グラファイト中に注入された重水素の挙動*

雨宮 進**・三輪 仁**・増田 俊雄**
釣田 幸雄**・石川 和幸**・加藤 敏郎**

(昭和59年12月13日 受理)

Trapping, Detrapping and Replacement of Deuterium
Implanted into Graphite

Susumu AMEMIYA**, Hitoshi MIWA**, Toshio MASUDA**
Yukio TSURITA**, Kazuyuki ISHIKAWA** and Toshio KATOH**

(**Department of Nuclear Engineering, Nagoya University, Nagoya)

(Received December 13, 1984)

1. はじめに

核融合炉開発研究において、プラズマ壁相互作用 (PWI) の解明は、益々重要性を増している。特に、核融合炉燃料である水素同位体のリサイクリング過程及びトリチウムインベントリを知る上で、第一壁候補材における水素同位体イオンの吸蔵、置換、放出等の挙動の解明は重要である^{1,2)}。本研究では、低原子番号であり、有力な第一壁候補材として注目されるグラファイトをとりあげ、国産実用グラファイトをも含めた各種試料を用いた。これらグラファイト試料中に重水素イオンを注入した際に試料中に吸蔵される重水素量、軽水素イオン注入による同位体置換及び試料加熱による重水素の放出について、核反応 (NRA) 及び残留ガス分析法 (RGA) を用いて測定を行った。

2. 実 験

試料としては、Table 1 に示す各種高純度・高密度グラファイトを用いた。各グラファイト試料は、15 mm × 15 mm × 1 mm (厚) に切り出し、機械的に鏡面研磨し、脱脂洗浄及び約 200°C、20 分間の温風乾燥の後、超高真空散乱槽に装着し、加熱処理 (900°C、1 時間) を行った。試料の加熱は Ta ヒーターを用い、室温から 900°C まで

の範囲で行った。試料温度は熱電対 (クロメル、アルメル) により測定した。また、重水素イオンの試料への注入は、3 kV イオン銃を用いて行った。重水素の注入量は、7 mm × 7 mm の範囲に、 4.2×10^{17} ion/cm² で注入した。試料に吸蔵された重水素を核反応法 (NRA) によって測定した。バンデグラフ加速器によって 700 keV に加速した ³He⁺ 粒子を、超高真空散乱槽内の試料に照射し、核反応 D(³He, α)H によって放出されるアルファ及びプロトン粒子を Si 表面障壁型検出器によって検出した。得られたエネルギースペクトルから試料中に吸蔵された重水素の絶対量を非破壊的に求めた。核反応法による重水素の定量限界は 3×10^{13} D/cm² である。バンデグラフ加速器と超高真空散乱槽との間は、2 段の差動排気を介して接続されており、³He イオンビーム導入時の圧力は、 2×10^{-7} Pa であった。また、試料の加熱中、各温

Table 1 List of graphite samples used in this experiments.

Sample	Forming	Bulk Density	Manufacturer
AXF-5Q	MOLD (ISO)	1.84 g/cm ³	POCO Graphite
ISO-88	MOLD (ISO)	1.90 g/cm ³	Tokyo Tanso
G-1950	MOLD	1.95 g/cm ³	Tokai Carbon
P.G	C.V.D.	2.20 g/cm ³	Union Carbide

* 昭和59年10月30日 第25回真空に関する連合講演会にて講演 (30Ap-14)

** 名古屋大学工学部原子核工学科 (名古屋市中種区不老町)

Fig. 1 Deuterium retention versus implantation dose of 3 keV D in graphite samples.

度において試料より放出される重水素及びその化合物を、四重極型質量分析計 (QMA) を用いて測定した。

2.1 重水素イオン注入による重水素の吸蔵

各グラファイト試料へ重水素イオンを注入する過程で、重水素イオン注入量と、核反応法により求められた試料中の重水素吸蔵量との関係を測定した。

2.2 軽水素イオン注入による同位体置換

重水素イオンを飽和値まで注入した試料に、3 keV に加速した軽水素イオンを 1.5×10^{18} ion/cm² まで注入し、注入量に対する試料中の重水素量の変化を核反応法により測定した。

2.3 試料加熱による重水素の放出

重水素イオンをその飽和値 (約 3×10^{17} D/cm²) まで注入した試料を、約 1×10^{-7} Pa の圧力下で、試料温度 20, 150, 350, 500, 600, 650, 700, 750, 800, 850°C でそれぞれ20分間保持し、その間に放出される重水素及びその化合物を QMA により測定した。また、試料を自然冷却後、試料中に残存する重水素量を核反応法により測定した。

3. 結果及び考察

3.1 重水素イオン注入による重水素の吸蔵

グラファイト試料中に 3 keV の重水素イオンを注入した際の注入量と、重水素吸蔵量との関係を Fig. 1 に示す。重水素吸蔵量は、重水素注入量約 2×10^{17} D/cm² で飽和を始め、飽和値 3×10^{17} D/cm² が得られた³⁾。

3.2 軽水素イオン注入による同位体置換

軽水素イオン注入量と試料中に残存する重水素量との

Fig. 2 Isotopic replacement curve for various graphite implanted with 3 keV D and H.

関係を Fig. 2 に示す。軽水素イオン注入量の増加に伴って試料中の重水素量は指数関数的に減少した。軽水素イオン注入量 5×10^{17} ion/cm² 付近で減少率はゆるやかになった。また、AXF-5Q と G1950 の測定値に対して、ISO88 は異なった測定値を示したが、カサ比重その他の諸元との一貫した関連は見出せない。この差異の原因としては、試料の前処理等の実験手順のわずかの相違等が考えられるが、現段階では明確になっていない。

重水素イオン注入による重水素の吸蔵及び軽水素イオン注入による同位体置換を説明する理論として、Doyle, Wampler らの提唱する LMM (Local Mixing Model)^{3,5)} がある。これは、未飽和領域に入射した水素同位体はそこにトラップされ、飽和領域に入射した水素同位体は、先にトラップされたものと場所を争い、場所を失った方は消失するという仮定に基づくものである。この LMM を基にして軽水素イオン注入による重水素の深さ分布の変化を計算すると、Fig. 3 のようになる。重水素イオン注入による重水素の吸蔵量及び軽水素イオン注入による重水素の残存量の変化を LMM を基に計算してそれぞれ Fig. 1, Fig. 2 の実線で示した。測定値と理論値は、よい一致を示した。Fig. 2 における、軽水素イオン注入量の大きい範囲での多少の不一致は、消失すると仮定された重水素が、実際は完全に消失せず測定範囲の試料内に残っているためであると考えられる。

3.3 試料加熱による重水素の放出

試料温度と重水素残存量との関係について得られた結果を、Fig. 4 に示す。全ての試料について、試料温度約 500°C より放出が始まり、最高加熱温度 900°C においても

Fig. 3 Calculated D concentration versus depth profiles for 3 keV D implanted to saturation and subsequent replacement with 3 keV H.

なお放出は続いた⁴⁾。また、試料温度と放出される重水素素及びその化合物の分圧との関係をFig. 5に示す。分子量4(D₂), 3(HD), 20(CD₄, D₂O)が、核反応法により重水素量の減少が測定された同じ温度範囲において検出された。分子量20(CD₄, D₂O)は、650℃で放出量が最大となり、850℃でほぼ0になったが、他のものは最後まで放出が続いた。また、グラファイトの種類によって試料温度と重水素放出との関係に差異があったが、カサ比重その他の諸元との関連は明確ではない。

4. 結 論

各種グラファイト中での、重水素イオン注入による重水素の吸蔵、軽水素イオン注入による同位体置換について測定し、LMMによる計算結果とよい一致が得られ、吸蔵・置換過程が明らかになった。

また、試料加熱による重水素の放出について、核反応法による重水素残存量の絶対値測定と残留ガス分析法を併用することにより、重水素の放出量と放出形態が明らかになった。

〔文 献〕

- 1) K. L. Wilson: J. Nucl. Mater. **103 & 104** (1981) 453-464.
- 2) A. Miyahara: J. Nucl. Mater. **111 & 112** (1982) 461-478.
- 3) B. L. Doyle, W. R. Wampler, D. K. Brice and S. T. Picraux: J. Nucl. Mater. **93 & 94** (1980) 551-557.

Fig. 4 Deuterium retention versus sample temperature for various graphite samples.

Fig. 5 Temperature dependence of reemission of D₂ and its compounds.

- 4) B. L. Doyle, W. R. Wampler and D. K. Brice: J. Nucl. Mater. **103 & 104** (1981) 513-518.
- 5) P. K. Brice, B. L. Doyle and W. R. Wampler: J. Nucl. Mater. **111 & 112** (1982) 598-605.