

研究種目：特定領域研究

研究期間：2004～2008

課題番号：16082206

研究課題名（和文）

ヘリウム照射による対向材料の特性劣化機構解明とその計測法の開発

研究課題名（英文）

Study on Damage of Plasma Facing Materials by He Irradiation and its Diagnostic

研究代表者

吉田 直亮 (YOSHIDA NAOAKI)

九州大学・応用力学研究所・教授

研究者番号：00127317

## 研究成果の概要：

核燃焼によって発生するヘリウムは、プラズマに対向する真空容器壁やダイバータ、炉内で用いる計測機器等に大きな影響を与える。ダイバータのプラズマ対向材料として期待されているタングステンはその運転温度領域においてヘリウムバブルの熱的な移動・合体が起こり、その結果として表面にメソスケールの激しい凹凸化が進行することが明らかとなった。また、プラズマ計測に使われる第一ミラーの光反射率劣化機構の解明に取り組み、ヘリウムの照射および酸素を含む金属原子の共堆積が光学特性の劣化をもたらすことを明らかにした。

## 交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2004年度	33,200,000	0	33,200,000
2005年度	19,300,000	0	19,300,000
2006年度	18,100,000	0	18,100,000
2007年度	7,500,000	0	7,500,000
2008年度	6,100,000	0	6,100,000
総計	84,200,000	0	84,200,000

## 研究分野：

科研費の分科・細目：

キーワード：核燃焼、プラズマ・壁相互作用、第一壁、照射損傷、電子顕微鏡

## 1. 研究開始当初の背景

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。核燃焼プラズマからはD-T中性子と高エネルギーのヘリウムが発生するため、第一壁やダイバータなどのプラズマ対向材料はもとより、炉内で使用される各種計測機器にとってもこれまでの水素放電装置では見られない新たな問題が生じる。プラズマ対向材料では中性子とともに対向面を通して多量のプラズマ粒子や熱が

流入する。プラズマからの粒子としては、核燃焼を起こさない従来のプラズマ閉じ込め装置で問題となってきた水素同位体に加え、数eVから数MeVの極めて幅の広いエネルギースペクトルを持ったヘリウム粒子が加わることになる。プラズマ・壁相互作用に関する研究分野では核燃焼プラズマ放電で発生するヘリウム粒子に関する取り組みは遅れており、一部の先行的な研究を除き、系統的な研究は立ち上がっていない。

一方、核燃焼実験を目指す ITER を運転する観点からは、単にヘリウム粒子と材料の相互作用の解明にとどまらず、この知見にもとづいたプラズマ・壁相互作用を監視する計測システムの開発やプラズマ計測用第一ミラーの反射率劣化への対応などが重要である。さらに、トリチウムを多量に含むダストなどが核燃焼条件、即ち、ヘリウムとトリチウムが混在する環境でどのように生成・堆積するかを見極めることも重要な課題である。

## 2. 研究の目的

このような状況を踏まえて、本研究では実際の高温プラズマ閉じ込め装置における複雑な実機環境での現象の把握を出発点として、良く制御された実験室実験との比較からその現象を律束する要素的な物理過程を理解し、さらにそれらの知見をもとに、ヘリウムプラズマが関与する核燃焼プラズマ閉じ込め装置におけるプラズマ・壁相互作用がプラズマ計測に及ぼす影響を明らかにし、そのその対応策を示すことを目的とした。具体的には以下の研究課題に取り組んだ。

研究課題 1：高温プラズマ閉じ込め装置を用いた実機におけるプラズマ・壁相互作用現象の抽出と課題の整理（ヘリウムの滞留と放出挙動、プラズマ対向材料の内部損傷、表面特性変化、ミラー反射率劣化など）

研究課題 2：ヘリウム照射実験および計算機シミュレーションによる核燃焼条件下で想定されるヘリウム-材料相互作用の要素過程の理解（注入ヘリウム粒子の材料内挙動とそれを律束する物理過程の解明、トリチウム吸蔵特性、光反射率などに及ぼす影響）

研究課題 3：上記の知見に基づいた、プラズマ・壁相互作用監視計測法と堆積物・ダスト計測法の開発

## 3. 研究の方法

研究課題 1 に関しては、核融合科学研究所に設置されている大型ヘリカルプラズマ閉じ込め装置 (LHD) のヘリウムプラズマ放電等に試料を曝し、それによってもたらされるプラズマ対向材料やミラー材料におけるヘリウム滞留、内部損傷、表面損傷等について、透過型電子顕微鏡 (TEM)、原子間力顕微鏡 (AFM)、走査型電子顕微鏡 (SEM)、微小表面硬度計、昇温脱離ガス分析装置 (TDS) などを用いて研究を行った。

研究課題 2 に関しては、ミラー材料、タングステン材料、フェライト鋼などを対象として 200eV から 10keV のヘリウム照射下の損傷発達過程を直視できる小型イオン加速器付き透過電子顕微鏡やイオン注入装置を用い、室温 - 1400°C での照射実験を行い、ヘリウム照射下での欠陥の形成過程、ヘリウム蓄積機構、光反射率劣化機構などをイオンエネルギー

一、照射量、温度、材料組織・組成などの関数として系統的に理解することを目指した。

我々のこれまで行ってきた関連する研究から、プラズマ・壁相互作用で問題となる多くの表面現象はプラズマの照射により表面直下領域に形成された各種の照射欠陥によって支配されていることが明らかになってきた。従って本研究では表面を含む損傷組織の断面構造を透過電子顕微鏡で観察するため断面薄膜試料が作製できる収束イオンビーム薄膜化装置を設備し研究を進めた。

## 4. 研究成果

### 4.1 低エネルギーヘリウム照射効果

D-T 反応で発生したヘリウムの一部は、イオンあるいは荷電交換中性粒子として第一壁やダイバータに到達する。そのエネルギーは数 eV から数 MeV と大きな広がりを持つが、大半は数 keV 以下と考えられる。数 keV 以下のエネルギーを持つヘリウム粒子の場合、材料中での平均飛程は 50nm 以下であるため一次的な影響は表面の極近傍に限られる。keV 領域のヘリウム粒子は表面原子のスパッタリングやブリスタリングによる表面層の剥離など激しい表面損耗を起こすことが良く知られている。一方、金属中のヘリウムについては、容易に結晶格子間を拡散するもの一旦原子空孔やその集合体などの格子欠陥に捕捉されると空孔-ヘリウム複合体やヘリウムバブルとなって安定化し高温まで材料中に留まるなど、離合集散に関する基本的な事項も早くから研究されている。当研究グループでは keV 領域のヘリウム粒子による表面近傍層の原子レベルでの照射損傷組織、ヘリウムの吸蔵・放出、強度特性に及ぼす影響、水素同位体との相互作用、耐熱負荷特性への影響などについて長期にわたり系統的な研究を行いこの分野の研究に貢献してきた。本科研費ではダイバータにおけるヘリウム照射効果を理解する上で重要な 1273K を越える高温領域でのヘリウムと欠陥の離合・集散過程およびそれがもたらす内部構造や表面構造について基礎的な研究に取り組んだ。

まず、図 1 に 1273K に加熱した焼結タングステン薄膜試料を原子はじき出し損傷が起こる 8keV のヘリウムイオンで照射した際の透過型電子顕微鏡 (TEM) によるその場観察の結果を示す。上段は転位などの歪場が観察できる回折条件での写真であり、下の 2 段はバブルの観察に適した回折条件での連続写真である。格子間原子が集合した転位ループと原子空孔とヘリウムの集合したヘリウムバブルが共に発生・成長していることがわかる。転位ループは成長・合体し、転位網へと発達する。一方、ヘリウムバブルは合体を繰り返しながら成長を続け、一部は表面に抜け

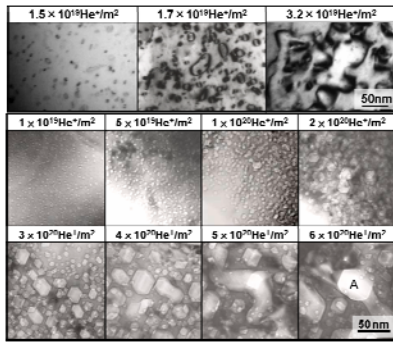


図 1 1273K に保持したタングステンにおける転位ループ (上段) 及びヘリウムバブル (中段、下段) の発達

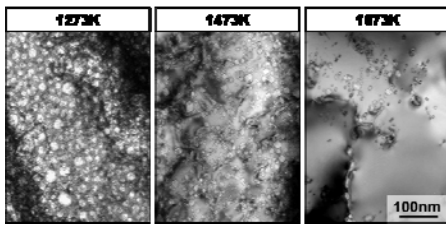


図 2 高温でヘリウム照射したタングステンの損傷組織 (5keV-He<sup>+</sup>, 1x10<sup>21</sup>He<sup>+</sup>/m<sup>2</sup>)

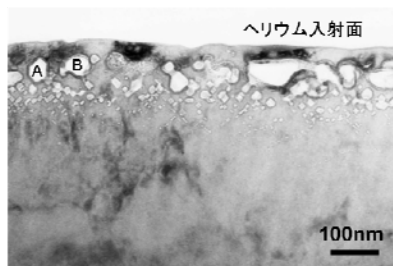


図 3 873K においてヘリウムを照射した Fe-9Cr の断面 TEM 写真 (8keV-He<sup>+</sup>, 8x10<sup>21</sup>He<sup>+</sup>/m<sup>2</sup>)

て表面に 500nm 程度の穴が形成される (図 1 中の A)。このような大きな照射損傷が 10<sup>21</sup>He<sup>+</sup>/m<sup>2</sup> 以下の僅かな照射で起こることに注目したい。これらの欠陥集合体がどの温度領域まで形成されるのかを示したのが図 2 である。1673K の高温になるとヘリウムバブルや転位の密度は大きく低下し、この温度を超えるとバブルの発生率が大幅に低下することを示唆している。注目したいのは 1473K 以上では転位 (転位ループが成長し形成されたもの) とバブルの相互作用が顕在化してくることである。大半のバブルは転位に沿って存在し、転位の無いところではほとんど残存していない。この温度領域になると表面近傍に形成された転位とバブルの大半は表面に抜けて消滅し、お互いの固着効果によって動き難くなったもののみが残存しているものと考えられる。図 1、図 2 に示した写真はあらかじめ 100nm 程度まで薄膜化した試料であるため欠陥が表面で消滅する効果が強調されているが、厚い試料では様子が異なる。図 3

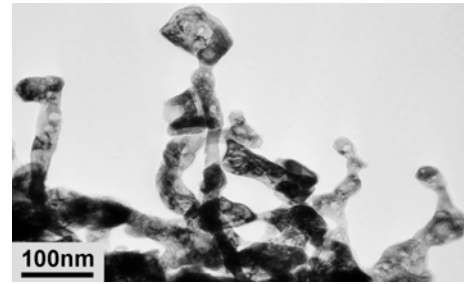


図 4 1250K での低エネルギーヘリウム照射により発生した樹枝状突起内の欠陥構造

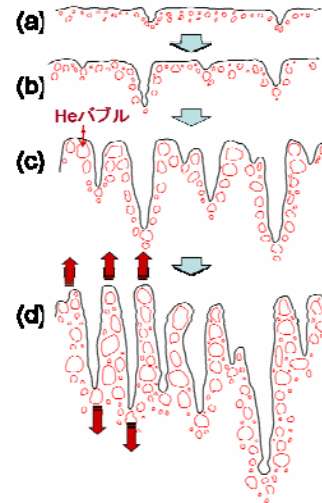


図 5 低エネルギーヘリウムイオン照射による微細突起物の形成メカニズム

は 873K において 8keV のヘリウムイオンで照射した Fe-9Cr 合金の断面 TEM 写真である (この合金の 873K の現象はそれぞれの融点から類推してタングステンでは 1800K 近傍での現象に相当すると考えられる)。バブルの形成はヘリウムイオンの平均飛程 40nm をはるかに超える深部で起こっている。飛程領域に発生したバブルの多くは小さい段階で表面に消えるが、内部に向けて移動したバブルや拡散によって流れてきたヘリウムと空孔が合体して発生したバブルが深部で成長することがわかる。バブルの移動がバブル表面での原子の表面拡散によって起こる場合、バブルの半径が大きくなるとバブルの移動は急激に難しくなる。深い場所で成長しながら動き回っているうちにある大きさに達したバブルはその温度では動けなくなりその後はヘリウムと空孔を吸収することによって安定に成長するものと思われる。図 3 中の A や B のバブルはそのようにして生き残り大きく成長したものと考えられる。

核融合炉におけるダイバータでのヘリウム照射はエネルギーは低いものの照射量は桁違いに大きい。11.3eV のヘリウムプラズマで 1250K に保持したタングステンを 3.4x10<sup>27</sup>He<sup>+</sup>/m<sup>2</sup> 照射すると表面には樹枝状の

突起構造が形成され、あたかも綿帽子を被ったような表面状態になる。図4はこのような樹枝状突起構造の内部組織を示すTEM写真である。直径20-40nmの突起の内部には同程度のサイズのバブルが並んで発生しており、ヘリウムバブルによるスエリングが突起成長の原動力となっていることがわかる。このような構造は熱負荷にも極めて弱いことが報告されており実際のダイバータで発生するようなことがあれば重大な問題となる。

上述の実験結果を元に突起構造が形成されるメカニズムについて考察した。図5に示すように、まず、バブルが表面に抜けることによって溝が発生する。溝の底には新たにバブルが発生しそれらが溝の底とつながり溝は深くなる。(図5(a)、(b))。この過程が繰り返されることによって、溝はますます深くなると共に、微細突起内のバブルが成長することによってスエリングが起これ、微細突起は上部へと伸び、また枝分かれも起これる(図5(c)、(d))。このようなメカニズムで突起が成長するためには、①バブルの成長・熱移動が可能、②適当な表面拡散(早すぎると凹凸が修復し突起とならない)、さらに、③熱平衡空孔の供給の条件が満たされることが必要で、突起発生温度範囲としては $0.3T_m$ (融点)以上で $0.5T_m$ 以下が想定される。

上述したように、核融合炉材料で問題となるような数10keV以下のヘリウム照射の特徴は、広い温度範囲において表面近傍にヘリウムバブルが形成され、ヘリウムバブルの挙動によって様々な照射効果が発現することである。従ってヘリウムバブルに関する基礎的な理解は極めて重要であり、分子動力学法、モンテカルロ法、反応速度論などを用いた理論的な研究も行った。

#### 4.2 LHDの高温プラズマ放電に曝された金属材料の照射損傷

本研究では核融合科学研究所のLHDで行われたヘリウムプラズマ放電に金属試料を曝露し、その照射効果を調べた。図6はその一例でNBI加熱のヘリウムプラズマ放電に壁位置で合計87秒間曝したタングステンの損傷組織である。組織は典型的なヘリウム照射による損傷組織を示しており、直径1-2nmの高密度のバブルが発生している。特に注目したいのは転位ループの発達が著しいことで、このような組織ははじき出し損傷が起これないような低エネルギーのヘリウム(<0.4keV)では見られない。ERD法を用い深さ10nmにピークを持って分布することもわかった。これらの結果から、ヘリウム粒子の平均的なエネルギーは約1keVと評価できる。また、損傷の程度からヘリウムの線量は $5 \times 10^{20} \sim 1 \times 10^{21} \text{He/m}^2$ 程度と見積もることができ、曝露時間を考慮すると平均の線束は $10^{19} \text{He/m}^2\text{s}$ に

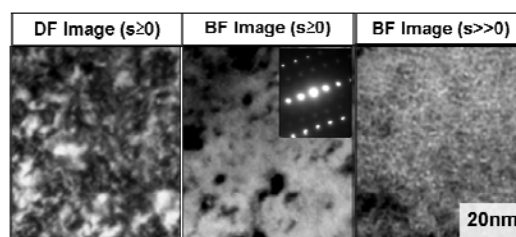


図6 LHDの壁位置に挿入し87秒間ヘリウムプラズマ放電に曝したタングステンの照射損傷

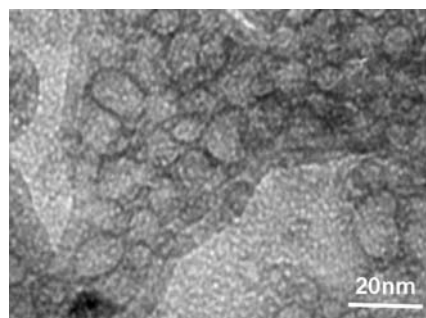


図7 4ヶ月間プラズマ実験に曝したSUS316L試料および堆積層に発生した大小のヘリウムバブル

達することが明らかとなった。壁表面の内部組織、硬度、水素やヘリウムの保持などの重要な特性はkeV領域のヘリウムイオン照射では $10^{22} \text{He/m}^2$ 程度の線量でほぼ極限に達することをこれまでの実験室実験から明らかにしており $10^{19} \text{He/m}^2\text{s}$ の線束は材料にとって極めて大きな値であることを指摘しておきたい。一方、壁位置から20cm下げたポート内で、ヘリウムプラズマに曝露する実験から上述の激しい損傷はイオンではなく荷電交換によって中性化したヘリウム粒子が引き起こしたことも明らかとなった。

トーラス内に4ヶ月間据え置いた金属試料のプラズマ曝露効果についても研究した。この間設置した試料も含め炉内材料のプラズマ対向面は水素やヘリウムの主放電プラズマやプラズマ放電洗浄に用いた水素、ヘリウム、ネオンなどのプラズマに曝される。図7はダイバータに比較的近い場所に置かれたSUS316L試料のTEM写真である。最も多いイオン種は水素であるにもかかわらず損傷はヘリウム照射に固有な特徴を示し、ナノスケールのヘリウムバブルが高密度に形成され材料内部はスポンジ状態となっている。もう一つの大きな特徴は、表面は炭素、鉄、クロム、ニッケル、酸素などの不純物の共堆積層によって覆われ、この層にもヘリウム照射に特徴的なバブルが形成されている。

上述のプラズマ曝露実験の結果は、放電にヘリウムが用いられることのある高温プラズマ閉じ込め装置では、プラズマ対向面はヘリウムの照射効果が主たる担い手となってプラズマ対向面の表面特性が変化していく

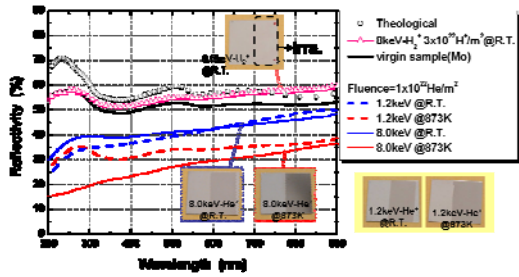


図8 室温及び873Kでヘリウムイオン照射したモリブデンの光反射率

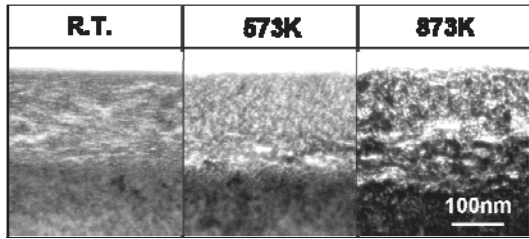


図9 各温度でヘリウム照射したモリブデンの断面 TEM 写真

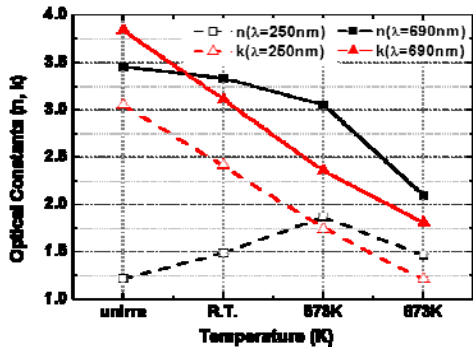


図10 種々の温度でヘリウム照射 (8keV-He<sup>+</sup>、1x10<sup>22</sup>He<sup>+</sup>/m<sup>2</sup>) したモリブデンの波長 250nm および 690nm における屈折率 n および消衰係数 k。

ことを示している。ヘリウムが常に発生する核燃焼炉ではヘリウムの影響は更に重要となる。

#### 4.3 プラズマ計測用ミラーの光反射率に及ぼすヘリウム照射効果

プラズマ粒子の照射を受けるのは第一壁やダイバータだけではない。炉内に設置されるプラズマ加熱用機器やプラズマ計測用機器も同様の影響を受ける。本研究ではプラズマ計測に使われる第一ミラー (プラズマ対向ミラー) におけるヘリウムプラズマ照射効果について研究した。この課題はプラズマ計測の分野では全く新しい取り組みであった。

鏡面研磨した多結晶モリブデンの板材を試料として、1.2keV および 8keV のヘリウム

イオンを  $1 \times 10^{18} \text{He}^+/\text{m}^2 \text{s}$  程度のフラックスで照射し、分光光度計や分光エリプソメータを用いた光学特性評価、SEM、TEM、AFM を用いた詳細な表面形状や内部組織の観察、更には X線光電子分光法 (XPS) や昇温脱離ガス分光法 (TDS) を用いた表面組成分析や注入ヘリウム分析など様々な視点からの実験を行い、光学特性の評価とその背後にある物理的なメカニズムについて研究した。

図8に8keVおよび1.2keVのヘリウムイオンを室温において  $1 \times 10^{22} \text{He}^+/\text{m}^2$  照射した試料の紫外・可視領域 (200~900nm) の光反射率と、それぞれの条件において左半分を覆って照射した試料の光学写真を示す。図には比較のために、水素イオン照射 (8keV-H<sub>2</sub><sup>+</sup>、 $3 \times 10^{22} \text{H}^+/\text{m}^2$ ) の結果も合わせて示した。ヘリウムイオン照射では何れの条件でも反射率の低下、黒化が起こっており、照射温度が高いほど、また、イオンエネルギーが高いほどその傾向は顕著であった。反射率の低下はすでに  $3 \times 10^{21} \text{He}^+/\text{m}^2$  で顕著であり、照射量の増加とともに反射率は更に低下する。赤外領域の波長領域でも照射の影響が見られ、特に強い原子はじき出し損傷が起こる 8keV のヘリウムイオン照射での劣化は顕著であった。図9は8keVのヘリウムイオンを室温、573Kおよび873Kで  $1 \times 10^{22} \text{He}^+/\text{m}^2$  照射したモリブデンの断面 TEM 写真を示す。いずれの条件においても表面直下から深さ 100nm を越える領域まで高密度のヘリウムバブルが形成され、ポラス構造となっている。ヘリウムバブルの熱的移動が容易になる 873K ではバブルの成長が起こり、ポラス化は一段と顕著になっている。この結果は、光の反射に寄与するのは表面から数 10nm の領域であることを考慮すると、ヘリウム照射材ではナノサイズのポラス構造を持つモリブデン層で光反射が起こっていることを示している。ポラス層の屈折率 n および消衰係数 k を光学エリプソメータを用いて評価した結果を図 10 に示す。照射温度の上昇に伴って n、k が共に大きく変化しヘリウムイオン照射によって表面直下層の物性が大きく変化したことを示唆している。中でも k の著しい低下は物質が疎な状態になっていることを示すもので、ヘリウムバブルがもたらすナノサイズのポラス化と一致する。n、k から求めた光反射率の波長依存性は図8に示した実験結果をほぼ説明できるものでありナノサイズのヘリウムバブルがもたらす表面直下層のポラス化がヘリウムイオン照射による光反射率低下の主たる原因であることを示唆している。

#### 4.4 LHD で使用されたリトロ反射鏡における光反射率の微視的劣化機構

プラズマ対向壁上に固定しレーザー計測に使用したリトロ反射鏡は、短期間の運転で

光反射率が激しく劣化した。劣化の少ないリトロミラーを開発することを目的としてこのミラーの反射率劣化機構について研究した。詳細は割愛するがミラー表面層の断面TEM観察などを行うことにより反射率劣化の主な要因として以下の三点が明らかになった。①表面が凹凸化すること、②酸素が金属(鉄、クロムなど)と共堆積することによりミラー面が光反射率の低い金属酸化物で覆われること、③堆積層内にヘリウムバブルが形成されポーラス構造となること。また、リトロ反射鏡はスパッタリングや反射により不純物がミラーの中央部に集積する構造となっており、反射率劣化抑制のためには不純物の飛来を抑える工夫が必要であることもわかった。これらの知見を元に不純物堆積への防御策を講じたリトロミラーを作製し今年度LHDにおいてその性能試験を行う。

リトロ反射鏡はITERにおいても多数使用されることになっており反射率の劣化しないリトロ反射鏡の開発がプラズマ計測分野における最重要課題の一つとなっている。本研究は材料科学の手法を駆使して光反射率劣化の問題に取り組んだ他に類を見ない研究として大きな注目と期待を集めており、科研費終了後も研究を継続する予定である。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 25 件)

- ① 吉田直亮、時谷政行、ミクロスケールのプラズマ・壁相互作用、J. of Plasma and Fusion Research、47、929-936、2008、査読有
- ② M. Tokitani, M. Miyamoto, K. Tokunaga, T. Fujiwara, N. Yoshida, S. Masuzaki, N. Ashikawa, T. Morisaki, M. Shoji, A. Komori, LHD Experimental Group, S. Nagata, B. Tsuchiya, Retention properties of plasma particles in tungsten exposed to LHD divertor plasmas, Journal of Nuclear Materials、363-365、806-811、2007、査読有
- ③ A. Ebihara, M. Tokitani, K. Tokunaga, T. Fujiwara, A. Sagara, N. Yoshida, Irradiation Effects of Low Energy Helium Ions on Optical Reflectivity of Metallic Mirror, Journal of Nuclear Materials、363-365、1195-1200、2007、査読有
- ④ T. Baba, H. Iwakiri, R. Sugano, N. Yoshida, Surface Modification and Correlated Internal Damage in Tungsten Irradiated with Low Energy Helium Ions at 1273K, Materials Transactions、46、565-567、2005、査読有
- ⑤ N. Yoshida, Impact of low energy helium

irradiation on plasma facing metals, J. of Nuclear Materials、337-339、946-950、2005、査読有

[学会発表] (計 48 件)

- ① N. Yoshida, Irradiation Effects in Tungsten-Base Plasma Facing Materials for ITER and Demo, 18th International Conference on Plasma Surface Interactions, 2008. 5. 26-30、トレド (スペイン)
- ② Y. Ohtawa, N. Yoshida, A. Ebihara, K. Tokunaga, T. Akiyama, M. Tokitani, N. Ashikawa, K. Kawahata, Reflectivity Reduction of Retro-Reflector Used in LHD by Plasma-Surface Interaction, 18th International Conference on Plasma Surface Interactions, 2008. 5. 26-30、トレド (スペイン)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

吉田 直亮 (YOSHIDA NAOAKI)  
九州大学・応用力学・教授  
研究者番号：00127317

### (2) 研究分担者

徳永 和俊 (TOKUNAGA KAZUTOSHI)  
九州大学・応用力学・准教授  
研究者番号：40227583

渡辺 英雄 (WATANABE HIDEO)  
九州大学・応用力学・准教授  
研究者番号：90212323

岩切 宏友 (IWAKIRI HIROTOMO)  
琉球大学・教育学部・准教授  
研究者番号：80325480

坂本 瑞樹 (SAKAMOTO MIZUKI)  
九州大学・応用力学・准教授  
研究者番号：80325480

野田 信明 (NODA NOBUAKI)  
核融合科学研究所・教授  
研究者番号：10144172

森下 和功 (MORISHITA KAZUNORI)  
京都大学・エネルギー理工学研究所・准教授  
研究者番号：80282581

相良 明男 (SAGARA AKIO)  
核融合科学研究所・教授  
研究者番号：20187058

時谷 政行 (TOKITANI MASAYUKI)  
核融合科学研究所・助教  
研究者番号：30455208