

[19013]

## タングステンにおける中性子照射を模擬したバルク照射欠陥分布と

### そのトリチウム滞留への影響評価

#### Evaluation of Bulk Irradiation Defect Distribution Simulating Neutron Irradiation on Tritium Retention in Damaged Tungsten

大矢 恭久<sup>#,A)</sup>, 仲田 萌子<sup>B)</sup>, 山崎 翔太<sup>B)</sup>, 和田 拓郎<sup>B)</sup>, 小池 彩華<sup>B)</sup>, 趙 明忠<sup>C)</sup>, 孫 飛<sup>A)</sup>, 宮澤 俊義<sup>D)</sup>  
Yasuhisa Oya<sup>#,A)</sup>, Moeko Nakata<sup>B)</sup>, Shota Yamazaki<sup>B)</sup>, Takuro Wada<sup>B)</sup>, Ayaka Koike<sup>B)</sup>,  
Mingzhong Zhao<sup>C)</sup>, Fei Sun<sup>A)</sup>, Toshiyoshi Miyazawa<sup>D)</sup>

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

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

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

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

#### Abstract

The deuterium (D) retention behavior in tungsten (W) with various damage distributions was evaluated by the combination of 6 MeV Fe<sup>2+</sup> and fission neutron irradiation. Thereafter, 1.0 keV D<sub>2</sub><sup>+</sup> implantation and thermal desorption spectroscopy (TDS) were performed to evaluate the D retention behavior in W. In the neutron - Fe<sup>2+</sup> irradiated samples, D diffusion was suppressed by the increase of damages, namely point defects due to neutron irradiation, and the total D retention was decreased.

**Keyword:** Hydrogen isotopes retention, Irradiation damages, Tungsten, TDS, Neutron

#### 1. 目的

核融合炉環境下ではDT核融合反応による14 MeV中性子や高エネルギー水素同位体がプラズマ対向材であるタングステンに照射され、照射欠陥が形成される。一般的にタングステンの水素同位体滞留量は低いことで知られているが、タングステン中に欠陥が形成されると照射欠陥が水素同位体の安定な捕捉サイトとなり、水素同位体滞留量が増加することが報告されている[1]。過去の研究では、中性子照射による放射化によって試料の取扱が困難になるため、中性子照射タングステン中の水素同位体滞留挙動はタングステンイオンや鉄イオンなどの重イオン照射タングステンを使用した模擬実験により評価されることが多かった[1-3]。重イオン照射実験により、欠陥を導入したタングステンは損傷量が増加するにつれて、ポイドなどの安定な捕捉サイトを形成し、水素同位体滞留量が増加することが明らかにされた[3]。しかし、重イオンは荷電粒子であるため飛程が短く、照射欠陥は表面付近に集中して形成されるが、中性子は照射欠陥をバルク中に均一に形成するため、重イオン照射と中性子照射ではタングステン中の水素同位体滞留挙動が異なると予想される[4]。また実機環境下においても、14 MeV中性子の他に燃料である重水素やトリチウムが高エネルギー粒子としてプラズマ対向機器に照射され、これらのイオンによって導入される欠陥は表面に集中して分布する。よって、プラズマ対向材料中の照射欠陥は分布を持っている。

そこで本研究では、プラズマ対向材料候補であるタングステンにおいて、実機環境下において生じる照射欠陥分布の影響を系統的に理解するため、中性子および鉄イオン照射によって生成する欠陥分布を

制御し、照射欠陥分布が水素同位体滞留挙動に及ぼす影響を明らかにすることを目的とした。より実際の核融合炉環境に近い照射欠陥分布を模擬するため、核分裂中性子照射および鉄イオン照射を組み合わせることでタングステン中の欠陥分布を制御し、照射欠陥分布が水素同位体滞留挙動に及ぼす影響について評価した。

#### 2. 実験方法

試料はアライドマテリアル社製の歪取加工済みタングステンの両面鏡面研磨ディスク(表面粗さ 0.1 μm 以下、厚さ 0.5 mm、直径 6 mm)を用いた。不純物除去のため、高真空下(<1.0×10<sup>-6</sup> Pa)、加熱温度 1173 K にて 30 分間加熱処理を行った。この試料に対して量子科学技術研究開発機構(QST)高崎量子応用研究所の 3 MV タンデム加速器(TIARA)にて、それぞれ鉄イオン照射を 6 MeV 鉄イオン(Fe<sup>2+</sup>)で損傷量 0.01, 0.1 dpa まで照射した。次に中性子照射欠陥導入のために、京都大学複合原子力科学研究所の研究用原子炉を用いて、核分裂反応により生成された中性子を損傷量 1.5×10<sup>-2</sup> dpa まで照射した。照射損傷量は、核分裂中性子照射は specter コードによって求められた dpa 断面積を用いた計算、鉄イオン照射では SRIM コード[5]を用いた計算により算出した。その後、静岡大学にて重水素イオン照射をイオンエネルギー 1.0 keV D<sub>2</sub><sup>+</sup>、イオンフラックス 1.0 × 10<sup>18</sup> D<sup>+</sup> m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> にて、1.0 × 10<sup>22</sup> D<sup>+</sup> m<sup>-2</sup> まで室温照射した後、昇温領域を室温から 1173 K まで、昇温速度 30 K min<sup>-1</sup> として TDS 測定を行った。

[19013]

### 3. 結果・考察

Table 1 に京都大学研究用原子炉の水圧輸送管における中性子エネルギー分布を、Fig. 1 に SRIM コードによって計算した、タングステンにおける各鉄イオン照射によって導入された照射欠陥分布を示す。また、Table 2 に各作成試料の鉄イオン照射条件を示す。

Table 1 Neutron Energy Distribution in the Hydraulic Transport Tube of KUR

	Neutron energy	Flux (n m <sup>-2</sup> )
Thermal neutron	>0.025 eV	1.6×10 <sup>13</sup>
Epithermal neutron	0.025~0.50 MeV	1.2×10 <sup>12</sup>
Fast neutron	<0.5 MeV	7.8×10 <sup>12</sup>

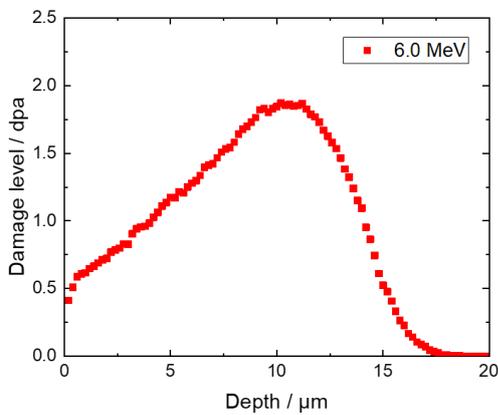


Fig. 1 Damage depth profile of 6 MeV Fe<sup>2+</sup> calculated by SRIM

Table 2 The damage levels of Fe<sup>2+</sup>-neutron irradiation conditions for each sample

No.	6 MeV Fe <sup>2+</sup>	Neutron
(1)	None	None
(2)	None	1.5×10 <sup>-2</sup> dpa
(3)	0.01 dpa	1.5×10 <sup>-2</sup> dpa
(4)	0.1 dpa	1.5×10 <sup>-2</sup> dpa
(5)	0.01 dpa	None
(6)	0.1 dpa	None

Fig. 2 に 6 MeV 鉄イオン照射により表面近傍の欠陥密度を変化させた種々の中性子-鉄イオン複合照射試料における重水素 TDS スペクトルを、Fig. 3 に 6 MeV 鉄イオン単独照射試料における重水素 TDS スペクトルを示す。タングステン中に滞留した重水素は 300 - 900 K にかけて D<sub>2</sub> の形で放出した。重水素捕捉状態を考察するため、ガウス分布関数を用いピーク分離を行った結果、TDS スペクトルは 400 K、

550 K、650 K および 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わかった。Fig. 4 および Fig. 5 に各中性子-鉄イオン複合照射試料における各ピークの重水素滞留量を、Table 3 に全重水素滞留量を示す。

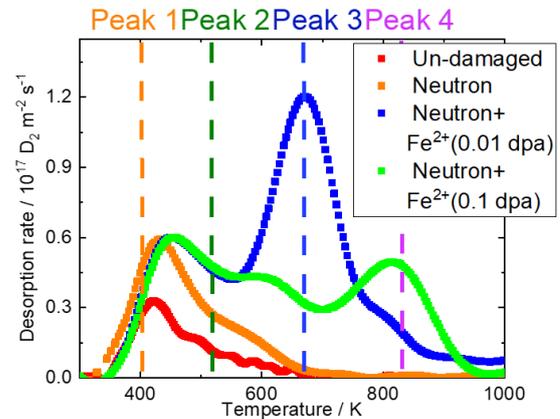


Fig. 2 D<sub>2</sub> spectra for neutron and Fe<sup>2+</sup> irradiated samples

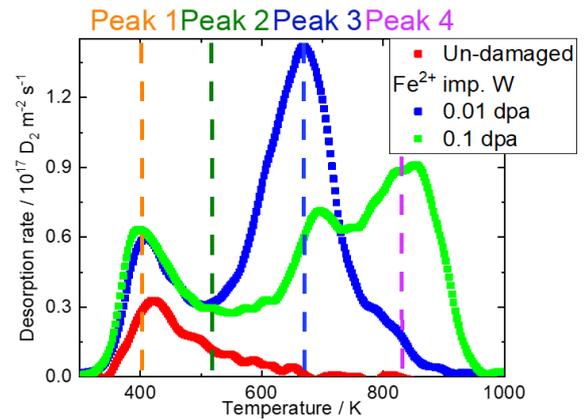


Fig. 3 D<sub>2</sub> spectra for Fe<sup>2+</sup> irradiated samples

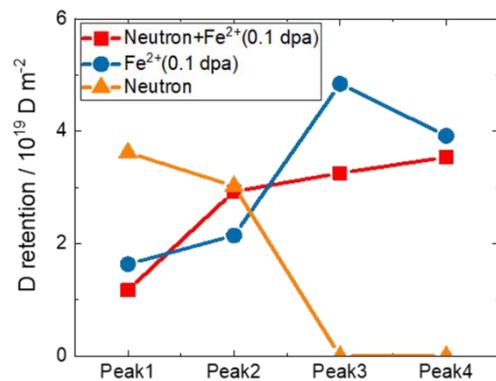


Fig. 4 Deuterium retention of each peak in each neutron-iron ion irradiated sample

[19013]

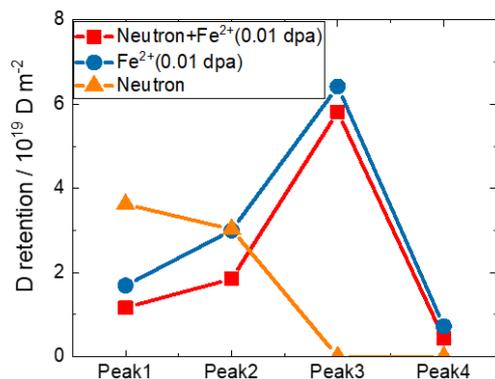


Fig. 5 Deuterium retention of each peak in each neutron-iron ion irradiated sample

Table 3 Total Deuterium retention for each sample

No.	Projectile	Retention ( $D m^{-2}$ )
(1)	Un-damaged	$1.23 \times 10^{19}$
(2)	Neutron	$5.01 \times 10^{19}$
(3)	6 MeV Fe <sup>2+</sup> (0.01 dpa) + Neutron	$1.24 \times 10^{20}$
(4)	6 MeV Fe <sup>2+</sup> (0.1 dpa) + Neutron	$9.35 \times 10^{19}$
(5)	6 MeV Fe <sup>2+</sup> (0.01 dpa)	$1.20 \times 10^{20}$
(6)	6 MeV Fe <sup>2+</sup> (0.1 dpa)	$1.26 \times 10^{20}$

核分裂中性子を用いて照射欠陥を導入した試料では、非照射試料に比べ表面吸着及び転位ループ、原子空孔による重水素捕捉が増加しており、原子空孔集合体およびボイドは未形成であると考えられる。また、6 MeV 鉄イオン単独照射試料に比べ、中性子-鉄イオン複合照射試料では、中性子照射による試料中の損傷量増加に伴って試料中の全重水素滞留量が減少した。この結果は、損傷量の増加に伴ってタングステン中の重水素滞留量が増加した先行研究[3]とは傾向が異なる。

事前に6 MeV 鉄イオン照射によって損傷量0.1 dpaまで欠陥を導入した中性子-鉄イオン複合照射試料では、中性子照射による欠陥密度が増加すると原子空孔集合体への捕捉は増加するが、原子空孔およびボイドにおける試料中の重水素滞留量は減少した。これは、先行研究[6]における0.8 MeV + 6 MeV 鉄イオン複合照射試料において0.8 MeV 鉄イオン照射による損傷量が増加させた場合と同様の傾向であり、中性子照射によって表面近傍の照射欠陥が成長したことを示唆している。一方、事前に6 MeV 鉄イオン照射によって損傷量0.01 dpaまで欠陥を導入した中性子-鉄イオン複合照射試料においては、中性子照射による欠陥密度が増加しても、どの重水素捕捉サイトにおいても重水素滞留量が減少した。特に表面吸着及び転位ループ、原子空孔による重水素捕捉量が

大きく減少しており、原因として中性子照射によって試料中に点欠陥が導入され、原子空孔-格子間原子の再結合が起こったことが考えられる。表面観察の結果から、鉄イオン照射タングステンでは損傷量0.1 dpa以上でボイドが形成されていることがわかっている。また、中性子-鉄イオン複合照射試料中の総重水素滞留量は、中性子照射による損傷量は小さいにもかかわらず、0.8 MeV + 6 MeV 鉄イオン複合照射試料の重水素滞留量よりも小さかった。これは、ボイドなどの重水素捕捉エネルギーが大きく安定な重水素捕捉サイトが低フルエンスの中性子照射では形成されないためであると考えられる。

これらの実験結果から、中性子-鉄イオン複合照射試料では表面付近の欠陥による影響が大きく、中性子照射による欠陥密度増加に伴って試料表面近傍の重水素滞留量が増加し、重水素拡散が抑制されている可能性が示唆された。

#### 4. まとめ

本研究において、より実際の核融合炉環境に近い照射欠陥分布を模擬するために、核分裂中性子および鉄イオン照射を組み合わせて欠陥分布を制御したタングステン試料へ重水素イオン照射・TDS法を行い、重水素滞留挙動評価を行った。その結果、中性子-鉄イオン複合照射試料では、中性子照射によって試料中の欠陥密度が増加すると、試料中の全重水素滞留量は減少した。この結果は損傷量の増加に伴ってタングステン中の重水素滞留量が増加した先行研究とは傾向が異なり、0.8 MeV + 6 MeV 鉄イオン複合照射試料において0.8 MeV 鉄イオン照射による損傷量を増加させた場合と同様であった。これは、中性子照射によって表面近傍の照射欠陥が増加・成長することで、重水素が表面付近に高密度で捕捉され、試料中の重水素拡散が抑制されるためであると考えられる。また、中性子単独照射試料では、非照射試料に比べ表面吸着及び転位ループ、原子空孔による重水素捕捉量のみが増加しており、低フルエンスの中性子照射では原子空孔集合体およびボイドは未形成であるとわかった。

これらの実験結果から、中性子-鉄イオン複合照射試料では表面付近の欠陥による影響が大きく、中性子照射による欠陥密度増加に伴って試料表面近傍の重水素滞留量が増加し、試料表面でのD<sub>2</sub>への再結合や重水素の拡散抑制が促進される可能性が示唆された。

#### 参考文献

- [1] B. Tyburska et al., J. Nucl. Mater., 395 (2009) 150-155.
- [2] V. Kh. Alimov et al., J. Nucl. Mater., 441 (2013) 280-285.
- [3] Y. Oya et al., J. Nucl. Mater., 461 (2015) 336-340.
- [4] M. Shimada et al., Fusion Eng. Des. 87 (2012) 1166-1170.
- [5] J. F. Ziegler, 2006 SRIM code, <http://www.srim.org/>.
- [6] M. Nakata et al., Fusion Eng. Des. 146 (2019) 2096-2099.