

Shizuoka University REpository

**SURE**静岡大学学術リポジトリ

メタデータ	言語: ja		
	出版者:静岡大学		
	公開日: 2014-02-04		
	キーワード (Ja):		
	キーワード (En):		
	作成者: 大矢, 恭久		
	メールアドレス:		
	所属:		
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

関番号:13801
究種目:基盤研究(B)
究期間:2010~2012
題番号:22360389
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
評価と能動制御
·究課題名(英文) Quantitative evaluation and active control of tritium recycling in
e plasma facing materials during mixed ion implantations
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しての知見 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 mm<sup>®</sup>×0.5 mm<sup>t</sup>) 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 1.0×10<sup>18</sup> D<sup>+</sup> m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>、フルエンス(0.10-1.0)×10<sup>23</sup> D<sup>+</sup> m<sup>-2</sup>の領域で 変化させて D2<sup>+</sup>照射を行った。また、イオン エネルギー10.0 keV C<sup>+</sup>、フラックス 1.0×10<sup>17</sup>  $C^+ m^{-2} s^{-1}$ 、フルエンス  $1.0 \times 10^{21} C^+ m^{-2}$ とし、 室温および 673 K にて C<sup>+</sup>照射を行った後、イ オンネルギー3.0 keV  $D_2^+$ 、フラックス 1.0×10<sup>18</sup>  $D^+ m^{-2} s^{-1}$ 、フルエンス $1.0 \times 10^{22} D^+ m^{-2}$ の条件 で室温にて D<sub>2</sub><sup>+</sup>照射を行った。これらの試料 に対し昇温領域を室温から1173K、昇温速度 を 0.5 K s<sup>-1</sup>として昇温脱離(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,<sup>+</sup>単独照射した試料および C<sup>+</sup>-D<sub>2</sub><sup>+</sup> 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 1.0×10<sup>18</sup> D<sup>+</sup> m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>、フルエンス 1.0×10<sup>22</sup> D<sup>+</sup> m<sup>-2</sup>まで D<sub>2</sub><sup>+</sup>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<sup>+</sup>、フラック ス  $1.0 \times 10^{17} \text{ C}^+ \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 、フルエンス  $1.0 \times 10^{21}$ C<sup>+</sup> m<sup>-2</sup>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 1.0×10<sup>18</sup> H<sup>+</sup> m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>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<sub>2</sub>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400K付近を表面吸着および転位ループ(Peak1)、500K付近を原子空孔(Peak2)による重水素滞留であると帰属した。Peak1およ



WでのD, 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<sup>+</sup>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700K以上であることから、Peak4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、Peak3はボイドに捕



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、ボ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 留した炭素はボ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 D<sub>2</sub> TDS スペクトルを図 3 に示す。TDS の結果より、炭素を 673 K で



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 の双方でボイドの成長が確認できたが、ボイ 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





ボイド中に滞留しボ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 CH,お よび CH<sub>2</sub> 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



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<sub>4</sub>として放出するのに対し炭素照射タング ステンにおいてはCH<sub>3</sub>やCH<sub>2</sub>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D2 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。



5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計18件)

- 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) <u>Yasuhisa Oya</u> 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) <u>Yasuhisa Oya</u> 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) <u>Yasuhisa Oya</u> 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) <u>Mitsutaka Miyamoto</u>, "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. 查読有
- (9) <u>Yasuhisa Oya</u> 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) <u>Yasuhisa Oya</u> 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) <u>Akio Sagara</u> et al., "Integrated Material System Modeling of Fusion Blanket", Mater. Trans. 54 (2013) 477-483. 査読有
- (13) <u>Yasuhisa Oya</u> et al., "Comparison of hydrogen isotope retention and irradiation damage behaviors in tungsten and SS-316 with simultaneous C<sup>+</sup>-D<sub>2</sub><sup>+</sup> 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. 查読有
- (15) <u>Yasuhisa Oya</u> 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

<sup>(</sup>研究代表者、研究分担者及び連携研究者に は下線)

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

(18) <u>Yasuhisa Oya</u> et al., "Dynamics of hydrogen isotope trapping and detrapping for tungsten under simultaneous triple ion (C<sup>+</sup>, D<sub>2</sub><sup>+</sup> and He<sup>+</sup>) implantation", J. Nucl. Mater., 415 (2010) S701-S704. 査読有

〔学会発表〕(計23件)

- 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.
- 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. <u>Yasuhisa Oya</u> et al., "Enhancement of Hydrogen Isotope Retention Capacity for the Impurity Deposited Tungsten by Long-term Plasma Exposure in LHD" <u>27th</u> <u>Symposi</u>um 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.
- 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.
- 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<sup>+</sup>-D<sub>2</sub><sup>+</sup> simultaneous implantation",11th International Workshop on Hydrogen Isotopes in Fusion Reactor Materials, May. 29-31, ドイツ.
- 9. <u>Yasuhisa Oya</u> 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.
- 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 ond Technology, May. 9-11, 2012, 富山.
- 12. <u>Yasuhisa Oya</u> 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 ond Technology, May. 9-11, 2012, 富山.
- 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.
- Kiyotaka Kawasaki et al., "STUDY OF CARBON - DEUTERIUM SIMULTANEOUS IMPLANTATION EFFECTS ON DEUTERIUM RETENTION IN TUNGSTEN", 15thInternational 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. <u>大矢恭久</u>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.
- Masato Suzuki et al., "Recycling and retention behaviors of hydrogen isotopes implanted into tungsten-carbon mixed layer", 10thInternational Symposium on Fusion Nuclear Technology, Sep 11-16, 2011, 米国.
- 19. <u>Yasuhisa Oya</u> 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.
- <u>大矢 恭久</u>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.
- <u>Yasuhisa Oya</u> et al., "Dynamics of hydrogen isotope trapping and detrapping for tungsten under simultaneous triple ion (C<sup>+</sup>, D<sub>2</sub><sup>+</sup> and He<sup>+</sup>) 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