

[20012]

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^{#,A)}, 山崎 翔太^{B)}, 和田 拓郎^{B)}, 小池 彩華^{B)}, 芦沢 京祐^{B)}, 趙 明忠^{C)}, 孫 飛^{A)}, 宮澤 俊義^{D)}
Yasuhisa Oya^{#,A)}, Shota Yamazaki^{B)}, Takuro Wada^{B)}, Ayaka Koike^{B)}, Kyosuke Ashizawa^{B)},
Mingzhong Zhao^{C)}, Fei Sun^{A)}, Toshiyoshi Miyazawa^{D)}

^{A)} Faculty of Science, Shizuoka University

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

^{C)} Graduate School of Science and Technology, Shizuoka University, Shizuoka

^{D)} 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 Fe²⁺ and fission neutron irradiation. Thereafter, 1.0 keV D₂⁺ implantation and thermal desorption spectroscopy (TDS) were performed to evaluate the D retention behavior in W. In the neutron - Fe²⁺ 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

核融合炉運転時、プラズマ対向機器には DT 核融合反応により発生した 14 MeV 中性子や高エネルギー荷電粒子がプラズマ対向材料であるタングステンに照射され、照射欠陥が生じる。この時、中性子による照射欠陥はバルク中に一様に形成される一方で、荷電粒子による欠陥は表面に集中するため、材料中の欠陥は分布を持つことが想定される。過去の研究ではこの照射欠陥を導入するため、種々のエネルギーで鉄イオンを照射した試料が用いられているが、その飛程から損傷領域は表面から数 μm に限られる。核融合炉における 14 MeV 中性子による欠陥は材料内部まで一様に照射欠陥が生じることから、照射欠陥分布を模擬するためにはより深くバルク中に欠陥を導入する必要がある。

そこで本研究では、プラズマ対向材候補であるタングステンにおいて実機環境下で想定される照射欠陥分布が及ぼす影響を理解するため、鉄イオン及び水素イオンを複合照射した試料中での水素同位体滞留挙動を評価することを目的とした。タングステン材料中の照射深さの違いによって生じる挙動を理解するため、種々のエネルギーでの鉄イオン及び水素イオン照射を行うことで様々な照射欠陥分布を形成し、重水素滞留挙動に及ぼす影響について評価した。

2. 実験手順

試料には、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。最初に不純物除去のため、高真空下($<1.0 \times 10^{-6}$ Pa)、加熱温度 1173 K にて 30 分間加熱処理を行った。この

試料に対して欠陥導入のために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、鉄イオンを 6 MeV(Fe²⁺)または 0.8 MeV(Fe⁺)でそれぞれ損傷量が 0.1 dpa となるよう照射した後、水素イオン(H⁺)を 3 MeV または 0.8 MeV でそれぞれ損傷量が 6×10^{-4} dpa となるように照射した。作製した試料は Table 1 に示した通りである。照射損傷量は SRIM コード[1]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 3.0 keV D₂⁺、イオンフラックス 1.0×10^{18} D⁺ m⁻² s⁻¹にて、 1.0×10^{22} D⁺ m⁻²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⁻¹として TDS 測定を行った。さらに重水素イオン照射後の重水素深さ分布を評価するために、東北大学金属材料研究所附属国際量子エネルギー材料科学国際研究センターの放射線管理区域内に設立されたグロー放電発光分析(GD-OES)を用いて測定を行った。

Table 1 Experimental samples

試料名	鉄イオン (0.1 dpa)	水素イオン (6×10^{-4} dpa)
6Fe-3H	6 MeV Fe ²⁺	3 MeV H ⁺
6Fe-0.8H	6 MeV Fe ²⁺	0.8 MeV H ⁺
6Fe	6 MeV Fe ²⁺	—
0.8Fe-3H	0.8 MeV Fe ⁺	3 MeV H ⁺
0.8Fe-0.8H	0.8 MeV Fe ⁺	0.8 MeV H ⁺
0.8Fe	0.8 MeV Fe ⁺	—

[20012]

3. 実験結果及び考察

3.1 鉄イオン及び水素イオン照射タングステンにおける重水素滞留挙動

Fig. 1 に 6 MeV 鉄イオン及び水素イオン照射タングステンにおける重水素 TDS スペクトルを示す。前章で示した TDS スペクトルでは~600 K の低温側でのみ脱離ピークが見られたが、鉄イオン照射試料では 800 K 付近でもピークが見られた。過去の研究から TDS スペクトルに表れる各ピークは、400 K 付近は表面吸着及び転位ループ、500 K 付近は原子空孔、650 K 付近は原子空孔集合体、800 K 付近はボイドからの脱離であると報告されており、鉄イオン照射によって欠陥が成長したことが示されている[2]。また Table 2 に各試料における全重水素滞留量を示す。6 MeV Fe²⁺ 単独照射試料と比較すると、3 MeV 水素イオン照射試料は重水素滞留量が増加したが、0.8 MeV 水素イオン照射試料では滞留量が減少した。ガウス分布を仮定してフィッティングすることにより各ピークの面積を求め比較した Fig. 2 から、全てのピークにおいて 0.8 MeV 水素イオン照射試料では重水素滞留量が減少していることが分かった。過去の研究では、表面付近の欠陥密度が増加することによって重水素が内部拡散しにくくなり、重水素滞留量が減少することが報告されている[3]。今回の結果では水素イオン照射試料において 0.8 MeV のみ重水素滞留量が減少したが、前節で述べた通り表面近傍における損傷量は 3 MeV より 0.8 MeV の方が大きいいため、TDS スペクトルに違いが生じたことが考えられる。

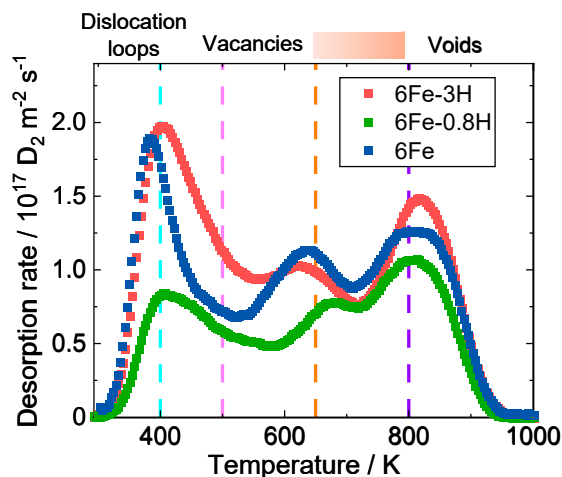


Fig. 1 Deuterium TDS spectrum in 6 MeV Fe²⁺ and hydrogen ion irradiated samples

Table 2 Total deuterium retention in 6 MeV Fe²⁺

Sample	Retention (D m ⁻²)
6Fe-3H	6.1×10^{20}
6Fe-0.8H	3.6×10^{20}
6Fe	5.6×10^{20}

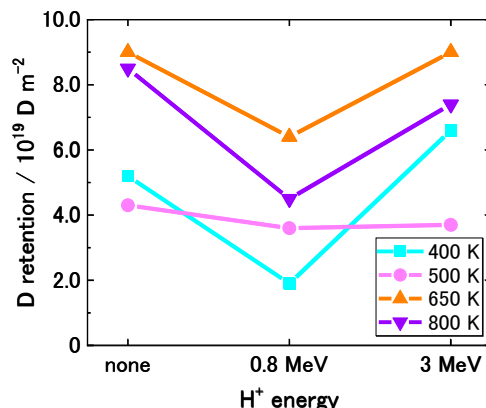


Fig. 2 Deuterium retention at each peak in 6 MeV Fe²

続いて、Fig. 3 に 0.8 MeV 鉄イオン及び水素イオン照射タングステンにおける重水素 TDS スペクトルを、Table 3 に各試料の全重水素滞留量を示す。ガウス分布を仮定してフィッティングすることにより各ピークの面積を求め比較したグラフを Fig. 4 に示したが、鉄イオン単独照射試料と比較するとどちらの水素イオン照射試料でも同程度重水素滞留量が増加した。0.8 MeV 鉄イオン照射の場合主な重水素の滞留はその損傷深さ~0.5 μm の領域で起こるが、SRIM コードによる計算からその領域での水素イオン照射による損傷量は小さく、影響は小さいことが考えられる。そのため水素イオン照射による内部の欠陥により、重水素滞留量が増加したことが考えられる。

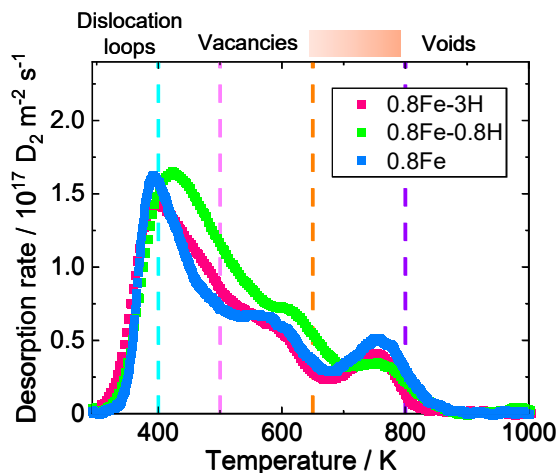


Fig. 3 Deuterium TDS spectrum in 0.8 MeV Fe²⁺ and hydrogen ion irradiated samples

Table 3 Total deuterium retention in 0.8 MeV Fe²⁺

Sample	Retention (D m ⁻²)
0.8Fe-3H	3.0×10^{20}
0.8Fe-0.8H	3.2×10^{20}
0.8Fe	1.8×10^{20}

[20012]

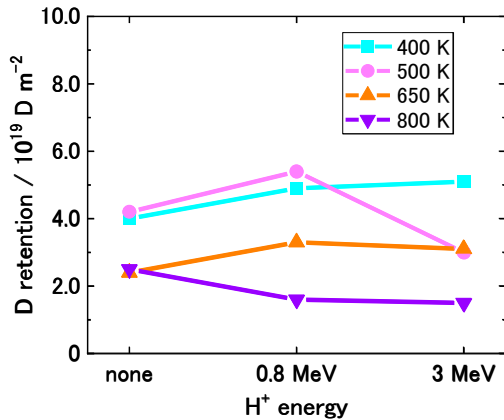


Fig. 4 Deuterium retention at each peak in 0.8 MeV Fe²⁺

3.2 鉄イオン及び水素イオン照射タングステン中の水素同位体深さ分布

GD-OES 測定による各試料の水素同位体深さ分布を Fig. 5 に示す。6 MeV 鉄イオン照射試料について、重水素深さ分布に大きな差は見られなかったが、0.8 MeV 水素イオン照射試料において全体的に重水素濃度が減少している様子が見られた。0.8 MeV 鉄イオン照射試料については、水素イオン照射によって内部まで重水素が拡散していた。0.8 MeV 鉄イオン照射による欠陥領域では水素イオン照射による損傷が少なく影響が小さいが、内部の欠陥に重水素が滞留したことにより、重水素滞留量が増加したことが示唆された。また、軽水素滞留が重水素滞留挙動に影響を及ぼした可能性を確かめるため、重水素と軽水素の存在比を深さ方向に取ったグラフを Fig. 6 に示す。各試料における $\sim 1 \mu\text{m}$ の範囲での軽水素と重水素のシグナル強度比の平均を求め、グラフ中に示した。水素と重水素の検出感度には差があるため厳密な比率の評価は難しいが、水素イオンを照射していない試料と比較しても大きな差は見られないため、試料中の軽水素が重水素滞留挙動に影響を及ぼす可能性は低いと考えられる。

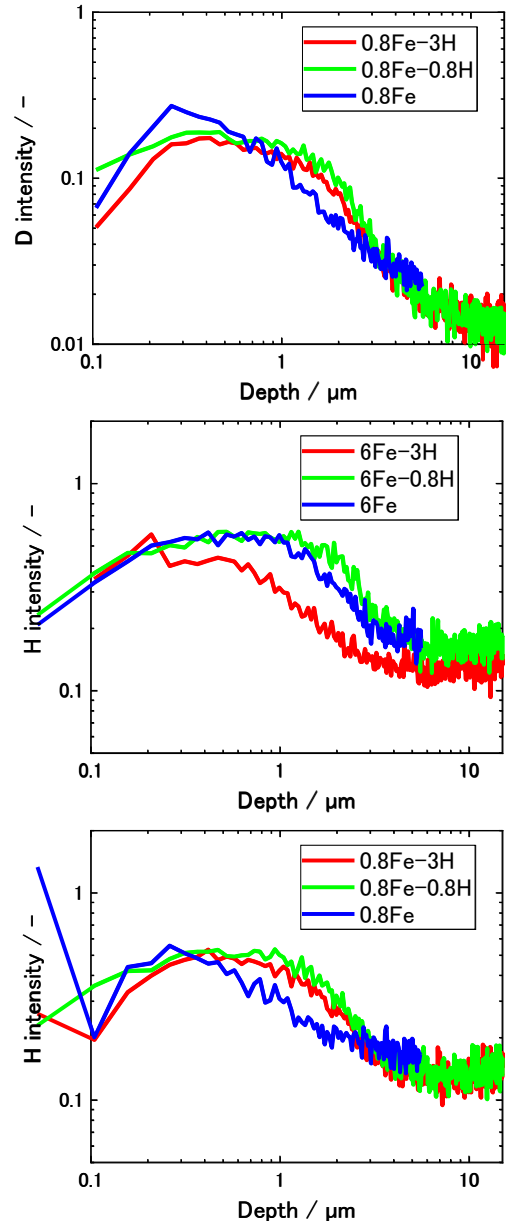
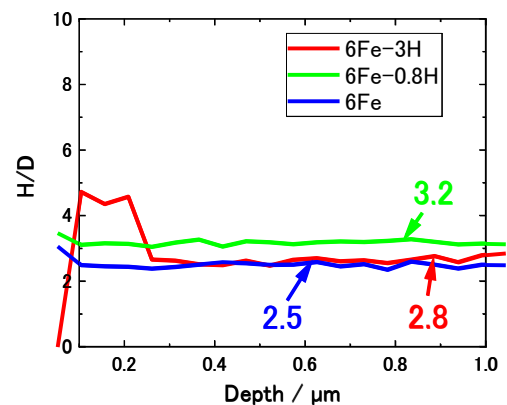
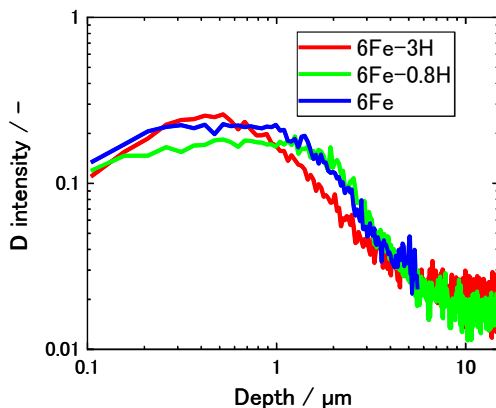


Fig. 5 Depth distribution of deuterium and hydrogen



[20012]

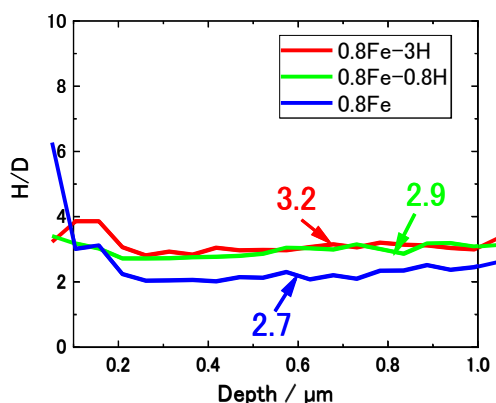


Fig. 6 Ratio of hydrogen to deuterium in depth direction

4. まとめ

本研究ではタングステン中の照射欠陥分布が水素同位体滞留挙動に及ぼす影響を評価するため、種々のエネルギーで鉄イオン及び水素イオンを複合照射した試料に対して、重水素イオン照射・TDS 及び GD-OES 測定を行い、水素同位体滞留挙動を評価した。TDS の結果では 6 MeV 鉄イオン及び 0.8 MeV 水素イオン複合照射試料において、6 MeV 鉄イオン照射試料と比較して重水素滞留量が減少した。他の複合照射試料との違いとしては鉄イオン、水素イオンによる損傷領域が最も被っているところが上げられ、0.8 MeV 水素イオン照射による表面付近の損傷量増加によって重水素の内部拡散が抑制され、重水素滞留量が減少したことが考えられる。また前節と同様に欠陥導入のために照射した軽水素が重水素滞留挙動に影響を及ぼしている可能性についても考察した。GD-OES の結果から水素イオン照射試料中に特筆して多く軽水素が滞留している証拠はなく、この可能性は低いことが考えられる。

これらの実験結果から、タングステン表面付近の欠陥密度が上がると試料内部への重水素拡散が抑制され、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] J. F. Ziegler, 2006 SRIM code., <http://www.srim.org/>
- [2] Y. Oya et al., J. Nucl. Mater. **461** (2015) 336.
- [3] M. Nakata, et al., Fusion. Eng. Des. 146 (2019) 2096.