

[19007]

## 水素同位体透過低減性セラミックス被覆における照射損傷およびヘリウムの影響 Effects of Irradiation Damage and Helium to Hydrogen Permeation Barrier Ceramics Coating

近田拓未<sup>#,A)</sup>, 中村和貴<sup>A)</sup>, 三浦颯太<sup>B)</sup>, 木村圭佑<sup>A)</sup>, 赤星江莉加<sup>A)</sup>, 遠藤理帆<sup>A)</sup>, 中澤章太<sup>A)</sup>  
Takumi Chikada<sup>#,A)</sup>, Kazuki Nakamura<sup>A)</sup>, Sota Miura<sup>A)</sup>, Keisuke Kimura<sup>A)</sup>, Erika Akahoshi<sup>A)</sup>,  
Riho Endoh<sup>A)</sup>, Shota Nakazawa<sup>A)</sup>,

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

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

### Abstract

Tritium permeation through structural materials in a fusion reactor is a critical issue from the viewpoints of radiological safety and fuel loss. As a solution, fabrication of tritium permeation barrier coatings has been investigated for several decades. In recent years, several irradiation tests have been conducted for the ceramic coatings in order to understand irradiation effects on their characteristics and functions. However, there are few experimental reports on multi-irradiation tests of neutrons and alpha particles produced by nuclear reactions and radioactive decay of tritium. In this study, yttrium oxide coatings were fabricated by radio frequency magnetron sputtering, and their microstructures and deuterium permeation behaviors were investigated after nickel ion irradiation and helium implantation tests simulating irradiation damage by neutrons and alpha particles. The irradiated samples showed the formation of voids and an amorphous layer. In the deuterium permeation tests, all the samples showed almost the same permeation flux at less than 400 °C. A decrease in the flux due to grain growth and/or crystallization was confirmed at higher than 450 °C. The fluxes of the irradiated samples decreased at higher temperatures than unirradiated samples, suggesting that the voids prevented structural change. The microstructure and deuterium behavior of the Ni-He-sequential-irradiated sample was similar to the those of Ni-irradiated sample. Therefore, in the case that He implantation conducted after heavy ion irradiation, He might have little effects on the characteristics and functions of the coatings.

*Keyword: tritium, permeation, ceramics, ion irradiation*

### 1. 緒言

核融合炉ブランケットシステムにおいて、燃料トリチウムの炉外への透過漏洩は、燃料効率の低下や周辺環境の汚染の観点から、避けられない課題である。トリチウムの透過を抑制するために、配管等の構造材料表面にトリチウム低透過性のセラミックス被覆を施す技術が開発されてきた。ここ数十年でセラミックス被覆の詳細な水素同位体透過挙動の解明や、トリチウム増殖剤との共存性調査などが行われている[1-5]。一方で、核融合炉内で想定される高線量の放射線による被覆への照射影響は、被覆の実用化に向けて考慮すべき事柄であり、近年では被覆に対する放射線照射効果に関する研究が進められている[6-9]。セラミックス材料の中でも優れた放射化特性を有すると知られている酸化イットリウム( $Y_2O_3$ )被覆に対し、炉内における中性子照射損傷を模擬するための重イオン照射が実施され、被覆の微細構造や水素同位体透過挙動に対する照射影響が調査されている[7,8]。しかし実際には、核反応により生成するヘリウム(He)原子核が被覆の微細構造や水素同位体透過挙動に影響を及ぼす可能性があるため、放射線照射損傷に加え、He原子核の被覆内滞留を併せた複合的な照射影響を調べる必要がある。昨年度の報告では鉄(Fe)-He同時照射試験を実施し、照射欠陥複合体であるHeバブルの形成や、それに伴う水素同位体透過挙動の変化が確認された[9]。本研究では

更に詳細なヘリウム照射影響を調査するために、マグネトロンスパッタリング法により作製した $Y_2O_3$ 被覆試料に対して、ニッケル(Ni)イオン単独照射およびNi-He逐次照射試験を行った。照射後試料の微細構造分析や重水素透過試験を通し、 $Y_2O_3$ 被覆における重イオンおよびHe複合照射影響について調査した。

### 2. 実験方法

#### 2.1 被覆試料の作製

低放射化フェライト鋼 F82H (Fe-8Cr-2W、25 mm × 25 mm × 0.5 mm) 平板に、非反応性マグネトロンスパッタリング法を用いて、膜厚約 600 nm の $Y_2O_3$ 被覆を作製した。蒸着後の試料に対し、不純物除去と被覆の粒成長および結晶化の促進のために、高真空下 ( $< 10^{-5}$  Pa) で 600 °C、24 時間の熱処理を施し、これを被覆試料とした。

#### 2.2 照射試験

量研高崎 TIARA の 3 MV タンデム加速器および 400 kV イオン注入装置を利用し、Ni 単独照射および Ni-He 逐次照射を室温下で行った。入射エネルギーは Ni イオンが 6.0 MeV、He イオンが 100 keV であり、フルエンスはそれぞれ  $8.6 \times 10^{18} m^{-2}$ 、 $6.7 \times 10^{19} m^{-2}$  であった。照射シミュレーションコード SRIM-2013 で計算した Ni イオン照射による損傷密度分布および

[19007]

び He 注入分布を図 1 に示す。被覆内での Ni イオン照射による損傷密度は 0.32 dpa、He 注入量は最大 4000 appm と見積もられた。

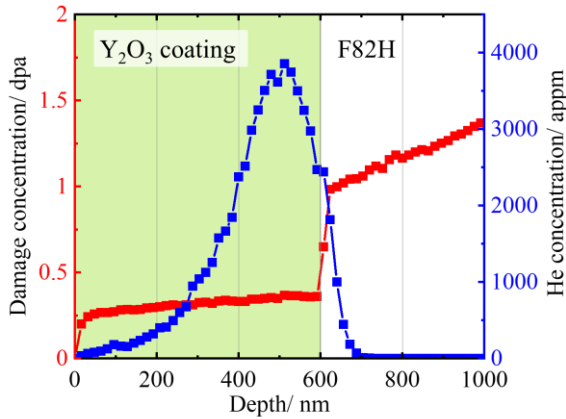


Figure 1. Depth profile of irradiation damage and He concentration in the sample irradiated by 6.0 MeV Ni ions and 100 keV He ions.

### 2.3 試料分析

各照射試料および非照射試料に対し、集束イオンビーム (FIB) を用いた試料加工を施した後、透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いて微細構造分析を行った。また、被覆内の水素同位体透過挙動を調査するために、ガス透過法による重水素透過試験を行った。透過試験は導入圧力を 10~80 kPa、試験温度を 300~550 °C に設定して行った。

## 3. 結果と考察

### 3.1 微細構造分析

図 2 に非照射および Ni 単独照射、Ni-He 逐次照射試料の断面 TEM 像を示す。非照射試料では、被覆全体において結晶質で構成されており、結晶粒の構造は粒状であった。Ni 単独照射後は、被覆と基板の界面付近に、アモルファス構造とみられる厚さが 80 nm 程度の新たな層の生成が確認された。Ni-He 逐次照射試料においてもアモルファス層が形成しており、同様の微細構造を示した。各照射試料の結晶層の拡大像を図 3 に示す。どちらの試料でも多数ボイドが形成しているが、He を注入した効果は確認できなかった。昨年度の報告では Fe-He 同時照射を実施し、被覆中に数 nm 程度の He バブルとみられる球体が観察されていた。今回の逐次照射では、He 濃度が比較的大きいにもかかわらず、微細構造に対する有意な He 効果は確認できなかった。He バブルの形成は、重イオン照射によって形成した照射欠陥と、注入された He イオンが結びつくことで行われると考えられる。重イオン-He 逐次照射では、重イオン照射によって多数の照射欠陥が生成するが、その後の He イオン注入までにその多くが回復したと考えられる。

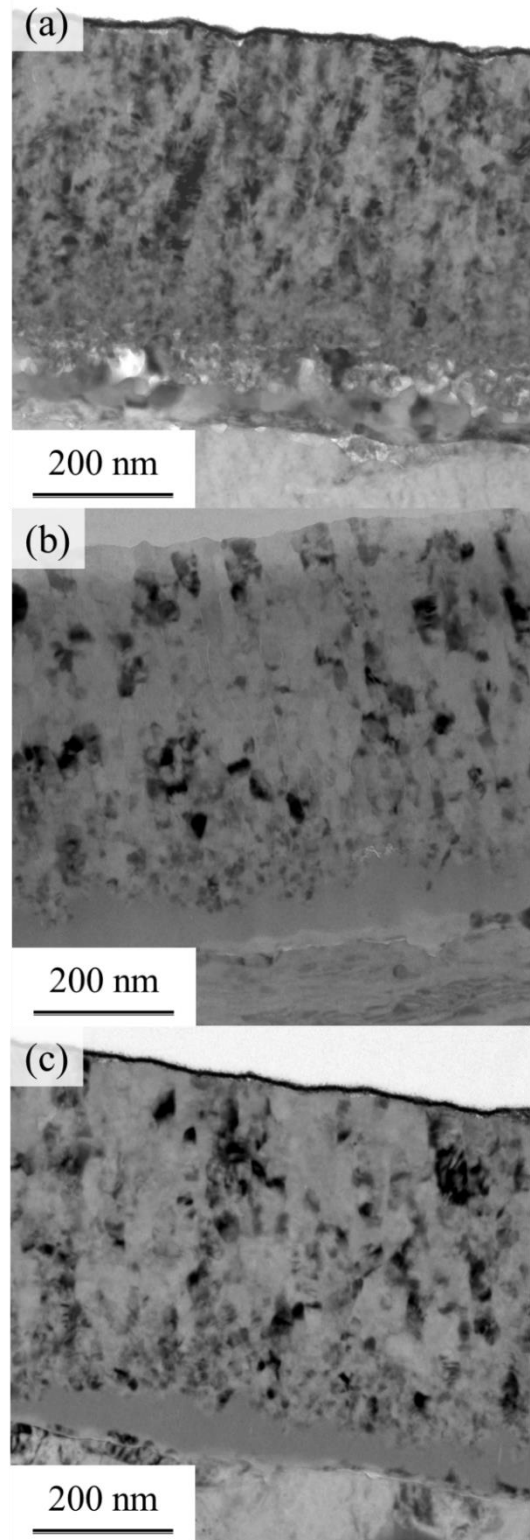


Figure 2. Cross-sectional TEM images of (a) unirradiated, (b) Ni-single-irradiated and (c) Ni-He-sequential-irradiated samples.

[19007]

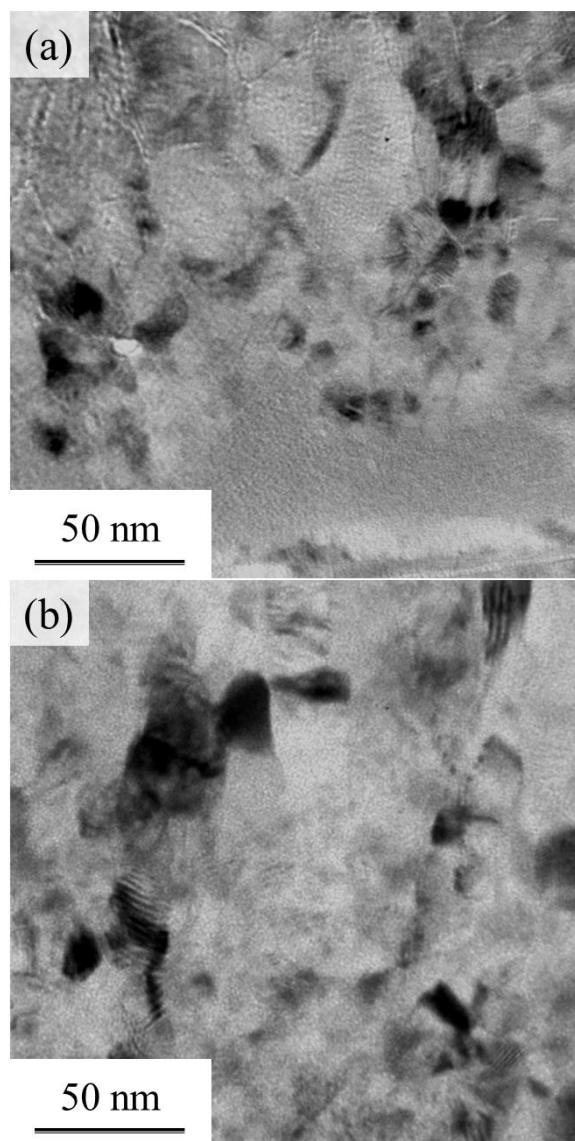


Figure 3. Enlarged TEM images of (a) Ni-single and (b) Ni-He-sequential-irradiated samples.

### 3.2 重水素透過試験

図4にNiイオンを損傷密度0.32 dpa、最大He濃度4000 appmとなるまでNi-He逐次照射した被覆試料およびNi単独照射試料、非照射試料中の重水素透過フラックスの温度依存性を示す。試験開始時300℃および400℃における透過フラックスは、全ての試料で同程度だったが、非照射試料では450℃において粒成長または結晶化に起因するとみられる透過フラックスの減少が確認された。一方で、Ni単独照射およびNi-He逐次照射試料では、500℃で同様の挙動が確認された。その後の550℃の試験では、どちらの照射試料も透過フラックスが試験温度の上昇に伴って増加し、その値はほとんど同じだった。これは被覆温度が高くなったことで、重水素の拡散が促進されたためだと考えられる。また、非照射試料では500℃、550℃においても、450℃の時と同じ

ように透過フラックスが減少した。これらの結果から、Niイオンの照射によって導入された照射欠陥が低温では被覆の構造変化を妨げていたが、高温になると欠陥が回復し、結晶成長を起こすようになったと考えられる。550℃において照射試料の結晶成長が起こらなかったのは、温度上昇での回復がみられない安定した欠陥の影響だと推測される。単独照射および逐次照射試料の重水素透過挙動がほとんど同じであったことから、逐次照射では微細構造だけでなく、重水素透過挙動に対してもHe効果がほとんどないことが明らかになった。

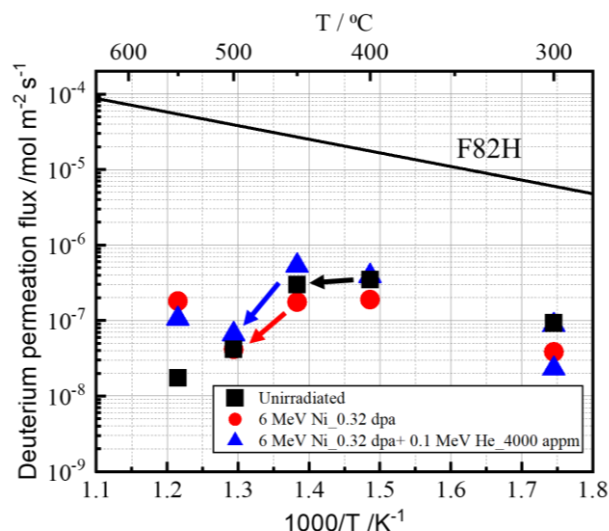


Figure 4. Arrhenius plots of deuterium permeation flux in  $Y_2O_3$ -coated sample unirradiated and irradiated under each condition.

## 4. 結言

本研究では、マグネトロンスパッタリング法により作製した $Y_2O_3$ 被覆試料に対して、Ni単独照射およびNi-He逐次照射試験を実施し、その後の微細構造分析や重水素透過試験を通して被覆に対する重イオンおよびHe照射効果について調査した。照射前の被覆は結晶質であったのに対し、どちらの照射試料でもボイドやアモルファス層が形成し、照射欠陥が導入されたといえる。しかし微細構造分析からは、Heバブルの生成といったHe照射に伴う影響が確認されなかった。重水素透過試験では、Niイオン照射により形成した欠陥の影響とみられる結晶成長の阻害が確認された。また、単独照射と逐次照射試料の各温度における透過フラックスの値がほとんど同じであったことから、重水素透過挙動に対してもHe効果はほとんど無いと考えられる。逐次照射では、Ni照射により形成した照射欠陥がHe照射を行うまでに回復し、Heバブルのような照射欠陥複合体を形成しないことが示唆された。

## 参考文献

- [1] T. Chikada et al., Fusion Eng. Des. 84 (2009) 590–592.

[19007]

- [2] T. Chikada et al., *Fusion Sci. Technol.* 56 (2009) 309-313.
- [3] T. Chikada et al., *Nucl. Fusion* 51 (2011) 063023 (5pp).
- [4] T. Chikada et al., *Nucl. Mater. Energy* 9 (2016) 529-534.
- [5] M. Matsunaga et al., *J. Nucl. Mater.*, 511 (2018) 537-543.
- [6] W. Mao et al., *J. Power Sources* 303 (2016) 168-174.
- [7] T. Chikada et al., *J. Nucl. Mater.* 511 (2018) 560-566.
- [8] K. Nakamura et al., *Fusion Eng. Des.* 146 (2019) 2031-2035
- [9] K. Nakamura et al., *J. Nucl. Mater.* in press.  
DOI: 10.1016/j.jnucmat.2020.152244