

平成 30 年 6 月 29 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K18304

研究課題名(和文) 核融合炉のためのZnO結晶を用いた高耐久性計測窓の開発と評価

研究課題名(英文) ZnO crystal as a potential damage-recoverable window material for fusion reactors

研究代表者

山ノ井 航平(Yamanoi, Kohei)

大阪大学・レーザー科学研究所・助教

研究者番号：30722813

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：ITERを始めとする核融合炉においては燃料プラズマの計測のために、様々な波長範囲での計測が行われ、その計測のための窓となる透明材料が必須である。しかし、現状は放射線耐性という観点から透明材料を系統別に評価をおこなった例は極めて少ない。そこで本研究では強い放射線がある中でのモニター技術の確立に貢献するため、放射線に強い材料、もしくは繰り返し使用できる材料の開発を目的としてZnO結晶に注目し、放射線耐久評価を行った。核融合の燃料を想定したイオンの照射、ガンマ線の照射による損傷を明らかにし、既存の窓材料候補であるサファイアと比較し、その有用性を示した。

研究成果の概要(英文)：In nuclear reactors, space, and other scientific activities involving high-energy radiation such as gamma-ray, long-term exposure can produce serious radiation effects leading to the rapid deterioration of optical components. In optical glasses, high radiation doses create discoloration. Therefore, monitoring the optical performance of window materials can help mitigate potential damage. In this project, we investigate the effects of gamma-ray irradiation and ion bombardments on the transmission and refractive index of ZnO crystal and sapphire. We also report a new method based on two right angle prism configuration and imaging spectrometer to measure the changes of refractive index before and after irradiation of a sample material.

研究分野：材料分析

キーワード：放射線損傷 光学材料 核融合 原子炉

## 1. 研究開始当初の背景

近年、新たなエネルギー源として、核融合エネルギー開発が注目されている。特に福島第一原子力発電所の事故では現在でも影響を残しており、原子力発電の安全性への懸念は増し、今後の原発の使用が問題となつてからは、再生可能エネルギーや核融合エネルギーの研究の重要度が大きくなった。

国際熱核融合実験炉 ITER はすでにフランスのカダラッシュで建設が始まっており、広大な敷地の中に土台や建屋がすでにできている。ITER では D-T 燃焼により 500 MW の出力を 300 秒以上持続させる事を目標としている。その際、第 1 壁は発生する核融合で発生する 14MeV の中性子やガンマ線はもちろん、H や He などのイオンにさらされる事になる。ITER では実験炉という性質上、プラズマの観測が求められ、光を用いた計測が行われる。そのために真空遮蔽、トリチウム(T)遮蔽を兼ねた観測用の窓が必要であり、放射線の窓へのダメージは深刻な問題となる。

またレーザーを用いた慣性核融合では、インジェクション装置によって燃料ターゲットを炉内に導入する。この際にレーザープローブを用いたターゲットのトラッキングが必要であり、レーザー光導入の窓が必要になる。また爆縮レーザー照射時のポインティングの計測を行う際にも窓が必要となる。高出力のレーザーを用いるために各所に光学材料が配置され、放射線による損傷が懸念される。

これまでに耐放射線特性を評価するため、試験用原子炉を利用した各種の照射実験が行われてきたが、その材料はサファイア、SiO<sub>2</sub>、ダイヤモンドなどに限られており、中性子に対する評価と検討が主である[1]。申請者は全く新しい候補材料として ZnO 結晶を提案し、その耐放射線特性の評価を行っている。ZnO 結晶は可視域から遠赤外域まで高い透過率と機械的強度を持ち、計測用の真空窓として適している。実際に申請者らと株式会社大真空との共同開発により、3 mm 厚の ZnO 結晶を用いた真空窓も開発、販売されている。代表者らはこれまでに ZnO 結晶を X 線、ガンマ線、アルファ線などのシンチレータとして開発してきた経緯があり、不純物ドープによる高速応答化、シンチレータの大型化などに成功し、一部は製品化されている[2]。その際、各種の放射線下に曝す実験も多数行っており、その耐久性から核融合用の窓材としての利用に思い至った。

最近では 1 keV の H イオンビーム、D イオンビームを照射した時の透過率測定を行った。図 1 にその結果を示す。10<sup>20</sup> cm<sup>3</sup>/s のフラックスで 1 keV の D イオンビームを 3 時間照射した後では紫外線領域の透過率が下がる。しかし、室温下で数日間保存しておく、室温でのアニール効果により透過率特性が回復することがわかった。これは高い放射線に曝され、ダメージが入ったとしても、

容易に回復することを意味する。さらに密度が低く、ガンマ線の吸収が少なく、中性子との断面積が低い。サファイアでも数百度の高温でアニールが可能であるが、ZnO は室温でも可能であり、より回復が容易であると考えられる。

## 2. 研究の目的

本研究では核融合炉の窓材料への応用を目的とした ZnO 結晶の放射線耐久性を調査する。H、D、He の各種イオンビーム、ガンマ線を照射し、光学特性評価を行う事で放射線耐性を明らかにする。その際、アニールによる効果も検証することで、ダメージの回復特性を調べる。これらの特性をサファイア結晶と比較し、核融合用の窓材料としての実用性を示す。

## 3. 研究の方法

有力な窓材料であるサファイアと比較し、ZnO 結晶の H、D イオンビームの照射によるダメージの評価を行い、その同位体効果の検証を行った。イオンビームには HiFIT(The high-flux irradiation test device)を用いた。HiFIT は、1 keV のエネルギーを持つ各種イオンビームを作る事が出来る。上記に示したようにすでに、水熱合成法により作成した ZnO 結晶に重水素ビームを照射し、透過率の低下と室温アニールによる回復を確認している。時間経過と共に回復するため、照射直後に紫外域、可視域、赤外域、THz 域での透過及び反射率測定、XRD 計測を行う。

イオンビームの照射と同様に、大阪大学産業科学研究所のコバルト 60 ガンマ線照射装置を用いて高い dose でのガンマ線照射実験を行い、紫外域、可視域、赤外域、THz 域での透過及び反射率測定を行った。一般的に、無機材料として密度の低い ZnO 結晶はガンマ線を透過するため、ダメージは少ないと考えられる。また、ZnO 結晶は紫外線域(380 nm)で強い励起子再結合による発光と酸素欠損由来の可視発光(波長 500 nm 付近)を持つ。これらの発光は ZnO 結晶の結晶性を知る上で必要な指標となる。結晶の精度が良く、不純物が少ないほど励起子発光が強く発光寿命が長くなり、可視域発光がなくなる。

さらに、核融合で用いられる 100GHz 帯のジャイロトロン光を照射し、その透明性及び発光特性を調べた。

## 4. 研究成果

HiFIT 装置を用いたイオン照射実験により、核融合実験炉 ITER の炉心プラズマの ZnO 結晶への影響が明らかになった。これまでに室温でのアニール効果により、生じたダメージが容易に回復することを発見し、核融合炉窓材料としての有用性が示すことができた。図 1 に ZnO 結晶へのイオン照射を行った直後(図 1 (a))と室温で保管した 3 日後(図 1 (b))の写真を示す。直後には、茶色く変

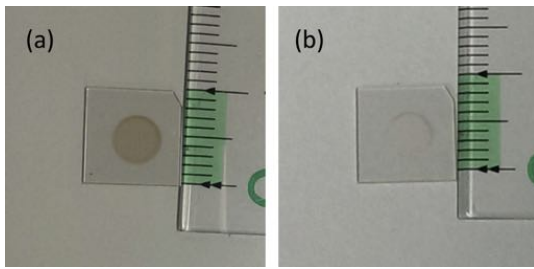


図 イオン照射直後 (a) と 3 日経過後 (b) の ZnO 結晶

色しているものの、3 日後には透明に戻っているのがわかる。さらに、この回復の時間が、H イオン及び D イオン照射によって差が出るのが明らかになった。図 2 に縦軸を回復量  $\Delta T$ 、横軸に経過時間をとってプロットし、その回復の時定数を示す。H イオンと D イオンで大きく回復時間が異なっていることを発見した。これは幾何学的同位体効果によるもので、ZnO 結晶中に入った H と D のが外に抜ける出る時間が異なることによる。

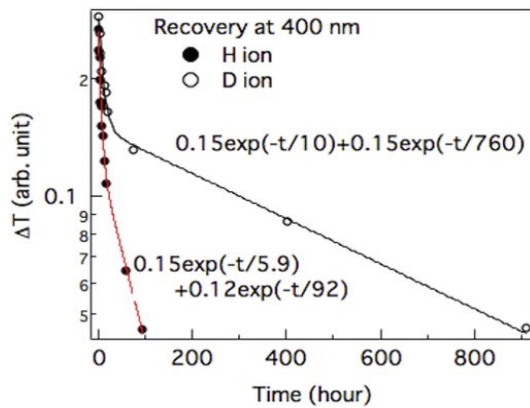


図 H、D イオンによる損傷回復の時間依存性

さらに、結晶性を評価するために、ZnO 結晶の再表面での X 線ロックンング曲線の結果を図 3 に示す。イオン照射された結晶では、そのスペクトル幅が広く、結晶性が低くなっていることがわかる。これはイオン照射によって、最表面がアモルファス化したためである。しかし、イオンの照射量を増やしても、透過率や結晶性といった特性は、これ以上に変化しなかった。AFM で表面を観察すると、削られたような形跡があったため、表面がアモルファス化すると同時に、エッチングにより削られていくため、損傷が抑えられたと考えられる。一方で比較対象としたサファイアでは透過率の現象は波長 160nm あたりに見られたものの、可視領域では大きな透過率の低下は見られなかった。その際、H、D と He では照射後の透過スペクトルに大きな違いが見られた。これは H、D はサファイア内部に入りやすいが、He ではイオン半径が大きく、サファイア中に入りにくいのために、表面のエッチングが支配的となったためである。ZnO 結晶

と異なり、室温での回復が起こらないことも明らかになり、回復には 1000° C 程度のアニールが必要であった。これらのことから、この深紫外域で見られた透過率の低下は、主に表面の荒れと酸素欠損によるものであると結論づけた。サファイアを窓として使用する場合、一度受けた損傷の回復が難しいため、何らかの保護コーティングが必要となる可能性を示唆している。

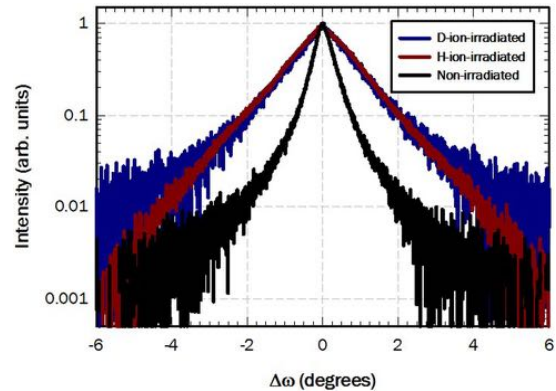


図 3 表面のロックンング曲線の比較

また、ZnO 結晶ではジャイロトロンを用いた 100GHz 帯の透過率の計測を行い、その透過率の高さから、ITER での加熱ビームであるジャイロトロン導入の窓材料としての可能性も開けた。

透明材料としては屈折率の変化も重要な指標となる。特に放射線損傷によりカラーセンターが発生した際、カラーセンターの発生した周辺波長において、屈折率が大きく変化する可能性が考えられる。一般的な光学ガラスと ZnO 結晶の屈折率の変化を測定したところ、光学ガラスでは変化が見られなかったが、ZnO 結晶では大きな変化が見られず、透明窓材料としての有用性を示した。

ZnO 結晶へジャイロトロンを用いた 100GHz 帯の透過率の計測を行い、高い透明性を持ち、ITER 等のジャイロトロン用の窓材料を示した。一方で、不純物を加えた ZnO 結晶ではジャイロトロンを照射すると、波長 600~700nm のブロードな黄色く光を発する性質を持つことがわかり、100GHz 帯のジャイロトロン可視化ツールとしての利用方法を見出した。図 4 にこの黄色い発光のスペクトルと発光している写真を載せる。この可視光の発光は ZnO 結晶の酸素欠陥に由来するものであると考えられる。しかし、低い光子エネルギーの 100GHz 帯から高い光子エネルギーの可視光へ変換する固体材料の報告は少なく、可視化ツールとして実現すれば、ジャイロトロン発展、利用へ貢献できると考えられる。

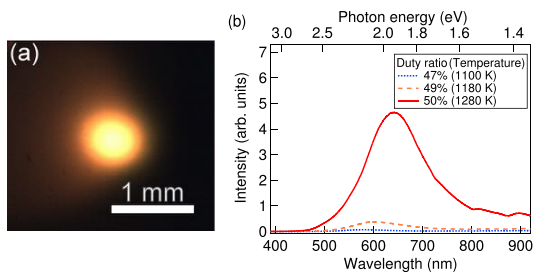


図 4 ジャイロトロン照射による発光の写真(a)とスペクトル(b)

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 10 件)

- ① Optical damage assessment and recovery investigation of hydrogen-ion and deuterium-ion plasma-irradiated bulk ZnO single crystals, Melvin John F. Empizo, Kohei Yamanoi, Kazuyuki Mori, Keisuke Iwano, Yuki Iwasa, Yuki Minami, Ren Arita, Kazuhito Fukuda, Keisuke Takano, Toshihiko Shimizu, Makoto Nakajima, Masashi Yoshimura, Nobuhiko Sarukura, Takayoshi Norimatsu, Masanori Hangyo, Hiroshi Azechi, Tsuguo Fukuda, Bess G. Singidas, Roland V. Sarmago, Makoto Oya, and Yoshio Ueda, Journal of Applied Physics 121, 175102 (2017) doi: 10.1063/1.4982346
- ② Strong yellow emission of high-conductivity bulk ZnO single crystals irradiated with high-power gyrotron beam, Kosaku Kato, Hongsong Qiu, Eduard Khutoryan, Yoshinori Tatematsu, Masahiko Tani, Toshitaka Idehara, Yuusuke Yamaguchi, Masafumi Fukunari, Yuto Maeda, Kyoya Takayama, Yuki Minami, Melvin John Empizo, Takayuki Kurihara, Kohei Yamanoi, Toshihiko Shimizu, Keisuke Takano, Nobuhiko Sarukura, Tsuguo Fukuda, Masashi Yoshimura, Makoto Nakajima, Applied Physics Letters, 111(3) 031108, 2017 年 07 月 doi: 10.1063/1.4994316
- ③ ZnO crystal as a potential damage-recoverable window material for fusion reactors, K. Yamanoi, M. J. F. Empizo, K. Mori, K. Iwano, Y. Minami, R. Arita, Y. Iwasa, K. Fukuda, K. Kato, K. Takano, T. Shimizu, M. Nakajima, M.

Yoshimura, N. Sarukura, T. Norimatsu, M. Hangyo, H. Azechi, T. Fukuda, B.G. Singidas, R.V. Sarmago, M. Oya, and Y. Ueda, Optical Materials, Vol.62, pp.646-650, 2016 年 12 月 <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2016.10.058>

- ④ Optical transmittance investigation of 1-keV ion-irradiated sapphire crystals as potential VUV to NIR window materials of fusion reactors, K. Iwano, K. Yamanoi, Y. Iwasa, K. Mori, Y. Minami, R. Arita, T. Yamanaka, K. Fukuda, M. J. F. Empizo, K. Takano, T. Shimizu, M. Nakajima, M. Yoshimura, N. Sarukura, T. Norimatsu, M. Hangyo, H. Azechi, B.G. Singidas, R.V. Sarmago, M. Oya, and Y. Ueda, AIP Advances, Vol.6, pp.105-108, 2016 年 10 月 doi: 10.1063/1.4965927

[学会発表] (計 7 件)

- ① GAMMA-RAY RADIATION RESISTANCE AND IMPROVED EMISSION LIFETIMES OF HYDROTHERMAL-GROWTH BULK ZnO SINGLE CRYSTALS, Nobuhiko Sarukura, 7th International Symposium on Optical Materials (IS-OM7), 2016 年 03 月
- ② Radiation resistance and improved response times of ZnO scintillator after gamma-ray irradiation, K. Yamanoi, The 9th International Conference on Inertial Fusion and Applications (IFSA2015), Seattle, USA, Sep.
- ③ Effect of 1 keV ion bombardment on the optical characteristics of sapphire in VUV region, K. Iwano, International Conference on Small Science 2015 (ICSS 2015), Phuket, Thailand, Nov.
- ④ RADIATION RESISTANCE AND IMPROVED RESPONSE TIMES OF ZNO SCINTILLATOR AFTER GAMMA-RAY IRRADIATION, K. Yamanoi, International Conference on Small Science 2015 (ICSS 2015), Phuket, Thailand, Nov.

[産業財産権]

○取得状況 (計 2 件)

名称: 電磁波のビーム観測方法及び観測

## システム

発明者：福田承生、中嶋誠、猿倉信彦、加藤康作、立松芳典、出原敏孝、クトリャンエドワードミハイロヴィチ、谷正彦、邱紅松、高野恵介、吉村政志、エンピゾ メルヴィン ジョンフェルナンデス、南佑輝、山ノ井航平、清水俊彦

権利者：同上

種類：物の発明

番号：特開 2018-36158

取得年月日：2018. 3. 8

国内外の別： 日本

名称： 酸化亜鉛結晶の製造方法、酸化亜鉛結晶、シンチレータ材料及びシンチレータ検出器

発明者：福田承生、猿倉信彦、清水俊彦、山ノ井航平、坪井瑞輝、南佑輝、エンピゾ メルヴィン ジョンフェルナンデス、有田廉、堀達広、福田一仁、高嶋正宏、森一公

権利者：同上

種類：製造方法の発明

番号：特開 2016-204213

取得年月日：2016. 12. 8

国内外の別： 日本

〔その他〕

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

山ノ井 航平 (YAMANOI, Kohei)

大阪大学・レーザー科学研究所・助教

研究者番号：30722813