[15002]

タングステン中の水素同位体ダイナミクスに及ぼす照射損傷分布影響評価 EFFECT OF DAMAGE DEPTH PROFILE ON HYDROGEN ISOTOPES DYNAMICS IN W

大矢恭久^{#, A)}, 湯山健太^{A)}, 植村有希^{A)}, 桜田翔大^{A)}, 藤田啓恵^{A)}, 胡翠^{B)}, 宮澤俊義^{C)}, 近田拓未^{A)}

Yasuhisa Oya^{#, A)}, Kenta Yuyama^{A)}, Yuki Uemura^{A)}, Shodai Sakurada^{A)}, Hiroe Fujita^{A)}, Cui Hu^{B)}, Toshiyoshi Miyazawa^{A)}, Takumi Chikada^{A)} ^{A)} Graduate School of Science & Technology, Shizuoka University

^{B)} Faculty of Science, Shizuoka University

^{C)} Division of Technical Service, Shizuoka University

Abstract

Effects of annealing after/under iron (Fe) ion irradiation on deuterium (D) retention behavior in tungsten (W) were studied. D_2 TDS spectra as a function of heating temperature for 0.1 dpa damaged W showed that the D retention was clearly decreased as the annealing temperature increased. In particular, desorption of D trapped by voids was largely reduced by annealing at 1173 K. TEM observation indicated that the size of dislocation loops was clearly grown, and its density was decreased by annealing above 573 K. After annealing at 1173 K, almost all the dislocation loops were recovered. The results of positron annihilation spectroscopy suggested that the density of vacancy-type defects such as voids, was decreased as the annealing temperature was increased, while its size was increased, indicating that the D retention was reduced by the recovery of the voids. Furthermore, it was found that the desorption temperature of D trapped by the voids for damaged W above 0.3 dpa was shifted toward higher temperature side. These results lead to a conclusion that the D retention behavior is controlled by defect density. The D retention in the samples annealed during irradiation was less than that annealed after irradiation. This result shows that defects would be quickly annihilated before stabilization by annealing during irradiation.

Keyword: Hydrogen isotopes retention, Tungsten, TDS

1. 目的

将来の核融合炉プラズマ対向材料(PFMs)には、 高融点、低スパッタ率という優れた特性をもつタン グステン(W)の使用が検討されている^[1,2]。このWに はDT核融合反応によって生成する14 MeVの中性子 が照射され、転移ループや原子空孔といったさまざ まな欠陥が形成することが予想される^[3]。W 中の水 素同位体の溶解度は非常に小さいが、形成された照 射欠陥は水素同位体の安定な捕捉サイトとなるため、 W中の水素同位体滞留量が増加する。そのため、照 射欠陥の形成と水素同位体滞留挙動の相関理解はト リチウムインベントリの観点から重要である。加え て、照射欠陥の形成挙動は温度によって大きく変化 し、核融合炉運転時の高温環境下では照射欠陥の回



Peak

Peak

<u>Peak 1</u>

un-annealed

2.5

Fig. 1. D₂ TDS spectra for 0.1 dpa damaged W with post-annealing at various temperatures.



Fig. 2. Annealing temperature dependence on D retention at each desorption stage and total retention for post-annealed W.

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



Fig. 3. TEM images (dislocation loops) for 0.1 dpa damaged W with post-annealing at various temperatures.

復や集合体の形成が予想される^[4]。そのため、実機 環境下での水素同位体滞留挙動を解明するためには、 加熱影響を考慮する必要がある。そこで本研究では、 種々の照射温度にてW試料に鉄イオン(Fe³⁺)を照射 し照射損傷を導入した試料と、室温でFe²⁺を照射後 に焼鈍した試料を比較することにより、加熱による 照射欠陥生成・消滅挙動と水素同位体滞留の相関を 理解することを目的とした。

2. 実験方法

試料として、アライドマテリアル社製歪取加工済 W(10 mm[®], 6 mm[®], 0.5 mm^t)を用いた。不純物除去を目 的として加熱処理を高真空下(< 10⁻⁶ Pa)にて 1173 K で30分間行った。6mm®の試料には京都大学のDuET 装置を用いて、6.4 MeVのFe³⁺を573、873、1173 K にて 0.1 dpa まで照射した後、静岡大学にて、重水素 をエネルギー1 keV D_2^+ にてフラックス $1.0 \times 10^{18} D^+$ m⁻² s⁻¹、フルエンス 1.0×10²² D⁺ m⁻²まで室温で照射 し、昇温脱離法(TDS)によって重水素滞留挙動を評価 した。10 mm[®]の試料には TIARA を用いて、6 MeV の Fe²⁺を 0.01 - 1.0 dpa まで室温で照射した後、静岡 大学にて高真空下で 573、873、1173 K にて 30 分間 焼鈍し、同様の手順で重水素照射と TDS を行い、高 温照射 W と照射後焼鈍 W における重水素滞留挙動 を比較した。また欠陥の形成状態を陽電子消滅分光 法(PAS)と透過型電子顕微鏡(TEM)を用いて評価し た。

結果・考察

Fig. 1 に照射後に各温度で焼鈍した 0.1 dpa 試料に おける TDS スペクトルを示す。過去の研究^[5, 6, 7]より、 重水素の脱離ピークを 3 つに分離し、400 K の Peak 1 は表面に吸着された重水素および転移ループに捕捉 された重水素の放出、600 K の Peak 2 は原子空孔か らの放出、800 K の Peak 3 はボイドからの放出であ るとそれぞれ帰属した。

種々の温度における重水素滞留挙動を Fig. 2 にま とめた。照射後焼鈍試料における全滞留量は、焼鈍



Fig. 4. Lifetime dependence of long-life positron in post-annealed W and positron annihilation lifetime spectra.



Fig. 5. TDS spectra for post-annealed W at 1173 K in the damage levels of 0.01-1.0 dpa.

温度が上昇することによって大きく減少したため、 欠陥の回復による重水素捕捉サイトの減少が示唆さ れた。そのため、欠陥の回復/集合挙動を TEM と PAS 用いて観察した。

Fig. 3 に各温度で焼鈍した 0.1 dpa 試料における転 移ループの TEM 写真を示す。室温での Fe²⁺照射によ って、多くの転移ループが形成されたことが観察さ れた。また、573 K で焼鈍することにより転移ルー プは成長を開始し、焼鈍温度が上昇するにつれて、 欠陥密度の減少とともに大きく成長した。1173 K の 焼鈍によりほとんどの転移ループは消滅したが、一 方で Peak 1 における重水素滞留量はほとんど変化し なかった。このことから、転移ループに捕捉される 重水素滞留挙動への影響は小さいと考えらえる。

Fe²⁺照射後に焼鈍した試料における PAS の結果を Fig. 4 に示す。陽電子寿命と強度の増加はそれぞれ空 孔型欠陥の大きさと密度の増加を意味している^[8]。 焼鈍温度が上昇するにつれて、より長寿命の陽電子 が検出されたことから、空孔型欠陥が集合し、ボイ ドを形成していることがわかった。一方で、焼鈍温 度が 573 K から 1173 K に上昇すると長寿命陽電子の 強度が低下したことから、1173 K の焼鈍によってボ



Fig. 6. Comparison of TDS spectra for dynamic-annealed W and post-annealed W.

イドが回復することがわかった。この結果は Fig. 2 における Peak 3 の大きな減少とよく一致しており、 ボイドの回復が W 中の重水素滞留挙動に大きな影 響を与えることが示唆された。

次に、0.01 dpa から 1.0 dpa まで損傷量を変化させ て Fe²⁺を照射した後に1173 K で焼鈍した試料におけ る重水素 TDS スペクトルを Fig. 5 に示す。損傷量が 0.3 dpa 以上では、Peak 3 における重水素の放出量に 0.1 dpa の場合のような大きな減少は見られなかった。 これは損傷量が増加したことにより欠陥密度が上昇 し、欠陥が集合しやすくなったためだと考えられる。 また、損傷量が増加するにつれ、Peak 3 における重 水素の脱離温度が高温側にシフトした。これは欠陥 密度の上昇により、重水素が脱離際の捕捉/脱捕捉過 程の寄与が大きくなったためであると考えられる。

最後に、種々の温度で Fe³⁺を照射した試料と Fe²⁺ を照射後に焼鈍した試料における重水素滞留挙動の 比較を Fig. 6 に示す。573, 873 K で照射した試料では 照射後に同じ温度で焼鈍した試料に比べ、Peak 3 からの重水素放出量が大きく減少するとともに、その 放出温度も低温側にシフトした。しかし、1173 K で 照射した試料と照射後焼鈍した試料では重水素の放 出挙動に大きな差は見られなかった。これは照射に よって欠陥が動きやすくなる^[4]とともに、欠陥の形 成と回復が同時に起こることで、欠陥が集合体を形 成する前にすばやく回復するためだと考えられる。 一方で、焼鈍温度が高くなると、加熱による欠陥の 回復の寄与が大きくなり、高温照射試料と焼鈍試料 で重水素放出挙動の差が小さくなることが示唆され た。

4. まとめ

本研究は、高温照射した W と焼鈍した W 中の重 水素滞留挙動を比較することで、炉運転時の高温環 境下での欠陥形成・消滅挙動と水素同位体滞留挙動 の相関理解を目的として行われた。水素同位体滞留 挙動は転移ループの密度にはほとんど影響されない が、ボイドの回復によって大きく変化することがわ かった。特に 0.3 dpa 以上の損傷量では、1173 K で焼 鈍してもボイドは回復せず、大きく成長することが わかった。また、高温照射した W では同じ温度で焼 鈍した W に比べ、水素同位体の滞留量が減少するこ とがわかった。これらの結果から、欠陥の密度によ って欠陥の回復・集合挙動が大きく変化することが 示唆された。さらに、高温照射下では欠陥が集合体 を形成して安定化する前に回復することで、欠陥の 回復が照射後焼鈍よりも促進することが示唆された。

参考文献

- M. Rieth, S. L. Dudarev, S. M. Gonzalez de Vicente, et al., J. Nucl. Mater. 432 (2013) 482.
- [2] R. Causey, J. Nucl. Mater. 300 (2002) 91.
- [3] A. Hasegawa, M. Fukuda, S. Nogami et al., Fusion Eng. Des. 89 (2014) 1568.
- [4] O. V. Ogorodnikova, Y. Gasparyan, V. Efimov, et al., J. Nucl. Mater. 451 (2014) 379.
- [5] Y. Oya, X. Li, M. Sato, et al., 2015 J. Nucl. Mater. 461(20115) 336.
- [6] R. Miura, T. Fujishima, H. Uchimura, et al., Fusion Eng. Des. 88 (2013) 1827.
- [7] H. Eleveld, A. Van Veen, J. Nucl. Mater. 191 (1992) 433.
- [8] T. Troev, E. Popov, P.Staikov et al., Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B. 267 (2009) 535.