

[17002]

## 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<sup>#,A)</sup>, 東圭介<sup>A)</sup>, 戸莉陽大<sup>A)</sup>, 周啓来<sup>B)</sup>, 宮澤俊義<sup>C)</sup>, 近田拓未<sup>A)</sup>

Yasuhisa Oya<sup>#,A)</sup>, Keisuke Azuma<sup>A)</sup>, Akihiro Togari<sup>A)</sup>,  
Zhou Qilai<sup>B)</sup>, Toshiyoshi Miyazawa<sup>A)</sup>, Takumi Chikada<sup>A)</sup>

<sup>A)</sup> Graduate School of Science & Technology, Shizuoka University

<sup>B)</sup> Faculty of Science, Shizuoka University

<sup>C)</sup> Division of Technical Service, Shizuoka University

### Abstract

To evaluate the deuterium (D) retention behaviors in Fe ion damaged tungsten with various damage distributions, 0.8 MeV and 6 MeV Fe ions were implanted into W with the various damage concentrations. Thereafter, 1.0 keV D ion implantation was performed, and the D retention behavior was evaluated by thermal desorption spectroscopy (TDS). The retention of D trapped by vacancies for multiple Fe ion irradiated W samples were decreased as the damages were accumulated by 6 MeV Fe ion irradiation. It was confirmed that D de-trapping from irradiation damages at higher temperature was enhanced by the D accumulation by the near surface damages due to 0.8 MeV Fe ion irradiation.

**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<sup>[1, 2]</sup>。この W には DT 核融合反応によって生成する 14 MeV の中性子が照射され、転移ループや原子空孔等のさまざまな欠陥が形成することが予想される<sup>[3]</sup>。W 中の水素同位体の溶解度は非常に小さいが、形成し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増加する。そのため、照射欠陥の形成と水素同位体滞留挙動の相関理解はトリチウムインベントリ評価の観点から重要である。加えて、中性子によって導入される照射欠陥はバルク中に均一であるのに対し、水素同位体やヘリウム、荷電交換粒子などによる照射欠陥は表面に集中するため、W 中の照射損傷は分布を持つと考えられる<sup>[4]</sup>。そこで本研究では、W 中における水素同位体滞留挙動への照射損傷分布の影響を理解するため、鉄イオン照射エネルギーを変化させ欠陥分布を制御した W 試料に対して重水素イオン ( $D_2^+$ ) 照射を行い、昇温脱離法 (TDS) 及び HIDT シミュレーションによって D 滞留挙動を評価した。

### 2. 実験方法

試料として、アライドマテリアル社製歪取加工済 W(10 mm<sup>φ</sup>, 6 mm<sup>φ</sup>, 0.5mm<sup>φ</sup>)を用いた。不純物除去を目的として加熱処理を高真空下(< 10<sup>-6</sup> 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 鉄イオン照射 (損傷量 0.1-0.3 dpa) に加え、6 MeV 鉄イオン照射 (損傷量 0.03-0.3 dpa) を室温にて行った。照射損傷量は SRIM コードを用いて算出した。その後、静岡大学にて、重水素をエネルギー 1 keV  $D_2^+$ にてフラックス 1.0×10<sup>18</sup> D<sup>+</sup> m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>、フルエンス 1.0×10<sup>22</sup> D<sup>+</sup> m<sup>-2</sup>まで室温で照射し、昇温領域を室温

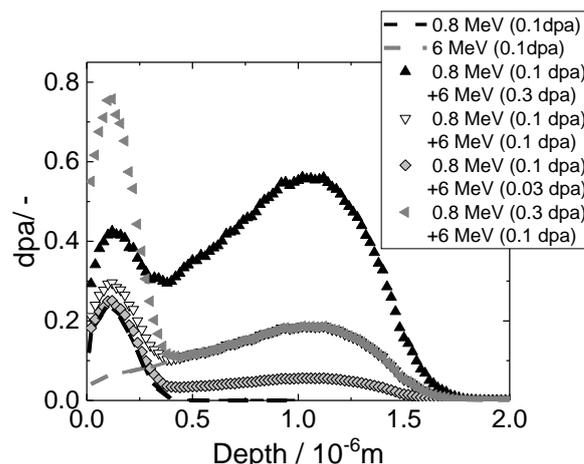


Fig. 1. Defects distribution for Fe<sup>3+</sup> irradiated samples calculated by SRIM.

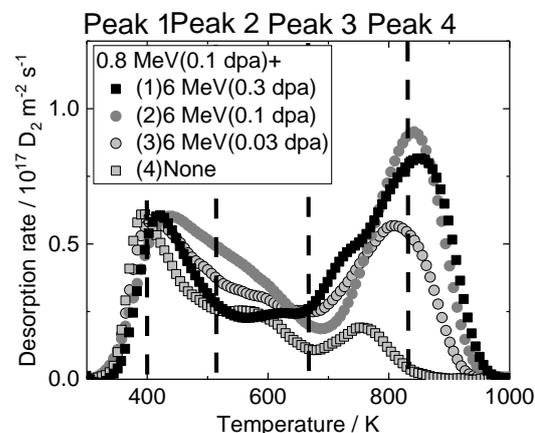


Fig. 2. D<sub>2</sub> TDS spectra for Fe ion irradiated W

[17002]

Table I. D retention for W under various irradiation conditions.

Sample No.	Ion energy (MeV) (damage concentration (dpa))	D retention ( $D^+ m^{-2}$ )
(1)	0.8 (0.1) + 6 (0.3)	$1.0 \times 10^{20}$
(2)	0.8 (0.1) + 6 (0.1)	$1.1 \times 10^{20}$
(3)	0.8 (0.1) + 6 (0.03)	$1.1 \times 10^{20}$
(4)	0.8 (0.1)	$0.4 \times 10^{20}$

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、TDS により得られたデータを元に HIDT シミュレーションを用いて結果を解析した。

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。上記の鉄イオン照射タングステン試料を、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 鉄イオン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 鉄イオン照射による欠陥分布が試料表面から約  $0.5 \mu m$  に集中している一方で、6 MeV 鉄イオン照射による欠陥は  $1.5 \mu m$  付近まで分布していることがわかる。

Fig.2 に 6 MeV 鉄イオン照射によりバルクの欠陥密度を変化させた種々の鉄イオン照射 W における重水素 TDS スペクトルを示す。各試料からの重水素は 300 - 1000 K の温度領域で  $D_2$  の形で放出した。先行研究より、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おり、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、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<sup>[4]</sup>。0.8 MeV + 6 MeV 鉄イオン複合照射試料では、6 MeV 鉄イオン照射による欠陥密度が増加すると原子空孔、原子空孔集合体における D 滞留量は減少するが、ボイドへの捕捉は増加した。これらの結果は、バルクへの損傷量の増加によって空孔がボイドに成長したことを示唆している。

Table I に Fig.1 に示した各試料における全重水素滞留量を示す。先行研究では<sup>[4]</sup> 6 MeV 鉄イオン単独照射 W 中の全 D 滞留量は損傷量の増加に伴って増加しているのに対し、0.8 MeV + 6 MeV 鉄イオン複合照射 W では試料中の全 D 滞留量はほぼ変化しなかった。この結果から、表面付近の欠陥によって試料中の重水素滞留が抑制されていることがわかる。

Fig.3 に 0.8 MeV 鉄イオン照射により表面付近の

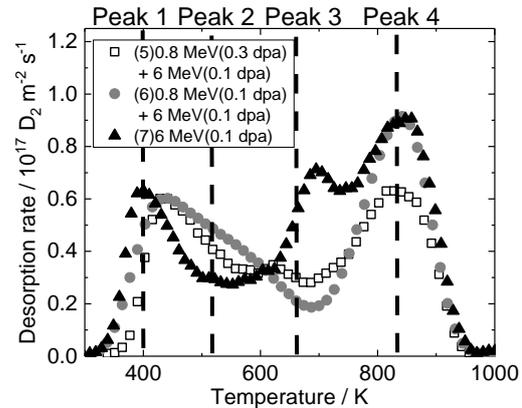


Fig. 3.  $D_2$  TDS spectra for Fe ion irradiated W

Table II. D retention for W under various irradiation conditions.

Sample No.	Ion energy (MeV) (damage concentration (dpa))	D retention ( $D^+ m^{-2}$ )
(5)	0.8 (0.3) + 6 (0.1)	$0.9 \times 10^{20}$
(6)	0.8 (0.1) + 6 (0.1)	$1.1 \times 10^{20}$
(7)	6 (0.1)	$2.3 \times 10^{20}$

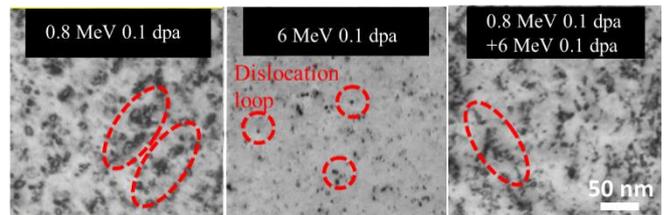


Fig. 4. TEM image (dislocation loops) for Fe ion irradiated W (observed at R.T.).

欠陥密度を変化させた種々の鉄イオン照射 W における重水素 TDS スペクトルを示す。表面吸着または転位ループによる D 滞留量は照射損傷量によって変化せず飽和していると考えられる。0.8 MeV 鉄イオン照射による欠陥密度が増加すると原子空孔集合体及びボイドにおける D 滞留量は減少した。

Table II に Fig.1 に示した各試料における全重水素滞留量を示す。0.8 MeV + 6 MeV 鉄イオン複合照射試料では 0.8 MeV 鉄イオン照射による欠陥密度増加に伴い、W 試料中の全 D 滞留量は減少した。この結果から、表面欠陥密度の増加によって表面付近での D 捕捉量が増加し、試料表面での  $D_2$  への再結合を促進していることが示唆された。

Fig. 4 に Fe イオン照射タングステン試料における転位ループの TEM 写真を示す。0.8 MeV 鉄イオン単独照射試料では、6 MeV Fe イオン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、0.8 MeV 鉄イ

[17002]

オン単独照射照射試料と 0.8 MeV + 6 MeV 鉄イオン複合照射試料では導入された転移ループの量は同程度であり、複合照射試料の最表面は 0.8 MeV Fe イオン照射による欠陥が支配的であるとわかる。また、Fig.3 より 0.8 MeV Fe イオン照射によって転位ループが増加しても転位ループによる D 滞留量は変化しない。

Fig.5, 6 に HIFT シミュレーションによって得られた各試料における  $D_2^+$  照射後の D 濃度深さ分布を示す。6 MeV 鉄イオン単独照射試料は  $1.0 \mu m$ 、0.8 MeV 鉄イオン単独照射試料では  $0.4 \mu m$  程度まで D が捕捉されているのに対し、0.8 MeV + 6 MeV 鉄イオン複合照射試料では  $0.5 \mu m$  までにより多くの D が捕捉されるとともに  $1.0 \sim 1.4 \mu m$  程まで D が拡散している。このシミュレーション結果から、6 MeV 鉄イオン照射による欠陥密度の増加によりバルク中の D 濃度が増加することがわかる。また、表面付近への欠陥密度増加により、表面付近での D 滞留量が増加するとともにバルクでの D 密度が減少することが示唆された。

#### 4. まとめ

本研究では、鉄イオン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 + 6 MeV 鉄イオン複合照射試料では 0.8 MeV 鉄イオン照射による欠陥密度増加に伴って原子空孔集合体及びボイドにおける D 滞留量が減少し、W 試料中の全 D 滞留量は減少することがわかった。また、HIFT シミュレーションにより表面付近への欠陥密度増加により、表面付近での D 滞留量が増加するとともにバルクでの D 密度が減少することが示唆された。以上の結果より、水素同位体はタングステン表面付近により多くの欠陥が形成されると、表面付近で、転移ループや原子空孔といった D 捕捉エネルギーの小さい捕捉サイトへの高密度の D 捕捉が起こり、試料表面での  $D_2$  への再結合を促進していることが示唆された。

#### 参考文献

- [1] M. Rieth, S. L. Dudarev, S. M. Gonzalez de Vicente, et al., J. Nucl. Mater. 432 (2013) 482.
- [2] R. Causey, J. Nucl. Mater. 300 (2002) 91.
- [3] A. Hasegawa, M. Fukuda, S. Nogami et al., Fusion Eng. Des.
- [4] Hiroe Fujita, Yasuhisa Oya, et al., Phys. Scr., T167 (2016) 014068

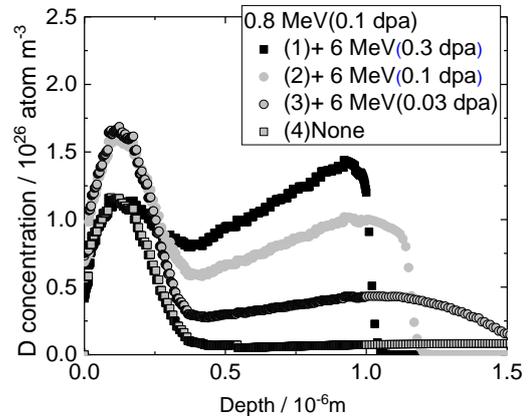


Fig. 5. The simulation of D depth profiles after  $D_2^+$  implantation for each sample.

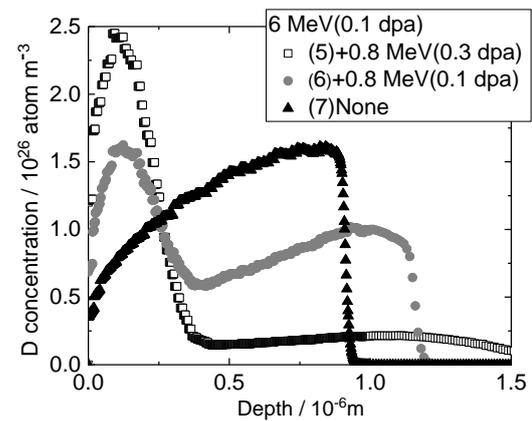


Fig. 6. The simulation of D depth profiles after  $D_2^+$  implantation for each sample.