科学研究費助成事業

研究成果報告書



研究成果の概要(和文): 材料照射実験とその後の先進的ナノ加工技術による微細構造解析,吸蔵ガス原子の 定量評価法を併用し,大型ヘリカル装置(LHD)のプラズマ対向材料の表面変質が定常長時間放電に及ぼす影響の 解明を行った。

解明を行った. 結果より,「1.ヘリウム照射による損傷形成」と「2.Mixed-material堆積層の形成」が「(1)壁排気の動的変 化による密度制御の不安定化」および「(2) 突発的な不純物混入によるプラズマ放電の停止」を招き,長時間放 電を妨げていることが示された.対向材料に2種類以上の材料を使用しないこと.また,スパッタリング損耗を 受け難い材料を使用することが,(1)と(2)双方の課題への解決手段と考えられる.

研究成果の概要(英文): Effects of the surface morphologies on the plasma facing materials during the long pulse discharge in the large helical devices (LHD) were studied by means of material exposure experiments with a nano-fabrication technique and a quantitative analysis of the retained plasma particles on the plasma facing materials.

plasma particles on the plasma facing materials. It was clarified that two major issues of the "dynamic change of the wall pumping rate" and the " termination of the discharge with the exfoliation of the mixed-material deposition layer" interrupt the steady-state plasma operation. Two physical processes of the "helium radiation effects" and the "formation of the mixed-material deposition layer" can change and control two major issues. If we wish to suppress two major issues, the plasma facing materials should be composed by single element, and low sputtering yield materials are possibly advantageous for reducing the thickness of the mixed-material deposition layer.

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 プラズマ核融合 電子顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

将来の核融合炉では、「高温プラズマ」を 「定常長時間」維持しなければ、発電炉とし て成立しない. 核融合科学研究所の大型ヘリ カル装置(LHD)は、ヘリカル型のプラズマ閉 じ込め装置であるが故に、トカマク型の装置 と比較すると定常長時間の高温プラズマの 維持に有利な装置である.図1に,LHDで定 常長時間放電を実現するためのプラズマ壁 相互作用(PWI)の観点からの課題とそれらを 支配する物理素過程の全体像を、一本の木に 例えた概念図で示す.「定常長時間放電」と いう木の頂点を安定して維持するには、それ を支える4つの枝葉(課題)をうまく調整し なければならない. その枝葉とは, 図中に示 すように「①燃料粒子バランスの制御」,「② 対向材料の損耗・劣化」、「③対向材料への |熱負荷の制御|, 「④不純物(ダスト)生成| である.



図 1. 定常長時間放電実現のための PWI の観点 からの課題(①~④)とそれらを支配す る物理素過程(1,2)の概念図

これら4つの枝葉が,LHD の定常長時間放 電に具体的にどのように影響を及ぼしてい るのかについて説明する.まず,図1の枝葉 の①では、例えば、ある一日の LHD 実験で供 給された燃料粒子とポンプで排気された燃 料粒子の積算を求めた場合,何らかの PWI が 要因で供給した粒子の半分以上が、ポンプで 排気されずにプラズマ真空容器の中に滞留, つまり, 壁に吸蔵(壁排気)されたまま残って いることがわかっている. このような粒子の 多くはそのままの状態で滞留され続けるわ けではなく, 定常長時間放電においては, 局 所的な壁材料の温度上昇が起因となり予期 せず放出され、 プラズマ密度のコントロール が失われる恐れがある.次に、図1の枝葉の ②,③,④に関しては、LHDの長時間放電プ ラズマを観測している限り必ず目の当たり にする現象である「突発的な不純物混入によ るプラズマ放電の停止」と深く関連している. LHD のプラズマ対向壁は第一壁がステンレス 鋼(SUS316L),ダイバータが炭素材でできて いるため、何らかの PWI が要因で壁材料表面 にスパークが起こり.対向材料元素がプラズ マ中に混入することがある. このような現象 が頻発すると,安定した長時間放電を持続さ せることは困難となる.

研究の目的

さて,ここで疑問となるのが,①~④の枝 葉(課題)の引き金となっている何らかの PWI とは何か?である.それが,図1の木の根っ この部分に示した<u>1.ヘリウム照射による損</u> <u>傷形成</u>,<u>2. Mixed-material 堆積層の形成</u>で あり,実はこの2つの物理過程が,4つの枝 葉を支配していると言っても過言ではない. この説を裏付ける手掛かりが,平成20-22年 度若手研究(B)「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」,および平成23-25年度(B)「先進的ナノ 加工技術を用いた Mixed-material 堆積層の 構造特性評価」(共に申請者が研究代表者)で 実施された研究課題で掴めている.

図 2 にそのデータの一つを示す.本図は, LHD 壁表面に形成された Mixed-material 堆積 層の透過型電子顕微鏡(TEM)による微細構造 解析像である.この堆積層は、暗いコントラ ストを有する鉄(Fe)堆積層と明るいコント ラストを有する炭素(C)堆積層が、放電の歴 史と共に入り組んで堆積しており、まさに Mixed-material 堆積層となっている. それだ けでなく, 拡大図(a)では, He バブルも同時 に含まれており, He 照射損傷組織を含む極め て複雑な堆積層であることがわかる.本堆積 層の結晶構造はアモルファス状であり、プラ ズマ粒子をよく吸蔵し,機械的に脆くはがれ やすい構造であることが突き止められた.こ のような表面変質層の形成が、スポンジのよ うに粒子を吸蔵しやすく、かさぶたのように 剥がれ易い壁表面を作り,「突発的な不純物 混入によるプラズマ放電の停止」をもたらし ていると考えられる.このような表面変質が, Heを用いて行っているLHDの定常長時間放電 にどのような影響を与えるのかを、定量的に 示す研究はこれまでに行われていなかった.





図 2.LHD 壁表面に形成された Mixed-material 堆積層の断面 TEM 像[Tokitani et al.]

本研究では、可動式試料駆動装置による材料照射と、その後の先進的ナノ加工技術 (FIB)による微細構造解析、ガス原子の吸蔵 量の定量評価(加速器&TDS)を併用し、LHDの プラズマ対向材料の表面変質、具体的には、 1. ヘリウム照射による損傷形成、2. Mixed-material 堆積層の形成が、定常長時間 放電に及ぼす影響を解明することを目的と した. さらに、安定した定常長時間放電のた めには壁材料選定にどのような注意が必要 とされるのか、その方策の提案も目指した.

3.研究の方法

平成26年度からの3年間の研究計画を図3 に示す.当初からの変更点を含めてこの図を 基に以下に具体的内容を説明する.

【平成26年度】

LHD 既設の可動式試料駆動装置を用いて, LHD 定常長時間放電(He 放電)に試料(SUS316L, Si)を複数回曝露させた.加熱入力は主にイ オンサイクロトロン共鳴加熱(ICRF),電子サ イクロトロン共鳴加熱(ECH)によって行われ, 最も加熱入力ジュール数が高い放電では,加 熱入力パワー $P_{ICH+ECH}$ ~1.2 MW で, n_e ~1.2×10¹⁹ m⁻³, $T_{i,e}$ ~2 keV, のプラズマを 48 分間にわた って維持した.

図3中の試料表面でのプラズマ壁相互作用 (PWI)の模式図で示すように、プラズマ対向 材料表面は、定常放電プラズマからHe 粒子 負荷と熱負荷を常に受け続ける.それにより、 材料表面には点欠陥と呼ばれるA.Heバブル と転位ループが形成されるのと同時に、B. 材料表面の損耗・再堆積が発生する.それら の影響で、C.点欠陥へのHe 捕捉,D. Mixed-material 堆積層へのHe 捕捉などが起 こり、表面近傍のミクロ構造の変化と同時に 粒子捕捉特性も刻一刻と変化を遂げる.平成 26年度は試料の準備と材料照射、定常放電加 熱入力と粒子供給の最適化、粒子バランスデ ータの解析に主眼を置いた.

【平成27年度】

平成 23-25 年度若手研究(B)で実施した, 「先進的ナノ加工技術を用いた Mixed-material 堆積層の構造特性評価」の分 析技術により,定常長時間放電曝露後の試料 において,ナノ微細構造解析を実施した.具 体的には,FIBにより,図3中に示したよう なイオンビームナノ加工を実施し,試料表面 に形成された表面変質層からTEMで観察でき る微細構造解析用のナノ断片薄膜を切り出 し,TEM 観察を実施した.これにより,対向 材料表面(特に第一壁材料:SUS316L)が,どの ような照射損傷を受け,あるいはどのような Mixed-material 堆積層に覆われているのか についての知見を得た.

【平成 28 年度】

定常長時間放電曝露後の試料表面に捕捉 されたHe粒子を,昇温脱離ガス分析法(TDS) を用いて定量化した.また,加速器を用いた イオンビーム分析により,Mixed-material堆 積層の組成について高精度定量評価を実施 した.以上の分析実験の結果を基に,単位面 積当たりのHe 捕捉量からLHD 壁全体の捕捉 量を導出し,平成26年度に見積もったグロ



ーバル粒子バランスデータと比較を行った. 結果より、どのような壁面状態が、定常長時間放電の粒子バランス制御に影響を及ぼしているのかを考察した.また、追加実験として、LHD 長時間放電曝露後の試料において、実験室で水素同位体を追照射し、定常長時間放電で変質を受けた壁面が、通常の壁面と比較してどの程度水素同位体を捕捉しやすくなっているのかを調べる予定であったが、これについては時間の関係で見送られた.

以上の実験結果を基に,

- LHD のプラズマ対向材料の表面変質,具体的には、1. ヘリウム照射による損傷形成, 2. Mixed-material 堆積層の形成が,定常長時間放電に及ぼす影響を解明した.つまり、1.と2.が、「①燃料粒子バランス」、「②対向材料の損耗・劣化」、「③対向材料の耐熱負荷特性」、「④不純物(ダスト)生成」にどのように影響しているのかについて定量的な評価を実施した.(図1参照)
- 2. 安定した定常長時間放電のために, 壁材 料選定にどのような注意が必要とされる のか, その方策を検討した.

4. 研究成果

(1) 壁排気率の動的変化による密度制御の 不安定化

ICRF および ECH 加熱による He 長時間放電 において、グローバル粒子バランス解析によ って導出された最も長い 48 分間の放電時の 壁排気率(Γ_{wal1})の変化を表 1 に示す. 壁排気 率(Γ_{wall})は大きく分けて 3 つの phase(1~3) に分類することができる. Phase 1 では,約 300 秒にわたって Γ_{wall} ~1.0×10²⁰ He/s の高い 壁排気率で,ほぼ 100%の He が壁に排気され ていることがわかる.ところが 400 秒以降の Phase 2 では,それが一転してマイナスの壁 排気率 Γ_{wall} ~3.5×10¹⁸He/s となり,壁に捕捉 された He が放出されている.マイナスの壁 排気は 1500 秒程度まで継続する.一般的に 考えて,壁が粒子放出に転じた場合,壁飽和 現象が予想され,同じプラズマ密度・温度が 継続される以上,壁排気が復活することは無 いと考えていた.ところが,Phase 3 では, Γ_{wall} ~1.4×10¹⁹He/s で壁排気が再びプラス側 に転じる現象が見られた.

この興味深い壁排気機構を担っている要 因を突き止めるために,可動式試料駆動装置

	Phase 1	Phase 2	Phase 3
	(0-300 s)	(400-1500 s)	(1900-2800 s)
$\frac{\Gamma_{\text{wall}}}{[\text{He/s}]}$	~1.0 × 10 ²⁰	~-3.5 × 10 ¹⁸	~1.4 × 10 ¹⁹

表 1. LHD 長時間放電における動的な壁排気率 (Γ_{wall})の変化

を用いて、試料(SUS316L, Si)を計 1000 秒、 3389秒, 9980秒He長時間放電に曝露させた. 図 4 は, それぞれの曝露時間後の SUS316L 試 料表面を TEM によって断面観察した結果であ る. SUS316L 試料表面直下には He バブルによ る損傷組織が形成されるだけでなく、表面上 には 5nm, 15nm, 40nm の厚さを有する堆積層 が形成されていることがわかる. 堆積層の電 子線回折図形から、その結晶構造はアモルフ ァスに近いことを確認した.また、加速器を 用いたラザフォード後方散乱法(RBS)による 分析から、堆積層の組成は 1~2%程度の鉄元 素を含む炭素で構成される Mixed-material であることがわかった. ダイバータタイル表 面がスパッタリング損耗を受け、輸送された 炭素元素が第一壁に堆積していると考えら れる. 放電時間が経過するにつれてその堆積 量は増え続けている. Mixed-material 堆積層 のみに捕捉された He 粒子の量を TDS 実験と その後のスペクトル解析により求めた結果, 1000 秒, 3389 秒, 9980 秒曝露させた試料に おいて、それぞれ 1.1 × 10²⁰ He/m², 1.7 × 10²⁰ He/m^2 , 5.2 ×10²⁰ He/m² であった. 図 5 に, Mixed-material 堆積層の厚さとそこに捕捉 された He 粒子の放電時間依存性を示す. 放 電時間が増加するにつれて Mixed-material 堆積層の厚さが線形的に増加し、そこに捕捉



図 4. He 長時間放電に 1000 秒, 3389 秒, 9980 秒曝露した SUS316L 試料の断面 TEM 像. 各 試料の電子線回折図形を左上方に示した.



図 5. Mixed-material 堆積層の厚さとそこに捕 捉された He 粒子の放電時間依存性.

される He 粒子量は堆積層厚さに比例して増 加していることがわかる.この関係から求め られる壁排気率は, Mixed-material 堆積層の 形成面積が LHD プラズマ対向壁のおおよそ 3/4 と仮定した場合, 8.8× 10¹⁸ He/m²s とな る. この値が表1で示した Phase 3の壁排気 率に近いことから,LHD 長時間放電時の He 壁 排気の担い手は, 放電に伴って対向壁面に形 成される炭素が主の Mixed-material 堆積層 であると結論付けられる. Phase 1, 2, 3 の ように,壁排気が動的に変化する理由は, Mixed-material 堆積層がプラズマからの輻 射熱により温度上昇を受け, 捕捉された He 粒子の脱離と捕捉が競合するためではない かと考えられる.動的な変化はプラズマ密度 制御の不安定化を招き, 定常状態から逸脱す るきっかけと成り得る.このような動的変化 の要因は主に Mixed-material 堆積層の形成 によってもたらされるため、その形成を抑制 する何らかの手段を検討する必要がある.こ れには、プラズマ対向材料に2種類以上の材 料を使用しないことが好ましいと考えられ、 スパッタリング損耗を受け難い材料の選択 が適切であると考えられる.もしくは, Mixed-material 堆積層が形成されたとして も、表面での燃料粒子リサイクリング率が1, もしくは一定の割合で継続するように表面 状態を操作し,壁排気を能動的に制御する方 策が必要となる.

(2) 突発的な不純物混入によるプラズマ放 電の停止

「1.研究開始当初の背景」でも述べたよ うに,「突発的な不純物混入によるプラズマ 放電の停止」は、放電中に対向材料のある場 所から局所的なスパークが発生し、 プラズマ 中で主に鉄と炭素の発光が顕著になり, 放射 崩壊に至る現象である. これは, LHD 長時間 放電が停止する主な要因の一つである. 局所 的なスパークの原因を突き止めるために、ス パークが発生した場所付近を目視で調べた 結果,図6に示すダイバータタイル表面に行 き着いた.図6(a)では、かさぶたのような状 態の堆積層が剥離しかけているところが目 視で確認できる. このような剥離途中の堆積 層が何らかのメカニズムで完全剥離の後、プ ラズマ中に大量に混入し、局所的なスパーク をもたらしていると考えられる. 堆積層剥離 の特徴を調べるために,採取したかさぶた状



図 6. ダイバータタイル表面に形成された

 (a) Mixed-material 堆積層の写真と,(b)
 その断面 TEM 像および TEM 像に対応する炭素(C) と鉄(Fe)の元素マッピング像

の堆積層を FIB でナノ加工し, TEM によって 断面微細構造解析を行った. その結果を図 6(b)に示す. 3つの像はそれぞれ TEM 像およ び TEM 像に対応する炭素(C)と鉄(Fe)の元素 マッピング像を示している. 解析の結果, 堆 積層はアモルファスに近いナノレベルで緻 密な層状構造を有し、炭素が主で鉄を僅かに 含む Mixed-material 堆積層であることがわ かった.また、鉄の堆積層は全体の中でも深 さ方向で底部に位置することが特徴であっ た.後に述べるが,鉄堆積層の深さ方向の場 所が堆積層剥離に重要な意味を持っている. Mixed-material 堆積層がどのような機構で 剥離に至るのかを調べるために、第一壁に堆 積基盤として設置した Si 試料上に堆積した Mixed-material 堆積層の分析, ダイバータタ イル上に堆積した Mixed-material 堆積層の 分析など、複数件の Mixed-material 堆積層 の断面微細構造解析を実施した. 代表的な解 析結果を図7 に示した. 複数件の Mixed-material 堆積層の解析により、堆積層 の剥離機構は大きく分けて Type 1, 2の2種 類に分類できることが確認された.図7は, Type 1, 2 それぞれの剥離機構を説明するた めの断面 TEM 像とそこから予想される剥離機 構を示している. TEM 像中で暗く見える箇所 は鉄を主とする場所,明るく見える箇所は炭 素を主とする場所である. Type 1 では、堆積 層形成の初期過程に鉄を主とする堆積層が 厚さ100-200nmで形成され,その後から500nm を超す厚さの炭素を主とする堆積層が形成 されている.この堆積層の考えられる剥離機 構としては, 堆積層表面に何らかの熱負荷が 入力され、炭素が主の堆積層と鉄が主の堆積 層の熱膨張係数の違いにより発生した内部 熱応力が鉄堆積層に集中し、その応力が破断 応力を超えたというものである.一方, Type 2は、鉄が主の堆積層と炭素が主の堆積層が 数百 nm のレベルで互いに入り組む中で、鉄 が主の堆積層に集中して数百 nm のオーダー のブリスタリングが発生し、上方の層全体を





持ち上げている状態である. このブリスタリ ングの層が剥離の基点となっていることが はっきりとわかる. ブリスタリングを発生し ている層構造の中には He 照射による影響と 考えられる微細なバブル構造も含まれてい る. このように, Type 1, 2 の剥離機構は剥 離の機構そのものは異なるが,いずれも Mixed-material 堆積層形成の初期段階に形 成された鉄の堆積層が基点となってミリメ ートルあるいはセンチメートルスケールの 大規模な剥離をもたらしていることが明ら かである.おそらく、純粋な炭素堆積層ある いは純粋な鉄堆積層であればこのような剥 離には至らないと考えられる. 将来の核融合 炉においてこのような剥離を抑制するには, やはり、「(1) 壁排気率の動的変化による密 度制御の不安定化」の節で述べた結論と共通 であるが、プラズマ対向材料に2種類以上の 材料を使用しないことが望まれる.2 種類以 上の材料を使用する場合でも性質の極端に 異なるものの組み合わせは避けるべきであ る. また, 極力スパッタリング損耗を受け難 い材料であることが好ましい. ITER の場合, 高Z材料であるタングステンと低Z材料であ るベリリウムが組み合わされた対向材料の 使用が予定されており、どちらかと言えば性 質の異なるもの同士の組み合わせとなる.し たがって, ITER の場合にも LHD で観測された ような堆積層の剥離が発生する可能性が考 えられる.

図1の木の絵で示した<u>1. ヘリウム照射に よる損傷形成</u>,2. Mixed-material 堆積層の <u>形成</u>は,LHD 長時間放電において,まず,「(1) 壁排気の動的変化による密度制御の不安定 化」を招くことに繋がり,特に, Mixed-material 堆積層の形成を抑制あるい は制御する方策が必要であることが示され た.次に,1.と2.は,「(2) 突発的な不純物 混入によるプラズマ放電の停止」にも繋がり, 同様にHe 損傷組織を含む Mixed-material 堆 積層の形成を抑制あるいは制御する必要が あることが示された.(1)と(2)双方の課題に 共通して言える解決方法は、プラズマ対向材 料に2種類以上の材料を使用しないこと.2 種類以上の材料を使用する場合でも性質の 極端に異なるものの組み合わせは避ける.ま た、極力スパッタリング損耗を受け難い材料 を使用すること、であると考えられる.

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下線) 〔雑誌論文〕(計4件)

- M. Tokitani, S. Masuzaki, <u>H. Kasahara,</u> <u>Y. Yoshimura</u>,以下省略 6 名, Initial growth phase of W-fuzz formation in ultra-long pulse helium discharge in LHD, Nuclear Materials and Energy (2017), 査読有, http://doi.org/10. 1016/j.nme.2016.11.023, 印刷中
- ② <u>M. Miyamoto</u>, M. Yamamoto, T. Akiyama, N. Yoshida, <u>M. Tokitani</u>, A. Sagara, Application of optical reflectivity measurements to diagnostics for plasma facing materials, Nuclear Materials and Energy 9 (2016) 132-136, 査読有, http://dx. doi.org/10.1016/j. nme. 2016. 08. 012
- ③ Y. Yoshimura, H. Kasahara, M. Tokitani, 以下省略 29 名, Progress of long pulse discharges by ECH in LHD, Nuclear Fusion 56 (2016) 046005, 査読有, doi:10.1088/0029-5515/56/4/046005
- M. Tokitani, H. Kasahara, S. Masuzaki, G. Motojima, M. Shoji, Y. Ueda, N. Yoshida, Y. Yoshimura, 以下省略6名, Plasma wall interaction in long-pulse helium discharge in LHD - Microscopic modification of the wall surface and its impact on particle balance and impurity generation, Journal of Nuclear Materials 463 (2015) 91-98, 查読有, http://dx.doi.org/10.1016/ j. jnucmat. 2014. 12.062

〔学会発表〕(計6件)

- ① <u>Y. Yoshimura, H. Kasahara</u>, S. Kamio, <u>M. Tokitani</u>, 以下省略 26 名, Progress of Steady State Operation Using RF Heating in the LHD, 26th IAEA FEC, Kyoto, Japan 17-22 October 2016
- (2)M. Tokitani, S. Masuzaki, H. Kasahara, <u>Y. Yoshimura</u>,以下省略6名, Tungsten fiberform nanostructure (W-fuzz) formation in ultra-long pulse helium discharge in LHD, 22nd International on Plasma Surface Conference Interactions, Rome, May Italy, 30-June 3, 2016

- ③ 時谷政行, 笠原寛史, 吉村泰夫, 以下省略 10 名, LHD ヘリウム長時間放電におけるプラズマ壁相互作用, プラズマ・核融合学会第 32 回年会 2015 年 11/24-27名古屋大学
- ④ <u>M. Tokitani, H. Kasahara, Y. Yoshimura,</u> 以下省略 10 名, Microscopic modification of wall surface by helium bombardment and mixed-material deposition layer during a long pulse discharge in LHD ~its impact on steady state plasma operation, 8th IAEA Technical Meeting on Steady State Operation of Magnetic Fusion Devices, Nara, Japan 26-29 May 2015
- ⑤ <u>M. Tokitani, H. Kasahara</u>, S. Masuzaki, G. Motojima, M. Shoji, Y. Ueda, N. Yoshida, <u>Y. Yoshimura</u>, 以下省略6名, Microscopic modification of wall surface by helium bombardment and mixed-material deposition during long pulse discharges in LHD and its impact on the long pulse plasma operation 12th Japan-China Symposium, Shizuoka, Japan 17-20 September 2014
- ⑥ <u>M. Tokitani, H. Kasahara</u>, S. Masuzaki, G. Motojima, M. Shoji, Y. Ueda, N. Yoshida, <u>Y. Yoshimura</u>, 以下省略6名, Plasma wall interaction in long-pulse helium discharge in LHD ~Microscopic modification of the wall surface and its impact on particle balance and impurity generation~, 21st International Conference on Plasma Surface Interactions, Kanazawa, Japan 26-30 May 2014 【招待講演】

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
- (2)研究分担者

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

笠原 寛史(KASAHARA Hiroshi)
 核融合科学研究所・ヘリカル研究部・准教授
 研究者番号:50435517

吉村 泰夫 (YOSHIMURA Yasuo)
 核融合科学研究所・ヘリカル研究部・准教授
 研究者番号:90300730