

パルスレーザービームを用いた等方性黒鉛の高熱流束実験

亀崎, 洋
九州大学大学院総合理工学研究科 : 修士過程

徳永, 和俊
九州大学大学院総合理工学研究科 : 博士課程

福田, 重久
九州大学応用力学研究所 : 助手

吉田, 直亮
九州大学応用力学研究所 : 教授

他

<https://doi.org/10.15017/4743907>

出版情報 : 応用力学研究所所報. 68, pp.387-396, 1989-10. 九州大学応用力学研究所
バージョン :
権利関係 :



パルスレーザービームを用いた等方性黒鉛の高熱流束実験

亀崎 洋* 徳永 和俊†
福田 重久‡ 吉田 直亮§
室賀 健夫〃

概 要

核融合炉第一壁の有力被覆候補材の等方性黒鉛について、その耐プラズマ挙動を調べるためにレーザーによるパルス熱負荷実験を行った。パルス熱負荷中に放出されるガスを分析した結果、多数の炭化水素ガスの生成放出とともに、炭素の昇華によるカーボンクラスターの生成も認められた。これらの放出ガスの真空特性、熱負荷条件、表面処理条件依存性を求め、核融合炉への適用においての問題点、改良の方向を明らかにした。

Key words : Isotropic graphite, Pulse high heat flux, Carbon cluster, Sublimation, Laser beam

1. 序 論

核融合炉第一壁被覆候補材として有望な等方性黒鉛は鉄やモリブデンなどの金属と比べて低原子番号のため、プラズマ中での放射損失が少なく、プラズマパラメータの向上が期待される¹⁾。また、真空中での耐熱性、高温安定性が良好で、誘導放射能が低いなどの利点がある。しかし一方、ガスの吸蔵量が多く、高温において多種の炭化水素ガスが生成することが知られており²⁾、極めて高い熱負荷では昇華による損耗が生じる³⁾。これらは、プラズマの汚染、材料の損耗の両面から重要な問題になる。

高温における黒鉛からのガス放出については今までに多くの研究がなされており、その主な手法としては昇温脱離法が用いられてきた²⁾⁴⁾⁵⁾。これらの研究により、黒鉛からの各種の炭化水素の生成放出が確認され、ガス放出の基礎過程が明らかにされてきた。しかし、トカマク型核融合炉でのディスラプションや runaway electron によるパルス熱衝撃下における黒鉛のガス放出挙動及び昇華については、ほとんど研究が行われていない。この問題はトカマクの排気、壁の損耗の両面から重要な課題であり、同時に進行する昇華過程と関連づけて明らかにする必要がある。

* 九州大学大学院総合理工学研究科高エネルギー物質科学専攻修士過程

† 九州大学大学院総合理工学研究科高エネルギー物質科学専攻博士過程

‡ 九州大学助手、応用力学研究所

§ 九州大学教授、応用力学研究所

〃 九州大学助教授、応用力学研究所

本論文では、レーザーを用いパルス熱負荷を黒鉛に加え、その際のガスの放出挙動、昇華過程及び表面形状変化を明らかにすることを目的とした。

2. 実験方法

2.1 試料

本研究で用いた試料は、東洋炭素製等方性黒鉛 IG-110U 及び IG-110U に熱分解炭素コーティングを $9\ \mu\text{m}$ 行った試料の 2 種類を用いた (表 1)。IG-110U はかさ密度 (見かけの密度) が 1.77 と等方性黒鉛の中では小さいため、真空工学的特性が良好であることが報告されている⁴⁾。また、熱分解炭素コーティング膜は、ガスの透過率が低いため、黒鉛本体からのガスの放出が抑えられるのではないかと期待がもたれている⁶⁾。

これらの試料を小片に切断後、アセトンで超音波洗浄し 1000 K で 1 時間真空脱ガス処理を行い、直ちに真空チャンパー中に試料を設置した。

2.2 実験装置

実験装置の模式図を図 1 に示す。パルス熱負荷に用いる熱源には、出力 6.4 J、パルス時間約 1 msec のルビーレーザーを用いた。グラファイトへのレーザー照射はターボ分子ポンプで 1.5×10^{-6} Pa まで排気した高真空チャンパー中で行い、熱負荷密度はチャンパー中に設置した焦点距離 50 mm のレンズを移動することにより、グラファイト上でのレーザー光の spot 径を変えることにより変化させた。黒鉛より放出されるガスの分析には、四重極質量分析計 (QMA) を用い、その信号出力をオシロスコープに入力し、信号の強度と時間の関係をコンピュータにファイルした。

表面形状変化の観察は、走査形電子顕微鏡 (SEM) を用いて行った。

3. 実験結果

3.1 SEM による黒鉛の表面観察

黒鉛の未照射表面の SEM 像を写真 1 に示す。未コーティング材 (上) では、表面に多数の気孔 (pore) が存在しているのがわかる。しかし、PyC コーティング材 (下) では、表面が緻密な熱分解炭素の膜に覆われて気孔の多くは塞がれている。

写真 2 は IG-110U に、表 2 に示す熱負荷を加えた場合の表面形状変化を示す。50 mm では、1 mm 厚の黒鉛を完全に貫通している。それが 60 mm、70 mm と熱負荷の密度が下がるにつれて損耗量は少なくなり、75 mm では表面形状にほとんど変化はみられない。また、どの焦点距離でもクラック、割れ等の

表 1 実験で用いた試料の物性値

かさ密度 (g/cm^3)	熱伝導度 (kcal/mhk)	曲げ強度 (kg/cm^2)	不純物 (ppm)	粒径 (μm)
1.77	0.17	400	2	14

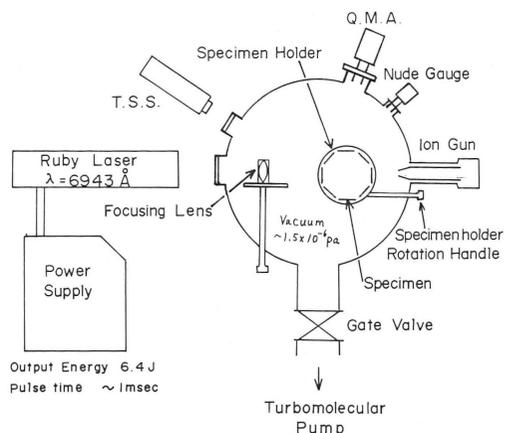


図1 実験装置の模式図

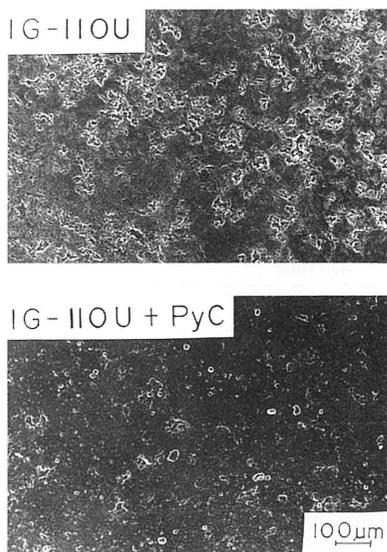


写真1 黒鉛の未照射表面のSEM像(上) IG-110U (下) IG-110U+PyC

発生は見られなかった写真3は同様に、IG-110U+PyCについて、レーザー照射したもののSEM像である。未コーティングのものと比較しても顕著な差異は認められない。

3.2 黒鉛からのガス放出

ガス分析は表面形状にほとんど変化のみられなかった75mmで行った。これは熱負荷が、次期核融合炉におけるディスラプション時の第一壁への熱負荷計算例(640 MW/m²)⁷⁾に近いためである。図2は典型的なレーザー出力及びQMA出力の時間変化の例である。QMA信号が最も高くなることをSig-

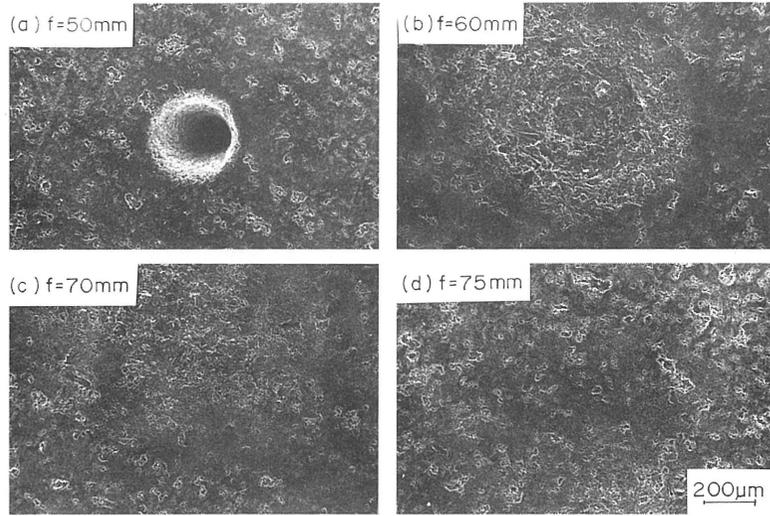


写真2 レーザー照射した黒鉛表面のSEM像 (IG-110U)

表2 焦点距離と熱負荷の関係

f	Spot Diameter at Target	Power Density (計算値)
50 mm
60 mm	1.4 mm	4,200 MW/m ²
70 mm	2.8 mm	1,000 MW/m ²
75 mm	3.5 mm	670 MW/m ²

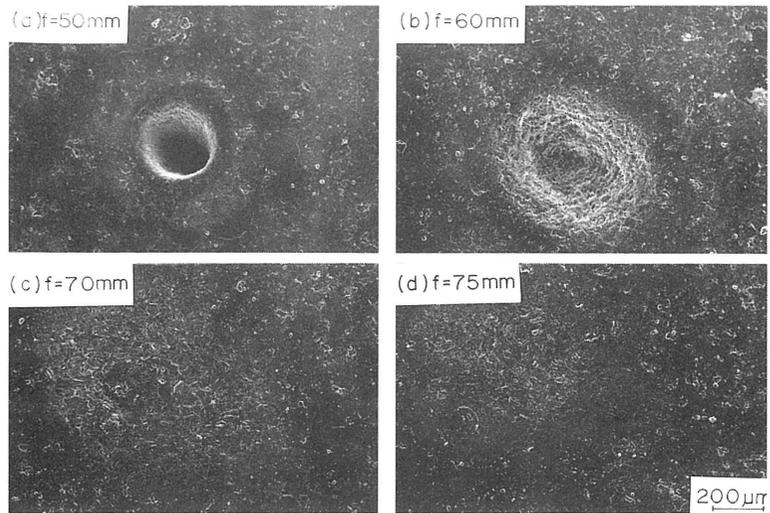


写真3 レーザー照射した黒鉛表面のSEM像 (IG-110U+PyC)

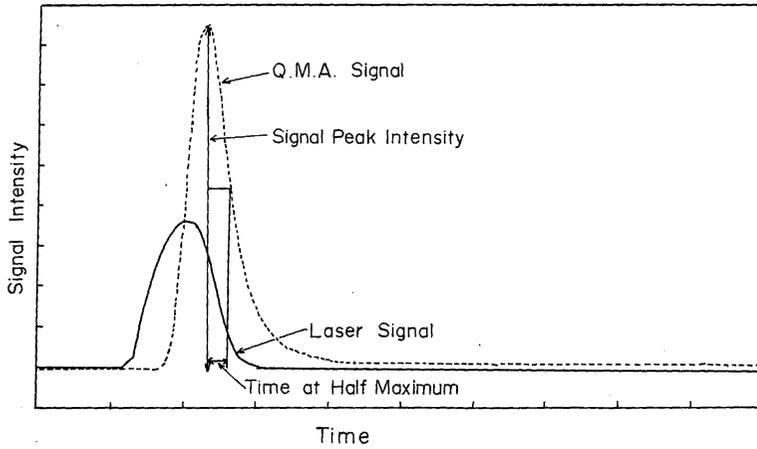


図2 QMA 信号の模式図

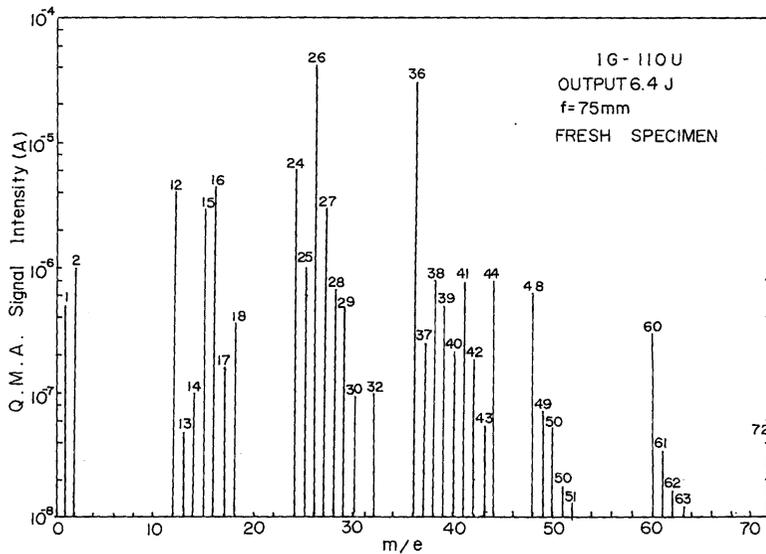


図3 黒鉛からのガス放出スペクトル (新しい試料面からの放出)

nal Peak Intensity, ピークから信号が半分に減衰するまでの時間を Time at Half Maximum としてとった。図3は、各レーザー照射毎に試料を移動させて得たフレッシュな黒鉛表面からの放出ガスの分析結果である。レーザー熱負荷により m/e (質量数) が1から72の範囲において水素、水、炭化水素及び二酸化炭素などの多数のガスの生成が認められる。この中で炭化水素ガスは、黒鉛中の水素や水と炭素が高温で化合して生成したと考えられる。この炭化水素の種類については、同じ試料で行われた昇温脱離実験のものとは大きな違いは認められなかった。また、本実験では $m/e = 12, 24, 36, 48, 60, 72$ な

どの 12 の整数倍の質量を持つガスが検出されたが、これらは昇温脱離実験では認められていない。これは、黒鉛表面からの昇華により放出されたカーボンクラスターであり、高熱流束実験特有の現象であると考えられる。

図 4 は、黒鉛の表面を何回もレーザーで繰り返し Shot して、ガスの放出が低下の後飽和した時点で放出ガスの分析を行ったものである。図 2 と比較すると、全体の放出量が 1 桁から 2 桁下がっているが、放出ガスの種類に大きな変化はない。

図 5 は、各 m/e についてのデータを基に QMA 信号強度と時間の関係を示した図である。カーボンクラスターのうちで $m/e = 12$ 及び 36 (炭素が奇数個集まったクラスター) は、 $m/e = 24, 48$ (炭素が偶数個集まったクラスター) や他のガスと比較すると、QMA 信号の減衰が非常に早いことがわかる。炭素が集めたカーボンクラスターの状態で黒鉛の昇華が起こり、その量に奇偶依存性があることは以前から報告されていたが⁹⁾、本研究ではクラスターの真空挙動にも同様の依存性のあることが判明した。奇数のカーボンクラスターのように急速に信号が減衰する現象は、金属を shot した時にみられる金属蒸気の挙動と同じである。従って、 C_1, C_3, C_5 などのクラスターは、他のガスや C_2, C_4, C_6 とは異なり、放出後真空壁等へ極めて早く吸着するためだと考えられる。

それぞれの m/e に対して、信号がピークから半分に減衰するまでの時間を示したものが図 6 である。これより C_1, C_3, C_5 や Fe, Cr と他のガスの挙動の違いが明確にわかる。

3.3 繰り返し照射下での黒鉛への熱分解炭素コーティング効果

図 7 (a) は非コーティング IG-110U に繰り返し熱負荷をかけた場合の主要放出ガスの信号強度ピー

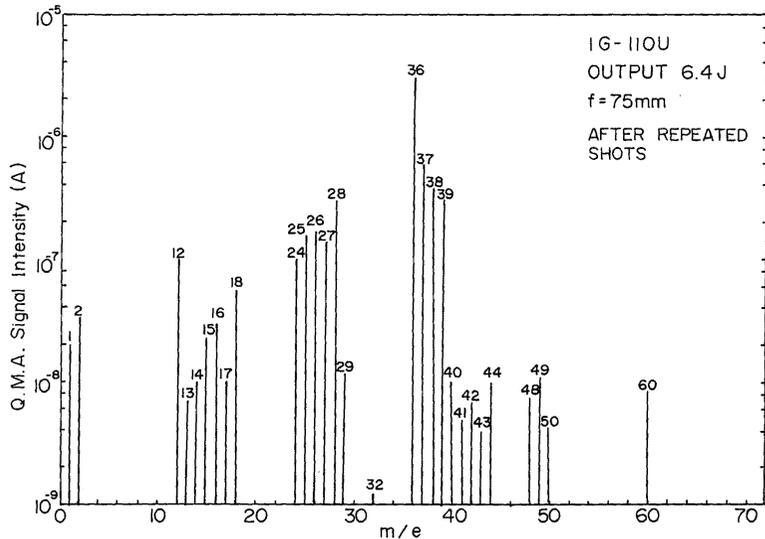


図 4 黒鉛からのガス放出スペクトル (繰り返し照射により飽和した時点での放出)

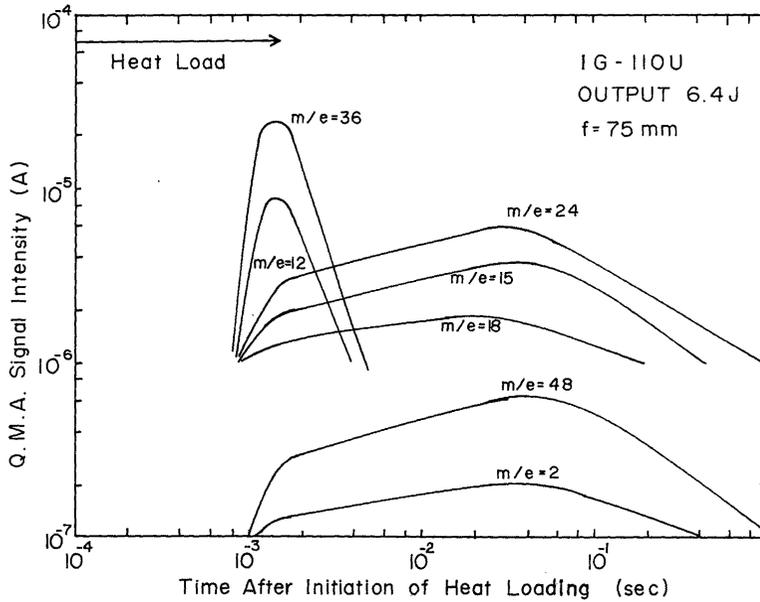


図5 レーザー照射後のQMA 出力時間変化

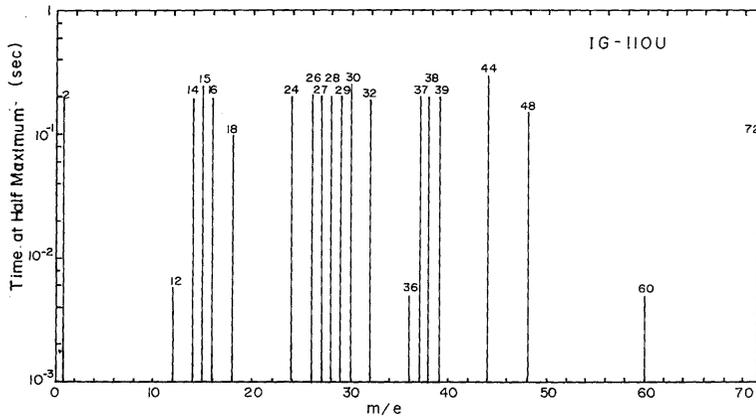


図6 QMA 出力が半減する時間の m/e 依存性

ク値である。Shot 数が増えると共に放出量は減少し、その後一定になっている。この中で $m/e = 12(C_1)$ は減少量が小さく、レーザーの照射毎に表面から炭素が昇華していると考えられる。図7 (b) は熱分解炭素コーティング ($9 \mu\text{m}$) IG-110U の場合で、初期ガス放出量は未コーティング材よりも少ない。しかし、shot 数が増えた場合でも、ガスの放出量はあまり減少していない。また $m/e = 12(C_1)$ の放出は IG-110U より多くなっている。これは表面の熱分解炭素が飛散しやすいためだと考えられる。

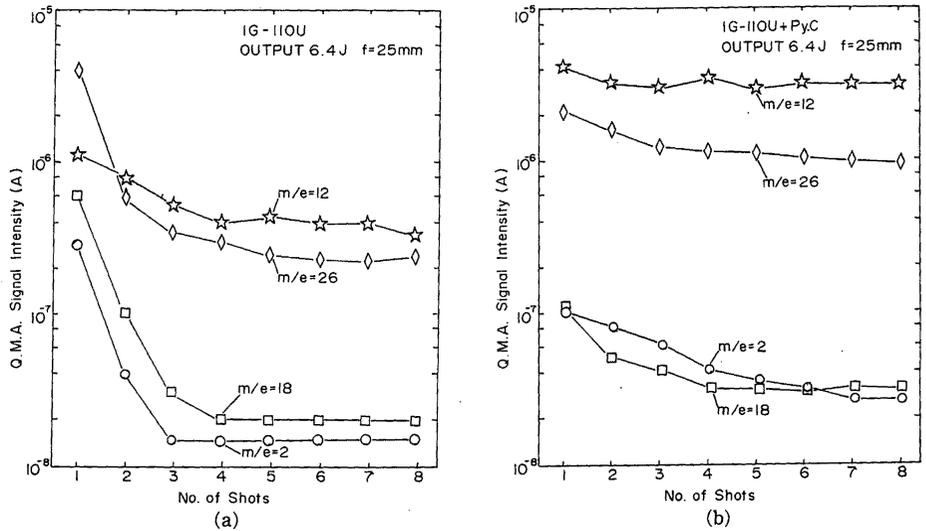


図7 (a) 繰り返し照射による放出ピークの変化 (IG-110U)

図7 (b) 繰り返し照射による放出ピークの変化 (IG-110U+PyC)

コーティング材と非コーティング材を比較すると、厚さ $9 \mu\text{m}$ の場合初期のガス放出量は少なくとも、繰り返し熱負荷がかかった際にガスの放出がいつまでも続くことがわかった。この原因については後で詳しく論ずる。

4. 考 察

4.1 パルス熱負荷条件下における黒鉛材料の問題点

パルス熱負荷の場合の黒鉛のガス放出挙動は、ゆっくりと試料の温度を上げていく昇温脱離の場合⁴⁾と比較すると明らかな違いがある。昇温脱離の場合は、ある程度以上の温度になると、炭化水素生成の主な原因になる水や水素が減少すると共に、高温では炭化水素の生成は減少する。しかしパルス熱負荷の場合、照射と照射の間に真空容器中の水素や水が表面へ吸着することにより供給される水素と、黒鉛との反応により炭化水素が生成し、ある程度以下には放出量は減少しない (図4参照)。

黒鉛を第一壁及びリミターに使用した核融合炉実機において、プラズマと接触したグラファイトリミターは瞬間的に高温になることが予想される。このパルス状の高熱負荷により黒鉛から chemical sputtering による炭化水素が放出され、リミターの侵食やプラズマ汚染の原因となる。また、ディスラプションの際には非常に短い時間 ($\sim 1 \text{ msec}$) の間に高い熱負荷が第一壁にかかるため、第一壁全体からの多量のガス放出が予想される。本実験により、繰り返しパルス熱負荷の場合、ガス放出がある程度より低下しないことが示され、これにより定常熱負荷の場合より厳しい損耗及び真空劣化が懸念される。従って、より真空特性、熱伝導性の良い黒鉛材料の開発が必要であることは明かである。

4.2 PyC コーティングの効果

図6の(a)と(b)を比較すると、PyC コーティング材の初期のガス放出量は、非コーティング材に比べて確かに減少しており、この点ではコーティングの効果が認められる。しかし繰り返し照射の場合、非コーティング材では放出量が減少し、早い時期に飽和しているのに対し、コーティング材ではガスの放出がいつまでも続き枯渇しにくいという性質を示している。これは、熱負荷によって発生するガスが、コーティング膜のために外部に放出されにくいためではないかと考えられる。

本実験で用いた試料のコーティング膜の厚さは9 μm であるが、同一試料による他の研究によると⁹⁾、コーティング膜が9 μm ではTDSでのガス放出量は確かに減少するが、表面粗さは残っている。本実験でも写真1(下から分かるように、コーティングによってポアは完全に塞がれていない。従って少ない経路により内部ガスが少量ずつ放出されるために、パルス熱負荷による放出量の減少、飽和が遅れたものと考えられる。ただし、PyC自身の吸着性等のデータは整備されていないので、今後膜厚を変えて、繰り返し照射時のガス放出抑制効果とその成立条件、機構を明らかにして行く必要がある。

± ㄥ ㄆ

黒鉛材料の、核融合炉で予想されるディスラプションなどの、パルス熱負荷条件での使用可能性を明らかにするために、レーザーを用いて黒鉛へのパルス熱負荷を加えて、ガス放出同時分析及び表面形状変化の観察を行った。その結果、

- 1) パルス高熱負荷を受けた黒鉛表面は、昇華による激しい損耗が見られた。
- 2) パルス高熱負荷下で放出されるガスは、各種の炭化水素、水、炭酸ガス等で、 m/e が12の整数倍のカーボンクラスターの生成も認められ、ガス放出と昇華の同時進行過程が明らかになった。
- 3) カーボンクラスターの中でも炭素の奇数の集合体と偶数の集合体で真空中の挙動は異なり、奇数の集合体は真空中での減衰が偶数の集合体に比べると非常に早い。金属蒸発との比較により、この原因としては、奇数のクラスターが偶数のクラスターより真空壁等への吸着性が非常に大きいことが考えられる。
- 4) 黒鉛への9 μm の熱分解炭素のコーティングにより、熱負荷初期のガス放出は抑制される反面、繰り返しパルス熱負荷をかけた場合ガスの放出がいつまでも続き枯渇しにくいという性質があることが確認された。従って、パルス繰り返し熱負荷が予想される第一壁へのコーティングに関しては、真空排気の面で問題となる可能性がある。

参 考 文 献

- 1) E. Heachtl and J. Bohdansky; J. Nucl. Mater. 141-143 (1986) 139.
- 2) A. E. Pontau and D. H. Morse; J. Nucl. Mater. 141-143 (1986) 124.
- 3) C. D. Crossmann et al.; J. Nucl. Mater. 141-143 (1986) 108.
- 4) 広畑優子他：昭和61年度科研費。核融合特別研究第1班報告書 山科俊郎編 P. 8.
- 5) 田辺哲朗，渡辺容子：昭和61年度科研費。核融合特別研究第1班報告書 山科俊郎編 p. 30.
- 6) 日野友明，山科俊郎：昭和63年度科研費。核融合特別研究第1班報告書(その3)山科俊郎編 p. 5.

- 7) G. L. Kulcinski, J. M. Dupouy and S. Ishino : J. Nucl. Mater 141-143 (1986) 3.
- 8) J. Berkowitz and W. A. Chupka : J. Chemical Physics 40 (1964) 2735.
- 9) 柳沢 亨, 広畑優子, 日野友明, 山科俊郎 : 日本原子力学会 1989 年会 要旨集(第II分冊)p. 38.
(平成元年 5 月 31 日受理)