

[2024202005]

先進プラズマ対向壁における水素同位体輸送に関する照射欠陥密度依存性 Density Dependence of irradiation defect for hydrogen isotope transport in advanced plasma-facing walls

大矢恭久^{#,A)}, 三福寺旭^{B)}, 星野柚香^{B)}, 奥村真郷^{B)}, 早川歩^{B)}, 三浦剣士郎^{B)}, 野澤貴史^{C)}, 安堂正巳^{C)},

Yasuhisa Oya^{#,A)}, Asahi Sanfukuji^{B)}, Yuzuka Hoshino^{B)}, Shingo Okumura^{B)}, Ayumu Hayakawa^{B)}, Kenshiro Miura^{B)},
Takashi Nozawa^{C)}, Masami Ando^{C)}

^{A)} College of Science, Academic Institute, Shizuoka University

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

^{C)} QST

Abstract

The hydrogen isotope transport for tungsten-tantalum (W-Ta) alloy and potassium doped tungsten (K-doped W) irradiated by Fe^{2+} up to 1 dpa was evaluated by D_2^+ implantation, followed by T gas exposure, PAS and TDS. The D retention at lower temperature side was reduced for K-doped W due to the reduction of large vacancy-typed defects. The T adsorption was enhanced for W-Ta due to the hydrogen affinity. However, the formation of irradiation defects made a large impact on hydrogen trapping even in the alloying by Ta.

Keyword: Advanced plasma-facing material, Hydrogen isotope transport, irradiation defect

1. 目的

プラズマ対向材の候補であるタングステン(W)は、炉運転時、高い熱負荷や、DT 核融合反応による中性子や高エネルギーの燃料粒子の照射による照射損傷を受ける。この損傷により W の微細構造変化が生じ、良好な熱機械特性が失われることで劣化・脆化を引き起こす。W へのタンタル(Ta)やレニウム(Re)の合金化や、微量のカリウム(K)を W に分散することで、これらの特性の改善が期待されている。先行研究にて W-Ta、W-Re および K-doped W 等の延性脆性遷移温度の低下、再結晶温度の上昇、結晶粒の微細化による強度の上昇、優れた耐熱衝撃性が報告されている^[1,2]。しかし、これらの合金に対する水素同位体挙動と照射欠陥が及ぼす影響に関する報告は限

られている。そこで本研究では、実機環境下を模擬するため、鉄イオン照射を行い、照射欠陥を導入した W-Ta および K-doped W 合金を用いて、水素同位体滞留挙動を評価した。今年度は種々の損傷量をもつ W 合金に対して、重水素に加えてトリチウムを使用した実験を行った。

2. 実験

実験にはアライドマテリアル社製の直径 6 mm^φ、厚さ 0.5 mm^t の W、W-1,3,5%Ta および K-doped W(40 ppm)合金を使用した。W-1,3,5%Ta は圧延材からディスク形状に加工したものを使用し、K-doped W はスウェーピング材から加工したものを使用した。W に

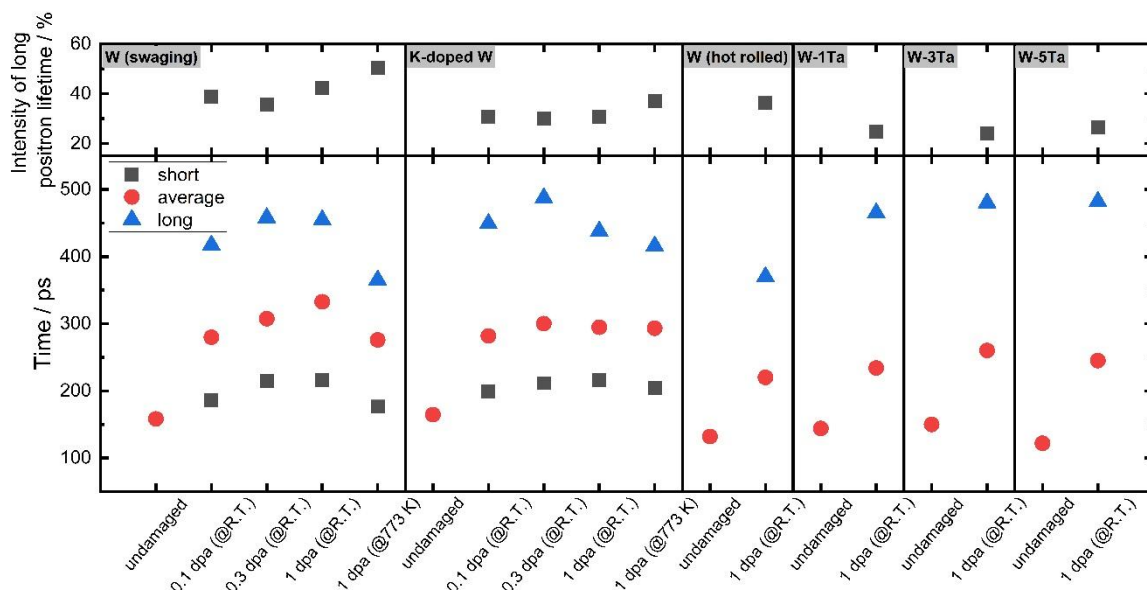


Fig. 1 室温及び 773K で鉄イオン照射した W 合金の陽電子寿命

については圧延材とスウェーピング材の両方を使用した。これらの試料に対して、1173 K にて 30 分間加熱処理を行い、残留水素と表面不純物を除去した。その後、高崎量子技術基盤研究所にあるイオン照射研究施設 TIARA にて室温および 773 K で鉄イオン (6 MeV Fe^{2+}) 照射を行い、損傷量を 1 dpa までとした。これらの鉄イオン照射した試料は ^{22}Na を利用した陽電子寿命測定法(PAS)により、陽電子消滅の時間を測定することで照射欠陥の密度とサイズの評価を行った。室温および 773 K で鉄イオン照射した K-doped W には、静岡大学にて重水素イオン照射および昇温脱離法を行い、重水素滞留量を評価した。重水素イオンはフラックス $1.0 \times 10^{18} \text{ D}^+ \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 、フルエンス $1.0 \times 10^{22} \text{ D}^+ \text{ m}^{-2}$ とし、重水素の脱離量は四重極型質量分析計(QMS)で測定した。重水素滞留量は、 D_2 及び HD の脱離量から算出した。室温で鉄イオン照射した W-Ta に対しては、同様の手順で重水素イオン照射を行い、アルゴンガスによるエッチングを利用したグロー放電発光分析法(GD-OES)により重水素の深さ方向分布を評価した。また、W-Ta 試料におけるトリチウムの分布を評価するため、富山大学水素同位体科学研究センターにてトリチウムガス曝露実験を行った。ガス圧力を 9 Torr、試料温度を 573 K とし、3 時間曝露を行った。トリチウムガスに曝露した試料は、イメージングプレート法(IP)によって表面二次元のトリチウム分布を評価し、アルゴンガス雰囲気下でのベータ線誘起エックス線測定法(BIXS)により深さ方向分布を評価した。

3. 結果/考察

Fig. 1 に室温及び 773 K で鉄イオン照射した W 合金における陽電子寿命を示した。W と K-doped W を比較すると、陽電子寿命については 0.3 dpa までは同様の値であった。1 dpa の損傷量については 773 K で鉄照射した W が室温で鉄照射した場合の陽電子寿命より大きく低下したが、K-doped W は僅かに長寿命成分が短くなったのみであった。長寿命成分に着目すると、K-doped W は全ての損傷量で W よりもその割合が低下した。これらの結果から、K-doped W は、大型の空孔型欠陥の密度が低く、小型の欠陥が多数形成されており、さらにその欠陥が安定的に存在していると考えられ、欠陥の回復には高い温度が必要であることが示唆された。W と W-Ta を比較すると、陽電子平均寿命に違いは見られなかったが、長寿命成分が約 100 ps 長く、その割合が約 10% 低かった。W-Ta は大型の欠陥をもつが、その密度が小さいと考えられる。1% から 5% までの Ta 濃度の違いは

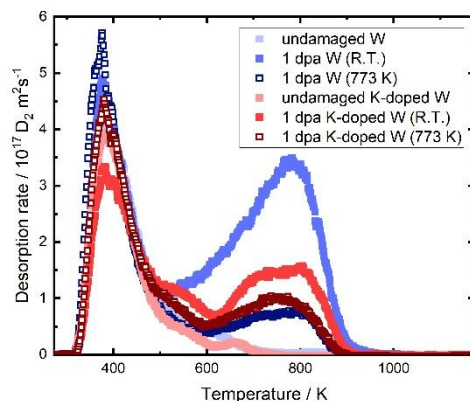


Fig. 2 室温および 773 K にて鉄照射した W および K-doped W の D_2 TDS スペクトル

Table 1 各試料における D 滞留量

Samples	Total D retention [10^{20} D m^{-2}]	
	W	K-doped W
Undamaged	4.9	4.2
1 dpa (R.T.)	8.1	6.8
1 dpa (773 K)	6.1	5.9

みられず、低濃度でも Ta を合金化することで大型の欠陥生成を低減する効果があると考えられる。

Fig. 2 に鉄イオン照射した W および K-doped W における D_2 TDS スペクトル、Table 1 に各試料における D 滞留量を示す。W と同様に損傷量の増加に伴って K-doped W における D 滞留量は増加した。全ての損傷量において、K-doped W は W よりも 500 K 以下の低温領域での D_2 脱離量は減少しており、室温で鉄イオン照射した試料では、K-doped W の高温領域での D_2 脱離量が減少した。特に 1 dpa の損傷量においては室温で鉄照射した試料において D_2 脱離量の違いが顕著であり、滞留量についても W と比較して約 15% 少なかった。773 K で鉄照射した試料を比較すると、K-doped W における高温領域での脱離量は僅かに少なかった。これらの結果は陽電子寿命測定の結果を支持する結果である。

重水素イオン照射した W-Ta における重水素深さ方向分布を測定した GD-OES スペクトルを Fig. 3 に示した。鉄イオン照射した試料では、照射欠陥が重

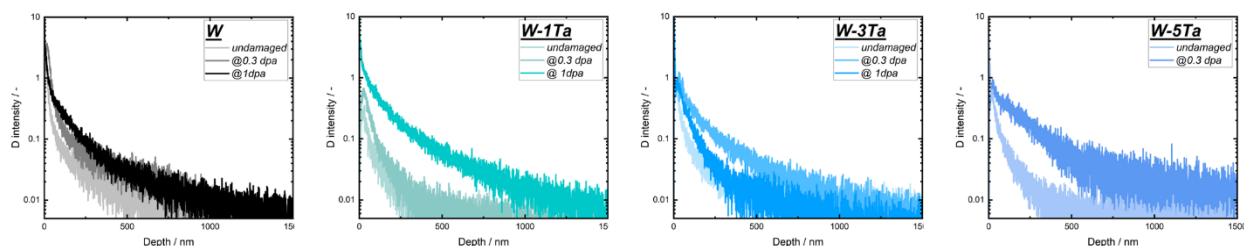


Fig. 3 重水素イオン照射した W-Ta における GD-OES スペクトル

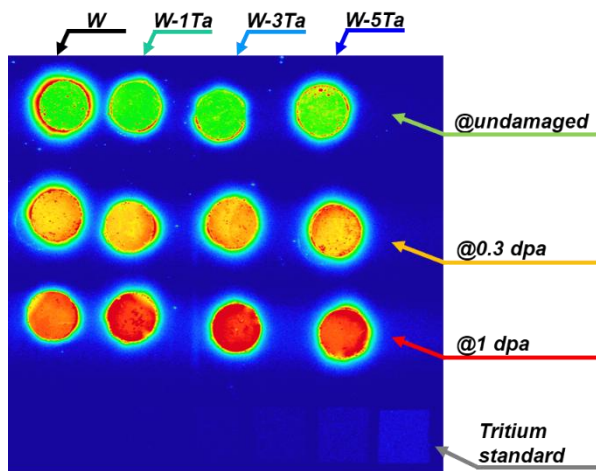


Fig. 4 トリチウムガス曝露した W-Ta の IP 像

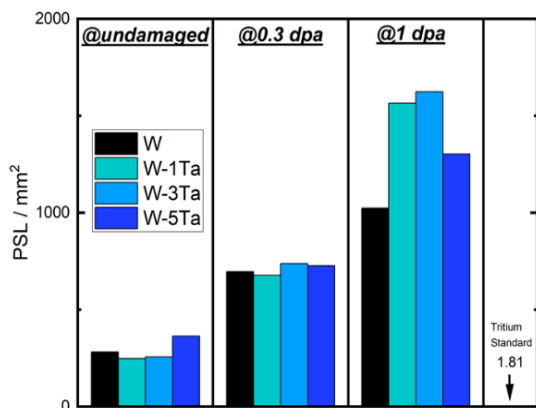


Fig. 5 IP 像から得た PSL 強度

水素の拡散経路として機能したことにより、1 μm 付近まで拡散したと考えられる。損傷量の増加により、同一深さでの重水素分布は増加したことが分かった。W と W-1%Ta ではこのような重水素の分布を示したが、W-3%Ta は異なっていた。これは Ta 濃度が高くなることで重水素の拡散が抑制されたことに起因すると考えられる。

室温での鉄イオン照射した W-Ta に対してトリチウムガス曝露を行い、その後イメージングプレート

法による得られたトリチウム分布を Fig. 4 に、IP 像から算出した PSL 強度をまとめた結果を Fig. 5 に示した。損傷量の増加により表面に吸着したトリチウムの量は増加した。非照射(undamaged)及び 0.3 dpa の損傷量の試料については Ta 合金化による影響は小さく、1 dpa の損傷量では、W と比較して W-Ta のトリチウムの吸着量は増加した。これらの結果から、高温(573 K)では Ta の水素親和性により W-Ta では W と比較してトリチウムがより多く吸着したと考えられる。W-5%Ta におけるトリチウム吸着量が W-1,3%Ta と比較して小さくなった要因は、熱処理等の加熱により溶質である Ta が移動し、表面近傍の Ta 濃度に変化したことであると考えられる。Fig. 6 に BIXS に得られたスペクトルを示した。Fig. 7 には Ar(K α)のピーク強度に対する W(M α)及び W(L α)のピーク強度比をまとめた。Ar(K α)、W(M α)及び W(L α)として検出された X 線はそれぞれ ~ 50 nm、1 μm 、10 μm までの領域に存在するトリチウムに由来する^[3]。ピーク比に着目すると、非鉄イオン照射の試料では W と比較して W-Ta ではその比が高いことからトリチウムの拡散が促進されたと考えられる。鉄イオン照射した試料では損傷の導入に伴い内部に拡散したトリチウムは増加したが、Ta 濃度による違いは見られなかったことから、Ta 合金化の効果よりも損傷の効果が大いと考えられる。

まとめ

本研究では、先進プラズマ対向材として有望な W 合金 (W-Ta および K-doped W) に対し、鉄イオン照射によって照射損傷を導入し、水素同位体滞留挙動を多角的に評価した。陽電子寿命測定により、K-doped W では大型の空孔型欠陥の生成が抑制され、小型で安定な欠陥が多数形成されることが示唆された。TDS 測定では、K-doped W における重水素の低温域での脱離量が W よりも低下し、トラップサイトの変化が示された。GD-OES 測定により、鉄照射された W-Ta における重水素深さ分布を評価した結果、照射欠陥が拡散経路として機能することが示された。また、トリチウムガス曝露実験と IP 及び BIXS 結果から、Ta の水素親和性に起因して W-Ta ではトリチウム吸着量が増加し、特に高損傷量(1 dpa)の照射条件で顕著な違いが見られた。一方で、BIXS による深

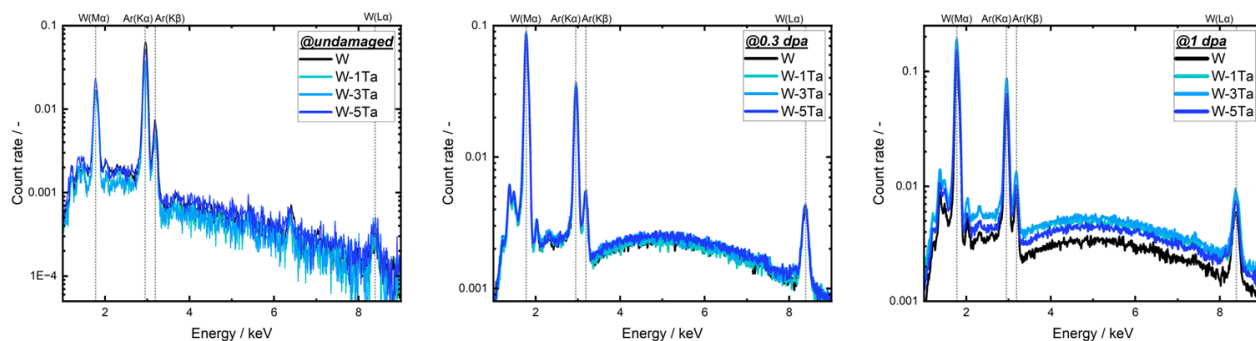


Fig.6. トリチウムガス曝露した W-Ta における BIXS スペクトル

さ方向の評価では、Ta 濃度による影響よりも照射損傷の影響が支配的であることが明らかとなった。

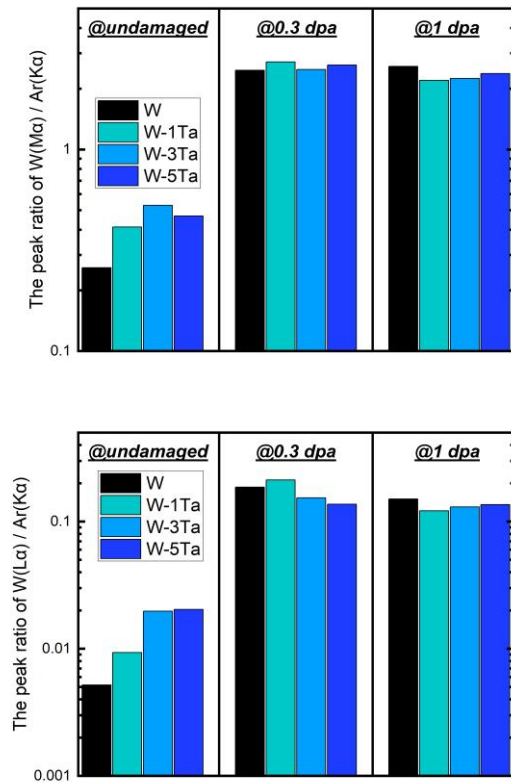


Fig.7. BIXS スペクトルから算出した $W(M\alpha)/Ar(K\alpha)$ 及び $W(L\alpha)/Ar(K\alpha)$ のピーク比

参考文献

- [1] S. Nogami, et al., J. Nucl. Mater. 566 (2022) 153740.
- [2] S. Nogami, et al., Fusion Eng. Des. 202 (2024) 114403.
- [3] M. Matsuyama, et al., J. Nucl. Mater. 30 (2002) 729–734.

謝辞

トリチウムガス曝露実験を行うにあたり、富山大学水素同位体科学研究センターの田口明講師に実験のご支援を賜りましたことを厚く御礼申し上げます。