

機関番号：17102

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21760691

研究課題名 (和文) 核融合炉金属再堆積層における水素同位体挙動に関する研究

研究課題名 (英文) Study on hydrogen isotope behavior in metal re-deposition layer in a fusion reactor

研究代表者

片山 一成 (KATAYAMA KAZUNARI)

九州大学・大学院総合理工学研究院・助教

研究者番号：90380708

研究成果の概要 (和文)：次世代高密度エネルギー源として期待される核融合炉の開発において、燃料トリチウム挙動の把握は必須の課題である。本研究ではプラズマを閉じ込める容器内壁の損耗により形成される金属再堆積層における燃料水素同位体の捕捉・放出特性評価を行った。水素プラズマ照射下で成長する金属堆積層には、多量の水素が捕捉され、その量は堆積条件により大きく変動することがわかった。また、取り込まれた水素同位体の回収には600℃以上の高温加熱が必要であることを明らかにした。

研究成果の概要 (英文)：In the development of a fusion reactor expected as a next generation high density energy source, the understanding of fuel tritium behavior is an indispensable problem. In the present study, the sorption/desorption characteristics evaluation of fuel hydrogen isotopes in the metal re-deposition layer formed by erosion of the inner wall of the plasma confinement vessel were performed. It was found that not a small amount of hydrogen was trapped in the metal deposition layers grown under hydrogen plasma irradiation. The amount of hydrogen greatly varied depending on the deposition condition. It was revealed that the majority of hydrogen retained can be recovered by heating to 600°C or more.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2010年度	1,300,000	390,000	1,690,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

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：プラズマ・壁相互作用、再堆積

## 1. 研究開始当初の背景

黒鉛第一壁を持つ大型プラズマ装置 JET、TFTR での DT 実験により、炭素堆積層への多量トリチウムの蓄積が問題提起されて以降、大型装置の第一壁は炭素材料から金属材料へと移行されつつある。金属第一壁に関する

研究は、古くから高・低エネルギーイオン照射実験が国内外で精力的に実施されており、近年ではプリスタリングの形成機構やこれに伴う水素同位体挙動についても広く議論されている。しかしながら、金属材料から成る再堆積層を対象にした研究は極めて少な

い。金属再堆積層の形成速度は、炭素再堆積層に比べて遅いものの、長期運転を見据えた場合、炉内に蓄積し続ける堆積層やダストを無視することはできず、金属原子自身による自己スパッタリングや炭素や酸素の衝突により損耗速度が増加することも考えられる。金属再堆積層への燃料捕捉を含むプラズマ容器内での多量トリチウムの蓄積は、放射線安全対策上問題となるため、その正しい評価が求められている。核融合炉の燃料システムは自己供給型であり、プラズマ中の核反応で生じた中性子を利用して、燃料トリチウムを生産し、再びプラズマに投入する必要がある。従って、燃料トリチウムが核反応することなく炉内に蓄積することは、燃料循環システムの成立性の観点からも重大な問題となっている。

## 2. 研究の目的

本研究では、プラズマ容器内へのトリチウム蓄積量評価に際して、不足している金属再堆積層へのトリチウム蓄積量評価に関する基礎データの集積を目的とする。具体的には、水素同位体プラズマ照射下で金属再堆積層を成長させ、捕捉される水素同位体量を定量する。また、金属再堆積層に捕捉された水素同位体の回収に必要な加熱温度を明らかにする。実験結果を基に、金属再堆積層への水素同位体捕捉機構について検討する。

## 3. 研究の方法

### (1) 再堆積層形成実験

タングステンやステンレス鋼等の核融合炉プラズマ対向壁金属材料を水素同位体プラズマに曝してスパッタリングし、水素プラズマ照射下にて金属再堆積層を形成させた。その後、昇温脱離法により再堆積層からの水素放出挙動を観測し、放出量及び放出速度の定量を行った。

金属再堆積層の形成には、平行平板型高周波プラズマスパッタ装置を用いた。陰極側にターゲット材料(タングステン、ステンレス鋼等)を設置し、陽極側にタングステン箔及び石英片を基板として設置した。真空容器を100℃程度にベーキングしつつ、ターボ分子ポンプで約12時間高真空排気し、吸着不純物ガスの脱離操作を行った。その後、軽水素或いは重水素ガスを導入し、放電圧力を2~220Paの範囲で調整し、50W~250Wの高周波を印加することでプラズマを点火した。水素同位体プラズマによる金属の損耗速度は遅いため、放電は1週間から数週間程度継続した。放電終了後、基板を取り出し、質量変化から堆積量を求めた。また、ターゲット材料の質量変化から損耗速度を求めた。プラズマ密度や電子温度等のプラズマパラメータは、電極間にラングミュアプローブを挿入し

て測定した。真空容器内のガス成分組成は、質量分析計を用いて連続モニターした。堆積層中の酸素濃度は、EDX分析により求めた。

### (2) 真空雰囲気水素同位体放出実験

堆積層が形成された基板を石英管内に設置し、真空排気した後、赤外線照射によって等速昇温加熱を行った。放出される水素は、差動排気付質量分析計を用いて定量した。

### (3) 不活性ガス雰囲気水素同位体放出実験

堆積層が形成された基板を石英反応管内に設置し、アルゴン雰囲気中で密閉した後昇温し、反応管内に放出された水素を定期的にバージして、放出量をガスクロマトグラフを用いて測定した。

## 4. 研究成果

### (1) 水素捕捉への酸素の影響

水素同位体プラズマで形成された金属堆積層中には、意図せずして酸素が混入する可能性がある。これは、供給ガスボンベ、配管、真空容器に付着する微量の水蒸気に起因すると考えられる。学会・研究会等では、酸素の混入が金属堆積層への水素捕捉量増大の原因であるとの指摘を受けていたが、定量的データはこれまでなかった。そこで、酸素混入量と水素捕捉量の関係を調査し、タングステン堆積層に関しては、図1の結果を得た。タングステン原子(W)に対する酸素原子(O)比が0.9以下では、はっきりとした酸素依存性は見られず、1.4以上の高濃度酸素取込条件において、明らかな水素捕捉量の増大が見られた。つまり、O/W比が0.9より低い場合は、酸素の混入が水素取込みの原因であるとは言えない。

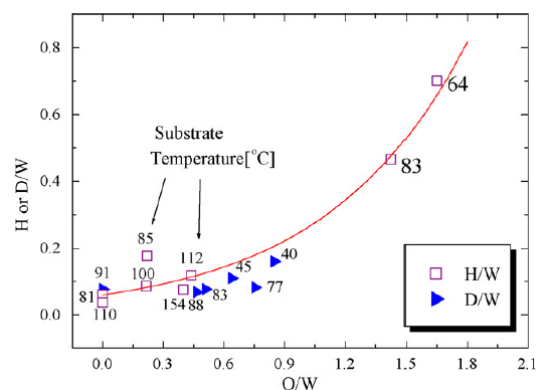


図1 タングステン堆積層への水素捕捉量と酸素混入濃度の関係。

### (2) 金属堆積層密度の放電圧力依存性

本研究グループにより、スパッタ法で作製したタングステン堆積層及びステンレス鋼堆積層には、数nmの多数の空隙が存在することが、透過型電子顕微鏡観察により明らかにされていた。しかし、マクロスケールでの堆積層密度の定量は行われていなかった。そこで、堆積層の体積と質量から密度を算出し、

その放電時ガス圧依存性を調査した。図2にタングステン堆積層の断面SEM像を示す。堆積層は、柱状に成長していることがわかる。図3に放電時ガス圧に対する密度変化を示す。図右軸は、結晶粒子密度をタングステンバルク密度と仮定した場合の空隙率を示す。この結果から、放電時ガス圧の増加に伴って密度が減少、すなわち空隙率が増加することがわかる。放電時ガス圧が低い場合、密度は比較的高いが、それでもバルク密度の7割程度で頭打ちになることがわかる。堆積基板の温度が100°C程度と低いことから、タングステン原子の基板上での表面拡散が十分ではないため、結晶性の低い膜が形成されていると考えられる。スパッタ条件と膜の微細構造の関係についてのThorntonらの報告によるとバルクに近い緻密な膜の形成には、融点の5割程度の基板温度が必要とされている。タングステンの場合、融点が高いためバルクと同程度の密度をもつ堆積層の形成には1850Kの基板温度が必要となる。核融合炉プラズマ対向第一壁温度は、ITERで500K程度、原型炉でも800K程度と言われており、空隙を多く持つ堆積層が形成されるものと予測される。タングステンバルクへの水素溶解度は極めて小さいことから、堆積層を形成するタングステン微結晶粒子への水素同位体捕捉量は小さいと予測される。従って、堆積層中に捕捉された水素は、微結晶粒子界面に捕捉されていると考えられる。

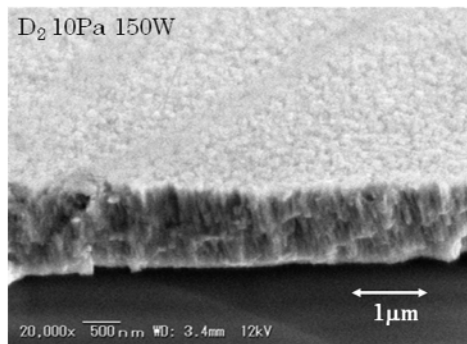


図2 タングステン堆積層の断面SEM像。

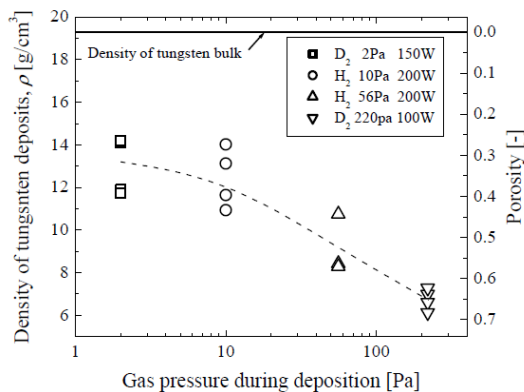


図3 タングステン堆積層密度のガス圧依存性。

### (3)水素捕捉量のガス圧依存性

放電時ガス圧力の増加に伴い空隙率が增加することが明らかとなったが、次にガス圧と水素捕捉量の関係を調査した。水素が空隙に捕捉されているのであれば、圧力の増加とともに水素捕捉量も増加するはずである。重水素プラズマにより形成されたタングステン堆積層についての実験結果を図4に示す。ここでは水素同位体捕捉量を水素同位体原子数とタングステン原子数の比で表している。また、酸素捕捉量(酸素原子数とタングステン原子数の比)の圧力依存性も示している。なお、重水素プラズマにより形成した堆積層であるにも関わらず、軽水素が捕捉されていたことから、捕捉された軽水素と重水素の合計に対する軽水素の割合も示す。予測に反し、水素同位体捕捉量は圧力の増加とともに減少した。堆積層は、多くの空隙、すなわち水素同位体捕捉サイトを多く有するが、プラズマ中の中性ガス分子との衝突により入射エネルギーが低下し、その結果、堆積層内への蓄積量が抑制されたものと考えている。今後、空隙率と飽和捕捉量の関係を調査する必要がある。

酸素捕捉量及び軽水素捕捉率は、圧力の増加とともに増加した。これは、放電ガス圧の増加と共に不純物水蒸気分圧が増加したことが原因であると推測している。軽水素は、堆積層成長表面に捕捉された重水素との同位体交換反応を介して捕捉されている可能性もあるが、軽水素捕捉機構の解明は今後の研究課題である。

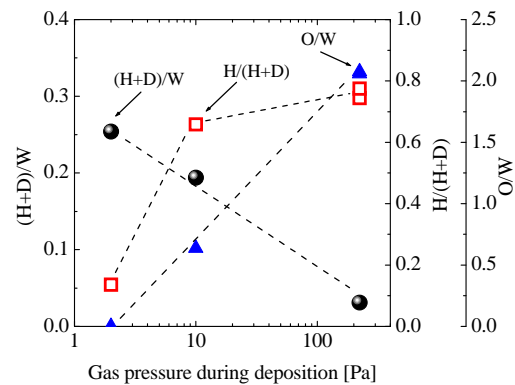


図4 水素同位体捕捉量(H+D/W)、軽水素捕捉率(H/H+D)、酸素捕捉量(O/W)のガス圧依存性。

### (4)水素同位体の放出挙動

図5に重水素プラズマスパッタリングで形成されたタングステン堆積層からの水素同位体及び水蒸気の等速昇温時放出曲線を示す。加熱開始直後にピークを示した後、200°C程度から放出が始まり、700°C程度まで放出が続くことがわかる。なお、800°Cでの

軽水素のピークはバックグラウンドであると結論している。この結果は、蓄積水素の大部分を回収するには、600°C以上の高温加熱が必要であることを示している。タングステンバルクに入射された水素同位体は、300°C程度でほとんど放出されることが知られており、バルクに比べて堆積層はより安定に水素同位体を保持することがわかった。

アルゴン雰囲気下での等温放出曲線の解析結果から、水素放出速度は残留水素濃度の2次に比例することが明らかとなった。このことは、水素が原子状態で堆積層中に捕捉されていることを示唆する。

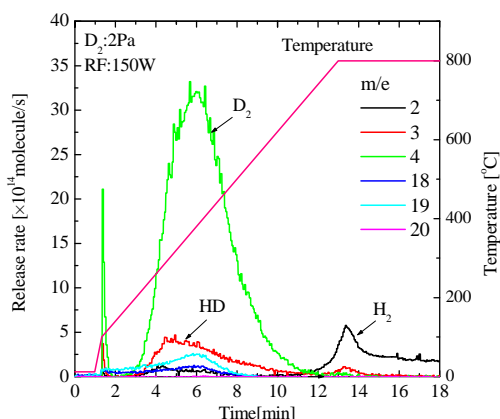


図5 等温昇温時のガス放出曲線

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計3件)

- ① Kazunari Katayama, Sansiro Kasahara, Shinichi Ishikawa, Satoshi Fukada, Masabumi Nishikawa, “Hydrogen incorporation in tungsten deposits growing by deuterium plasma sputtering,” Fusion Engineering and Design (2011) in press. 査読あり.
- ② Toshiya Fujiki, Kazunari Katayama, Sansiro Kasahara, Satoshi Fukada and Masabumi Nishikawa, “Effect of oxygen on hydrogen retention in W deposition layers formed by hydrogen RF plasma,” Fusion Engineering and Design, 85 (2010) 1094-1097. 査読あり.
- ③ K. Katayama, Y. Uchida, T. Fujiki, M. Nishikawa, S. Fukada, N. Ashikawa, T. Uda, “Hydrogen release from deposition layers formed from 316 stainless steel by hydrogen plasma sputtering,” Journal of Nuclear Materials, 390-391 (2009) 689-692. 査読あり.

[学会発表] (計10件)

- ① 片山一成、“プラズマ容器内とその周辺でのトリチウム挙動に関する研究,” 科研特定領域「核融合トリチウム」研究発表・

交流会、2011年3月5日、湯河原

- ② 片山一成、“タングステン再付着物中の水素挙動に関する研究,” PWI 合同研究会、2010年11月18日、核融合科学研究所
- ③ K. Katayama, S. Kasahara, S. Ishikawa, S. Fukada, M. Nishikawa, “Hydrogen incorporation in tungsten deposits growing by deuterium plasma sputtering,” The 26<sup>th</sup> Symposium on Fusion Technology, 2010年9月28日、ポルト
- ④ 石川進一郎、片山一成、笠原三四郎、深田 智、西川正史、大西泰仁 “プラズマ曝露による金属堆積層からの水素同位体脱離挙動,” 日本原子力学会、2010年9月17日、北海道大学
- ⑤ 片山一成、藤木俊也、笠原三四郎、深田智、西川正史、石川進一郎、“スパッタ金属堆積過程°Cの軽水素・重水素捕捉挙動,” 日本原子力学会、2010年3月27日、茨城大学
- ⑥ 片山一成、“プラズマ容器内でのトリチウム挙動に関する研究,” 科研特定領域「核融合トリチウム」若手交流研究発表会、2010年3月6日、御殿場
- ⑦ 片山一成、藤木俊也、笠原三四郎、石川進一郎、深田 智、西川正史、芦川直子、宇田達彦、“金属堆積層における水素同位体挙動,” プラズマ・核融合学会、2009年12月2日、京都市
- ⑧ T. Fujiki, K. Katayama, S. Kasahara, S. Fukada, M. Nishikawa, “Effect of oxygen on hydrogen retention in W deposition layers formed by hydrogen RF plasma,” The 9<sup>th</sup> International Symposium on Fusion Nuclear Technology, 2009年10月14日、大連
- ⑨ 片山一成、藤木俊也、笠原三四郎、深田智、西川正史、“金属堆積層への水素同位体ガス吸収に関する研究,” 日本原子力学会、2009年9月17日、東北大学
- ⑩ 片山一成、深田 智、西川正史、藤木俊也、笠原三四郎、石川進一郎、芦川直子、宇田達彦、“堆積層形成と水素同位体捕捉にk何する研究,” PWI 合同研究会、2009年8月5日、核融合科学研究所

[その他]

ホームページ等

http://

www.qpn.kyushu-u.ac.jp/lab5/index.html

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

片山 一成 (KATAYAMA KAZUNARI)

九州大学・大学院総合理工学研究院・助教

研究者番号：90380708