

プラズマ対向壁における複合イオン照射下トリチウムリサイクリング定量評価と能動制御

著者	大矢 恭久
発行年	2013-06-05
出版者	静岡大学
URL	http://hdl.handle.net/10297/7523

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年6月5日現在

機関番号：13801

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2010～2012

課題番号：22360389

研究課題名(和文) プラズマ対向壁における複合イオン照射下トリチウムリサイクリング定量評価と能動制御

研究課題名(英文) Quantitative evaluation and active control of tritium recycling in the plasma facing materials during mixed ion implantations

研究代表者

大矢 恭久 (OYA YASUHISA)

静岡大学・理学部・准教授

研究者番号：80334291

研究成果の概要(和文)：

本研究は、核融合炉プラズマ対向材料表面での複合イオン照射下におけるトリチウムリサイクリングを定量的に評価することを目的とした。また、トリチウムリサイクリングと材料照射損傷との関連を明らかにすることで材料の影響を加えたリサイクリングモデルを提案しようとするものである。そこで、重水素照射したタングステン(W)からの重水素滞留挙動を明らかにするとともに、炭素イオン照射した W への水素イオン照射下における放出ガス種測定を行い、高配向性グラファイト(HOPG)および炭化タングステン(WC)からの放出ガス種との比較から、スパッタリングによる放出ガス種の炭素化学状態依存性を明らかにした。また、エバポレータ法を用いて W 表面の改質を行い、トリチウムリサイクリングの能動制御法について検討した。

研究成果の概要(英文)：

In this study, the quantitative evaluation of tritium recycling on the surface of plasma facing materials under the mixed ion implantations was performed. To propose tritium recycling model including the effect of materials, correlation between tritium recycling and irradiation damage of materials was elucidated. Deuterium retention behaviors in the tungsten(W) and sputtering behaviors for the carbon implanted W, HOPG and WC during hydrogen ion implantation were evaluated.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	5,900,000	1,770,000	7,670,000
2011年度	5,300,000	1,590,000	6,890,000
2012年度	2,500,000	750,000	3,250,000
年度			
年度			
総計	13,700,000	4,110,000	17,810,000

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：トリチウム、プラズマ壁相互作用、複合イオン照射、照射損傷、リサイクリング、ヘリウム、タングステン、炭素

1. 背景

D-T 核融合炉のプラズマ対向機器である第一壁およびダイバータには高融点、低スパッタリング率等の特徴を持つタングステン(W)の使用が考えられている。炉運転時には W に燃料である水素同位体や不純物炭素等のイ

オンが照射されることが考えられており、トリチウムインベントリの観点から、W 中での水素同位体滞留挙動について評価する必要がある。また、イオン照射下においては W 表面で水素同位体が炭化水素系としてスパッタリングされる。W 表面でのスパッタリング

放出挙動について理解することは水素リサイクリングを定量的に評価し、能動的に制御する上で重要である。

2. 研究目的

核融合炉内プラズマ制御のためには、プラズマ対向候補材であるタングステン(W)における水素リサイクリングに関しての各素過程に関するデータベースを集積し、それに基づく放電中の水素リサイクリング定量評価を行うことが重要である。また、炉運転時には不純物として炭素がプラズマ中に混入しプラズマの温度低下および燃料希釈を起こすとともに、プラズマ対向材料に照射されることが予想される。本研究においては、核融合炉内において無視することのできない炭素と水素同位体の相互作用に関する知見を深めるために、炭素・水素同位体の同時照射下における水素リサイクリングの各素過程を定量的に理解することを目的とし研究を行った。

また、プラズマ対向壁表面の化学状態は、水素同位体滞留・放出挙動に大きく影響することが考えられる。そこで、本研究ではエバポレータ装置を用いて W 表面に金属を蒸着し、水素同位体滞留・放出の能動的な制御を試みた。

3. 研究方法

試料としてアライドマテリアル社製多結晶 W ($10\text{ mm}^{\circ} \times 0.5\text{ mm}^{\circ}$) を用いた。不純物の除去のため加熱処理を高真空下にて 1173 K で 30 分間行った後に室温にて、イオンエネルギー 3.0 keV D_2^+ 、フラックス $1.0 \times 10^{18}\text{ D}^+\text{ m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ 、フルエンス $(0.10\text{--}1.0) \times 10^{23}\text{ D}^+\text{ m}^{-2}$ の領域で変化させて D_2^+ 照射を行った。また、イオンエネルギー 10.0 keV C^+ 、フラックス $1.0 \times 10^{17}\text{ C}^+\text{ m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ 、フルエンス $1.0 \times 10^{21}\text{ C}^+\text{ m}^{-2}$ とし、室温および 673 K にて C^+ 照射を行った後、イオンエネルギー 3.0 keV D_2^+ 、フラックス $1.0 \times 10^{18}\text{ D}^+\text{ m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ 、フルエンス $1.0 \times 10^{22}\text{ D}^+\text{ m}^{-2}$ の条件で室温にて D_2^+ 照射を行った。これらの試料に対し昇温領域を室温から 1173 K 、昇温速度を 0.5 K s^{-1} とし昇温脱離(TDS)法を用いて試料の重水素滞留挙動を明らかにした。さらに、九州大学にて、透過型電子顕微鏡(TEM)を用いて試料表面状態を観察した。富山大学において D_2^+ 単独照射した試料および $\text{C}^+\text{-D}_2^+$ 照射した試料に対してのグロー放電発光分光分析(GD-OES)測定を行い、重水素の深さ分布を測定した。また炭素照射後の試料に対して XPS 測定と Ar スパッタを交互に繰り返し行い、試料の深さ方向における化学状態を測定した。また、W 試料に室温でイオンエネルギー 3.0 keV D_2^+ 、フラックス $1.0 \times 10^{18}\text{ D}^+\text{ m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ 、フルエンス $1.0 \times 10^{22}\text{ D}^+\text{ m}^{-2}$ まで D_2^+ 照射を行った後、表面改質エバポレータを用い Pd

を蒸着した。その後、TDS 法を用いて試料の重水素滞留挙動を明らかにし、能動的な滞留量制御についての検討を行った。さらに、水素照射下でのスパッタリング放出挙動を評価するため、スパッタ測定を行った。試料として、室温でエネルギー 10 keV C^+ 、フラックス $1.0 \times 10^{17}\text{ C}^+\text{ m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ 、フルエンス $1.0 \times 10^{21}\text{ C}^+\text{ m}^{-2}$ まで炭素照射を行った多結晶 W、および加熱処理を行ったタングステンカーバイド(WC)、Pechiney 社製高配向性グラファイト(HOPG)を用いた。各試料に対し、水素を 473 K でエネルギー 3 keV H_2^+ 、フラックス $1.0 \times 10^{18}\text{ H}^+\text{ m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ にて、スパッタリング放出化学種の放出速度が平衡状態になるまで照射を行った。照射中のスパッタリング放出化学種は照射装置に設置した四重極型質量分析計(QMS)を用いて測定を行った。

4. 研究成果

図 1 に重水素単独照射試料の D_2 TDS スペクトルを示す。図 1 から、重水素放出スペクトルは 4 つの脱離ピークからなり、過去の研究より 400 K 付近を表面吸着および転位ループ(Peak 1)、 500 K 付近を原子空孔(Peak 2)による重水素滞留であると帰属した。Peak 1 およ

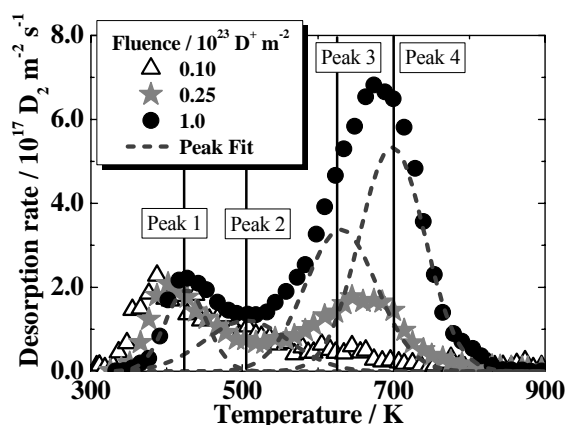


図1 各フルエンスにて重水素照射した Wでの D_2 TDSスペクトル

び Peak 2 としての重水素放出量はフルエンスに対して飽和傾向にあったが、 600 K (Peak 3) および 700 K 付近(Peak 4)の重水素放出ピークにおける重水素放出量は重水素フルエンス増加に伴い増加した。図 2 に GD-OES 測定より得られた試料中に滞留した重水素の深さ分布を示す。重水素濃度はフルエンス増加に伴い、 D_2^+ の打ち込み深さ領域 40 nm およびバルク領域で増加しており、それぞれ照射損傷に起因する重水素捕捉の増加、およびバルク領域に拡散した重水素滞留の増加であると考えられた。酸素に捕捉された重水素の脱離は 700 K 以上であることから、Peak 4 は結晶粒界中酸素により捕捉された重水素の脱離と帰属した。また TEM 観察よりボイドの形成が確認できたため、Peak 3 はボイドに捕

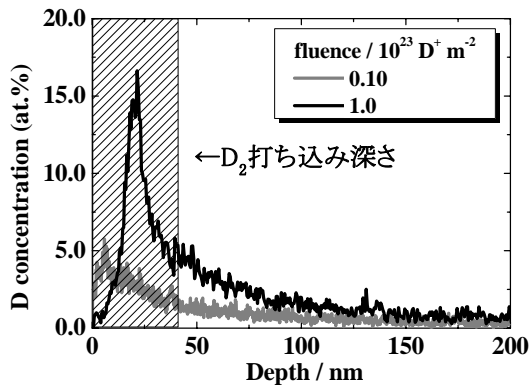


図2 各フルエンスにて重水素照射したW中の重水素深さ分布

捉された重水素の脱離と考えた。一方で、炭素前照射を行った試料では、照射欠陥が重水素単独照射時よりも多く形成しているにもかかわらず、ポイドによる重水素捕捉量は少なく、結晶粒界中酸素による重水素の滞留もみられなかった。このことから、試料中に滞留した炭素はポイドにおける重水素の捕捉を抑制するとともに、混合堆積層が重水素の拡散障壁となることが示唆された。次に、炭素を室温および673 Kで前照射した後に重水素を照射した試料のD₂ TDS スペクトルを図3に示す。TDSの結果より、炭素を673 Kで

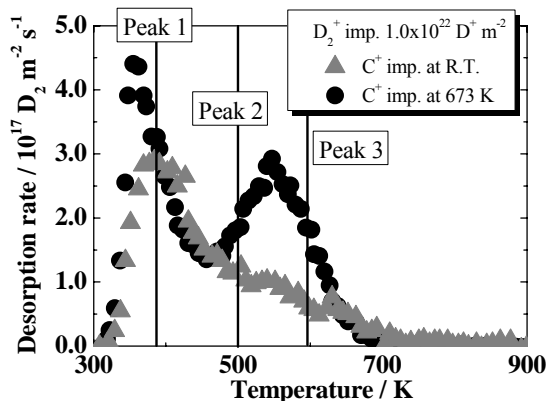


図3 各温度で炭素前照射したWにおけるD₂ TDSスペクトル

前照射した試料で Peak 1,2,3 としての重水素滞留量が増加していることが示された。また、図4にXPSによる試料中の炭素深さ方向分布の結果を示す。この結果より試料中にW-C混合層が形成していることが明らかとなった。673 Kで炭素照射した試料では室温照射試料と比較し炭素量が減少していた。これは照射温度上昇に伴いスパッタリングされる炭素が増加したためと考えられた。TEM観察の結果、炭素を673 Kで前照射した試料において転位ループの形成量増加が示された。焼鈍により室温および673 Kで炭素前照射した試料の双方でポイドの成長が確認できたが、ポイドの大きさは673 K照射では十数nm、室温照射では数nmほどであり、炭素がマイクロ

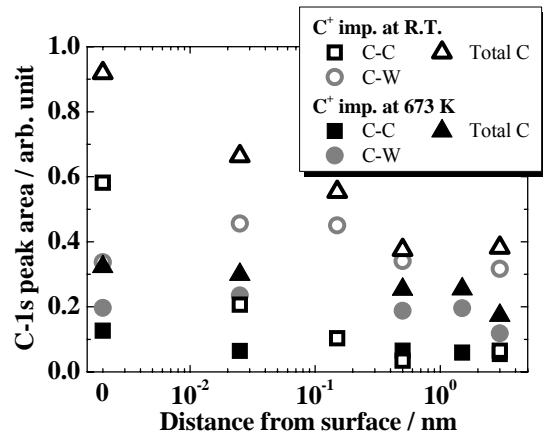


図4 各温度にて炭素照射したWの深さ方向における炭素の化学状態

ポイド中に滞留しポイドの成長を抑制していると考えた。これらの結果から、炭素照射温度の上昇に伴い照射欠陥形成量が増加するとともに、炭素のスパッタリング率が増加するため炭素量が減少し、重水素滞留量が増加することが明らかとなった。さらに、核融合炉内での水素リサイクリングを能動的に制御するうえで重要となる水素照射下におけるW表面の水素同位体スパッタリング挙動を理解するため、試料表面の炭素化学形が異なるHOPG、WCおよび炭素照射したWにおける重水素照射時の放出分子種を測定したものを図5に示す。HOPGやWCにおいて、照射した水素は主にCH₄として放出されるのに対し、炭素照射W試料からは主にCH₃およびCH₂が放出した。過去の研究より、HOPGやWCに重水素を照射すると照射により形成した炭素のダングリングボンドと重水素との非熱平衡過程を経た反応や、炭素に隣接した原子空孔中に滞留した重水素との熱平衡過程を経た反応により、C-D結合を形成することが明らかになっている。一方で、炭素照射Wへの重水素照射では、ほとんどC-D結合を形成しなかった。これはW中では炭素がダングリングボンドを形成しにくいとともにHOPGに比べ重水素イオンの反射率が高

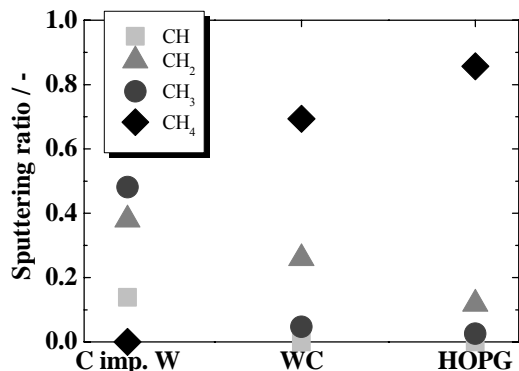


図5 各試料からスパッタリングにより放出した炭化水素の各化学形の放出割合

く、重水素の溶解度が低いためと考えられる。このため、水素照射下において HOPG や WC では炭素一個に対する水素の捕捉量が多く CH_4 として放出するのにに対し炭素照射タングステンにおいては CH_3 や CH_2 形で放出することが示された。また、能動的な滞留量制御のためエバポレータ装置を用いて重水素照射後に Pd 蒸着を行った試料の D_2 TDS スペクトルを図 6 に示す。TDS 結果より、Pd 蒸着した試料では低温側における表面からの脱離が減少し、高温側での新たな捕捉サイトからの脱離が増加したことが示された。これは表面に蒸着した Pd により、重水素が捕捉されたためと考えられた。以上の結果より、Pd を用いることで W 表面に水素同位体の捕捉サイトが生じ、水素同位体の透過を抑制することが示唆された。

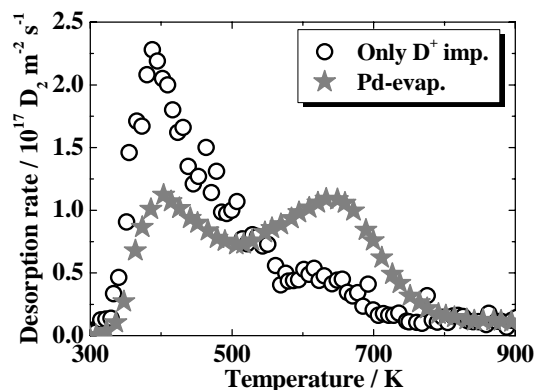


図 6 各試料における D_2 TDS スペクトル

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 18 件)

- (1) Makoto Kobayashi et al., “Deuterium trapping by irradiation damage in tungsten induced by different displacement processes”, Fusion Eng. Des. (2013) in press. 査読有
- (2) Ryo Miura et al., “Influence of tungsten-carbon mixed layer and irradiation defects on deuterium retention behavior in tungsten”, Fusion Eng. Des. (2013) in press. 査読有
- (3) Yasuhisa Oya et al., “Enhancement of Hydrogen Isotope Retention Capacity for the Impurity Deposited Tungsten by Long-term Plasma Exposure in LHD”, Fusion Eng. Des. (2013) in press. 査読有
- (4) Yasuhisa Oya et al., “Behavior of deuterium retention and surface morphology for VPS-W/F82H”, J. Nucl. Mater. (2013) in press. 査読有
- (5) Tomohisa Taguchi et al., “Dynamic deuterium recycling on tungsten under carbon-deuterium implantation circumstance”, J. Nucl. Mater. (2013) in press. 査読有
- (6) Yasuhisa Oya et al., “Enhancement of hydrogen isotope retention in tungsten exposed to LHD plasmas”, J. Nucl. Mater. (2013) in press. 査読有
- (7) Yuki Sakai et al., “Helium irradiation effects on deuterium retention in tungsten”, J. Nucl. Mater. (2013) in press. 査読有
- (8) Mitsutaka Miyamoto, “Influence of Be seeding on microstructures of tungsten exposed to D-He mixture plasmas in PISCES and its impacts on retention properties”, J. Nucl. Mater. (2013) in press. 査読有
- (9) Yasuhisa Oya et al., “Implantation Energy Dependence on Deuterium Retention Behaviors for the Carbon Implanted Tungsten”, J. Plasma Fusion Res., 10 (2013) 76-80. 査読有
- (10) Yasuhisa Oya et al., “Behaviors of Deuterium Retention and Microstructure Change of Tungsten Simultaneously Implanted with Carbon and/or Helium Ions”, Mater. Trans., 54 (2013) 430-436. 査読有
- (11) Ryo Miura et al., “Study on plasma - tungsten surface interactions using the new experimental device EXPRESS”, J. Plasma Fusion Res., 10(2013) 85-88. 査読有
- (12) Akio Sagara et al., “Integrated Material System Modeling of Fusion Blanket”, Mater. Trans. 54 (2013) 477-483. 査読有
- (13) Yasuhisa Oya et al., “Comparison of hydrogen isotope retention and irradiation damage behaviors in tungsten and SS-316 with simultaneous $\text{C}^+ - \text{D}_2^+$ implantation”, Fusion Eng. Des., 86 (2011) 1776-1779. 査読有
- (14) Wanjing Wang et al., “Temperature Dependence of Retention Behavior of Energetic Deuterium and Carbon Implanted into Tungsten Simultaneously”, Jour. Nucl. Mater, 417 (2011) 555-558. 査読有
- (15) Yasuhisa Oya et al., “Comparison of deuterium retention for ion-irradiated and neutron-irradiated tungsten”, Phys. Scr., 145 (2011) 014050. 査読有
- (16) Masashi Shimada et al., “The deuterium depth profile in neutron-irradiated tungsten exposed to plasma”, Phys. Scr., 145 (2011) 014051. 査読有
- (17) Rie Kurata et al., “Correlation between desorption of deuterium and recovery of irradiation defects in simultaneously deuterium and carbon ion- implanted

tungsten”, J. Plasma Fusion Res., 9 (2010) 163-166. 査読有

- (18) Yasuhisa Oya et al., “Dynamics of hydrogen isotope trapping and detrapping for tungsten under simultaneous triple ion (C^+ , D_2^+ and He^+) implantation”, J. Nucl. Mater., 415 (2010) S701-S704. 査読有

[学会発表] (計 23 件)

1. 川崎浄貴 他、“様々な温度にて炭素照射したタングステンにおける欠陥形成と重水素滞留挙動の相関関係に関する研究”, プラズマ・核融合学会第 29 回年会、2012 年 11 月 27-30 日、福岡.
2. 藤島徹生 他、“重水素プラズマ暴露したタングステンにおける表面化学状態変化と重水素滞留挙動”, プラズマ・核融合学会第 29 回年会、2012 年 11 月 27-30 日、福岡.
3. Ryo Miura et al., “Influence of tungsten – carbon mixed layer and irradiation defects on D retention behavior in tungsten” 27th Symposium of Fusion Technology. Sep. 24-28, 2012, ベルギー.
4. Yasuhisa Oya et al., “Enhancement of Hydrogen Isotope Retention Capacity for the Impurity Deposited Tungsten by Long-term Plasma Exposure in LHD ” 27th Symposium of Fusion Technology. Sep. 24-28, 2012, ベルギー.
5. Makoto Kobayashi et al., “Deuterium trapping by irradiation damage in tungsten induced by different displacement processes” 27th Symposium of Fusion Technology. Sep. 24-28, 2012, ベルギー.
6. 川崎浄貴 他、“タングステン-炭素混合層における水素同位体拡散挙動に関する研究”, 第 9 回核融合エネルギー連合講演会、2012 年 6 月 28-29 日、神戸.
7. 小林真 他、“中性子照射したタングステンにおける水素同位体滞留挙動に関する研究(日米協力 TITAN 計画)”, 第 9 回核融合エネルギー連合講演会、2012 年 6 月 28-29 日、神戸.
8. Tomohisa Taguchi et al., “Correlation between irradiation damage formation and deuterium retention behavior in tungsten under C^+ - D_2^+ simultaneous implantation”, 11th International Workshop on Hydrogen Isotopes in Fusion Reactor Materials, May. 29-31, ドイツ.
9. Yasuhisa Oya et al., “Evaluation of hydrogen isotope retention enhancement for tungsten by plasma exposure in LHD ” 20th International Conference on Plasma Surface Interactions 2012, May. 21-25, 2012, ドイツ.
10. Tomohisa Taguchi et al., “Dynamic deuterium recycling on tungsten under carbon – deuterium implantation circumstance”, 20th International Conference on Plasma Surface Interactions 2012, May. 21-25, 2012, ドイツ.
11. Ryo Miura et al., “Study on the plasma-tungsten surface interactions using the new experimental device EXPRESS”, 4th Japan-China Workshop on Fusion-Related Tritium Science and Technology, May. 9-11, 2012, 富山.
12. Yasuhisa Oya et al., “Implantation energy dependence on deuterium recycling and retention behaviors for the carbon implanted tungsten”, 4th Japan-China Workshop on Fusion-Related Tritium Science and Technology, May. 9-11, 2012, 富山.
13. 内村大道 他、“重水素照射したタングステンにおける水素同位体リサイクリングにおよぼす炭素照射の影響”, 日本原子力学会「春の年会」、2012 年 3 月 19 日、福井.
14. 三浦遼 他、“タングステン中の水素同位体滞留挙動に及ぼす炭素照射効果に関する研究”, 日本原子力学会/第 43 回中部支部研究発表会、2011 年 12 月 6 日、名古屋.
15. Kiyotaka Kawasaki et al., “STUDY OF CARBON - DEUTERIUM SIMULTANEOUS IMPLANTATION EFFECTS ON DEUTERIUM RETENTION IN TUNGSTEN”, 15th International Conference On Fusion Reactor Materials, Oct 16-22, 2011, 米国.
16. 内村大道 他、“固体における高エネルギーイオンのホットアトム化学的過程に関する研究 (XXVII) -重水素イオンを単独照射したタングステンにおける重水素滞留挙動の解明-”, 日本放射化学学会/第 55 回放射化学討論会、2011 年 9 月 20 日、長野.
17. 大矢恭久 他、“タングステン-炭素混合層に照射した水素同位体のリサイクリング挙動および滞留挙動”, 日本原子力学会「秋の大会」、2011 年 9 月 19 日、福岡.
18. Masato Suzuki et al., “Recycling and retention behaviors of hydrogen isotopes implanted into tungsten-carbon mixed layer” , 10th International Symposium on Fusion Nuclear Technology, Sep 11-16, 2011, 米国.
19. Yasuhisa Oya et al., “Comparison of hydrogen isotope retention and irradiation damage behaviors in tungsten and SS-316 with simultaneous C^+ - D_2^+ implantation”, 26th Symposium on Fusion Technology, ,

- Sep. 27-Oct. 1, 2010, ポルトガル.
20. 川崎淨貴 他、“固体における高エネルギーイオンのホットアトム化学的過程に関する研究(XXIV)-重水素-炭素-ヘリウムイオンを同時照射したタングステン中の重水素の化学的挙動の解明-”、日本放射化学学会／第 54 回放射化学討論会、2010 年 9 月 28 日、大阪.
 21. 大矢恭久、“炭化系セラミックス材料における高エネルギーイオンのホットアトム化学的過程に関する研究”、日本放射化学学会／第 54 回放射化学討論会、2010 年 9 月 28 日、大阪.
 22. 大矢 恭久 他、“炭素、ヘリウム、水素同位体同時照射環境下におけるタングステン中の水素同位体滞留と照射挙動”、第 8 回核融合エネルギー連合講演会、2010 年 6 月 10 日、岐阜.
 23. Yasuhisa Oya et al., “Dynamics of hydrogen isotope trapping and detrapping for tungsten under simultaneous triple ion (C^+ , D_2^+ and He^+) implantation”, 19th International Conference on Plasma Surface Interactions, May 24-28, 2010, 米国.

[その他]

ホームページ等

<http://www.ipc.shizuoka.ac.jp/~srkokun/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

大矢恭久 (OYA YASUHISA)

静岡大学・理学部・准教授

研究者番号：80334291

(2)研究分担者

奥野健二 (OKUNO KENJI)

静岡大学・理学部・教授

研究者番号：80293596

宮本光貴 (MIYAMOTO MITSUTAKA)

島根大学・総合理工学部・助教

研究者番号：80379693

芦川直子 (ASHIKAWA NAOKO)

核融合科学研究所・大型ヘリカル研究部・助教

研究者番号：00353441

(3)連携研究者

小野興太郎 (ONO KOTARO)

島根大学・名誉教授

研究者番号：40106795

相良明男 (SAGARA AKIO)

核融合科学研究所・大型ヘリカル研究部・教授

研究者番号：20187058