

[21046]

中性子照射を模擬したタングステンにおけるプラズマ駆動透過に及ぼす 水素同位体効果

Evaluation of plasma driven permeation of hydrogen isotopes in simulating neutron irradiation tungsten

大矢恭久^{A)}, 平田詩織^{A)}, 芦沢京祐^{A)}

Oya Yasuhisa^{#,A)}, Shiori Hirata^{A)}, Kyosuke Ashizawa^{A)}

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

Abstract

Hydrogen(H) and deuterium(D) permeation fluxes for tungsten(W) by H-D mixed plasma were studied to clarify the hydrogen isotope effect on permeation by newly designed plasma driven permeation (PDP) device at Shizuoka University. H and D gases with 50:50 ratios were introduced to produce H and D mixed plasma. The atomic ratio and permeation flux in the plasma were measured during the experiments. In this study, isotope effects on hydrogen permeation behavior were evaluated by exposing to a mixed plasma of hydrogen and deuterium for iron ion damaged tungsten sample and neutron damaged tungsten sample. In terms of the hydrogen isotope ratio of the steady-state flux, the H/D ratio of the permeation flux was approached to almost the unity at higher temperatures above 900 K for the undamaged and iron ion damaged samples, but it is not reached to the unity for the neutron damaged sample, indicating that the existence of irradiation damages may contribute on hydrogen isotope effect on permeation.

Keyword: Tungsten, Plasma-driven permeation, H and D mixed plasma

1. 目的

核融合炉においてプラズマ対抗材料の候補に挙げられているタングstenは、水素同位体プラズマだけでなく DT 核融合反応によって生成される中性子や高エネルギー粒子にも曝される。さらに、一部のトリチウムはタングsten表面に衝突・溶解し、内部を拡散することによって透過する。これは燃料であるトリチウムの損失や放射線汚染につながるため、核融合炉の自己充足性や安全性の観点から問題となっている。そのため、本研究では鉄イオン照射によって中性子照射を模擬したタングsten試料と中性子照射を行ったタングsten試料に、水素と重水素混合プラズマ曝露を行うことにより、水素透過挙動における同位体効果を評価した。

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sten (表面粗さ 0.1 μm 以下、厚さ 0.5 mm、直径 6 mm または直径 10 mm)を用いた。最初に不純物除去のためエタノールによる超音波洗浄を行い、超高真空中で加熱温度 1173 K にて 30 分間の加熱処理を行った。照射欠陥の影響を理解するために、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、6 MeV 鉄イオン照射 (損傷量 1 dpa) を室温にて行われた試料(直径 10 mm)と、高中性子束同位体生産炉(HFIR)にて中性子照射 (損傷量 0.3 dpa) を 500 $^{\circ}\text{C}$ にて行われた試料(直径 6 mm)を作成した。その後、静岡大学理学部放

射科学実験棟の管理区域内に設置されたプラズマ駆動透過(PDP)装置を用いて H/D 混合プラズマ照射を原子比 H:D=50:50 として、723~923 K の温度範囲で PDP 実験を行った。この時、照射プラズマの H および D の総フラックスは $1 \times 10^{21} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ であった。

3. 実験結果および考察

3.1 各タングsten試料における定常透過フラックス評価

図 1 に各試料における H および D の定常透過フラックスの温度変化を示す。低温(723 K 付近)での非損傷試料に対する鉄イオン照射したタングsten試料の透過フラックスの減少は、H では約 0.6 倍、D では約 0.3 倍になった。低温(723 K 付近)での非損傷試料に対する中性子照射した試料の透過フラックスの増加は、H では約 1.1 倍、D では約 1.2 倍になることが確認された。また、高温側では鉄イオン照射した

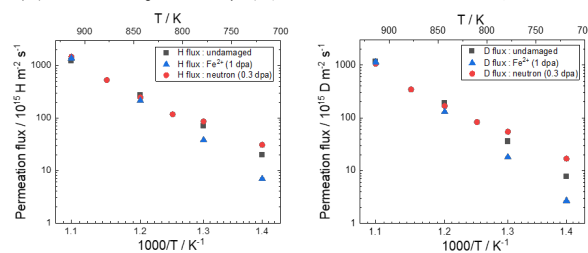


Fig. 1 H and D permeation flux as a function of temperature.
(Left : H permeation, Right : D permeation flux)

[#] oya.yasuhisa@shizuoka.ac.jp

[21046]

試料と中性子照射した試料の透過フラックスは同様に、非損傷試料の透過フラックスの値に近づき、高温による照射欠陥の回復が起こった可能性が示唆された。

3.2 定常透過フラックスの水素同位体の割合

図 2 に H と D の総透過フラックスを 100 % として、各試料における定常透過フラックスの水素同位体割合の温度変化をまとめた。非損傷試料と鉄イオン照射した試料では、低温側で H と D の透過フラックスに大きな差がある。H の透過フラックスは D の透過フラックスと比較して最大で約 2.5 倍になり、水素同位体効果が確認されるが、高温になるにつれ、透過フラックスの割合はともに 50 % に近づく。中性子照射された試料では低温側で、H の透過フラックスは D の透過フラックスと比較して最大で約 1.8 倍を示す。高温における割合は、D より H が約 1.4 倍大きく、非損傷試料と鉄イオン照射した試料ほど 50 % に近づかず、温度変化に対する水素同位体効果の変化は少なかった。この主要な要因として表面におけるリサイクリングとバルクでの拡散における水素同位体効果の影響が考えられる。

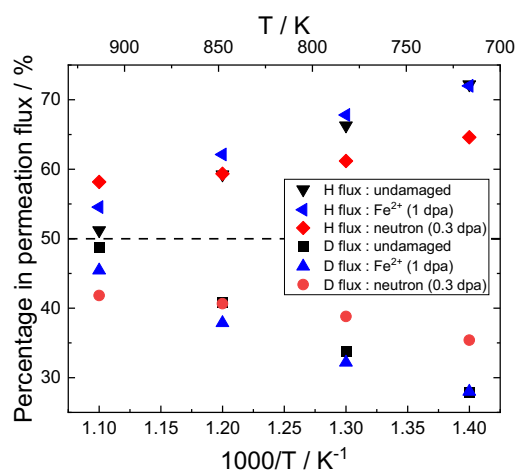


Fig. 2 The ratio of H and D permeation fluxes as a function of temperature.

3.3 H/D 混合プラズマ照射における水素同位体滞留挙動

原子比 H:D = 50:50 で総フルエンス $1.0 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ 、照射温度 473 K にてプラズマ照射したタンゲステン試料に対し室温から 1273 K まで TDS 測定を行った。図 4、図 5、図 6 に H と D の混合プラズマ照射した各試料における水素同位体の TDS スペクトルを、表 1 に各試料における水素同位体滞留量を示す。照射欠陥を導入した試料は非損傷試料と比べて水素同位体滞留量は増加しており、いずれの試料も D の方が H よりも滞留量は多かった。また TDS スペクトルを

見ると、照射欠陥を導入した試料ではピークが高温側まで広がっていた。これは水素同位体の捕捉サイトである照射欠陥による影響だと考えられる。各試料における H と D のピーク温度に差はみられず、捕捉エネルギーに大きな水素同位体効果は見られなかった。このことから水素の捕捉よりも表面での水素リサイクリングとバルクでの拡散が水素同位体効果に影響していると考えられる。

Table 1 Hydrogen isotope retention of various samples.

	Undamaged W	Fe ²⁺ irradiated W	Neutron irradiated W
H ₂ retention (m ⁻²)	2.04×10^{18}	8.50×10^{18}	1.60×10^{19}
D ₂ retention (m ⁻²)	2.20×10^{18}	1.60×10^{19}	2.12×10^{19}

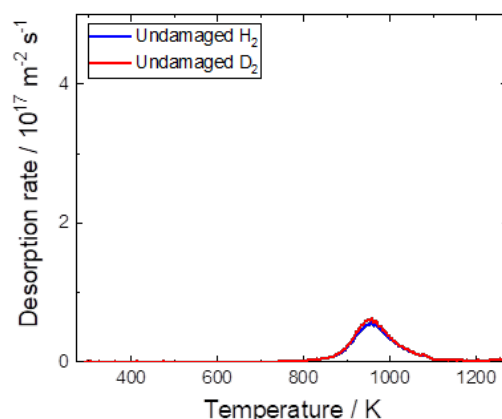


Fig. 3 Hydrogen isotope behavior of undamaged W.

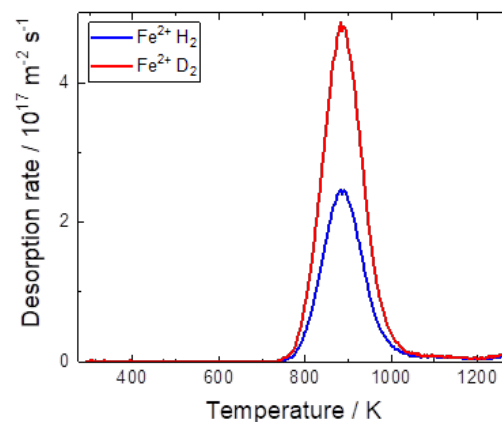


Fig. 4 Hydrogen isotope behavior of Fe²⁺ damaged W.

[21046]

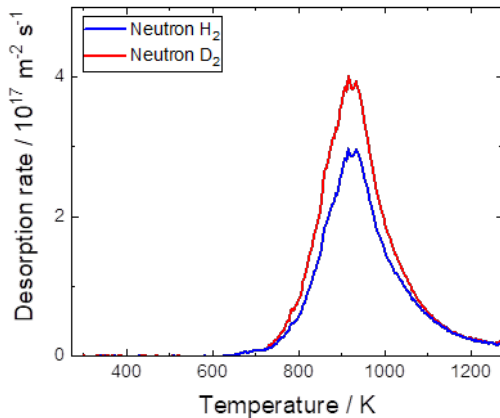


Fig. 5 Hydrogen isotope behavior of neutron damaged W.

4. 結論

本研究では鉄イオンまたは中性子照射タングステンを用いて PDP 実験を行うことにより、水素同位体共存下でのプラズマ駆動透過に及ぼす照射欠陥の影響と関連付けて、水素透過挙動における同位体効果を評価した。

定常透過フラックスの水素同位体の割合において、非照射試料と鉄イオン照射試料では高温になるにつれて透過フラックスの割合は 50 % に近づいたが、中性子照射試料ではあまり 50 % に近づかず、温度による水素同位体効果が見られなかった。また TDS 測定によって水素同位体滞留挙動を評価した。照射欠陥影響によって水素同位体が捕捉され滞留量が増加した。照射欠陥が導入されると水素を捕捉し拡散障壁となり透過経路に滞留することにより他の水素の透過経路を減少させるため水素透過率と拡散係数の減少を起こすことと、中性子照射ではバルク深くまで均一に照射損傷が導入されるため、照射欠陥は水素同位体を捕捉し拡散障壁として働くだけでなく、欠陥の一部は拡散経路としても働くことが示唆された。このことから水素の捕捉よりも表面での水素リサイクリングとバルクでの拡散が水素同位体効果に影響していると考えられる。