

令和 4 年 6 月 6 日現在

機関番号：12102

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2020～2021

課題番号：20K22322

研究課題名(和文)ヘリウムプラズマ照射による金属ナノ構造バンドルの生成とその制御に関する研究

研究課題名(英文)Formation and control of nanostructure bundles by helium plasma exposure

研究代表者

皇甫 度均 (Hwangbo, Dogyun)

筑波大学・数理工学系・助教

研究者番号：00870908

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,200,000円

研究成果の概要(和文)：RF波(13.56 MHz)プラズマ装置APSEDASにおいて、ヘリウムプラズマのヘリコン遷移の手法を確立した。試料へ電圧バイアス印加システムを構築し、ナノ構造の生成を確認した。ヘリコンモード時のプラズマパラメータ変化により、表面ナノ構造の形状が異なることを確認した。また、プラズマ生成初期において不純物の混入が認められた場合、表面では一様なナノ構造の生成が抑制され、針状のナノ構造バンドルが形成されることを明らかにした。針状バンドル構造の生成にはRFイオン変調の影響や不純物によるスパッタリングの影響などが考えられるが、今後、バイアスのRF変調及び不純物濃度制御実験で明らかになることが期待される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は純金属とプラズマのみで発生する金属構造変化に注目する研究である。近年、ヘリウムプラズマに加えて不純物ガスの存在や金属面へ入射するイオンのエネルギー変調等が既存と大別されるバンドル構造を形成することを確認されており、本研究ではそのバンドル構造が一部の実験装置の特殊的な実験条件に限定される現象でなく、普遍的に発生する現象であることを示した。化学反応を含まない、ドライプロセスでの金属ナノ構造化は表面構造の制御技術の発展により光触媒、電界放出材、熱電素材など様々な応用が予想されるため、今後ともナノ構造やバンドル構造の生成機構の理解や構造制御技術の確立が期待できる。

研究成果の概要(英文)：Helicon-mode helium plasma was successfully demonstrated in the RF (13.56 MHz) frequency plasma device APSEDAS. A voltage bias system to a sample was established, and the formation of nanostructures was confirmed. It was found that the shape of the surface nanostructure differs with the change in plasma parameters during the helicon transition. It was also clarified that when impurities are observed in the early stage of plasma generation, the formation of uniform nanostructures is suppressed on the surface and needle-shaped nanostructure bundles are fabricated. It is considered that the RF ion modulation and the sputtering due to impurity contents affected the formation of the needle-shaped bundle structures. Successive research would focus on clarifying the effects of RF modulation of the biasing and the impurity concentration control experiment.

研究分野：核融合学

キーワード：タングステン プラズマ-材料相互作用 ヘリウムプラズマ ナノ構造バンドル

1. 研究開始当初の背景

(1) 核融合炉におけるプラズマ - 壁相互作用による表面構造研究の進展

核融合炉炉心プラズマの高性能化に伴って増加するプラズマ対向壁への熱負荷を制御することが重要課題であり、その中でもダイバータ板は粒子束が集中し最も強い熱負荷を受けるため、高融点金属であるタングステン(W)を採用する。ここで、今まで水素同位体照射によるプリスター形成やヘリウム(He)照射によるナノ構造、通称「fuzz」の形成は約十数年前に報告され(図1左)今まで生成機構や核融合への影響などが活発に調べられた。

一方で、水素・ヘリウムなど炉心を構成するプラズマに、少量の壁材料(W)や冷却用ガス(ネオン、窒素、アルゴン等)を添加することで既存とは大別される表面変化が起きる可能性が最近の研究で続々提示された。その中では高さ数十 μm のナノ構造の集合体が島状に独立して分布するナノ構造バンドル(nano-tendrils bundles; NTBs)構造があり(図1右)、Heプラズマに微量の不純物ガス(N₂, Ne, Ar)を添加することで生成されることを報告者が中心となり明らかにした(D Hwangbo et al., Nucl. Fusion, 2018)。

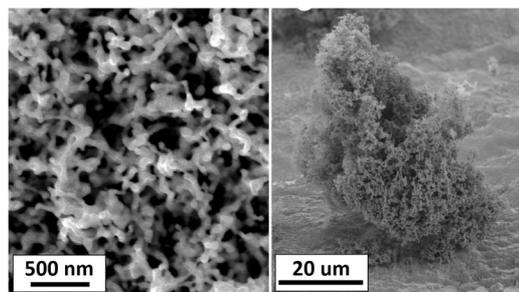


図1 He照射ナノ構造(左)とナノ構造バンドル(右)

上述のNTBsは、数十 - 数千 μm^2 の面積、数十 μm 高さの島状構造であり、イオンが表面をほぼ均一に入射するのに対し散布する構造が形成することでその生成過程には大きな疑問が残されている。微量の不純物ガスの添加及びHeイオンによるWスパッタリングの閾値を超えるイオンエネルギーを入射イオンに与えることで、W粒子がスパッタリングと視線方向への再堆積により表面上を水平移動し、突起状構造が成長すると推測された。しかし、初期に当たる生成過程は理解へ不十分であるのが現状である。また、fuzzのみならずさらに巨大化、先鋭化する構造の形成は核融合炉壁で材料損失やアーキングの発生など様々な問題を引き起こす可能性がある。そのため、NTBsの形成が核融合炉環境に及ぼす潜在的影響を明確に提示する実験的検討が必要である。

2. 研究の目的

そのような背景を受け、本研究ではNTBsの生成・成長過程を明らかにし、核融合炉へ与える影響を評価する。NTBsが既存では米国のRF駆動プラズマ装置DIONISOSや名古屋大学の直流放電プラズマ装置NAGDIS-IIの2台のみに報告されていることから、筑波大学に位置するRF駆動直線型プラズマ装置APSEDASを用いたNTBsの生成を試す。APSEDAS装置を改良し、高密度Heプラズマの生成や試料へのバイアス印加システムを構築し、fuzzやNTBs生成のための実験系を構築する。それらの構造変化が核融合炉へ及ぼす影響を明確にするため、水素同位体吸蔵評価を行う。また、実験の当初の目的以外に、HeプラズマとW粒子の共存環境における表面構造変化に着目し、He-W共堆積照射による表面構造変化について調べる。

3. 研究の方法

RF駆動直線型プラズマ装置APSEDASを用いて高密度He照射環境を構築する。その後、実際の照射により繊維状fuzz構造や独立した突起状のNTBs構造を有する試料を作製する。試料を走査型電子顕微鏡や3次元レーザー顕微鏡等を用いて表面観察し、表面のNTBsの生成の確認及び分布や形状の分析を行う。それにより、既存に米国DIONISOS装置のみで確認された、RF環境下でのNTBsの生成を確認するとともに、先行研究との違いを考察する。また、直流放電プラズマ装置NAGDIS-IIで不純物ガスを添加し、200 eV以上の入射イオン照射によりNTBsを生成する。生成されたNTBsの高電場印加試験などを行うことにより、既存に知られるfuzzなど表面変化による電子放出特性との違いを評価し、潜在的なアーキングの点呼可能性に関する評価を行う。

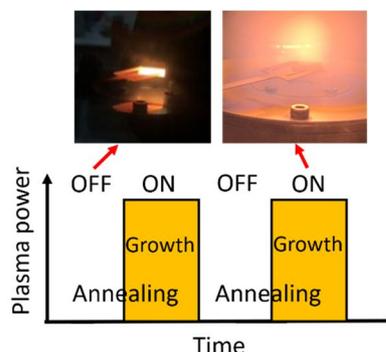


図2 パルスプラズマ照射の模式およびプラズマ休止(左) 点火(右)時の試料表面の様子。

4. 研究成果

(1) APSEDAS における He 高密度プラズマ照射による fuzz 生成と成長の見直し

APSEDAS において、バイアスが印加可能な絶縁試料導入系を制作した。それにより、入射イオンエネルギーをバイアス電圧により調整することが可能となった。加工した W 試料を接続し、He による高密度プラズマ生成を試みた。その結果、試料へ fuzz が形成可能な -50~80 V 程度のバイアス電圧を印加したとき、He プラズマは比較的低電力(~650 W)で誘導結合モードからヘリコンモードへ遷移し、電子密度 $\sim 10^{19} \text{ m}^{-3}$ 級の高密度プラズマがプラズマ柱の中心部に生成された。次に、RF プラズマ駆動のパルス運転を用いて、試料温度を制御した fuzz の生成試験を試みた。図 2 にパルスプラズマ照射の模式や照射時の高温試料からの発光を示す。その結果、fuzz の形成が APSEDAS では初めて観測された。世界各国の fuzz の成長データ*と比較し、APSEDAS のパルス照射効果を調べた結果、断続的照射は定常照射と同等な成長率を示した。図 3 は 2 種類の試料温度下で生成した fuzz に対して、厚さの平方根に比例する成長係数 C と入射イオンフラックスの関係プロットしたものである。成長係数は入射フラックスにより一定ではなく、高いフラックスになると成長係数は減少傾向にあることが示された。既存では試料温度と入射フルエンスにより fuzz の成長が決まると認識されているが、フラックスの違いにより成長速度が異なることが示唆された。

(* APSEDAS (本研究), NAGDIS-I/II(Kajita NF 2009, Kajita JNM 2011, Kajita JNM 2012, Kajita JJAP 2017, McCarthy JNM 2021, Kajita NJP 2015, Ueda JNM 2011, Kajita JJAP 2016, Hwangbo RP 2014), PISCES-A/B/E(Baldwin NF 2008, Petty NF 2015, Baldwin JNM 2009, Baldwin JNM 2010, Baldwin PPCF 2017, Doerner NF 2011, Tokunaga JNM 2011, Nishijima JNM 2013), PSI-2(Wirtz JNM 2016), Pilot/MAGNUM-PSI(De Temmerman JVST 2012, Kajita JNM 2021, Gasparyan NF 2016, El-Atwani NF 2014), UoL-Mag(Petty NF 2015), MORI-200(Fiflis NF 2015), LP-MIES(Ni PPCF 2020, Liu JNM 2016)を利用。)

(2) APSEDAS における NTB_s 試料の生成

高密度 He プラズマ生成試験のとき、照射初日の初回の照射条件において fuzz の黒色化が妨げられる現象が発生した。光学顕微鏡や電子顕微鏡観測により、表面には fuzz の成長が抑制され、NTB_s 初期の突起状構造が形成されていることを確認した。図 4 は試料表面上で発見された NTB_s の例を示す。図 4 上図は長い繊維が足を延ばす初期構造を示しており、報告者の先行研究である直流放電プラズマ照射時の一部の NTB_s と類似している。このような構造には周りからのスパッタリングされた W 粒子が堆積されやすいことと推測される(D. Hwangbo et al., Nucl. Mater. Energy, 2019)。図 4 下図は典型的な NTB_s の例を示す。試料全体には薄い fuzz 構造が成長しており、NTB_s は一定距離を置いて分布した。

NTB_s の生成は実験の初日、初期のみであった。APSEDAS のプラズマ動作ガス圧力は数十 Pa

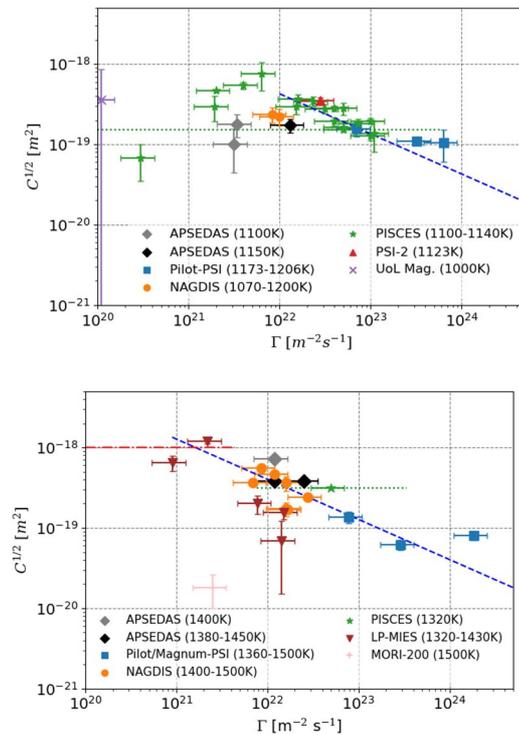


図 3 試料温度~1100 K (上)及び~1400 K (下)の時の fuzz 成長係数 C の平方根のフラックス依存性

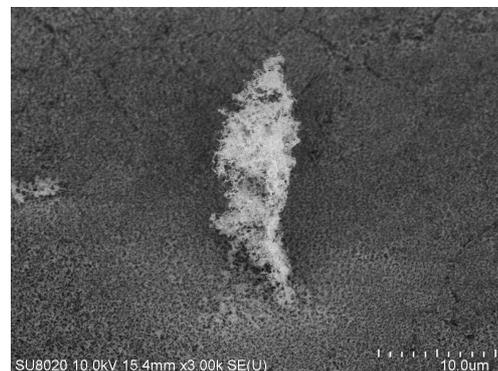
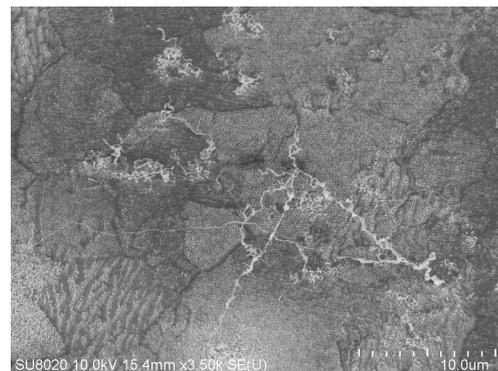


図 4 APSEDAS の He プラズマ照射により生成された NTB_s 構造。(上)初期段階の長く伸びるナノ構造繊維、(下)集合した NTB_s 単体。

であり、容器内に残留する不純物ガスの影響があると推測されるが、まだ具体的な実証には至っていない。今後、分光測定や積極的なガス分圧制御により、APSEDAS における NTB_s の生成条件の明確化を行う。APSEDAS での NTB_s の生成はプラズマ装置で3番目の発見となり、NTB_s が一部の装置のみに依存せず汎用的に生成可能であることを示唆する重要な発見であると思われる。

(3) He 照射による表面構造変化に伴う重水素吸蔵量の変化と照射量依存性

He バブルや fuzz の形成により水素同位体の W 内吸蔵が大幅に減少するという報告は多数存在するが、代表的に He バブルによる拡散障壁効果と表面再放出の増加によるものとされている(O.V.Ogorodnikova et al., J. Nucl. Mater., 2022)。一方、同プラズマ照射量において、fuzz の厚さが一定値を超えると未照射 W よりも吸蔵量が増加する結果も報告され、fuzz 層内の繰り返し反射により層内の滞留する水素同位体イオンが増加した見解が出されている(L. Liu et al., J. Nucl. Mater., 2020)。これらの実験的矛盾の検証のため、fuzz 生成試料において重水素(D)プラズマ照射を施し、昇温脱離質量分析法(以下、TDS)を用いて D 吸蔵量の定量評価を行った。

試料温度 1400 K 程度、入射イオンエネルギー $10\sim 80$ eV、照射量 $4.3\sim 7.8 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ の He プラズマ照射により、He bubble および fuzz が形成された試料を準備した。次に、試料を水冷ステージに設置し条件 W カバーをして 8 mm の領域に D プラズマ照射を施した。D プラズマ照射時における試料温度は 650 K 程度であった。

まず、He 予照射時の入射イオンエネルギー、He 照射量などを制御し、一様の D プラズマを照射した際の W 内部の D 脱離スペクトルを図 5 に示す。(a)は D プラズマのみ照射した試料であり、400~1000 K に広い脱離が計測され、500 K と 800 K 辺りには大きな脱離ピークが存在した。一方で、He 予照射を経験した試料群(図 5 (b)-(d))はいずれも大きい脱離減少を示した。脱離は 700 K 前に終わっており、400 K 以下に急峻なピークが新たに出現した。全体脱離量は He バブル試料よりは fuzz 試料でより減少し、fuzz 厚さが ~ 2 から $\sim 2.7 \mu\text{m}$ に増加すると脱離量は少し増えた。

次に、一様な条件で He 予照射を施した試料群に対し、D プラズマの照射量を変化させた際の吸蔵量の変化を調べた。図 6 は D プラズマ照射量を変化させた際の、D 照射のみ、He 予照射後 D 照射を施した試料群の D 脱離量の推移を示す。両者とも D 照射量に伴い D 脱離量が増加傾向にあるが、He 予照射試料では大幅な D 脱離量の減少が確認された。また、減少率は $\sim 10^{24} \text{ m}^{-2}$ のときに最大(78%)であり、照射量が増えるにつれて徐々に下がり、 $\sim 10^{26} \text{ m}^{-2}$ では 40%となった。これらの結果は、既存の He 由来表面構造変化が水素同位体の拡散障壁として機能することを確認したとともに、長時間照射で拡散の低減効果は弱まることを示唆する。しかし、脱離量の相当部分が図 5 で見える低温

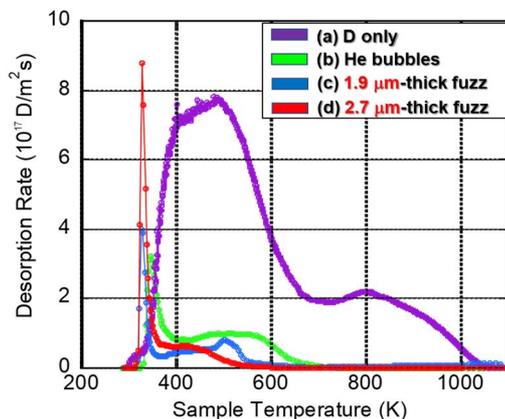


図 5 He 予照射による表面変化を施した際の D 脱離スペクトルの変化。

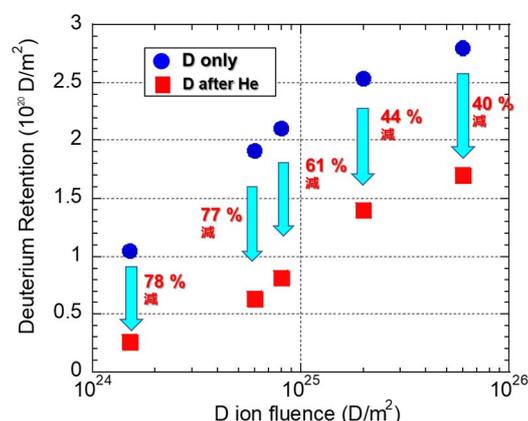


図 6 D 脱離スペクトルの D イオン照射量依存性。D プラズマ照射のみと He 予照射後 D 照射の比較である。

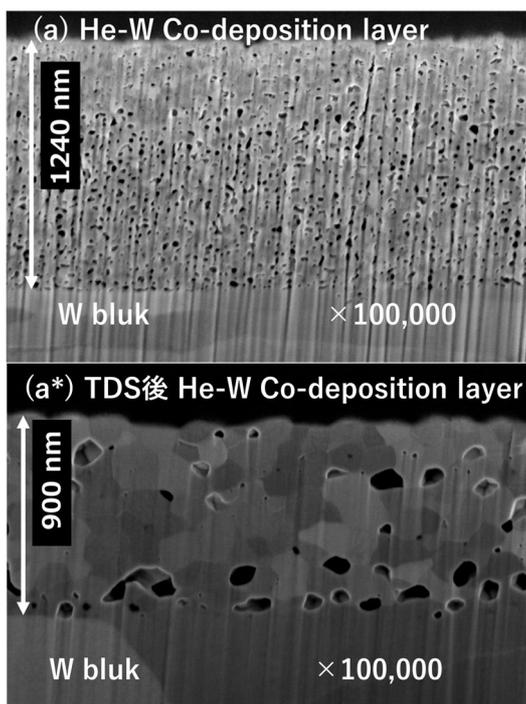


図 7 He-W 共堆積層の断面(上)、昇温脱離実験後の同一試料の断面(下)

領域(~350 K)に集中している。これらの脱離ピークは先行の多様な研究ではあまり見られないため、今後その吸蔵源の調査が必要である。さらに、NTBsのような巨大化した構造物が存在するときの重水素吸蔵特性について、今後様々の照射条件において調査する。

(4) He-W 共堆積層の形成及び重水素吸蔵特性への影響

He プラズマは W と相互作用し表面近傍に様々な欠陥を形成することが知られており、W 粒子と共堆積する環境における堆積層の模様や燃料水素吸蔵特性は未解明なところが多い。本研究では W ワイヤーをイオンスパッタリングさせ別途 W 試料表面に He プラズマ + W 粒子の共堆積実験を行った。図7は共堆積層の FIB-SEM 断面図であり、上図は $2 \times 10^{26} \text{ m}^{-2}$ の He イオン照射量とともに W ワイヤーに -300 V の負バイアスを印加し W をスパッタリングさせたときのものである。下は後述する昇温脱離分析のために試料を昇温加熱した後の断面である。画像下部の W バルク面と大別される、不規則な結晶面と多数の空洞が結合した堆積層が特徴づけられた。空洞は He イオンの注入と凝集により生成されたものである。図7下で示すように、空洞は試料の昇温加熱時において消滅、統合され、より大きい空洞として一部が残存した。また、W は再結晶により結晶粒が大きくなる傾向が見える。今後、水素ヘリウム混合プラズマ照射時における堆積層の模様と水素吸蔵量との関係を明らかにしていく。また、重水素プラズマの交互照射による内部水素同位体吸蔵特性を評価する。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9件/うち国際共著 5件/うちオープンアクセス 6件）

1. 著者名 Takahisa SAKAI, Dogyun HWANGBO, Naoki ORIKASA, Mikoto KUSUMOTO, Katsutomo TAKATSU, Haru YOSHIDA, Aoi FUJIMORI, Ryusei NITTA and Mizuki SAKAMOTO	4. 巻 17
2. 論文標題 Effect of Deuterium Fluence on Deuterium Retention in Tungsten with Fibrous Nanostructured Layer in a Compact Plasma Device APSEDAS	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Plasma and Fusion Research	6. 最初と最後の頁 2405062
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1585/pfr.17.2405062	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 ZHANG Rongshi, KAJITA Shin, HWANGBO Dogyun, TANAKA Hirohiko, OHNO Noriyasu	4. 巻 16
2. 論文標題 Enhancement of Arc Ignition on Tungsten in Helium Plasmas with Impurity Gases	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Plasma and Fusion Research	6. 最初と最後の頁 2405069 ~ 2405069
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1585/pfr.16.2405069	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 McCarthy Patrick, Hwangbo Dogyun, Kajita Shin, Bradley James W.	4. 巻 556
2. 論文標題 The effects of impurity gas seeding on the growth of fuzzy tungsten	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Materials	6. 最初と最後の頁 153125 ~ 153125
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jnucmat.2021.153125	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 Zhang Rongshi, Hwangbo Dogyun, Kajita Shin, Tanaka Hirohiko, Ohno Noriyasu	4. 巻 25
2. 論文標題 Size distribution of nano-tendrils bundles with various additional impurity gases	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nuclear Materials and Energy	6. 最初と最後の頁 100843 ~ 100843
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.nme.2020.100843	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

〔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
--	---------------------------	-----------------------	----

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			
英国	University of Liverpool			
米国	University of California San Diego			
ロシア連邦	Russian Academy of Sciences	MePHI		