

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 8 日現在

機関番号：15201

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2013～2016

課題番号：25709086

研究課題名(和文)ベリリウム共存下におけるプラズマ・壁相互作用

研究課題名(英文)Plasma Wall Interaction in the Presence of Beryllium

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) 19,800,000円

研究成果の概要(和文)：現在建設が進む国際熱核融合実験炉(ITER)では、プラズマ対向材料としてベリリウムの使用が予定されているが、ベリリウムに関するプラズマ-材料相互作用(PSI)については、その取り扱い上の問題から実験的研究が遅れている。本研究では、まずベリリウムを安全に取り扱うことができるシステムを構築し、ベリリウム共存下でのPSI研究に焦点を絞り、ベリリウムへのイオン照射やベリリウム混合高密度プラズマによる材料照射実験を行った。これまで指摘されてきたベリリウムに加え、プラズマ中へのベリリウムの混入が、プラズマ対向材料表面の水素リサイクリング挙動や損傷組織発達過程に支配的な影響を持つことが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：While beryllium will be used as armor materials for ITER plasma-facing components, available information about beryllium effects on surface properties is still limited due to the precautions concerning beryllium handling. In this study, safety operating system for handling the beryllium-containing samples were constructed at first. Then, the microstructure and the deuterium retention property in beryllium and its deposition layers were systematically investigated. As a consequence, it is considered that Be seeding to plasma has a more dominant influence on microstructures and D retention in plasma-exposed W than He seeding.

研究分野：核融合炉材料，プラズマ表面相互作用

キーワード：プラズマ表面相互作用 ベリリウム 微細組織 電子顕微鏡 水素保持特性 照射損傷

1. 研究開始当初の背景

核融合研究において、プラズマとそれに対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。現在建設が進む国際熱核融合実験炉(ITER)では、プラズマ対向材料としてタングステン、ベリリウム、炭素の使用が予定されており、各材料のプラズマによる損耗と、それがプラズマに与える影響、さらにこのような材料が損耗・再堆積の過程を通し混合した場合の影響について評価する必要がある。これまで核融合炉第一壁には低 Z(原子番号)材料が有望視されており、炭素材については、国内外のプラズマ閉じ込め装置における多くの適応例や、実験室規模の照射実験が十分にあり、多彩な成果があげられている。また、タングステンについては、近年、高融点で水素リテンションが小さい高 Z 材料として広く研究が進められてきており、炭素材と同時に使用された際の影響についても実験、シミュレーションの両面から活発に調べられている。しかしながらベリリウムに関しては、その取り扱い上の問題もあり、大型装置では唯一 EU の JET への適応例があるのみで、高密度プラズマを用いた実験も、カリフォルニア大学サンディエゴ校(UCSD)の PISCES 装置において実施されているのみである。また、個々の素過程を理解するための制御された系での実験室規模の実験も、その必要性は認識されながらも取り組みは遅れており、系統的な研究は立ち上がっていない。

2. 研究の目的

本研究では、必要性は認識されつつも実験的研究が遅れているベリリウム共存下での PSI 研究に焦点を絞り、制御された系における複合イオン照射実験を行う。特に ITER におけるベリリウムの影響を高精度に予測するために、ベリリウム混合高密度プラズマを用いた材料曝露実験を行い、そこでの水素リサイクリング挙動と原子レベルでの損傷組織形成過程の詳細に調べることを目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、ITER のプラズマ対向材料に使用が予定されているタングステンやベリリウム、およびそれらの堆積物を主要な研究対象とした。ただし、ベリリウムは、その粉塵やヒュームを吸入すると呼吸器の障害による人体への影響が生じることから、試料の加工や評価の際の取扱いには、十分な安全策を講じる必要がある。そのため本研究開始時には、(1)ベリリウム取り扱い設備の構築を行い、その後、(2)ベリリウム試料のイオン照射実験、および(3)ベリリウム混合高密度プラズマ曝露実験を行った。以下にその具体的内容を簡潔に述べる。

(1) 実験者と試料を完全に切り離した状態

で試料加工ができるように大型の真空グローブボックスを導入した。さらに既存の試料分析機器の真空排気系を集中配管し、複数のフィルタを通し屋外へ排気されるようにした。実際の取り扱いを通して安全上の問題が無いかを網羅的にチェックしたうえで、作業環境測定を合わせて行い、十分な安全が担保された上で実験を開始した。

(2) ベリリウム試料を用いて、重水素やヘリウム単独および複合イオン照射後の水素保持特性評価や、微細組織観察を行った。試料の前準備には(1)で述べた大型のグローブボックス内で行い、薄膜化加工には新たに導入したイオンスライサを用いた。

(3) UCSD の直線型高密度プラズマ発生装置 PISCES を用いて D-He-Be の混合プラズマに、タングステンおよびベリリウム試料を曝露した。各種条件下でプラズマ曝露した試料を、日本に持ち帰り、材料表面特性を評価した。

4. 研究成果

(1) 本研究開始時には、ベリリウム含有試料と実験者を完全に切り離した状態で試料加工作業を可能にするために、特注の大型グローブボックスを導入し、試料薄膜化加工をグローブボックス内で取り扱える環境を整備した。図 1(a)には導入した大型グローブボックスと作業時の様子を示す。さらに、各種分析機器の排気系はすべて集中配管として、装置とダクトの接続間にはプレフィルタを配置し、最終的には HEPA フィルタを通し屋外へ排気した。ベリリウム取扱い中の環境濃度測定を(財)島根県環境保健公社により年 2 回実施しており、何れの作業中もベリリウムは検出限界以下であることを確認している。

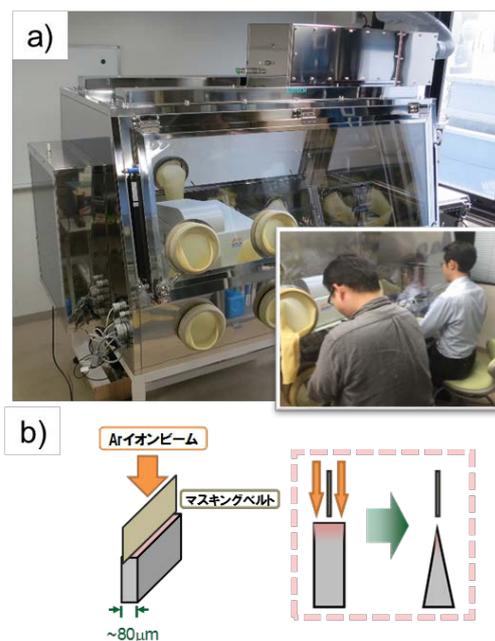


図 1 導入した大型グローブボックスと作業時の様子(a)、およびイオンスライサによる試料薄膜化工程の模式図(b)。

グローブボックス内には、イオンライサを導入し、ベリリウムを含有したバルク試料の薄膜化加工を行った。図 1(b)に示すように、短冊状の小片に切り出した試料を、本装置によりイオン研磨処理を行い、透過型電子顕微鏡により断面観察可能な薄膜を作成した。また、本研究では、より高精度な薄膜化に、原子力研究開発機構六ヶ所サイト(現、量子科学技術研究開発機構)に設置された集束イオンビーム(FIB)加工装置を用いた。

(2) 上述のように整備した各種装置を用いて、ベリリウム中の重水素やヘリウム保持特性評価や、微細組織観察を行った。図 2(a), (b)は、それぞれ 3 keV-D₂⁺, および 3 keV-He⁺を室温で照射したベリリウム試料を真空中で 1 K/s の昇温速度で加熱した際のガス放出スペクトルを示す。

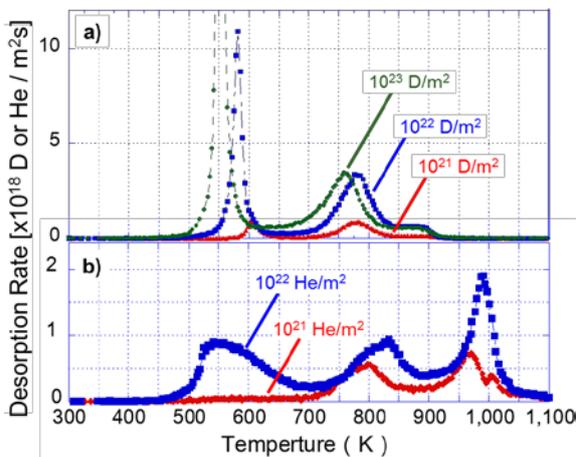


図 2 重水素およびヘリウムをそれぞれ室温で照射したベリリウム試料における(a)重水素, および(b)ヘリウムの昇温脱離スペクトル。

重水素やヘリウムのどちらの場合も、照射量が小さいうちは、ほとんどのガス原子が高温側(>700 K)の放出に対応した強い捕捉サイトに優先的に捕捉されている。さらに照射量の増加に伴い低温側(500 ~ 650 K)の放出に対応する捕捉力の弱いサイトに多くのガス原子が捕捉されていることがわかる。本研究の範囲では低温側の放出がどのような機構に起因しているのかを明確にすることはできなかったが、照射により導入された各種格子欠陥に起因した歪場による捕捉が考えられる。一方、700 K を超える高温側の放出に関しては、透過型電子顕微鏡を用いた照射後試料の昇温下でのその場観察から、重水素、ヘリウムいずれの場合も試料中の空洞にガス原子が蓄積したバブルに起因するものであることが示された。さらにバブル内に捕捉された重水素とヘリウムは、昇温下での挙動に明確な違いがあることが明らかになった。図 3 には、重水素、およびヘリウムをそれぞれ照射したベリリウム試料中の(a)重水素バブル, および(b)ヘリウムバブルの昇温下での動

的挙動の観察結果を示す。

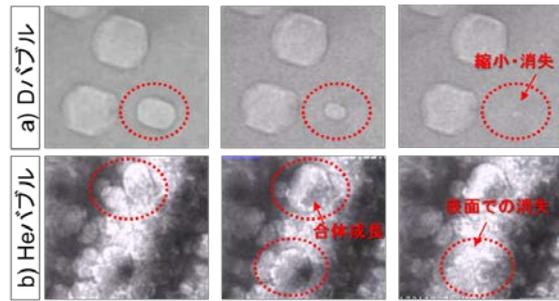


図 3 透過型電子顕微鏡によりその場観察した(a)重水素バブル, および, (b)ヘリウムバブルの昇温下での消失過程。

重水素バブルは昇温に伴い、バブル内から重水素が乖離し、バブルが縮小し消滅していくのに対し、ヘリウムバブルは、縮小することなく移動を伴う合体成長を続け、試料表面に到達することで消失している。この結果は、バブル内のヘリウムが重水素と比較して強く捕捉されている事を示すものであり、重水素とヘリウムバブルとの相違を直接的な手法で明確にした点で極めて有意義である。

ベリリウム中のガス保持特性については、重水素保持に与えるヘリウムの照射効果などの評価も行っており、平成 29 年度からの科学研究費助成事業(基盤研究(B))として継続的な取り組みが行われている。

(3) 本研究では、上述の制御された系におけるイオン照射に加え、ITER のダイバータ領域におけるタングステン材へのベリリウム混合プラズマ曝露の影響を高精度に予測するために、様々な条件下で高密度プラズマを用いた材料照射実験を UCSD の直線型高密度プラズマ発生装置 PISCES により行った。図 4 に各種高密度プラズマにタングステン試料を曝した際の水素吸蔵量(a), および、重水素保持機構を表すモデル(b)を示す。

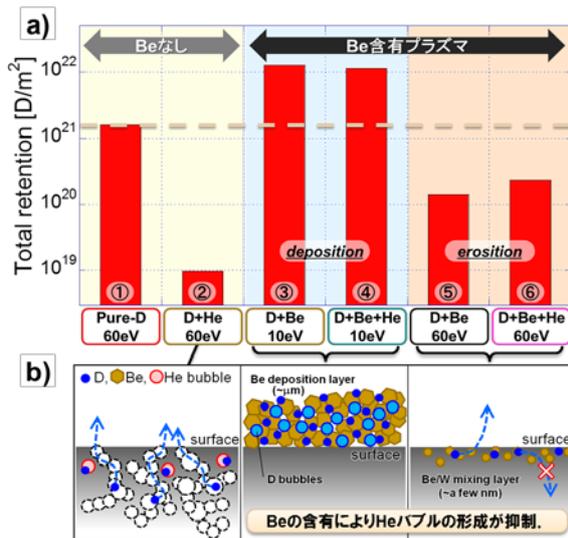


図 4 (a)各種高密度プラズマにタングステン試料を曝した際のの水素吸蔵量, および(b)水素保持機構を示すモデル。

ベリリウムを含まない重水素・ヘリウム混合プラズマ照射においては、僅かなヘリウムにより重水素保持量が著しく減少しており(図の棒グラフ②), 断面微細組織の詳細な観察の結果, ヘリウム含有プラズマにおいては, ヘリウムバブル(空隙を伴う欠陥)が無限度のクラスターを形成し, 水素の脱離経路として機能する事が示された. 一方, ベリリウム混合プラズマ照射では, ベリリウム堆積層が形成する条件下では水素保持量が大幅に増加し(③と④), 損耗条件では逆に減少する(⑤と⑥)ことが示された. さらにベリリウム混合プラズマにおいては上述のヘリウムの影響が消失する事が明らかになった. これらの結果は, 材料の水素保持特性や表面組織がベリリウムの有無に支配されることを示している. 特に, ベリリウム堆積層の影響は大きいので, 堆積層形成時の条件がその微細組織や水素保持特性に与える影響を系統的に調べた.

図5に, それぞれの試料温度でD+He, およびD+He+Be混合プラズマに曝露したタングステン試料の断面微細組織, およびベリリウム堆積層から得られた電子線回折図形を示した. 下部の黒いコントラストは基板のタングステン試料であり, 試料表面にベリリウムの堆積層が形成している. 各条件によって膜厚が大きく異なっているが, 明確な傾向は見られず, その要因は明らかになっていない. プラズマ曝露中の僅かなプラズマパラメータの変化により, ベリリウムの損耗と堆積の兼ね合いが一定していなかったと考えられる. 一方, 堆積層の微細構造には温度やプラズマ種によって明確な傾向が観察された.

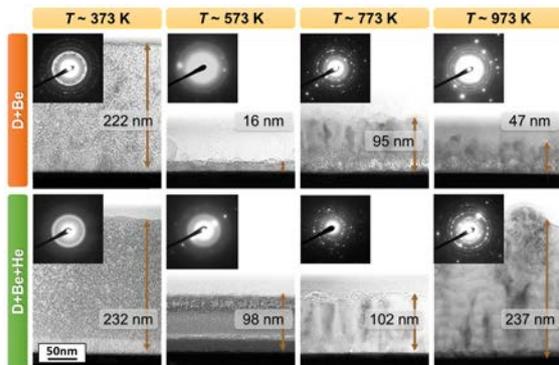


図5 タングステン試料表面上に形成したベリリウム堆積層の断面微細組織と堆積層から得られた電子線回折図形.

373KにてD+Be混合プラズマ曝露した試料の回折図形から, ベリリウム堆積層は, 本来六方最密充填構造を主に有し, 一部に酸化物の形成が確認された. さらに電子線回折図形にみられるリングの一部より結像した暗視野像から, 堆積層が10~20 nm程度の微細粒で構成されていることが分かった(図6). 一方, D+He+Be混合プラズマにおいては, 明瞭なデバイリングが見られず, 堆積層がアモルファス化することが明らかになった. さらに773 K以上の高温で形成した堆積層におい

ては, ヘリウムの有無にかかわらず柱状の結晶粒で構成された蛍石構造 Be_2C からなる堆積層の形成が確認された.

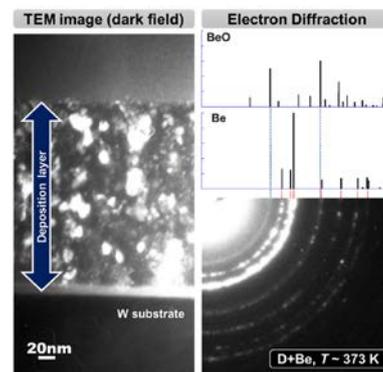


図6 373KでD+Be混合プラズマ曝露した試料表面上に形成したベリリウム堆積層の微細組織と電子線回折図形.

これらの堆積層の形成により, 基板のタングステンとは大きく異なる水素保持挙動が見られた. 図7には, 各試料からの重水素の昇温脱離スペクトルを示す. 同図には, 比較のために室温で 3keV-D_2^+ を $1 \times 10^{22} \text{ (D/m}^2\text{)}$ 照射した Be バルク試料の昇温脱離スペクトルもあわせて示している. 373Kでプラズマ曝露した試料では, 650-750K程度の温度域に, Be バルクと同様に鋭い放出ピークが見られており, DがBe堆積層内から放出されていると考えられる. 試料温度の増加に伴い, 脱離ピークは減少していくものの, 重水素捕獲は維持され, 973Kの高温プラズマ曝露した試料においても有意な重水素捕獲が観察されている. こうしたBe堆積による強い重水素捕獲はHeの有無に依らず観察され, Be堆積環境下での重水素保持は, 広範な温度範囲においてHeよりもBeの影響が大きい事が示された.

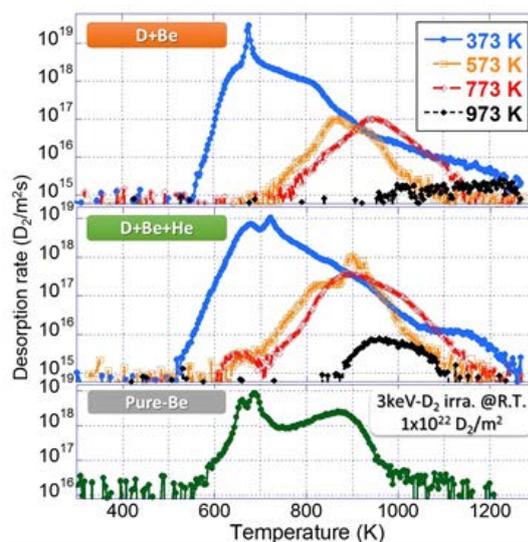


図6 プラズマ曝露後の各試料, および重水素照射した Be バルクにおける昇温脱離スペクトル.

図 7 には、重水素が堆積層内に均一に分布しているとして仮定した場合の重水素濃度をこれまでの報告されている値(J. Roth 等)と比較して示した。本研究でも非常に高い値のベリリウム中の重水素濃度(373K において D/Be ~0.05) が得られており、報告値とほぼ同様の傾向が示された。プラズマ対向材料と水素同位体との共堆積は、炉内の水素リサイクルを支配すると考えられるため、広い温度範囲での重水素濃度のデータは、核融合炉における材料の使用条件の検討において有用な情報になるものと考えられる。

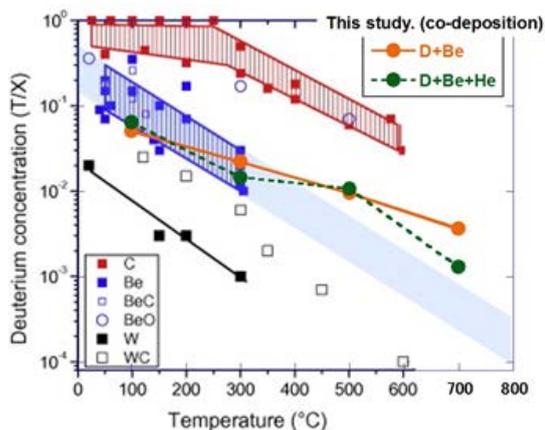


図 7 水素と各種プラズマ対向材料における共堆積層内の水素濃度。J. Roth 等による報告値と本研究結果を比較して示している。

安定した高性能プラズマの定常維持を目指す ITER においては、プラズマ対向面の大部分を占めるベリリウム第一壁が炉内の主要な PSI 現象を担うと考えられることから、今後は、これまでのタングステンに加え、ベリリウムそのものを対象としたプラズマ壁相互作用研究が不可欠である。核融合プラズマ対向材料としてのベリリウムの特性評価については、平成 29 年度からの科学研究費助成事業(基盤研究(B))として取り組みが開始されている。

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 7 件)

- ① M. Miyamoto, D. Nishijima, M. J. Baldwin, R. P. Doerner, A. Sagara, "Microstructure and deuterium retention of beryllium co-deposition layer formed under high density plasma exposure", Nuclear Materials and Energy, 査読有, 2017, 印刷中
- ② Y. Fujii, M. Miyamoto, Jae-Hwan Kim, M. Nakamichi, N. Murayoshi, H. Iwakiri, "Hydrogen retention behavior of beryllides as advanced neutron multipliers", Nuclear Materials and Energy, 査読有, 9 (2016) 233-236
- ③ N. Iijima, M. Miyamoto, D. Nishijima, M. J. Baldwin, R. P. Doerner, Y. Ueda, A. Sagara, T. Höschene, "Effect of temperature on microstructures and retention properties in tungsten exposed to D + He + Be mixture plasmas in PISCES", Journal of Nuclear Materials, 査読有, 463 (2015) 979-982
- ④ 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, 査読有, 463 (2015) 333-336
- ⑤ 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, 査読有, 452 (2014) 297-300
- ⑥ 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, 査読有, T 159 (2014) 014028
- ⑦ 宮本光貴, 西島大輔, M. J. Baldwin, R. P. Doerner, 上田良夫, 栗下裕明, 吉田直亮, 相良明男, 「(レビュー論文) D-He-Be 混合プラズマ環境下でのタングステンの微細組織と重水素保持特性」, プラズマ・核融合学会誌, 査読有, 89 (2013) 335-340

[学会発表] (計 8 件)

- ① 宮本光貴, 西島大輔, M. J. Baldwin, R. P. Doerner, 増崎 貴, 「高密度プラズマ照射によるベリリウムの表面特性変化」, プラズマ核融合学会第 33 回年会, 2016 年 12

- 月 2 日, 東北大学青葉山キャンパス(仙台)
- ② M. Miyamoto, D. Nishijima, M. J. Baldwin, R. P. Doerner, A. Sagara, “Microstructure and deuterium retention of beryllium co-deposition layer formed under high density plasma exposure”, 2016 年 6 月 1 日, 22nd International Conference on Plasma Surface Interactions, ローマ, イタリア
 - ③ 宮本光貴, 三上 聡, 西島大輔, M. J. Baldwin, R. P. Doerner, 上田良夫, 相良明男, 「高密度プラズマ照射下で形成した Be 堆積層の微細組織と その水素保持特性への影響」 プラズマ核融合学会第 32 回年会, 2015 年 11 月 27 日, 名古屋大学東山キャンパス(名古屋)
 - ④ Y. Fujii, M. Miyamoto, Jae-Hwan Kim, M. Nakamichi, N. Murayoshi, H. Iwakiri, “Hydrogen retention behavior of beryllides as advanced neutron multipliers”, 17th International Conference on Fusion Reactor Materials, 2015 年 10 月 14 日, アーヘン, ドイツ
 - ⑤ M. Miyamoto, “In-situ TEM observation of the microstructural damage in tungsten under He ion irradiation”, 2014 年 9 月 17 日, 12th Japan-China Symposium on Materials for Advanced Energy Systems and Fission & Fusion Engineering, 静岡県あざれあ(静岡)
 - ⑥ 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”, 2014 年 5 月 26 日, 21st International Conference on Plasma Surface Interactions, 石川県立音楽堂(金沢)
 - ⑦ M. Miyamoto, T. Watanabe, H. Nagashima, D. Nishijima, R. P. Doerner, S. I. Krasheninnikov, A. Sagara and N. Yoshida, “In situ TEM observation of the formation of fuzzy structures on tungsten”, 14th International Conference on Plasma-Facing Materials and Components for Fusion Applications, 2013 年 5 月 14 日, ユーリッヒ, ドイツ
 - ⑧ 宮本 光貴, 「タングステンナノ構造形成過程の電子顕微鏡その場観察」, 日本物理学会 第 69 回年次大会, 2014 年 3 月 27 日, 東海大学湘南キャンパス(神奈川)

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