

JAERI - M
92-134

粒子-物質相互作用研究会1991報告書
1991年12月12~13日, 東京

1992年11月

原子分子データ研究委員会

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-
mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1992

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷(株)

粒子-物質相互作用研究会1991報告書

1991年12月12～13日, 東京

日本原子力研究所東海研究所

原子分子データ研究委員会

(1992年8月12日受理)

原子分子データ研究委員会の平成3年度の粒子-物質相互作用研究会が, 1991年12月12, 13日の2日間原研本部で開催された。この研究会は, 核融合のための原子・分子データの収集と評価の立場から, 種々のエネルギー粒子と物質との相互作用に関する研究の現状を把握し, 問題点を明確にすることにより, 今後のワーキンググループの活動に資することを目的として開催されたものである。研究会では17の講演が行われ, 本報告書は, 講演後に提出して頂いた16編のレポートをまとめたものである。主な内容は, ITERプラズマ対向材料, 炭素材の照射損傷, 金属中の水素の捕捉と再放出, 重イオンと固体表面との相互作用に関するものである。

JAERI-M 92-134

Report of the 1991 Workshop on Particle-material Interactions
for Fusion Research
December 12-13, 1991, Tokyo, Japan

Research Committee on A & M Data

Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received August 12, 1992)

The Annual Workshop on Particle-Material Interactions in the Working Group of the Research Committee on A & M Data was held at the headquarters of JAERI, Tokyo, on December 12-13, 1991. The purpose of the Workshop was to obtain future prospects for the activities of the Working Group, by discussing current status and problems in the research on particle-material interactions relevant to the thermocontrolled fusion.

The present report contains 16 papers presented at the Workshop, which are mainly concerned with plasma-facing materials in ITER, radiation damage in carbon materials, trapping, emission and permeation of hydrogen in metals, and heavy ion-solid surface interactions.

Keywords: Particle-material Interaction, Data Base for PMI, ITER, ERDA, Re-emission, Graphite, Carbon Monoxide, Superconducting Wires, Positron, Stopping Power, Trapping, Permeation, Radiation Damage, Carbon Materials, Surface Wake, Secondary Ion Emission, Cluster Ion, ESNIT, Workshop

Editors: Siro NAGAI, Kunio OZAWA and Toshizo SHIRAI

目 次

| | |
|--|-----|
| 1. IAEAの粒子-物質相互作用 (PMI)データベースについて 日本原子力研究所 東海研究所 白井稔三 | 1 |
| 2. ITERのプラズマ対向材料 日本原子力研究所 那珂研究所 秋場真人 | 4 |
| 3. 表面捕集プローブによるトカマクの境界プラズマ実験例 神戸商船大学原子動力システム工学講座 中島 雅 | 13 |
| 4. ERDA法によるバナジウム中の水素の定量 株式会社東芝 原子力技術研究所 鹿野文寿 | 21 |
| 5. 黒鉛からの水素の再放出の同位体効果 名古屋大学工学部 森田健治 | 41 |
| 6. 炭素表面からのCO放出 同志社大学工学部 和田 元 | 52 |
| 7. 第3元素を添加したA15型超伝導線材 (Nb ₃ Sn)の中性子照射効果 岩手大学工学部 大阪大学産業科学研究所 ¹⁾ 京都大学原子炉実験所 ²⁾ 金属材料技 術研究所 ³⁾ 片桐一宗, 岡田東一 ¹⁾ , 小高久男 ²⁾ , 黒田恒生 ³⁾ | 62 |
| 8. 中性子照射したSiの陽電子寿命測定 中国原子能研究所 日本原子力研究所 東海研究所 ¹⁾ Li Anli, Huang Hanchen, Li Donghong, Zheng Shengnan, Du Huengshan, Zhu Shengyun, 岩田忠夫 ¹⁾ | 71 |
| 9. 阻止能理論における密度勾配効果 湘北短期大学 北川盈雄 | 73 |
| 10. 第5回核融合炉材料国際会議 (ICFRM-5) 報告 日本原子力研究所 東海研究所 大阪大学工学部 ¹⁾ 菱沼章道, 田辺哲朗 ¹⁾ | 88 |
| 11. 金属薄膜中に打ち込まれた水素の捕捉・再放出・透過挙動 東北大学金属材料研究所 山本春也, 永田晋二, 山口貞衛 | 91 |
| 12. 炭素材の照射損傷 大阪大学工学部 田辺哲朗 | 98 |
| 13. 高速イオンと固体表面の相互作用 <表面Wakeの効果> 京都大学工学部 木村健二, 藤居義和, 万波通彦 | 116 |

| | |
|--------------------------------|-----|
| 14. MeV 重イオン照射による固体からの2次イオン放出 | |
| 京都大学工学部 佐倉直喜, 姜 帥現, 今西信嗣 | 127 |
| 15. クラスターイオン・ビーム照射による元素の深さ分布 | |
| 岡山理科大学 理学部 山村泰道 | 135 |
| 16. ESNIT の現状 | |
| 日本原子力研究所 東海研究所 野田健治 | 144 |

Contents

| | | |
|-----|--|----|
| 1. | IAEA Data Base for Particle-materials Interaction | 1 |
| | Toshizo Shirai, Tokai Res. Est., JAERI | |
| 2. | Plasma Facing Materials for ITER | 4 |
| | Masato Akiba, Naka Fusion Res. Est., JAERI | |
| 3. | Experiments on Boundary Plasma in Tokamak Layers Using Surface Probes | 13 |
| | Tadashi Nakajima, Kobe Univ. of Mercantile Marine | |
| 4. | ERDA Study on the Quantitative Measurement of Hydrogen in Vanadium | 21 |
| | Fumihisa Kano, Nucl. Eng. Lab., Toshiba Corp. | |
| 5. | Isotope Effect in Re-emission of Hydrogen from Graphite | 41 |
| | Kenji Morita, Dept. of Eng., Nagoya Univ. | |
| 6. | Plasma-induced Carbon Monoxide Emission from Carbon Materials | 52 |
| | Motoi Wada, Dept. of Electronics, Doshisha Univ. | |
| 7. | Effect of Neutron Irradiation on Al5 (Nb ₃ Sn) Superconducting Wires with Ternary Additions | 62 |
| | Kazumune Katagiri, Toichi Okada ¹⁾ , Hisao Kodaka ²⁾ and Tsuneo Kuroda ³⁾ , Fac. of Eng., Iwate Univ., | |
| | 1) Inst. of Sci. Ind. Res., Osaka Univ., | |
| | 2) Res. Reactor Inst., Kyoto Univ., | |
| | 3) Nat. Res. Inst. Metals | |
| 8. | Positron Lifetime Measurements of Neutron-irradiated Si | 71 |
| | Li Anli, Huang Hanchen, Li Donghong, Zheng Shengnan, Du Huengshan, Zhu Shengyun, and Tadao Iwata ¹⁾ , | |
| | Chinese Inst. of Atomic Energy, | |
| | 1) Tokai Res. Est., JAERI | |
| 9. | Density Gradient Effect in Stopping Power | 73 |
| | Mitsuo Kitagawa, Dept. of Electronics and Information Tech., SONY Inst. of Higher Education, North Shore College | |
| 10. | Report on the 5th International Conference on Fusion Reactor Materials | 88 |
| | Akimichi Hishinuma and Tetsuro Tanabe ¹⁾ , Tokai Res. Est., JAERI, 1) Dept. of Eng., Osaka Univ. | |

11. Trapping, Re-emission and Permeation of Hydrogen Implanted
into Some Metal Thin Films 91
Syun'ya Yamamoto, Shinzo Nagata and Sadae Yamaguchi,
Inst. for Mater. Res., Tohoku Univ.
12. Radiation Damage in Carbon Materials 98
Tetsuro Tanabe, Dept. of Eng., Osaka Univ.
13. Interaction of Fast Ions with Solid Surfaces - effects of
Surface Wake 116
Kenji Kimura, Yoshikazu Fujii, Yasufumi Suzuki,
and Michihiko Mannami, Dept. of Eng. Sci., Kyoto Univ.
14. Secondary Ion Emission from Solid Surfaces by MeV Heavy
Ion Bombardment 127
Naoki Sakura, Suigen Kyo, and Nobutsugu Imanishi,
Dept. of Eng., Kyoto Univ.
15. Depth Profiles of Atoms in Solids Bombarded with
Cluster Ions 135
Yasunori Yamamura, Fac. of Sci., Okayama Univ. of Sci.
16. Present Status of ESNIT 144
Kenji Noda, Tokai Res. Est., JAERI

List of Participants of the Workshop

| | |
|---------------------|---|
| Akiba, Masato | Naka Fusion Res. Est., JAERI |
| Aruga, Takeo | Tokai Res. Est., JAERI |
| Hishinuma, Akimichi | Tokai Res. Est., JAERI |
| Imanishi, Nobutsugu | Dept. of Eng., Kyoto Univ. |
| Ishii, Mitsuhiro | Tokai Res. Est., JAERI |
| Iwata, Tadao | Tokai Res. Est., JAERI |
| Kano, Fumihisa | Nucl. Eng. Lab., Toshiba Corp. |
| Katagiri, Kazumune | Fac. of Eng. Iwate Univ. |
| Kikuchi, Yasuyuki | Tokai Res. Est., JAERI |
| Kimura, Kenji | Dept. of Eng. Sci., Kyoto Univ. |
| Kitagawa, Mitsuo | Dept. of Electronics and Information Tech., Sony Inst. of Higher Education, North Shore College |
| Morita, Kenji | Dept. of Eng., Nagoya Univ. |
| Nagai, Siro | Takasaki Radiat. Chem. Res. Est., JAERI |
| Nakajima, Tadashi | Kobe Univ. of Mercantile Marine |
| Noda, Kenji | Tokai Res. Est., JAERI |
| Okada, Toichi | Inst. Sci. Ind. Res., Osaka Univ. |
| Oshiyama, Takashi | Dept. of Sci., Kyoto Sangyo Univ. |
| Ozawa, Kunio | Energy Res. Lab., Hitachi Corp. |
| Sakura, Naoki | Dept. of Eng., Kyoto Univ. |
| Shirai, Toshizo | Tokai Res. Est., JAERI |
| Takata, Nobuhisa | Electrotechnical Lab. |
| Tanabe, Tetsuro | Dept. of Eng., Osaka Univ. |
| Wada, Motoi | Dept. of Electronics, Doshisya Univ. |
| Yamaguchi, Sadae | Inst. for Mater. Res., Tohoku Univ. |
| Yamamura, Yasunori | Okayama Univ. of Science |

1. IAEAの粒子-物質相互作用(PMI)データベースについて

日本原子力研究所 東海研究所 白井稔三

A + M DATA UNIT/NDS/IAEAでは、評価済原子衝突データベースの他に評価済PMIデータとして

- 1) LIGHT-ION REFLECTION DATABASE
- 2) PMI DATABASE FOR PYROLYTIC GRAPHITES
- 3) PHYSICAL SPUTTERING DATABASE

また、特殊目的PMIデータベースとして

- 4) H-RYCYCLING DATABASE

の作成が進められてきた。データベースシステムとしては、原子衝突データと同じALADDIN (A Labelled Atomic Date Interface) システムが採用されている。ALADDIN システムは、核融合研究に関連するA + MデータベースとしてA + M DATA UNIT及び国際原子分子データセンターネットワーク (現在7ヶ国14機関が参加している。) により、国際的なデータ交換のために認められたデータベースシステムである。

ここでは、Thomas他 [1] 及びUlrickson 他 [2] によるデータベース1), 2) を紹介する。

1) では、Be, B, C, Al, Si, Ti, Fe, Ni, Cu, Mo, W, Auの表面に H^+ , D^+ , T^+ , He^+ イオンが、それぞれ法線入射した場合の R_N (NUMBER REFLECTION係数) 及び R_E (ENERGY REFLECTION計数), また、 $X^+ + X$ 型 ($X: Li, Be, B, C, Si, Ni, Mo, W$) のセルフイオンによる R_N R_E の評価済データが解析的なフィッティング関数の形で与えられている。基礎データとしては、実験値に加えて、TRIM, MARLOWEによるシュミレーションデータが採用されている。

2) では、PYROLYTIC GRAPHITEの物性データがまとめられている。物性データ項目としては、

1. 物理的性質

density, porosity, melting, evaporation and recrystallization temperatures, boiling point, thermal conductivity, specific electrical resistance, specific heat, heats of evaporation and fusion, coefficient of thermal expansion, emissivity.

2. 機械的性質

elastic moduli, Poisson's ratio, shear modulus, strengths, hardness, elongation, fatigue, creep fracture toughness.

3. 熱-機械的性質

creep crack growth, fatigue crack growth, high cycle fatigue, thermo-mechanical fatigue.

が取り上げられている。表-Iに今後の計画をまとめた。

参考文献

- [1] E.W. Thomas, R.K. Janev and J.J. Smith, INDC (NDS) -249.
- [2] M. Ulrickson, V.R. Barabash, R. Matera, R. Rödiger, J.J. Smith and R.K. Janev, INDC (NDS) -246 / Mo.

表-1 IAEAでの材料物性データベースのスコープ

A. プラズマ対向材料

1 低Z材料

- 1.1 Graphites
- 1.2 Carbon Fiber Components (CFC)
- 1.3 Beryllium
- 1.4 Carbides (Si or Ti containing)

2 中Z材料

- 2.1 Liquid Metals (Ga or Li Based)
- 2.2 Metals (See B)

3 高Z材料

- 3.1 Tungsten + Alloys
- 3.2 Tantalum + Alloys
- 3.3 Molybdenum + Alloys

B. プラズマ対向構造材

1 Stainless Steel and Related Materials

- 1.1 Iron Based
- 1.2 Nickel Based

2 Copper and Copper Alloys

3 Refractory Materials

- 3.1 Niobium
- 3.2 Molybdenum

3.3 Vanadium and Alloys

4 Aluminum and Alloys

5 Low Activation Alloys

5.1 Austenitic (low Ni)

5.2 Ferritic

2. ITERのプラズマ対向材料

日本原子力研究所 那珂研究所 秋場真人

1. はじめに

国際熱核融合実験炉（ITER）は現在、日本・EC・米国・ロシア共和国の国際協力で設計が進められている次期核融合装置である。ITERは1000MWの核融合出力を持つ装置で、数百秒から数週間にわたる連続運転を予定しており、動力炉開発に必要な物理データや工学データの取得を目的としている。ITER建設には多くの開発課題があるが、なかでもプラズマ対向機器の開発は最も重要な課題の一つとして考えられている。

プラズマ対向機器とは炉心プラズマに直接面している機器の総称で、プラズマからの中性子、イオンなどの粒子や放射熱の負荷から炉内構造物を保護する役目を持っている。そのため、プラズマ対向機器は特に厳しい粒子及び熱負荷にさらされている。なかでもプラズマ対向機器の一つであるダイバータ板は従来の工学機器では経験のない高い熱負荷と粒子負荷にさらされている。ここでは、ITERダイバータ板の設計並びに開発研究の現状を中心にプラズマ対向材料の課題について紹介する。

2. ITERのプラズマ対向材料の設計

第1表にITERプラズマ対向機器の設計条件を示す。ITERの運転は二つの段階に分けられており、運転開始後初めの数年間はプラズマ制御や物理データの取得を主に行う物理段階と呼ばれ、それに続く数年間は動力炉に近い中性子環境下における工学機器の開発やデータ取得を行う工学段階と呼ばれている。物理段階、工学段階の大きな違いは各々の期間の中性子フルエンスに現れている。また、運転条件によりITERの運転は通常運転と異常放電—いわゆるディスラプション—の二つがある。ディスラプションとはプラズマが瞬時に消滅する現象で、このときにはプラズマの全エネルギーがプラズマ対向機器表面に放出される。通常運転条件のなかで注目すべき点はダイバータ板の15～30MW/m²という高い熱負荷と10²³個/m²・sという高いイオン粒子束である。これらはいずれも従来の工学機器並びにプラズマ試験装置では経験のない厳しい負荷で、ダイバータ板はこのような定常的な負荷に耐えなくてはならない。また、ディスラプション時におけるダイバータ板は0.1～3ミリ秒の間に20MJ/m²もの熱エネルギーと、30MJ/m²に達する逃走電子によるエネルギー（時間は5～100ミリ秒）に晒されることが予想されている。このような負荷に耐える機器の設計は殆ど不可能であるため、プラズマ対向機器の表面にはアーマと呼ばれる保護材料を取り付け、ディスラプションによる負荷による冷却構造体の破損を防止する工夫がなされている。アーマ表面はディスラプションの負荷により損傷をうけるため、ある程度損傷を受けたダイバータ板は交換することが必要となる。したがって、機器の交換頻度及び寿命評価の観点から、ディスラプションによる

アーマ材料の損傷を評価することが重要な研究課題となる。

第2表はITERプラズマ対向機器に使用する材料をまとめたものである。物理段階では、現在のプラズマ実験の結果を反映して低Z材料をアーマ材料として採用している。特に多くのプラズマ試験装置で実績のある炭素系材料が第1候補として考えられており、なかでもディスラプションなどの熱衝撃に優れた特性を持つ炭素繊維強化炭素複合材料(C/C材料)が最も有望である。しかし、炭素系材料は中性子照射による特性劣化が激しいため、工学段階のような高中性子フルエンスのもとでは頻りに機器を交換することが必要となり、経済性、放射性廃棄物の量の増大という点から好ましくない。そのため、工学段階ではディスラプション時の損耗が少ない高融点金属材料—例えばタングステン—がアーマ材料として考えられている。但し、工学段階で金属アーマ材料を使用するためには、金属材料が使用できるようにダイバート近傍のプラズマを制御できる技術(低温プラズマを生成する技術)を確立しなくてはならない。一方、冷却構造体にはモリブデン合金や銅合金などが考えられており、冷却媒体には純水を想定している。

3. プラズマ対向材料とプラズマ粒子の相互作用

ITERの設計では、機器の寿命、特にアーマ材料の寿命を決めると考えられる様々な要因について評価を行っている。なかでも最も重要な寿命決定要因であるスパッタリング、ディスラプションによる損耗評価について次に紹介する。

3.1 スパッタリング損耗評価

第3表にスパッタリング損耗の評価結果を示す。トカマクプラズマの場合、スパッタリングでたたき出された粒子がすぐにイオン化され、磁力線に巻ついてもとの場所に戻ってきて材料表面に再付着する現象があることが知られている。現在のところ、この再付着に関する定量的な実験データは殆どなく数値計算により予測するしか手だてが無く、再付着を考慮できる計算コードもREDEPというコードに限られているのが現状である。表に示した値は、このREDEPコードにより求めた値である。表のなかでNet Erosion Rateと書かれているのが再付着を考慮したときのスパッタリング損耗量を示している。炭素系材料をアーマに使用した場合、400秒の定格放電を行うと最大約0.06mmの損耗量となる。

3.2 ディスラプションによる損耗評価

第4表にディスラプションによる損耗量の評価結果を示す。この評価は日本、米国、ECが各々別個に行った数値計算結果に基づいている。ただし、炭素についてはディスラプション模擬実験の結果を考慮して、数値計算結果の5倍の値を採用している。ここでTile erosion thicknessというのはアーマタイルの厚さのことで、Erosion Depthが一回のディスラプションによる損耗量を示している。このようにディスラプションによる損耗量はスパッタリングによるものよりはるかに大きく、アーマの寿命はディスラプションの回数で決まることがわかる。

4. ディスラプション模擬実験の現状

前節で示したようにアーマの寿命評価の上ではディスラプションによる損耗量を評価することが重要である。そのため、世界各地でディスラプション模擬実験が行われている。ディスラプション模擬実験は実際の条件に可能な限り近い熱負荷、入熱時間を様々な加熱装置で模擬して行われる。加熱装置には、イオンビーム、電子ビーム、レーザー、プラズマガンなどがよく利用される。第5表は世界の主な加熱試験装置をまとめたものである。一般に、大出力イオンビーム装置は加熱時間が10ms以上と長く得られる熱流束も低いいため、短パルスでかつ高熱負荷が容易に得られる電子ビームやレーザー装置を用いた実験が主流となっている。なかでも、原研の電子ビーム装置はこの種の試験装置としては最大の熱流束を実現している。原研の電子ビーム加熱装置 (JEBIS)の断面図と主な性能を第1図に示す。第2図は JEBISの運転領域を示したもので、熱流束並びに加熱時間に於て ITERのディスラプション条件を実現していることがわかる。第3図に JEBISで得られる典型的な電子ビームのプロファイルを示す。

第4図は等方性黒鉛 (IG430U) と2次元C/C材料 (CX2002U)の単位面積当りの蒸発損耗量を示したものである。一般的な傾向として、熱伝導率のよい材料ほど損耗量は少なく、同じ熱量で試験したときは熱流束が高いほど損耗量が大きくなる。CX2002U はIG430Uの約2倍の熱伝導率を持っているため、損耗量も少ない。また、図中の実線は数値計算の結果を示しているが、実験値の方が数倍大きくなっていることがわかる。

第5図に実験で得られた損耗量と数値計算で得た値の比較を示す。縦軸には、各々の損耗量の比を取り、横軸に熱流束を取って示してある。材料は等方性黒鉛 (IG430U) とC/C材料 (CX2002U, MFC-1, MCI-felt) の場合を示している。このように実験値の方が解析予測値より2~5倍ほど大きくなっていることがわかる。このような実験と解析の違いは、加熱時に材料表面から生じる粒子の飛散などに起因すると考えられている。今後はより高い熱流束でデータを収集し全体の傾向を明かにすることが必要である。

最後にプラズマガンによるディスラプション模擬実験についてすこしふれておく。最近、ロシア共和国を中心に大出力プラズマガンを用いた実験が行われ、その結果、蒸発損耗量が従来の電子ビームやレーザーを用いた実験より1桁から2桁少ないと報告されている。その理由として、蒸発時に生じる蒸気層のなかで入射プラズマ粒子が減衰する (蒸気シールド効果) ことがあげられている。蒸気シールド効果があることはイオンビームを用いた実験でも確かめられているが、どの程度減衰するかはまだ定量的に評価されていない。また、ロシアの実験では1) 蒸気層に入射する熱流束を測定していない、2) コンデンサーバンクを電源に利用しているため出力パワーが加熱中に大きく変化している、などの問題点も残されており今後の研究の進展が期待される。

5. プラズマ対向材料研究の今後の課題

以上、スパッタリングとディスラプションによる損耗評価を中心にダイバータ板のアーマ材料に関する研究の現状について紹介してきたが、最後にこれらの研究に残された課題とここでは触れなかったその他の課題について紹介し、報告のまとめとしたい。

ースパッタリング損耗評価

既に述べたようにスパッタリング損耗量は従来の加速器などで得られたデータを基に評価を行っているが、トカマクプラズマ特有の再付着については実験データは殆どない。ダイバータ板のようにトカマク装置の強い磁場中におかれた機器表面材料のスパッタリング損耗を評価するには再付着量の定量的な評価データが必要である。また、現状では REDEPコードのみである再付着を考慮できる計算コードの開発も推進する必要がある。

ーディスラプション損耗評価

実際のトカマクプラズマ試験装置におけるディスラプション損耗データがない現状では、これを模擬した実験データに頼らざるを得ない。これらの模擬実験で得られたデータを見るとき、その実験がディスラプションの何を模擬しているのかを明らかにすることが必要である。そのためには、各種の加熱装置を用いてデータを収集することが今後の現象解明に役立つであろう。特に高熱流束、短パルスの条件での実験データが重要である。

解析コードについても、現状のものは全て熱伝導方程式に基づいているが、原子・分子運動論を考慮したようなよりミクロな点からのアプローチも必要であろう。

ーその他の課題

ここでは触れなかったが、ITERのプラズマ対向材料を検討するときには、トリチウムの吸蔵や中性子による照射損傷を評価することも重要である。

トリチウム吸蔵については実験データの蓄積並びに解析コードの開発が急務である。ITERの設計に於て採用されたトリチウム吸蔵量の値は、すべて REDEPコードで評価されたものであり、これを検証するようなほかのコードが一日も早く現れることが期待される。

中性子による照射劣化についても実験データは極めて少ないのが現状である。例えば、熱伝導率の劣化についてもデータは非常に限られている。今後、この分野でのデータを充実することが急務である。

第1表 ITERプラズマ対向機器設計条件

| 運転段階 機器 | 物理段階 | | 工学段階 | | |
|------------------------|------------------------------------|----------|-----------|------------------------------------|-----------|
| | 第1壁 | ダイバータ | 第1壁 | ダイバータ | |
| 通常運転 | | | | | |
| - 平均中性子壁負荷 | MW/m ² | 1 | 0.5 | 0.8 | 0.4 |
| - ピーク/平均表面熱流束 | MW/m ² | 0.6/0.15 | 15~30/0.6 | 0.6/0.15 | 15~30/0.6 |
| - ピーク体積発熱率 | MW/m ³ | 20 | 5 | 15 | 4 |
| - 定格放電回数 | 10 ⁴ | 1 | | 2~5 | |
| - 積算核融合反応時間 | H | 400 | | 10 ⁴ ~3x10 ⁴ | |
| - ピーク中性子損傷 (鋼) | dpa | 0.7 | 0.3 | 12~36 | 5~15 |
| - 入射D ⁺ イオン | | | | | |
| ・ ピーク負荷 | 10 ²⁰ /m ² s | 1 | 4000 | 1 | 4000 |
| ・ エネルギー | eV | 10~100 | 50~100 | 10~100 | 60~200 |
| ディスラプション | | | | | |
| - 回数 (定格出力時) | | 500 | | 200~500 | |
| - 熱クエンチ | | | | | |
| ・ 時間 | ms | 0.1~3 | | 0.1~3 | |
| ・ ピークエネルギー密度 | MJ/m ² | 2 | 10~20 | 2 | 10~20 |
| - 電流クエンチ | | | | | |
| ・ 時間 | ms | 5~100 | | 5~100 | |
| ・ 放射エネルギー密度 | MJ/m ² | 2 | | 2 | |
| ・ 逃走電子エネルギー密度 (300MeV) | MJ/m ² | 30 | | 30 | |

第2表 ITERプラズマ対向機器材料設計条件

| 運転段階 機器 | 物理段階 | | 工学段階 | | |
|-------------------------|--------------|------------------|--------|------------------|------|
| | 第1壁 | ダイバータ | 第1壁 | ダイバータ | |
| アーマ材料 | | | | | |
| - 第1候補材料 | 炭素繊維強化炭素複合材料 | | タングステン | | |
| - 第2候補材料 | | ベリリウム | 炭素系材料 | 炭素系材料 ベリリウム | |
| - 表面最高温度 | °C | 1800 | 1000 | <500 | 1500 |
| - ベーキング/ コンディショニング温度 | °C | 350/150 | | 200/150 | |
| 構造材料 | | | | | |
| - 第1候補材料 | SS316 | モリブデン合金 | SS316 | ニオブウム合金 | |
| - 第2候補材料 | | ニオブウム合金 分散強化銅 | | モリブデン合金 分散強化銅 | |
| 冷却材 | | 純水 | | 純水 | |
| - 入り口温度 | °C | 60 | 60 | 60 | 60 |
| - 入り口圧力 | MPa | 1.5 | 3.5 | 1.5 | 3.5 |

第3表 ITERにおけるスパッタリング損耗評価**

| Divertor Plate Material | Plasma Divertor Temp., T _{eo} eV | Other conditions | Maximum Gross Erosion Rate cm/ burn yr | Maximum Net Erosion Rate cm/ burn yr | Minimum Net Erosion Rate cm/ burn·yr | Tritium Co-Deposit Rate kg burn·yr |
|-------------------------------|---|-----------------------------|---|---|---|--|
| Carbon | 150 | (phy. sputt.only)* | 194 | 27 | -13 | 155 |
| Carbon | 100 | | 263 | 28 | -13 | 135 |
| Carbon | 60 | | 329 | 23 | -10 | 88 |
| Carbon | 30 | | 315 | 17 | -10 | 48 |
| Carbon | 60 | with chemical sputtering | 1000 | 52 | -24 | 130 |
| Beryllium | 150 | | 454 | 46 | -28 | 40 |
| Beryllium | 60 | | 1180 | 73 | -32 | 33 |
| Beryllium | 30 | | 1370 | 49 | -18 | 18 |
| Tungsten | 40 | | 4 | .07 | -.03 | .005 |
| Carbon | 150 | with sweeping, ± 10 cm | 54 | 8 | -7 | 95 |

* All cases physical sputtering only, unless otherwise indicated

**ITER DOCUMENTATION SERIES, No. 30, IAEA(1991).

第4表 ITERにおけるディスラプション損耗評価***

| Armor Material | Tile erosion thickness (mm) (mm) | Erosion Depth (mm)* | Lifetime (disruption) | Number of Divertor Replacement or Repair Phys. Phase Phase | Tech. Phase | |
|----------------|---|---------------------------|--------------------------|---|----------------|------|
| Carbon | 5-10 | 0.14-0.22 | (0.28-0.44) | 30-55 | 9-17 | 3-7 |
| Beryllium | 2 | 0.08-0.10 | (0.16-0.18) | 18-25 | 20-28 | 8-12 |
| Tungsten | 2 | 0.04-0.14 | (0.11-0.17) | 14-50 | 10-35 | 4-14 |

* Data given in brackets are without vapour shield effects

* For Be and W it is assumed that half of the melt layer thickness is lost

** Repair for Be and W.

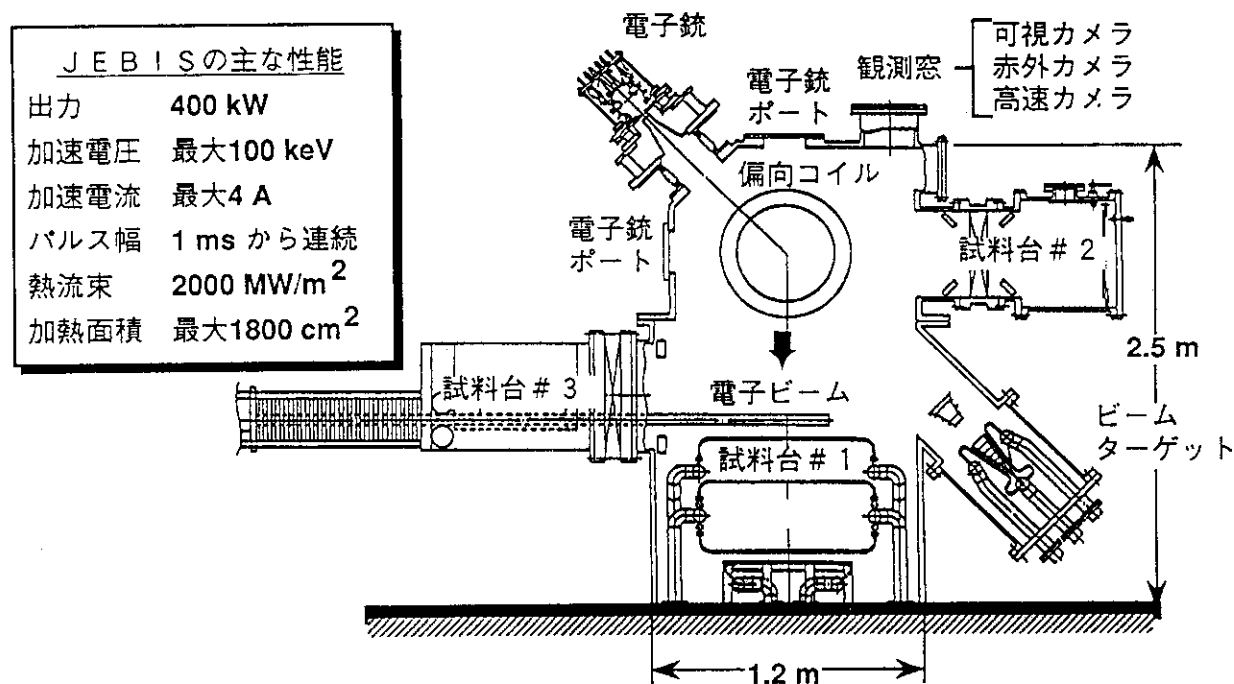
***ITER DOCUMENTATION SERIES, No. 30, IAEA(1991).

第5表 主要高熱負荷試験装置の性能

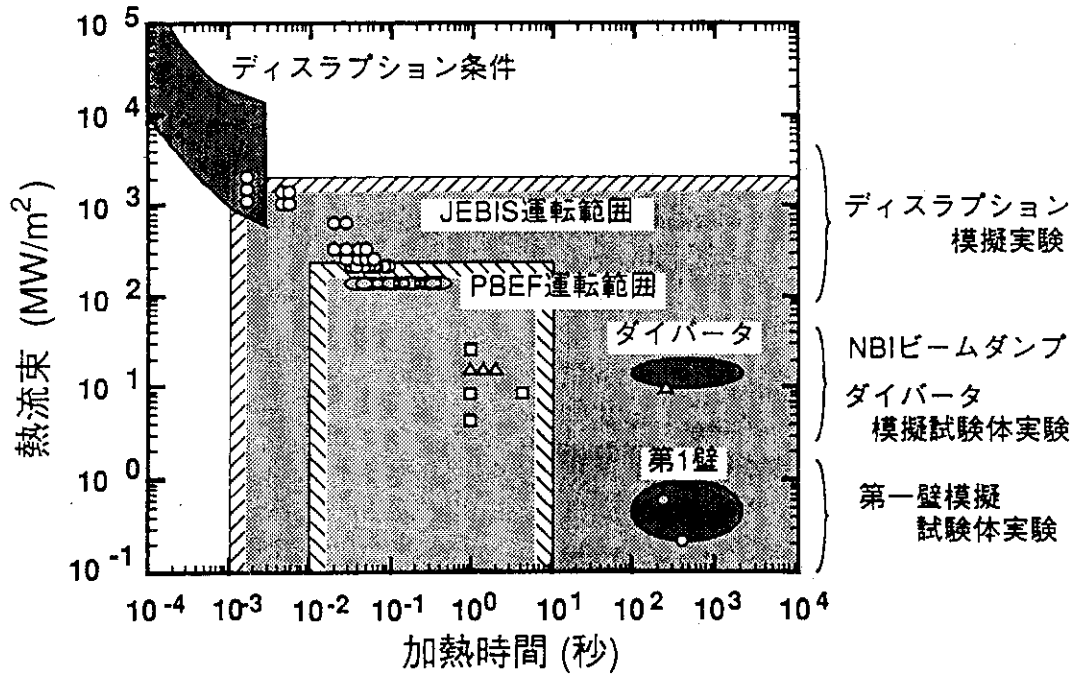
| 装置 | 原研 JEBIS | 原研 PBEF | 核融合 研究所 | サンディア 国立研究所 (米国) | サンディア 国立研究所 (米国) | ユーリッヒ 研究所 (ドイツ) | ユーリッヒ 研究所 (ドイツ) | レーザー*1 技術研究所 (ドイツ) |
|-----------------------------|-----------------|------------|------------|------------------------|------------------------|-----------------------|-----------------------|--------------------------|
| ビーム種 | 電子 | 水素 イオン | 水素 イオン | 電子 | 水素 イオン | 電子*2 | 水素 イオン | Nd-YAG レーザー |
| ビーム出力 (KW) | 400 | 9 MW | 9 MW | 30 | 800 | 60 | 6 MW | 10 |
| ビーム エネルギー (KeV) | <100 | <100 | <120 | 30 | 40 | 150 | <60 | 1.1 μ m |
| 熱流束 (MW/m ²) | <2500 | <260 | <200 | <1000 | <40 | <500 | <150 | <2000 |
| 加熱時間 | 1 ms ~ ∞ | <10 s | <1 s | few ms ~ ∞ | 10 ~ 30 s | 0.5 ms ~ ∞ | 10 ms ~ 15 s | 0.1 ms ~ 10 ms |
| 加熱面積 (cm ²) | <1800 | <300 | <600 | <100 | >100 | <150 | <1000 | <1 |

*1 Fraunhofer Institute for Lasertechniques, Flachen.

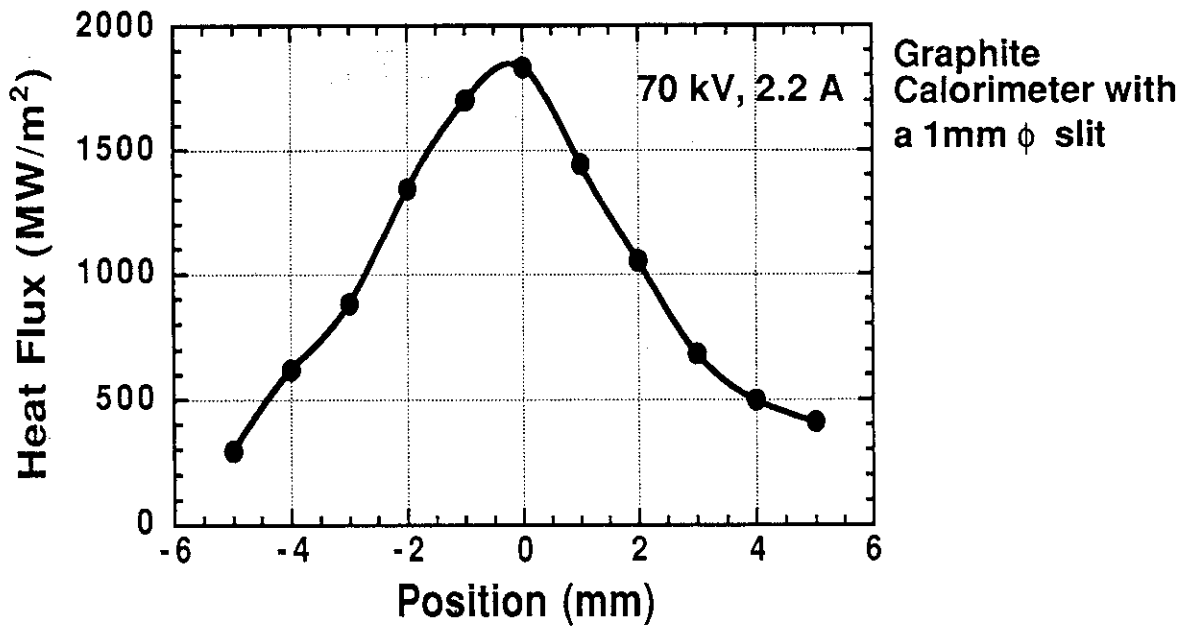
*2 放射性物質の試験が可能



第1図 原研の電子ビーム高熱負荷試験装置

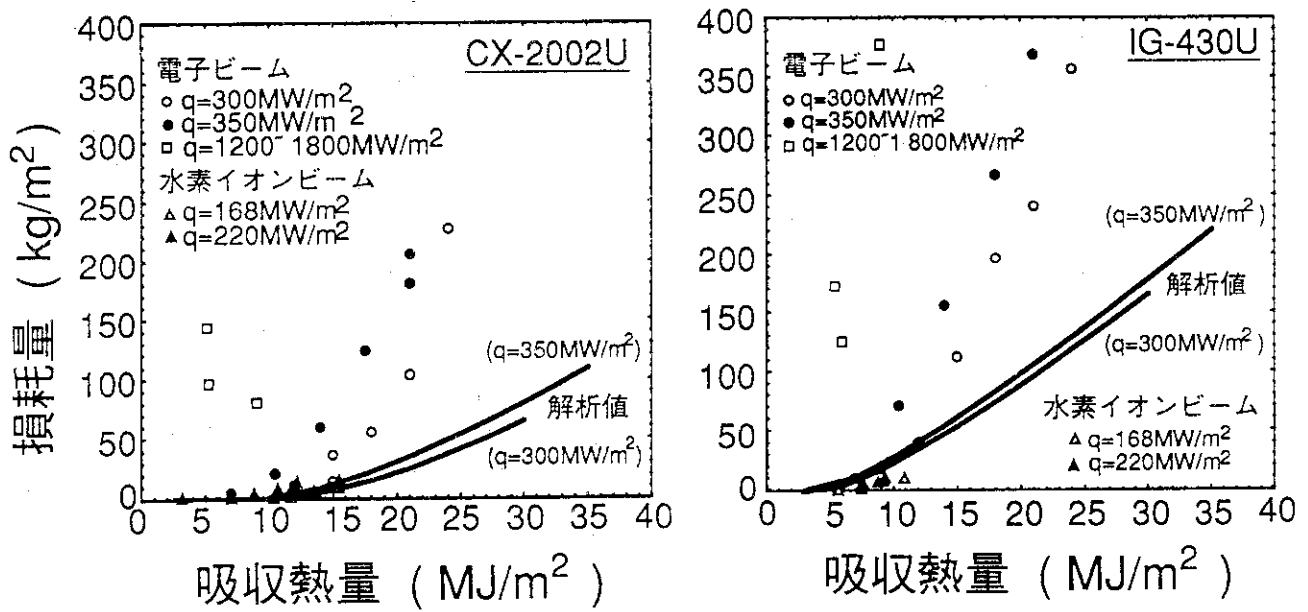


第2図 JEBISの試験領域

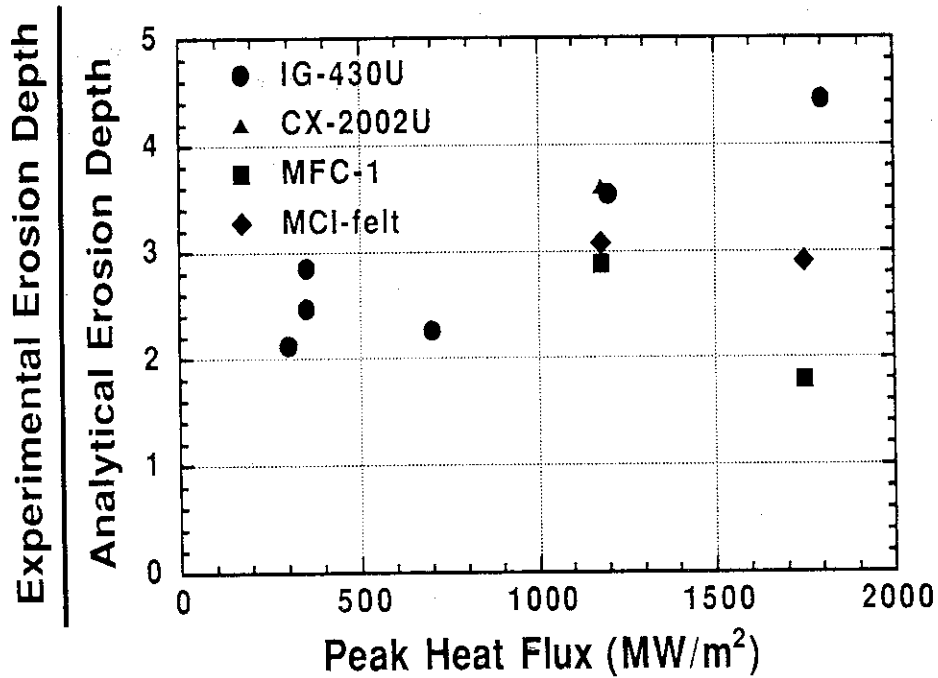


第3図 JEBISの電子ビームプロファイル

単位面積当りの蒸発損耗量



第4図 ディスラプション模擬試験結果



第5図 実験値と計算値の比較

3. 表面捕集プローブによるトカマクの 境界プラズマ実験例

神戸商船大学 原子動力システム工学講座 中島 雅

1. 序

トカマク装置では、第一壁のプラズマ接触を避けるために、リミターや磁気ダイバータのセパラトリックスが使用される。このため閉じた磁気面をもつ主プラズマ部分は、その外側に位置するリミター間、ダイバータ室、壁につながる部分と区別される。後者をスクレープオフレーヤ (SOL) と呼ぶ。ここには境界プラズマが存在し、リミターやセパラトリックスで削られたプラズマ粒子が磁力線に沿う流れの成分と壁からの中性粒子による後背流が共存する。

主プラズマの粒子・エネルギー釣合いはこの境界プラズマを媒介として成立する。そこで主プラズマの粒子・エネルギー制御を境界プラズマを通じて行う方式を確立することが重要な研究目標となる。この他に、境界プラズマは周囲の壁物質に対しては直接の粒子・エネルギー供給源である。そこで境界プラズマの計測は主プラズマの炉心条件達成並びにプラズマ・壁相互作用研究の両方にとって重要である。

境界プラズマの特性把握は分光及び粒子計測の両面で行われる。以下、後者に重点をおいて述べる。粒子計測には電気プローブと表面捕集プローブの2種類がある。前者の最も代表的なものは静電 (ラングミュア) プローブである。これはプラズマ中の電子成分を密度と温度につき実時間測定するのに広く使われる。後者は新鮮な試料物質を SOL で一定時間照射し、照射終了後に試料表面に入射捕集されたイオンや中性粒子を適当な分析装置で計測する。計測対象はこれら粒子の (濃度) 深さ分布をSIMSや核反応分析で測定して得た保持量で、この保持量から燃料粒子 (水素同位体) の束密度やエネルギーを、さらには不純物の粒子束も決定できる。これらの量の空間分布や方向分布を粒子の種類毎に測定することもできる。

表面捕集プローブの最大の欠点は、粒子捕集が時間積分で行われ後日分析されるため、照射中の実時間測定が不可能な点で、このためトカマク運転やパラメータ変更に伴うデータの即応提供が困難となる。しかし電気プローブも表面捕集プローブも一長一短があり、2者選択でどちらかを選ぶというよりも、互いに相補的に使用されている。とくに後者のプローブでは、プローブ物質を壁材料試料と見立てて、SOL で材料シミュレーション照射試験を行うこともできる。

本節では表面捕集プローブを概観し、JFT-2Mで実施された2, 3のプローブ実験例を観察する。

2. 表面捕集プローブの構造

2.1 プローブ物質

環境プラズマのイオンまたは中性粒子の成分は、主プラズマの水素同位体 (H, D, T) や第一

壁との相互作用に起因するO, C, Fe...等の不純物である。とくに水素同位体は燃料成分に関連して重要である。また粒子エネルギーは10eV~100keVの範囲である。最小値はプラズマ・壁相互作用に支配され、最大値は中性粒子入射(NBI)に係るH⁰のエネルギーである。ここで水素同位体はSOLでマクスウエル分布のエネルギーをもつ。

一般に粒子がプローブ物質に入射すると、物質中の電子または核によって減速され、ある深さ位置で捕捉される。こうして表面附近に粒子の(濃度)深さ分布を生ずるが、これは結晶、非晶質いずれの構造でも正確に計算できる⁽¹⁾。この分布は表面での反射損失を考慮したガウス分布で近似できる。重要な点は捕捉粒子が静止位置から拡散しにくいことで、この条件を満足する物質はC, Si, Beに限られる。入手や取扱いの容易さから、実際にはCとSiがよく使われる。なおこれらの熱伝導度や熱容量が高く、SOL照射時の熱流入に対して試料の温度上昇を低く押さえられるのも利点である。

以下、保持量決定に必要な基礎事項をD粒子を例にとって述べる。D濃度は入射中、フルエンス(D/cm²)に比例して増加するが、ついにはまず深さ分布のピーク位置で飽和レベルに達し、ついで飽和深さ分布は拡がり始める。この飽和レベルはCの場合0.43D/Cと測定されている。D粒子の飛程はそのエネルギーにほぼ比例するため、表面附近が飽和濃度に達したときの保持量(D/cm²)はエネルギーに依存する。そこで入射フルエンスに伴う保持量曲線の直線増加領域(未飽和状態)は入射束の決定に、また飽和領域は粒子エネルギーの決定に利用される。D. K. Briceら⁽²⁾は、マクスウエル分布のエネルギーをもつD(50eV~3.2keV)がCに等方入射した条件下でTRIMコードによって保持量を計算した。この結果をFig. 1に示す。この図では便宜上、飽和領域附近に重点がおかれている。Siも同様に計算されている⁽³⁾。

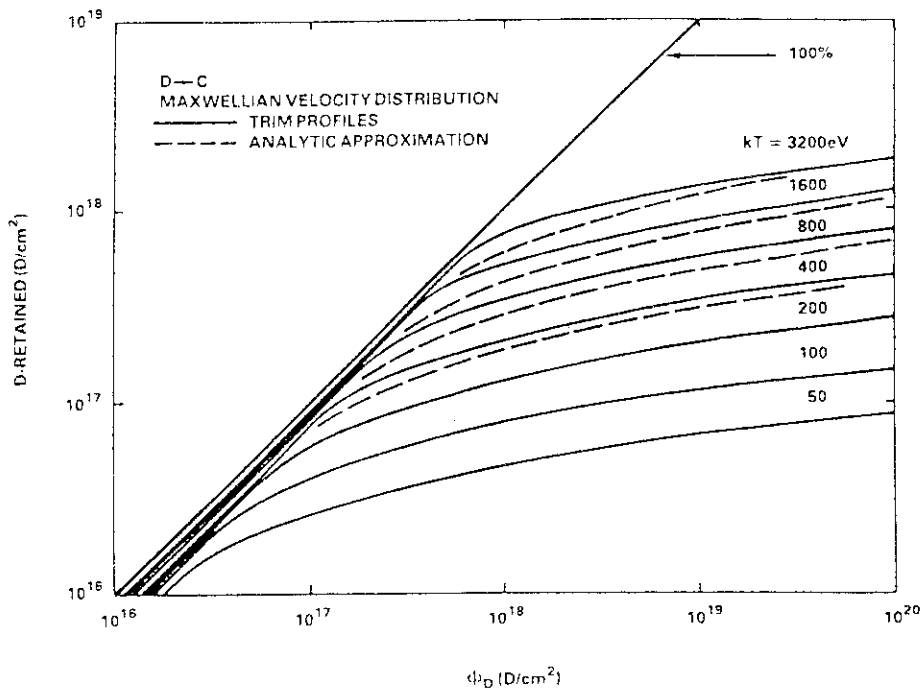


Fig. 1 C試料に対するD粒子の保持量R (D/cm²) 対入射フルエンスΦ_D (D/cm²) [文献⁽²⁾より引用]。

2.2 プロブの構造

プローブは通常、捕集試料とこれを支持するホルダから成る。Fig. 2に原研JFT-2Mの表面分析ステーションで使用したプローブの概略と配置を示す。ホルダは14×14×80mmのSS角柱で、詳細は文献⁽⁴⁾を参照。

この他、スリット付きの直方形プローブ⁽⁵⁾や弯曲試料を内蔵したプローブ⁽⁶⁾も使用されている。

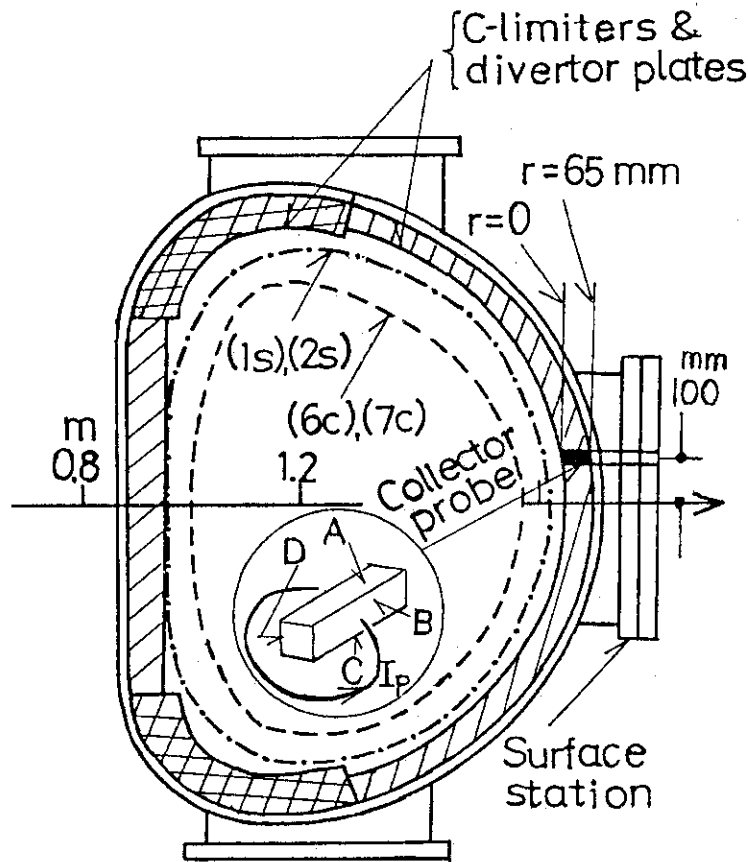


Fig. 2 JFT-2Mの表面分析ステーションにおける表面捕集プローブの配置 [プラズマ表面(1s), (2s)はSiプローブに, (6c), (7c)はCプローブに対応]。

3. 実験例

以下の実験例は、JFT-2M表面分析ステーションの SOLにおいて、プラズマ主放電前に実施されるテラ放電洗浄 (TDC)の作動ガスによる効果を観測する目的で実施されたものである。

3.1 Siプローブによる第一壁の水素リサイクリング

Si単結晶はHのバックグラウンド (BG) 内蔵量が非常に少なく、結晶軸のチャンネルング効果に十分注意すれば、Hの相対分析に利用できる。材質は信越半導体株式会社製CF4型の<100>単結晶ウェーハで、厚さは $525\mu\text{m}$ 、表面は鏡面仕上げで十分平滑である。

H_2 作動ガスのTDC (以下、 H_2 -TDCと略称)後に、 $80\%\text{D}_2/20\%\text{H}_2$ 混合ガスで抵抗加熱プラズマ放電 (プラズマ電流 $I_p=285\text{kA}$ 、トーラス磁場 $B_t=1.2\text{T}$ 、放電時間 $t_D=1\text{s}$ 放電回数 $n=5$ 、リミッタ放電時のプラズマ表面はFig. 2の(1s))を行ったとき、Siプローブ (SP1)によってSOLで測定されたH対D保持量比 $r_{\text{HD}}(r)$ を r に対してFig. 3にプロットする (白印A1-D1)。ただし保持量は ^{19}F を分析ビームとするERD法で測定された。 r はFig. 2で固定リミッター位置から測ったSOL内

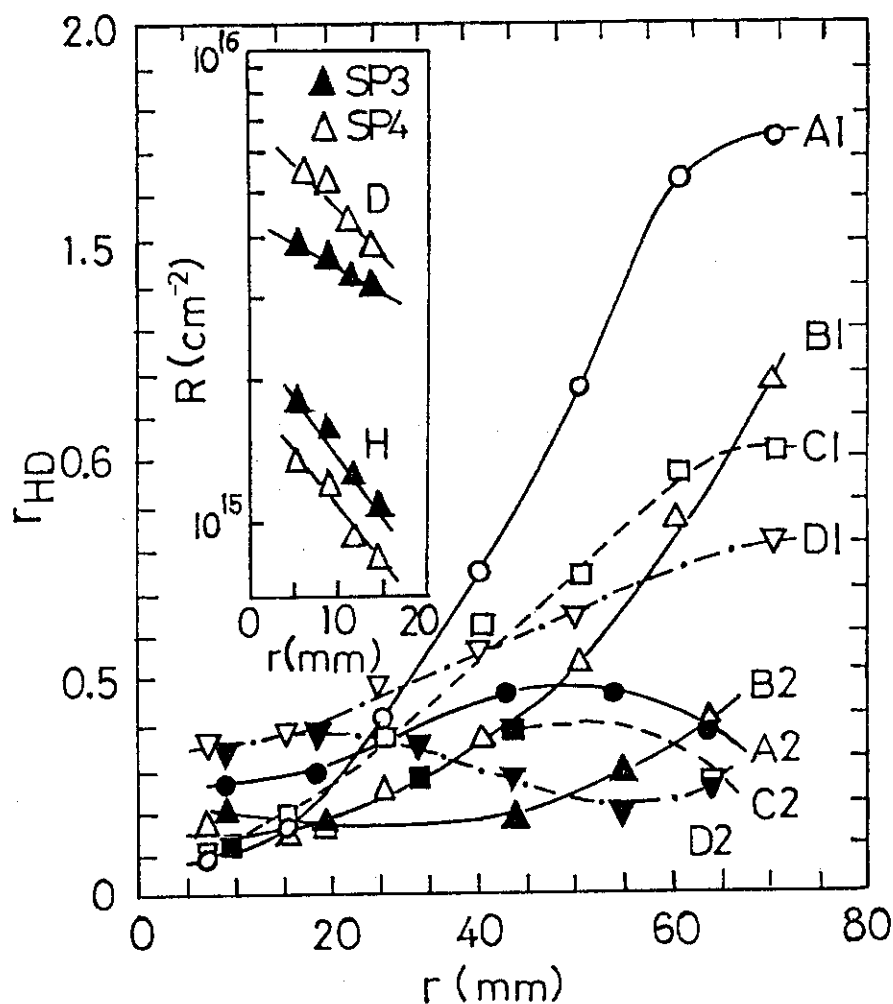


Fig. 3 H/D保持量比 $r_{\text{HD}}(r)$ 対 SOL内位置 r

[白印のデータはSP1, 黒印はSP2で, 内挿図はSP3, SP4で得たもの]。

の距離，面A，B，C，Dはそれぞれ上側，イオンドリフト側，下側，電子ドリフト側に対応する。H，Dの粒子エネルギーは $0 < r < 65\text{mm}$ で大きく変化せず，保持量は入射束にほぼ比例すると仮定すれば，HとDの両端子は混合ガスの放電条件下で平衡状態に達してから SOLの主要空間部分ではほぼ同一の弛緩距離をもつ指数関数的減少を示すものと期待できる。したがって比 $r_{HD}(r)$ は r の主要範囲で一定となるはずであるが，Fig. 3のデータA1-D1を見ると，どの面も r の増加（壁側へ近づく）につれてこの比が大きくなり，SS304 壁からのH放出効果を示している。

またこのプラズマ放電に 34keVの H_0 による NBIを100ms，770kW追加したとき（Fig. 2のプラズマ表面（2 s）および，（1s）， $n=1U$ ），やや程度は少ないけれども，依然として比 $r_{HD}(r)$ の壁側における増加傾向が認められる（Fig. 3でプローブSP2による黒印データA2-D2）。

これらの効果をさらに確認するため，異った作動ガスによるTDC，すなわち H_2 -TDCをプローブSP3に， D_2 -TDCをプローブSP4に行って，それぞれ同条件の混合ガスによる抵抗加熱プラズマ放電を与えたときのH，D各保持量の空間変化をプラズマ表面附近で詳細に測定した。結果をFig. 3の内挿図に示す。TDCの作動ガスと同一成分の水素同位体が約35%以上，保持量に存在するのが認められ，壁からの放出効果がプラズマ表面附近にも及んでいることが示された。

これらを総合すると，放電洗浄を通じ SS304製の壁から作動ガスと同一成分の水素同位体放出効果が認められる。

3.2 TDC 粒子によるCプローブの水素同位体交換

つぎの例は、JFT-2Mのダイバータと同一材質のC（東洋カーボン社製 AX-650K型）をシミュレーション実験試料としてプローブに組み込み、SOL内でHやDを作動ガスとする種々のTDC粒子照射を行い、これらの同位体交換現象を保持量測定によって観測したものである。

TDCの作動条件はいずれも共通で、ガス圧力は $8.9 \times 10^{-3} \text{Pa}$ 、 $I_P = 16.5 \text{kA}$ 、 $B_t = 0.082 \text{T}$ 、放電時間 = 7 s とする。動作条件はつぎの4種類である。(1c) H_2 -TDCのみ、(2c) H_2 -TDCのみ、(3c) H_2 -TDC後に D_2 -TDC（以下、 $\text{H}_2 \rightarrow \text{D}_2$ TDC と書く）、(4c) $\text{D}_2 \rightarrow \text{H}_2$ TDC の4つで、C試料はそれぞれCP1-CP4とする。これらの試料厚さは1mmであった。ここで(1c)と(2c)は交換作用(3c)、(4c)を見るための基準として設定された。

Fig. 4 に ^{19}F -BRD法で測定された各条件下の保持量 $R_{\text{H,D}}(r)$ を r に対してプロットする。まず r の全領域 ($0 < r < 65 \text{mm}$) で空間的に平均した保持量の形で(1c)-(4c)を相互比較する。 D_2 -TDC

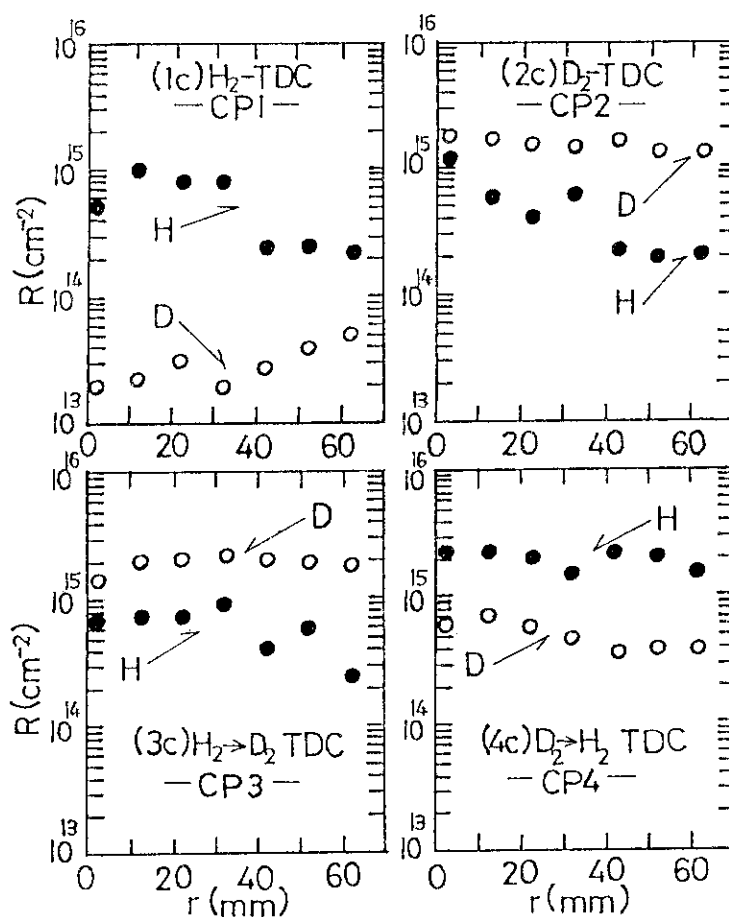


Fig. 4 Cプローブ (CP1-CP4)によるTDC時のH, D保持量 R 対 SOL内位置 r 。

で終了したCP3のD平均保持量は $\bar{R}_{\text{D-CP3}} = 2.0 \times 10^{15} \text{D/cm}^2$ で、この値は H_2 -TDCで終了したCP4のそれ $\bar{R}_{\text{D-CP4}} = 5.2 \times 10^{14} \text{D/cm}^2$ の3.8倍である。一方、CP4のH平均保持量 $\bar{R}_{\text{H-CP4}} = 2.0 \times 10^{15} \text{H/cm}^2$ はCP3の $\bar{R}_{\text{H-CP3}} = 6.2 \times 10^{14} \text{H/cm}^2$ の3.3倍である。すなわち後続のTDC粒子は初期粒子より優勢で、最初のTDC時にCに吸収されている水素同位体は、後続の異った水素同位体に

よって置換されている。

いま置換係数を $S = \text{除去保持量} / \text{入射保持量}$ と定義して、 $D_2 \rightarrow H_2$ TDC の CP 4 に適用すると、 $\overline{S_{DH}}(r) = \overline{\Delta R_{D-CP4}}(r) / \overline{\Delta R_{H-CP4}}(r) = 0.71$ となり、また $H_2 \rightarrow D_2$ TDC の CP 3 では $\overline{S_{DH}}(r) = \overline{\Delta R_{H-CP3}}(r) / \overline{\Delta R_{D-CP3}}(r) = 0.49$ である。実験誤差は約 $\pm 30\%$ である⁽⁷⁾。

これらの結果は Local Mixing Model (LMM)⁽⁸⁾ と矛盾する。すなわち、(a)この水素同位体交換が (3c), (4c)の第1照射段階(未飽和領域)で起こっている、(b)水素同位体の置換係数 S_{DH} , $S_{DH} < 1$ である。LMM 理論によれば、同位体交換は必ず飽和領域で生じ、かつ $S = 1$ である。

LMM 理論の適合性を調べるため、本実験とやや異った条件下で2つの確認実験を試みた。最初に、keV 程度の単一エネルギー領域で水素同位体交換 $H \rightarrow D$ を上と同一材質の C 試料で観測した。3個の試料に 3-keV D を保持量 $2.5 \times 10^{17} D/cm^2$ に飽和注入し、その後 1, 3, 5 keV の H をそれぞれ各試料に注入し、最初の D の深さ分布を ^{19}F -ERD で測定した。これらの深さ分布や保持量はすべて LMM 理論計算とよく一致する⁽⁹⁾。しかしこの設定条件は SOL 粒子 (TDC 粒子も含め) のような低エネルギー、マクスウエル分布、等方入射と異っている。

そこで SOL 照射場として、ダイバータ配位によるプラズマ放電を抵抗加熱 (100 % D_2 作動ガス, $I_p = 254 kA$, $B_t = 1.25 T$, $n = 10$) 及びこれに NBI 付加 (34-keV Ho, 829 kW, ただし $n = 14$) の2条件を設定した。これら条件下のプラズマ表面は Fig. 2 の (6c), (7c) で、互いに類似している。ここで照射前に飽和条件を与えた。すなわち各 C 試料 (2 個) の 3 個所で 1-keV H を保持量 $2.1 \times 10^{17} H/cm^2$ で飽和を注入し、かつ SOL 入射粒子の低エネルギーを予想して飽和領域をさらに試料表面側に広げるための H_2 -TDC で予備照射を追加し、飽和 H の深さ分布を予め確かめておく。

抵抗加熱プラズマ放電では、たとえば $r = 15 mm$ の飽和注入スポット位置で、H 保持量の減少分は $(5.9 \pm 0.2) \times 10^{16} H/cm^2$ 、一方入射 D の保持量は $(5.7 \pm 0.2) \times 10^{16} D/cm^2$ で、 $S_{HD} = 1$ となる。他の 2 個所のスポット位置でも同様の結果である。また NBI 付加時でも、 $S_{HD} = 1$ を確認できた。

一般に水素同位体交換が SOL 内において TDC 粒子とプラズマ放電 (又は NBI 付加) 粒子に対して異っているのは、粒子エネルギーの差異以外には考えられない。後者の場合、作動ガス 100 % H_2 の抵抗加熱プラズマ放電のとき、H 粒子の平均エネルギーはマクスウエル分布と等方入射を仮定し $30 \pm 9 eV$ と測定された⁽⁶⁾。作動ガスが 100 % D_2 の場合、同じプラズマ条件であれば、D の粒子エネルギーは上記の結果と大差はないと考えられる。TDC の平均エネルギーは測定されていないが、恐らく 5-10 eV 程度とみられる。とくにこの程度の低エネルギー領域では、核反応分析による深さ分布や保持量の測定方式並びに LMM 理論自体、あるいはパラメータ値の選定等の精度がどのようになるか、今後の研究問題であろう。

3.3 その他

表面捕集プローブには、上に紹介した型の他に、プラズマ放電中の水素同位体あるいは不純物の実時間測定を可能ならしめる回転プローブも考案されている。また厳密にはこのプローブの範囲には入らないが、SOL イオンの Z/m を測定できるプラズマイオン分光器もある。これらについて

は、目下準備中であるので、後報で述べたい。

文献

- (1) G. Staudenmaier et al., J. Nucl. Mater. 84 (1979) 157.
- (2) D. K. Brice, B. L. Doyle, W. R. Wampler and S. T. Picraux, J. Nucl. Mater. 114 (1983) 277.
- (3) S. A. Cohen and G. M. McCracken, J. Nucl. Mater. 84 (1979) 157.
- (4) 中島 雅, 高谷 泉, 秋山武司, 北村 晃, 矢野淑郎, 仙石盛夫, 大塚英男, 前田彦祐,
JAERI-M 91-048 (1991).
- (5) S. A. Grashin et al., J. Nucl. Mater. 176 & 177 (1990) 1022.
- (6) T. Nakajima, A. Kitamura, Y. Furuyama, N. Tani, M. Maeno and H. Maeda, J. Nucl. Mater.
(in press).
- (7) T. Nakajima, I. Takaya, T. Akiyama, A. Kitamura, S. Yano, S. Sengoku, H. Uhtsuka and
H. Maeda, J. Nucl. Mater. 179-181 (1991) 349.
- (8) B. L. Doyle, W. R. Wampler, D. K. Brice and S. T. Picraux, J. Nucl. Mater. 93 & 94 (1980)
551.
- (9) 古山雄一, 中西康次, 北村 晃, 中島 雅, 神戸商船大学紀要 第二類第37号 (1989), P. 145.

4. ERDA法によるバナジウム中の水素の定量

(株)東芝 原子力技術研究所 鹿野文寿

1. 序 論

1-1 はじめに

核融合炉材料ではD-T反応で発生した14MeV中性子によって弾き出し損傷と同時に (n, α) 、 (n, p) 反応などの核変換により多量のヘリウム、水素が発生する。バナジウムは、水素固溶金属であり、多量の水素を固溶する⁽¹⁾。構造材では、材料の脆化が大きな問題であり、一般に金属の水素脆化は10wppm (バナジウムで500appm)程度で発生するとされている。このことを考え併せると、バナジウム中での水素量は試算で約30Happm/dpaであるから、100dpa以上の照射量では脆化が大きな問題となる可能性がある。

従来、水素は拡散係数が大きいため、500℃以上の高温照射では、導入後、直ちに拡散、熱放出するために組織変化に対してあまり影響を与えないと言われることが多かった。寺沢らは⁽²⁾、オーステナイトステンレス鋼中で損傷ピーク深さよりも浅い位置と、逆に深い位置に重水素を同時照射、または前もって照射損傷のある試料に重水素を照射し、その透過率を測定した。その結果をFig. 1(a), (b), (c)に示す。損傷ピークより浅い位置のDは、深い位置のDに比べ、かなり透過しにくいことが判明し、Dが照射欠陥にトラップされることで拡散係数が低下し、透過を著しく妨げられることが明かになった。ここで用いられたDは、注入水素であり、一般のガス透過試験とは異なり、微量であるが、この程度の水素量が、 (n, p) 反応により生成される軽水素量のオーダーである。ところで、この報告は、核反応生成物としての水素は、拡散係数が低下することから、照射欠陥との相互作用を無視できないことを示している。換言すると、水素が組織変化に対してなんらかの影響を及ぼすことを示したことになる。また実際のD-T反応炉では、多量の重水素やトリチウムが存在することから、さらにその影響は拡大される可能性もある。

照射試料の観察は、透過型電子顕微鏡(TEM)で行われているが、水素の効果がある程度、定量的に議論するためには、試料中の損傷領域での水素量を知ることが必要である。それもTEM観察試料と同時に作成され、同時に照射された試料、さらには照射中の試料の定量化が望ましい。

水素が照射組織に影響を及ぼすことが組織の面から明らかにされている以上、⁽³⁾その水素量の定量化は、材料強度の観点からも、ぜひ必要であろう。

微量水素の分析手段は、極めて限られた方法しかない。局所分析では、IMA(Ion Micro Analyzer)しかないが、これは破壊分析であるため、これを除くと非破壊分析で水素の深さを知る方法は、ERDAまたはNRA(Nuclear Reaction Analysis)以外にはない。本報告で利用したERDAについては、後の章に詳細説明があるので、NRAについて簡単に記す。NRAによる水素同位体 ^1H 、 ^2H 、 ^3H の検出には、それぞれ固有の核反応が用いられている⁽⁴⁾。軽水素(^1H)の場合には、 $(^7\text{Li}, \gamma)$ ($^{11}\text{B}, \alpha$)、 $(^{15}\text{N}, \alpha \gamma)$ 、 $(^{18}\text{F}, \alpha \gamma)$ 等の反応が利用される。これらはどれも共鳴反応であり、各々、 $B_{L1} =$

3.07, $E_B = 1.79$, $E_N = 6.38$, $E_F = 16.6$ MeV の共鳴エネルギーで反応が起こる。このうち ^{15}N を用いる反応は、共鳴幅が2keV以下と極めて狭く、他に共鳴ピークが無い利点があるので、単色性の高いビームを用いると、中重元素の固体中で数nmの分解能で測定することも可能である。しかし、見方を変えると、もっと荒い分析の際は検出効率を落とす、水素量が少ない時は膨大な時間を要する、深さ分析のために入射エネルギーを変更する時の加速器の調整に手間がかかる等の欠点もある。そこで、本実験では、パラメータの設定をうまく選択することで、効率よく水素の検出が行えるERDAを採用した。しかしERDAで1 μm もの深さまで水素分析した文献は皆無であり本実験が1 μm の深さまで計測した初めての事例ということになる。

1-2 目的

本研究は、バナジウムの中照射下での水素の影響を知るために、水素濃度の深さ分布を明らかにすることで、マイクロ組織に及ぼす水素の影響を理解する手がかりとし、水素量の定量化を確立することを目的とする。そのため、14MeV 中性子による中照射及び核反応による水素の発生を模擬するために、高い損傷導入速度が得られ、実験条件の制御が比較的容易な加速器を用いた高エネルギーイオンとプロトンの二重ビーム照射を行い、その後タンデム加速器による反跳粒子検出法(Elastic Recoil Detection Analysis)による測定を行った。このとき、損傷ピーク深さは0.7 μm であるので水素の深さ分布は1 μm 以上を見ることを目標にした。

2. ERDA法 (反跳粒子検出法)

2-1 ERDAの原理

ERDA法は入射粒子との弾性衝突により反跳された軽元素を半導体検出器により検出し、波高分析することにより、その深さ方向の濃度分布を決定する方法である。試料と検出器の配置はFig. 2に示すとおりである。

こゝで

入射粒子の質量 : M_1 , 反跳粒子の質量 : M_2

衝突直前の入射粒子エネルギー : E_1

衝突直後の反跳粒子エネルギー : E_2

アブゾーバー通過後

検出器に入射する粒子のエネルギー : E_{det}

アブゾーバー内でのエネルギー損失 : ΔE

入射粒子の試料内での阻止能 : S_{in}

反跳粒子の試料内での阻止能 : S_{out}

とおけば

$$E_{det} = E_{out} - \Delta E \quad \dots\dots\dots (1)$$

$$E_2 = KE_1 \quad \dots\dots\dots (2)$$

ただし、 $K = 4 M_1 M_2 \cdot \cos^2 \theta / (M_1 + M_2)^2$

$$E_1 = E_{i_n} - x S_{i_n} / \sin \alpha \quad \dots\dots\dots (3)$$

$$E_{o_{ut}} = E_2 - x S_{o_{ut}} / \sin \beta \quad \dots\dots\dots (4)$$

が成立する。

(1)~(4)より

$$E_{o_{ut}} = K E_{i_n} - (K S_{i_n} / \sin \alpha + S_{o_{ut}} / \sin \beta) x = E_{d_{et}} + \Delta E$$

$E_{d_{et}}$ 上式により深さ x に換算できる。

x と $x + \Delta x$ の間に局所的な濃度 $N(x)$ で存在する粒子が検出器に入る数 Y は次式によって求められる。

$$Y = Q \cdot N(x) \cdot (d\sigma/d\Omega) \cdot \Delta\Omega \cdot \Delta x \quad \dots\dots\dots (5)$$

入射イオンの数： Q [A]

反跳微分断面積： $(d\sigma/d\Omega)$

検出器の立体角： $\Delta\Omega$

実際の測定では、水素濃度が既知の標準試料を用いて $(d\sigma/d\Omega) \cdot \Delta\Omega$ 項の値を決定し、定数項とみなす。本実験では、純バナジウムに既知の量の水素を拡散注入した試料及びカプトンを用いた。

実験パラメータとして入射ビームのエネルギー、入射角、検出器の配置、アブゾーバーの選択は、分解能、検出感度、測定可能深さなどを決定する要因となるため、これらを最適化する必要がある。

2-2 パラメータの決定

エネルギー E をもった粒子のバナジウム中での飛程は、エネルギーの関数となる。バナジウム中では、入射イオンと水素の飛程が、各々、 $M_{i_n} = F(E_{i_n})$ 、 $M_H = G(E_H)$ なる関数で表されると仮定すると次の各式が成立する。

$$M_{i_n} = F(E_{i_n})$$

$$M_1 = M_{i_n} - (\sin \alpha)^{-1} x$$

$$E_1 = F^{-1}(M_1)$$

$$E_2 = k \cdot E_1$$

$$M_2 = G(E_2)$$

$$M_{o_{ut}} = M_2 - (\sin \beta)^{-1} x$$

$$E_{o_{ut}} = G^{-1}(E_{o_{ut}})$$

したがって、 $F(E)$ 、 $G(E)$ が既知であるとする、入射イオンのエネルギー、入射角度、検

出する水素の深さ、および検出角度をパラメータとしてアブゾーバー直前での水素のエネルギーを試算することができる。本研究では、Fig. 3から $F(E)$ 、 $G(E)$ を定めた。

まず、適当なアブゾーバーを設定する。試料表面で弾性散乱した後の入射粒子のエネルギーは、入射粒子のエネルギーを E_0 、ターゲット粒子の質量を m_2 とすると次式で与えられる。

$$E_N = [M_1 \cdot \cos(\alpha + \beta) + \{m_2^2 - M_1^2 \cdot \sin(\alpha + \beta)\}^{1/2} / (M_1 + m_2)]^2 \cdot E_0 \quad \dots\dots (6)$$

つまり、(6)式から求められるエネルギー E_N で表面散乱した入射粒子はカットするが、試料表面からの深さ $1 \mu\text{m}$ 程度の位置から反跳されてきた水素が検出可能なエネルギーを持って透過することができるアブゾーバーを設定することが必要である。これらを見積るために、入射ビームのエネルギー、入射角度、検出角度、検出する水素の深さをパラメータとして、アブゾーバー直前での水素のエネルギーを試算した。

さらに、測定条件の最適化を計るためには、エネルギー・ストラグリングによる深さ分解能、及び収率についても考慮し、それらの兼ね合いで入射角 α と検出器の角度 β を決定する必要がある。ところで、ERDAにおいてはラザフォード散乱公式が適用でき、反跳微分断面積は次式によって与えられる。

$$(d\sigma/d\Omega) = (Z_1 Z_2 e^2 / 2 E_1)^2 (M_1 + M_2 / M_2)^2 \cdot 1 / \cos^3 \theta \quad \dots\dots\dots (7)$$

$0^\circ < \theta < 90^\circ$ では θ に関して単調増加関数なので収率は $\theta (= \alpha + \beta)$ の値が大きくなるように設定すればよい。

次に深さ分解能について示す。本研究におけるエネルギー誤差の原因は主に次のものであると考えられる。

- (1) 入射イオンが試料内部で受けるエネルギー・ストラグリング
- (2) 反跳された水素が試料内部で受けるエネルギー・ストラグリング
- (3) 反跳された水素が検出器前のアブゾーバーを通過するときに受けるエネルギー・ストラグリング
- (4) 検出器前のスリット幅による幾何学的な誤差

このうち、入射角 α と検出角 β に依存する(1)、(2)によるストラグリングは、相感性を持つので、一方を固定してパラメータを振り、最小になるように α と β を決定する。算出にあたってはエネルギーの広がりガレンジ・ピークを中心とした3次元のガウス分布に従うと仮定し、全体の約74%の粒子についてのエネルギー・ストラグリングの荷重平均をとった。実際の測定では、(1)~(4)の項目毎に、計算値をもとに、表面ピークの反値幅から角度を決定する。18.5MeV Ni^{4+} を入射角 23° 、検出角 12° で、アブゾーバーとして $2 \mu\text{m}$ のNiフォイルと $12 \mu\text{m}$ のマイラー膜を重ねて検出器の前に配置すれば、上記の各条件を満たすことが、計算及び実験から決定された。入射エネルギー 20MeVでも、ほぼこの条件を満足する。

2-3 ERDA用装置の概要

ERDA測定は東大原子力研究総合センタータンデム加速器で実施した。ビームの生成は、アンモニアガスをデュオプラズマトロンイオン源に導入し、質量分析マグネットで振り分けられた NH_2^+ を加速し、ストリッパガス通過後の N^{4+} を利用した。入射角及び試料位置を変えられるよう照射ステージをゴニオメータに取り付けた。測定系の概要をFig. 4に示す。水素の計数と同時に後方散乱された入射イオンを計測した。試料のニッケル照射部面積が $2\text{ mm}\phi$ と小さく、スリットの大きさから割り出される試料表面でのビームの大きさは、斜め入射のためかなり大きくなり $1.2 \times 0.3 / \sin 23^\circ$ ($=1.2 \times 0.77$)となる。

そこで、照射ステージをFig. 5にあるように以下のようなものにした。 $2\text{ mm}\phi$ の穴を開けたZrフォイルを、中心がずれないようにバナジウム試料の上から貼付け、露出面が二重ビーム照射面と完全に一致するようにする。こうしてVの非照射面は、Zrフォイルで、完全に覆い隠し、RBS (Rutherford 後方散乱法)のエネルギースペクトルを採取した。この目的は、Nイオンビームのフルエンスを直接的に把握すること(間接的にはファラデーカップによりビーム電流が測定されている)と、スペクトルの形状から、Nビームが試料に正確に当たっていることを確認することである。

3. 実験方法

3-1 装置の概要

本研究で利用した照射装置は、東京大学原子力研究総合センター重照射研究設備に設置されたタンデムコッククロフト・ウォルトン型加速器 (Tandatron 4110A General Ionex Corp. 製) 及びヴェンデグラフ型加速器 (VdG KN3750 High Voltage Engineering Corp. 製) である。これらのビームラインは、二重ビーム照射用チェンバーに接続されている。試料への入射角は、Niイオンは、垂直であり、水素イオンは法線に対し 18.8° である。

3-2 水素注入量の計算

核融合条件下では大量の水素、ヘリウムが生成する。この生成量は構成材料によってかなり異なるため、その二重ビームによるシミュレーション照射時には、材料ごとに核反応断面積から計算された生成量になるよう注入量、即ち H/dpaを調整する必要がある。さらにイオン照射の特有な制約で、損傷量は深さ分布を持つため、H/dpaを観察深さに依存せず、一定値にするためには、Hイオンの深さ分布を損傷深さ分布に一致させねばならない。TEM 観察時の膜厚は、約 100 nm 以下であるから、この観察範囲で損傷量及び水素量が一定である方がよい。しかしながら、残留水素の深さ分布を測定することを考えれば、通常のガウス分布になるように、単純に水素注入を行った方がよい。その方が、注入分布がシャープなだけに、照射欠陥の有無及び照射温度による水素の深さ分布の相違が明確になると予想されるからである。しかし水素による組織変化と対比することが目的であるので、損傷分布に合わせて、水素を注入することにした。一種類のエネルギーで水素を照射して

も、目的の深さ分布は得ることができないので、数種類の深さ分布を連続的に組み合わせることで目的の深さ分布を意図的に作らねばならない。

本設備ではビームに平行に金属箔を動かす方法を採用し、デグレータとしている。45°の動作角を持つ回転ソレノイドを利用して、回転導入端子を介して箔の傾斜を操作している。この方法では除熱が悪いと箔が溶けて穴があくので、なるべく可動距離を大きくしなくてはならない。それと、穴が開いた場合、すぐに検知できるようにしておく必要がある。箔には水素照射用として1 μm 厚のNiを利用した。この箔はチャージアップを防ぐため接地されている。また穴が開いた場合の検知法としてデグレータ直前にファラデーカップを設け、デグレータによる二次電子を常時、モニターしている。入射エネルギーは、水素で950keVである。TRIM85コードを用いた計算結果から、水素で300~900nm深さの範囲で、ほぼ一定の注入比が得られる。その模式図をFig. 6に示す。1MeV程度の軽イオンでは、箔を通過する際、かなりビームが広がり、見かけの透過率は10%以下となるので、最終のビームフラックスはかなり制限される。

3-3 試料作成の前処理

試料のバナジウムは、フレーク状の中国製の物を、東北大学金属材料研究所において、電子ビーム溶解しインゴットにしたものである。その分析結果をTable 1に示す。その純度99.95%のバナジウムを0.2mm²に切断し、さらに0.15mm²に圧延した後、3段階で順次、粒度を細かくしながら機械研磨を、次いでバフ研磨を行い、最終仕上げ0.03 μm までアルミナ懸濁液を利用して照射面を鏡面仕上げにした。次に透過型電子顕微鏡兼用とするため、3mm ϕ に打ち抜き加工を施し、表面のひずみ層及びコンタミを除去することを目的に僅かの電解研磨をした後、900℃で2時間、ジルコニウム箔を利用して10⁻⁶Torr以下と考えられる高真空中での焼鈍を行い、照射試料とした。

3-4 照射条件及び標準試料作成条件

照射は、照射条件(1)ニッケルイオンのみによる単一ビーム照射、及び(2)ニッケルイオンと水素イオンによる二重ビーム同時照射をTable 2に示す各条件で行った。同時に水素をガスチャージした標準試料を作成した。しかしながら、単なるガスチャージ法では微量の水素をチャージする場合、完全に制御できないことや、チャージ領域にひずみが残る可能性がある。ここでV-H系状態図をFig. 7に示す。ここで示されるように、常温で、 α 相単体で固溶しうる水素の最大量は3~4%で、これ以上の水素が存在すると、水素化物(β 相)が生じ、これは α と結晶構造が異なるため、チャージ量が多い場合に問題となる。そこで本実験では、これを解決する目的で、水素の拡散注入を行った。拡散注入とは、既知の水素量がチャージされている試料と、充分脱水素が行われている試料を正確に計算した後、スポット溶接し、接続された各々の試料中に水素を均一に拡散させて、後から水素が入った試料をカッターで切断して利用する方法である。水素は拡散係数が極めて大きいことから、比較的短時間で均一平衡拡散するので、試料重量がわかれば水素量が定量できる。この方法は、 α 相の試料を作成する時、水素量が容易に定量でき、ひずみを回避できるので都合が良い。

4. 実験結果及び考察

まず、ERDAの各測定パラメータの最適値を計算機で導出し、そのデータを基に、実験で決定した。検出角は、実測で 10° が最良であったが、まわりのZrフォイルでエッジ散乱が生じるので、計算値との対応から 12° とした。アブゾーバは表面散乱した入射イオン、即ち最大エネルギーの入射イオンをほぼカットすることができた。これは未照射試料でERDAの計測を実施し、検出された水素スペクトルの低エネルギー側に注目することで確認した。

入射ビームによる試料中の水素への照射効果を調べるため、水素を3.6at%拡散注入した試料についてビームを照射しながら、一定時間毎の水素の深さ分布の経時変化を調べた。3.6at%Hという値は、常温でバナジウム水素が α 単相であるほぼ最大値であり、測定が短時間でできることから決定した値である。具体的には、深さの異なる3ヶ所にROI(Region of Interest: スペクトルの測定領域)を取り、SCA(Single Channel Pulse Height Analyzer)からのカウントを30秒毎に記録した。その結果、 18.5MeVn^{4+} , 10nA/cm^2 で、3時間程度の照射では、1ミクロンまでの深さ分布及び水素量に変化がないことが確認された。ここで測定した試料はバルクで、本試料であるTEM観察用の物に比べかなり大きいため、個々の熱容量が異なるが、試料ホルダーを銅製にしてあること、斜め入射であること及びビーム電流が損傷導入のための照射時に比べ極めて少ないことから、発熱の問題はないと思われる。さらにビームエネルギーが、観察深さ内でかなり高いので、弾き出し断面積が小さいことから、照射損傷もほぼ無視できると考えられる。また、この水素注入試料によるスペクトルは、深さ分布が一定であり、それが深さ $1\mu\text{m}$ に対応する当たりの低エネルギーまで続いていることから目標の深さまで、信頼できるデータを取得出来ることが確認できた。その測定結果をFig. 8に示す。ここでのスペクトルはすべて同じ測定ビーム電荷量で規格化されている。また未照射材についての測定結果をFig. 9に示す。ここでカウントされているのは、大部分がアブゾーバとして利用したマイラー構成元素中の水素であり、一部が試料中の残留水素だと考えられるが、これをバックグラウンドとして評価する。

条件(2)の、 500°C , 600°C , 700°C で50dpa, 60appmH/dpaの照射された試料について測定を行った。その結果をFigs. 10, 11, 12に示す。カウント数が少ないので統計をあげるため10チャンネル毎に加算してある。600chに表面ピークがある。この鋭い立ち上がりから、予想どおりの分解能が得られていることがわかる。深さ $1\mu\text{m}$ は150chに対応する。このような高温では、試料中の固溶水素、注入水素の大部分は、熱放出することが知られているが、照射下では損傷ピーク深さ近傍で40%即ち1500ppmの水素が残留していることがわかる。水素の深さ分布については、照射温度によって微妙にピーク深さと水素量が異なる。Figs. 13, 14, 15にFigs. 10, 11, 12で示したデータを、縦軸をリニアスケールにして拡大した場合を示す。水素濃度のピーク深さは、 500°C で $0.62\mu\text{m}$, 600°C で $0.60\mu\text{m}$, 700°C では $0.54\mu\text{m}$ となり、照射温度の上昇に伴い表面方向へ僅かに移っているようである。またピーク深さ近傍の水素量は、照射温度の上昇に伴い、減少傾向にある。このピーク位置は、損傷ピーク深さより、 $0.1\mu\text{m}$ ほど浅い。照射による表面のスパッタリングは、損傷ピーク深さを浅くする傾向にあるが、入射エネルギーの大きさから考えてそれほど問題ではない。

鉄、ニッケル、ステンレス鋼における深さ方向の電子顕微鏡組織観察の結果、キャビティは、損傷ピーク深さよりもその前後で大きくなることが確認されている。従って本実験でも、ピーク深さの手前にある大きなキャビティにトラップされた水素量を濃度ピークとして見ていることが考えられる。そうであるならば、損傷ピークの奥にも水素濃度ピークが存在するはずである。そこで損傷ピーク深さが約 $0.8\mu\text{m}$ であることから、150ch以下即ち $1\mu\text{m}$ より深い所まで観察した。その結果をFig. 16に示す。この測定では、入射エネルギーを18.5MeVから20MeVに変更した。他の測定条件は総て同じである。このエネルギーでは、プロジェクトルの表面散乱を、アブゾーバが完全に除去することができず、通り抜けたNがスペクトル中ににじみ出ている。そのため100ch以下のイールドは信頼できない。また表面ピーク的位置が650chになっており、入射エネルギーを上げたことにより、反跳水素のエネルギーも上がったことが確認できる。270chに入射表面に近い第一ピークが、150chに第二ピークが観察できる。しかし第二濃度ピークが低エネルギー側で下がることをはっきりと見いだすことはできなかった。

これを、電子顕微鏡による試料のミクロ組織観察の結果と関連づけて考えてみる。各照射温度で生じているキャビティの密度、平均径の結果をFig. 17³⁾に示す。キャビティ内部では、内部ガスの有無によらず、入射イオンに対する阻止能が極めて小さくなることが考えられる。ERDAによる深さの情報、あくまで平均的なものであるため、平均での議論しかできないが、キャビティ平均径と対比すれば、このピークのずれは、平均径の大きさをよく反映していると言える⁽⁵⁾。

損傷ピーク位置より深くまで観察した結果、 $1.1\mu\text{m}$ あたりにも水素が存在することがわかった。これは、水素が内部にはいりこんでいることを示している。そこで、この試料の裏側を測定してみたが、水素はほとんど存在しなかった。また照射温度から考えて、表面からの酸素は充分拡散できるはずである。ピーク位置は確認できないが、これらのことから、水素は表面の酸化膜によって熱放出を妨げられていることよりも、照射欠陥による効果及び内部拡散している不純物についてより詳細に調べる必要があると思われる。

1974年に McCrackenが水素に対する照射欠陥のトラップ効果で拡散係数が著しく減少することを報告して以後、水素透過、水素脆性等の研究者によって水素と照射欠陥の相互作用について研究が続けられている。McCrackenら⁽⁶⁾は、照射欠陥から水素が放出される温度と欠陥が消滅する温度の違いを利用して、NiとMoにおける欠陥当りにトラップされる水素量を推定している。その結果1個の欠陥に10数個の水素がトラップされたとしている。山口ら⁽⁷⁾は、前もってDを均一にチャージしたVにHeを照射し、その損傷分布とDの濃度分布が一致することから、損傷欠陥がDをトラップしているとし、さらに空孔とDの結合エネルギーを求めている。ところでこれらの報告で厄介なことは、常温付近あるいは高温での照射により拡散係数が大きくなるものがあることである。この原因は、パイプ拡散で説明されることが一般的であるが、水素の放出スペクトルの照射温度依存性は、水素のトラップ座となりうる照射欠陥の種類がバナジウムも含め、必ずしも一義的に決まらないことを示している。また損傷量についても、欠陥濃度の上昇だけでは、説明できない。さらに数十keV以上のエネルギーでは、スペクトルのピークが複数個現れ、結合エネルギーの異なる数種のトラップサイトの存在を示唆していて、もはや単純なトラップサイトモデルでは説明できない。

田辺は、損傷飛程よりはるかに深いところにある水素も、その照射の影響を受けることを報告しており、これは飛程付近あるいはそれより深くに生じた照射欠陥が水素のトラップ場となったためと推論している⁽⁸⁾。これは、本実験においても、第二のピークがはっきり見えない原因かもしれない。Fig. 18は、20keVのD⁺イオンをNiに注入した時の結果が示されている。さらに、照射初期の透過速度の立ち上がりと照射停止時の透過速度の減衰から拡散定数の測定を行っている。Fig. 19(a)にNi、Fig. 21(b)にMoの測定結果を示す。図中のInjectionとEvolutionは、各々照射初期の透過速度の立ち上がりと照射停止時の減衰より求めた拡散定数を示す。照射初期には、損傷を受けないため、D₂ガスの拡散定数と比較的良好な一致を示す。これに対し、一定照射後、停止時の拡散定数は、Niで200°C以上、Moで500°C以上でガス状水素の拡散定数より下側にずれてくる。しかしNiでは740°Cで再び上昇し、元の拡散定数になる。さらにNiでは100~500°Cで拡散定数が照射の影響を強くうけている理由を以下のごとく考えている。照射初期及び200°Cでは拡散定数の低下が顕著でないことから、拡散を阻害するトラップ場として作用するのは単空孔でなく、むしろ空孔が動ける200°C以上で生成する空孔集合体による。高温では集合体は分解消滅し、拡散定数は再び大きくなり、740°Cに達するとそれは消滅し欠陥の回復が起こる。Moでは、集合体の生成温度がNiに比べ高いため、拡散定数が元に戻る温度がより高温側にずれているのである^{(9) (10) (11) (12) (13)}。

本実験における残留水素も田辺の推論で説明できる。Vのスエリングピーク温度は、われわれの報告やLoomisらの報告⁽¹⁴⁾から650°C位である。この前後の温度で空孔集合体ができると考えると、水素のスペクトルの意味は以下ようになる。600°Cで損傷分布に一致した分布が得られるのは、空孔集合体が最もでき易い温度だからであり、500°Cでは、単一照射でキャビティが見えないことから、まだ集合体の密度はさほど大きくない。そこでバブルとして留まっているため、注入分布を比較的反映しており表面付近にはHが存在しない。700°Cでは、集合体密度のピークを越え、回復に入りつつある温度のため、内部及び表面に拡散している。

さて、スエリングピーク温度が水素を最も多量にトラップする温度に近いとすると、実炉では甚だ不都合である。これらの実験は純金属（ただしイオン照射する前）で行っているが、実炉では合金が使われるのが一般的であるから、それら添加元素のトラップ効果の方が大きいかもしれない。いずれにしても実炉材での残留水素量は、見積る必要があるように考えられる。

ERDAを使った実験はまだ少なく、従来0.2μm程度までの軽元素の深さ分布が調べられてきたが、より深い位置での定量化は充分可能なことが証明された。

謝 辞

本研究を進行するにあたり以下の方々にお世話になった。
 東京大学工学部原子力工学科 石野稔教授、荒井良夫技官、工学部原子力工学研究施設 関村直人助教授、原子力研究総合センター重照射研究設備 田川精一助教授、柴田裕実博士、工業技術院電子技術総合研究所 岩田康嗣博士、原子力研究総合センタータンデム加速器室 小林紘一助教授、(株)伯東 山下博氏、教養学部物理教室 小牧研一郎教授、東北大学金属材料研究所 松井秀樹教

授, 中央大学物理学科 深井有教授, 渡辺健次先生, (株)東芝 原子力技術研究所 福谷耕司博士, 須藤亮博士。これ以外にもたくさんの方々の有形無形のご協力を得て, 本研究の完遂が可能になったことに深く感謝いたします。

参考文献

- (1) 井形直弘 : 核融合炉材料 培風館
- (2) M. Terasawa, K. Fukushima, S. Nakahigashi, K. Ebisawa and M. Iimura : Jpn. J. Appl. Phys. 25, No.7 (1986) 1106.
- (3) F. Kano, Y. Arai, K. Fukuya, N. Sekimura and S. Ishino : J. Nucl. Mater., submitted.
- (4) 山口貞衛 : 日本原子力学会誌, 27, No.7 (1975) 584.
- (5) F. Kano, Y. Iwata, Y. Arai, T. Ido, K. Komaki, K. Kobayashi, H. Yamashita and S. Ishino : Proceedings of Int. Conf. on Evolution in Beam Applications, p214 (1992).
- (6) G. H. McCracken and S. K. Erents : "Application of Ion Beam to Metals", eds. S. T. Picraux, E. P. Eernisse and F. L. Vook, 585 (1974), Plenum Press, N. Y.
- (7) S. Yamaguchi, K. Ozawa, O. Yoshinari, M. Koiwa and M. Hirabayashi : Nucl. Instr. & Meth., 168 (1980) 301.
- (8) 古山雄一, 田辺哲朗, 井本正介 : 日本金属学会誌 50 (1986) 688.
- (9) T. Tanabe, H. Hirano and S. Imoto : J. Nucl. Mater., 151 (1987) 38.
- (10) T. Tanabe, Y. Furuyama and S. Imoto : J. Nucl. Mater., 145-147 (1987) 305.
- (11) T. Tanabe, M. Takeo and S. Imoto : J. Nucl. Mater., 162-164 (1989) 1077.
- (12) T. Tanabe and S. Imoto : J. Nucl. Mater., 128-129 (1984) 749.
- (13) T. Tanabe, N. Saito, Y. Etoh and S. Imoto : J. Nucl. Mater., 103-104 (1981) 483.
- (14) B. A. Loomis and G. Ayrault : DAFS Oct. Dec. 1982, Quarterly Progress Report (1982).

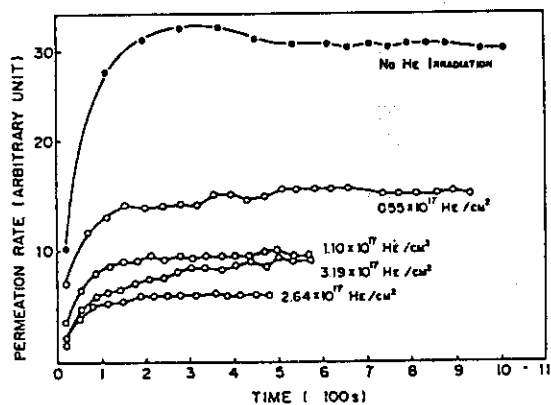


Fig. 1(a) 316 鋼で重水素飛程の後方にヘリウムを前照射した後の、500 °Cでの重水素透過率の照射量依存性

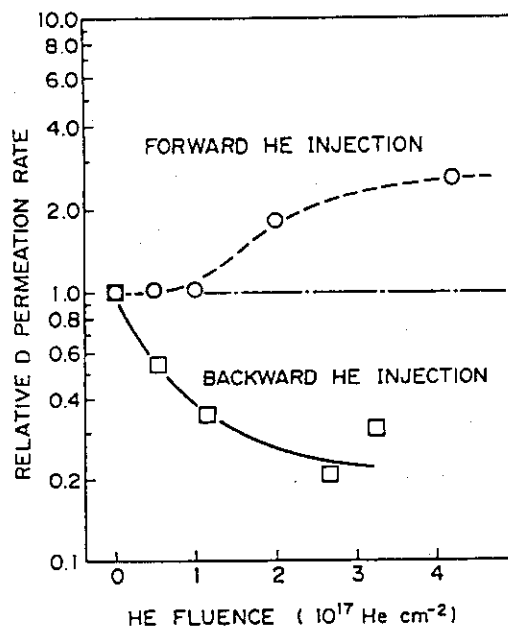


Fig. 1(b) 316 鋼で重水素飛程の前方及び後方にヘリウムを前照射した後の、重水素透過率相対量の照射量依存性

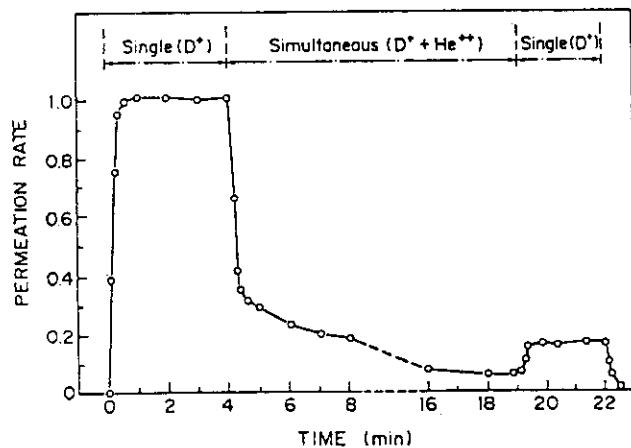


Fig. 1(c) 316 鋼で重水素飛程の後方にヘリウムを前照射した場合と同時照射した場合の、440 °Cでの重水素透過率の照射時間依存性

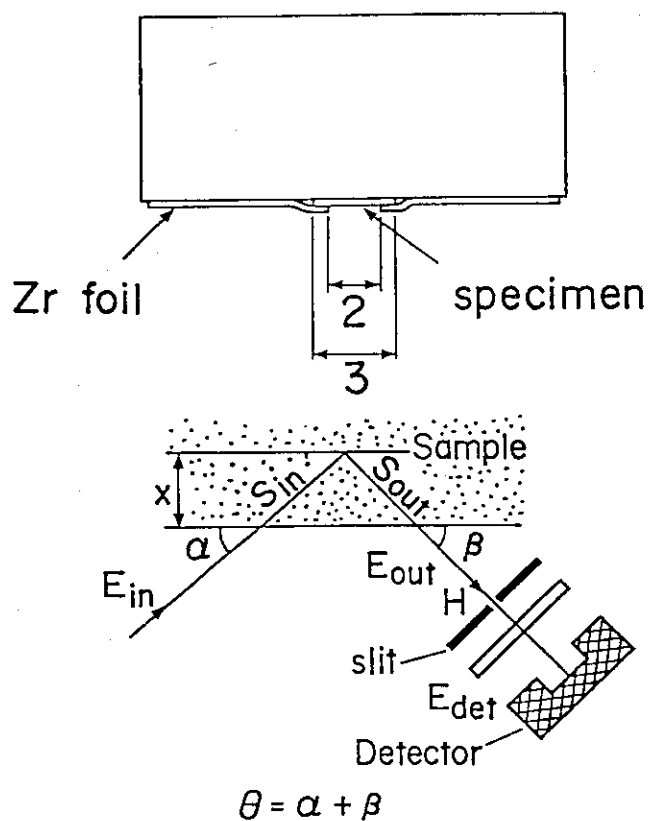


Fig. 2 試料と検出器の配置

RANGE OF HYDROGEN IONS IN V[23]

V[23]

FOR PROTONS (SOLID LINES) AND DEUTERONS (DASHED LINES) WE SHOW THE TOTAL PATH LENGTH, THE PROJECTED RANGE, AND THE STANDARD DEVIATION OF THE FINAL DISTRIBUTION (RANGE STRAGGLING). THE DECREASE FROM PATH LENGTH TO PROJECTED RANGE IS BASED ON LSS THEORY, AND IS NOT WELL ESTABLISHED

ATOMIC DENSITY = $121022 \text{ ATOMS / CM}^3$
 MASS DENSITY = $6.101 \text{ GRAMS / CM}^3$

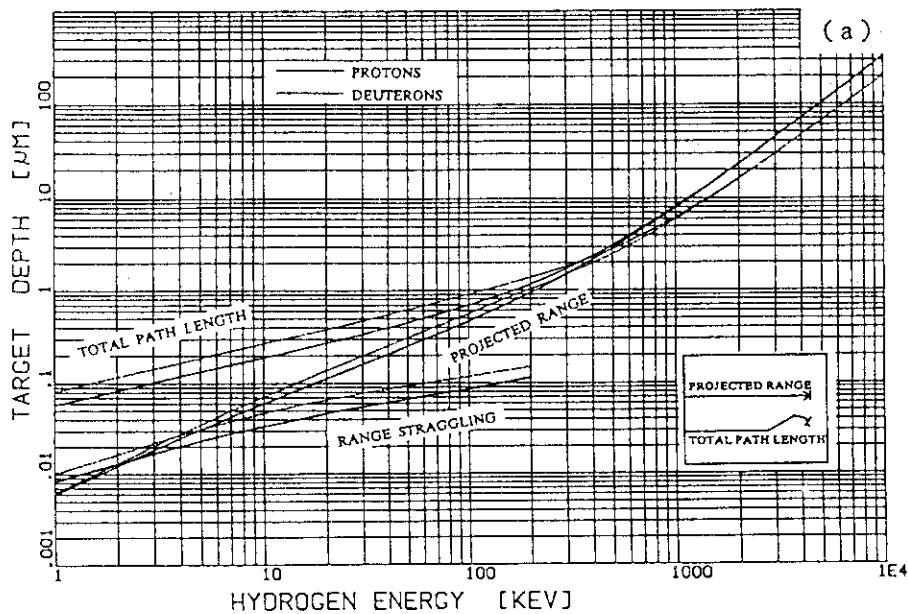


Fig. 3(a) V中でのH飛程

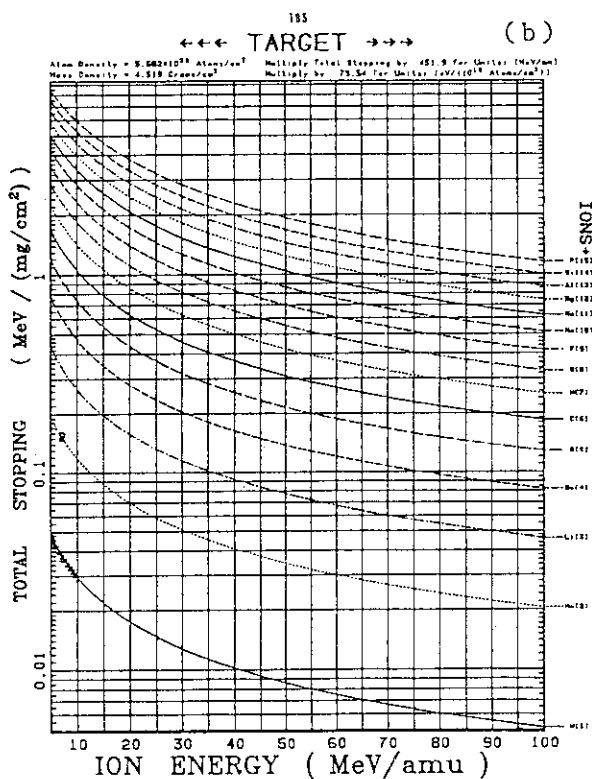


Fig. 3(b) V中でのNの阻止能

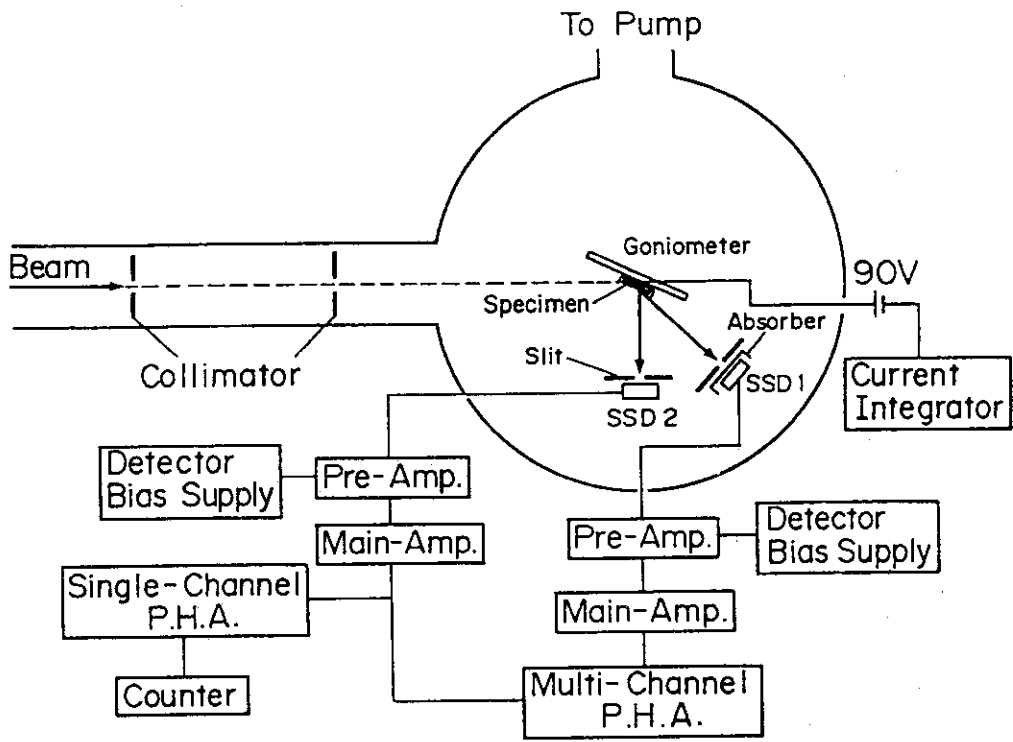


Fig. 4 測定系概略

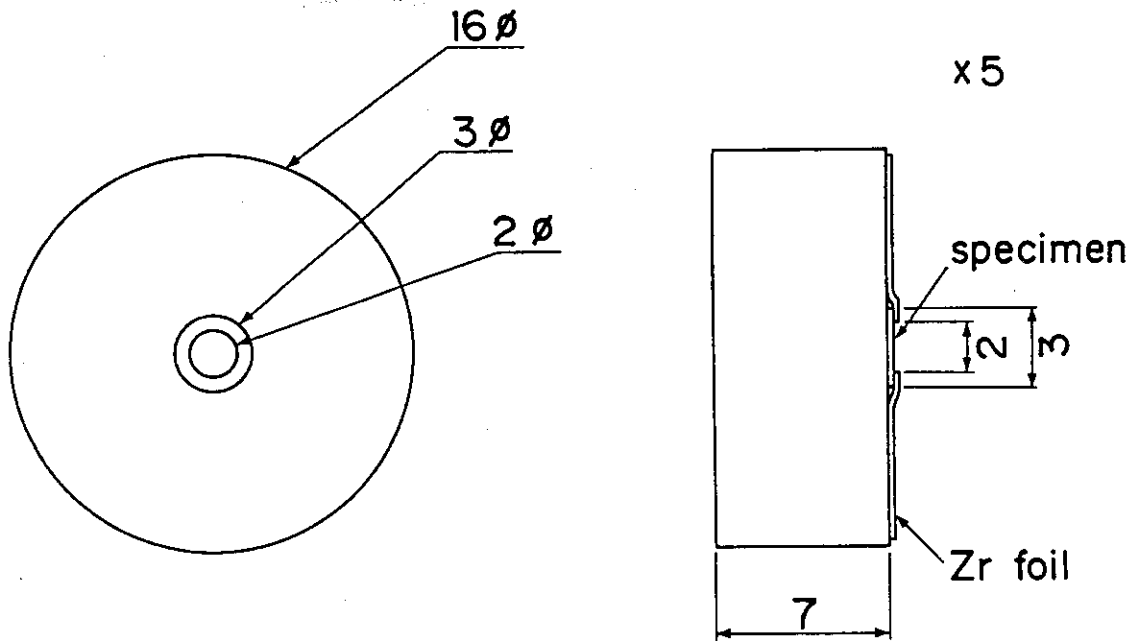


Fig. 5 照射ステージ概略

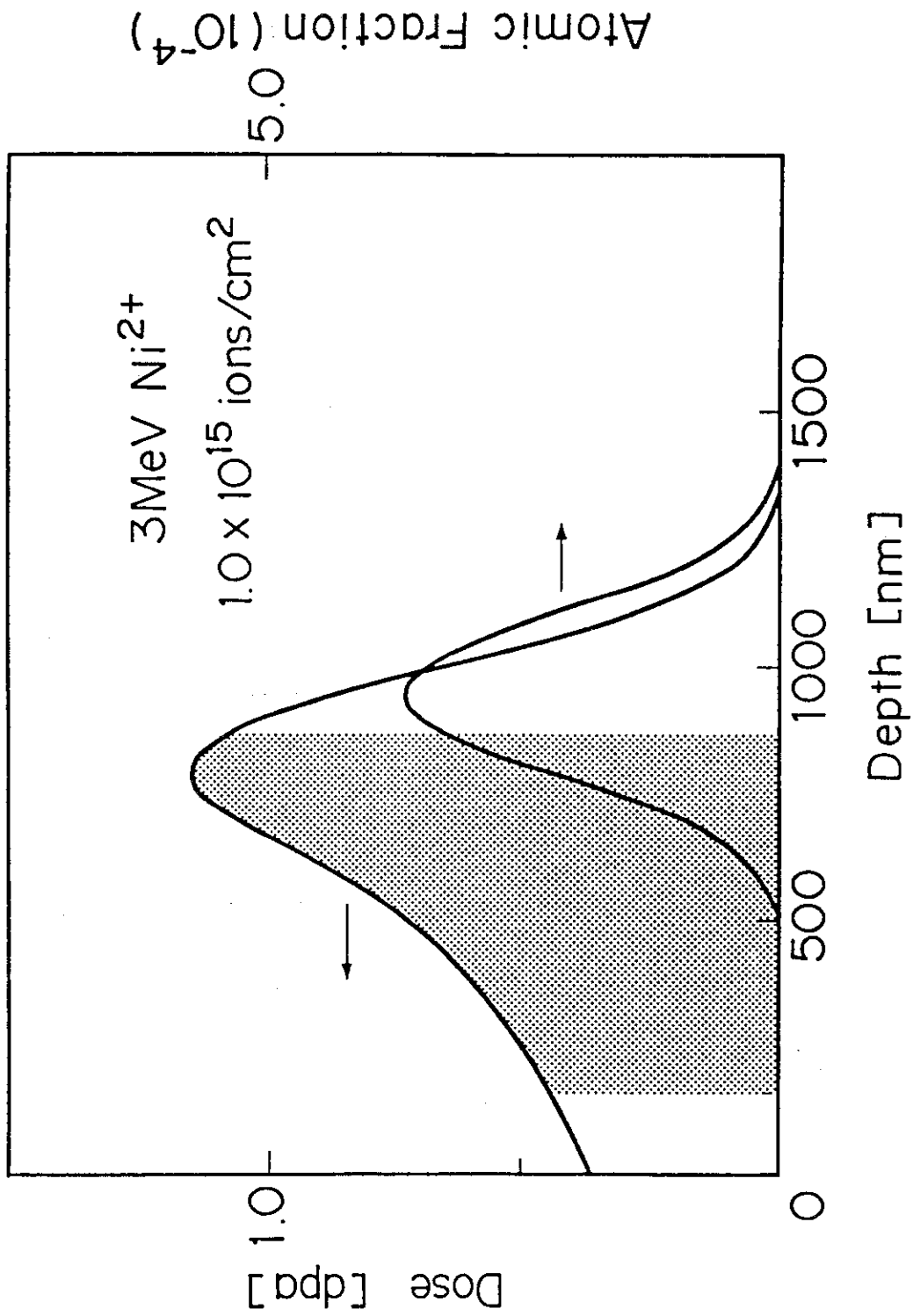


Fig. 6 損傷深さとNi深さ分布のTRIMによる計算結果

Table 1 試料組成分析表

Composition (WT%)

| V | Al | Fe | Ti | Cr | Si | Ni | N ₂ | O ₂ |
|--------|-------|-------|---------|---------|--------|--------|----------------|----------------|
| 99.9up | 0.01> | 0.012 | 0.0054> | 0.0054> | 0.004> | 0.0009 | 0.006> | 0.013 |

Table 2 照射条件

| | | |
|-------------|---|-------|
| Single Beam | Ni ²⁺ (3MeV) | 50dpa |
| | 500, 600, 700°C | |
| Dual Beam | Ni ²⁺ (3MeV) | 50dpa |
| | H/dpa=60appm : H ⁺ (950KeV+Degradar) | |
| | 500, 600, 700°C | |

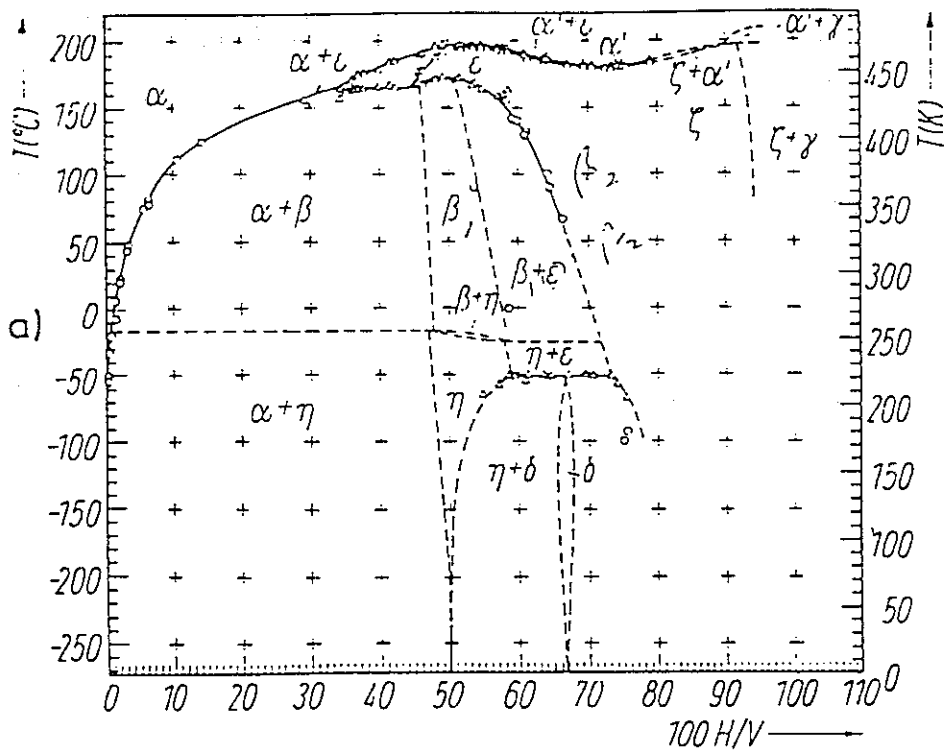


Fig. 7 V-H系状態図

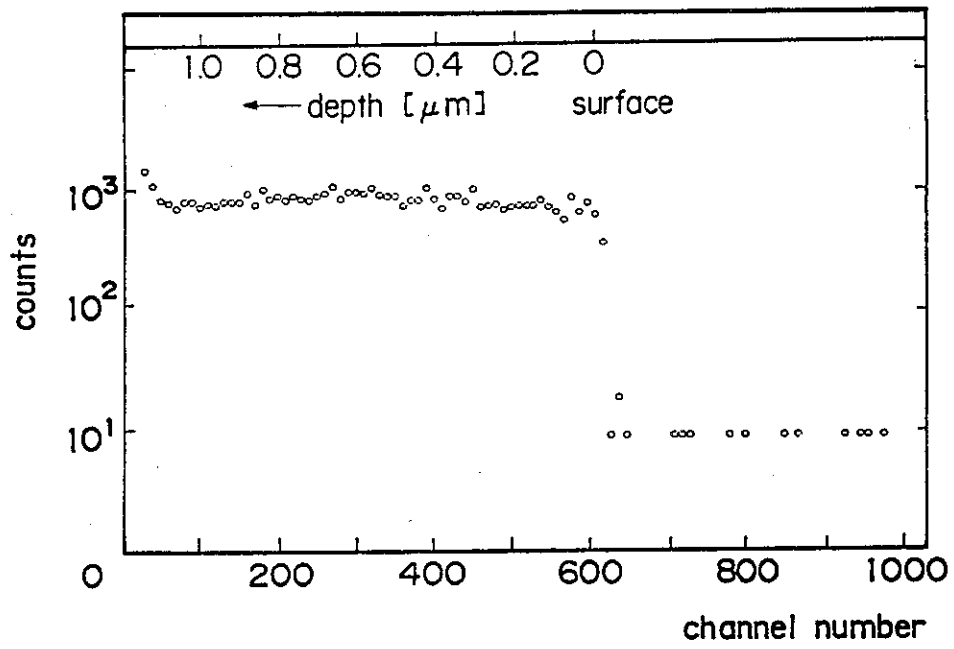


Fig. 8 標準試料 (3.6% H) の測定結果

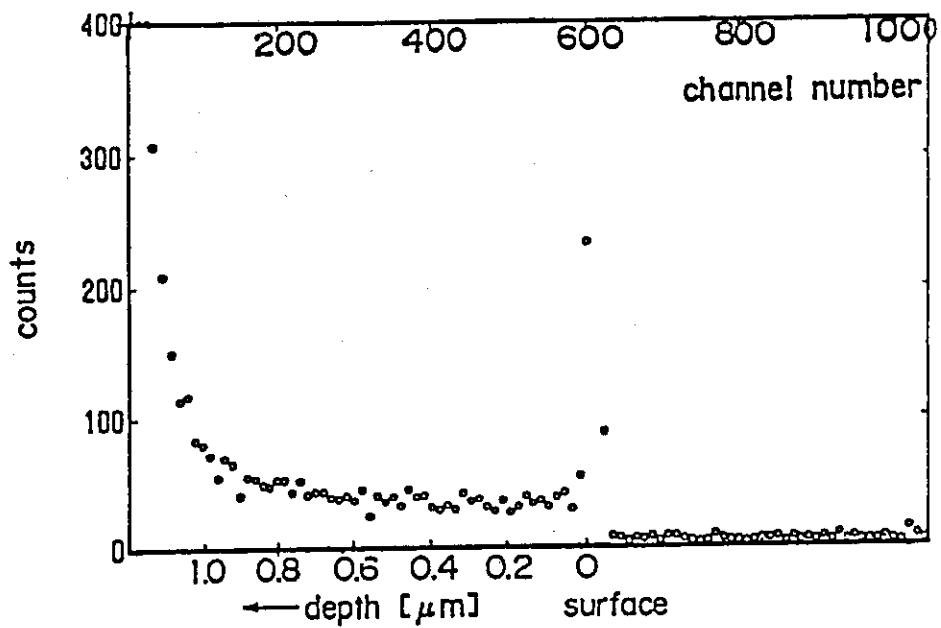


Fig. 9 未照射試料の測定結果

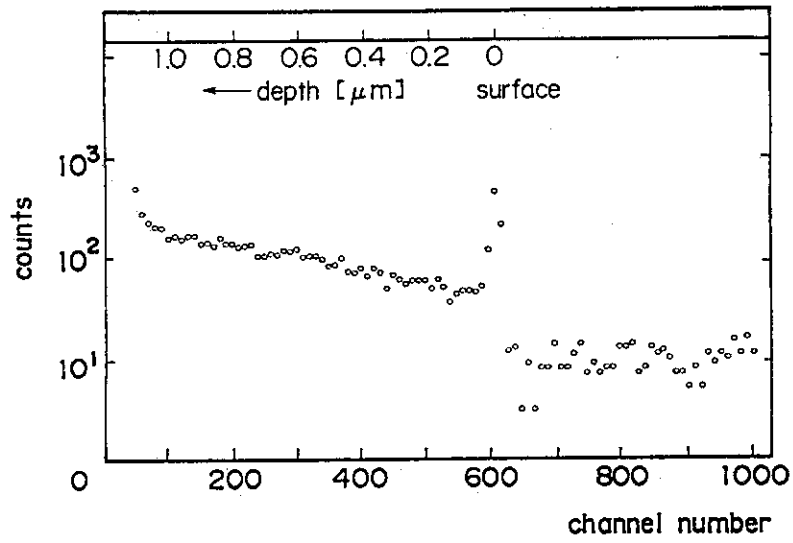


Fig. 10 500°C, 50dpa, 60H/dpaの照射試料の測定結果

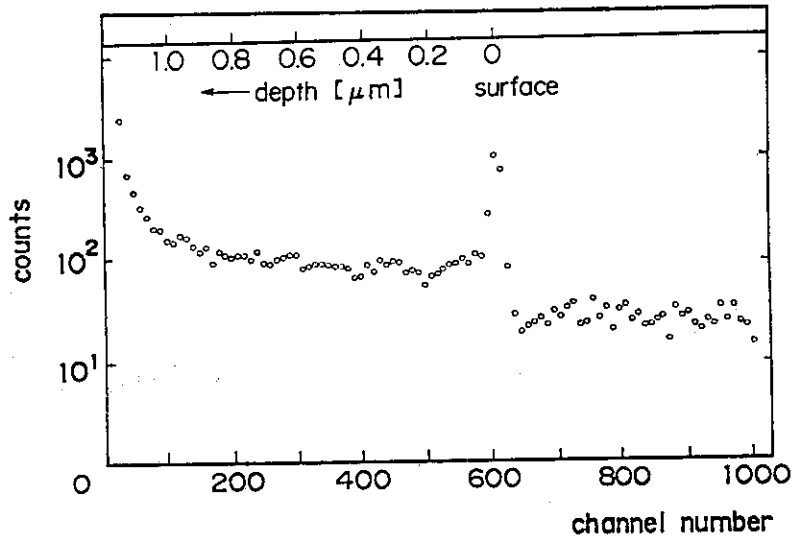


Fig. 11 600°C, 50dpa, 60H/dpaの照射試料の測定結果

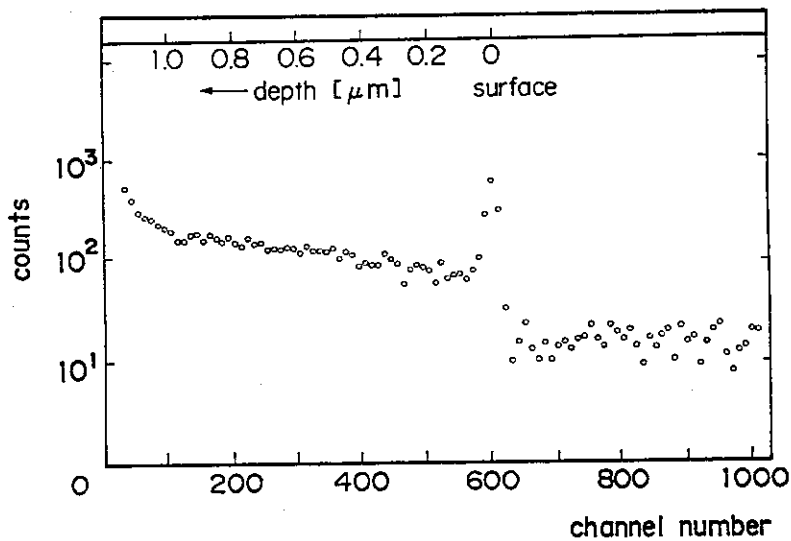


Fig. 12 700°C, 50dpa, 60H/dpaの照射試料の測定結果

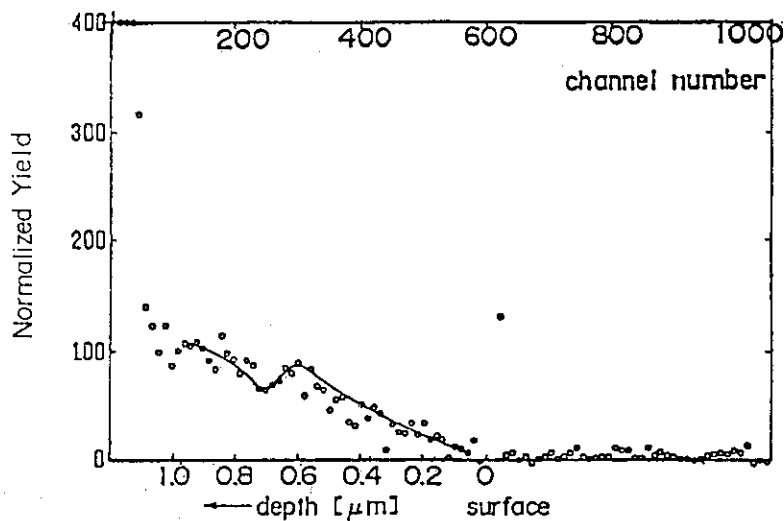


Fig. 13 500°C, 50dpa, 60H/dpaの照射試料の測定結果

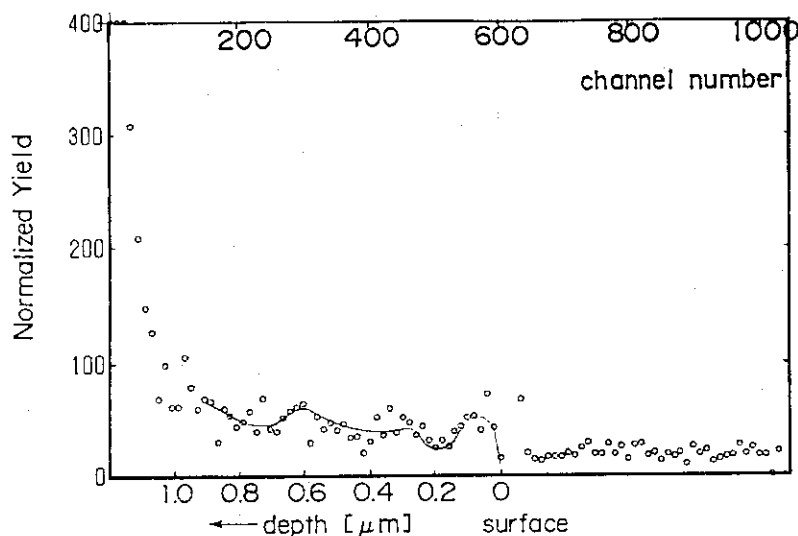


Fig. 14 600°C, 50dpa, 60H/dpaの照射試料の測定結果

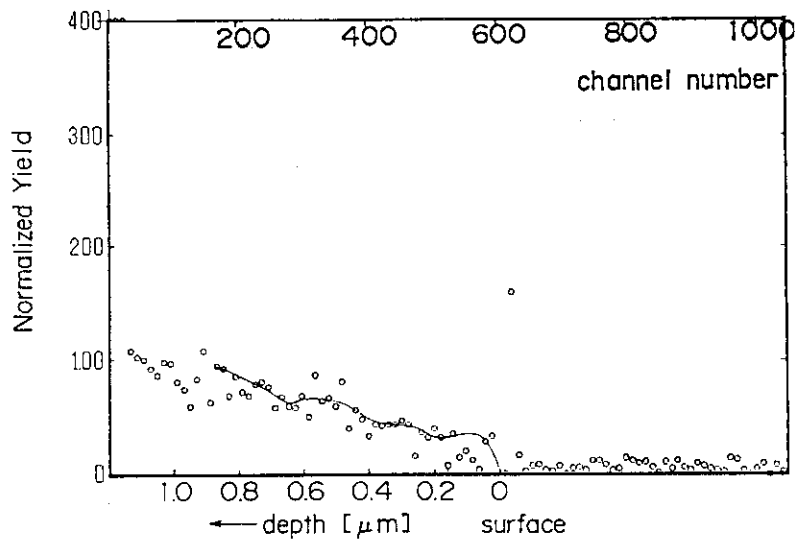


Fig. 15 700°C, 50dpa, 60H/dpaの照射試料の測定結果

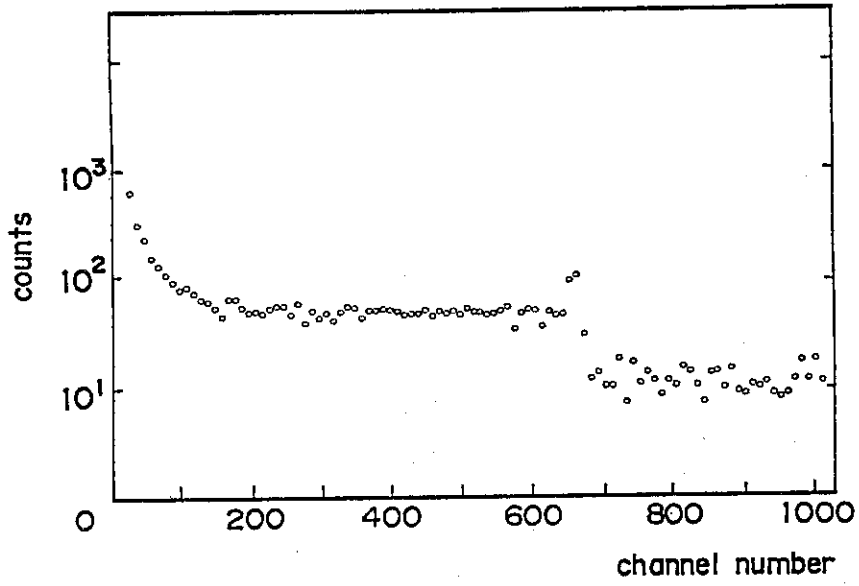


Fig.16 600°C, 50dpa, 60H/dpaの照射試料のより深く
まで測定した結果例

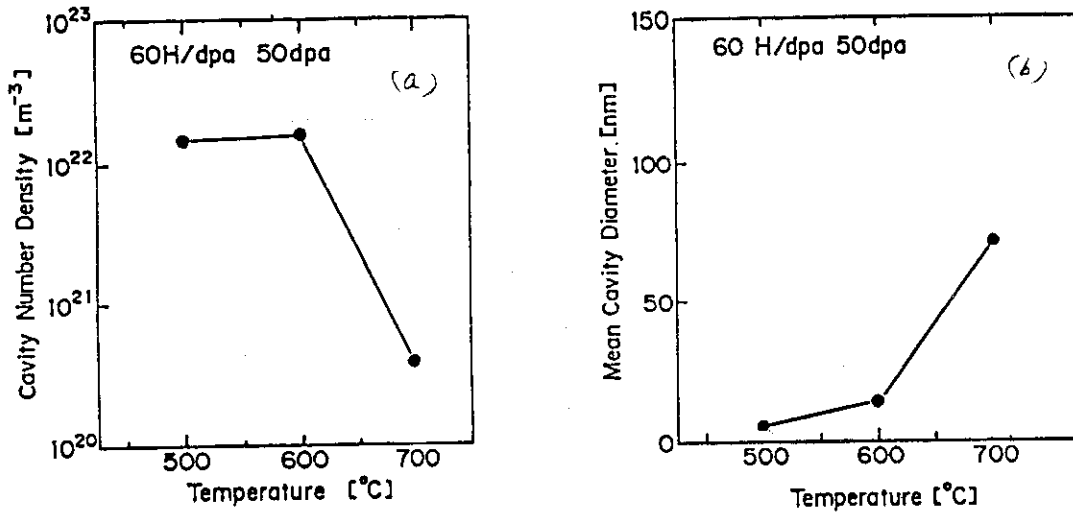


Fig.17 キャビティの密度(a), 平均径(b)の照射温度依存性

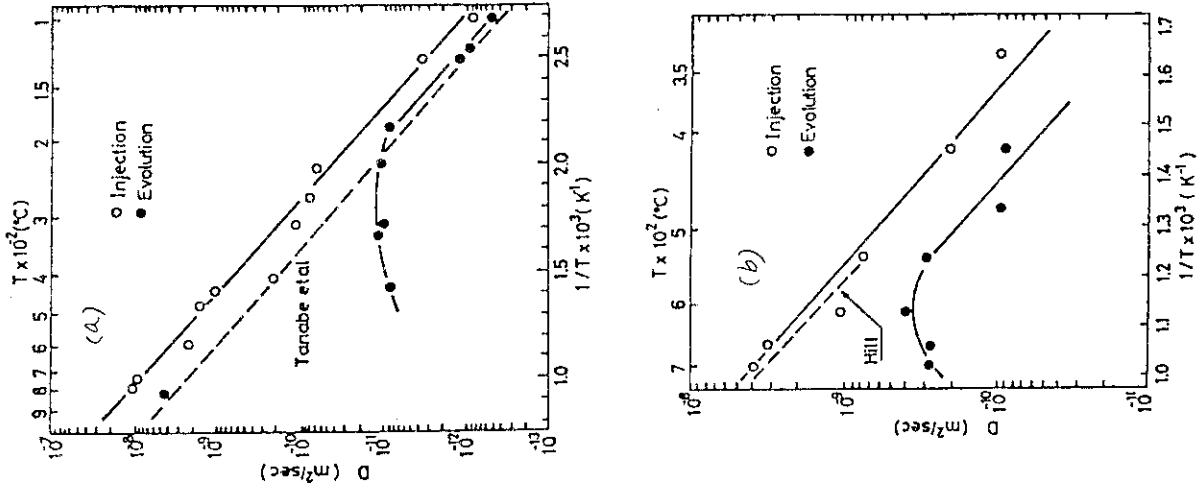


Fig. 19 20keV^{D+}イオン照射下でのNi中の(a)およびMo中の(b)のDの拡散係数の温度依存性

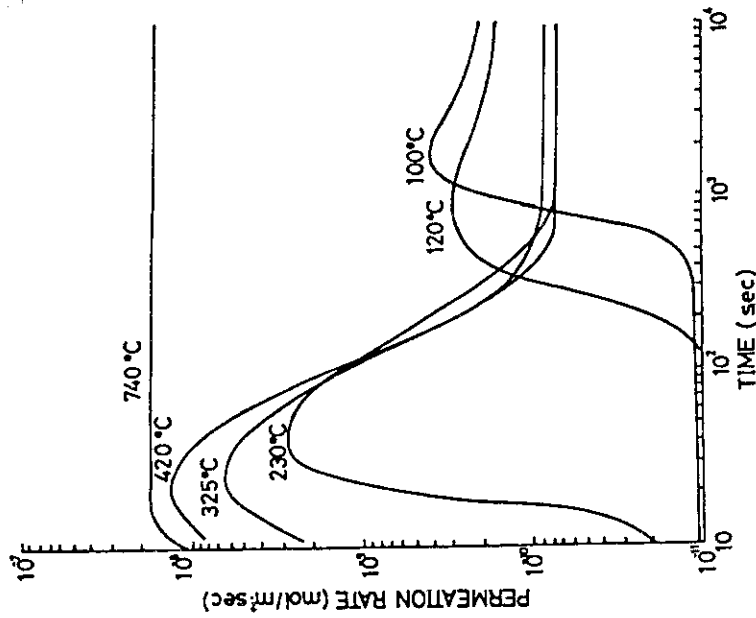


Fig. 18 20keV^{D+}イオンを0.1mmのNiに照射した時の透過速度の経時変化

5. 黒鉛からの水素の再放出の同位体効果

名古屋大学工学部 森田 健治

1. はじめに

多くのトカマク型核融合実験装置では壁材料に低Zの炭素系材料を使用することにより、プラズマ閉じ込め特性が改善され、三大トカマク装置では臨界条件の達成が近いと予測されている。しかしながら、放電時間が長くなるに伴い、黒鉛壁材内に放電中に捕捉蓄積された水素がプラズマ加熱時に大量に再放出され、プラズマ特性の制御が不可能になることがクローズ・アップしている。これをさけるため、主放電前の壁内の捕捉水素の除去および壁表面の清浄化のため、ヘリウム放電による壁のコンディショニングが行なわれている。プラズマの高閉じ込め技術の確立には、放電洗浄後の壁材内の水素の残留量および主放電時の水素の蓄積量を予測し、水素リサイクリングを制御する必要がある。その評価・予測のためには、炉壁材内の水素同位体の動的挙動を微視的に素過程に分解して理解し、それを記述するためのモデリングを確立し、各素過程の物理パラメータを決定することが不可欠である。

他方、最近JETでは、D-T放電が行なわれ2MJの核融合反応エネルギーの放出が確認された¹⁾。今後D-T燃焼における自己点火条件を確立していくためには、DおよびTが同時に壁材内に存在する時のそれぞれのリサイクリング率を予測・制御する必要がある。そのためにはトリチウムの挙動を記述するための各素過程の物理パラメータが必要である。このTに関するデータを得る方法の一つは、HおよびDのデータから同位体効果を基にして、外挿することである。しかしながらH、DおよびTの炉壁内における捕捉および再放出挙動を系統的に調べた例は殆どない²⁾。本稿では筆者らのグループがこれまでに調べてきた黒鉛からのHおよびDのイオン衝撃再放出および等温加熱再放出の結果とそれらの同位体効果について述べる^{3) 4) 5)}。次章ではまずD-T放電におけるDおよびTのリサイクリングを記述する動的挙動のモデルを述べる。

2. D-T放電における水素リサイクリングのモデルリング

D-T放電における水素リサイクリングを記述するモデルは、実験室でこれまで調べられてきた水素挙動を記述するモデルと本質的に同じであることが望ましい。

従って、ここでは単色エネルギーの水素イオン注入による水素の捕捉挙動および注入後の水素の再放出挙動の記述に成功しているモデルを基にする。このモデルには拡散、捕獲、イオン衝撃および熱的脱捕獲、局所的な水素の再結合およびスパッタリングによる表面の後退が含まれている⁶⁾。炉壁材料内におけるDおよびTを動き得る状態と動き得ない捕獲状態の2つに分け、それぞれの濃度を $n^D(z, t)$ 、 $n^T(z, t)$ 、 $n_p^D(z, t)$ および $n_p^T(z, t)$ とすると、D-T放電中のこれらの濃度の時

間変化は次の質量平衡方程式で表わされる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial n^T(z, t)}{\partial t} = & D^T \frac{\partial^2 n^T(z, t)}{\partial z^2} + (V^T + V^D) \frac{\partial n^T(z, t)}{\partial z} + f^T(z, t) \phi_{in}^T(t) - n^T(z, t) k_c^T \\ & - n^T(z, t) \Sigma_t^T (C_0 - n_t^T(z, t) - n_t^D(z, t)) \\ & + (\sigma_d^{T-T} \phi_{in}^T + \sigma_d^{D-T} \phi_{in}^D + \Sigma_d^T) - n_t^T(z, t) \\ & - n^T(z, t) (K^{T-T} n_t^T(z, t) + K^{T-D} n_t^D(z, t)) \\ & - n^T(z, t) (2K_1^{T-T} n^T(z, t) + K_1^{T-D} n^D(z, t)) \dots\dots\dots (1) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial n_t^T(z, t)}{\partial t} = & (V^T + V^D) \frac{\partial n_t^T(z, t)}{\partial z} \\ & + n^T(z, t) \Sigma_t^T (C_0 - n_t^T(z, t) - n_t^D(z, t)) \\ & - (\sigma_d^{T-T} \phi_{in}^T + \sigma_d^{D-T} \phi_{in}^D) n_t^T(z, t) \\ & - n_t^T(z, t) (K^{T-T} n^T(z, t) + K^{D-T} n^D(z, t)) \dots\dots\dots (2) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial n^D(z, t)}{\partial t} = & D^D \frac{\partial^2 n^D(z, t)}{\partial z^2} + (V^D + V^T) \frac{\partial n^D(z, t)}{\partial z} + f^D(z, t) \phi_{in}^D(t) - n^D(z, t) k_c^D \\ & - n^D(z, t) \Sigma_t^D (C_0 - n_t^D(z, t) - n_t^T(z, t)) \\ & + (\sigma_d^{T-D} \phi_{in}^T + \sigma_d^{D-D} \phi_{in}^D + \Sigma_d^D) - n_t^D(z, t) \\ & - n^D(z, t) (K^{D-T} n_t^T(z, t) + K^{D-D} n_t^D(z, t)) \\ & - n^D(z, t) (K_1^{D-T} n^T(z, t) + 2K_1^{D-D} n^D(z, t)) \dots\dots\dots (3) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial n_t^D(z, t)}{\partial t} = & (V^D + V^T) \frac{\partial n_t^D(z, t)}{\partial z} \\ & + n^D(z, t) \Sigma_t^D (C_0 - n_t^D(z, t) - n_t^T(z, t)) \\ & - (\sigma_d^{T-D} \phi_{in}^T + \sigma_d^{D-D} \phi_{in}^D + \Sigma_d^D) n_t^D(z, t) \\ & - n_t^D(z, t) (K^{T-D} n^T(z, t) + K^{D-D} n^D(z, t)) \dots\dots\dots (4) \end{aligned}$$

ここで、 C_0 は水素の捕獲座密度であり、Tはトリチウム、Dは重水素を表わす。 V^i はi粒子衝撃による表面の後退速度、 ϕ_{in}^i はi粒子の流入フラックス、 $f_{(z,t)}^i$ はi粒子の時刻tにおける飛程分布、 Σ_j^i はi粒子に対する捕獲係数 σ_d^{i-j} はi粒子衝撃によるj粒子の脱捕獲断面積、 Σ_d^i はi粒子の熱的脱捕獲係数、 K^{i-j} は動き得るi粒子と捕獲j粒子との局所的再結合係数、 K_1^{i-j} は動き得るi粒子と動き得るj粒子の局所的再結合係数、 k_c^i は炭化水素分子形成確率である。

他方炉壁からの流出(再放出)フラックス ϕ_{out} は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} \phi_{out} = & \sum_{D,T} \int_0^\infty [2K_1^{i-i} \{n^i(z, t)\}^2 + K_1^{i-i} n^i(z, t) n^j(z, t) \\ & \int_1^\infty + 2K^{i-i} n_t^i(z, t) n^i(z, t) + K^{i-j} n_t^i(z, t) n^j(z, t)] dz + \sum_{Z,T} \int_0^\infty n^i(z, t) k_c^i dz \dots\dots\dots (5) \end{aligned}$$

上述の質量平衡方程式は多くの物理パラメータを含み、一見きわめて複雑に見える。しかし捕獲係数および局所的再結合係数は、拡散律速反応モデルに基づく共通項を含み単純化される。例えば捕獲係数 Σ_i^j は $\Sigma_i^j = 4\pi r_i^j D_i^j \xi_i^j$ で表わされる。ここで D_i^j は*i*粒子の拡散係数、 r_i^j は*i*粒子に対する実効的な捕獲半径、および ξ_i^j は*i*粒子の捕獲率である。又動き得る*i*粒子と捕獲*j*粒子との局所的再結合係数は K_i^{j-1} は $K_i^{j-1} = 4\pi r_i^j D_i^j \eta_i^{j-1}$ で表わされる。ここで r_i^j は*i*粒子の実効的な再結合半径、 η_i^{j-1} は*i*粒子*j*粒子の分子形成確率である。更に動き得る*i*粒子と動きも得る*j*粒子との局所的再結合係数 K_j^{i-1} は $K_j^{i-1} = 4\pi \bar{r}_i^{j-1} \bar{D}_i^{j-1} \bar{\eta}_i^{j-1}$ で表わされる。ここで \bar{r}_i^{j-1} は実効的な再結合半径で、*i*粒子と*j*粒子の単位時間当りの拡散距離の平均値、 \bar{D}_i^{j-1} は*i*粒子と*j*粒子の拡散係数の平均値、 $\bar{\eta}_i^{j-1}$ は*i*粒子と*j*粒子の分子形成確率である。この様な表現に基づくと、各素過程に対するHおよびDの物理パラメータとその同位体効果からTの物理パラメータを外挿できることがわかる。

以下の章において単一の粒子を用いて、これまで求めてきた物理パラメータについて述べ、それらを比較することにより同位体効果について考察する。

3. 黒鉛からの水素の再放出特性

前述の質量平衡方程式中の物理パラメータは、これまで単一水素のイオン注入による捕捉・蓄積挙動および注入後の再放出挙動の測定から決定されてきた。まず捕捉挙動測定から決定された、物理パラメータのうち最も重要な拡散について簡単に述べ、引き続き主題である再放出測定の結果を述べる。

定常状態における濃度分布のイオン束依存のデータ解析から決定された拡散係数の結果をFig. 1に、同時に決定された動き得る水素と捕獲水素との局所的再結合係数Kと共に示す³⁾。この図から黒鉛内の軽水素Hの拡散の活性化エネルギーは0.20eVと決定された。又再結合係数Kの活性化エネルギーは0.25eVと決定された。2つの反応係数の活性化エネルギーがきわめて近いことは、前述の局所的な再結合係数の表現が妥当であることを示している。

3-1 イオン衝撃用再放出特性の理論式

式(1)から(4)の質量平衡方程式を単一の粒子に対して適用し、且つイオン注入後のイオン衝撃再放出を予測する⁴⁾。加熱再放出の生じない温度におけるイオン衝撃再放出による捕獲水素濃度の減衰の理論式は、炭化水素分子放出を無視し、再放出が動き得る水素間の局所的再結合により生じるとした場合、次式で表わされる。

$$\frac{C_o}{n_o} \left(1 - \frac{1}{N_i(t)} \right) - 2 \ln N_i(t) + \frac{n_o}{C_o} (N_i(t) - 1) = - \frac{2K_1}{C_o} \left(\frac{\sigma_d \phi}{\Sigma_t} \right)_t^2 \dots \dots \dots (6)$$

ここで、 $N_i(t)$ は捕獲水素の初期濃度 n_o で規格化した濃度である。再放出が動き得る水素と捕獲水素との局所的再結合により生じる場合の捕獲水素濃度の減衰式は次の式(7)で表わされる。

$$\frac{C_o}{n_o} \left(1 - \frac{1}{N_t(t)} \right) - (1 - K/\Sigma_t) \ln N_t(t) = -2K \left(\frac{\sigma_a \phi}{\Sigma_t} \right) t \quad \dots\dots\dots (7)$$

式(6)および(7)から、2つの捕獲水素濃度の減衰式は、捕獲水素の初期濃度に依存し、又再放出 K_1 に生じる場合衝撃イオンのフラックスの2乗に、更に再放出が K により生じる場合衝撃イオンのフラックスに比例するのがわかる。後者のフラックス依存は再放出の機構の決定に役立つ。

3-2 イオン衝撃再放出特性の実験データ

3 keV H_2^+ イオンビームあるいは3 keV D_2^+ イオンビーム照射により室温から250 °Cまでの温度において等方性黒鉛(IG110U)に飽和注入された軽水素あるいは重水素の1.5MeV H_e^+ 衝撃による再放出特性を調べた。室温にて飽和注入し、室温にて1.5MeV H_e^+ 衝撃により再放出させた軽水素Hおよび重水素Dの減衰曲線をFig. 2に示す⁴⁾。図2から○の重水素の減衰は●の軽水素の減衰よりも遅いのがよくわかる。この2つの減衰曲線の相異はいわゆるイオン衝撃再放出における同位体差である。これらの減衰曲線を式(6)および式(7)の理論式を用いて解析した。その結果、両減衰曲線は、再放出が動き得る水素と捕獲水素との局所的再結合により生じる場合の式(7)で最も良く再現されることが判明した。その時の最適曲線を図2に実線で示す。又その際決定された物理パラメータ Σ_t/K は10以上で、 $\sigma_a K/\Sigma_t$ はHおよびDに対してそれぞれ $2.9 \times 10^{-18} \text{cm}^2$ および $7.7 \times 10^{-19} \text{cm}^2$ であった。図2から実験データが式(7)の理論式できわめてよく再現されているのがわかる。このことからイオン衝撃放出は、動き得る水素と捕獲水素との局所的再結合により生じると結論される。

他の異なる温度で飽和注入し、その温度でイオン衝撃再放出を測定した。これらのデータも式(7)で解析し、物理パラメータ $\sigma_a K/\Sigma_t$ を決定した。それらの結果を温度の関数としてFig. 3にまとめた⁴⁾。Fig. 3から $\sigma_a K/\Sigma_t$ は殆ど温度に依存しないことがわかる。図3からHおよびDに対する $\sigma_a K/\Sigma_t$ はそれぞれ $2.9 \times 10^{-18} \text{cm}^2$ および $7.7 \times 10^{-19} \text{cm}^2$ と決定された。

3-3 等温加熱再放出特性の実験データ

3 keV H_2^+ イオンビームあるいは3 keV D_2^+ イオンビームの照射により室温において等方性黒鉛IG110Uに飽和注入された軽水素あるいは重水素の等温加熱再放出を450, 500, 550および600°Cにおいて測定した。その場合の捕獲水素濃度の加熱時間依存をFig. 4aおよび4bに示す⁵⁾。Fig. 4aのHの減衰が図4bのDの減衰よりもどの温度においても速いのがわかる。この相異は等温加熱再放出における同位体差である。これらの減衰曲線も又式(6)および式(7)を用いて解析した。その場合 $\sigma_a \phi$ を Σ_a で置き換えた。解析の結果、式(7)ではFig. 4の実験データは再現できず、式(6)でよく再現されることが判明した。等温加熱の場合水素はメタンのような炭化水素分子としても再放出されるので、データ解析ではこのことも考慮された。昇温脱離の実験からメタンとして放出される水素の量は、全体の数%であることが知られている。又化学スパッタリングの実験からその他の炭化水素分子の全放出量はメタンの放出量とほぼ同程度であると推定される。しかし、その放出過程は未だ明らかでないので、炭化水素放出の分枝パラメータを考慮に入れた。データ解析における最適曲線を実線で、又炭

炭化水素放出の分枝パラメータを δ で Fig. 4 に示した。解析により得られた物理パラメータ (K_1/C_0) $(\Sigma_a/\Sigma_1)^2$ を温度の関数として Fig. 5 に示した⁵⁾。更に Fig. 4 の減衰曲線の初期勾配から決定された Σ_a の値を Fig. 6 に示した⁵⁾。Fig. 4 から実験データが式(6)できわめてよく再現されており、又炭化水素放出の分枝パラメータは温度と共に20%まで増加していて昇温脱離のデータと不盾しないことがわかる。これらの事実は等温加熱再放出は動き得る水素間の局所的再結合により生じると結論される。また図5からHおよびDに対する $(K_1/C_0)(\Sigma_a/\Sigma_1)^2$ の活性化エネルギーは1.20eVであり、その絶対値の比は2.5であることが判明した。この物理パラメータの同位体差が Fig. 4 の再放出曲線の同位体差の要因となっている。他方 Fig. 6 からHおよびDの熱的脱捕獲係数 Σ_a の活性化エネルギーが0.60eVであり、その絶対値の比が1.40であることが判明した。この場合の Σ_a の同位体差は質量効果で説明される。又 Fig. 5 の結果と Fig. 6 の結果から、物理パラメータ $(K_1/C_0)(\Sigma_a/\Sigma_1)^2$ の活性化エネルギーは Σ_a から生じていることおよび $K_1/\Sigma_1^2 C_0$ は温度に依存しないことがわかる。

3-4 水素の再放出の同位体効果

前述のイオン衝撃および等温加熱による再放出データの解析から求めた物理パラメータ $\sigma_a K/\Sigma_1$ および $(K_1/C_0)(\Sigma_a/\Sigma_1)^2$ の同位体差を各素過程の同位体差に基づいて考察する。まず $\sigma_a K/\Sigma_1$ について考える⁴⁾。捕獲水素濃度の減衰曲線から直接 σ_a を決定できないので、 σ_a を理論計算した。その結果を Table I に示す。イオン衝撃による水素の脱捕獲は、1.5MeV H_0^+ イオンの形成するカスケード衝突により生成された反跳炭素原子が捕獲水素をはじき出すことにより生じると仮定した。数値計算では捕獲水素および炭素原子のはじき出しのしきいエネルギーはそれぞれ20eVおよび25eVであると仮定した。Table I から σ_a の同位体比は1.2程度であるので、イオン衝撃による同位体差は、 K/Σ_1 の同位体差つまり動的挙動に基因することがわかる。水素の捕獲および再結合が前述の様に拡散律速であると仮定すると、その反応係数は $\Sigma_1^1 = 4\pi r_1^1 D_1^1 \xi_1^1$ および $K_1^1 = 4\pi r_1^1 D_1^1 \xi_1^1$ で表わされる。水素の捕獲は炭素原子との結合を意味するので、 r_1^1 および ξ_1^1 の値はHおよびDに対して同位体差を生じないが、 r_1^1 および η_1^1 は水素の格子振動の振幅や振動数に比例するもので、それらの値は共に $1/\sqrt{M}$ に比例する。この場合 K/Σ_1 のHに対するDの同位体差は $1/2$ となり0.31の実験よりかなり大きい。前述の K_1^1 および D_1^1 の実験値と $r_1^1 = r_1^1$ の仮定から評価したHに対する ξ_1^1 の値は室温において1.7であるので、Hに対する捕獲率 $\Sigma_1^1 C_0$ は $3.2S^{-1}$ と計算される。ここで $C_0 = 4.0 \times 10^{22}/cm^3$ である。又Dに対する捕獲率は拡散係数の同位体差から $1.2S^{-1}$ と計算される。しかしながら、これらの捕獲率は質量平衡方程式では $1S^{-1}$ 以下でなければならない。このことは Σ_1^1 には同位体差はないことを意味しているので、 K/Σ_1 の同位体差はKの同位体差にのみ生じると考えられる。この場合、 $\sigma_a K/\Sigma_1$ のHに対するDの同位体比は $1/M^{3/2}$ となり、その値は実験値にきわめて近い。

次に等温加熱再放出の同位体差について考察する⁵⁾。動き得る水素間の局所的再結合係数は拡散律速過程に基づくと、 $K_1^1 = 4\pi r_{1r}^1 D_1^1 \eta_1^1$ で表わされる。動き得る水素の実効的再結合半径 r_{1r} は単位時間当りの拡散距離で表わされ $1/M^{1/4}$ に比例する。又 η_1^1 は格子振動の振動数つまり1

$1/M^{1/2}$ に比例する。この事実に基づくと $(K_1/Co)(\Sigma_d/\Sigma_i)^2$ は $1/M^{1/4}$ に比例し、 $(K_1/Co)(\Sigma_d/\Sigma_i)^2$ のDに対するHの同位体比は $M^{5/4}$ となり、実験値の2.5とよく一致する。

4. まとめ

D-T放電中の黒鉛炉壁材表面におけるDおよびTのリサイクリングを評価・予測する質量平衡方程式を提案した。この質量平衡方程式は、イオンビーム照射によりこれまで調べられてきた単一のHおよびDの動的挙動を記述するモデルと本質的に同じであり、従ってそこに含まれる各素過程の物理パラメータは、イオンビーム照射実験により決定できる。

Tに対する各素過程の物理パラメータをHおよびDに対する物理パラメータとその同位体効果から外挿するため、HおよびDのイオン衝撃および加熱による再放出を系統的に測定し、HおよびDの再放出の減衰曲線データの解析から各素過程の物理パラメータを決定した。実験で観測されたHおよびDの再放出における同位体差は、各素過程の同位体差で合理的に説明できることが判明した。これらの事実は、Tに対する再放出が、HおよびDに対する物理パラメータとそれらの同位体効果で予測できることを示している。

今後は、D-T放電実験前に、まずH-D放電の模擬計算を行い、その結果が実験結果をどの程度説明するかを調べるのが重要であると考えられる。

参考文献

- 1) P. E. Stott and the JET Team, Proc. 10th Int. Conf on Plasma Surface Interactions (Monterey, 1992) to be published.
- 2) K. Ashida, K. Ichimura, M. Matsuyama and K. Watanabe J. Nucl. Mater. 128/129, 792 (1984).
- 3) K. Morita and Y. Hasebe, J. Nucl. Mater. 176/177, 213 (1990).
- 4) Y. Hasebe, M. Sonoda and K. Morita, J. Nucl. Sci. & Technol., 29, 851 (1992).
- 5) K. Morita and Y. Muto, J. Nucl. Mater. in print (1992).
- 6) Y. Muto and K. Morita, J. Nucl. Sci. & Technol, to be published.

Table I The theoretical detrapping cross-sections for H, D and T atoms trapped in graphite of 1.5 MeV He⁺ ion $\sigma_{d, \text{theor.}}$, the effective detrapping cross-sections $\sigma_d K/\Sigma_T$, the estimated ratios of K/Σ_T and their isotope ratios.

| Hydrogen Isotope | $\sigma_{d, \text{theor.}}$ (10^{-17} cm^2) | isotope ratio | $\sigma_d K/\Sigma_T$ exp. (10^{-18} cm^2) | K/Σ_T exp. | K/Σ_T exp. | (isotope ratio) theor. |
|------------------|--|---------------|---|----------------------|----------------------|---------------------------|
| H | 2.8 | 1 | 2.9 | 0.10 | 1.0 | 1.0 |
| D | 2.5 | 0.89 | 0.77 | 0.031 | 0.31 | $1/2\sqrt{2}$ |
| T | 2.1 | 0.75 | 0.41 ^{a)} | 0.019 ^{a)} | --- | $1/3\sqrt{3}$ |

a) The values were extrapolated from $K/\Sigma_T=0.1$ for H using the isotope ratio of K/Σ_T for T.

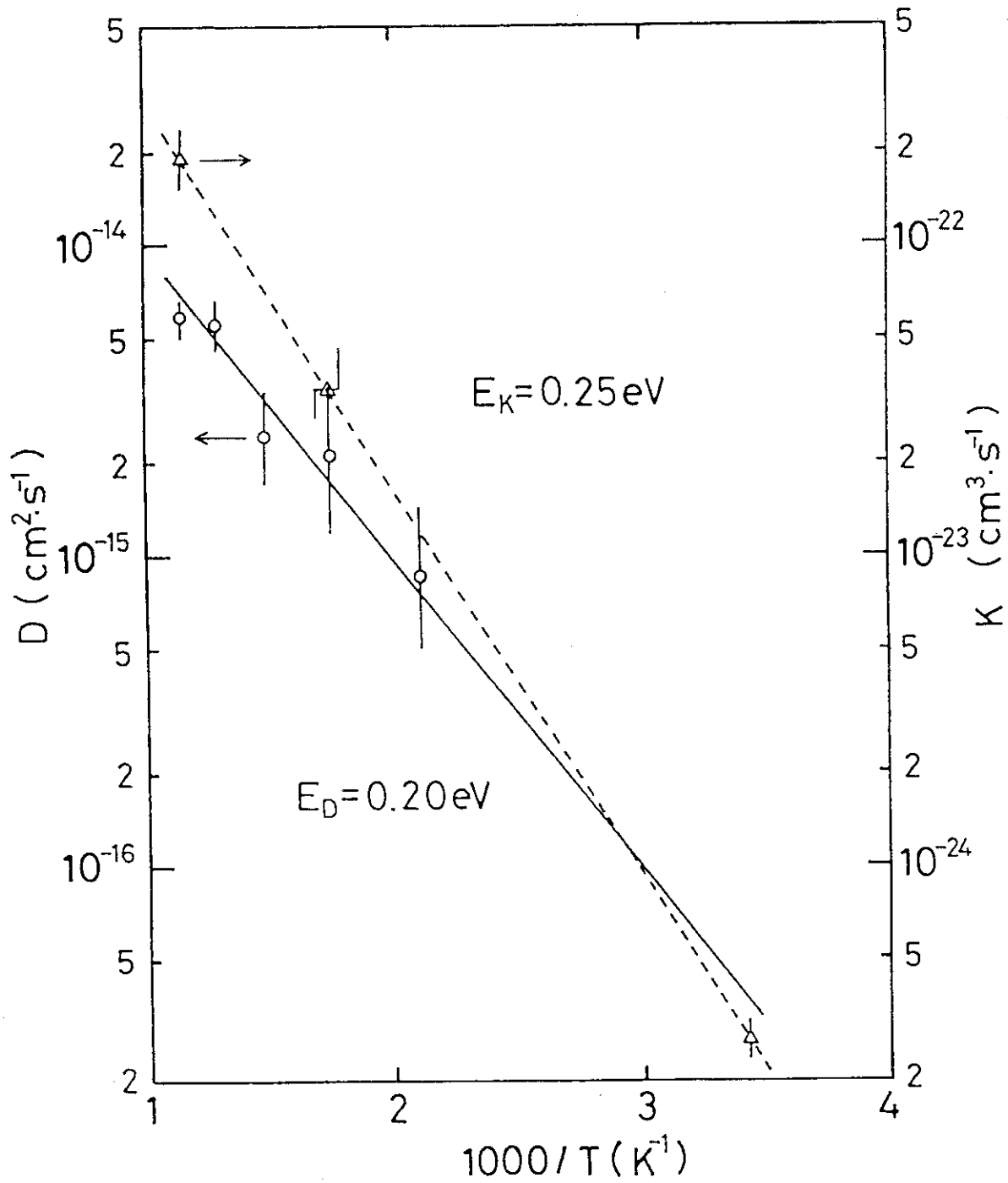


Fig. 1 The Temperature dependence of the rate constants of molecular recombination of an activated hydrogen atom and a trapped one and the diffusion constants

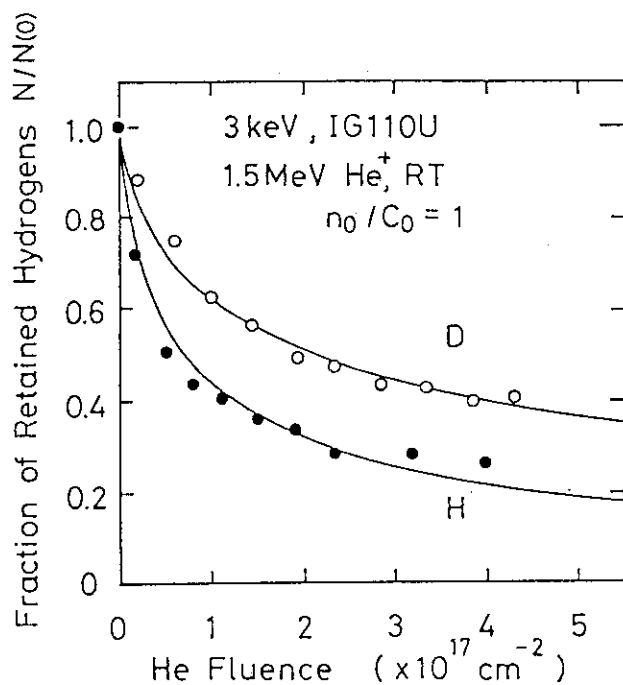


Fig. 2 The decay curves of retained protiums and deuteriums in graphite induced by 1.5 MeV He⁺ ion bombardment at room temperature. Hydrogen implantation was done with H₂⁺ and D₂⁺ ion beam at 3 keV up to saturation (n₀/c₀=1). The solid lines represent the best fitting

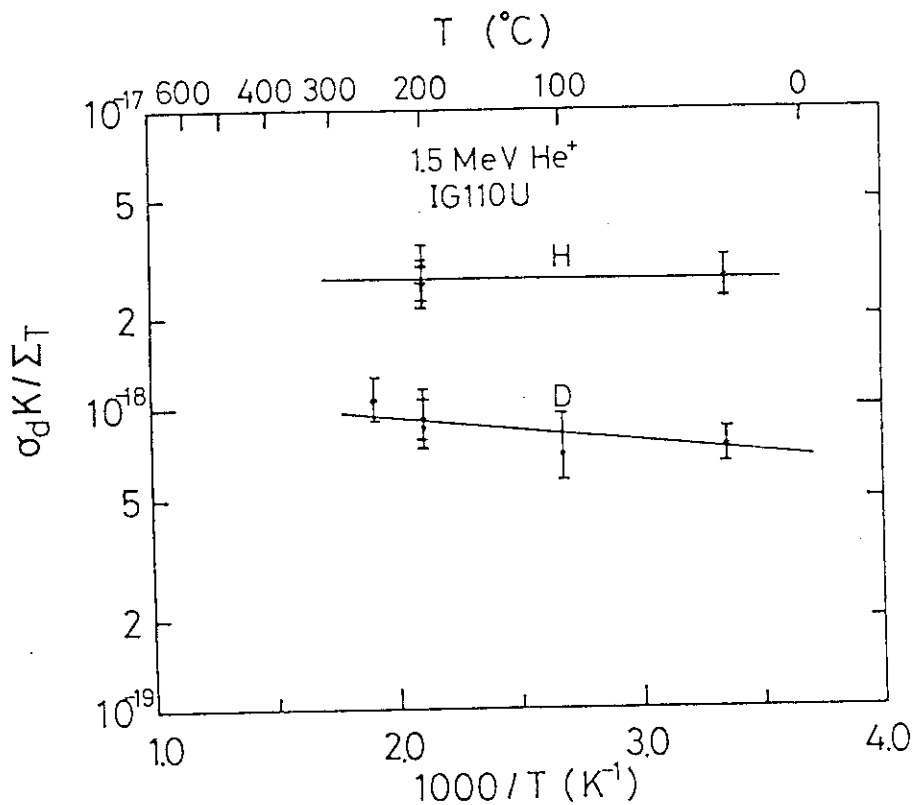


Fig. 3 Arrhenius plot of the effective detrapping cross-sections $\sigma_d K / \Sigma_T$ for protiums and deuteriums trapped in graphite as a function of $1000/T$

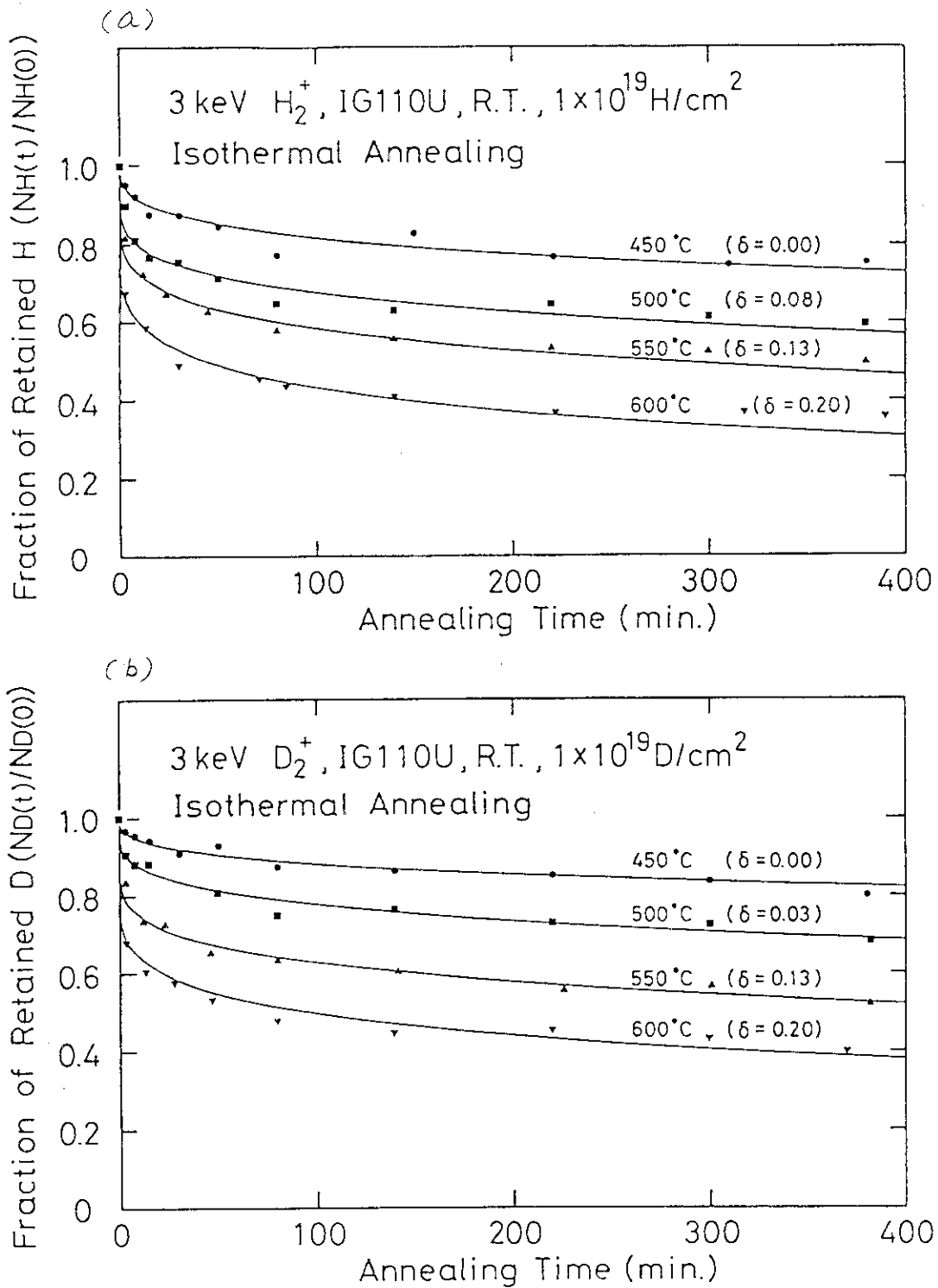


Fig. 4 Re-emission profiles of protiums (a) and deuteriums (b) from graphite, implanted up to saturation at room temperature, due to isothermal annealing at temperatures of 450 (●), 500 (■), 550 (▲) and 600 °C (▼), where solid lines represent the best fitting curves calculated using eq. (4) and the branching factor δ described.

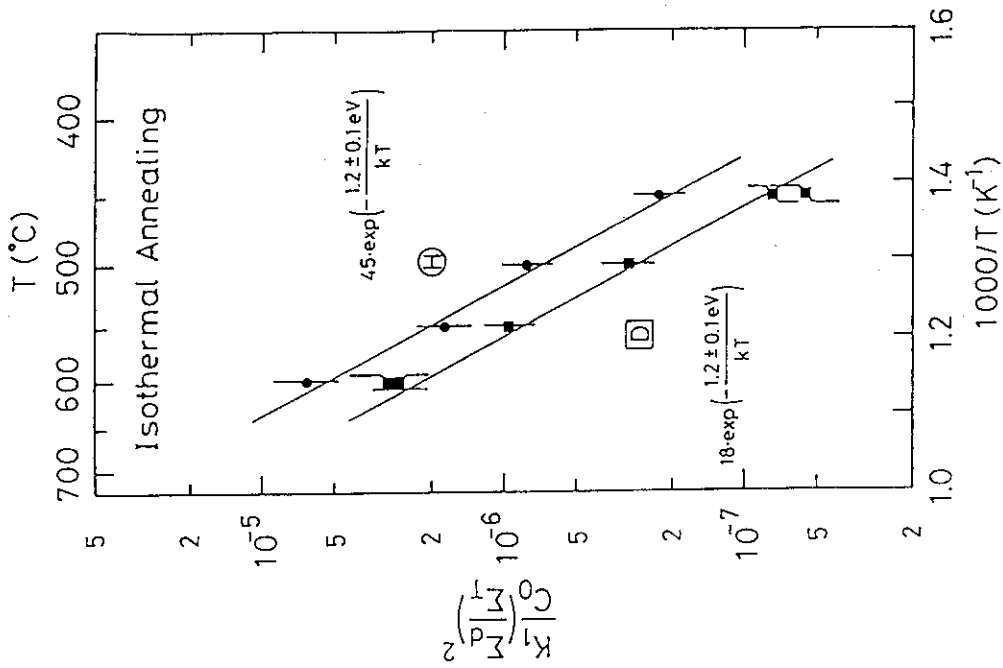


Fig. 5 Arrhenius plot of the experimental values of the effective recombination rate constant $(K_1/C_0) (\Sigma_d/\Sigma_T)^2$ for H and D vs $1000/T$.

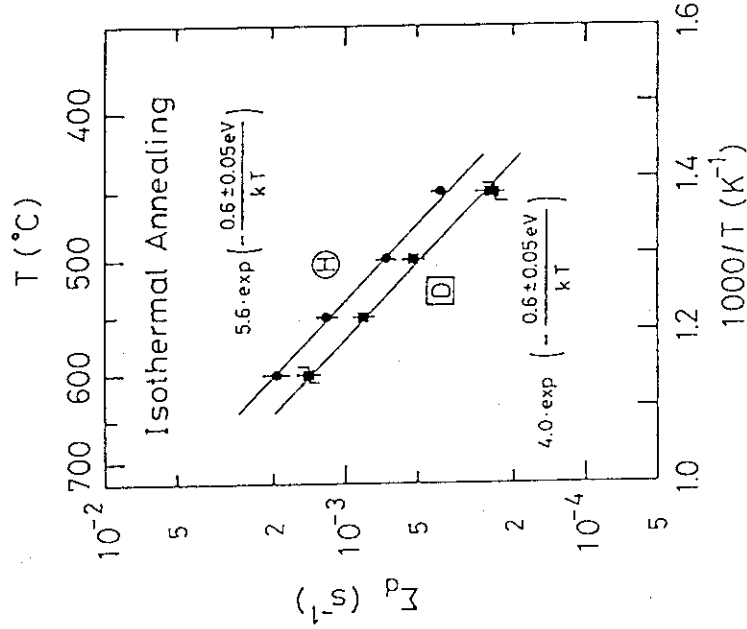


Fig. 6 Arrhenius plot of the experimental values of Σ_a for H and D vs $1000/T$.

6. 炭素表面からのCO放出

同志社大学・工学部 和田 元

1. 序 論

今日核融合実験装置の壁材料として炭素が一般的に用いられているが、炭素材は多孔質であり、水素や酸素などを吸着し易く、これら吸着ガスのリサイクリングがプラズマの閉じ込めに影響を与える。このうち、水素については炭素中の水素吸蔵量、炭素中の水素の拡散係数、化学スパッタリングによる炭化水素放出量などの基礎データが比較的良く整理されている。¹⁾ もう一つの吸着物である酸素は、一度プラズマ中に混入するとCO生成により炭素材を損耗しつつ、²⁾ 放電の運転状況に依存して複雑なサイクリングをすることが報告されている。³⁾ 酸素は水素プラズマ中では炭素と共に重要な不純物であるが、炭素不純物と酸素不純物の相関が複雑に変化する場合がある。JT60のリミターモードにおいて加熱入力が大ききとき、酸素不純物のプラズマ中への混入が炭素不純物の増大にもかかわらず、ある時点から減少することが Nishinoらにより観測された。⁴⁾ 周辺プラズマ中に多く存在する炭素によって壁が被われ、表面の吸着酸素が埋められることにより⁵⁾、酸素のプラズマへの流入が減少したことが酸素不純減少の原因となった可能性もあるが、純粋に炭素材からのCO放出の温度特性が原因である可能性もある。

炭素材からの酸素系不純物の放出については、 H_2O やCOなどの昇温脱離スペクトルの調査が行われており、^{6) 7)} Vietzkeらによる酸素供給状態での Ar^+ 照射時の炭素材表面からのCO量測定⁸⁾、Hechtらによる O^+ 衝撃時のCO放出量測定⁹⁾ などのビーム照射脱離のデータと併せて核融合実験装置における酸素不純物挙動を説明するうえで必要となるデータが整えられつつある。炭素材からの主な酸素放出機構は中間形態として水を経由する可能性もあるが、COを経由したりサイクリングが重要と考えられている。¹⁰⁾ ここでは水素プラズマを照射した際に炭素表面付近のプラズマから見られるCO線のスペクトル強度の時間変化と、酸素分圧の比較的低い (10^{-8} Torr以下) 状態での、炭素表面上に吸着した酸素が、昇温脱離、ビーム衝撃脱離の各過程でCOとして放出される場合の昇温速度に対する変化を調査した結果について述べる。

2. プラズマ照射によるCO放出特性の観測

実験に用いた炭素材はKoch Chemical社製EDA-105である。はじめにこの炭素材に水素プラズマを照射した際に、JT-60 のダイバータモードで観測されたような酸素不純物減少に応じたCO量の変化が見られるかを調べた。炭素材を水素プラズマに対して $-500V$ にバイアスし、 $0.5A/cm^2$ のイオン電流密度が炭素材に流入するときに、炭素材表面付近に発生するプラズマからのCO IIラインとH β ラインのスペクトル強度を比較した結果をFig. 1に示す。水素プラズマ密度に対応するH β ラインは

放電中ほぼ一定であるが、CO II ラインは炭素材の表面温度が約 700°C であるときにピークを持ち、その後温度が増加しても減少する。同様の計測をCH I ライン、C II ラインに対して行なったのが、それぞれFig. 2 およびFig. 3 である。これらの図を比較することにより、CH I 放出の時間依存と、C II 放出の時間依存がほぼ同一であること、CO II 放出は、これら二つのラインスペクトル強度に対して、時間遅れを伴うことなどがわかる。

Fig. 1-3に見られるような温度上昇時の気体放出機構としては第一に昇温脱離が考えられる。実際に活性化エネルギーを 1.3eVとして一次反応モデルによって昇温脱離スペクトルを理論計算するとFig. 1の曲線がほぼ再現できる。しかしながら、-500Vにバイアスされた炭素材表面にはプラズマから飛来し、シースで加速された水素イオンや水素分子イオンが入射してくるため、イオン衝撃脱離による気体放出も考慮する必要がある。特に、現在のトカマク実験装置で観測される不純物挙動の変化は数秒の時定数で生じるものが多い。リミターなど高温プラズマに直接曝される部分などでは、イオン衝撃脱離による不純物放出が昇温脱離による放出を上回る可能性が高いものと考えられる。

3. 活性化エネルギーとイオン衝撃脱離特性の測定

3.1 実験装置

炭素に吸着した炭素放出にかかわる基礎データを得るために用いた実験装置をFig. 4に示す。装置は炭素ターゲットと、炭素材から発生する気体を計測する四重極質量分析器(QMS), および酸素導入系、真空計を有する分析チャンバー部と、イオン衝撃データを得るための質量選択されたビームを発生するイオン源チャンバー部により構成される。二つのチャンバー間にはメタルシール製のストレートバルブがあり、分析チャンバー内の炭素ターゲットをベークアウトする間これを閉じることにより、イオン源チャンバー内の残留ガスが分析チャンバーへ流入することを防いでいる。バルブを閉じた状態で、ベークアウト後の各部の真空度はイオン源チャンバー部で 2×10^{-7} Torr, 分析チャンバー部で 2×10^{-10} Torr である。

3.2 活性化エネルギーの測定

炭素から酸素がCOの形で放出される際の活性化エネルギーを求めるため、ストレートバルブを閉じて、分析チャンバー部のみを使用して測定を行なった。また、炭素ターゲットが大きいと昇温速度をあまり大きくできなかったため、炭素ターゲットを直径3mm×10mm長に整形し、タングステン線ヒータで直接過熱した。

炭素材をベーク(800°C×10min)後、400°Cまで降温し、酸素を 10^{-7} Torrまで供給した状態で室温まで降温し(約30min)、酸素を表面に吸着させた。その後酸素の供給を止めて、計算機を用いた自動制御により一定の昇温率で950°Cまで昇温し、このときにQMSより得られるCO量の信号を記録した。得られた昇温脱離スペクトルの例をFig. 5に示す。図に示すように昇温率 β を増加するにしたがって、昇温脱離スペクトルはシャープになり、ピーク温度が高温側に移動することが分かる。

昇温脱離スペクトルがピークを示す温度を T_m とし、活性化エネルギーを求めるため、 $2 \times \log(T_m) - \log(\beta)$ を縦軸に、 $1/T_m$ を横軸にプロットした結果を Fig. 6 に示す。図よりプロットに折れ曲がりが見られ、Fig. 6 のプロットが一本の直線で表されるとして、 β が $1.0^\circ\text{C}/\text{sec}$ から $30^\circ\text{C}/\text{sec}$ の範囲での平均の活性化エネルギーを求めた結果 $1.6 \pm 0.3\text{eV}$ 、これに対応する脱離周波数として $1.4 \times 10^8 \text{ Hz}$ を得た。この活性化エネルギーの値は Olander らが報告している値よりも大きい。¹¹⁾ これは Olander らの実験においては酸素が定常的に供給され、酸素分圧が高いため、炭素表面が酸素で飽和して結合エネルギーが低い状態での測定になっていたためと考えられる。なお、昇温率が高いデータ 3 点から求めた活性化エネルギーは Olander らの値に非常に近くなる。また、逆に β が低い場合には活性化エネルギーは大きくなり、炭素からの CO 昇温脱離が単純な一段階放出モデルでは説明できないことを示唆する。

3.3 ビーム衝撃脱離による CO 放出

昇温脱離と同様のスケジュールで酸素を炭素ターゲット（直径 15mm）に吸着させた後、ストレートバルブを解放し、ビームを照射した。ビーム照射による発生気体と、昇温脱離などにより発生する気体を分別するため、Fig. 4 に示すような静電偏向板によってビームを 11Hz で振幅変調し、QMS の信号をロックインアンプを通して観測した。

入射ビームとして Ar^+ を用いた場合の結果を Fig. 7 に示す。図より 700°C 以上で CO の放出が小さくなるのが分かる。この CO 放出が減少する温度は、昇温脱離データから求められる、炭素表面から吸着酸素が消滅する温度にほぼ対応している。したがって、 Ar^+ 照射時の吸着酸素の脱離量は炭素表面に付着している酸素密度に比例して変化するものと考えられる。

Fig. 8 は入射ビームとして H_2^+ を用いたときの mass 28 の QMS 信号から求めたビーム衝撃脱離量である。炭素を H_2^+ で衝撃する場合は炭化水素が生成されるため、QMS の mass 28 信号の大部分が CO である保証がない、Fig. 8 の結果を見る限り、ほぼ Ar^+ 入射の場合と同様の温度特性であり、QMS の mass 28 の信号が CO であることを示唆する。mass 28 とし C_2H_4 を測定している可能性があるが、 C_2H_4 の一部は QMS のイオン化部で mass 13, 14, 15, 26, 27 などに分解される。参考のため、Fig. 8 の結果を得た際に測定した mass 27 の QMS 信号を Fig. 9 に示す。放出の温度特性としては 500°C 近辺で緩やかな極大値を持つ曲線が得られ、mass 28 の信号がほぼ 0 となっても mass 27 の信号はあまり 600°C 以下の値と変化のない量が生成されている。このことから、mass 28 の QMS 信号の大きな部分は CO によって構成されているものと考えられる。なお、Fig. 9 の温度特性は Yamada の報告した H_2^+ ビームを炭素に照射した際の C_2H_2 の化学スパッタリングの温度特性データにも類似している。¹²⁾

Fig. 10 は H_2^+ を衝撃して QMS により mass 28 の信号の温度特性を調べる際に昇温率を変えた場合の結果である。図より僅かではあるが、昇温率の増加に伴って mass 28 の信号が減少する温度が増加するのが分かる。このような温度速度と信号の減少の関係は、昇温脱離による表面に吸着した酸素量の減少により説明が可能であることは Ar^+ を照射する場合と同様である。なお、Fig. 10 の温度特性は Fig. 8 に示すものと若干異なっている。（Fig. 8 においては Fig. 10 の場合より CO 放出が減少する手前の温度で、明確な放出量のピークが見られる。）これは実験の履歴や残留ガス、ビームがター

ゲットに当たる位置、および電流密度などの影響を受けて出現するようであるが、現在までのところ原因を究明するに至っていない。ただし、COの2段階生成モデルを用いれば、酸素が表面に供給/吸着される機構がある場合にはFig. 8のようなピークが出現することが理論式より予測される。

4. 結 言

以上の結果より、酸素を吸着した酸素がプラズマに曝されるとき、表面に吸着した酸素の欠乏によりイオン衝撃脱離するCO量は炭素表面温度が約 700°C以上となると減少するものと考えられる。しかしながら、実際の核融合実験装置のリサイクリング過程で、酸素が装置のどの部分で、どのように炭素壁に吸着しているのか、またプラズマはどの部分にどれだけの粒子束で照射されるのか、などを調査しなくてはプラズマ全体で見た場合の酸素不純物挙動を明らかにすることはできないものと思われる。さらに、プラズマ照射実験やビーム衝撃脱離実験において、CO放出データがそれまでの実験の履歴を受けている傾向が見られており、活性化エネルギーの見かけの温度依存性なども合わせて更に詳細な調査が必要と考えられる。

参考文献

- 1) Report JAERI-M 91-050, Japan Atomic Energy Research Institute, Mar. 1991, and references therein.
- 2) C. S. Pitcher, S. J. Fielding, D. H. J. Goodall, G. F. Matthews, G. M. Mckracken and P. C. Stangby, Nucl. Fusion 29, 1919 (1989).
- 3) N. Noda, F. Sano, K. Kondo, T. Mizuuchi, H. Kaneko, O. Motojima, Y. Takeiri, M. Sato, H. Zushi, T. Ohbiki, and A. Iiyoshi, J. Nucl. Mater. 176-177, 268 (1990).
- 4) N. Nishino, H. Kubo, A. Sakasai, Y. Koide, T. Sugie, T. Takeuchi, and the JT-60 Team, J. Nucl. Mater. 162-164, 386-391 (1989).
- 5) A. Pospieszczyk, H. L. Bay et al., J. Nucl. Mater. 145-147, 574 (1987).
- 6) T. Yamashina and T. Hino, J. Nucl. Mater. 162-164, 841 (1989).
- 7) J. Bohdansky, R. A. Causey, C. D. Croessmann, A. E. Pontau and J. B. Whitley, J. Nucl. Mater. 162-164, 861 (1989).
- 8) E. Vietzke, T. Tanabe, V. Philipps, M. Erdweg and K. Flaskamp, J. Nucl. Mater. 145-147, 425 (1987).
- 9) E. Hechtl and J. Bohdansky, J. Nucl. Mater. 141-143, 139, (1986):
E. Hechtl and J. Bohdansky, J. Nucl. Mater. 154, 201 (1988).
- 10) V. Philipps, E. Vietzke, M. Erdweg, K. Flaskamp, A. Pospieszczyk, U. Samm, L. Koenen, J. Winter, G. Bertschinger, E. Hintz, F. Waelbroek and the TEXTOR team, Plasma Phys. and

Contr. Fusion 31, 1685 (1989).

- 11) D.R.Olander, W.Siekhaus, R.Jones and J.A.Schwartz, J. Chem. Phys. 57, 408 (1972).
- 12) R.Yamada, J.Nucl. Mater. 145-147, 359 (1987).

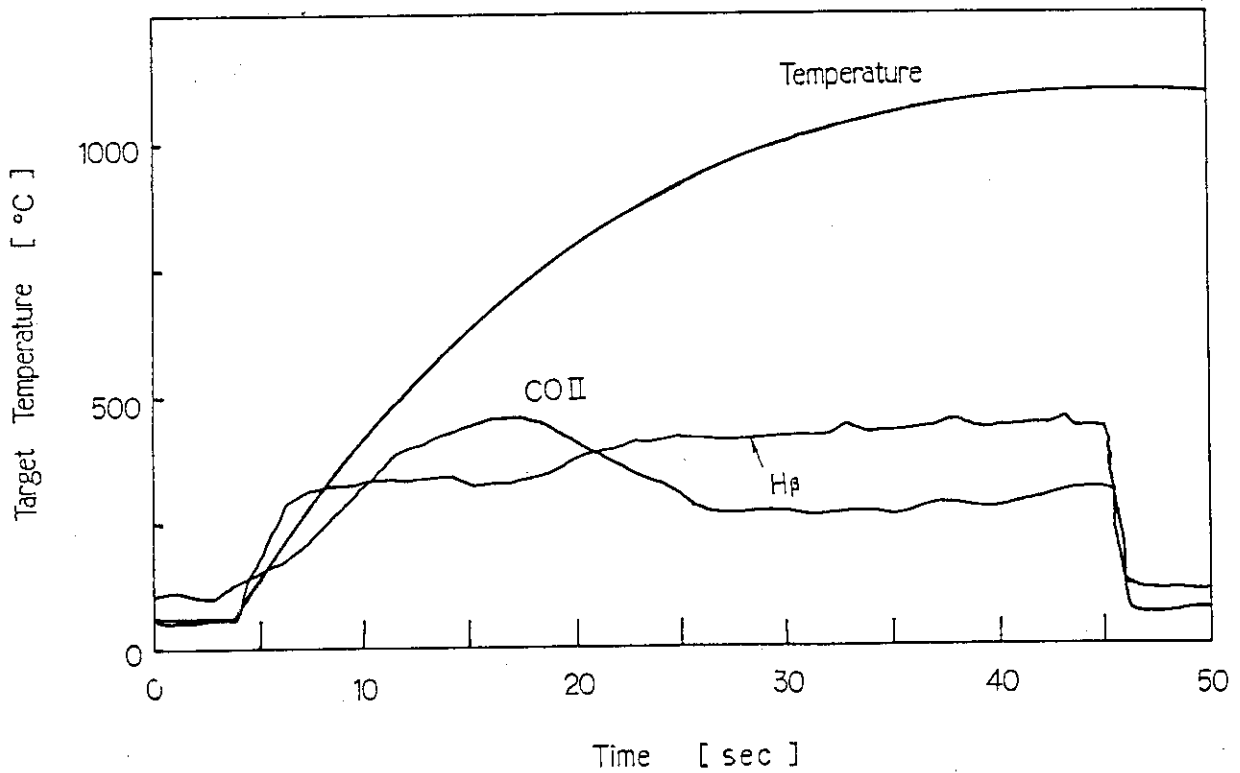


Fig. 1 水素プラズマに対して-500V, にバイアスした炭素ターゲットに飽和イオン電流 (二次電子による電流を含む) $0.5\text{A}/\text{cm}^2$ が流れる場合の炭素ターゲット近傍のプラズマから発生する $\text{H}\beta$, CO II (427.4nm) の各線スペクトル強度と温度の関係。

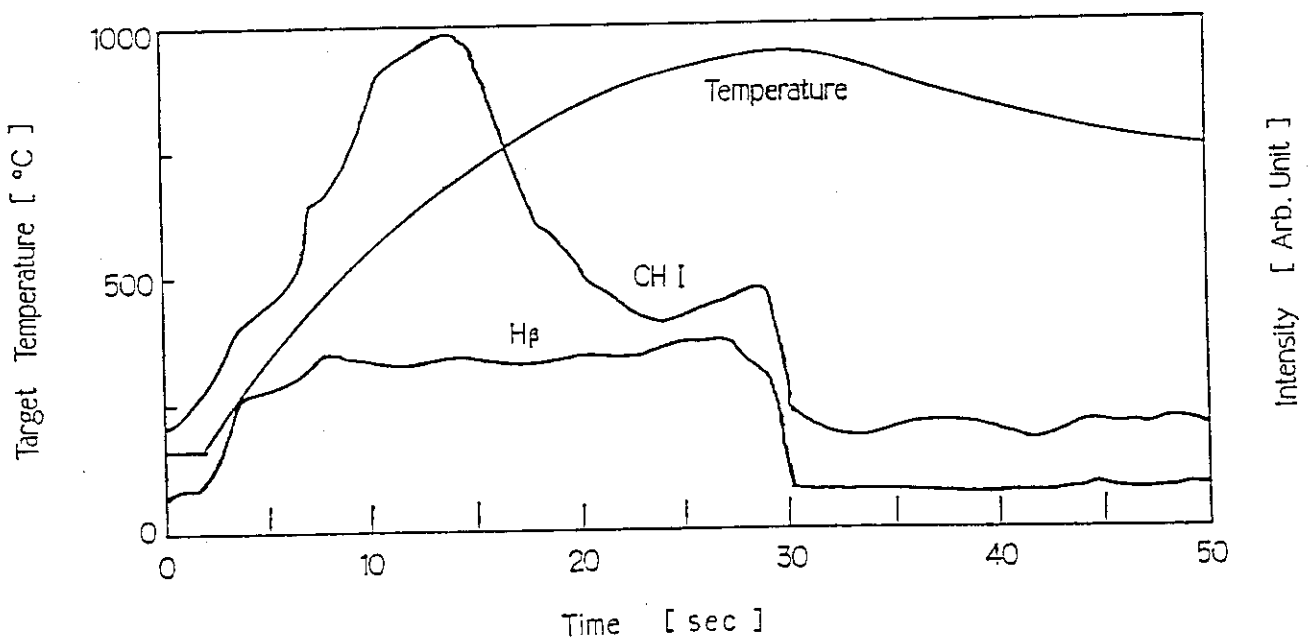


Fig. 2 Fig. 1 と同一条件で CH I (431.2nm) を観測した結果。

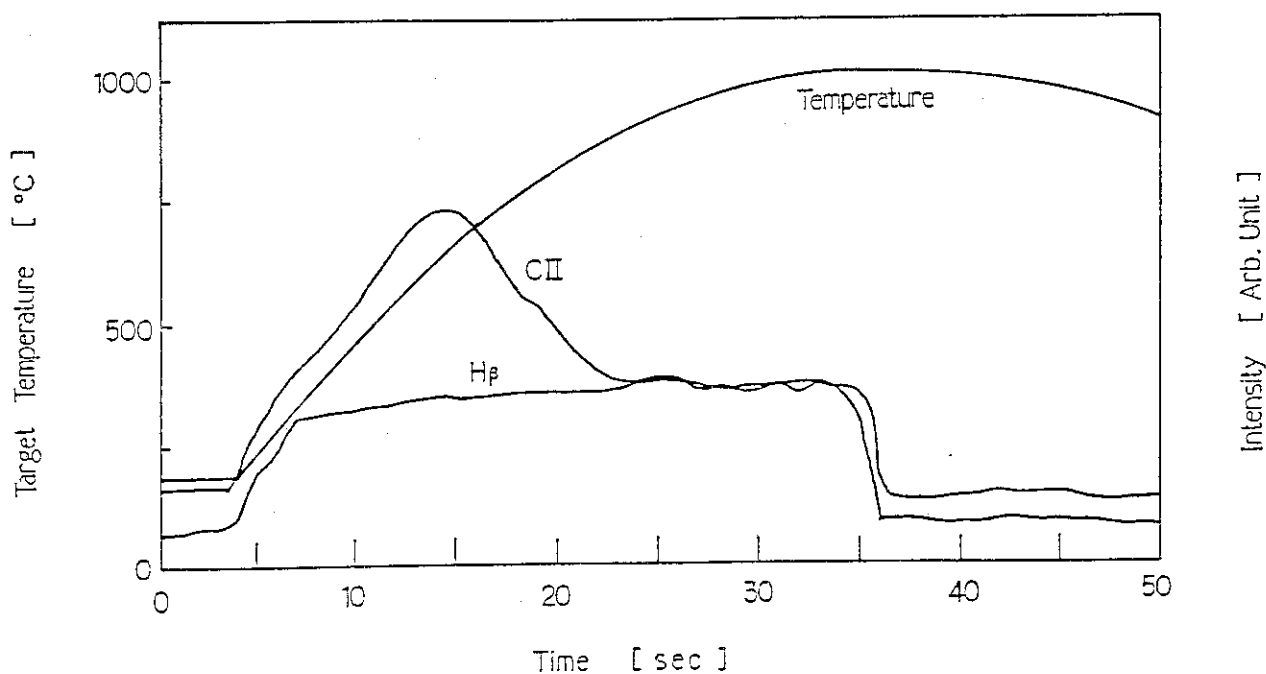


Fig. 3 Fig. 1 と同一条件でCII (426.7nm)を観測した結果。

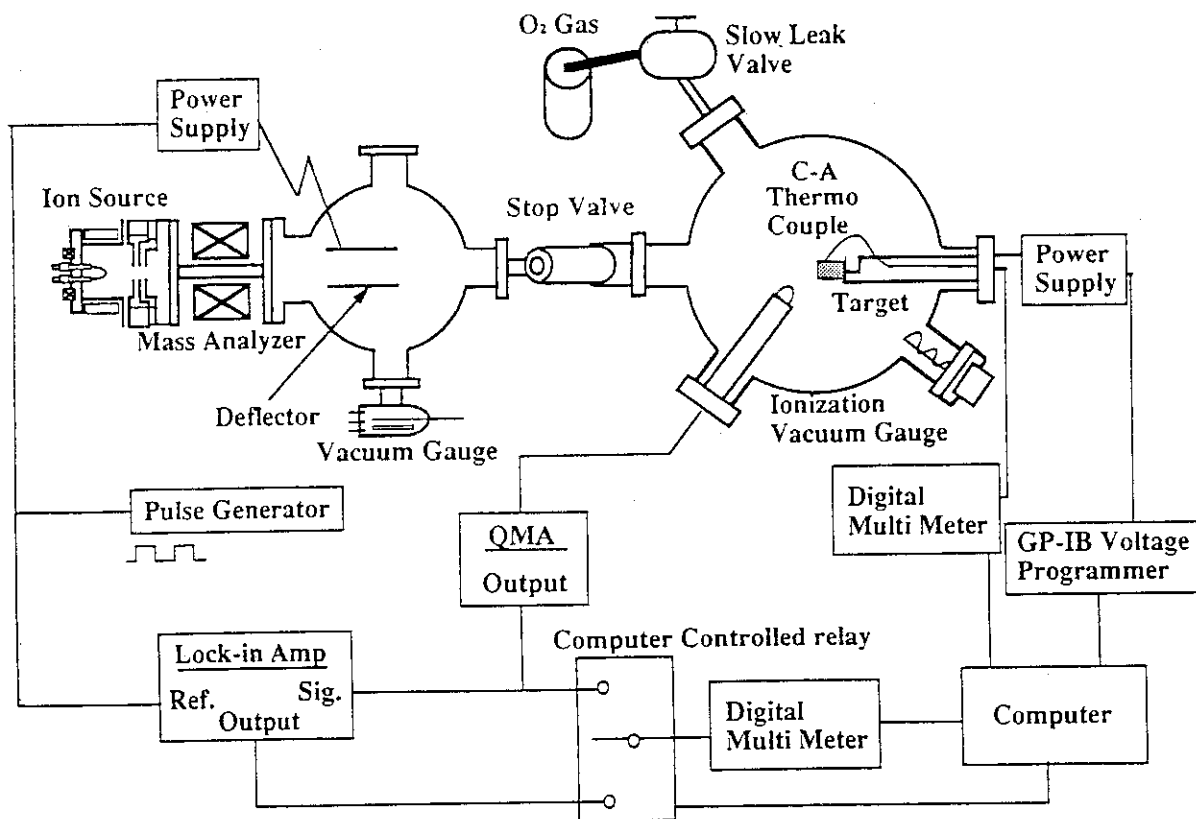


Fig. 4 実験装置と測定系統図

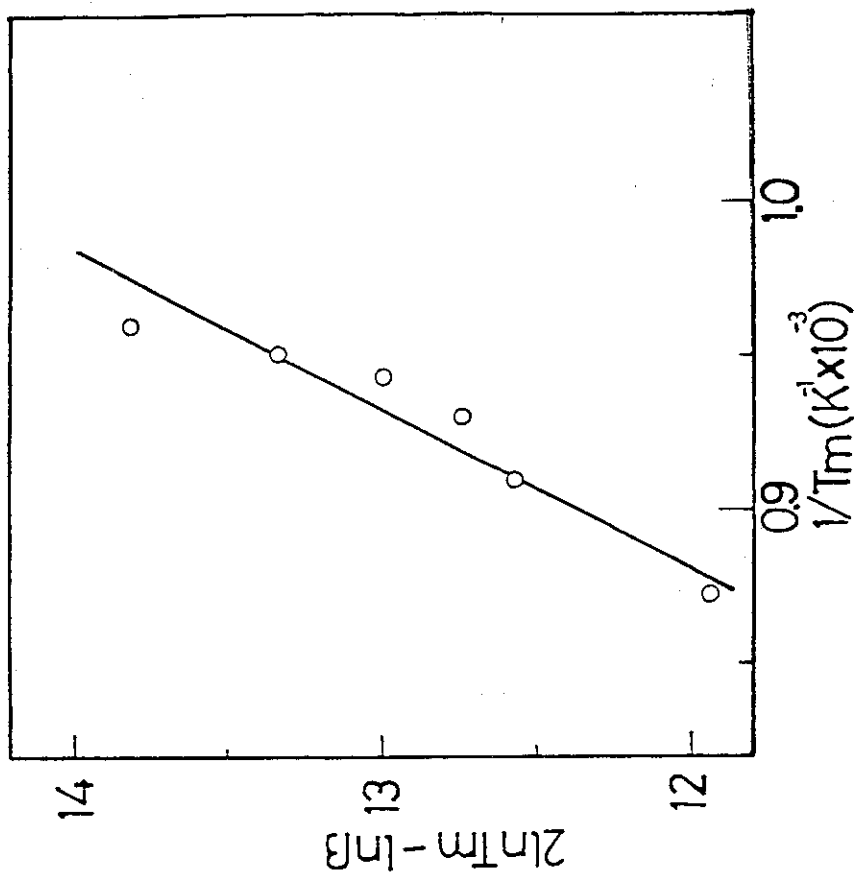


Fig. 6 昇温脱離スペクトルのピーク温度 T_m より活性化エネルギーを
求めるための $2 \times \log(T_m) - \log(\beta)$ のグラフ

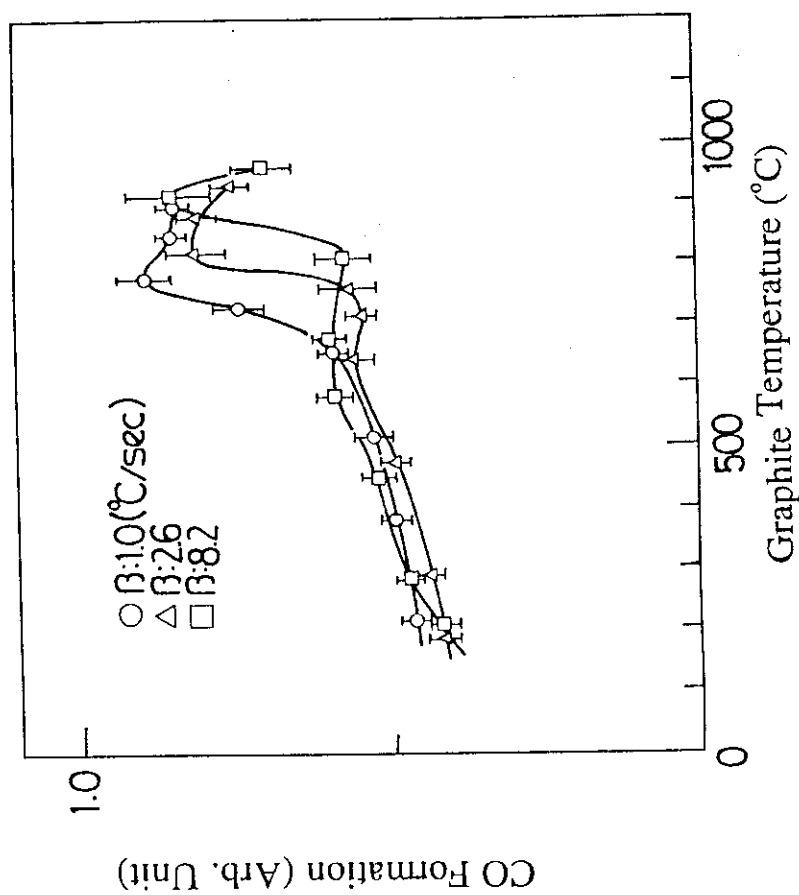


Fig. 5 昇温率 β を変化した場合の昇温脱離スペクトル。

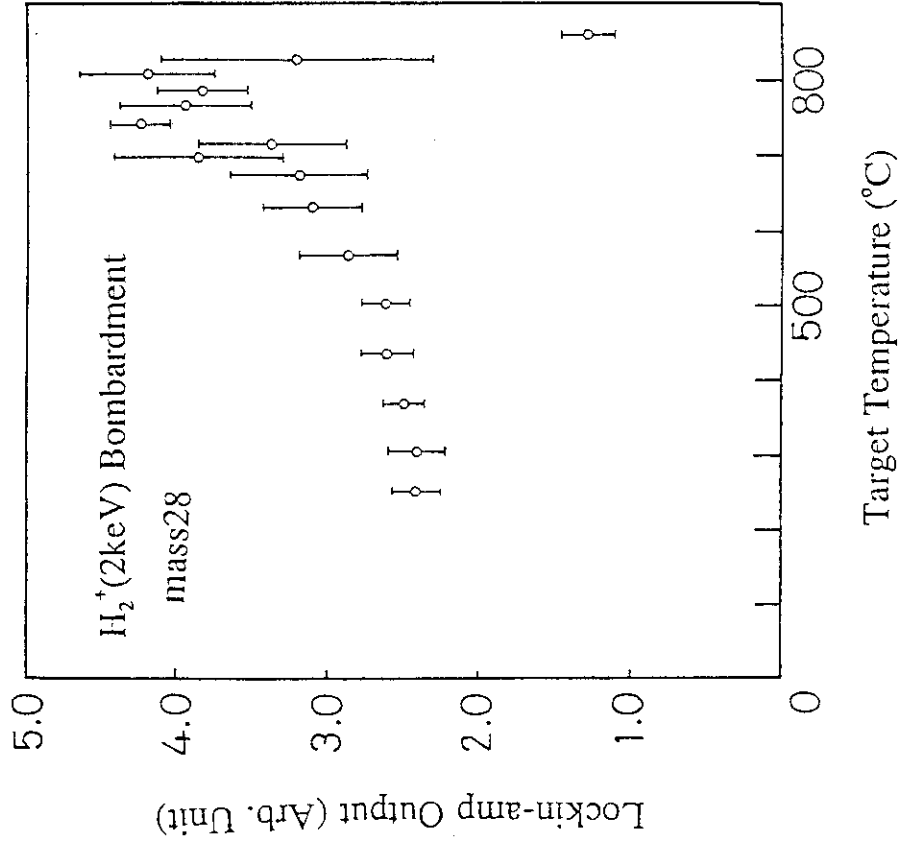


Fig. 8 H₂⁺を炭素に入射した際に観測されるmass28信号の温度依存性。

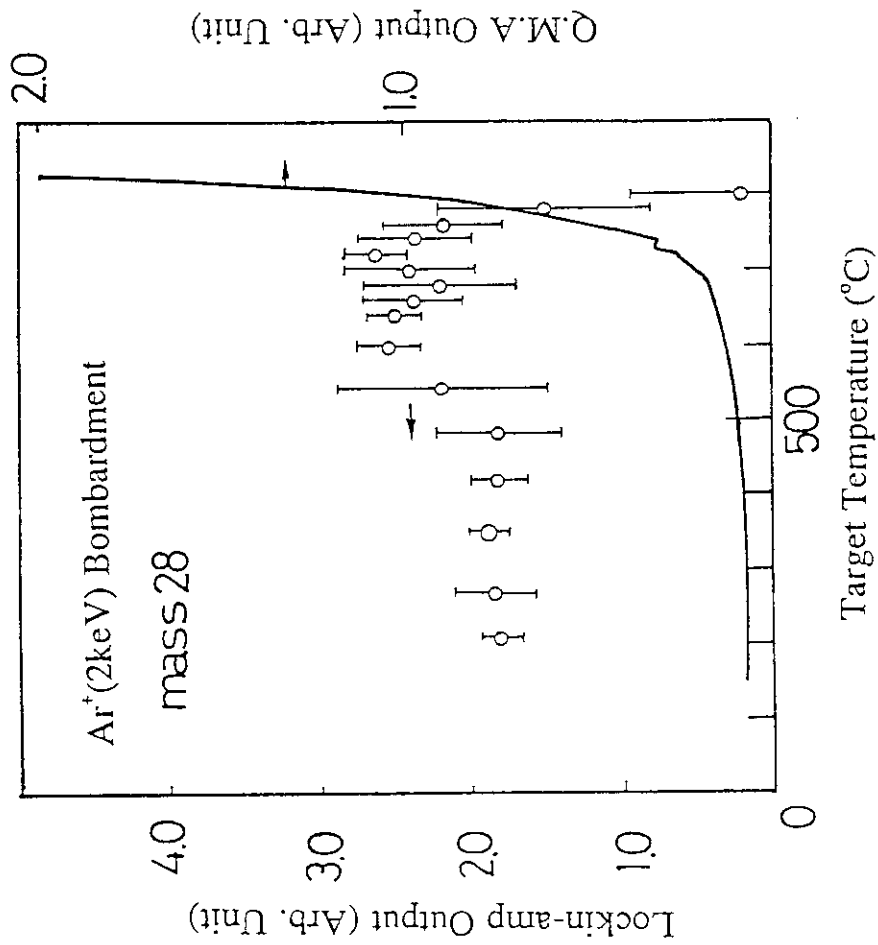


Fig. 7 Ar⁺による炭素からの00に対するビーム照射脱離の温度特性。

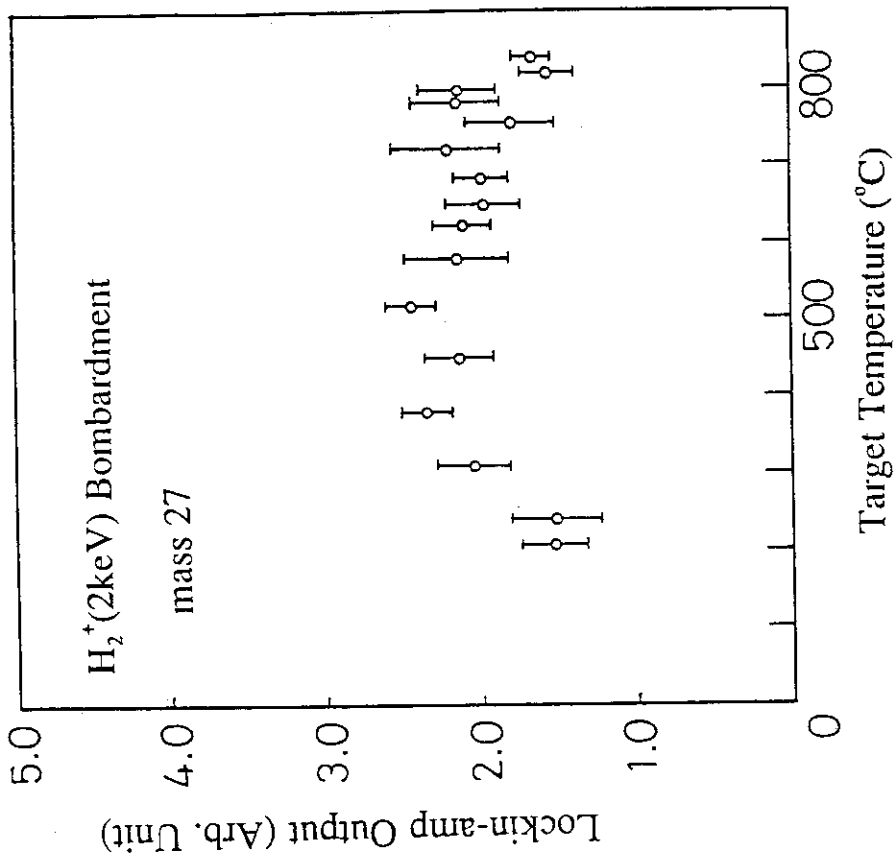


Fig. 9 H₂⁺を炭素に入射した際に観測されるmass27信号の温度依存性。

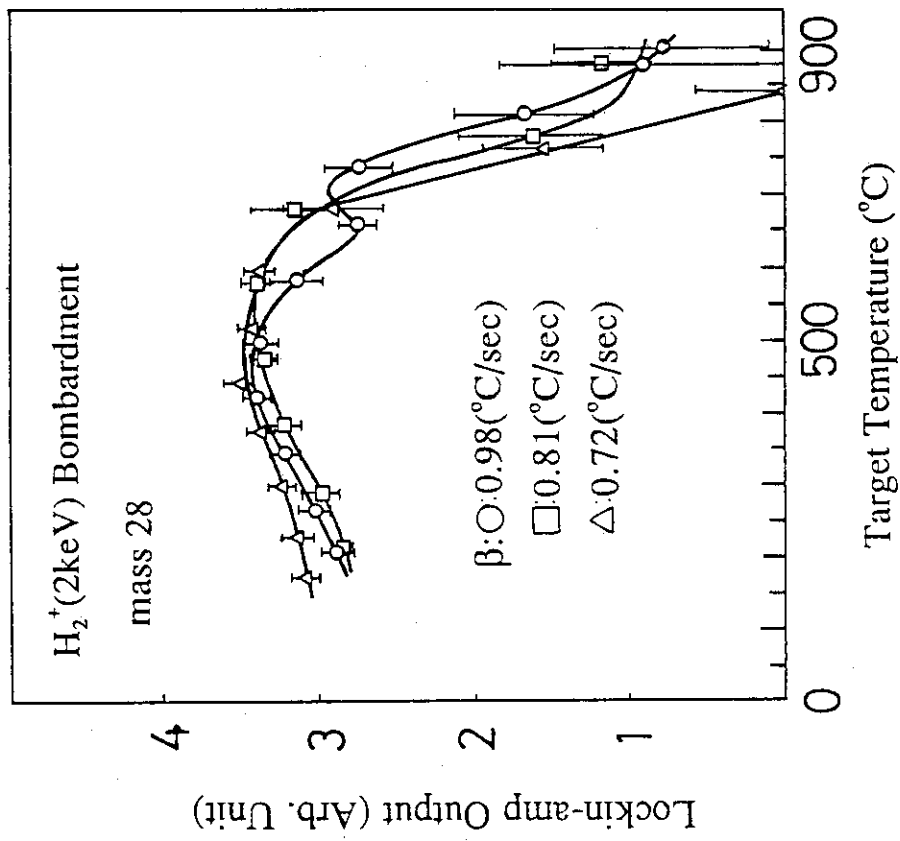


Fig. 10 昇温速度 β を変化させた際に H₂⁺ を炭素に入射して観測される mass28 信号の温度特性のシフト。

7. 第3元素を添加したA15型超伝導線材 (Nb_3Sn)の 中性子照射効果

岩手大学工学部 片桐一宗
 大阪大学産業科学研究所 岡田東一
 京都大学原子炉実験所 小高久男
 金属材料技術研究所 黒田恒生

1. はじめに

核融合炉用を初めとする大型で高磁界を実現するための超伝導磁石には現在のところ Nb_3Sn 導体が最も有望であると考えられているが、高磁界特性を向上させるため第3元素を添加した線材の開発が進められてきている。放射線環境下におけるこのような材料の使用を想定して中性子照射による臨界特性の変化、とりわけ工学的に最も重要な臨界電流への照射効果について、またさらに照射効果に電磁力による歪の効果が重畳した場合、すなわち照射/歪効果について行なってきた研究成果の概要について述べる。

2. 照射による臨界電流 I_c の変化

KUR 長期炉心照射設備を用いて約85°Cで照射を行なったブロンズ法複合多芯線材 [1] の I_c の中性子照射線量 ϕt 依存性を図1に示す。 I_c は一旦増加し、その後減少する。

I_c のこの増加は照射により Nb_3Sn 中に導入される格子欠陥が、磁束線の新たなピン留め中心として作用するためにピン留め力密度が増加したためと考えられる [2]。照射前にピン留め力密度が十分高く最適化されている線材では、この増加は小さく、また逆に低いものでは増加が大きいことが知られている。 $1 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ 程度を越える照射線量領域で I_c が照射にともなって減少するのは臨界温度 T_c の低下に根ざしているものと考えられる (図2)。すなわち照射にともなう原子の置換衝突、照射欠陥の生成などによる Nb_3Sn 結晶格子の規則度の低下は電子状態、フォノン状態を変化させ、これが T_c 、熱力学的臨界温度 B_c を劣化させ、上部臨界磁場 B_{c2} の劣化を通してピン留め力密度を引き下げる。高磁界ほど I_c の ϕt による変化が大きいが、これには上記の因子の他にこれと競合する常伝導電気抵抗率の増加の効果を差し引いた B_{c2} の変化とともに、ピン留め力密度の磁界依存性のピーク位置の移動も寄与していることが示唆されている [3]。

微細なフィラメント ($1 \times 0.1 \mu\text{m}$) から成る in situ法 Nb_3Sn 線材においては I_c の ϕt に伴うピークは見られない。界面ピンが主として支配するこの線材では、照射にともなうピン留め中心の増加がブロンズ法の場合のように大きく現われないものとする。

3. 第三元素添加の影響

最近、 Nb_3Sn 線材に、第三さらには第四元素を添加すると I_c の照射劣化が促進されることをいくつかのグループが報告している [4-6]。図 3 は前節に述べた添加元素のない Nb_3Sn のほかに Ti (0.3wt%) 添加ブロンズ法複合多芯線材, Ti 添加 in situ 法線材 [1], さらに Weber [4] の 1.5wt% Ti 添加 Nb_3Sn 線材 (破線) の結果を示す。Ti 添加 Nb_3Sn の I_c は添加量によっては必ずしも Weber らが示したような急激な照射劣化につながらないこと、したがってこの種の材料が放射線環境下で十分実用可能であることなどが示されている。Weber らの結果と本実験結果との差異の理由として、照射温度 (低温と室温) が考えられ、点欠陥の移動の困難な極低温では損傷はより大きいものと考えられる。Ti 添加した in situ 法線材の照射劣化曲線は基本的に添加元素の無いものと同様である。

元素添加量の影響について、より系統的に明らかにするため、Nb 芯に 1 at% Zr を添加し、ブロンズマトリックスに種々の量の Ti を添加した線材 (日立電線提供) について、それらの中性子照射効果について調べた (図 4), 図中には前述の線材パラメータの類似な試料 [1] の結果も合わせ示されている。これらの結果から以下のことが分かる: 1) Ti 添加量が多いほど照射にともなう I_c の増加は少ない。2) ピークとなる線量は、実験した範囲内では余り変わらず、 $1 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$ 近傍である。3) およそ 10^{19} n/cm^2 以下であれば I_c は照射前の値より高い。以上の結果はこれまでに得られている Pure Nb_3Sn と 0.4at% Ti を添加したものとを比べた場合と同様であり、いずれにしても測定した添加元素量の範囲内では著しい劣化の促進は認められない。

元素添加による照射劣化の促進機構については今のところ明らかではない。少量の第 3 元素添加は高磁界における I_c を支配する B_{c2} を T_c の上昇を通じて上げる。 T_c の上昇は添加元素の種類と量に依存し、例えば Ti の場合、約 1 at% でピークになることが知られている [7, 8]。Band smearing model [9, 10] によれば、第 3 元素添加の他、化学量論組成からのずれ、照射損傷などはマルテンサイト変態を抑制して B_{c2} を上げるとされているが、照射による規則度の低下による B_{c2} の低下が、添加元素によるそれと同じ機構によるとすれば、第 3 元素添加した Nb_3Sn 線材の I_c は照射により早く劣化することになる。しかしながら、図 5 に示すように T_c の照射による劣化の程度は Ti 添加により若干早められるものの、無添加のものと比べて顕著な差異は認められないので、これが I_c 劣化の主要な原因とは考えられない。関根ら [7] の結果のよれば I_c の Ti 添加量依存性は磁界の高さによって異なる (磁界が高いほど、ピークの Ti 添加量が高くなる)。したがって I_c の照射効果は磁界の高さにも依存する可能性がある。最近、Ti あるいは Ta 添加した Nb_3Sn 線材の 14 MeV 中性子照射効果が 20 T の高磁界に至るまで調べられている [11]。これによれば高エネルギーの中性子照射においても元素添加による照射劣化の加速が認められ、Ta が特に有害な元素であることが示されている [11]。添加元素や添加量の異なる線材についての高磁界におけるより詳細な照射効果の研究が必要である。

4. 照射-歪同時効果

照射前および種々の線量まで照射した後の試料の液体He温度における応力-歪曲線を図6に示す。これは照射試料の I_c の歪による変化について測定したときに同時に得られたものである。照射にともなって降伏応力の増加並びに延性の低下がみられる。これは照射前には延性的であった線材中のブロンズや安定化銅が硬化し、脆化したためと考えられる。

照射前の試料における I_c の歪特性を図7に示す。図中白丸は負荷時、黒丸は除荷時のデータである。冷却にともなって Nb_3Sn に生じる圧縮熱歪 ϵ_m に起因するピークがみられる。また、除荷に伴う I_c の回復は可逆限界歪 ϵ_{irrev} を越えると Nb_3Sn フィラメント中のき裂発生のため不可逆となる。図から照射前では特性歪 $\epsilon_m=0.2\%$ 、 $\epsilon_{irrev}=0.8\%$ であることが分かるが、これらの値は照射にともなって変化する。 I_c の歪効果の特徴づけるこれらの歪および破断歪 ϵ_f を照射線量に対して整理すると図8のようになる[12]。照射にともなう変化として以下の事が言える：1) ϵ_m が増加する。2) $\epsilon_{0,irrev}=\epsilon_{irrev}-\epsilon_m$ が減少する。3) ϵ_f が減少する。4) ϵ_f と ϵ_{irrev} が一致する。これらはマトリックスおよび Nb_3Sn 自体の脆化から説明することができるが、いずれにしても照射によって線材に残留する歪を通じて I_c が変化すると同時に安全に使用することのできる歪範囲が変化することを示している。このように照射に伴う線材の機械的性質の変化およびこれと関連した I_c の歪特性の特徴づける歪の値の変化はTi添加によってほとんど変わらない[5]。

図9は歪が ϵ_{irrev} 以下、すなわち Nb_3Sn が弾性の範囲内における I_c の歪感度を照射前と照射後のものについて比較している。 $1.5 \times 10^{18}n/cm^2$ 照射した試料の歪感度はわずかに高くなっている。これは前に述べたように B_{c2} の値が照射によって低下したためである。Ti添加 Nb_3Sn 線材においても同様な結果が得られている[5]。このように Nb_3Sn の弾性域における I_c の歪感度の変化はこの測定を行なった6Tにおいてはあまり問題にならないが、高磁界での使用には十分な注意が必要である。Flukigerら[13]によれば、 I_c の歪感度は規則度 S が高いほど大きい。これが照射の場合にも当てはまるとすれば、照射にともなう S の低下が歪感度の低下につながり、とくに元素添加 Nb_3Sn 線材ではそれが著しいことになるが、上述の結果は必ずしもこの予想とは一致しない。このような効果が顕著になるのも高磁界においてであると考えられる。

照射脆化した線材の機械的性質は等時焼純によって徐々に回復し、 $700^\circ C$ 、2hrの焼純によって照射前のものにほぼ復帰する。これにともなって上に述べた特性歪の値は照射前の値まで回復する。しかしながら超伝導臨界特性値、 T_c 、 B_{c2} 、 I_c などは同様な熱処理によってそれぞれもとの値まで回復しない(図2参照)。これは線材を作製した際の反応熱処理時に残留していたNbへの錫の拡散などによる Nb_3Sn の化学量論組成からのずれ、規則度の低下、あるいは、 Nb_3Sn 結晶粒の成長などによるものと考えられる。

参考文献

1. T. Anayama and A. Nagata, Proc. Int. Symp. Flux Pin. Electromagn. Prop. Superconds., Eds. T. Matsushita, K. Yamafuji and F. Irie, (1985), 75, Matsukuma Press
2. B.S. Brown et al., J. Appl. Phys., 46 (1975), 5163.
3. T. Okada, M. Fukumoto, K. Katagiri, K. Saito, H. Kodaka and H. Yoshida, J. Appl. Phys., 63 (1988), 4580.
4. H.W. Weber, Adv. Cryog. Eng., 32 (1986), 853.
5. K. Katagiri, K. Saito, T. Okada, H. Kodaka and H. Yoshida, Jpn. J. Appl. Phys., 26 Suppl. 26-3 (1987), 1521.
6. M.W. Guinan, P.A. Hahn and T. Okada, Summary Rept. RTNS-II Collab. Res., (1988), UCID 21298.
7. H. Sekine, Y. Iijima, K. Itoh, K. Tachikawa, Y. Tanaka, and Y. Furuto, IEEE Trans. MAG-19, 1429 (1983).
8. D.O. Welch. Adv. Cryog. Eng., 30 (1981), 671.
9. 豊田直樹, 低温工業 19 (1984), 319.
10. L.R. Testardi, and L. F. Mattheiss, Phys. Rev. Lett. 41, 1612 (1978).
11. F. Weiss, R. Flukiger, W. Maurer, P. Hahn, and M.W. Guinan, IEEE Trans. MAG-23, 976 (1987).
12. T. Okada, M. Fukumoto, K. Katagiri, K. Saito, H. Kodaka and H. Yoshida, IEEE Trans. Magn., MAG-23 (1987), 972.
13. R. Flukiger, R. Isernhagen, W. Goldacker and W. Specking, Adv. Cryog. Eng., 30(1984) 851

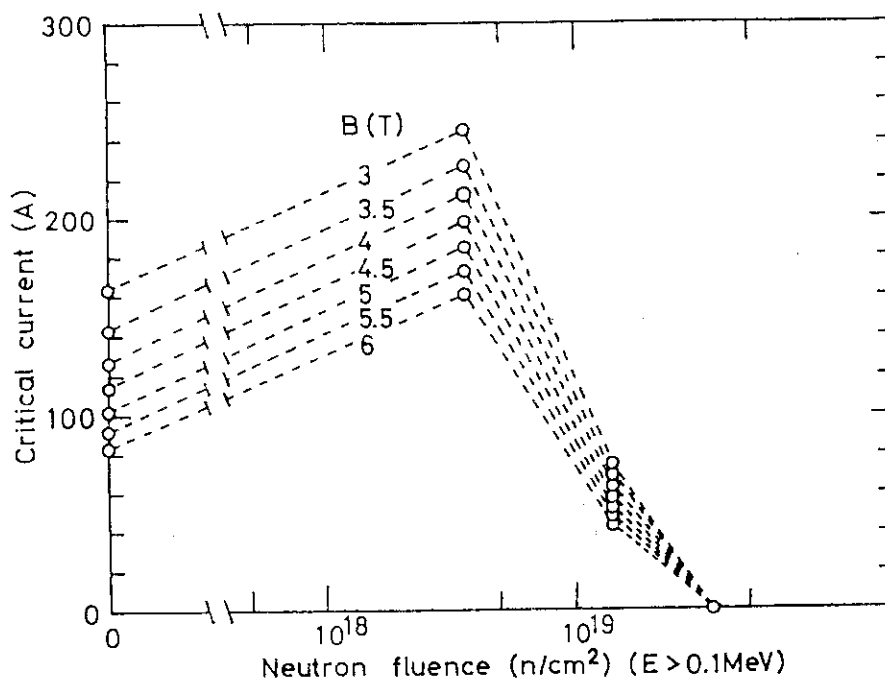


図1 I_c の ϕt 依存性

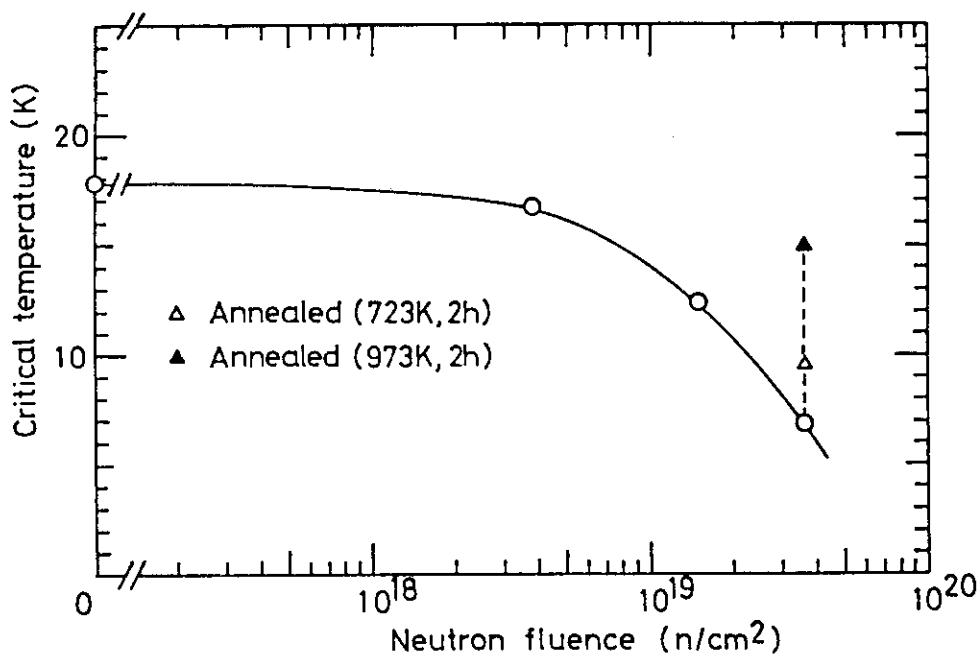


図2 T_c の ϕt 依存性

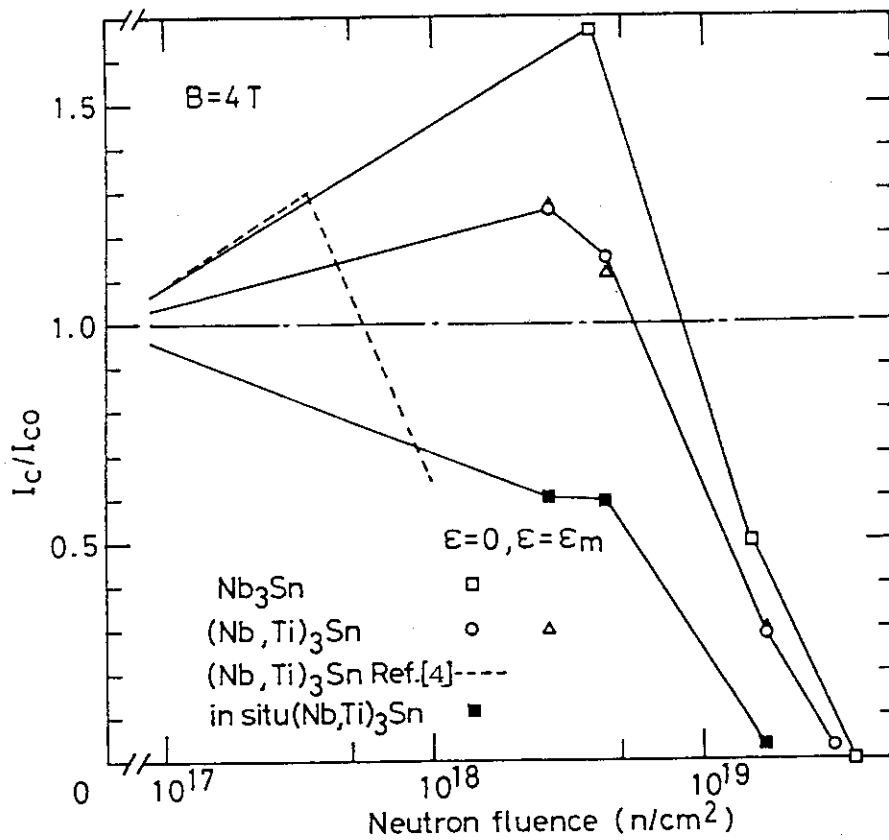


図3 I_c/I_{c0} の ϕt 依存性

I_{c0} ; 非照射の I_c

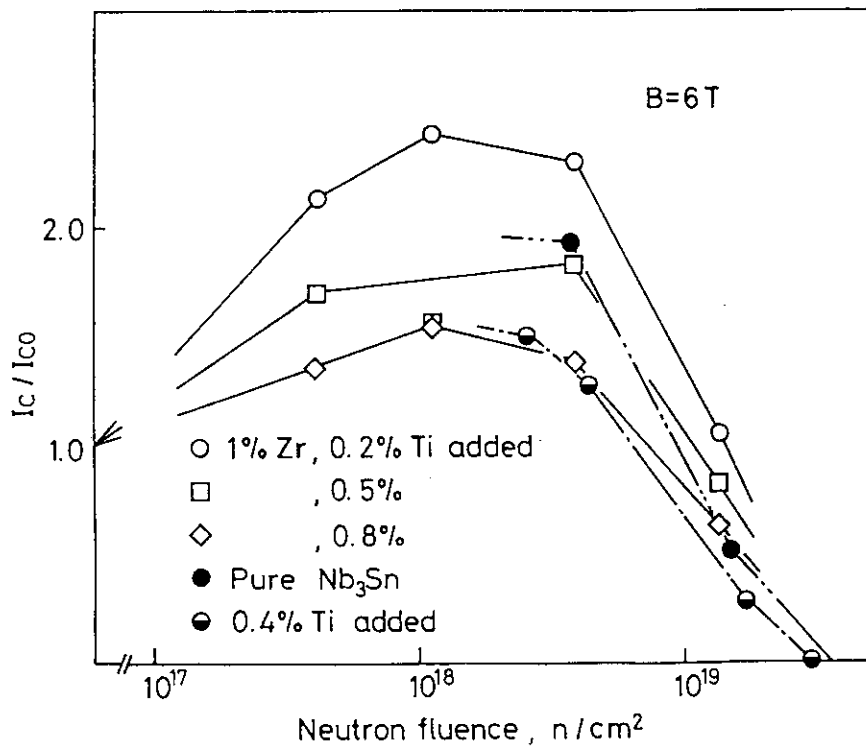


図4 $I_c/I_{c0}-\phi t$ 関係の添加元素依存性

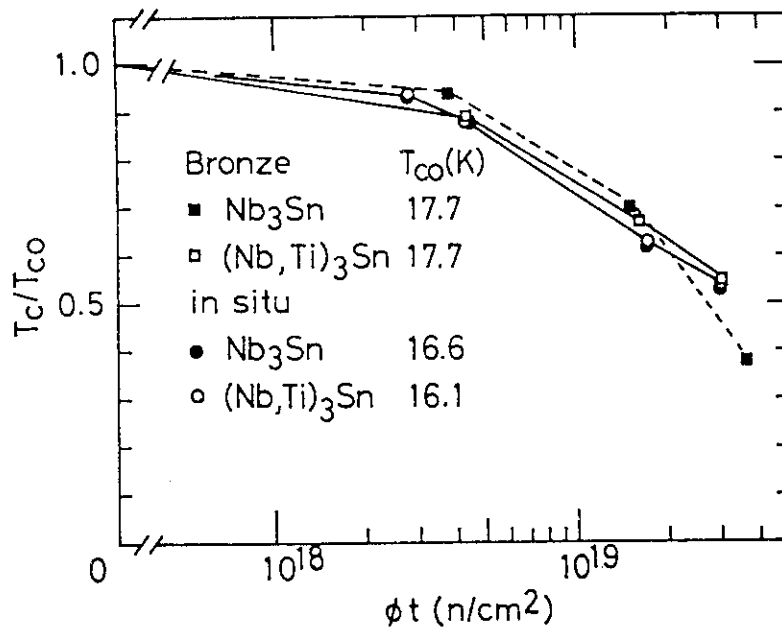


図5 T_c の ϕt 依存性

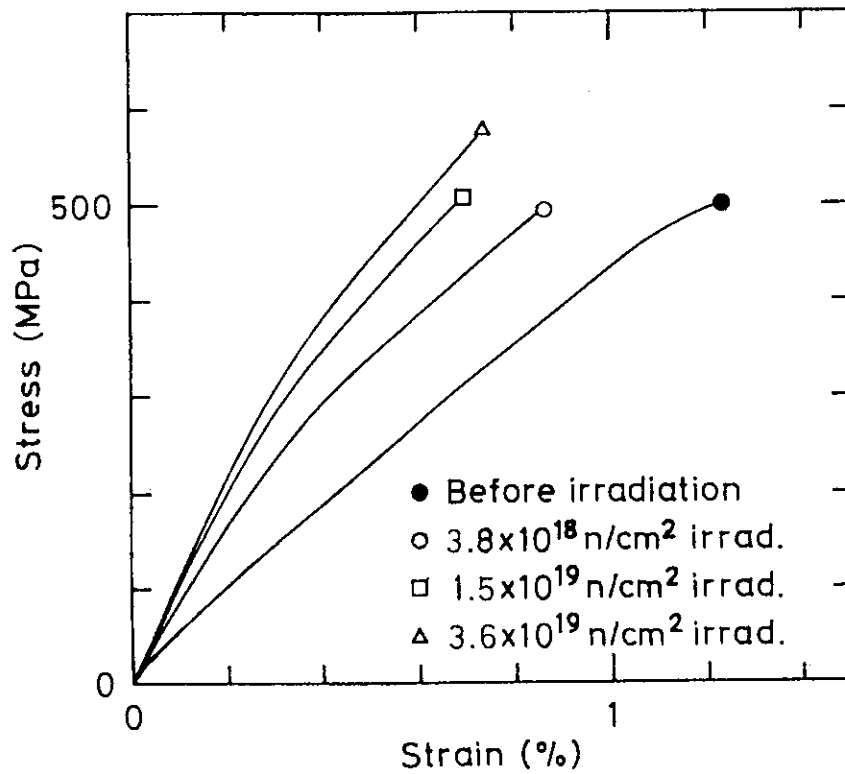


図6 応力-ひずみ関係

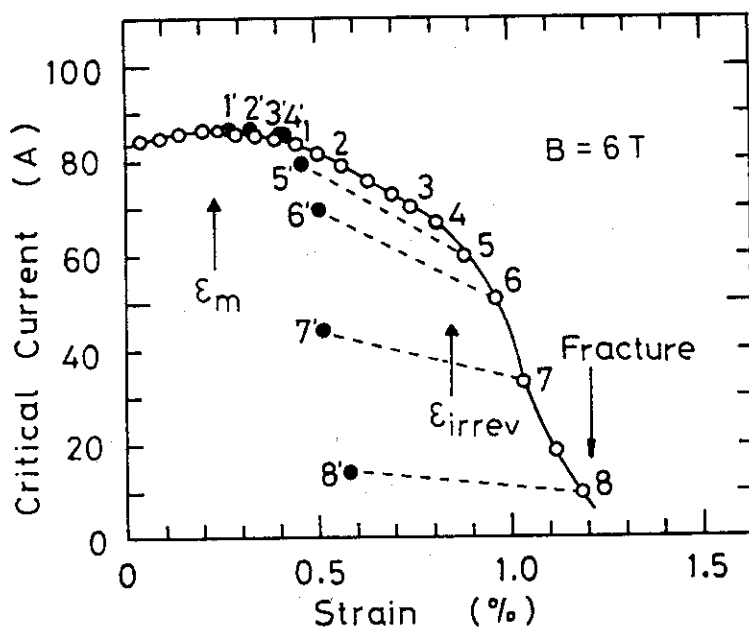


図7 I_c -ひずみ関係 (非照射線材)

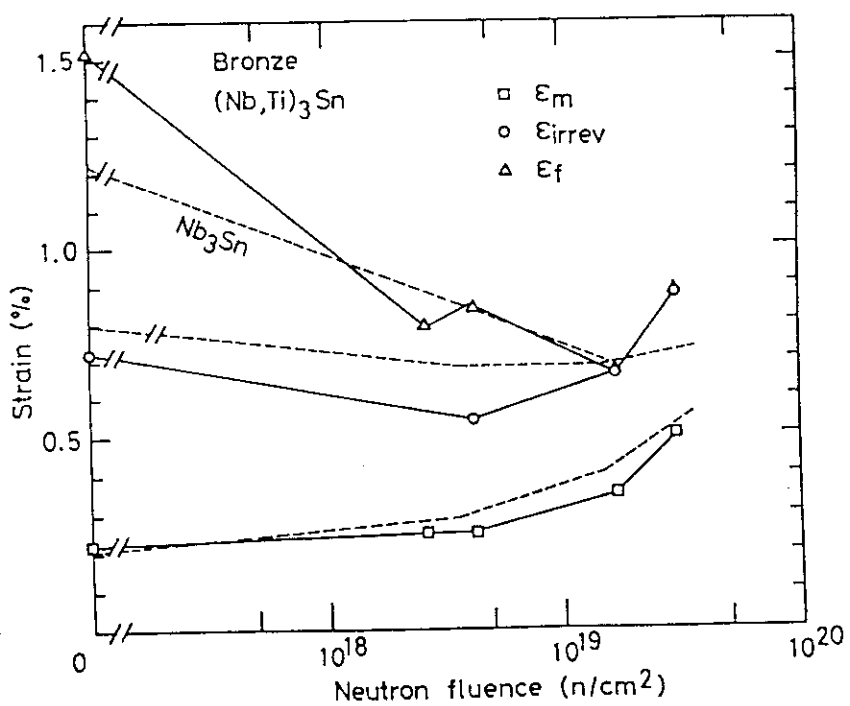


図8 照射にともなう特性歪の変化

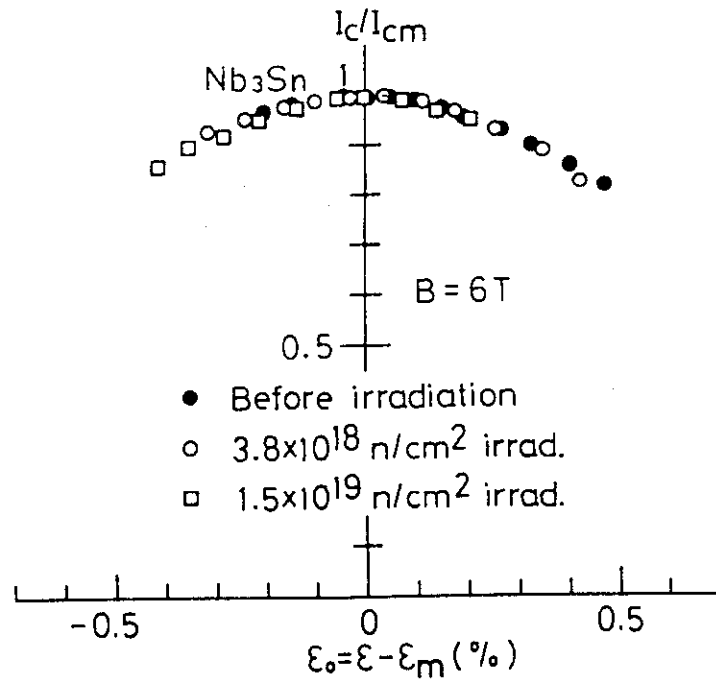


図9 照射による歪感度の変化

8. 中性子照射したSiの陽電子寿命測定

(Positron Lifetime Measurements of Neutron-Irradiated Si)

中国原子能研 (CIAE) : Li Anli, Huang Hanchen,
 Li Donghong, Zheng Shengnan, Du Huengshan,
 Zhu Shengyun

原研 (JAERI) : 岩田忠夫 (Tadao Iwata)

Cz-Si 結晶に約70°Cで核分裂中性子を $3.1 \times 10^{17} \text{ n/cm}^2$ 及び $1.45 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ まで照射した。照射後、100~800°Cの温度範囲においてアニーリングを行い、陽電子寿命スペクトルを測定した。

従来の実験では、少量の単純な欠陥が生成する場合が扱われてきた。ここでは、多量の中性子照射により複雑な欠陥が生成していると考えられる場合について、陽電子寿命測定がどれ程有力かを調べるのが目的の一つである。

測定した寿命スペクトルについて2成分解析を行った。更に、第1成分はバルクと欠陥Iにおいて消滅する陽電子によるものであり、第2成分は欠陥IIと欠陥IIIにおいて消滅する陽電子によるものであると仮定して、トラッピング模型にもとづくデータ解析を行った。欠陥Iはvacancy-oxygen pairs ($V-O_2$)、欠陥IIはdivacancies (V_2)、欠陥IIIはquadrivacancies (V_4) であると仮定し、それぞれの欠陥にトラップされた陽電子の寿命として 270ps, 325ps, 430psを割り当てて、それぞれの欠陥によるpositron trapping rates K_I , K_{II} , K_{III} を求めた。その結果をアニーリング温度の関数として図1に示す。 K_I , K_{II} , K_{III} はそれぞれの欠陥の濃度に比例している。

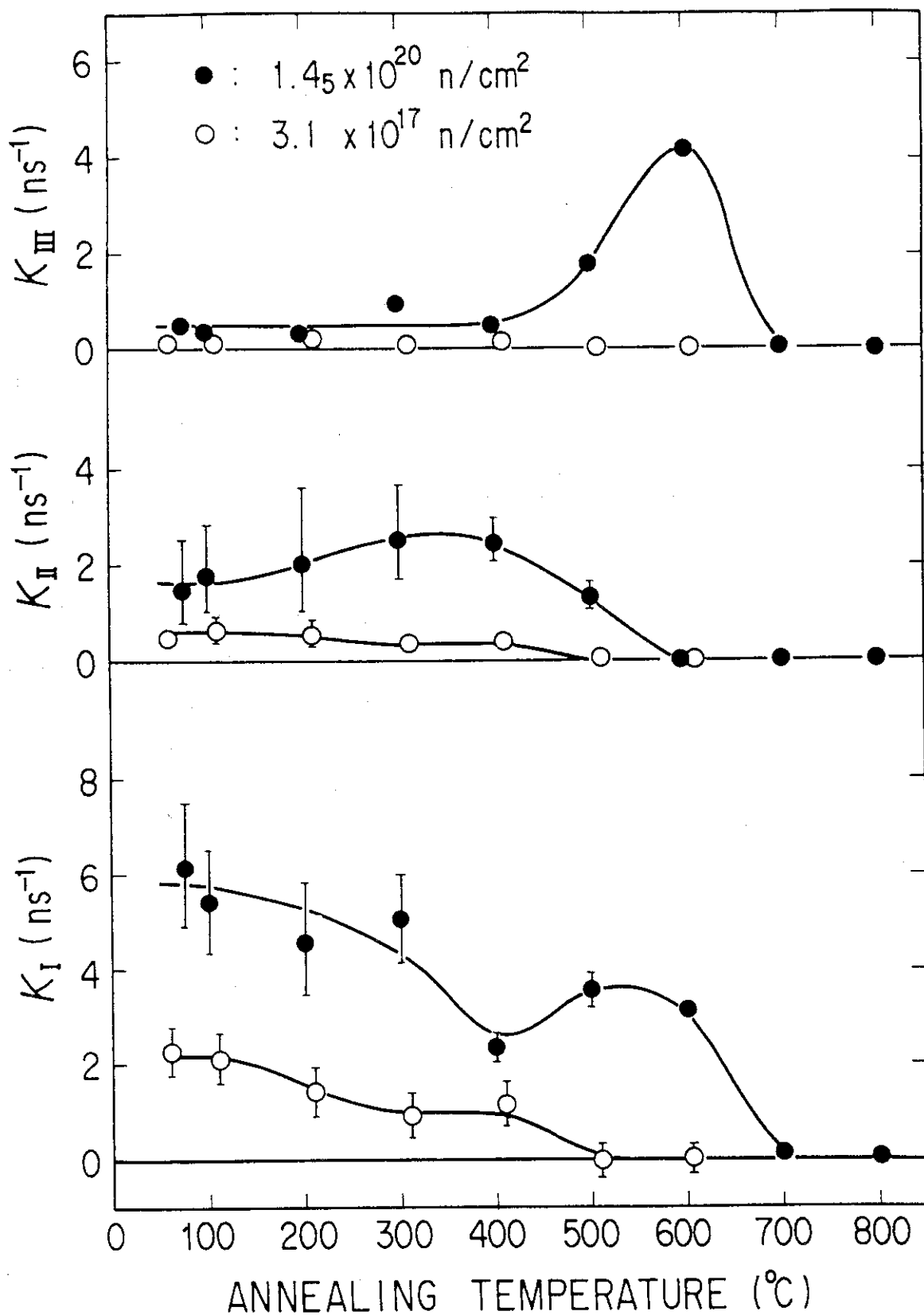


図1 中性子照射したSiにおける陽電子捕獲率 K のアニーリング温度依存性。 K は欠陥濃度に比例し、その添字I, II, IIIは欠陥の種類を表す(本文参照)。

9. 阻止能理論における密度勾配効果

湘北短大電子情報学科 北川 盈雄

1. 非均一多電子系における誘電応答

誘電関数の理論で著名なものに自由電子ガス系に対するLindhardの理論^{1)・2)}がある。通常、電磁気現象はマクロ的（原子サイズより十分大きな系の意）に扱われるケースが多いため、誘電率 ϵ もマクロ的な量として扱われることが多い。この観点からみれば、Lindhardの誘電関数は ϵ をミクロ的な量子力学による電子論の立場から求めた最初の仕事であり、したがってその理論的な意義も大きい。しかしながら、反面、自由電子ガス系は電子の空間分布が一様であるという理想化された系でもある。このため、実空間に関して並進不変性が成り立ち、多体系の電子分布などの座標依存性を念頭に置く必要がなく、誘電関数 ϵ や誘電応答を伴う非弾性散乱問題を波数空間で議論することができる。このことは数学的解法の難度がかなり緩和されるという点で重要な意味をもつ。換言すれば、自由電子ガス系での理論解析は、もちろん多体効果そのものは複雑な過程であるが、非均一系に対する理論解析に比べれば、比較にならない程容易になる。

原子系や分子系、チャネリング、表面などの電子の実空間分布が対象となる系での誘電応答理論は、数学的困難さにおいてはるかに自由電子ガス系の理論の枠を越えたものである。より一般的な多体系の電子分布を考慮した電子論的な誘電応答理論を展開できれば、非弾性散乱問題などの各種の電磁気現象をよりミクロ的な立場から解析することが可能となり、その意義は大変大きい。

非均一多電子系における誘電応答理論はその理論的困難さを伴いながらも近年確立されつつある分野である。フェルミ粒子やボーズ粒子などの多体系に対する誘電関数の一般論はグリーン関数法を用いた形で展開される。その理論体系についてはHedin とLundqvist³⁾, FetterとWalecka⁴⁾, Lundqvist⁵⁾, Lozovik とKlyuchnik⁶⁾を参照して頂きたい。当該理論の体系へのDiracの密度行列の導入により、高周波応答のもとでの誘電関数 ϵ の導出がKitagawa^{7)・8)}によって行なわれた。その第1近似である ω^{-2} に比例する項は(1.1)式で表される。

$$\begin{aligned} \epsilon(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \omega) &= \delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) + \frac{1}{m\omega^2} \operatorname{div}_{\vec{r}_1} \left[\left(\operatorname{grad}_{\vec{r}_1} \frac{e^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \right) n(\vec{r}_1) \right] \\ &= \delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) \left(1 - \frac{4\pi e^2 n(\vec{r}_1)}{m\omega^2} \right) - \frac{e^2(\vec{r}_1 - \vec{r}_2)}{m\omega^2 |\vec{r}_1 - \vec{r}_2|^3} \cdot \operatorname{grad}_{\vec{r}_1} n(\vec{r}_1) \end{aligned} \quad (1.1)$$

\vec{r}_1, \vec{r}_2 は物質内電子および入射イオンの位置ベクトル。 $m, e, n(\vec{r}_1)$ は電子の質量と電荷、ならびに物質内電子の密度を表す。また、(1.1)式の右辺では便宜的に複素数 $\omega + i\eta$ を ω と表記してある。 η は極限的にゼロに近づく正の微小量である。このため、 ϵ は実数部と虚数部をもつ。以下、右辺での $\omega + i\eta$ の表記が必要な場合以外はこの ω の表記を用いる。さて、上記の誘電関数が

高周波応答のもとで導かれる理論体系を以下に概説しておく。

物質の誘電的物性は多体系を構成する電子によって決定されるが、この誘電的物性は次式で示す積分方程式を介して、分極オペレータ Π によって記述される³⁾。

$$\varepsilon(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \omega) = \delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) - \int \Pi(\vec{r}_1, \vec{r}_3, \omega) v_e(\vec{r}_3 - \vec{r}_2) d\vec{r}_3 \quad (1.2)$$

表示は $\vec{r}-\omega$ 空間で表現されている。 $v_e(\vec{r}_3 - \vec{r}_2) = e^2/|\vec{r}_3 - \vec{r}_2|$ は多電子系の各電子間のクーロン相互作用を表す。今、物質内多電子系が高密度で縮退した基底状態にあるとすれば、 Π は Dirac の密度行列で次のように表現される⁴⁻⁶⁾。

$$\Pi(\vec{r}_1, \vec{r}_3, \omega) = \frac{2}{\hbar} \sum_{jk} \rho_j(\vec{r}_1, \vec{r}_3) \rho_k(\vec{r}_3, \vec{r}_1) \frac{\Theta(E_F - E_j) - \Theta(E_F - E_k)}{\omega + \hbar^{-1}(E_k - E_j) + i\eta} \quad (1.3)$$

(1.3) 式の係数 2 は電子のスピンに関する和に対応する⁴⁾。グリーン関数の表記法には因果、遅延、前進の 3 種類があるが、(1.3) 式では Π に遅延グリーン関数の表記法を用いた。この遅延グリーン関数であることを明示するため、右辺では複素表示 $\omega + i\eta$ を明記した。

$$\frac{1}{x + i\eta} \xrightarrow{\eta \rightarrow 0^+} P\left(\frac{1}{x}\right) - i\pi\delta(x), \quad (1.4)$$

より、 Π には実数部と虚数部が存在し、したがって (1.2) 式から、 ε が実数部と虚数部をもつことが分かる。(1.4) 式において P は主値を表す。また、密度行列ならびに密度行列要素には次の関係式が成立する。

$$\begin{aligned} \rho_j(\vec{r}_1, \vec{r}_3) &= \phi_j(\vec{r}_1) \phi_j^*(\vec{r}_3), \quad \rho_k(\vec{r}_3, \vec{r}_1) = \phi_k^*(\vec{r}_1) \phi_k(\vec{r}_3) \\ n(\vec{r}_1, \vec{r}_3) &= \sum_j \rho_j(\vec{r}_1, \vec{r}_3) \Theta(E_F - E_j) \\ \delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_3) &= \sum_j \rho_j(\vec{r}_1, \vec{r}_3) = \sum_k \rho_k(\vec{r}_3, \vec{r}_1) \end{aligned} \quad (1.5)$$

$n(\vec{r}_1, \vec{r}_3)$, $\rho_j(\vec{r}_1, \vec{r}_3)$ は密度行列ならびに j 状態の電子の密度行列要素を表す。 Θ はヘビサイドのステップ関数、 E_F は last filled electron の固有エネルギーであり、自由電子の場合はいわゆるフェルミエネルギーに対応する。

さて、(1.3) 式の Π を $\omega \gg \hbar^{-1} |E_k - E_j|$ が成立する高周波応答の下で解くことを考える。複素数 $\omega + i\eta$ を ω と略記し、 Π を複素エネルギー空間で $\hbar^{-1}(E_k - E_j)/\omega$ によってローラン展開すれば、(1.6) 式を得ることができる。

$$\begin{aligned} \Pi(\vec{r}_1, \vec{r}_3, \omega) &= \frac{2}{\hbar} \sum_{jk} \rho_j(\vec{r}_1, \vec{r}_3) \rho_k(\vec{r}_3, \vec{r}_1) [\Theta(E_F - E_j) - \Theta(E_F - E_k)] \\ &\times \left\{ \frac{1}{\omega} - \frac{\hbar^{-1}(E_k - E_j)}{\omega^2} + \frac{[\hbar^{-1}(E_k - E_j)]^2}{\omega^3} - \frac{[\hbar^{-1}(E_k - E_j)]^3}{\omega^4} + \dots \right\} \quad (1.6) \end{aligned}$$

ここで、(1.6)式の第2項までの解を求めるため、多電子系にHartree近似を適用する⁴⁾。この場合、1電子のSchrodinger方程式は次のようになる。

$$\hat{H}_{\vec{r}} \phi_j(\vec{r}) = -\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_{\vec{r}}^2 \phi_j(\vec{r}) + U(\vec{r}) \phi_j(\vec{r}) = E_j \phi_j(\vec{r}) \quad (1.7)$$

Hartree-Fock近似においても、LDAに対応する近似を行えば、(1.7)式と同等の方程式が得られる⁴⁾。(1.7)式のハミルトニアンオペレータ $\hat{H}_{\vec{r}_3}$ に対して、次の $\rho_j(\vec{r}_1, \vec{r}_3)$ に関する方程式を得ることができる。

$$\hat{H}_{\vec{r}_3} \rho_j(\vec{r}_1, \vec{r}_3) = E_j \rho_j(\vec{r}_1, \vec{r}_3) \quad (1.8)$$

(1.5)と(1.8)式の関係により、(1.6)式の第1項と第2項について次の結果が得られる。 δ 関数が超関数であることを考慮すれば、第1項は、

$$\begin{aligned} & \frac{2}{\hbar\omega} \sum_{jk} \rho_j(\vec{r}_1, \vec{r}_3) \rho_k(\vec{r}_3, \vec{r}_1) [\Theta(E_F - E_j) - \Theta(E_F - E_k)] \\ &= \frac{2}{\hbar\omega} \delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_3) \{n(\vec{r}_3, \vec{r}_1) - n(\vec{r}_1, \vec{r}_3)\} \rightarrow 0 \end{aligned} \quad (1.9)$$

第2項は

$$\begin{aligned} & \frac{-2}{\hbar^2 \omega^2} \sum_{jk} (E_k - E_j) \rho_j(\vec{r}_1, \vec{r}_3) \rho_k(\vec{r}_3, \vec{r}_1) [\Theta(E_F - E_j) - \Theta(E_F - E_k)] \\ &= \frac{1}{m\omega^2} \{ \delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_3) [\nabla_{\vec{r}_3}^2 \{n(\vec{r}_3, \vec{r}_1) + n(\vec{r}_1, \vec{r}_3)\}] \\ & \quad - \{n(\vec{r}_3, \vec{r}_1) + n(\vec{r}_1, \vec{r}_3)\} [\nabla_{\vec{r}_3}^2 \delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_3)] \} \end{aligned} \quad (1.10)$$

となる。注目すべきことは、上述の第2項までの解には(1.7)式中のポテンシャルエネルギー U の効果が現れないことである。また、行列密度の和 $n(\vec{r}_3, \vec{r}_1) + n(\vec{r}_1, \vec{r}_3)$ のみが(1.10)式中に現れるが、これに $\delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_3)$ と電子のスピンに関する和を考慮すれば、(1.5)式の関係から

$$n(\vec{r}_3, \vec{r}_1) + n(\vec{r}_1, \vec{r}_3) \Big|_{\vec{r}_3 \rightarrow \vec{r}_1} = 2n(\vec{r}_1, \vec{r}_1) \rightarrow n(\vec{r}_1) \quad (1.11)$$

となり、(1.1)式の電子密度を与える。換言すれば、(1.10)式の結果は、高周波応答では Π の ω^{-2} に比例する第1項に対して、総和則が成立することを意味する。

(1.10)式を(1.2)式に代入し当該積分に部分積分を適用する際、クーロン相互作用 $v_e(\vec{r}_3 - \vec{r}_2)$ が $\vec{r}_3 = \vec{r}_2$ でいわゆる超関数でのよい関数にならず、特異点をもつことが問題になる。この問題を厳密に数学的に処理することはそれ自体で多大な労力を必要とする。ここでは物理的に考察する。電

子間の相互作用は斥力であり、実際には $\vec{r}_3 = \vec{r}_2$ の同位置での電子間の相互作用は起こらないので、 $\vec{r}_3 \neq \vec{r}_2$ での問題を対象とする。この場合、 $v_e(\vec{r}_3 - \vec{r}_2)$ はよい関数として扱える。(1.1)式で与えられる誘電関数 ϵ は、 δ 関数の微分を含んだ積分の演算規則を上記考察の条件のもとで実行すれば、容易に得られる。従来、グリーン関数法による問題解法では、並進不変性が成立しない系での問題は数学的に解法困難とされてきた。しかしながら、(1.1)式の解は3次元の解でもあり、並進不変性が成立しない系で解が得られることを示した点でも重要な意味を持つ。

さて、イオン阻止能を理論的に誘電関数法によって取り扱うためには、逆誘電関数 ϵ^{-1} を求めなければならない。一般論的に言えばグリーン関数である誘電関数 ϵ と逆誘電関数 ϵ^{-1} の間には、次式に示す直交性の関係がある。

$$\int \epsilon^{-1}(\vec{r}_1, \vec{r}_3, \omega) \epsilon(\vec{r}_3, \vec{r}_2, \omega) d\vec{r}_3 = \delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) \quad (1.12)$$

$\epsilon^{-1}(\vec{r}_1, \vec{r}_3, \omega)$ は、(1.1)式の ϵ を(1.12)式に代入し、 ϵ の第1項に δ 関数が存在することに着目すれば、逐次代入法により求めることができる。その解の第1項は

$$\begin{aligned} \epsilon^{-1}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \omega) = & \frac{\omega^2}{\omega^2 - \omega_p^2(\vec{r}_1)} \left[\delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) \right. \\ & \left. - \frac{e^2}{m} \frac{1}{\omega^2 - \omega_p^2(\vec{r}_2)} \times \frac{(\vec{r}_2 - \vec{r}_1)}{|\vec{r}_2 - \vec{r}_1|^3} \cdot \text{grad}_{\vec{r}_1} n(\vec{r}_1) \right] \quad (1.13) \end{aligned}$$

となる。 $\omega_p(\vec{r}) = (4\pi e^2 n(\vec{r})/m)^{1/2}$ は局所的なプラズマ周波数を表す。 $\epsilon^{-1}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \omega)$ は、 $\omega = \omega_p(\vec{r}_1)$ と $\omega = \omega_p(\vec{r}_2)$ でポールを持つ。これは、非弾性散乱の素励起に $\omega_p(\vec{r}_1)$ と $\omega_p(\vec{r}_2)$ が関与することを意味している。著者はここで述べた $\vec{r}-\omega$ 空間での解法以外にも、 $\vec{k}-\omega$ 空間での解を求めることも試みた。しかしながら、 $\vec{k}-\omega$ 空間では、(1.13)式のような逐次代入法の第1項で即ポールを得ることはできない。換言すれば、このことは局所的なプラズマ周波数 $\omega_p(\vec{r})$ がよく定義できる物理量であることを意味している。

さて、(1.13)式の右辺の ω は複素数である。 $\eta \rightarrow 0_+$ の極限をとれば

$$\begin{aligned} \frac{\omega^2}{\omega^2 - \omega_p^2(\vec{r}_1)} \xrightarrow{\omega \rightarrow \omega + i\eta} & 1 + p \left(\frac{\omega_p^2(\vec{r}_1)}{\omega^2 - \omega_p^2(\vec{r}_1)} \right) \\ & - i \frac{\pi}{2} \omega_p(\vec{r}_1) [\delta(\omega - \omega_p(\vec{r}_1)) - \delta(\omega + \omega_p(\vec{r}_1))] \quad (1.14) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{Im} \left(\frac{\omega^2}{\omega^2 - \omega_p^2(\vec{r}_1)} \frac{1}{\omega^2 - \omega_p^2(\vec{r}_2)} \right) \xrightarrow{\omega \rightarrow \omega + i\eta} & -i \frac{\pi}{2} P \left(\frac{1}{\omega_p^2(\vec{r}_2) - \omega_p^2(\vec{r}_1)} \right) \\ & \times \{ \omega_p(\vec{r}_2) [\delta(\omega - \omega_p(\vec{r}_2)) - \delta(\omega + \omega_p(\vec{r}_2))] \\ & - \omega_p(\vec{r}_1) [\delta(\omega - \omega_p(\vec{r}_1)) - \delta(\omega + \omega_p(\vec{r}_1))] \} \quad (1.15) \end{aligned}$$

の結果を得る。Imは虚数部を表す。(1.14)式の虚数部と(1.15)式が素励起を表す。(1.13)式は3次元の解であるため、特にその第2項の物理的イメージの見通しは立てにくい。当該項がどの

ような過程を記述するものであるかは、第2章と第3章で解説する。また、(1.14)式の虚数部および(1.15)式は ω に関して奇関数であることを付記しておく。

なお、(1.1)式ならびに(1.13)式の第2項は $n(\vec{r})$ の勾配に依存するため、いわゆる Lindhard の自由電子ガス系での ϵ には現れてこない項である。この結果は重要である。

2. 非均一多電子系における阻止能理論

さて、(1.13)式の ϵ^{-1} を用いて阻止能理論を展開する。入射イオンの運動は古典的直進軌道によって記述する。入射イオンの古典的な直進軌道は、入射イオンの数密度を $\rho^{\text{ext}}(\vec{r}_2, t_2)$ とすれば、次式のように表わされる。

$$\rho^{\text{ext}}(\vec{r}_2, t_2) = \delta(\vec{\rho}_2 - \vec{b}) \delta(z_2 - Vt_2) \quad (\vec{r}_2 = (\vec{\rho}_2, z_2)) \quad (2.1)$$

ここで、イオンの進行方向はZ方向でその速度をVとする。また、 \vec{b} は入射イオンの系に対する衝突径数を表す。今、関数 $f(t)$ のフーリエ変換 $f(\omega)$ とその逆変数は次のように定義する。

$$f(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} dt f(t)e^{i\omega t}, \quad f(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega f(\omega)e^{i\omega t} \quad (2.2)$$

これにより $\rho^{\text{ext}}(\vec{r}_2, t_2)$ のフーリエ変換 $\rho^{\text{ext}}(\vec{r}_2, \omega)$ は

$$\rho^{\text{ext}}(\vec{r}_2, \omega) = \frac{1}{V} \delta(\vec{\rho}_2 - \vec{b}) e^{i\frac{\omega}{V}z_2} \quad (2.3)$$

となる。

イオンが多電子系を走ることによって生成される動的な分極ポテンシャルは、(2.3)式を用いて、 $\vec{r}-\omega$ 空間では

$$\phi(\vec{r}_1, \omega) = \int v_c(\vec{r}_1 - \vec{r}_3) \epsilon^{-1}(\vec{r}_3, \vec{r}_2, \omega) \rho^{\text{ext}}(\vec{r}_2, \omega) d\vec{r}_2 d\vec{r}_3 \quad (2.4)$$

で表わされる。 $v_c(\vec{r}_1 - \vec{r}_3)$ はイオンと電子間のクーロン相互作用を表わす。(1.13)式と(2.3)式を(2.4)式に代入することにより、 $\vec{r}-\omega$ 空間での動的な分極ポテンシャル $\phi(\vec{r}_1, \omega)$ を得ることができる。 $\phi(\vec{r}_1, \omega)$ をフーリエ逆変換すれば、 $\vec{r}-t$ 空間での当該ポテンシャル $\phi(\vec{r}_1, t_1)$ が得られる。

さて、阻止能Sは $\phi(\vec{r}_1, t_1)$ により、電磁気学的に次式のように定義される。阻止能が進行方向と逆方向に作用することを考慮すれば、

$$S = Z_1 e \nabla_{\vec{r}_1} \phi(\vec{r}_1, t_1) \Big|_{\vec{r}_1 = \vec{r}_b} \frac{\vec{V}}{V} \quad (\vec{r}_b = (\vec{b}, Vt_1)) \quad (2.5)$$

$$\phi(\vec{r}_1, t_1) = \phi(\vec{r}_1, t_1) - v_c(\vec{\rho}_1 - \vec{b}, z_1 - Vt_1) \quad (2.6)$$

ここで Z_1 は入射イオンの原子番号を表す。 $\phi'(\vec{r}_1, t_1)$ は $\phi(\vec{r}_1, t_1)$ からクーロンポテンシャルの部分
を引いたものである。これは、クーロンポテンシャルは入射イオン自身が作る場であって、電子が
存在しない真空中においても生ずる。イオンが真空中を走る場合にはエネルギー損失過程は起こ
らない。すなわち、動的分極ポテンシャル中の純クーロンポテンシャルはエネルギー損失過程に
寄与しない。(2.6)式でクーロンポテンシャルを差し引いてあるのはこうした理由からである。

$\phi'(\vec{r}_1, t_1)$ のグラディエントは電場を与える。入射イオン自身の位置に生じる入射イオンの進行方
向の電場の成分に、入射イオンの電荷 $Z_1 e$ を掛けたものが入射イオンに作用する力、すなわち、
阻止能を与える。以上により、阻止能は (1.13), (2.5), (2.6) の各式によって一般的に与えら
れる。なお、 $\vec{r}_0 = (\vec{b}, Vt_1)$ であるが、イオンの位置は量子力学的にはドブロイ波長のオーダーの不
確定度を持つ。したがって、以下の計算において、近似法によってはドブロイ波長のオーダーの不確
定度を考慮する。

さて、当該阻止能理論により導出される LDA 近似⁹⁾ の理論的位置付けを以下にまとめておく。

(1.13) 式の第 1 項、あるいは (1.14) 式から、平均イオン化エネルギー I を理論計算する際に使
用されている LDA 近似に該当する式が導出される。元来、LDA 近似は現象論的に近似されたもので
あり、その理論的根拠も明確にされてはこなかった。

逆誘電関数 ϵ^{-1} を次式のように (1.13) 式の第 1 項で近似すると

$$\epsilon^{-1}(\vec{r}_3, \vec{r}_2, \omega) - \delta(\vec{r}_3 - \vec{r}_2) = \frac{\omega_p^2(\vec{r}_3)}{\omega^2 - \omega_p^2(\vec{r}_3)} \delta(\vec{r}_3 - \vec{r}_2) \quad (2.7)$$

$$\frac{\omega_p^2(\vec{r}_3)}{\omega^2 - \omega_p^2(\vec{r}_3)} \xrightarrow{\omega \rightarrow \omega + i\eta} P\left(\frac{\omega_p^2(\vec{r}_3)}{\omega^2 - \omega_p^2(\vec{r}_3)}\right) - i\frac{\pi}{2} \omega_p(\vec{r}_3) [\delta(\omega - \omega_p(\vec{r}_3)) - \delta(\omega + \omega_p(\vec{r}_1))] \quad (2.8)$$

を得る。また、(2.5) 式のグラディエントは入射イオンの位置ベクトル \vec{r}_1 にのみに作用するから

$$\nabla_{\vec{r}_1} \phi'(\vec{r}_1, \omega) = \int \nabla_{\vec{r}_1} (v_c(\vec{r}_1 - \vec{r}_3)) [\epsilon^{-1}(\vec{r}_3, \vec{r}_2, \omega) - \delta(\vec{r}_3 - \vec{r}_2)] \rho^{\text{ext}}(\vec{r}_2, \omega) d\vec{r}_2 d\vec{r}_3 \quad (2.9)$$

となる。すなわち、 $\nabla_{\vec{r}_1}$ は $v_c(\vec{r}_1 - \vec{r}_3)$ のみに作用する。(2.7), (2.8), (2.9) 式を (2.5)
式に代入すると

$$S = -\frac{1}{2\pi} \frac{(Z_1 e)^2}{V^2} V \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \int dz_2 e^{-i\omega(t_1 - z_2/V)} \\ \times \left[\frac{\vec{p}_1 - \vec{b} + \vec{e}_z(z_1 - z_2)}{[(\vec{p}_1 - \vec{b})^2 + (z_1 - z_2)^2]^{3/2}} \times \left\{ P\left(\frac{\omega_p^2(\vec{b}, z_2)}{\omega^2 - \omega_p^2(\vec{b}, z_2)}\right) \right. \right. \\ \left. \left. - i\frac{\pi}{2} \omega_p(\vec{b}, z_2) [\delta(\omega - \omega_p(\vec{b}, z_2)) - \delta(\omega + \omega_p(\vec{b}, z_2))] \right\} \right] \Big|_{\vec{r}_1 = \vec{r}_B} \quad (2.10)$$

となる。ここで、 $\vec{r}_B = (\vec{b} + \Delta\vec{b}, Vt_1) = (\vec{b} + \hbar/mV\vec{e}_B, Vt_1)$ である。 $\Delta\vec{b}$ はドブロイ波長のオーダの不確定度を表し、物理現象は実験室系でも重心系でも同等なので、 $\Delta\vec{b} = \hbar/mV\vec{e}_B$ とする。 \vec{e}_z 、 \vec{e}_B はZ方向、 \vec{b} 方向の単位ベクトルを表す。ベクトル \vec{v} と $(\vec{r}_1 - \vec{b})$ は直交するからその内積はゼロとなる。したがって、

$$S = -\frac{1}{2\pi} \frac{(Z_1 e)^2}{V} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \int dz_2 e^{-i\omega(z_1 - z_2)/V} \\ \times \left[\frac{z_1 - z_2}{[(\Delta b)^2 + (z_1 - z_2)^2]^{3/2}} \times \left\{ P \left(\frac{\omega_p^2(\vec{b}, z_2)}{\omega^2 - \omega_p^2(\vec{b}, z_2)} \right) \right. \right. \\ \left. \left. - i \frac{\pi}{2} \omega_p(\vec{b}, z_2) [\delta(\omega - \omega_p(\vec{b}, z_2)) - \delta(\omega + \omega_p(\vec{b}, z_2))] \right\} \right] , \quad (2.11)$$

が得られる。

さて、ランダム系の阻止能は上記のSを用いて次式で表される。

$$-\frac{\Delta E}{\Delta z} = N_a \int d\vec{b} \int_{-\infty}^{\infty} dz_1 S . \quad (2.12)$$

z_1 による積分によって1原子に対するエネルギー損失値が得られる。これを衝突径数 \vec{b} によって積分し、標的原子の密度 N_a を掛けたものが $-\Delta E/\Delta z$ となる。したがって、(2.12)式中の z_1 による積分を(2.11)式に対して行えば

$$I_K = \int_{-\infty}^{\infty} dz_1 \frac{z_1 - z_2}{[(\Delta b)^2 + (z_1 - z_2)^2]^{3/2}} e^{-i\omega(z_1 - z_2)/V} \\ = \int_{-\infty}^{\infty} dz \frac{z}{[(\Delta b)^2 + z^2]^{3/2}} e^{-i\omega z/V} \quad (z = z_1 - z_2) , \quad (2.13)$$

を得る。ここで、特殊関数に関連した積分公式

$$\int_{-\infty}^{\infty} dz \frac{1}{[z^2 + a^2]^{3/2}} e^{iqz} = \frac{2|q|}{a} K_1(a|q|) \quad (a > 0) , \quad (2.14)$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} dz \frac{z dz}{[z^2 + a^2]^{3/2}} e^{iqz} = 2iq K_0(a|q|) \quad (a > 0) \quad (2.15)$$

を使用する。ここで、(2.15)式は(2.14)式をqで微分し、第2種変形ベッセル関数に関する漸化式

$$2 \frac{dK_1(z)}{dz} = -(K_0(z) + K_2(z)) , \quad (2.16)$$

$$\frac{2}{z} K_1(z) = K_2(z) - K_0(z) \quad , \quad (2.17)$$

を使用すれば得られる。以上より、(2.13)式の I_K は

$$I_K = -2i \frac{\omega}{V} K_0\left(\left|\frac{\omega}{V}\right| \Delta b\right) \quad , \quad (2.18)$$

となる。(2.18)式は ω に関して奇関数であることに着目してほしい。このため、(2.11)式の ω に関する積分は全体として偶関数で寄与するため、主値の部分の寄与はなくなり

$$\begin{aligned} -\frac{\Delta E}{\Delta z} &= \frac{(Z_1 e)^2 N_a}{2V^2} \int d\vec{b} \int dz_2 \omega_P(\vec{b}, z_2) \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \omega K_0\left(\left|\frac{\omega}{V}\right| \Delta b\right) \\ &\quad \times \left[\delta(\omega - \omega_P(\vec{b}, z_2)) - \delta(\omega + \omega_P(\vec{b}, z_2)) \right] \\ &= \frac{4\pi Z_1^2 e^4 N_a}{mV^2} \int d\vec{b} \int dz_2 n(\vec{b}, z_2) K_0\left(\frac{\hbar\omega_P(\vec{b}, z_2)}{mV^2}\right) \\ &= \frac{4\pi Z_1^2 e^4 N_a}{mV^2} \int d\vec{r} n(\vec{r}) K_0\left(\frac{\hbar\omega_P(\vec{r})}{mV^2}\right) \quad , \end{aligned} \quad (2.19)$$

の結果が得られる。

さて第2種変形ベッセル関数 K_0 の引数が小さければ、第1種および第2種変形ベッセル関数 I_0 、 K_0 に対して次の漸化式が成立する。

$$K_0(z) \approx -I_0(z) \left(\gamma + \log \frac{z}{2} \right) + \frac{z^2}{4} + \dots \approx \log \frac{z}{2} - \gamma \quad . \quad (2.20)$$

$$I_0(z) \approx 1 + \frac{z^2}{4} + \dots \approx 1 \quad . \quad (2.21)$$

$\gamma = 0.5772$ はオイラー一定数である。したがって、(2.20)式の K_0 の漸近形を(2.19)式に代入すれば

$$\begin{aligned} -\frac{\Delta E}{\Delta z} &= \frac{4\pi Z_1^2 e^4 N_a}{mV^2} \int d\vec{r} n(\vec{r}) \left[\log\left(\frac{2mV^2}{\hbar\omega_P(\vec{r})}\right) - \gamma \right] \quad , \\ &= \frac{4\pi Z_1^2 e^4 N_a}{mV^2} \int d\vec{r} n(\vec{r}) \log\left(\frac{2mV^2}{\chi \hbar\omega_P(\vec{r})}\right) \quad , \end{aligned} \quad (2.22)$$

となる。ただし、 $\chi = e^\gamma = 1.7812$ である。

(2.22)式はいわゆるLDA近似と同形の結果を与える。しかしながら、(2.22)式の空間 \vec{r} に関

する積分には、(2.19)式からも理解できるように、衝突径数に関する積分などの物理的意味が含まれている。このことは単なる空間に関する密度の重みを掛けた平均を、当該項以外の場合にも適用してよいというものではないことを意味している。これは、 Π に対して成立した総和則と共に、逆誘電関数 ϵ^{-1} の第1項が座標空間的にも等方的な結果を与える唯一の項であることによる。したがって、他の量を求める場合にも、こうした平均化が理論的に可能であるというわけではない。以上により、阻止能理論におけるLDA 近似の理論的位置付けを明確に示すことができた。

3. 1次元系での阻止能

3.1 一般式

電子密度が1次元的に変化すると見なすことができる多電子系の阻止能を考える。これにより、(1.13)式の第2項が物理的にどのような意味を持つものであるのかを考察する。当該系には、面チャネリングや表面の問題が想定される。

今、電子密度 n を X 座標の関数 $n(x)$ であるとし、電子密度は Y, Z 座標方向では平均化された一定の値を持つものとする。このような系は一種の連続近似に対応するもので、入射イオンの速度が高速の場合に成立する。電子密度 $n(x)$ が x のみの関数であるため、 Y, Z 方向には系の並進不変性が成り立つ。このため阻止能を導出する際の数学に要する労力がかなり緩和される。

1次元系での阻止能の一般式は次式のように表される。導出過程の詳細は文献8を参照していただきたい。

$$\begin{aligned}
 S = & \frac{(Z_1 e)^2}{V^2} \left\{ \omega_p^2(b) \int_0^{q_{\max}} \frac{dq_y}{[q_y^2 + (\omega_p(b)/V)^2]^{1/2}} \right. \\
 & - \frac{1}{2} \int dx_3 \frac{\partial \omega_p^2(x_3)}{\partial x_3} \frac{b - x_3}{|b - x_3|} P \left(\frac{1}{\omega_p^2(b) - \omega_p^2(x_3)} \right) \\
 & \times \left[\omega_p^2(b) \int_0^{q_{\max}} \frac{dq_y}{[q_y^2 + (\omega_p(b)/V)^2]^{1/2}} e^{-2|x_3 - b| [q_y^2 + (\omega_p(b)/V)^2]^{1/2}} \right. \\
 & \left. \left. - \omega_p^2(x_3) \int_0^{q_{\max}} \frac{dq_y}{[q_y^2 + (\omega_p(x_3)/V)^2]^{1/2}} e^{-2|x_3 - b| [q_y^2 + (\omega_p(x_3)/V)^2]^{1/2}} \right] \right\}, \quad (3.1)
 \end{aligned}$$

となる。

$$\int_0^{q_{\max}} \frac{dq_y}{[q_y^2 + (\omega_p(b)/V)^2]^{1/2}} = \log \left[\frac{q_{\max} V}{\omega_p(b)} + \left(\frac{q_{\max}^2 V^2}{\omega_p^2(b)} + 1 \right)^{1/2} \right], \quad (3.2)$$

であるが、 $hq_{\max} = mV, q_{\max}V/\omega_p(p) \gg 1$ の場合、(3.2)式はいわゆるBetheの式となる。

(3.1)式には重要な内容が含まれている。この点を議論するため、電子密度 $n(x_3)$ が

$$n(x_3) = n_0\Theta(-x_3) \quad , \quad (3.3)$$

のように半無限空間で一様に分布する系(ステップ型モデル)の問題を解くこととする。 Θ はヘビサイドのステップ関数であり、次式で定義される。

$$\Theta(z) = \begin{cases} 1 & (z > 0) \\ \frac{1}{2} & (z = 0) \\ 0 & (z < 0) \end{cases} \quad . \quad (3.4)$$

こうした系の場合

$$\frac{1}{2} \frac{\partial \omega_p^2(x_3)}{\partial x_3} = -\omega_s^2 \delta(x_3) \left(\omega_s^2 = \frac{\omega_p^2}{2} = \frac{2\pi e^2 n_0}{m} \right) \quad , \quad (3.5)$$

となり、(3.1)式の x_3 に関する積分を即座に実行できる。(3.5)式を(3.1)式に代入して S を求めれば、容易に次の結果を得ることができる。

$$\begin{aligned} S = & \frac{(Z_1 e)^2}{V^2} \left\{ \omega_p^2 \Theta(-b) \log \left[\frac{q_{\max} V}{\omega_p} + \left(\frac{q_{\max}^2 V^2}{\omega_p^2} + 1 \right)^{1/2} \right] \right. \\ & - \omega_p^2 \Theta(-b) \int_0^{q_{\max}} \frac{dq_y}{\left[q_y^2 + (\omega_p/V)^2 \right]^{1/2}} e^{-2|b| \left[q_y^2 + (\omega_p/V)^2 \right]^{1/2}} \\ & \left. + \omega_s^2 \int_0^{q_{\max}} \frac{dq_y}{\left[q_y^2 + (\omega_s/V)^2 \right]^{1/2}} e^{-2|b| \left[q_y^2 + (\omega_s/V)^2 \right]^{1/2}} \right\} \quad (3.6) \end{aligned}$$

(3.6)式は、(3.3)式で示されるいわゆるステップ型モデルの枠内の理論の結果に一致しており^{10), 11)}、 ω_p 、 ω_s はバルクならびにサーフェスプラズモンの角周波数を与える。(3.6)式の物理的意味は次のようになる。第1項はバルクプラズモンの励起による阻止能を与える。第2項は表面付近での反射プラズモンによりバルクプラズモンが壊れていく過程に対応し、バルクプラズモン励起による阻止能にネガティブな寄与を与える。この項には、表面付近でバルクプラズモンがwell definedでなくなる効果が含まれている。第3項は、表面での電子密度の変化によって、新たにwell definedとなったサーフェスプラズモン励起による阻止能を与える。この寄与は表面付近に限られる。

(3.6)式の第2項、第3項中の q_{\max} に対して $q_{\max} \rightarrow \infty$ の近似を用いれば

$$\int_0^{q_{\max}} \frac{dq_y}{[q_y^2 + (\omega_i/V)^2]^{1/2}} e^{-2|b| [q_y^2 + (\omega_i/V)^2]^{1/2}} \xrightarrow{q_{\max} \rightarrow \infty} K_0\left(2\omega_i \frac{|b|}{V}\right), \quad (3.7)$$

のように第2種変形ベッセル関数 K_0 で表現できる。この表示の場合、引数がゼロとなるところで発散するが（この発散は量子論に基づく不確定性関係によって回避される）、散乱問題の半古典的取扱いの理論ではよく用いられる。（3.7）式を（3.6）式に適用すれば、（3.6）式は（3.3）式のステップ型モデルによるNúñezらの結果¹⁰⁾に一致する。

以上、（3.1）式をステップ型モデルに適用したが、（3.1）式には多電子系の電子密度が任意関数 $n(x_3)$ として考慮されているという重要な意味が含まれている。このことは、（3.1）式によって、ステップ型モデルでは扱えない多くの1次元系の問題を扱うことができる。換言すれば、ステップ型モデルはマクロ的な電磁気学での鏡像法に対応するものであり、鏡像法が適用できなくなる原子サイズのオーダの問題は、（3.1）式によってはじめて扱えるということである。

上述したステップ型モデルの場合、波動的なイメージで物理現象を解釈できるため、現象を把握しやすいが、（3.1）式の第2項、第3項の物理的解釈も基本的に同様なものになる。また、電子密度 n の傾き $\partial n(x_3)/\partial x_3$ を含む項はいわゆる自由電子ガスモデルでは現れない項である。したがって、この項による効果は、自由電子ガスモデルやその修正モデルでは記述できない。（1.13）式からも理解できるように、このことは3次元の場合についてもいえる重要な結論である。

3.2 面チャネリング

1次元系の問題を扱うため、格子面によって構成される連続面との非弾性散乱を扱う。こうした非弾性散乱のモデル化は入射イオンが高速の場合によい近似となり、面チャネリングや表面散乱が当該モデルに該当する。

面チャネリングでもよく知られているように、連続面ポテンシャル $V(x)$ はMolieréポテンシャル¹²⁾

$$\Phi(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{r} \left(0.35e^{-Br} + 0.55e^{-4Br} + 0.1e^{-20Br} \right), \quad (3.8)$$

から

$$\begin{aligned} V(x) &= \frac{2\pi}{\sigma_c} \int_0^\infty r_\perp dr_\perp \Phi\left([x^2 + r_\perp^2]^{1/2}\right) = \frac{2\pi}{\sigma_c} \int_{|x|}^\infty t dt \Phi(t) \\ &= \frac{2\pi Z_1 Z_2 e^2}{\sigma_c B} \left(0.35e^{-B|x|} + 0.1375e^{-4B|x|} + 0.005e^{-20B|x|} \right), \end{aligned} \quad (3.9)$$

のようになる。ここで、 Z_2 は標的原子の原子番号、 $B=0.3/a_{TF}$ 、 $a_{TF}=0.468(Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{-2/3}$

であり、 a_{TF} はThomas-Fermiの遮蔽半径である。(3.9)式の第1項～第3項は、それぞれ原子の外殻、中間の殻、内殻電子からの寄与に対応する。 σ_c^{-1} は面を構成する格子原子の面密度である。チャンネル面の間隔を $2L$ 、原子の密度を N_a とすれば $N_a = 1/(\sigma_c \times 2L)$ の関係がある。

Molierieモデルに基づけば、電子密度 $\rho(r)$ は、(3.9)式のポテンシャル $\Phi(r)$ とポアソンの方程式により

$$\rho(r) = \frac{Z_2 B^2}{4\pi r} \left(0.35e^{-Br} + 8.8e^{-4Br} + 40e^{-20Br} \right), \quad (3.10)$$

となる。 $\rho(r)$ は数密度を表す。(3.8)式から(3.9)式を導出したのと同様な方法によって、連続電子密度 $n(x)$ を求めると次式を得る。

$$n(x) = \frac{Z_2 B}{2\sigma_c} \left(0.35e^{-B|x|} + 2.2e^{-4B|x|} + 2e^{-20B|x|} \right). \quad (3.11)$$

$Z_1 = 2(\text{He}^+)$, $Z_2 = 79(\text{Au})$, Au [100] 面の場合についての $n(x)$ の数値計算の結果を図1に示す。

さて、Robinsonは面チャネリングに関する阻止能実験のデータを解析し、次のようなチャンネル面に対する阻止能 S_R の衝突径数依存性を現象論的に求めた^{13), 14)}。

$$S_R = s_0 + s_1(\sigma(x) - 1) \quad (3.12)$$

$$V_p(x) = V(L+x) + V(L-x) \quad (-L \leq x \leq L) \quad (3.13)$$

$$\sigma(x) = \frac{d}{dx} \left[\frac{2}{V_p''(0)} \{V_p(x) - V_p(0)\} \right]^{1/2} \quad (3.14)$$

$V(x)$ は(3.9)式で表される連続面ポテンシャルである。 $V(x)$ として(3.9)式の第1項のみを考慮すれば

$$\sigma(x) \approx \cosh\left(\frac{B}{2}x\right), \quad (3.15)$$

となる。 S_R は理論と実験の橋渡しの役割を果たすものである。

面チャネリングの阻止能は、格子面からの衝突係数 b に依存した阻止能 S (S は(3.1)式に(3.11)式を代入し数値積分して求める)を、次式のように各面に対して重ね合わせることで得られる。

$$\sum_{i=-n}^{i=n} [S(iL-x) + S(iL+x)] \Rightarrow S(x) \quad (\text{面チャネリングの阻止能}). \quad (3.16)$$

x はチャンネル面間の中点を原点とする座標を表す。また、面に対する和は、遠隔相互作用の効果をも十分に取り入れるため、 $n=5$ とした。

図2に、Au [111] 面に入射した3 MeV He^+ の場合を示す。 $L=1.18\text{\AA}$ である。 S_R は(3.1)式

のBethe項に対応する第1項のみを用いた場合の阻止能を表す。各阻止能は面チャンネルの中央で規格化してある。図より、面チャンネルがwell definedである領域では、 S と S_R の一致は十分よいことがわかる。これに対し、 S_B は x の増加と共に急激に立ち上がる。チャンネル面に近づくにつれ、 S と S_R の差が増大する。これは、 x のどれ位の領域のところまで面チャンネルがwell definedであるかに関連する。チャンネルするイオンは、結晶の格子原子との近接衝突を避けた軌道を描く。このため、その阻止能はランダム系での阻止能に比べかなり小さくなる。 S にみられる面の近傍の領域の立ち上がりは決して不思議ではなく、ランダム系での阻止能の測定値から判断すれば、むしろリーズナブルである。面チャンネルの阻止能の弱い x 依存性は、(3.1)式の第2～3項(電子密度の勾配に依存する項)による遠隔相互作用(電子に対する)による寄与によって生じる。事実、弱い x 依存性を、従来のように面に接近する程内殻励起をしにくくなるということから説明することには無理がある。図2の結果は上の定性的な議論を裏付けている。

4. おわりに

非均一多電子系における誘電応答理論は近年確立されつつある分野である。第1章では当該系での誘電応答理論、第2章でと誘電関数法による阻止能理論、第3章ではその適用例としての1次元系での阻止能(面チャンネルイオンの阻止能)について述べてきた。また、自由電子ガス系の誘電関数理論では現れない、電子密度の勾配に依存する項の物理的意味とその重要性について論じてきた。近年、面チャンネルイオンの阻止能のみならず、表面散乱に関するイオン阻止能の当該理論と実験の比較も開始されており¹⁵⁾、従来の理論では説明し得なかった問題が解決されてきている。

第1章ならびに第2章でも述べたように、非均一多電子系における誘電応答理論は1次元系のみには留まるものではない。また、自由電子ガス系の誘電関数理論からも対応づけられるように(分散や個別電子励起項など)、 ω^{-1} 以降の高次の項の解析も重要である。これらの問題をいかに解析的に解法するかが今後の課題となろう。

文 献

- 1) J. Lindhard, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat.-Fys. Medd. 28, No. 8 (1954).
- 2) D. Pines, Elementary Excitations in Solids, (W. A. Benjamin, New York, 1964).
- 3) L. Hedin and S. Lundqvist, Solid State Phys., 23, 2 (1969).
- 4) A. L. Fetter and J. D. Walecka, Quantum Theory of Many-Particle Systems (McGraw-Hill, New York, 1971).
- 5) S. Lundqvist and M. H. March, Theory of the Inhomogeneous Electron Gas (Plenum, New York, 1983).
- 6) Yu. E. Lozovik and A. V. Klyuchniki, The Dielectric Function of Condensed System

(North-Holland, New York, 1989 edited by L. V. Keldysh, D. A. Kirzhnits and A. A. Maradudin).

- 7) M. Kitagawa, Nucl. Instr. and Meth. B13, 133 (1986).
- 8) M. Kitagawa, Nucl. Instr. and Meth. B33, 409 (1988).
- 9) J. Lindhard and M. Scharff, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat.-Fys. Medd. 34, No.15 (1953).
- 10) R. Núñez, P. M. Echenique and R. H. Ritchie, J. Phys. C13, 4229 (1980).
- 11) R. Kawai, N. Itoh and Y. H. Ohtsuki, Surf. Sci. 114, 137 (1982).
- 12) G. Moliere, Z. Naturforsch. A2, 133 (1947).
- 13) M. T. Robinson, Phys. Rev. 179, 327 (1969).
- 14) D. V. Morgan, Channeling (John Wiley & Sons, New York, 1973).
- 15) Y. Fujii, K. Narumi, K. Kishine, K. Kimura and M. Mannami, to be published in Nucl. Instr. and Meth. B.67, 82(1992) .

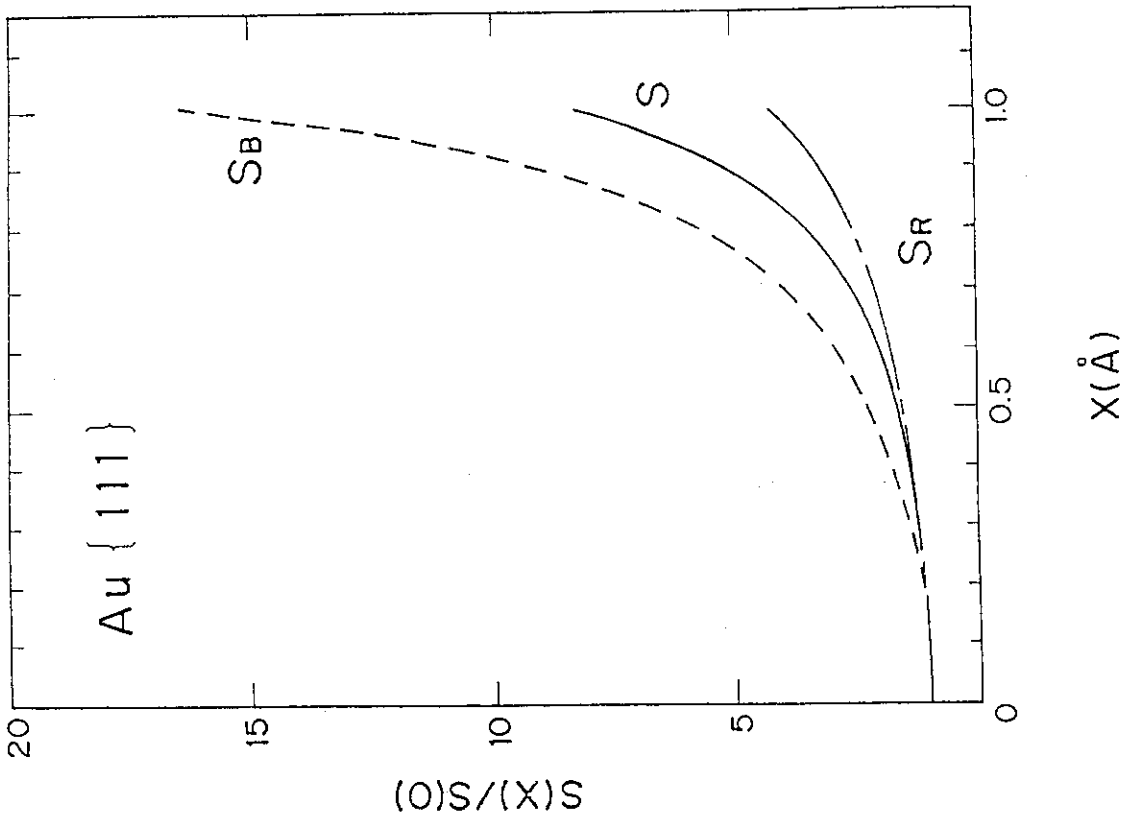


図2 面チャネルリングイオン阻止能の x 依存性 (S, S_R と S_B の比較。3 MeV He^+ , Au {111} の場合)。

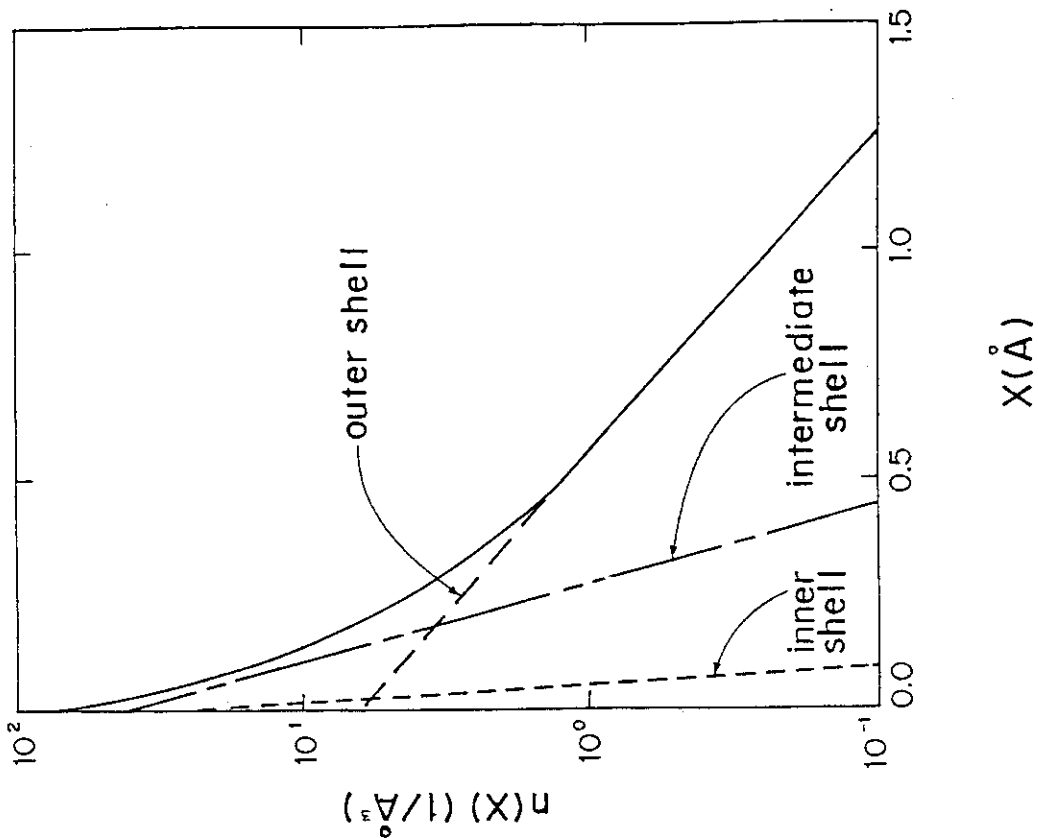


図1 Au {100} に対する電子密度

10. 第5回核融合炉材料国際会議 (ICFRM-5) 報告

原研 菱沼章道, 阪大 田辺哲朗

一昨年の京都会議に続く標記国際会議はほぼ2年毎に開けているもので、第5回に当たる今回はオークリッジ国立研究所がホストでクリアウォーター（フロリダ州、米国）で開かれた。12カ国からなる会議参加者は約300名で、そのうち日本及びECからは約90と60名でホスト国である米国を除けば主な参加国である。そのほかソ連15名、カナダ7名、中国5名等となっている。日本からの出席者は相変わらず多数を占めたが、核融合炉関連の最近の国際活動を反映してソ連からもこの種の会議では珍しく多かったことが特徴であろう。

会議は21世紀のエネルギー源としての核融合炉の役割をエネルギー消費量と地球温暖化及びコストを考えたときの意義とその開発戦略に関する基調講演で開始された。材料開発研究との関連では、近視眼的に次期装置に固執することなくDEMO炉以降の見通しを持った開発戦略こそ融合炉実現の道を開くものであり、今リードタイムの長い材料開発に力を注ぐことの重要性が強調された。

全体の論文数は約420編で、その分布状況は現在の国際熱核融実験炉 (ITER: International Thermonuclear Experimental Reactor) の設計研究で最も困難に直面しているプラズマ対向材料に関するものが非常に多く、従来から多数を占めている照射損傷の研究論文数 (全体の1/5強) に次いで全体の約1/5を占めた。主な内容は、核融合炉開発に関する最近の動きであるITER計画に呼応したいわゆる次期装置がらみの研究、DEMO炉またはそれ以降を目指した研究、核融合中性子損傷機構に関する研究及び照射技術、照射施設に関する研究に大別される。一方材料の観点からは、プラズマ対向材料、構造材料、増殖材料、機能セラミックス材料に分けることが出来る。以下材料別に主なトピックスを炉工学的観点から概説する。

プラズマ対向材料では、現在の大型トカマク、ITERの物理段階において使われ且つ有力候補材料になっていることから炭素材料に関するものが多かった。炭素材料は水素吸蔵の問題もあるが、表面損耗、とくに照射加速による昇華が1200℃以上で激しくなることがより大きな課題の一つである。炭素材料はボロン添加によって化学スパッタリングが低減する報告があるが、この場合熱伝導度が下がることによる表面温度の上昇が起こり、昇華し易くなるなど現象は複雑である。炭素材料の一つとして炭素繊維強化炭素材料 (C/C コンポ) が、低原子番号、耐熱衝撃性が優れているということから関心が高いが、この材料のもう一つの特徴は通常セラミックスにくらべ、仕様を比較的自由に換えられるということ、いわば“Tailored”出来ることである。ダイヤモンド膜も浮上してきているが照射による黒鉛化や熱伝導度低下が問題になりそうである。炭素系材料使用の工学的安全性の観点から大きな問題の一つとして、水蒸気との反応も挙げられよう。熱伝導度はまた、照射によって特に低温側で著しく低下することも工学的にみて大きな関心事である。この照射効果が炭素系材料のITERの後期 (工学段階) への適用が危惧されている重要な原因となっている。

ステンレス鋼はITERの構造材料に選定されているため、その照射研究はITERでの使用条件

(400 °C以下、水冷却)を考慮した研究に的が絞られつつある。現実的な重要な課題としては、前回の会議で提起された照射による著しい延性低下や照射誘起腐食、疲労特性等である。これらの問題に係わる照射誘起偏析や析出等の現象がより詳細に理解できるようになりつつある。これらの実験では核融合炉材料の重要な損傷パラメータであるHe/dpaの比を核融合炉条件に模擬した実験、いわゆるスペクトル調整照射実験の重要性も明らかにされた。また、ダイバータ、リミタ材を支持する構造材料としての銅及び銅合金に関する発表も多くみられたことも本会議の特徴である。これらの照射実験は余り進んでいないが、重要なポイントはダイバータ材と支持構造部材との接合部にあるようである。DEMO炉以降の材料としては、フェライト鋼、バナジウム合金を中心とする金属材料の他、まだ緒についたばかりであるがSiC等将来有望なセラミックス構造材料に関する研究も紹介された。これらの材料はまた低放射化材料の観点からも研究が進められている。フェライト鋼では、主構成元素の一つであるモリブデンをタングステンで置き換えた低放射化フェライト鋼がこれまでの材料に比べて遜色のない特性を有することなど低放射化材料の開発の可能性が明らかにされた。有望な材料としては(8-9)Cr-2W系である。フェライト鋼の共通の問題としては、依然として照射による延性脆性遷移温度(DBTT)の照射による上昇であり、このDBTTがヘリウムの存在によって高温側にさらにシフトする事である。バナジウム合金の照射データはかなり集積されてきている。種々の合金の中で、V-Cr-Ti系が有望視されている。高純度化の問題もまだ実験室規模ではあるが明るい見通し示された。残されている大きな問題としては、製造、加工性や安全性に係わる耐酸化性及び侵入型不純物やヘリウムの影響等が指摘されている。

トリチウム増殖材の候補材としては、それぞれ特徴を持つ数種のリチウム酸化物が考えられているが、データベースの豊富さからは Li_2O 、寸法の安定さからは LiAlO_2 、 Li_2ZrO_3 が、トリチウム放出からは Li_2ZrO_3 が良さそうであるが、現状ではどれとは確定できていない。これまでデータの少なかつた Li_4SiO_4 が熱特性、化学的安定性に関するデータも特にECの努力で充実してきたが、これはECがDEMO炉の増殖材として Li_4SiO_4 を考えているためである。トリチウム放出挙動に関しては、表面反応過程の解析や機構の解釈では進展が見られた。しかし表面反応については、損傷による表面欠陥との関連を調べる事が今後に残された課題である。今回の特徴の一つは、液体 $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ 使用時の構造増材のトリチウム透過、ベリリウムと増殖材料との両立性及びベリリウムの照射効果等これまで少なかった領域の論文が多く見られたことである。これらの中性子増倍材のデータは、これまで増殖材料に比べて非常に少ない。特に照射効果に関してはIETR設計上データの集積が急務であるにも係わらず実験が進んでいないようである。国際協力活動の成功例としてBEATRIX-IIの中間報告があったが、この協力実験はITERブランケット設計へのデータベースの点からも貢献度が大きい。

絶縁材に関しては、照射下での電気的特性の測定がなければ意味がないことが強調された。電気的特性は、機械的特性に比べ照射によって大幅に変化する。例えば、電気伝導度は照射によって2~3桁容易に増加する。これはまた、照射中の電場の有無によっても大きな影響を受ける。熱伝導度については照射下での測定例が極めて少ない。またセラミックスはこれまで絶縁材としての高周波窓材や電気絶縁材に注目されてきたが、ITERでは炉内診断用に用いられる機器、計測素子、信

号ケーブルなど計測要素材の耐放射線性が緊急の課題であることが指摘された。

そのほか照射損傷の研究では、分子動力学法による損傷シミュレーション実験が紹介された。最近のスーパーコンピューターを駆使して、カスケード損傷を再現するなど実験と比較できるところまで近づいている印象を受けた。カスケード損傷は、その損傷の中心部が瞬時（ピコ秒オーダー）に溶融し、そして固まる過程で転位ループが形成されるという新しい機構が提案された。照射設備については、高エネルギー高束中性子源の必要性が会議を重ねる毎に及び損傷研究の進展と共に多くの研究者の共通認識となりつつあることを強く感じた。これは高速炉中性子と核融合炉中性子の材料損傷に及ぼす影響が大きく異なることが認識されてきた結果であると考えられる。

以上全体を足早に概観したが、各分野の人が多く出席したので、詳細は、特に論文数としても多かった照射損傷の基礎的部分は割愛したので、それぞれの専門の方にお尋ねするようにお願いしたい。前記したように今回はソ連の参加者が多く、実際には85件のエントリーをしていたが、そのうち42件以上が中止になったとのことである。発表申込締切が3月末であったので、講演予稿集では住所がLeningradになっていたが、当日のポスターセッションでは、St. Petersburgとなっていた。ソ連の体制変革による地名復帰が10月1日に行われた結果を目のあたりにした。会場から車で約1時間のところにダリ美術館のある同じ名前の都市があるが、ソ連から1992年の9月に St. Petersburg で核融合炉材料に関する国際会議をやるという勧誘のアナウンスがあり偶然の一致に驚いた。

11. 金属薄膜中に打ち込まれた水素の捕捉・再放出・透過挙動

東北大金研 山本春也*，永田晋二，山口貞衛

1. はじめに

核融合装置において、水素リサイクリングはプラズマのエネルギーバランスや粒子バランスに影響を与えるのみならず、トリチウムの装荷量と安全取扱いの観点からも重要である。本研究はプラズマと壁とを往来する水素同位体粒子の挙動に関与する基礎的過程を調べることを目的とし、水素同位体イオンを各種金属薄膜試料に入射させ、試料から再放出される水素量、蓄積水素量、及び透過水素量の変化を測定することにより、材料中の水素挙動の定量的な評価を試みた。

2. 実験方法

薄膜中に打ち込まれた水素の定量は透過型反跳粒子検出法により行った。図1に実験装置の概要を示す。解析ビームには0.8mmφにコリメートされた3.4MeVの ${}^4\text{He}$ ビームを用いた。また、反跳粒子の検出は前方 10° の位置に置かれたSSDにより行った。水素の打ち込みはイオン銃により5keVに加速された D_2^+ イオンを 135° の方向より入射することにより行った。

試料は厚さ1.1~2.4 μm のAl, Ni, Cu及びSUS304である。各薄膜試料には透過水素とゲッターする目的で裏面に厚さ0.2 μm のZr膜をスパッター蒸着している。

本実験では試料に D_2^+ ビームを照射しながら、同時に ${}^4\text{He}^+$ の解析ビームを入射することにより、試料中に打ち込まれた重水素の濃度分布を“その場”観察した。

3. 実験結果及び考察

温室近傍の温度で5keVの D_2^+ を注入したNi, Cu及びSUS304試料の重水素濃度分布の注入量に対する変化を図2に示す。Cuに打ち込まれた重水素は注入面近傍に多く蓄積するが、膜の中を透過してZr層中に捕捉されている重水素量はごく僅かである。注入量の増加に伴い、それぞれの重水素量は共に増加するが、試料の内部に蓄積する重水素は注入量が高い場合でも濃度の分布を評価できる程度(0.2at%以上)に達しなかった。

一方、SUS304では注入重水素の大部分は透過し、注入面近傍および試料内部に蓄積する重水素の量は少ない。Niの場合はCuとSUS304の中間的な状態であり、かなりの量の重水素が薄膜を透過し、また注入面近傍にも蓄積する。この場合にも試料内部に蓄積する重水素の量はごく僅かである。

* 現在：日本原子力研究所 高崎研究所

Al 薄膜においても重水素透過の測定を行なった。室温においては、注入量が $5 \times 10^{17} \text{D/cm}^2$ を越えた場合でも、透過重水素量は測定が困難な程少量であった。

上記のような実験結果を基にして、各種金属薄膜に打ち込まれた重水素の蓄積量、透過量及び再放出量の注入量依存性を求めることができる。すなわち、試料中に存在している重水素量より蓄積量が、Zr膜に捕捉された重水素量より透過量が、注入量より蓄積量と透過量を差し引くことにより再放出量が求まる。Ni 薄膜において得られた蓄積量、透過量及び再放出量の注入依存性を図3に示す。蓄積量は注入量が $2 \times 10^{17} \text{D/cm}^2$ を越えると一定の値に近づき飽和する傾向を示す。それと同時に、透過量及び再放出量曲線は次第に直線的になり、透過率及び再放出率共に一定の値に近づき定常状態になることが認められた。同種の測定を種々の温度で行うことにより、定常状態における透過率と再放出率の温度変化を求めた。図4にNi, Cu及びSUS304に対する透過率と再放出率の温度変化を、図5にAlにおいて得られた結果をそれぞれ示す。Al, Cu, Ni, SUS304の順で再放出率は減少して透過率が増加すること、更に温度の上昇に伴い、全ての試料において、透過率は増加して再放出率が減少することが認められる。

材料中に打ち込まれた水素の透過・再放出挙動は水素の固体内における拡散と表面における分子再結合により律速される。欠陥等によるトラップ効果がない場合、定常状態における材料中の水素濃度分布は、水素輸送を律速する過程に依存し、図6に示すモデルで表わすことができる。このモデルより、注入粒子束 Φ 、再放出粒子束 J_R 、透過粒子束 J_P は

$$\Phi = J_R + J_P \quad (1)$$

$$J_R = D_1 (C_R - C_1) / R \quad (\text{拡散律速})$$

$$= K_r C_1^2 \quad (\text{再結合律速}) \quad (2)$$

$$J_P = D_2 C_R / (T - R) \quad (3)$$

となる。ここで、 C_1 、 C_2 および C_R は表面、裏面および投影飛程Rにおける水素濃度、Dは水素の拡散係数、 K_r は分子再結合係数、Tは試料の厚さである。また、試料内の深さxにおける水素濃度C(x)は

$$C(x) = (C_R - C_1) \cdot x / R + C_1 \quad (0 \leq x \leq R)$$

$$C(x) = C_R (T - x) / (T - R) \quad (R \leq x \leq T) \quad (4)$$

となる。本実験において、試料薄膜の裏面にはZr膜が蒸着されている。Zrは透過水素に対してシンクとして働くので、裏面における水素濃度は、 $C_2 = 0$ となる。

注入水素の再放出が拡散律速で且つ $D_1 = D_2$ の場合の再放出粒子束 J_R と透過粒子束 J_P の比は、

$J_R / J_P = (T - R) / R$ となり、試料の厚さTと投影飛程Rによって決まる定数となり、拡散係数や分子再結合係数に依存しない。

図7にNi, CuおよびSUS304に対する再放出粒子束 J_R と透過粒子束 J_P との比の温度変化を示す。注入水素の再放出が拡散律速である場合、各試料について J_R / J_P を求めると、Cuでは49, Niでは62及びSUS304では99となる。これらの値を図7に示すが、いずれの場合も測定値は拡散律速の場合の期待値よりも低く、従ってこれらの試料の再放出過程は表面再結合により律速されていることが明らかになった。

一方、図5に示されているように、Alに打ち込まれた重水素の J_r/J_p 比は低温度 (<360K) では、拡散律速で期待される値の $J_r/J_p=47.6$ よりも大きく、高温度 (>360K) ではこの値よりも小さい。これは Alに打ち込まれた重水素の輸送を律速する過程が温度により異なることを示すものであり、高温度では分子再結合が低温では拡散が律速過程であることを示している。更に、低温の J_r/J_p 比の値が期待値より大きい値を示すことは注入面側への拡散が透過面側への拡散よりも速いことを示唆するものと思われる。

前述の再放出粒子束 J_r と透過粒子束 J_p に対する関係式(1)-(4)より、注入面における分子再結合係数 K_r は、

$$K_r = \frac{J_r D^2}{(J_p (T-R) - J_r R)^2} \quad (5)$$

となる。したがって、実験より得られた J_r/J_p 、及びD、R、Tの値を(5)式に代入することにより、種々の温度における分子再結合係数を求めることができる。

図8にNi、Cu、SUS304に対する再結合係数の実測値をこれ迄に報告されている実験値と併せて示す。Cuに対する結果は従来報告された値よりも3桁程大きい値が得られたが、Ni及びSUS304においては、従来報告されているデータのばらつきの範囲内であり、温度依存性も一致している。

4. まとめ

透過型反跳粒子検出法により、Al、Ni、Cu及びSUS304薄膜に打ち込まれた重水素の濃度分布を測定し、これらの薄膜内における重水素の捕捉・再放出・透過挙動を調べた。Ni、Cu及びSUS304においては注入重水素の再放出は表面の分子再結合により律速されること、また Alでは、低温度 (<360K) で拡散が、高温では分子再結合が律速することを見出した。Ni、CuおよびSUS304において、注入水素の定常状態における再放出率と透過率を種々の温度で測定し、これら金属における表面分子再結合係数を評価した。

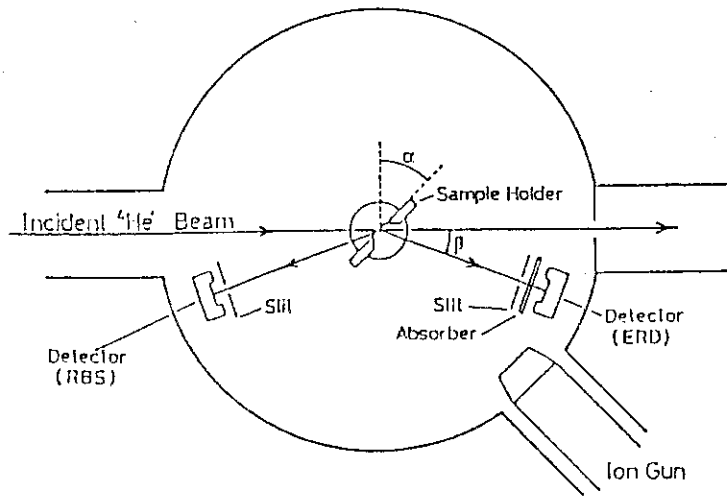


図1 実験装置の模式図

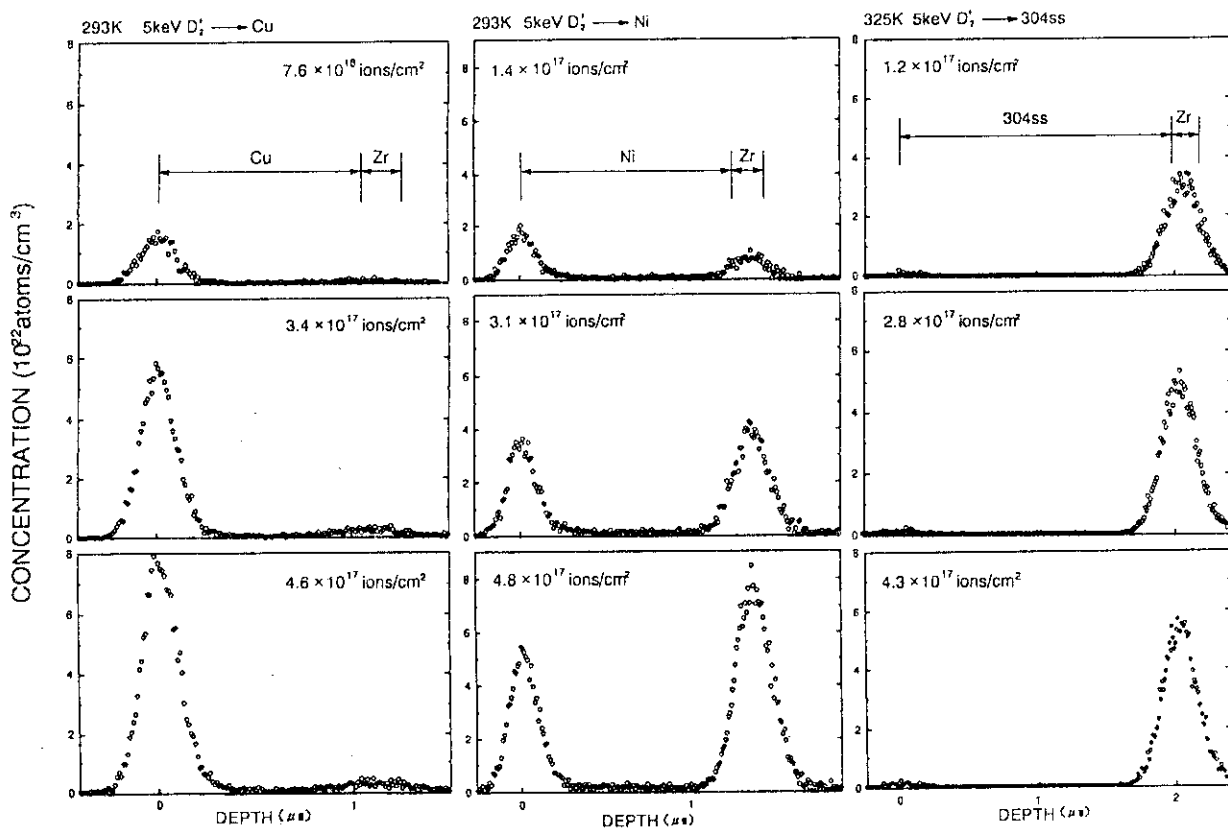


図2 Cu, NiおよびSUS304に打ち込まれた重水素の濃度分布の注入量依存性

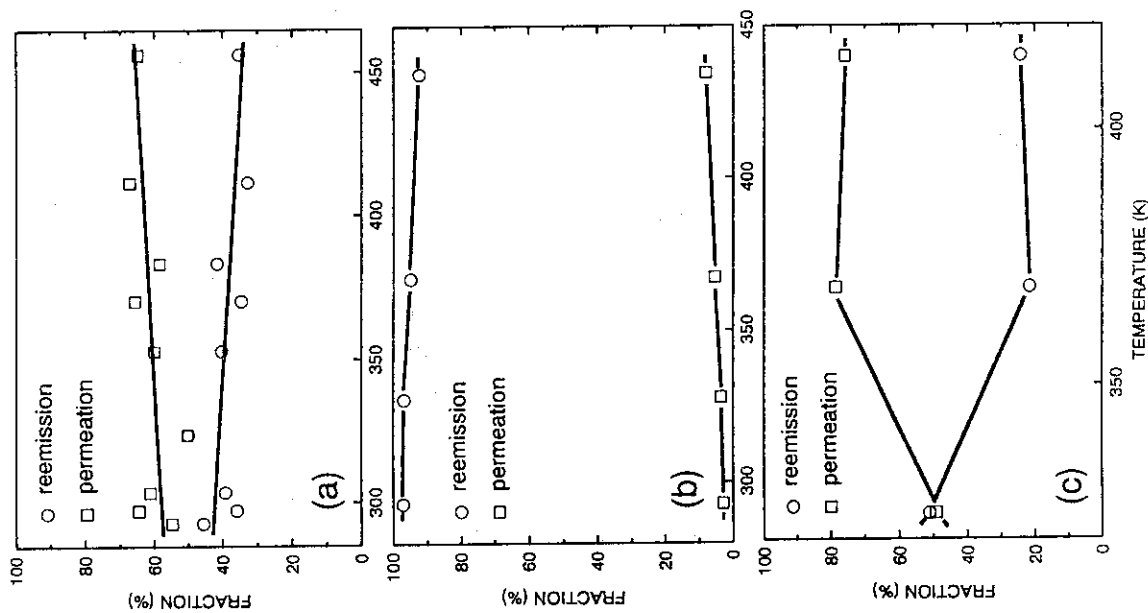


図4 Ni(a), Cu(b)およびSUS304における再放出率 (○) と透過率 (□) の温度変化

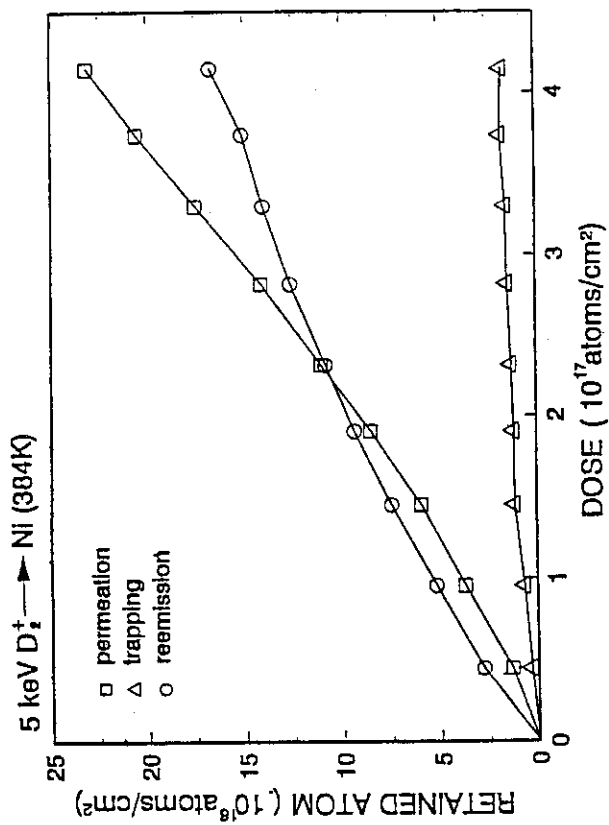


図3 384KのNiに打ち込まれた重水素の透過量、捕捉量および再放出量の注入量依存性

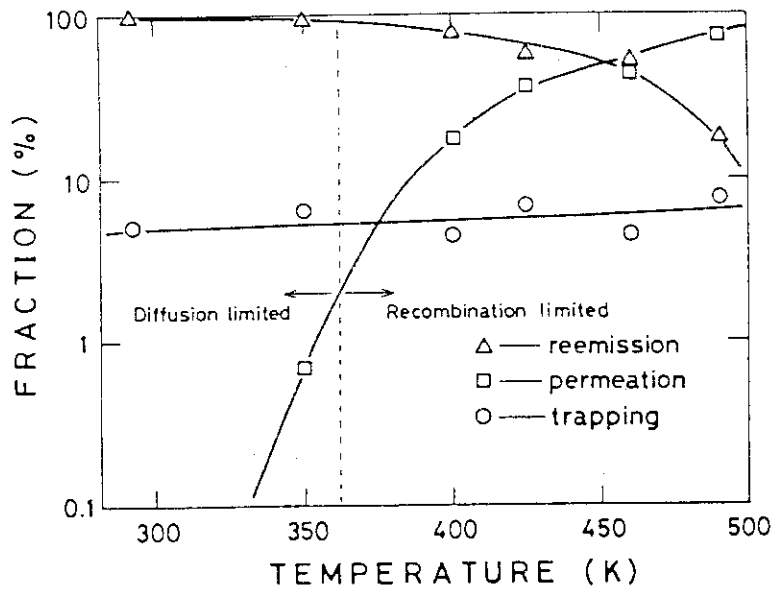


図5 Alに注入された重水素の再放出率(△), 透過率(□)及び捕捉率(○)の温度変化

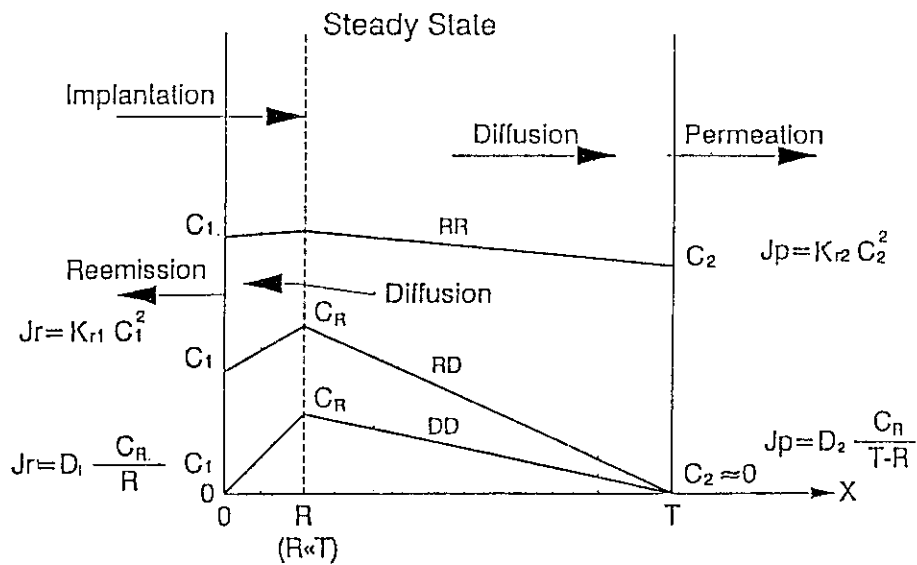


図6 薄膜に打ち込まれた水素の定常状態における濃度分布のモデル

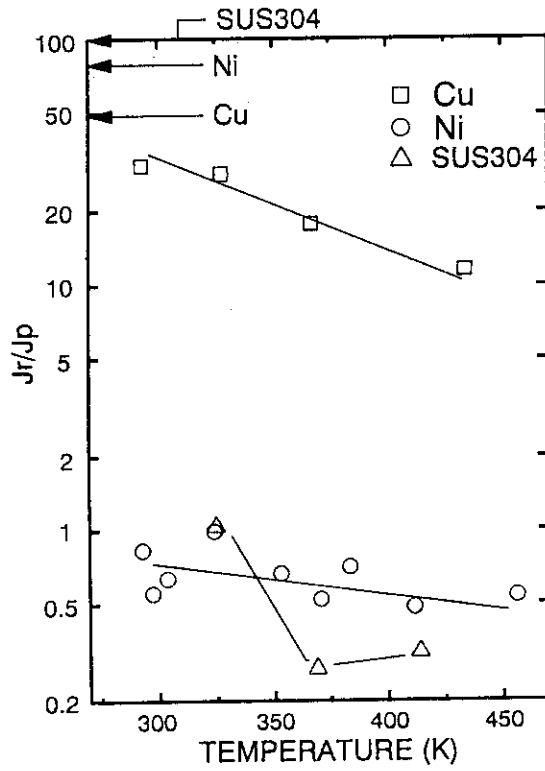


図7 Ni, CuおよびSUS304の再放出粒子束 J_r と透過粒子束 J_p の比の温度変化

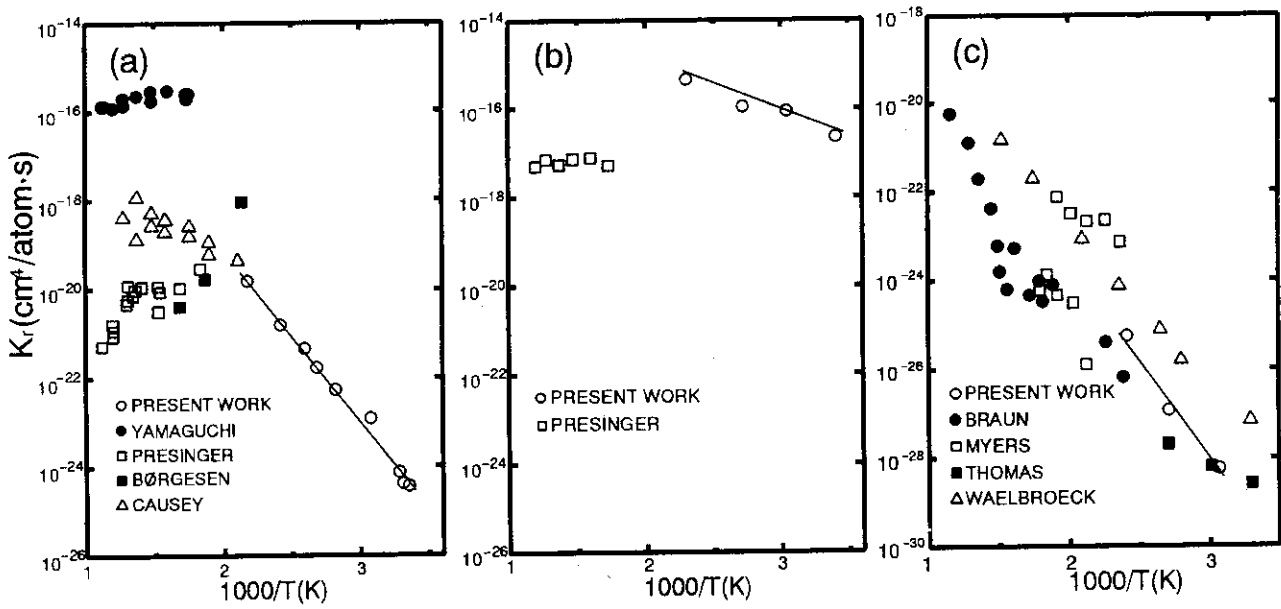


図8 Ni, CuおよびSUS304の表面再結合係数

12. 炭素材の照射損傷

大阪大学 工学部 田辺哲朗

1. 序 論

1-1 プラズマ対向材の照射損傷

現在の大型トカマクでは放電時間がせいぜい10秒程度であり、プラズマ対向壁への入熱は壁材料そのものの熱容量に頼っているわけで、熱衝撃による破壊を防ぐため材料全体がなるべく均一に温度が上昇するよう、出来るだけ熱伝導度の高い材料が選ばれている。NBI のイオン源を使ったり、電子線あるいはレーザーを熱源として各種炭素材の熱衝撃試験が行なわれ、熱衝撃による機械的損傷だけではなく、熱負荷による蒸発等の損耗にも注意が払われている [1, 2]。様々な炭素材の損耗が比べられているが、いずれも熱力学的に予測される蒸発量の数倍の損耗が観測されており、その低減が重要な課題となっている。この点でC/C複合材料の進歩は目ざましく、室温で熱伝導が300W/mKを越すものが既に作られており、損耗が大きくないことが確認されれば、ITERやNET等に導入されることになる [2, 3]。

ところで炭素材を中性子が発生する次期装置に応用する事を考えると、炭素材が中性子照射に弱いことが重要な問題となってくる。特に最近の高い熱伝導度を持つ炭素材はかなり低い照射量でも著しく熱伝導度が下がってしまうことが心配されている [4]。14MeV 中性子による炭素材の照射研究は極めて緊急性の高い今日的課題である [5]。

表1にITERのプラズマ対向材に課せられる、あるいは要求される諸条件を示した [6]。ITER級の装置になるとプラズマ温度が高かつ放電時間が長くなるので、壁温度はどんどん上昇するため、強制冷却なしではその健全性を保てなくなる。定常熱負荷の状態では、冷却側の温度と冷却可能な熱量を決めてしまえば、プラズマ対向材の厚さおよび熱伝導度と入熱量で表面温度が一意的に定まってしまう。例えば表1のITERのダイバータのデザインに従って 10MW/m²の入熱があり、水冷却ということになれば、図1に示したようにプラズマ対向材の表面温度が1000°C以上になってしまうことは避けられない。しかも 10MW/m²の除熱は至難で、非常に複雑な断面を持った冷却パイプ等が考案されている [2]。また、個々の材料の耐熱衝撃性だけでなく、プラズマ対向要素 (PFC: Plasma Facing Component)としての除熱に伴う様々な問題点、例えばプラズマ対向材と冷却材の接合、冷却材と冷却媒体による腐蝕あるいは損耗等、が浮かび上がってきている [7, 8]。図1を見れば中性子照射によって炭素材の熱伝導度が下がればプラズマ対向面の温度が上昇することは自明である。このような熱勾配を持ったプラズマ対向要素では、熱伝導度の低下だけではなく、単素材と冷却チャンネルとの接続部の中性子照射効果も極めて重要であることがわかる。また炭素材表面や内部における水素の蓄積量に及ぼす中性子照射効果も考慮に入れる必要が出て来る。

プラズマ閉じ込め研究を第一とすると当面黒鉛或はC/C材を使わざるを得ないため、14MeV中性

子による炭素材料の照射研究は極めて緊急性の高い今日的課題である [3, 5]。現在までのところ 14MeV中性子による炭素材料の照射損傷研究は行われていないので、本稿では原子炉照射あるいはイオン照射による炭素の照射損傷について述べることにする。プラズマ対向面として使われた炭素材料は中性子だけではなく、水素イオンやHeイオン等の高エネルギー粒子の入射により損傷を受け、プラズマに対してその性質を変えてしまう（改質される）。このためイオン照射による炭素材料の損傷も中性子照射同様大きな問題となっている。

1-2 炭素材料の照射損傷

黒鉛の照射損傷は高温ガス炉の開発の一環として60年代から70年代にかけて主に中性子照射について盛んに研究が行われた [8-13]。いわゆる原子炉級黒鉛 [8] というのは、その当時開発された黒鉛で、緻密で等方的な材料特性を持ち、しかも中性子照射にたいして比較的安定な性質を示す焼結体である。この原子炉級黒鉛については剛性率や硬度等もよく調べられており、中性子照射によっていったん強度が増した後、照射量が増えるとその後徐々に低下し、照射前の値よりも小さくなっていく。照射前の値とほぼ同じになった頃がその黒鉛の寿命と見なされている。この様な研究から、Harwell [14] では図2のように、原子炉級黒鉛を核融合炉で使うことを考えた場合の寿命評価を行った。しかしこれは高温ガス炉用の黒鉛を念頭においた物で、照射黒鉛の幾何学的寸法変化及び機械的強度変化が最も重要な因子とみなされており、核融合炉炭素材料には必ずしも当てはまるものではない。

原子炉級黒鉛はその高い強度及び耐熱性と炭素原子の持つ低い原子番号故に、高い熱負荷を受ける大型プラズマ実験装置 (JT-60, JET, TFRT等) のプラズマ対向壁として導入され、プラズマ閉じ込めに (それ以前に使われていた金属に比べて) 非常によい結果を与えた [15]。しかしプラズマ閉じ込めが良くなればなるほど対向壁への熱負荷が増し、従来の原子炉級黒鉛ではそれに耐えきれないことがわかってきたため、熱伝導度が高く耐熱あるいは耐熱衝撃性の高い新しい黒鉛または炭素材料の開発が急務になってきた [7]。

熱伝導度を高めるためには、黒鉛化度を上げる、言い替えると黒鉛の結晶化を高めなければならない。国際共同研究で開発中の核融合試験炉ITERでは最も熱負荷の大きいダイバータに、高配向性黒鉛 (HOPG; Highly Oriented Pyrolytic Graphite) に近いもので熱伝導度の極めて高い CAPyG (Compression Annealed Pyrolytic Graphite) の導入が検討されている [6]。また耐熱衝撃性の高い炭素繊維強化 (C/C) 複合材の開発も進められている。

この様な熱伝導度の高い黒鉛材料やC/C複合材は、従来の原子炉用黒鉛とは、中性子照射損傷特性が極めて異なっているものと考えられ、また原子炉中性子と核融合中性子 14MeVとのエネルギーの違いもあり、改めて中性子照射損傷が問題となっている [16]。また高エネルギー水素の入射、あるいはDT核融合反応中性子との核反応により生成したHeによる表面やバルクの損傷または劣化は、原子炉では考えられなかった新たな問題である [15]。

本稿では、黒鉛の照射損傷あるいはマクロ組織変化を、結晶構造の物理的・化学的変化として系統

的に理解するため、まず基礎的なHOPGの中性子照射、HOPGのイオン照射損傷について述べた後、実用材としての等方性黒鉛やC/C複合材等の照射損傷について議論し、研究の現状と今後の問題点を整理した。

2. 黒鉛の照射損傷

2-1 HOPGの中性子照射損傷

HOPGの中性子照射損傷は主としてTEMおよびX線回析により調べられてきた [9, 10, 13, 17-19]。c軸方向には層間に、照射によって弾き出された格子間原子が集まり新しい層（格子間ループ）を作るため照射量の増加と共にX線（結晶学）的にも幾何学的にも伸びる。逆に面内では空孔が残されるためa軸が縮む。またそれ故a軸方向の良好な電気伝導度や熱伝導度は照射により著しく低下する。はじき出された原子によるc軸方向の伸びは著しく、照射によって大きく体積が変化する。これにともなって、X線（002）回析ピーク強度の減少とピーク幅の増加が著しくなり、遂には非常にブロードなものになってしまう。これは後にも述べるように結晶子の大きさの減少として捕らえられている。図3は中性子照射された炭素結晶の高分解能電顕による格子像 [20] で中性子照射により結晶子サイズ（ここでは基底面及びc軸両方向とも規則性を保つ長さとする）が減少しているのがよくわかる。

中性子照射に起因する点欠陥あるいは点欠陥の微小集合体はTEMで観測されてはいるが、格子間および原子空孔型ループ以外にはその性質が同定されているものは無い [10, 18, 19]。照射による熱伝導度あるいは電気抵抗などの物性値の変化と、理論的に予測される点欠陥の構造から、図4のような空孔と格子間原子などの存在が提唱されている [21]。岩田らは、熱伝導度の変化と、いわゆるWignerエネルギーの放出から原子空孔対や格子間原子対などの存在を予測している [22-24]。（Wigner エネルギーというのは中性子照射によって黒鉛内に蓄積されるエネルギーのことで、金属などに比べると比較的大きく、しかもその放出が400℃付近で起こるため高温ガス炉の運転の際に問題になることがある。）

黒鉛の欠陥構造を考える上で一つ注意すべき点がある。即ち金属と比べると非常に特異な2次元構造を持つ黒鉛の損傷構造に、等方的な弾性論にもとづく理論がどこまで適用できるかという問題である。特に刃状転位や螺旋転位の存在については、報告例があるものの、後に述べるように疑問の余地がある。また衝突によって炭素原子間の結合が変化し、層間に架橋が起これば層間の力が増し、層状物質としての特性が変化してしまう。実際HOPGは中性子照射により層間の剝離が起こり難くなることを見いだされている [25]。

2-2 HOPGのイオン照射損傷

2-2-1 組織変化

HOPGのイオン照射による損傷は、黒鉛の特異性を反映し独特の構造を示す [26-28]。図5にイオン照射にもとづく3つの典型的な損傷構造の例を示した。照射初期にはHeおよびDイオン照射と

もに注入されたイオンは分子となって黒鉛の層間に溜り、レンズ状空隙 (Lenticular Opening) をつくる (図 5(a))。しかし照射が進むと、歪エネルギーの蓄積に起因すると思われる双晶変形がおり、双晶網 (Twin Network) が形成される (図 5(b))。同時に結晶構造が乱されるようになり、さらに照射量が増えると TEM の回析パターンは完全なハローを示すようになりいわゆる非晶質 (アモルファス) 状態になる。非晶質状態になると、むしろ黒鉛構造の異方性が失われるためか、He 照射では顕著に球状のバブルが形成されるようになり、図 5(c) に示されたように表面ではプリスターやその割れが見えるようになる。

イオン照射によって引き起こされた双晶変形は、基本的には既に報告されている HOPG の機械的変形によって生じる双晶と同様な構造であり [11]、 $\{1121\}$ の双晶面で $\langle 1100 \rangle$ 軸に対して 20 度の折れ曲がり角を持つものや、 $\{1011\}$ 面で、 $\langle 1210 \rangle$ 軸に対して 35 度の折れ曲がり角を持つものが報告されている [29, 30]。しかしイオン照射下で形成される双晶では、図 5 から分かるようにその密度は極めて高く、また双晶バンド幅が極めて狭い上、折れ曲がり角が 60 度以上になる物まで観察されており [31]、機械的変形に起因する双晶とはやや異なっている。電子線や中性子照射ではこの様な双晶は報告されておらず、黒鉛の基礎的損傷過程や変形過程を解明する上でさらに詳しい研究が必要であろう。

図 6 に、D および He 照射による非晶質化に要する臨界照射量及び上記 3 種の損傷構造が出現する条件を照射温度及び照射量 (Dose) に対して示した [28]。双晶の発生には非晶質化同様に臨界照射量が存在し、その大きさは非晶質化の臨界照射量の約 $1/10$ になっているが、両者は同じ様な温度依存性を示している。また重水素の臨界照射量は He のそれに比べ約 4 倍ほど大きくなっているが、dpa で比べてみると (図 6 の縦軸右側参照) 両者にはほとんど差が見られない。超高圧電子顕微鏡によっても HOPG の非晶質化が観測されており [32]、この場合も非晶質化に要する dpa はイオン照射のそれとほとんど同じである。言い替えると双晶の形成と非晶質化は、主としてエネルギー賦与による原子変位に起因するものであり、打ち込まれたイオン種の化学効果は少ないことを示している。このことは、主として C-C 間の振動に関する情報を与えるラマンスペクトルにも現われており [4, 7, 33]、図 7 から分かるように水素照射した場合と He 照射した場合のラマンスペクトルの差は少ない [4]。

これに対してレンズ状空隙やバブルの形成は、図 6 で明らかなように He と水素とではかなり異なっている。レンズ状空隙の観察される下限温度は、重水素では 600°C であるのに対し、ヘリウムでは 300°C である。また水素は He とは異なり炭素原子と化学的相互作用を持ち C-H 結合を作るため球状バブルはほとんど観測されない [26-28]。

イオン注入された後の熱放出実験によれば、He は熱放出スペクトルのピークが 300 ないし 400°C 付近であるのに比べ [34]、水素のそれは 600°C 付近になる [35, 36] ことは非常に興味深い。これは He の方が水素原子よりも黒鉛中を動きやすいことを示唆しているものであり、水素が炭素原子と化学的に強い相互作用 (結合) を持っていることの証拠でもある。一方、飽和状態にまで水素が打ち込まれた黒鉛は、いわゆる非晶質炭素膜 (a : C-H) と同様な性質を示し [37, 38]、ガスを容易に透過させることが報告されており [39, 40]、水素イオン照射した場合にバブルが形成され

ない一因となっているものと思われる。即ち、TEM やX線回析では同じように非晶質に見えても、炭素原子のみからなる場合（He照射）と水素が混じった場合（水素照射）とではやはりその性質が異なっているであろう。また、黒鉛中の水素もいったん分子状になってしまえばと同様黒鉛の中を容易に動きうるものと考えられており [41, 42]，水素イオン照射の場合でのみレンズ状空隙が形成されるのが納得できる。黒鉛中におけるガスの効果，特に水素の存在形態，そしてその動き方あるいは拡散等説明すべき問題点は多い。

2-2-2 結晶サイズ変化

前節で述べたように、照射により組織が変化していくが、同時に結晶子の大きさがどんどん小さくなっていく。図8は、図7に示された照射によるラマンスペクトルの変化が結晶子サイズの変化によるものとしてスペクトル解析 [43, 44] により導いたものである [33]。図から分かるように照射量の増加とともに結晶子サイズが減少し、非晶質状態になるとわずか数nmにまでなってしまう。特に 200°C以下では結晶子サイズが非常に僅かな照射量で減少してしまう。イオン照射による結晶子サイズの減少は中性子照射の場合同様高分解能電顕によっても確認されており、図9に示した [45]。この写真では、水素イオン照射によりC-H結合ができるためか結晶子サイズの減少と同時に層間の距離が大幅に伸びている。このような照射による結晶子サイズの減少はある意味で、黒鉛製造の逆プロセスになっていることは非常に興味深い [46]。

上述のように照射による結晶子サイズの減少はX線回析，TEM，ラマン等の解析により矛盾なく示されており、黒鉛の非晶質化とは、結晶子の大きさが数nm程度にまで小さくなることであると説明される。中性子照射による非晶質化は過去には報告されていなかったが、最近のラマンスペクトルの結果によるとイオン照射と同様、中性子照射でも黒鉛の非晶質化は起こるようである [4]。

しかし詳しくみると結晶子サイズの減少だけではなく、非晶質化した前後の黒鉛のラマンスペクトルには明瞭な差がある [33]。即ち非晶質化は単に結晶子の大きさが小さくなるだけではなく、次節に述べるように層間距離の増加及び結晶子内部の構造（即ち個々の炭素原子の結合の仕方）の変化などが起こっていることに注意しなければならない。

2-2-3 結合構造変化

黒鉛の欠陥を考えていく上で、非常に重要な点に、炭素原子がいくつかの異なった化学形を取り得るものであることが挙げられる。このことは特に水素イオン照射とHeイオン照射とを比較する際に非常に重要である。

水素イオン注入された黒鉛は多量の水素を蓄積しており、飽和状態にまで水素が打ち込まれた炭素材は、いわゆる非晶質化炭素膜（a : C-H）になっており、もはや黒鉛とはいい難く、蓄積水素濃度に応じて異なった性質を示す。黒鉛中の水素挙動については文献 [44-49]を参照していただきたい。これに対して化学効果の無い中性子の照射が黒鉛の π 結合形をどのように乱すかはあまり良く分かっていない。Heを注入した場合と水素を注入した場合との光電子分光（XPS）のC1sスペクトルを比較すると [50, 51]，水素イオン注入の場合はC-H結合の生成によると思われる高エネ

ルギー側へのシフトが見られているのに対し [50, 51], He照射の場合は低エネルギー側へのシフトが見られている [50]。この低エネルギー側へのシフトは欠陥生成によるものと解釈されているが具体的な欠陥構造については議論されていない。

黒鉛表面のオージェ電子分光 (AES)測定によれば、僅か 3 - 5 keV のエネルギーの電子線を使っているのに過ぎないのに、C (KLL)AESピークに変化が見られる [52, 53]。黒鉛がセラミックスの一種として電子による結合切断あるいは結合改質を受け、 π 結合 (黒鉛構造)に変化が引き起こされていることが示唆される。また中性子照射によりHOPGは硬度を増し層間の剝離が起り難くなることは [25], 層間でなんらかの結合変化 (例えば架橋) が起きていることを示唆している。

単結晶黒鉛の1つの層を考えた場合、結晶子サイズが数nmになると結晶子周囲にある原子の数と内部にある原子の数とが同じオーダーの値になる。単結晶黒鉛の層に垂直な端面 (Edge Plane) は基底面 (Basal Plane)に比べ化学的に非常に活性であるから、幾何学的にも全く異なった環境にある結晶子周囲の原子と内部の原子とが化学的に異なった性質を持つことは当然考慮されるべきであろう。水素が入った場合はC-Hの回転振動にもとづく可視光の吸放出を利用して、H原子と結合したC原子が隣合うC原子とどの様な結合をしているか、例えば、H-C-CなのかH-C=Cなのか、が判別でき化学結合変化が捉えられている [54]。しかしHeや中性子照射の場合はC-C間の結合変化のみであるためその検出が難しく、XPSやAES以外には結合変化を明瞭な形で示した報告は、著者の知る範囲では無い。 ^{13}C を利用した固体分解能NMR [55] やESR [56, 57] 等の研究が新しい情報を与えてくれることを期待したい。

3. 実用炭素材の照射損傷

高温ガス炉技術に重要な、原子炉級黒鉛については、中性子照射が非常に重要であるため、材料としての熱的あるいは物理的な性質の変化はよく調べられており優れた解説書も著わされている [9-11, 14, 58, 59]。

プラズマ対向材として考えられている熱伝導度の高い炭素材は、中性子照射効果を和らげるように黒鉛化度の高い部分低い部分、粒径の大きいもの小さいもの等を混ぜあわせてつくられた原子炉級黒鉛に比べ、黒鉛化度が高いため中性子照射効果がより著しいと考えられている [7]。HOPGの照射損傷の類推から、中性子照射によってその熱伝導度が早く下がってしまうのではないかと懸念されている [16, 60]。実際、丸山らの研究によると、図10に示されたように最近開発された室温で 300W/mKを越える熱伝導度を持つC/C複合材CX-2002Uが等方性黒鉛同様わずか 0.05dpaの中性子照射で熱伝導度が当初の値の1/10になってしまう事が観測されている [61]。またC/C材では繊維とマトリックスとの黒鉛化度が異なっているから、中性子照射効果がもたらす幾何学的な寸法変化は様々で、ひどい場合には、繊維マトリックスとの分離、それにとまなう細片化、あるいは特殊な方向への著しい伸びなどが報告されている。プラズマ対向材として炭素材料を使っていく上で、中性子照射による熱伝導度の低下は最も大きな問題であるが、さらに具合の悪いことに過去のデータによれば、照射前の熱伝導度が高ければ高いほど (黒鉛化度が高ければ高いほど熱伝導度

は高いので) 照射によるその低下が著しい。

中性子照射された炭素材と水素との相互作用も非常に重要な問題の一つである。中性子照射は、既に述べたように炭素材内部の結晶構造を物理的にも科学的にも乱す。サンディア国立研(米国)や渥美らによると図11に示したように [62] 中性子照射によって水素の蓄積量が1桁以上増加することが報告されている。これは単純な結晶子サイズの減少などではなく、炭素材そのものの中の化学結合構造が照射により変化するためではないかと思われる。

イオン照射による表面損傷観察結果が報告されているが、図5に示されたレンズ状空隙や双晶変形は報告されていない。あるいは見えないといった方が正しいかもしれない。転位ループの形成や球状バブルに起因すると見られるブリスターの観測例については報告例があるが [63, 64] , さきに述べたように構成粒子(フィラー)の結晶性が低いため TEMによる解析が難しくマイクロ構造変化の研究はあまり進んでいない。

欠陥生成の衝突過程を考える上で重要と思われる黒鉛のスパッタリング現象について非常に興味深い結果がある [65, 66] 。図12は各種エネルギー粒子による黒鉛のスパッタ率あるいは損耗率の温度依存性である [65] 。500 °C付近に極大を持つ水素のメタン生成による化学スパッタリングはさておき、800 °C以上になると入射イオンの種類によらず損耗率が指数関数的に増加する。これは照射誘起昇華として知られ、黒鉛に独特で、SiC や B₄Cなど炭化物では観測されていない [67] 。照射誘起昇華による損耗率の入射エネルギー依存性が物理スパッタリングときわめて類似している事、及び放出される粒子は熱蒸発の場合とは違いそのほとんどが炭素原子1ヶである事から、1次衝突によって弾き出された格子間原子が層間を容易に通り抜けることによって引き起こされるものと解釈されている [54, 67] 。しかし、その入射フラックス依存性などは全く説明できておらず、弾き出された格子間原子の動き方について議論が続いている [67] 。これについては2次欠陥あるいは欠陥クラスターの生成を考える上でも非常に重要で、電子線照射や中性子照射でどうなるか非常に興味もたれる。図3及び図9に見られるように、照射を受けた試料の最表面には、非晶質物質が出来ている。これは表面汚染とも見られるが、照射量が多いほどその量が多くなっていることから [20] , 弾きだしによって出来たものである可能性があり、黒鉛中の格子間原子の動きを考える上で何らかのヒントを与えているのかも知れない。また蓄積水素と欠陥との相互作用とも関連しているであろう。

謝 辞

本稿は兵庫教育大学庭瀬敬右博士との共同研究 [68] に負うところが多大であり、ここに記して深甚の感謝の意を表す。

参考文献

- [1] 高津英幸, 奥達雄: 炭素, 1988年 288頁
- [2] M. Seki: in "Future Prospects of Research and Data Activities on plasma-Wall interaction in Fusion Device" ed. N. Itoh and T. Kawamura, IPPJ-AM-64 (1989)
- [3] 田辺哲朗 宮原昭 日本原子力学会誌 32 (1990) 544
- [4] T. Tanabe, K. Niwase and K. Nakamura: J. Nucl. Mater., 168 (1989) 191
- [5] 文部省科学研究費補助金「核融合特別研究」研究成果報告書「核融合炉材料及びプラズマ・壁相互作用の研究(炭素・黒鉛材料の中性子照射) 1990年2月 第1班総括班
- [6] ITER Report ITER-IL-PC-1-9-10 (1989)
- [7] A. Miyahara and J. B. Whitely: J. Nucl. Mater. 179-181 (1991) 19
- [8] R. S. Nightingale, Nuclear Graphite, (Academic Press, 1962)
- [9] J. H. W. Simmons, Irradiation Damage in Graphite, Pergamon Press, N.Y., 1965) 1
- [10] W. N. Reynolds, "Radiation damage in Graphite", Chemistry and Physics of Carbon Vol. 2 (1966) 121.
- [11] P. A. Throver, "The Study of Defects in Graphite by Transmission Electron Microscopy" *ibid.*, Vol. 5 (1969) 217.
- [12] G. R. Millward and D. A. Jefferson, "Lattice Resolution of carbons by Electron Microscopy" *ibid.*, Vol. 14 (1978) 1.
- [13] B. T. Kelly, Physics of Graphite (Applied Science Publishers, 1981)
- [14] M. Birch and J. E. Brocklehurst "A Review of Graphite under the Conditions Appropriate for Protection of the First Wall of a Fusion Reactor" ND-R-1434 (S)
- [15] A. Miyahara and T. Tanabe, J. Nucl. Mater., 155-157 (1988) 49.
- [16] T. Tanabe, and K. Niwase, J. Nucl. Mater., 168 (1989) 191
- [17] M. Sakai, Private Communication
- [18] W. Bollmann, J. Appl. Phys., 32 (1961) 869
- [19] C. Baker and A. Kelly, Phil. Mag. 11 (1965) 729.
- [20] T. Tanabe et al., J. Nucl. Mater. 175 (1990) 258
- [21] B. T. Kelly, Carbon, 20 (1982) 3
- [22] T. Iwata and H. Suzuki, "A Model of Radiation Damage in Graphite" Proc. Radiation damage in Reactor Materials, (IAEA, 1962) p. 565
- [23] T. Iwata and T. Nihira, Japan. J. Appl. Phys., 15 (1976) 575
- [24] T. Iwata, J. Nucl. Mater. 133 & 134 (1985) 361
- [25] T. Tanabe, unpublished results
- [26] K. Niwase et al., J. Nucl. Mater., 155-157 (1988) 303
- [27] K. Niwase et al. J. Nucl. Mater., 162-164 (1989) 856

- [28] K. Niwase and T. Tanabe, *J. Nucl. Mater.* 179-181 (1991) 218
- [29] E. J. Freise and A. Kelly, *Proc. Roy. Soc. London*, A264 (1961) 269
- [30] C. Baker, L. M. Gillin and A. Kelly, *Proc. 2nd London Carbon and Graphite Conf.* (Soc. Chem. Jundus., London, 1965) p.1
- [31] K. Niwase and T. Tanabe to be published
- [32] A. Matsunaga et al. *J. Nucl. Mater.* 179-181 (1991) 457
- [33] K. Niwase et al., *J. Nucl. Mater.* 179-181 (1991) 214
- [34] H. Atsumi, *J. Nucl. Mater.*, 141-143 (1987) 258
- [35] K. Ashida et al., *J. Nucl. Mater.*, 148 (1987) 217
- [36] V. Philipps et al., *J. Nucl. Mater.*, 145-147 (1987) 292
- [37] E. Vietzke and V. Philipps, *Nucl. Instr. Methods*, B23 (1987) 449
- [38] J. Winter, *J. Nucl. Mater.*, 161 (1989) 265
- [39] T. Kiyoshi et al., *J. Nucl. Mater.*, 155-157 (1988) 230
- [40] J. Pillath, J. Winter and F. Waelbroeck, *J. Nucl. Mater.*, 162-164 (1989) 1046
- [41] W. Moller and B. M. U. Scherzer, *Appl. Phys. Lett.*, 50 (1987) 1870
- [42] J. Roth and J. Bohdansky, *Appl. Phys. Lett.*, 51 (1987) 964
- [43] F. Tunista and J. Koenig, *J. Chem. Soc.* 53 (1970) 1126
- [44] K. Ashida, K. Kanamori and K. Watanabe, *J. Vac. Sci. Technol.*, A6 (1988) 2232
- [45] Y. Gotoh, H. Shimizu and H. Murakami, *J. Nucl. Mater.* 162-164 (1989) 851
- [46] C. Beny-Bassez and J. N. Rouzand, *Scanning Electron Microscopy*, 1985/1, pp.119-132
- [47] 田辺哲朗, *核融合学会誌*, 61 (1989) 367
- [48] W. Moller, *J. Nucl. Mater.* 162-164 (1989)138
- [49] R. A. Causey, *J. Nucl. Mater.* 162-164 (1989) 151
- [50] Y. Gotoh, and O. Okada, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 21 (1984) 205
- [51] K. Ashida et al., *J. Nucl. Mater.*, 148 (1987) 217
- [52] A. A. Galuska et al., *Appl. Surf. Sci.*, 32 (1988) 253
- [53] Y. Mizokawa et al., *J. Vac. Sci. Technol.* A5 (1987) 2809
- [54] B. Dischler et al. *Solid State Commun.*, 48 (1983) 105
- [55] Y. Hirozawa and K. Kume, *Solid State Commun.*, 65 (1988) 617
- [56] I. C. Lewis and L. S. Singer, "Electron Spin Resonance and the Mechanism of Carbonization" *Physics and Chemistry of Carbon* Vol.17 (1981) 2.
- [57] Y. Kazumata et al., *J. Phys. Chem. Solid*, 47 (1986) 617
- [58] W. P. Eatherly et al., "Graphite for Fusion Application" ORNL/TM10280
- [59] 奥 達雄, "Some Consideration on Selection Criteria for Graphites as Fusion Reactor Materials" JAERI-memo 62-186 (1987)
- [60] M. I. Budd, *J. Nucl. Mater.* 170 (1990) 129

- [61] T. Maruyama et al., to be published.
- [62] H. Atsumi et al., to be published
- [63] K. Sone, et al., J. Nucl. Mater., 71 (1977) 82
- [64] M. Saidoh, R. Yamada and K. Nakamura, J. Nucl. Mater., 102 (1981) 97
- [65] J. Roth, J. Nucl. Mater., 145-147 (1984) 84
- [66] J. Roth and Bohdansky, Nucl. Instr. Methods
- [67] V. Philipps et al., J. Nucl. Mater. 179-181 (1991) 25
- [68] 田辺哲朗 庭瀬敬右 日本金属学会会報 30 (1991) 122

第1表 ITERのプラズマ対向要素 (Plasma Facing Components) の使用条件

| Operation phase Components | | Physics | | Technology | |
|--------------------------------------|---------------------------------------|------------|---------------------|------------|----------------------|
| | | First wall | Divertor plates | First wall | Divertor plates |
| 1. Nominal operation | | | | | |
| Ave. neutron wall load | (MW/m ²) | 1.0 | 0.6 | 1.0 | 0.6 |
| Heat flux | | | | | |
| · Average | (MW/m ²) | 0.1~0.2 | | 0.1~0.2 | |
| · Peak | (MW/m ²) | 0.5~1 | Up to 15* | 0.5~1 | Up to 25* |
| Total number of load pulses | (10 ⁴) | 1 | 0.2 [§] | 2~5 | 0.4~1 [§] |
| Average neutron fluence | (MWY/m ²) | 0.02 | 0.004 [§] | 1~3 | 0.1~0.4 [§] |
| Peak irradiation damage [#] | (DPA) | 0.4 | 0.02 [§] | 12~45 | 0.6~2 [§] |
| Incident peak particles | | | | | |
| · Flux | (10 ²⁰ /m ² ·s) | 1 | 5~1·10 ³ | 1 | 5~1×10 ³ |
| · Energy | (eV) | 10~200 | 100 | 10~200 | 100~800 |
| 2. Disruptions | | | | | |
| Thermal quench | | | | | |
| · Total number at full load | | 1,000 | 200 [§] | 10~100 | 2~20 [§] |
| · Time | (ms) | | 0.1~3 | | 0.1~3 |
| · Peak energy deposition | (MJ/m ²) | 1~2 | 5~10 | 1~2 | 5~10 |
| Current quench | | | | | |
| · Total number at full load | | 2,000 | 400 [§] | 10~100 | 2~20 [§] |
| · Time | (ms) | | 5~50 | | 5~50 |
| · Radiative energy deposition | (MJ/m ²) | 2 | 1~2 | 1.5 | 0.5~1 |
| · Run-away electrons | (MJ/m ²) | | 50~500 | | 50~500 |

Notes

* For double-null plasma on outboard divertor plates with 20° inclination to the separatorix assuming ignited operation in the physics phase and driven operation (Q~10) in the technology phase

§ Assuming about 4 divertor plate replacements during each phase

For austenitic steel and carbon based material in the first wall and divertor respectively

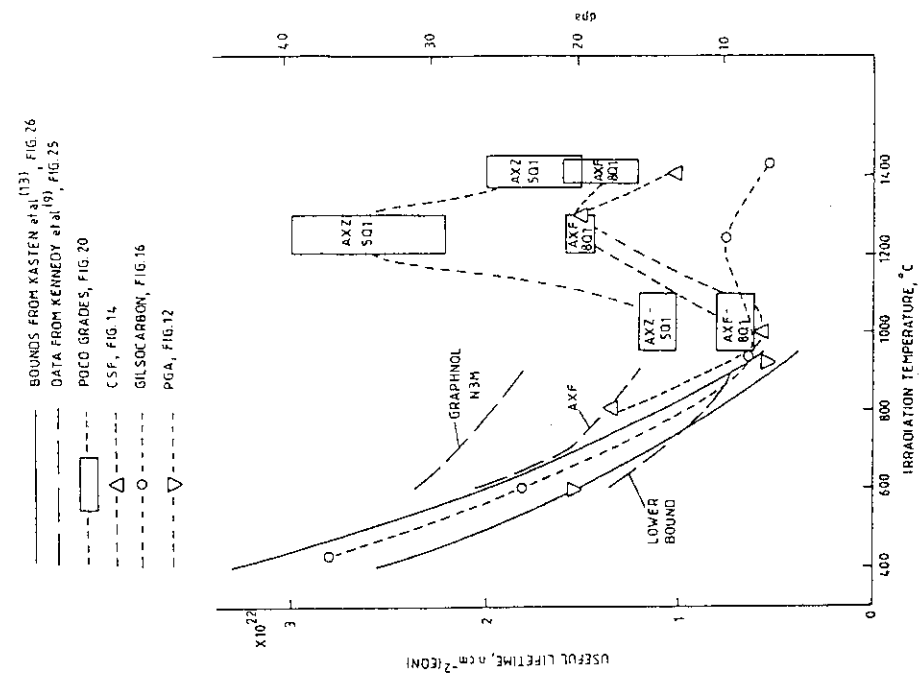


FIG. 27. USEFUL LIFETIMES

ND-R-1434 (5)

図2 黒鉛の中性子照射損傷による寿命評価(Ref [14]による)

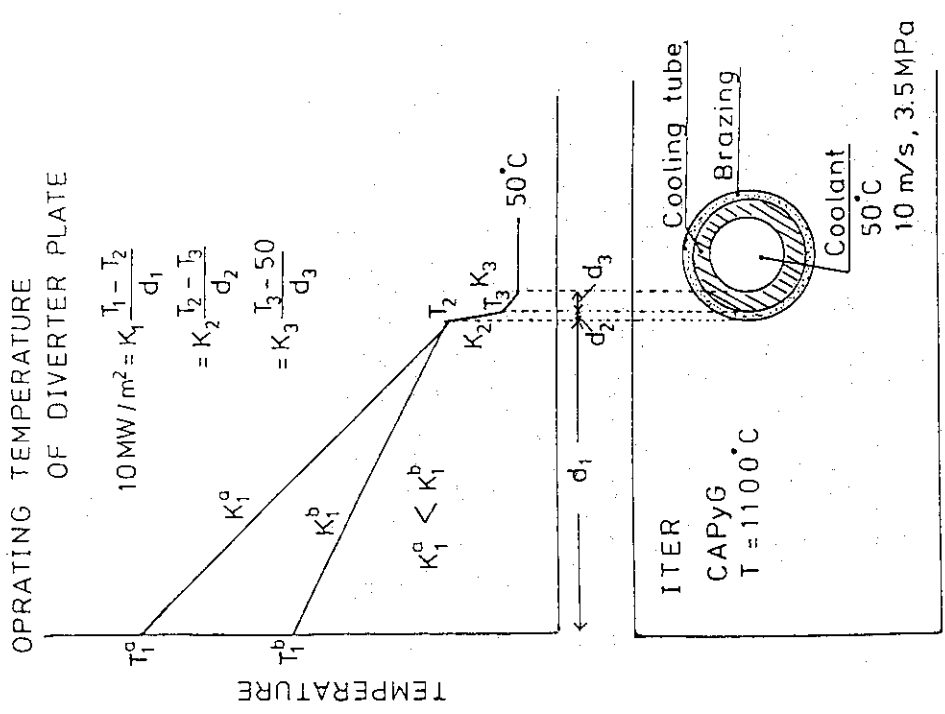


図1 ITERダイバーターの温度分布図

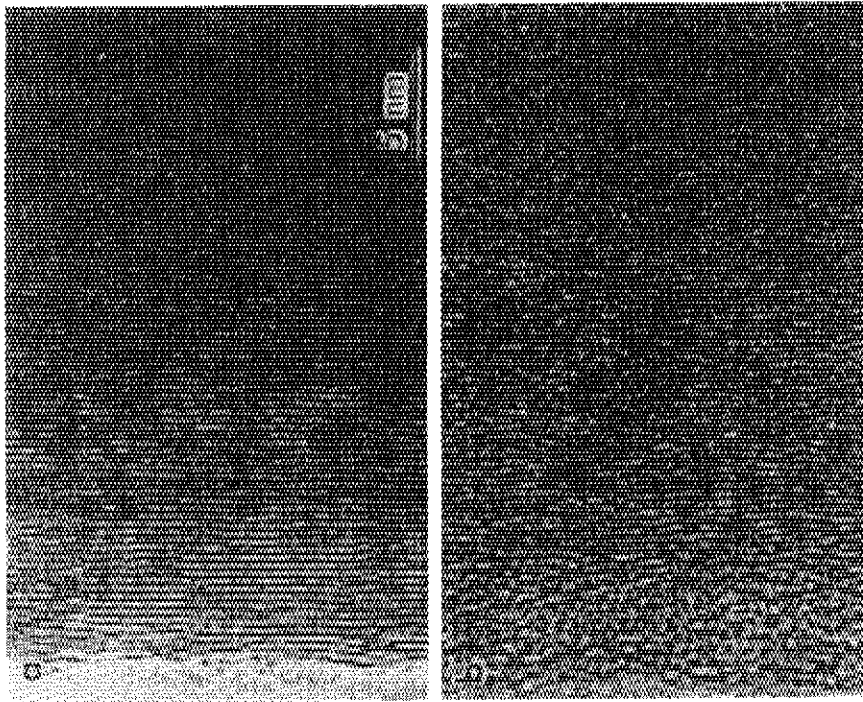


図3 中性子照射されたカーボンウイスカーの高分解能 TEM 写真(Ref[20]による)

(a)非照射材, (b) $1.9 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ (200°C以下, 1MeV 以上)。

個々の直線は1つの基底面に対応している。

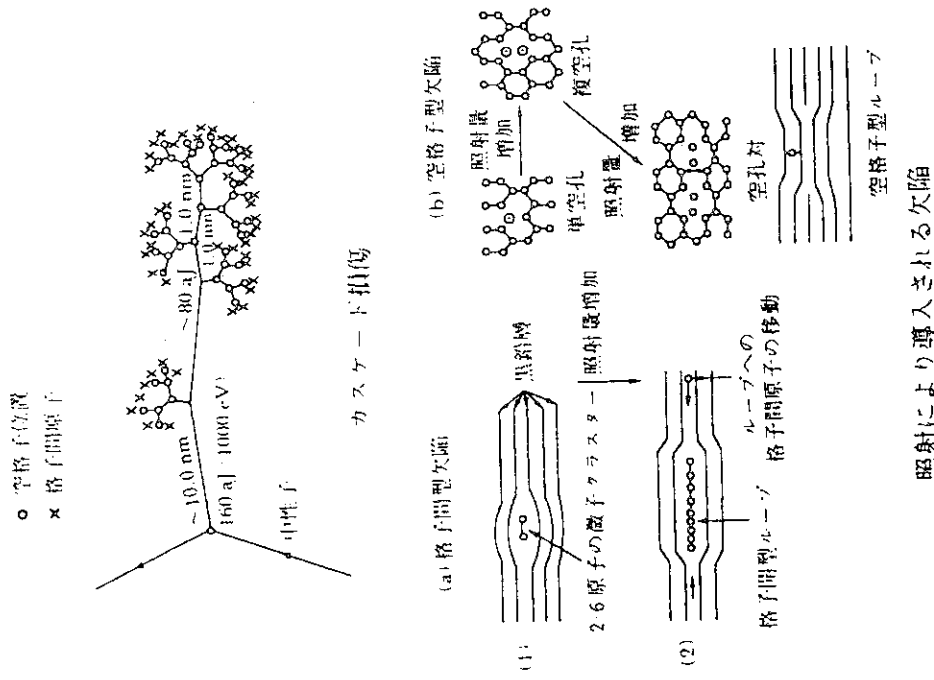


図4 黒鉛の欠陥構造の従来のモデル(Ref[21]による)

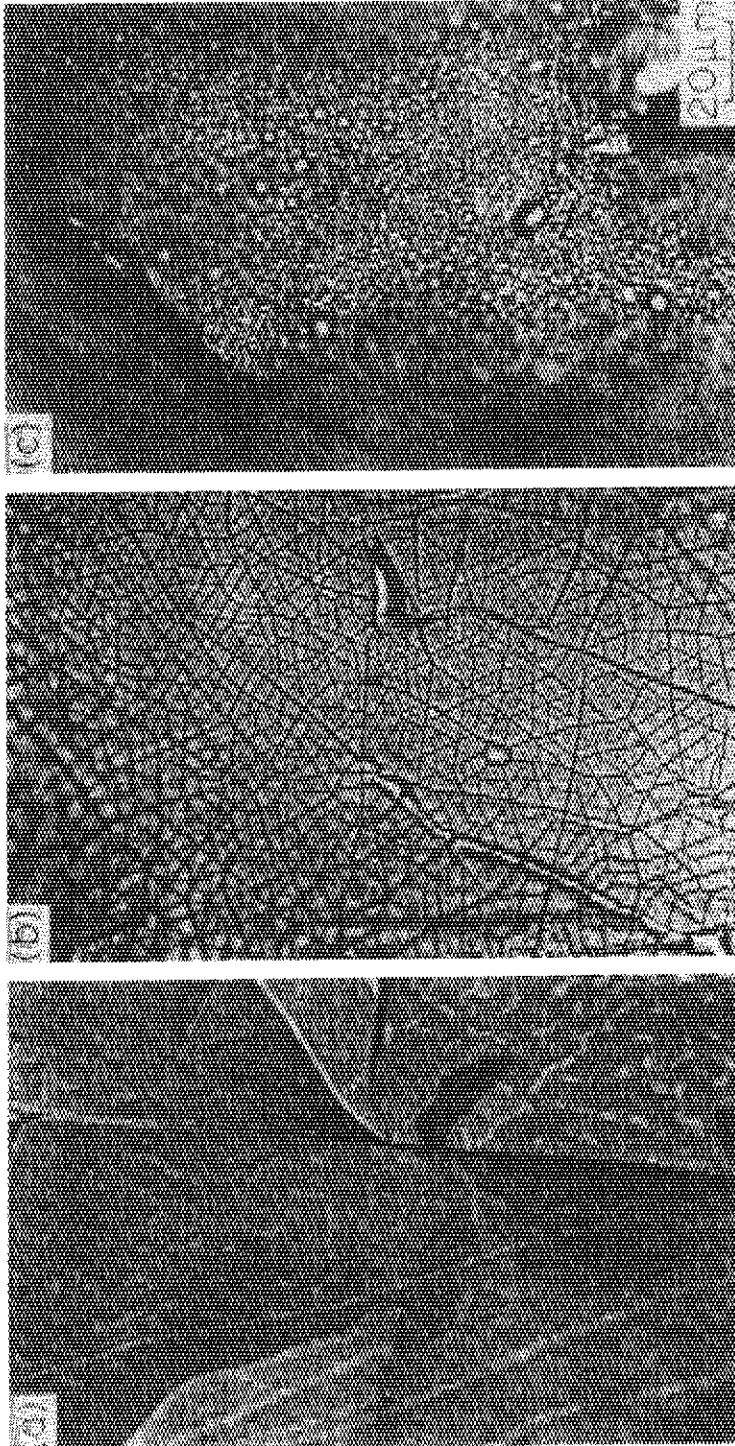


図5 Heイオン照射による3つの典型的な欠陥構造(Ref[28]による)

(a)レンズ状空隙, (b)双晶及び双晶網, (c)球状バブル

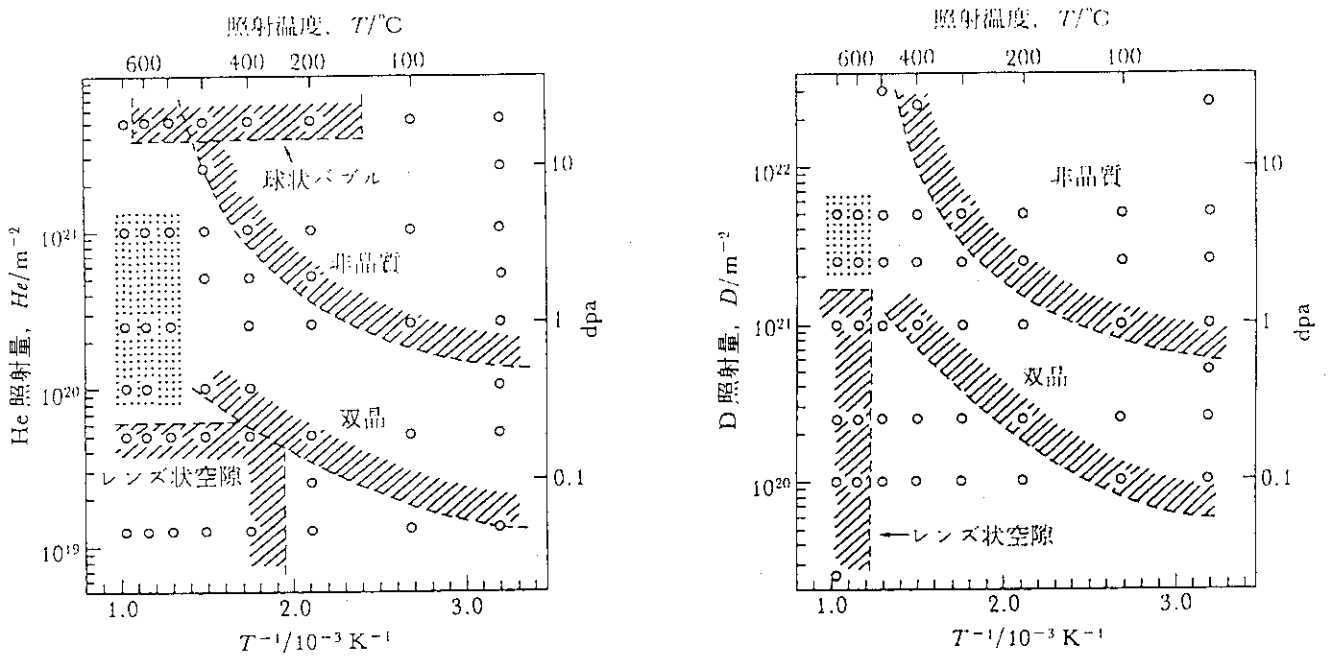


図6 レンズ状空隙，双晶，球状バブルの出現する温度

及び入射粒子量またはdpa(Ref[28]による)

(a)He⁺25keV照射 (b)D⁺25keV照射

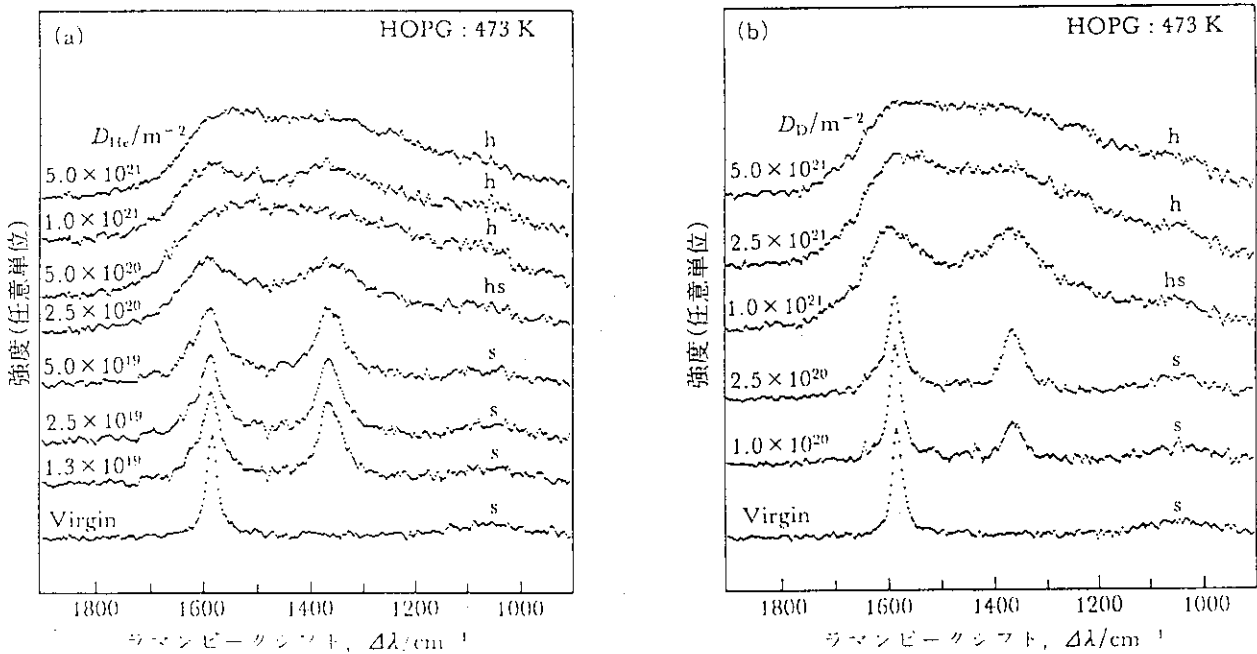


図7 イオン照射によるラマンスペクトルの変化

(Ref[16]による)

(a)He⁺25keV照射 (b)D⁺25keV照射

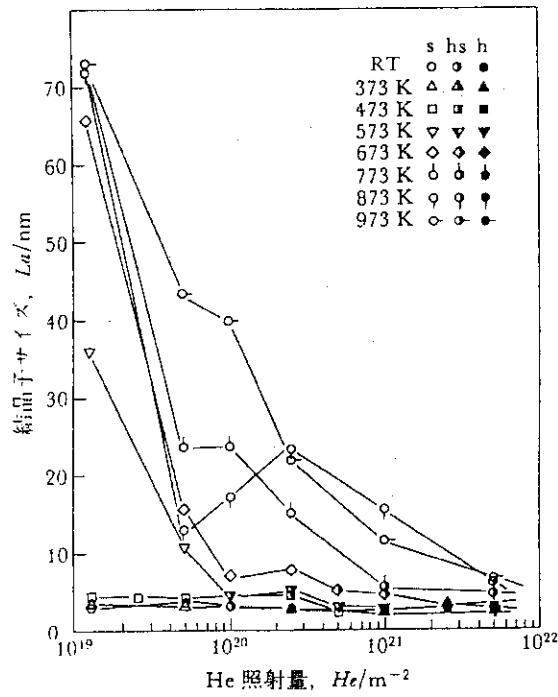


図8 照射にともなうラマンスペクトルの変化から計算される結晶子サイズ(L_a)の変化(Ref[4]による)。図中s, hs, hはそれぞれ TEMによる電子線回析パターンが、スポット(結晶質)、スポットとハロー、そしてハローのみ(非晶質)であったことを示す。

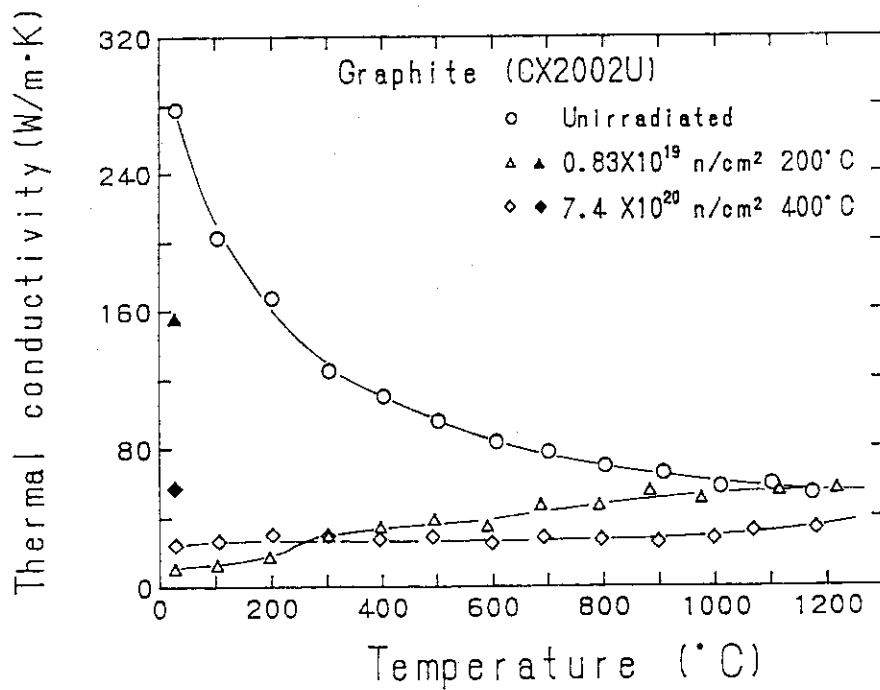


図10 中性子照射によるC/C材(CX-2002U)の熱伝導度低下と熱による焼鈍効果(Ref[62]による)

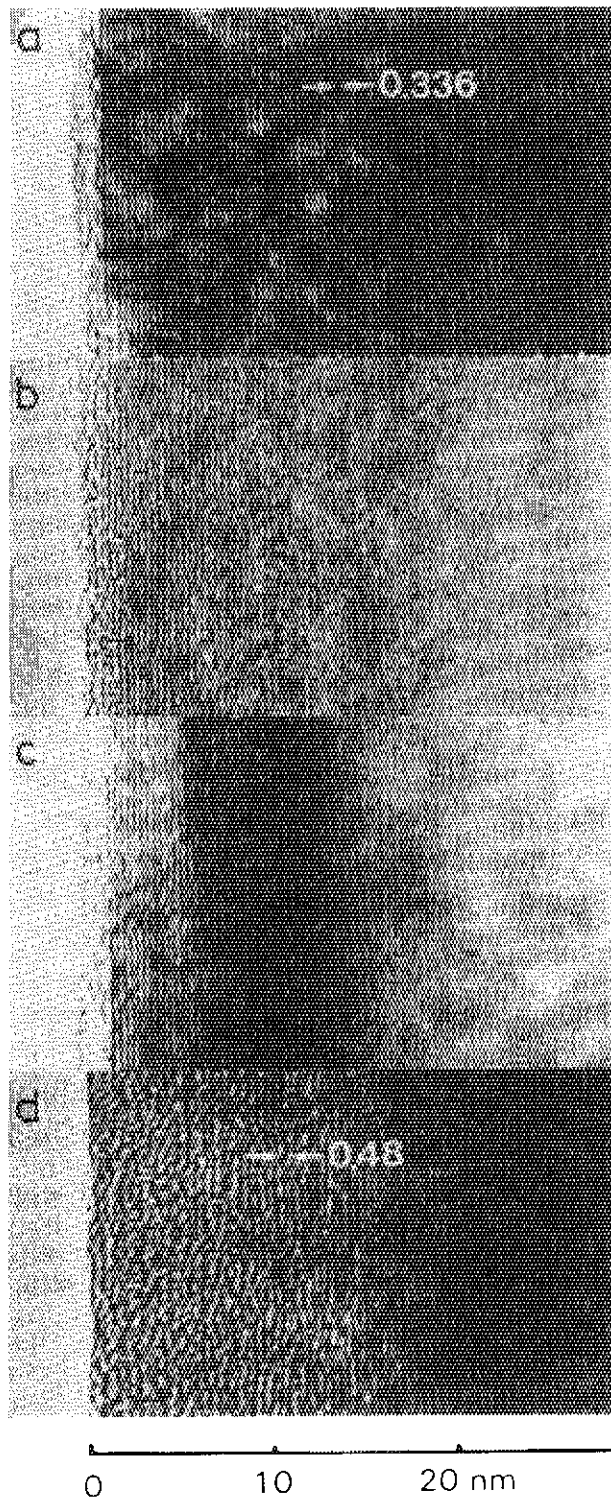


図9 イオン照射による結晶子サイズの減少を高分解能 TEMでとらえたもの。

1 keV H^+ をカーボンウィスカーに打ち込んだ場合 (Ref[47]による)。

- (a)非照射, (b) $1 \times 10^{14} H^+ / cm^2$, (c) $1 \times 10^{16} H^+ / cm^2$,
 (d) $1 \times 10^{18} H^+ / cm^2$,

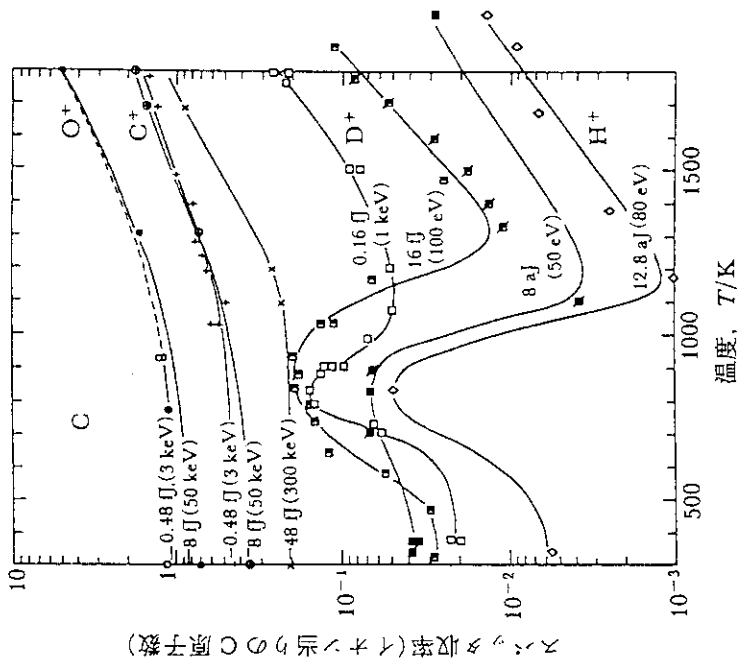


図12 各種エネルギー粒子照射による黒鉛のスputタ率
あるいは損耗率の温度依存性(Ref[67]による)

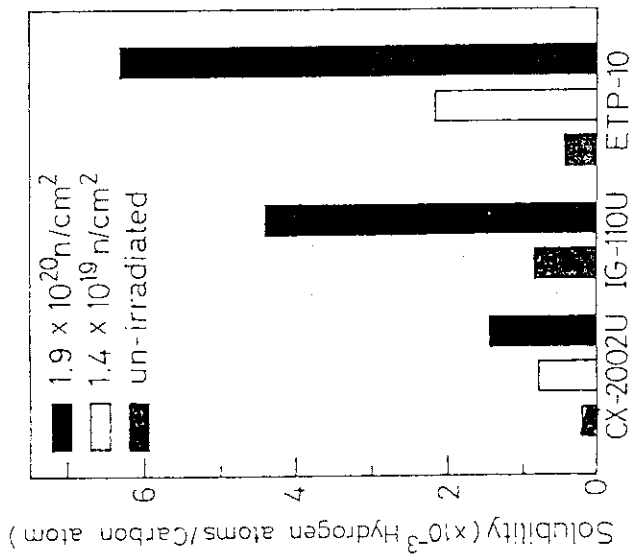


図11 中性子照射による黒鉛への水素吸蔵量の増加
(Ref[58]による)

13. 高速イオンと固体表面の相互作用 〈表面Wakeの効果〉

京都大学 工学部 木村健二, 藤居義和, 万波通彦

1. はじめに

固体(導体)表面近くの真空中に点電荷を置くと, 外部電荷を遮蔽しようとする固体価電子の応答により鏡像ポテンシャルが生じることはよく知られた現象で, 固体表面の電子状態を決める一つの因子でもある。低速イオン ($V < V_B$; Bohr速度) が表面で反射されるときイオン・固体表面間の電子の移行においても, この鏡像ポテンシャルの果たす役割は詳しく研究され, INS(ion neutralization spectroscopy) の解析に利用されている。¹⁾ 電荷が表面に平行に高速で運動するようになると ($V > V_B$), 固体価電子の応答は外部電荷に追従できず点電荷の軌道に沿って点電荷と共に移動する表面付近の電子の振動(表面ウェイクsurface wake)が生じる。これによる真空中のポテンシャルは, 表面ウェイクポテンシャル, または, 動的鏡像ポテンシャルと呼ばれる。²⁾

高速イオンの表面ウェイクについては, 理論的には研究されてきたが, 実験的研究は殆ど行われていなかった。最近, 清浄な結晶表面に小角度で入射した高速イオン ($\sim 1\text{MeV/u}$) の非弾性衝突過程において表面ウェイクによると見られる現象が観測できるようになった。特に, イオンの近くに別の荷電粒子があるとき, この粒子の散乱, 励起状態は表面ウェイクに大きく影響される。本報告では, この表面ウェイクを中心として, 高速イオンと固体表面の相互作用についての研究を紹介する。

2. 鏡面反射と表面ウェイクポテンシャル

原子的に平滑な結晶表面に高速イオンを小角度 θ_i で入射すると, イオンは表面原子と小角多重散乱を繰り返し, 鏡面反射方向に散乱される。図1(a)はテルル化錫 (SnTe) 結晶の(001)表面に 0.7MeVHe^+ イオンを角度 $\theta_i = 4.8\text{mrad}$ で入射したときの, 鏡面反射散乱イオンの角度分布を測定した結果である。散乱イオンの強度分布は鏡面角 $\theta_s (= 2\theta_i)$ で最大となる。鏡面角 θ_s を中心とした散乱角度分布の広がりには表面における電子との散乱, 原子の熱振動, 表面欠陥等のために生じるものである。入射イオンの方向を表面に平行な低指数軸とほぼ一致させると, 図1(b)のように散乱イオンはぼけた円弧上に分布する。これは表面に列状に並んだ原子と小角多重衝突を繰り返し反射されたイオンである。丁度, 磨いた円柱に対し, ほぼ円柱に沿って可視光を入射したときの反射に似ている。この円弧のぼけも表面原子の熱振動, 表面欠陥のためである。このような散乱を表面(軸)チャネリングと呼ぶ。

原子面における高速イオンの小角多重散乱では, イオンの軌道は古典的に扱うことができ, イオ

ン面チャネリングと同様に、イオン・原子間ポテンシャルを原子面に沿って平均した連続表面ポテンシャル内の運動に近似できる。³⁾ イオン・表面の相互作用を連続表面ポテンシャル $U_p(z)$ と書けば、表面 ($z=0$) の外 ($z>0$) から xz 面内で表面に角度 θ_i で入射する高速イオン (質量 M , エネルギー E , 速度 v) の運動方程式の z 軸方向の成分は

$$Ma^2z/dt^2 = -dU_p(z)/dz, \quad (1)$$

で与えられる。(1) 式を積分し、 $dx/dt=v$ を用いると z 方向の運動エネルギー保存則

$$E_{\perp} = M(dz/dt)^2/2 + U_p(z) = E\theta_i^2, \quad (2)$$

が得られる。この積分定数を E_{\perp} と書き横エネルギーと呼ぶ。式(2)より、入射角 $\theta_i (\ll 1)$ のイオンが原子面へ最も近づく距離 Z_m は $U_p(Z_m) = E\theta_i^2$ で与えられる。入射角 θ_i が増すにつれて、最近接距離 Z_m は小さくなり、 Z_m が Thomas-Fermi 遮蔽距離 a_{TF} 程度になると連続ポテンシャルの近似は使えなくなり、個々の原子によるイオン散乱が支配的になる。^{3, 4)} そこで、鏡面反射が起こる臨界入射角度 θ_c の目安は $U_p(a_{TF}) \sim E\theta_c^2$ である。例えば、 1MeVH^+ イオンがシリコン (110) 面においては、臨界角は 3.5mrad である。また、多くの場合 Thomas-Fermi 遮蔽距離 a_{TF} は 0.1\AA 程度であるから、鏡面反射の条件下ではイオンは表面原子に距離 0.1\AA 程度まで近づくことができる。このようなイオン軌道に沿っての衝突はソフトで、固体内殻電子が非弾性散乱に寄与する割合は少ない。

固体内を荷電粒子が運動するとき、粒子の軌道近くの原子は分極し、その結果、粒子の軌道に沿って電子密度の疎密が生じる。これが固体内での荷電粒子のエネルギー損失 (阻止能) の原因の一つであるとし、N. Bohr は荷電粒子の軌道に沿ってできる電子密度の疎密状態をウェイク (wake) と呼んだ。高速荷電粒子の電荷を遮蔽しようとする電子気体の応答をもとに、このウェイクを最初に求めたのは Neufeld と Ritchie である。⁵⁾ この取扱は古典電磁気学によるものであったが、その後、より厳密な理論的取扱い (分極性固体における高速荷電粒子の自己エネルギー) がなされ、⁶⁾ また、実験的にもこのような航跡の存在が検証されている。^{7) 8)}

一方、電磁気学において、導体表面外にある荷電粒子は鏡像ポテンシャルを受けることが知られている。これは固体電子が外部電荷を遮蔽しようとする応答である。荷電粒子が高速 ($v > v_B$) で表面と平行に運動するときには、固体電子の遮蔽は粒子の運動に完全には追従できず、粒子の軌道に沿い表面上に電子密度の振動が生じ、真空中には振動するポテンシャル場を作る。これは表面ウェイクポテンシャル (surface wake potential), または動的鏡像ポテンシャル (dynamic image potential) と呼ばれる。Takimoto による最初の計算 (自己エネルギー) に続き、⁹⁾ 数多くの理論的研究がなされている。^{2, 10-12)} 1MeV の H^+ が $\text{SnTe}(001)$ 表面に平行に距離 $z = 2\text{ a.u.}$ で運動するとき、表面から $z = 2\text{ a.u.}$ 離れた面上での電子に対する表面ウェイク (動的鏡像) ポテンシャルを図 2 に示した。計算においては、複素誘電率 $\epsilon(\omega) = 1 - \omega_0^2 / [\omega(\omega + i\gamma)]$, $\hbar\omega_0 = 15\text{eV}$ を用いた。図から明らかのように、イオン位置でのポテンシャルの勾配はイオンを減速させる。また、この図では明らかでないが、ポテンシャルの 3 次元的变化は、鏡像ポテンシャルと同様に、表面方向へは引力を与える。

表面に斜入射したイオンの運動に対し、式(1)において、原子面による連続表面ポテンシャルに表面ウェイク（動的鏡像）ポテンシャルが付け加わるが、高速イオン（ $v > v_B$ ）に対しては、表面ウェイクポテンシャルによる表面方向の力の成分は殆ど無視できる。keV以下の低速イオンにおいては、後に見るように、表面ウェイクポテンシャルがイオン軌道に影響を与えるようになる。

表面（軸）チャネリングにおいては、低指数方向に並んだ原子列に沿ってイオン・原子ポテンシャルを平均した連続軸ポテンシャルによりイオンの軌道を扱うことができる。しかし、イオンの運動は複雑で、イオンの散乱角のみから、表面付近でのイオンの軌道を決めるのは簡単でない。そこで、以下の議論ではイオンの鏡面反射のみを扱うことにする。

3. イオンのエネルギー損失

イオンが表面に斜入射したとき、散乱イオンは特徴的なエネルギースペクトルを示す。図3は0.7MeVHe⁺イオンがSnTe(001)面に斜入射した時の散乱イオンのエネルギースペクトルの例である。低エネルギー側に見られる構造は後に述べるように表面の状態に依存するが、いずれのスペクトルも入射イオンのエネルギーより約15keV低いところに、鋭い極大を示している。この極大は鏡面反射したイオンが表面近くを運動するとき、表面との相互作用でエネルギー損失 ΔE を受けたものである。

表面から距離 z を表面と平行に走るイオンが単位距離当たり失うエネルギーを $S(z)$ （「表面からの距離に依存する阻止能」）とすると、イオンのエネルギー損失 $\Delta E(\theta_i)$ はイオン軌道に沿っての積分

$$\Delta E(\theta_i) = \int_{\text{traj}} S(z) dx \quad (3)$$

で与えられる。式(1)を積分した関係式

$$(dz/dx)^2 = [Up(z_m) - Up(z)]/E, \quad (4)$$

を代入すると、

$$\Delta E(\theta_i) = 2\sqrt{E} \int_{z_m}^{\infty} S(z) [Up(z_m) - Up(z)]^{-1/2} dz, \quad (5)$$

が得られる。式(5)はAbel形の積分方程式で、その解は

$$S(z_m) = -[dUp(z_m)/dz_m]/(2\pi E^{1/2}) \\ \times \left\{ \Delta E(0)/Up(z)1/2 + \int_0^{\pi/2} \Delta E'(\theta \sin u) du E^{-1/2} \right\}, \quad (6)$$

である。ただし、 $\Delta E'(x)$ は x についての微分である。 ΔE の入射角 θ_i 依存から、式(6)を用いて求めたHeに対するSnTe(001)面の阻止能 $S(z)$ を図4に示した。阻止能は表面からの距離に対してほぼ指数関数的に減少する。

このような「表面からの距離に依存する阻止能」の原因の一つは表面ウェイクポテンシャルであ

る。図2から明らかなように、イオンの位置におけるポテンシャルのx方向の勾配はイオンを減速させる。表面プラズマエネルギー $\hbar\omega_p = 10.5\text{eV}$ を用い、また、電子気体の表面が表面第一原子面から 1.5\AA 外側（この場合、表面に平行な(001)面の面間隔の二分の一を選んだ）にあるとして、Kawai等¹³⁾が求めた表面軌跡ポテンシャルによる阻止能を計算した結果を図4に点線で示した。表面からの距離が約 2\AA 以遠では計算と実験は比較的よく一致するが、それより近くでは大きくずれる。これは表面近辺で起こるイオン・電子の2体衝突によるエネルギー損失と考えられる。表面付近の電子密度を正確に求めることが難しいが、粗い模型から計算したイオン・電子の2体衝突による阻止能（図4における一点鎖線）を加えると計算実験の比較的よい一致が得られる。¹⁴⁾同様な測定と計算の比較をNaCl型結晶構造を持つPbSe, PbS, KCl, NaCl, KBr(001)表面のH, Heについて行い、よい一致を得ている。¹⁵⁾

図3(a)の散乱Heのエネルギースペクトルには等しいエネルギー間隔でいくつかの極大が見られる。各極大のエネルギー損失の値は $n\Delta E(\theta_i)$ である($n=3, 5, 7, \dots$)。これら極大が表面外で散乱したイオンより大きなエネルギー損失をしていることは、イオンが結晶内を通ったことを示唆している。鏡面反射条件下でイオンが結晶内に入ることができるのは、表面のステップの端からである。ステップから結晶内に入ったイオンは表面第一原子層に平行な(001)原子面に沿って面チャネリングしたのち、再びステップから表面外に散乱される。イオンのエネルギー損失の大部分がイオンが原子面の近くを通るとき起こるとすれば、面チャネリングして再び結晶外に出て来るイオンは結晶内で奇数回原子面に近づき、そのエネルギー損失は $n\Delta E(\theta_i)$ になる($n=3, 5, 7, \dots$)。したがって、エネルギー損失ピークの強度比は表面上のステップの密度と分布に依存する。

散乱イオンのエネルギースペクトル以外にも、イオンの散乱角度分布、イオンの荷電状態分布等にもステップの影響がみられ、これらを利用した表面状態の計測が可能である。^{16, 17)}

4. コンボイ電子

高速イオンが薄膜を通過するとき、イオンの出射方向で二次電子の速度スペクトルを観測すると、イオンと等速度の位置に非常に鋭いピークが見られる。この電子はコンボイ(convoy)電子と呼ばれ、20年程前に初めて観測されて以来、¹⁸⁾多くの人たちの興味を引き各地で研究されてきた。^{19, 20)}コンボイ電子が鋭いピークを形成するのは、イオンと電子の間のクーロン相互作用の特殊性による事が知られている。その生成機構についても、薄膜中で生成されたイオンとほぼ等速で運動している電子が、薄膜内で弾性及び非弾性散乱を繰り返したのち出口表面から現れる際に、イオンの低い連続状態に移行するとコンボイ電子となり、真空レベル直下の束縛状態に捕らえられるとリドベリー・イオン(原子)になるという模型でほぼ説明されている。¹⁹⁾

単結晶表面における斜入射イオン散乱においても、コンボイ電子が放出されることが知られている。²¹⁾コンボイ電子はイオンの近くをイオンとほぼ等速度で運動するので、イオンのつくる表面

ウェイクを調べるためのプローブとして非常に有用である。図5にSnTe単結晶の(001)表面で、0.25MeV/uの H^+ , He^+ , Li^{2+} , C^{2+} イオンが鏡面反射したときに放出されたコンボイ電子のエネルギースペクトルを示す。いずれの場合もコンボイ電子のピークが見えるが、薄膜透過で生じるコンボイ電子の鋭く尖ったピークに比べて、斜入射イオン散乱で生じるコンボイ電子のピークはなだらかで幅が広い。さらにコンボイ電子のピーク・エネルギーはイオンと等速の電子のエネルギーより大きく、コンボイ電子は加速されていることが分かる。この加速の大きさはイオンの原子番号(Z_1)に依存しており、 H^+ イオンでは加速はほとんど起こらないが Z_1 の増加と共に大きくなる。Xe, Ar等の多価イオンではさらに大きな加速が見いだされている。²²⁾

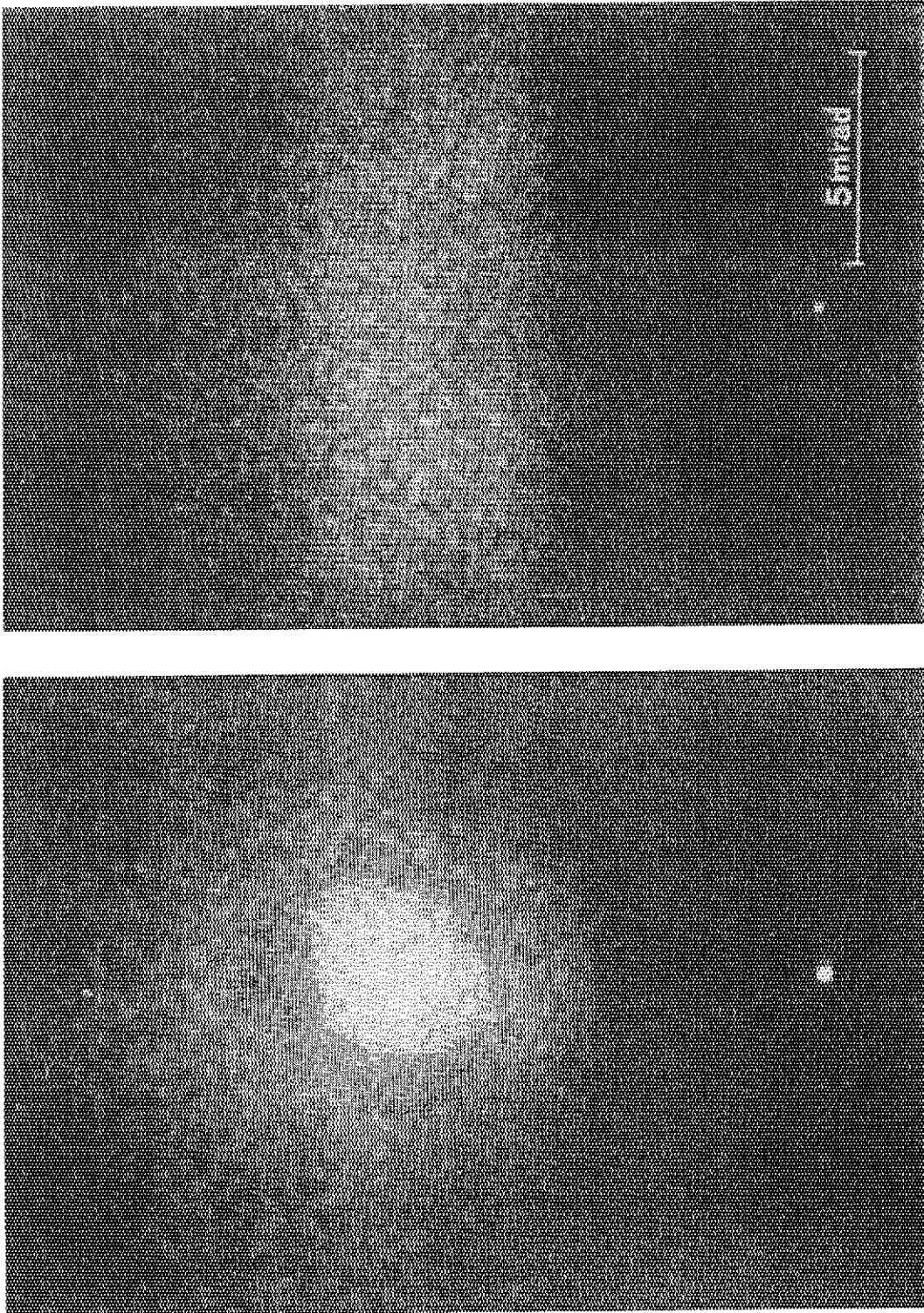
このコンボイ電子の加速は表面ウェイクの存在を考慮した次のような簡単な模型で説明できる。^{21, 23)} 表面外部にあるコンボイ電子に働く力は、イオンとのクーロン力、表面原子によるポテンシャルと表面ウェイクによる力である。この場合、表面ウェイクはイオンのつくるウェイクとコンボイ電子自身のつくるウェイクの重なりである。既に見たようにイオンによるウェイクはイオンの近くにいる電子を加速し、電子自身によるウェイクは電子を減速する。イオンによるクーロン力は最終的なコンボイ電子の平均速度にはほとんど影響しないこと、表面原子によるポテンシャル力はコンボイ電子の速度にはほぼ垂直な向き(表面に垂直な向き)に働き電子の加速には余り影響しないことを考えると、電子の加速にかかわるのは表面ウェイクによる力である。簡単のため、電子はイオンと同じ位置にあるとすれば、イオンと電子の電荷の和($q-1$)eの電荷により生じるウェイクがコンボイ電子を加速することになる。このことから、 H^+ 入射ではコンボイ電子の加速が起こらないこと、イオンの価数が大きくなると加速が大きくなることが理解できる。この表面ウェイクによるコンボイ電子加速の模型は、電子を古典粒子として扱ったモンテ・カルロ・シミュレーションによっても支持された。²⁴⁾ このように、これまで理論的に詳しく研究されていた表面ウェイクの存在が、斜入射散乱イオンの放出するコンボイ電子をプローブとして用いることにより実験的に初めて確かめられた。

斜入射イオン散乱におけるコンボイ電子の生成機構についてはまだ完全には解明されていないが、散乱イオンとコンボイ電子の同時計測によって、イオンの出射軌道上で表面から約2 Å離れたあたりでコンボイ電子がつくられていることが示唆されている。²⁵⁾ また薄膜透過のコンボイ電子に比べてピークがあまり鋭くないのは、表面ウェイクにより電子の感じるポテンシャルがクーロン・ポテンシャルからずれるためであると考えられている。²⁶⁾ コンボイ電子と密接な関係にあるリドベリー・イオン生成も表面ウェイクの影響を大きく受けると思われるがその詳細はまだ分かっていない。

文 献

- 1) H. D. Hagstrum: Inelastic Ion-Surface Collision, ed. N. H. Tolk et al., Academic Press, 1977, p. 1.
- 2) G. Gumbs and M. L. Glasser: Phys. Rev. B37 (1988) 1391.
- 3) J. Lindhard: K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat.-Fys Medd. 34 (1965) No. 14.

- 4) D. S. Gemmell: Rev. Mod. Phys. 46(1974) 129.
- 5) J. Neufeld and R. H. Ritchie: Phys. Rev. 98 (1955) 1632.
Phys. Rev. :99 (1955), 1125.
- 6) P. M. Echenique, F. Flores and R. H. Ritchie: Solid State
Phys. vol. 43, p. 229, Academic Pres, 1990.
- 7) M. J. Gaillard et al.: Phys. Rev. Lett.: 41 (1978) 159.
D. S. Gemmell: Chem. Review 80 (1980) 301.
- 8) W. Brandt et al.: Phys. Rev. Lett. 33 (1974) 1325.
- 9) N. Takimoto: Phys. Rev. 146(1966), 366.
- 10) A. A. Lucas: Phys. Rev. B20 (1979) 4990.
- 11) F. Flores and F. Garcia-Moliner: J. Phys. C12 (1979) 90.
- 12) R. Nunez, P. M. Echenique and R. H. Ritchie: J. Phys.
C13 (1980) 4229.
- 13) R. Kawai et al.: Surf. Sci. 114(1982) 137.
- 14) K. Kimura et al.: Phys. Rev. B36 (1987) 7.
- 15) Y. Fujii et al.: in preparation.
- 16) 藤井義和 他, 応用物理学会誌 60 (1991) no. 12.
- 17) Y. Fujii, et al.: Nucl. Instrum. and Meth. B58 (1991) 18.
- 18) K. G. Harrison et al.: Phys. Lett. 35 (1971) 40.
- 19) 山崎泰規: 日本物理学会誌 42 (1987) 991; 放射線 16 (1989) 108.
- 20) K. O. Groeneveld et al. ed.: Forward Electron Ejection in
Ion Collisions, Lecture Note in Physics 213, Springer-Verlag, 1984.
- 21) M. Hasegawa et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 57(1988) 1834.
- 22) A. Koyama et al.: Phys. Rev. Lett. 65 (1990) 3156.
- 23) M. Hasegawa et al.: Nucl. Instr. and Methods B53 (1991) 285.
- 24) T. Iitaka et al.: Phys. Rev. Lett. 65 (1990) 3160.
- 25) M. Hasegawa et al.: Phys. Lett. A145 (1990) 18.
- 26) H. Winter et al.: Phys. Rev. A39 (1989) 3895.



(a) 鏡面散乱。
 (b) $\langle 110 \rangle$ 表面チャネリング。

図1. NaCl型構造のテルル化錫 (SnTe) の (001)表面に角度4.8mrad で入射した0.7MeVHeイオンの散乱角度分布。画面下に見える輝点は見える輝点が入射イオン。試料結晶の下流にMCP(Micro-Channel Plate)と蛍光板を置き、散乱イオン強度分布をCCDカメラで撮像したもの。
 (a)鏡面散乱。(b) $\langle 110 \rangle$ 表面チャネリング。

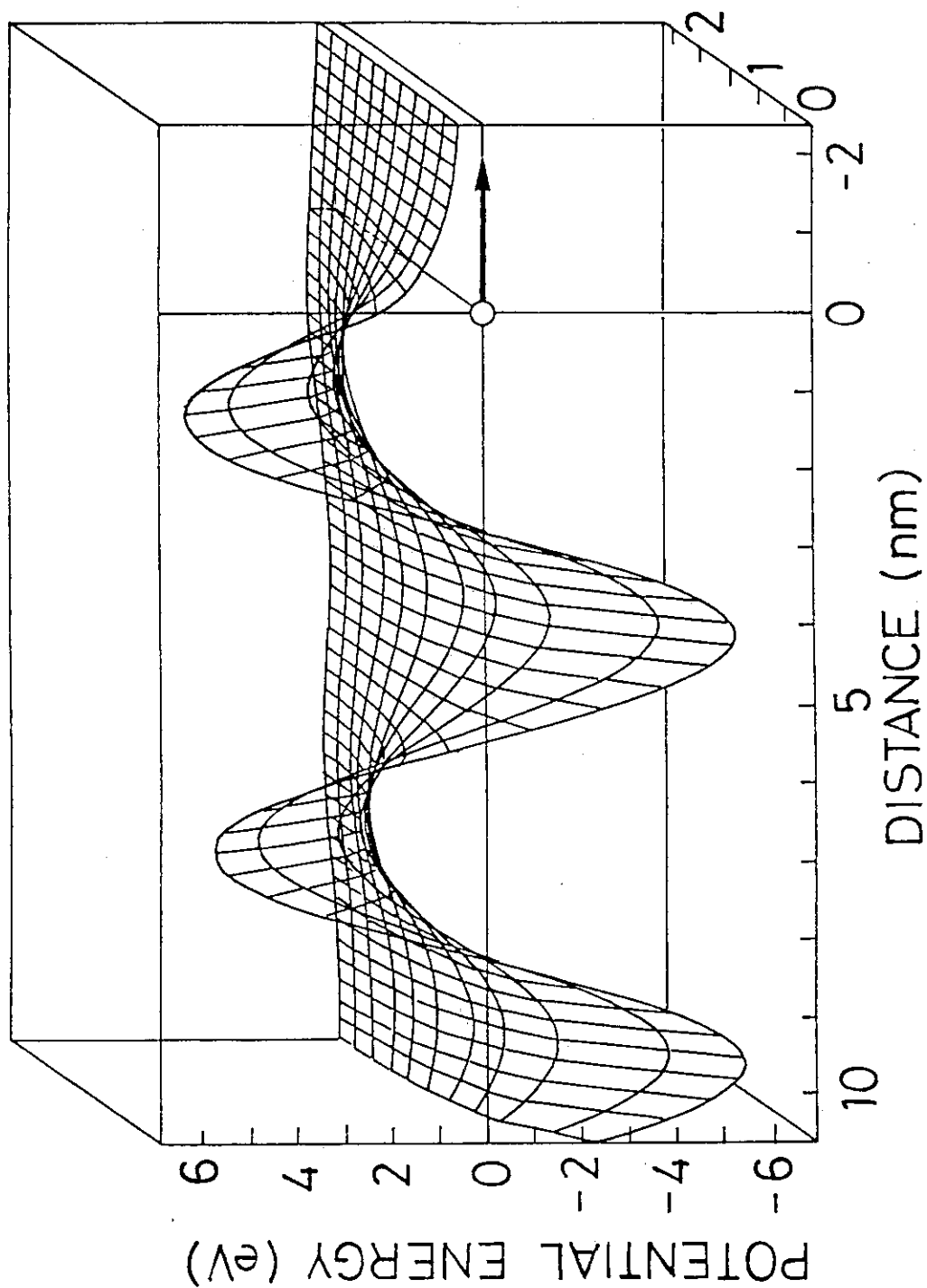


図2. 1MeVの H^+ が $SnTe(001)$ 表面に平行に表面から距離2 a. u.で運動するとき、表面から2 a. u.離れた面上の表面ウェイクポテンシャル。

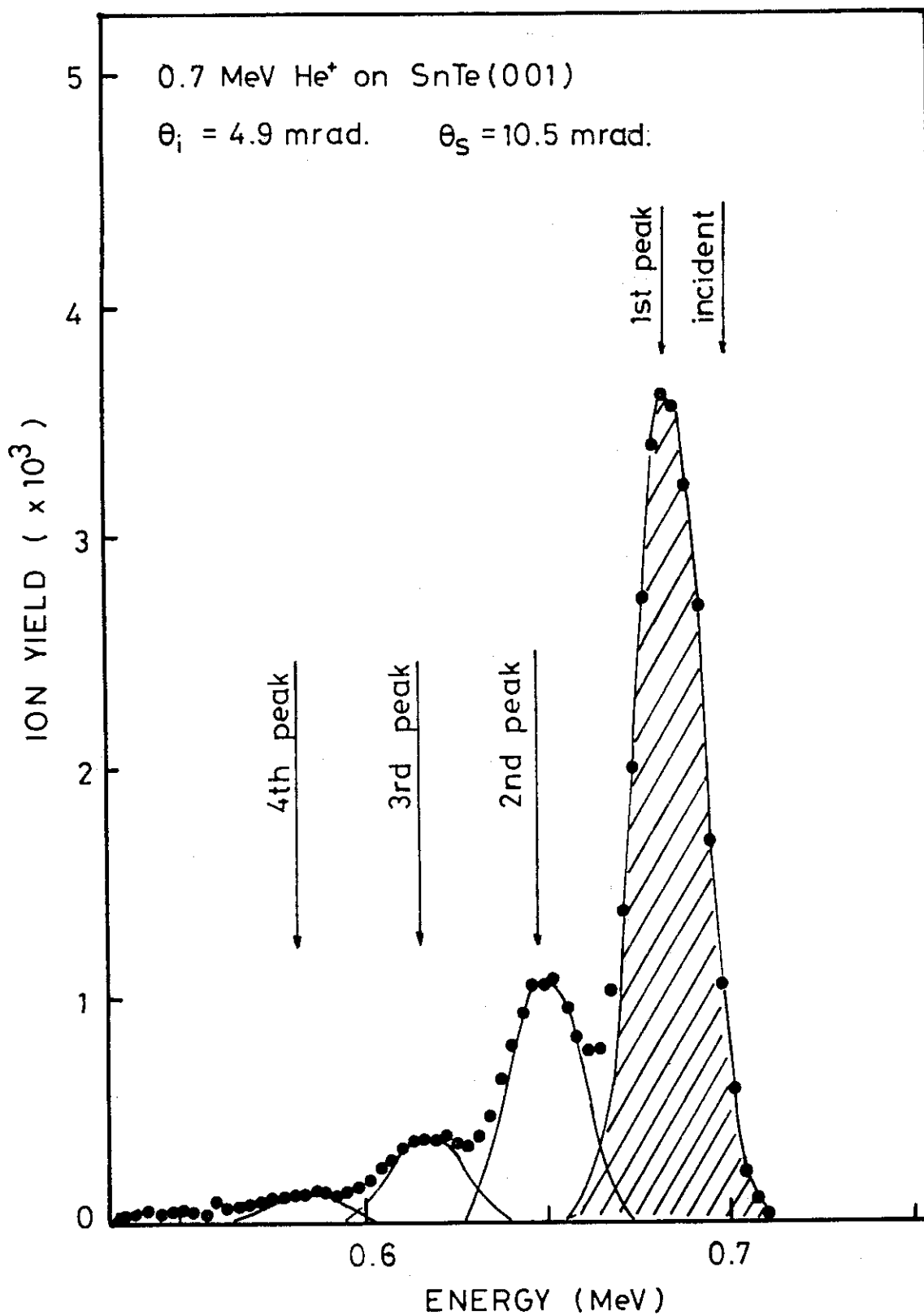


図3. SnTe(001)表面で鏡面反射した0.7MeVHe⁺イオンのエネルギースペクトル (入射 $\theta_i = 5$ mrad)。

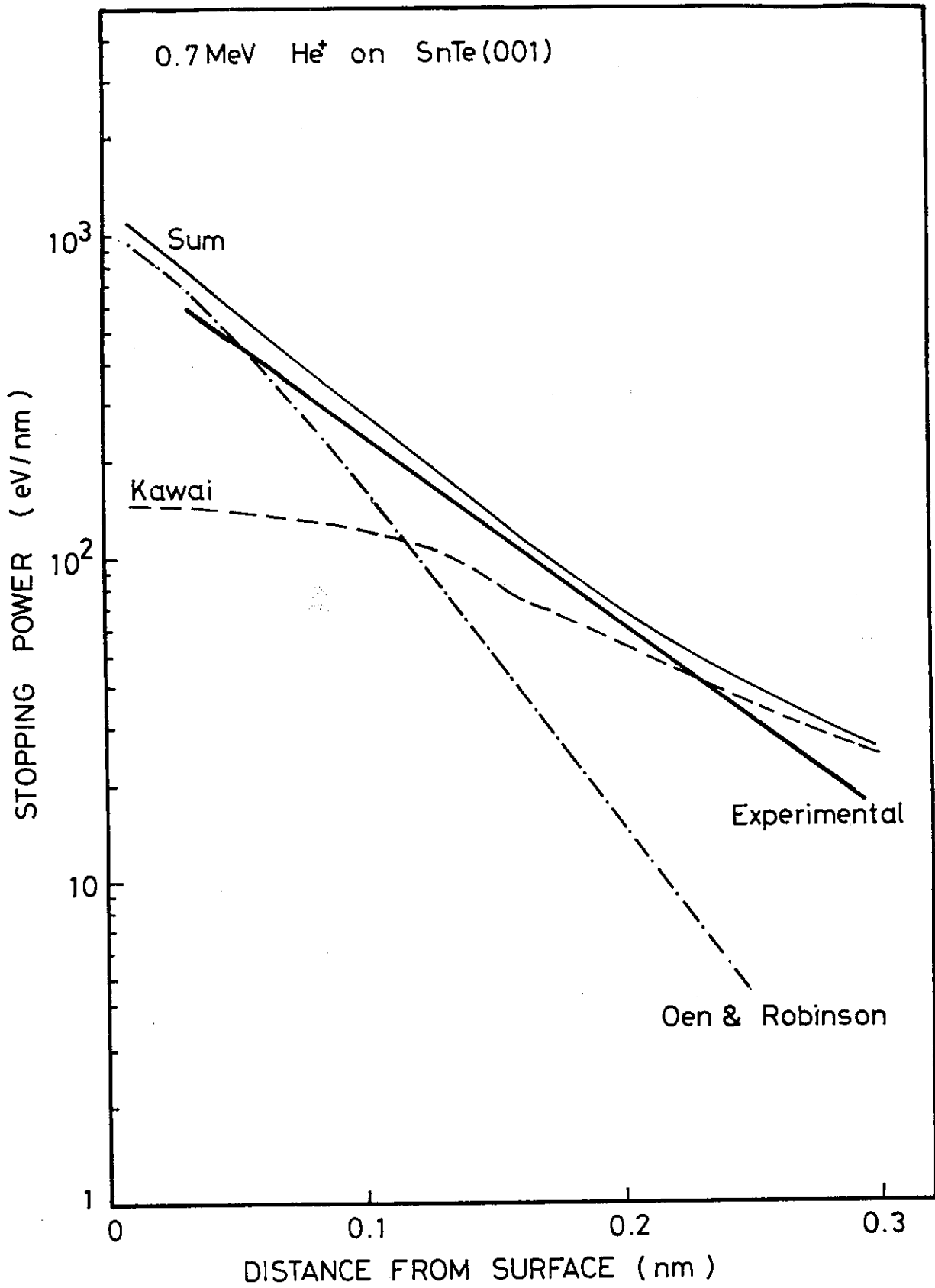


図4. SnTe(001)表面の0.7MeVHeイオンに対する阻止能 $S(z)$ 。¹⁴⁾

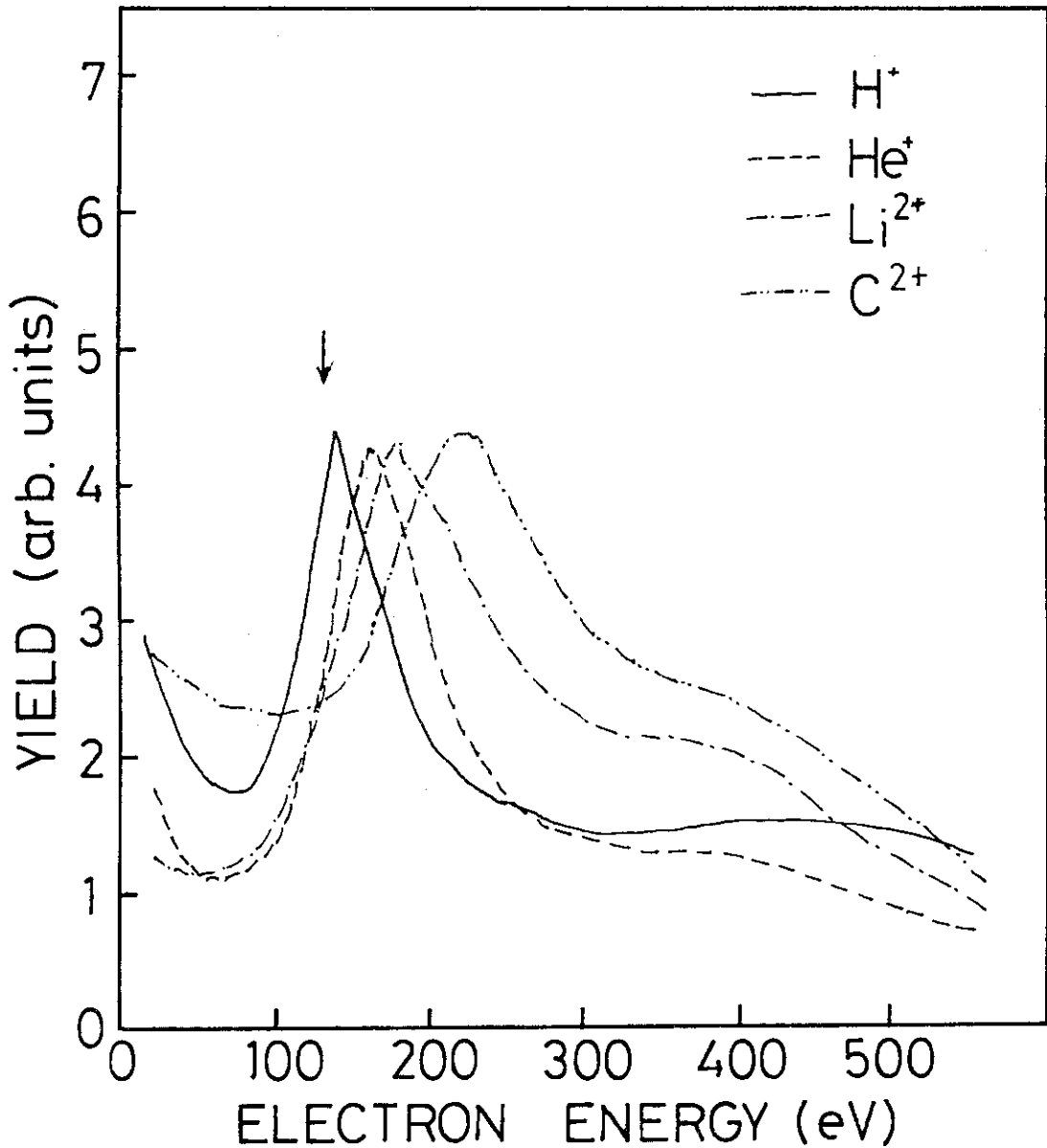


図5. SnTe (001)表面で射入射散乱した0.25MeV/uの各種イオンが放出する2次電子のエネルギー・スペクトル。いずれもコンボイ電子のなだらかなピークが見えるが、イオンと等速の電子のエネルギー（図中に矢印で示す）よりも高エネルギー側にシフトしている。

14. MeV重イオン照射による固体からの2次イオン放出

京大工・原子核 佐倉 直喜, 姜 帥現, 今西 信嗣

はじめに

エネルギーを持ったイオンが固体に入射すると、固体表面から中性もしくは、正負の電荷を持った原子、原子の集団が放出され、固体表面は浸食される。このスパッタリング現象は、従来、数十keV程度以下の入射エネルギーを持つイオンにより多くの実験が行われており、それらの実験結果に対しては、主として弾性衝突カスケードモデルに基づいた理論により、比較的よい説明が与えられてきた[1]。

しかし、MeV領域の入射イオンを用いた実験は、現在のところあまりなされていない。このように入射イオン速度が固体の電子軌道速度と同程度となる領域において、イオンが固体表面近くで失うエネルギーのほとんどは、電子との相互作用によるものであることから、前者とは異なった2次粒子放出機構が考えられる。本研究は、このようないわゆる非弾性スパッタリング現象の存在に興味を持ったことから始まり、MeV重イオンを固体に照射した時に、得られる2次イオンの、特に入射エネルギー依存性に着目することにより、非弾性2次粒子放出過程について研究することを目的としている。

非弾性スパッタリングの機構については、様々な理論モデルが提案されている[2]。これらの多くが説明を試みようとしているものは、電子系の励起エネルギーの格子原子への移行過程である。このような過程においては、もはやターゲットの性質を原子番号 Z と質量数 M といった簡単なパラメータのみで表すことは不可能である。しかも、psecオーダーのような非常に短い時間内での多くの競合する過程を取り扱わなければならない。非弾性スパッタリングの実験的研究は、もともと、非常に高いエネルギーを持って入射する核分裂片や宇宙線による軌跡生成の観測に端を発するが[3, 4]、これは全ての過程が終了した後の状態を見ているに過ぎない。現在、例えば非常に高いそして広範囲の入射エネルギーを持つイオンを、金属、絶縁体等様々な電子的性質を持つターゲットに照射し、放出される様々な2次粒子の持つ性質の測定が行われているが、これまで提案された非弾性スパッタリングモデルに十分な裏付けを与えるには至っていない[2]。

今回は京大工学部タンデム型コッククロフト・ワルトン型加速器を用いて行ったMeVイオン照射による放出2次イオンの測定実験について報告する。この実験から得られた結果の中には、非弾性スパッタリング特有の振舞いを示すものが見つかっている。もちろん、弾性過程を経て生じていると思われるものも含まれているので、両者の区別には慎重さを要するだろう。現在、比較的有望視されている理論モデルとの整合性や、隣接する条件の下で行われた他の実験結果との比較も含めて定性的考察を行ってみる。

○実 験

1. 実験装置

実験装置の概略図を、Fig. 1に示す。

・加速器, 入射ビーム

京都大学工学部のタンデム型コッククロフト・ワルトン型加速器によって得られるイオンビームを用いて実験を行った。加速イオンは、0.5 ~ 11.64 MeVのエネルギーを持つ $C^+ \sim C^{4+}$, $Si^+ \sim Si^{6+}$, $Ge^+ \sim Ge^{4+}$ を用いた。

衝突槽に導入されたイオンビームは、アパーチャにより1 mmφにコリメートされ、ターゲット面に対して18.5度の角度で入射する。

・ターゲット

Al板 (50 μm厚, A199.97%)を用いた。これは、ターゲット表面に、空気中で生成した自然な酸化皮膜を持っている。

・2次イオンの加速, 集束

ターゲット表面より放出された2次イオンのうち、ターゲットと同電位の引き出し電極に開けられた1 mmφの穴を通過したものが、加速電極 (アース電位) との間の電位差12 kVにより加速される。その後、アインツェルレンズにより、12 kVの加速に相当するエネルギーを持つ2次イオンのみが集束され、スリットを経た後、分析電磁石に入る。

・2次イオンの m/q 分離

12 keVのエネルギーを持つ1荷イオンに対して、磁束密度 $B = 0 \sim 3.4$ kGの磁場により30度の偏向を行い、 $m = 1 \sim 103$ の範囲の分析が可能である。磁束密度はホール素子による測定結果より、磁石の定電流電源をリアルタイムで制御することにより、目的の値に設定される。

・検出, エレクトロニクス系

2次イオンの検出器には、セラミック半導体制の2次電子増倍管であるセラトロン (村田製作所製)を用いた。

2. 実験方法

先に挙げた3種類の入射イオンをエネルギーを変えて、ターゲットに照射し、ターゲット表面から放出される2次イオンの m/q 分析を行った。

ビーム電流は、データ収集の前後に計測を行い、 $I/q = 0.45 \sim 5$ nAの値を用い、分析磁場を0.0 ~ 3.40 kGの範囲内で、0.02 kGの単位で増加させながら、検出器の出力を1 chあたり2000 msec間計数した。

○結 果

1. m/q スペクトル

得られた代表的な m/q スペクトルをFig. 2に示す。横軸には、磁束密度、縦軸には、1 chあたりのカウント数がとられている。

Al^+ イオンが最も多く得られており、多荷の Al^{2+} 、 Al^{3+} 及び、クラスターの Al_2^+ イオンが見られる。

また、酸化層からの O^+ イオンや、 AlO^+ から $Al_2O_2^+$ に至るまでの一連の酸化物クラスターイオンも見られる。

H^+ 、 H_3O^+ 、 Na^+ 、 K^+ 等のように、表面吸着物質やバルク中の含有物質に由来すると思われる不純物イオンも見ることができる。

2. 2次イオン収率の入射イオンエネルギー依存性

C、Si及びGeイオン入射、Alターゲットに対する結果を、それぞれFig. 3(a)~(c)に示す。

横軸には、入射イオンエネルギー、左軸には、各2次イオンの計数率を、入射イオンビーム電流1 npA あたりで表した、2次イオン収率がとってある。

同時に、核的エネルギー損失及び電子的エネルギー損失の計算値 [9] も示してあり、右軸に対応している。

○考 察

1. 2次イオン放出過程の定性的描像

2次イオンを、収率の入射イオンエネルギー依存性の違いから分類すると、次の4つのグループに分けられる。以下、これら各2次イオンごとに、振舞いをみてゆき、その生成機構について論じてみたい。

(1) 1荷イオン, Al^+

Cイオン (Fig. 3(a))、Siイオン (Fig. 3(b))、Geイオン (Fig. 3(c)) の全てのイオン入射に対する、全エネルギー領域において、 Al^+ イオンの収率は、核的エネルギー損失と同様のエネルギー依存を示し、エネルギーの増加と共に減少傾向を示している。

1荷イオンの収率は、低エネルギー領域 (≤ 15 keV)において、様々な測定がなされ、カスケードモデルに基づいたスパッタリング収率 Y の計算値と比較することによって、イオン化率 $\tau^+(M^+)$ が見積られている [5]。 τ^+ の入射イオンエネルギーに対する依存性は小さく、ほぼ定数として扱われている。

1荷イオンは、スパッタされた原子が、固体表面を脱離するときに、表面との相互作用による外殻電子摂動の結果としてイオン化される。このように、イオン化は、スパッタリング過程の終盤に起こるために、入射粒子のパラメータには依存せず、むしろ、 τ^+ は固体表面の仕事関数や、放出原子の脱出速度に大きく関わっている。我々の実験結果を見ると、上で述べたようなkeV領域の Al^+ 生成機構を、MeV領域にまで外挿して用いることができるのではないかとと思われる。

また、Blaunerらは [6]、中程度の入射イオンエネルギー領域 (15~275 keV, He^+ , Ne^+ , Ar^+ , Kr^+ , $Xe^+ \rightarrow Al$, Al_2O_3)において、Kippelbergらは [7]、MeV領域 (^{252}Cf -f.f. $\rightarrow Al$)における実験より、 Al^+ イオン収率が $(dE/dx)_n$ と同じエネルギー依存を示す結果を得て、同様の結論を下している。

(2) 多荷イオン, Al^{m+}

2, 3 荷の電荷を持つ 2 次イオンのエネルギー依存は, これら多荷イオンは同じイオン化過程, 放出過程を経ていることを示している。

Ge に対する結果 (Fig. 3(c)) をみると, 収率はエネルギーと共に増加した後, 電子的エネルギー損失が核的エネルギー損失を越えたあたりで一定値を示している。一方, Si (Fig. 3(b)) においては, 同様の領域から緩やかに減少傾向に転じているのがみられる。そして, 電子的エネルギー損失が完全に優勢となり, ピーク値を持つ C (Fig. 3(a)) の高エネルギー領域においては, さらに減少傾向は急激となり, Al^+ または核的エネルギー損失とほぼ同様のエネルギー依存を示している。

ここで, このエネルギー依存性をユニバーサルなパラメータで表すため, LSS エネルギー単位 ϵ を導入する。すると, Al^{m+} がピークを示す領域は, $\epsilon = 20 \sim 40$ となっていることがわかる。Al ターゲットに対する, 核入射イオンの値は, 表 1 のとおりである。

これより, C イオンに対しては, 実験を行った領域に含まれていないことがわかる。

表 1 多荷イオン収率が最大値を示す位置

| ion | LSS 変換係数 | Al^{m+} ピーク位置 $\epsilon = 20 \sim 40$ |
|-----|----------------------|---|
| | E / ϵ [keV] | E [keV] |
| C | 10.289 | 200 ~ 410 |
| Si | 38.365 | 770 ~ 1500 |
| Ge | 188.947 | 3800 ~ 7500 |

低エネルギー領域 ($\leq 15 \text{keV}$, Ar^+) における実験 [5] では, 多荷イオンの収率は数 keV 以下の入射エネルギーにおいて数桁のオーダーで急激に増加した後, 緩やかな増加傾向を示すことが確認されている。また, Al-Fe の合金を用いた実験 [8] からは, Al^+ 収率は Al の依存比 C に比例するのに対して, Al^{m+} イオンは C^2 に比例するという結果が得られている。これらは多荷イオンの生成は, Al-Al 対称衝突時に電子昇位により生じる 2 p 空孔を持った Al 原子が, 固体表面脱離後にオージェ脱励起することによる, という kinetic イオン放出モデルを裏付けるものである。

また, Blauner らは中程度のエネルギー領域 (15 ~ 275 keV) [6] における実験で, 多荷イオン収率は, エネルギーの増加傾向を示し続けるという結果を得て, kinetic 過程によるものであると結論付けている。

しかし, これら keV 領域の実験と, 我々の得た実験結果を総合してみると, 多荷イオン収率は, 1 荷イオンと異なり, 核的エネルギー損失のピークを過ぎても, エネルギーの増加と共に増加を続けて, 電子的エネルギー損失が主要な過程となり始める表 1 の領域においてはじめて減少傾向に転じている。

このようなピークに対する説明としては, MeV 領域における多荷イオン化は, Al-Al 衝突よりむしろ, 高速入射イオンによる直接電離, 励起といった電子的エネルギー損失と関連がある過程の寄与が大きくなっていると考えるのが自然であろう。もし, 一度このような過程により生成し

た励起イオンが、弾性スパッタリング過程により放出されるならば、イオン収率のエネルギー依存は $(dE/dx)_n$ と $(dE/dx)_e$ の積と関連するであろうが、表面励起領域中の原子が、脱離する前に脱励起してしまう可能性について検討の余地がある。

また、このエネルギー領域における多荷イオン放出は、内殻励起と同時に反跳により励起原子が放出され、真空中でオージェ過程により多荷イオン化が起こるという可能性も考えられる。この場合、イオン収率の入射エネルギー依存のピークは、内殻電離断面積のそれと関連づけられるだろう。

(3) 酸化物クラスターイオン, $Al_nO_n^+$

クラスターイオン収率の入射エネルギー依存性は、Alの原子イオンの場合と違って、ユニバーサルな傾向をつかみにくい。Ge (Fig. 3(c)) に対する結果では、核的エネルギー損失に代わって、電子的エネルギー損失が主要な過程となる領域において、収率がエネルギーと共に減少から増加傾向へと転じているのが確認できる。また、Si (Fig. 3(b)) では、核的エネルギー損失が減少し、電子的エネルギー損失が増加する領域において、非常に緩やかな増減しか示さない。そして、C (Fig. 3(a)) においては、電子的エネルギー損失がピークを持つ領域であるにもかかわらず、高エネルギー部分では急激な減少傾向を示し、その傾きは核的エネルギー損失のものに近い。

以上のことより、Si, Geイオン入射によるクラスター放出については、核的、電子的エネルギー損失の両方が同程度の寄与をしていると思われる。しかし、Cイオン入射に対しては、電子的エネルギー損失より 10^{-3} 倍近くも低い値を持つ核的エネルギー損失の方とより強い相関関係がありそうである。

ここで、エネルギー損失の大きさに着目してみる。非常におおまかに言って 3 MeV 以下の入射エネルギー領域では、C, Si, Geの間で電子的エネルギー損失はほぼ同様の値で推移する。それに対して、核的エネルギー損失は、C, Si, Geの順に1桁ずつ大きい値をもっている(表2)。このような領域で、各入射イオンに対するクラスターイオン収率が示す緩やかな減少傾向は、核的エネルギー損失との関連であると考えられる。

表2 3 MeV の入射エネルギーに対する核的、電子的及び、全エネルギー損失 [9]

| ion | $(dE/dx)_e$ | $(dE/dx)_n$ | $(dE/dx)_t$ | [MeV/(mg/cm ²)] |
|-----|-------------|-------------|-------------|-----------------------------|
| C | 4.6657E+00 | 1.4574E-02 | 4.6802E+00 | |
| Si | 7.6401E+00 | 1.4230E-01 | 7.7824E+00 | |
| Ge | 4.7550E+00 | 1.2794E+00 | 6.0344E+00 | |

しかし、3 MeV 以上のエネルギー領域では、C に対する電子的エネルギー損失が表 2 の値で頭打ちになるのに対して、有効電荷の大きい Si, Ge はさらに大きい値を持つ。そして、収率のエネルギー依存性に、電子的エネルギー損失の影響が現れてくるのはこの領域である。以上のことから、 $(dE/dx)_e = 5.0 \text{ MeV}/(\text{mg}/\text{cm}^2)$ あたりに、クラスターイオンの非弾性スパッタリングに対するしきい値が存在するという解釈も可能であろう。

○まとめ

MeV 領域のエネルギーを持つ重イオンを、固体に照射する実験を行うことによって、2 次イオンの、このようなエネルギー領域における振舞いを、収率の入射イオンエネルギー依存性を中心として明らかにすることができた、これらのことより、2 次イオン種ごとに考えられる生成機構についてまとめると以下のようなになる。

- (1) 1 荷イオンについては、keV 領域に引き続いて、弾性衝突過程による放出が主要となっている。
- (2) 多荷イオン収率は、弾性、非弾性衝突の境界領域においてピーク値を示し、両方の過程を組み合わせた 2 次イオン生成機構モデルを必要としている。
- (3) クラスターイオンは、低エネルギー部における弾性衝突過程を中心とした放出から、エネルギーが高くなるにつれて次第に、非弾性衝突過程を経る放出が優勢となってくる。

References

- [1] P. Sigmund, Phys. Rev. 184 (1969) 383
- [2] Yu. V. Martynenko and Yu. N. Yavlinskii, Zh. Tekh. Fiz. 58 (1988) 1164
- [3] P. K. Haff, Appl. Phys. Lett. Vol. 29 No. 8, 15 (1976) 493
- [4] Y. Hayashiuchi, Y. Kitazoe, T. Sekiya and Y. Yamamura, Journal of Nuclear Materials 71 (1977) 181
- [5] G. Blaise and A. Nourtier, Surface Sci. 90 (1979) 495
- [6] P. G. Blauner and R. A. Weller, Phys. Rev. B35 (1987) 1492
- [7] W. Knippelberg, D. Becker and K. Wien, Nucl. Instr. and Meth. 198 (1982) 59
- [8] J. F. Hennequin, R. L. Inglebert and P. Viaris de Lesegno, Surface Sci. 140(1984)197
- [9] J. F. Ziegler "TRIM-91 Version-91.04 "

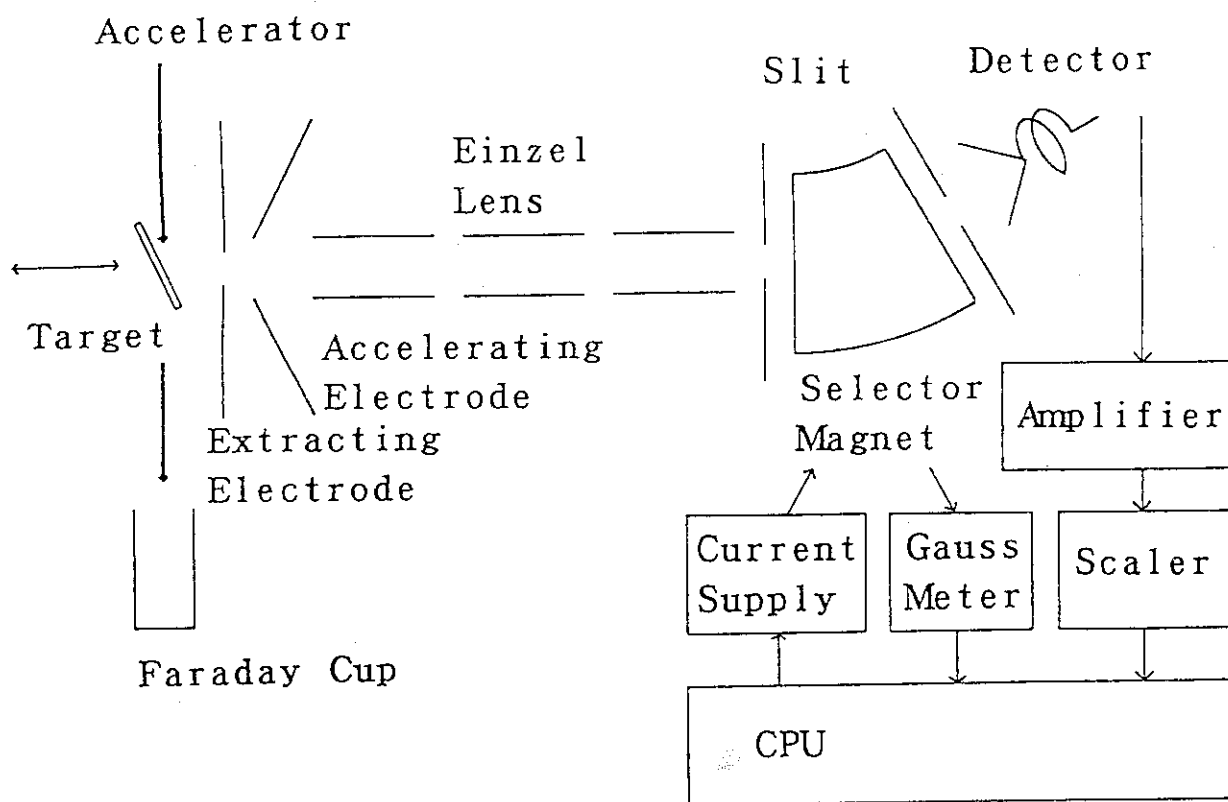


Fig. 1 実験装置概略図

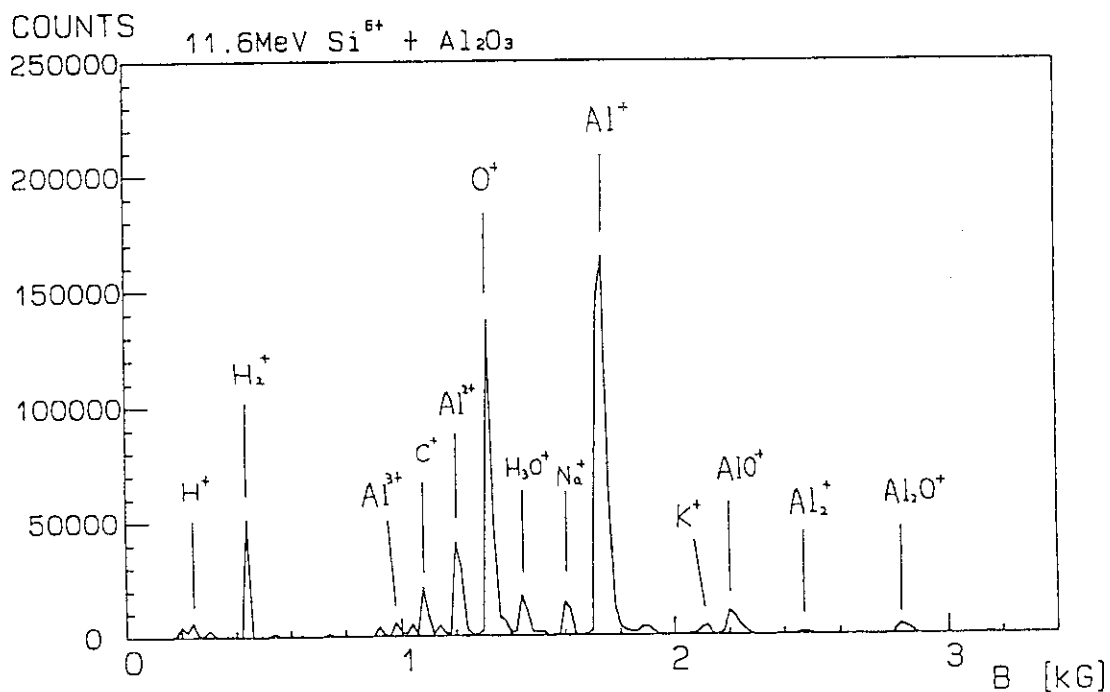
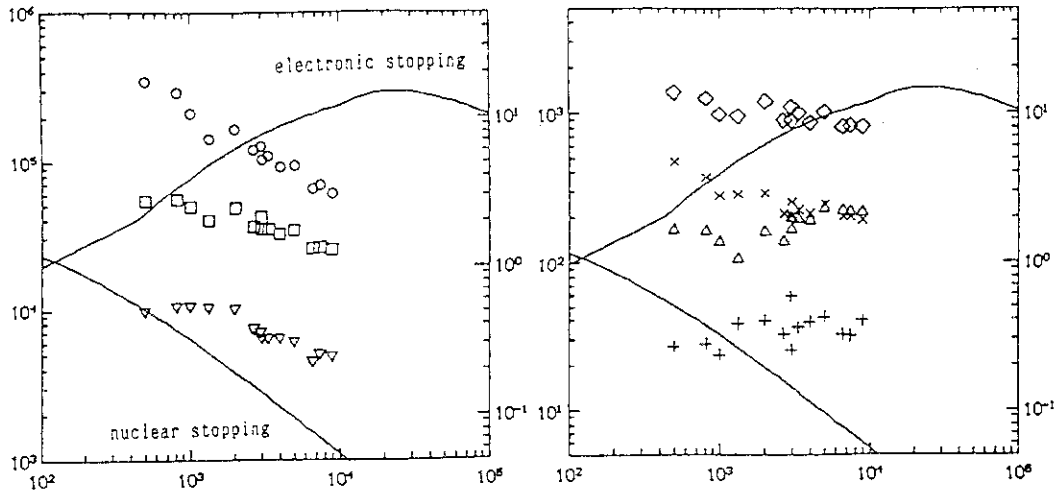
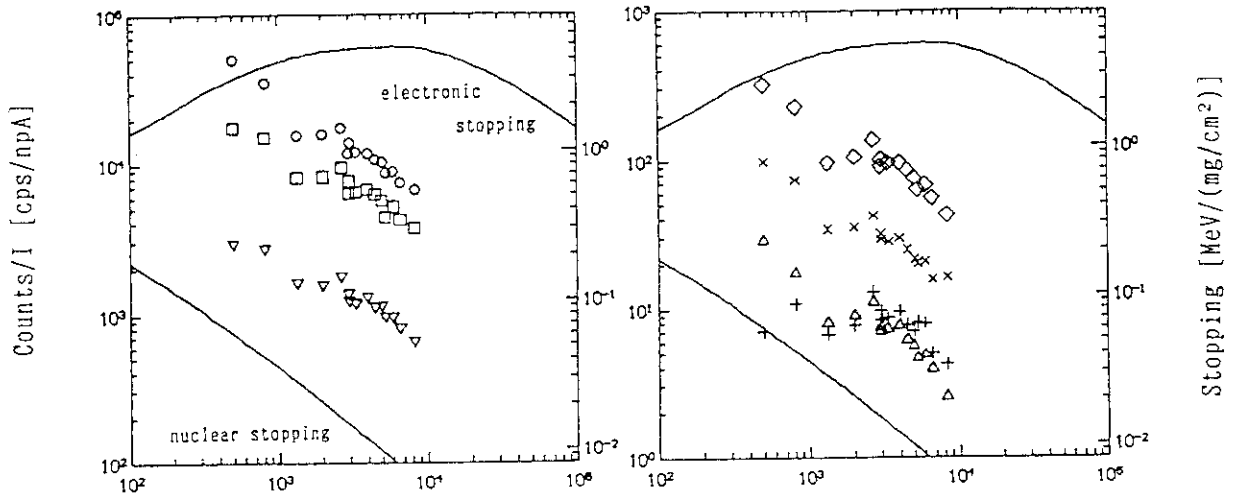


Fig. 2 代表的なm/qスペクトル

(a) C → Al



(b) Si → Al



(c) Ge → Al

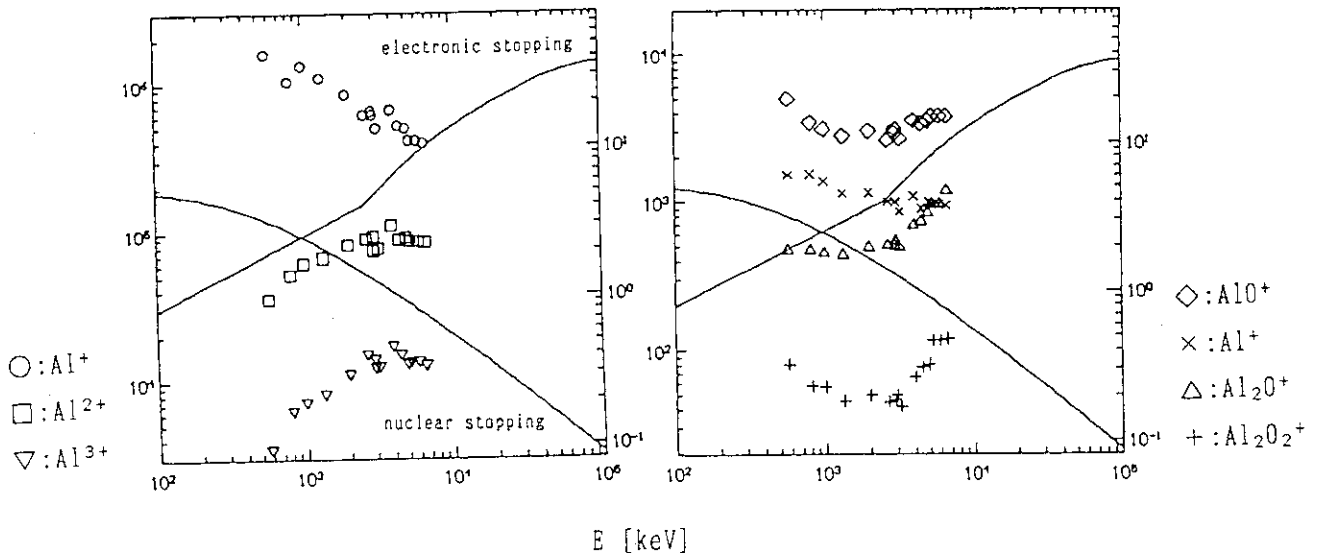


Fig. 3 2次イオン収率のエネルギー依存性及びエネルギー損失

15. クラスタライオン・ビーム照射による元素の深さ分布

岡山理科大学・理学部 山村 泰道

1. はじめに

クラスタライオンは単原子イオンに比べて一度に多量の原子とエネルギーが限られた領域に付与されるため、単原子イオンの照射では想像もできない非線形な新しい現象が期待される。現在、クラスタライオンと固体との相互作用の研究はイオンと固体の相互作用に関する研究分野において、非常に注目を浴びているテーマのひとつである。

クラスタライオンと固体との相互作用の研究はそのクラスタライオンの原子あたりのエネルギーの大きさと関連して2つの大きな流れがある。ひとつは1972年T.Takagi, I. Yamada等(京大工)に始まる比較的エネルギーの低い(数eV/原子)クラスタライオンを用いるクラスタライオンと固体表面との相互作用、所謂、クラスタライオン・ビーム蒸着の研究(1,2,3,4)と、いまひとつは1984年Friedman等(BNL)に始まる比較的エネルギーの高い(数100eV/原子)クラスタライオンを用いる流れ、すなわち、クラスタライオンと固体もしくはバルクとの相互作用の研究である(5,6,7,8)。クラスタライオン・ビーム蒸着に関してはその後多くの研究がなされ、最近では超伝導薄膜も作られるように成った。しかしながら、加速電圧が表面移動エネルギーに転換される機構はYamamura等(9,10)の計算機シミュレーションやHsieh等(11)による分子動力的計算(MD)を通してより明らかになった。

比較的エネルギーの高い(数100eV/原子)クラスタライオンと固体との相互作用に関する理論的(コンピューター・シミュレーションも含む)研究は1988年筆者によるDYACATコードを用いたクラスタライオンによるスパッタリングの研究が最初であろう(12)。そこにおいてクラスタライオン独特の現象として露払い効果と加速効果が見つけられた。露払い効果とはクラスタの下部先行原子が標的原子を跳ね飛ばし、後続原子に道をつける現象であり、結果として飛程をのばす。また、加速効果とはクラスタ内におけるフェルミ・シャトル過程の結果、入射エネルギーより大きいエネルギーを持った原子が存在する現象である。これらの効果はP.Sigmund等によって1990年に分子動力的計算(MD)によって検証された(13)。

1989年BNLのBeuhler, Friedlander, Friedmann(BFF)等は25個から1200個のD₂O分子クラスタを200keVから325keVに加速しTiD固体に照射することにより、異常に大きなd+d核融合率を観測した(14)。また、(C₂D₄)_n, TiD, ZrD_{1.65}固体に対しても同様の大きなd+d核融合率を報告した(15)。これらの現象もクラスタ衝撃に伴う加速効果の応用例であろう。しかしながら、1990年フランスのリヨンのグループは200個から300個の純粋の重水素クラスタをTiD固体に照射してもd+d核融合は観測されなかったと報告しクラスタ衝撃核融合に対して否定的な見解を示した(16)。

一方、クラスタ衝撃核融合にたいする理論としては1990年Echenique等はエネル

ギー分布のゆらぎ、すなわち、分布の高エネルギー部分がマクウエル分布に従う仮定すればBFFの実験が説明できることをしめした(17)。しかしShapiro等はMDを用いて計算したところクラスター衝撃核融合はありえないという結論に達した(18)。その他Crawford等多くの理論計算はクラスター衝撃核融合に対して否定的な結論を示した(19)。しかしながら、最近の一連の実験はBFFの実験に確証を与えている(20)。最近、Yamamura(21)はシミュレーションによって大きなクラスター照射によって衝撃領域が準平衡状態となっており、温度が定義できる状態が出現しているが期待された程の高温ではないことが示された。また、衝撃波理論によってクラスター核融合は説明されるという報告もある(22)。

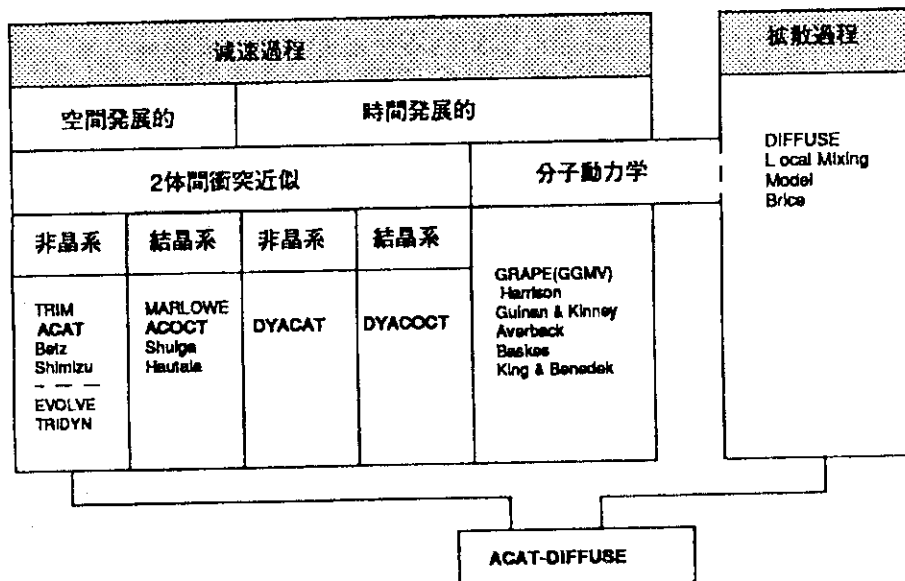
筆者等によって開発された時間的にカスケードを追跡するDYACATコード(23)を用いると、MDではできない大きなクラスター（原子数100個以上）と固体との相互作用のシミュレーションが可能であり、本報告では、特に、クラスター原子の空間分布とエネルギー分布に注目して最近のシミュレーション結果を述べる。

2. 計算機シミュレーション・コード

固体内原子衝突あるいは荷電粒子と固体との相互作用をシミュレーションするコードは、多くの研究者によって開発され、種々の問題に適用され多大の成果を得ている。荷電粒子と固体との相互作用をシミュレーションするコードを分類することは難しいがその一例を表1に示している。

まず、イオンと固体の相互作用の観点から、基本的な素過程で分類するとエネルギー損失の過程（減速過程）と拡散過程（熱的過程）とに分かれ、カスケードの発展の追跡の方法として空間発展的にフォローするか、時間発展的にフォローするかで大別される。また、粒子間の相互作用を取り扱う方法に二体間衝突近似と多粒子の相互作用を同時に解く分子動力学的手法(MD)がある(15,13,24)。固体が結晶系か、非晶系かによって、

表1 荷電粒子と固体の相互作用のシミュレーション・コードの分類



シミュレーション・コードは大きく異なってくる。例えば、有名なTRIM(25)はカスケードを空間的に二体衝突近似の許で追跡するコードで非晶系にのみ適用できる。また、MARLOWE(26)は本質的にはTRIM的ではあるが結晶系に対するコードである。表1において白ぬきの文字で書かれたコードは筆者等が開発したコードであり、ACAT(27)とACOCT(28)はそれぞれTRIMやMARLOWEに対応している。

DYACAT(12)とDYACOCT(9)は二体間衝突近似の範囲内でカスケードを時間的にフォローする新しいタイプのシミュレーション・コードである。DYACATはACATを時間発展的にしたものであり、DYACOCTはACOCTを時間発展的にしたもので、運動している2粒子間の衝突が取り扱える。また、これらのコードは低エネルギーの衝突に際しての2体衝突近似が適用できない場合は衝突半径に含まれる少数の粒子に対してニュートン方程式を数値計算することにより多体効果が考慮できるようになっている。詳しい内容については文献(21)を参照されたい。

ACATやDYACATは他のモンテカルロ・コードと異なって平均自由行程の概念を用いてなく、図1のように固体を一辺 R_0 (R_0 : 平均の格子定数) の単純立方格子に分け、その中に標的原子が三次元的に乱雑に分布していると仮定している。本来、平均自由行程を定義しにくい表面近傍のスパッタリング等の現象のシミュレーションに適していると期待できる。

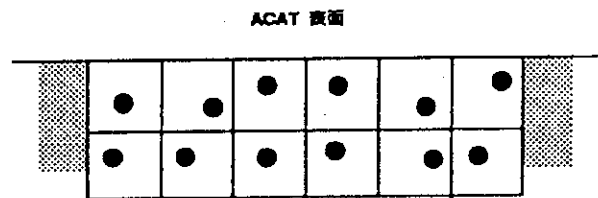


図1 ACATコードにおける疑似結晶

3. シミュレーションの結果と議論

ここでは、比較的エネルギーの高い(数100eV/原子)クラスターイオンを固体に照射した場合について議論する。クラスターイオン衝撃と単原子イオンの照射と根本的に異なる点はクラスターを構成する原子同志の衝突や一部の原子の標的原子との衝突に起因する相乗効果である。現在、二つの効果が指摘されている。露払い効果と加速効果である。前者の効果は構成原子の質量 (M_1) が標的原子の質量 (M_2) より重い場合に顕著であり、後者の効果はその逆の場合に顕著である。

$M_1 > M_2$ の例として、原子あたり200eVの銀のクラスターをAlに照射した場合の銀原子の深さ分布が時間経過と共にどのように発展するかを $n=1$ (単原子イオン)

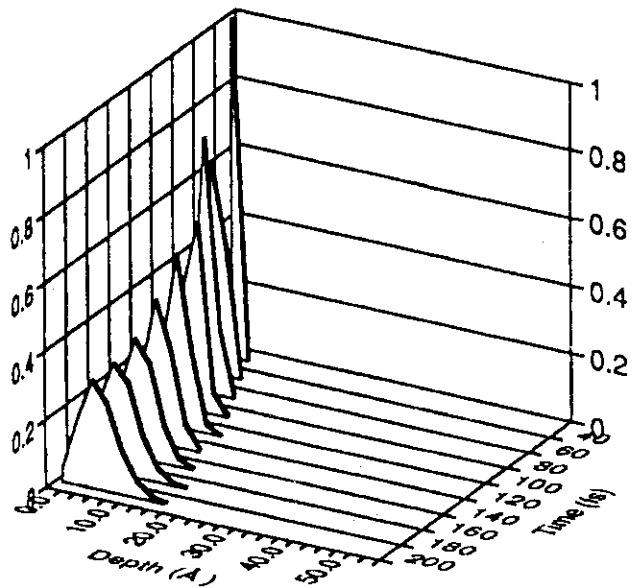


図2a 200eVの単原子AgイオンをAl固体に照射した場合のAg原子の時間の関数としての深さ分布

の場合と $n=500$ の場合について計算し図2に示した。図2aは $n=1$ （単原子イオン）、図2bは $n=500$ のクラスターイオンに対応する。図2aと図2bとの相違は顕著である。単原子イオンの場合には分布は局所的であるのに較べて、大きいクラスター($n=500$)の場合には飛程もストラグリングも約4倍程になる。

大きいクラスター照撃で起こる露払い効果の様子を明らかにするため、図2bに反跳Al原子の分布も加えたものを図3に示した。初期においては反跳Al原子が常に銀原子に先行して進み、後から来る銀原子に道を作っていることが示されている。すなわち、 $M_1 > M_2$ の場合には軽いターゲット原子が道をつくる役割をしている。これは反跳原子の最大速度 $v_{\max} = 2M_1 v_0 / (M_1 + M_2)$ が $1.6v_0$ であることによって。ここに、 v_0 はクラスター原子の初期速度である。

一方、対応するエネルギー分布並びに角度分布が図4、図5にプロットされている。図4においての温度をフィッティング・パラメータとして最小二乗フィッティングされたマクスウエル分布を実線で書きいれている。例えば、 $t=200\text{fs}$ のAl原子の温度は 26eV である。図4より明らかのように、反跳Al原子のエネルギー分布は $t=200\text{fs} \sim 400\text{fs}$ においてすでにマクスウエル分布を示し、銀原子は $t=600\text{fs}$ の後に温度が定義できる状態が出現している。それは図5の角度分布において分布がほぼ等方的か否かによって判定される。 $t < 400\text{fs}$ ではクラスター銀原子のは前方にのみ運動していて、 $t > 600\text{fs}$ になってやっと分布はほぼ等方的になり、エネルギー分布がマクスウエル的になることと一対一対応している。反跳Al原子が一回の弾性散乱により得る最大エネルギーが 130eV であることを考えればAl原子に関する加速効果は大きい。一方、図5と図3を対比させると図5の角度分布は $t=600\text{fs}$ で両原子とも等方的だから飛程

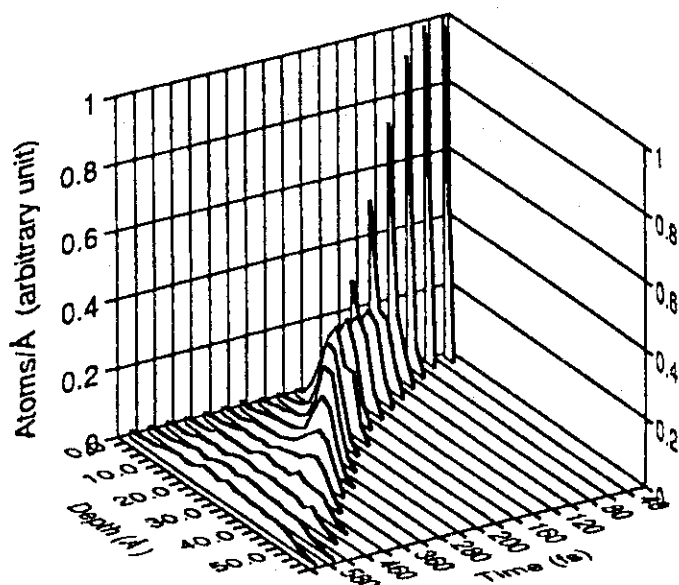


図2b 原子あたり 200eV のクラスターAgイオンをAl固体に照射した場合のAg原子の時間の関数としての深さ分布

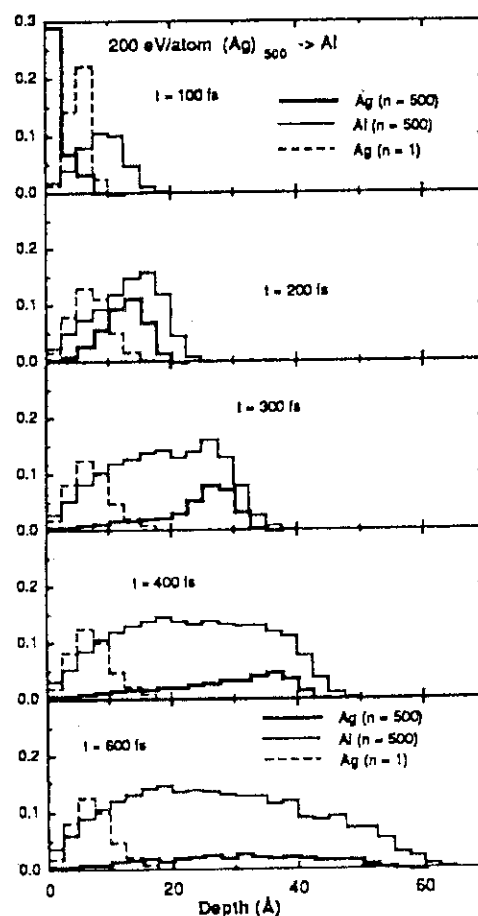


図3 $200\text{eV}/\text{原子} \cdot \text{クラスターイオン} (\text{Ag})_{500}$ がAlに照射された場合のAg原子と反跳Al原子の深さ分布

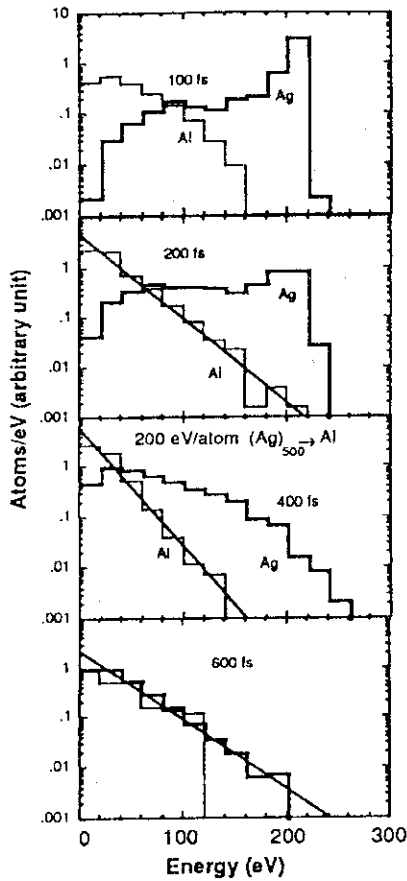


図4 200eV/原子・クラスターイオン(Ag)₅₀₀がAlに照射された場合のAg原子と反跳Al原子のエネルギー分布

はもはやそれ以上延びることはないであろう。

クラスターサイズ効果を見るために原子あたりのエネルギーを200eVに固定しクラスターの大きさを変えた。その場合のクラスター銀原子の平均エネルギー<E>(図6 a)と平均の侵入深さ(飛程)(図6 b)を時間の関数として図9にプロットした。図6 aから解かるようにクラスターが大きくなるにつれて減速時間が大きくなっている。後続の銀原子は先行

図6 200eV/原子に加速されたクラスターイオン(Ag)_nがAlに照射された場合のAg原子の平均エネルギー<E>と平均の侵入深さのクラスターサイズ効果
(a)平均エネルギー<E>
(b)平均の侵入深さ

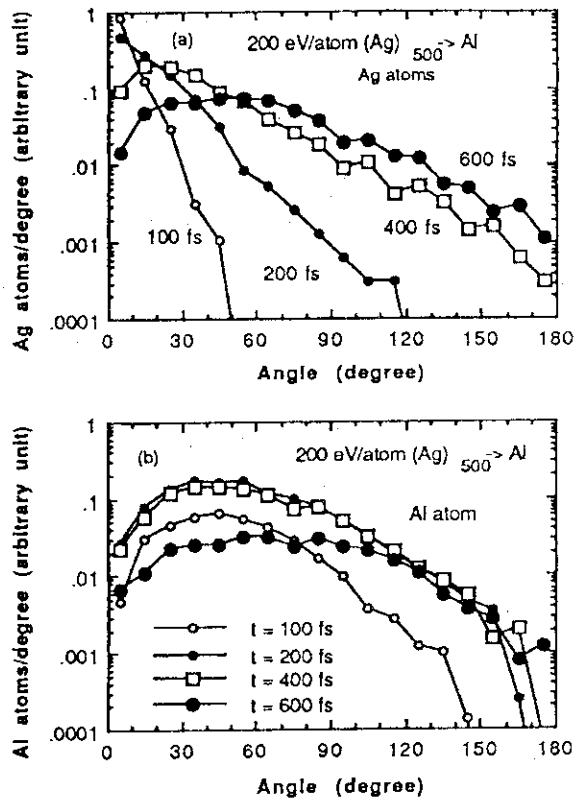
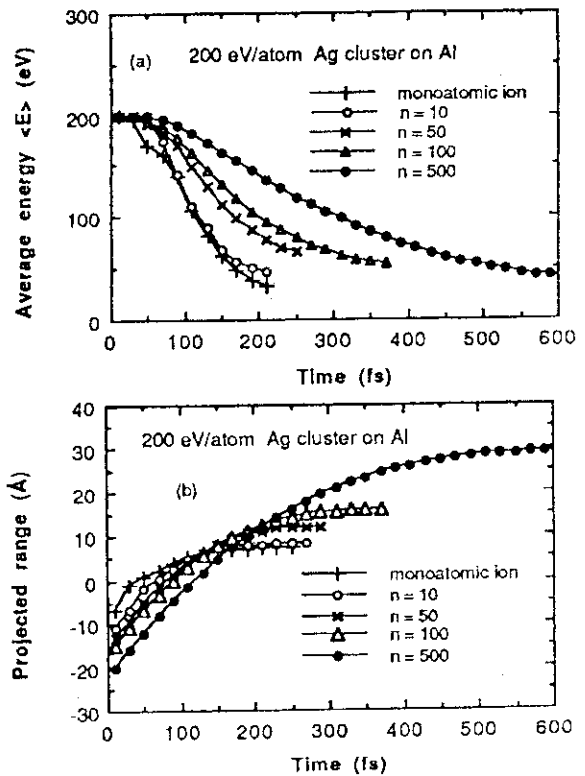


図5 200eV/原子・クラスターイオン(Ag)₅₀₀がAlに照射された場合のAg原子と反跳Al原子の角度分布



原子（この場合は主として反跳Al原子）がつけた道筋に沿って進む露払い効果のためエネルギー損失を伴う衝突を受ける確率が小さい。クラスターが大きくなるにつれて先行原子の数も増え、減速時間も長くなる。

$M_1 < M_2$ の例として、原子あたり400eVの入射エネルギーをもった種々のサイズのAlクラスターを銀に照射した場合についてその深さ分布とエネルギー分布を $(Ag)_n \rightarrow Al$ の場合と同様に計算した。図7は $(Al)_n \rightarrow Ag$ の場合にも露払い効果が存在するか否かを見るために、 $n = 500$ に対するAl原子と反跳銀原子の深さ分布を時間をパラメータとしてプロットしたものである。図3の場合に較べて初期において反跳銀原子がそれほど先行していない。これはAl原子が銀原子より軽いため銀原子($v_{max} = 0.4v_0$)が先行していないのであって露払い効果

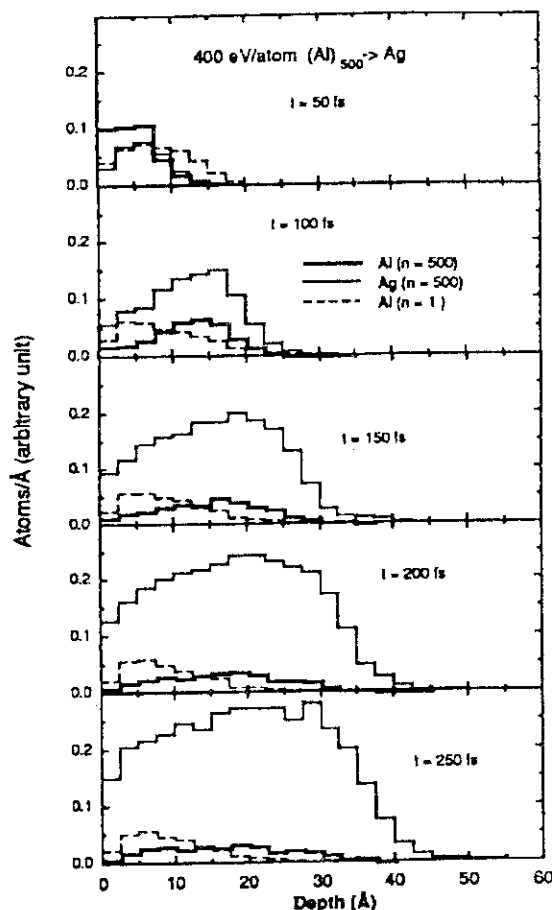


図7 400eV/原子に加速されたクラスターイオン $(Al)_{500}$ がAgに照射された場合の時刻50fs,100fs,150fs,200fs,250fsにおけるAl原子と反跳Ag原子の深さ分布

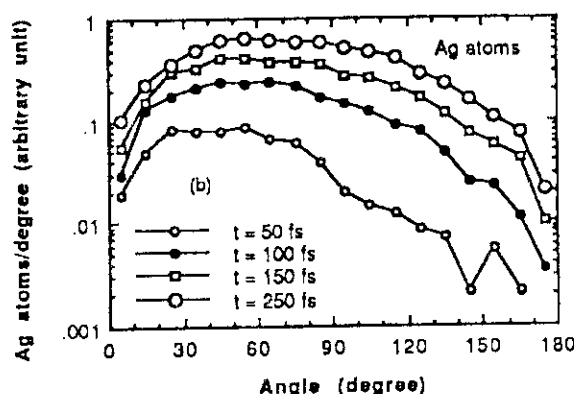
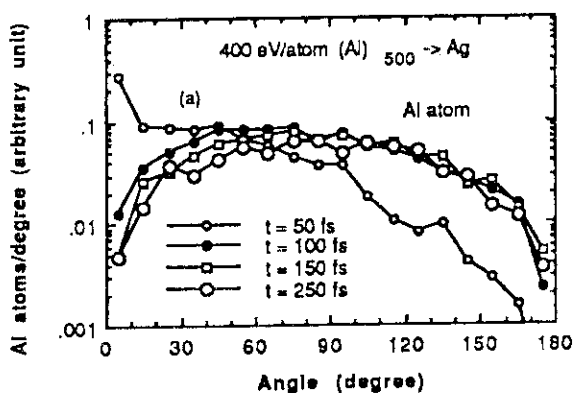


図8 400eV/原子に加速されたクラスターイオン $(Al)_{500}$ がAgに照射された場合の時刻50fs,100fs,150fs,250fsにおけるAl原子と反跳Ag原子の角度分布

がないことにはならない。むしろ、先行Al原子自身による露払い効果の可能性もある。

図8から解かるように $t > 50$ fsではAl原子、反跳銀原子ともかなりランダム化されており、特に、反跳銀原子は数においてもクラスターAl原子に較べて圧倒的多数であるため、反跳銀原子のスパイク領域でクラスターAl原子は膨張を続けるという描像になっている。図7において $t > 100$ fsでは平均の深さが殆ど変化しないのは角度分布がすでにAl原子、銀原子とも等方に近いたためである。

図9のエネルギー分布は図4のそれ

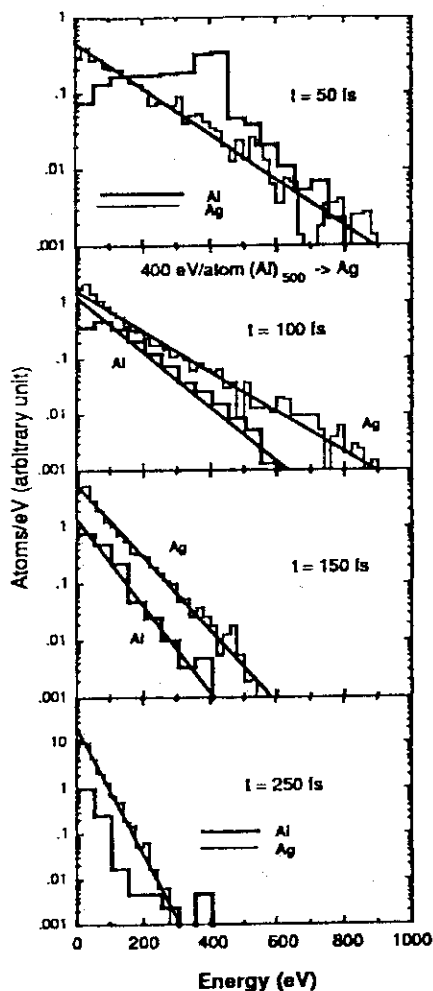


図9 400eV/原子に加速されたクラスターイオン(Al_{500})がAgに照射された場合の時刻50fs,100fs,150fs,250fsにおけるAl原子と反跳Ag原子のエネルギー分布

と違って初期の段階において顕著な加速効果がある。それは図10のようなフェルミ・シャトル過程を考えれば理解できる。入射エネルギー E_0 をもつAl原子が標的原子Agと衝突し反射して別のエネルギー E_1 をもつクラス

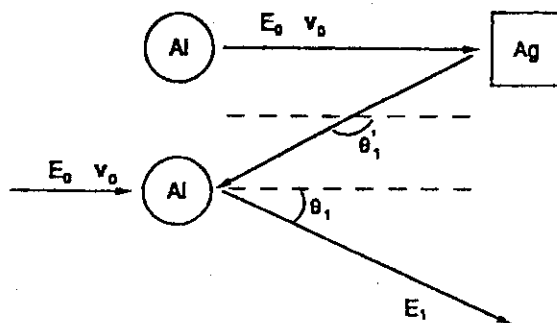


図10 クラスタイオン照射における簡単な加速機構(フェルミ・シャトル過程)の模式図

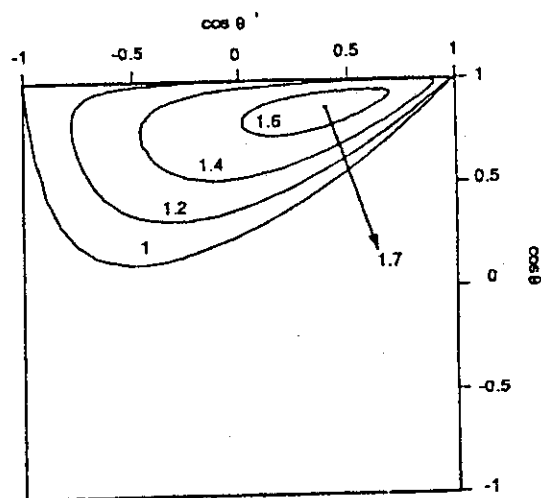


図11 フェルミ・シャトル運動学による E_1/E_0 と $\cos\theta_1$, $\cos\theta_1'$ との関数関係, $\cos\theta_1, \cos\theta_1'$ は図10に定義されている。

ターAl原子と衝突し E_1 のエネルギーになるという単純なフェルミ・シャトル過程を考え衝突の運動学を解くと、図11に示すように、最大 $E_1 = 1.7E_0$ となる。 $E_0 = 400\text{eV}$ の場合、一回の単純なフェルミ・シャトル過程でAl原子は最大628eVのエネルギーを持つ可能性があり、図9の初期における加速効果を説明できる。

クラスターサイズ効果をみるために図12にクラスター原子Alのある時刻における平均エネルギー $\langle E \rangle$ (図12a)と飛程(図12b)を時間の関数としてそれぞれのサイズのクラスターに対してプロットした。ただし、原子あたりのエネルギーは400eVにしてある。図12aから解かるように減速過程のクラスターサイズ依存性は $(Ag)_n \rightarrow Al$ (図6)に較べて小さい。これは露払い効果がクラスター原子Al自身によって行なわれているのとAl原

子の質量が銀に較べて小さいため早い時期に方向がランダム化されるからである。このことは図12aの減速が速いことや図6bの飛程の時間変化がすぐ一定になることにも関連している。しかしながら、

500個のクラスターの場合には露払い効果は大きい。

対応する終状態のAl原子の飛程は表2に示してある。Al原子の深さ分布はサイズが大きくなるにつれて巾広い分布になり、 $n=500$ の分布のストラグリング($\langle \Delta x^2 \rangle$)は単原子イオンの約1.5倍である。表から解かるように小さいクラスターの飛程は単原子イオンとほとんど同じである。 $n > 100$ になって始めて観測にかかる飛程の増大が見られるであろう。

4. むすび

最近、多くの分野で話題になっているクラスターイオンと固体との相互作用に関して、低エネルギー(数eV/原子)と比較的エネルギーの高い(数100eV/原子)に分けてDYACATコードを用いたシミュレーションの結果をもとに話題をまとめた。特に、比較的エネルギーの高い場合のエネルギー分布の高エネルギー成分がマックスウエル分布に従う、すなわち、クラスター衝撃により形成されたカスケード領域が準平衡状態になっていることは小さいサイズのクラスターだけをシミュレーションしてきた分子動力学では得られなかった結果である。また、重い原子で構成される大きなクラスターを軽い標的物質に照射すると、飛程が単原子イオン照射に較べて4倍も延びることは非常に興味ある結果である。実験からの追試が待たれる。

クラスターイオンと固体の相互作用の研究は、今や、荷電粒子と固体との相互作用に関する分野において重要な地位をしめつつある。そして、その応用もクラスターイ

表2 (Ag)_n → Alと(Al)_n → Agにおける飛程のクラスターサイズ依存性

| E ₀ | Cluster | Target | Range parameter(Å) | Size of cluster | | | | |
|----------------|-------------------|--------|-------------------------------------|-----------------|-----|------|------|------|
| | | | | 1 | 10 | 50 | 100 | 500 |
| 200 | (Ag) _n | Al | R _p | 7.3 | 8.1 | 12.2 | 15.7 | 29.1 |
| | | | $\sqrt{\langle \Delta x^2 \rangle}$ | 3.3 | 3.5 | 5.1 | 7.4 | 13.4 |
| 400 | (Al) _n | Ag | R _p | 9.8 | 9.8 | 11.5 | 12.6 | 16.9 |
| | | | $\sqrt{\langle \Delta x^2 \rangle}$ | 6.4 | 6.4 | 6.7 | 7.2 | 9.0 |

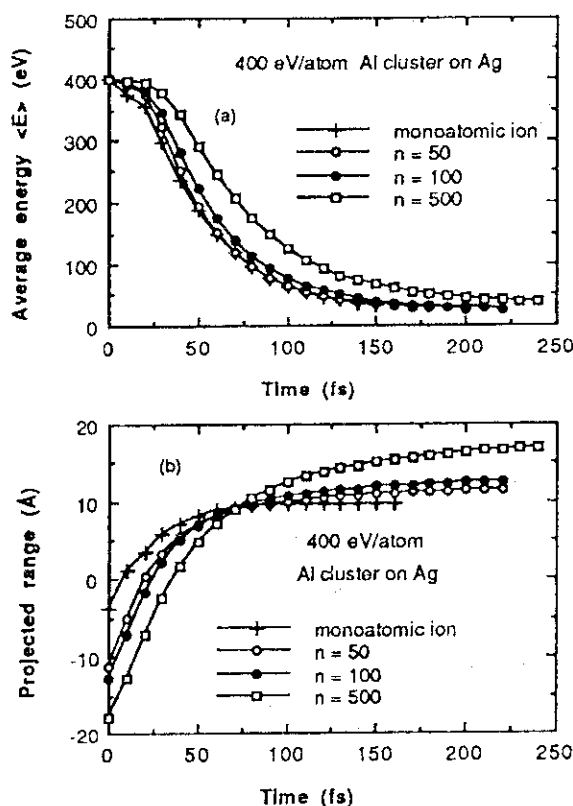


図12 400eV/原子に加速されたクラスターイオン(Al)_nがAgに照射された場合のAl原子の平均エネルギー<E>と平均の侵入深さのクラスターサイズ効果
(a)平均エネルギー<E>
(b)平均の侵入深さ

オン蒸着、クラスターイオン注入、クラスター衝撃核融合、クラスターイオンによる新物質の合成等多岐にわたっている。

参考文献

- (1) T. Takagi, I. Yamada, M. Kunori and S. Kobayashi,
Proc. 2nd Int. Conf. Ion Sources, Vienna (Vienna, 1972) p.790.
- (2) I. Yamada, H. Usui and T. Takagi, Nucl. Instr. Meth. **B33** 108 (1988).
- (3) I. Yamada, H. Inokawa, and T. Takagi, J. Appl. Phys. **56** 2746 (1984).
- (4) I. Yamada, H. Inokawa, and T. Takagi, Thin Solid Films **124** 179 (1985).
- (5) L. Friedman and G.H. Vineyard, Commens At. Mol. Phys. **15** 251 (1984).
- (6) R.J. Beuhler and L. Friedman, Chem. Rev. **86** 521(1986).
- (7) M.W. Matthew, R.J. Beuhler, M. Ledbetter and L. Friedman,
Nucl. Instr. Meth. **B14** 448. (1986)
- (8) M.W. Matthew, R.J. Beuhler, M. Ledbetter and L. Friedman,
J. Phys. Chem. **90** 3152 (1986).
- (9) Y. Yamamura, I. Yamada and T. Takagi, Nucl. Instr. Meth. **B37/38** 902 (1989).
- (10) Y. Yamamura, Nucl. Instr. Meth. **B45** 707 (1990).
- (11) H.Hsieh and R.S.Averback, Phys. Rev. **B42** 5365 (1990)
- (12) Y.Yamamura, Nucl. Instr. Meth., **B33** 493 (1988).
- (13) V.I. Shulga and P. Sigmund, Nucl. Instr. Meth., **B47** 236 (1990) .
- (14) R.J. Beuhler, G. Friedlander and L. Friedman,
Phys. Rev. Lett. **63** 1292(1989).
- (15) R.J. Beuhler, Y.Y.Chu, G. Friedlander, L. Friedman, and W.Kunmann,
J.Phys.Chem. **94**, 7665 (1990).
- (16)M.Fallavier, J.Kemmler, R.Kirsch, J.C.Poizat, J.Remeieux, and J.P.Thomas,
Phys. Rev. Lett. **65** 621 (1990).
- (17) P.M.Echenique,J.R.Manson, and R.H.Ritchie, Phys. Rev. Lett. **64** 1413 (1990).
- (18) M.H. Shapiro and T.A. Tombrello, Phys. Rev. Lett., **65**, 92 (1990)
- (19) O.H.Crawford, Proc. the 13th Werner-Brandt Workshop on the Interaction of Charge
Particles with Matter (Nara, Japan, 1990)
- (20) R.J.Beuhler,Y.Y.Chu,G.Friedlander,L.Friedman,J.G.Alessi,V.LoDestro, and J.P.Thomas,
Phys. Rev. Lett.(in press)
- (21) Y.Yamamura, Nucl. Instr. Meth. **B62**, 181(1991).
- (22) Y.E.Kim,M.Rabinowitz,Y.K.Bae,G.S.Chulick and R.A.Rice, Mod. Phys. Lett. B(in press)
- (23) Y. Yamamura, Nucl. Instr. Meth. **194**, 515 (1982) .
- (24) Z.Pan and P.Sigmund, Nucl. Instr. Meth., **B51**, 344(1990).
- (25) W.Eckstein and J.P.Biersack, Appl. Phys., **A37** 95 (1985).
- (26) M.T.Robinson and I.M.Torrens, Phys. Rev., **9** 5008 (1974).
- (27) Y.Yamamura and Y. Mizuno, IPPJ-AM-40,Inst. Plasma Physics, Nagoya Univ. (1985).
- (28) Y.Yamamura and W.Takeuchi, Nucl. Instr. Meth., **B29** 461 (1987).

16. ESNITの現状

日本原子力研究所 東海研究所 野田健治

1. はじめに

材料研究用エネルギー選択型中性子照射実験施設 (Energy Selective Neutron Irradiation Test Facility, ESNIT) は、原子力用基礎基盤研究を指向し、1988年より原研でその概念検討が開始された中性子照射実験施設である。ESNITはD-Liストリッピング反応 (例: ${}^7\text{Li} + \text{D} + (35\text{MeV}) \rightarrow 2\text{n} (\sim 14\text{MeV}) + {}^7\text{Be}$) を利用した FMIT (Fusion Materials Irradiation Test Facility, 1978年に設計が開始されたが財政事情の悪化により1984年に計画が中断された米国の核融合材料照射試験用中性子源) の発展型の高エネルギー中性子照射実験施設であり、加速器系、ターゲット系及び実験系 (照射後実験施設も含む) より構成される (図1)。

ESNIT の研究対象は原子力材料全般にわたり、その主目的は原子力材料研究の最大の課題である中性子照射効果の解明とそれに基づく優れた原子力材料の開発である。これらの材料研究の内、最大の重点の1つが核融合炉材料開発である。

現在、1993年度からの建設に必要なR & Dの実施、1995年度の建設開始及び2000年度からの利用開始を想定し、その概念及び技術検討が進められている。

2. ESNITの材料照射実験施設としての特徴

ESNITは材料照射実験施設として以下の特徴をもつことが想定されている。

- 1) 中性子エネルギースペクトルはピーク性をもつ。
- 2) 重陽子の加速エネルギーを変化させることにより3段階以上 (例えば、5, 10, 14MeV) にピークエネルギーを選択できる (図2)。
- 3) 高中性子束における高エネルギー中性子を発生する。但し、FMITのように年間積算照射量 100dpa (ss換算) にこだわらず、技術的及びコストの実現性を考慮し、最大加速重陽子電流を 50mA程度とする。
- 4) 最大中性子束が $1.5 \times 10^{14} \text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$ 、10dpa/y (ss換算) 以上の照射体積を $5 \times 5 \times 5 \text{ cm}^3$ 程度確保する (図3)。この照射体積は種々のその場実験を可能にし、また、 $1.5 \times 10^{14} \text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$ の中性子束は核融合DEMO炉の中性子壁負荷に匹敵する。
- 5) 照射体積を約 15 cm^3 に限定すれば、 $4.5 \times 10^{14} \text{n/cm}^2$ (ss換算で30dpa/y) の中性子束が得られる (図4)。この中性子束は核融合炉構造材料の寿命評価のための加速照射試験に必要な100dpaの照射を数年間で可能にする。
- 6) パルス照射の影響を避けるため、中性子ビームは準連続である (ビーム休止時間は 10^{-6} s 以

下とする)。

- 7) 中性子束/エネルギーを独立に可変できる等照射条件の制御性が高い。
- 8) 照射場への接近性が良いため、種々のその場実験や実験条件を高度に制御した照射が可能である。
- 9) 中性子照射場に高効率で自由度の大きいモジュール型ホットセルを備えた照射後実験施設が隣接している。

3. 概念構成

上記特徴を有する材料研究用高エネルギー中性子照射施設を実現するため、以下の様な ESNITの概念的構成を想定している。

1) 加速器系

- ① 複数のイオン源 (D^+ , D^- , H^2+ , Max. 50 mA, 正負イオン同時加速)
→ 2つの照射セルで各々中性子発生可能。
- ② 2MeV規模のRFQ (CW運転; 120MHz, 正負イオン同時加速)
→ ビーム休止期間; 10^{-6} s 以下, パルス照射の影響なし。
- ③ 40MeV規模のタンク分割方式 (5MeVステップ) のDTL (CW運転, 120MHz, 正負イオン同時加速, Max. 50 mA)
→ 重陽子加速エネルギーを10-40MeVの範囲で5MeVステップで可変, これに対応し, 中性子ピークエネルギー4-15MeVの範囲で選択可能。
→ 1.5×10^{14} n/cm².s 以上の照射体積が $5 \times 5 \times 5$ cm³ 程度確保できる。照射体積を15cm³に限定すれば 4.5×10^{14} n/cm².s (30 dpa/y, ss換算) が可能。
- ④ RF電源
2 MWクラス, 周波数120MHzのRFQ及びDTL用RF電源
- ⑤ 正負イオン同時加速に対応し, ビーム形・サイズ・分布の制御用レンズ系を備えたビーム輸送系 (ターゲットの複数化も考慮)
→ 中性子束/照射体積, 中性子束勾配を可変。

2) ターゲット系

- ① FMIT型を基本とする流動Liターゲット部
(ビームパワー; 2 MW Max., Li 流速; 15-20 m/s, (流動Li厚さ; 7-20 mm))
- ② FMIT型を基本とするLi循環系
(Li循環速度; 40 l/s, Li純化システム; ホットトラップ (Y, Ti ゲッター), コールドトラップ)

3) 実験系

- ① 複数個の照射セル (照射装置, その場実験装置, 遠隔操作系等を含む)
- ② 照射後実験施設 (主に微小試験片試験技術に対応するモジュール型ホットラボ)

4. ESNITの装置技術検討の現状

1) 加速器系

加速器系の技術については、本質的に同様なシステムを想定したFMIT計画においてR&Dが実施され、多くの技術的課題が解決されているが、主に以下の点についての技術検討が、前述の加速器系の構成を前提に行われている。

- ① 長時間安定で良好に制御された大強度ビームを加速し、ターゲットに導くための加速器系要素技術及びシステム技術
- ② 加速エネルギー可変技術
- ③ 種々の中性子照射場特性（中性子束／テスト体積等）に対応するためのビームハンドリング技術
- ④ 正負イオン同時加速技術等

2) ターゲット系

ターゲット系の技術については、加速器系と同様FMIT計画において多くのR&Dが既に行われているが、最も重要なビームオンターゲット試験（実際に重陽子ビームを流動Liターゲットに照射する試験）等いくつかの重要R&D課題が残されている。現在、前述のターゲット系の構成を仮定し次の項目を中心に技術検討が進められている。

- ① 流動Liターゲット部の熱流動解析
- ② ターゲット部の構造概念
- ③ Li純化システム技術等

3) 実験系

実験系に係わる技術としては、中性子照射場特性及び損傷パラメータ評価と照射後試験施設の概念検討が行われている。中性子照射場特性及び損傷パラメータ評価に関しては、精度の高いd-Liストリッピング反応中性子のスペクトルの測定、中性子照射場特性計算評価、中性子輸送計算及び損傷パラメータ計算評価に必要な50MeVまでの中性子核データの整備、損傷パラメータ計算コードの開発等が行われている。一方、照射後試験施設の概念検討では、モジュール型ホットセルの概念検討を行っている。

5. ESNITを用いる研究

1) 基礎基盤型材料研究

ESNITは、その発生できる中性子束及び中性子照射量において、現実的な照射期間内にきわめて多くの材料照射研究が可能となる初めての中性子照射装置である。また、その照射場の特徴を生かして、中性子エネルギー依存性の研究、互いに独立に損傷速度と中性子エネルギーを変数とする研究、その場実験、それらを通しての照射損傷及び照射による材料特性変化の本質の解明や耐放射線性原理の追求等が行え、耐放射線性新材料や低放射化新材料の開発等に役立つ。

つと期待される。

ESNIT を用いて行うべき主な基礎基盤型材料研究として以下の研究項目が選ばれている。

- ① 高エネルギー中性子による照射損傷及び材料特性変化の研究
- ② 中性子／中性子照射相関の研究
- ③ 中性子照射下における材料挙動の研究

2) 核融合炉材料開発研究

ESNIT における中性子束は DEMO 炉や商用炉の中性子壁負荷に匹敵するので、核融合炉稼働時の材料研究や試験をその場実験により適切に行うことができる。さらに、照射耐久性試験に関してもほとんど全ての核融合炉材料に対し、その寿命評価のための加速照射試験を行うことが可能である。(但、第 1 壁構造材料については照射体積を 15cm^3 程度に限定する必要がある。) また、D-Li 中性子源や核破碎中性子源を用いる核融合炉材料開発研究では 14MeV 以上のエネルギー成分 (高エネルギーテイル) の影響が問題となる場合あることが懸念されているが、ESNIT ではエネルギー選択性を生かし、その影響評価ばかりでなく、その影響を低減化できる。

ESNIT を用いて行うべき主な核融合炉材料開発研究として以下の研究項目が選ばれている。

- ① D-Li 中性子源の核融合炉材料照射試験施設としての適合性の検証
 - ・計算された核データや損傷パラメータの実験的検証
 - ・損傷組織や材料特性変化に及ぼす高エネルギーテイルの影響の実験的研究
- ② 基礎基盤型材料研究に基づく材料開発
 - ・中性子／中性子照射相関等の研究に基づく DEMO 炉用材料等の開発
- ③ 核融合炉運転条件下での材料特性試験
 - ・国際熱核融合実験炉 (ITER) や DEMO 炉の中性子壁負荷に相当する中性子束下でのその場試験 (クリープ、電気特性、腐食等)
- ④ 寿命試験 (加速照射試験)
 - ・ITER 用材料の寿命確証試験
 - ・DEMO 炉用セラミック増殖材、絶縁セラミック材料、計測材料等の寿命試験
 - ・限定された数の DEMO 炉用構造材料寿命試験 (まず DEMO 炉用構造材料の開発が必要)

6. ESNIT の核融合炉材料照射装置としての位置付け

ESNIT は上述のごとく D-Li 中性子源の核融合炉材料用照射施設としての適合性の実験的検証が必要であるが、国内的規模で見れば、DEMO 炉用材料の開発、核融合炉運転条件下での材料特性試験、ITER 用材料寿命確証試験、DEMO 炉用増殖材、絶縁セラミック材料、計測材料等の加速照射寿命試験を行える等極めて有効で、しかも近未来的に非常に実現性の高い核融合炉材料照射装置である。但し、中性子束／照射体積の制限から限られた数量の DEMO 炉用構造材料の加速照射寿命試験しかできないため、DEMO 炉用材料の開発スケジュールに合わせて、ある程度のグレードアップが望まれるであろう。

核融合炉材料の国際的戦略では、IEA国際核融合材料照射施設(IFMIF)構想がある。IFMIFは構造材料を含むDEMO炉等の核融合炉材料の国際的な材料試験の要求に応えるためその中性子照射場における中性子束/照射体積の必要条件は非常に高い(2MW/m²相当の中性子束(9×10^{17} n/m²uncollided)以上の照射体積が10¹)。D-Li中性子源としての ESNITは、そのスペクトルが核融合炉材料試験に適切であることの確認が必要であるが、上記中性子束/照射体積の必要条件以外の IFMIFの中性子照射場の適合性基準をほぼ満足する。この見地において、国際的には、ESNITはフルスケールIFMIFへの中間段階的装置として見なされるであろう。

最近、IFMIFの技術的実現性、核融合炉開発スケジュールに合わせた材料開発構想、IFMIF候補としての加速器型中性子源の中性子スペクトルの適合性の確認等の観点から、国際的にも IFMIFについての段階的戦略構想(IFMIF-1;中間段階的施設、IFMIF-2;フルスケールIFMIF)が検討され始めている。今後、ESNITとIFMIFの段階的戦略構想との関連を検討する必要がある。

ESNIT

(Energy Selective Neutron Irradiation Test Facility)
Japan Atomic Energy Research Institute

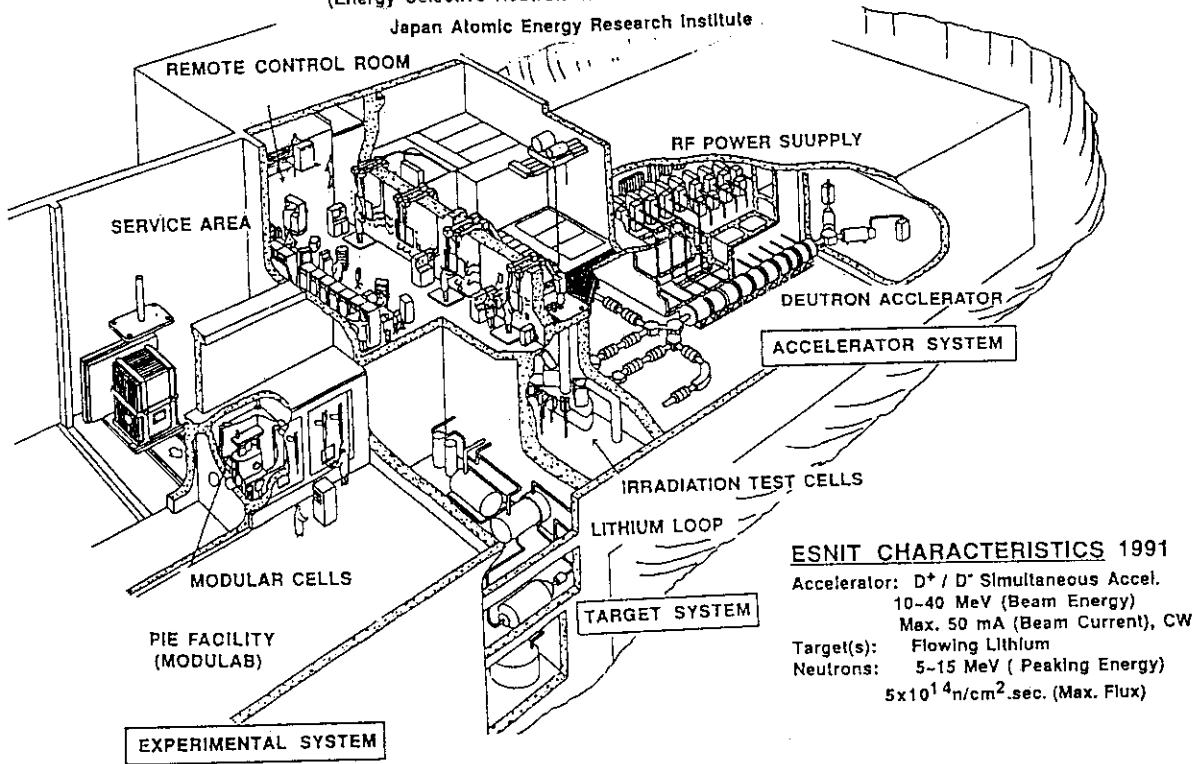


図1 ESNITの鳥かん図

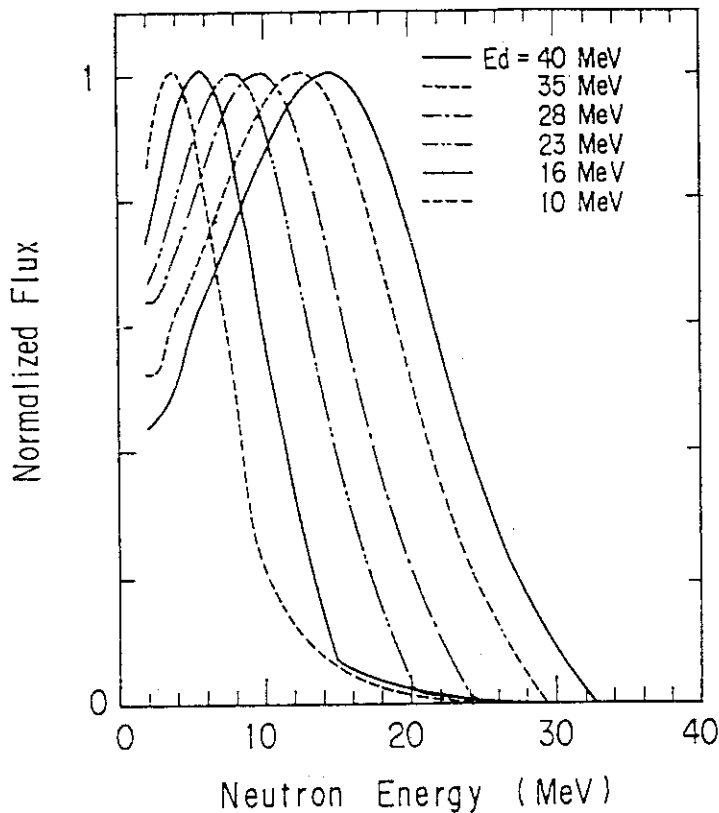


図2 ESNITの中性子スペクトルと重陽子加速エネルギーとの関係

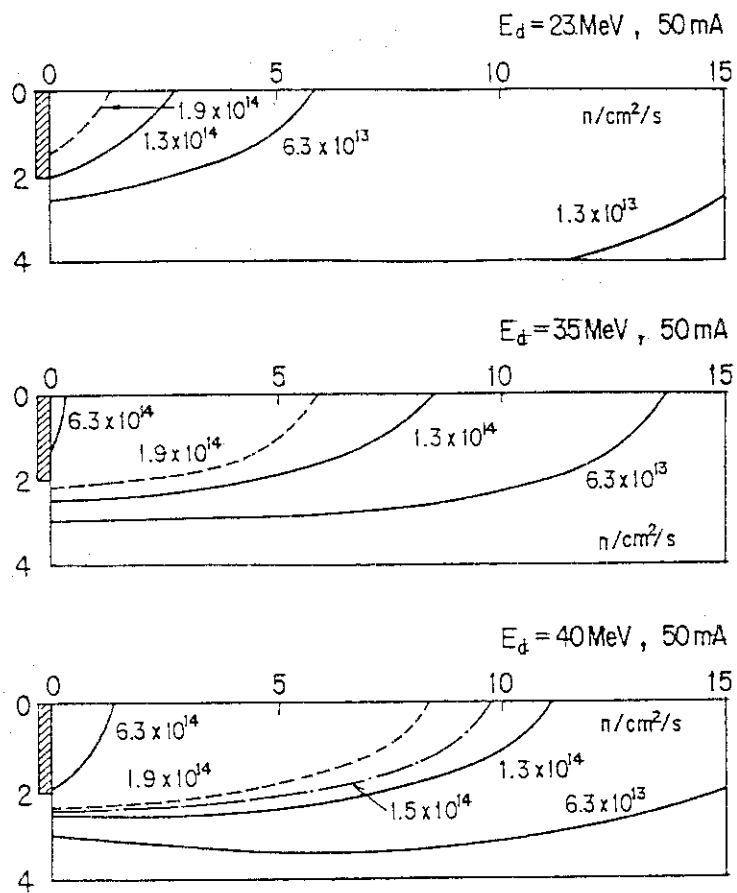


図3 ESNITの中性子照射場における中性子束分布

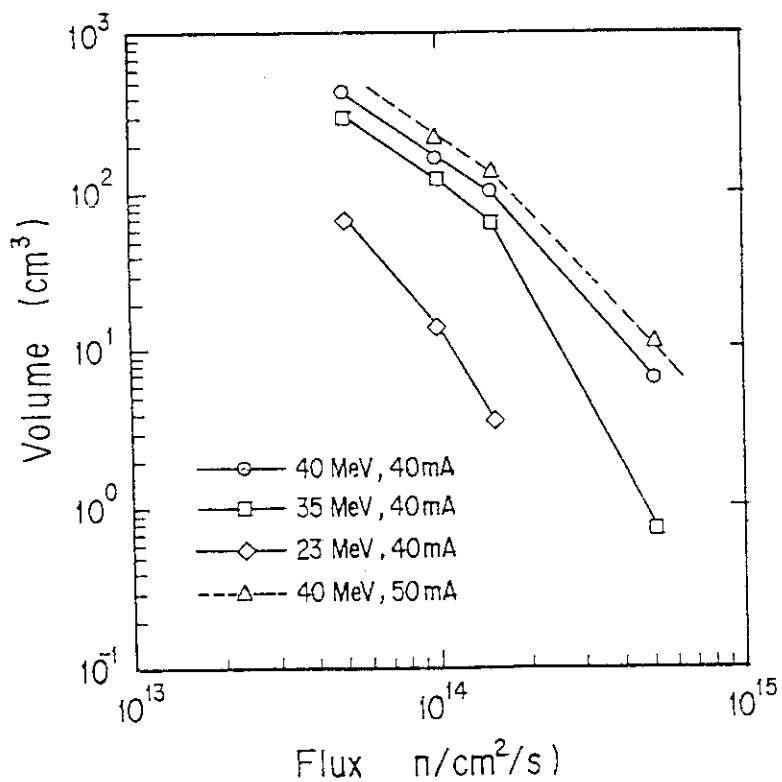


図4 ESNITにおける試験体積と中性子束との関係