

機関番号：13901

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21760690

研究課題名(和文)

ヘリウムプラズマ照射による繊維状ナノ構造形成機構と物性変化

研究課題名(英文)

Formation mechanism of the fiberform nanostructure and physical property changes due to helium plasma irradiation

研究代表者：

梶田 信 (Kajita Shin)

名古屋大学・エコトピア科学研究所・講師

研究者番号：00455297

研究成果の概要(和文)：

直線型ダイバータプラズマ模擬装置 NAGDIS (Nagoya Divertor Simulator) において、ヘリウムプラズマ照射を実施した。典型的なパラメータは電子密度が 10^{18} m^{-3} 、電子温度が 5 eV 程度である。入射イオンエネルギーが数十 eV 以上で、温度領域が 1000–2000K の時にヘリウム照射によりタングステン表面に繊維状のナノ構造ができることが明らかになった。照射温度、ヘリウムプラズマの入射エネルギー、照射量、材料表面方位などをパラメータとして系統的に照射実験を行い、 $1 \mu\text{m}$ を越える長細いナノ突起がヘリウムバブルの自己成長過程により形成される様子を透過型顕微鏡による詳細観察より明らかになった。

更に、レーザーと積分球を用いた光吸収率計測により、633 nm における光学的吸収率を計測した結果、照射後のサンプルの全反射率は 1% 程度であり、光学的吸収率が 99% となっていることが分かった。波長の異なるレーザーを用いて、可視領域から近赤外領域における吸収率を計測した結果から、黒色化した W は太陽光スペクトルに対してほぼ完全な光吸収体となっていることが明らかになった。この材料は熱光起電力発電(光吸収体/エミッターからの輻射熱を化合物半導体系光起電力電池に導いて電力に変換する発電方式)用の太陽光吸収体として利用できる可能性があることを示した。

研究成果の概要(英文)：

Helium plasma irradiation has been conducted in the divertor simulator NAGDIS. Typical plasmas used for the irradiation are the electron density of 10^{18} m^{-3} and the temperature of 5 eV. For the nanostructure on W, parametric dependence of the formation of the nanostructure has been extensively investigated and found that the fuzz structure is formed when the surface temperature was in the range of 1000–2000 K and the incident ion energy is higher than $\sim 20\text{--}30 \text{ eV}$.

Furthermore, it is shown that the roughed metals by helium irradiation significantly increase the optical absorptivity, and can be a good medium for an optical absorber medium. The optical reflectivity decreased two orders of magnitude, making it the darkest man-made tungsten, which could be used in high temperature circumstances. The results indicate that the helium irradiated metals can be a good medium for light absorber.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2010年度	1,300,000	390,000	1,690,000
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：プラズマ計測，プラズマ材料相互作用

科研費の分科・細目：総合工学 核融合学

キーワード：プラズマ，ヘリウム照射，ナノ構造，タングステン，熱・光物性変化

1. 研究開始当初の背景

次世代核融合実験炉 ITER において，タングステン(W)は高融点，低スパッタリング率，低水素吸蔵などの特性によりダイバータ板や炉内計測用ミラーの候補材料となっている。低エネルギーのイオン照射によってはプラズマ対向材には損傷は起こらないと考えられてきた。しかし，最近の実験において，物理スパッタリング閾値以下のエネルギーのヘリウムイオン照射によって表面にバブル・ホールや繊維状ナノ構造の形成が確認されており，この材料を実際に使用するに当たっては，材料として改善しなければならない，あるいはあらかじめ厳密に評価しておかなければならない問題点が少なくない。しかしながら，そのタングステンのナノ構造形成のメカニズムや，形成条件は十分に明らかになっていない。

一方で，以上の現象は視点を変えると，難加工性のタングステンなどの高融点材料に対する新規ナノ微細加工法として捉えることができる。ディスプレイなどの電界電子源として繊維状カーボン（カーボンナノチューブ）形成をベースとした，鋭端多層カーボン

ナノチューブ放射状集合体や繊維状固体炭素集合体が考えられている。一方，タングステンは金属中で最も融点が高いという特性を有し，電子放出材料や触媒材料として工業的に広く利用されているが，難加工性の金属であり，炭素材料におけるカーボンナノチューブのような微細構造形成技術はこれまで確立されていない。

2. 研究の目的

本研究では，ヘリウム照射に伴うタングステン表面のナノ構造の形成機構の解明と，そ

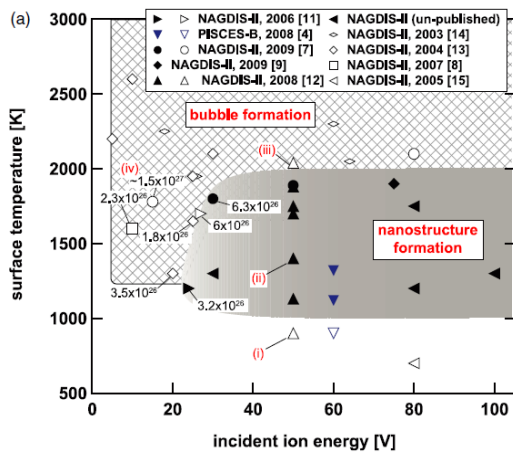


図1：ナノ構造形成の条件。グレーの条件では部分ではナノ構造が形成される。

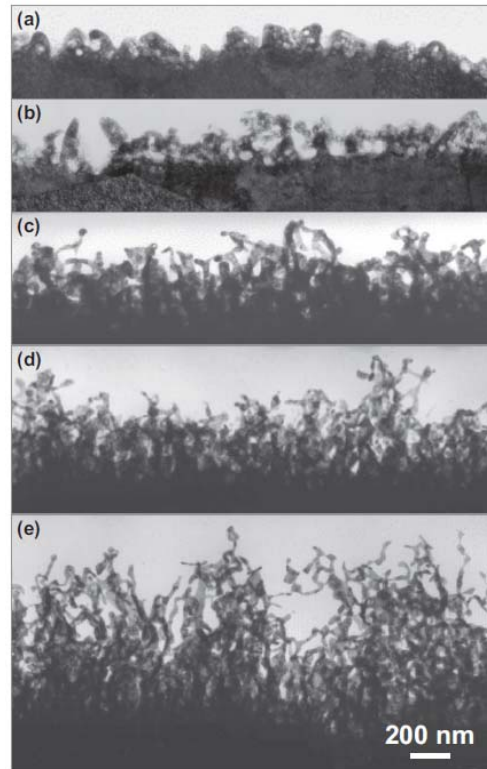


図2：ヘリウム照射により形成されたナノ構造タングステンの断面TEM画像。ヘリウムフルエンスは(a) $0.6 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ ，(b) $1.1 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ ，(c) $1.8 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ ，(d) $2.4 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ ，(e) $5.5 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ である。

の物性研究を行う。形成機構の解明は新規材料創成技術の開発につながり、ナノ構造形成による物性変化の評価は、新規材料開発や核融合研究のプラズマ対向材料に対しての重要な知見となる。

加えて、ナノ構造が形成された表面に対する核融合炉における間欠的熱負荷の影響を明らかにするため、直線型装置 NAGDIS-II において、ヘリウム損傷を受けたタングステンに対してレーザー照射実験を行った。

3. 研究の方法

基幹装置として直線型ダイバータプラズマ模擬装置を用い、各種材料へのプラズマ照射実験を行いナノ構造の形成機構の解明とナノ構造による物性変化を調べた。プラズマパラメータの計測は静電プローブを用いる。タングステンの構造変化を調べるために、高分解能走査型電子顕微鏡による表面観察及び透過型電子顕微鏡によるナノスケールの内部構造観察を行った。

更に、ナノ構造形成に伴う光学反射率の計測を in-situ で鏡面反射率計測に加えて、照射後の試料の反射率の波長依存性を調べた。さらに、レーザーと積分球を用いて全反射率の計測を行った。

アークの実験においては、ヘリウムプラズマとレーザーを同時照射しその後の電極の電圧変化や、アークスポットの高速カメラ撮影を実施した。

4. 研究成果

4. 1 ナノ構造形成条件と形成機構の解明

タングステンにヘリウムを照射すると、ナノ構造やヘリウムバブルが形成される。図 1 には直線型装置における様々な照射実験の結果を表面温度と入射イオンエネルギーの観点からまとめた。ナノ構造の形成条件には、特に材料の表面温度と入射イオンエネルギーが重要であり、温度は 1000-2000 K、入射イオンエネルギーは ~30 eV 以上が形成条件であることが明らかになった。

図 2(a)-(e)はヘリウム照射を行ったタングステン試料の TEM 画像である。試料は FIB(Focused Ion Beam)により加工を行い、厚みは 300 nm 程度である。ヘリウム照射は、直線型のプラズマ装置で実施し、入射イオンエネルギーは 50 eV、表面温度は 1400 K である。フルエンス増加に伴い、ナノ構造が発展していく様子と共に、ナノ構造内に大量のヘリウムバブルが生成されている様子が見て取れる。以下に述べるようなプロセスをたどり 1 μm を越える長細いナノ突起が形成されることが分かった。

・照射開始とともに、まず、表面下数 10 nm 程度の領域にナノサイズの He バブルが形

成される。

- ・バブルは熱的に移動・合体を繰り返すことにより成長する。
- ・粗大化したバブルが表面に到達することにより、表面にはホールや溝が発生し、表面の凹凸化が始まる。
- ・この時、熱空孔の供給が活発な場合には成長が早まる。イオンエネルギーが低く原子弾き出し損傷が起これない場合には熱空孔の活発な供給が必須となる。
- ・巨大化したバブルは表面を押し上げブルスターを形成する。
- ・更なる照射により、ブルスターが破裂。破れたブルスター表皮が分裂することによって何本かのナノ突起が生まれる。分裂の仕方により枝状や板状の突起として成長する。
- ・突起底部の周辺に新たに出来たバブルが成長・移動し表面と繋がることによって突起周辺の表面が抉られる。このことによって表面は後退し突起は長くなる。
- ・表面の抉られ方は周辺の状況に依存するため、細い枝状に伸びるもののみならず、板状、柱状など形状とサイズは様々であり、また、途中からサイズや形状が変わることもしばしば起こる。

4. 2 光学特性の評価 (黒色化金属創成)

図 3(a)には積分球を用いた光吸収率計測器の概略図を示す。何種類かの異なる波長のレーザー (He-Ne レーザー (633 nm) 及び半導体レーザー (405 nm, 980 nm, 1550 nm)) を光源に用いて、サンプルからの拡散反射光を積分球内で均一にし、検出器にて検出するシステムである。計測するサンプルは、直線型装置 NAGDIS-I においてヘリウムを照射した 3 種類の試料 W1, W2, W3 を用いた。W1, W2, W3 の入射イオンエネルギーは 50 eV、入射時の表面温度は 1400 K、入射イオンフルエンスはそれぞれ、 1.1×10^{25} , 2.0×10^{25} , $6.6 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ である。図 3(b)に、W1, W2, W3 の光学的吸収率の波長依存性を示す。W1 においては、理想的な W に対して 3 割から 5 割程度吸収率が増加していた。そして、W3 においては、ナノ構造の形成により、可視領域から近赤外領域においてほぼ完全な光吸収体となっていることが明らかになった。図 1 には AM1.5 の太陽光のスペクトルを参考のために示しているが、W3 は太陽光 (およそ 300 nm - 2500 nm) を極めて効率的に吸収することになる。(ここでは示していないが、2200 nm 程度までは、鏡面反射率はほぼ 0% となっている)

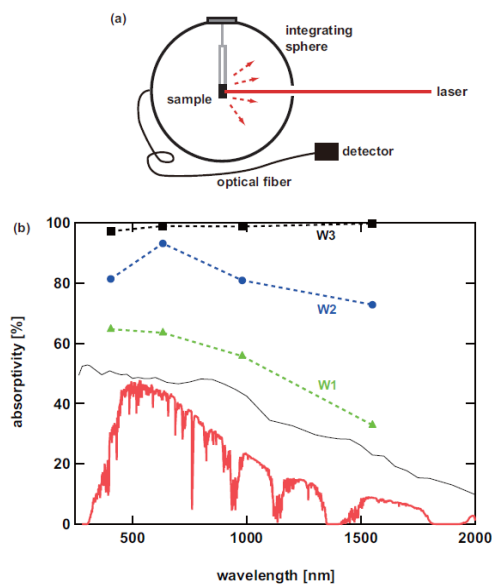


図 3 : (a)積分球を用いた光吸収率計測の概略図。(b)可視から近赤外領域の W1, W2, W3 の光吸収率の波長依存性。点線は理論的な吸収率。また AM1.5 の太陽光スペクトルを参考のために示した。

4. 3単極アーキングの発生とそのフラクタル性

加えて、ナノ構造が形成された表面に対する ELM などの間欠的熱負荷の影響を明らかにするため、直線型装置 NAGDIS-II において、ヘリウム損傷を受けたタングステンに対してレーザー照射実験を行った。間欠的な熱負荷に伴い、局所的な異常加熱が起こり、単極アークが誘起された。単極アークは 50 年前にロブソンらによりモデルが提案された現象で、これまで大型装置やパルスプラ

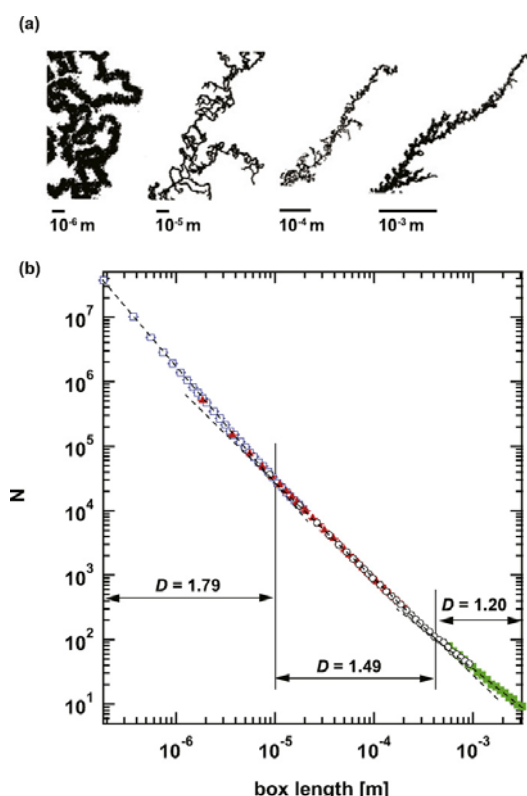


図 4 : (a)異なるスケールのアーク痕跡。(b)ボックスカウント数のスケール依存性。

ズマを用いた観測例はあるものの、定常プラズマ内での報告例はなかった。本実験での単極アークの存在は、電極のポテンシャルの変化、高速カメラによる観測、アーク痕跡により確認された。

ナノ構造上でアークが形成されると、まるで雪の中の足跡のように、明晰なアーク痕跡が残る。アーク痕を電子顕微鏡で観測すると、1つのアークスポットが $10 \mu\text{m}$ 程度の大きさの多くのサブアークスポット群により形成されていることが明らかになった。また、図 4 に示すように、アーク痕跡からボックスカウント法を用いてフラクタル次元を求めた。小さなスケールではアークスポットはランダムに動くためフラクタル次元が比較的 1.79-1.49 と大きい一方で、スケールが大きくなるに従い、アークスポットは磁場の影響を受けて指向性を持ったグローバルな動きに従うため、フラクタル次元が小さくなる様子が観測された。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 13 件)

- ① S. Kajita, N. Ohno, “*Practical selection of emission lines of He I to determine the photon*”, 査読有, Rev. Sci. Instrum. **82** (2011) 023501.
- ② S. Kajita, S. Takamura, N. Ohno, “*Tungsten blow-off in response to the ignition of arcing: revival of arcing issue in future fusion devices*”, 査読有, J. Nucl. Mater. (2011) doi:10.1016/j.jnucmat.2010.08.030.
- ③ S. Kajita, N. Ohno, Y. Tsuji, H. Tanaka, S. Takamura, “*Self-affine Fractality of bifurcating arc trail in magnetized plasma*”, 査読有, J. Phys. Soc. Jpn., Vol. **79**, 054501 (7pages) (2010).
- ④ S. Kajita, T. Saeki, N. Yoshida, N. Ohno, et al., “*Nanostructured Black Metal: Novel Fabrication Method by Use of Self-growing Helium Bubbles*”, 査読有, Appl. Phys. Exp. **3**, 085204 (3 pages) (2010).
- ⑤ S. Kajita, T. Hatae, K. Itami, N. Ohno, T. Nakano, “*Design study of the divertor Thomson scattering system for JT-60SA*”, 査読有, J. Plasma Fus. Res. Series, Vol. **9**, 157-162 (2010).
- ⑥ S. Kajita, T. Saeki, N. Ohno, M. Tokitani, T. Hatae, W. Sakaguchi, “*Degradation of optical reflectivity of in-vessel mirror materials by helium bombardment*”, 査読有, J. Nucl. Mater. (4pages) (in press).
- ⑦ S. Kajita, T. Saeki, Y. Hirahata, N. Ohno, “*Formation of metallic nanostructure by*

- helium plasma irradiation”, 査読有, Jpn. J. Appl. Phys. (in press).
- ⑧ S. Kajita, S. Takamura, N. Ohno, “Motion of unipolar arc spots ignited on nanostructured tungsten surface”, 査読有, Plasma Phys. Control. Fusion (in press).
- ⑨ W. Sakaguchi, S. Kajita, N. Ohno, et al. “Formation Condition of Fiberform Nanostructured Tungsten by Helium Plasma Exposure”, 査読有, Plasma Fusion Research, Vol. 5, S1023 (5pages) (2010).
- ⑩ S. Kajita, W. Sakaguchi, N. Ohno, et al., “Formation process of tungsten nanostructure by the exposure to helium plasma under fusion relevant plasma conditions”, 査読有, Nuclear Fusion Vol. 49, 095005 (6pages) (2009).
- ⑪ S. Kajita, N. Ohno, S. Takamura, Y. Tsuji, “Direct observation of cathode spot grouping using nanostructured electrode”, 査読有, Physics Letters A, Vol. 373, 4273-4277(2009).
- ⑫ S. Kajita, D. Nishijima, et al., “Ray tracing simulation for radiation trapping of the He I resonance transitions in a linear plasma device”, 査読有, Physics of Plasmas Vol. 16, 063303 (6pages) (2009).
- ⑬ S. Kajita, T. Hatae, O. Naito, “Optimization of Optical Filters for ITER Edge Thomson Scattering Diagnostics”, 査読有, Fusion Engineering and Design, Vol. 84, 2214-2220 (2009).

[学会発表] (計 件)

- ① 梶田信, 大野哲靖, 高村秀一, 辻義之, “ヘリウム照射タングステン上での単極アーキングの発生とそのフラクタル性”, プラズマ核融合学会, 第26回年会, 2009/12/2, 日本, 京都.
- ② 佐伯翼, 大野哲靖, 梶田信, 時谷政行, “金属ミラー材料へのヘリウムプラズマ照射による光学反射率劣化”, プラズマ核融合学会, 第26回年会, 2009/12/2, 日本, 京都.
- ③ S. Kajita, T. Saeki, T. Hatae, M. Tokitani, W. Sakaguchi, N. Ohno, “Degradation of optical reflectivity of in-vessel mirror materials by helium bombardment”, 14th International Conference on Fusion Reactor Materials, 2009/9/7, Japan, Sapporo.
- ④ Shin Kajita, Tsubasa Saeki, Yuki Hirahata and Noriyasu Ohno, “Formation of metallic nanostructure array by helium plasma irradiation”, 2nd International Symposium on Advanced Plasma Science and its Applications for Nitrides and Nanomaterials, 2010/3/10, Japan, Nagoya.
- ⑤ Shin Kajita, “Demonstration of unipolar

- arcing under fusion relevant conditions”, Workshop on unipolar arcs, 2010/1/29, U.S., Chicago.
- ⑥ Shin Kajita, “Fabrication of nanostructured black metals by use of self-growing helium bubbles”, 63rd Gaseous Electronics Conference and 7th International Conference on Reactive Plasmas, 2010/10, Paris, France.
- ⑦ Shin Kajita, “Ignition of Self-sustained Unipolar Arc in a Plasma”, 15th International Congress on Plasma Physics, 2010/8, Santiago, Chile.
- ⑧ Shin Kajita, “Enhancement of ignition of arcing due to helium bubbles”, International Workshop on the Role of Arcing and Hot Spots in Magnetic Fusion Devices, 2010/6, Dublin, Ireland.
- ⑨ Shin Kajita, “Tungsten blow-off in response to the ignition of arcing: revival of arcing issue in future fusion devices”, The 19th International Conference on Plasma Surface Interactions, 2010/5, San Diego, U.S.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

梶田 信 (KAJITA SHIN)

名古屋大学・エコトピア科学研究所・講師
研究者番号：00455297