



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	プラズマ対向材料中に保持されている水素に対するコンディショニング
Author(s)	山内, 有二; 小山, 和則; 金谷, 康 他
Citation	北海道大學工学部研究報告, 175, 45-50
Issue Date	1995-10-31
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/42465
Type	departmental bulletin paper
File Information	175_45-50.pdf



プラズマ対向材料中に保持されている水素に対するコンディショニング

山 内 有 二 小 山 和 則 金 谷 康
広 畑 優 子 日 野 友 明 山 科 俊 郎

(平成 7 年 6 月 5 日受理)

Conditionings for Hydrogen Retention of Plasma Facing Material

Yuji YAMAUCHI, Kazunori KOYAMA, Koh KANAYA, Yuko HIROHATA,
Tomoaki HINO and Toshiro YAMASHINA

(Received June 5, 1995)

Abstract

For isotropic graphite, SiC converted graphite and B₄C converted graphite, the conditions of baking and He ion impact for the reduction of retained hydrogens are discussed based on a hydrogen desorption model. For this purpose, the existing data concerning the hydrogen retention and the helium ion irradiation are employed. It is seen that the hydrogen trapped in form of C-H or Si-H bonding can not be desorbed by baking alone. Thus, the He discharge cleaning has to be applied for C-H and Si-H bondings. The hydrogen trapped in form of B-H bonding is very easily desorbed by baking alone with temperature of only 300 °C.

1. 序 論

核融合炉において、種々の粒子あるいはイオンが炉心の最も近くに配置されるプラズマ対向壁に入射する。このうち、燃料として使用されている水素粒子が対向壁に入射すると、対向壁中に水素が捕捉あるいは保持される。これは水素リテンションといわれている。この保持された水素が熱的あるいはイオン衝撃によって放出され、再び炉心プラズマに混入する。これは水素リサイクリングと呼ばれている。この現象が頻繁に起こるようになると、周辺プラズマに mhd 不安定が起り最も重要なプラズマパラメーターであるエネルギー閉じこめ時間が劣化し、プラズマの蓄積エネルギーが急激に減少するようになる。水素リテンション量が増加すると水素リサイクリングの頻度も増大するため、実機では主放電の前に対向壁を加熱（ベーキング）したり、ヘリウム放電洗浄を行って、対向壁中の水素リテンション量を低減させている。

一方、核融合炉のプラズマの閉じこめ特性を向上させるために、対向材料の表面を改質している。その代表的なものは、プラズマ中の酸素不純物レベルを低減させるために使用されているボロンコーティングあるいは B₄C コーティングした黒鉛 (B₄C 転化材)⁽¹⁾⁻⁽³⁾、水素リテンションの低減に効果があるシリコニゼーションあるいは SiC をコーティングした黒鉛 (SiC 転化材)⁽⁴⁾である。しかし、これら材料を対向壁として用いた場合、その水素リテンション量やリテンションの

低減のためのベーキングおよび He 放電洗浄の条件について十分に評価されていない。

本研究では、実機で使用している等方性黒鉛および B_4C 転化材、今後適用が考えられている SiC 転化材に対して、水素リテンションの熱脱離および He イオン衝撃による脱離のモデル⁽⁵⁾を適用して適切なコンディショニング条件を考えた。モデル計算において我々の研究室ですでに取得しているデータを用いた^{(6),(7)}。

2. 水素リテンションの除去モデル

まず、モデル計算に用いた実験データについて述べる。試料として、日立化成社製の等方性黒鉛⁽⁸⁾、その等方性黒鉛の表面に B_4C 層を被覆した B_4C 転化材⁽⁶⁾、さらに炭素繊維複合材料の表面に SiC 層を被覆した SiC 転化材を用いた。まず、この試料中に水素を保持させるために、ECR イオン源⁽⁶⁾を用いて水素イオン (5 keV, H_3^+) を室温で照射した。この際の水素イオンの照射量は、飽和レベル以上の 5×10^{18} H/cm² である。その後、昇温脱離分析を用いて、材料中の水素リテンション量を評価した。また、このとき測定した水素の脱離スペクトルから脱離の活性化エネルギーを求めた⁽⁹⁾。なお、このときの反応は、拡散律則の一次の脱離と仮定している⁽¹⁰⁾。次に、He イオン照射による水素除去効果を調べるため、すでに水素が保持されている試料に、引き続きヘリウムイオン (5 keV, He^+) を約 3×10^{18} He/cm² の照射量まで照射した。その後同じく昇温脱離分析法により残留している水素リテンション量を求めた。

次に今回適用した水素脱離のモデルについて述べる。 B_4C や SiC 等の2成分材料中にトラップされている水素は、各成分に捕捉されていると考えられ実験的にも証明されている^{(6),(7)}。即ち、SiC 中の水素は、Si-H もしくは C-H の形でトラップされている。もし、その水素が熱的に、あるいはヘリウムイオン衝撃によって脱離する場合、その脱離確率は結合状態に依存すると考えられる。ここで、 i という成分に結合している水素密度を n_i とすると、粒子バランスの式は以下の式で与えられる⁽⁵⁾。

$$\frac{dn_i}{dt} = -v_i^0 \exp(-E_i/kT) n_i - \sigma_i^{He} J_{He} n_i. \quad (1)$$

ここで、 v_i^0 は反応定数 ($\sim 10^{13}$ /s), E_i は脱離の活性化エネルギー (eV), k はボルツマン定数 (8.62×10^{-5} eV/K), T は試料温度 (K), σ_i^{He} はヘリウムイオン衝撃による水素脱離断面積 (cm²), および J_{He} はヘリウムイオン照射束 (He/cm²・s) である。従って、水素密度の初期値、即ち加熱およびヘリウムイオン照射を施す前の濃度を n_i^0 とすると水素濃度 n_i は以下の式となる。

$$n_i = n_i^0 e^{-t/\tau_i}. \quad (2)$$

ここで、 τ_i は減衰時定数 (s) であり水素濃度が初期の濃度の 1/e となる時間である。すなわち、

$$\tau_i = (v_i^0 \exp(-E_i/kT) + \sigma_i^{He} J_{He})^{-1}. \quad (3)$$

従って、水素濃度を n_i に減少させるまでのコンディショニング時間 t は次式で表される。

$$t = \tau_i \ln(n_i^0/n_i) = \frac{\ln(n_i^0/n_i)}{v_i^0 e^{-E_i/kT} + \sigma_i^{He} J_{He}} \quad (4)$$

この表式で、脱離の活性化エネルギー E_i およびヘリウムイオン衝撃脱離断面積 σ_i^{He} はわかっていないので、実験データから求めた。本研究では、脱離を拡散律則の一次の脱離と仮定しており、脱

離のピーク温度を T_p とするとピーク温度と活性化エネルギーは次式で関係づけられている⁽⁹⁾。

$$\frac{E_i}{kT_p} \approx \ln \frac{\nu_i^0 T_p}{\beta} - 3.46 \quad (5)$$

ここで β は昇温速度 (K/s) である。また、ベーキング温度が低い場合、(4) 式の熱脱離の項は無視できヘリウムイオン衝撃脱離断面積は、

$$\sigma_i^{He} \approx \frac{1}{J_{He} t} \ln \left(\frac{n_i^0}{n_i} \right) \quad (6)$$

となる。したがって、ヘリウムイオンの照射量、ヘリウムイオンを照射した場合の残留水素リテンション量、およびヘリウムイオンを照射しなかった場合の水素リテンション量よりヘリウムイオン衝撃脱離断面積を見積もることができる。

3. コンディショニング条件の比較

Fig. 1 に、脱離の活性化エネルギーおよびヘリウムイオン衝撃による脱離断面積を求めるために測定した水素脱離スペクトルの一例を示す。これは SiC 転化材に対するものであり、縦軸は水素脱離率を示し、横軸の時間は試料温度に対応している。図中の破線はヘリウムイオン照射前の水素の脱離スペクトル、実線はヘリウムイオン照射後の水素脱離スペクトルを示している。図中のスペクトルで見られるように、SiC 転化材では2つのピークを持った水素脱離スペクトルが得られた。ここで脱離の低温側ピークは Si-H 結合からの水素の脱離、高温側ピークは C-H 結合からの脱離と考えられる⁽⁷⁾。同様なスペクトルが B₄C 転化材でも得られ、低温側のピークは B-H 結合からの水素の脱離、高温側は SiC 転化材と同じく C-H 結合からの脱離と考えられる⁽⁶⁾。各成分に起因する脱離のピーク温度および水素リテンション量を、スペクトルをピーク分離して求めた。

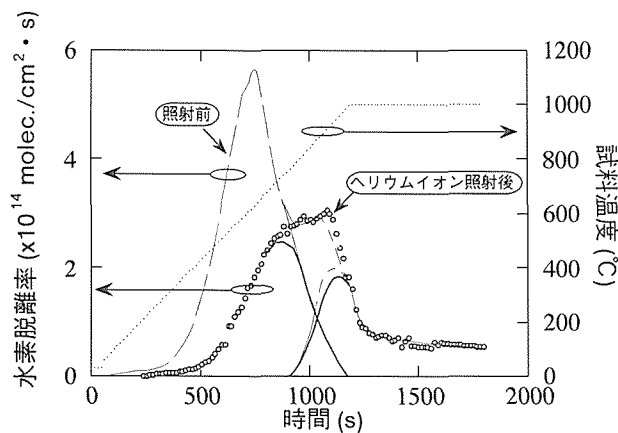


Fig. 1 SiC 転化材の水素脱離スペクトル

Table 1 熱脱離の活性化エネルギー E_i

結合種	C-H	B-H	Si-H
E_i (eV)	3.0	1.8	2.6

Table 2 He イオン衝撃による脱離断面積 σ_i^{He}

結合種	C-H	B-H	Si-H
$\sigma_i^{He} (cm^2)$	5.6×10^{-19}	2.3×10^{-18}	3.5×10^{-19}

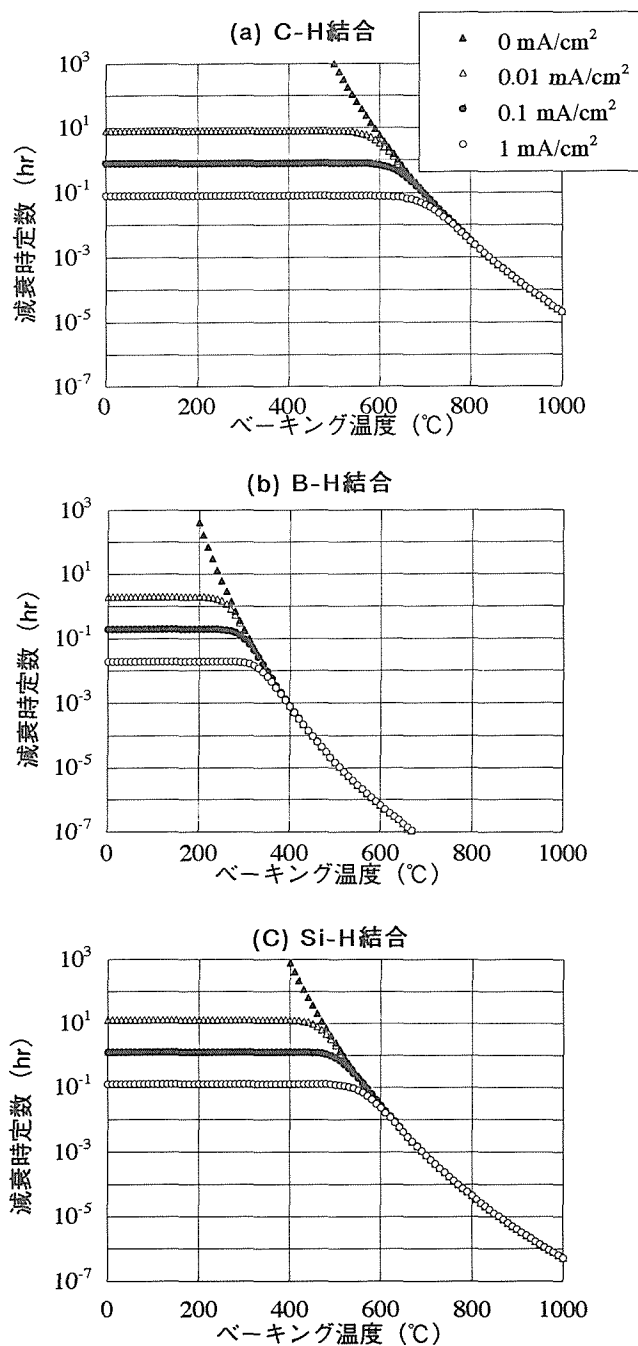


Fig. 2 減衰時定数のベーク温度依存性

それぞれの脱離のピーク温度から求めた C-H, B-H, および Si-H 結合の脱離の活性化エネルギーを Table 1 に示す。C-H 結合の活性化エネルギーが Si-H 結合および B-H 結合よりも大きくなった。次に、それぞれの脱離ピークに関する残留水素リテンション量と照射前の水素リテンション量から求めたヘリウムイオン衝撃による脱離断面積の値を Table 2 に示す。ここでは、B-H 結合の脱離断面積がもっとも大きく、他の値と比べて1オーダー程度大きな値となった。これら2つの値の大小関係から、B-H 結合の水素がもっとも容易に除去されやすいことが予測できる。コンディショニングのしやすさの目安のため、それぞれの結合の水素量が1/e になる時間 τ_i を算出した。Fig. 3 に τ_i とベーキング温度の関係を示す。(a) は C-H 結合(等方性黒鉛)、(b) は B-H 結合、および(c) は Si-H 結合の減衰時定数を示している。図中、0 mA/cm² の値はベーキングのみ行った場合の時定数であり、その他は各照射束でヘリウムイオン照射とベーキングを行った場合の τ_i である。これらの図は次の特徴を持っている。低温側では熱脱離はほとんど起きず、水素は主にヘリウムイオン衝撃により脱離する。それに対し、高温側では熱脱離する水素が多数をしめ、ヘリウムイオン照射の効果は熱脱離に比べて相対的に小さいことがわかる。

Table 3 水素リテンション量が1時間で1/e となる条件

	ベーキングのみ	He イオン照射のみ
C-H 結合	910K	0.08mA/cm ²
B-H 結合	550K	0.02mA/cm ²
Si-H 結合	790K	0.13mA/cm ²

結合間で比較すると、ヘリウムイオン照射を行わない場合、B-H 結合では300°Cのベーキング温度でもかなり短い時間で水素を除去できるのに対し、C-H 結合の場合は300°Cではほとんど減少しない。0.1 mA/cm² のヘリウムイオン照射を行った場合、C-H 結合あるいは Si-H 結合では約1時間で水素リテンションが1/e になるが、B-H 結合では約20分程度で1/e に減少することがわかった。これらのコンディショニングを比較するため、1時間で水素リテンション量が1/e となる条件を Table 3 に示す。必要なベーキング温度で比較すると、やはり B-H 結合の値が最も小さくなり、300°Cのベーキング温度でかなり大きく減少することが分かる。他の2つの結合では、500°C以上で水素リテンション量が1/e となるため、ベーキングのみでは水素の除去が不十分であることが分かる。一方、ヘリウムイオン照射のみの場合でも、B-H 結合が最も低い電流密度、即ち小さい照射束で効果的に除去できることがわかった。また、ベーキングのみ行った場合とは異なり、ヘリウムイオン照射を行った場合では Si-H 結合の水素が最も除去されにくいことが分かった。ヘリウムイオンのエネルギーがより低い実機の場合でも、この傾向は同様と考えられる。

以上より、上記の3つの材料に対して、ベーキングのみでは十分に水素を取り除けずヘリウム放電洗浄が必要であることがわかった。C-H 結合および Si-H 結合の水素と比較して、B-H 結合の水素は300°Cのベーキングのみでも十分除去可能であることがわかった。

3. ま と め

本研究では、等方性黒鉛、B₄C 転化材および SiC 転化材の水素リテン特性の実験データを用いて、水素リテンションの除去モデルに適用して、適切なコンディショニング条件を検討した。以下に結果の要点を示す。

- (1) C-H 結合および Si-H 結合に対しては、ベーキングのみで水素を除去させることはできない。従って、C-H 結合あるいは Si-H 結合の水素を脱離するには、ヘリウム放電洗浄の併用が必要であることがわかった。
- (2) B-H 結合の水素は、本研究で評価した中でもっとも効果的に除去でき、通常行われている 300°C のベーキングのみでもかなり除去できることがわかった。

参 考 文 献

- 1) J. Winter, J. Nucl. Mater. 162-164(1989) 713.
- 2) H. Hirooka et al, J. Nucl. Mater. 176 & 177(1990) 473.
- 3) M. Saidoh et al, Fusion Eng. and Design 22(1993) 271.
- 4) U. Samm and the TEXTOR Team, To be published in J. Nucl. Mater.(1994).
- 5) T. Hino, Y. Yamauchi and T. Yamashina, J. Nucl. Mater. 210(1994) 226.
- 6) Y. Yamauchi et al, J. Nucl. Mater. 220-222(1995) 851.
- 7) Y. Yamauchi et al, To be presented in International Conference on Vacuum Science, Yokohama, Sept. 25-30, 1995.
- 8) M. Yamamoto et al., "Evaluation Tests on First Wall and Divertor Plate Materials for JT-60 Upgrade", JAERI-M 90-119, (1990).
- 9) P. A. Redhead, Vacuum 12(1962) 203.
- 10) J. W. Davis et al, J. Appl. Phys., 76(1994) 4511.