

平成 26 年 6 月 9 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760710

研究課題名(和文) 水素イオンと炭素イオンが同時入射した被覆タングステン中の水素蓄積機構の解明

研究課題名(英文) Investigation of mechanisms of hydrogen retention in tungsten coating layers simultaneously irradiated by hydrogen and carbon ions

研究代表者

福本 正勝 (Fukumoto, Masakatsu)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・核融合研究開発部門 那珂核融合研究所・研究員

研究者番号：60549202

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円、(間接経費) 1,020,000円

研究成果の概要(和文)：炭素イオンの割合を3.2%まで変化させた重水素・炭素混合イオンビームを被覆タングステンに照射し、水素の蓄積機構を調べた。照射温度が500 Kの場合、入射した重水素は被覆タングステンの固有欠陥および被覆タングステンに蓄積した炭素に蓄積した。照射温度が700 Kの場合、入射した重水素は固有欠陥には蓄積せず、蓄積した炭素にのみC-D結合の状態に蓄積した。このような重水素の多くは、被覆タングステンを加熱することによって炭化水素分子で放出された。このため、被覆タングステンを加熱することで、重水素に加え、蓄積した炭素の多くが除去された。

研究成果の概要(英文)：Mechanisms of hydrogen retention in tungsten coating layers have been investigated with a mixed deuterium and carbon ion beam irradiation including a carbon ion fraction of up to 3.2%. For the irradiation temperature of 500 K, injected deuterium atoms are retained at intrinsic defects and carbon atoms accumulated in the tungsten coating layer. For the irradiation temperature of 700 K, injected deuterium atoms are retained at carbon atoms accumulated in the tungsten coating layer, and the deuterium atoms are chemically bonded with the carbon atoms, forming C-D bonds. Most of the accumulated deuterium atoms desorb in the form of hydrocarbon molecules by heating of the tungsten coating layer. This leads to removal of the accumulated carbon atoms from the tungsten coating layer in addition to the retained deuterium atoms.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・核融合工学

キーワード：プラズマ・核融合 被覆タングステン トリチウムリテンション 炭素

1. 研究開始当初の背景

国際熱核融合実験炉 (ITER) や将来の核融合炉では、真空容器内に高温の水素プラズマを生成する。プラズマの熱から真空容器を保護するため、容器の内側には保護タイルが設置される。この保護タイルには燃料の一つであるトリチウムが入射・蓄積する。トリチウムは放射性同位元素であるため、炉の安全性を確保するためには、保護タイルへのトリチウム蓄積量を低減させる必要がある。そのため、水素の溶解度が小さいタングステンの使用が検討されており、ITER ではタングステンを被覆した保護タイルを設置する計画がある。そのため、純粋な重水素イオンやプラズマの照射実験により、水素の蓄積量や放出挙動が明らかになりつつある。

ITER では、真空容器内への空気の漏れに由来する炭素や被覆タングステン中に含まれる炭素により、真空容器内に生成した水素プラズマ中には微量の炭素が存在すると考えられる。そのため、被覆タングステンにはトリチウムと共に炭素が入射する。JT-60U や ASDEX-Upgrade 装置で使用したタングステン被覆タイルの分析から、炭素の入射によって、被覆タングステン中の水素の蓄積量が増加することが明らかになったが、詳細な蓄積機構や放出挙動は不明である。

2. 研究の目的

重水素イオン中の炭素イオンの割合を定量的に制御した重水素・炭素混合イオンビームを被覆タングステんに照射し、水素イオンと炭素イオンが同時入射する場合の水素の蓄積機構を明らかにする。

3. 研究の方法

図1に本研究で用いた被覆タングステンの断面を示す。炭素基板上にレニウムとタングステンの複合層を形成し、その上に厚さ 50 μm のタングステンを被覆した。本被覆タングステンに対して、イオンビーム照射装置を用いて重水素・炭素混合イオンビームを照射した。イオンの加速エネルギーを 1.0 kV とした。イオンビームには D^+ (20%), D_2^+ (10%), D_3^+ (70%) が含まれているため、重水素原子

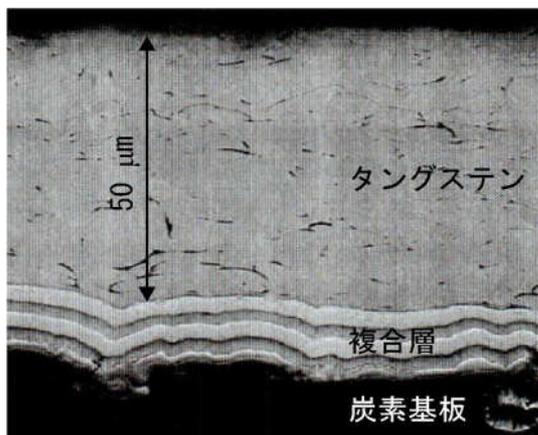


図1. 被覆タングステンの断面

一個当たりのエネルギーはそれぞれ、1.0 keV, 0.5 keV, 0.3 keV である。粒子束を $10^{20} \text{ D/m}^2\text{s}$ 、照射量を $1.4 \times 10^{24} \text{ D/m}^2$ とした。混合イオンビーム中の炭素イオンの割合を 0.1-3.2% に変化させた。炭素イオンは CD_x および C_2D_x ($x=0-4$) の形で照射されるため、炭素原子一個当たりのエネルギーはそれぞれ、 $\sim 1.0 \text{ keV}$ と $\sim 0.5 \text{ keV}$ である。照射温度は 500 と 700 K とした。

混合イオンビーム照射後、被覆タングステン中の炭素の化学結合状態を X 線回折法 (XRD) で測定し、重水素と炭素の深さ分布を二次イオン質量分析法 (SIMS) で測定した。重水素の放出スペクトルを昇温脱離測定法 (TDS) で測定した。測定した分子は、HD, D_2 , CHD_3 , CD_4 であった。放出スペクトルを測定後、被覆タングステン中の炭素の化学結合状態を X 線光電子分光分析法 (XPS) で測定した。

4. 研究成果

(1) 500 K での照射結果

図2に 3.2%の炭素イオンを含む混合イオンビームを照射した被覆タングステンの XRD スペクトルを示す。 26° 付近にグラファイトに由来するピークが検出されたが、炭化タングステン (WC や W_2C) に由来するピークは検出されなかった。

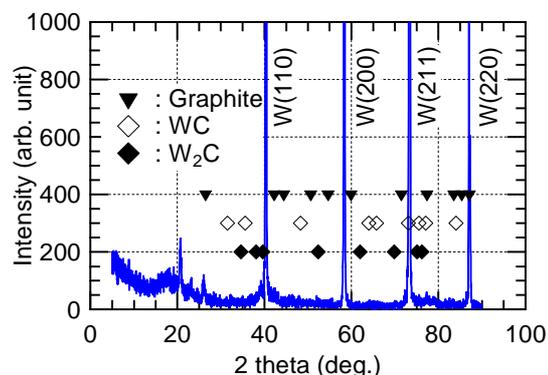


図2. 500 K で混合イオンビームを照射した被覆タングステンの XRD スペクトル。炭素イオンの割合は 3.2% である。4 つの大きなピークはタングステンに由来する。▼はグラファイト、◇と◆は炭化タングステン (WC と W_2C) に由来するピークの位置を示す。

図3に被覆タングステン中の炭素と重水素の深さ分布を示す。炭素イオンの割合が 0.1% の場合、被覆タングステン中の炭素の濃度は深さ方向に一定であったが、重水素の濃度は深さ 1 μm 付近が高く、深さと共に減少した。炭素イオンの割合が 1.2% に増加すると、深さ 20 μm までの炭素の濃度が増加したが、重水素の濃度に大きな変化は見られなかった。炭素イオンの割合が 3.2% に増加すると、深さ 20 μm までの炭素と重水素の濃度が増加した。

炭素イオン割合の変化に対する炭素と重水素の蓄積量への影響を調べるため、炭素と重

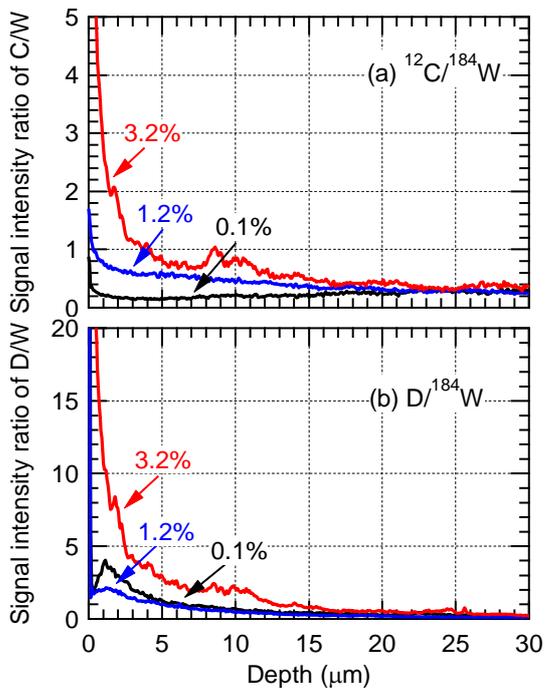


図3. 500 K で混合イオンビームを照射した被覆タングステン中の(a)炭素と(b)重水素の深さ分布。図中には混合イオンビーム中の炭素イオンの割合を示す。

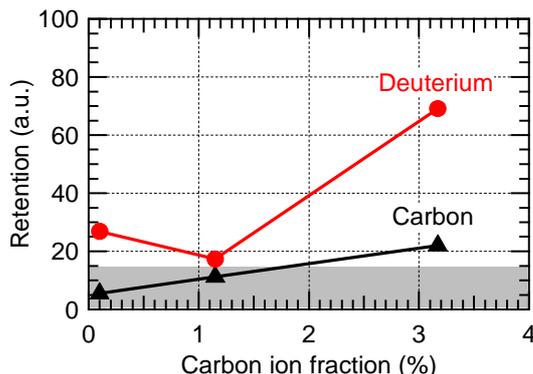


図4. 深さ分布の積分によって評価した炭素と重水素の蓄積量。灰色は未照射試料を測定して求めた炭素蓄積量のバックグラウンドである。重水素蓄積量のバックグラウンドは 10^{-1} のオーダーである。

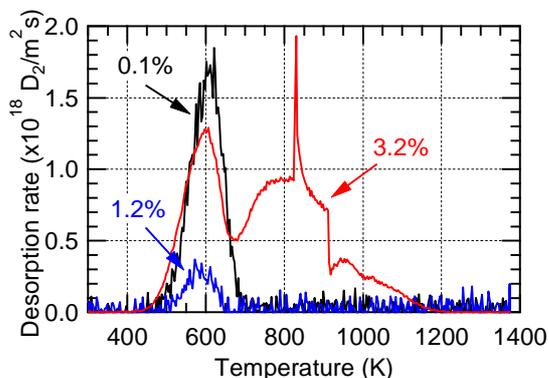


図5. 500 K で混合イオンビームを照射した被覆タングステンからの D_2 分子の放出スペクトル。

水素の濃度が十分小さくなる深さ (25 μm) までの分布を積分し、それぞれの蓄積量を評価した (図4)。炭素イオンの割合が 0.1% の場合、被覆タングステン中の炭素の蓄積量はバックグラウンドの範囲内であり明確な炭素の蓄積は見られなかったが、重水素は蓄積していた。炭素イオンの割合が 1.2% に増加しても、炭素の蓄積量はバックグラウンドの範囲内であり、重水素の蓄積量に大きな変化は見られなかった。炭素イオンの割合が 3.2% に増加すると、被覆タングステンに炭素が蓄積し、これに伴い重水素の蓄積量が増加した。

図5に被覆タングステンからの D_2 分子の放出スペクトルを示す。炭素イオンの割合が 0.1% の場合、 D_2 分子は 400-700 K の範囲で放出され、600 K に最大値を持つ単一のスペクトルであった。炭素イオンの割合が 1.2% に増加すると、 D_2 分子の放出量は減少したがピークの位置やスペクトルの形状に大きな変化はなかった。炭素イオンの割合が 3.2% に増加すると、600 K に最大値を持つ放出に加え、700-1200 K の範囲に新たな D_2 分子の放出が観測された。

炭素イオン割合の変化に対する重水素蓄積量の変化を調べるため、25 μm までの重水素の深さ分布および重水素の放出スペクトルを積分して重水素の蓄積量を評価した (図6)。炭素イオンの割合が 1.2% の場合、深さ分布と放出スペクトルから評価した重水素の蓄積量に大きな違いは見られなかった。炭素イオンの割合が 3.2% に増加すると、深さ分布から評価した重水素の蓄積量は放出スペクトルから評価した重水素の蓄積量に比べて多かった。

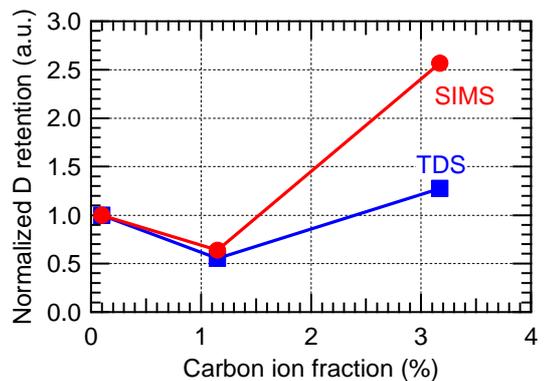


図6. 重水素の深さ分布および放出スペクトルから評価した重水素の蓄積量。それぞれの蓄積量を炭素イオンの割合が 0.1% の時の蓄積量で規格化した。

(3) 考察

炭素イオンの割合が 0.1% の場合、炭素は被覆タングステンに蓄積していないが重水素は蓄積していた。また、 D_2 分子の放出スペクトルは単一形状であった。これらより、重水素は被覆タングステン中に存在する単一の捕獲エネルギーを持つ固有欠陥に蓄積していると考えられる。この固有欠陥は結晶粒界や微小空洞と考えられる。炭素イオンの割合が 1.2%

に増加すると、炭素の蓄積量が増加したようにみられたが、その蓄積量はバックグラウンドの範囲内であったため、入射した炭素はほとんど蓄積していないと考えられる。また、 D_2 分子の放出スペクトルは炭素イオンの割合が 0.1% の場合と同様に単一形状であり、放出ピークの温度も一致することから、重水素は主に固有欠陥に蓄積していると考えられる。この炭素イオンの割合では、深さ分布および放出スペクトルから評価した重水素の蓄積量に大きな違いが見られなかったことから、被覆タングステンに蓄積した重水素は主に HD, D_2 , CHD_3 , CD_4 の分子状で放出されたと考えられる。炭素イオンの割合が 3.2% に増加すると、被覆タングステンに炭素が蓄積し、重水素の蓄積量が増加した。また、700-1200 K にわたって新たな D_2 分子の放出が観測された。これらのことから、固有欠陥に加えて、被覆タングステンに蓄積した炭素にも重水素が蓄積し、炭素に蓄積した重水素は 700-1200 K にわたって放出されたと考えられる。さらに、深さ分布から評価した重水素の蓄積量は放出スペクトルから評価した重水素の蓄積量に比べて多かった。本研究では、放出スペクトルは HD, D_2 , CHD_3 , CD_4 分子のみを測定したため、放出スペクトルから評価した蓄積量は過少評価の可能性はある。しかし、二種類の手法で評価した重水素の蓄積量に差があることから、一部の重水素は CD_x ($x=1-3$) の形で放出された可能性が示唆される。

(3) 700 K での照射結果

図 7 に 2.8% の炭素イオンを含む混合イオンビームを照射した被覆タングステンの XRD スペクトルを示す。本照射温度においても、 26° 付近にグラファイトに由来するピークのみが検出された。

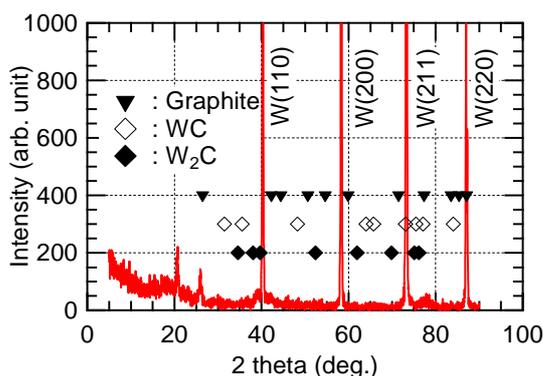


図 7. 700 K で混合イオンビームを照射した被覆タングステンの XRD スペクトル。炭素イオンの割合は 2.8% である。各シンボルの意味は図 2 と同じである。

図 8 に被覆タングステン中の炭素と重水素の深さ分布を示す。炭素イオン割合の増加に伴い、深さ 20 μm までの炭素と重水素の濃度が増加した。

炭素イオン割合の変化に対する炭素と重水

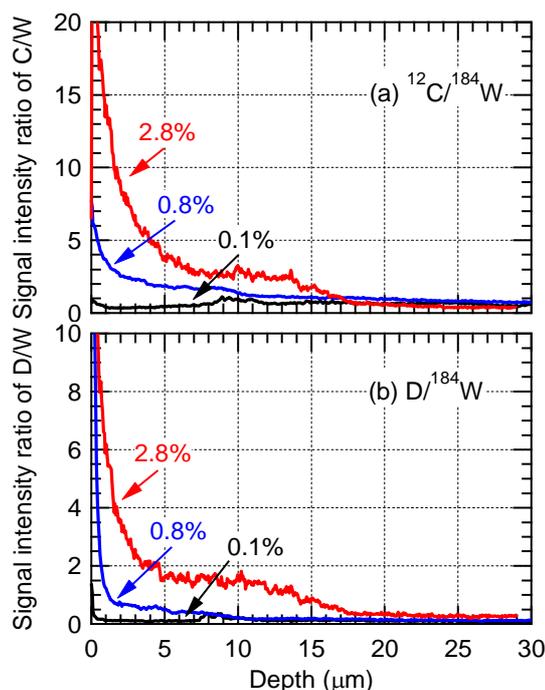


図 8. 700 K で混合イオンビームを照射した被覆タングステン中の (a) 炭素と (b) 重水素の深さ分布。

素の蓄積量への影響を調べるため、25 μm までの炭素と重水素の深さ分布を積分し、それぞれの蓄積量を評価した (図 9)。炭素イオンの割合が 0.1% の場合、被覆タングステン中の炭素の蓄積量はバックグラウンド程度であり、明確な蓄積は見られなかった。重水素の蓄積量も少なかった。炭素イオンの割合が 0.8% および 2.8% に増加すると、炭素と重水素の蓄積量が増加した。

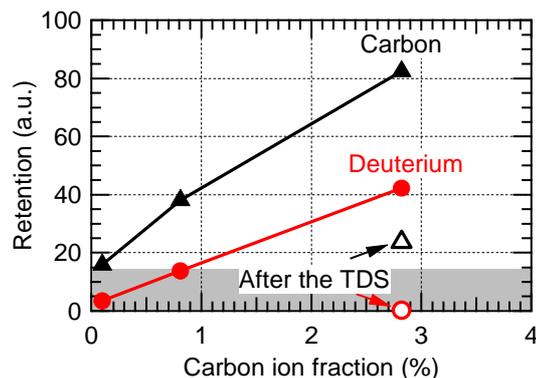


図 9. 深さ分布の積分によって評価した炭素と重水素の蓄積量。白抜きシンボルは放出スペクトル測定後に評価した炭素と重水素の蓄積量を示す。

図 10 に被覆タングステンからの D_2 分子の放出スペクトルを示す。炭素イオンの割合が 0.8% 以下の場合、明確な D_2 分子の放出ピークは観測されなかった。炭素イオンの割合が 2.8% に増加すると、500-1300 K にかけて D_2 分子が放出された。

炭素イオン割合の変化に対する重水素蓄積量の変化を調べるため、25 μm までの重水素

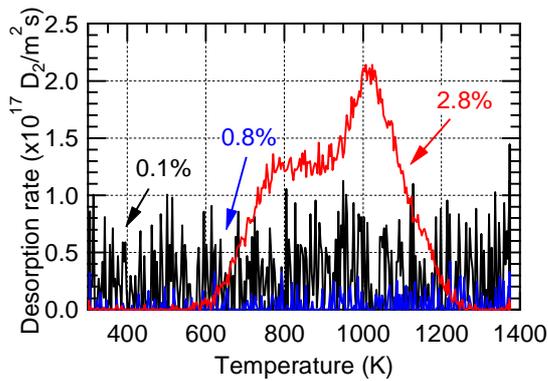


図10. 700 K で混合イオンビームを照射した被覆タングステンからの D_2 分子の放出スペクトル。

の深さ分布および重水素の放出スペクトルを積分して重水素の蓄積量を評価した (図11)。炭素イオンの割合が 0.8% の場合、深さ分布から評価した重水素の蓄積量は放出スペクトルから評価した重水素の蓄積量に比べて多く、この差は炭素イオンの割合と共に増加した。

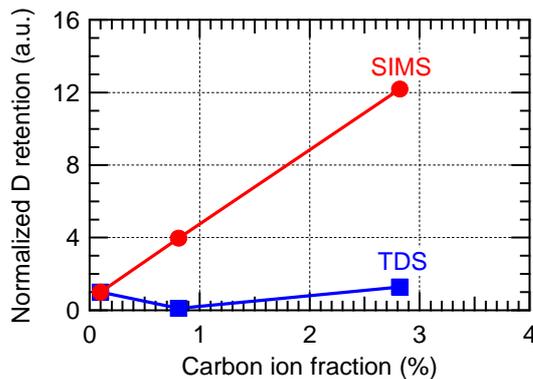


図11. 重水素の深さ分布および放出スペクトルから評価した重水素の蓄積量。

(4) 考察

炭素イオンの割合が 0.1% の場合、被覆タングステンに炭素は蓄積せず重水素の蓄積量も小さいが、炭素イオンの割合と共に炭素と重水素の蓄積量が増加した。したがって、照射温度が 700 K の場合、重水素は被覆タングステン中の固有欠陥には蓄積しにくい、炭素が被覆タングステンに蓄積することでこの炭素に重水素が蓄積し、被覆タングステン中の重水素の蓄積量が増加したと考えられる。また、炭素イオンの割合が 0.8% 以上の場合、深さ分布から評価した重水素の蓄積量が放出スペクトルから評価した重水素の蓄積量に比べて十分大きいことから、蓄積した重水素は主に CD_x ($x=1-3$) の分子状で放出された可能性が高い。

ここで、重水素の蓄積状態を調べるために、2.8% の炭素イオンを含む混合イオンビームを照射した被覆タングステンからの D_2 分子の放出スペクトルに対してガウス分布によるピーク分離を行った (図12)。ガウス分布のピーク温度と半値全幅を自由パラメータとし

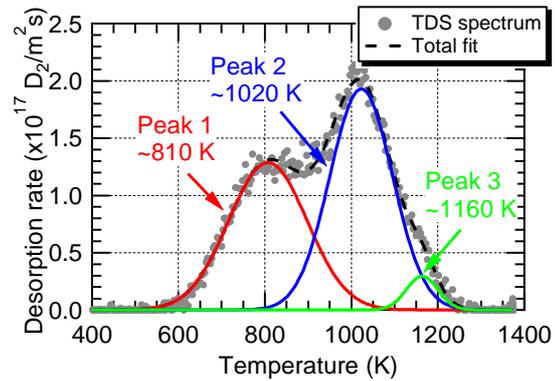


図12. 炭素イオンの割合が 2.8% における D_2 分子の放出スペクトルに対するガウス分布によるピーク分離。灰色の点が測定結果を示す。実線はガウス分布を示し、破線はガウス分布の総和を示す。

た。その結果、測定された D_2 分子の放出スペクトルは三種類のガウス分布でピーク分離することが可能であり、それぞれのピーク温度は 810, 1020, 1160 K であった。得られたピーク温度を JT-60U の内側ダイバータで使用した炭素タイルからの D_2 分子の放出スペクトルのピーク温度と比較した。その結果、炭素タイルからの D_2 分子の放出スペクトルも三種類のスペクトルにピーク分離され、そのピーク温度は 800, 1000-1050, 1160 K であり、被覆タングステンから得られたピーク温度と一致した。炭素タイルに入射した重水素は炭素原子と化学的に結合し、C-D 結合の状態に炭素タイルに蓄積する。したがって、被覆タングステンにおいても、蓄積したグラファイト状炭素と C-D 結合をして、重水素が蓄積していると考えられる。一方、JT-60U で使用した被覆タングステンを XPS で測定すると、グラファイト状炭素に加え、アモルファス状炭素も形成されていた。本研究で用いた XRD はアモルファス状炭素を検出することができないが、混合イオンビームを照射した被覆タングステン中にもアモルファス状炭素が形成されており、このような炭素と C-D 結合をして重水素が蓄積している可能性がある。

被覆タングステンに蓄積した重水素が主に CD_x の分子状で放出されたことや、重水素が被覆タングステン中で C-D 結合の状態に蓄積していることから、被覆タングステンを加熱することで重水素と共に炭素も除去できる可能性がある。これを確かめるため、2.8% の炭素イオンを含む混合イオンビームを照射した被覆タングステンに対し、放出スペクトルの測定後に重水素と炭素の深さ分布を測定してそれぞれの蓄積量の評価を行った (図12および図9)。その結果、被覆タングステン中の炭素の蓄積量はバックグラウンドまで低下しなかったが、1373 K の加熱により蓄積した炭素に対して 80% 以上の炭素が除去された。重水素の蓄積量はバックグラウンドまで低下しており、ほとんどの重水素が放出されていた。さらに、加熱後の被覆タングステン中の炭素の

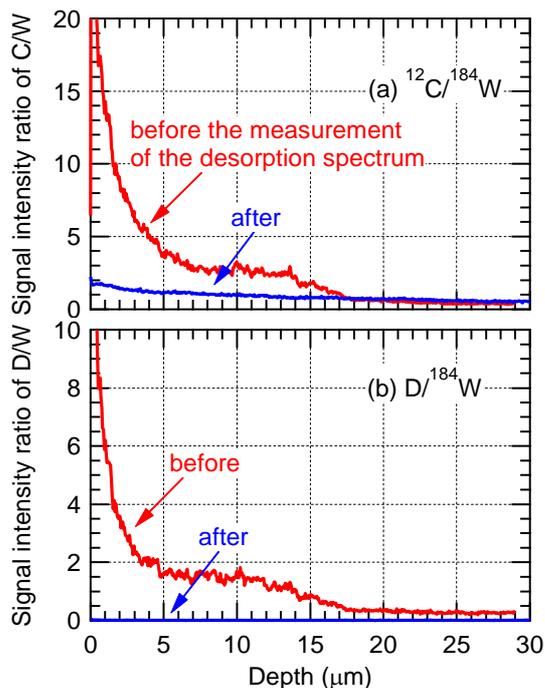


図12. 炭素イオンの割合が2.8%の場合における D_2 分子の放出スペクトルの測定前後での(a)炭素と(b)重水素の深さ分布

化学結合状態を XPS で測定し、炭素の蓄積量は検出限界以下 (~1%) であり、WC や W_2C などのタングステンと化学的に結合した炭素も検出されなかった。

(5) まとめ

炭素イオンの割合を 3.2%まで変化させた重水素・炭素混合イオンビームを被覆タングステンに照射し、各種表面分析により被覆タングステン中の水素の蓄積機構を調べた。

照射温度が 500 K の場合、炭素イオンの割合が 1.2%以下では入射した炭素は蓄積せず、重水素は主に被覆タングステン中の単一の捕獲エネルギーをもつ固有欠陥に蓄積した。固有欠陥に蓄積した重水素は 400-700 K の範囲で主に HD, D_2 , CHD_3 , CD_4 の分子で放出された。炭素イオンの割合が 3.2%に増加すると、固有欠陥に加えて被覆タングステンに蓄積した炭素にも重水素が蓄積し、重水素の蓄積量が増加した。炭素に蓄積した重水素は 700-1200 K の範囲で放出された。蓄積した重水素は 4 種類の分子に加え、 CD_x ($x=1-3$) の分子状で放出された可能性が高い。

照射温度が 700 K の場合、炭素イオンの割合が 0.1%では炭素は蓄積せず、重水素の蓄積量も少なかった。そのため、700 K では重水素は固有欠陥に蓄積しにくいと考えられる。炭素イオンの割合が 0.8%以上では、重水素は主に被覆タングステンに蓄積した炭素に蓄積するため、被覆タングステン中の重水素の蓄積量が増加した。この重水素は炭素と C-D 結合を形成していた。更に、この重水素は 500-1300 K にわたって放出され、放出されるガス種は主に CD_x ($x=1-3$) の分子状である可能性

が高い。このような炭化水素の形で重水素が放出されるため、1373 K で加熱することで、蓄積した炭素の多くを除去できる可能性が示唆された。

5. 主な発表論文等

[学会発表] (計5件)

- ① M. Fukumoto, T. Nakano, Y. Ueda, H. Kubo, K. Itami, “Deuterium retention in tungsten coating layers irradiated by mixed deuterium and carbon ion beam”, 21st International Conference on Plasma Surface Interactions in Controlled Fusion Devices, Kanazawa, Japan, June, 2014.
- ② 福本 正勝, 仲野 友英, 上田 良夫, 久保 博孝, “JT-60U のダイバータプラズマに曝した被覆タングステンへの水素蓄積機構”, 平成26年度日本原子力学会北関東支部若手研究者発表会, 東海村, 茨城県, 4月, 2014.
- ③ M. Fukumoto, T. Nakano, Y. Ueda, K. Itami, H. Kubo, “Deuterium retention in tungsten coating layer irradiated with deuterium and carbon ions”, 16th International Conference on Fusion Reactor Materials, Beijing, China, October, 2013.
- ④ M. Fukumoto, T. Nakano, K. Itami, Y. Ueda, T. Tanabe, “Carbon-13 deposition on the inner divertor tiles in JT-60U”, 20th International Conference on Plasma Surface Interactions, Aachen, Germany, May, 2012.
- ⑤ M. Fukumoto, T. Nakano, K. Itami, T. Wada, Y. Ueda, “Deuterium retention and desorption from vacuum plasma sprayed tungsten coating irradiated by deuterium and carbon mixed ion beam”, 11th Hydrogen Workshop on Hydrogen Isotopes in Fusion Reactor Materials, Schloss Ringberg, Germany, May, 2012.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

福本 正勝 (FUKUMOTO, Masakatsu)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・核融合研究開発部門 那珂核融合研究所・研究員

研究者番号：60549202