



核反応分析を用いた TFTR プラズマ対向壁表面近傍の水素同位体分布測定

久保田直義, 落合謙太郎, 沓掛忠三, 林 孝夫,
洲 亘, 西 正孝, 西谷健夫
(日本原子力研究所那珂研究所)

Depth Profile Measurements of Hydrogen Isotopes near the Surface
of the TFTR Plasma Facing Component using Nuclear Reaction Analysis

KUBOTA Naoyoshi, OCHIAI Kentaro, KUTSUKAKE Tyuzo, HAYASHI Takao,
SHU Wataru, NISHI Masataka and NISHITANI Takeo

Japan Atomic Energy Research Institute, Naka Fusion Research Establishment

(Received 23 November 2004 / Accepted 23 February 2005)

Tritium and deuterium depth profiles of the TFTR tile exposed to deuterium-tritium plasmas have been measured to reveal the hydrogen isotope behavior at the surface region by means of deuteron induced nuclear reaction analysis. The analyzed sample was a part of a tile made of a four-dimensional carbon fiber composite, which was placed at K bay, column C, row 16 of the TFTR vacuum vessel. Four kinds of elements, deuterium, tritium, lithium-6 and lithium-7, were identified. The tritium concentration had a peak at $0.5 \mu\text{m}$ with an atomic density of $7.4 \times 10^{25} \text{T/m}^3$ in depth profile, whereas the deuterium showed a broad distribution up to the depth of $1.5 \mu\text{m}$ with atomic densities of $3.4 \times 10^{27} \text{D/m}^3$. It is found that a fraction of the retained tritium from the surface to $1.5 \mu\text{m}$, $8.1 \times 10^{19} \text{T/m}^2$, corresponded to 2% of that from the surface to 1 mm, $1.0 \times 10^{21} \text{T/m}^2$, which was measured for the KC-18 tile using the combustion method.

Keywords:

hydrogen isotope distribution, nuclear reaction analysis, TFTR plasma facing component, tritium inventory, imaging plate method.

1. 緒言

核融合炉におけるプラズマ対向壁表面近傍の水素同位体挙動を知ることは、燃料リサイクリングを評価・予測する上で必要であり、特に DT 燃焼炉においてはトリチウムインベントリー評価等安全管理の点からも同様に必要である。DT 放電で使用されたプラズマ対向壁内のバルクトリチウム保持量は、主に燃焼法やイメージングプレート (IP) を用いた方法によって測定されている [1-5]。これらの方法は、mm 程度の広い範囲を測定できる点で優れている。一方、 μm 程度のマイクロなトリチウム深さ分布の絶対測定はあまり行われておらず、加速器質量分析法やイオンビーム分析法による測定例が数件報告されているのみである [6-8]。プラズマ対向壁内のトリチウムは、その多くが表面付近に存在し、また表面上に数 μm ~数 $10 \mu\text{m}$ の炭化水素から成る共堆積層を形成して保持されている。さらにトリチウムからの β 線の飛程が数 μm でもあり、この様な深さ領域内のトリチウム密度分布を知ることは重要である。

本研究では、トリチウムと同時に重水素など他の軽元素

author's e-mail: naoyoshi@fnshp.tokai.jaeri.go.jp

This article is based on the invited talk at the 21th JSPF Annual Meeting (2004, Shizuoka).

も測定できる利点をもった重陽子ビームによる核反応分析法 (NRA) を用いて、DT 放電実験で使用された TFTR プラズマ対向壁表面の水素同位体分布を測定し、表面トリチウムの保持量を明らかにすることを目的とした。TFTR では、1993~1997年に DT 放電実験が行われ、放電実験終了後にトリチウム除去が、重水素パルス放電、ヘリウム-酸素グロー放電やベーキング等によって行われている。分析を行った試料もこれら除去処理後に取り出されている。実験では、まず、分析面を決定するために IP を用いてトリチウム測定し、その後、重陽子 NRA を行った。

以下、第 2 章では NRA 法の分析原理について簡単に述べ、第 3 章では IP を用いたトリチウム測定と重陽子 NRA の実験方法について述べる。第 4 章で実験結果からトリチウムおよび重水素深さ分布を評価し、DD 放電実験で使用した JT-60U タイルの分析結果と比較しながら TFTR タイルの水素同位体挙動について考察した。

2. 核反応分析原理

核反応分析は、入射粒子と標的粒子との核反応によって生成された粒子の放出エネルギーとその収量を計測し、試料内の標的粒子深さ分布を得る方法である。Fig. 1に原理図として、核反応 $B(a, c)D$ を利用した核反応分析体系を示す。入射粒子 a はエネルギー E_0 、入射角 θ_0 で試料へ入射する。そして、試料深さ x 、すなわち表面から距離 $d = x / \cos \theta_0$ まで進む間に $dE_1(x)$ だけエネルギーを失い、エネルギー $E_1(x) = E_0 - dE_1(x)$ で標的粒子 B と反応する。このエネルギー損失 $dE_1(x)$ は、入射粒子 a に対する試料母材の阻止能 $(-dE/dx)_a$ を用いて、

$$dE_1(x) = \int_0^{x/\cos\theta_0} \left(-\frac{dE}{dx} \right)_a dx, \quad (1)$$

と表される。エネルギー $E_1(x)$ で入射粒子 a と標的粒子 B が反応した時、検出角 θ に設置した検出器で測定される放出粒子 c の検出エネルギー E_d は、

$$E_d = E_r(E_1(x), \theta) - dE_2(x), \quad (2)$$

で与えられる。ここで、 E_r は放出粒子 c の核反応による放出エネルギーであり運動学的に決定される。 dE_2 は検出粒子 c が試料内を通過して表面に達するまでの間に失うエネルギーであり、放出粒子 c に対する試料母材の阻止能 $(-dE/dx)_c$ を用いて次式で表される。

$$dE_2(x) = \int_0^{x/\sin(\theta-\phi)} \left(-\frac{dE}{dx} \right)_c dx. \quad (3)$$

ただし、 $\phi \equiv \pi/2 - \theta_0$ である。なお、本研究では(1)および(3)式における阻止能の計算に、Zieglerの経験式を用いた[9]。

一方、深さ x と $x+dx$ の間で生じた核反応生成粒子が、微小な検出器立体角 $d\Omega$ 内に放出される収量 dY は以下の式で表される。

$$dY = Q \frac{d\sigma_f(E_1(x))}{d\Omega} N dx d\Omega. \quad (4)$$

ここで、 Q は入射粒子数、 $d\sigma_f(E_1(x))/d\Omega$ は核反応の微分断面積、 N は標的粒子密度である。(2)式から深さは求められるので、(4)式の未知数は N ただ一つとなり、原理的には正確に深さ分布を求める事ができる。ただし、実際には分析体系の幾何学的な広がり、検出器固有のエネルギー分解能や荷電粒子エネルギーのストラグリング等によって深さ分解能が有限な大きさを持つため、深さ分布は近似的な分布となる。

3. 実験方法

3.1 イメージングプレートを用いたトリチウムの測定

重陽子 NRA に先立って、IP法を用いてタイル各面の相対的なトリチウム平面分布を測定し、分析面を決定する。分析試料は、TFTRの内側リミッタでKベシC列の16番目(KC-16)に使用されていた 80×120 mm炭素繊維複合材(4D-CFC)タイルの右下角を切り出したものであり、大き

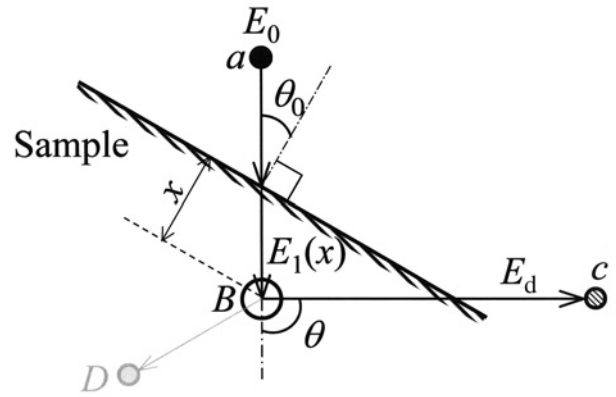


Fig. 1 Schematic representation of the principle for NRA.

さは約 $10 \text{ mm} \times 20 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ 、3面が切断面となっている。IPには、トリチウムが β 崩壊する時に放出する β 線と、それによる制動 X 線を記録した。トリチウム汚染を防ぐために、IP表面は厚さ $0.9 \mu\text{m}$ のポリエチレンテレフタレートフィルムで被われた。試料の露出時間はタイル各面とも3分間とし、フェーディング特性を考慮して露出60分後に読み取りを行った。イメージングプレートおよび読取装置には、BAS-TR2025およびBAS-1800(富士写真フィルム製)を使用した。IPの読取条件は感度を4000、ラティチュードを5および階調数を256とした。また、空間分解能は $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ に設定した。

3.2 重陽子ビームを用いた核反応分析

重陽子 NRA では、 $T(d, \alpha)n$ および $D(d, t)H$ 反応を利用して、それぞれ、トリチウムおよび重水素分布を測定する。実験体系をFig. 2に示す。実験には日本原子力研究所核融合中性子工学用中性子源施設FNSの 80° ビームラインを使用した。バケット型イオン源により生成された重陽子ビームは、コッククロフト・ウォルトン型加速器により加速された後、 80° ビームラインへ導かれ、 $\phi 6 \text{ mm}$ のアパーチャを通過して試料に入射角 30° で入射する。試料表面において、重陽子と標的核との核反応によって生成された荷電粒子は、検出角 90° に設置したシリコン表面障壁型検出器(SSD)で測定される。SSDは有感面積 25 mm^2 、空乏層厚さ $200 \mu\text{m}$ (レイテック製)であり、散乱重陽子の検出器への入射を防ぐために厚さ $3 \mu\text{m}$ のアルミニウム箔を前面に設置した。検出器立体角は $1.1 \times 10^{-2} \text{ sr}$ である。一方、 $T(d, n)\alpha$ 反応による 14.1 MeV 中性子を測定するために、SSD反対側の検出角 83° にNE213シンチレーション検出器を設置した。SSDからの出力信号は、前置増幅器、主増幅器で増幅され、AD変換器によりデジタル信号に変換された後、多重波高分析器で分析される。同様に、NE213シンチレーション検出器からの出力信号は、前置増幅器、主増幅器で増幅され、立ち上がり時間波高変換器で中性子成分のみが弁別された信号をゲートとした、AD変換器によりデジタル信号に変換された後、多重波高分析器で分析される。SSDのエネルギー較正には、 ^{241}Am 標準線源からの α 線(5.486 MeV)を使用した。その際のエネルギー分解能は 30 keV であった。またNE213のエネルギー較正には、 ^{22}Na

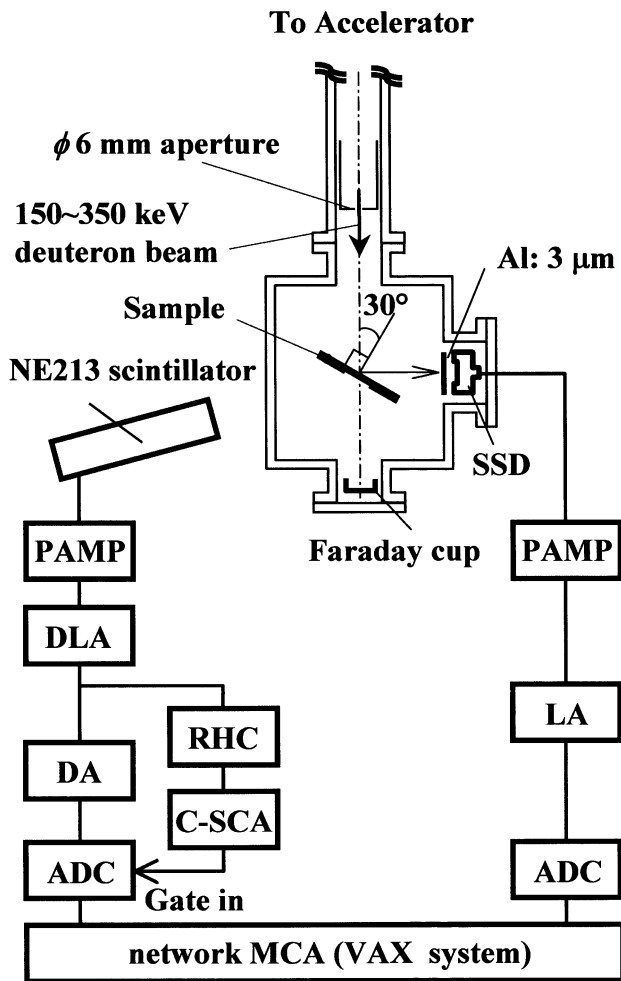


Fig. 2 Experimental setup for NRA: PAMP, preamplifier; LA, liner amplifier; DLA, delay line amplifier; DA, delay amplifier; RHC, rise time to pulse height converter; C-SCA, constant fraction timing single channel analyzer; ADC, analog to digital converter.

標準線源からの γ 線 (1.275 MeV) および陽電子の消滅 γ 線 (0.511 MeV) を使用した。入射重陽子数は、電流積分器を用いてターゲット電流を計測し、導出した。平均ターゲット電流密度は $3.5 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ 、入射エネルギーは 150, 200, 250, 300 および 350 keV と変化させ、それぞれ 1 点あたり 15~30 分程度の分析を行った。なお、重陽子の入射エネルギーは、分析限界深さと、種々の核反応によるスペクトル同士のオーバーラップ等を考慮して、より正確な分布が得られるように変化させた。すなわち、入射エネルギーが高い場合、バックグラウンド反応は増えるが深部まで分析できる。一方、入射エネルギーが低い場合、分析範囲は浅いがバックグラウンド反応の収量は十分少なく、スペクトル同士の分離も良い。

実験体系全体の重陽子 NRA に対するエネルギー分解能は、炭素試料を標準試料とした $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$ 反応のエネルギースペクトルから評価された。得られた全エネルギー分解能は 76 keV であり、これは $0.75 \mu\text{m}$ の深さ分解能に対応する。エネルギーストラグリングはボーアの理論より 36 keV、幾何学的な分解能は 60 keV であった。これらを考慮

して、 $\text{T}(d,\alpha)\text{n}$ および $\text{D}(d,t)\text{H}$ の NRA の深さ分解能を計算すると、表面において、それぞれ、 $0.25 \mu\text{m}$ および $0.50 \mu\text{m}$ となった。

3. 結果と考察

3.1 水素同位体分布

Fig. 3 に分析を行った試料の写真、IP で得られた画像とその輝光性発光 (PSL) 強度分布を示す。IP 画像では青色がバックグラウンドであり、赤色になるほど発光強度が強く、定性的にトリチウムも多い。また、それぞれの IP 画像の下に示した PSL 強度分布は、タイルの幅で規格化した各位置での平均強度分布である。なお、図中の丸、三角、四角印は、画像の向きを示すためのもので、写真と IP 画像での印の位置が対応している。プラズマ対向面である b 面に対して、側面の a 面と c 面はより赤色が濃く、トリチウムを多く保持していると考えられる。PSL 強度の分布を見ると、b 面では -2mm の位置でステップ的な強度の変化が見られた。また、側面 2 面では、両者とも同じ傾向の分布を示し、プラズマ対向面に近づく (a 面では負の方向、c 面では正の方向) に従って PSL 強度が高くなっていった。さらに、プラズマ対向面から遠い位置 (a 面では正の方向、c 面では負の方向) でも、プラズマ対向面と同程度の PSL 強度であることがわかった。位置に対して積分した PSL 強度で比較すると、側面 2 面の PSL 強度は、プラズマ対向面より 2 倍程度高かった。核反応分析では、トリチウム量が多く、面積の最も広い側面 a を分析面とした。

核反応分析において、SSD で観測された典型的なエネルギースペクトルを Fig. 4 に示す。これは、350 keV 重陽子ビームで分析した時に得られたエネルギースペクトルであり、2.8 MeV 付近の幅広いピークが $\text{T}(d,\alpha)\text{n}$ による α 粒子である。また、 $\text{D}(d,p)\text{T}$ と $\text{D}(d,t)\text{H}$ がそれぞれ 3.0 MeV と 0.6 MeV に観測され、母材炭素との $^{12}\text{C}(d,p)^{13}\text{C}$ 反応のピークが $\text{T}(d,\alpha)\text{n}$ のピークと重なって 2.7 MeV 付近に観測された。さらに、TFTR はリチウムコンディショニングを行っていたので、リチウム起源の $^6\text{Li}(d,p)^7\text{Li}$ 、 $^7\text{Li}(d,\alpha)\text{n}^4\text{He}$ 、 $^6\text{Li}(d,\alpha)^4\text{He}$ 反応のスペクトルが観測された。一方、NE213 シンチレーション検出器では Fig. 5 に示すような中性子スペクトルが観測された。14.1 MeV からの連続スペクトルが $\text{T}(d,n)^4\text{He}$ の中性子スペクトルであり、SSD で観測された α 粒子が $\text{T}(d,\alpha)\text{n}$ 反応によるものであることが確認できた。

150, 200, 250, 300 および 350 keV の NRA で得られたこのようなエネルギースペクトルから、(2) および (4) 式を用いてトリチウムおよび重水素の深さ分布を計算した。すべての入射エネルギーで求めた深さ分布を、平均して得られたトリチウムおよび重水素分布を、それぞれ、Fig. 6(a) および (b) に示す。検出エネルギーから (2) 式を使用して深さを求めるにあたって、阻止能の計算に使用した母材 4D-CFC の密度は $9.0 \times 10^{28} / \text{m}^3$ である [4]。また、(4) 式で用いた $\text{T}(d,\alpha)\text{n}$ および $\text{D}(d,t)\text{H}$ 反応の微分核反応断面積は ENDF/B-VI の値を引用した [10]。さらに、 $\text{T}(d,\alpha)\text{n}$ と $\text{D}(d,t)\text{H}$ スペクトルに対してバックグラウンド成分と

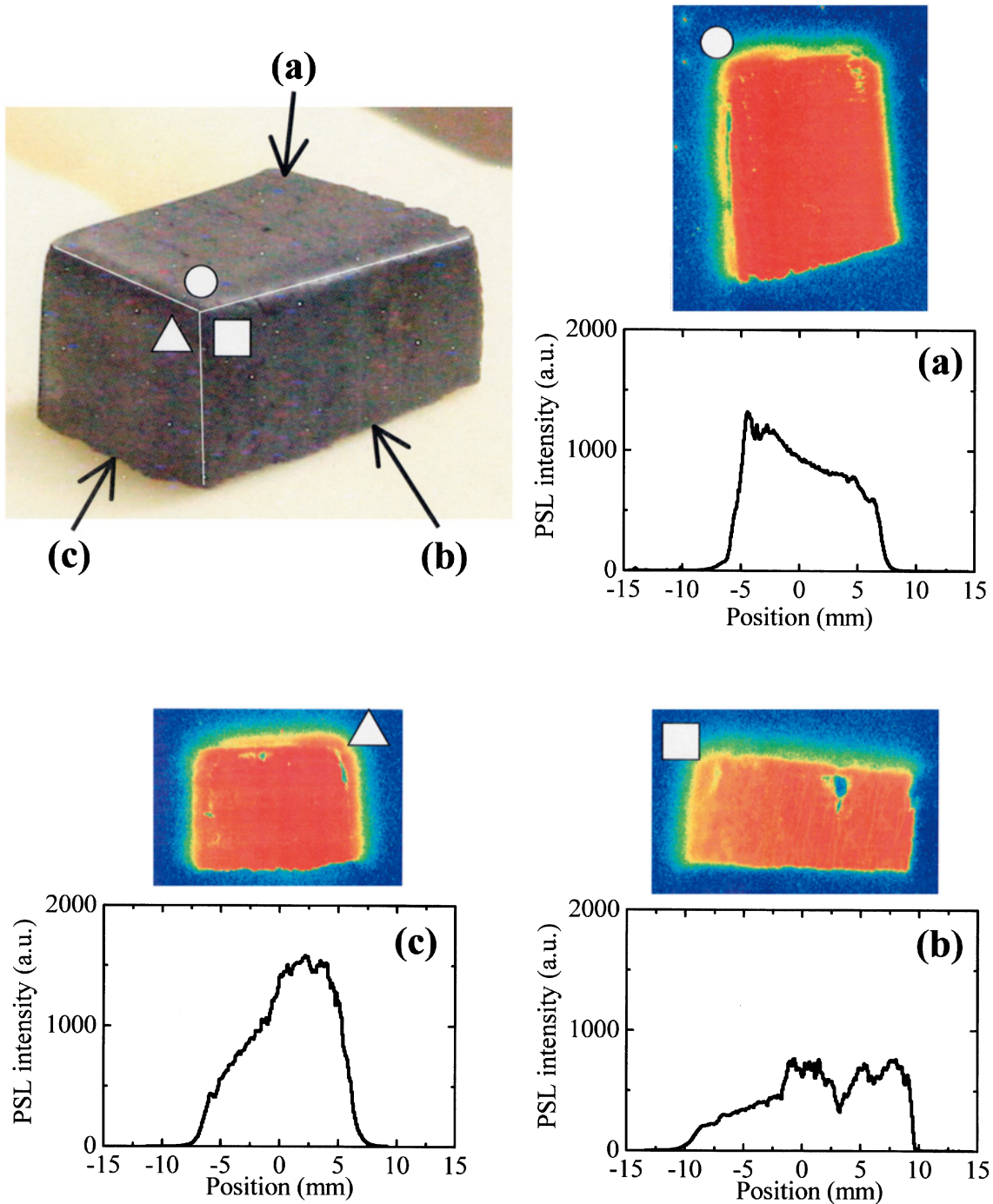


Fig. 3 Photograph of the sample tile, IP images and spatial distributions of photo-stimulated luminescence intensity for each tile surface. The plane (b) is the plasma facing surface. The plane (a) and (c) are sides of the sample tile. The circle, triangle and square symbols are position marker.

なる、 $D(d,p)T$ および $^{12}C(d,p)^{13}C$ スペクトルのオーバーラップや、原点からの低エネルギースペクトルのオーバーラップは、以下のような方法を用いて取り除いた； $T(d,\alpha)n$ スペクトルにオーバーラップしている $D(d,p)T$ スペクトルは、ガウス関数でフィッティングを行い、差し引いた。 $^{12}C(d,p)^{13}C$ スペクトルの影響は、正確に評価できないため、トリチウム深さ分布のうち、表面付近には低エネルギー入射NRAから計算した分布を、深部の分布には高エネルギー入射NRAから計算した分布を使用した。また、 $D(d,t)H$ スペクトルにオーバーラップしているバック

グラウンドは、標準試料分析時に得られたスペクトルから作成したバックグラウンド関数を用いて、差し引いた。これらすべての処理に伴う誤差に統計誤差も含めた、トリチウムおよび重水素密度の誤差は、それぞれ、 $\pm 25\%$ および $\pm 17\%$ である。

分析を行った深さ領域は共堆積層の領域であるが、トリチウムと重水素が表面から $2.0\ \mu\text{m}$ にわたって分布していた。トリチウム密度は、 $0.5\ \mu\text{m}$ 付近で $7.4 \times 10^{25}/\text{m}^3$ の最大値を持ち、深部へいくに従って急峻に減少し、深さ $1.6\ \mu\text{m}$ では $1/4$ 程度に減少していた。同様に重水素密度も、トリ

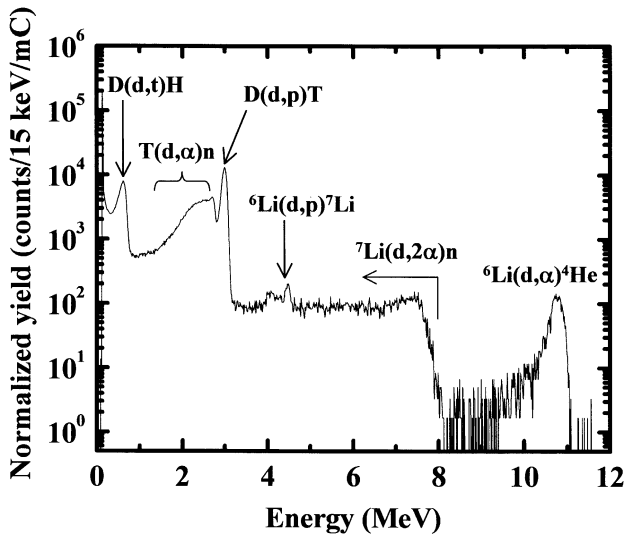


Fig. 4 Typical energy spectrum observed with SSD by means of 350 keV *d*-NRA. Charged particles produced by *T+d*, *D+d* and *Li+d* reactions were detected.

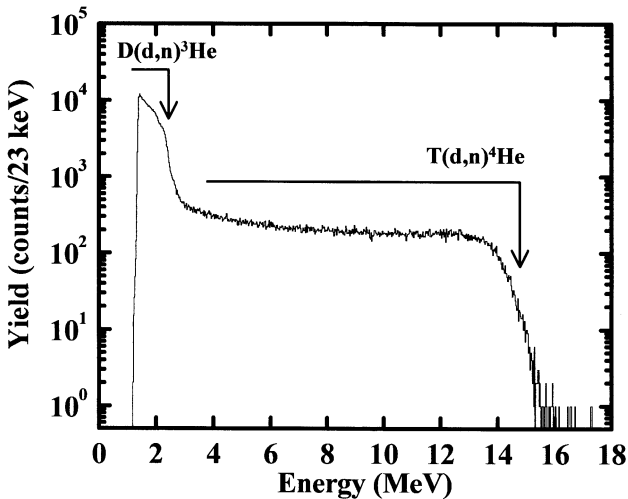


Fig. 5 Typical neutron spectrum observed with NE213 scintillator. Associated neutrons of the *T(d,α)* reaction were confirmed.

チウム分布より深さ分解能は悪いが、0.5 μm 付近に $4.0 \times 10^{27} / \text{m}^3$ の最大値を示し、緩やかに減少して 1.5 μm まで分布していた。トリチウムおよび重水素の密度が表面付近で低くなっている原因は、DT 放電実験終了後に行われた放電洗浄などの除去処理によるものと考えられる。

TFTR の KC-18 タイル (4D-CFC) では、燃焼法によって 1 mm ごとのトリチウム分布が測定されている [4]。平均密度は表面から 1 mm までが $1 \times 10^{24} / \text{m}^3$ であり、それ以降急激に減少し、5 mm より深部では $2 \times 10^{20} / \text{m}^3$ となっていた。また、表面から 35 mm までの全トリチウム保持量は $10^{21} / \text{m}^2$ 程度であった。タイルの設置位置は異なるが、これと比較すると、KC-16 表面近傍ではトリチウム密度が最大で 7 倍高いことがわかる。

また、測定を行った表面 ~ 2 μm にわたるトリチウムおよび重水素の保持量は、それぞれ、 $8.1 \times 10^{19} / \text{m}^2$ および 5.5

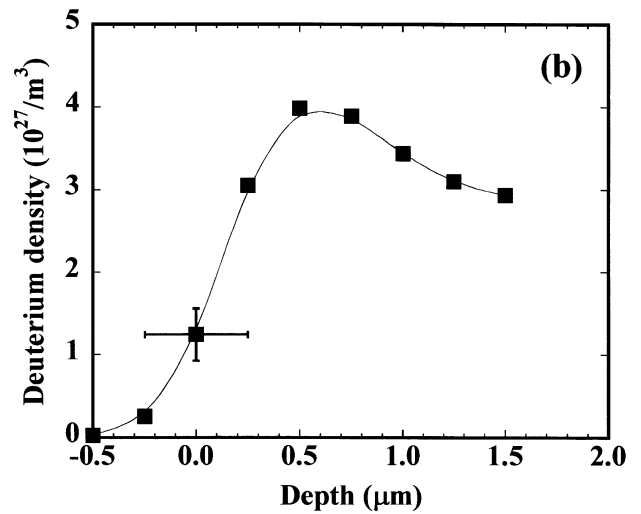
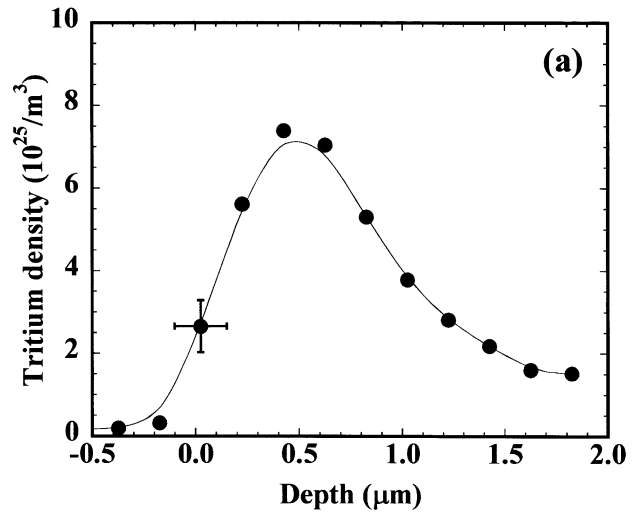


Fig. 6 Depth profiles of (a) tritium and of (b) deuterium calculated using energy spectra. The solid lines are intended as a visual aid.

$\times 10^{21} / \text{m}^2$ であった。一方、KC-18 の表面から 1 mm までの保持量は $1 \times 10^{21} / \text{m}^2$ であり、1 mm のわずか 0.2% の深さ領域に、約 8% のトリチウムを保持していることが予想される。

3.2 TFTR と JT-60U の水素同位体分布の比較

DT 放電実験で使用された TFTR タイル表面での水素同位体挙動を調べるために、実験装置は異なるが、DD 放電実験で使用された JT-60U タイルの水素同位体分布 [8] との比較を行った。Fig. 7(a) および (b) に、それぞれ、トリチウムおよび重水素分布を示す。JT-60U タイルの場合、トリチウムはすべて DD 反応によって 1 MeV 程度の高エネルギー粒子として生成されるため、Fig. 7(a) に示すように 1.5 μm より深い場所に存在していたと考えられる。なお、トリチウムが深さ 1.5 μm まで到達するために必要な最低入射エネルギーは、タイルへの垂直入射の場合 200 keV であり、斜入射する場合はその入射角度に応じてより高い入射エネルギーが必要である。一方、TFTR タイルの場合、トリチウムは表面から分布しており、燃料トリチウムやプラズマから漏れ出てきた低エネルギートリチウムの寄与が大きいこ

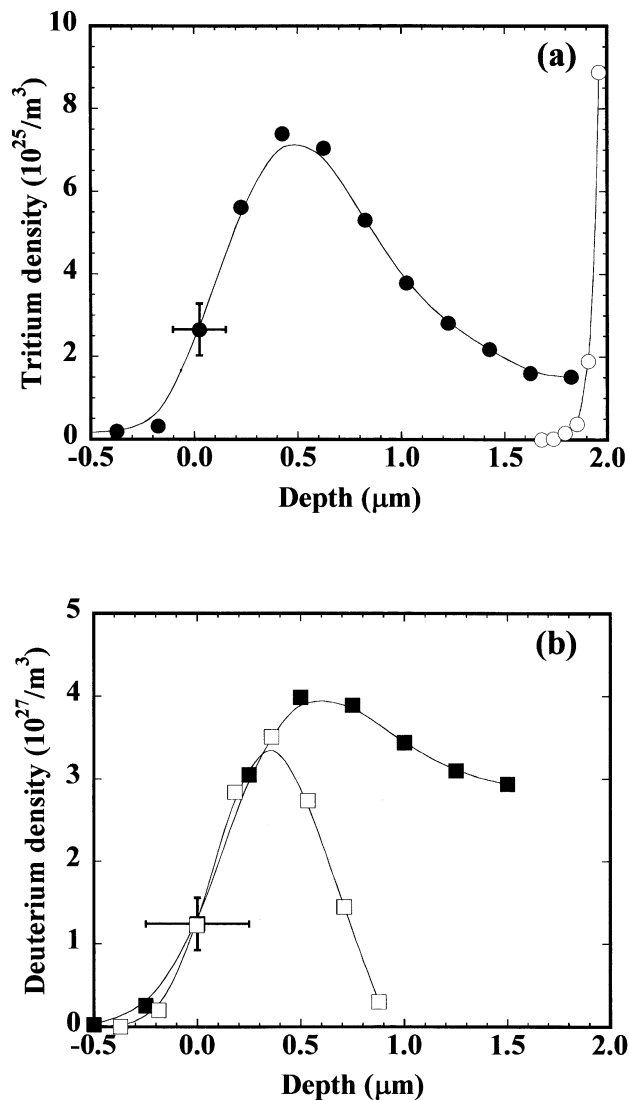


Fig. 7 (a) Comparison of the tritium profile of TFTR with that of JT-60U. Closed and open circles indicate the tritium profile of TFTR and of JT-60U, respectively. (b) Comparison of the deuterium profile of TFTR with that of JT-60U. Closed and open squares indicate the deuterium profile of TFTR and of JT-60U, respectively. Each solid line is intended as a visual aid.

とを示している。

また、両実験装置において、燃料粒子として使用されている重水素は両者とも表面から分布しており、JT-60Uの場合は表面から1.0 μm以内に分布しているのに対し、TFTRの場合は2.0 μmまで分布していた。TFTR試料はバンパーリミタであり、プラズマに接しているためにエロージョン等の表面損傷が激しい。分析面であるタイル側面では、その損傷によって発生した、炭素を主成分とするダス

トが水素同位体と共に堆積し、結果として、深部まで重水素が存在しているような分布を示していると考えられる。この傾向は、TFTR試料内のトリチウムに対しても同様であると予想されるが、燃料粒子のT/D比やプラズマへの投入方法等運転条件によって分布の様子に違いが現れたと考えられる。

5. 結言

重陽子核反応分析法を用いて、TFTRのDT放電実験で使用された内側リミタイルKC-16のトリチウムおよび重水素分布測定を行った。これら両分布とも表面で密度が低く、深さ0.5 μm付近に最大値が存在した。これは、DT放電実験終了後に行われた放電洗浄などの除染処理に起因すると考えられる。また、トリチウム密度の最大値は、表面から1 mmまでの平均密度より7倍高いことがわかった。

一方、表面から2.0 μmまでのトリチウム保持量は全保持量の8%程度であり、全トリチウムに対して、μmスケールでの、表面トリチウムの寄与が大きいことがわかった。

謝辞

核反応分析の解析を行うにあたり、解析プログラムを提供していただいた北村晃教授(神戸大学海事科学部)に感謝いたします。また、TFTRタイルのサンプルを提供していただいたC.A. Gentile氏とC.H. Skinner博士(Princeton Plasma Physics Laboratory)に感謝いたします。

参考文献

- [1] R.D. Penzhorn, N. Bekris, W. Hellriegel *et al.*, J. Nucl. Mater. **279**, 139 (2000).
- [2] C.H. Skinner, C.A. Gentile, G. Ascione *et al.*, J. Nucl. Mater. **290-293**, 486 (2001).
- [3] W.M. Shu, Y. Kawakubo, S. O'hira *et al.*, Fusion. Sci. Technol. **41**, 690 (2002).
- [4] N. Bekris, C.H. Skinner, U. Berndt *et al.*, J. Nucl. Mater. **313-316**, 501 (2003).
- [5] T. Tanabe, N. Bekris, P. Coad *et al.*, J. Nucl. Mater. **313-316**, 478 (2003).
- [6] W.R. Wampler, B.L. Doyle, S.R. Lee *et al.*, J. Vac. Sci. A **6**, 2111 (1988).
- [7] M. Friedrich, W. Pilz, G. Sun *et al.*, Nucl. Instrum. Meth. **B172**, 655 (2000).
- [8] K. Ochiai, T. Hayashi, C. Kutsukake *et al.*, J. Nucl. Mater. **329-333**, 836 (2004).
- [9] J.F. Ziegler *et al.*, *Stopping Powers and Ranges in All Elements Vol.3 Hydrogen* (Pergamon Press, New York, 1977) p. 5.
- [10] For example, <http://www.nndc.bnl.gov/ndf/index.html>