

氏 名 都 筑 和 泰

学位（専攻分野） 博士(工学)

学 位 記 番 号 総研大甲第268号

学位授与の日付 平成9年3月24日

学位授与の要件 数物科学研究科 核融合科学専攻

学位規則第4条第1項該当

学 位 論 文 題 目 ボロンコーティング膜中の水素の動的挙動の研究

論 文 審 査 委 員 主 査 教 授 本島 修  
教 授 野田 信明  
助 教 授 岡村 昇一  
助 教 授 小森 彰夫  
教 授 菅井 秀郎（名古屋大学）

## 論文内容の要旨

ボロンコーティング膜は種々のプラズマ実験装置に適用され、金属、炭素、酸素不純物が減少することによりプラズマ特性の改善が報告されている。水素リサイクリングの抑制に関しては、昇温、ヘリウムグロー放電によりある程度抑制できることは知られているが、その効果の定量的評価はなされていない。また、LHDで予定しているような長時間放電の密度制御では、水素吸収、放出の動的挙動の理解も重要となる。そこで、本研究では、まず水素放電による水素吸収特性、昇温、ヘリウムグロー放電による水素の脱離特性を測定した。さらにその結果に対し物理的解釈を行い、動的挙動の理解を深めた。

実験装置はSUT(SURface modification Teststand)を用いた。ジボランガスを用いた直流グロー放電により、真空槽中の大面積ライナー(7000cm<sup>2</sup>)の内面にボロン膜を成膜した。成膜後、ライナー全体を500℃まで昇温することで成膜時に膜に入った水素を追い出し、その上で、水素放電による水素吸収、ヘリウム放電による水素放出を調べた。放電実験後、再びライナー全体を500℃まで昇温することで、放電実験によって吸収された水素の脱離を調べた。放電中、及び昇温中の圧力は、全圧計である隔膜真空計と、分圧測定のための四重極子質量分析計によって測定し、水素分圧の変化から、水素の吸収量、放出量を計算した。昇温後の水素放電において、放電開始直後から数十分程度にわたって水素の強い吸収が見られた。この吸収は膜に打ち込まれた水素が表面付近の捕獲サイトに捕獲されるために起こると考えられる。さらに放電を続けると表面付近はほぼ飽和し正味の吸収量はゼロに近づくが、その際、注意深く測定するにより、吸収は完全にはゼロにならず、緩やかに続いていることが明らかになった。この連続的吸収は、カーボンの小試料にイオンビームを照射した実験では報告されているが、ボロン膜について実験的に示されたのはこれが初めてである。その効果を含めて全吸収量を計算すると、1時間の放電では $9.2 \times 10^{16}$  atoms/cm<sup>2</sup>であった。放電時間を3時間にしても吸収は連続的に続き、吸収量は1時間の場合と比べ1.3倍に達することが明らかになった。

放電を終了すると圧力は一時的に増加し、その後減少して定常値に達した。この過渡的な水素放出は、放電中、イオン衝撃により過飽和状態になっていた水素の放出であると考えられ、ボロン膜では初めて実験的に示された。

ヘリウム放電の効果を調べる実験として、水素がほぼ飽和した壁をヘリウム放電にさらす実験を行った。その結果イオン衝撃脱離により吸収量の約15-20%の水素が放出されることが示された。ヘリウム放電による壁の水素吸収能力の回復を調べるため、ヘリウム放電後に再度水素放電を行うと、1度目の水素放電と同様な水素の強い吸収が見られた。これは、ヘリウム放電により、主に表面付近の水素が脱離し、打ち込まれた水素がそこに捕獲されたためであると考えられる。また、2度目の水素放電中の全吸収量を求めると、ヘリウム放電によって放出された水素量より大きいことも明らかになった。このことは、水素/ヘリウム放電を繰り返すことにより膜中に水素が蓄積していくことを示しており、実際に、水素、ヘリウム放電をさらに繰り返して行う(各15分×4セット、各1時間×2セット)ことにより、その効果は検証された。

放電実験後、500℃までの昇温を行うと、昇温とともに水素放出量は増加していき、400℃程度で最大値に達し、その後はライナー温度が上昇しても水素放出量は減少していった。

その全脱離量を計算すると、その値は、放電実験中のガス分析によって求めた正味の水素吸収量とほぼ等しくなっていた。すなわち、放電中に吸収された水素はほぼ全て放出されることが明らかになった。この温度はカーボン材と比べ、比較的低い値である。また、水素放電1時間の後の脱離量より、水素3時間、あるいは水素、ヘリウム繰り返し放電の後の脱離量の方が明らかに大きくなっており、昇温実験からも水素の長時間にわたる連続的な吸収の存在は検証された。

以上より、水素吸収には、表面付近が飽和するまでの強い吸収成分と、連続的に緩やかに続く成分があることが明らかになった。この水素長時間、水素/ヘリウム繰り返し放電時の連続的な吸収は、特にトリチウムを用いた場合、その吸蔵量制御に重要な意味を持つと考えられる。また、トリチウムを用いない場合でも、長時間放電時のプラズマの密度制御に影響を与える可能性がある。この連続的な吸収は、イオン衝撃により表面付近に捕獲されている水素が脱捕獲され、その一部が膜の奥の方へ移動するために引き起こされると考えられる。この考察は、イオンビームを用いた水素深さ方向分布測定（Elastic Recoil Detection 法）によっても支持された。ただし、その移動は水素は打ち込み深さの数倍程度である数10nmの範囲のみであり、200nmの膜厚に対しては小さい範囲に限られている。

これらの実験結果のうち、上述の水素放電終了時の圧力の挙動に注目し、モデル計算を行った。水素圧力の一時的な上昇は、グロー放電のイオン衝撃により、過飽和になっていた水素が放出されるためであると考えられる。ここでは再結合の機構として、捕獲されていない自由粒子同士の結合と、自由粒子と捕獲粒子の結合の2種類を考え、それぞれ実験結果との比較を行った。その結果、自由粒子同士の再結合を仮定した方が実験結果によく合うことが示され、再結合係数が求められた。さらに、その結果を用いて水素放電開始時、ヘリウム放電開始時の挙動を計算し、実験結果をある程度再現した。

本実験で得られた実験結果のうち、深さ方向分布の測定により、水素は膜の表面付近のみに保持される、ということと、昇温脱離で水素がプラズマ側に全て放出されるということから、将来のD-T炉において、ボロン膜によりトリチウムの透過が阻止できる可能性があることを提案した。すなわち、ボロン膜を第一壁にコーティングすることにより、プラズマから荷電交換によって放出された高エネルギーの中性粒子は、ボロン膜の表面付近のみにとどまり、しかも400°C程度の温度で、全て表面側に放出されることになる。また、壁を300°C程度に保つことで、トリチウム保持量抑制、あるいは水素保持量抑制による密度制御の容易化ができる可能性があることを提案し、プラズマからの熱を利用して、壁表面を高温に保つための第一壁の構造の検討も行った。

以上のように、本研究では(1)ボロン膜において、長時間放電による連続的な吸収が存在するが、(2)膜に入った水素は表面付近に保持され、400°Cまでの昇温で全て放出される、ということを実験的に明らかにし、その結果により、(3)ボロン膜の将来の実機への適用の可能性を示した。さらに、(4)モデル計算に基づいて現象の物理的な理解も深め、実用面だけでなく基礎的な面での発展性も示した。

## 論文の審査結果の要旨

本学位論文は、ボロンコーティング膜中での水素の吸収特性を定量的に調べた結果を報告したものである。ボロンコーティングは、近年プラズマ閉込め実験装置における真空容器壁のコンディショニングの方法として非常に多くの実験装置において標準的に用いられている技術である。しかし、プラズマ閉込め装置そのものにおいては、効果を得るための技術的ノウハウは蓄積されているものの、特性を科学的に研究する努力は積極的に行われているとは言い難い。特にコーティング膜の水素吸収特性は、閉込め研究の観点からはできるだけ小さく抑えたいものであり、定量的な研究が待たれていた。

都筑君の研究は、このような核融合研究の応用面、技術的面からの要請の中で時期を得た研究であり、特に重要なポイントである定量的研究の面で、細心の注意と息の長い実験技術上での努力の積み重ねから、信頼のおけるデータを得ることに成功したものである。研究の中での注目すべき点を項目別に列挙すると以下ようになる。

- 1) 吸収特性の定量的測定の精度を確保するために、コーティング面の面積を特別大きくとり(7000cm<sup>2</sup>)、そのコーティング面を500°Cまで昇温できる設備を用意して、測定結果の精度と信頼性を確保した。
- 2) グロー放電中での水素分圧の絶対測定を行い、その時間積分値からコーティング膜中への水素吸収と、放出量を測定する方法を採用し、そのために必要十分な安定度をもった真空実験装置を整備した。
- 3) 精度の高い測定から得られた結果として、ボロンコーティング膜への水素の吸収は、初期の急激な現象とは別に、1時間を超える時定数でのゆっくりとしたプロセスの存在を確認した。
- 4) 水素吸収を引き起こすグロー放電開始直後と、一時的放出が起こるグロー放電終了直後の水素分圧の時間変化に着目し、コーティング膜中での水素原子の動的挙動について、簡単なモデルに基づいた考察を行った。
- 5) 一連の実験結果から得られた、コーティング膜中での水素原子の挙動についての理解に基づき、トリチウム原子の真空容器壁を通した拡散を防止するために、ボロンコーティングが有効であるとの提案を行っている。

以上のように、本論文はしっかりとした実験研究の結果をふまえ、基礎から核融合への応用にわたる広範囲の議論を展開しており、学位論文としてふさわしい学術内容を持っているものと認められる。

都筑君に対し、学位論文に関わる専門分野及び周辺分野の学力について口述による試験を行った。本学位論文は、ボロンコーティング膜中での水素の吸収特性を定量的に調べた結果を報告したものであり、試験はその内容をどれだけ理解し、独創性を持って取り組んだかに重点を置いた。その結果、同君は審査員からの質問にも的確に答えることができ、学位を与えるに十分の、研究経歴と研究能力を持っていることがわかった。また、語学能力についても、英語の研究雑誌に何篇かの投稿論文があり、さらに本学位論文の英語によるアブストラクトを見て、十分な能力を持っていると判定した。