

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 10 日現在

機関番号：15201

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2015

課題番号：25630420

研究課題名(和文) プラズマ対向材料のその場診断手法の開発と最適化

研究課題名(英文) Development and optimization of in-situ diagnostics methods for plasma facing materials

研究代表者

宮本 光貴 (Miyamoto, Mitsutaka)

島根大学・総合理工学研究科(研究院)・准教授

研究者番号：80379693

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、核融合炉におけるプラズマ対向材料の表面近傍の損傷程度と不純物堆積量を炉内でも簡便に評価するその場診断手法を開発し最適化することを目指した。実験室規模での基礎実験から、試料表面の光反射率変化を損傷の程度や不純物堆積層形成量と対応付けて整理した。また、大型のプラズマ閉じ込め装置内で適応性を検証するために、LHDにおいて光反射率スペクトルの実時間測定を行い、実機環境下においても光学測定が有効な診断手法となることを示した。さらに、透明導電膜を用いた光学・電気的特性変化の測定や、高周波電源を用いたインピーダンス測定を相補的に用いることで、より精度の高いその場診断手法になり得ることを示した。

研究成果の概要(英文)：The diagnostics of plasma facing materials (PFMs) is a primary issue for maintenance of the high performance plasma in fusion devices. In this study, optical reflectivity measurement is proposed as a convenient diagnostics method of surface modifications in PFMs and its applicability to a plasma confinement device is evaluated. The dependence of the reflectivity on the amount of the ion-induced damages and the depositions thickness on the near-surface region of the samples was examined from the laboratory experiments. Since the detectable change of the reflectivity was also observed for the samples exposed to the plasmas in LHD, the optical property measurement was considered to be a possible method for convenient in-situ diagnostics for PFMs. The use of the transparent conductive film and the impedance measurement in a high-frequency band were suggested as a more accurate diagnostics method.

研究分野：核融合炉材料学

キーワード：プラズマ・壁相互作用 表面分析 照射損傷 不純物堆積 透明導電膜 微細組織 LHD

1. 研究開始当初の背景

核融合炉研究において、プラズマとそれに向向する材料との相互作用(PSI)は、プラズマの閉じ込めおよび材料の損耗・劣化の両側面に係わる深刻な問題であり、炉の実現には、PSIの十分な理解が不可欠である。これまで、現象の解明のために、国内外の大型プラズマ閉じ込め装置を用いた材料照射実験や、個々の素過程を理解するための実験室実験が相補的に行われており、プラズマによる材料変質と、それがプラズマに与える影響に関して多くの成果があげられている。しかし、こうした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連したものが主である。さらに、現行のプラズマ閉じ込め装置による短パルス的な水素放電を対象とした研究が大半を占めている。一方、将来の核融合炉においては、燃焼プラズマを定常的に取扱い、壁材料は反応生成物の高エネルギーヘリウムや中性子を含む多様な粒子負荷および過酷な熱負荷に絶え間なく曝されることが予想される。そのため、燃焼プラズマを定常的に取り扱う核融合炉においては、時々刻々と変化していくプラズマ対向材料の表面特性を実時間で正確に把握しておくことが、プラズマ制御と炉の安全性維持に極めて重要である。

2. 研究の目的

本研究では、プラズマと対向材料の相互作用において鍵となる材料表面近傍の損傷程度と不純物堆積量を炉内でも簡便に評価するその場診断手法を開発し提案するとともに、大型のプラズマ閉じ込め装置において本手法の有効性を検証し最適化する事を目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、プラズマ対向材料の劣化程度の診断法として、炉内でも簡便に測定可能な光反射率および電気抵抗率の測定を用いた手法を提案し、その有効性を評価した。さらに、診断用材料の探索に取り組み、核融合炉に適応可能な対向材料の簡便な診断手法の最適化を目指した。具体的には以下の課題に取り組んだ。

(1) 実験室系での基礎データの収集

良く制御された2重イオンビーム照射下分析装置を用いて、ヘリウム・水素同位体それぞれの単独および同時照射下での光反射率と電気抵抗率の変化を測定し、変化量を照射温度と照射量の関数として整理した。さらに、イオン照射下その場観察可能な電子顕微鏡観察により、これらの特性と原子レベルでの微細組織変化との相関を評価した。

(2) LHDを用いた材料診断手法の検証

材料診断手法の実機プラズマ装置への適

用性を検証するために、大型プラズマ閉じ込め装置LHDの実機プラズマに曝したマテリアルプローブ試料の分析を行った。さらに、プラズマ曝露中の光反射率その場測定を行い、実時間計測の意義を評価した。

(3) 最適な診断用材料の探索

照射下での光学特性および電気伝導特性の評価に適した診断用材料の探索を行った。多様な光学特性と電気的特性を同時に評価する事が可能な透明導電膜や、インピーダンス測定時において表皮効果が顕著に表れるパーマロイに関して評価した。

4. 研究成果

(1) イオン照射下における光反射率変化

研究初年度に、島根大学既設の「2重イオンビーム同時照射システム」を改良し、ヘリウムおよび水素同位体同時照射下での、多波長光反射率や電気抵抗率のその場測定が可能な装置系を構築した。図1には、室温および673 Kにて3keV-D₂⁺, He⁺同時イオン照射(線束比2:1)したMoの光反射率の照射下その場測定の結果を示す。比較のため、室温で各イオン単独照射した際の結果もあわせて示している。いずれの場合においても反射率は10²³ ions/m²以上の高い照射量に至るまで単調に減少しており、ヘリウムイオン照射下での反射率減少は重水素照射時と比較して著しく大きく、同時照射では両者の中程度であった。これは、反射率劣化にはヘリウム照射が主要な役割を担うことを示している。TEM観察においては、ヘリウムイオン照射による微細な高密度バブルの形成が確認され、著しい損傷が反射率劣化の要因となっていると考えられた。また、673 K照射では、サイズの大きいバブル形成が観察され、反射率の劣化程度の相違に影響したものと考えられた。

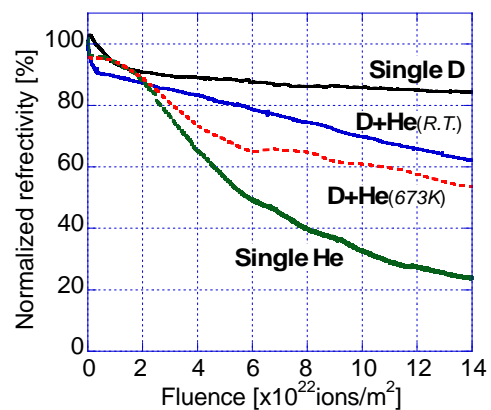


図1 3keV-D₂⁺, He⁺の単独/同時イオン照射下におけるMoの光反射率変化。

こうしたヘリウムによる損傷組織は、材料中での水素保持挙動にも大きく影響を与えた。図2は、室温で重水素照射(3keV-D₂⁺, ϕ~1×10²¹ m⁻²)したタングステンからの重水素放出に与えるヘリウム照射(3keV-He⁺, ϕ~1×10²¹ m⁻²)の影響を調べた結果を示して

いる．重水素単独照射では，潜在欠陥や転位ループなどの照射欠陥などに重水素は比較的弱く捕獲され，低温域で重水素は放出されることが知られている．これに対し，ヘリウムイオンを予め照射したタングステンにおいては，重水素の脱離ピーク温度が高温側にシフトし，脱離量も著しく増加する．ヘリウムイオン予照射による水素保持量の増加は他にも報告されており，試料内に新たに形成したヘリウムバブルが，水素同位体の強いトラッピングサイトとして機能していると理解される．一方，ヘリウムイオンを追照射した場合には，重水素脱離ピーク温度の高温側へのシフトは見られるものの，その脱離量は1/5程度まで減少した．ヘリウムイオン照射による局所的な擾乱により，試料内に弱く捕獲されていた重水素が脱離すると同時に，重水素の一部は，新たに形成したヘリウムバブルに強く再捕獲されたと考えられた．これらの結果は，複合照射環境においては従来の水素単独照射では見られない特異な水素保持・放出挙動が発生する事を表わしており，表面直下の組織構造を正確に把握しておくことの重要性を示している．

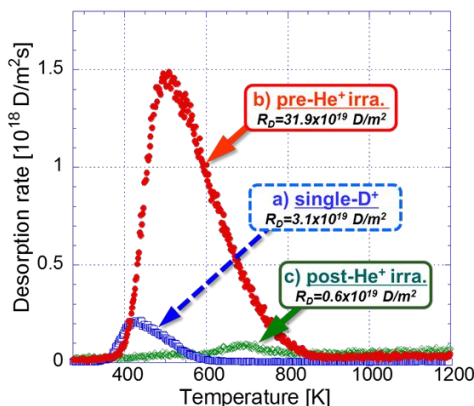


図2 3keV-D₂⁺, He⁺の単独/同時イオン照射下における Mo の光反射率変化．

(2) LHD プラズマ曝露による光反射率変化

本研究では，光反射率測定のためのプラズマ対向材料その場診断への適応を念頭に，まずは大型プラズマ閉じ込め装置 LHD の真空容器内に長期据置したプラズマ曝露後の試料分析を行った．プラズマ曝露後の試料は，目視においても，設置個所に依存した着色や金属光沢度の減少が確認され，試料の表面分析からは主に炭素で構成された堆積層の形成が確認された．図3には，これらの試料において分光エリプソメータ(λ: 240~820 nm)を用いて測定した反射率スペクトルを示している．図中には断面 TEM 組織観察から得られた堆積層膜厚を同時に示している．堆積層の増加に伴い，反射率は概ね減少し，光学干渉に起因すると思われる特徴的な波長依存性が表れているのが分かる．このような光学定数の波長スペクトルから堆積層膜厚の単層膜モデルを用いて見積った．堆積層は，炭素と SUS の構成元素からなる混合物として，炭素の含有

率 p ，堆積層膜厚 t nm をフィッティングパラメータとして光学定数の再現を試みた(図4)．図4(b)は，フィッティング結果の一例を示す．適切な p, t (この場合 $p \sim 78\%$, $t \sim 61$ nm) を選択する事により光学定数スペクトルが再現されている．図3には，このようにして見積もられた堆積層膜厚と，実際の試料の断面 TEM 観察像から計測された堆積層膜厚の関係を示した．光学測定結果から見積もられた堆積層膜厚が，実測値に比較的良い一致を示していることが分かる．また，一部の試料においては，両者に相違が見られるが，これは，欠陥を多量に含む特殊な組織の堆積層が形成している箇所や，光の侵入長を大幅に超える厚さの堆積層ができていないことに起因していた．

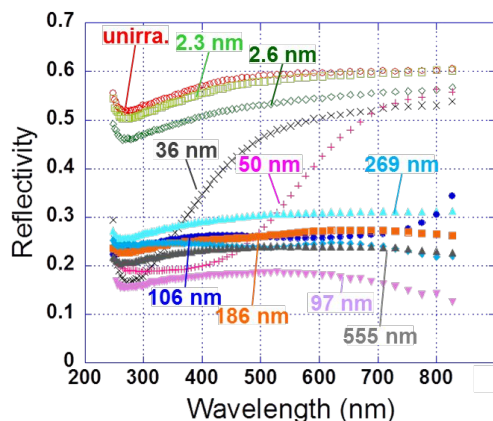


図3 LHD プラズマに長期曝した試料の光反射率スペクトル．

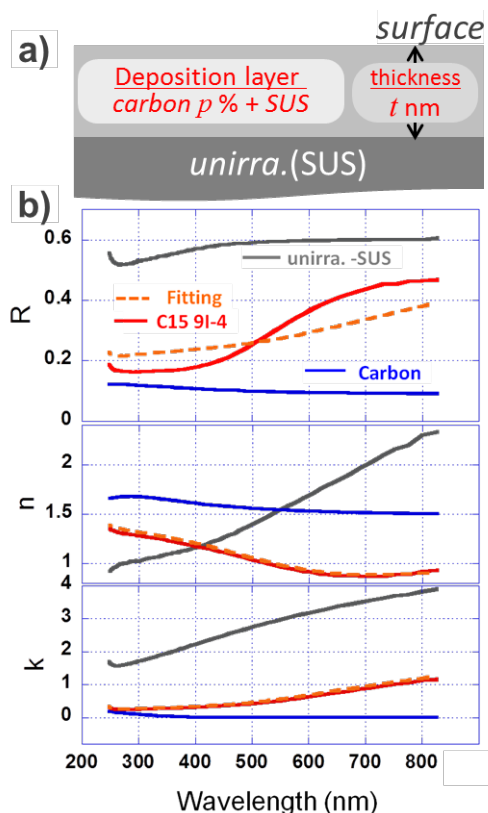


図4 光学定数のフィッティングの一例．

一方、堆積のほとんどない損耗優位な試料においては明瞭な波長依存性はなく、広波長域にわたる緩やかな反射率の減少が観察された。図5には、こうした損耗領域でプラズマに曝されたステンレス試料の光反射率スペクトルを示す。LHD装置内2か所に設置した試料の光反射率スペクトルは、それぞれ 10^{21} および 10^{22} He^+/m^2 の 3keV-He^+ を照射したステンレス試料と同様の傾向を示した。プローブ試料の損傷状態も各イオン照射した試料と同程度であると考えれば、これは光学測定を材料の劣化程度な診断に用いる本手法の有効性を示唆しているものと言える。

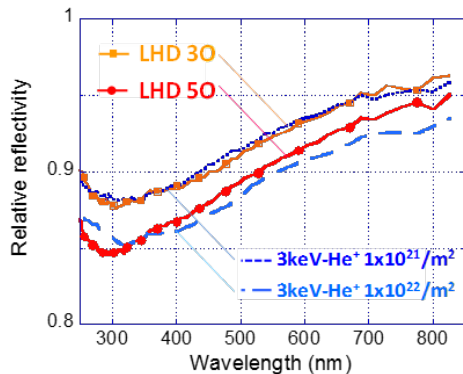


図5 損耗条件下でLHDプラズマに曝露した試料と3 keV-He⁺照射した試料の反射率スペクトルの比較。

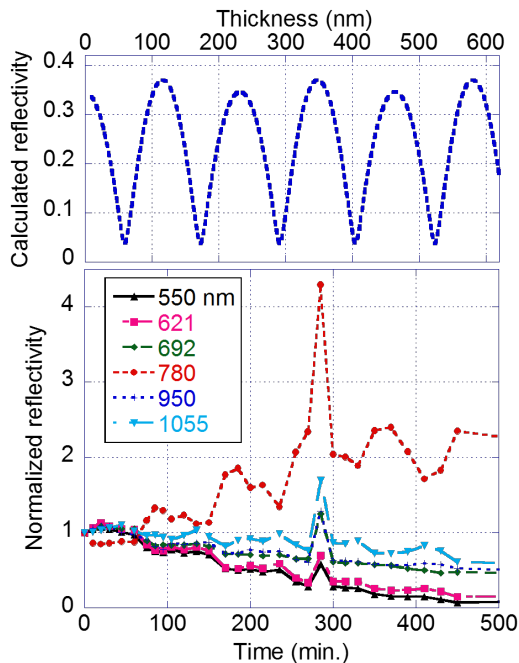


図6 グロー放電下で測定した反射率の照射時間依存性(下)、均一な堆積層を仮定して計算した反射率の膜厚依存性(上)。

本研究ではさらに、LHDにおける光反射率スペクトル計測を用いたプラズマ対向材料のその場診断手法の適応性を検証するために、炉内に設置されたコーナーキューブミラーによるその場反射率測定を実施した。図6(下)に、水素グロー放電下で測定した反射率の時間変化をいくつかの波長に対して示

した。縦軸は相対光反射率を示しており、測定開始時の光反射率で規格化した値となっている。光反射率が時間に対して振動する様子が確認できるが、これは堆積層の膜厚増加に伴う光学干渉に起因している。膜厚変化に伴う光反射率の振動は、実験室実験からも確認されており、このような振幅回数から膜厚の推定が可能となること考えられた。図6(上)には、均一な堆積層がコーナーキューブミラー上の一面にのみ形成したと仮定した際の光反射率($\lambda=780\text{ nm}$)の膜厚依存性を示した。なお、実時間測定で得られた光反射率変化に一致するように、振幅の周期を調整してプロットしている。両者の比較から、堆積層の膜厚を見積もることができる。ただし、本評価は光学定数が既知の堆積物を有したミラー材における理想的な反射を仮定しており、今後、実際のミラー材の分析等を行う事で精度の評価やモデルの改善が求められる。

(3) 診断用材料の探索

プラズマ対向材料の診断手法の簡素化、精度向上を目的としたGa添加酸化亜鉛(GZO)透明導電膜や、インピーダンス測定時において表皮効果が顕著に表れるパーマロイを新たな診断材料として提案した。

GZOは、透明かつ導電性の高い物質で、光学特性と電気特性を同時に計測する事が可能となり、診断精度の向上が見込まれる。照射量の異なるGZO薄膜において光透過率と電気抵抗率に検出可能な有意な変化が見られた(図7)。試料のホール測定から、薄膜内のキャリア移動度の減少が観察され、照射により導入された照射欠陥の寄与が考えられた。このキャリア移動度の減少は、透過率の変化や抵抗率の増加を伴うため、これらの物理量の測定から試料内部の損傷程度を評価する事が期待される。

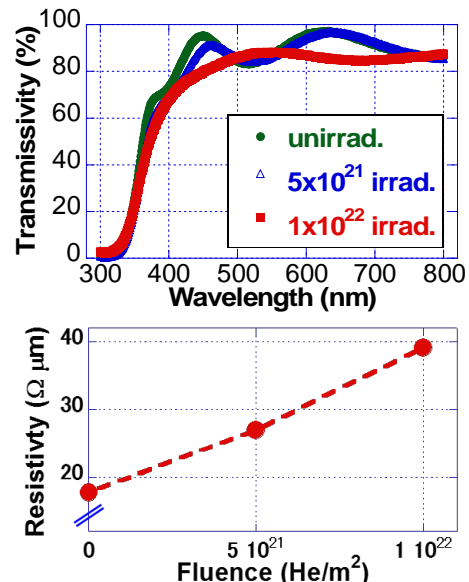


図7 3keV-He⁺照射したGZO薄膜の光透過率(上)と電気抵抗率(下)の変化。

また、高周波電流を用いたインピーダンス測定を行い、その周波数を変化させ表皮深さの依存性を調べる事により、損傷の深さ分布の高精度の評価を試みた。図8には、透磁率が高く表皮効果が顕著に表れるパーマロイ(Fe-Ni)に3keV-He⁺照射した際の高周波インピーダンス測定の結果を示した。図中には用いた周波数と、それに対応した表皮深さをあわせて示している。高周波域において、照射量の増加に伴うインピーダンスの有意な変化が検出されていることが分かる。これは、イオン照射により表面近傍に集中して形成する照射欠陥の深さ分布を反映したものと考えられる。

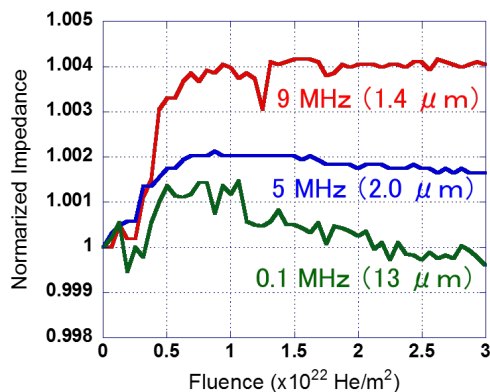


図8 3keV-He⁺照射下におけるパーマロイのインピーダンス変化のその場測定。

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7件)

- G. MOTOJIMA, N. YOSHIDA, T. MURASE, H. TANAKA, S. MASUZAKI, R. SAKAMOTO, M. TOKITANI, K. MATSUMOTO, M. MIYAMOTO, M. YAJIMA, M. SAKAMOTO, H. IYAMADA, T. MORISAKI and LHD Experiment Group, "Preliminary Examination of Reflection Coefficient Measurement of RGB Lights on the First Wall in LHD", Plasma and Fusion Research, 10 (2015) 1202074, 10.1585/pfr.10.1202074
- M. Miyamoto, S. Mikami, H. Nagashima, N. Iijima, D. Nishijima, R.P. Doerner, N. Yoshida, H. Watanabe, Y. Ueda, A. Sagara, "Systematic investigation of the formation behavior of helium bubbles in tungsten", Journal of Nuclear Materials, 463 (2015) 333-336, 10.1016/j.jnucmat.2014.10.098
- M. Miyamoto, T. Watanabe, H. Nagashima, D. Nishijima, R.P. Doerner, S.I. Krasheninnikov, A. Sagara and N. Yoshida, "In situ transmission electron microscope observation of the formation of fuzzy structures on tungsten", Physica Scripta, T159

(2014) 014028,
10.1088/0031-8949/2014/T159/014028
M. Miyamoto, H. Takaoka, K. Ono, S. Morito, N. Yoshida, H. Watanabe, A. Sagara, "Crystal orientation dependence of surface modification in molybdenum mirror irradiated with helium ions", Journal of Nuclear Materials, 452 (2014) 297-300, 10.1016/j.jnucmat.2014.06.030

〔学会発表〕(計15件)

M. Miyamoto, M. Yamamoto, T. Akiyama, N. Yoshida, M. Tokitani, A. Sagara, "Application of Optical Reflectivity Measurements to Diagnostics for Plasma Facing Materials", ICFRM-17, Aachen, Germany, 2015年10月12日

M. Miyamoto, M. Yamamoto, N. Yoshida, T. Akiyama, M. Tokitani, A. Sagara, "Diagnostics of surface modification in plasma facing materials using optical property measurements", PFMC-15, AixenProvence, France, 2015年5月21日

田中徳人, 山口貴教, 宮本光貴, 秋山毅, 相良明男, 「低エネルギーヘリウムイオン照射下における金属ミラー材の反射率スペクトルのその場測定」, プラズマ・核融合学会第31回年会, 朱鷺メッセ, 新潟, 2014年11月20日

M. Miyamoto, T. Watanabe, D. Nishijima, R.P. Doerner, S.I. Krasheninnikov, A. Sagara, N. Yoshida, "In-situ TEM observation of the formation of fuzzy structures on tungsten", PFMC-14, Julich, Germany, 2013年5月14日

M. Yamamoto, M. Miyamoto, N. Yoshida, M. Tokitani, A. Sagara, Y. Hatano, "Diagnostics of surface modification in plasma facing materials using optical property measurements", ICFRM-16, Beijing, China, 2013年10月21日

6. 研究組織

(1) 研究代表者

宮本 光貴 (MIYAMOTO, Mitsutaka)
島根大学・総合理工学研究科・准教授
研究者番号: 80379693

(2) 研究分担者

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

船木 修平 (FUNAKI, Shuhei)
島根大学・総合理工学研究科・助教
研究者番号: 00602880