

機関番号：63902

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2008～2010

課題番号：20760580

研究課題名 (和文) Mix-material 再堆積層の微細構造とプラズマ粒子の保持・放出挙動の  
解明研究課題名 (英文) Evaluation of the microstructure and retention properties of plasma  
particles on mix-material deposition layer

研究代表者

時谷 政行 (TOKITANI MASAYUKI)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・助教

研究者番号：30455208

研究成果の概要 (和文)：電子顕微鏡を用いた微細構造解析より，大型ヘリカル装置(LHD)のダイバータタイル上に形成される Mix-material 再堆積層の物理的特徴を原子レベルで示した。堆積層はアモルファスに近い構造であり，炭素などの軽元素が主成分の層や，鉄などの金属元素が主成分の層で構成されており，グロー放電洗浄時に堆積する鉄を含む層が堆積層全体を剥離させる主な要因となっていることを明らかにした。また，Mix-material 再堆積層の水素同位体捕捉量はバルクの炭素材料と比較して約3倍高いことも示された。

研究成果の概要 (英文)：Physical properties of Mix-material deposition layers were analyzed by using transmission electron microscopy. Deposition layers were composed by amorphous like carbon and metal layers. The metal layers mainly including Fe seem to act as the initiator of the exfoliation of the deposition layers. In addition, retention rate of hydrogen isotopes in deposition layer was higher than that of the bulk carbon materials.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2009年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2010年度	1,000,000	300,000	1,300,000
総計	3,100,000	930,000	4,030,000

研究分野：工学

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・壁相互作用，Mix-material，再堆積層，微細構造観察，プラズマ粒子，電子顕微鏡

## 1. 研究開始当初の背景

核融合炉の研究開発において，プラズマと壁との相互作用(PWI)による不純物の発生は，以前よりプラズマ制御に直結する問題であった。PWIによりプラズマ対向材料はスパッタリング損耗を受け，真空容器内の各所に再堆積層が形成される。再堆積層は金属や炭素材などの対向材料の構成元素だけでなく，燃料粒子やガス不純物を含む複雑な物質，いわ

ゆる Mix-material 再堆積層である。再堆積層の構造(結晶構造や化学組成比)は対向材料の組み合わせや放電履歴により様々に変化するが，その変化は水素同位体及びヘリウム等，プラズマ粒子の壁表面への捕捉特性に変化を招き，燃料粒子リサイクリングに影響を及ぼすこととなる。このように見ると，炉心プラズマという巨視的な対象を制御するにはプラズマ対向材料中の原子の挙動に目

を向ける極めて微視的な視点が必要であることがわかる。再堆積層とプラズマ粒子捕捉の研究は世界各国の装置で精力的に行われてきた。例えば、日本原子力研究開発機構の JT-60U ではプラズマ対向材料のほぼ全てに炭素材が使用されていたが、内側ダイバータ部で  $50\mu\text{m}$  を超す厚い炭素再堆積層が形成され、そこでの水素捕捉量は  $(\text{H}+\text{D})/\text{C}\approx 0.1$  という他の場所と比較して高い数値が確認されている。また、フランスのカダラッシュ研究所の Tore supra でも  $50\text{--}140\mu\text{m}$  の炭素再堆積層中に  $\text{D}/\text{C}\approx 0.4$  という高い水素捕捉量が確認されている。JT-60U, Tore supra はいずれも対向材料の主な構成要素が水素同位体との化学的結合力の強い炭素材であるために再堆積層での水素同位体保持量が注目されてきた。一方で、金属を主成分とする再堆積層での水素保持特性については、対向材料の全てが金属製である九州大学応用力学研究所の TRIAM-1M を用いて応募者等により研究が成されてきた。金属再堆積層 (Mo が主成分) 中に保持された水素量をイオンビーム分析によって定量化し、壁排気への寄与を見積もったところ  $\text{H}/\text{Mo}\approx 0.1$  という炭素材の保持量に迫る値が確認され、TRIAM-1M における高い壁排気率は金属再堆積層に保持された水素量から説明できることが示された。これまでは、各国の装置において炭素および金属の再堆積層に対する研究が並行して進められてきた。しかしながら国際熱核融合実験炉 (ITER) の対向材料には、金属と炭素材を組み合わせた仕様が決定的となっており高度に複雑化された再堆積層、すなわち Mix-material 再堆積層が形成され、水素同位体やヘリウム の保持機構は複雑さを増すことが懸念される。

## 2. 研究の目的

核融合科学研究所の大型ヘリカル装置 (LHD) は第一壁とダイバータタイルにそれぞれ SUS316L, 等方性黒鉛 (IG-430U) が使用されており、第一壁やダイバータタイル上に複雑な構造・組成を持つ Mix-material 再堆積層の形成が応募者等により確認されている。特に、高いプラズマフラックスが入射するダイバータタイル上における再堆積層の形成とそこでの水素保持量についての結果は重要である。LHD のダイバータタイルの表面状態は、損耗領域と再堆積領域の大きく 2 つに分けられる。加速器を用いたラザフォード後方散乱法 (RBS) と弾性反跳粒子検出法 (ERD) によるイオンビーム分析より、損耗領域/堆積領域の元素組成の深さ分布や、堆積層中での  $\text{H}/\text{C}\approx 0.3$  におよぶ高い水素捕捉量が示されてきた。しかしながら、Mix-material 再堆積層の複雑な水素捕捉特性を根本的に理解するためには原子の捕獲サイトである照射欠

陥や微細組織と関連付けて議論しなければならず、それには特に、原子レベルでの内部構造観察を可能にする透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いた構造観察や組成分析技術が威力を発揮する。LHD では、2002 年度より TEM 観察を取り入れた PWI 研究が継続して行われてきた。TEM による構造観察を行うためには対象となる試料を薄膜化 ( $t=100\text{nm}$ ) する必要があるが、これには集束イオンビーム加工観察装置 (FIB) が用いられている。FIB 加工では断面観察用の薄膜試料を作成することができ、堆積や損傷の深さ分布を正確に観察することができる。しかしながら、試料作製を含めた TEM 分析にはいずれも経験と慣熟を要することなどから他の実機装置ではほとんど実施されていない状況であった。図 1 に LHD ダイバータタイルで初めて実施された再堆積領域の FIB 加工後の断面 TEM 像を示す。

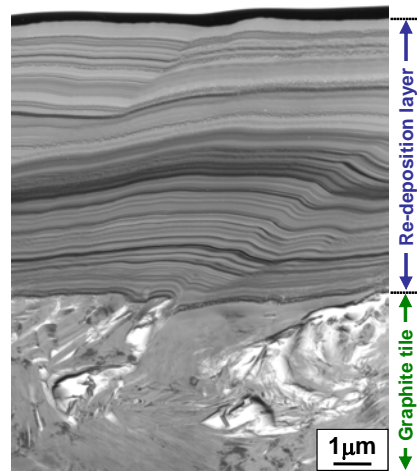


図 1. LHD ダイバータタイル上に形成された層状再堆積層の断面 TEM 像

1999-2006 年度にかけて使用されたトーラス内側タイル上に形成された再堆積層である。C, Fe, Cr, Mo, Ti, O を含む再堆積層 (Mix-material) が数十~数百 nm の様々な厚みで積み重なっており、結果として厚さ約  $8\mu\text{m}$  の層構造を形成している。比較的明るく見える層は C などの軽元素が主成分であり、暗く見える層は逆に Fe などの金属元素が主成分である。壁コンディショニングやプラズマ放電条件によってタイル上に飛来する堆積物の組成や構造が異なるため、このような層構造が形成される。FIB 加工と TEM 観察技術が可能にした新しい知見である。各層は独自の微細構造と厚みを持っており、水素同位体の保持特性も層ごとに異なると考えられる。また、このような層構造の場合、層と層の境界での熱伝導は悪化していると予想されるため、急激な熱入力があつた場合には層構造自体が突如として剥離し、不純物としてプラズマ中へ混入することも予想できる。LHD のダイバータタイル上では、このような

構造が各所で発生している可能性があり、その構造と水素同位体保持特性および熱負荷特性について早急に明らかにする必要があった。本研究では、LHD ダイバータタイル上で形成される再堆積層の微細構造解析とプラズマ粒子の保持・放出挙動について、材料分析技術を駆使して明らかにすることを目的とした。

### 3. 研究の方法

LHD ダイバータタイル上に形成される Mix-material 再堆積層の構造解析を実施し、熱負荷・粒子負荷に対してどのような特性を示すかについて、材料学的な視点から詳細な評価実験を行った。

#### 【平成 20-21 年度】

分析するダイバータタイルの選定を行い、FIB と TEM を用いたタイル表面構造の微細観察を実施した。また、通常の TEM 観察だけでは層構造中の元素組成の同定と結晶構造の確定には至らないため、走査型透過電子顕微鏡(S-TEM)によって構造解析と組成分析を同時に実施した。また、RBS と ERD の同時測定より、捕捉粒子量の定量評価も並行して実施した。再堆積層の形成は壁コンディショニングによりステンレス製の真空容器壁がスパッタを受け、ダイバータタイル上に再堆積する。あるいはプラズマ放電中に炭素製のダイバータタイルがスパッタされ、そのすぐ近くのタイル上に再堆積するなど様々な過程が考えられる。各層がどのような過程を経て形成されたものであるのかを過去の放電履歴と照らし合わせて判定し、プラズマ粒子捕捉や剥離の可能性を検討した。

#### 【平成 22 年度】

当初本計画にはなかったが、新しいダイバータタイルの LHD への適応を目指し、タンクス被覆炭素ダイバータタイル(W タイル)の LHD における照射試験を実施した。W タイルを使用することで、Mix-material 再堆積層の成長を抑え、望まれない不純物の捕捉や再放出を制御できる可能性があり、本研究をまとめるにおいて重要な知見となることが期待された。また、本年度当初に計画していた高熱負荷試験装置(ACT)における熱負荷中の Fe などの不純物放出の分光分析に関連して、LHD 放電中に W タイルを分光器で直接監視することで、W 不純物の LHD 真空容器内への飛散過程を調査した。堆積層中の Fe と W タイルからの W の放出機構は異なるものの、放出された不純物元素の輸送研究としては十分な共通点がある。また、W タイル周辺の炭素タイルを詳細に表面分析することで、一枚の W タイルから放出された W 元素がどのような分布で飛散しているのかについての知見を得ることもできた。

### 4. 研究成果

最初に、LHD ダイバータタイル表面の堆積領域と損耗領域で、物理的特性にどのような相違点があるのかを検討した。図 2 は、堆積領域と損耗領域における微細構造の相違をまとめたものである。(a)、(c)は走査型電子顕微鏡(SEM)像、(b)、(d)は断面 TEM 像である。(b)は、すでに図 1 において示した図と同じものである。堆積領域には厚い Mix-material 層が形成されているのに対して、損耗領域ではそのような堆積物は全く確認されなかった。また、等方性黒鉛の結晶粒が粗大化している様子が確認できたことから、プラズマ放電中の表面近傍の温度は 1000°C 以上まで上昇している可能性が示唆される。Mix-material 再堆積層の物理的特性をより詳細に確認するために、S-TEM を用いた構造/組成解析を行った。図 2-(b)図中に A で示した領域における S-TEM による明視野像とエネルギー分散型 X 線分析装置(EDS)による元素マッピング像を図 3 に示す。

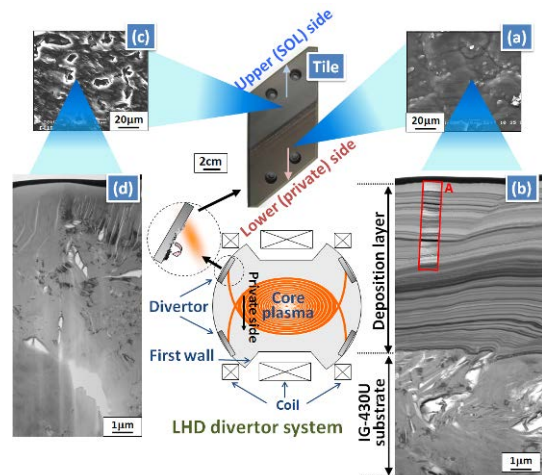


図 2. ダイバータタイルの堆積領域(a, b)と損耗領域(c, d)の微細構造

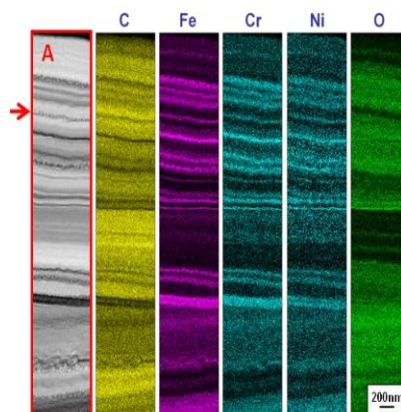


図 3. Mix-material 堆積層の一部領域(図 2-A 範囲)における明視野像(一番左)と各元素の EDS マッピング像



この結果から、明視野像中で暗く見える部分は Fe などの金属系元素が主の層、明るく見える部分は C や O などの軽元素が主であることが明確に示された。金属系元素は主にグロー放電洗浄 (GDC) 中にタイル表面に堆積したもの、軽元素は主に主プラズマ放電中に黒鉛製ダイバータタイルがスパッタリング損耗を受け、堆積したものであると考えられる。軽元素を多く含む層は比較的均一な組織を有しているのに対し、金属系元素を含む層は複雑な形状を有していることがわかる。微細構造の違いについてより詳細に解析を行うために、同じく図 2-A の範囲に対して高倍率での TEM 観察を実施した。その結果を図 4 に示す。図 4 の (a~d) は A 図中に示した各小フレームに対応する。(a) はアモルファスに近い極めて微細で均一な組織で形成されていることがわかる。一方で、(b), (c), (d) は 1-2nm の白いコントラストを有する微細なバブル、転位ループ、さらにはバブル間を接続するクラック等が確認できる。特に、(b) では、バブルと同時に柱状の結晶粒が同時に成長している様子も見られる。このような構造は、ヘリウムを用いたグロー放電洗浄時に形成される金属材料の典型的な照射損傷組織である。ヘリウムは、金属材料との相互作用が極めて強いために、一度照射されるとバブルや転位ループを形成し、極めて深刻な照射損傷を引き起こすことが知られている。一般的にこのような層は固く、脆い状態であるた

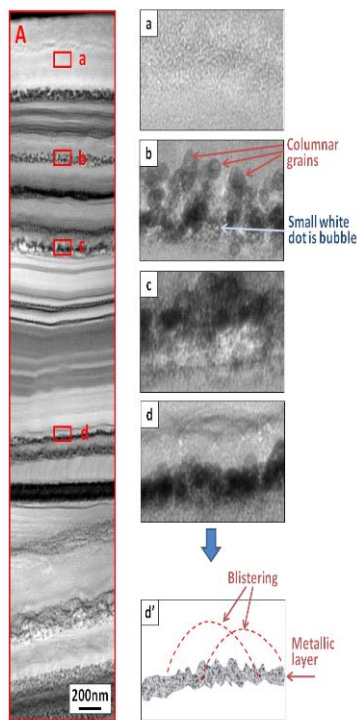


図 4. 左図：TEM 像 (図 2-A 範囲) と、右図：その中の各小フレーム (a~d) に対応する高倍率 TEM 像。

めに、その後の熱衝撃などにより予期しない破壊を引き起こし、層全体の剥離に繋がる恐れがある。特に、(d) の領域には、バブル同士の合体成長によって形成されたと考えられるナノサイズのプリスターが確認できる。典型的な 2 つのプリスターの場所をわかり易いように (d') に模式的に示した。これらのプリスターは、金属堆積層中のヘリウムバブルがプラズマから受ける熱と共に合体/成長を繰り返し、形成されたと考えられる。プリスターを含む堆積層は、Mix-material 再堆積層の剥離に影響を与えることは言うまでもない。他のタイルの微細構造観察を行ったところ。実際に、同様な層の部分から剥離が生じていることが確認された。

また、図 2-(c) はプラズマ粒子によるスパッタリング損耗が顕著な領域であり、断面 TEM 像と EDS 観察から、金属や酸素などの不純物元素が検出されなかった場所である。しかしながら、結晶構造は初期 (未使用) の IG-430U と比較して大きく変化していた。図 5 に、未使用の IG-430U の TEM 像と電子線回折像、図 2-(b) の Mix-material 再堆積層、図 2-(b) の IG-430U 基盤、図 2-(d) の IG-430U 基盤の電子線回折像を同時に示す。Mix-material 再堆積層からの電子線回折像はアモルファスに近い極めて微細な結晶粒の存在を示しており、図 4 での考察と良い一致を示す。図 2-(b) の IG-430U 基盤の電子線回折像は未使用のものとはほとんど変化が無く、ナノレベルの微細な結晶粒から構成される典型的な等方性黒鉛の構造を有している。従って、Mix-material 再堆積層が形成された場所の IG-430U 基盤への高い熱・粒子負荷は皆無であったと考えられる。一方で、図 2-(d) の IG-430U 基盤の電子線回折像は他のものと

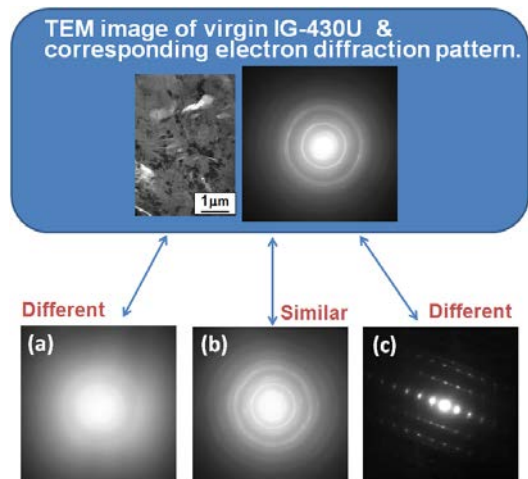


図 5. 上段：未使用等方性黒鉛 (IG-430U) の TEM 像と電子線回折像。下段：(a) 図 2-(b) の Mix-material 再堆積層、(b) 図 2-(b) の IG-430U 基盤、(c) 図 2-(d) の IG-430U 基盤の電子線回折像

は全く異なり、輝度の高い複数のスポットから構成されている。このことはすなわち、IG-430U 基盤が極めて高い熱負荷を受け、結晶粒成長したことを裏付けるものである。イオンビーム分析を用いた水素捕捉量の定量評価から、損耗領域の水素捕捉量は、堆積領域と比較して約 1/3 程度低いことも明らかとなったが、高い結晶質への変化が、プラズマ粒子捕捉やタイルの耐久性にどのような影響を及ぼすのかについては、今後更なる検討が必要である。

黒鉛製タイルにおける Mix-material 再堆積層の構造特性に関してある程度まとまった知見が得られたため、平成 22 年度は、当初本計画にはなかったが、新しいダイバータタイルの LHD への適応を目指し、タングステン被覆炭素ダイバータタイル (W タイル) の LHD における照射試験を実施した。W タイルにおいても、黒鉛タイルと同様に繰り返しを伴う強烈な熱・粒子負荷によって、表面近傍のナノ構造が激しく変化している可能性が考えられる。そこで、FIB を用いて断面ナノ薄膜試料を製作し、TEM による内部構造観察を実施した。図 6 に損耗領域の断面 TEM 像を示す。表面から深さ約 40nm に亘って明るく楕円上に見えるものが、注入されたプラズマ粒子によって形成された高密度のガスバブル(気泡)である。サイズは大小様々であるが、大きいものは直径 20nm まで成長していることがわかる。このような照射欠陥は、主にヘリウムイオンの照射により形成されたと考えられる。タングステンに対してはじき出し損傷を形成するために必要なエネルギー ( $E_D \sim 500\text{eV}$ ) を超えるようなイオン束の入射は全入射粒子の僅か 0.3% 程度であるが、ヘリウムの場合、材料中に存在する格子欠陥との相互作用が極めて強く、はじき出し損傷を形成しない低エネルギー入射であってもヘリウムバブルや転位ループなどの照射欠陥を引き起こすことが知られている。これらは水素照射では見られないヘリウム照射に特有の現象である。バブルサイズや密度から判断して、タングステン表面の温度は 1000°C 以上まで上昇したと推察できる。また、バブルの存在深さは 100eV 前後のヘリウム入射の飛程 (2-3nm) を大きく越えており、入射されたヘリウムが材料深部まで拡散して捕捉されたことを示唆している。このような高密度なバブル層の形成は、表面積の増加による不純物

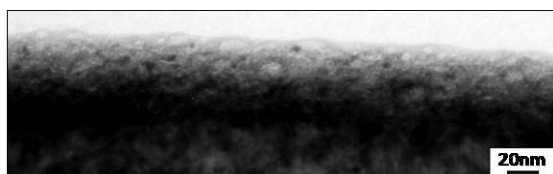


図 6. LHD 使用後の W タイル表面の断面 TEM 像

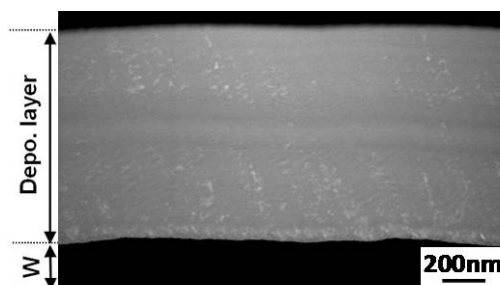


図 7. W/タイル堆積領域に形成された不純物堆積層の断面 TEM 像

元素の付着だけでなく、マトリクス密度が減少することによって表面熱伝導率が減少するなど、予期せぬ弊害に繋がる恐れもある。

一方、堆積領域に形成された不純物堆積層の断面 TEM 像を図 7 に示す。組成分析と結晶構造解析より、C を主とするアモルファスに近い不純物堆積層が厚さ約  $1\mu\text{m}$  形成されていることが確認された。W タイルの部分的な導入では再堆積層の形成と剥離を抑制できないことが明らかになった。堆積層の途中で僅かながら縞状に明暗が切り替わっている様子がわかる。暗く見える領域には、微量ではあるが Fe, W などの金属元素が含まれており、黒鉛製のタイルと同様な Mix-material 再堆積層が形成されている。先にも述べたように、金属を含む堆積層は層全体の剥離の起点となることも懸念される。また、イオンビーム分析による捕捉水素の定量化より、堆積領域は損耗領域の W 表面と比較して水素捕捉量が約一桁高いことも示された。さらに、一枚の W タイルから放出された W 元素がどのような分布で飛散しているのかについての知見を得る目的で W タイル周辺の炭素タイルを詳細に表面分析した結果、放出された W 不純物は、ダイバータアレイに沿って約 1m の領域に集中して堆積しており、それほど遠い距離に拡散されていないことが示された。

このように、FIB と TEM を併用した詳細な材料分析により、一枚のダイバータタイルという狭い範囲においても粒子/熱負荷の状況が異なり、表面の物理的特性が変化していることが初めて明らかとなった。また、Mix-material 再堆積層の物理的特徴を原子レベルで示すことにより、グロー放電洗浄時に堆積する Fe を含む層が堆積層全体を剥離させる主な要因となっていることを実験的に示した。Mix-material 再堆積層の水素同位体捕捉量はバルク材と比較して 3 倍程度高いため、このような不純物層の形成は燃料粒子バランスだけでなく、将来の核融合炉ではトリチウムインベントリなどの安全面の観点からも留意をしておく必要がある。今後はこのような堆積層がプラズマ対向壁のどういった場所に分布しているのかについて、対

向壁全体を見据えた材料分析研究が必要となってくる。

#### 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3件)

- ① M. Tokitani, N. Yoshida, M. Miyamoto, T. Hino, Y. Nobuta, S. Masuzaki, N. Ashikawa, A. Sagara, N. Noda, H. Yamada, A. Komori, LHD Experiment Group, Characterization of surface modifications of plasma-facing components in LHD, Fusion Science and Technology Vol. 58 (2010) pp.305-320, 査読有
- ② M. Tokitani, N. Yoshida, K. Tokunaga, H. Sakakita, S. Kiyama, H. Koguchi, Y. Hirano, S. Masuzaki, Microscopic deformation of tungsten surfaces by high energy and high flux helium/hydrogen particle bombardment with short pulses, Plasma and Fusion Research: Regular Articles, Volume 5, (2010) pp.012 -1-4. 査読有
- ③ M. Tokitani, Y. Ohtawa, N. Yoshida, K. Tokunaga, T. Fujiwara, N. Ashikawa, S. Masuzaki, H. Yamada, A. Sagara, N. Noda, A. Komori, LHD experimental group, Micro/nano scale modification of plasma facing components in LHD and its impact on the metal dust generations, Journal of Nuclear Materials 390 -391 (2009) pp.156-159. 査読有

[学会発表] (計8件)

- ① 時谷政行, 吉田直亮, 増崎 貴, 野田信明, 相良明男, 山田弘司, 小森彰夫, LHD実験グループ, 永田晋二, 土屋 文, タングステンダイバータタイルのLHDにおけるプラズマ壁相互作用, 第8回核融合エネルギー連合講演会, 高山市民文化会館, 2010, 6/10-11
- ② M. Tokitani, N. Yoshida, S. Masuzaki, N. Noda, A. Sagara, H. Yamada, A. Komori, LHD experiment group, Plasma Surface Interaction on the Surface of Tungsten Divertor Tiles in LHD, 19th International Conference on Plasma Surface Interactions, San Diego, California, U.S.A. 24-29, May, 2010
- ③ 時谷政行, 吉田直亮, 増崎 貴, 野田信明,

相良明男, 山田弘司, 小森彰夫, LHD実験グループ, タングステン被覆黒鉛ダイバータタイルのLHDでの照射試験結果, プラズマ・核融合学会第26回年会, 京都市国際交流会館, 2009, 12/1-4

- ④ M. Tokitani, N. Yoshida, S. Masuzaki, N. Ashikawa, A. Sagara, N. Noda, H. Yamada, LHD experiment group, Micro/nano structural analysis of mixed-material deposition layer formed on the first walls of Large Helical Device, 14th International Conference on Fusion Reactor Materials, Sapporo, Japan, 7-11 September, 2009
  - ⑤ M. Tokitani, N. Yoshida, K. Tokunaga, H. Sakakita, S. Kiyama, H. Koguchi, Y. Hirano, S. Masuzaki, Microscopic deformation of tungsten surfaces by high energy and high flux helium/hydrogen particle bombardment with short pulses, 18th International Toki Conference, Toki, Gifu, Japan, 9-12 December, 2008
  - ⑥ 時谷政行, 吉田直亮, 増崎 貴, 芦川直子, 相良明男, 野田信明, 山田弘司, LHD実験グループ, LHD第一壁上に形成されるミックスマテリアル再堆積層の構造解析, プラズマ・核融合学会第25回年会, 栃木県総合文化センター, 2008, 12/2-5,
  - ⑦ 時谷政行, 吉田直亮, 徳永和俊, 榊田 創, 木山 學, 小口治久, 平野洋一, 増崎 貴, 高パワー密度イオンビーム照射されたタングステンにおける表面損傷形成機構, 第7回核融合エネルギー連合講演会, 青森市民ホールおよび青森市男女共同参画プラザ, 2008, 6/19-21
  - ⑧ M. Tokitani, Y. Ohtawa, N. Yoshida, K. Tokunaga, T. Fujiwara, N. Ashikawa, S. Masuzaki, H. Yamada, A. Sagara, N. Noda, A. Komori, LHD experimental group, Micro/nano scale modification of plasma facing components in LHD and its impact on the metal dust generations, 18th International Conference on Plasma Surface Interactions, Toledo, Spain, 26-30 May, 2008
- #### 6. 研究組織
- (1) 研究代表者  
時谷 政行 (TOKITANI MASAYUKI)  
核融合科学研究所・ヘリカル研究部・助教  
研究者番号: 30455208