

令和 5 年 6 月 15 日現在

機関番号：15201

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K03904

研究課題名（和文）核融合プラズマ対向材料中の水素・ヘリウム挙動の高精度その場測定の実現

研究課題名（英文）In-situ high accuracy measurement of hydrogen and helium behavior in plasma facing materials

研究代表者

宮本 光貴（Miyamoto, Mitsutaka）

島根大学・学術研究院理工学系・准教授

研究者番号：80379693

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、ITERで使用が予定されているタングステン、ベリリウム、および低放射化フェライト鋼を主要な研究対象とし、材料中の水素同位体とヘリウムの動的挙動を微細組織とあわせて高精度に評価することを目指した。

研究期間の前半では、イオン銃直結型透過型電子顕微鏡に、高分解能質量分析計を導入し、微細組織変化とガス放出を実時間で同時に計測することを可能にした。本装置とモノクロメータ搭載低加速原子分解能分析電子顕微鏡を相補的に用いることで、重水素やヘリウムイオンを単独、あるいは逐次照射した各種試料中の動的なガス原子挙動を微細組織変化と直接関連付けて、高空間分解能で定量的に評価することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

核融合炉材料中のガス原子の蓄積、および再放出の挙動は、炉心プラズマの燃料密度制御や炉の安全性に影響するため、その理解は核融合炉実現のための重要な課題として認識されているが、これまでの材料照射実験の多くは、照射後の試料分析がほとんどで、過渡的現象の後に残存する静的照射効果に関する報告が主であった。本研究では、材料中の過渡的な水素同位体・ヘリウム挙動を実時間で高精度に直接その場測定し、国際的にも例のない、インパクトの大きい貴重なデータを取得することができた。本研究を通して得られた成果から、材料の劣化程度や寿命の予測、さらに最適化された使用条件の提案に貢献できると考えられる。

研究成果の概要（英文）：In this study, the dynamic behaviors of hydrogen isotopes and helium atoms in fusion reactor materials such as tungsten, beryllium and reduced activation ferritic steels were examined using two types of sophisticated TEMs.

In the first half of the research period, a high-resolution mass spectrometer was installed in a TEM directly connected to an ion gun, enabling simultaneous in-situ measurement of microstructural evolutions and gas retention properties. The complementary use of this system and a STEM-EELS has successfully enabled the quantitative evaluation of dynamic gas-atomic behavior in various samples irradiated with deuterium or helium ions with high spatial resolution and in direct correlation with microstructural changes.

研究分野：プラズマ表面相互作用

キーワード：核融合プラズマ対向材料 水素 ヘリウム 高機能電子顕微鏡 STEM-EELS

1. 研究開始当初の背景

国際熱核融合実験炉 (ITER) の完成を間近に控え、核融合研究はいよいよ核燃焼プラズマを対象とする段階に入った。核燃焼環境下で使用される材料中には、燃料粒子の水素同位体の入射に加え、D-T 反応や中性子照射による核変換により発生したヘリウムが混入する。これらのガス原子の材料中での蓄積、および再放出の挙動は、炉心プラズマの燃料密度制御や炉の安全性に影響するため、その理解は核融合炉実現のための重要な課題として認識されている。

これまでの取り組みから、プラズマ対向材料中に混入した水素同位体やヘリウムは、結晶中を容易に拡散し、転位や不純物原子などの先在的な格子欠陥や弾き出し損傷欠陥と相互作用することが指摘されている。しかしながら、これまでの材料照射実験の多くは、照射後試料の間接的な分析手法による過渡的現象の後に残存する静的照射効果に関する報告が主であり、材料中の動的なガス原子挙動を微細組織変化と直接関連付ける決定的な知見は依然として得られていないのが現状である。また、材料中の水素・ヘリウムの捕獲状態については、近年、計算機シミュレーションを用いて盛んに研究されているが、シミュレーションによる予想を実験的に検証する取り組みは遅れている。すなわち、材料中の水素同位体およびヘリウムが、個々の欠陥中のどこに、どれだけ、どのような状態で存在しているのか、さらに、欠陥からどのように乖離して再放出するのかを根本的に理解する必要がある。

2. 研究の目的

本研究は、高分解能質量分析計を導入したイオン照射装置直結透過型電子顕微鏡、およびモノクロメータ搭載低加速原子分解能分析電子顕微鏡の 2 種類の先進高機能電子顕微鏡を相補的に用いて、核融合プラズマ対向材料中の水素同位体・ヘリウム挙動を実時間で高精度にその場測定することを目的としている。材料中のガス原子動的脱離挙動をナノレベルでの微細組織変化と同時に測定した研究は国際的にも例がなく、ガス放出挙動のメカニズムに関する直接的知見の取得が可能となる。さらに本研究を通して得られる知見から、トリチウムリテンション制御のためのプラズマ対向材料の使用条件の提案も可能となる。

3. 研究の方法

本研究では、ITER のプラズマ対向材料に使用が予定されているタングステンとベリリウム、およびブランケット構造材料の候補である低放射化フェライト鋼を主要な研究対象とした。

まずは、イオン照射装置直結型の透過型電子顕微鏡に、高分解能質量分析計を導入し、動的微細組織変化を観察しながら、同時に試料から放出されるガス成分を実時間で測定できる装置系を構築した。重水素あるいはヘリウムの単独および逐次イオン照射を室温で行い、照射中や照射後昇温中の微細組織観察と、ガス放出測定を同時に行い、材料のガス保持特性を実時間で直接微細組織変化と関連付けて評価した。さらに、京都大学化学研究所のモノクロメータ搭載低加速原子分解能分析電子顕微鏡を用いて、電子エネルギー損失分光法 (EELS) を複合した手法により、得られるスペクトルのマッピング解析から、試料中の水素同位体・ヘリウムの密度とその空間分布を高い空間分解能で評価した。

4. 研究成果

(1) in-situ TEM-QMS の構築

イオン照射装置直結型の透過型電子顕微鏡に、質量分析計を導入し、動的微細組織変化を観察しながら、同時に試料から放出されるガス成分を実時間で測定できる装置系を構築した。図 1 に、新たに構築した高分解能質量分析装置を導入したイオン照射装置直結型透過型電子顕微鏡の外観を示す。僅かな質量差を有する重水素 (D_2 , 4.0282 u) とヘリウム (4He , 4.0026 u) を分離測定可能な高分解能質量分析計 (MKS, Microvision2) を透過型電子顕微鏡 (JEM-2010) の試料後方に設けられた分析用ポートに導入した。装置の構築にあたり、機械的な振動による電子顕微鏡の像質への影響を低減させるため、新たな除震用台座の設置、電気的ノイズ除去のための TEM とは独立した電源の確保、また放出ガスの適切な検出感度を確保するための排気速度の最適化など試行錯誤を重ね、 $\phi 3$ mm のディスク状の小さな電子顕微鏡試料 (照射面積は $\phi 2$ mm) から放出されるガス成分を十分な検出感度、分解能で測定できるようになった。

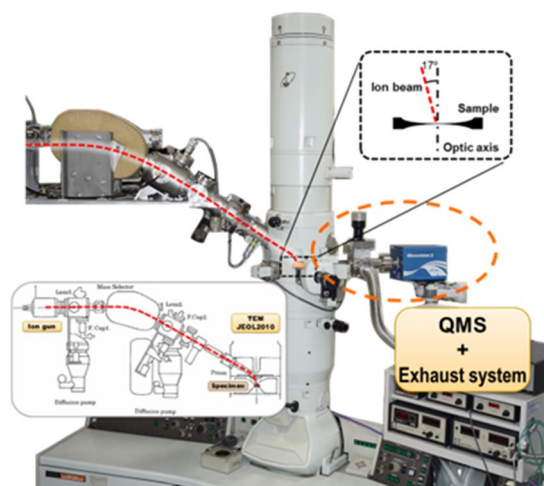


図 1 本研究で構築した高分解能質量分析装置を導入したイオン照射装置直結型透過型電子顕微鏡。

(2) F82H 鋼中における He バブル挙動の観察

核融合ブランケット構造材料は、14 MeV 近傍にピークをもつ高エネルギー中性子の照射に曝される。低放射化フェライト鋼に対する中性子照射は著しい弾き出し損傷を形成するだけではなく、核変換によって多量のヘリウム(He)が生成し、粒界脆化やキャビティスエリングへの大きな影響が懸念されている。この影響を調査するため、新たに構築した装置を用いてイオン照射下および昇温下におけるその場観察実験を行い、F82H 中のヘリウムバブルの動的挙動に関する定量的データを得た。

薄膜化加工したφ3 mm のディスク状の F82H 試料に、室温で 3 keV-He⁺ を 1×10²¹ He/m² まで照射後、電子顕微鏡内で室温から 1400 K まで 1 K/s で昇温を行った。図 2 には、ガス放出スペクトル、および同時に観察した微細組織変化の測定結果を示す。照射直後には、1-2 nm の微細なヘリウムバブルの形成が確認できるが、1000 K までの昇温により隣接したバブル同士の合体成長により、そのサイズは 50 nm 程度まで増加している。ただし、1000 K までの昇温下におけるヘリウムの放出は比較的小さく、多くのヘリウム原子がバブル内に捕獲されていることが分かる。一方、1100 K 以上の高温下では、ヘリウムバブルの移動と瞬間的な消失、および、バブル消失に伴う大きなヘリウムの放出が検出された。これは、ヘリウムがバブルから乖離することなく、バブルそのものが試料表面まで移動し消失したことを意味しており、ヘリウム原子とバブル(キャビティ)との強い結合を示している。

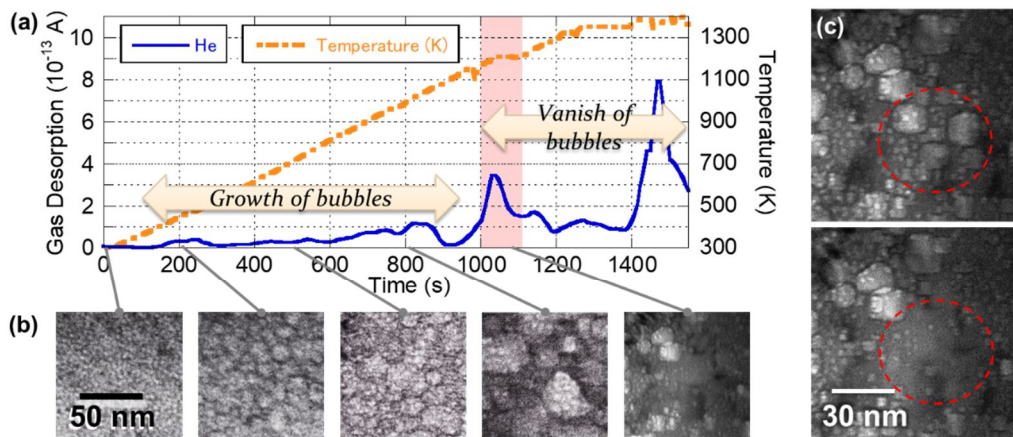


図 2 室温で 3 keV-He⁺ を 1×10²¹ He/m² まで照射した F82H 試料の電子顕微鏡内昇温下において実時間その場測定した (a) 昇温脱離スペクトルと (b) 微細組織変化。(c) は、1100 K 程度(～1050 s)で観察されたバブルの瞬時の消失。

ヘリウムバブルは、比較的高温下でブラウン運動することが、多くの FCC 金属や BCC-Fe および Fe-9Cr 合金において報告されている。本研究では、TEM 内において F82H に予め 5keV の He イオンを 573 K で 1×10¹⁹ He⁺/m² まで照射した試料の昇温下その場観察により、同様にバブルの動的挙動を捉え、その移動形態を定量的に評価した。照射後昇温下におけるその場観察の結果、検出可能な優位なバブルの移動は 873 K 以上の高温下において観察された。図 3 には、バブルの動的挙動のその場

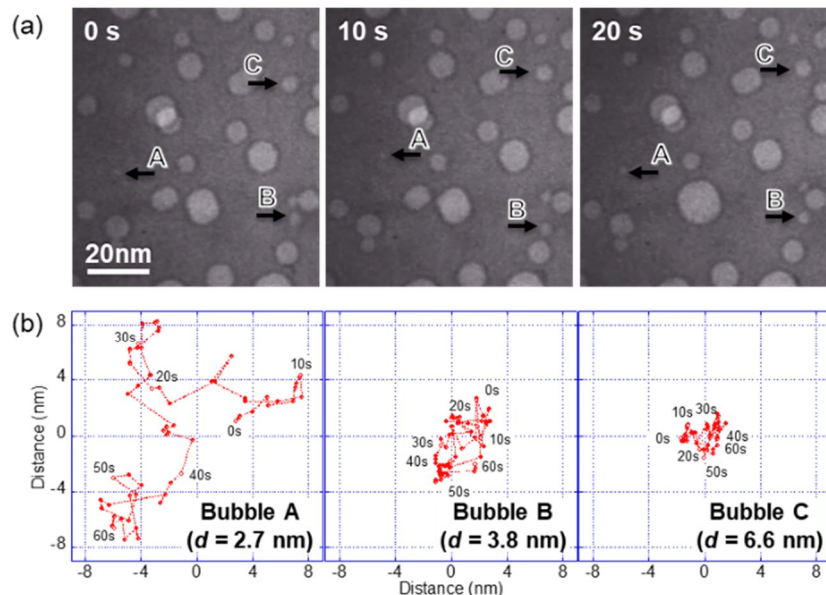


図 3 バブルの移動を表す連続写真(a)と、それぞれのバブルの軌跡(b)。

TEM 観察結果の一例として、1073 K に昇温した F82H 試料中のバブルの移動を表す連続写真(a)と、サイズの異なる図中の 3 つのバブル (A,B,C) の位置を 1 秒間隔で測定した際の軌跡(b)を示す。バブルがランダムな移動をしており、小さいバブルの方が、明らかに高い移動度を有していることが分かる。さらに、バブルの移動距離の二乗平均値 $\langle R^2 \rangle$ は、時間 t に対して比例関係を示し、バブルがブラウン運動していることが示された。

図4には、873, 973 および 1073 K で観察されたサイズの異なるいくつかのバブルについて求めた拡散係数 D のサイズ依存性を示す。いずれの温度域においても、バブルの拡散係数とサイズの間には、概ね $D \propto d^{-4}$ となる関係が認められた。バブルの移動機構としては、バブルの拡散係数 D が d^{-2} に比例する蒸発拡散機構、 d^{-3} に比例する体拡散機構および d^{-4} に比例する表面拡散機構が提唱されているが、本研究はバブルの移動機構が表面拡散に支配されていることを示している。さらに、バブルの拡散係数を $D = Ad^4 \exp(-E/kT)$ として実験データにフィッティングすると、バブルの移動に要する活性化基準エネルギーとして $E = 3.95$ eV を得た。このエネルギーは純鉄やモデル合金のそれより高く、その要因としては添加元素や不純物原子に起因してバブル内表面原子の拡散が抑制されたことなどが考えられるが、さらなる検討を要する。

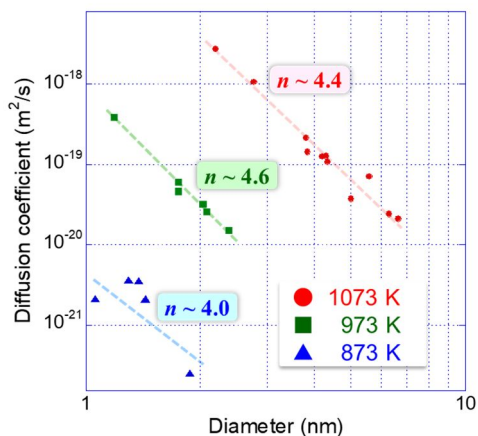


図4 バブルの拡散係数のサイズ依存性

(3) ベリリウム中の水素、ヘリウム挙動の評価

ITER では、プラズマ対向壁面の大部分にベリリウムタイルの使用が予定されているが、取り扱い上の問題もあり、プラズマ表面相互作用(PSI; Plasma-Surface Interaction)に関する知見は極めて乏しい。本研究では、ベリリウム中の水素同位体、ヘリウムの挙動についても評価を行った。

図5に3 keV-D₂⁺、および3 keV-He⁺を室温で 1×10^{21} ions/m² 照射したベリリウムからの昇温脱離ガス測定の結果を示す。いずれにおいても2つの主要な放出ステージを確認できるが、ヘリウムはその放出温度が重水素と比較して高く、ヘリウムが材料中に安定に保持されていることを示している。透過型電子顕微鏡を用いた照射後試料のその場観察から、昇温過程において、いずれの試料においても、ガス放出温度に対応したガスバブルの成長や消失が見られた。さらに重水素、およびヘリウムバブルの昇温下での消失挙動は大きく異なり、重水素は昇温に伴いバブル内から乖離し、バブルが縮小し消滅するのに対し、ヘリウムバブルは、縮小することなく移動を伴う合体成長を続け、試料表面に到達することで消失することが明らかになった。これらの試料について、STEM-EELS を用いた分析を行った結果、バブル中の重水素とヘリウムの存在状態に明瞭な違いが確認された。図6には、重水素照射後にヘリウム照射したベリリウム試料中に形成したガスバブル近傍の (a) EELS スペクトル、(b) 高角度散乱円環暗視野像、および (c) 重水素と (d) ヘリウムの濃度分布像をそれぞれ示す。EELS スペクトルには重水素、およびヘリウムの内殻電子励起による損失ピークが明瞭に見られる。スペクトルのマッピング解析から、ヘリウムがバブル内部に均一に存在しているのに対し、重水素はバブルの表面近傍に局在していることが分かる。これは、材料中の重水素が、ヘリウム共存下では、バブル内表面に局在して捕捉されることを世界で初めて観察した例であり、水素とヘリウムがバブル内部において、捕捉状態が異なることを示しており、放出挙動の相違の主要因であると考えられた。

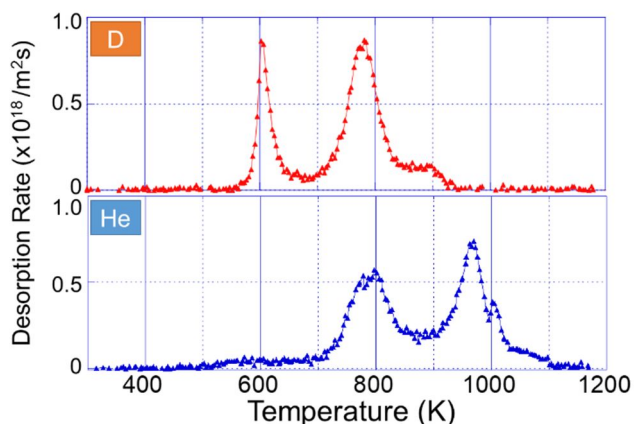


図5 重水素(上), およびヘリウム(下)照射したベリリウム試料からの昇温脱離ガススペクトル。

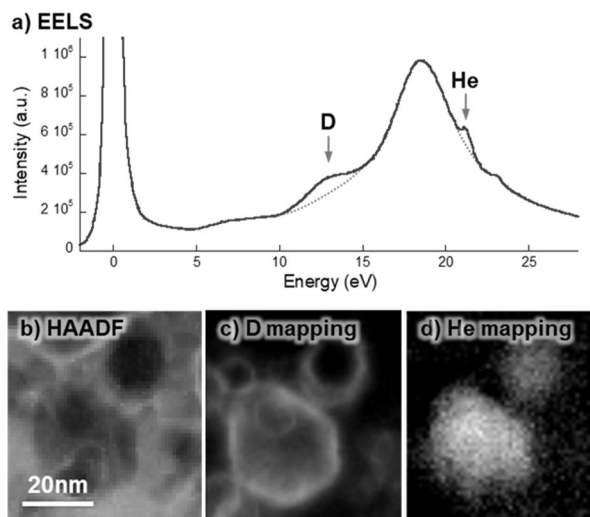


図6 重水素、および、ヘリウムイオンを逐次照射したベリリウム試料中のガスバブル近傍から得られた (a)EELS スペクトル、(b)高角度散乱円環暗視野像(暗いコントラストがガスバブルに対応)および (c)重水素と(d)ヘリウムの濃度分布像。

(3) タングステン中の水素，ヘリウム挙動の評価

ITER のダイバータ材料として使用が予定されているタングステンにおいては、ヘリウム照射がそこでの水素滞留挙動に著しい影響を及ぼすことが指摘されているが、動的な水素同位体挙動を微細組織変化と直接関連付ける決定的な知見は得られていない。そこで、本研究ではタングステン中の水素同位体やヘリウムの挙動を、水素同位体挙動に与えるヘリウム照射の影響を微視的観点から明らかにした。

図7は、室温で重水素単独照射、ヘリウム予照射後に重水素照射、および、ヘリウム予照射後に1573 Kまでアニールした試料に室温で重水素照射した各試料の昇温下の(a)重水素脱離スペクトルと、同時にその場観察した(b)微細組織変化をそれぞれ示す。ヘリウム予照射に伴い重水素脱離ピークが著しく増加するとともに、一部の重水素は600 K以上の高温まで捕捉されていることが分かる。微細組織観察からヘリウム照射に起因した高密度の微細なヘリウムバブルと昇温下におけるその成長が観察されており、重水素がヘリウム照射誘起欠陥に多量に強く捕捉されていたものと考えられる。図8には、STEM-EELS による(a)高角度散乱円環暗視野像、および(b)重水素と(c)ヘリウムの濃度分布像をそれぞれ示しているが、重水素がヘリウムバブル内に明瞭に局在していることが確認できる。また、ヘリウムの結果と異なり、バブル内の重水素は、バブル内表面近傍に局在することなく、均一に分布することが確認された。これは、従来の分子動力学シミュレーションによる予測とは異なる結果であり、比較的大きなバブル内では、重水素が分子状でバブル内に捕捉されていることを示唆するものである。

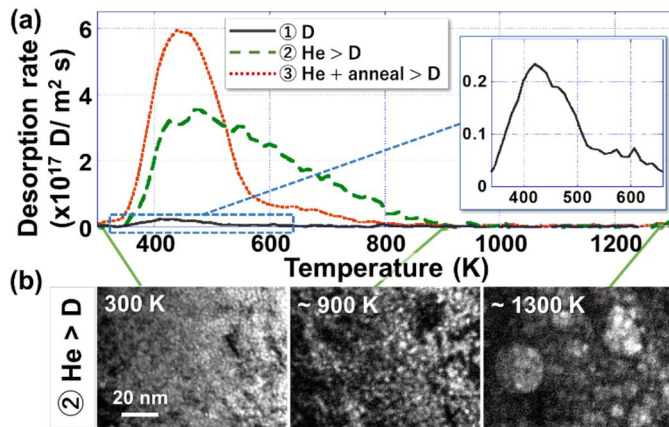


図7 TEM-QMS を用いて測定した各種条件下における照射後タングステン試料の昇温下の(a)重水素脱離スペクトルと(b)微細組織変化。

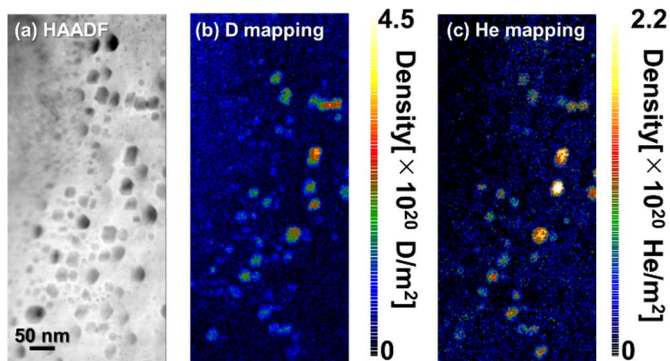


図8 ヘリウム予照射後に重水素照射したタングステン試料の(a)高角度散乱円環暗視野像と(b)重水素、および(c)ヘリウムの濃度分布像。

上述の結果は、本研究で新たに質量分析計を導入したイオン銃直結型その場観察電子顕微鏡とモノクロメータ搭載低加速原子分解能分析電子顕微鏡を相補的に用いることで初めて得られた知見である。既に2022年10月から新たに科研費（国際共同研究強化(B)）における研究課題を開始しており、本研究で培った先進高機能電子顕微鏡による評価手法を、高密度プラズマ照射した材料の表面特性変化の理解に適用する予定である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Miyamoto M., Sugimoto Y., Nishijima D., Baldwin M.J., Doerner R.P., Zaloznik A., Kim J.H., Nakamichi M.	4. 巻 27
2. 論文標題 Comparative study of surface modification and D retention between beryllium and beryllides under high flux plasma exposure	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nuclear Materials and Energy	6. 最初と最後の頁 101014 ~ 101014
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nme.2021.101014	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Zaloznik Anze, Doerner Russell P., Schwarz-Selinger Thomas, Miyamoto Mitsutaka, Brezinsek Sebastijan	4. 巻 555
2. 論文標題 Deuterium retention in MeV ion-irradiated beryllium	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Materials	6. 最初と最後の頁 153139 ~ 153139
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jnucmat.2021.153139	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Nishijima D., Tokitani M., Doerner R.P., Masuzaki S., Miyamoto M., Nagata D., Tynan G.R.	4. 巻 29
2. 論文標題 Enhanced D retention in RAFM steel caused by D bubbles formed inside Cr-rich surface layer	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nuclear Materials and Energy	6. 最初と最後の頁 101084 ~ 101084
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nme.2021.101084	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Xu Qiu, Miyamoto M., Luo Lai-Ma	4. 巻 -
2. 論文標題 Effects of Zr/Mo addition on He bubble formation in Y2O3-added W alloys	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Tungsten	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s42864-021-00131-4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Miyamoto Mitsutaka, Hashiguchi Masaharu, Ashizawa Kyosuke, Sugimoto Yutaka, Watanabe Yoshiyuki	4. 巻 -
2. 論文標題 In-situ TEM observation of migration behavior of helium bubbles in F82H	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Science and Technology	6. 最初と最後の頁 1~6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/00223131.2022.2034547	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Sugimoto Yutaka, Nakamichi Masaru, Kim Jae-Hwan, Kurata Hiroki, Haruta Mitsutaka, Miyamoto Mitsutaka	4. 巻 544
2. 論文標題 Deuterium and helium desorption behavior and microstructure evolution in beryllium during annealing	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Materials	6. 最初と最後の頁 152686 ~ 152686
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jnucmat.2020.152686	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 原 一智, 澤江 伴弥, 杉本 有隆, 渡辺 淑之, 宮本 光貴
2. 発表標題 照射材料におけるガス放出挙動と微細組織変化の実時間同時測定
3. 学会等名 日本原子力学会2021年秋の大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 杉本有隆, 原 一智, 佐野航平, 治田充貴, 倉田博基, 金 宰煥, 中道 勝, 宮本光貴
2. 発表標題 ベリリウムにおけるバブル中のガス保持挙動に与える圧力の影響
3. 学会等名 日本原子力学会2021年秋の大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Mitsutaka Miyamoto, Yutaka Sugimoto, Kazutomo Hara, Hiroto Iwakiri, Mitsutaka Haruta, Hiroki Kurata
2. 発表標題 Characterization of Hydrogen and Helium Behavior in Beryllium by In-situ TEM and STEM-EELS
3. 学会等名 20th International Conference on Fusion Reactor Materials (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yutaka Sugimoto, Kazutomo Hara, Hiroki Kurata, Mitsutaka Haruta, Msaru Nakamichi, Jae-Hwan Kim, Mitsutaka Miyamoto
2. 発表標題 Effect of irradiation temperature on bubble pressure and mobility in beryllium
3. 学会等名 20th International Conference on Fusion Reactor Materials (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 布野 尚斉, 原 一智, 澤江 伴弥, 宮本 光貴
2. 発表標題 ヘリウムイオン照射したF82Hの昇温下における微細組織変化とガス放出挙動の関係
3. 学会等名 第38回プラズマ・核融合学会年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 澤江 伴弥, 原 一智, 杉本 有隆, 宮本 光貴
2. 発表標題 高分解能質量分析計を導入したTEMによるガス放出挙動と微細組織変化の同時観察
3. 学会等名 第38回プラズマ・核融合学会年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 杉本有隆, 原一智, 澤江伴弥, 金宰煥, 中道勝, 治田充貴, 倉田博基, 宮本光貴
2. 発表標題 ベリリウムの水素保持特性へ与えるヘリウムの影響
3. 学会等名 第37回プラズマ・核融合学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 原一智, 杉本有隆, 西島大輔, 治田充貴, 倉田博基, 渡辺淑之, 宮本光貴
2. 発表標題 重水素/ヘリウム照射した低放射化フェライト鋼および純鉄の微細組織変化と水素保持特性
3. 学会等名 第37回プラズマ・核融合学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 M. Miyamoto, Y. Sugimoto, D. Nishijima, M.J. Baldwin, R.P. Doerner, A. Zaloznik, Jae-Hwan Kim, M. Nakamichi
2. 発表標題 Surface Modification of Beryllium and Beryllide Exposed to D+He Mixture Plasma
3. 学会等名 24th International Conference on Plasma Surface Interactions (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	治田 充貴 (Haruta Mitsutaka) (00711574)	京都大学・化学研究所・准教授 (14301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------