

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 6月 5日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011 ～ 2012

課題番号：23656573

研究課題名（和文）

イオンビーム解析によるプラズマ照射環境下での水素同位体動的吸蔵量のその場計測

研究課題名（英文）

In-situ measurement of dynamic hydrogen isotope retention under plasma exposure by using ion beam analysis

研究代表者

大野 哲靖 (OHNO NORIYASU)

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：60203890

研究成果の概要（和文）：

核融合プラズマの長時間保持のためにはプラズマ対向壁での粒子制御が鍵であり、適切な壁調整が重要である。特に水素同位体の装置の内壁及び構造材料での挙動を把握し、その動的挙動を予測することが極めて重要課題となっている。

以上の課題を明らかにするために本研究では、ダイバータプラズマ模擬試験研究で開発された小型高密度直流プラズマ源とバンデグラフ加速器を用いたイオンビーム解析装置を結合した装置を用いて、これまで不可能であったプラズマ照射環境下および直後の水素リテンション量のその場計測を行い、(1)炭素材中の動的リテンション量の直接計測と水素原子のイオン粒子束依存性、(2)炭素材中の重水素-軽水素置換のダイナミクス など未解明であったプラズマ-壁相互作用現象の物理機構を明らかにした。

研究成果の概要

（英文）：

Control of hydrogen isotope retention in plasma-facing components (PFC) is essential to establish steady-state operation. Understanding of dynamic behavior of hydrogen isotope retention in PFC is quite important related to optimization of the timing of fueling and flux dependence of chemical sputtering, and so on. However, these phenomena have not been understood yet, primarily due to the lack of proper plasma-surface analyses under plasma exposure.

In this study, we have investigated deuterium retention in graphite under and after plasma exposure by using a device of PS-DIBA (Plasma Surface Dynamics with Ion Beam Analysis), which makes it possible to carry out in-situ ion beam analysis of deuterium retention. We have clearly observed the dynamics retention in graphite material under deuterium plasma exposure, and analyzed the release time of dynamically retained deuterium particles depending on the deuterium ion flux. We also investigated dynamic behavior of hydrogen isotope exchange between deuterium and hydrogen species.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：プラズマ工学

科研費の分科・細目：総合工学・核融合学

キーワード：核融合，水素吸蔵，イオンビーム解析，プラズマ，その場計測

1. 研究開始当初の背景

環状磁場閉じ込め核融合装置において、燃

料の供給、回収、生成、分離のプロセスをプラント内で行うため水素同位体である放射

性トリチウムが分散して存在する。トリチウムは半減期が12.3年で弱い β 線を出し、移動性および透過性が高い、可燃性である、環境中および人体中での希釈が速く、ほとんど濃縮しないという特徴を持つ。国際熱核融合実験炉(ITER)においては、核融合炉内の蓄積許容量が1 kgに定められており、安全性を考慮し500-700 g程度が通常の運転における上限とされている。この値を超えるトリチウム量が炉内に蓄積した場合は、ITERで重水素-トリチウム(DT)放電を継続することはできず、トリチウムを除去し、許容量以下に減ずる必要がある。

また、プラズマ照射中には炉壁に吸蔵された燃料粒子である水素同位体が絶えず真空容器内に放出される。そのため、炉内の燃料粒子バランスを的確に制御し、安定的なプラズマを実現するためにも、炉壁に吸蔵される水素同位体の挙動を把握することが重要な課題となっている。

これまでの研究により、水素吸蔵(リテンション)には二つのものがあることが分かってきている。一つ目は静的(static)リテンションである。こちらは、粒子が空孔やボイドなどの材料中の結晶欠陥等に捕捉され続ける、すなわち、プラズマ照射を停止した後も粒子が欠陥に強く結合しており、材料から放出されにくいという特性を持つ。もう一つは動的(dynamic)リテンションと呼ばれ、プラズマ照射中又は直後において材料中を移動し、プラズマ照射等の粒子の供給が絶たれると材料中から再放出される。プラズマ照射中にはこれらの動的、静的リテンションの合計が材料全体の吸蔵量となる。

動的リテンションに関しては、その場計測を行える装置を開発することが難しく、研究例がほとんどないというのが現状である。

核融合発電時の燃料補給の最適タイミングや、化学スパッタリングのフラックス依存性の調査といった核融合発電実現において重要な研究も動的状況での実証例はほとんど存在しない。しかし、実際に大型のヘリカル装置であるLHDにおいて、放電停止直後にガス圧が上昇するという実験結果が観測されており、炉壁からの動的リテンション放出の影響が現れていると考えられる。

核融合発電の実現に向けて、動的吸蔵現象の解明は必要不可欠な課題である。

放射性物質であるトリチウムが炉内に蓄積すると、核融合炉の定常的な運転を妨げてしまう。そのため、炉内に蓄積したトリチウムの除染法を確立することが重要な課題の一つとなっている。この手法として、水素同位体置換現象が有力な方法と考えられている。しかし、その物理機構は解明されていない。

2. 研究の目的

これまで、イオンビーム装置、プラズマ装置、トカマク装置など様々な装置において、水素同位体の吸蔵現象が調査されてきた。しかし、それらの多くはイオンフラックスが不十分であったり、静的リテンションのみの観測に留まるといった問題を抱えていた。

本研究の目的は、新しく開発した高熱流プラズマ照射-イオンビーム解析複合装置PS-DIBA(Plasma Surface Dynamics with Ion Beam Analysis)を用いて、高フラックスのプラズマ照射と同時に核反応分析法を用いて、動的環境下での炭素材料中における水素同位体の吸蔵現象の調査を行う事である。さらにTMAP7シミュレーションを用いて、実験データと比較しながら、動的リテンションに対する物理的な洞察を与える。

さらに、トリチウムの除染技術の一つとして考えられている水素同位体置換に関する実験を実施し、軽水素プラズマ照射により、材料中の重水素がどのように減少していくかを明らかにする。

3. 研究の方法

図1にPS-DIBAの概観図を示す。本装置は大きく分けて、プラズマ生成部とイオンビーム部とで構成されている。

PS-DIBAはプラズマ照射装置とイオンビーム装置が一体となった新しい装置であり、ターゲット材料に対してプラズマを照射しながらイオンビームを用いて材料の組成変化を定量的に分析できる。本装置は、LaB₆製熱陰極と銅陽極を用いたプラズマ源、さらに磁場コイル、加熱・磁場・放電電源、試料チャンバー、半導体検出器、真空排気用のポンプ類を用いて構成されている。プラズマ放電のガス導入時でもイオンビーム源周辺部、イオンビーム分析用のディテクター部が高真空であることが必要なため、本体容器とディテクター真空容器、ビームラインでマイラー膜を用いて2種の差動排気を行っている。導入ガスの流量制御はマスフローコントローラ(HORIBASTEC INC PAC-D2)、マスフローメータ(HORIBASTEC SEC-E40 標準流量レンジ500 SCCM)を用いる。また、重水素-軽水素置換実験等を実施する際には本体を大気開放することなくガス種を変える必要がある。そのため、重水素、ヘリウム、水素の各ポンペに負側まで振れるレギュレータを取り付け、そこから出した管をクロス管につないでいる。これにより、それぞれのバルブを開閉することにより、大気開放をすることなく本体容器へ導入するガス種を任意に変換することが可能となっている。

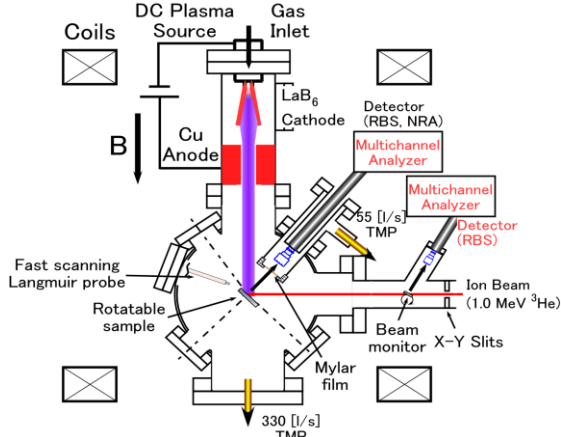
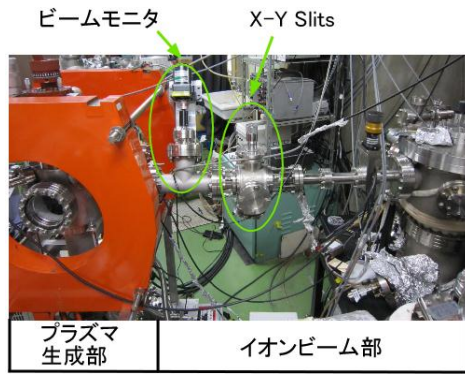


図1 PS-DIBA 概観図

プラズマ生成部ではフィラメント状の構造をした LaB_6 製熱陰極フランジと水冷式銅製陽極を用いた直流放電によりプラズマを生成する。典型的なプラズマパラメータは電子温度 $T_e \sim 7\text{eV}$ 、電子密度 $n_e \sim 10^{18}\text{ m}^{-3}$ である。

イオンビーム部では、バンデグラフ加速器を用いて発生させた 1.0 MeV の ^3He を試料に照射し、試料中の D との核反応により発生したプロトン粒子を半導体検出器を用いて検出している。本装置ではプラズマとイオンビームを同時に照射するために、イオンビームによる試料電流 ($\sim\text{nA}$) がプラズマ電流 ($\sim\text{mA}$) に隠れてしまい計測することができない。そのためビームモニタ用回転導入器を用いて試料へのイオンビームの照射量を計測している。ビームモニタ試料は、回転導入器上部に取り付けたモータにより一定間隔(数 Hz)で回転するようになっている。具体的には、まず吸蔵実験を行う前に、ビームモニタ用の試料と吸蔵実験用の試料にイオンビームを照射、RBS 計測をし、ビームモニタ用試料からの後方散乱により検出されたカウント数と吸蔵実験用の試料からの後方散乱により検出されたカウント数との比をとるなどビーム照射量校正用データを取得しておく。

また、プラズマによる電子加熱と空冷を組み合わせることにより、実験を通して試料温

度を一定に保つ事が可能となっている。

4. 研究成果

4. 1 重水素動的リテンション計測実験

試料に等方性黒鉛 ETU-10 (IBIDEN CO., LTD) を用いて、重水素吸蔵実験を行った。図 4.1 に試料温度 400 K 、 450 K 、 500 K 、 550 K において、重水素プラズマを照射した際の重水素吸蔵量の変化を示す。

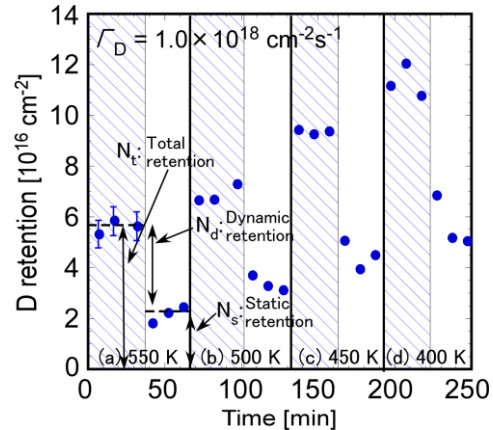


図2 様々な試料温度でのプラズマ照射中、照射停止後の重水素吸蔵量

図中プロットは 10 分間隔である。図中斜線部において重水素イオンフラックス $\Gamma_D = 1.0 \times 10^{18}\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$ 、入射イオンエネルギー 33 eV の重水素プラズマを照射している。その他の部分では電子加熱を用いて試料温度を直前のプラズマ照射時と同じ温度に保っている。まず、 550 K での吸蔵量に着目すると、プラズマ照射開始後すぐに $5.6 \times 10^{16}\text{ cm}^{-2}$ の吸蔵量 (合計の吸蔵量 N_t) に達し、飽和していることが分かる。そして、プラズマ照射を停止すると吸蔵量が急激に減少していることが分かる。この急激な減少分 $3.5 \times 10^{16}\text{ cm}^{-2}$ が動的リテンション N_d であると考えられ、プラズマ照射停止後に材料中に保持されている $2.1 \times 10^{16}\text{ cm}^{-2}$ の吸蔵量が静的リテンション N_s に対応する。その他の 500 K 、 450 K 、 400 K の温度においても同様の傾向が観測された。そして、温度が低いほど吸蔵量が増加するという傾向が観測された。また、本実験では同一試料に対してプラズマを照射しながら試料温度を変化させているが、吸蔵量が飽和していれば、先の照射の履歴は反映されないことを確認している。すなわち、図 2 の 400 K の実験の後に再度試料温度を 550 K に変化させて吸蔵量を計測すると、図中 (a) と同程度の吸蔵量となるプラズマ照射停止前後において、吸蔵量が大きく変化しており、動的リテンションが観測できていることが分かる。

図 3 は重水素プラズマフラックスに対する動的吸蔵量の関係を示したグラフである。

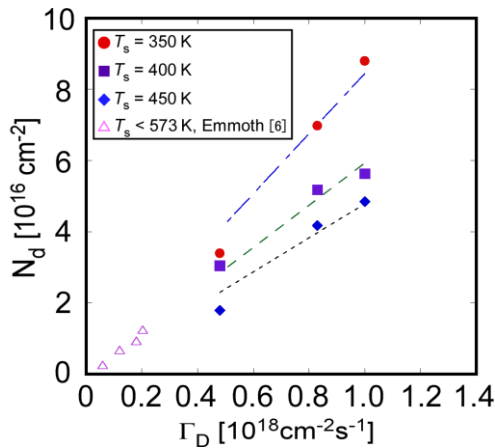


図3 動的吸蔵量と放出時間 τ の温度、重水素イオンフラックス依存性

図から、動的吸蔵量は重水素プラズマフラックスに比例していることが分かる。動的リテンションがどの程度の時間スケールで放出されているのかを以下のモデル式を用いて考察した。

$$\frac{dN_d}{dt} = \Gamma_D - \frac{N_d}{\tau}$$

ここで τ はプラズマ照射中における動的リテンションの放出時間である。定常状態において、上式は

$$N_d = \Gamma_D \tau$$

とかける。そこで、図3のグラフにおいて、横軸を反射係数を考慮したフラックスとした傾きから放出時間 τ を見積もった。Emmothの実験結果では試料の温度コントロールが不可能であったため、放出時間を $\tau = 56$ ms (< 573 K)としている。しかし、本実験では高フラックスのプラズマ照射と、詳細な温度コントロールが可能であるため、350 Kで106 ms、400 Kで74 ms、450 Kで60 msというプラズマ照射中の動的リテンション放出時間の温度依存性を確認することができた。

これらの物理現象を考察するために、TMAP7によるシミュレーションを用いた。その結果、実験で計測された重水素吸蔵量や動的吸蔵現象を再現するためには、黒鉛における重水素の拡散係数は8桁、再結合係数は20桁程度文献値として知られているものよりも大きい必要がある事が分かった。さらに、これらの拡散係数、再結合係数において、重水素吸蔵が拡散律速であること、動的吸蔵粒子の放出時間が数十ミリ秒程度であることも確認された。

4.2 水素同位体置換実験

材料中に吸蔵されたトリチウムの除去手段の一つとして考えられている、水素同位体置換現象に着目した。図4に重水素プラズマ、

軽水素プラズマ照射による試料中の重水素吸蔵量の時間変化を示す。

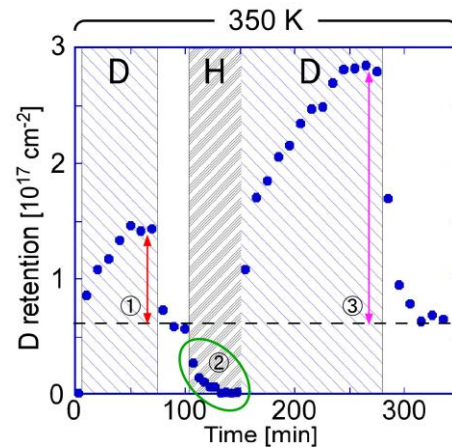


図4 重水素 - 軽水素置換実験結果

図中プロットは軽水素プラズマ照射時は時間間隔5分、それ以外は10分である。図4の斜線部において重水素もしくは軽水素プラズマを照射しており、その他の部分は電子加熱を行っている。また、実験全体を通して試料温度は350 Kに固定されている。重水素プラズマのフラックスは $8.7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 、入射イオンエネルギーは33 eV、軽水素プラズマのフラックスは $2.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ である。軽水素プラズマ照射による同位体置換現象を明確にするために、はじめに試料中の重水素吸蔵量が飽和するまで重水素プラズマを照射し、その後プラズマ照射を停止し、静的リテンションのみにしてから軽水素プラズマを照射した。軽水素プラズマを照射すると重水素吸蔵量が急激に減少することを確認した。また、図の①と③との比較から、軽水素プラズマ照射後、重水素プラズマを再度照射すると、軽水素プラズマ照射前と比べて照射中の重水素吸蔵量が増加した。この現象の詳細な原因は未解明であるが、静的吸蔵量は変化せず、動的吸蔵量のみが変化していることから、水素フラックスが試料に何らかの影響を与え、試料における重水素の拡散係数もしくは再結合係数が変化した可能性が考えられる。

この実験を異なる二つのフラックス ($2.1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, $1.2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$)で行うと共に、比較のために電子加熱 (Electron Heating) による重水素吸蔵量の減少を計測した。図5は各水素プラズマフラックスを照射した際の重水素吸蔵量の減少率を示す。図5から、軽水素プラズマ照射によって重水素吸蔵量は指数的に減少しており、フラックスが大きいほどより急激に減少していることが分かる。このことから、材料中のトリチウムを除去する際にはより高フラックスで水素同位体プラズマを照射することが効果的であると考え

られる。

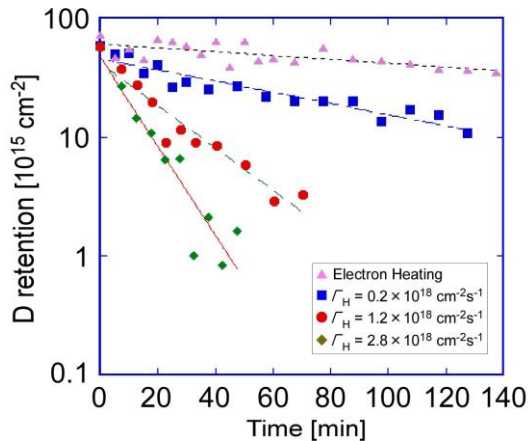


図5 軽水素プラズマ照射による重水素吸蔵量時間変化

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 4 件)

① Y.Nakamura, M.Yamagiwa, T.Kaneko, N.Matsunami, N.Ohno, S.Kajita, M.Takagi, M.Tokitani, S.Masuzaki, “Study of Hydrogen Isotopes Behavior in Carbon Based Materials with In-Situ Ion Beam Analysis under Plasma Exposure”, *Journal of Nuclear Materials*, 査読有, <http://dx.doi.org/10.1016/j.jnucmat.2013.01.226>, 2013.

② N.Ohno, Y.Hirahata, M.Yamagiwa, S.Kajita, M.Takagi, N.Yoshida, R.Yoshihara, T.Tokunaga, M.Tokitani, “Influence of crystal orientation on damages of tungsten exposed to helium plasma”, *Journal of Nuclear Materials*, 査読有, <http://dx.doi.org/10.1016/j.jnucmat.2013.01.190>, 2013.

③ N.Matsunami, T.Sogawa, Y.Sakuma, N.Ohno, M.Tokitani, S.Masuzaki, “Deuterium retention in Fe₂O₃ under low-energy deuterium-plasma exposure”, *Physica Scripta*, 査読有, Vol. T145, 2011, 014042(4 pp).

④ M.Yamagiwa, Y.Nakamura, N.Matsunami, N.Ohno, S.Kajita, M.Takagi, M.Tokitani, S.Masuzaki, A.Sagara and K.Nishimura, “In situ measurement of hydrogen isotope retention using a high heat flux plasma generator with ion beam analysis”, *Physica Scripta*, 査読有, Vol. T145, 2011, 014032(5 pp).

[学会発表] (計 12 件)

① T.Kaneko, M.Yamagiwa, Y.Nakamura, N.Matsunami, N.Ohno, S.Kajita, “Influence of Hydrogen Isotope Retention on Secondary Electron Emission from Carbon Materials”, IC-PLANTS2013, Gero Synergy Center (岐阜

県), 2013.2.2 (ポスター発表), 2013.

② Y.Nakamura, M.Yamagiwa, T.Kaneko, N.Matsunami, N.Ohno, M.Takagi, S.Kajita, M.Tokitani, S.Masuzaki, “Study of hydrogen isotope exchange in graphite with PS-DIBA device”, IC-PLANTS2013, Gero Synergy Center (岐阜県), 2013.2.2 (ポスター発表), 2013.

③ 山際正人, 中村祐貴, 金子達也, 遠藤博史, 松波紀明, 高木誠, 大野哲靖, 梶田信, 上田良夫, 「イオン照射損傷を与えたタングステン中の動的重水素吸蔵計測」、プラズマ核融合学会第29回年会、クローバープラザ (福岡県)、2012.11.27 (ポスター発表)、2012.

④ 金子達也, 山際正人, 中村祐貴, 松波紀明, 大野哲靖, 梶田信, 「プラズマ対向材への水素及び希ガスプラズマ照射下における重水素脱離挙動」、プラズマ核融合学会第29回年会、クローバープラザ (福岡県)、2012.11.27 (ポスター発表)、2012.

⑤ 金子達也, 山際正人, 中村祐貴, 松波紀明, 大野哲靖, 梶田信, 「炭素材料における水素吸蔵が二次電子放出特性に与える影響」、平成24年度電気関係学会東海支部連合大会、豊橋技術科学大学 (愛知県)、2012.9.24 (口頭発表)、2012.

⑥ 山際正人, 中村祐貴, 金子達也, 松波紀明, 大野哲靖, 高木誠, 梶田信, 時谷政行, 「PS-DIBAを用いたタングステンの重水素吸蔵量その場計測」、第9回核融合エネルギー連合講演会、神戸国際会議場 (兵庫県)、2012.6.28 (ポスター発表)、2012.

⑦ 中村祐貴, 山際正人, 金子達也, 松波紀明, 大野哲靖, 高木誠, 梶田信, 時谷政行, 「プラズマ照射下におけるグラファイトの重水素吸蔵特性の温度依存性」、第9回核融合エネルギー連合講演会、神戸国際会議場 (兵庫県)、2012.6.28 (ポスター発表)、2012.

⑧ Y.Nakamura, M.Yamagiwa, N.Matsunami, N.Ohno, M.Takagi, S.Kajita, M.Tokitani, S.Masuzaki, “Study of Hydrogen Isotopes Behavior in Carbon Based Materials with In-Situ Ion Beam Analysis under Plasma Exposure”, 20th International Conference on Plasma Surface Interactions in Fusion Devices(PSI2012), Eurogress Aachen, Germany, 2012.5.24 (ポスター発表), 2012.

⑨ Y.Nakamura, M.Yamagiwa, N.Matsunami, N.Ohno, M.Takagi, S.Kajita, N.Tokitani, S.Masuzaki, “Study of Hydrogen Isotopes Behavior in Graphite with PS-DIBA Device”, PLASMA2011, 石川県立音楽堂 (石川県), 2011.11.24 (ポスター発表), 2011.

⑩ M.Yamagiwa, Y.Nakamura, N.Matsunami, N.Ohno, M.Takagi, S.Masuzaki, M.Tokitani, A.Sagara, “PS-DIBA(Plasma Surface Dynamics with Ion Beam Analysis) device for in-situ measurement of deuterium retention under high

heat flux plasma exposure”, APFA2011, 桂林 (中国), 2011.11.2 (ポスター発表), 2011.

⑪ M.Yamagiwa, Y.Nakamura, N.Matsunami, N.Ohno, S.Kajita, M.Takagi, M.Tokitani, S.Masuzaki, A.Sagara, K.Nishimura, “In-situ measurement of hydrogen isotope retention using ion beam analyses during plasma exposure”, 13th International Workshop on Plasma-Facing Materials and Components for Fusion Applications and 1st International Conference on Fusion Energy Materials Science, ローゼンハイム (ドイツ), 2011.5.12 (口頭発表), 2011.

⑫ T.Sogawa, N.Matsunami, N.Ohno, M.Tokitani, S.Masuzaki, “Deuterium-retention in iron oxides under low energy D2+-plasma exposure”, 13th International Workshop on Plasma-Facing Materials and Components for Fusion Applications and 1st International Conference on Fusion Energy Materials Science, ローゼンハイム (ドイツ), 2011.5.11 (ポスター発表), 2011.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

大野 哲靖 (OHNO NORIYASU)

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：60203890

(2)研究分担者

松波 紀明 (MATSUNAMI NORIAKI)

名古屋大学・エコトピア科学研究所・准教授

研究者番号：70109304

(3)連携研究者 なし