タンゲステンのブリスター生成について調査した [25]。ヘリウムの運動エネルギーは 1.3 MeV、照射温度は 850°C で、照射後に 2000°C でフラッシュアニールを行っている。フルエンス $1 \times 10^{21} \text{He}/\text{m}^2$ と $2 \times 10^{21} \text{He}/\text{m}^2$ の照射ではタンゲステン表面に

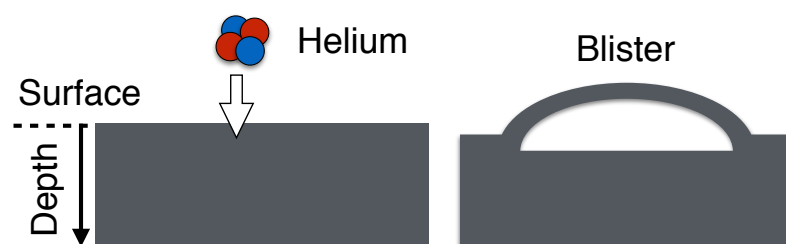


図 1.5 ブリスターの概略図。

ブリスターの生成を確認した。よりフルエンスの大きい $10^{22}\text{He}/\text{m}^2$ の照射では、ブリスターが割れ、剥離 (exfoliation) が発生している。

ブリスターの発生により、母材の機械的特性が劣化する可能性がある。さらに、ブリスターの破裂によりタングステンから多量のヘリウムが放出されたり、ブリスターの一部が剥がれ落ち炉心プラズマに混入すると、放射損失によりプラズマの温度を低下させる。また、ブリスターの生成と破裂を繰り返すことで炉壁が損耗する。

一般に高エネルギー ($\sim\text{MeV}$) のヘリウムイオンは低エネルギー ($<\text{keV}$) と比べて材料の深部まで侵入し、深さ方向にエネルギーを付与する。また、スパッタリング率や材料原子のはじき出しもヘリウムの運動エネルギーにより異なる。そのため、高エネルギーヘリウムの入射により、ヘリウムの放出特性、照射損傷の進展、バブルやブリスターの生成条件が異なる可能性がある。

ヘリウム照射による金属へのブリスター生成は50年以上前から広く研究がなされているが [26]、MeV 級のヘリウムイオンをタングステンに室温付近で照射した研究は非常に少ない [25, 27, 28]。これは、プラズマ対向材の候補にタングステンが検討されるようになった時期が約30年前 (1992年) であり [29, 30]、その頃、ダイバータへの低エネルギーのプラズマ照射による影響が注目されていたためである。近年、DEMO 炉などの将来の核融合システムにおいて、第一壁の候補材にタングステンが検討され始めてきた。そこで、第一壁への高エネルギーヘリウムイオン照射による損傷を評価するため、タングステンへの照射の影響を調査する必要がある。

1.6 研究目的

以上の背景から、本研究では、MeV 級のヘリウム照射がタングステン内部に及ぼす影響を調査し、プリスター生成特性を明らかにすることを目的とした。

第2章では、タンデム型静電加速器を用いたヘリウムビーム照射実験系とその実験手法および、集束イオンビーム、走査電子顕微鏡と透過電子顕微鏡を用いた試料の深さ方向の観察系とそれらの手法について述べる。第3章では、プリスター発生のしきい値が粒子フラックスに依存することを示す。また、臨界フラックスとヘリウムの拡散との関係について述べる。第4章では、ヘリウムイオン照射によるタングステン内部の構造変化について述べる。試料の深さ方向について結晶粒径を測定し、ヘリウム照射による粒径の変化を調査した。第5章では、プリスターの生成機構・プリスター膜厚と飛程との関係について述べる。第6章では、本研究の結論について述べる。

第 2 章

ヘリウムイオン照射と内部損傷を観察する
ための実験系・観測系の構築

2.1 はじめに

本章では、本研究で構築したヘリウムイオン照射と内部損傷を観察するための実験系・観測系について述べる。静電加速器により MeV 級のヘリウムイオンビームをタングステン板材に照射する実験系について述べる。また、照射中の試料温度の測定や、粒子フラックス、フルエンスなどの計算方法を説明する。照射後のタングステン試料を集束イオンビーム装置 (FIB) により加工し、走査電子顕微鏡 (SEM)、透過電子顕微鏡 (TEM) により内部の損傷を観察する実験の流れについて述べる。

2.2 高エネルギーヘリウムビーム照射による損傷生成

2.2.1 タンデム型静電加速器

タングステンの深さ方向への損傷を模擬するために、高エネルギーヘリウムビーム照射を行う必要がある。本研究では、長岡技術科学大学にあるタンデム型静電加速器 (High Voltage Engineering: Tandetron broch(4117-MC*-358)) [31,32] と Australian Nuclear Science and Technology Organisation (ANSTO) にある 2MV タンデム型静電加速器 STAR を用いた。本装置を用いて MeV 級のヘリウムビームが照射可能であり、タングステンの深さ方向へ照射損傷の発生が期待できる。

図 2.1 にタンデム型静電加速器の概略図を示す。タンデム加速器は発生させた加速電圧で負イオンを一度加速器中心の高電圧電極まで加速させ、負イオンを正イオンに荷電変換し、この正イオンを接地電極まで加速する方式である [31,32]。タンデム加速器は負イオン源、加速管、加速電源、荷電変換器 (チャージストリッパ) で構成されている。負イオン源は、荷電変換型のデュオプラズマトロン (Ion source Model 358) [32] である。このイオン源は、水素イオンとヘリウムイオンを生成できる。荷電変換型とは、イオン源から正イオンビームを引き出し、荷電変換ガス (ナトリウム蒸気) を通して負イオンに変換する方式である。荷電変換された負イオンは、加速管へと掃引される。加速管は、入射された負イオンを正の高電圧部まで加速する低エネルギー側加速管と荷電変換された正イオンを接地電位までさらに加速する高エネルギー側加速管に分けられる。荷電変換器には、

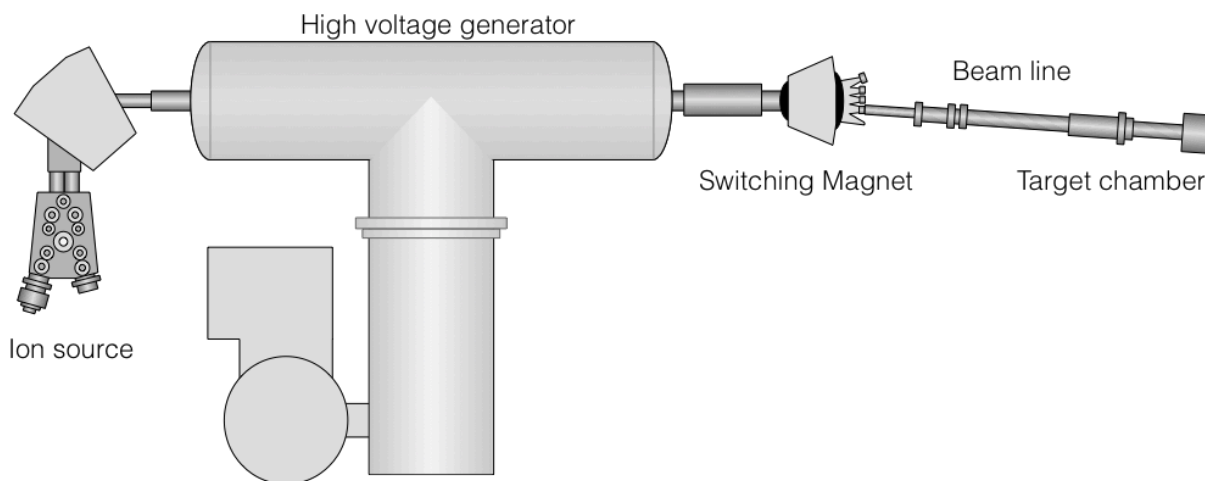


図 2.1 タンデム型静電加速器の概略図。

アルゴンガスが用いられている。加速電源にはコッククロフト・ウォルトン回路が用いられている。

加速電圧とイオンの価数、運動エネルギーの関係について説明する。負イオン源からタンデム加速器に入射する荷電粒子の運動エネルギーを E_0 [J]、加速電圧を V [V]、素電荷を e [C]、正イオンの価数を Z とする。ここで、負イオンは単原子イオンよりも、多原子イオンの方が負イオンを生成しやすい。この栄光を考慮して多原子イオンのなかで目的原子の質量を M 、付属原子の質量を M' とすると、低エネルギー側加速管部での目的原子の得る運動エネルギーは $M/(M + M')eV$ となる。従って、最終的に荷電粒子が得る運動エネルギー E [J] は以下ようになる。

$$E = E_0 + \left(\frac{M}{M + M'} + n \right) eV \quad (2.1)$$

多くの場合、 $M' = 0$ 、 $E_0 \ll eV$ なので簡単化すると以下ようになる。

$$E = (1 + n)eV \quad (2.2)$$

今回の場合、正イオンは He^{2+} なので $n = 2$ である。

2.2.2 損傷を模擬するためのビーム照射時間の検討

タンデム型加速装置を用いた損傷生成の可能性について検討する必要がある。エネルギー: 8 keV、フルエンス: $10^{19} - 10^{22}$ ions m^{-2} のヘリウムイオン照射によって nm オーダーのバブルの生成が報告されている [22]。また、リップロスによって放出される α 粒子のフルエンスは 2 年間運転時で 10^{26} ions m^{-2} との計算が報告されている [18]。このフルエンスを 10^{22} ions m^{-2} 換算するとトカマク装置における約 2 時間分の運転に相当する。また、タングステンへのヘリウム照射によりプリスターが生成されるフルエンスは 10^{18} He cm^{-2} 程度である [25, 27, 28]。

タンデム型静電加速器を用いて、ヘリウムバブルの生成が予測されるフルエンス $\phi = 10^{22}$ ions m^{-2} を達成するために必要な照射時間 τ を計算した。0.8 μ A の電流がターゲットに入射すると仮定して計算した。また、フラックスを J_{in} [ions $m^{-2} s^{-1}$]、ターゲットに入射した粒子数を N_{in} [ions]、イオン電流を I [A]、イオンの価数を Z 、照射面積を S [m^2] である。

$$J_{in} = \frac{N_{in}}{S} = \frac{I/Ze}{S} \sim 6.24 \times 10^{17} \text{ [ions } m^{-2} s^{-1}] \quad (2.3)$$

$$\tau = \frac{\phi}{J_{in}} \sim 4.45 \text{ [hours]} \quad (2.4)$$

この結果より、現実的な照射時間でヘリウムイオン照射によるタングステンへの損傷を模擬できる。

2.2.3 実験条件

表 2.1 に高エネルギーヘリウムビーム照射実験の条件を示す。DT 反応で発生する 3.5 MeV のヘリウムイオンを模擬して、4 MeV まで加速した。ヘリウムビームは 2×2 mm 角にコリメートし、試料の中心に照射した。図 2.2 に真空容器内の照射標的の写真を示す [33]。タングステン試料をサーモラベルと熱電対とともに真空容器内のイオンコレクタ

第2章 ヘリウムイオン照射と内部損傷を観察するための実験系・観測系の構築

表 2.1 典型的な高エネルギーヘリウムビーム照射実験の条件。

標的	Tungsten (W)
イオン種	Helium (He^{2+})
運動エネルギー	4 MeV
粒子フラックス	$10^{18} \text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$
粒子フルエンス	10^{22}m^{-2}
照射温度	288-332 K
照射面積	$2 \times 2 \text{ mm}$
真空度	$1.6 \times 10^{-4} \text{ Pa}$

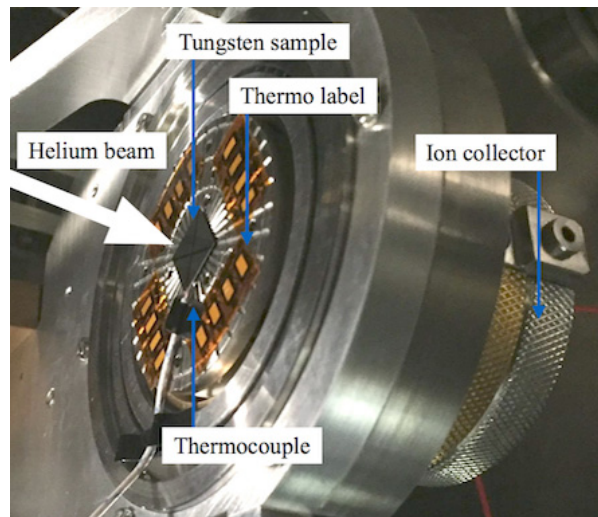


図 2.2 イオンコレクタとタンゲステン試料 [33]。

にカーボンの両面テープを用いて取り付けられた。真空容器の圧力は $1.6 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ である。照射中のイオン電流をイオンコレクタにより測定した。加えて、熱電対とデータロガー (midi LOGGER GL10-TH: GRAPHTEC Corporation) により試料表面の温度を計測した。タンゲステン試料の周りに位置するイオンコレクタの表面温度をサーモラベル (Temp plate P/N 101-6V: Palmer Wahl Instruments, Inc.) により測定した。試料には粉末焼結で精製された Nilaco 社の多結晶タンゲステン板材 (純度 99.95%) を用いた。寸法は $10 \times 10 \times 0.2 \text{ mm}$ である。

2.3 薄膜加工および内部損傷の観察手法

2.3.1 集束イオンビーム (Focused Ion Beam: FIB)

高エネルギーヘリウム照射による内部損傷を透過観察するために、タングステン試料を加工する必要がある。集束イオンビーム (Focused Ion Beam: FIB) 装置 (FB2200; 日立ハイテクノロジーズ) を用いて、透過電子顕微鏡の試料を作製する。FIB 装置は、イオン源から引き出したイオンビーム (ガリウム、アルゴンなど) を FIB 光学系により μm オーダーに絞り、試料上を走査しながら照射し、試料表面の観察や試料の加工などを行う装置である。FIB 装置の機能は、(1) 観察、(2) 掘削 (スパッタリング)、(3) 堆積 (デポジション) の3つである。

1) 観察

イオンビームを試料の表面に照射し、試料表面から放出される2次電子や2次イオンを検出し、その発生量の空間分布を取得することで、試料の表面や断面を顕微鏡像として観察できる。

2) 掘削 (スパッタリング)

イオンビームを固体の表面に照射すると、スパッタリングによって加工の目的に適した速度で表面から原子を取り除くことができる。これにより、近傍の原子配列を乱さずに固体表面の切削や加工ができる。この方法をイオンビーム加工法と呼ぶ。この加工法の特徴は、1つのイオンが試料表面の1つの原子を取り除き、隣接の他の原子に影響を及ぼさないことである。従って、損傷を受けていない表面を得る可能性という観点からすると、機械研磨や化学的エッチングよりも優れている。薄膜資料作製および半導体デバイスの配線切断などに用いられる。

3) 堆積 (デポジション)

試料の近傍にガスノズルを移動し、ガスノズルから金属原子などを含むガスを吹き付けながら FIB 照射することにより、特定の材料を堆積させる。気体成分は真空排気されるが、固体成分は試料表面に堆積する。薄膜試料作製の試料表面保護膜や半導体デバイスの配線作製に用いられる。FIB の応用分野には、走査電子顕微鏡や透過電子顕微鏡の試料作

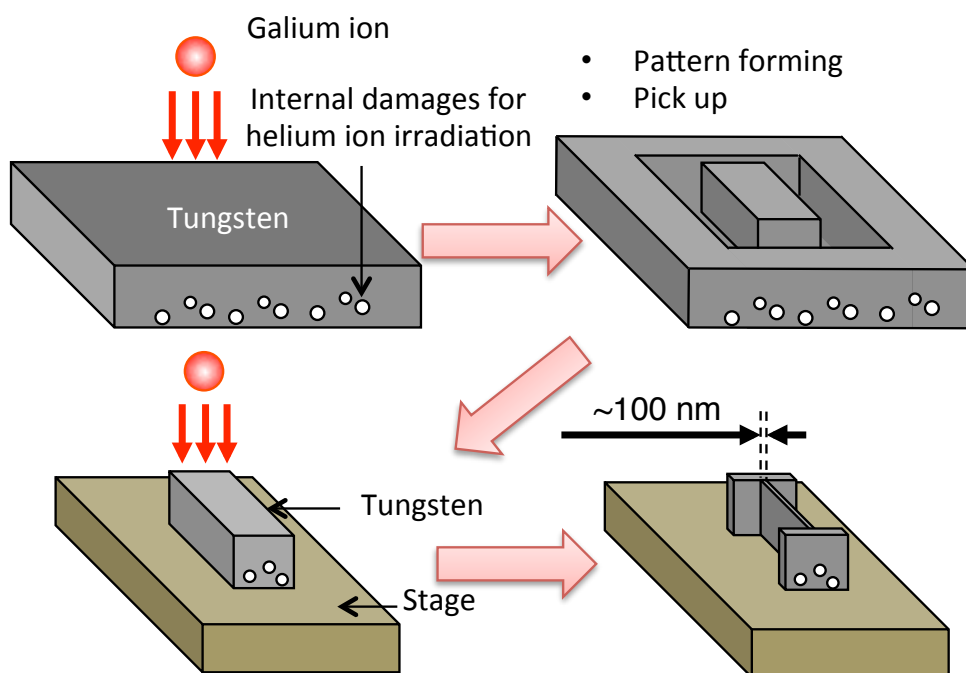


図 2.3 FIB を用いたタングステン試料の薄片加工の概念図。

製、配線の切断や接続などの半導体デバイスの配線修正、二次イオン質量分析法 (SIMS) などの微細プローブ、マスクレスのパターンニング、イオン打ち込みなどがある。特に、透過電子顕微鏡の試料作製において FIB 装置は有用である。研磨などの機械的方法によってこの厚さを達成することは難しい。従来、化学腐食法が用いられ成功してきたが、与えられた新しい物質に対し、適当なエッチ液を探すことが困難で、利用できる材料の範囲が限られている。一方で、イオン加工による薄片化は、広範な材料に適用できる [34, 35]。図 2.3 に FIB を用いたタングステン試料の薄片加工の概念図を示す。ヘリウムイオン照射後のタングステン試料に対して、FIB を用いてガリウムイオンを照射し、横 $13 \mu\text{m}$ 、縦 $3 \mu\text{m}$ 、高さ $10 \mu\text{m}$ 程度の直方体ブロックを解析試料として切り出す。試料台へ置かれたサンプリング試料に対してさらにガリウムイオンを照射し、厚さ 100 nm 程度の薄片に加工する。これにより、タングステン試料内部を透過電子顕微鏡で観察できる。

2.3.2 損傷観察に必要な加工すべき試料の深さおよび厚さの検討

物質中を荷電粒子が通過するとき、電磁相互作用を通じて、それがもつ運動エネルギーを失う。このように荷電粒子が単位長さ当たり失うエネルギーを媒質の阻止能 (stopping power) という。阻止能 ($-dE/dx$) は以下のベテ-ブロッホ (Bethe-Bloch) の式で表される [36]。

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi Z_1^2 e^4 N Z_2}{mv^2} \left\{ \ln \frac{2mv^2}{I} - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 - \frac{C}{Z_2} + L_1 Z_1 + \Phi - \frac{\delta}{2} \right\} \quad (2.5)$$

ここで、 E はイオンの運動エネルギー、 x は飛跡の長さ、 Z_1 は入射粒子の原子番号、 Z_2 は標的原子の原子番号、 v は入射粒子の速度、 m は電子の静止質量、 N は標的媒質の原子密度、 β はイオンの速度と光速との比、 I は平均励起エネルギー、である。第2項と第3項は相対論的補正項と呼ばれる。 C/Z_2 は殻内補正項と呼ばれ、内殻の電子が寄与する項である。 $Z_1 L_1$ は Z_1^3 補正項と呼ばれ、イオンが標的原子の分極を引き起こす項である。 Φ はブロッホ補正項で近接衝突に由来する項である。 $\delta/2$ は密度効果を表す補正項である。

物質中を通過する荷電粒子のエネルギー損失 (阻止能) は、入射粒子の飛程の周辺で最大となる。そのため、ヘリウム照射によるタングステンへの影響は、ヘリウムの飛程周辺で顕著であると予測される。そのため、FIB 装置を用いてヘリウム侵入深さまで加工する必要がある。そこで、astar [37] を用いてタングステンへのヘリウムの侵入深さを計算した。図 2.4 にタングステン中のヘリウムの入射エネルギーに対する飛程を示す。4 MeV のヘリウムを入射した際の飛程から FIB 装置で加工すべき深さは 6.124 μm 以上であることを確認した。一般に観察される結晶薄膜は、厚さ 50 nm 程度だといわれている [38]。

2.3.3 実験条件および実験工程

ヘリウムビーム照射の影響を比較するために、タングステン板の中央付近と、板の端部について TEM 観察用試料を作製した。ここで、板の中央付近は、ヘリウムビーム照射を照射した箇所に対応する。図 2.5 にタングステン試料のサンプリング箇所を示す。図

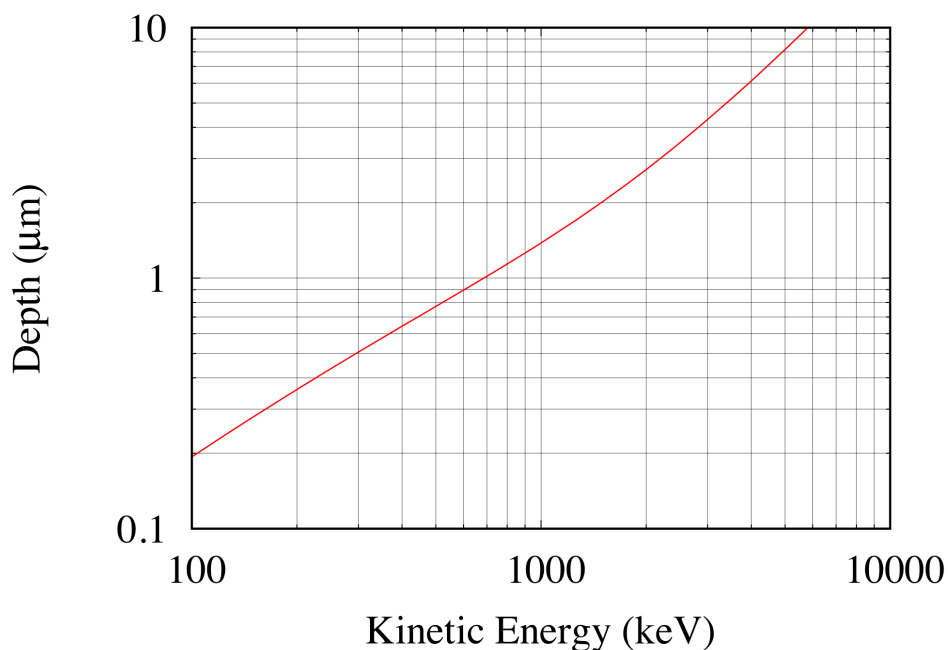


図 2.4 タングステン中のヘリウムの入射エネルギーに対する飛程。

中の中央部、端部をそれぞれヘリウム照射箇所、ヘリウム未照射箇所として FIB 装置を用いて切り出した。タングステン中に入射したヘリウムの侵入深さ (projectile range) は、約 $6 \mu\text{m}$ であるため、TEM での観察を容易にするため $10 \mu\text{m}$ 程度まで削る必要がある。

図 2.2 に、電子顕微鏡試料作製のための FIB を用いたタングステンの加工工程の例を示す。表中の Beam は 9 ステップの加速電圧と 2 種類のビーム集束モードおよび 7 つのビーム制限アパーチャ径の組み合わせを示している。ビーム名が X-Y-Z のとき、X は加速電圧 [kV]、Y がレンズモード (0:観察モード、1:加工モード)、Z がアパーチャ径を示す。表 2.3 に、加速電圧 40kV の場合のレンズモードとビーム制限アパーチャの組み合わせ例を示す。ここで、レンズモードが 0 の場合はコンデンサレンズに電圧を印加せず、モードが 1 の場合は電圧を印加する。また、試料とビーム出口との距離 (z/mm) は 5mm である。ただし、ビーム名の末尾に L が着く場合は 15mm である。図 2.2 中の工程番号 8 がその例である。

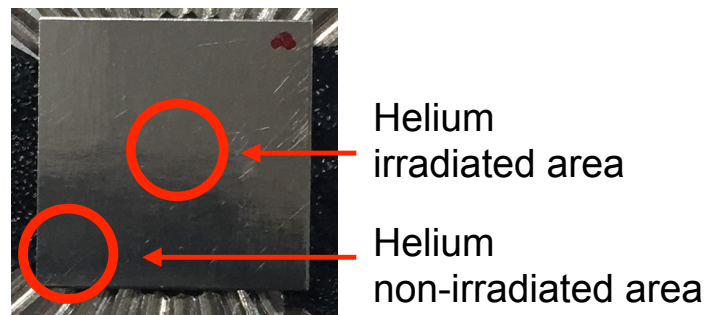


図 2.5 タングステン試料のサンプリング箇所。タングステン試料のヘリウム照射箇所(中央部)とヘリウム未照射箇所(端部)について、FIB装置を用いて切り出した。

表 2.2 電子顕微鏡試料作製のためのFIBを用いたタングステンの加工工程の例。

工程番号	名称	z [mm]	倍率*	Zoom**	Beam	領域 [μ m]	傾斜	時間 [min]	備考
1	表面加工	5	700	1	40-1-520	30x50	0	7	より深い箇所を観察するため表面から2-3microns削る
2	Wデポ(保護膜)	5	2000	2	40-0-150	13x3	0	10	左側につける
3	周辺加工	5	2000	2	40-1-520	MS1	0	MS1	1回目
4	周辺加工	5	2000	2	40-1-520	MS1	0	MS1	2回目
5	周辺加工	5	2000	1	40-1-300	25x3.5	0	3	試料より上側
6	周辺加工	5	2000	1	40-1-300	25x15	0	3	試料より下側
7	周辺加工	5	2000	1	40-1-300	11x8	0	1	試料より左側
8	底切	15	2000	1	40-1-300L	26x1.7	60	7	
9	周辺加工	5	2000	1	40-1-150	25x1.5	0	4	上
10	Wデポ(プローブ)	5	4000	1	40-1-30	3x3	0	4	
11	アーム切断	5	2000	2	40-1-150	1x9	0	3	
12	Wデポ(試料台)	5	2500	1	40-1-80	20x3	0	10	
13	プローブ切断	5	3000	1	40-1-80	3x0.5	0	0.1	
14	粗加工	5	2000	2	40-1-300	8x22	0	0.3	保護膜から2microns上側
15	粗加工	5	2000	2	40-1-300	8x22	0	0.3	保護膜から2microns下側
16	中加工1	5	3000	2	40-1-150	6x7	0	-	1micron残す。上側
17	中加工1	5	3000	2	40-1-150	6x2.5	0	-	1micron残す。下側
18	中加工2	5	4000	2	40-1-80	6x1	0	-	250nm残す。上側。白い部分を削るように、照射範囲を試料から100nm離す。scan方向は三本線。
19	中加工2	5	4000	2	40-1-80	6x1	0	-	250nm残す。下側。白い部分を削るように、照射範囲を試料から100nm離す。scan方向は三本線。
20	中加工3	5	5000	4	40-1-30	3x0.2	0	-	100nm残す。上側。
21	中加工3	5	5000	4	40-1-30	3x0.2	0	-	100nm残す。下側。
22	中加工3	5	5000	4	40-1-30	2x0.2	0.7	-	照射範囲は最表面から200nm離す。選択範囲を削り切るように
23	中加工3	5	5000	4	40-1-30	2x0.2	-1	-	照射範囲は最表面から200nm離す。選択範囲を削り切るように
24	中加工3	5	5000	8	40-1-30	3x0.2	0	-	照射範囲は試料の上下、試料に被せない
25	中加工3	5	5000	8	40-1-30	3x0.2	0	-	照射範囲は試料の上下、試料に被せない
26	ダメージ除去加工	5	20000	1	10-1-80	3x1	3	-	照射範囲は最表面から200nm離す
27	ダメージ除去加工	5	20000	1	10-1-80	3x1	-3	-	照射範囲は最表面から200nm離す

第2章 ヘリウムイオン照射と内部損傷を観察するための実験系・観測系の構築

表 2.3 加速電圧 40kV の場合のレンズモードとビーム制限アパーチャの組み合わせ例。

Beam Name	Mode	アパーチャ径 [μm]	標準ビーム電流 [nA]
40-1-520	1	520	58.00–82.00
40-1-300	1	300	17.17–26.00
40-1-150	1	150	3.04–4.81
40-1-80	1	80	0.58–1.10
40-1-30	1	30	0.05–0.10
40-1-15	1	15	0.01–0.02
40-1-5	1	5	<0.01
40-0-150	0	150	0.35–0.60
40-0-80	0	80	0.09–0.17
40-0-30	0	30	0.01–0.03
40-0-15	0	15	<0.01
40-0-5	0	5	<0.01

表 2.2 中の各工程について説明する。

- 表面加工、W デポジション (保護膜の形成)

図 2.6 に表面加工および W デポジション (保護膜) の例 (工程番号:1,2) を示す。表面加工はビームの拡がりによって試料の底が削れることを防ぐ。W デポジション (保護膜) とは、タングステンの最表面がスパッタされることを防ぐためにタングステンのデポジションを行うことである。

- 周辺加工

図 2.7 に周辺加工の例 (工程番号:3-7) を示す。タングステンの板から縦横 $13 \times 3 \mu\text{m}$ 、深さ $10 \mu\text{m}$ 程度のマイクロサンプリングを行う。試料をサンプリングし、試料台へ移動するためにタングステンの板の周辺をスパッタリングした。

- 底切

図 2.8 に底切の例 (工程番号:8) を示す。サンプリング試料をタングステン板から切り離すために、ステージを 60° 傾斜させ、試料の下面を加工した。

- W デポジション (プローブ)

第2章 ヘリウムイオン照射と内部損傷を観察するための実験系・観測系の構築

図 2.9 に W デポジション (プローブ) の例 (工程番号:10) を示す。図の右上に示すようなプローブをサンプリング試料の上に接触させ、デポジションによって固定した。

- アーム切断

図 2.10 にアーム切断の例 (工程番号:11) を示す。サンプリング試料をタングステン板から完全に切り離すためにアームを切断した。アームは、図 2.9 中の長方形のサンプリング試料から伸びている左側の余りに相当する。アーム切断後、プローブを移動させてサンプリング試料をタングステン板上から取り出した。

- W デポ (試料台)

図 2.11 に W デポ (試料台) の例 (工程番号:12) を示す。サンプリング試料を薄片加工用 (TEM 観察用) の試料台へと移動させ、デポジションによって固定した。

- プローブ切断

図 2.12 にプローブ切断の例 (工程番号:13) を示す。試料台へ固定したサンプリング試料を薄片加工する工程へと移行するために、プローブをサンプリング試料から切断した。

- 粗加工

図 2.13 に粗加工の例 (工程番号:14,15) を示す。サンプリング試料における薄片加工する領域の試料台の表面を加工した。これは、TEM 観察の際に、試料台表面の凹凸や傾きなどが写り込み、タングステン試料の観察を妨げることを防止する。

- 中加工 1

図 2.14 に中加工 1 の例 (工程番号:16-17) を示す。サンプリング試料を $1\mu\text{m}$ 程度残すように上下を加工した。

- 中加工 2

図 2.15 に中加工 2 の例 (工程番号:18-19) を示す。図中のサンプリング試料の黒い

第2章 ヘリウムイオン照射と内部損傷を観察するための実験系・観測系の構築

部分を 250nm 程度残すように上下を加工した。試料が削れすぎないようにアパーチャの径をこれまでよりも小さい $30\mu\text{m}$ に変更する。

- 中加工 3

図 2.16 に中加工 3 の例 (工程番号:20-25) を示す。図中のサンプリング試料の黒い部分を 100nm 程度残すように上下を加工する。

- ダメージ除去加工

図 2.17 にダメージ除去加工の例 (工程番号:26-27) を示す。ステージを傾けて、サンプリング試料の深さ方向の表面に対してガリウムビームを照射した。中加工 1,2,3 を経てサンプリング試料が損傷する可能性がある。損傷した表面のみを除去するために加速電圧をこれまでよりも低い 10kV に変更する。

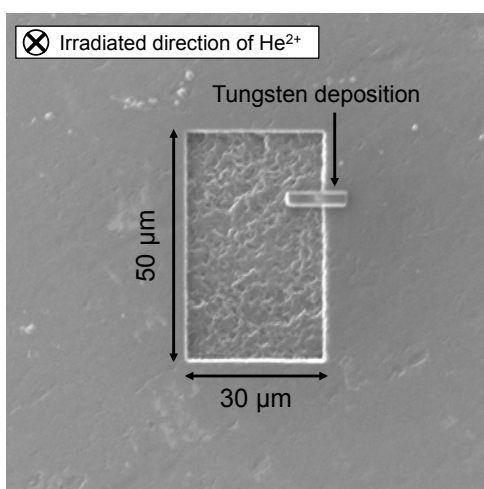


図 2.6 表面加工および W デポジション (保護膜) の例 (工程番号:1,2)。

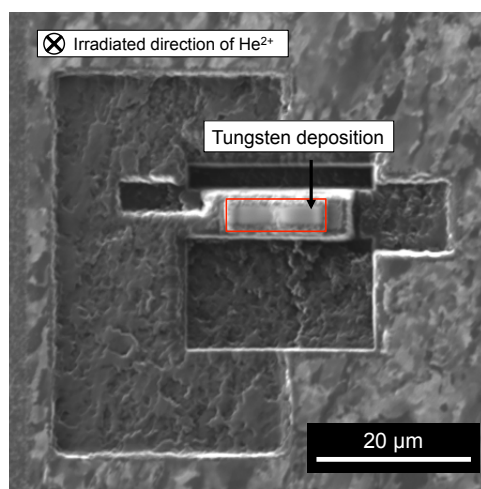


図 2.7 周辺加工の例 (工程番号:3-7)。

2.3.4 透過電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscope: TEM)

TEM の構造を図 2.18 に示す。透過電子顕微鏡の構造 (図 2.18(a)) は透過光を利用する生物用の光学顕微鏡 (図 2.18(b)) と対比できる。TEM には、光源の代わりに電子源である電子銃を用いる。透過電子顕微鏡と光学顕微鏡では、集束レンズ、対物レンズはどちら

第2章 ヘリウムイオン照射と内部損傷を観察するための実験系・観測系の構築

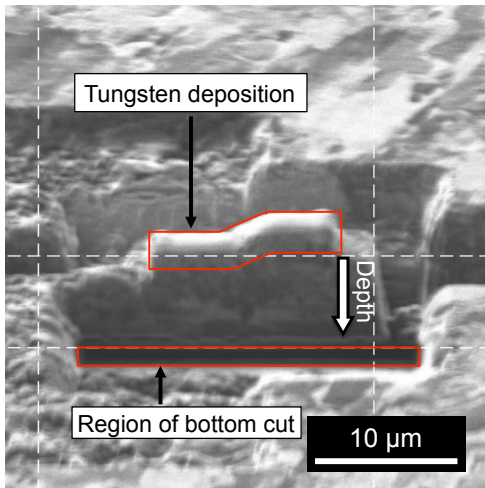


図 2.8 底切の例 (工程番号:8)。

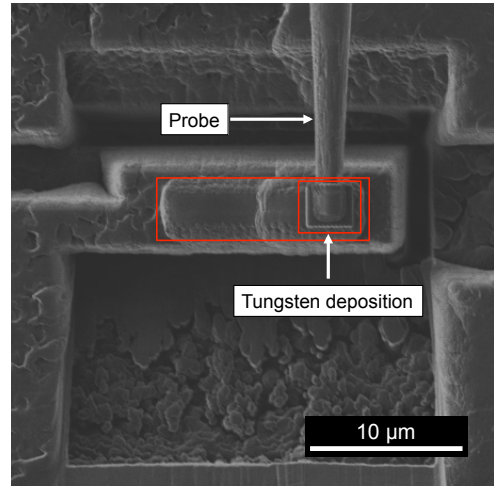


図 2.9 W デポジション (プローブ) の例 (工程番号:10)。

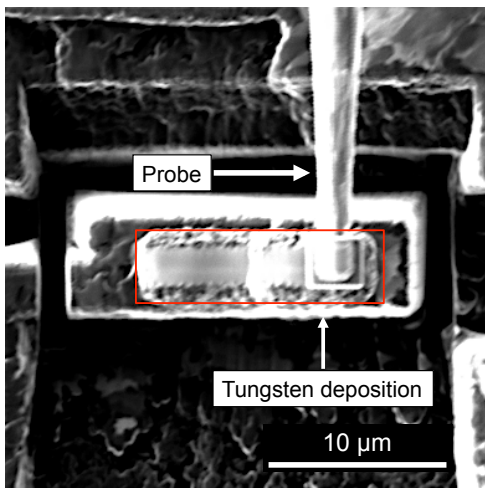


図 2.10 アーム切断の例 (工程番号:11)。

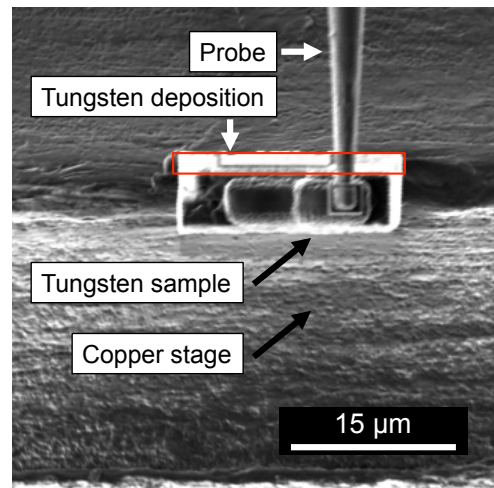


図 2.11 W デポ (試料台) の例 (工程番号:12)。

第2章 ヘリウムイオン照射と内部損傷を観察するための実験系・観測系の構築

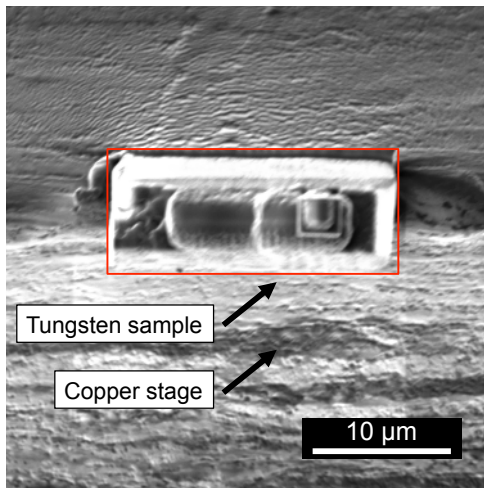


図 2.12 プローブ切断の例 (工程番号:13)。

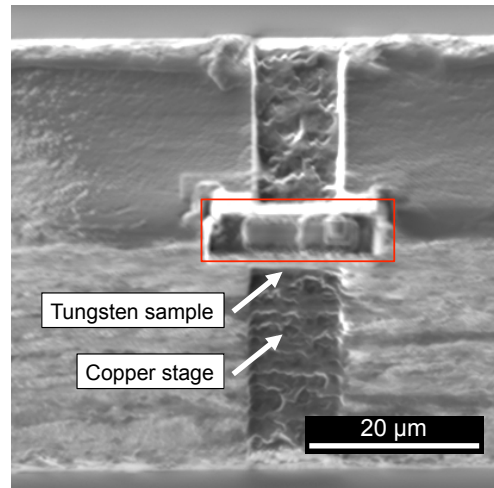


図 2.13 粗加工の例 (工程番号:14,15)。

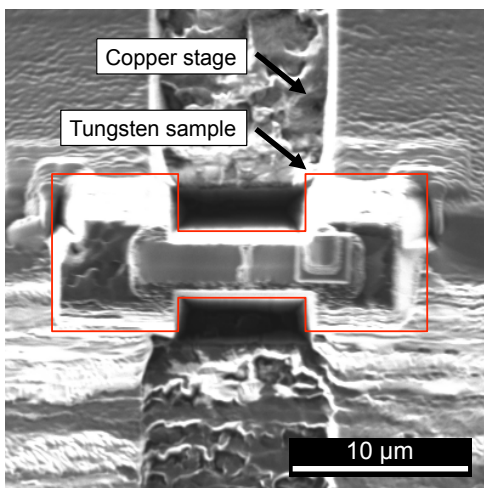


図 2.14 中加工1の例 (工程番号:16-17)。

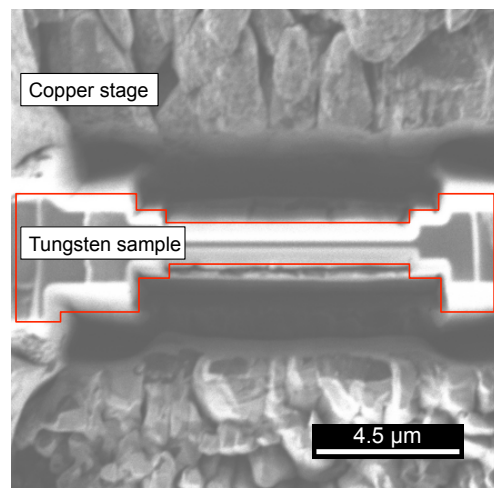


図 2.15 中加工2の例 (工程番号:18-19)。

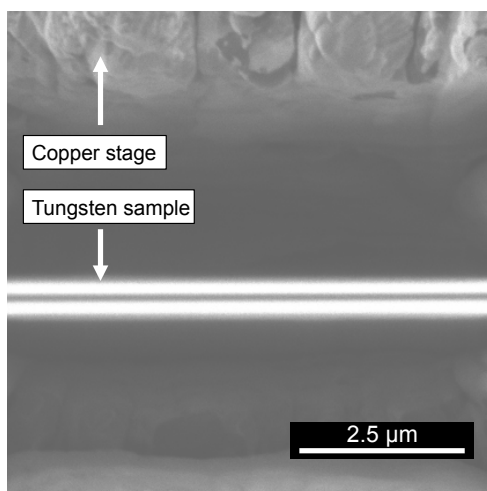


図 2.16 中加工 3 の例 (工程番号:20-25)。

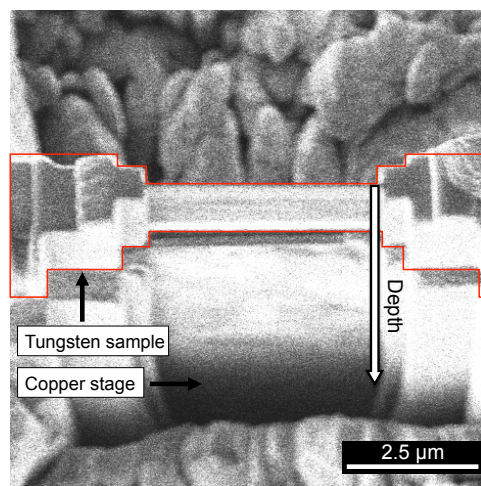


図 2.17 ダメージ除去加工の例 (工程番号:26-27)。

も同じ名称である。投影レンズは光学顕微鏡の接眼レンズに対応する。集束レンズは試料に平行に電子線を照射する役割を果たす。TEMには3段階の拡大レンズ(対物、中間、投影の各レンズ)が用いられている。対物レンズは初段の拡大レンズである。電子顕微鏡の性能はこのレンズで決定される。中間レンズ、投影レンズは最終的に高倍率の拡大像を得る役割を果たす。光学顕微鏡のレンズはガラスを用い、空気とガラスの屈折率の差を利用するが、電子顕微鏡用のレンズ(電子レンズ)は電磁石を用いて電子線の向きを変える。透過電子顕微鏡では試料の内部情報を知ることができ、走査型電子顕微鏡では試料の表面形態に関する情報が得られる。

単結晶試料に平行な電子線が入射した場合、電子線は結晶内を透過する電子線(透過波)と、結晶内で回折される回折電子線(回折波)に分かれる。透過波、回折波はともに対物レンズの後焦点面に焦点を結んだ後、像面に試料の像を結ぶ。図 2.23 に透過波と回折波の経路を示す。

ここで、後焦点面上にフィルムを設置することで電子線回折図形が得られる。一方で、像面にフィルムを設置することで試料の拡大像、つまり、電子顕微鏡像が得られる。実際には、対物レンズの下方に置かれている中間レンズの焦点距離(つまり、中間レンズの電磁石の励磁電流)を調整して、中間レンズ、投影レンズの下方に置かれたフィルム上に電

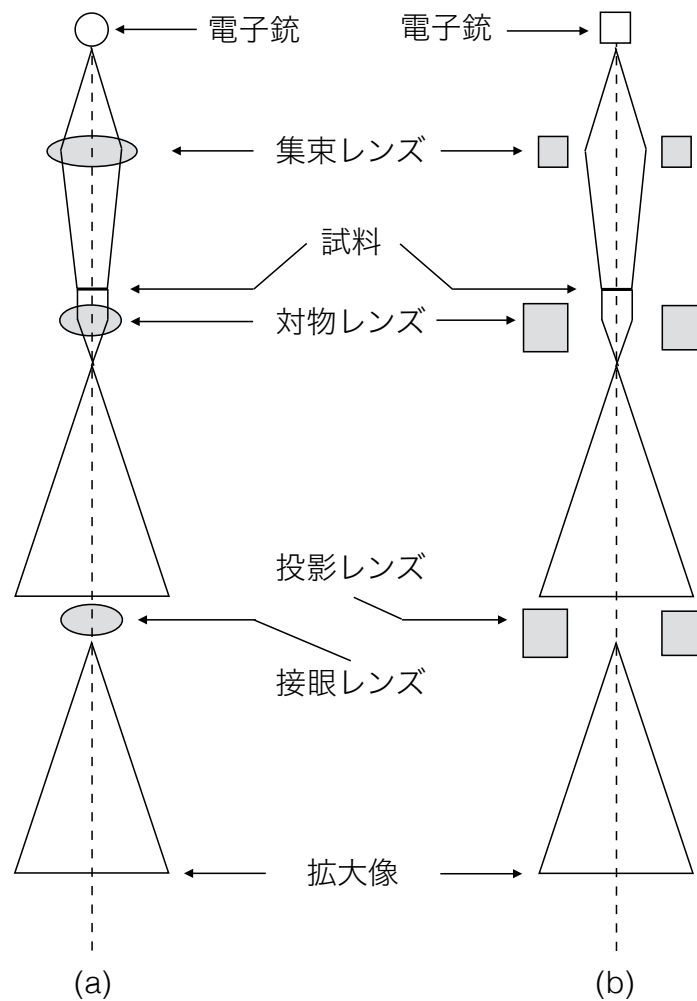


図 2.18 生物用光学顕微鏡 (a) と透過型電子顕微鏡 (b) の比較 [39]。

子回折図形または電子顕微鏡像を結像させる [38, 39]。

ヘリウムビーム照射後のタングステン試料内部を観察するために、長岡技術科学大学にある透過電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscope: TEM) (HT7700; 日立ハイテクノロジー) を用いた。本研究では、TEM の加速電圧を 100 kV とした。

2.3.5 走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope: SEM)

SEM で拡大像を見る機構は、光学顕微鏡や TEM と異なる。細く絞った電子線を試料上で操作させる。撮像側でも同様に陰極線管 (CRT) 内の電子ビームを蛍光面に操作させ

第2章 ヘリウムイオン照射と内部損傷を観察するための実験系・観測系の構築

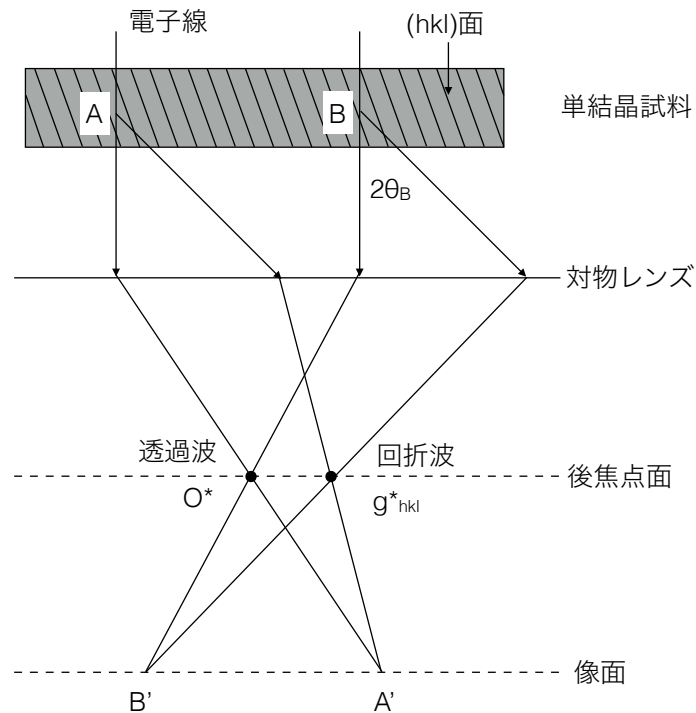


図 2.19 透過波と回折波の経路。後焦点面では透過波と回折波がそれぞれ O^* 、 g_{hkl}^* と別の位置に焦点を結ぶ。一方で、像面では、透過波と回折波によって、試料中の位置 A,B に対応した拡大像 A' 、 B' が結ばれる [39]。

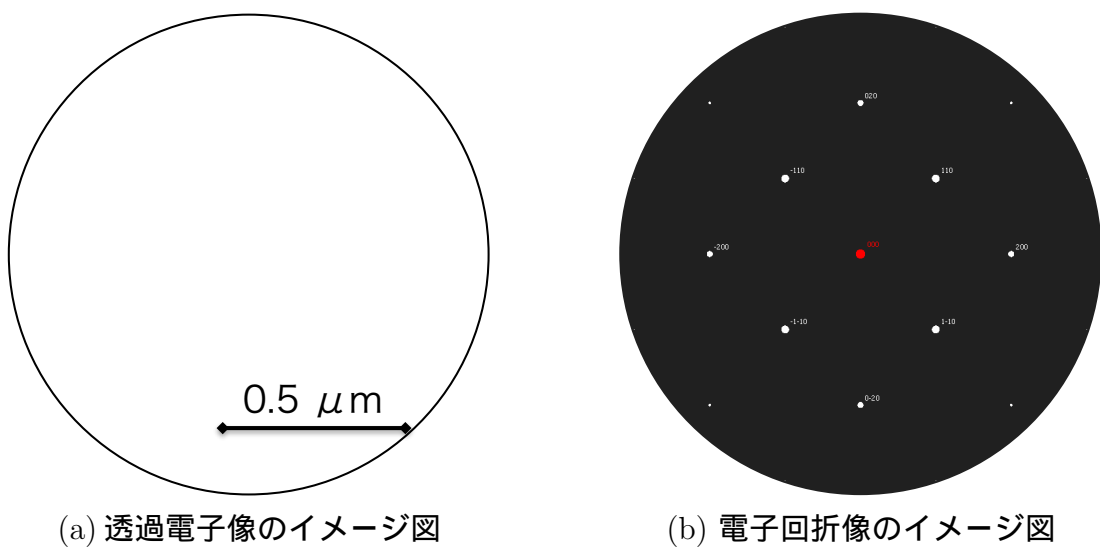


図 2.20 単結晶を観察した際の TEM 像のイメージと回折像のイメージ図。

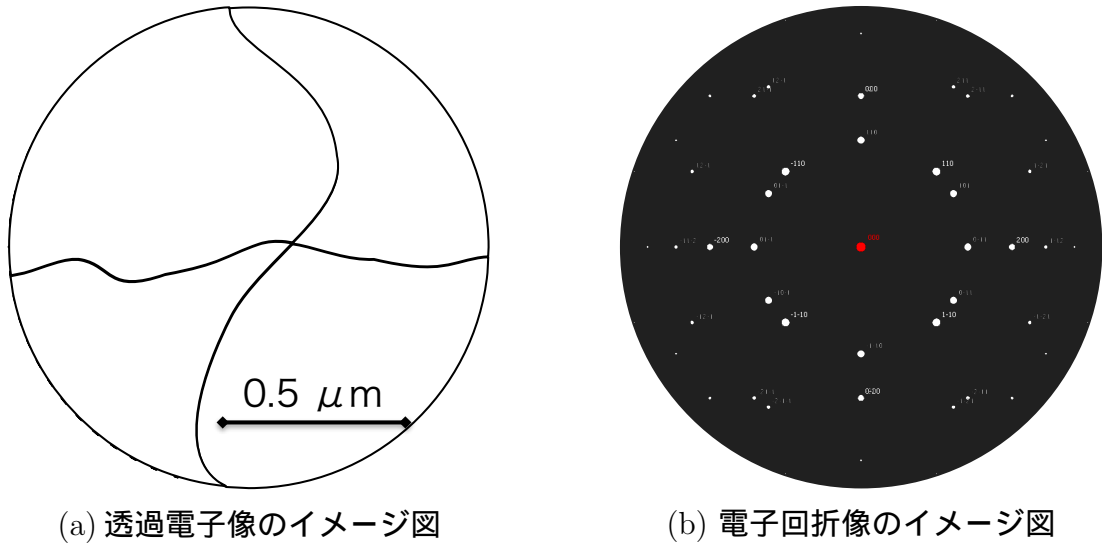


図 2.21 4つの単結晶を観察した際のTEM像のイメージと回折像のイメージ図。

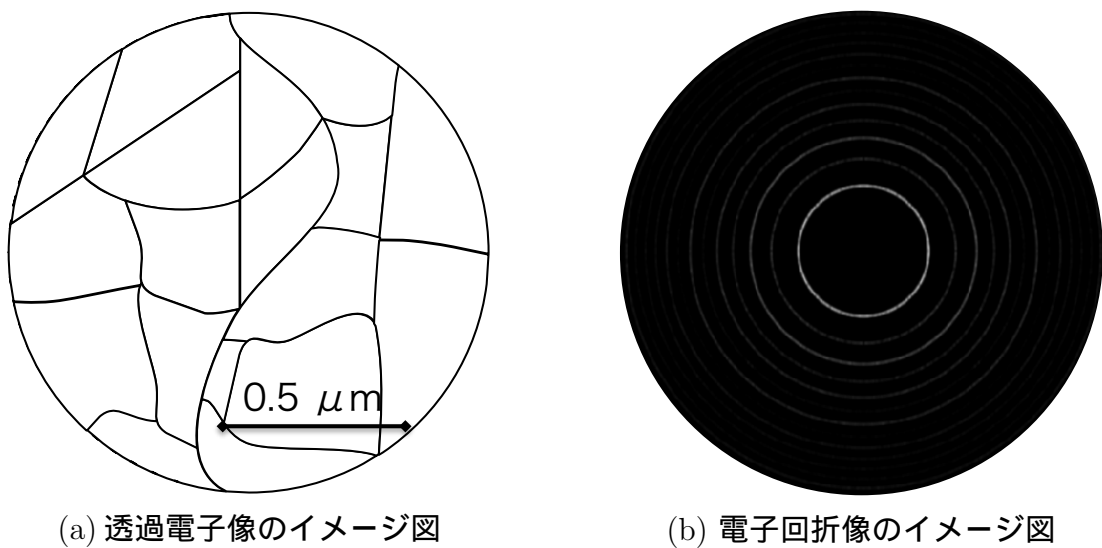


図 2.22 細かい粒径の多結晶を観察した際のTEM像のイメージと回折像のイメージ図。

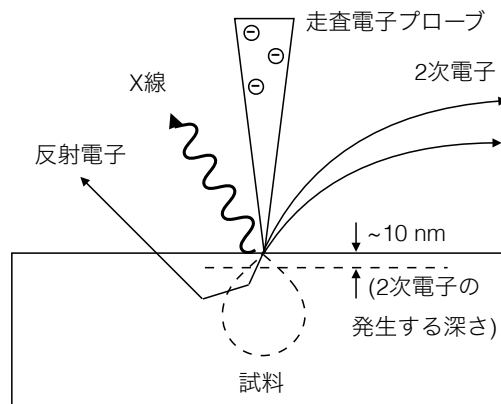


図 2.23 入射電子による試料からの情報 [40]。

両者の同期を取ることで像形成が行われる。試料に電子を入射すると図 2.23 に示すような相互作用が発生するが、撮像に用いられるのは二次電子と反射電子である。試料内部で発生した二次電子はそのエネルギーが低いので ($\sim 50\text{eV}$)、試料表面近傍 ($\sim 10\text{nm}$) で発生した二次電子のみが真空中に飛び出し、検出される。真空中に飛び出した二次電子は、印加してある電界によって検出器側へ輸送され、シンチレータによって検出される。[40]

長岡技術科学大学にある電界放出型走査電子顕微鏡 FE-SEM (Hitachi;SU8230) と Australian Nuclear Science and Technology Organisation (ANSTO) にある FE-SEM(ZEISS;Ultra plus) を用いた。

第 3 章

ブリストア発生臨界フラックスと拡散との関係

3.1 はじめに

ブリスターはヘリウム入射後に移動、集合してできた微小バブルにより圧力が表面下で発生するときに生じる。タングステン試料内のヘリウムの移動については以下のような先行研究が報告されている。Lhuillier ら [41] は、タングステン中の原子空孔が 473 K 以上で移動することを陽電子消滅法により観測し、Soltan ら [42] は、ヘリウムは 5 K で移動することを観測した。Wagner ら [43] と Amano ら [44] はヘリウムの拡散の活性化エネルギー 90-110 K で 0.24-0.32 eV であることをアトムプローブ電界イオン顕微鏡により計測し、Baldwin と Doerner [45] は拡散の活性化エネルギーが 1120-1320K で 0.71 eV であることを計測した。数値計算による研究では、第一原理計算は、四面体位置から四面体位置への拡散経路 (TIS-TIS; tetrahedral interstitial site) に関するヘリウムの拡散障壁、つまり拡散の活性化エネルギーが 0.06 eV であることを示した [46]。しかし、分子動力学法の結果は、TIS-TIS に関する拡散障壁が 0.02eV で、四面体位置から八面体位置への拡散経路 (TIS-OIS; octahedral interstitial site) に関する拡散障壁が 0.18 eV であることを示す [47]。単一のヘリウム原子における拡散の活性化エネルギーは異なる温度で 0.021-0.157 eV であることを確認した [48]。このように、実験結果と数値計算による結果ではタングステン中のヘリウムの移動の活性化エネルギーが異なる。

本章では異なるフラックス、同様のフルエンスにおいて 4 MeV ヘリウム照射下でのタングステン試料へのブリスター生成の条件に関する結果を示し、ブリスター生成の臨界フラックスはフィックの法則で見積もられることを示す。

3.2 ブリスター発生の臨界フラックスの理論的見積もり

ブリスター生成はタングステン中のヘリウムの拡散挙動と関連付けることができる。したがって、ブリスター生成がガスの保持と放出とのバランスに依存すると推測される。言い換えると、バランスとは、侵入深さ周辺でのイオンフラックスにより決定されるヘリウムの増加と周囲への拡散によるヘリウムの減少により定義される。ブリスター生成は拡散によるヘリウムの流出と流入との兼ね合いに依存する (図 3.2 参照)。タングステンへの

ヘリウムの流入が拡散によるヘリウムの流出よりも大きいとき、プリスターが生成されると仮定する。流入はヘリウムビームの入射イオンフラックス J_{in} に相当する。流出 J_{out} は一次元のフィックの法則により計算できる [49, 50]。

$$J_{out} = -D \frac{dc}{dx} \quad (3.1)$$

ここで、 D は拡散係数、 c はタングステン中のヘリウムの数密度、 x は侵入深さ方向の位置を示す。拡散係数の温度依存性はアレニウスの式により説明できる [51, 52]。

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{E_D}{k_B T}\right) \quad (3.2)$$

ここで、 E_D は拡散の活性化エネルギー、 k_B はボルツマン定数、 D_0 は振動数因子、 T は試料温度である。 $J_{in}/J_{out} \ll 1$ の場合、入射イオンフラックスが支配的なので、プリスターの生成が観測可能である。

濃度勾配 dc/dx は TRIM で計算したヘリウムの数密度の分布により見積もった [53]。図 3.1 にタングステン中に注入されたヘリウムの数密度の深さ分布を示す。図 3.1 中の $\Delta c/\Delta x$ として密度勾配の最大値を式 (3.1) 中の dc/dx として採用した。

図 3.3 に入射イオンフラックスとタングステン中のヘリウムの流出との比 J_{in}/J_{out} の入射イオンフラックス J_{in} 依存性を示す。 J_{out} を計算するために、いくつかの拡散係数を文献 [5,9] より採用した。 $J_{in}/J_{out} > 1$ のとき、プリスターの生成が観測されると予測できる。プリスター生成の臨界フラックスは図 3.3 に示すように、 $8 \times 10^{11} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ から $3 \times 10^{14} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ と見積もられる。

3.3 ヘリウム照射実験結果

3.3.1 ヘリウム照射後のタングステンの表面

図 3.4 に典型的なビーム電流とタングステンの表面温度の時間発展を示す。ここで、赤線はビーム電流、青線は表面温度を示す。図はヘリウムイオンビーム電流が $0.8 - 1 \mu\text{A}$ で

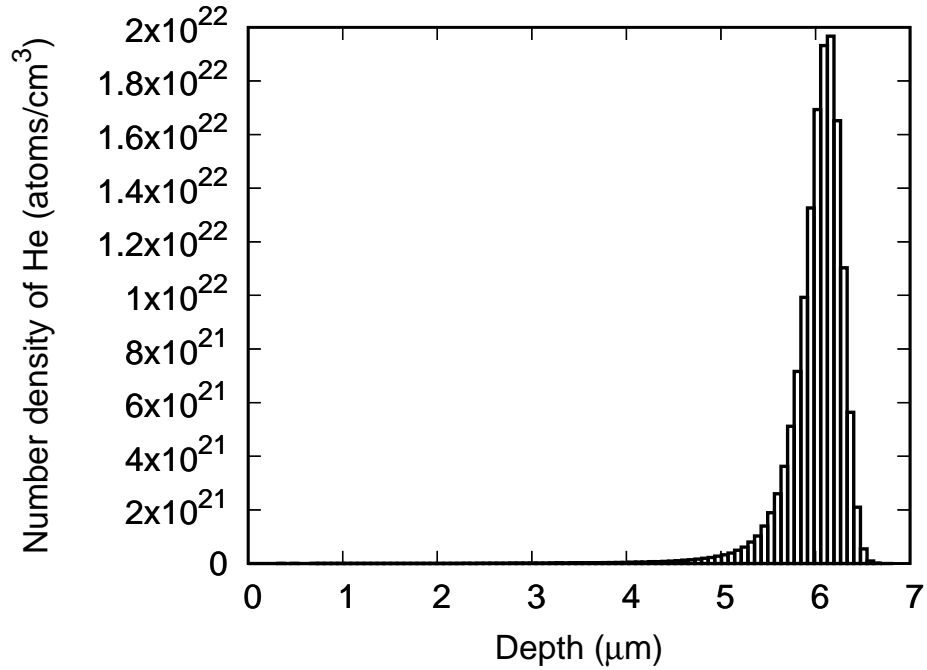


図 3.1 タングステン中に注入されたヘリウムの数密度の深さ分布。ヘリウムの運動エネルギーは4MeV、フルエンスは $1 \times 10^{18} \text{m}^{-2}$ である。

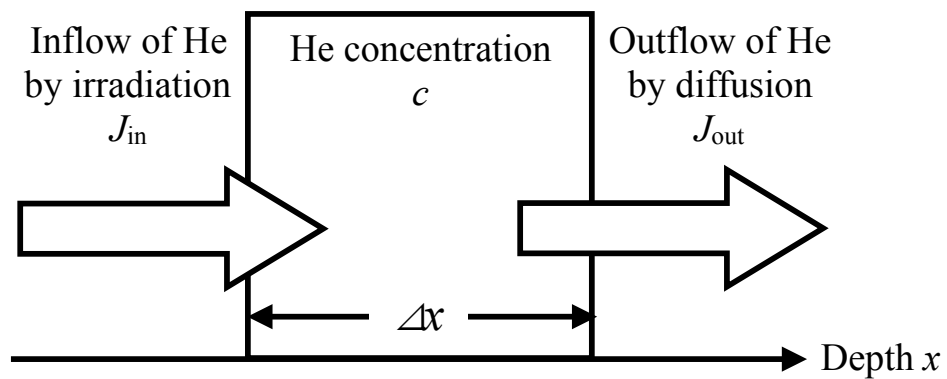


図 3.2 タングステンの深さ方向に対する局所的なヘリウムの流入と流出。

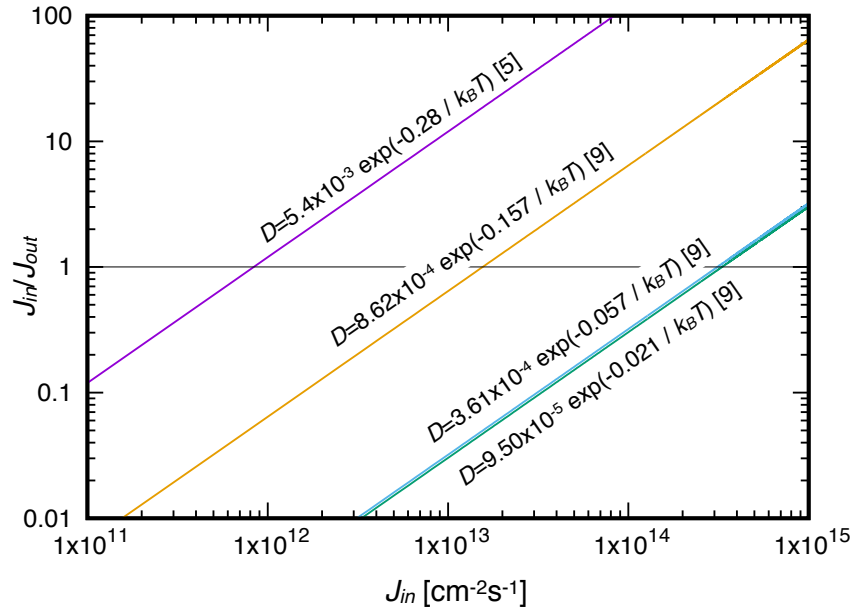


図 3.3 入射イオンフラックスとタングステン中のヘリウムの流出との比 J_{in}/J_{out} の J_{in} 依存性。実線はいくつかの拡散係数を用いた際の依存性を示す。ここで、フラックスは 10^{18}cm^{-2} 、温度は 300K である。

準定常であることを示す。ビーム電流の時間発展から粒子フルエンスとフラックスを計算した。図 3.6 に照射前後のタングステン表面の写真を示す。照射表面の色が暗く変化した。加えて、ブリスターを試料表面で確認した。図 3.6 に図 3.6 中のブリスター部分を拡大した画像を示す。図 3.6(a) は Sample002 でのブリスターを示しており、図 3.6(b) 中の Sample003 には 3 つのブリスターが確認できる。ブリスターの高さを表面粗さ計により測定した。最も大きいブリスターの高さは、約 $20\mu\text{m}$ と測定された。表 3.1 に 4MeV He^{2+} を照射したタングステンの照射条件とブリスターの数を示す。3 つの場合でフルエンスは 10^{18}cm^{-2} である。これは TRIM により推定した侵入長周辺でのヘリウム濃度 30at.% (3,000appm) と 17 dpa に相当する。熱電対とサーモラベルの結果から、試料表面の最大温度は 345 K と 332 K であった。

dpa (displacement per atom) とは標的 1 原子当たりにはじき出しが起こる回数 C_d であ

第3章 プリスター発生 の 臨界フラックスと拡散との関係

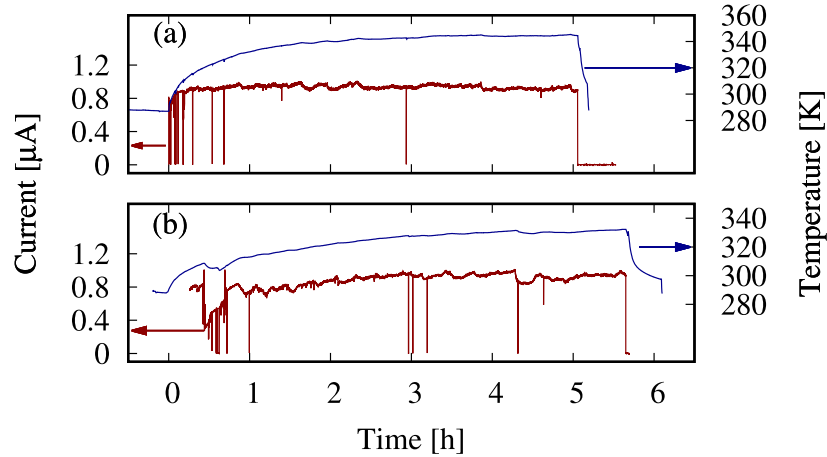


図 3.4 典型的なビーム電流とタングステンの表面温度の時間発展 [33]。赤線はビーム電流、青線は表面温度を示す。

表 3.1 タングステン試料への 4MeV He²⁺ の照射条件とプリスターの数。

フルエンスは 3 つの場合で同じ 10^{18}cm^{-2} である。

Sample	フラックス [$\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$]	温度 [K]	プリスターの数
002	7×10^{13}	345	1
003	7×10^{13}	332	3
008	4×10^{12}	313	0

る。 t_i を照射時間とすると以下のように求めることができる [36]。

$$C_d = \frac{N_d}{N} = \int_0^{t_i} \int_0^\infty \int_{E_d}^{E_{p,\max}} \Phi(E, t) \frac{d\sigma_p(E, E_p)}{dE_p} \nu(E_p) dE_p dE dt \quad (3.3)$$

ここで、 N [atoms/m^3] は単位体積中の標的原子の密度、 N_d [atoms/m^3] は単位体積当たり N 個の標的原子の体系に対するはじき出しの数、 Φ はフラックス、 E は入射粒子の運動エネルギー、 E_p は標的原子に渡されたエネルギー、 $E_{p,\max}$ は標的に渡され得る最大エネルギー、 E_d は標的原子のはじき出しエネルギー、 $d\sigma_p$ は微分断面積、 ν はカスケードの中で最終的につくられるはじき出しの数である。

第3章 ブリスター発生時の臨界フラックスと拡散との関係

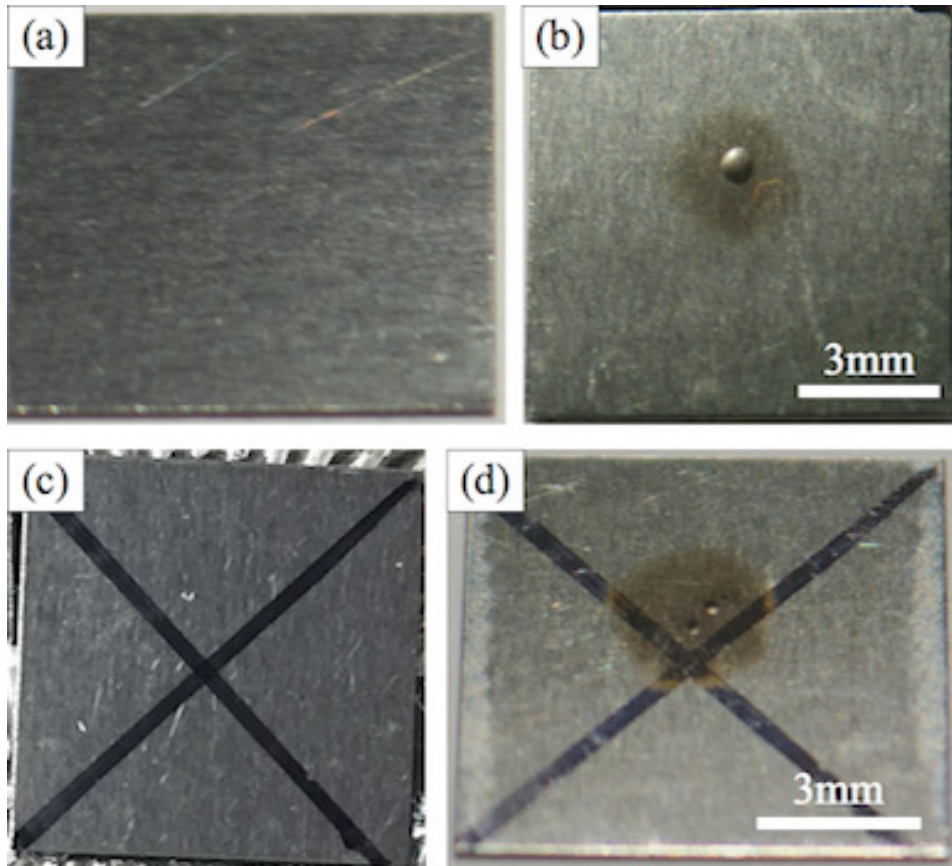


図 3.5 照射前後のタングステン表面の写真 [33]。
(a) 未照射試料 (Sample002)。 (b) 照射試料 (Sample002)。 (c) 未照射試料 (Sample003)。
(d) 照射試料 (Sample003)。

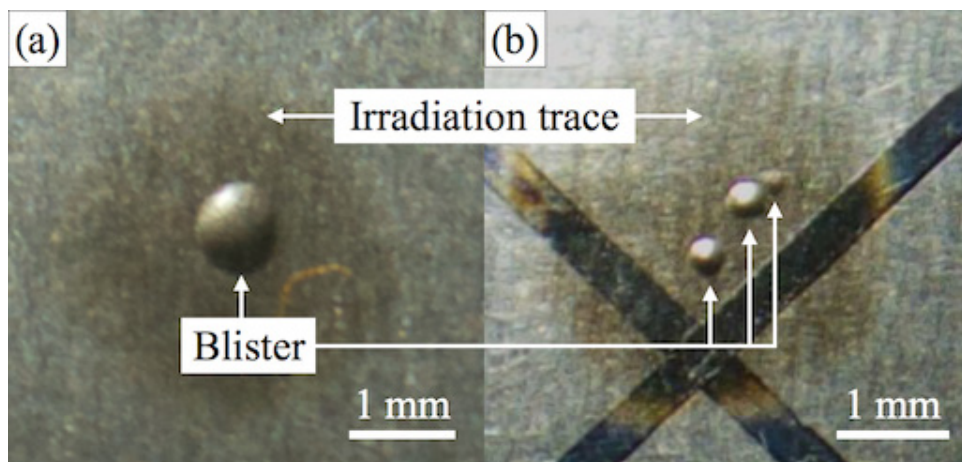


図 3.6 図中のブリスター周辺の拡大写真 [33]。
(a) Sample002。 (b) Sample003。

3.4 見積もられた臨界フラックスと実験結果との比較

図 3.7 に異なるフラックスで照射した後のタングステン表面の画像を示す。図 3.7(a) より、ブリスターはイオンフラックス $7 \times 10^{13} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ では照射後の表面に観測されたが、図 3.7(b) より、ブリスターはイオンフラックス $4 \times 10^{12} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ では観測されなかった。結果は、同じフルエンスを用いたにもかかわらず、ブリスターが高いイオンフラックスが生成されたことを示す。Verbeek と Eckstein ら [54] は 15 keV H^+ の室温でのモリブデンへの照射によるブリスター生成について報告してきた。ブリスターが生成された際のフルエンス（臨界フルエンス）のイオンフラックス依存性を示している。結果は、イオンフラックスの上昇に従ってブリスター生成の臨界フルエンスが減少することを示した。これは本研究結果を支持することを示す。前述したいくつかの拡散係数を参照に見積もられた臨界フラックスは実験結果とオーダーで一致した。

本研究では、拡散の計算に時間発展を考慮していない。つまり、フルエンスに相当する拡散源が置かれた際のヘリウムの流出を考えている。つまり、この仮定はヘリウムの数密度が過大に与えられているため流出が支配的になる。実際には、ヘリウム照射直後は $J_{\text{in}} \geq J_{\text{out}}$ を満たすはずだが、時間の経過に従ってタングステン中のヘリウム数密度が増加するため、いずれは $J_{\text{in}} \leq J_{\text{out}}$ を満たすようになる。本結果は、ヘリウムが最も堆積する状態での流入と流出の兼ね合いを計算したことに意味がある。

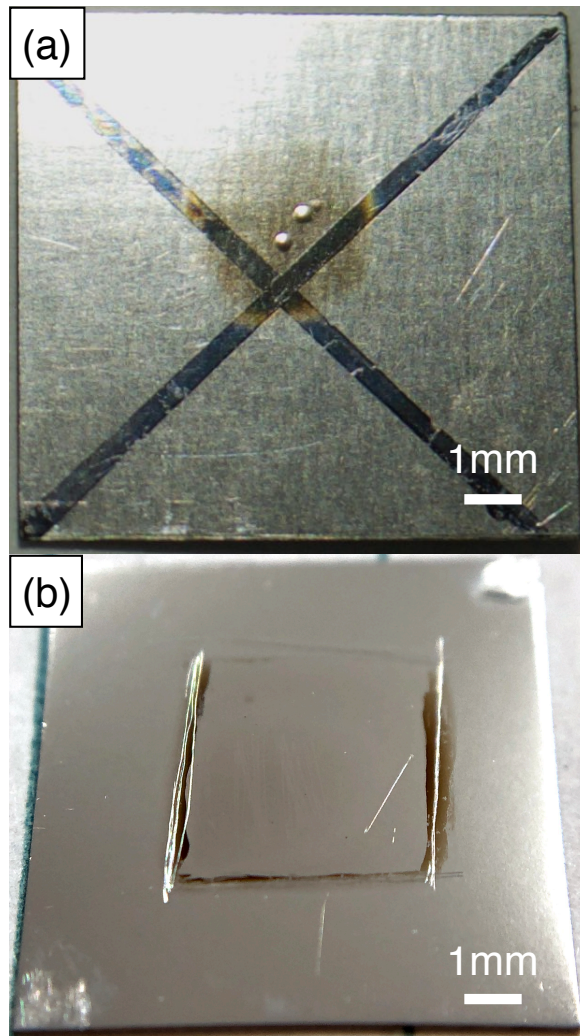


図 3.7 ヘリウム照射後のタンゲステン試料の表面の写真。
(a) フラックス $7 \times 10^{13} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ 。 Sample003。 (b) フラックス $4 \times 10^{12} \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ 。
Sample008。

第 4 章

ヘリウムイオン照射による タンゲステン内部の構造変化

4.1 はじめに

本章ではヘリウムイオン照射によるタングステン内部の構造変化について述べる。ヘリウム照射後のタングステン試料内部の同一箇所を TEM と SEM で観察できる FIB 加工を行い、TEM によりヘリウム照射後のタングステン試料内部を観察する。また、SEM によりヘリウム照射後のタングステン試料内部を観察し、電子線後方散乱回折 (EBSD) を行う。

4.2 照射後のタングステン試料の内部観察

照射した材料の深さ方向の微細構造の変化を観察するために、透過型電子顕微鏡 (TEM) や走査型電子顕微鏡 (SEM) が使用されている。TEM を使用すると、ヘリウムバブルやはじき出し損傷などの照射損傷を観察できる。SEM の電子後方散乱回折 (EBSD: Electron Backscatter Diffraction) では、試料の結晶方位と結晶相を観察できる。

TEM 用の試料の作成方法の一つとして、集束イオンビーム (FIB) によるマイクロサンプリング法 [55] が適用されている。この方法は、TEM 観察用試料を作成するために不可欠だが、形状が複雑なため同じ試料に対して EBSD を実行することは難しい。EBSD では、電子線を 70° の傾斜角で試料の断面に照射するため、後方散乱電子の検出は薄片加工用の銅の試料台に妨げられる。そのため、EBSD と TEM を使用して試料の同じ位置を観察するために、FIB の加工方法を検討した。

図 4.1 に TEM / SEM 観察用試料を作成する手順を示す。TEM 試料の調製時に、タングステンの微小試料をバルクから切り取り、マイクロサンプリング法により銅の試料台に取り付けた。次に、片側の試料台を十分な深さまで削り取り、試料台に作成された谷を通して後方散乱電子が検出できるよう加工した。除去された試料台の幅は、タングステンの微小試料と同じ寸法にした。その後、微小試料を TEM での観察のために厚さ約 100 nm まで薄片加工した。

4.3 TEMによるヘリウム照射箇所と未照射箇所の比較

図 4.2 にヘリウム未照射箇所の明視野像と電子回折像を示し、図 4.3 に照射箇所の明視野像と電子回折像を示す。図 4.2 (a)、図 4.3 (a) は明視野像を示している。制限視野絞りを用いて観察する領域を制限した。図 4.2 (b)、図 4.3(b) は制限視野領域内の電子回折像を示す。

図 4.2 (b) より、ヘリウム未照射箇所の電子回折像からデバイ・シェラー環が確認できる。図 4.3 (b) より、ヘリウム照射箇所の電子回折像からまばらな回折点を確認できる。これらの結果は、ヘリウム照射箇所はヘリウム未照射箇所と比べて結晶粒の粒径が大きいことを示す。この結果より、ヘリウムイオン照射によって再結晶化が発生し、粒径が変化した。

4.4 TEMとSEMによるヘリウム照射箇所と未照射箇所の比較

図 4.4 に、TEMとEBSDによるヘリウム未照射箇所のタングステンの深さ方向の観察結果を示す。また、図 4.5 に、TEMとEBSDによるヘリウム未照射箇所のタングステンの深さ方向の観察結果の生データを示す。方向マップの分解能は 30 nm とした。結晶方向マップは、試料断面の法線方向からの結晶方位の空間分布を表している。カラーは、図中の上部にある凡例に対応した結晶方位を表している。図 4.4 中の実線は結晶粒界を示している。破線は、4 MeV ヘリウムのタングステン中の侵入深さに相当する表面から深さ $6\mu\text{m}$ の位置を示している。

図 4.4 中の結晶方位マップから試料は、深さ方向に対して特定の方位に配向していないことがわかる。また、明視野像と結晶方位マップで結晶粒の形状、寸法、位置がほぼ同じであることがわかる。

図 4.6 に TEM によるヘリウム照射箇所と未照射箇所の明視野像を示す。平均粒径は、未照射領域と照射領域の明視野像からの 4 MeV ヘリウムビームの照射領域に対して、切片法を使用して決定した。その結果、未照射領域の平均粒径と標準偏差は $0.5 \pm 0.5 \mu\text{m}$

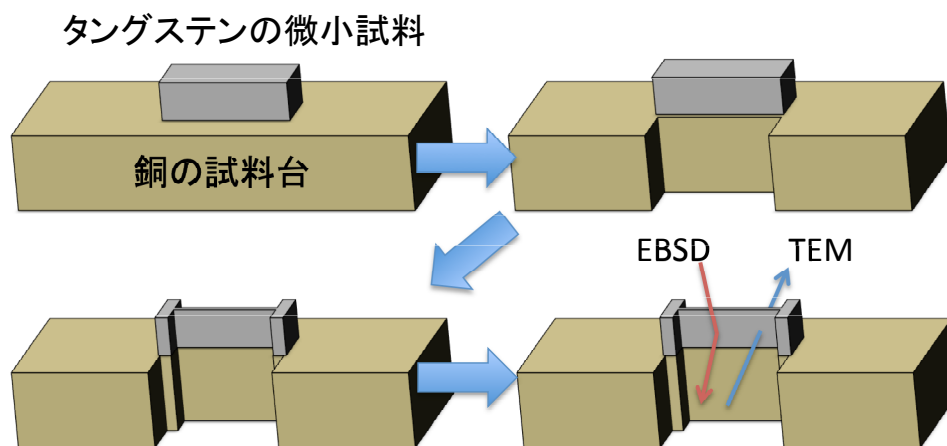


図 4.1 FIB による TEM/SEM で同箇所を作成するための加工手法。

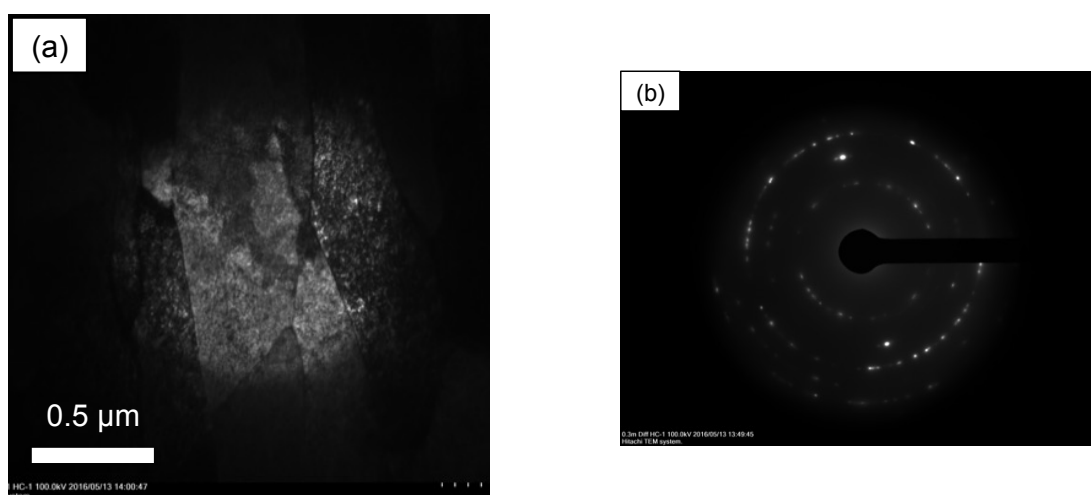


図 4.2 ヘリウム未照射箇所の明視野像 (a) と電子回折像 (b) [56]。電子回折像から、デバイ・シェラー環が確認できる。

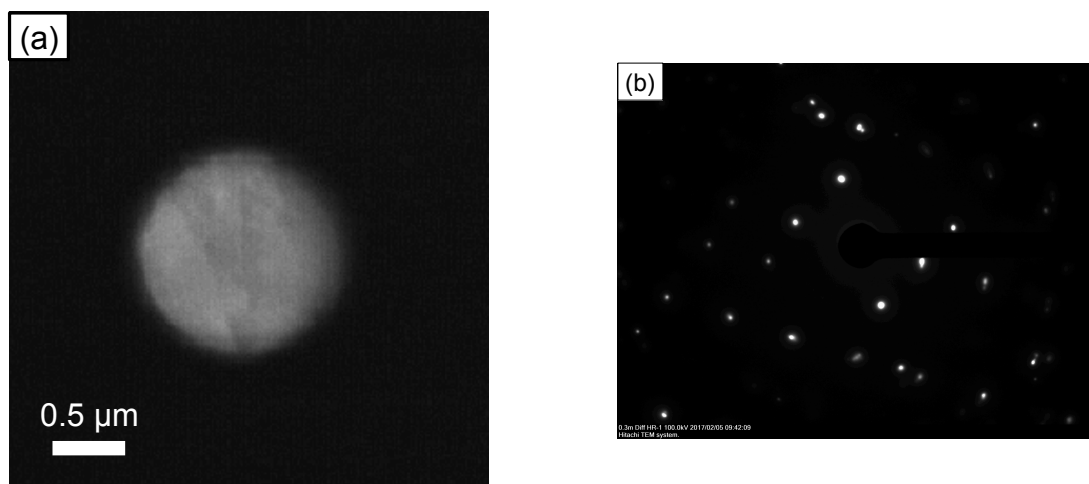


図 4.3 ヘリウム照射箇所のみ視野像 (a) と電子回折像 (b) [56]。電子回折像から、まばらな回折点を確認できる。

だった。照射領域では、 $0.8 \pm 0.9 \mu\text{m}$ だった。また、ヘリウム照射箇所では 4 MeV He の W 中の侵入深さ周辺 ($6 \mu\text{m}$) での局所的な結晶粒径の増加が確認できる。このことから、4 MeV ヘリウムビームの照射により、タングステン試料内部の粒径が増加したことがわかる。ヘリウムイオン照射によって再結晶化が発生し、粒径が変化した。荷電粒子はブラッグピークをもつため、材料の深部で局所的にエネルギーを付与する。つまり、イオン照射によって局所的に試料の温度が上昇する可能性がある。

4.5 ヘリウム照射によるターゲットの温度上昇の見積もり

前節でヘリウム照射により試料の温度が上昇する可能性が示唆された。そこで、タングステン試料とイオンコレクタの温度上昇を計算した。図 4.7 にイオンコレクタの概略図を示す。真鍮、鉄、デルリンによって構成されているが、計算では、全て鉄 (Fe) であると仮定した。イオンコレクタの体積は、タングステン試料の体積と比べて十分大きいので試料の体積と比熱は無視した。また、ビームのエネルギーの総和はターゲットに付与されたエネルギーと仮定し、断熱系で計算した。

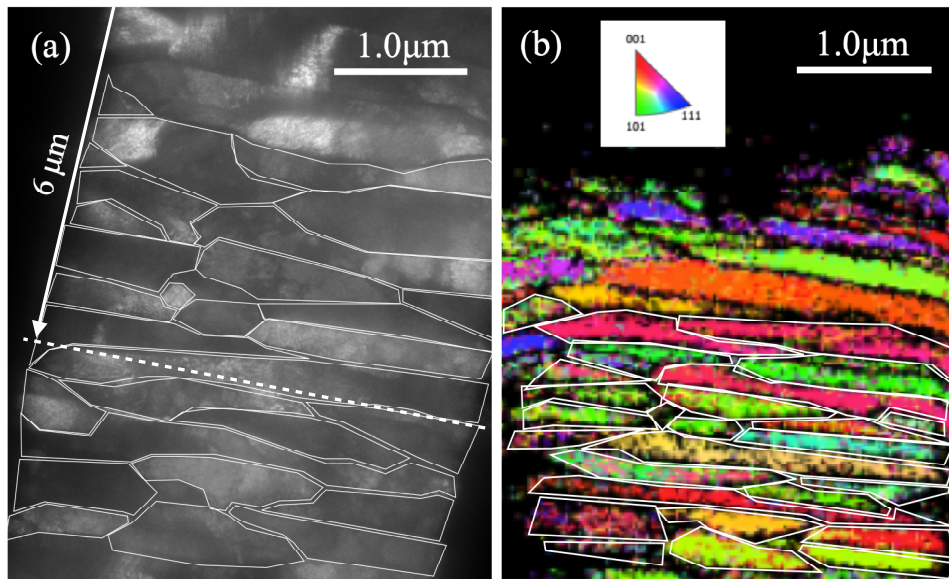


図 4.4 TEM と EBSD によるヘリウム未照射箇所のタングステンの深さ方向の観察結果。
(a) TEM による明視野像。(b) EBSD による結晶方位マップ。

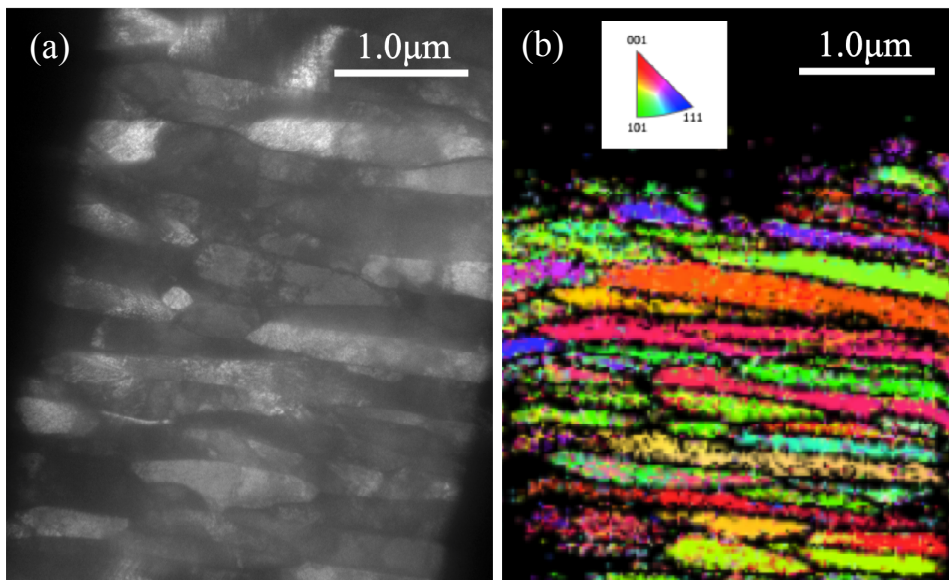


図 4.5 TEM と EBSD によるヘリウム未照射箇所のタングステンの深さ方向の観察結果
(生データ)。
(a) TEM による明視野像。(b) EBSD による結晶方位マップ。

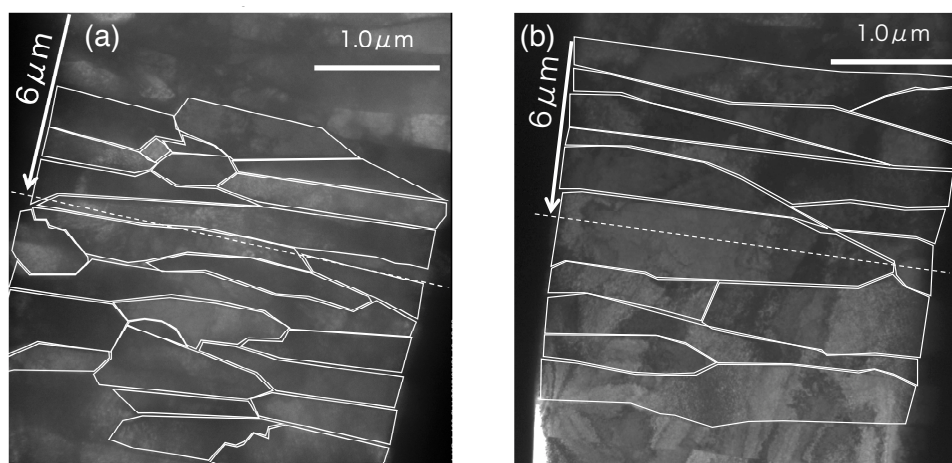


図 4.6 TEM によるヘリウム照射箇所と未照射箇所の明視野像。
(a) 未照射箇所。(b) 照射箇所。

熱量 Q [J]、熱容量 C [J K⁻¹]、温度 T [K] とおくと以下の式が成り立つ。

$$Q = C\Delta T \quad (4.1)$$

熱量 Q がビームのエネルギーの総和であると仮定すると、以下のように計算できる。ただし、入射した He²⁺ の運動エネルギー $E = 4.0 \times 10^6$ [eV]、入射した He²⁺ の個数 $N_{\text{in}} = 5.34 \times 10^{16}$ 、素電荷 e [C] とおく。

$$Q = N_{\text{in}} E e = 34.22[\text{kJ}] \quad (4.2)$$

熱容量 C は、イオンコレクタの体積 $V_c = 37.506$ [cm³] と鉄の密度 $\rho_{\text{Fe}} = 7.84$ [g cm⁻³]、モル質量 $A_{\text{Fe}} = 55.847$ [g mol⁻¹] とおくと、 $T = 298$ [K] における定積モル比熱 $c_{v,\text{Fe}} = 25.09$ [J mol⁻¹ K⁻¹] を用いて以下ようになる。

$$C = \frac{c_{v,\text{Fe}} \rho_{\text{Fe}} V_c}{A_{\text{Fe}}} = 132.10[\text{J K}^{-1}] \quad (4.3)$$

以上より、温度上昇は以下のように計算できる。

$$\Delta T = \frac{Q}{C} = \frac{N_{\text{in}} E e}{c_{v,\text{Fe}} \rho_{\text{Fe}} V_c / A_{\text{Fe}}} = 259.04 \quad (4.4)$$

よって初期温度を $T_0 = 298[\text{K}]$ とおくと、実験後の温度 $T_1 = 557.05[\text{K}] = 283.91[^\circ\text{C}]$ となる。

この値は、タングステンの再結晶化温度 $1300[^\circ\text{C}]$ と比べて小さい。

4.5.1 タングステン試料のみの温度上昇

温度上昇は以下のように計算できる。ただし、タングステンの体積 $V_W = 0.02[\text{cm}^3]$ 、密度 $\rho = 19.3[\text{g cm}^{-3}]$ 、モル質量 $A_W = 183.84[\text{g mol}^{-1}]$ とおくと、 $T = 300[\text{K}]$ における定積モル比熱 $c_{v,W} = 24.2[\text{J mol}^{-1} \text{K}^{-1}]$ を用いて以下のようになる。

$$\Delta T = \frac{Q}{C} = \frac{N_{\text{in}} E e}{c_{v,W} \rho_W V_W / A_W} = 6.70 \times 10^5 \quad (4.5)$$

よって、初期温度を $T_0 = 298[\text{K}]$ とおくと、実験後の温度 $T_1 = 6.703 \times 10^5[\text{K}] = 6.7 \times 10^5[^\circ\text{C}]$ となる。この値は、タングステンの再結晶化温度 $1300[^\circ\text{C}]$ と比べて大きい。これは、局所的にエネルギーが投入された場合はタングステンを再結晶化する可能性があることを示している。

4.6 見積もられたターゲットの温度上昇と実験結果との比較

内部の結晶構造を確認するために、透過電子顕微鏡を用いてヘリウム照射箇所と未照射箇所の電子回折像を取得した。マイクロサンプリング法に加えて、EBSD を使用して後方散乱電子が検出されるのに十分な深さまで銅の試料台を掘削した。未照射箇所の回折像から、多結晶に特有のデバイ・リングを確認した。一方で、照射箇所の回折像から、まばらな回折点を確認した。この結果は、照射箇所の粒径が未照射箇所よりも大きいことを示している。

第4章 ヘリウムイオン照射によるタングステン内部の構造変化

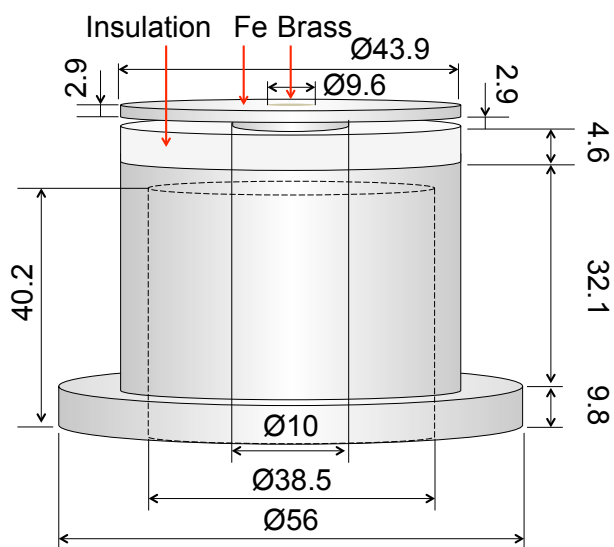


図 4.7 イオンコレクタの概略図 (単位:mm)。

TEM と EBSD を使用して同じ位置で試料を測定し、タングステンの損傷を評価した。明視野画像と結晶方位マップから、ヘリウム照射箇所ではヘリウムの侵入深さ周辺で結晶粒径が増加していることを確認した。

ヘリウムイオン照射によるタングステン試料の温度上昇を計算した。その結果、試料と試料台の実験後の温度は、 557.28 [K] となった。また、試料のみの実験後の温度は、 6.703×10^5 [K] となった。これは、局所的にエネルギーが投入された場合は、タングステンを再結晶化する可能性があることを示している。これらは、ヘリウムイオン照射によって、タングステンの温度が局所的に上昇し再結晶化した可能性を示唆している。

第 5 章

ブリスターの生成機構・ブリスター膜厚と 飛程との関係

5.1 はじめに

高エネルギーヘリウム照射により生じるタングステンへのブリスター生成機構とその特徴を解明することは、将来の核融合システム設計において、炉壁の肉厚などを決定する際に重要である。前章でフルエンス 10^{18} ions cm^{-2} での照射でブリスターが生成されることを確認した。本章では、ブリスター形成機構の一つである内圧モデルについて説明し、実験結果と比較する。また、ブリスターの膜厚を測定し 4 MeV ヘリウムイオンのタングステンへの飛程とを比較することでその特徴を明らかにする。

5.2 ブリスターの駆動力

5.2.1 内圧モデル

バブルのガス圧は直径と膜厚の測定結果から見積もることができる。バルク材料中の半径 $1\mu\text{m}$ 以下のバブルについて、表面張力 γ が支配的な抑制力を与える。

$$p_b = 2r/\gamma \quad (5.1)$$

ここで、 r はバブルの半径である。

ヘリウムバブル同士が合体し、その圧力がある臨界値を超えると材料を変形させてブリスターが形成される。つまり、表面近傍での塑性変形により形成されるブリスターの抑制力は金属強度である。金属強度にはヤング率や降伏応力が使われる。S.K. Das ら [57] はブリスターの内圧 p_0 を求める 4 つの式を紹介している。図 5.1 にブリスター断面の概略図を示す。Primak と Luthra [58] は球面殻の一部を仮定し、ブリスター内の圧力に関する式を与えた。

$$p_0 = \frac{4htY}{h^2 + a^2} \quad (5.2)$$

ここで、 t はブリスターの膜厚、 h はブリスターの高さ、 $2a$ はブリスターの弦の長さ、 Y はヤング率である。弦の長さは、顕微鏡から測定したブリスターの直径に相当する。

Milacek ら [59] は端部が固定された円形の薄膜がゆがむための臨界圧力 p_0 を考え、陽

子照射後のアルミニウムのプリスター内の圧力を見積もった。

$$p_0 = \frac{4\sigma_0 t^2}{3a^2} \quad (5.3)$$

ここで、 σ_0 は降伏応力である。

Hill [60] は外周が固定された円形ダイアフラム金属の変形を考えた。塑性変形によるプリスターはダイアフラムの片側に供給されたガス圧による。ダイアフラムの応力-ひずみ曲線を1次関数によって近似し、 $\sigma = \sigma_0(1 + H\epsilon)$ とおくと、

$$p_0 = \sigma_0 \frac{4ht}{a^2} \left\{ 1 + \frac{1}{2}(3H - 5) \frac{h^2}{a^2} \right\} \quad (5.4)$$

となる。ここで、 σ は応力、 ϵ はひずみ、 H は加工方法により変化する無次元定数で、典型的な冷間加工材料の場合は $H = 3$ となる。

応力-ひずみ曲線を $\sigma = \sigma_0 \exp(\epsilon)$ とおくと、内圧は

$$p_0 = \frac{4\sigma_0 ht}{a^2 + h^2} \quad (5.5)$$

となる。式 5.5 は式 5.2 のヤング率 Y の代わりに降伏応力 σ_0 を与えること以外は同じである。

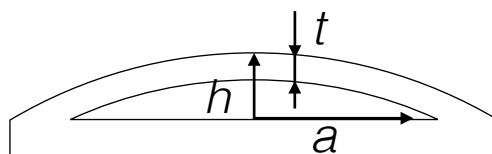


図 5.1 プリスター断面の概略図。 t はプリスターの膜厚、 h はプリスターの高さ、 $2a$ はプリスターの弦の長さである。

5.2.2 ブリスター内部にあるヘリウムの数

前節でブリスターの内圧モデルについて説明した。本実験により生成されたブリスターが内圧モデルで説明できるかどうか検証する必要がある。ブリスターに入射したヘリウムの数 N_i はブリスター内部にある He の数 N_b よりも多いと予想される。

N_i は以下の式で表される。

$$N_i = J_{in} S_b \quad (5.6)$$

ここで、 J_{in} は粒子フラックス、 S_b はブリスターの断面積である。粒子フラックスは、ヘリウム照射実験において測定したイオン電流から求めた。ブリスターの断面積は表面粗さ計で測定した、ブリスターの高さ分布から FWHM(Full Width at Half Maximum) をブリスターの直径として算出した。

ブリスター内部の粒子数 N_b はヘリウムの数密度 n とブリスターの体積 V_b より求めた。 V_b はブリスターの空隙を長方形と近似して求めた。

$$N_b = nV_b \quad (5.7)$$

ヘリウムの数密度 n は理想気体の状態方程式から求めた。

$$p_0 = nk_B T \quad (5.8)$$

ここで、 p_0 はブリスターの圧力、ボルツマン定数は k_B 、温度は T である。

5.2.3 内圧モデルと実験結果との比較

表 5.1 に N_i と N_b との比較結果を示す。予想では $N_i \geq N_b$ でなければブリスターが生成されないはずである。表より、式 (5.2) から求めた N_i は予想と反して過小評価されている。一方で、式 (5.3)、式 (5.4)、式 (5.5) は予想と一致している。式 (5.2) では、応力-ひずみ曲線の弾性変形領域の比例定数であるヤング率を用いている。実際にはブリスターは塑性変形により生成されるはずなので、ヤング率を用いた場合、予想と一致しなかったと考

第5章 ブリスターの生成機構・ブリスター膜厚と飛程との関係

えられる。このことから、ブリスター生成の内圧モデルは式(5.3)、式(5.4)、式(5.5)については実験結果と矛盾せず、ブリスターは塑性変形により生成される可能性がある事がわかった。

表 5.1 N_i と N_b との比較結果。

Equation	Blister	N_i		N_b
$p_0 = \frac{4htY}{h^2+a^2}$ (5.2)	a	5.03×10^{14}	<	3.29×10^{17}
	b	5.38×10^{14}	<	1.31×10^{17}
	c	2.75×10^{14}	<	4.54×10^{16}
$p_0 = \frac{4\sigma_0 t^2}{3a^2}$ (5.3)	a	5.03×10^{14}	~	1.16×10^{14}
	b	5.38×10^{14}	>	5.06×10^{13}
	c	2.75×10^{14}	>	1.88×10^{13}
$p_0 = \sigma_0 \frac{4ht}{a^2} \left\{ 1 + \frac{1}{2}(3H - 5) \frac{h^2}{a^2} \right\}$ (5.4)	a	5.03×10^{14}	~	4.53×10^{14}
	b	5.38×10^{14}	~	1.79×10^{14}
	c	2.75×10^{14}	>	6.23×10^{13}
$p_0 = \frac{4\sigma_0 ht}{a^2+h^2}$ (5.5)	a	5.03×10^{14}	~	4.40×10^{14}
	b	5.38×10^{14}	~	1.76×10^{14}
	c	2.75×10^{14}	>	6.07×10^{13}

5.3 ブリスターの膜厚と飛程との関係

5.3.1 ブリスター膜厚の測定

静電加速器を用いて、4 MeV のヘリウムイオンをフラックス $10^{14}\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、フルエンス 10^{18}cm^{-2} 、照射温度 288–332 K でタングステンに照射した際にブリスターが生成されることを確認してきた。このブリスターを FIB により切り出し、断面を観察した。図 5.2 にタングステン表面に生成されたブリスターの画像を示す。図 5.2(b) にある拡大図のように、各ブリスターの頂点付近を FIB によって切り出し、断面を観察するための穴を作成した。穴を作成した後に、試料を傾斜させ断面を観察した。図 5.3 にタングステン試料の断面観察の説明図を示す。図の左側は実際に FIB で掘られた穴を SEM により観察した様子で、右側は SEM 画像に対応した概略図である。図中の x 、 y 方向が試料表面を示しており、 x 方向は試料の深さ方向を示している。FIB ではエネルギーの高いガリウムイオンビームを試料表面方向から照射して、試料を削る。その際、イオンビーム広がりがあるため、目的箇所の試料表面が削れてしまう問題がある。そこで目的箇所の試料表面にカーボンの保護膜を形成した。図 5.4 に SEM によるタングステン断面の二次電子像を示す。カーボンの保護膜とタングステンではコントラストが異なるため、タングステン試料の表面が明確になっている。図 5.4(a) より、ヘリウム未照射箇所では、深さ方向に損傷は確認できない。一方で、図 5.4(b) よりブリスター (a) の断面には亀裂が確認できる。

カーボンの保護膜から、亀裂までの距離をブリスターの膜厚として測定した。図 5.5 にブリスターの膜の概略図を示す。図 5.5(a) は SEM により観察したタングステン試料の断面画像に相当する。つまり、長さ p は SEM により測定可能である。5.5(b) に示すように、 p は正味の膜厚 t の射影なので、以下のように求められる。

$$t = \frac{p}{\sin \theta} \quad (5.9)$$

ここで、 θ はタングステン断面を観察するために傾斜した角度を示す。本研究では θ は 60° とした。

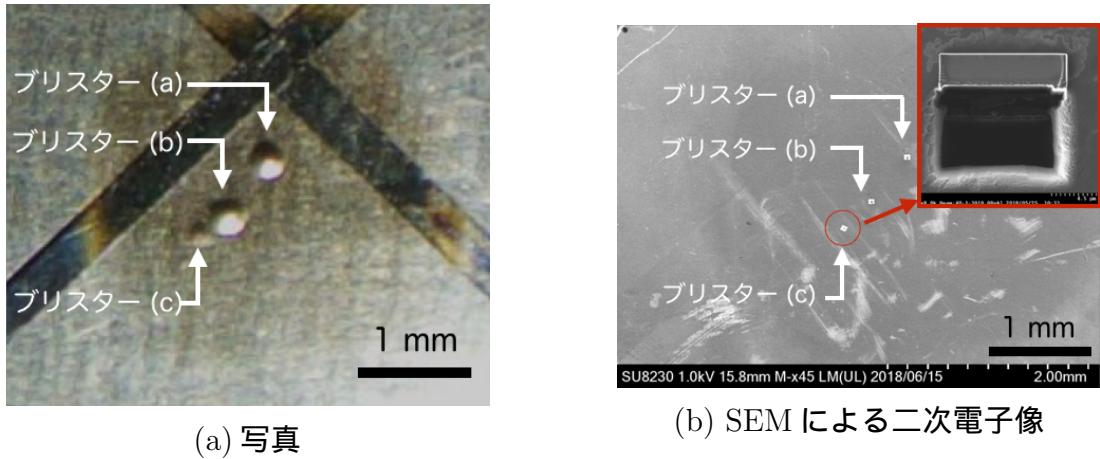


図 5.2 タングステン表面に生成されたブリスターの画像 (Sample003)。イオン種は He^{2+} 、運動エネルギーは 4MeV、フラックスは $10^{14}\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、フルエンスは 10^{18}cm^{-2} 、照射温度は 288–332 K である。

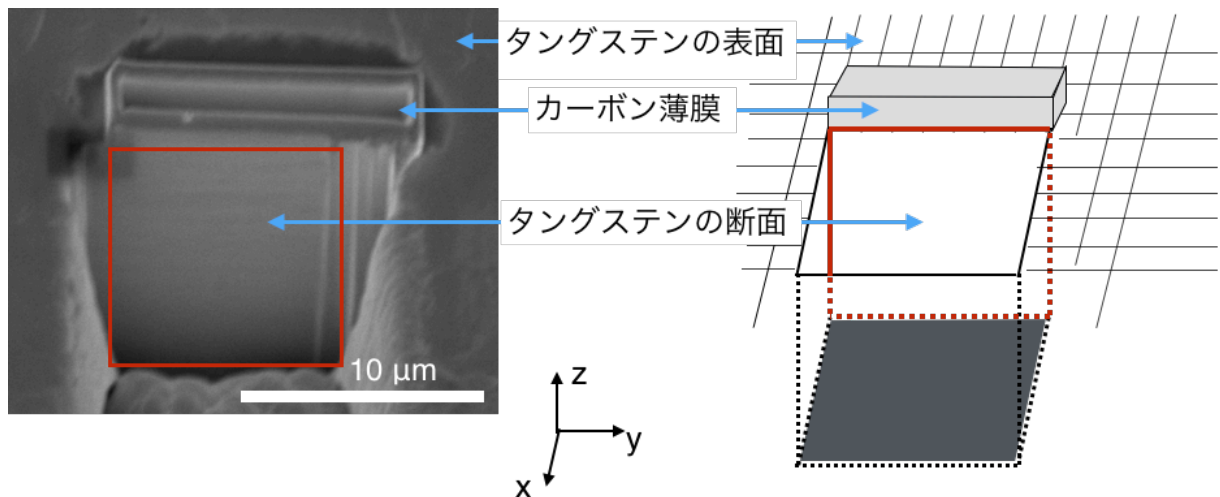
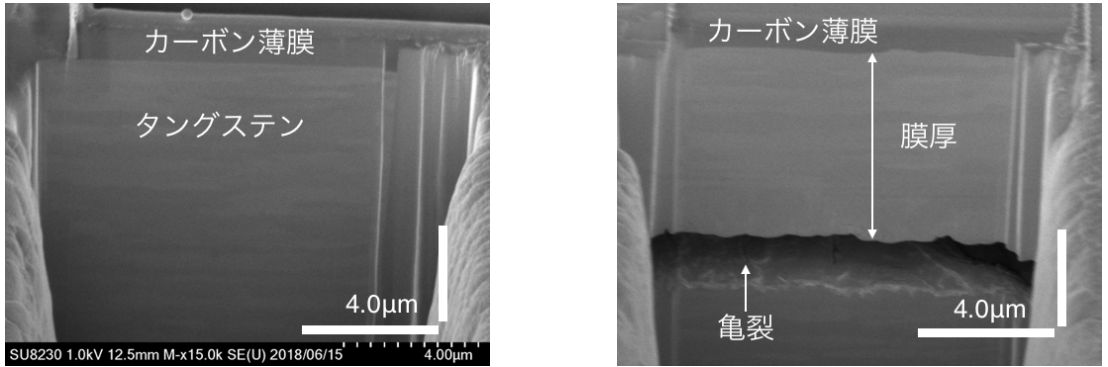


図 5.3 タングステン試料の断面観察の説明図

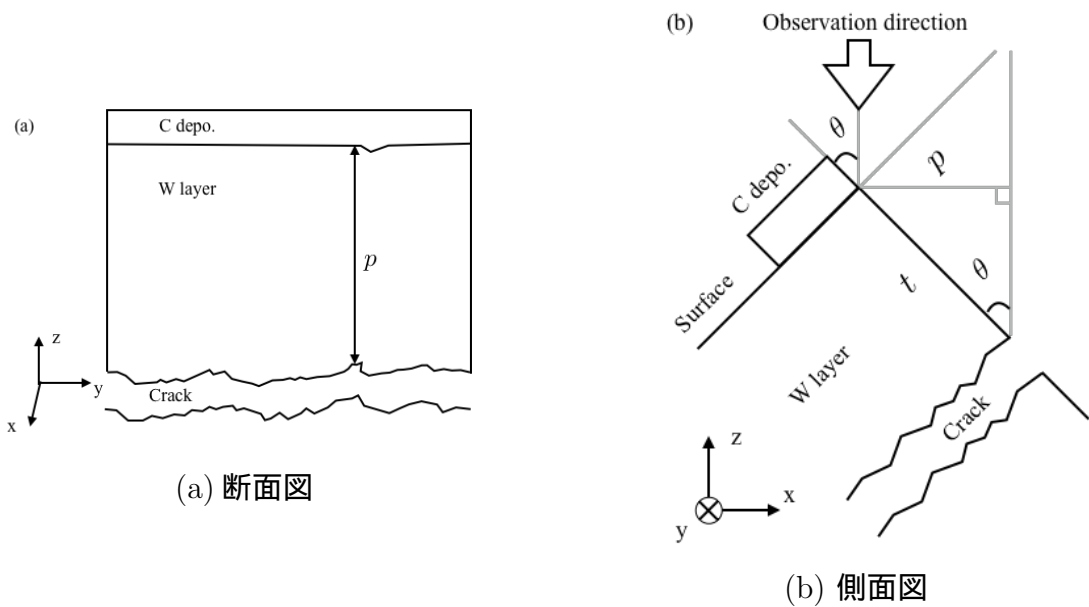
第5章 プリスターの生成機構・プリスター膜厚と飛程との関係



(a) ヘリウム未照射箇所

(b) ヘリウム照射箇所、プリスター (a)

図 5.4 SEM によるタングステン断面の二次電子像 (Sample003)。



(a) 断面図

(b) 側面図

図 5.5 プリスターの膜の概略図。

5.3.2 プリスター膜厚と飛程との比較

図 5.6 にプリスター膜厚と 4 MeV ヘリウムのタングステンへの飛程との比較を示す。黒点は測定したプリスターの膜厚 t を示す。3 つある点はそれぞれ膜厚の最小値、平均値、最大値を示す。ヒストグラムは、ヘリウム濃度の深さ依存性を示す。SRIM [53]、ASTAR [37]、ATIMA [61] コードで計算した 4 MeV ヘリウムのタングステンへの飛程をそれぞれ、赤、緑、青の実線で示す。図より測定した 3 つのプリスターの膜厚は常に飛程よりも大きくなった。

プリスターは材料内部にあるヘリウムバブルが結合し、内圧により試料表面が塑性変形することで発生する。図 5.7 にヘリウムバブルの結合とプリスター生成の概略図を示す。この内圧モデルによると、ヘリウムバブルは照射したヘリウムのタングステンへの飛程周辺に位置するはずである。しかし、図より測定したプリスターの膜厚は、計算された飛程と μm オーダーで異なる。

S. A. Maloy ら [62] は、タングステンの機械的特性に対する陽子照射の影響を、最大線量 23 dpa まで陽子ビームを照射した後の硬さと圧縮試験によって測定した。タングステンへの圧縮試験における 0.2%降伏応力と線量との関係を明らかにしている。照射温度は 50°C と 270°C の間で変化するが、この変化はタングステンの融点 3387°C に対して非常に小さい。したがって、対応する照射温度が原因で、得られた機械的応答性が変化する可能性は低い。タングステンの圧縮降伏応力は、23 dpa の照射で未照射試料と比べてほぼ 2 倍に増加している。

図 5.8 に TRIM で計算した 4 MeV ヘリウム照射後のタングステンの dpa 深さ分布を示す。計算は本実験条件と合わせて、ヘリウムの運動エネルギーを 4 MeV、フルエンスを 10^{18}cm^{-2} とした。また、タングステンのはじき出しエネルギーは 70 eV とした [63]。図より、はじき出し損傷は深さ分布を有する事がわかる。また、深さ $6\ \mu\text{m}$ 付近で 16 dpa 程度の最大値をもち、それより深い領域では急激に dpa が減少している。

図 5.8 によりヘリウムの侵入深さ周辺では dpa が局所的に上昇することがわかる。また、S. A. Maloy ら [62] の実験結果から、dpa の増加により降伏応力が上昇することがわ

第5章 プリスターの生成機構・プリスター膜厚と飛程との関係

かる。これらのことから、ヘリウムの侵入深さ周辺の方が、侵入深さより深い位置よりも降伏応力が高いため、侵入深さ周辺ではプリスターの起点となる亀裂が発生しなかった可能性がある。つまり、最も降伏応力の低い、侵入長よりも深い領域で亀裂が発生した可能性がある。図 5.9 にヘリウム照射によるタングステンの降伏応力の深さ依存性を示す。図はタングステンへの圧縮試験における 0.2%降伏応力と線量との関係 [62] と図 5.8 を用いて作成した。また、図中にプリスター膜厚の測定結果も同時に示した。図より深さ 6 μm 付近で降伏応力が最大値を示し、それより深い領域では急激に降伏応力が減少している。また、降伏応力が最小となる飛程よりも深い位置とプリスターの膜厚が対応している。このことから、プリスター膜厚の方が飛程よりも大きい原因は、高エネルギーヘリウム照射で発生する材料原子のはじき出しにより、タングステンの降伏応力が増加したためと考えられる。降伏応力はタングステン表面からヘリウムの飛程まで増加するため、より降伏応力の低い飛程よりも深い位置で亀裂が発生したと考えられる。

もしプリスターが成長し、表面剥離が発生した場合、第一壁の肉厚を減少させる。この炉壁の減肉の度合いはプリスターの膜厚に依存すると予想される。つまり、プリスターの膜厚が飛程よりも大きいという実験結果は、将来の核融合炉において炉壁の肉厚を飛程を根拠に決定すると過小評価になる可能性を示す。

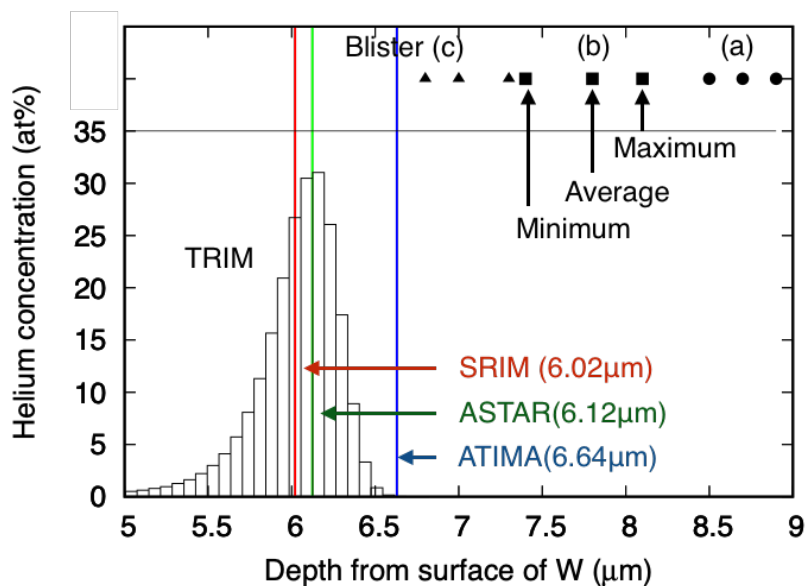


図 5.6 ブリスター膜厚と 4 MeV ヘリウム のタンゲステンへの飛程。

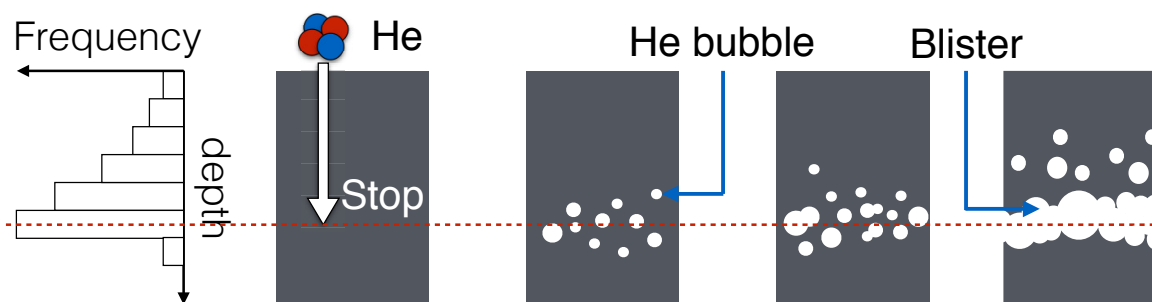


図 5.7 ヘリウムバブルの結合とブリスター生成の概略図。

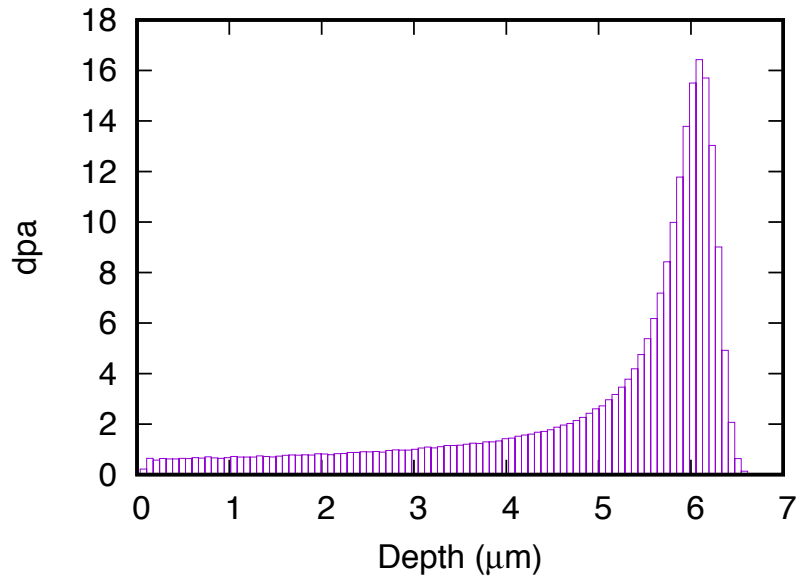


図 5.8 TRIM で計算した 4 MeV ヘリウム照射後のタングステンの dpa 深さ分布。はじき出しエネルギーは 70eV、ヘリウムのフルエンスは 10^{18}cm^{-2} である。

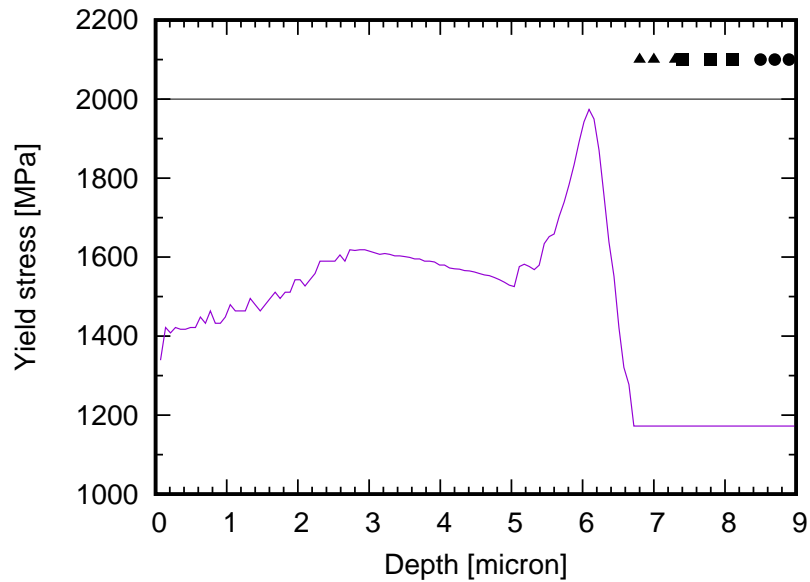


図 5.9 ヘリウム照射によるタングステンの降伏応力の深さ依存性。ヘリウムのフルエンスは 10^{18}cm^{-2} 、運動エネルギーは 4MeV である。黒点は、図 5.6 にあるプリスター膜厚の測定結果に対応する。

第 6 章

結論

DEMO 炉以降の核融合システムの第一壁の候補材料であるタングステン表面はトロイダルリップロスによる MeV 級のヘリウムイオンの入射によりプリスターが生成され、それが剥離し減肉や放射損失を引き起こすことが問題視されている。しかし室温での W への MeV 級の He 照射による研究は少ない。将来の核融合システム設計のため、プリスター生成機構を明らかにする必要がある。

第1章では、本研究の背景と目的について述べた。本研究では、MeV 級のヘリウム照射がタングステン内部に及ぼす影響を調査し、プリスター生成特性を明らかにすることを目的とした。

第2章では、本研究で構築したヘリウムイオン照射と内部損傷を観察するため実験系・観測系について述べた。静電加速器により MeV 級の He イオンビームを W 板材に照射する実験系を構築した。照射中のイオン電流から、イオンフラックス、フルエンスを計算した。照射後の W 試料を FIB により加工し、SEM、TEM により内部の損傷を観察する実験の流れを構築した。

第3章ではプリスター発生の臨界フラックスと拡散との関係について調査した。プリスター発生の臨界フラックスがイオン照射フラックスによる流入とタングステン中のヘリウムの拡散による流出との兼ね合いであることを理論的に見積もり、He 照射実験の結果と比較したところ、見積もった臨界フラックスが実験結果とおおよそ一致することを確認した。臨界フラックスを導いたことにより、将来の核融合炉設計において、プリスター発生の有無を予測できる可能性がある。

第4章ではヘリウムイオン照射によるタングステン内部の構造変化について述べた。He 照射後の W 試料内部を TEM と SEM で観察できる FIB 加工法を開発した。TEM により He 照射後の W 試料内部を観察し、電子回折像から結晶粒径が増加していることを確認した。SEM により He 照射後の W 試料内部を観察し、EBSD から結晶粒径が増加していることを確認した。このことから、ヘリウムイオン照射によりタングステンの温度が局所的に上昇し再結晶化した可能性が考えられる。

第5章ではプリスターの生成機構・プリスター膜厚と飛程との関係について述べた。プ

リスター生成機構の一つである内圧モデルについて説明し、ブリストアが観測された実験条件が内圧モデルと矛盾しないことを示した。ブリストア膜厚の方が飛程よりも大きいことを明らかにした。また、その原因が高エネルギーヘリウム照射で発生する材料原子のはじき出しにより、タングステンの降伏応力がヘリウムの飛程付近で局所的に増加したため、より降伏応力の低い飛程よりも深い位置で亀裂が発生した可能性を示した。これは、将来の核融合炉設計において、第一壁の肉厚を考える際に、従来のスパッタリングによる減肉や、飛程の計算結果に基づく設計では、過小評価である可能性を示唆する。

以上、本研究では、将来の核融合炉の設計に関わる、タングステンへの高エネルギーヘリウム照射によるブリストアの特徴を明らかにした。

参考文献

- [1] IEA:world energy outlook 2016.
- [2] BP 統計 2013.
- [3] Uranium2011.
- [4] S. T.F., D. Qin, G. Plattner, M. Tignor, S. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex, P. Midgley, Climate Change 2013: The Physical Science Basis., Cambridge University, 2013.
- [5] 経済産業省 資源エネルギー庁, エネルギー白書 2016.
- [6] 核融合研究開発の経過 (最終閲覧日 : 2020 年 3 月 23 日), http://www.rist.or.jp/atomica/data/dat_detail.php?Title_No=07-05-01-03.
- [7] 柱井誠, 基礎エネルギー工学, 数理工学社, 2002.
- [8] 宮本健郎, 新エネルギー概論, 共立出版, 1980.
- [9] 原子力委員会 ITER 計画懇談会, ITER 計画懇談会報告書-国際熱核融合実験炉 (ITER) 計画の進め方について- (2001).
- [10] 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構核融合エネルギー部門 ITER(イーター) 計画 (最終閲覧日 : 2020 年 3 月 23 日), http://www.fusion.qst.go.jp/ITER/iter/page1_1.html.
- [11] EUROfusion (最終閲覧日 : 2020 年 3 月 23 日), <https://www.euro-fusion.org/devices/jet/>.

- [12] 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構 QST (最終閲覧日:2020年3月23日), <https://www.qst.go.jp/site/jt60/>.
- [13] 大学共同利用機関法人 自然科学研究機構 核融合科学研究所 (最終閲覧日:2020年3月23日), <http://www.nifs.ac.jp/index.html>.
- [14] IPP max planck institute for plasma physics (最終閲覧日:2020年3月23日), <http://www.ipp.mpg.de/w7x>.
- [15] I. P. B. Editors, Iter physics expert group chairs and cochairs and iter joint central team and physics integration unit:, Nucl. Fusion 39 (1999) 2137.
- [16] D. R. Behrisch, R. G. Federici, A. Kukushkin, Material erosion at the vessel walls of future fusion devices, Journal of Nuclear Materials 316 (2003) 388–392.
- [17] M. Merola, F. E. R. Raffray, P. Chappuis, T. Hirai, A. Martin, Overview and status of iter internal components, Fusion Eng. Des. 89 (2014) 890–895.
- [18] K. Tobita, S. Nishio, S. Konishi, M. Sato, T. Tanabe, K. Masaki, N. Miya, First wall issues related with energetic particle deposition in a tokamak fusion power reactor, Fusion Engineering and Design 65 (4) (2003) 561–568. doi:10.1016/S0920-3796(02)00386-1.
URL [http://dx.doi.org/10.1016/S0920-3796\(02\)00386-1](http://dx.doi.org/10.1016/S0920-3796(02)00386-1)
- [19] D. H. Lassila, G. Gray, UCRL-JC-112768.
- [20] K. Tsuchida, T. Miyazawa, A. Hasegawa, S. Nogami, M. Fukuda, Recrystallization behavior of hot-rolled pure tungsten and its alloy plates during high-temperature annealing, Nucl. Mater. Energy 15 (2018) 158–163.
- [21] A. Suslova, O. El-Atwani, D. Sagapuram, S. S. Harilal, A. Hassanein, Recrystallization and grain growth induced by elms-like transient heat loads in deformed tungsten samples, Sci. Rep 4 (2014) 1–11.

- [22] H. Iwakiri, K. Yasunaga, K. Morishita, N. Yoshida, Microstructure evolution in tungsten during low-energy helium ion irradiation, *J. Nucl. Matter* 283-287 (2000) 1134–1138.
- [23] S. Kajita, T. Saeki, Y. Hirahata, M. Yajima, N. Ohno, R. Yoshihara, N. Yoshida, Development of nanostructured black metal by self-growing helium bubbles for optical application, *Japanese Journal of Applied Physics* 50 (8) (2011) 08JG01. doi:10.1143/jjap.50.08jg01.
URL <http://dx.doi.org/10.1143/JJAP.50.08JG01>
- [24] 時谷政行, 上田良夫, ITER に向けたタングステン PWI 研究の進展と課題, *J. Plasma Fusion Res.* 9 (2011) 591–599.
- [25] S. Gilliam, S. Gidcumb, N. Parikh, D. Forsythe, B. Patnaik, J. Hunn, L. Snead, G. Lamaze, Retention and surface blistering of helium irradiated tungsten as a first wall material, *Journal of Nuclear Materials* 347 (3) (2005) 289–297. doi:10.1016/j.jnucmat.2005.08.017.
URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.jnucmat.2005.08.017>
- [26] S. Das, M. Kaminsky, *Radiation Effects on Solid Surfaces*, Advances in Chemistry Series 158, American Chemical Society, Washington, D.C., 1976.
- [27] B. I. Khripunov, et al., Plasma effect on tungsten damaged by high-energy alpha particles: Erosion and deuterium trapping, *J. Nucl. Mater.* 415 (2011) S649–S652.
- [28] T. Ogawa, A. Hasegawa, H. Kurishita, S. Nogami, Improvement of surface exfoliation behavior by helium-ion bombardment of a tungsten alloy fabricated by mechanical alloying, *J. Nucl. Sci. Technol.* 46 (2009) 717–723.

- [29] N. Noda, V. Philipps, R. Neu, A review of recent experiments on w and high z materials as plasma-facing components in magnetic fusion devices, *Journal of Nuclear Materials* 241-243 (1997) 227–243.
- [30] T. Tanabe, N. Noda, H. Nakamura, Review of high z materials for psi applications, *Journal of Nuclear Materials* 196-198 (1992) 11.
- [31] 岩本英司, 石田弘行, 南條繁治, 武山邦彦, 福島英治, 馬場隆, 足立義明, 大電流重イオンタンデム加速装置, 35 3, 日新電機技報 (1990).
- [32] H. V. Engineering, Tandetron accelerator systems.
- [33] Y. Uchida, Y. Takaoka, S. Saito, N. Saito, T. Suzuki, K. Takahashi, T. Sasaki, T. Kikuchi, Blister formation on tungsten irradiated by 4 mev helium ion beam in ordinary temperature, *Plasma and Fusion Research* 13 (0) (2018) 1205084–1205084. doi:10.1585/pfr.13.1205084.
- [34] 朝倉健太郎, 平阪正男, 為我井春子, 電子顕微鏡研究者のための失敗から学ぶ電子顕微鏡試料作製技法 Q and A, アグネ承風社, 2006.
- [35] 中村輝太郎, 中田一郎, 実験物理学講座 13 試料の作成と加工, 共立出版, 1981.
- [36] 藤本文範, 小牧研一郎, イオンビーム工学 イオン・固体相互作用編, 内田老鶴圃, 1995.
- [37] National Institute of Standards and Technology: ASTAR (最終閲覧日: 2020年3月23日), <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/ASTAR.html>.
- [38] 日本表面科学会編, 表面分析技術選書 透過型電子顕微鏡, 丸善出版, 2011.
- [39] 坂公恭, 材料学シリーズ 結晶電子顕微鏡学 – 材料研究者のための –, 内田老鶴圃, 1997.
- [40] 日本電子顕微鏡学会関東支部編, 走査電子顕微鏡の基礎と応用, 共立出版, 1983.

- [41] P. E. Lhuillier, M. F. Barthe, P. Desgardin, W. Egger, P. Sperr, Positron annihilation studies on the nature and thermal behaviour of irradiation induced defects in tungsten, *physica status solidi (c)* 6 (11) (2009) 2329–2332. doi:10.1002/pssc.200982114.
URL <http://dx.doi.org/10.1002/pssc.200982114>
- [42] A. S. Soltan, R. Vassen, P. Jung, Migration and immobilization of hydrogen and helium in gold and tungsten at low temperatures, *Journal of Applied Physics* 70 (1991) 793.
- [43] A. Wagner, D. N. Seidman, Range profiles of 300- and 475-ev 4he+ ions and the diffusivity of 4he in tungsten, *Physical Review Letters* 42 (1979) 515.
- [44] J. Amano, D. N. Seidman, Diffusivity of 3he atoms in perfect tungsten crystals, *Journal of Applied Physics* 56 (1984) 983.
- [45] M. Baldwin, R. Doerner, Helium induced nanoscopic morphology on tungsten under fusion relevant plasma conditions, *Nuclear Fusion* 48 (2008) 035001.
- [46] C. S. Becquart, C. Domain, Migration energy of he in w revisited by ab initio calculations, *Physical Review Letters* 97 (19). doi:10.1103/physrevlett.97.196402.
URL <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.97.196402>
- [47] X.-C. Li, X. Shu, Y.-N. Liu, Y. Yu, F. Gao, G.-H. Lu, Analytical w–he and h–he interatomic potentials for a w–h–he system, *Journal of Nuclear Materials* 426 (2012) 31.
- [48] X. Shu, P. Tao, X. Li, Y. Yu, Helium diffusion in tungsten: A molecular dynamics study, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 303 (2013) 84.

- [49] A. Fick, V. On liquid diffusion , The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science 10 (63) (1855) 30–39. doi:10.1080/14786445508641925.
- [50] A. Fick, Über diffusion, Poggendorffsche Annalen der Physik 94 (1) (1855) 59.
URL <http://doi.wiley.com/10.1002/andp.18551700105>
- [51] S. Arrhenius, Über die dissociationswärme und den einfluss der temperatur auf den dissociationsgrad der elektrolyte, Zeitschrift für Physikalische Chemie 4 (1889) 226.
- [52] K. J. Laidler, Chemical kinetics, second edition Edition, TATA McGraw-Hill, New Delhi, 1973.
- [53] J. F. Ziegler, M. Ziegler, J. Biersack, Srim – the stopping and range of ions in matter (2010), Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 268 (11-12) (2010) 1818–1823. doi:10.1016/j.nimb.2010.02.091.
URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2010.02.091>
- [54] H. Verbeck, W. Eckstein, Radiation blistering after h+, d+, and he+ ion implantation into surfaces of stainless steel, mo, and be, Applications of ion beam to metals (1974) 597.
- [55] T. Ohnishi, et al., U.S. patent 5,270,552 (1993).
- [56] Y. Uchida, S. Saito, N. Saito, T. Suzuki, K. Takahashi, T. Sasaki, T. kikuchi, N. Harada, Experiment and measurement with high-energy helium irradiation to tungsten using tandem accelerator for divertor in magnetic confinement fusion system, Energy Procedia 131 (2017) 359 – 362, "Special Issue of for the Fifth International Symposium on Innovative Nuclear Energy Systems". doi:<https://doi.org/10.1016/j.egypro.2017.09.474>.

URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1876610217345757>

- [57] S. K. Das, M. Kaminsky, Radiation blistering of polycrystalline niobium by helium ion implantation, *Journal of Applied Physics* 44 (1) (1973) 25–31. doi:10.1063/1.1661870.
URL <http://dx.doi.org/10.1063/1.1661870>
- [58] W. Primak, J. Luthra, Radiation blistering: Interferometric and microscopic observations of oxides, silicon, and metals, *Journal of Applied Physics* 2278 (1966) 2287.
- [59] L. H. Milacek, R. D. Daniels, J. A. Cooley, Proton-radiation-induced blistering of aluminum, *Journal of Applied Physics* 39 (1968) 2803–2815.
- [60] R. Hill, C. a theory of the plastic bulging of a metal diaphragm by lateral pressure, *Philosophical Magazine* 41 (1950) 1133.
- [61] ATIMA, calculate ATomic Interaction with MAtter, V1.41 (最終閲覧日 : 2020年3月23日), <https://web-docs.gsi.de/~weick/atima/atima14.html>.
- [62] S. A. Maloy, et al., The effect of 800 mev proton irradiation on the mechanical properties of tungsten, *Journal of Nuclear Materials* 343 (2005) 219–226.
- [63] A. Y. Konobeyev, U. Fischer, Y. A. Korovin, S. P. Simakov, Evaluation of effective threshold displacement energies and other data required for the calculation of advanced atomic displacement cross-sections, *Nucl. Energy Technol.* 3 (2017) 169–175.

謝辞

指導教員である長岡技術科学大学原子力システム安全工学専攻の菊池 崇志 准教授および、佐々木 徹 准教授、高橋 一匡 助教には、研究の機会を頂くと共に本論文の完成に至るまで、実験やデータ処理の仕方、結果の解釈、発表資料の作成などに関して多くのご指導頂きました。深く感謝いたします。

本研究論文を審査いただいた、同学の末松 久幸 教授、齊藤 信雄 准教授、山形大学の齋藤 誠紀 准教授に深く感謝いたします。

同学の原子力システム安全工学専攻の鈴木常生 准教授および志田暁雄 氏には静電加速器を用いた実験や電子回折像の解釈などについて様々な助言を頂きました。深く感謝いたします。同学の分析計測センターの小杉 氏には集束イオンビームおよび透過電子顕微鏡を用いた実験方法について多くの助言をいただきました。深く感謝いたします。オーストラリア原子力技術機構 (ANSTO) の Alan Xu 博士, Dhriti Bhattacharyya 博士, Thorogood Gorodon 教授に深く感謝いたします。

本研究室の学生の皆様には、研究生活だけでなく、学生生活においても有意義な経験を共有させて頂きました。深く感謝いたします。

最後に、これまで私を経済的・精神的に支えてくれた両親と妹、親戚の方々に感謝いたします。

本研究は JSPS 科研費 19J15641 の助成を受けたものです。

2020 年 1 月 10 日 内田雄大

研究業績

- 学術雑誌等に発表した論文 [査読有り]

1. Yuki Uchida, Seiki Saito, Nobuo Saito, Tsuneo Suzuki, Kazumasa Takahashi, Toru Sasaki, Takashi Kikuchi, and Nobuhiro Harada, “ Experiment and measurement with high-energy helium irradiation to tungsten using tandem accelerator for divertor in magnetic confinement fusion system ”, Energy Procedia 131 (2017) 359–362.
2. Yuki Uchida, Yui Takaoka, Seiki Saito, Nobuo Saito, Tsuneo Suzuki, Kazumasa Takahashi, Toru Sasaki, and Takashi Kikuchi, “ Blister Formation on Tungsten Irradiated by 4 MeV Helium Ion Beam in Ordinal Temperature ”, Plasma and Fusion Research: Rapid communications 13 (2018) 1205084-1–1205084-3.

- 国際会議、研究会における発表

1. ポスター発表

Yuki Uchida, Seiki Saito, Nobuo, Saito, Tsuneo Suzuki, Kazumasa Takahashi, Toru Sasaki, Takashi Kikuchi and Nobuhiro Harada, “ Development of experimental system for measurement of tungsten damaged by high energy helium for divertor in magnetic confinement fusion device ”, The 5th International GIGAKU Conference in Nagaoka, Niigata, Japan, October 6th-7th 2016, P-78.

2. ポスター発表

Yuki Uchida, Seiki Saito, Nobuo, Saito, Tsuneo Suzuki, Kazumasa Takahashi, Toru Sasaki, Takashi Kikuchi and Nobuhiro Harada, “ Experiment and measurement with high-energy helium irradiation to tungsten using tandem accelerator for divertor in magnetic confinement fusion system ”, The 5th International Symposium on Innovative Nuclear Energy Systems, Tokyo, Japan, October 31st-November 2nd 2016, P-29.

3. ポスター発表

Yuki Uchida, Seiki Saito, Nobuo, Saito, Tsuneo Suzuki, Kazumasa Takahashi, Toru Sasaki, Takashi Kikuchi and Nobuhiro Harada,“ Development of experimental system for high-energy helium beam irradiation and estimation method to measure particle loading of divertor in nuclear fusion system ”,The 7th Vietnam – Japan Research & HRD Forum On Nuclear Technology, Hanoi, Vietnam, November 24th-25th 2016, P-5J.

4. ポスター発表

Yuki Uchida, Seiki Saito, Nobuo, Saito, Tsuneo Suzuki, Kazumasa Takahashi, Toru Sasaki, Takashi Kikuchi and Nobuhiro Harada,“ Effect of high-energy helium beam irradiation in tungsten to measure erosion for plasma facing material in magnetic confinement fusion system ”, International Conference of “ Science of Technology Innovation ”2017 (STI-Gigaku 2017), Niigata, Japan, January 5th-7th 2017, STI-7-35.

5. ポスター発表

Yuki Uchida, Seiki Saito, Nobuo, Saito, Tsuneo Suzuki, Kazumasa Takahashi, Toru Sasaki, and Takashi Kikuchi,“ Irradiation of high-energy alpha particle and internal scattering in tungsten for wall material in nuclear fusion system ”, 2nd International Conference of “ Science of Technology Innovation ” 2017, Niigata, Japan, October 6th-7th 2017, STI-7-16.

6. ポスター発表

Yuki Uchida, Seiki Saito, Nobuo Saito, Tsuneo Suzuki, Kazumasa Takahashi, Toru Sasaki, and Takashi Kikuchi, “ Measurement for inside damage of tungsten sample at same position using transmission electron microscope and electron backscatter diffraction with scanning electron microscope to evaluate erosion of plasma facing material irradiated by high-energy helium ”, Plasma Conference 2017 (PLASMA2017),

Hyogo, Japan, November 20th-24th 2017, 23P-102.

7. ポスター発表

Yuki Uchida, Seiki Saito, Nobuo Saito, Tsuneo Suzuki, Kazumasa Takahashi, Toru Sasaki, and Takashi Kikuchi, “ Internal Damage on Tungsten Plate with High- Energy Helium Ion Irradiation for Nuclear Fusion System ”, 10th Asia-Pacific International Symposium on the Basics and Applications of Plasma Technology (APSPT10), Taoyuan, Taiwan, December 15th-17th 2017, P2-07.

8. 口頭発表

Yuki Uchida, Yui Takaoka, Seiki Saito, Nobuo Saito, Tsuneo Suzuki, Kazumasa Takahashi, Toru Sasaki, and Takashi Kikuchi, “ Measurement for Blister on Tungsten Irradiated by 4 MeV Helium Ion Beam for Damage of Reactor Wall in Nuclear Fusion System ”, 22nd International Symposium on Heavy Ion Fusion and Beam-Driven High Energy Density Science (HIF2018), Daejeon, Korea, 19th-24th August 2018, WeM-06.

● 国内学会・シンポジウム等における発表

1. ポスター発表

内田雄大、齋藤誠紀、齋藤信雄、鈴木常生、高橋一匡、佐々木徹、菊池崇志、原田信弘、「タングステンの損傷評価に向けたタンデム加速器によるヘリウムビーム照射実験」、第11回核融合エネルギー連合講演会、福岡、2016年7月14日-15日、15P059

2. ポスター発表、議事録

内田雄大、齋藤誠紀、齋藤信雄、鈴木常生、高橋一匡、佐々木徹、菊池崇志、「核融合プラズマ対向材の損傷評価に向けたタンデム加速器によるタングステンへの4MeVヘリウムビーム照射と内部拡散の検討」、第14回日本加速器学会年会、北海道、2017年8月1日-3日、TUP-124

3. 口頭発表

内田雄大、齋藤誠紀、齋藤信雄、鈴木常生、高橋一匡、佐々木徹、菊池崇志、「高工

エネルギー粒子照射による核融合炉壁材料への影響」、平成 29 年度高専-技大プラズマネットワーク研究会、長岡、2017 年 8 月 21 日

4. ポスター発表

内田雄大、高岡優衣、斎藤誠紀、齋藤信雄、鈴木常生、高橋一匡、佐々木徹、菊池崇志、「プラズマ対向材の損傷評価のためのタンデム加速器を用いた 4MeV ヘリウムイオン照射によるタングステンへのプリスター生成」、「Blister formation of tungsten irradiated by 4MeV helium ions using tandem accelerator to evaluate effect of a plasma facing material」, 第 12 回 核融合エネルギー連合講演会、滋賀、2018 年 6 月 28 日-29 日、28P-49

5. ポスター発表

内田雄大、斎藤誠紀、齋藤信雄、鈴木常生、高橋一匡、佐々木徹、菊池崇志、「Measurement of Blister on Tungsten Irradiated by 4 MeV Helium Ion Beam for Damage of Reactor Wall in Nuclear Fusion System」、平成 30 年度高専-技大プラズマネットワーク研究会、長岡、2018 年 10 月 6 日、P-16

6. 口頭発表

内田雄大、斎藤誠紀、齋藤信雄、鈴木常生、高橋一匡、佐々木徹、菊池崇志、「FIB/SEM による核融合炉壁内部の放射線損傷評価」、「高エネルギー密度反応場を利用した機能性触媒の創製プロジェクト」発表会、新潟、2018 年 12 月 21 日 [口頭発表] 内田雄大、斎藤誠紀、齋藤信雄、鈴木常生、高橋一匡、佐々木徹、菊池崇志、「4MeV ヘリウムイオンビームにより生成したタングステンのプリスター膜厚と飛程との比較」、平成 30 年度核融合科学研究所共同研究形式研究会「新世代パルスパワー技術で拓くプラズマ・ビーム物理と応用の新展開」、岐阜、2019 年 1 月 8 日-9 日

7. ポスター発表

内田雄大、斎藤誠紀、齋藤信雄、鈴木常生、高橋一匡、佐々木徹、菊池崇志、「長岡技術科学大学での核融合システムにおける壁材の損傷評価のための高エネルギーヘリウムイオン照射によるタングステンへのプリスター形成」、原子力人材育成イニシ

アティブ事業キャリア教育型セミナー、東京、2019年3月8日

8. 口頭発表

内田雄大、「MeV イオンビーム照射による材料の内部損傷」、量子ビーム慣性核融合ミーティング 2019、長岡、2019年3月23日

9. 口頭発表

内田雄大、齋藤誠紀、齊藤信雄、鈴木常生、高橋一匡、佐々木徹、Alan Xu、Dhriti Bhattacharyya、Thorogood Gorodon、菊池崇志、「タングステンへの4MeV ヘリウムイオンビーム照射によるブリストー生成の臨界フラックス」、2019年度 NIFS 研究会「パルスパワー技術開発の最前線」、岐阜、2020年1月7日-8日