

第16回QUEST研究会

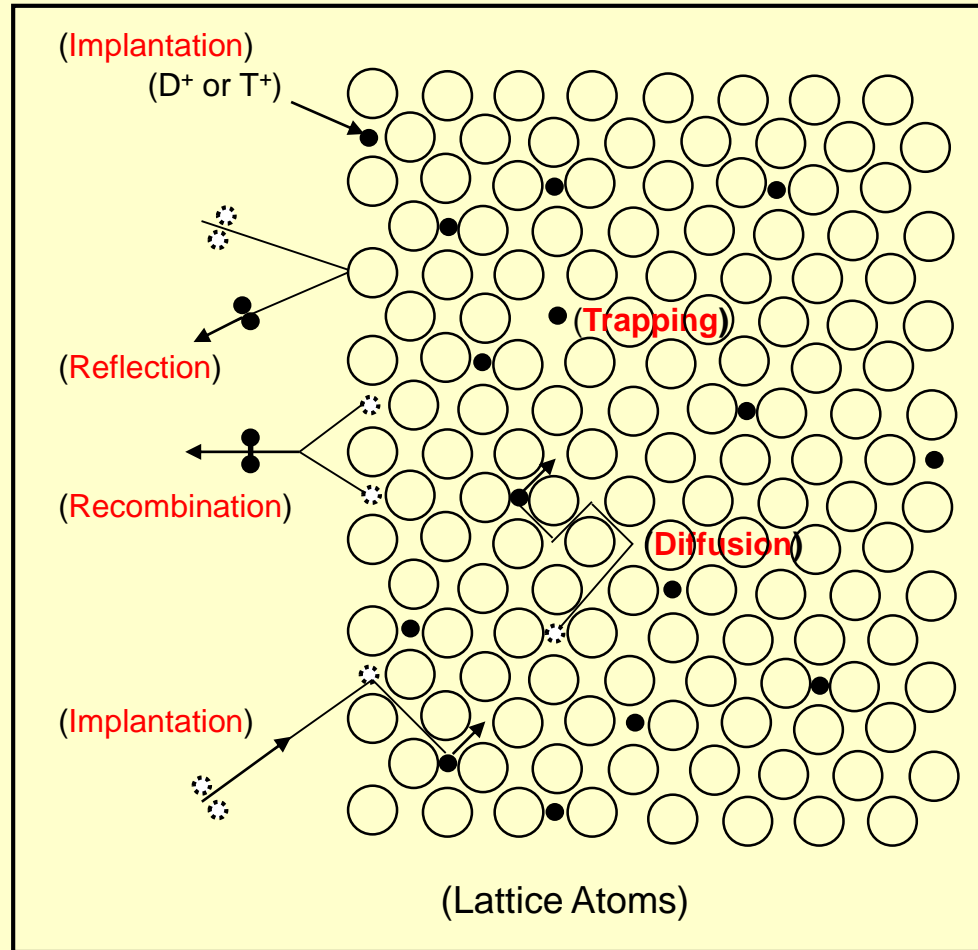
トリチウムイオン照射時の 保持量に対する材料温度依存性

富山大学研究推進機構
水素同位体科学研究センター
松山 政夫

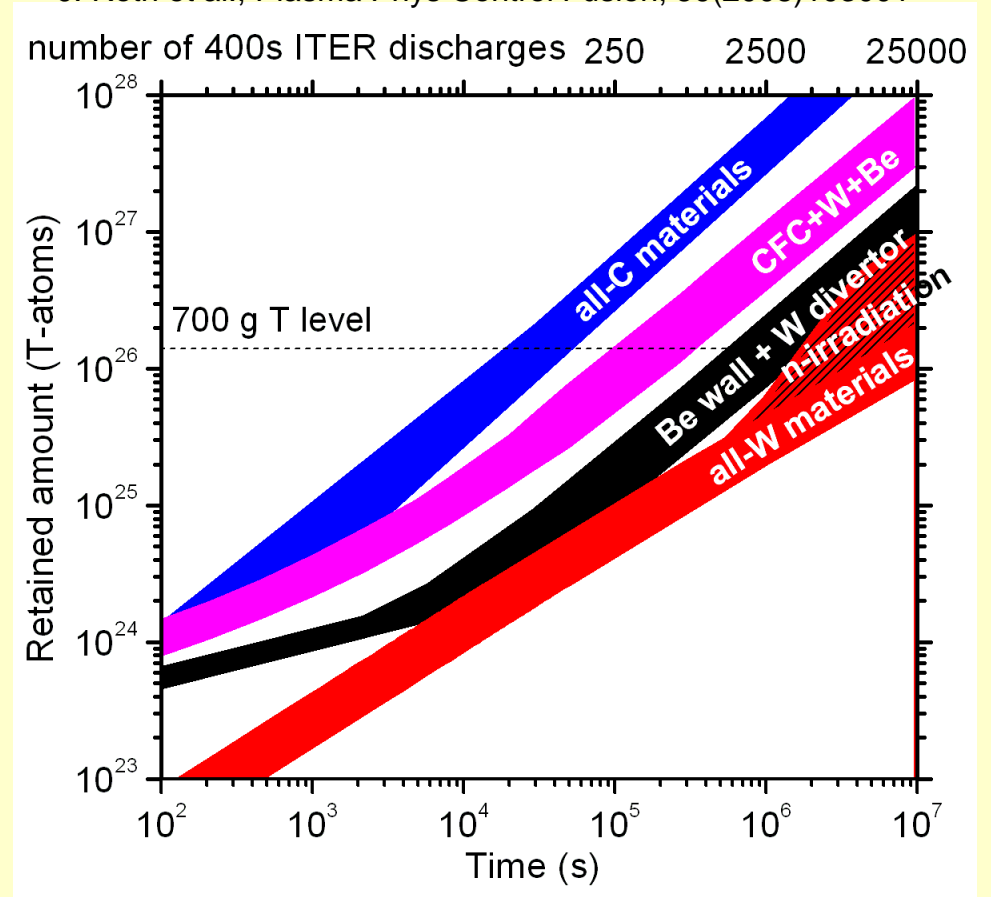
- [1] 研究の背景
- [2] トリチウム保持量の評価手法(BIXS)について
 - ・ BIXS法の測定原理・特長及び測定装置の概要
- [3] トリチウムガス曝露(HT)に対する保持量のプラズマ曝露及びガス曝露温度の影響
 - ・ Bare SS316L及びBare W並びにこれらのプラズマ曝露試料
- [4] イオン照射(DT⁺)に対する保持量の試料温度およびイオンエネルギー依存性
 - ・ Bare SS316L及びBare W
- [5] まとめ

[1] 背景 (1/2)

J. Roth et al., Plasma Phys Control Fusion, **50**(2008)103001



Drawing of the various ion-PFM's interactions.

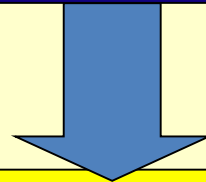


Tritium inventory in ITER plasma-facing materials and tritium removal procedures.

核融合炉におけるトリチウム-材料相互作用に関する研究は、(1)核融合炉の定常運転、(2)トリチウムインベントリーの低減、(3)核融合炉における廃棄物の安全管理などの観点より不可欠である。

第一壁やダイバーター等のプラズマ対向材料におけるトリチウムの捕獲、溶解及び放出挙動に関する理解は以下の点に対して重要な役割を果たす:

- 燃料のリサイクリングや粒子バランスの制御
- 第一壁におけるトリチウム透過の低減
- プラズマ対向材のトリチウムインベントリーの低減
- 炉材料の除染及び廃棄物管理



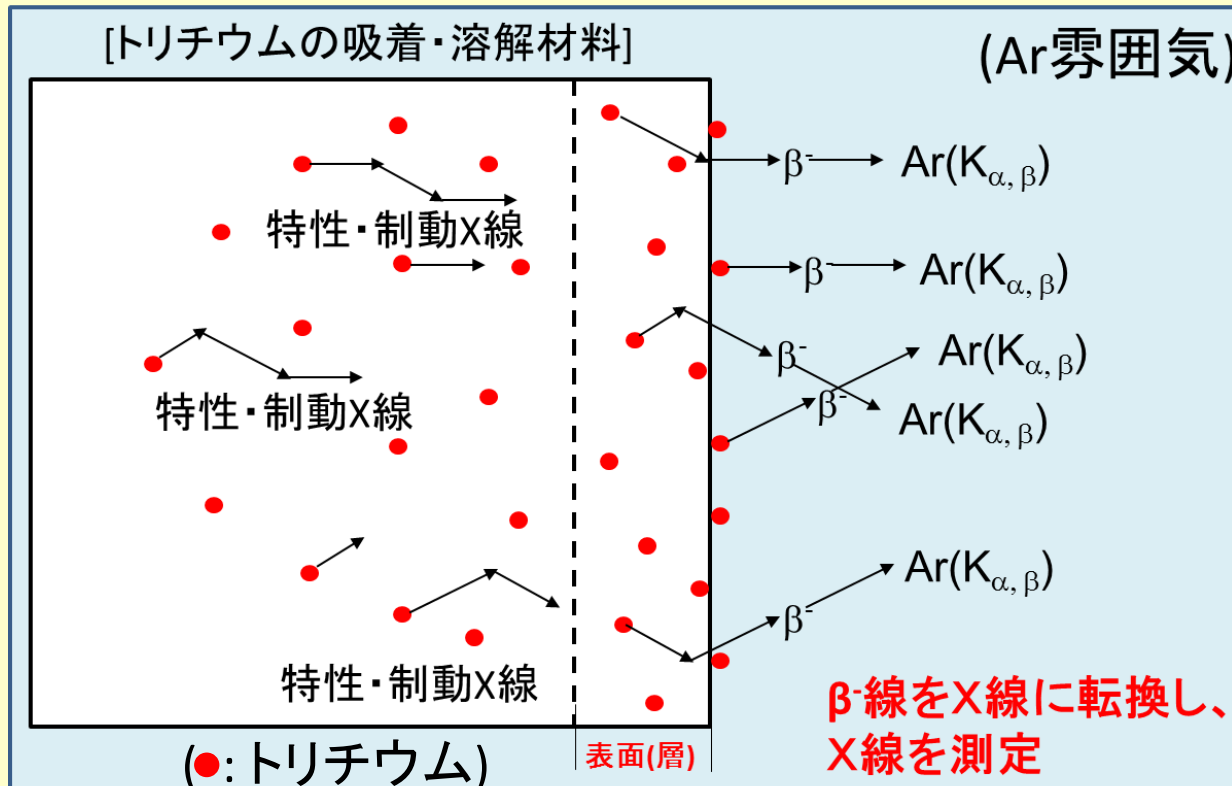
材料のバルクでの保持のみならずプラズマ粒子に対向する表面層での捕獲挙動が重要である

QUESTの構造材であるステンレス鋼(SS316L)及びプラズマ対向材であるタングステンへのトリチウムイオン照射における捕獲挙動の温度依存性を調べた。

[2] 材料の表面層におけるトリチウム保持量の評価手法について
- β 線誘起X線計測法(BIXS) -

β線誘起X線計測法

(β-ray-Induced X-ray Spectrometry: **BIXS**)



[測定法に対する要求事項]

- ① 非破壊で測定可能
- ② 表面層のトリチウム量の評価
- ③ 内部のトリチウム量の評価
- ④ 表面層と内部を弁別評価
- ⑤ トリチウム深さ分布の評価

[各種測定法]

(T)

- (1) 表面拭き取り法 (スミア法)
- (2) 放射線 (β線) 計測法: 表面層のみ
- (3) 化学エッチング法
- (4) **β線誘起X線計測法: BIXS法**

(H, D)

- (5) 物理エッチング法: GD-OES法等
- (6) 核反応法
- (7) 反跳粒子検出法

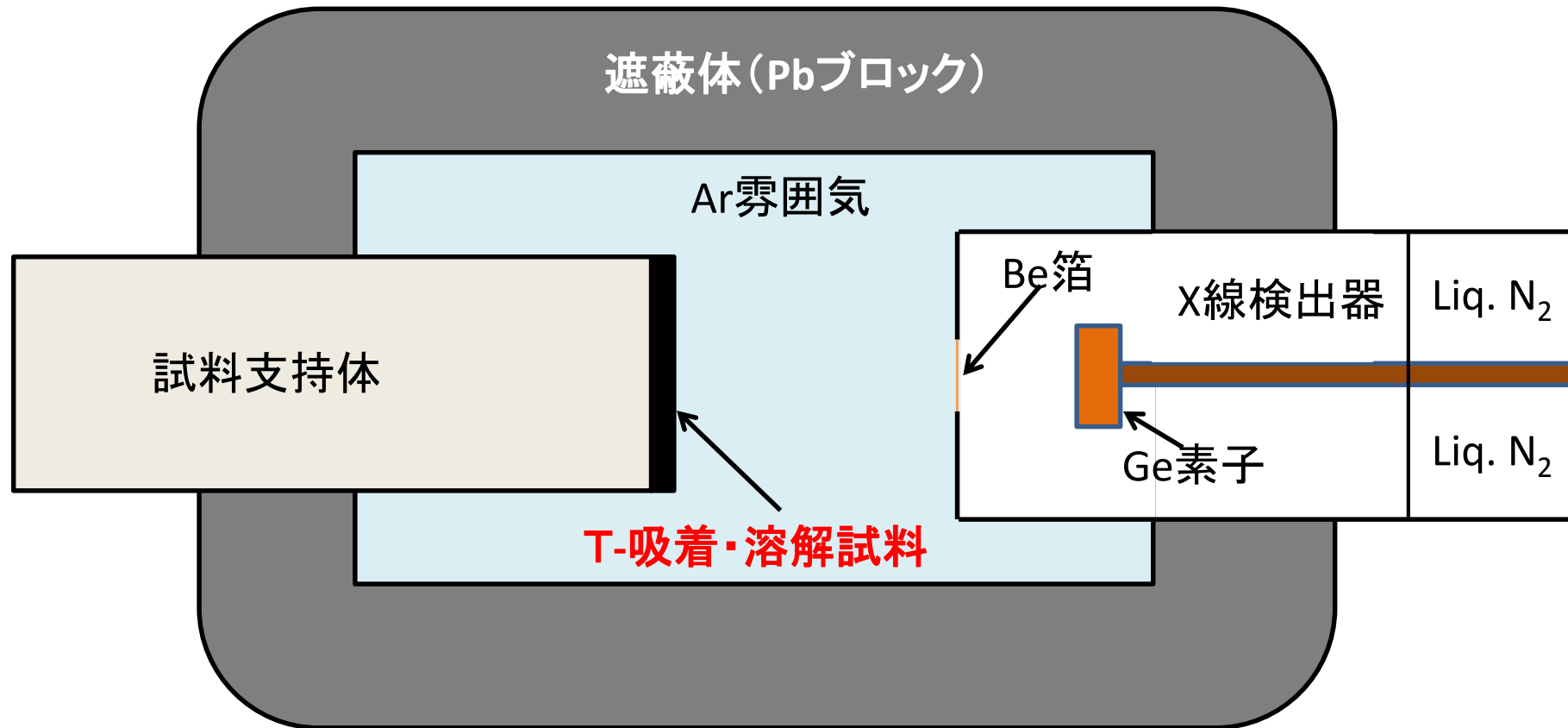
β線の脱出深さ: 表面層と定義

(SS316: 220 nm)

(W: 80 nm) (Graphite: 0.5 μm)

(空気: ~ 5 mm), (皮膚: ~ 6 μm)

BIXS法によるトリチウム保持量及び深さ分布測定装置の構成



β線誘起X線計測装置の概略図

特長:

- ・測定装置の構成が極めて単純かつ装置の維持が容易
- ・装置の耐久性が高く、性能に対する経時変化が殆どない

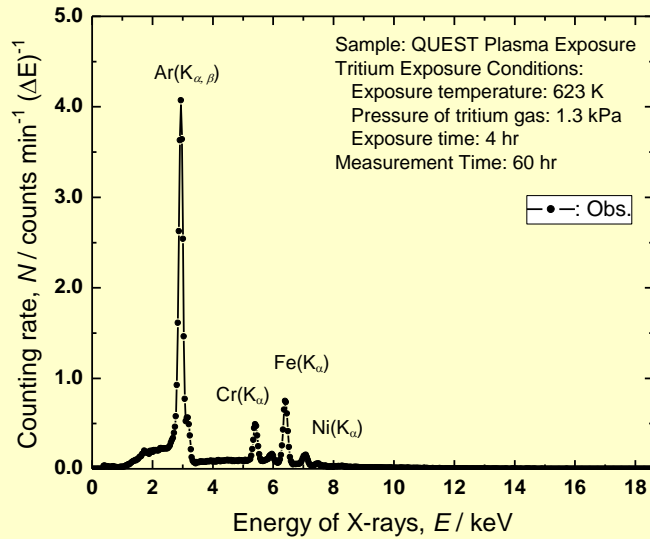
トリチウムガス曝露試験

試料: ① Bare SS316L & W、② プラズマ曝露SS316L & W

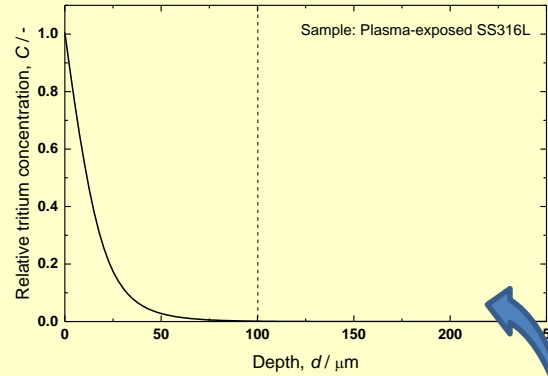
トリチウムガス(HT)の圧力: 1.3 kPa、 曝露時間: 4 hr

曝露温度: 室温 ~ 673 K

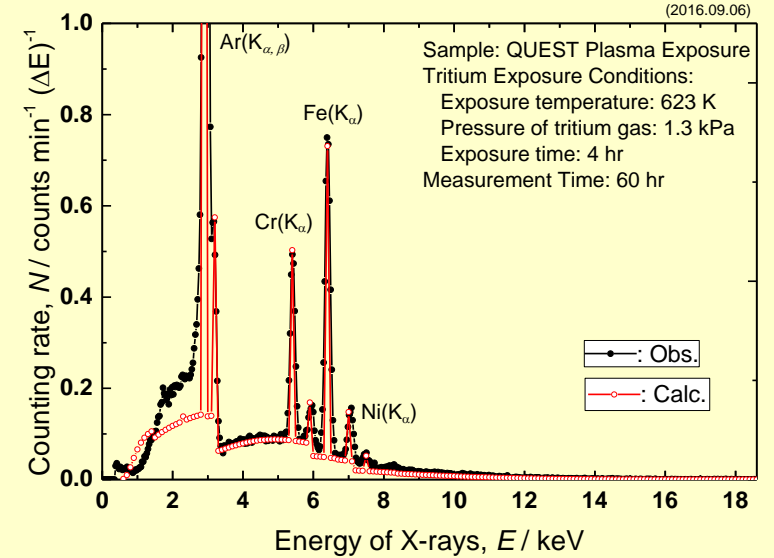
計算機シミュレーションにより推定されたトリチウム深さ分布 — ガス曝露温度 (623 K) —



プラズマ曝露試料



Depth profile used for analysis of the x-ray spectrum observed for plasma-exposed sample.

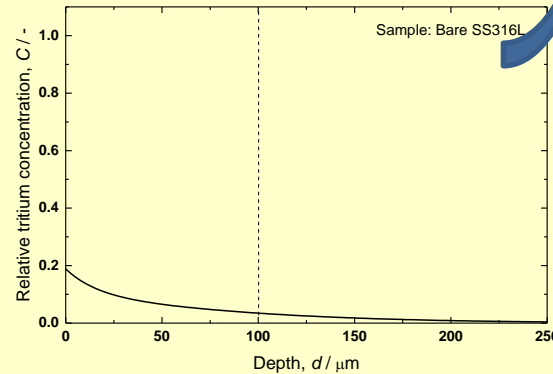
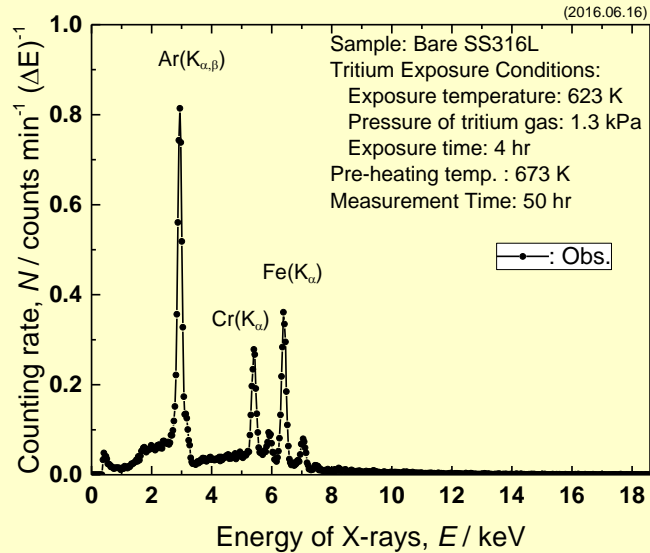


SS316L中でのβ線の脱出深さ
= 0.22 μm (5.7 keV)

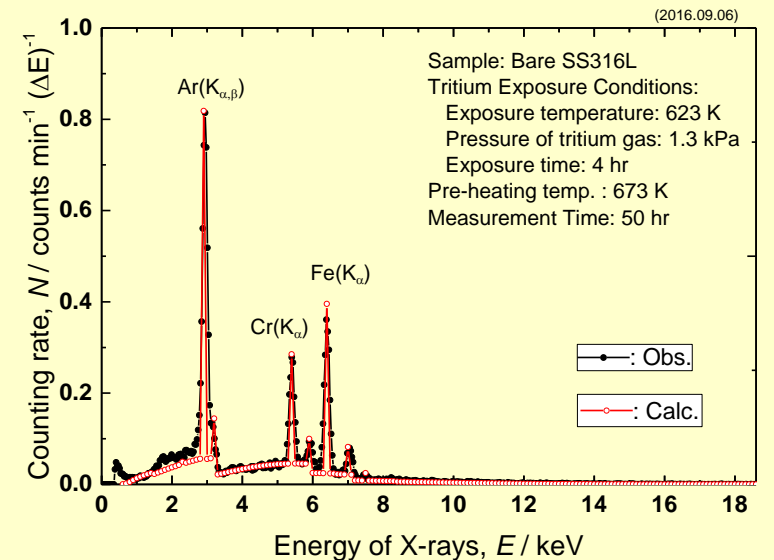
14.2 GBq/m²

5.3倍 !

末曝露試料



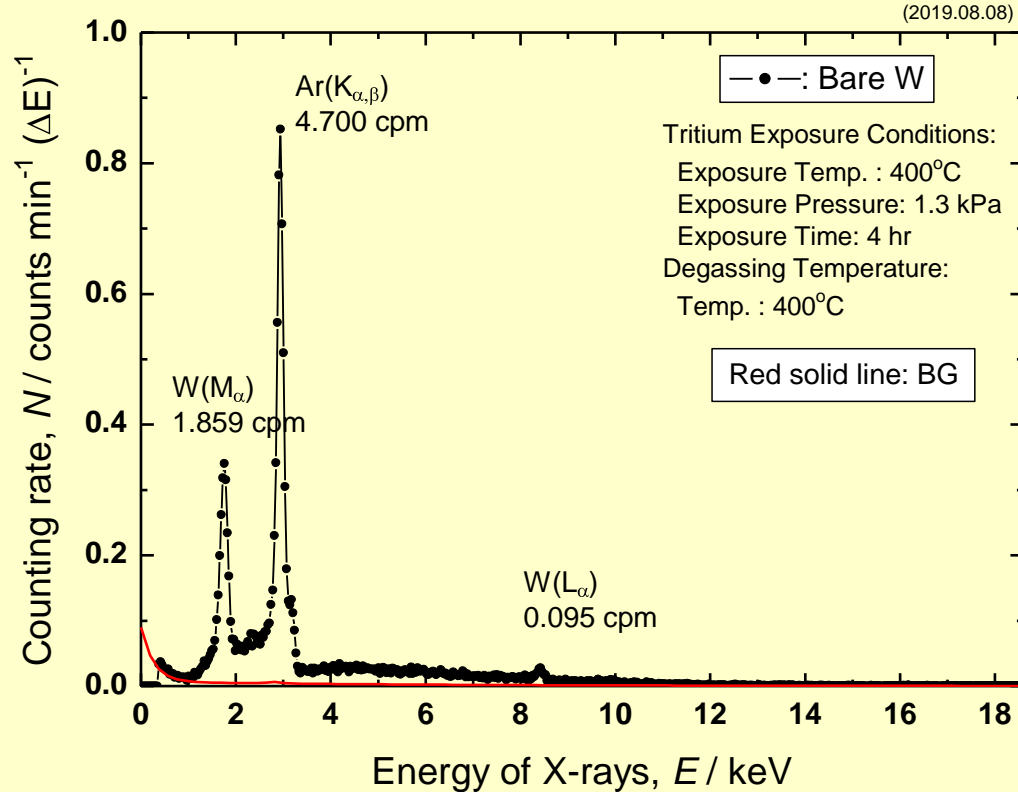
Depth profile used for analysis of the X-ray spectrum observed for non-exposed sample.



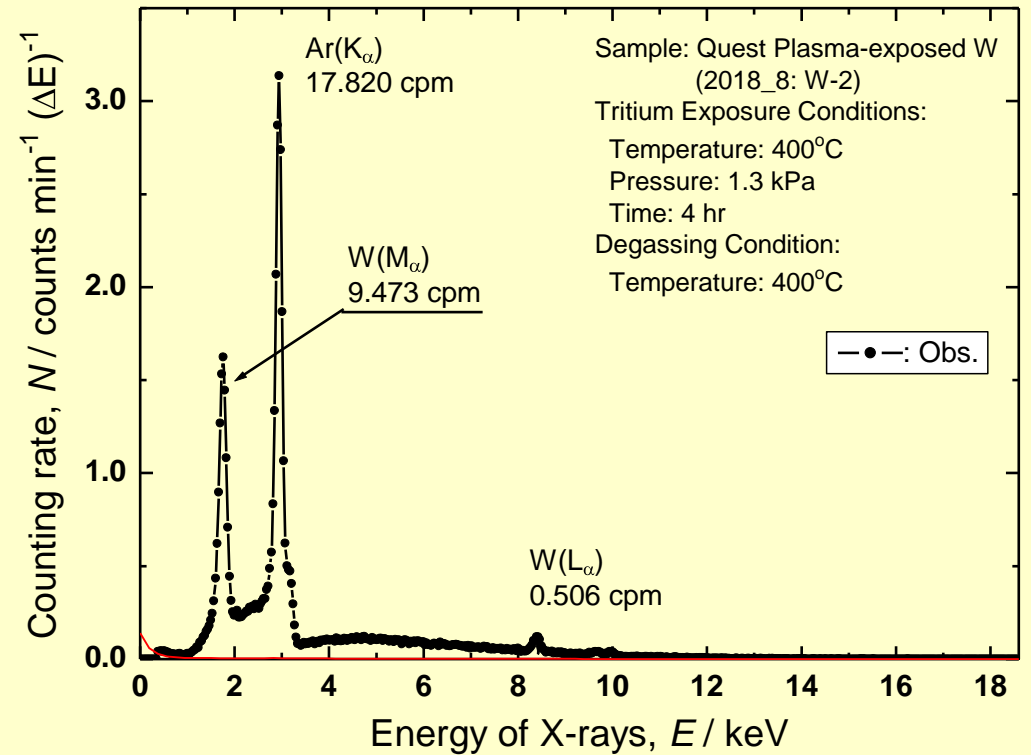
2.67 GBq/m²

タングステンへのトリチウムガス曝露で観測された X線スペクトルの例 (673K)

Bare W



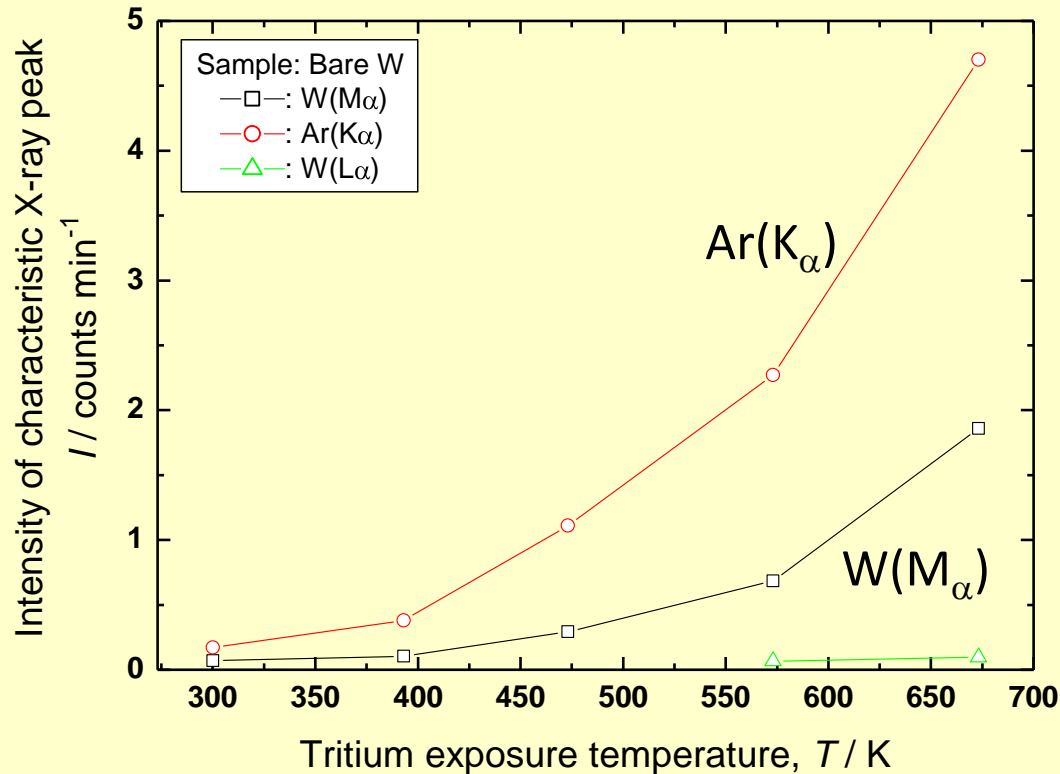
Plasma-exposed W (W-2)



- W試料ではAr($K_{\alpha,\beta}$)と共にW(M_{α})に加えて強度は弱いですがW(L_{α})の3本が観測される。
- Plasma-exposed W試料の保持量は未曝露試料の**4~5倍**程度まで増加した。
- 強度比(W(M_{α})/Ar($K_{\alpha,\beta}$))はBare W<Plasma-exposed Wとなり、W(L_{α})/W(M_{α})の強度比もBare W<Plasma-exposed Wとなった。このような強度比はPlasma-exposed W試料の表面(層)におけるトリチウム濃度が相対的に高いことを示唆している。

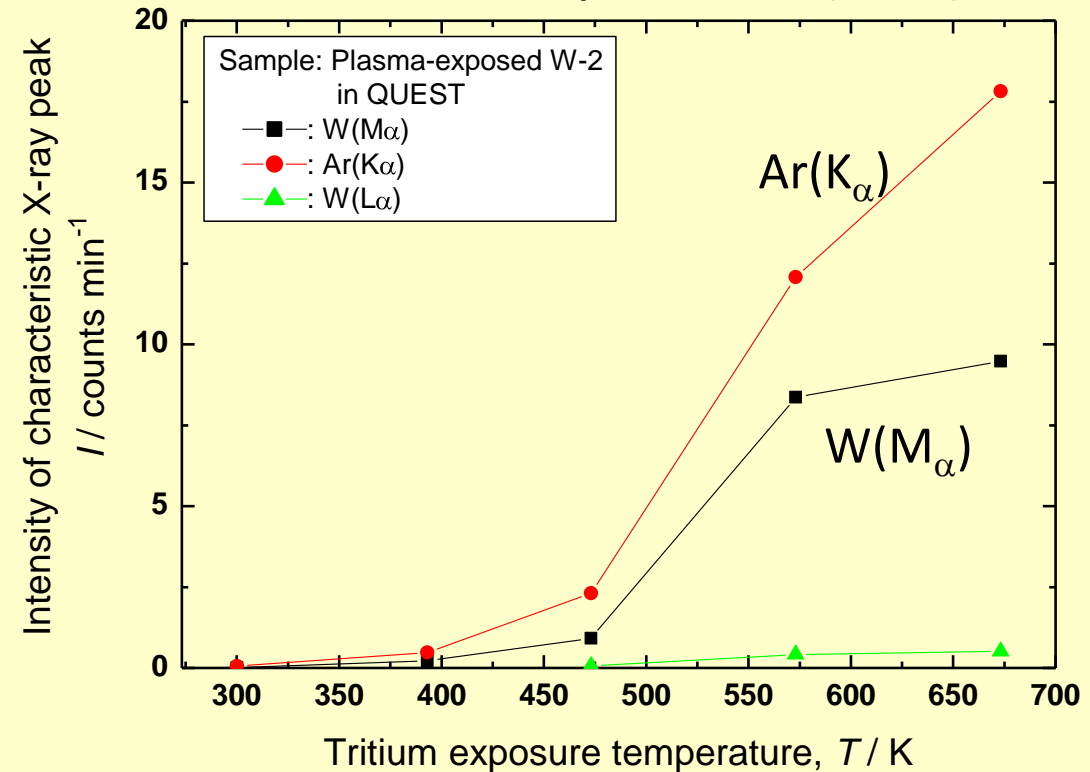
タングステンへのトリチウムガス曝露に対する 保持量の温度依存性

Bare W



Bare Wに対する保持量の温度依存性

Plasma-exposed W (W-2)



Plasma-exposed Wに対する保持量の
温度依存性

- ➡ Bare W: トリチウム保持量は温度上昇と共に増大したが、 $W(M_\alpha)/Ar(K_\alpha) < 1$ であった。
- ➡ Plasma-exposed W: 保持量は温度上昇と共に急激な増加傾向を示し、Bare Wより約4倍程度まで達した。

イオン照射試験

試料: Bare SS316L 及びW

前処理: 照射温度で 10^{-5} Pa以下まで加熱排気

照射中の試料温度: RT~623K

イオンエネルギー(DT⁺): 0.5 及び2.5 keV

照射時間: 1 hr

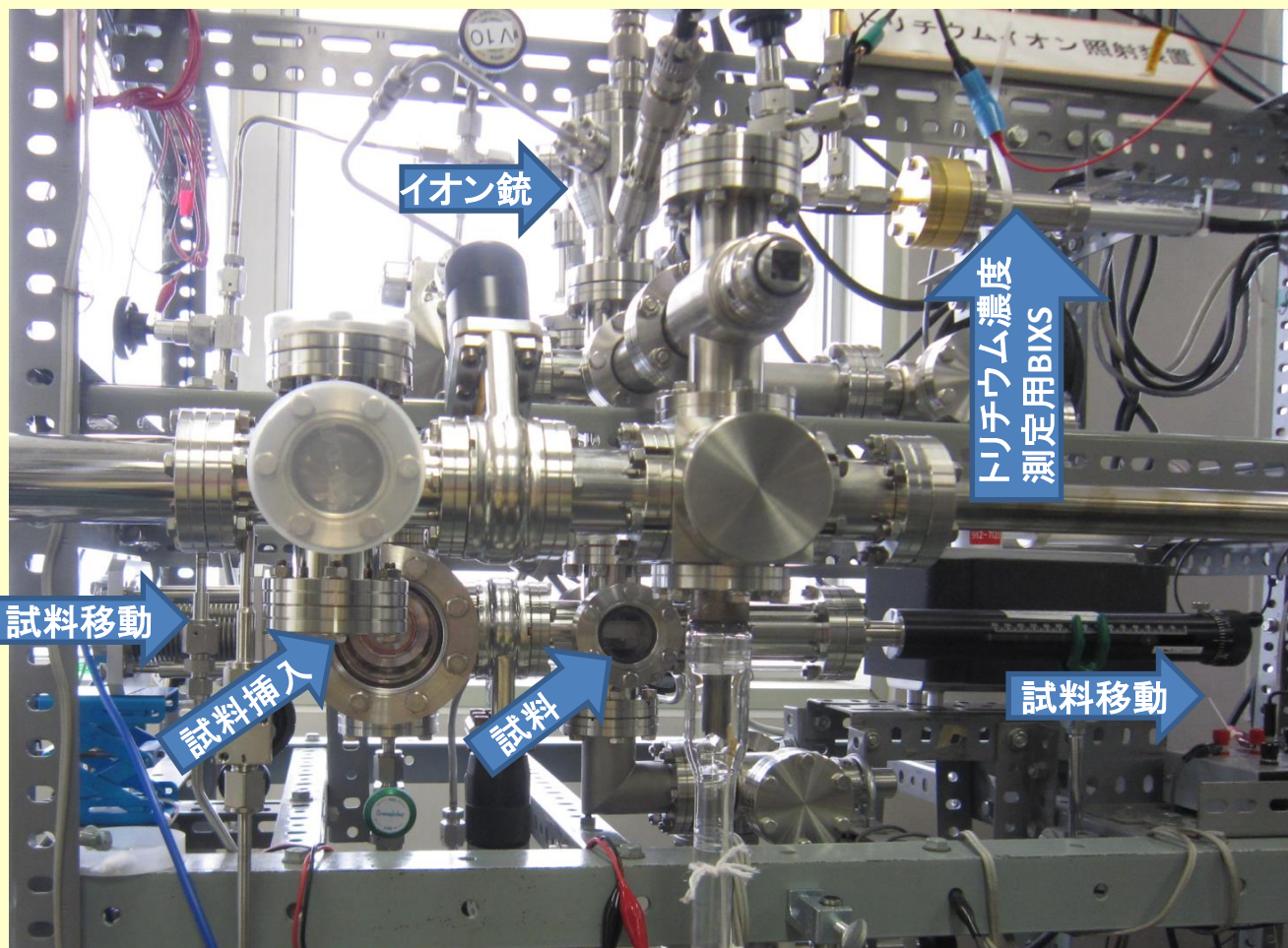


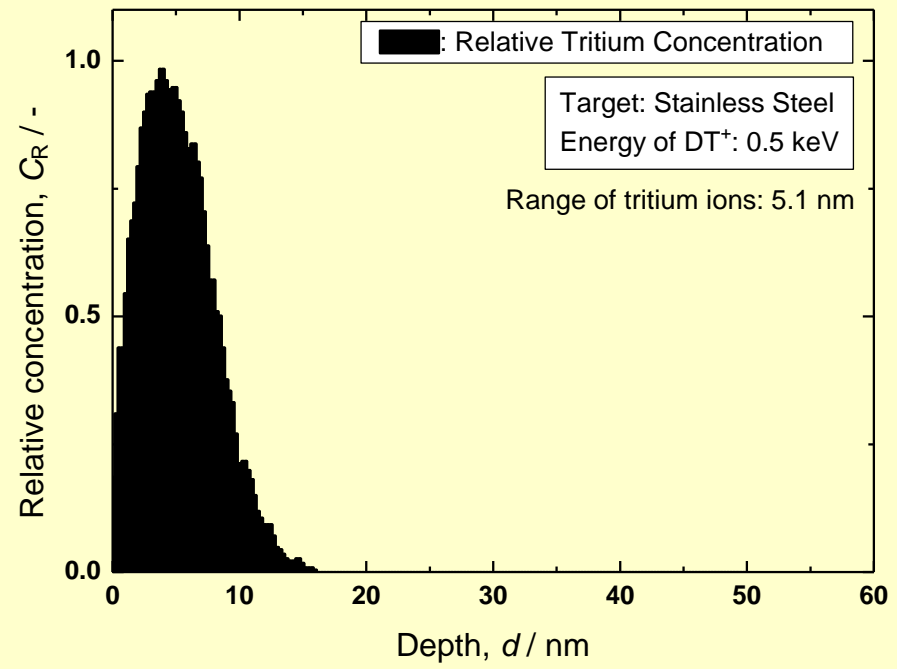
表1. イオン照射装置の基本仕様

Ion species	H_2^+ , D_2^+ , DT^+ , He^+ , Ar^+
Ion flux	$\sim 1 \times 10^{17} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ (DT^+)
Ion energy	0.5 - 3.0 keV
Ion current	0.3 - 1 μA
Pressure	$1.3 \times 10^{-4} \text{ Pa}$
Irradiation time	$\sim 120 \text{ min}$ (Max.)
Sample size	6x 6x0.5 mm (3 samples)
	10x10x0.5 mm (2 samples)
	15x15x0.5 mm (2 samples)
Spot size	5 mm ϕ
Pre-heating	$\sim 800 \text{ K}$ (Max.)
Vacuum pressure	$< 1 \times 10^{-6} \text{ Pa}$ (RT)

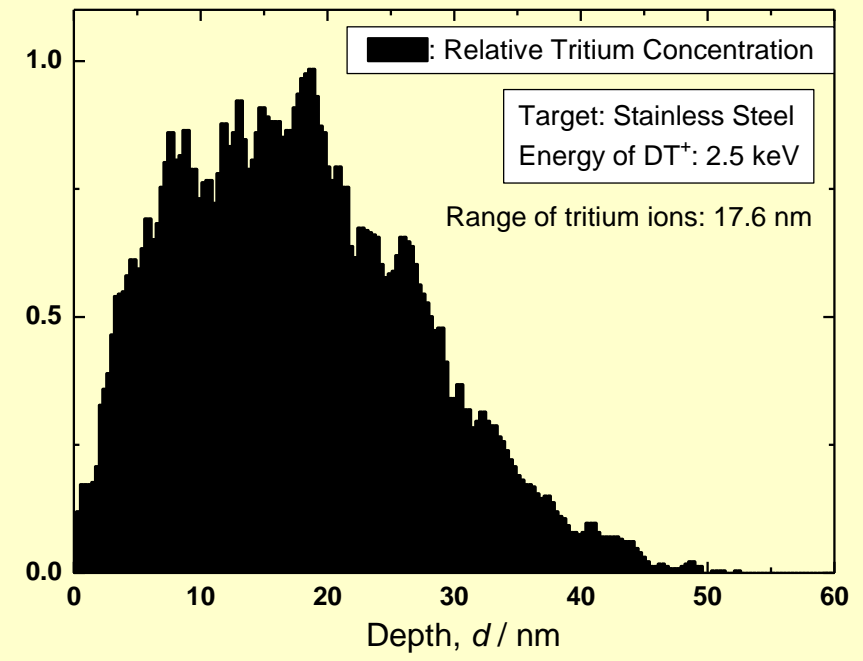
- ・トリチウムガスの供給・回収: ZrNi合金を充填した二重の金属製ゲッター容器(最高700 K)
- ・照射時間: 最長2時間程度、
- ・試料電位: 0 ~ 10 V印加(イオン照射時)
- ・試料表面及び内部のトリチウム量測定: BIXS(ベータ線誘起X線計測法)
- ・試料: Bare SS316L及びBare W(15x15x0.5 mm³)

Sample: SS316L

($E = 0.5 \text{ keV} / \text{DT}^+$)



($E = 2.5 \text{ keV} / \text{DT}^+$)



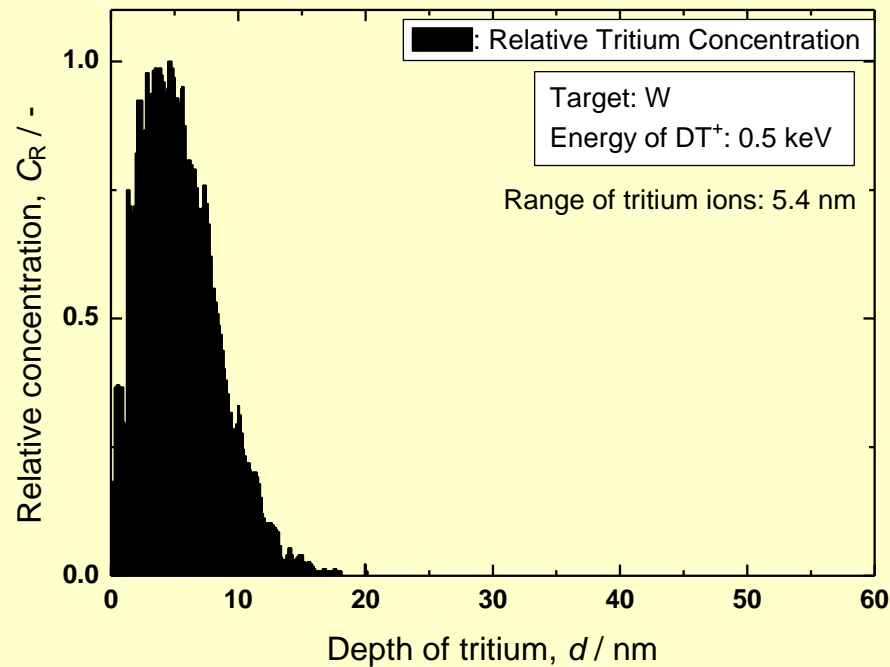
トリチウムの深さ分布図

Calculation Program: SRIM-2011.06, Target: SS316L, Energy of DT⁺: 0.5 and 2.5 keV

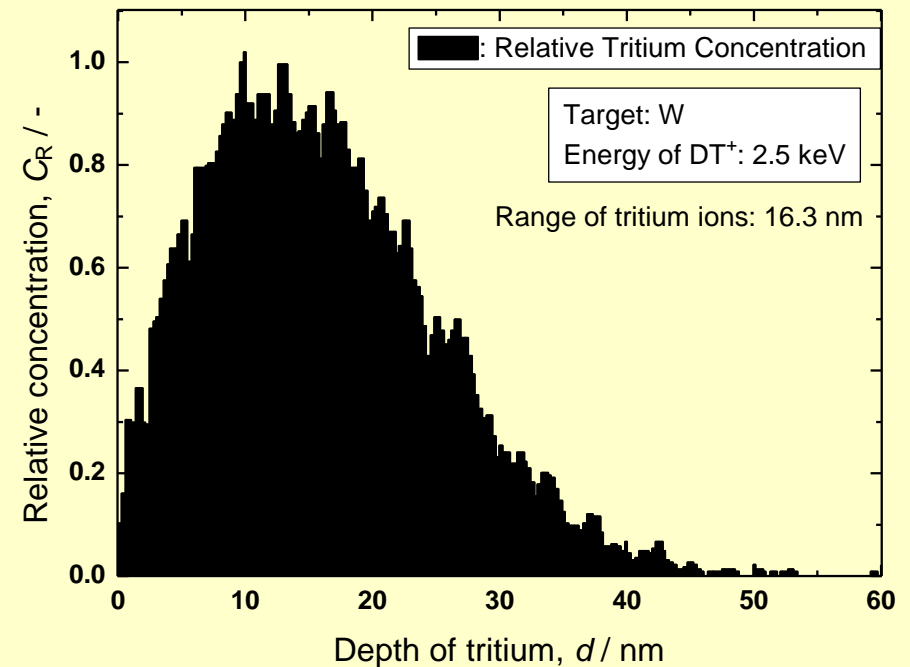
☞ Range: 5.1 nm for 0.5 keV, 17.6 nm for 2.5 keV

Sample: W

($E = 0.5 \text{ keV} / \text{DT}^+$)



($E = 2.5 \text{ keV} / \text{DT}^+$)



トリチウムの深さ分布図

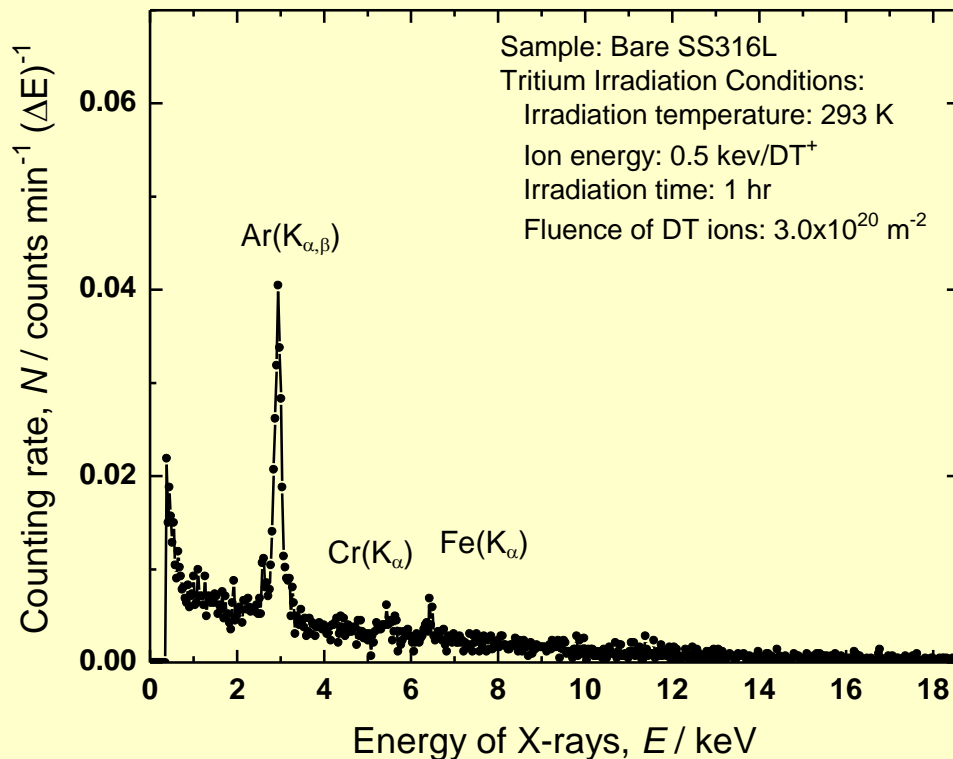
Calculation Program: SRIM-2011.06, Target: W, Energy of DT⁺: 0.5 and 2.5 keV

👉 Range: 5.4 nm for 0.5 keV, 16.3 nm for 2.5 keV

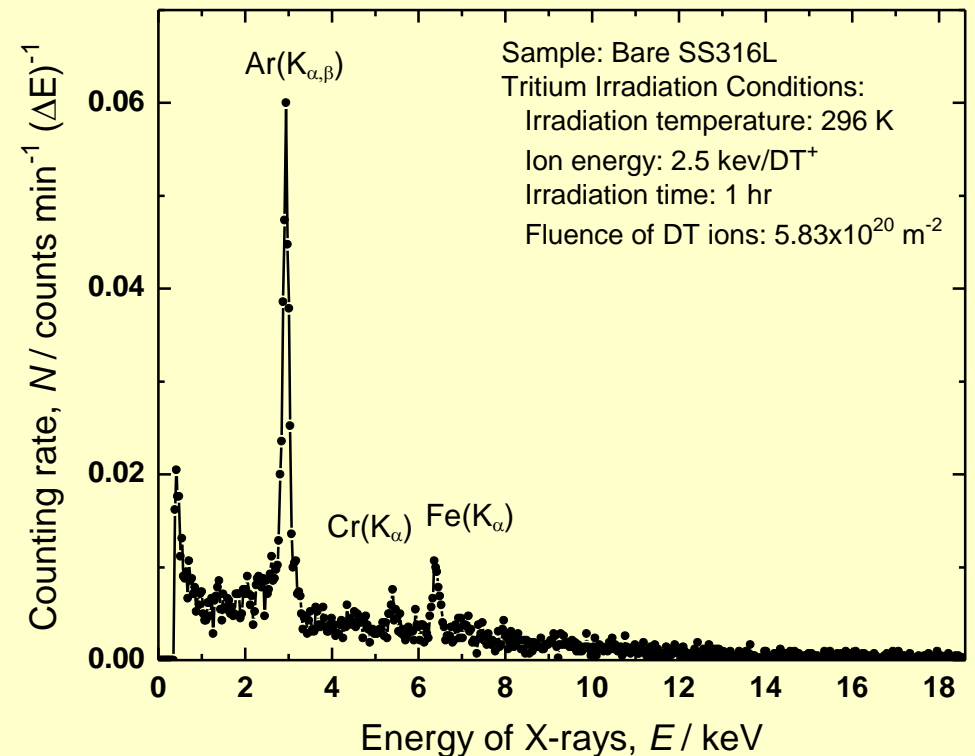
トリチウムイオンを照射したBare SS316Lの BIXS測定例 (293 & 296 K)

Sample: SS316L

$E = 0.5 \text{ keV}$

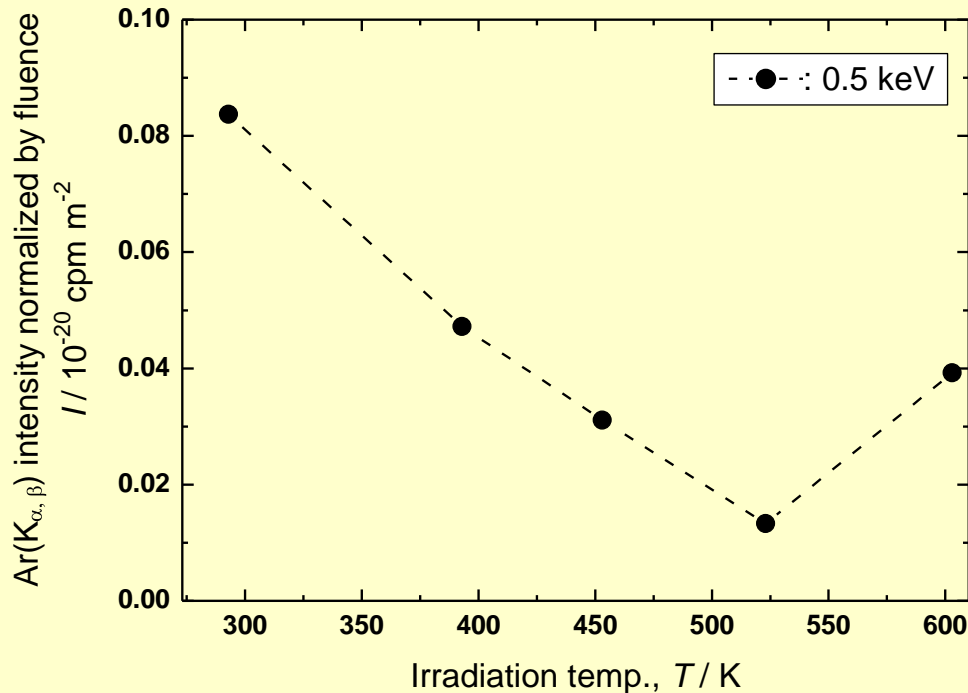


$E = 2.5 \text{ keV}$



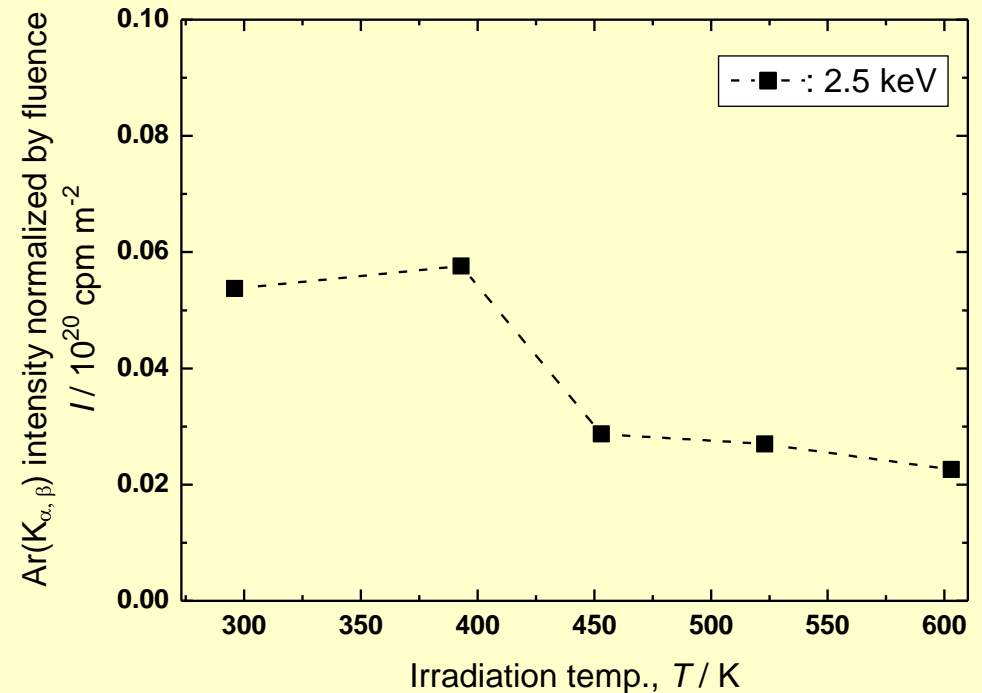
- ☞ イオンフルエンス: $3.0 \times 10^{20} \text{ DT}^+/\text{m}^2$ for 0.5 keV, $5.8 \times 10^{20} \text{ DT}^+/\text{m}^2$ for 2.5 keV
- ☞ 室温付近での照射では、Ar(K_α)の強度変化より、イオンエネルギーが増大してもフルエンスを考慮すると表面(層)の保持量が逆に減少していることが知られた。

トリチウムイオン照射 (0.5 keV)



Ar(K_{α,β})のピーク強度と照射温度との関係

トリチウムイオン照射 (2.5 keV)

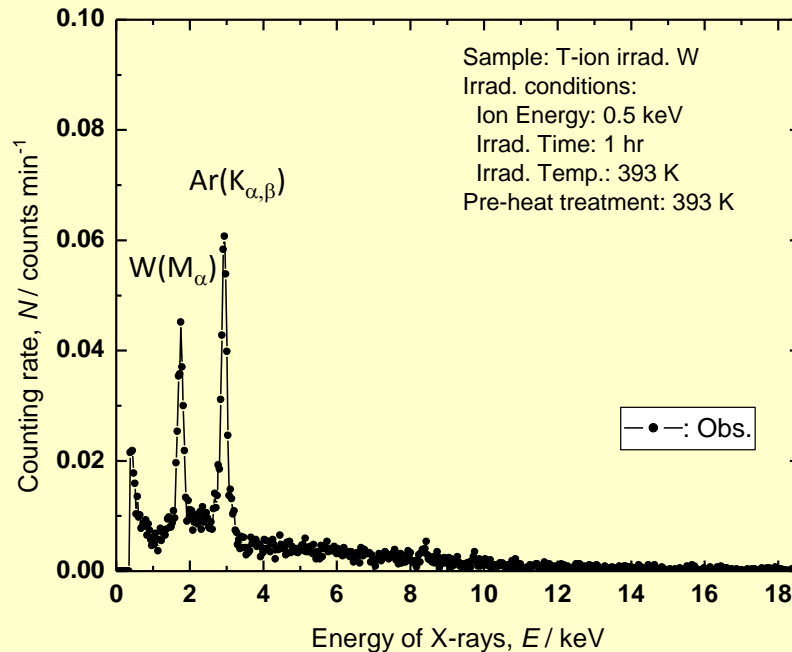


Ar(K_{α,β})のピーク強度と照射温度との関係

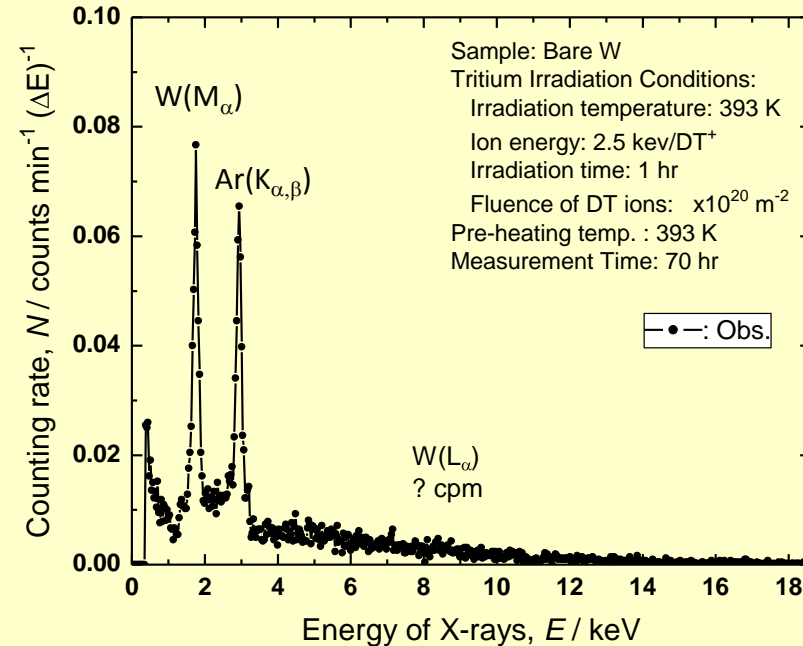
- ☞ イオンエネルギーが0.5 keVの場合、温度上昇と共にAr(K_{α,β})の強度は減少、即ち表面(層)の保持量は減少し、523 K以上で逆に増加傾向を示した。
- ☞ 一方、2.5 keVでは400 K付近まではあまり変化がなく、これ以上の温度で緩やかな減少傾向を示した。
- ☞ この様な温度依存性を考慮すると、保持量低減の観点からは材料温度を523 K付近に保持することが有利であると言える。

Sample: W

$E = 0.5 \text{ keV}$

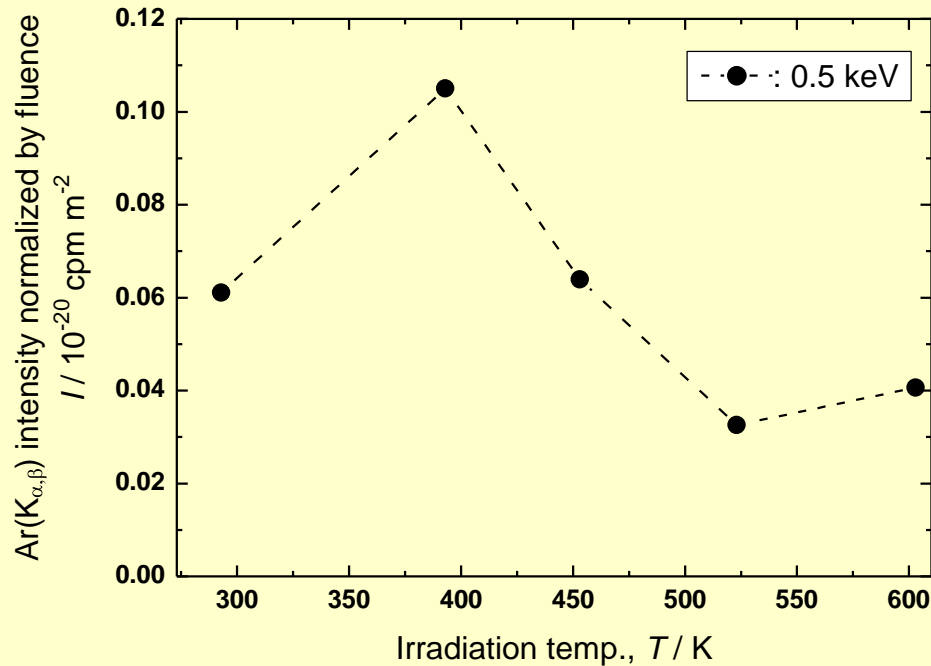


$E = 2.5 \text{ keV}$

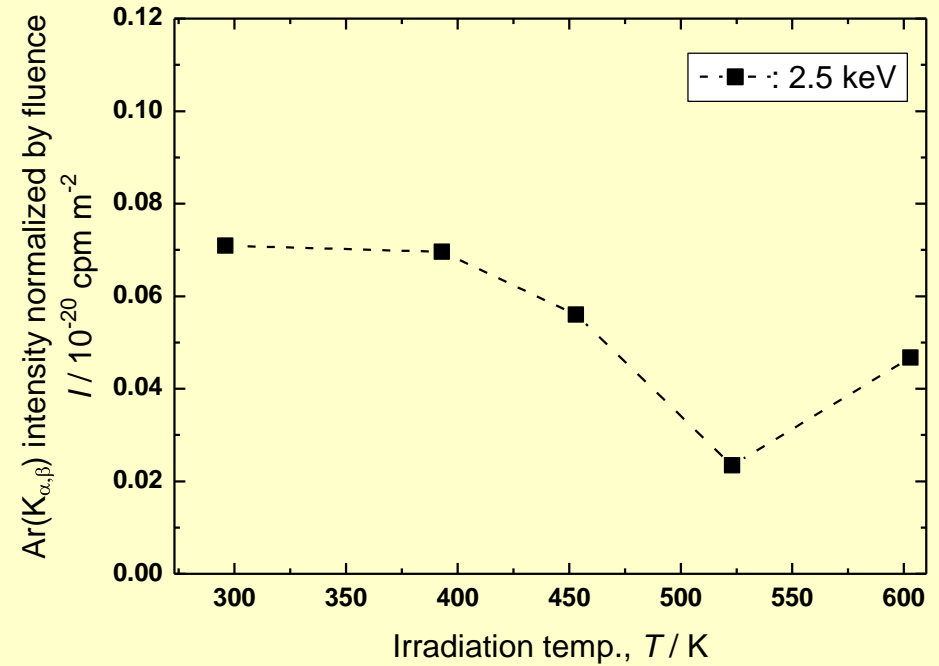


- ☞ イオンフルエンス: $3.4\text{E}20 \text{ DT}^+/\text{m}^2$ for 0.5 keV, $5.9\text{E}20 \text{ DT}^+/\text{m}^2$ for 2.5 keV
- ☞ イオンの加速エネルギーが増大すると強度比 ($W(M_\alpha) / Ar(K_{\alpha,\beta})$) が逆転した。これは表面(層)直下のトリチウム量及び濃度が増大していることを示唆している。
- ☞ また、ステンレス鋼の場合と同じようにイオンエネルギーを増大すると保持量は減少した。

トリチウムイオン照射 (0.5 keV)



トリチウムイオン照射 (2.5 keV)



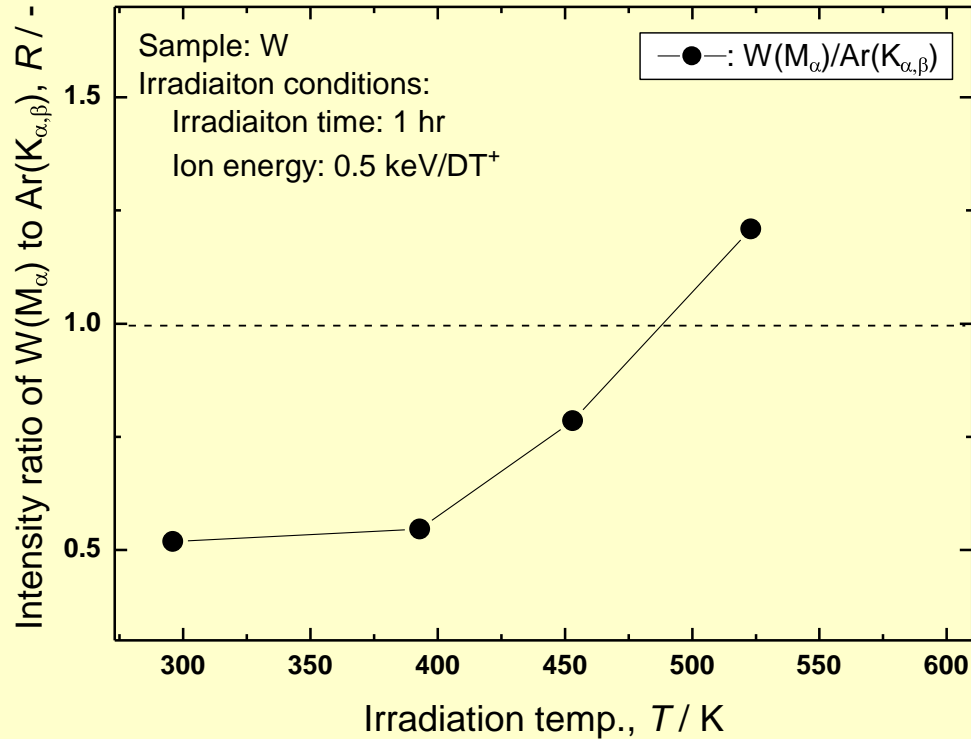
Ar(K_{α,β})のピーク強度と照射温度との関係

Ar(K_{α,β})のピーク強度と照射温度との関係

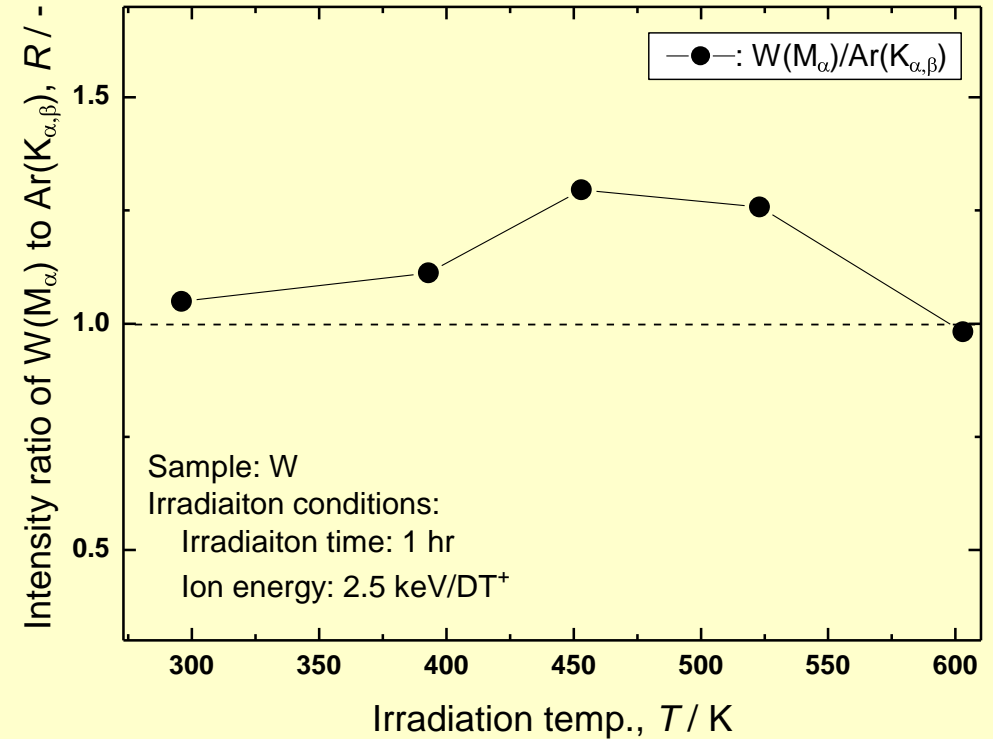
- ☞ 0.5 keVでは、一旦温度上昇と共に増大傾向を示すが、更なる温度上昇に伴い減少し、523 K以上で再び上昇傾向を示した。この傾向はSS316Lと類似している。
- ☞ 一方、2.5 keVでは400 Kまで殆ど変化が見られなかったが、更に温度を上げると減少傾向を示し、0.5 keVの場合と同様に523 K以上で逆に増加傾向を示した。
- ☞ 保持量低減の観点からは材料温度を523 K付近に維持することが有利であることを示唆している。

Bare Wで観測された $W(M_\alpha)$ と $Ar(K_{\alpha,\beta})$ ピークの強度比に対する温度依存性

(0.5 keV)

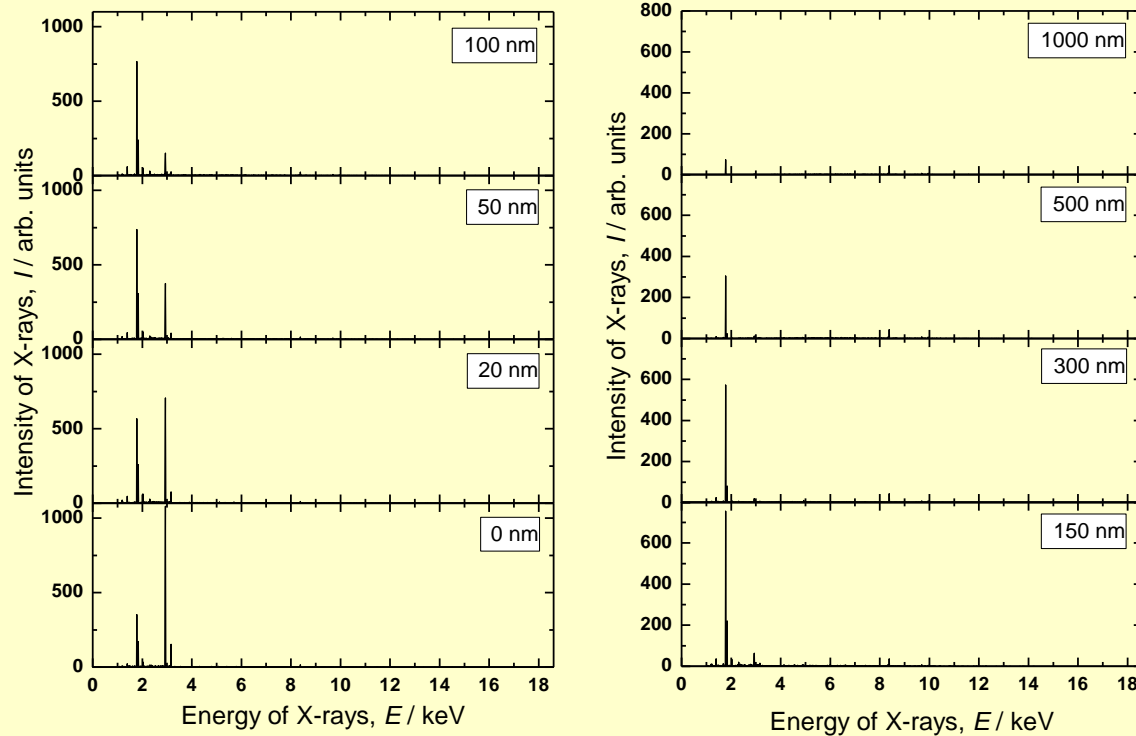


(2.5 keV)



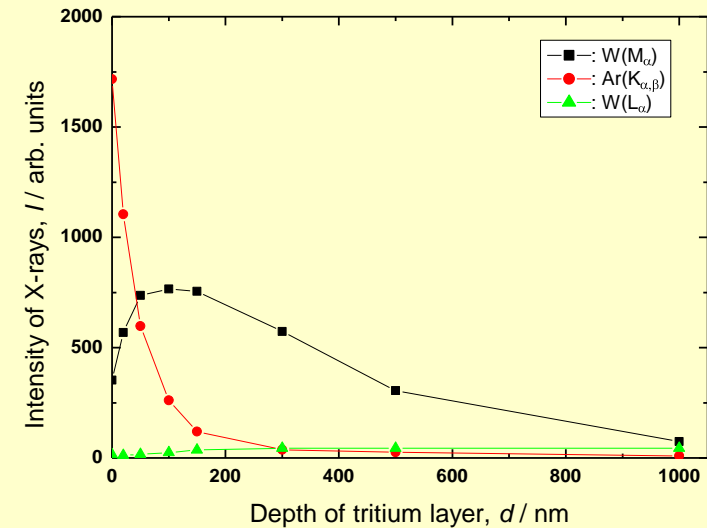
- ☞ 0.5 keVのイオン照射では温度上昇とともに強度比が0.5から増大し、500 Kで1を超えた。
- ☞ 一方、2.5 keVでは室温照射から1以上となり、600 Kでは逆に1より僅かに小さくなった。
- ☞ $W(M_\alpha)/Ar(K_{\alpha,\beta})$ の強度比が1以上に達したことは、次の図の計算結果が示すようにトリチウムの分布が少なくとも20 nm以上まで広がっていることを示している。

Wに対するトリチウム保持層の深さとX線スペクトルの強度変化の関係 – Geant 4による計算 –

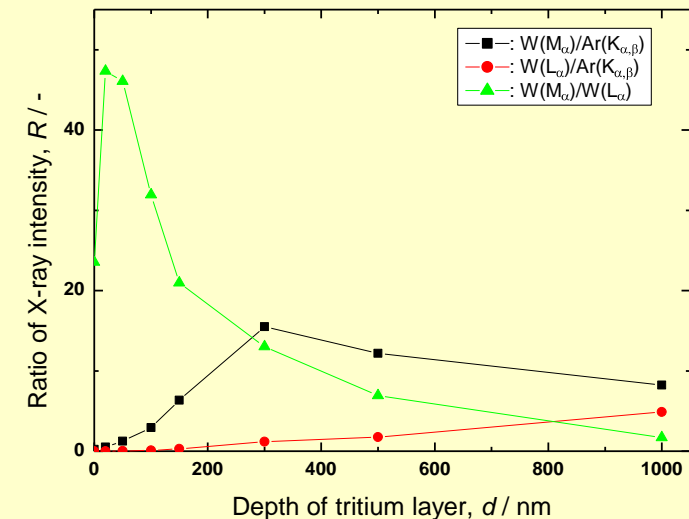


トリチウム層の各深さに対するX線スペクトル

- ☞ トリチウム層の深さとβ線によって誘起されるX線の強度変化を計算した。トリチウム層は10 MBqとした。
- ☞ $W(M_{\alpha})$ と $Ar(K_{\alpha,\beta})$ の強度比が逆転するのはトリチウム層の深さが20 nm以上と予測された。この計算結果はSRIMによる計算結果と一致する。



特性X線の強度変化



特性X線の強度比の変化

- (1) QUESTによるプラズマ曝露及び未曝露のステンレス鋼 (SS316L) 並びにタングステン試料にトリチウムガス曝露又はイオン照射を行い、トリチウムの保持挙動に対する温度依存性を調べた。
- (2) プラズマ曝露によりガス曝露温度に関係なく未曝露試料よりもトリチウム保持量が大きく増大した。この原因として堆積層の化学的な反応特性の変化および表面積の増大等が考えられる。
- (3) Bare SS316L及びWに対するイオン照射での打ち込み深さは、SRIMコードによる計算から0.5 keVで5 nm、2.5 keVで16-17 nm程度と両材料でほぼ同じ深さ分布になると予測され、観測されたX線スペクトルの強度比はこれと一致した。
- (4) 両材料の保持量に対するイオンエネルギー依存性は大きく異なっていた。また保持量に対する温度依存性も材料による相違点が見られた。
- (5) 低エネルギーイオン照射では両材料とも523 K付近に保持量の最小値が出現した。一方、高エネルギーイオン照射の場合、Wでは低エネルギーイオン照射と同温度での最低値が見られたが、SS316Lでは出現しなかった。

ご清聴ありがとうございました