

[16009]

タングステン中の水素同位体ダイナミクスに及ぼす照射損傷分布影響評価 EFFECT OF DAMAGE DEPTH PROFILE ON HYDROGEN ISOTOPES DYNAMICS IN W

大矢恭久^{#,A)}, 植村有希^{A)}, 桜田翔大^{A)}, 藤田啓恵^{A)}, 東圭介^{A)}, 周啓来^{B)}, 宮澤俊義^{C)}, 近田拓未^{A)}
Yasuhisa Oya^{#,A)}, Yuki Uemura^{A)}, Shodai Sakurada^{A)}, Hiroe Fujita^{A)}, Keisuke Azuma^{A)},
Zhou Qilai^{B)}, Toshiyoshi Miyazawa^{A)}, Takumi Chikada^{A)}

^{A)} Graduate School of Science & Technology, Shizuoka University

^{B)} Faculty of Science, Shizuoka University

^{C)} Division of Technical Service, Shizuoka University

Abstract

Fe³⁺ irradiation for tungsten (W) with combination of various implantation energies was performed to study effects of damage distribution on deuterium (D) retention behavior. The TEM observation showed that 0.8 MeV + 6 MeV Fe³⁺ irradiated sample has more dislocation loops than 6 MeV Fe³⁺ single irradiated sample. SRIM simulation results also indicated that many damages near the surface are introduced by 0.8 MeV Fe³⁺ irradiation. The D₂ TDS spectra as a function of heating temperature for Fe³⁺ irradiated W showed that the D retention was decreased by 10% for 0.8 MeV Fe³⁺ irradiated sample compared with 6 MeV despite larger amount of irradiation defects near the sample surface. In addition, D₂ desorption peak around 650 K was considerably reduced while those of lower temperatures were slightly increased. This result shows that the D retention at stable trapping sites such as vacancy clusters were decreased due to the formation of damages near the surface, which enhanced D detrapping.

Keyword: Hydrogen isotopes retention, Tungsten, TDS

1. 目的

タングステン(W)は、高融点、低スパッタ率などの優れた特性を持つため、プラズマ対向機器への使用が検討されている^[1,2]。Wには、DT核融合反応によって炉心プラズマから生成する14 MeVの中性子が照射され、転移ループや原子空孔といったさまざまな欠陥が形成することが予想される^[3]。W中の水素同位体の溶解度はグラファイトと比較して非常に小さいが、形成された照射欠陥は水素同位体の安定な捕捉サイトとなるため、W中の水素同位体滞留量が增加する。そのため、トリチウムインベントリーの観点より、照射欠陥の形成と水素同位体滞留挙動の相関理解が重要である。加えて、W中の照射欠陥の分布が水素同位体滞留挙動に影響すると考えられる。そこで本研究では、鉄イオン(Fe³⁺)のエネルギーを変化させてW試料に照射することで照射欠陥の分布を制御し、照射損傷分布の水素同位体滞留挙動への影響を評価した。さらに、トリチウムイオン照射とBIXS測定により水素同位体分布評価を行い、照射損傷分布の水素同位体滞留挙動への影響を評価・検討した。

2. 実験方法

アライドマテリアル社製歪取加工済W(10 mm^φ, 6 mm^φ, 0.5mm^t)を、不純物除去を目的として加熱処理を高真空下(< 10⁻⁶ Pa)にて1173 Kで30分間行った。この試料にTIARAを用いて、0.8 MeVのFe³⁺を0.1 dpaまで照射した。加えて、6 MeVのFe³⁺を0.03 dpaおよび0.1 dpaまで照射した。照射損傷量はSRIMコードを用いて評価した。

その後、静岡大学にて、重水素をエネルギー1 keV

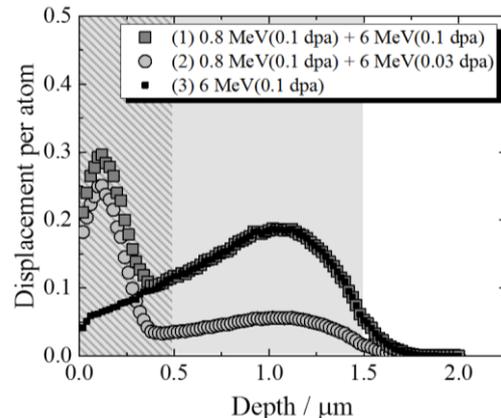


Fig. 1. Defects distribution for Fe³⁺ irradiated samples calculated by SRIM.

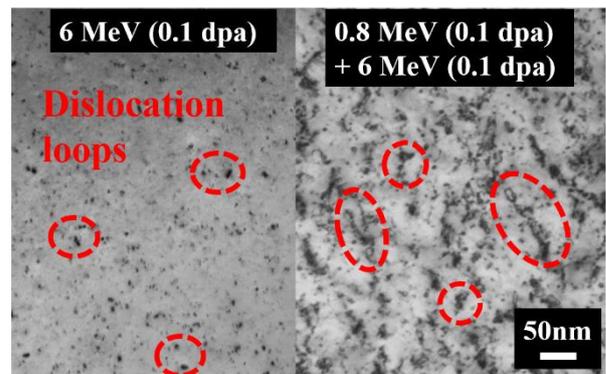


Fig. 2. TEM image (dislocation loops) for Fe³⁺ irradiated W (observed at R.T.).

[16009]

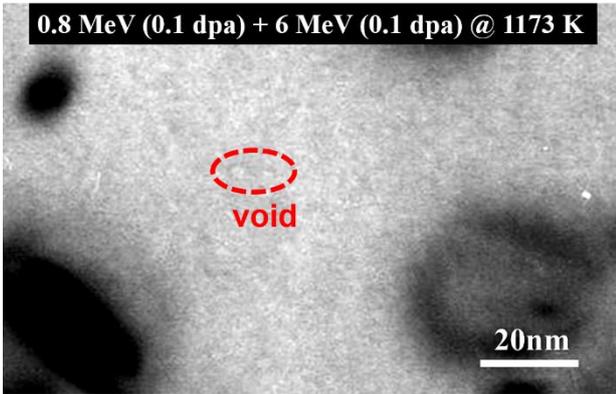


Fig. 3. TEM image (voids) for Fe³⁺ irradiated W with (observed after annealing at 1173 K)

D₂⁺にてフラックス 1.0×10^{18} D⁺ m⁻² s⁻¹、フルエンス 1.0×10^{22} D⁺ m⁻² まで室温で照射し、昇音領域を室温から 1173 K まで、昇温速度を 30 K min⁻¹ として TDS 測定を行い、重水素滞留挙動を評価した。また、これらの Fe³⁺照射試料に対し、富山大学にて重水素-トリチウムイオン照射(T / D = 0.5 %)をエネルギー1.0 keV DT⁺にてフラックス $1.6-1.7 \times 10^{17}$ DT⁺ m⁻² s⁻¹、フルエンス $5.8-6.1 \times 10^{20}$ DT⁺ m⁻² まで行った。また、この試料におけるトリチウム分布評価として、BIXS 測定を測定時間 19 時間にて行った。比較のため、欠陥を導入していない未照射 W 試料に対しても、重水素-トリチウムイオン照射及び BIXS 測定を同条件で行った。

さらに、試料の表面状態を明らかにするため、九州大学応用力学研究所にて TEM 観察を行った。上記の Fe³⁺照射 W 試料を、室温および 573 K、873 K から 100 K 毎に 1173 K まで 30 分間加熱した後、TEM 観察を行った。

3. 結果・考察

Fig. 1 に SRIM コードを用いた 0.8 MeV 及び 6 MeV Fe³⁺ 照射による欠陥分布の計算結果を示す。グラフより、0.8 MeV Fe³⁺ 照射による損傷量 0.1 dpa の欠陥分布が試料表面から約 0.5 μm に集中している一方で、6 MeV Fe³⁺ 照射による損傷量 0.03-0.1 dpa の欠陥は 1.5 μm 付近まで分布していることがわかる。

Fig. 2 に Fe³⁺ 照射 W 試料における転位ループの TEM 写真を示す。0.8 MeV Fe³⁺ + 6 MeV Fe³⁺ 照射試料では、6 MeV Fe³⁺ 単独照射試料と比較して、表面近傍に転位ループがより多く導入されていることが観察された。また、Fig. 3 に 1173 K にて焼鈍を行った試料の TEM 写真を示す。画像より、0.8 MeV Fe³⁺ + 6 MeV Fe³⁺ 照射試料において、表面近傍にボイドが形成されていることがわかる。

種々の Fe³⁺ 照射 W における重水素 TDS スペクトルを Fig. 4 に示す。各試料からの重水素は 300 - 1000 K の温度領域で D₂ の形で放出された。重水素滞留状態考察のため、ガウス分布関数を用いてピーク

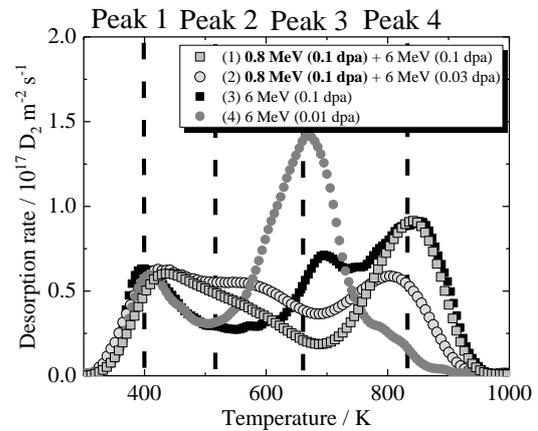


Fig. 4. D₂ TDS spectra for Fe³⁺ irradiated W samples.

Table 1. D Retention Amount in Each Sample

Sample	No.1	No.2	No.3	No.4
Retention (D m ⁻²)	1.1×10^{20}	1.1×10^{20}	1.3×10^{20}	1.2×10^{20}

ク分離を行った結果、TDS スペクトルは 400 K、550 K、650 K、850 K 付近の 4 つの重水素脱離ピークにより構成されていることが明らかとなった。これらのピークをそれぞれ Peak 1、2、3、4 とし、Peak 1 は、試料表面に吸着された重水素、または転位ループに捕捉された重水素の脱離ピーク^[4]、Peak 2、3 は原子空孔または原子空孔集合体からの重水素脱離ピーク、Peak 4 はボイドに捕捉された重水素の脱離と帰属した^[5,6]。

各試料における全重水素滞留量を Table 1 にまとめた。0.8 MeV Fe³⁺照射によって表面付近の損傷量が増加したにもかかわらず、全重水素滞留量は 6 MeV Fe³⁺照射単独のものと同程度減少していることがわかった。また Fig. 4 より、0.8 MeV Fe³⁺ + 6 MeV Fe³⁺ 照射試料では、Peak 3 における重水素滞留量が大きく減少し、一方で Peak 2 における重水素滞留量はわずかに増加している。0.8 MeV + 6 MeV Fe³⁺ (0.1 dpa)照射試料と 6 MeV Fe³⁺ (0.1 dpa)単独照射試料を比較すると、Peak 4 では重水素滞留量が同程度であり、Fig. 3 からボイドの形成も確認されているが、表面付近に欠陥が増加することにより、表面付近の欠陥に重水素が優先的に捕捉され、より低温側で放出されると考えられる。

W における β線及び特性 X 線の減衰曲線は Fig. 5 に示すとおりである^[7]。BIXS 測定では試料中のトリチウムより放出される β線は試料の W 原子や試料と検出器間にフローされているアルゴンガスとの相互作用により、連続スペクトルを形成する制動 X 線および線スペクトルの特性 X 線等に変換される。今回注目した特性 X 線は 1.77 keV にピークを持つ W(M α)線と 2.96 keV にピークを持つ Ar(K α)線であり、それぞれ試料表面から 1 μm、試料表面から 50 nm までのトリチウム濃度に相当する。

[16009]

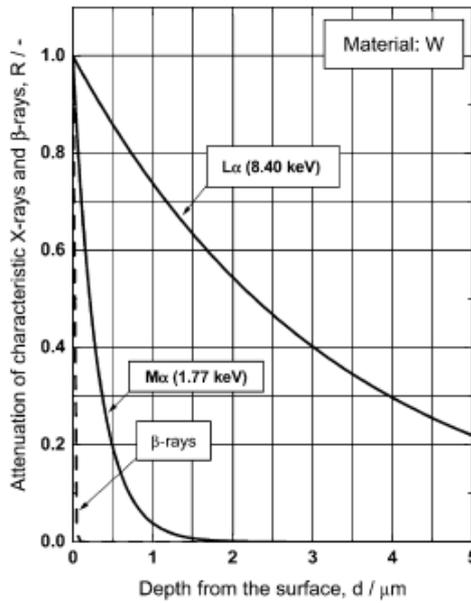


Fig. 5. Attenuation of X and beta rays in W.

DT⁺ 照射を行った各試料における BIXS 測定結果を Fig. 6 に示す。全重水素滞留量は、0.8 MeV Fe³⁺ + 6 MeV Fe³⁺ 照射試料の方が 6 MeV Fe³⁺ 単独照射試料より少量であったが、BIXS 測定における W(Mα)線、Ar(Kα)線のピーク強度は 0.8 MeV Fe³⁺ + 6 MeV Fe³⁺ 照射試料の方が強く、表面付近により多くのトリチウムが捕捉されていると考えられる。Ar(Kα)線のピーク強度は、試料(1)、(2)、(3)においてそれぞれ 0.093、0.097、0.068 (count s⁻¹)であった。したがって、表面付近に存在する照射欠陥にトリチウムが優先的に捕捉されることが示された。

4. まとめ

本研究では、Fe³⁺の照射エネルギーを変化させることにより W 試料中の照射欠陥の分布を制御し、水素同位体滞留挙動への影響を重水素イオン照射および TDS 法により評価した。その結果、0.8 MeV Fe³⁺ + 6 MeV Fe³⁺ 照射により表面付近に欠陥がより多く導入された W 試料では、6 MeV Fe³⁺ 単独照射 W 試料と比較して全重水素滞留量が 1 割程度減少し、より低温側で重水素が放出されることがわかった。また、BIXS 測定結果より、0.8 MeV Fe³⁺ + 6 MeV Fe³⁺ 照射試料ではトリチウムの分布が試料表面付近に集中していることが示され、トリチウムは試料表面付近の欠陥に優先的に捕捉されることがわかった。以上の結果より、水素同位体は W 表面付近により多くの欠陥が形成されると、それらに優先的に捕捉されるため、重水素の脱捕捉効果が促進され、原子空孔集合体などの安定な捕捉サイト中の重水素滞留量が減少する可能性が示唆された。

参考文献

[1] M. Rieth, S. L. Dudarev, S. M. Gonzalez de Vicente, et al., J. Nucl. Mater. 432 (2013) 482.

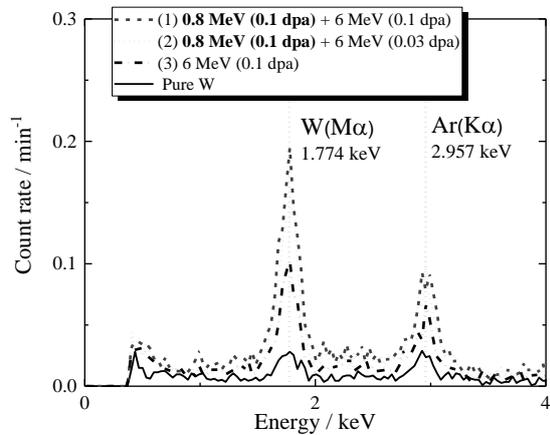


Fig. 6. Result of BIXS measurement for DT⁺ implanted W samples.

- [2] R. Causey, J. Nucl. Mater. 300 (2002) 91.
- [3] A. Hasegawa, M. Fukuda, S. Nogami et al., Fusion Eng. Des. 89 (2014) 1568.
- [4] H. Eleveld, A. van Veen, J. Nucl. Mater. 191 (1992) 433-438.
- [5] H. Iwakiri K. Morishita, N. Yoshida, J. Nucl. Mater. 307 (2002) 135-138.
- [6] G.N. Luo W. M. Shu, M. Nishi, Fusion Eng. Des. 81 (2006) 957-962.
- [7] M. Matsuyama et al., J. Nucl. Mater. 307 (2002) 729-734.