

## プロジェクトレビュー

## 日米科学技術協力事業 TITAN プロジェクト

## Japan-US Joint Research Project TITAN

## 1. はじめに

## 1. Introduction

奥野 健二

OKUNO Kenji

静岡大学理学部

(原稿受付：2013年8月5日)

本レビュー報告は日米科学技術協力事業による共同プロジェクト研究「磁場および慣性核融合炉システムにおけるトリチウム・熱流動制御」通称 TITAN 計画 (Tritium Irradiation and Thermofluid for America and Nippon) (2007-2012年度) のねらい、活動の概要、および成果をまとめたものである。このプログラムは、核融合科学研究所とオークリッジ国立研究所間の学術および科学交流に関する協定の附属書-I「磁場および慣性核融合炉システムにおけるトリチウム・熱流動制御共同研究プロジェクト」に基づき実行されたものである。

日米協力共同プロジェクトは、長年エネルギー分野の日米科学技術協力協定に基づく文部科学省-米国エネルギー省間の核融合研究開発に関する交換附属書 I「原子炉を利用した核融合炉材料照射効果基礎研究」に基づき進められ、RTNS-II 計画(1982-1986年度)、FFTF/MOTA 計画(1987-1994年度)、JUPITER 計画(1995-2000年度)、JUPITER-II 計画(2001-2006年度)と引き続いて実施された。協定は JUPITER-II の期間に失効し、附属書 I も JUPITER-II 計画終了により失効となった。しかし、関係者の絶大な努力により、上記枠組みで次期のプロジェクトを進めることができた。

それぞれの日米共同プロジェクトにおいては、大学連合による研究チームが核融合科学研究所のもとに組織され計

画の企画、実施、成果のとりまとめが行われてきた。TITAN 計画においても大学の研究者からなる研究チームが形成された。研究対象の広がりに伴い、広範な炉工学研究者の参画を得て、連携が深まったことが大きな特徴である。

本レビュー報告においては、プロジェクトの狙いと進め方について先ず報告し、続いて各タスクからの成果を中心とした報告を行い、最後に TITAN 計画の後の計画として開始された PHENIX 計画の概要を報告する。

TITAN 計画におけるほとんどの研究はアメリカ側との緊密な連携で進められたが、本レビュー報告では、日本側の責任でこれまで発表された成果をまとめた。日米の実行体制については、次章で報告する。



TITAN 計画のロゴ



# プロジェクトレビュー 日米科学技術協力事業 TITAN プロジェクト

## 2. プロジェクトの狙いと進め方

### 2. Objectives and Procedure of the Project

室賀 健夫

MUROGA Takeo

核融合科学研究所

(原稿受付：2013年 8月 5日)

日米協力事業における共同プロジェクトでは、アメリカの特徴ある施設を用い、日本の技術経験をそこに適用することによりユニークな研究を進めてきた。2007年 4月から2013年 3月の期間で行われた、TITAN 計画（磁場および慣性核融合炉システムにおけるトリチウム・熱流動制御）においては、核融合炉におけるトリチウムと熱の制御の見通しを明らかにすることを目的とし、強中性子照射、高熱流高粒子束、強磁場下の循環流動など核融合炉特有の環境における試験、および統合モデリングを進めた。本章では、TITAN 計画の狙い、タスクと研究組織、研究の進め方、成果のとりまとめについて報告する。

**Keywords:**

tritium, thermofluid, neutron irradiation, blanket, first wall

#### 2.1 はじめに

日米科学技術協力（核融合分野）の共同プロジェクトは、1981年に開始した RTNS-II 計画以来、FFTF/MOTA, JUPITER, JUPITER-II 計画を経て現在の TITAN 計画に到っている。これらに共通するのは、アメリカの特徴ある施設を用い、日本ではできない実験を、日本の技術経験をそこに適用することにより、進めてきたことである。特に原子炉を用いた中性子照射研究は一貫して中心的な役割を果たしてきた。近年ではさらにテーマの広がりに合わせて、トリチウム挙動や Plasma Wall Interaction (PWI)、熱流動関連の研究も加わっている。本章では、TITAN 計画の狙いと進め方について報告する。

#### 2.2 プロジェクトの狙い

TITAN 計画は、前計画 JUPITER-II（2001年 4月から2007年 3月）[1]において、いくつかの先進的なブランケットの要素技術の研究を進展させた成果を受けて計画された。ブランケットはトリチウムと熱の生産、取り出しを主ミッションとするもので、トリチウムと熱の第一壁、回収系を含めたシステムとして制御の見通しを得る必要がある。本計画では、強照射、高熱流束、強磁場下の循環流動など核融合炉特有の環境における試験、および統合モデリングを通じて、核融合炉におけるトリチウムと熱の制御の見通しを明らかにすることを目的とした。図1に JUPITER-II 計画と比べた TITAN 計画のスキームの概念図を示す。

特に特徴的な試験である中性子照射に関しては、トリチ

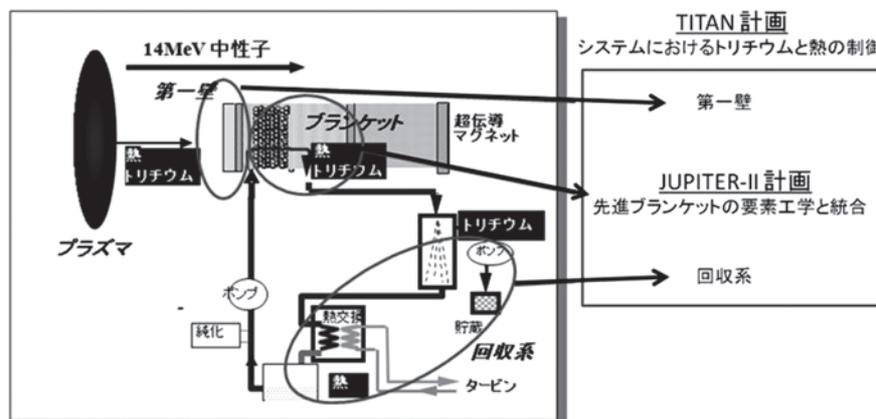


図1 JUPITER-II 計画と比べた TITAN 計画のスキームの概念図。

ウム挙動への影響、核変換水素同位体・He等との相乗作用など「照射シナジズム」を重点テーマとして取り上げた。また、ブランケット製作で課題となる先進接合材や被覆材の照射効果、照射下の形状安定性などもスコープに加えた。

特に重視したのは、上記の照射とトリチウムなどの相乗効果の課題の他、熱流動とトリチウム等物質移行、第一壁とブランケット間のトリチウム移行など、要素間を跨る熱物質の移行などタスク横断的な課題の推進である。

### 2.3 プロジェクトの概要

#### 2.3.1 使用装置

主な試験装置は図2に示すように、(1)制御中性子重照射が可能なHFIR（オークリッジ国立研究所）、(2)比較的多量のトリチウムに加え中性子照射材が使用可能なSTAR（アイダホ国立研究所）、(3)STARにあるトリチウムプラズマ照射装置TPE、(4)強磁場下での熱流動試験装置MTOR（カリフォルニア大学ロサンゼルス校）、(5)複合PMI（プラズマ・材料相互作用）試験装置PISCES（カリフォルニア大学サンディエゴ校）(2010年3月まで)である。

特徴的な研究は、HFIRで中性子照射したタングステン等をSTARに輸送し、重水素プラズマ照射やトリチウム試験などを行ったことで、照射環境における第一壁のトリチウム滞留についての貴重な情報が得られた。

これらアメリカのユニークな装置を利用するとともに、日本独自の技術を活用し、日米で協力し特徴ある設備を構築したことも本計画の特徴である。例として、STAR内への液体増殖材の水素同位体溶解度測定装置等の導入、TPEにおける中性子照射材のプラズマ照射のための試料ホルダの製作、照射接合材の接合強度の評価試験装置のホットラボへの導入、等が挙げられる。また、超音波を用いた液体

金属の流速分布計測、イメージングプレートを用いたトリチウム分布の測定技術など日本で培った技術も活用された。

#### 2.3.2 タスク、研究組織

表1に、プロジェクトのタスク、サブタスク、使用装置と研究目標をまとめた。本計画は物質と熱の輸送現象、照

表1 タスク構成と使用装置、目標。

タスク	サブタスク	使用装置	達成目標
タスク1 物質・熱輸 送現象	1-1 第一壁 トリチウム・ 物質移行	STAR/TPE PISCES	第一壁における物質移行、トリチウムインベントリ、第一壁とブランケット間のトリチウム移行を求める
	1-2 ブラン ケットトリ チウム移行	STAR	液体ブランケット要素間のトリチウム移行特性を明らかにする
	1-3 熱流動 制御とモデ リング	MTOR	強磁場環境での熱流動実験と比較モデリングを進める
タスク2 照射複合効 果	2-1 照射・ トリチウム 複合効果	HFIR STAR	トリチウムの第一壁材、構造材における移行特性に及ぼす照射効果を求める
	2-2 接合・ 被覆システ ムの健全性	HFIR	接合・被覆材料システムの照射下健全性とトリチウム・ヘリウム同時生成効果を明らかにする
	2-3 動的変 形挙動	HFIR	構造材料の照射下動的変形挙動とトリチウム・ヘリウム生成の効果を求める
共通タスク システム統 合モデル	MFE/IFE システム統 合モデリン グ		第一壁-ブランケット・回収系システムの物質・熱輸送に関する統合モデルを構築し、炉システム設計に反映させる

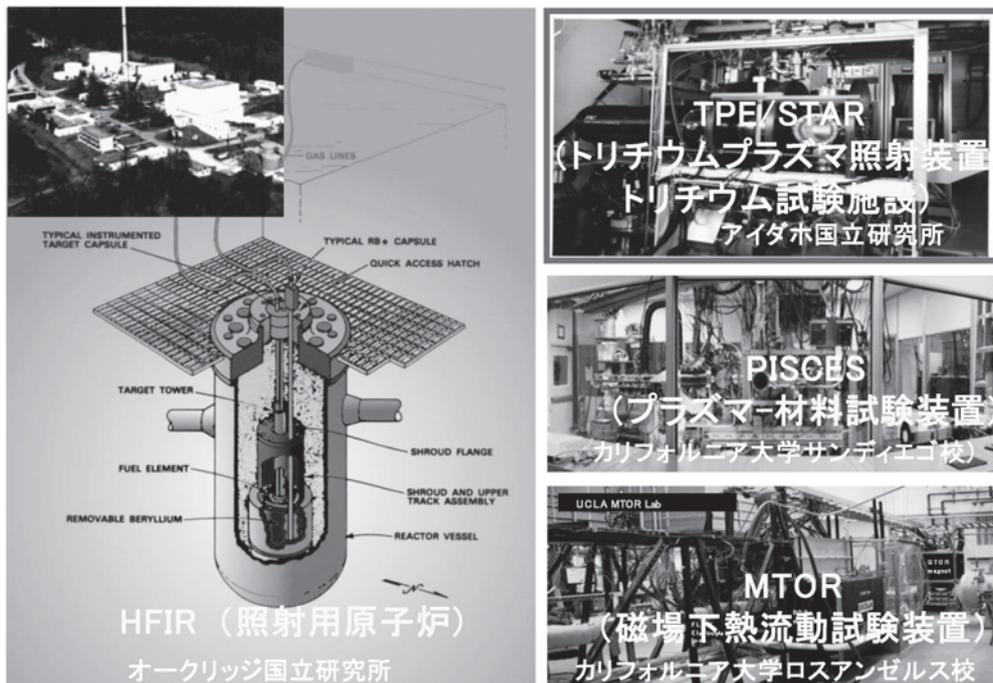


図2 使用したアメリカの施設。

射複合効果（シナジズム）、統合モデルの3タスクからなり、さらに7サブタスクから構成される。なお、タスク1-1は、予算削減のため2009年度で終了し、それ以降は人物交流により研究を継続した。共通タスクは本計画の特徴ある組織であり、各タスクからそれぞれの成果に基づいて参画し、モデリングツールの整備や高度化、各要素モデルの統合、炉設計への反映などの活動を展開した。

表2に実施体制を示す。体制としては、計画代表、計画調整担当、タスク責任者、サブタスク責任者、副責任者を設けた。アメリカの各施設における効率的な研究推進のため、また照射材の東北大学大洗センターへの輸送の円滑な実施のため、アメリカの施設と大洗センターのリエゾン組織の中に設けた（施設リエゾン）。

本計画では、磁場核融合炉と慣性核融合炉の共通課題を積極的に取り入れることとした。例として、PISCESにおいて、ディスラプション、ELM、慣性核融合炉第一壁の負荷の研究を一貫して行えるよう、パルス幅の異なる熱負荷試験装置を導入した。慣性核融合も関しては特有の工学課題についての検討も人物交流を中心に進めた。これらに関わる慣性核融合炉工学のリエゾンも設けた（IFEリエゾン）。

### 2.3.3 計画の進め方

研究組織、全体計画、各年度の実施状況、次年度の計画等は日米双方の代表と計画調整担当からなる運営委員会を毎年2月に開き審議、調整を行った。また、国内での計画

の立案や調整のための国内研究者会議を毎年10-11月と3月初旬の日米報告会に合わせた期間の計2回行った。

各タスク、サブタスクでの研究計画の立案は、国内ではNIFS共同研究などの機会を活用し、また日米での調整は課題ごとに日米ワークショップを開いて担当者で進めた。

### 2.4 成果の取りまとめと公表

各年度の派遣研究やワークショップの成果は、毎年3月に開かれる事業報告会で報告し、報告書として成果が残されている。各タスクにおける成果は次章より詳細に報告されるが、TITAN計画全体については、これまでプラズマ・核融合学会の年会シンポジウム、日本原子力学会の部会企画セッション、核融合エネルギー連合講演会での講演、およびいくつかの国際会議においてその成果を公表し、2編の論文が出版されている[2,3]。また、2010（平成22）年5月には核融合科学研究所において「TITAN計画中間報告会」を開催し、成果を報告するとともに、後半の進め方について意見を伺った。本プロジェクトレビューのほか、最終報告をNIFS-Reportとして来春発刊することを予定している。

### 参考文献

- [1] 阿部勝憲他：プラズマ・核融合学会誌 85, 251 (2009).
- [2] T. Muroga *et al.*, Fusion Sci. Tech. 60, 321 (2011).
- [3] T. Muroga *et al.*, Fusion Eng. Des. 87, 613 (2012).

表2 実施体制（計画最終年度における）。

		日本側			アメリカ側		
計画代表		奥野健二（静岡大）			P. Pappano (DOE)		
計画調整		室賀健夫 (NIFS)			P. Pappano (DOE)		
タスク	サブタスク	タスク責任者	サブタスク責任者	副責任者	タスク責任者	サブタスク責任者	副責任者
タスク1： 物質・熱輸送現象	1-1 第一壁トリチウム・物質移行	寺井隆幸（東大）	上田良夫（阪大）	大野哲靖（名大） 徳永和俊（九大）	P. Pappano (DOE)	R. Doerner (UCSD)	
	1-2 ブランケットトリチウム移行		寺井隆幸（東大）	小西哲之（京大） 深田智（九大）		B. Merrill (INL)	
	1-3 熱流動制御とモデリング		功刀資彰（京大）	横峯健彦（京大）		S. Smolentsev (UCLA)	
タスク2： 照射複合効果	2-1 照射・トリチウム複合効果	木村晃彦（京大）	波多野雄治（富山大）	大矢恭久（静岡大）	R. Kurtz (PNNL)	Y. Katoh (ORNL)	B. Merrill (INL)
	2-2 接合・被覆システムの健全性		木村晃彦（京大）	橋本直幸（北大） 長坂琢也（NIFS）		T. Yamamoto (UCSB)	Y. Katoh (ORNL)
	2-3 動的変形挙動		長谷川晃（東北大）	檜木達也（京大）		Y. Katoh (ORNL)	
共通タスク： システム統合モデル	MFE/IFEシステム統合モデリング	相良明男（NIFS）	相良明男（NIFS）	橋爪秀利（東北大） 乗松孝好（阪大）	R. Nygren (SNL)	R. Nygren (SNL)	
施設リエゾン		東北大大洗：四竈樹男（東北大）			ORNL: R. Stoller (ORNL) INL: B. Merrill (INL)		
IFEリエゾン		田中和夫（阪大）		兒玉了祐（阪大） 米田仁紀（電通大）	M. Tillack (UCSD)		



## プロジェクトレビュー 日米科学技術協力事業 TITAN プロジェクト

### 3. 第一壁・ブランケットの物質熱輸送に関する研究

#### 3. Transport of Materials and Heat In First Walls and Blankets

##### 3.1 第一壁トリチウム・物質移行

##### 3.1 Tritium and Mass Transfer in First Wall

徳永和俊<sup>1)</sup>, 宮本光貴<sup>1)</sup>, 大塚哲平, 梶田 信<sup>2)</sup>, 大野哲靖<sup>2)</sup>, 上田良夫<sup>3)</sup>  
 TOKUNAGA Kazutoshi, MIYAMOTO Mitsutaka<sup>1)</sup>, OTSUKA Teppei, KAJITA Shin<sup>2)</sup>,  
 OHNO Noriyasu<sup>2)</sup> and UEDA Yoshio<sup>3)</sup>  
 九州大学, <sup>1)</sup>島根大学, <sup>2)</sup>名古屋大学, <sup>3)</sup>大阪大学  
 (原稿受付: 2013年8月5日)

DT イオンや He イオン, および壁材料イオンが直接照射される第一壁では, トリチウムの蓄積や拡散, あるいは壁材料の損耗や堆積などのトリチウム・物質移行現象が起こり, ブランケット寿命や炉内トリチウム挙動に大きな影響を及ぼす. ここでは, これらのトリチウム・物質移行現象解明のため, 高密度プラズマ照射装置 (PISCES-B (UCSD), TPE (INL)) を用い, タングステン等の壁材料に D, He, T, Be を含むプラズマやパルスレーザーを照射して, 表面状態変化, 水素同位体吸蔵・拡散特性, および損耗特性を調べた結果を報告する.

#### Keywords:

plasma material interactions, tungsten, beryllium, tritium retention, high flux plasma exposure, mixed plasma, imaging plate, helium bubble, pulse laser

#### 3.1.1 Be 混入 D-He 混合プラズマ照射によるタングステン材の表面損傷と共堆積層形成挙動

ITER の DT 放電ではダイバータのタングステン (W) アーマ材表面は, 第一壁アーマ材として使用されるベリリウム (Be) が混入した D-He 混合プラズマの照射を受け, 表面損傷が発生すると共に, 対向面には水素同位体と Be 等の共堆積層が形成される. W 材の表面損傷は, 寿命やプラズマ中への不純物混入に影響を及ぼすと共に, 共堆積層はトリチウムリテンション, 水素同位体のリサイクリングやバルク材料への水素同位体の拡散等に影響を及ぼしている. 特に, Be 共堆積層の特性や水素同位体のリテンションを明らかにすることは, ITER における第一壁のトリチウム量の予測やトリチウム除去技術の開発のために重要事項の一つとなっている. 本研究では, カリフォルニア大学サンディエゴ校 (UCSD) の直線型プラズマ発生装置 PISCES-B を用いて, D-He 混合および Be 混入 D-He 混合プラズマ照射等による W 材の表面損傷と共堆積層形成挙動について明らかにした [1-3].

試料として用いた W 材は粉末焼結法により作製された応力除去処理材 (PM-W) および超微細粒 W-TiC 合金 (UFG W-0.5 wt%TiC/H<sub>2</sub>) 等である. 実験条件は, プラズマの照射エネルギーは 60 eV, フラックスは  $3\sim 6 \times 10^{22} / \text{m}^2 / \text{s}$ ,

試料の温度は 1123 K, 照射時間は 1050~10100 s である. また, 典型的な He/D イオン比は 0.2 である. Be は真空蒸発法によりプラズマ中に混入させ, プラズマ中でイオン化し試料表面に D-He プラズマと共に衝突する. 実験を行った典型的な Be の濃度は 0.2% である. さらに, 試料表面を見込む部分に設置された可動 witness plate にグラッシーカーボン (GC) を取り付け, 試料表面から損耗する物質を再堆積させた. 照射後のタングステン材は, PISCES-B に付属している AES 装置を用いて真空中でその場 AES 分析を行い, その後, 試料を取出し, 表面および断面の SEM 観察および EDS 分析を行った. また, 再堆積層が形成された GC は, 表面を SEM および AFM を用いて観察すると共に, He および O ビームを用いた RBS-ERD 同時分析を行った. さらに, RBS 分析の深さプロファイルのシミュレーション計算と分析結果の比較により, 組成の深さプロファイルを定量的に評価した.

He, D-He 混合および Be 混入 D-He 混合プラズマ照射により W 材の表面には, 繊維状の W ナノ構造が形成された. 図 1 には, この一例 (断面 SEM 像) を示す. これらは, He のみのプラズマ照射によって発生することから, 低エネルギーの He 照射によって発生するものと考えられる. 図 2 は, Be を混入しない場合の各種 W 材について照射時間の 1/2 乗とナノ構造の厚みをプロットしたものである. ナノ

Corresponding author's address: Research Institute for Applied Mechanics Kyushu University, Kasuga, FUKUOKA 816-8580, Japan

Corresponding author's e-mail: tokunaga@riam.kyushu-u.ac.jp

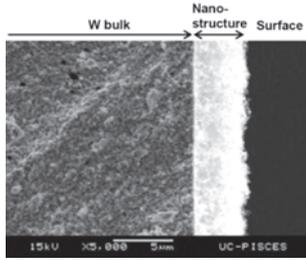


図1 Be 混合 D-He プラズマ照射により形成されたナノ構造 (断面 SEM 像), (試料:UFG W-0.5TiC/H<sub>2</sub>, 照射時間:10100 s).

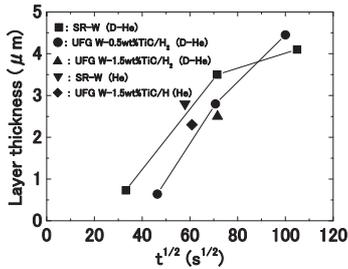


図2 照射時間とナノ構造の厚みの関係。

構造はインキュベーション時間が経過後発生し、ほぼ時間の1/2乗でその厚みが増加すると共に、組織依存性があることがわかる。また、He プラズマのみの場合と比較すると、D の混合効果はほとんどない。Be を混入した場合は AES 分析等の結果、少なくとも表面から数原子層はBeとOのみであるが、内部にはBeは存在しないことがわかった。この実験条件では、表面に付着したBeはそのほとんどはスパッタリングにより損耗しているものと考えられる。したがって、表面から注入されたHeは、Be層の影響をほとんど受けることなく内部に拡散しナノ構造の厚みが増加するものと考えられる。また、照射エネルギーを下げスパッタリングによる損耗を抑えた場合には、表面にはBeW合金が形成され、これによりナノ構造の形成が抑えられることがわかった。

W材の対向する位置に置かれたGC表面にはBeを混入させたD-Heプラズマ照射の場合には、Dを含むBeの共堆積層が形成されていた。共堆積層は、Beと共に、D, He, H, Oに加え、W等から構成されており、これらは層状構造を成している。また、表面には共堆積層の厚み、基材のGCの温度等により様相の異なるプリスタ状の凹凸が観察された。図3は、実験で得られたD/Beとスケーリング則[4]を比較したものである。D/Be値は、ほぼスケーリング則の下限程度であり、また、ナノ構造の影響も考えられる。

### 3.1.2 高密度プラズマ装置 PISCES における D+He+Be 混合プラズマ照射実験

本節では、ITERで予想されるHeやBe共存下におけるプラズマ壁相互作用を予測する目的で行った直線型高密度プラズマ発生装置 PISCES による混合プラズマ照射実験の成果について簡潔に述べる。詳しくは、当学会誌[5]を参考にさせていただきたい。

本研究では、応力除去熱処理を施したW試料を主に用

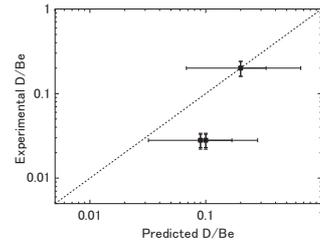


図3 D/Be 値について実験値とスケーリング則[4]との比較。

い、重水素プラズマに加え、HeおよびBeから成る混合プラズマ(D+He, D+Be, D+He+Be)における材料照射実験を行った。プラズマ照射後の表面および試料内部の微細組織変化を、走査型電子顕微鏡(SEM)および透過型電子顕微鏡(TEM)により観察した。さらに、昇温脱離分析法によりDリテンションの評価を行った。

図4は、試料温度573Kにおいて各種混合プラズマに照射した試料の表面組織を示している。Dプラズマに曝した試料においては、その表面に数μm程度の高密度のプリスタの形成が確認された。このプリスタの形成には、顕著な結晶粒依存性が認められ、EBSDによる結晶方位解析の結果、試料表面の法線方向が<111>方向に近い結晶粒において、プリスタが形成しやすいことが明らかになった。WなどのBCC金属にとって<111>方向は原子の線密度が最大となる方位で、入射イオンが見込む原子配列の隙間が最も大きくなる。そのため、Dイオンの飛程が比較的深部にまで達し、結果としてプリスタの形成が促進されたと考えられた。また、最近ではNAGDISにおけるHe高照射したタンゲステンにおいても結晶方位に強く依存した表面変質が観察されており、結晶のすべり面との関連が指摘されている[6]。一方、HeやBeの混合は、このような表面形態変化に著しい影響を与えた。D+He混合プラズマ照射においては、 $c_{He^+} \sim 1\%$ の僅かなHeイオン濃度においてもプリスタの形成量は抑制され、 $c_{He^+} \sim 5\%$ 以上のHe濃度では、その形成は確認されなかった。さらに、Be混合プラズマ照射

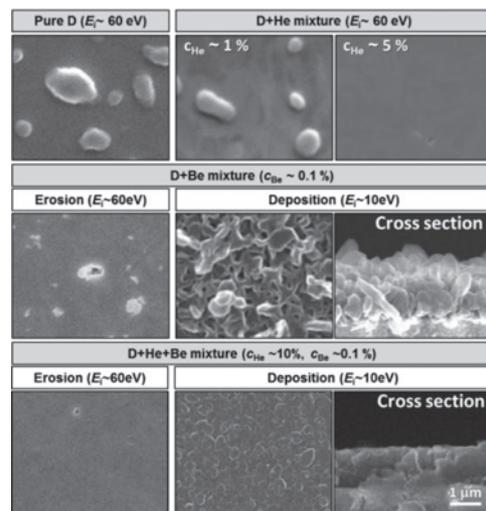


図4 各種混合プラズマ照射 ( $\Phi_D \sim 5 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ ,  $T_s \sim 573 \text{ K}$ ) したWの表面SEM像。Be堆積条件下で照射した試料については、断面組織像も示している。

では、イオンの入射エネルギーが  $E_i \sim 60$  eV では、Be の堆積とスパッタリングによる損耗がほぼ平衡し、明瞭なベリリウム堆積層は形成しないが、SIMS 等による表面分析から表面 5 nm 程度の W/Be 混合層の形成が確認された。この損耗条件下での D+Be 混合プラズマ照射では、He を含まない場合、試料表面にサブミクロン程度の比較的小さいプリスタの形成とその剥離が観察されるのに対し、He を追加すると、Be を含まない混合プラズマ照射の時と同様に、プリスタは形成されず、スムーズな表面が維持されていた。また、比較的低エネルギーの  $E_i \sim 10$  eV では、He の有無に依らず Be を主成分とする 1  $\mu\text{m}$  程度の堆積層が形成された。

このような He および Be 混合の影響は、重水素保持挙動にも顕著に表れた。図 5 には、各種混合プラズマ照射 ( $\phi_D \sim 5 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ ) した試料の重水素総捕捉量の比較を示した。D+He 混合プラズマ照射した試料の重水素保持量は、重水素プラズマ照射した試料より 2 桁以上小さなものであった。図 6 に見られるように、D+He 混合プラズマ照射した試料内部には、高密度の He バブルが形成しており、断

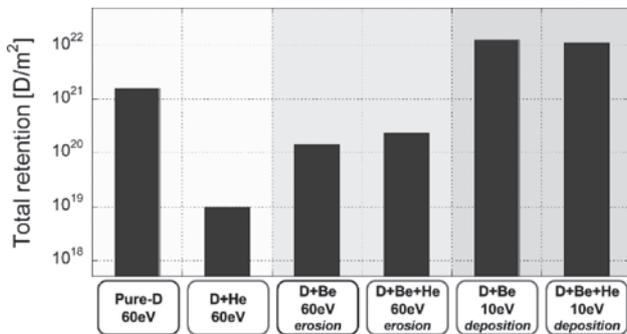


図 5 各種混合プラズマ照射 ( $\phi_D \sim 5 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ ,  $T_s \sim 573 \text{ K}$ ) した W の重水素総捕捉量。

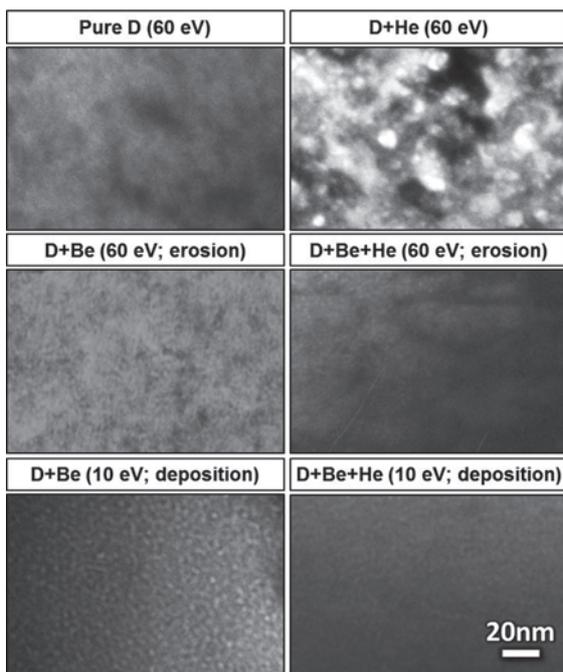


図 6 各種混合プラズマ照射した W 薄膜試料の微細組織 TEM 像。

面観察から He バブルの形成は飛程 ( $\sim$ 数 nm) を遥かに超えた材料深部にまで及んでいることが明らかになった。さらに He バブルの体積占有率から、He バブル同士は合体し、材料深部は試料表面と He バブルを介して繋がっていると評価された。この互いに結合した He バブルが、入射する重水素原子の試料表面までの拡散経路として機能し、結果として重水素捕捉量の著しい減少をもたらしたと考えられた。PISCES の D+He 混合プラズマ照射においては、1 ~ 2 % 程度の僅かな He 濃度においても、大幅な重水素保持量の減少がみられており、燃焼プラズマを取り扱う実機装置ではトリチウムリテンションの軽減が期待できる。また、Be 混合プラズマ照射した W 試料の重水素保持特性は、Be 堆積層形成の有無により大きく異なった。Be の損耗条件下 ( $E_i \sim 60$  eV) で、D+Be および D+He+Be 混合プラズマばく露した W 試料においては、重水素プラズマ照射時と比較し、いずれも D 捕捉量が一桁程度小さくなる。試料表面に形成するわずかな Be/W 混合層が、D の試料内部への拡散を阻害すると考えられた。一方、Be 堆積層の形成条件 ( $E_i \sim 10$  eV) では、D 捕捉量は重水素プラズマ照射時と比較して一桁程度増加した。Be と D による共堆積層の形成に起因すると考えられ、仮に D が Be 堆積層中に均一に分布しているとする  $D/Be \sim 0.03$  と評価された。微細組織観察 (図 6) からは、Be 堆積層内にキャビティの形成が確認され、D がバブルとして捕獲されていると考えられた。

これらの結果から、Be 混合プラズマ照射においては、堆積、損耗の条件に関わらず、He 混合の影響はほぼ消失しており、重水素保持や微細組織に関し、Be は He より支配的な影響を有する可能性が指摘できる。一方で、実際の核融合炉環境では、高エネルギー中性子の影響や温度の影響を考慮することが不可欠である。今後、水素保持特性への影響も含め、温度や中性子照射の効果についても系統的に評価することが必要である。

### 3.1.3 プラズマによってタングステン材料に注入されたトリチウムの拡散・蓄積挙動

本節では、米国アイダホ国立研究所 (INL) のトリチウムプラズマ実験装置 (TPE) を利用し、第一壁候補材料である W に対してトリチウムプラズマ照射実験を実施し、W にトリチウム (T) を注入した。その後、トリチウムイメージングプレート法 (TIPT) [7] によって W 表面および内部のトリチウム分布を測定し、W 中の T の拡散・蓄積挙動を調べた。

試料には、直径 1 インチ、厚さ 3 mm の円筒形状をした応力除去多結晶 W (アライドマテリアル社製) を用いた。図 7 に示すように、TPE において、D で希釈されたトリチウム (D(T)) のプラズマ照射実験を行った。D ガス中のトリチウム濃度は  $T/D = 0.5\%$  とした。W 製マスクにより D(T) プラズマ照射領域を絞り、試料表面の 4 カ所に同時にプラズマ照射を行い、W に D(T) を注入した。この際、プラズマ照射時のバイアス電圧を  $-100 \text{ V}$ 、イオン入射フラックスを  $10^{22} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$  とし、フルーエンスが  $10^{25} \text{ m}^{-2}$  となるように調整した。詳しい TPE プラズマ条件に関しては

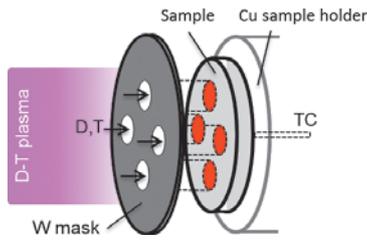


図7 TPEによるトリチウムプラズマ照射実験の概念図。

[8]を参照されたい。試料温度は393 K~773 Kの所定の温度で一定とし、照射時間は2時間とした。

プラズマ照射実験終了後、TIPTによって照射面のトリチウム分布を測定した。つぎに照射面に垂直に試料を切り出し、得られた断面についてトリチウム分布を測定した。

図8 (a)はWに423 Kで2時間D(T)プラズマ照射を行った試料の照射表面のトリチウム分布であり、青、緑から黄、赤色になるほどトリチウム濃度が高いことを示している。図中、4カ所のプラズマ照射領域でのトリチウム濃度が最も高く、その分布がほぼ均一であることがわかる。このプラズマ照射領域を等分するように試料を切断した後、断面について得られたトリチウム分布を図8 (b)に示す。図中の点線の長方形領域に注目すると、深さ方向(z方向)にトリチウム濃度が徐々に減衰しており、トリチウムが内部にまで進入したことがわかる。トリチウム濃度の高低を数値化し、各深さで平均化した値を深さに対してプロットすると、相対トリチウム濃度の深さ分布(トリチウム深さ分布)が得られる。図9に、縦軸として相対トリチウム濃度の(a)線形または(b)対数軸をとったトリチウム深さ分布を示す。図9 (a)では、極めて高濃度のトリチウムが表面近傍の0.5 mm以内に偏在しているようである。しかし、図9 (b)では、3桁程度低い濃度のトリチウムがより深い領域である1.5 mm深さまで進入していたことが示されている。

表面近傍の高濃度の偏在成分と、0.5 mm深さよりも深い領域への進入成分について、以下のように見かけの拡散係数を評価した。まず、プラズマ照射中にはD(T)のプラズマからの入射フラックスと試料表面からの放出フラックスがつり合っていたと考えられるので、D(T)濃度一定の境界条件で表面から深さ方向にD(T)が内部に拡散進入したと仮定した。また、プラズマ照射後には表面でのD(T)濃度が零となったと考えられるので、表面濃度零の境界条件でD(T)が拡散により放出されたとした。ここで仮定した境界条件のもとで、表面のD(T)濃度および見かけの水素拡散係数をパラメータとして拡散方程式の数値計算を行い、得られた理論曲線が実験結果を再現するように、見かけの水素拡散係数を決定した。図10に(a)473 Kおよび(b)773 KでプラズマからWに注入されたトリチウムの深さ分布を示す。図中の実線で描かれた曲線が、深い領域の進入成分について求められた理論曲線を示している。注入温度が上昇すると、より深い領域にまでD(T)が進入しており、その拡散係数が大きくなることが示唆される。図11に、本研究において393K~773Kで求められた進入成分のもつ見かけの拡散係数を灰色丸[7]または黒四角[9]で示し、W

中の水素拡散係数の文献データと比較した。なお、ここでは拡散係数に含まれる同位体効果は実験および解析の誤差範囲内であるとして無視できるものとした。進入成分について求められた見かけの拡散係数はFrauenfelder[10]によって1198 K以上の高温で求められたデータを低温領域に外挿した値によく一致している。このことは進入成分が溶解水素の格子間拡散によって生じたことを示唆している。一方、進入成分についてと同じように仮定した境界条件のもとで、表面近傍の偏在成分について見かけの拡散係数を求めてみる(図10中の破線)。求められた値は図11中の白抜き丸の四角および丸のように表され、進入成分すなわち水素の拡散成分よりも一桁以上小さいことがわかった。これらの結果から、表面近傍の偏在成分が拡散によって生

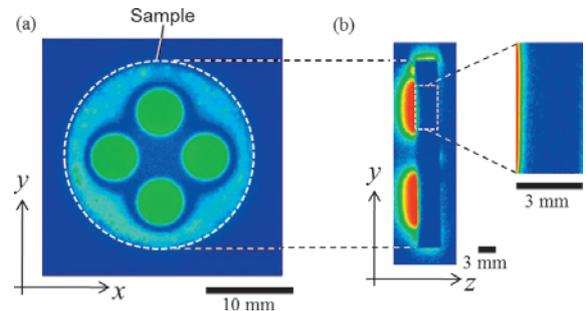


図8 423 Kで2時間D(T)プラズマ照射を行ったW試料の(a)プラズマ照射面および(b)断面のトリチウム分布。

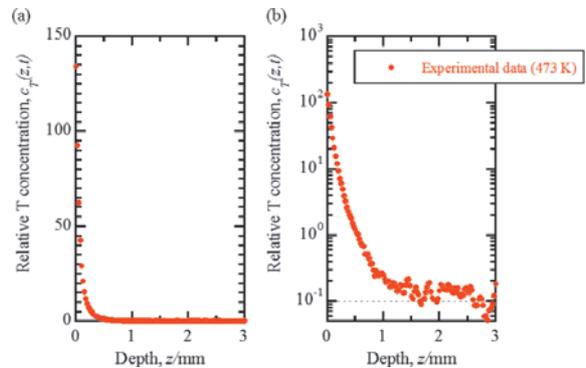


図9 473 KでプラズマからWに注入されたトリチウムの深さ分布(a)および(b)は、縦軸の相対トリチウム濃度を線形および対数軸としたものをそれぞれ示している。

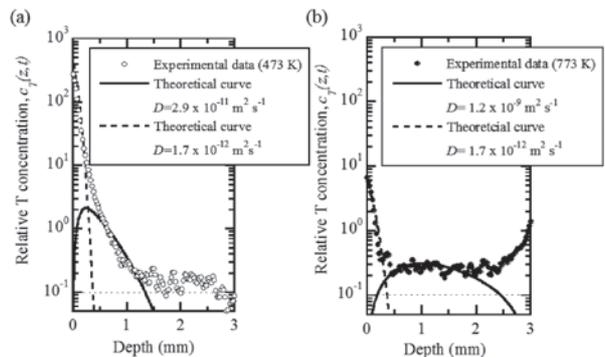


図10 (a)473 Kおよび(b)573 KでプラズマからWに注入されたトリチウムの深さ分布破線および実線は拡散方程式から導かれた理論曲線を示している。

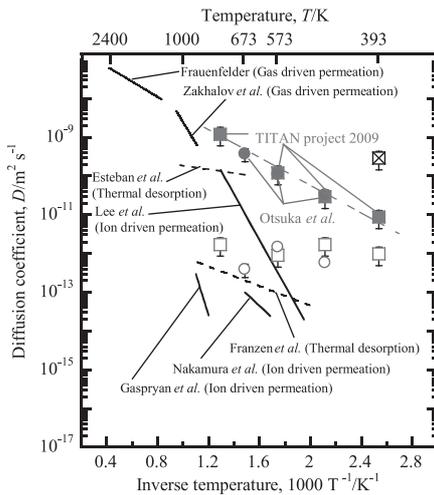


図11 W中の水素拡散係数.

じたものではなく、捕獲によって生じたことが示唆される。また、W中の水素溶解度は極めて低いので、過去の研究においても、そこでの水素挙動が完全には捕獲の影響を免れなかったことが示唆される。水素捕獲サイトとして有力なのは、水素プラズマまたはイオン照射によって表面近傍の数nmから数百 $\mu\text{m}$ の領域で高密度に形成される格子欠陥やプリスタなどと考えられる。実機では、中性子照射によって照射欠陥が、試料厚さ全体にわたってほぼ均一に形成されると考えられるため、内部の深い領域でも水素捕獲が顕在化すると予想される。W中のトリチウム蓄積挙動を評価するうえで、熱放出による総蓄積量だけでなく、表面からnm~mmオーダー深さの捕獲水素(トリチウム)の分布を定量し、これらの温度・時間依存性[11]を調べる必要がある。

### 3.1.4 ベリリウムのパルス熱負荷応答[12]

Beに対する間歇的熱負荷応答を調べるため、PISCES-Bにおいて重水素プラズマ中でBe試料にパルスレーザー(Nd:YAGレーザー(NEC:M801C))を照射し、その後のプラズマ内でのBeとBeDの挙動を高速カメラを用いて観測した。2台の高速カメラを用い、BeI( $2^1\text{P}-3^1\text{D}$ )用光学フィルタ(457.3nm)とBeD( $\text{A}^2\Pi-X^2\Sigma^+$ 帯)用光学フィルタ(498.7nm)を通して発光を観測し、Be中性粒子およびBeDの振る舞いを調べた。

図12に、典型的なBeDとBeIの発光分布を示す。図の左側に試料があり、レーザーは右から左へと入射され、試料前面にアブレーションルームが形成されている。図12(b)はBeIの発光分布であり、BeIは発光が試料前面の小さな領域に集中している。一方で、BeDは発光分布が著しく広がっている。文献[12]においては、熱伝導計算により表面温度の上昇を評価しBeの放出機構、および発光分布の

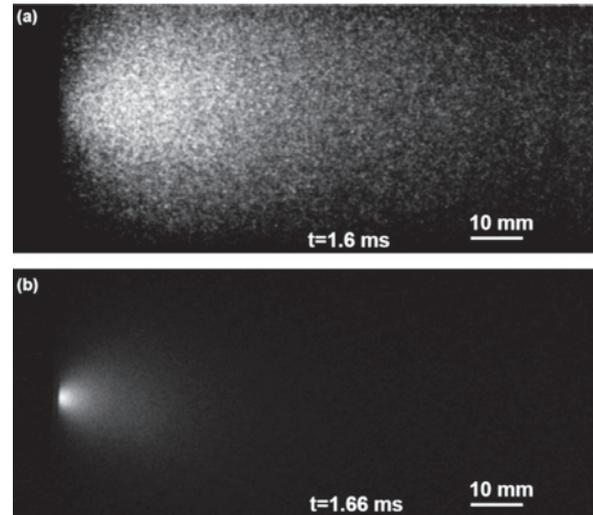
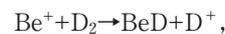


図12 典型的な(a)BeDの発光強度分布と、(b)同時刻におけるBeI(457.3nm)の発光分布。

軸方向分布を詳細に解析しており、発光分布が広がる原因が考察されている。

Beの放出に関しては、レーザー強度が $0.1-4\text{MJm}^{-2}$ でパルス幅が1-10ms程度の領域においては、レーザー照射に伴い材料表面温度が上昇し、evaporationによる放出が支配的だと考えられた。BeとBeDの分布に関しては、まずBeはプラズマ中で電離もしくは $\text{D}^+$ との荷電交換により $\text{Be}^+$ が形成され、Beの中性粒子は消滅するため、BeIの発光強度は試料前面でのみ強かったものと考えられる。さらに、 $\text{Be}^+$ はプラズマ中で広く分布しながら、以下のプロセス



でBeDを形成したと考えられている。

この実験においては、純粋なBe試料のみを用いたが、実機においてはBe-CやBe-Wが表面に形成されると考えられている、今後混合層が形成された試料においてパルス応答性を調査することは重要となる。

### 参考文献

- [1] M.J. Baldwin *et al.*, J. Nucl. Mater. **390**, 886 (2009).
- [2] K. Tokunaga *et al.*, J. Nucl. Mater. **417**, 528 (2011).
- [3] K. Tokunaga *et al.*, J. Nucl. Mater. **442**, S313 (2013).
- [4] G. De Temmerman *et al.*, Nucl. Fusion. **48**, 075008 (2008).
- [5] 宮本光貴: プラズマ・核融合学会誌 **89**, 355 (2013).
- [6] N. Ohno *et al.*, J. Nucl. Mater. **438**, S879 (2013).
- [7] T. Otsuka *et al.*, Phys. Scri. **T136**, 014052 (2009).
- [8] M. Shimada *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **82**, 083503 (2011).
- [9] T. Otsuka *et al.*, J. Nucl. Mater. **417** issue 1-3 1135, (2011).
- [10] R. Fraunfelder, J. Vac. Sci. Technol. **6**, 388 (1968).
- [11] T. Otsuka *et al.*, Fusion Sci. Technol. **60**, 1539 (2011).
- [12] S. Kajita *et al.*, J. Nucl. Mater. Mater. **420**, 252 (2012).



## プロジェクトレビュー 日米科学技術協力事業 TITAN プロジェクト

### 3. 第一壁・ブランケットの物質熱輸送に関する研究

#### 3. Transport of Materials and Heat In First Walls and Blankets

##### 3.2 ブランケットトリチウム移行

##### 3.2 Tritium Transfer in Fusion Reactor Blanket

寺井隆幸, 深田 智<sup>1)</sup>, 小西哲之<sup>2)</sup>, 片山一成<sup>1)</sup>, 山本 靖<sup>3)</sup>,  
登尾一幸<sup>4)</sup>, 枝尾祐希<sup>5)</sup>, 近田拓未

TERAI Takayuki, FUKADA Satoshi<sup>1)</sup>, KONISHI Satoshi<sup>2)</sup>, KATAYAMA Kazunari<sup>1)</sup>,

YAMAMOTO Yasushi<sup>3)</sup>, NOBORIO Kazuki<sup>4)</sup>, EDAO Yuki<sup>5)</sup> and CHIKADA Takumi

東京大学, <sup>1)</sup>九州大学, <sup>2)</sup>京都大学, <sup>3)</sup>関西大学, <sup>4)</sup>富山大学, <sup>5)</sup>原子力研究開発機構

(原稿受付: 2013年10月10日)

核融合炉液体ブランケット材として有望なリチウム鉛 (LiPb) 共晶合金の溶解度に関する過去のデータのばらつきの原因を, 主に LiPb と容器材料との相互作用の有無の観点から調べるため, 定容法による実験装置を組み上げ, 見かけの水素吸収量に及ぼす容器への残留吸着の効果, 接触材料への吸着・吸収の効果をブランケットにより見極めながら水素平衡吸収量を求めるとともに, さらに LiPb 中のトリチウムに関する正確な溶解度と拡散係数データを, 本研究のために特別に設計された透過ポット装置を使って求める共同研究が TITAN 計画の一部として実施された. さらに本日米共同研究において, 金属壁からのトリチウム透過阻止のための酸化エルビウム (Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 膜の透過抑制のデータを求めた. 本章はこれら実験の内容とこれまで得られた結果について報告する.

#### Keywords:

tritium, blanket, LiPb, solubility, erbium, permeation

#### 3.2.1 背景と目的

核融合炉の安全性および燃料サイクル成立性の観点から, ブランケットにおけるトリチウム挙動の把握とその制御は重要な課題である. 優れた安全性を有する燃料自己補給型核融合炉を設計し, 適切に運用するためには, ブランケットシステムでのトリチウム挙動を正しく把握することが必須の課題である. ブランケットシステムは, プラズマ対向領域・トリチウム増殖領域・トリチウム回収系で構成されているが, トリチウム移行は関連しており, 最終的には熱輸送も含めて, システム全体として通常運転時, メンテナンス時, さらに異常事象時のトリチウム挙動を予測し, これを設計に反映させなければならない. トリチウム挙動を定量的に把握する上では, 溶解度と拡散係数が重要な因子となる.

現在, 液体ブランケット候補材の中で, 日米双方の関心が高く, その使用が最も期待されている材料はリチウム鉛共晶合金 (Li<sub>16</sub>Pb<sub>84</sub>, 以下 LiPb と称する) である. しかし, LiPb における水素同位体溶解度の報告値には 4 桁もの大きなばらつきがあり, 信頼性の高いトリチウム挙動予測や精度の高いシステム設計が困難な状況である. そこでタスク 1-2 では, LiPb とその容器材料との相互作用に着目し,

いくつかの容器材料に LiPb を保持し, 水素同位体溶解度や拡散係数への影響の解明を中心に実験的検討を行った.

一方, トリチウムは高温下で容易に金属壁を透過する性質を有するが, その透過挙動の研究は主に軽水素や重水素を用いて比較的高い圧力範囲で行われていたにすぎず, 実環境のような低水素同位体分圧下での測定は皆無に近かった. そこで, 本タスクでは, キャリアフリーのトリチウムを用いて, 低水素同位体分圧下における構造材料壁の透過挙動に関する測定を行った. さらには, 配管等からのトリチウム透過漏洩を抑えるために必要とされているトリチウム透過防止膜の開発を目的として, 酸化エルビウム (Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) コーティングを施した構造材料試料に対するトリチウム透過実験を行った.

本タスクでは, キャリアフリーのトリチウムをある程度の量を使用するため, 米国アイダホ国立研究所 (INL) 内にあり, 専用のトリチウム取扱施設である STAR (Safety and Tritium Applied Research) 実験室を使用した. 6 年間のプロジェクトの初めは京都大学で製作したポット実験装置を INL に持ち込み, その後米国側研究者との検討の結果, LiPb への接触容器材料をアルミナ, 石英, タングステンと変えながら, 静的な条件での水素同位体の溶解量を測定し

Corresponding author's address: Kyushu University, Kasuga, FUKUOKA 816-8580, Japan

Corresponding author's e-mail: sfukada@nucl.kyushu-u.ac.jp

た。後半には動的な拡散測定を九州大学の開発した装置によって行うとともに、これまで東京大学で検討されてきた酸化エルビウムの透過阻止能についてトリチウムを用いて測定した。主な成果について内容とその意義を簡単に説明する。

### 3.2.2 LiPb 水素同位体溶解度測定実験

#### (1) 定容法実験装置

京都大学で制作した LiPb-H 系等温溶解度測定装置の基本構成を図 1 に示す。試料充填部①、圧力測定部⑤、真空排気系⑦、ガス容器部⑧ - ⑩等から構成されており、材料中への水素溶解の圧力一組成一温度平衡線を定容法で測定した。まず原子比 Li:Pb=15.7:84.3 に調整した LiPb 合金を Ar 雰囲気内に設置した加熱ポットで溶融し、直接容器内に注ぎ込む直接注入法、もしくは液滴から小塊を作製しこれを充填する粒子充填法により、容器①内に LiPb 試料を充填した。実験は溶融 LiPb に密閉空間で水素ガスを一定時間接触させ、その際の隔膜式圧力計の圧力減少の読みから水素溶解量を求める吸収法と、LiPb と水素ガスを一定時間接触させたのち、LiPb からの放出水素による圧力上昇から水素溶解量を求める脱離法とを実施した。レンジの異なる圧力計を 3 つ備えており、広範囲な圧力条件での実験が可能である。脱離法では LiPb から放出されるガス成分が水素であることをガスクロマトグラフや四重極質量分析計により確認した。LiPb 試料は実験年度ごとにモリブデン、アルミナ、石英、タングステン製のつぼあるいは反応管内に封入し、温度を一定かつ一様に加熱溶解した。アルミナと石英容器については抵抗加熱器を用い、タングステン製のつぼは、誘導加熱により LiPb を昇温した。みかけの水素溶解量は、装置の構成材料への溶解や反応前後の容積変化の効果を含んでいる。さらに反応器と圧力測定部との温度が異なるので、この影響も正確に定量する必要がある。例えば、アルミナ容器上部には、金属配管と接続するためのコバルト部があり、この部分への捕捉水素や、またアルミナ自体に吸着された水素もわずかながら影響する。したがって、

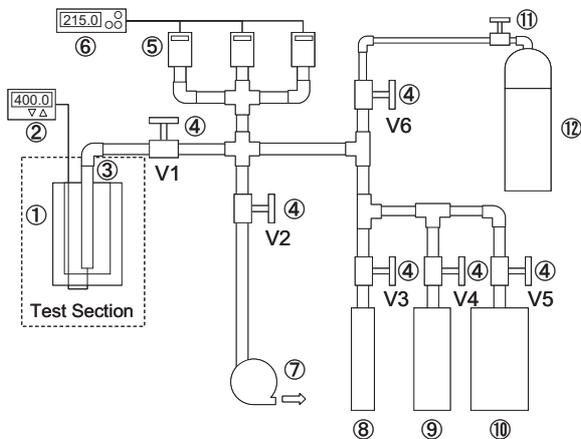


図 1 京都大学グループ製作の LiPb-H 系等温溶解度測定装置 (①試料充填部, ②温度制御器, ③加熱器, ④バルブ, ⑤圧力測定部, ⑥計測部, ⑦真空排気系, ⑧⑨⑩ガス容器, ⑪圧力調整器, ⑫ H<sub>2</sub> ガスボンベ)。

ブランク試験が実験精度を決める重要な因子になるので、各反応容器を使ってブランクテストを繰り返し、この効果を LiPb 試料がある場合の結果から差し引いて求めることになる。測定温度は 300℃ から 650℃ までの範囲、また圧力は 1 Pa から 100kPa の範囲である。

#### (2) アルミナ容器の場合

アルミナ容器を用いた場合の LiPb 水素溶解量の圧力依存性を図 2 に示す。溶解度  $C$  が水素圧力  $P_{H_2}$  の 1/2 乗に比例する関係  $C = KP_{H_2}$  よりわずかに異なっている。これは、低圧側でガス放出の影響と考えられるが概ね Sieverts 則に従っている。

このようにして求めた溶解度測定結果を他の研究者らの報告値と比較して図 3 に示す。2009 年と 2011 年では加熱体系がやや異なるものの同様な手法での実験であるが、試料の充填には 2009 年は直接注入法、2011 年度は粒子充填法を用いた。いずれの場合も十分真空排気を行った後、試料の溶融を始めたものの、空気との接触面積が大きな粒子充填法の方が相対的に多くの不純物を取り込んだ可能性がある。結果を見ると、2009 年に得た値は 300℃ ~ 500℃ において Reiter の値 [1] とほぼ等しいが、600℃ では Wu, Aiello らの値に近い。2011 年に得た値は 2009 年に比べて一桁高く、Katsuta, Aiello らの値 [2] に近い。2009 年の 600℃ の値

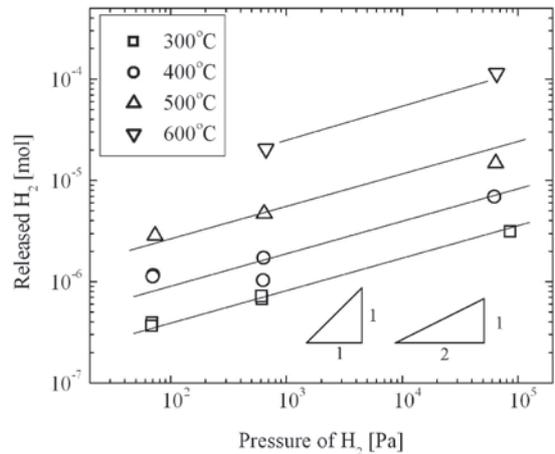


図 2 LiPb 水素溶解量の圧力依存性 (図中の三角形は、圧力依存性の傾きが 1 あるいは 0.5 を示す)。

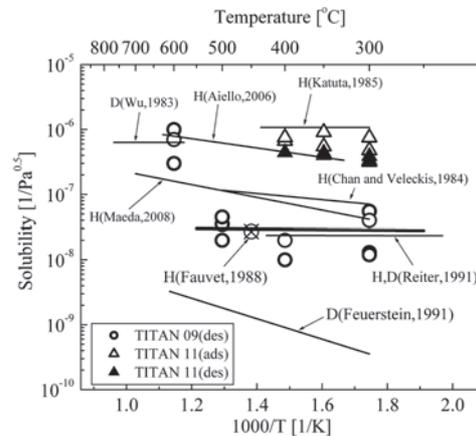


図 3 LiPb 水素溶解度測定結果のまとめ。

はアルミナ ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) 容器と LiPb とが化学反応を起こした結果、LiPb 中の不純物が増加し、溶解度が大きくなったと考えられる。

### (3) 石英反応容器の場合

600°C の高温で、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  につぼと LiPb の間に反応が考えられることから、石英反応容器を用いた実験を実施した。まずバックグラウンド試験を同様に実施した後、石英管内に LiPb を注ぎ込み、所定の温度で水素溶解度を測定した。

その結果、石英容器を用いた場合 300°C 加熱保持の 16 時間後にクラックが生じた。LiPb と  $\text{SiO}_2$  との化学反応によるものと考えられる。LiPb の場合、石英管は使用できないことが確認された。図 4 はその際の反応管の状態を示した写真であり 300°C でもクラックが発生した。

### (4) タングステンるつぼの場合

タングステンるつぼを使ったトリチウム溶解度実験装置を INL の STAR 実験室内に組み上げ、誘導過熱法、LiPb 容器健全性、測定分析手法を検討し、引き続き、真空度試験、誘導加熱法昇温試験によりトリチウム実験装置の最適化を進めた。トリチウム溶解度実験装置は、アルゴン (Ar) 置換型グローブボックス内に設置されており、LiPb は石英容器内のタングステン製るつぼに充填され、誘導加熱コイルを用いて加熱される。600°C 以上の高温まで加熱される石英容器はトリチウムを透過させずタングステンはトリチウム溶解度が非常に小さく LiPb との共存性もよい。誘導加熱を行うことにより断熱材を用いる必要はなくトリチウム捕捉量を低減できる点、石英容器のシール部分が室温に保たれており、加熱中も気密が保たれる点、るつぼ温度が一定値で安定する点を確認した。バルブ操作や昇温制御をグローブボックス外から行うための PC コントロールプログラムの更新作業を進めた。実験システムが完成し、軽水素を用いた試験を行った後、効率的にトリチウム実験を行うための、操作条件を検討し、効果的なブランケット LiPb からのトリチウム回収について考察した。

タングステンるつぼを用いた場合 500°C での昇温試験時に試料の一部が蒸発し、黒色の付着物によって石英内壁が覆われ温度制御が困難となった。タングステンるつぼと石英容器との大きな温度勾配、比較的大きな LiPb 自由表面が

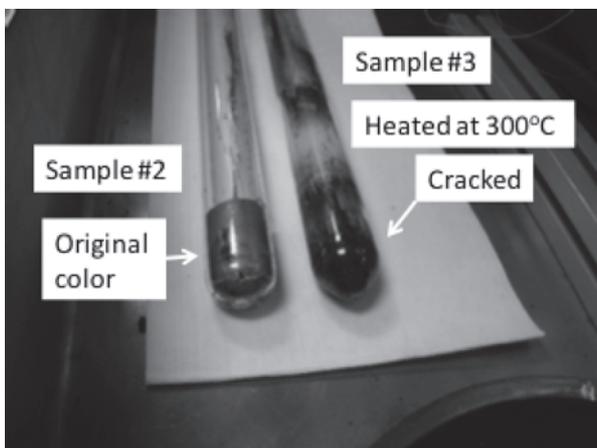


図 4 実験前後の石英反応管。

Li の蒸発を促進したものと考えられる。実用上微量の不純物制御は難しいため、溶解度は  $10^{-8} \sim 10^{-6}$  [atomic fr/Pa<sup>0.5</sup>] の範囲と考えると安全側に立って、核融合炉内の LiPb とタングステンが接する場所ではトリチウム挙動把握に注意することが必要であると考えている。

### 3.2.3 LiPb トリチウム透過実験

LiPb 中のトリチウム透過試験を最終年度に実施した。透過部分については九州大学透過ポット構造[3]を応用し、 $\text{T}_2$  ガスおよびパージガスのフローシステムについては、INL の Tritium Heat Exchange (THX) 装置の仕組みを応用した。透過ポットの概要を図 5 に示す。ポット内部は厚さ 1 mm のフェライトの  $\alpha$ -鉄板で 2 つに仕切られており、鉄板の上部に溶融 LiPb を設置させる。板の下部空間 (透過一次側) に  $\text{T}_2/\text{He}$  ガスを供給し、鉄板および LiPb を透過した  $\text{T}_2$  が上部空間 (透過二次側) に達する。He 中の  $\text{T}_2$  分圧は  $10^{-3}$ , 0.15, 2.4 Pa である。透過二次側を別の He によって連続パージすることで、透過  $\text{T}_2$  を測定系に輸送する。装置の大部分はグローブボックス内に設置されるものの、高濃度  $\text{T}_2$  が定常的に供給される透過一次側ステンレス鋼からのトリチウム透過によりグローブボックス内部が強く汚染されるのを避けるため、透過ポット全体を石英管内に収めた。供給ガス中に水蒸気が存在するとトリチウム挙動へのシステム効果が大きいため、透過一次側経路および二次側経路には吸着塔 (MS: モレキュラーシーブ) を設け、 $\text{T}_2$  ガスおよび He 中の不純物水蒸気を除去する。一次側、二次側共に透過ポットを通過したガスは電離箱を通過してトリチウム回収系へ輸送される。軽・重水素での予備実験の際には、電離箱通過後のガスの一部がリークバルブを通じて質量分析計に導入される。バルブは遠隔操作可能な空気圧式バルブとした。トリチウムリークを極力低減するため、接続コネクタにはほぼすべてスウェーデン製 VCR コネクタを用い、配管と接続コネクタとは溶接接合した。

$\text{T}_2/\text{He}$  混合ガスを使った 600°C での透過実験の結果の一例を図 6 に示す。 $\alpha$ -Fe のみに比べて、LiPb 存在下 (図では

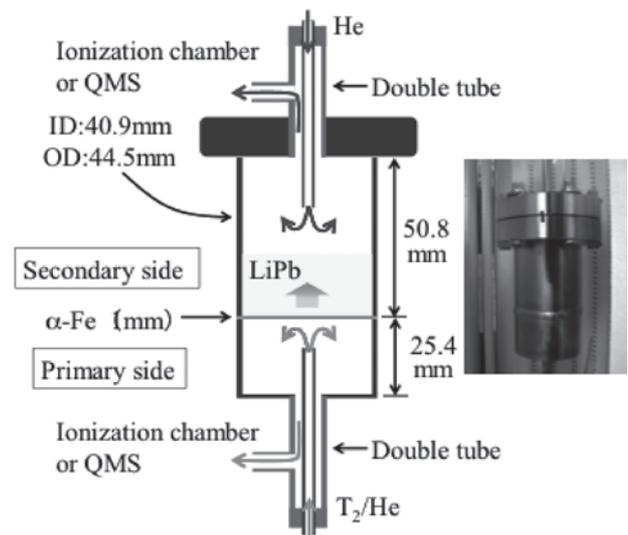


図 5 LiPb のトリチウム透過試験装置。

LLE で示す) で定常および非定常透過率に違いがあり, この非定常透過時の濃度変化より, LiPb の溶解度と拡散係数が求められる. 濃度変化計算は, TMAP コードで解析している. 本試験より先に行った  $\alpha$ -Fe のみにおける比較的高い水素圧力での透過予備試験では, 図 6 の結果に比べて高い水素透過率が得られており,  $\alpha$ -Fe のみの試験ではトリチウム分圧が小さく鉄の表面でのトリチウム解離反応が透過に影響を及ぼしている可能性が高い. 本報告を執筆の段階で最終結果をとりまとめ中であり [4], 近く成果が公表される.

### 3.2.4 $\text{Er}_2\text{O}_3$ 透過阻止膜

本課題では, 実環境に近いブランケット条件下におけるトリチウム移行挙動を解明するために, 管材を用いた試験体系, また 100 ppm 未満の低トリチウム濃度下における核融合材料中のトリチウム透過速度を測定した. さらに, 近年優れたトリチウム透過防止性能が示されている酸化エルビウム ( $\text{Er}_2\text{O}_3$ ) 薄膜によるトリチウム透過抑制を検証した. 以上を通して, 核融合炉環境における構造材料からのトリチウム透過予測に貢献するのみならず, これまで平板における作製が主であった  $\text{Er}_2\text{O}_3$  薄膜が管材においてもトリチウム透過防止性能を付与できることを実証し, ブランケットにおけるトリチウム制御技術の確立に資することとした.

核融合炉材料として低放射化フェライト鋼 F82H 管材を用い, 管型トリチウム透過装置で試験を実施した. 試料は両端を溶接することで試験体に加工し, 石英管の内部に設置し試料の内側と外側で一次系と二次系の循環路を隔てている.  $\text{T}_2$  含有 He 混合ガスを一次系に循環させ, 誘導加熱によって加熱された試料部分から透過したトリチウムを, 二次系に導入された純 He で回収し, 電離箱で透過量を測定した. 試料温度は, 650°C 以上においては赤外線カメラで二次元分布として測定し, 赤外線カメラの測定下限である 650°C 以下においてはパイロメーターを用いて位置と温度を観測し, 温度分布を求めた.  $\text{Er}_2\text{O}_3$  薄膜は平板試料での実績がある有機金属分解法を用い [5], ディップコーティングによって F82H 管材に塗布, 乾燥, 熱処理を経て成膜した.

図 7 に未被覆 F82H 管材のトリチウム透過係数の温度依存性を示す. 平均温度 400°C 以下での試験では, 二次系の透過した  $\text{T}_2$  濃度は試験時間中に定常に達していなかったため, 指数関数でフィッティングして定常値を求めた. 定常値に達するまで長い時間を要する原因として, 管材の厚さが 1.5 mm と過去の研究より大きいこと, また  $\text{T}_2$  分圧が低いため, 試料表面および金属中のトリチウム固溶量が飽和せず, 拡散時間が長くなるためと考えられる. 透過係数は過去の研究結果 (純重水素使用, 分圧  $10^4 - 10^5$  Pa [6]) と比べて 1 桁弱小さい値を示した.

ここで特筆すべきことは, トリチウム濃度が 1.2 ppm から 40 ppm に増加したとき, 同じ試験温度にかかわらず透過係数が上昇していることである. これは,  $\text{T}_2$  分圧が低いほど吸着等の表面反応の寄与が大きくなるためと考えられ

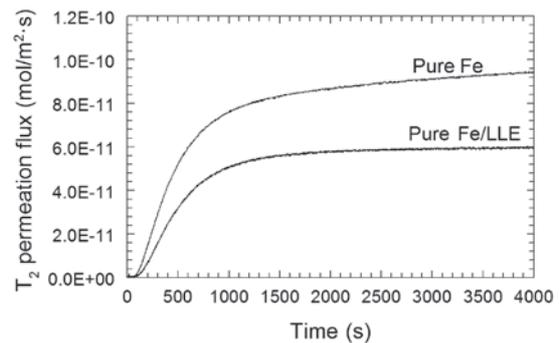


図 6  $\alpha$ -Fe と LiPb 層の  $\text{T}_2$  透過曲線の比較.

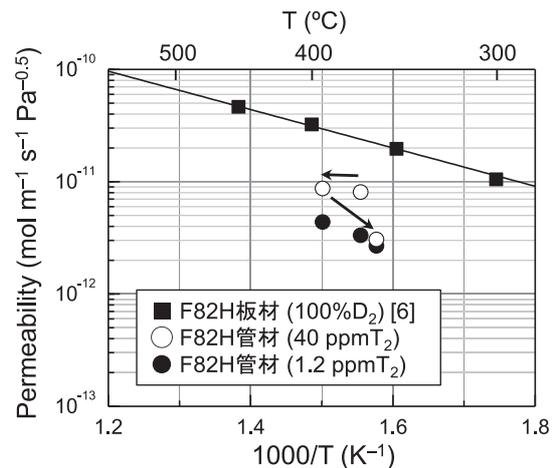


図 7 F82H 板材および管材のトリチウム透過係数温度変化.

る. また, 透過速度の  $\text{T}_2$  分圧依存性を調べたところ, 分圧の指数が拡散律速である 0.5 より高かったことから (0.77), 表面反応の寄与が存在していると考えられる. したがって, トリチウム濃度をさらに増加させていけば, 表面反応の寄与は小さくなり, より文献値に近い透過係数となることが想定され, この結果は透過試験中に試料の酸化が起こっていないことを示唆している. しかしながら, 40 ppm のトリチウムを使用した場合, 350, 390°C において透過係数が減少しており, 透過係数の温度依存性が乱れている様子が見られる. 試験は 370, 390, 350°C の順に実施したことから, 390°C の試験において酸化が起こった可能性がある.

次に,  $\text{Er}_2\text{O}_3$  薄膜を施した試料の透過試験を実施した. 試験は 500~750°C で実施したが, 600°C 以下では実験時間内に明確な透過は確認できなかった. これは未被覆試料の場合と同様に, 表面効果の寄与が大きく, 透過が定常に達するまで数日以上を要する時間が必要であると考えられる. 650°C および 700°C においては透過が確認されたが, 通常トリチウム透過測定に用いる試料近傍に設置された電離箱では, 一度定常に達しかけた後に, トリチウム濃度が上昇し続けるメモリー効果と見られる挙動があらわれた. この挙動は再現性が高く, また未被覆の試料ではみられないものであったことから,  $\text{Er}_2\text{O}_3$  薄膜表面に由来するものと考えられる. メモリー効果は HTO が電離箱内に吸着されることによって顕著に発現するため, 試料表面で  $\text{T}_2$  が HTO に変化し, 一次, 二次側両方においてメモ

リー効果を生じた可能性がある。一方で、ヒュームフードに設置した電離箱では定常値に達している様子が見られた。高温、長時間保持後の定常状態において、トリチウム濃度はグローブボックスおよびヒュームフード内では一定になるため、薄膜試料にかぎり、ヒュームフード内の電離箱出力を用いて透過量の解析を行った。図8にF82H基板およびEr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>薄膜試料について、過去に調べられた板材と今回得られた管材の結果を比較したものを示す。Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>薄膜試料は過去に平板に成膜した試料と同等の性能を示した。一方で同じトリチウム濃度で比較すると、未被覆の基板に対して1/100程度となった。これは、未被覆試料では低トリチウム濃度における表面効果の寄与が大きく透過係数が比較的小さかったため、トリチウム透過防止膜による低減の割合が小さくなったためと判断できる。

### 3.2.5 まとめ

本研究では、ブランケット中のトリチウム移行に関して、以下の研究を行った。

- (1) LiPb 共晶合金に対して、水素溶解度測定を行ったところ、容器材料やつば材料との反応により、測定値は大きな影響を受けた。得られた結果を総合すると、現時点では、LiPb への水素同位体の溶解度は $10^{-8} \sim 10^{-6}$  [atomic fr/Pa<sup>0.5</sup>]の範囲と考えると、安全側に立って設計に用いることが妥当であると考えられる。
- (2) LiPb 中のトリチウム溶解度と拡散係数を同時に測定するために、装置を作製し、トリチウム拡散透過実験を実施し、LiPb 中のトリチウム透過率を求めることができた。
- (3) 核融合炉材料および透過防止膜中のトリチウム透過挙動を調べた結果、未被覆試料では、低濃度トリチウムに

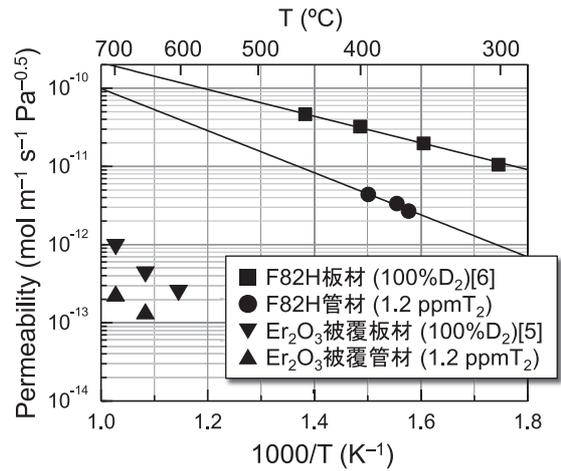


図8 F82H基板およびEr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>薄膜試料の透過試験結果と過去の報告との比較。

よる表面反応の寄与が確認された。ディップコーティングで作製したEr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>薄膜を施した管材試料では、過去の研究と同等の透過防止性能を示すことが明らかになった。また、未被覆試料ではみられなかったメモリー効果から、薄膜表面においてトリチウムがHTOへ変化した可能性が示された。

### 参考文献

- [1] F. Reiter, Fusion Eng. Des. 14, 207 (1991).
- [2] A. Aiello *et al.*, Fusion Eng. Des., 81, 639 (2006).
- [3] Y. Edao *et al.*, Fusion Sci. Technol. 60, 994 (2011).
- [4] R. Pawelko *et al.*, Fusion Sci. Technol. in contribution.
- [5] T. Chikada *et al.*, J. Nucl. Mater. 442, 533 (2013).
- [6] T. Chikada *et al.*, Nucl. Fusion, 51, 063023 (2011).



プロジェクトレビュー 日米科学技術協力事業 TITAN プロジェクト

3. 第一壁・ブランケットの物質熱輸送に関する研究

3. Transport of Materials and Heat In First Walls and Blankets

3.3 熱流動制御とモデリング

3.3 Flow Control and Thermofluid Modeling

功刀資彰, 横峯健彦, 植木祥高, 結城和久<sup>1)</sup>, 佐竹信一<sup>2)</sup>, 江原真司<sup>3)</sup>, 橋爪秀利<sup>3)</sup>

KUNUGI Tomoaki, YOKOMINE Takehiko, UEKI Yoshitaka, YUKI Kazuhisa<sup>1)</sup>,

SATAKE Shin-ichi<sup>2)</sup>, EBARA Shinji<sup>3)</sup> and HASHIZUME Hidetoshi<sup>3)</sup>

京都大学, <sup>1)</sup>山口東京理科大学, <sup>2)</sup>東京理科大学, <sup>3)</sup>東北大学

(原稿受付: 2013年7月30日)

日米科学技術協力 TITAN プロジェクトのタスク1-3では強磁場環境での熱流動特性の把握とモデリング構築を行った。本稿ではプロジェクト全期間を通してのタスクの全体成果の概要を報告する。

Keywords:

magnetohydrodynamics, fusion blanket, thermofluid modeling, lead-lithium, liquid metal loop, MHD experiment, flow instrumentation, MHD pressure drop mitigation, mixed convection, flow stability and transition

3.3.1 研究の背景と目的

液体金属ブランケットにおける強磁場下の熱流動は、プラズマ閉じ込め磁場と相互作用し、MHD (magnetohydrodynamics) の影響を大きく受ける点に特徴がある。強磁場下の液体金属流の流速分布、流動不安定性および冷却管内流量配分は、除熱と熱溜まりの形成、腐食、トリチウム輸送および漏洩に大きな影響を与えるため、MHD 熱流動メカニズムの解明と流動制御が課題となっている。このため、タスク1-3では強磁場環境での液体金属熱流動特性の把握とモデリング構築を行った。それに加え、プラズマ閉じ込め磁場中を液体金属が流動する際に液体金属流ならびに導電壁に誘起電流が発生し、流れ方向とは反対方向にローレンツ力が加わり、電磁力による多大な圧力損失 (MHD 圧損) を受けることが知られているが、これを低減する手法の開発・実証実験と数値モデリングを行った。図1にプロジェクトにおける本タスクの研究対象の概要図を示す。本タスクの成果はこれまでに幾度か報告してきたが[1, 2], 本節ではプロジェクト全期間を通しての本タスクの全成果の概要を報告する。

3.3.2 使用施設

強磁場下での熱流動特性を把握するため、カリフォルニア大学ロサンゼルス校 (UCLA) に設置されている幅約 15 cm, 長さ約 1 m の長尺空間に最大 2 T の均一磁場を発生させる強磁場熱流動試験装置 MTOR (Magneto-Thermofluid Omnibus Research) 施設を用いて実験を実施

した。図2に MTOR 施設の全体写真を示す。

3.3.3 成果概要

(1) 強磁場下の液体金属流量配分試験

常温で液体である水銀を作動流体として用いた MHD 流動試験ループを建設した後に、ブランケット内流路に必ず存在するマニホールド (単流路から平行三流路に分岐) を模擬した電気絶縁壁流路を用い、三流路への流量配分に対する磁場効果、絶縁壁の効果について検討を行った。各分岐流路の流量は電気ポテンシャル・プローブを用いて計測した。その結果、電磁力 (ハルトマン数: Ha) と慣性力 (レ

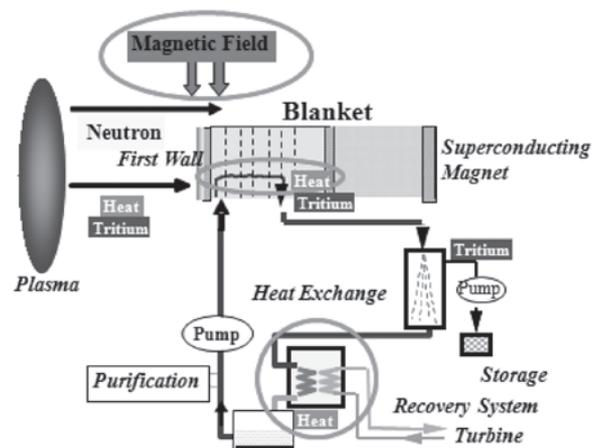


図1 TITAN 計画における Task1-3 の研究領域。

Corresponding author's affiliation: Kyoto University

Corresponding author's e-mail: kunugi@nucleng.kyoto-u.jp

イノルズ数:Re) の比 $N=Ha^2/Re$ が90を超えた領域では均一に流量分配されることを明らかにした[3]。この他に、強磁場による乱流非等方化現象を詳細に把握すること目的に、多点型電気ポテンシャル・プローブ測定系を開発して、等方乱流から擬似二次元乱流への遷移について研究を行った[1]。

(2) リチウム鉛の流体計測手法の開発

本タスクでは液体金属冷却材の候補であるリチウム鉛(PbLi)を作用流体に用いたMHD流動実験を計画・実施した。これに並行して、融点が235℃と比較的高い上に、酸素との反応性も高い液体金属であるリチウム鉛に適した流速計測法ならびに差圧計測法を新たに開発した。はじめに、リチウム鉛の流速分布を把握するため、高温超音波ドップラー流速計測法(HT-UDV)の構築を行った。計測に不可欠なりチウム鉛の音響物性値を取得した後に[4]、不活性カバー・ガス中の酸素濃度を1ppm以下に制御した条件でHT-UDVをリチウム鉛回転流に適用し、流速分布が計測可能であることを実証した[5]。図3に低酸素条件下でのHT-UDV音響試験部の写真を示す。

溶融りチウム鉛は不活性雰囲気下においても徐々に酸化が進行するため、直接液圧を測定する形式の差圧計を用いるとセンサー面に酸化物が形成されて測定不能に陥るため、不活性カバー・ガスを介して間接的にリチウム鉛流れの差圧を測定する手法を構築した(図4)。そして構築した差圧計が強磁場環境下でも機能しMHD圧損を十分な精度をもって測定できることを示した。次に、一様磁場領域とは異なり3次元MHD効果が顕在化する、フリッジ磁場下(磁場空間分布が0から一定値まで連続的に立ち上がる

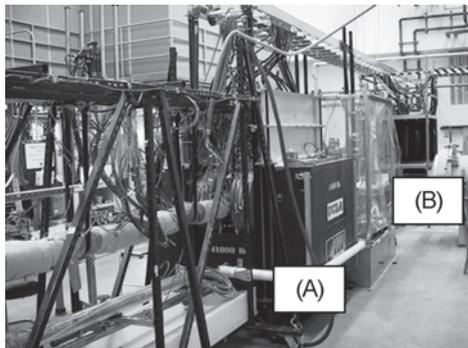


図2 MTOR施設:(A)Big Ol' B-field (BOB)強磁場発生装置; (B)Quarter Torus (QTOR)装置。

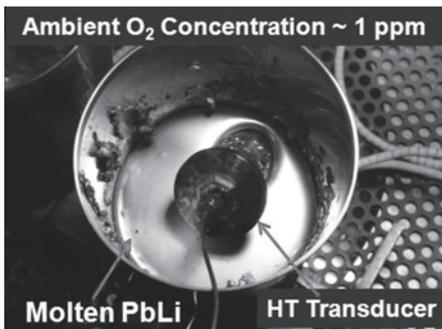


図3 リチウム鉛の低酸素条件下でのHT-UDV音響試験部。

領域)においてもMHD圧損を計測し、3次元MHD熱流体解析コードHIMAG(米国HyPerComp社)を用いた数値解析結果と比較して良好な一致を得た(図5[6])。

(3) リチウム鉛MHD実験ループの建設

本タスクでは、MTOR施設に付属してリチウム鉛MHD実験ループ(Magnetohydrodynamic PbLi Experiment: MaPLE)を建設した(図6)。建設したMaPLEループはリチウム鉛を作用流体としたMHD流動実験の実施を可能にした現時点において米国で唯一であり、世界でも数少ない研究施設となっている。試験部の容量に応じて最大総量約200kgのリチウム鉛共晶合金(米国Atlantic Metals & Alloy社製)を運転に使用している。最高運転温度は350℃であり、ループ配管にはSUS304を使用した。

図6に示すとおり、MaPLEループはグローブボックスが付属したリチウム鉛タンク、電磁ポンプ、電磁流量計、流動試験部、リチウム鉛の液温と流量を制御するループ制御系と各所温度や流動パラメータ等を記録するデータ収録系から構成されている。MaPLEループは、多大なMHD圧損が負荷された場合でも十分な流量を確保できる揚程を有した電磁ポンプ(米国Creative Engineers社製Style V型)を備えており、予め性能確認試験を行った後にMaPLE

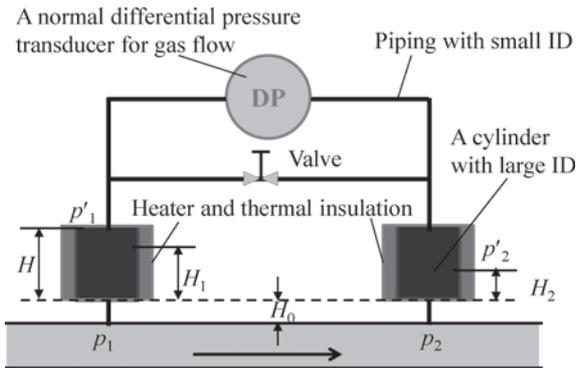


図4 リチウム鉛差圧計の概念図(p1:流体上流部圧力;p2:流体下流部圧力;p'1:上流部緩衝容器内圧力;p'2:下流部緩衝容器内圧力;H:緩衝容器高さ;H1:上流部緩衝容器内液位;H2:下流部緩衝容器内液位;H0:緩衝容器-測定配管間距離)。

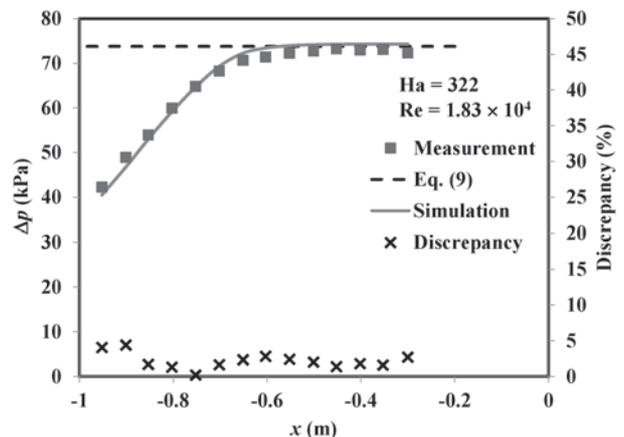


図5 リチウム鉛差圧計の測定結果の比較[6](横軸:磁場分布の中心位置からの距離;縦軸:圧損値;Measurement:本測定結果;Eq.(9):発達したMHD流動の圧損の理論値;Simulation:MHD数値解析結果)。

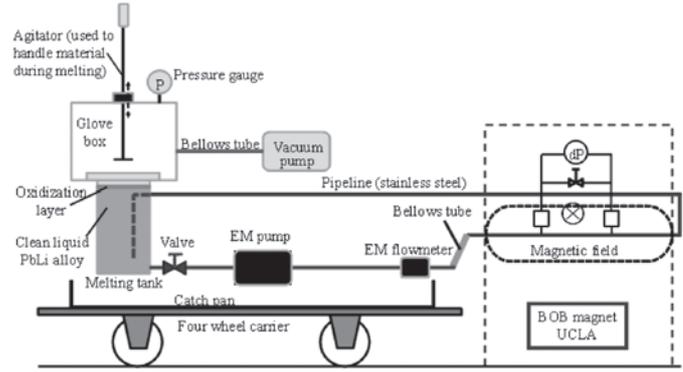
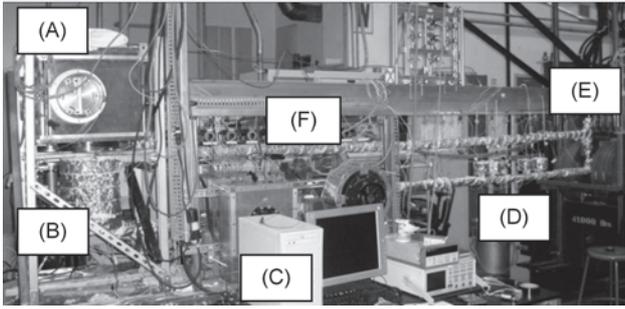


図6 MaPLEループの全体写真と概念図；(A)グローブボックス；(B)PbLiタンク；(C)データ収録系；(D)試験部；(E)BOB強磁場発生装置；(F)ループ制御系。

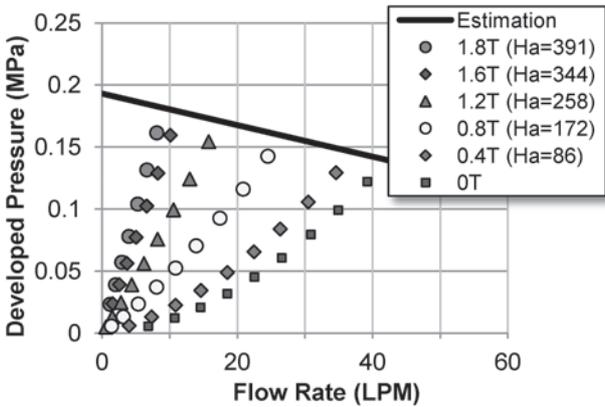


図7 電磁ポンプ性能試験結果 (Estimation: リチウム鉛使用時のポンプ性能の予測値)。

ループに適用した。図7はMHD圧損負荷を変えて電磁ポンプの流量-吐出圧を性能評価した結果を示したものである。この結果から、強磁場を流路に印加した際にもMaPLEループがMHD実験を実施できる能力を有していることがわかる。リチウム鉛の取り扱い技術、MaPLEの建設と運転方法ならびに性能評価試験に関する詳細は参考文献[2, 7]に記載している。

(4) MHD圧損低減技術開発・実証試験

MHD圧損低減技術は電気絶縁被膜やFlow Channel Insert (FCI) など様々提案されているが、それらに共通する要点はいかに液体金属と流路の導電壁を電的に絶縁できるかに集約される。電気絶縁被膜は壁材の金属と熱膨張率が異なるため亀裂が発生し、それを通して通電を許す可能性が高い[8]。また、高熱負荷や放射線照射に曝されるプラズマ対向面に絶縁を施すのは不都合である。このような技術的困難を避けるため、プラズマ対向面を除いた三面に絶縁を施し、液体金属が直に絶縁被膜層に接触しないよう流路内壁に薄い金属層を加え積層加工した流路(三面複層コーティング流路)を開発した(図8)。絶縁層に亀裂が生じて、金属表層の存在により液体金属の侵入を防ぎ流路の絶縁性が保たれる構造になっている。

母材をSUS316をとした流路内幅20mm、高さ8mm、長さ800mmの三面複層コーティング流路を日本国内で製作し、MaPLEループの試験部として据え付けて、MHD圧損低減性能の定量的評価を行った。この試験には3.2節にて

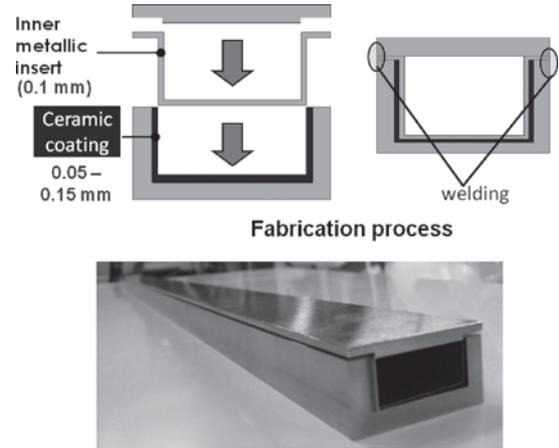


図8 三面複層コーティング流路：(上)製作法概念図(下)製作時。

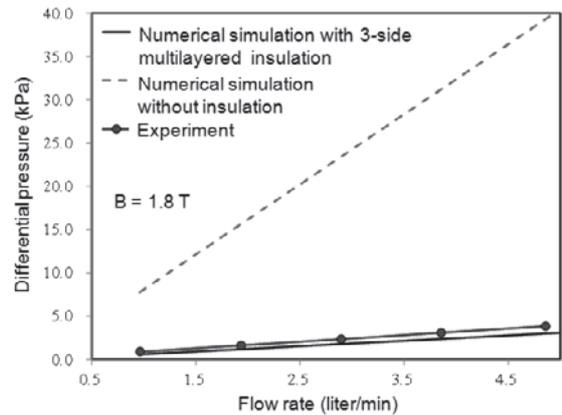


図9 圧力損失の実験値と数値解析値の比較[7]。

示した差圧測定系を用いた。図9に印加磁場が1.8Tの場合の圧力損失の実験値と数値解析値の比較を示す。製作した三面複層コーティング流路は絶縁層をもたない導電流路に比べてMHD圧損を約10分に1に大幅低減することを実証し、同時に本タスクの数値モデリングの数値解析結果とも良好な一致を得た[7, 9]。

この他に、FCIを用いたMHD圧損低減技術の開発と実証試験にも取り組んでいる[7]。試験には米国Ultramet社製の発泡体を主体とした炭化ケイ素(SiC)を使用した(図10)。発泡体炭化ケイ素をリチウム鉛に浸漬する静的試

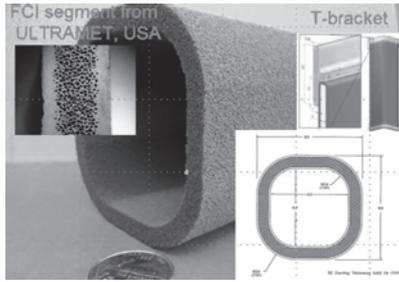


図10 発泡体炭化ケイ素 FCI[7].

験を終え、リチウム鉛の炭化ケイ素気孔内への侵入がないことを確認した(図11). 80 mm 角, 厚み 10 mm, 長さ 300 mm 管状の発泡体炭化ケイ素をステンレス製の矩形管内に固定して FCI とし, 流路長 1800 mm の矩形試験部を MAPLE ループに取り付け MHD 圧損低減性能の評価を行う動的試験を進めており, 現在は試験部の製作が終了し試験実施を行っている. この試験にも 3.2 節にて示した差圧測定系を用いている.

今後は 2 本の管状の発泡体炭化ケイ素を流れ方向に直列に矩形管内に配置して, FCI 接続部の影響を定量的に評価する計画である. この実験的研究に並行して実験装置試験部体系を模擬した三次元 MHD 数値シミュレーションも行っている. 実験的研究と数値的研究を相補的に進め, このような複雑形状をもつ場合においても包括的な理解を得るための一連の研究を継続して実施している.

(5) MHD 数値解析コードの開発と数値モデリング

本タスクでは MHD 擬似二次元流れの乱流モデル開発ならびに数値解析コード開発を行った[10]. これに加え, 低プラントル数流体(図12)と高プラントル数流体の MHD 乱流熱伝達について, 浮力の影響を含めて直接数値シミュレーション(DNS)を用いた検討を行った[11, 12].

開発した数値解析コードを用いて実験に先駆けて予備検討を行い, その解析結果を実験設計に反映してきた. その一例を図13に示す. これは 3.2 節で示した HT-UDV 計測の超音波プローブを印加磁場方向に対して平行な面, 垂直な面のどちらに設置するかにより, 測定対象である MHD 流動に及ぼすプローブ擾乱効果について定量的に評価した数値解析結果である. 超音波を利用する HT-UDV 計測では,

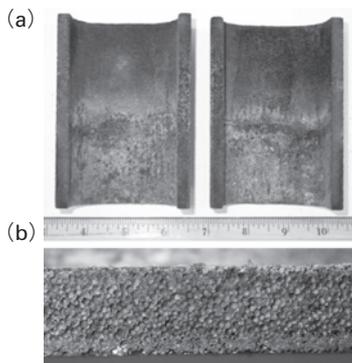


図11 静的試験後の炭素エアロゲル浸潤処理した発泡体炭化珪素断面(カバー・ガス 0.1 MPa 環境下でリチウム鉛700℃に約100時間浸漬後): (a)二分割後(b)断面拡大写真.

測速部を対象流動の主流部に侵入させる必要性は必ずしもないが, 測定対象が MHD 流動の場合は超音波プローブが導電性であるため, 電気的境界条件に影響される MHD 流動に擾乱を及ぼす可能性がある. 印加磁場に平行な面に設置する場合は全く影響を及ぼさないが, 垂直な面に設置する場合は超音波プローブの存在が電流分布を変え, 結果として流速分布に大きな影響を与えることがわかった[1].

これらの数値モデリングとともに, 液体金属に特有の界面現象が MHD 流動に与える影響を含めた数値モデリングを行った. 一般に濡れ性が悪い壁面上に非常に薄い速度境界層が形成された場合, 壁面で流動スリップが生ずることが知られているが, 強磁場中の液体金属流れは MHD 効果により急峻な速度境界層が形成される. 特に, 液体金属が壁面に濡れが悪い場合には壁面スリップの発生が生じ, 流動不安定化が懸念されている. 本タスクでは濡れ性の定量的な指標である接触角に着目し, 炭化ケイ素材表面上のリチウム鉛の接触角を測定し, 濡れ性が超撥水性(接触角が

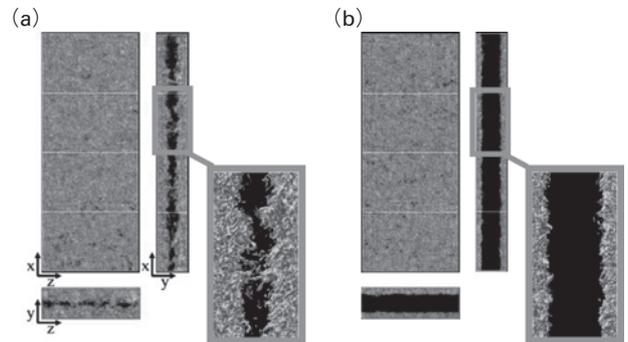


図12 MHD 乱流直接数値シミュレーション: (a)非 MHD 乱流  $Ha=0$ ; (b)MHD 乱流  $Ha=65$ . 磁場による乱流抑制現象の再現.

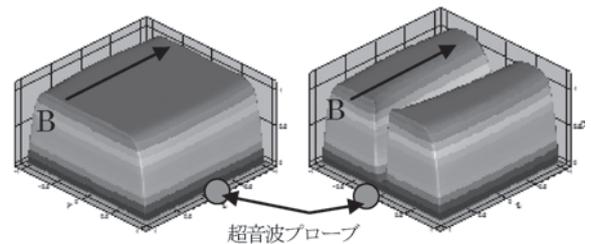


図13 数値解析による HT-UDV 計測が MHD 流動に与える影響の評価: (左)印加磁場と平行な面(サイドレイヤー壁面)に設置する場合のダクト断面流速分布; (右)垂直な面(ハルトマン壁面)に設置する場合のダクト断面流速分布.

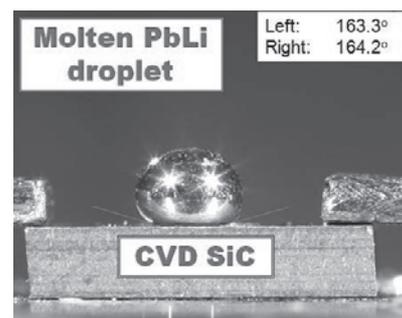


図14 炭化ケイ素表面上のリチウム鉛液滴.

150°以上)を示すことを明らかにした(図14[13]). 壁面流動スリップが生じる場合, MHD 擬似二次元流がハルトマン境界層(磁場に垂直な壁面近傍の速度境界層)内においてジュール散逸し, 粘性散逸が減少するという特異な渦構造となり, 流動スリップがない場合に比べて流れが不安定化することを示した(図15[14]). このようにして, 例えばDual Coolant Lead-Lithium (DCLL) ブランケット概念のようにリチウム鉛と炭化ケイ素を用いる場合にはMHD 流動スリップが生ずる可能性を指摘した.

この他にも, 核融合炉環境下と同等の強磁場が印加される場合において, 流れの慣性力の影響が無視できず, 流れが不安定化して層流から乱流に移ることが最新の研究で明らかになっている. 一例としては, 液体金属が導電壁流路を流れる際に印加磁場と平行な壁面の近傍には高速度ジェット流が, 主流部では一様速度流が形成されるのに対して, 流路全体でM字型の流速分布をとる. ジェット流分布が有する変曲点においてはKelvin-Helmholtz型の流動不安定性により, 流れが不安定化して最終的に乱流化する可能性が指摘されている. 本タスクでは擬似二元MHD 流動における渦-壁面の相互作用について数値的研究を行い, その特性を明らかにした[15]. もう一つの例として, 浮力の影響が挙げられる. ブランケット内において中性子束による体積加熱により流体内で温度差が生まれ, その結果としてポロイダル管のように鉛直方向に長い流路内では浮力の影響が顕在化しMHD 混合対流となる. 本タスクではこの複雑流動現象の存在を指摘し[10], その流れの安定性解析を行うとともにDNS型の数値解析を行い, 強乱流領域においては渦-壁面相互作用と様々な渦間相互作用が支配的であること, 弱乱流領域においては流れの渦は流速分布の変曲点近傍に局所的に存在することを明らかにして, 流動特性の詳細な理解を得た. 図16, 17[16, 17]にその解析結果の一例をそれぞれ示す.

### 3.3.4 まとめ

本タスクでは液体金属MHD 熱流動の基礎的特性について実験的手法, 数値的手法そして解析的手法を活用して総合的に研究した. その結果, 磁場下の複雑体系流路における流量配分, MHD 圧損, 乱流, 三次元から擬似二次元流れへの流動遷移, 流動スリップに関する定量的な評価方法ならびに信頼できる数値解析手法が確立された. また, リチウム鉛MHD 実験ループを建設するとともに, リチウム鉛に適用可能な流体測定手法を構築した. 次いで様々なMHD 圧損低減手法を開発し, 実証実験と数値解析を通してその有効性を示した. この他にも, 浮力の影響を含めたMHD 流動の不安定性解析ならびに数値解析を行うなど数多くの研究成果を得た. また, 本タスクには日米双方から博士課程学生が参加し, プロジェクト全期間を通して3名の博士号を輩出し, 若手研究者の人材育成にも大きく貢献できた.

### 参考文献

[1] S. Smolentsev *et al.*, *Fusion Eng. Des.* **87**, 777 (2012).

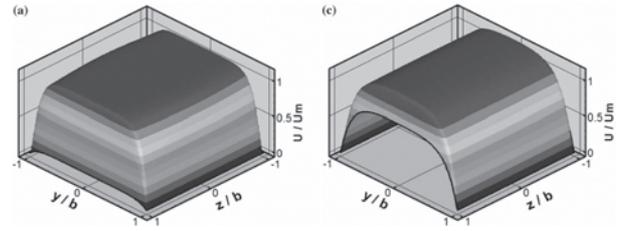


図15 MHD 流動スリップの数値シミュレーション: (左)流動スリップ小さい場合の流速分布; (右)流動スリップ大きい場合の流速分布[14].

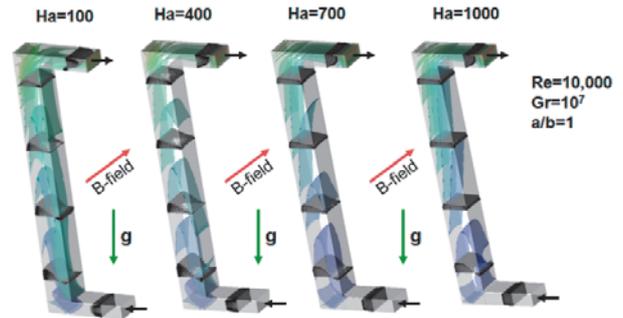


図16 DCLL ポロイダル管におけるMHD 混合対流の三次元数値解析; Ha 数の増加に伴い浮力の影響の顕在化し逆流が発生.

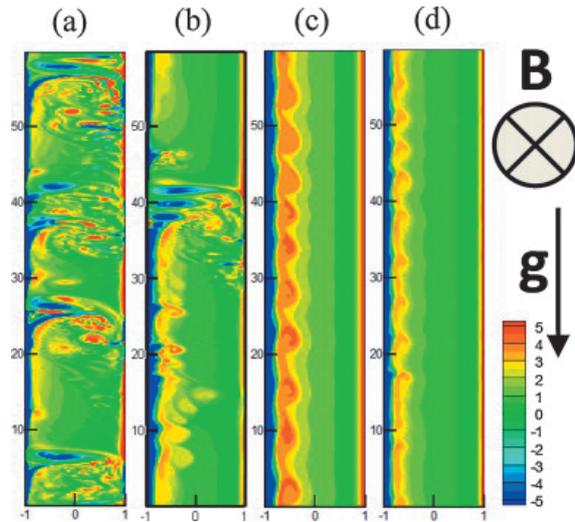


図17 MHD 混合対流乱流の瞬時温度分布: 強乱流 (a)  $Ha = 50$ ,  $Gr = 10^8$ ,  $Re = 5000$ ; (b)  $Ha = 75$ ,  $Gr = 10^8$ ,  $Re = 7500$ . 弱乱流 (c)  $Ha = 75$ ,  $Gr = 5 \times 10^7$ ,  $Re = 10000$ ; (d)  $Ha = 120$ ,  $Gr = 10^8$ ,  $Re = 5000$ [17].

- [2] T. Kunugi *et al.*, *J. Appl. Nucl. Sci. Technol.* **5**, 72 (2012).
- [3] K. Messadek and M. Abdou, *Magneto-hydrodynamics* **45**, 233 (2009).
- [4] Y. Ueki *et al.*, *Fusion Sci. Technol.* **56**, 846 (2009).
- [5] Y. Ueki *et al.*, *Fusion Sci. Technol.* **60**, 506 (2011).
- [6] F.-C. Li *et al.*, *Fusion Eng. Des.*, **88**, 3060 (2013).
- [7] S. Smolentsev *et al.*, *Fusion Eng. Des.* **88**, 317 (2013).
- [8] Y. Ueki *et al.*, *Fusion Eng. Des.* **85**, 1824 (2010).
- [9] M. Aoyagi *et al.*, *Proc. NTHAS8*, Paper no. N8P1089 (2012).
- [10] S. Smolentsev *et al.*, *Fusion Eng. Des.* **83**, 771 (2008).
- [11] S. Satake *et al.*, *Fusion Eng. Des.* **85**, 1326 (2010).
- [12] Y. Yamamoto and T. Kunugi, *Fusion Eng. Des.* **86**, 2886 (2011).

- [13] Y. Ueki *et al.*, Fusion Eng. Des. **86**, 2297 (2011).
- [14] S. Smolentsev, Theoretical Comput. Fluid Dynamics **23**, 557 (2009).
- [15] S. Smolentsev *et al.*, Phys. Fluids **24**, 024101 (2012).
- [16] N. Vetcha *et al.*, Physics of Fluids **25**, 024102 (2013).
- [17] S. Smolentsev *et al.*, Fusion Eng. Des. *in press* (2013).



## プロジェクトレビュー 日米科学技術協力事業 TITAN プロジェクト

### 4. 照射複合効果に関する研究

#### 4. Irradiation Synergism

##### 4.1 照射・トリチウム複合効果

##### 4.1 Irradiation-Tritium Synergism

波多野雄治, 大矢恭久<sup>1)</sup>, 原 正憲, 小田卓司<sup>2)</sup>, 大塚哲平<sup>3)</sup>, 佐藤紘一<sup>4)</sup>, 張 鯤

HATANO Yuji, OYA Yasuhisa<sup>1)</sup>, HARA Masanori, ODA Takuji<sup>2)</sup>,

OTSUKA Teppei<sup>3)</sup>, SATO Koichi<sup>4)</sup> and ZHANG Kun

富山大学水素同位体科学研究センター, <sup>1)</sup>静岡大学大学院理学研究科, <sup>2)</sup>東京大学大学院工学系研究科,

<sup>3)</sup>九州大学大学院総合理工学研究院, <sup>4)</sup>京都大学原子炉実験所

(原稿受付: 2013年8月2日)

プラズマ対向材料中のトリチウム挙動に及ぼす中性子照射の影響を明らかにするため、候補材であるタングステン（W）をオークリッジ国立研究所の研究炉 High Flux Isotope Reactor (HFIR) で中性子照射した上で、アイダホ国立研究所の線型プラズマ装置 Tritium Plasma Experiment (TPE) にて同位体である重水素の高フラックスプラズマにばく露し、捕獲重水素濃度と昇温脱離挙動を調べた。照射欠陥の捕獲効果により水素同位体滞留量が著しく増大すると共に、加熱処理による除去が困難となるため、同位体交換法等の新たなトリチウム除去技術の開発が必要であることが示された。

#### Keywords:

neutron irradiation, tritium inventory, hydrogen isotope, plasma-facing material, tungsten, radiation damage, trap, retention, diffusion

##### 4.1.1 研究の背景と目的

核融合炉プラズマ対向壁中のトリチウム（T）の滞留および壁からの再放出は、事故時および保守作業時の安全性を評価する上で極めて重要な課題である。タングステン（W）はプラズマ対向材料候補材として有望視されているが、融点および熱伝導率が高いのみならず、水素同位体溶解度が低いこと、かつ水素同位体による損耗率が低く T を高濃度に含有する共堆積層を形成しにくいことも W を用いる大きな理由となっている。一方で、金属中の原子空孔やボイドなどの欠陥は水素同位体の捕獲サイトとして働くことが知られており、中性子照射により T 滞留量が増大する可能性があるものの、これまではイオン照射によるシミュレーション実験のみが実施されており [1]、実際に中性子照射材を用いた研究例は見当たらなかった。イオン照射で欠陥を導入した W 試料を重水素（D）プラズマにばく露した実験では、500 K 以下の温度では照射効果により捕獲 D 濃度が約 1 at.% にも達しているものの [1]、高温での滞留量には大きなばらつきがあり [2]、中性子照射材を用いた検証が必要であった。

以上のような背景から本タスクでは、オークリッジ国立研究所（ORNL）の研究炉 High Flux Isotope Reactor

（HFIR）で中性子照射した W 試料をアイダホ国立研究所（INL）の線型プラズマ装置 Tritium Plasma Experiment（TPE）にて高フラックス D プラズマにばく露し、W 中の水素同位体滞留挙動に及ぼす中性子照射の影響を調べた。TPE は著者らの知る限り世界で唯一の T を含む放射性物質を取り扱える高フラックス線型プラズマ装置であり、高中性子束が得られる HFIR と共に、本研究目的の達成に不可欠であった。TPE では T を含むプラズマを生成できるが、試料に飛散性の高い T を注入すると、その後の核反応法（NRA）による水素同位体の深さ方向分析等が実施できなくなり、実験結果の解析が困難になるという問題があった。加えて、イオン照射実験でみられた照射効果は、水素の溶解・拡散における同位体効果（質量数の平方根程度）をはるかに上回るものであった。そこで、W に関する研究では主に D プラズマを用いた。なお、DT プラズマにばく露した中性子照射 Mo 中の T 滞留量の非破壊測定、比較材としての中性子照射 Ni 中の D 滞留量測定等も実施したが、紙面の都合で詳細は割愛する。

##### 4.1.2 使用施設

本タスクの研究の流れを図 1 に示す。まず富山大学で調

Corresponding author's address: Hydrogen Isotope Research Center, University of Toyama, Toyama, TOYAMA 930-8555, Japan

Corresponding author's e-mail: hatano@ctg.u-toyama.ac.jp

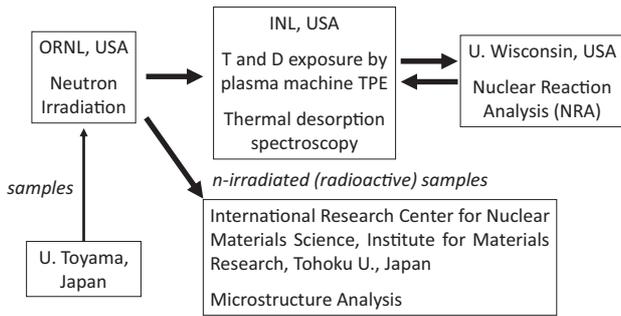


図1 タスク2-1における使用施設と研究の流れ。

製した W 試料を ORNL に送付し、HFIR にて中性子照射を行った。HFIR は世界で最も高い中性子束を有する研究用原子炉の一つであり、6 年間という限られた研究期間で中性子照射を完了するためには不可欠であった。中性子照射された試料の一部を INL の Safety and Tritium Applied Research (STAR) 施設に送り、TPE を用いて高フラックス D プラズマにばく露した。上述のように TPE は世界で唯一の T を含む放射性物質を取り扱える高フラックス線型プラズマ装置で、本タスクの目的遂行のために最も適した装置であった。照射欠陥中に捕獲された D 濃度を核反応法 (NRA) で、また D の全滞留量および捕獲エネルギーを昇温脱離法 (TDS) で測定した。NRA による測定はウイスコンシン大学で実施した。このように複数の米国研究機関にまたがって研究を展開した例は、日米科学技術協力事業プロジェクト研究の歴史の中でもほとんどない。今後のより詳細な原型炉設計活動に向け、要素技術研究の統合が必要となる。それぞれ異なる得意分野を持つ米国研究機関と共同研究を展開できたことは、今後の統合的課題に関する研究の実施に向けて大きな礎となった。中性子照射試料の一部は東北大学金属材料研究所附属量子エネルギー材料科学国際研究センターへも送付されており、陽電子寿命測定等による空孔型照射欠陥の分析や長時間  $D_2$  ガスばく露後の TDS 測定の準備が進められている。今後、これら国内研究で得られるデータも活用し、TITAN 計画の成果について考察をさらに深める予定である。

#### 4.1.3 成果概要

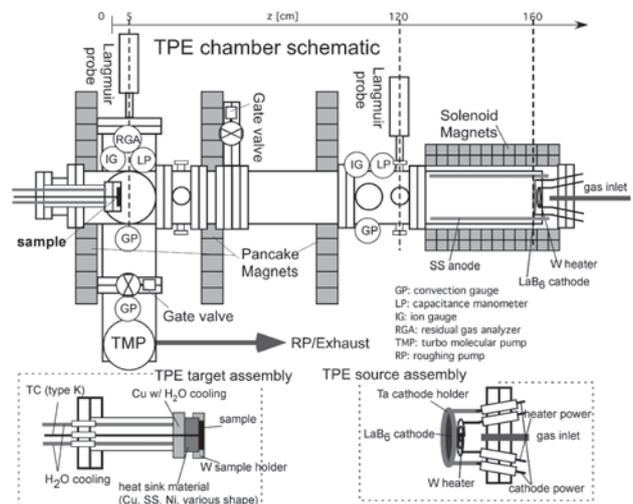
##### (1) 微小試料プラズマばく露技術の確立

中性子照射 W 中の水素同位体挙動に関するデータがこれまでなかった最大の原因として、試料が放射化し取り扱いが困難となることが挙げられる。先述のように TPE は放射性物質を取り扱えるプラズマ装置ではあるものの、試料交換等は手作業で行う必要がある。そこで本タスクでは、不純物による誘導放射能を抑えるため試料に(株)アライドマテリアル社製の純度 99.99% の高純度 W を用いると共に、試料サイズを極力小さくすることとした。FISPACT-2001 コードを用いて中性子照射後の試料からの放射線強度を予測したところ [3]、直径 6 mm、厚さ 0.2 mm とすれば 1 年程度の減衰期間を経たのち実験を開始できることがわかった。そこで、本タスクではこのサイズを採用した。ただし、TPE では直径 1 ~ 2 インチ (25.4 ~ 50.8 mm)、厚

さ 1 mm が標準的な試料サイズとなっており、本タスクで採用した試料は面積が標準の 1/18、体積が 1/90 というミニチュア試験片に相当する。

また、W を高フラックス水素同位体プラズマにばく露すると、表面にプリスタ (高圧ガスの蓄積による瘤状の隆起) が生じることが知られている。本タスクの目的は W バルク中での照射欠陥による水素同位体の捕獲を調べることであるが、TDS 測定では試料のどの部分に水素同位体が蓄積していたかは直接にはわからないため、表面のプリスタに多量の水素同位体が蓄積されると捕獲水素同位体量の定量に著しい支障をきたすこととなる。プラズマにばく露される表面に平行に結晶粒界が伸展した組織では高密度にプリスタが形成されることがわかっている [4]。これは、水素同位体が粒界に蓄積しガス化することによりプリスタ生成の起点となるためと考えられる。そこで本タスクでは、粒界を拡散する水素同位体が表面近傍に蓄積せず速やかにバルク内部へ輸送されるよう、結晶粒界がプラズマにばく露される表面に垂直に伸展する微細組織とした。具体的には、直径 6 mm の高純度 W 棒をスライスし、表面を鏡面に研磨することで試料とした。研磨後の試料を 1173 K で 30 分間真空中にて熱処理した。W は室温近傍では脆性であり、特にこのように薄かつ表面に垂直に伸展した結晶粒界を有する試料は曲げ応力や径方向の引っ張り応力に弱くなるが、後述するような工夫によりこの問題を解決することで、プリスタの少ない状況で水素同位体滞留量を測定できた。

図 2 に TPE とそのイオンソースおよび試料ホルダーの模式図を示す。[5] TPE はカソード ( $LaB_6$ ) から試料までの距離がおおよそ 160 cm の線型プラズマ装置であり、 $2.5 \times 10^{22} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  程度のフラックスの水素同位体プラズマが得られる。プラズマの直径は約 50 mm である。同装置は放射線管理区域内のグローブボックス中に設置されており、最大 1.5 g の T が使用可能であり、0.1 ~ 3.0% 程度の T を含むプラズマを生成することができる。また、放射化した試料の取扱が可能である。試料ホルダーは試料を載せる Cu ステージ、冷却水循環システム、試料を固定するための

図2 TPE (上)、 $LaB_6$  カソード (右下) および試料ホルダー (左下) の模式図 [5]。

マスクからなる。試料はプラズマからの入熱により加熱され、Cu ステージと試料の間に材質や形状が異なるプレートを挿入し熱伝達を調整することで試料の温度制御が可能である。試料温度は背面から熱電対を押し当て測定する。

直径 6 mm, 厚さ 0.2 mm という微小な試料を TPE でプラズマにばく露する場合には、試料よりもそれを押さえるマスクの方が圧倒的に大きい面積でプラズマと接触するため、マスク材料のスパッタリングおよび試料上への堆積が懸念された。そこで、図 3 (a) 中に矢印で示したマスク材を、試料と同じ W で作成した。開口部の直径は 4 mm とした。試料表面に入射するプラズマの均一性を確保すると共に、アークの発生を防ぐため、開口部壁には傾斜を付けた。W は難加工性の材料であるが、放電加工技術により設計通りのマスクを製造することができた。また、温度測定に用いる熱電対も大きな障害となった。従来は熱電対の弾性を利用して試料に押し付けていたが、応力の微妙な調整ができないため、0.2 mm 厚の試料ではプラズマからの熱負荷が付与されると同時に高い確率で試料が破損した。そこで図 3 (b) に示すようにマイクロメーターを搭載した微動機構に熱電対を取り付け、最小限の応力で試料と接触させることとした。その結果、試料の破損はほとんど起こらなくなった。以上の様な工夫により、微小 W 試料を高フラックス水素同位体プラズマにばく露する技術確立した。なお、特にこの技術開発においては米国側の多大な貢献があった。

## (2) タングステン中の重水素滞留挙動に及ぼす中性子照射の影響

中性子照射は HFIR の冷却水温度 (約 323 K) にて 0.025 および 0.3 dpa まで行った。0.025 dpa 照射試料では約 300 日、0.3 dpa 照射試料では約 800 日誘導放射能を冷却したのち、これらの試料を ORNL から INL へ輸送し、TPE を用いて 473 K および 773 K で高フラックス D プラズマにばく露した。入射エネルギーは 100 eV, フラックスは

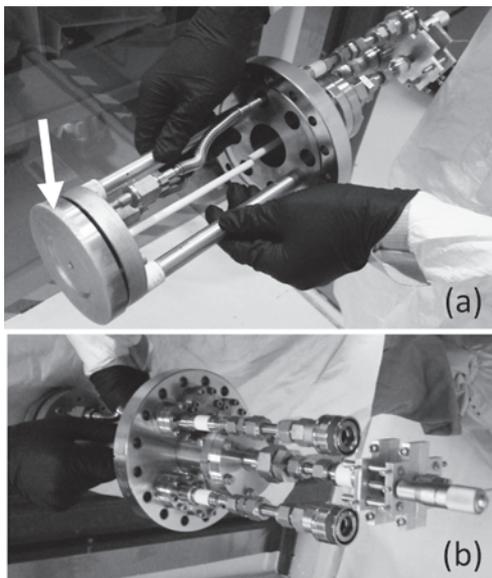


図 3 本タスクで開発した微小試料用 TPE 試料ホルダー。

$(5-7) \times 10^{21} \text{ Dm}^{-2}\text{s}^{-1}$ , フルエンスは  $(5-7) \times 10^{25} \text{ Dm}^{-2}$  とした。プラズマにばく露した後、ウィスコンシン大学において NRA により D の深さ方向分布を測定した。プローブビームには 3.5 MeV  $^3\text{He}$  イオンを用いた。また、試料を再び INL へ輸送したのち、TDS 測定を実施した。昇温速度は 0.167 K/s (10 K/min) とした。

図 4 に中性子照射試料中の D 深さ方向分布を示す。[3, 6] どちらの温度でも照射量の増大と共に D 濃度が上昇しており、中性子照射によって形成された欠陥が水素同位体の捕獲サイトとして働いていることを示している。473 K でプラズマにばく露した場合の D 濃度は、0.025 dpa で 0.3 at.%, 0.3 dpa で約 0.8 at.% に達しており、中性子照射後の W がこの程度の温度でプラズマにばく露されると、高濃度に水素同位体が蓄積されることがわかる。ただし、中性子照射量は一桁増大しているのに対し、D 濃度はせいぜい数倍上昇した程度である。室温近傍でイオン照射により欠陥を導入した実験では 0.7 dpa 程度で捕獲サイト密度が飽和する傾向が見られており [1], 0.025 dpa と 0.3 dpa での捕獲 D 濃度の差は中性子照射においてもそのような捕獲サイト密度の飽和傾向が現れる可能性を示している。今後中性子をより高線量照射した試料について実験を行い、どの程度の濃度で捕獲サイトが飽和に達するのかを明確にする必要がある。473 K でプラズマにばく露した場合には、深さ約 3  $\mu\text{m}$  までは捕獲 D 濃度がほぼ均一であり、より深部では D 濃度が深さと共に減少する傾向を示している。Frauenfelder [7] によって報告されている W 中の固溶水素の拡散係数より、473 K での値は  $3 \times 10^{-11} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$  と求められる。この値を用いて  $10^4$  秒のプラズマばく露中における平均拡散距離を計算すると 700~800  $\mu\text{m}$  程度となる。深さ約 3  $\mu\text{m}$  以降での D 濃度の減少は、照射欠陥による捕獲効果で実効的な水素同位体の拡散係数が小さくなっていることを示している。

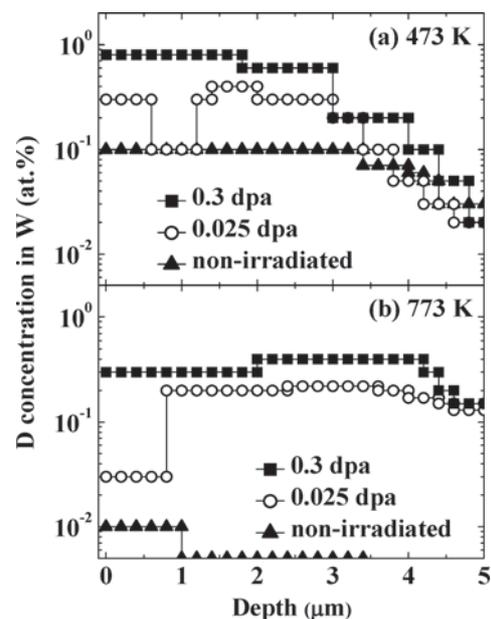


図 4 473 K および 773 K で D プラズマにばく露した中性子照射 W および非照射材中の D 深さ方向分布 [3]。

773 Kでプラズマにばく露した場合のD濃度は0.025 dpaで0.2 at.%, 0.3 dpaで約0.4 at.%であり, 473 Kの場合に比べやや低い値となつてはいるものの依然として高いレベルにある。すなわち, 壁温度が少々上昇してもT滞留量が劇的に減少するわけではない。一方で, 捕獲D濃度は深さ約3  $\mu\text{m}$ 以上の領域においても大きくは低下しておらず, 上述のように照射欠陥による捕獲効果で実効的拡散係数は減少してはいるものの, 高温では拡散過程がより活性化されることでDが捕獲サイトを埋めながらNRAによる検出限界深さより奥へ浸入していることがわかる。イオン照射が表面近傍にのみ欠陥を形成するのに対し, 中性子照射では材料の厚さ方向にほぼ均一に照射欠陥が導入されるため, このような深部への水素同位体の浸入はT滞留量の著しい増大につながる重要な現象である。この点については, のちにTDSの結果も踏まえてより詳しく考察する。

773 Kにおいて捕獲D濃度が473 Kと比べて低かった原因の一つとして, 高温では水素同位体による照射欠陥占有率が低下することが挙げられる。平衡状態において中性子照射W中で捕獲サイトが水素同位体により占有される確率 $\theta_i$ は, W結晶格子中に固溶する水素同位体の濃度の関数として次式のように表される。

$$\theta_{i,i} / (1 - \theta_{i,i}) = \theta_L / (1 - \theta_L) \exp(E_{\text{bin},i} / kT_{\text{ex}}) \quad (1)$$

ここで, 添字*i*は捕獲サイトとして働く欠陥の種類,  $\theta_L$ はW結晶中の格子間位置の占有率,  $E_{\text{bin},i}$ は各捕獲サイトと水素同位体の結合エネルギー(捕獲サイトと格子間位置での水素同位体のエンタルピー差),  $T_{\text{ex}}$ はプラズマへばく露されるWの温度である。 $E_{\text{bin},i} > 0$ なので, たとえ $\theta_L$ が一定であっても $\theta_i$ は温度の増大と共に減少する。加えて, 多くの場合に $\theta_L$ も温度の上昇と共に減少する。単純に考えると, プラズマへばく露下における試料表面での粒子バランスは以下の様に書ける。

$$\alpha\phi_{\text{in}} = k_r C_{\text{SS}}^2 = k_r (\theta_L)^2 \quad (2)$$

ここで,  $\phi_{\text{in}}$ はプラズマからの入射Dフラックス,  $\alpha$ は入射したDイオンが試料中へ溶解する確率,  $k_r$ は表面再結合定数,  $C_{\text{SS}}$ は表面直下でのD濃度,  $A$ はDの濃度と格子間位置占有率の間の換算係数である。プラズマからの入射エネルギーは熱エネルギーに比べて十分大きいので,  $\alpha$ の温度依存性は無視できる。 $k_r$ はW表面が完全に清浄であれば温度の上昇と共に減少するはずであるが, 実際にはプラズマ中の酸素や炭素などの不純物元素や試料表面に偏析した不純物元素等により再結合放出に対する活性化障壁が形成され温度上昇と共に増大する[1]。したがって, 先述のように $\theta_L$ は温度上昇と共に減少することとなる。すなわち, 温度上昇に伴う捕獲D濃度の減少は,  $\theta_L$ および $\exp(E_{\text{bin},i}/kT_{\text{ex}})$ の減少により説明することができる。 $\theta_L$ がプラズマからの入射フラックスやWの表面状態に依存するので, 中性子照射W中のT滞留量が温度のみならずプラズマ条件により変化することは明白である。単に水素同位体がどれだけ溜まったかということだけでなく, バルク中の固溶水素同位体の濃度(化学ポテンシャル)をも考慮して議論する必要

がある。なお, 773 Kでのプラズマへばく露中に照射欠陥の一部が回復したこともあり得るが, この点に関しては現在, 陽電子寿命測定等により調査中である。

0.025 dpa照射試料のTDS測定の結果を, 非照射試料のものと合わせて図5に示す。[8, 9]この図の最も重要な特徴は, 非照射試料からのDの脱離が700 K程度で完了しているのに対し, 中性子照射材からの脱離は1173 K以上の温度まで継続している点である。すなわち, 中性子照射で形成された照射欠陥に捕獲された水素同位体を熱脱離させるには高温が必要であることがわかる。比較のため, 2.8 MeV Feイオンを用いて0.027~3 dpaの損傷を与えたW試料を, 同様にTPEを用いて473 KでDプラズマにばく露しTDS測定を行った。[10, 11]前述のように, 中性子照射とは異なりイオン照射では表面近傍にのみ損傷が形成される。2.8 MeV Feイオンでの損傷領域深さは約1  $\mu\text{m}$ である。この場合には, D滞留量は照射量と共に明確に増大したものの, 脱離温度域に大きな変化はみられなかった。[10]すなわち, 中性子照射材で脱離温度が著しく高温へシフトしたのは, 単に照射欠陥が形成されたのみならず, Dが照射欠陥を占有しながら試料内部まで拡散したためである。中性子照射試料中のD滞留量は473 Kでプラズマにばく露した場合が $1.2 \times 10^{21} \text{ Dm}^{-2}$ , 773 Kの場合が $6.4 \times 10^{21} \text{ Dm}^{-2}$ であった。図4に示すように, NRAで測定された捕獲D濃度は473 Kでプラズマにばく露した方が773 Kに比べて明らかに高かった。TDSで測定した滞留量で逆転がみられたのも, 773 KではDがより深部に浸入したためである。仮にNRAで測定された深さ5  $\mu\text{m}$ での捕獲D濃度(約0.2 at.% =  $1.2 \times 10^{26} \text{ Dm}^{-3}$ )でDが均一に分布していたとすると, 773 Kでのプラズマへばく露後にDは約50  $\mu\text{m}$ の深さまで浸入していた計算になる。深部では捕獲D濃度は低下しているはずなので, 実際にはより深くまでDが浸入していたと考えられる。これらの結果は, 中性子照射を受けたWを高温でプラズマにばく露すると, 照射欠陥による捕獲と深部への拡散により水素同位体滞留量が大きく増大することを最初に確認したものであり, Wをプラズマ対向材料として用いる際の安全評価の上で重要な情報を提供できたと考えている。なお, 0.3 dpa中性子照射試料のTDS測定の結果については現在解析中であり, 別途報告する予定である。

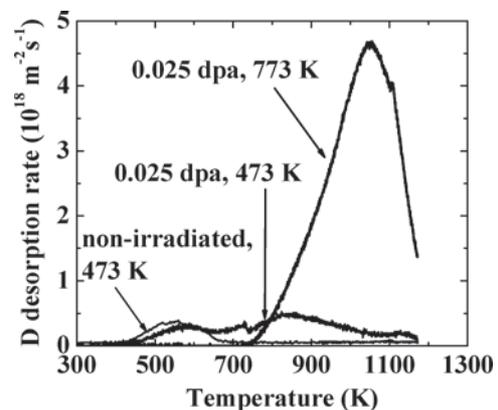


図5 473 Kおよび773 KでDプラズマにばく露した中性子照射材(0.025 dpa)および非照射材のD昇温脱離スペクトル [9]。

773 Kでプラズマにばく露した試料のTDSスペクトルを拡散解析コード TMAP4 を用いてフィッティングした例を図6に示す.[2] このフィッティングでは、単純化のため以下のような仮定をした。

- (1) 厚さ 0.2 mm の試料中に完全に D で飽和された場合に 0.2 at. %に相当する密度で単一種の捕獲サイトが均一に分布している。
- (2) プラズマ入射側表面より 50  $\mu\text{m}$  の深さまでの捕獲サイトが D で飽和されると共に、残り 150  $\mu\text{m}$  の領域には D は存在しない。
- (3) 表面反応速度は十分に速い。
- (4) TDS 測定中に捕獲サイト密度は変化しない。すなわち、照射欠陥は回復しない。

これらの仮定のもとで脱捕獲の活性化エネルギー  $E_{\text{det}}$  をフィッティングパラメータとして TMAP4 にて TDS スペクトルの再現を試みたところ、 $E_{\text{det}}$  を 1.83 eV としたときにピーク位置を再現できた。TMAP4 による解析では 1190 K 付近にショルダーがみられているが、これはプラズマにばく露していない側の表面からの D の脱離によるものである。実測スペクトルでこのような反対側表面からの脱離の寄与が見られないのは、TDS 測定中に照射欠陥の一部が回復しているためと考えられる。また、実際には中性子照射により原子空孔やその集合体、転位ループなど多様な欠陥が形成されているはずであり、かつ同一の欠陥種でも捕獲される水素同位体原子数により  $E_{\text{det}}$  の値が変化する可能性がある。上述の  $E_{\text{det}}$  の値 (約 1.8 eV) はあくまで(1)~(4)の仮定のもとで得られた値であり厳密な物理的背景を持つものではないが、中性子照射 W 中の水素同位体輸送を大まかに評価するには有効であると考えられる。そこで、次節ではこの値を用いて中性子照射 W からの T 脱離挙動を評価した結果を紹介する。

### (3) 中性子照射タングステンからのトリチウム脱離挙動評価

図7は仮に第一壁アーマ材として用いられる W の厚さを 0.6 mm とし、TMAP4 を用いて T の脱離を評価した結果である。中性子照射により 0.2 at.% 相当の捕獲サイトが形成されており、初期にはそれらが全て T で占有されると仮定した。脱捕獲の活性化エネルギーを 1.8 eV とし、真空装置のベーキング処理温度の例として 673 K、および事故時や保守作業時に冷却が停止された場合の温度の例として 973 K での放出挙動を計算した。縦軸は W 中の T の平均濃度である。計算の結果、673 K では捕獲効果により実効的拡散係数が著しく低下しているため、10 時間程度の加熱では T はほとんど除去できないことがわかった。なお、673 K で捕獲サイトからの T の脱離が全く起こらないわけではなく、一旦脱離した T が別の空いた捕獲サイトに再捕獲されることを繰り返しながら移動するため、結果として実効的拡散係数が小さくなる。一方、973 K では 10 時間で半分以上の T が放出されることがわかった。このことは、冷却が停止された際に第一壁が崩壊熱によりこの程度の温度に加熱されると T が放出されることを示している。したがって、真空加熱以外に T を除去する技術を確認することが望ましい。

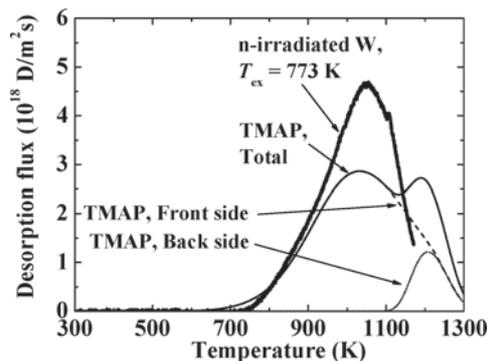


図6 773 K で D プラズマにばく露した中性子照射 W (0.025 dpa) からの D 昇温脱離スペクトルおよび TMAP4 でのシミュレーション結果 (脱捕獲の活性化エネルギーを 1.83 eV と仮定) [2].

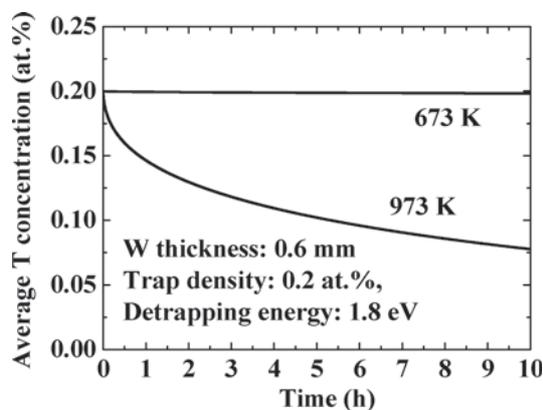


図7 中性子照射 W からの T 脱離のシミュレーション結果 (捕獲サイト密度 0.2 at.%, 脱捕獲の活性化エネルギー 1.8 eV) [9].

以上の様な状況を鑑み、TITAN 計画とほぼ並行して実施された科学研究費特定領域研究「核融合炉実現を目指したトリチウム研究の新展開」において、イオン照射試料による同位体交換法に関する予備実験を H と D を用いて実施した。先述のように、673 K において T 濃度がほとんど減少しなかったのは、捕獲サイトからの T の脱離が全く起こらないからではなく、一旦脱離した T が再捕獲されるためである。したがって H や D に予め捕獲サイトを占有させておけば、T の脱離が促進できる可能性がある。このような考えのもと、特定領域研究では 20 MeV の W イオンを照射して 0.5 dpa の損傷を与えた W 試料中にガスばく露法でまず D を導入し、そのうち真空中および 0.1 MPa の  $\text{H}_2$  ガス中で 673 K において 10 時間加熱した。結果は既に本誌プロジェクトレビュー等 [9, 12] に報告しているので詳細は割愛するが、真空中で加熱したのちは約 80% の D が残存していたのに対し、 $\text{H}_2$  ガス中で加熱した場合に残存した D は初期量の 16% にすぎなかった。すなわち、H に捕獲サイトを占有させることで、D の脱離を著しく加速することができた。今後、国内研究において実際に中性子照射試料から T を除去する実証実験を進める必要がある。この手法を核融合炉で応用する際には、崩壊熱等を利用して可能な限り高温で H, D を用いた放電洗浄を行うことになると考えられる。

#### 4.1.4 まとめ

中性子照射した W 中の D 滞留・放出挙動を調べ、照射欠陥による捕獲効果がこれらの挙動に大きな影響を及ぼすことを明らかにした。473 K でプラズマにばく露した場合には、捕獲 D 濃度は約 1 at.% に達した。773 K では濃度はやや低下したものの、より深部 (~50  $\mu\text{m}$ ) まで D が拡散したため、滞留量は逆に増大した。また、非照射 W からの D 放出が 700 K 程度で完了したのに対し、中性子照射試料では 1173 K 以上の温度まで放出が継続した。これらの結果をより、中性子照射 W 中の T 挙動を予測するには、照射欠陥による強い捕獲効果のもとでの長距離拡散の理解が不可欠と結論した。従来のイオン照射によるシミュレーション実験では、表面近傍にのみ照射欠陥が導入されるため、このような長距離拡散の効果は明確にはみられておらず、本タスクの遂行により W をプラズマ対向材料として使用する

際の安全性評価の上で重要な知見を見出すことができた。

#### 参考文献

- [ 1 ] J. Roth and K. Schmid, Phys. Scripta T145, 014031 (2011).
- [ 2 ] Y. Hatano *et al.*, Mater. Trans. 54, 437 (2013).
- [ 3 ] Y. Hatano *et al.*, Nucl. Fusion 53, 073006 (2013).
- [ 4 ] Y. Ueda *et al.*, J. Nucl. Mater., 337-339, 1010 (2005).
- [ 5 ] M. Shimada *et al.*, Rev. Sci. Instrum. 82, 083503 (2011).
- [ 6 ] M. Shimada *et al.*, Phys. Scripta T145, 0014051 (2011).
- [ 7 ] R. Frauenfelder, J. Vac. Sci. Technol. 6, 388 (1969).
- [ 8 ] M. Shimada *et al.*, J. Nucl. Mater. 415, S667 (2011).
- [ 9 ] Y. Hatano *et al.*, J. Nucl. Mater. 438, S114 (2013).
- [ 10 ] Y. Oya *et al.*, Phys. Scripta T145, 014050 (2011).
- [ 11 ] M. Kobayashi *et al.*, Fusion Eng. Des. 88, 1749 (2013).
- [ 12 ] T. Yamanishi *et al.*, J. Plasma Fusion Res. 88, 508 (2012).



## プロジェクトレビュー 日米科学技術協力事業 TITAN プロジェクト

### 4. 照射複合効果に関する研究

#### 4. Irradiation Synergism

#### 4.2 接合・被覆システムの健全性

#### 4.2 Joining and Coating System Integrity

木村晃彦, 橋本直幸<sup>1)</sup>, 盧 相熏<sup>2)</sup>, 藪内聖皓<sup>3)</sup>, 大貫惣明<sup>1)</sup>

KIMURA Akihiko, HASHIMOTO Naoyuki<sup>1)</sup>, NOH Sanghoon<sup>2)</sup>, YABUUCHI Kiyohiro<sup>3)</sup>, OHNUKI Somei<sup>1)</sup>

京都大学エネルギー理工学研究所, <sup>1)</sup>北海道大学大学院工学研究科,

<sup>2)</sup>韓国原子力研究所, <sup>3)</sup>東北大学大学院工学研究科

(原稿受付: 2013年8月2日)

ブランケット製作における重要な課題である構造材料の接合・被覆技術開発および接合部の健全性に及ぼす中性子照射影響を調べ, 材料システム統合化を行った。開発が困難とされていた ODS 鋼の接合法として, 固相拡散接合 (SSDB) および摩擦撹拌接合 (FSW) 法が適していることや電子ビーム (EB) 溶接した F82H 鋼ジョイントの照射後引張特性が母材と同等であることが判明した。また, 十分な強度をもつ W/ODS 鋼ジョイント製作の可能性を示した。

#### Keywords:

blanket, neutron irradiation, joints, coating, helium bubbles, synergistic effects

#### 4.2.1 研究の背景と目的

ブランケットの製作にあたっては, システムの形式にもよるが, 構造材料の接合および被覆技術開発が重要な課題となる。特に, 接合・被覆部が中性子照射を受けた際に被る損傷の度合いは, ブランケットの寿命に深くかかわると推測される。本タスクにおいては, Oak Ridge National Laboratory (ORNL) にある出力 85 MeW の原子炉, High Flux Isotope Reactor (HFIR) を用いて, 接合部や被覆部の健全性に及ぼす中性子照射影響ならびに核変換 He や H の影響について調べることを目的とした。

#### 4.2.2 使用施設: HFIR

HFIR は, 同位体生成を目的とする軽水炉であり, 表 1 に示すように, 熱中性子フラックスが大きく, 照射量の高い領域での照射実験に向いている世界的にも稀有な材料照射試験炉の一つであり, 高い年間稼働率を維持している。

#### 4.2.3 成果の概要

本研究では, DEMO 炉用のブランケット構造材料としての使用が期待されている酸化物分散強化 (ODS) 鋼や国際熱核融合実験炉 (ITER) の Test Blanket Module (TBM) の構造材料に選定されている低放射化フェライト (RAF) 鋼に対し, 接合及び被覆の技術開発を進めつつ, 接合材および被覆材に及ぼす中性子照射影響を調べた。ここでは, 特

に, ODS 鋼の接合技術開発, 真空プラズマ溶射 (VPS) タングステン (W) 被覆あるいは摩擦撹拌処理した ODS 鋼の照射影響評価および電子ビーム (EB) 溶接した F82H 鋼における中性子照射影響に関する研究成果を紹介する。

#### 4.2.3.1 ODS 鋼の接合技術開発

ODS 鋼は, RAF 鋼に比べ, 使用最高温度が 150°C 程度高くなるため, ブランケットの高効率化が可能である。しか

表 1 HFIR の概要と特徴。

	HFIR	
	ターゲット位置	RB*位置
中性子束	<ul style="list-style-type: none"> <li>高速中性子束: <math>1 \sim 2 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}</math></li> <li>熱中性子束: <math>3 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}</math></li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>高速中性子束: <math>4 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2\text{s}</math></li> <li>熱中性子束: <math>1.2 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s}</math></li> </ul>
年間照射量 (Steel)	20-30 dpa	7 dpa
冷却材	水	水
照射容積	50 cm <sup>3</sup>	600 cm <sup>3</sup>
照射キャプセル	<ul style="list-style-type: none"> <li>無計装キャプセル</li> <li>温度制御範囲: 80~800°C</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>計装キャプセル</li> <li>温度制御範囲: 80~400°C</li> </ul>
特徴	<ul style="list-style-type: none"> <li>核変換効果研究</li> <li>中性子遮蔽材の利用 (Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)</li> <li>電気抵抗等の「その場」測定の実績</li> <li>交番温度変動照射 220/350°C, 300/500°C</li> </ul>	

Corresponding author's address: Institute of advanced Energy, Kyoto University, Gokasho, Uji, KYOTO 611-0011, Japan

Corresponding author's e-mail: kimura@iae.kyoto-u.ac.jp

し、一般の溶接法ではナノスケールの酸化物粒子の分散状況を変えてしまい、ODS鋼の優れた特性を損なうことになるため、他の接合法を開発する必要がある。ここでは、まず、ODS鋼どうしの同種金属接合、次に、Wとの異種金属接合技術開発を進めた。本研究では、耐食性に優れた15Cr系ODS鋼(15Cr-(0 or 4)Al-2W-0.35Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)の摩擦攪拌接合(Friction Stir Welding:FSW)および固相拡散接合(Solid State Diffusion Bonding:SSDB)の技術開発を行い、その照射下健全性を評価することを目的とした。

### 1) FSW法の開発

FSW(図1)は、回転速度800 rpm、走査速度50 mm/minで実施した。摩擦攪拌処理は、結晶粒径の粗大化を招き、室温における強度を顕著に低下させたが、ODS鋼に期待されている高温強度については、わずかな低下にとどまり、実用化の可能性を確認することができた。

### 2) SSDB法の開発

SSDBは、1200℃、25 MPa、1時間保持の条件で実施し、接合部インサート材の有無の影響を調査した。インサート材は融点が1200℃以下のため、その部分だけは溶融することから液相拡散接合(Transient Liquid Phase Bonding:TLPB)とも呼ばれる。その結果、図2に示すように、SSDB材およびTLPB材ともに、引張強度は未接合材と同等であることを確認した。一方、伸びに関しては、TLPBは未接合材の半分以下に減少したが、SSDB材では伸びの低下が全く認められず、ほぼ完全な接合強度を得ることに成功した。

### 3) W/ODS鋼の接合

核融合エネルギーの実現に向けた第一壁およびダイバータの製作においては、タングステン(W)被覆技術が不可欠である。Wの最大の難点は、その低すぎる破壊靱性であり、室温においても全く塑性変形しない点である。高熱負荷を断続的に受けるプラズマ対抗材料は、高融点でかつ優れた熱疲労特性を持つことが要求され、それを支える支持

構造体との十分な連結強度を維持できるものでなければならない。本研究では、W/ODS鋼の固相・液相拡散接合技術開発も行った。その結果、1240℃での拡散接合により、界面強度が300 MPaという高いねじり強度の達成に成功した。また、真空プラズマスプレー(Vacuum Plasma Splayed:VPS)法を用いたVPS-Wの熱衝撃特性評価において、7.5 MW/m<sup>2</sup>、Beam on:60 s、Beam off:140 s、照射回数:30 cycles)の熱負荷に耐えるVPS-W被覆材の作製にも成功した。

### 4.2.3.2 VPS-W被覆 ODS鋼における中性子照射影響

Wは高融点金属で耐熱性に優れ、スパッタリング損耗が小さく、水素のインベントリーも小さいことから核融合炉の開発において重要なブランケット第一壁材料と考えられている。一方、Wはもともと脆性的な材料である上に照射脆化も生じやすく、破壊靱性の向上が課題となっている。厚さが数mm以上のバルク材では破壊靱性の向上は困難であるが、厚さが1mm以下の薄板材においては、平面応力状態が構成されるため、原理的にはバルク材に比べて、見かけ上、破壊靱性が高くなる。したがって、Wを第一壁に適用する場合、バルク材としての適用に比べ、被覆材(薄板材あるいはコーティング材)としての適用が有利となる。

一方、薄くすることで、プラズマによる熱衝撃や損耗に対する抵抗が低下することが懸念される。また、一般にバルク材とコーティング材とでは、密度、材料組織および不純物濃度が異なるため、コーティング材の特性を評価しておく必要がある。そこで本研究では、W/F82H鋼及びW/ODS鋼の接合方法においてVPS法によるW被覆を実施し、その照射後挙動を調べるために被覆断面に対して硬さ分布を測定し、照射前の分布と比較した。

F82H鋼およびODS鋼を基板としてAr・H<sup>2</sup>混合ガスによるVPSを用い、純度99.9%W粉末を被覆した。被覆時の基板の予熱温度は550℃、基板の厚さは3mmである。VPS-W被覆材をHFIRにおいて、500℃でそれぞれ4.5 dpa、9.6 dpaの照射量(Fe換算)まで照射した。

照射後の断面硬さ分布を調べるために硬度試験機(Mitutoyo AAV-500)を用い、荷重1 kgf、測定点間隔0.2 mmで10秒間保持して測定した。非照射材についても同条件で硬さ測定を行い、照射後結果と比較した。

図3にHFIR照射前後の被覆断面に対する硬さ分布測定結果を示す。この図の基板はODS鋼であるが、照射前の基板の硬さ分布は基板の種類(F82H鋼、K1-ODS鋼、K4-ODS鋼)により異なるが、W被覆材の硬さに変化は認められない。照射後の基板には照射硬化が認められない。これは、照射温度500℃の場合、中性子照射による照射欠陥の形成速度よりも焼鈍回復作用による欠陥の回復速度がより早いことで説明される。一方、VPS-Wはこの温度においても照射硬化が生じ、基板の種類に依存せず350~380 Hvの硬化が確認された。500℃での純Wの照射硬化機構は照射欠陥の形成だけではなく、Wの核変換によってrhenium(Re)およびosmium(Os)が形成され、W-Re又はW-Re-Os合金になることの影響も報告されている[1]。硬化量の照

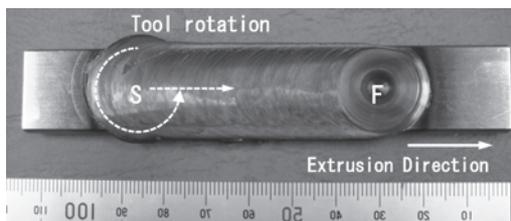


図1 FSW処理後のODS鋼の板材。

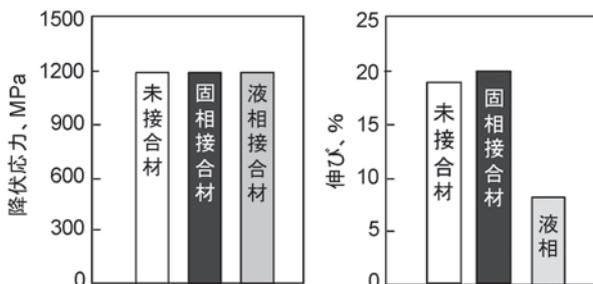


図2 ODS鋼の母材、SSDBあるいはTLPB材の室温における引張特性の比較。

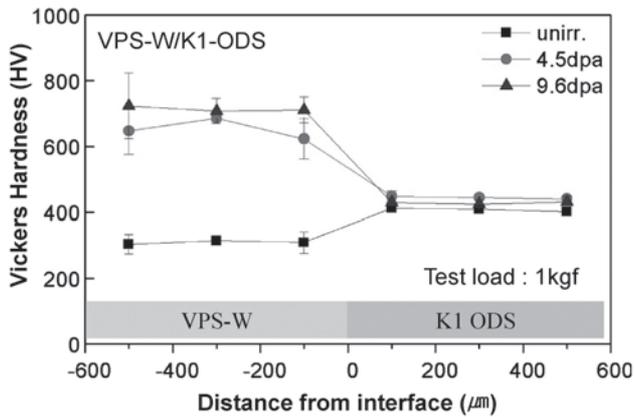


図3 HFIR照射前後のVPS-W被覆断面に対する硬さ変化。

射量依存性を図4に示す。粉末焼結法で製作したバルクW材は同照射条件で $\Delta 530$  Hvの照射硬化を示したが、本研究で作成したVPS-W材は、照射量が増えても $\Delta 360$  Hv程度の硬化量に止まっており、照射硬化能が小さいことを示している。逆に、鉄鋼材料である基板は、焼鈍回復効果によって硬度がやや減少しており、この傾向は従来の結果に等しい。

#### 4.2.3.3 FSW処理したODS鋼の照射影響評価

##### 1) FSW処理後のODS鋼の組織変化

ODS鋼は、優れた高温強度特性、耐照射性、耐環境性を併せもつため、核融合ブランケット構造材料および燃料被覆管材料として実用化をめざした研究が行われている。しかし、前述したように、ODS鋼を大型・複雑形状を有するブランケット構造部材に適用するためには、融点を越えてしまうような通常の溶接法の適用が困難であるために（分散粒子が粗大化してしまうため）、新しい接合技術開発が重要課題になっている。FSW法は、ODS鋼の微細酸化分散粒子を保存できる革新的な固相接合法として期待されている。まず、FSW法の適用性を調べるために、ODS鋼(Fe-15Cr-4Al-0.5Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)押し出し棒材から切り出した板材(5 mm厚)に対する摩擦撈拌処理(FSP)を行い、微細組織や硬さについての評価を行った。微細組織および強度特性を調べた結果、FSP後の組織は撈拌部(SZ)、熱影響部

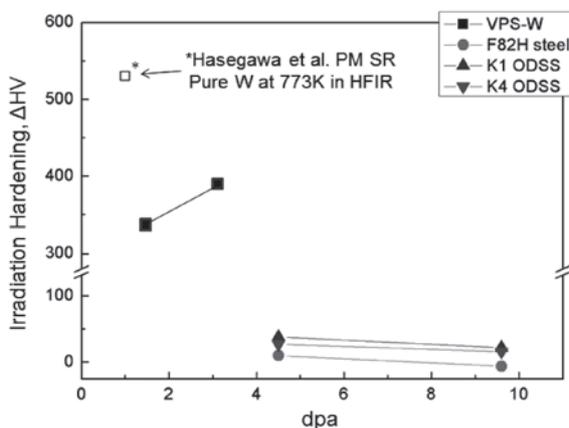


図4 VPS-Wおよび各種基板鉄鋼材料における照射硬化の照射量依存性。

(HAZ)および母材部(BM)で構成され、いずれの箇所にも気孔や亀裂などの溶接欠陥は観察されなかった。撈拌部は動的再結晶によって結晶粒の粗大化が観察されたが、結晶粒の形状に異方性はみられず、等軸結晶粒が観察された。すなわち、撈拌処理により再結晶化が進み、結晶粒の粗大化が生じたが、ODS鋼に特徴的な金属組織や強度特性における顕著な異方性が抑制された。撈拌部の酸化粒子の分散状況を調べた結果、母材とほぼ同様に微細分散されていることを確認した。結晶粒の粗大化に伴い、室温における引張強度は低下したが、酸化粒子の分散状況の変化は小さく、700℃での高温引張強度の低下は小さいことを確認した。FSW法はODS鋼においては、その異方性改善だけではなく、高温強度を保持することのできる適切な接合方法であると結論した。

##### 2) FSW処理後のODS鋼の照射硬化挙動

次に、FSW処理を受け、組織が領域ごとに異なる時の照射硬化挙動の相違について比較検討した。摩擦撈拌処理したODS鋼の断面から取得した板試験片(4×16×0.15 mm)をHFIR(カプセルT9G1)によって300℃、1.2 dpaの照射量で照射し、照射前後における硬度分布を比較した。断面硬さ分布を調べるために硬さ試験機Mitutoyo AAV-500を用い、荷重200 gf、測定点の間隔0.5 mmで10秒間測定した。非照射材についても同条件で硬さ測定を行い、照射後結果と比較した。

図5にHFIR照射前後の断面硬さ分布測定結果を示す。各交点の色は対応する硬さのレベルを示している。母材は320 Hv以上の硬さを示しているが、撈拌部は動的再結晶化によって結晶粒の粗大化が進み、220 Hv程度の硬さを示している。これら各領域について、HFIR照射後はそれぞれ310~420 Hvの硬さ分布が認められたが、この結果に基づき、照射硬化量の分布を示すと、図5(d)のように組織変化に伴って硬化量の変化することが判明した。

図6に摩擦撈拌処理したODS鋼の各部(撈拌部、熱影響部、母材部)の硬化量測定結果を示す。照射後各部の硬化量は異なるが、照射後に到達した硬さの分布は350 Hv前後に平滑化されている。すなわち、摩擦撈拌処理によって低下した部分は300℃の照射の影響で母材部と同等の硬度を示したと言える。これは、摩擦熱の発生により撈拌部の転位組織の回復が生じたことを示唆しており、各部の転位密度の相違によると推測される。結晶粒度と硬度の相関関係(図7)から計算した転位密度差は $6.5 \times 10^{11} \text{ m}^{-2}$ と評価されている。今後、照射量依存性及び透過電子顕微鏡による内部組織観察を行う必要がある。

#### 4.2.3.4 EB溶接したF82H鋼における中性子照射影響

##### 1) 溶接部における硬度変化

F82H鋼をはじめとする低放射化フェライト鋼およびそのEB溶接材は、一般に、300℃近傍の温度で中性子照射されると転位ループの形成などに起因した照射硬化が生じ、加えて核変換ヘリウムおよび水素による重畳効果も懸念される。溶接材には、熱影響の度合によって溶接金属部(WM: Welded Metal)と熱影響部(HAZ: Heat Affected Zone)が形成され、それぞれの微細組織は結晶粒サイズや

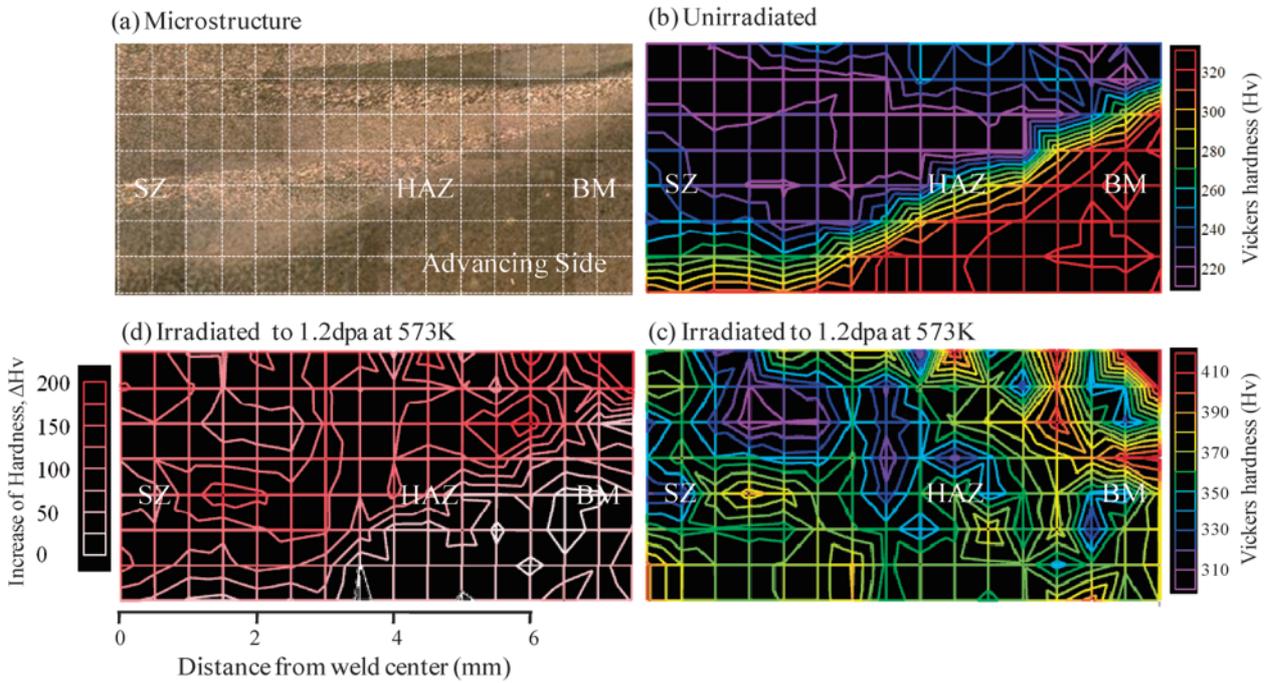


図5 HFIR照射前後の摩擦攪拌処理した ODS 鋼の (a)断面組織観察, (b)照射前の硬さ分布, (c)照射後の硬さ分布, (d)照射硬化量.

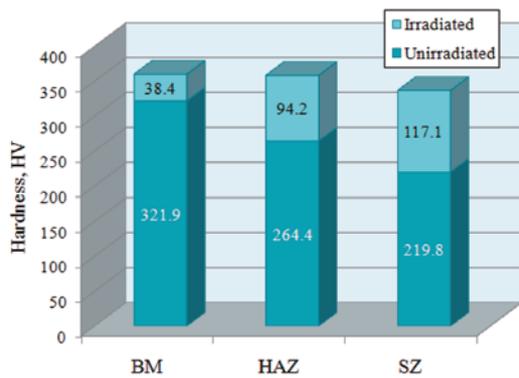


図6 摩擦攪拌処理した ODS 鋼の各部 (母材部, 熱影響部, 攪拌部) の硬化量.

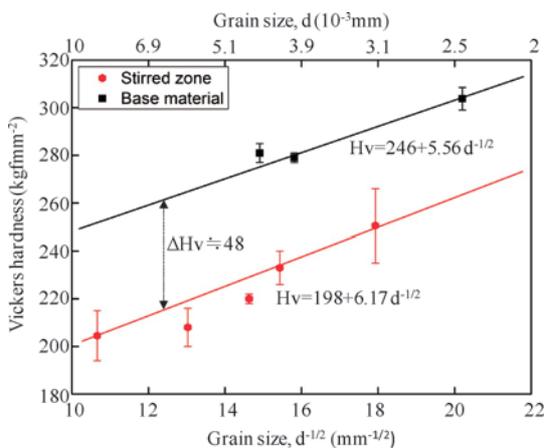


図7 摩擦攪拌処理した ODS 鋼の各領域における結晶粒度と硬さの関係 (Hall-Petch 相関関係).

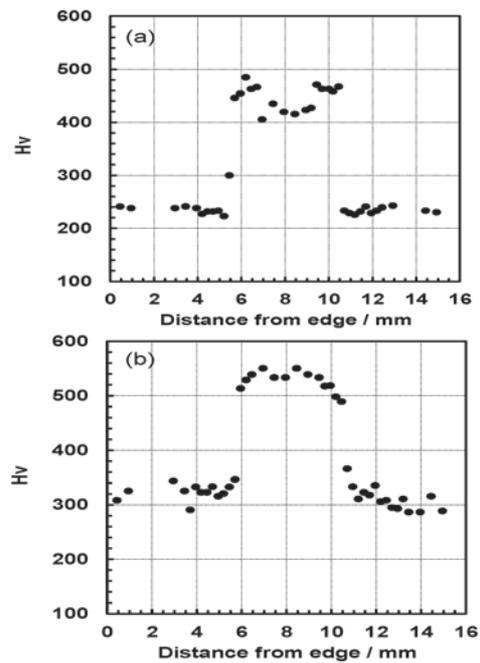


図8 EB溶接F82H材における照射前後の硬度変化. (a)照射前, (b)照射後.

析出物分布などが母材 (Base metal) と異なるため, 溶接部の複雑な強度分布に反映される. 一般に, WMは硬く, HAZでは柔らかい. 図8は, 中性子照射 (300°C, 9.6 dpa) 前後における溶接部の硬さ分布を示しており, 硬化量は各領域において概ね 100 Hv 程度であり, F82HのEB溶接材は母材と同程度の照射硬化を示すといえる.

## 2) 溶接材の引張特性変化

ホットセル内に設置された引張試験機にて, 室温および照射温度 (300°C) での引張試験を実施した. 引張試験片は, ゲージ平行部の中央に溶接境界が存在するように作製

した。F82H-EB 溶接材および F82H-IEA 母材の応力-歪曲線を比較 (図 9 参照) すると、照射前では EB 溶接材は母材に比べ降伏応力はやや大きく、伸びは小さい。また EB 溶接材は、降伏後の加工硬化能も相対的に小さい。照射後は、F82H 母材および EB 溶接材ともに降伏応力は著しく増加し、降伏後はほとんど加工硬化せずに破断に至るが、500°C 照射ではこのような現象はみられない。これは、300°C 照射において生成した転位ループが降伏応力の増加に寄与し、降伏応力後の伸びの減少は、転位チャネリングに代表される局所変形機構が生じていることを示唆している。破断後の破断面を SEM により観察すると、300°C で 9.6 dpa まで中性子照射した EB 溶接材の破断面にはマクロな起伏が観察され、破断面中心においてはディンプル組織が観られた。また、破断部の先端はくびれており、不均一変形のもの、破断に至ったことが確認された。さらに、破断は試験片平行部の中央ではなく端部で生じており、微細粒組織の外側で破断する試料も一部存在した。この熱影響部と母材の境界における破断の場合は、先に述べた転位チャネリングに起因する機構とは異なる局所変形が生じていると考えられる。これらの結果から、照射前における組織の均質化は照射脆化の抑制に向けて効果的であるといえる。

3) ヘリウムおよび水素の影響

核変換 He および H が微細組織に及ぼす影響について検討するため、イオン加速器および超高压電子顕微鏡を用いてシミュレーション照射実験を行った。純鉄に対し、超高压電子顕微鏡を用いて 400°C で 10 dpa まで電子線照射を行ってもボイドの形成は観察されないが、He<sup>+</sup> (1000 appm) を室温で予注入した後に電子線照射を行うと、平均径: 2.3 nm, 数密度: 2.2 × 10<sup>21</sup> m<sup>-3</sup> のボイドの形成が確認された。これに H<sup>+</sup> (2000 appm) 予注入が加わった場合は、さらに高数密度のボイド形成 (1.3 × 10<sup>22</sup> m<sup>-3</sup>) が認められたが、平均径 (2.4 nm) に大きな変化はみられなかった。電子線照射実験において形成されたボイドのサイズ分布を図 10 に示す。電子線照射前に He と H が共に存在した場合、観察されたボイドサイズは、4 nm 以下に限定され、He のみが存在した場合と比較して狭いサイズ分布となっている。これらの結果から、ボイド形成に及ぼす H と He の重畳効果が明示された。さらに、室温で H チャージしながら引張試験を行った結果 (図 11), H は降伏強度に影響を及ぼさないが著しい伸びの減少を引き起こすことが示され、トリチウム透過の制御は、機械的特性の健全性維持という観点からも重要な課題であるといえよう。

4.2.4 まとめ

本タスクでは、構造材料の接合部および被覆部の健全性を中性子照射前後において比較検討した結果、製造が困難とされていた ODS 鋼の接合法としては、SSDB および FSW 法が適しており、FSW 材の照射後の硬さが組織に依存しないこと、および F82H 鋼の母材と EB 溶接材の照射後の引張特性がほぼ等しいことがわかった。さらに、W と ODS 鋼を TLPB 法により接合したところ、接合強度 300 MPa が達成され、VPS-W は、500°C での照射により、顕著な硬

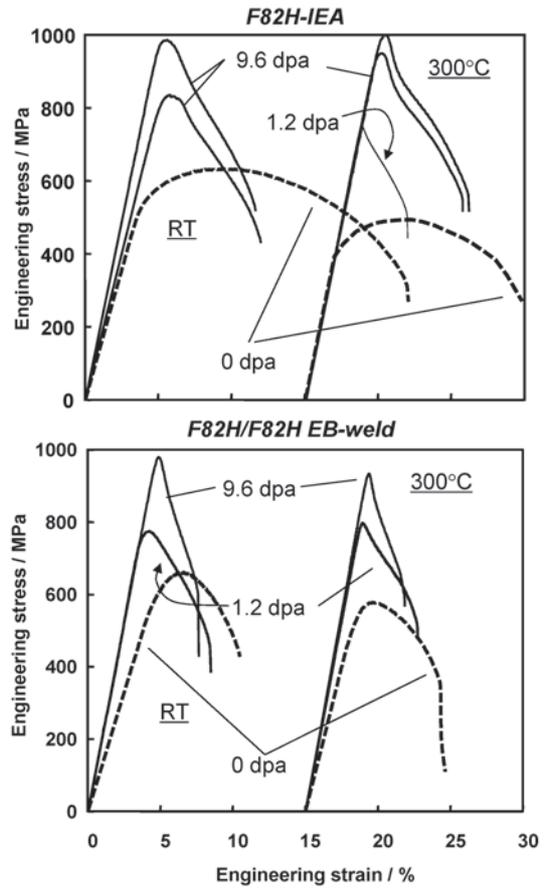


図 9 F82H および EB 溶接 F82H における照射前後の RT および 300°C における応力歪曲線。

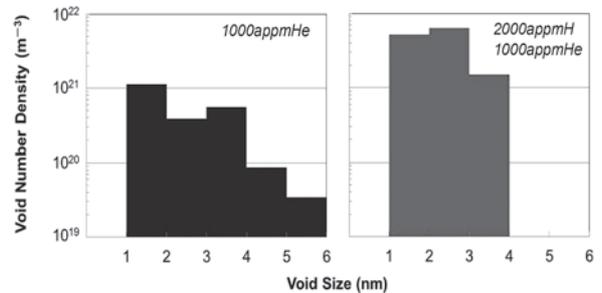


図 10 He のみあるいは He と H を予注入した後、400oC で 10 dpa まで電子線照射した純鉄におけるボイドのサイズ分布。

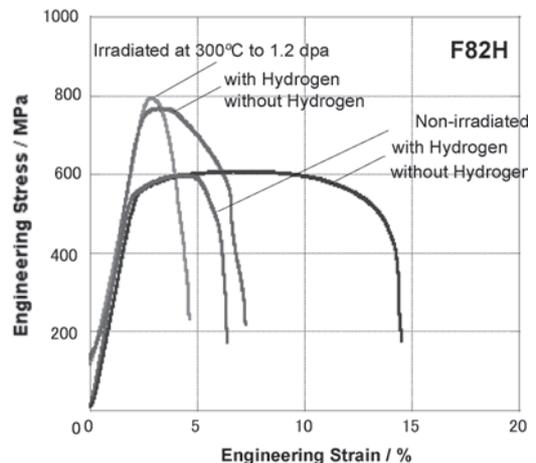


図 11 F82H の引張特性に及ぼす水素の影響。

化を示したが、バルク材に比べ、硬化量が小さいことを明らかにした。

本研究では、照射量が鉄鋼材料に対し、約 10 dpa 以下であり、硬さなどの照射影響を評価するうえでは十分であったが、核変換 He や H の影響を調べるうえでは、さらに重度の照射が必要である。

ODS鋼の接合技術開発に大きな進展がみられ、Wとの異材接合技術においても高い成立性が示されたことの意義は

大きい。今後、これらの技術に基づいて、接合・被覆技術開発が急速に進展すると期待できる。

#### 参考文献

- [ 1 ] S.Noh *et al.*, Acta Materialia **59**, 3196 (2011).
- [ 2 ] A.Hasegawa *et al.*, J. Nucl. Mater. **417**, 491 (2011).
- [ 3 ] S.Noh *et al.*, Material Science Forum **654-656**, 2891 (2010).



## プロジェクトレビュー 日米科学技術協力事業 TITAN プロジェクト

### 4. 照射複合効果に関する研究

#### 4. Irradiation Synergism

##### 4.3 動的変形挙動

##### 4.3 Dynamic Deformation Behavior

長谷川晃, 檜木達也<sup>1)</sup>, 野上修平, 四竈樹男

HASEGAWA Akira, HINOKI Tatsuya, NOGAMI Shuhei and SHIKAMA Tatsuo

東北大学, <sup>1)</sup>京都大学

(原稿受付: 2013年8月2日)

タスク2-3においては低放射化材料であるSiCの照射環境下における動的変形挙動をSiC/SiC複合材料のSiC繊維およびマトリックスの素材に対して, 原子炉内での応力緩和試験を行って明らかにした. またブランケットにおける照射環境下で弾き出し損傷の導入とトリチウム生成が同時に起こった際の構造材料中でのトリチウムの挙動について, 増殖材とSiCの拡散対の照射材を使って調べた.

#### Keywords:

irradiation creep, silicon carbide, displacement damage, tritium, synergistic effect

#### 4.3.1 緒言

照射下クリープは核融合炉のように中性子の高い照射線量を受ける構造物では材料の寿命を決める大きな因子の1つと考えられている. 材料は応力や歪みが負荷されると変形したり内部応力が発生したりする. 降伏応力や極限引張り強さなどは短時間に応力が加わったときの材料が塑性変形(永久変形)を始める応力であり, 均一伸びが最大になるまでの引張り応力として定義されるが, 一般には時間に依存しない量として使われている. 一方, クリープ現象は時間に依存する変形現象の1つで, 例えば短時間応力負荷では弾性変形しか起こらないような応力レベルであっても, 100時間, 1000時間あるいは1年とか10年という間, 応力をかけ続けると, 明瞭な塑性変形が起こり, 場合によっては材料が破断する現象を言う. クリープの発生機構は種々あるが, 高温の材料中で原子の拡散が起こりやすい環境における転位の移動や空孔の拡散, 粒界のすべりなどによって起こる熱クリープが重要であり, 高温環境下で一定の応力が長時間かかるようなガスタービンの動翼(ブレード)やボイラー容器などで, その機器部材の寿命を決める重要な因子として, 機器の設計や保守などで研究されている.

上記のような高温という環境条件で起こる熱クリープに対して, 原子炉などの中性子照射環境下で弾き出し損傷による格子欠陥が材料中に多量に導入される条件下で発現する時間依存の変形現象を照射下クリープという. これは, 通常は熱クリープが起こらないような低い温度においても, 照射環境下では原子空孔や格子間原子が多量に存在す

ることで, 見かけ上拡散が促進され, 応力負荷環境下で転位の移動の異方性などが発現するために起こる[1]. 金属材料では軽水炉などの炉心構造物におけるボルトの応力緩和や, 高速増殖炉の燃料被覆管の内圧上昇による破損, 核融合炉構造材料のブランケット部などで機器の材料の寿命を決める因子として考えられており, 金属材料においてはオーステナイトステンレス鋼を中心に照射下クリープの種々の研究が行われてきた[2].

この照射下クリープの歪み速度は下記のように表される.

$$\dot{\epsilon} = B_0 \sigma^n \phi \quad (1)$$

ここで $B_0$ は照射下クリープの応力と歪みの関係を示すコンプライアンス(compliance)と呼ばれる係数で単位は $\text{MPa}^{-1}\text{dpa}^{-1}$ ,  $\sigma$ は応力(MPa),  $n$ は応力指数,  $\phi$ は損傷導入速度(dpa/sec)である. これまでの金属材料においては照射下クリープ速度と負荷応力は線形の応力依存性を示し,  $n=1$ とされている.  $B_0$ は歪み速度が一定となる定常クリープ領域では一定値であるが, 遷移クリープ領域では照射量(dpa)に依存することが報告されている. 照射下クリープは前述のように構造材料の不安定変形から破断に至る変形だけでなく, 弾性的に負荷された応力の緩和も引き起こし, 内部応力の緩和という応力状態の変化ももたらす. この量は応力残留比(Stress Retention Ratio:  $m$ )として初期応力に対するクリープ変形後に残留する応力の比として定義される. これまでの金属材料での研究では以下の挙動が報告されている. 照射量の少ない時には $m$ はほぼ1

Corresponding author's address: Tohoku University, Sendai, MIYAGI 980-8579, Japan

Corresponding author's e-mail: akira.hasegawa@qse.tohoku.ac.jp

であるが、照射量が増すにつれて応力が緩和し始め、 $m$  は0に近づく。この時 $B_0$ が小さい場合には、応力緩和が低照射領域から表れ、 $B_0$ が大きい場合には応力緩和が高照射領域まで起こらない。この応力緩和の現象は具体的には軽水炉の炉心機器に使われる金属製のバネの反発力を低下させ、燃料集合体の破損の原因の1つになる。一方で応力緩和により、材料中のき裂先端に発生する応力集中を緩和し、炉心材料におけるき裂発生から進展と破壊に至るプロセスを抑制するという利点もある。

一方、セラミックスは元々脆性材料であり、原子力用の構造材料として使われることはあまりなかったため、照射下でのクリープ現象はほとんど調べられてこなかった。しかし核融合炉の実用炉においては、放射化が起こり難い元素からなり、発電効率を高くできる高温での使用が可能なSiC（炭化硅素）繊維強化でSiCを母相とするセラミックス系のSiC/SiC複合材料が構造部材として検討されており、降伏応力や熱クリープなどに加えて、照射下クリープも構造健全性の担保のためには検討対象の1つとなっている[3]。一方、低放射化鉄鋼材料を構造材料として、冷却材にPb-Liを使った系においても、Pb-Li流路内におけるMHD圧力損失を防ぐための電気絶縁材料としてSiC/SiC複合材料がフローチャンネルインサートという機能性材としても検討されている。このフローチャンネルインサートは、電気絶縁とともに熱遮蔽材ともなるため、部材内に大きな温度勾配が発生する[4]。そのため照射によるスエリングや熱膨張により、部材内に内部応力の発生が予想されている。この内部応力による変形や破損もブランケットシステムにおいて重要な問題である。

このような背景の下にSiC/SiC複合材料が開発されているが、SiCそのものの材料特性である照射下クリープのデータがほとんどないという状況であった。一方、SiCは高温ガス炉の被覆粒子燃料の被覆材として1970年代にPriceなどが応力緩和実験による照射クリープのデータを発表しているが[5]、実験方法の精度や材料の素性、実験データの整合性など詳細な部分で十分ではなかった。そこでTITAN計画のタスク2-3においては、新たに開発されている複合材料と同じ素材をもちいて、セラミックス用の応力緩和手法を改良し、SiCの基本的な特性として照射下クリープに起因する応力緩和の挙動を明かにし、さらに原子炉内での照射下クリープ評価のための照射装置開発の検討を行うことを目的とした。また、TITAN計画における中心テーマであるトリチウムと材料の照射下におけるシナジー効果については、SiCと増殖材料を接触させて原子炉照射し、中性子照射中にトリチウムを注入した試料中のトリチウム分布を調べ、その基本的挙動を明かにすることを目的とした。

### 4.3.2 実験方法

#### (1) 照射下クリープ試験

本研究におけるセラミックスの照射下クリープの試験方法は以下の通りである。この手法の基本原理はセラミックス繊維の応力緩和試験のために開発されたものであるが

[6]、SiCのバルク材における照射下クリープ挙動を解明するために改良された。専用の治具を用いて治具の形状に合わせて、薄片状の試験片をある一定量だけ弾性的にたわませて弾性歪みを与え、それを治具ごと照射し、照射後に治具から取り外し、照射前に与えた弾性歪みがどれだけ回復するかを測定する。これにより照射下の応力負荷下でおこる塑性変形である照射下クリープ量を評価した。この手法を曲げ応力緩和（Bend Stress Relaxation: BSR）法という。この時試験片に与えるたわみ量や試験片の厚さを変えることで、試験片に加える応力を試験パラメータとして変えることができる。試験片は薄片状（40×1 mm、板厚0.05, 0.1, 0.15 mm）に加工したものを使用した。この治具の概要を図1に示す[7]。

最初に与えた弾性的たわみの曲率半径を $R_0$ として、試験後の曲率半径を $R_a$ とすると

$$m = \frac{\sigma_a}{\sigma_0} = \frac{E_a(\epsilon_0 - \epsilon_c)}{E_0\epsilon_0} = \frac{E_a}{E_0} \left(1 - \frac{R_0}{R_a}\right) \quad (2)$$

で定義される $m$ がBSR応力残留比として求められる。実際に用いた治具の曲率半径 $R_0$ は100 mmであり、板厚を0.05, 0.1, 0.15 mmと変えることで、試験片に加える曲げ応力をそれぞれ約100, 200, 300 MPaとした。

具体的な応力緩和の評価のための試験片のたわみの状況を図2に示す。照射後に試験片を治具からはずした際に最初の平らな状態（曲率半径 $\infty$ ）に戻り試験中の弾性歪み変化が無い場合は $m=1$ となり、試験中に応力緩和は起こっていないことを示す。照射後に治具からはずした後も治具の形状と同じ曲率でたわんだままである場合は、完全に応力緩和したことを示し、 $R_a=R_0$ となり $m=0$ となる。

この試験法の特徴として、脆性材料に弾性変形を起こさせる応力負荷が可能なこと、照射後試験が曲率を計測するだけと単純であること、試験片の全長から照射による組織変化によるスエリングも計測できることが挙げられる。一方、脆性的なセラミックスをたわませるために、試験片を最小で50  $\mu\text{m}$ 程度と薄くする必要があり、バルクのセラミックスから試験片への加工に高度の技術を必要とする。

照射は図1で示した治具を図3に示したように組み立て、それを4つ重ねてモリブデンケースに収納し、さらにアルミニウムケースにいれてラビットキャプセルに収納した[8]。ラビットキャプセル内はヘリウムガスが充填され、ガスの熱伝導によりキャプセル外側の炉水で冷却される。

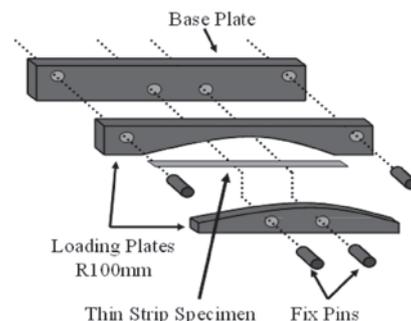


図1 照射下応力緩和試験用治具[7]。

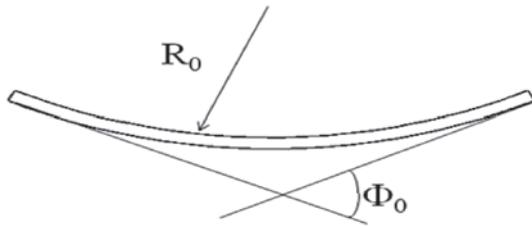


図2 応力緩和量の測定方法.

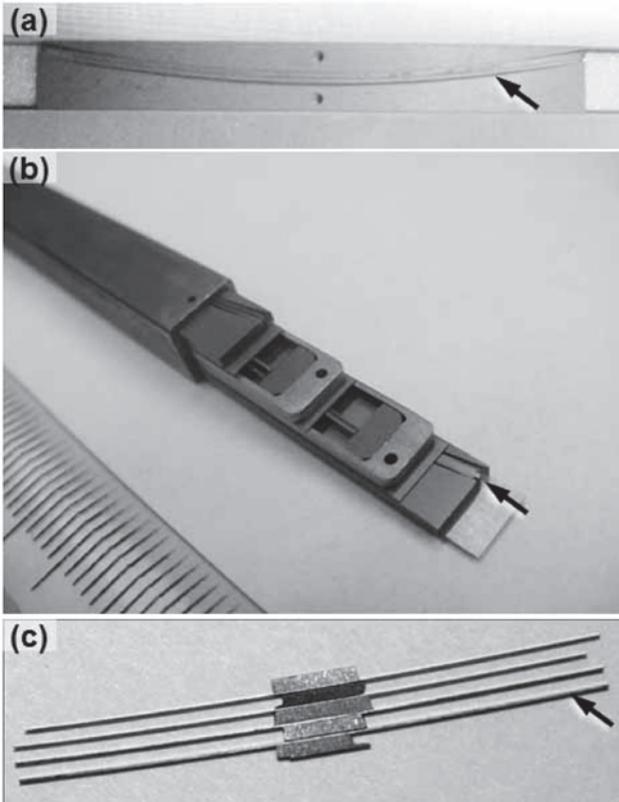


図3 応力緩和試験用治具 (a)組み立てた治具の外観, (b)4つの治具を1つの角形ケースに収納した様子, (c)照射後の試験片 (矢印) を並べた状況 [8].

これらのキャプセルを HFIR の水力ラビットまたは固定ラビットにおいて照射した。照射温度は 573 K, 773 K, 1073 K, 1473 K の 4 温度であり, それぞれ 0.01, 0.1, 1, 10 dpa の損傷量で, 合計16条件の照射を行った。

照射条件は非常に幅広いが, 試験片や治具の形状を一定にすれば, ほぼ同じ設計でいくつもの条件で照射が可能になり, 予算や試験片の準備の手間を大幅に省くことができた。ラビットキャプセルは小型 (照射体積: 直径 6 mm × 長さ 50 mm 程度) のため, 大型の試験片や多くの試験片は照射できないが, 水力ラビットを用いると原子炉の運転中でもキャプセルの炉心への装荷と取り出しができることから, 原子炉の 1 サイクル (約一ヶ月間) で照射できる約 0.5 dpa 以下の照射も可能である。一方, 照射に複数回のサイクルを必要とする重照射 (1 dpa 以上) においては, 固定ラビットを用いて照射すればよく, 平行していくつかの照射実験が可能になるというメリットがある。タスク2-3の照射マトリックスは, このラビット照射の特徴をうまく生

かしたものと言える。一方, ラビットキャプセルでは熱電対による照射中の温度の計測はできないため, 各キャプセルに SiC などの温度モニター材を入れ, 照射後の焼鈍による電気伝導測定により照射温度を決定した。照射温度はそれぞれ 653, 813, 1063, 1453 K であった。

照射後試験は, SiC の放射化のレベルが低いために, 10 dpa 照射の試験片も実験者の手でハンドリングが可能であることから, ORNL の LAMDA において実施した。照射による試験片の曲率半径は, 治具から試験片を取り外して光学顕微鏡により測定し, スエリングは試験片のたわみを元に戻して平らにした時の長さ変化から求めた。照射による微細組織変化は, 照射試験片を東北大学金研の大洗施設に送って, 今後日本国内において調べる予定である。

(2) 照射中の SiC 中のトリチウムの挙動

本研究に用いた試験片は, 先の JUPITER-II 計画で照射した SiC (CVD-SiC, Rohm & Hass 社製) と固体増殖材 (Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub>, LiAlO<sub>2</sub> 等の複合酸化物) の拡散対の試験片を用いた。この試験片は JUPITER-II 計画において SiC と固体増殖材の高温での照射下共存性研究のために, 可動式ベリリウム反射体領域 (RB\*) の大型の照射試験装置の HFIR-18J を用いて, 図 4 (a) に示すような配置で, 溶接により密封したモリブデンキャプセル内において 1073 K で 5.9 × 10<sup>25</sup> n/m<sup>2</sup> (E<sub>n</sub> > 0.1 MeV), SiC の損傷量で 5.9 dpa の照射を行った試験片である [9]。これらの試験片には原子炉での照射中に中性子と増殖材中の <sup>6</sup>Li の核反応によって生成したトリチウムがかなり含まれていたため, 試料の取り扱いが困難になり, 照射後試験が行えなかったものである。今回 TITAN 計画においてトリチウム挙動が大きなテーマであったので, ORNL の LAMDA においてトリチウム含有試験片の取り扱いや試験片研磨のための手続き, 安全性のチェックを行って許可を取り直し, TITAN の試験片として再利用したものである。この試料を使って SiC における

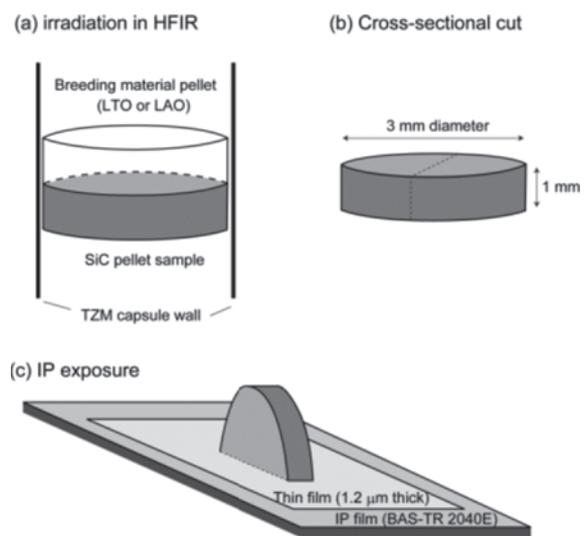


図4 (a) SiC と固体増殖材の拡散対の炉内での状況, 数個の拡散対をモリブデン合金のキャプセルに挿入し, Ar ガス中で封入したものを照射した。(b)照射後の SiC 試験片の切断と研磨の方向, (c)断面研磨後の SiC 試験片の IP を使った露光の方法 [10].

トリチウムと照射のシナジー効果を調べるにあたっては、固体増殖材と接触していた SiC 表面と、照射雰囲気中にはトリチウムはあったものの固体増殖材に接していなかった SiC の表面のそれぞれについて、表面近傍のトリチウム量および分布を調べることで、SiC において照射損傷とトリチウム生成が共存している環境におけるトリチウムの挙動の違いを調べた。図 4 (b), (c) はこの実験の手順を示したものである [10]。表面近傍のトリチウム分布は SiC の断面を切り出し、研磨し、この面をイメージングプレート (Imaging Plate: IP) 上においてトリチウムからの軟  $\beta$  線に感光させ、その感光量 (Photo-stimulated luminescence: PSL) を読み出して計測した。

### 4.3.3 結果

#### (1) 照射下クリープの結果

図 5 は CVD-SiC の試料で得られた応力緩和の結果を、応力残留比  $m$  と照射量 (dpa) に対してプロットしたものである [8]。非照射で、負荷応力が約 65 MPa で、 $m$  値は 873 K で 0.9, 1073 K で 0.85, 1473 K で 0.75 であり [11]、高温ほど照射による緩和が顕著に現れた。横軸方向のエラーバーは、照射開始時の応力と、照射終了後の緩和した後の応力の範囲を示している。照射前の負荷応力が高いものほどエラーバーが大きくなる傾向にある。この結果から、3 種類の高純度 CVD-SiC を比較したところ、応力残留比  $m$  は材料と照射温度、照射量によらずいずれも試験をした応力範囲内で負荷応力依存性はみられなかった。同じ照射レベルで  $m$  の値が応力の大きさによらないということは、応力指数  $n$  は 1 であることを示している。この傾向は、これまで照射クリープの挙動が明らかになっている金属材料やグラファイトなどと同じ傾向である。一方、通常材料の高温環境下での熱クリープでは  $n$  は 1 より遙かに大きく、SiC の熱クリープ (1673 K 以上) でも  $n$  は 1 よりも大きな値をとる。

応力緩和と挙動の照射量依存性を図 6 に示す [12]。試験片は CVI-SiC/SiC および NITE-SiC/SiC 複合材料の母相と同じ CVD-SiC および LPS (液相反応焼結法) による SiC である。応力残留比  $m$  値は最初照射量の増加とともに減少する。これは照射クリープによる応力緩和の進行を示している。しかし高純度材の CVD-SiC では、0.1 dpa 以上で照射量依存性が飽和する傾向が見られ、応力負荷時間が増加するにつれて遷移クリープから定常クリープに変わって応力緩和が大きくなるという一般的傾向から外れた挙動が見られた。これは CVD-SiC ではクリープ変形による応力緩和は定常クリープではなく、遷移クリープが支配していることを示している。一方、LPS 法の SiC では 1 dpa 以上の照射で飽和することなく、CVD-SiC に比べて大きな応力緩和を起こしている。これは LPS-SiC では焼結助剤として添加した酸化物などが粒界や粒界三重重点などに残っており [13]、これらが高照射量領域での応力緩和に寄与したものと考えられている。図 6 にある LPS-2 は LPS-1 に比べて焼結助剤を約半分に減らしたものであるが、同じような応力緩和の挙動を示しており、LPS の照射誘起の応力緩和は助剤の量そのものには顕著に依存しないと考えられる。

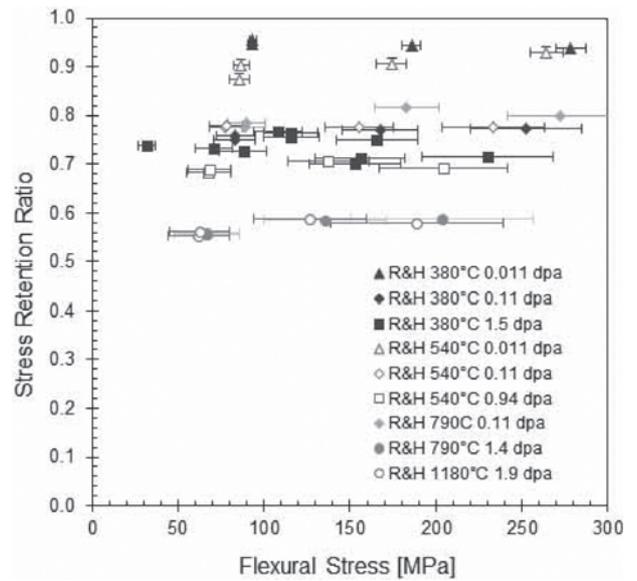


図 5 応力緩和におよぼす負荷応力依存性。試験片は Rohm & Hass 製の CVD-SiC [8]。

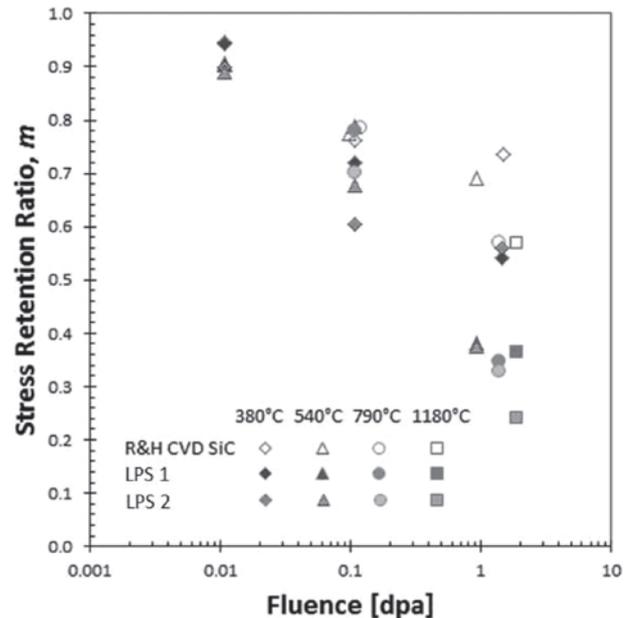


図 6 応力緩和に及ぼす照射量依存性。試験片は高純度 SiC である CVD-SiC と、液相焼結 (LPS) で作製した SiC [12]。

応力緩和の照射温度依存性については、図 6 に示すように 0.1 dpa までは明確ではないが、1 dpa 以上では照射温度によって応力緩和が異なってくるのも特徴である。さらに解析してみるといくつか興味深い点が明らかとなった。653–723 K の温度領域での応力緩和の挙動は材料による大きな差がないということであり、応力緩和が温度に鈍感な領域といえる。

1063 K を超えると材料間の差が明確になり、LPS では緩和の挙動が明確になり、CVD-SiC などの高純度材では応力緩和が飽和する傾向にあり、製法によってその差が現れてくる。これらの挙動の異なる原因として微細組織に関連して LPS では焼結助剤が考えられ、CVD-SiC の場合は結晶粒

の大きさや配向がその原因の1つと考えられている。

損傷組織とクリープ挙動の関係については、今後試験片を日本に輸送して行う微細組織観察の結果が待たれるが、セラミックスであるSiCにおける照射下クリープの挙動、特に初期の応力緩和の挙動が、金属材料と多くの共通点をもっていることが明らかになったのは大きな成果と考えられる。TITAN計画では米国側がラビットキャプセルを使って、遷移クリープ後の定常クリープを調査するためのキャプセル設計を行い、その設計とプロトタイプの実験も行われた。今後、これらを使ってのSiC/SiC複合材料や金属材料の照射下クリープ研究がさらに発展する可能性を示したといえる。

## (2) 照射とトリチウムの同時効果

HFIRで固体増殖材とともに照射したCVD-SiCの断面をIPを使って放射性物質の分布を調べた結果を図7に示す[10]。図7はIP(Imaging Plate)の光輝尽発光(Photostimulated Luminescence: PSL)分布であり、赤い部分がPSLの高いところ、すなわち $\beta$ 線による感光の高いところである。中央の水色の長方形が試験片のSiCである(白線枠)。この長方形の上側が $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ (LTO)と接触していた面である。中央の黄色の領域の直下の赤い線状の領域が固体増殖材に接した面からの $\beta$ 線により最も強く感光した部分である。SiCそのものにも中性子照射による核変換で $^{14}\text{C}$ が生成し、これからの $\beta$ 線の感光がIPのイメージがあらわれる可能性がある。この寄与については同時に増殖材/SiC拡散対キャプセルの外にて照射したSiCから得られたIPイメージと比較したが、それは図7の中央の白線枠の長方形と同じ程度の感光量であった。図7からわかるように $^{14}\text{C}$ からの感光量はSiC表面に注入されたトリチウムによる感光量に比べて十分低いことが分かる。また固体増殖材表面側の感光部分はIPに接触しているSiC中のトリチウムからの $\beta$ 線のみならず、IPに接触していない注入表面から空気中に放出された $\beta$ 線によるかぶりによる寄与もある。

図7の長方形のSiCの中央部分における深さ方向のIPの感光量を数値化し、SiCの端面からの距離でプロットしたのが図8である[10]。 $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ (LTO)と $\text{LiAlO}_2$ (LAO)の場合と、増殖材なしで拡散対キャプセルの外側で照射されたSiCの表面から断面深さ方向へのトリチウム分布を示す。リチウムの核変換 $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{H}$ により、核反応生成物のトリチウム(2.74 MeV)と $\alpha$ 粒子(2.06 MeV)が反対方向に放出されるが、固体増殖材からはそれぞれが弾き出し損傷を作りながらSiC中に注入される。SiC中でトリチウムの最大飛程は約25 $\mu\text{m}$ である。また $^6\text{Li}$ はHFIR中において約200時間で全て核変換する。この時、これらのイオンによってSiC中には約3 dpaの損傷が導入される。一方、中性子による照射損傷は約3000時間で5.9 dpaであり、これらの損傷欠陥の総合的な影響があって、1073 Kの照射初期の200時間にSiC中に注入され、欠陥集合体に捕獲されたトリチウムがその後の2800時間の温度保持によってもSiC中に残っていることが示された。

過去には気相状態のトリチウムを熱拡散によりSiC中に導入した報告などがあったが[14]、気相からの導入は

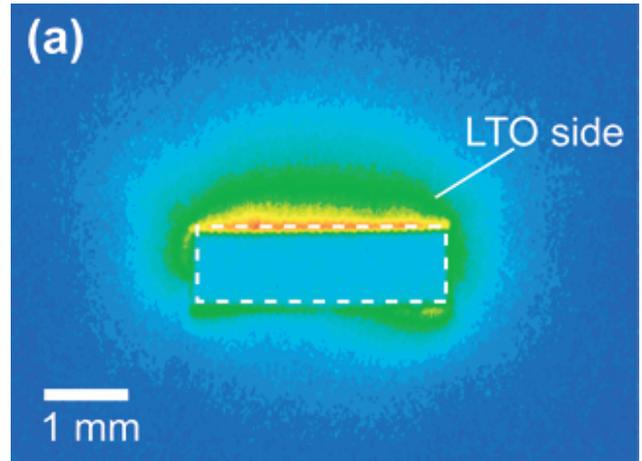


図7 固体増殖材( $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ )とCVD-SiCの拡散対としてHFIRで1073 K、5.9 dpa照射したSiCの断面をIPで撮影したもの。赤い部分がトリチウムからの $\beta$ 線による感光部分[10]。

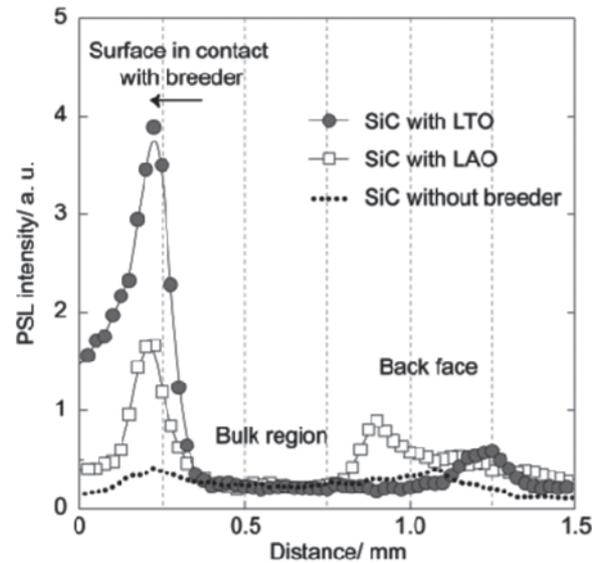


図8 照射したSiCの表面から深さ方向へのIPの感光量(PSL)分布[10]。

1473 K以上の温度であった。今回のモリブデンのキャプセル中は1073 Kで気相のトリチウム雰囲気であったが、この環境では照射中であってもSiC中にはIPの感度にかかるようなトリチウムは熱拡散でSiC中には入っていない。しかし増殖材がSiC表面に接している時には、SiCの表面近傍に捕獲されていた。今後の課題として、IPの感光量からの固体SiC中に含有しているトリチウム量の定量や、IP測定を改良して表面から飛程の25 $\mu\text{m}$ の間の濃度分布として求めること、微細組織観察によりどのような欠陥にトリチウムが捕獲されているかなどを明らかにする必要がある。

### 4.3.4 まとめ

応力緩和試験法により、SiCの照射下クリープ挙動が明らかとなった。今回の試験温度領域では応力緩和の応力指数は1であることを初めて明らかにした。高純度のCVD-SiCでは照射量が1 dpa以上では応力緩和量は飽和する傾向が見られたが、液相焼結によるSiCでは1 dpa以上で焼結

助剤が原因と思われる大きな応力緩和がおこることがわかった。

照射損傷とトリチウムのシナジー効果については、SiC 表面に接し、核反応の反跳で SiC 中に注入されたトリチウムが1073 Kで3000時間の照射によっても SiC 中にとどまっていることが明らかとなった。核反応による反跳粒子や中性子照射によって SiC 中に導入された照射欠陥がその捕獲サイトとして考えられた。一方、気相雰囲気からのトリチウムの SiC への取り込みは本実験からは確認できるほど顕著ではなかった。

#### 参考文献

- [ 1 ] K. Ehrlich, J. Nucl. Mater. **100**, 149 (1981).
- [ 2 ] F.A. Garner, *Comprehensive Nuclear Materials* (Elsevier, 2012), vol.4, p.74.
- [ 3 ] Y. Katoh *et al.*, *in press*, J. Nucl. Mater. (2013).
- [ 4 ] C.P.C. Wong *et al.*, J. Nucl. Mater. **367-370**, 1287 (2007).
- [ 5 ] R.J. Price, Nucl. Tech. **35**, 320 (1977).
- [ 6 ] G.N. Morscher, J. Am. Ceram. Soc. **75**, 136 (1992).
- [ 7 ] Y. Katoh *et al.*, DOE/ER-0313/35, 13 (2005).
- [ 8 ] Y. Katoh *et al.*, J. Nucl. Mater. **434**, 141 (2013).
- [ 9 ] H. Katsui *et al.*, Fusion Sci. Tech. **60**, 288 (2011).
- [ 10 ] H. Katsui *et al.*, *in press*, J. Nucl. Mater. (2013).
- [ 11 ] K. Abe *et al.*, J. Nucl. Mater. **417**, 356 (2011).
- [ 12 ] T. Hinoki *et al.*, Mater. Trans. **54**, 472 (2013).
- [ 13 ] T. Koyanagi *et al.*, J. Nucl. Mater. **417**, 435 (2011).
- [ 14 ] R.A. Causey *et al.*, J. Nucl. Mater. **203**, 196 (1993).



## プロジェクトレビュー 日米科学技術協力事業 TITAN プロジェクト

### 5. システム統合モデルに関する研究

#### 5. System Integration Modeling

相良明男, 乗松孝好<sup>1)</sup>, 橋爪秀利<sup>2)</sup>

SAGARA Akio, NORIMATSU Takayoshi<sup>1)</sup> and HASHIZUME Hidetoshi<sup>3)</sup>

核融合科学研究所, <sup>1)</sup>大阪大学レーザーエネルギー学研究中心, <sup>2)</sup>東北大学大学院工学研究科

(原稿受付: 2013年8月11日)

日米 TITAN プロジェクトの Common-Task の役割は, 磁場核融合炉と慣性核融合炉設計で共通の, ブランケットでの物質・熱輸送循環システムの構築をめざすタスク1-1から1-3, タスク2-1から2-3までの計6サブタスク構成を縦糸とし, その実験研究成果をシステム統合モデリングの横糸によって連結・統合し, 結果を各タスク指針にフィードバックすることである. まず計画前半では, 核融合炉ブランケットでの整合性の高いトリチウム・流動システムの構築に向けての要素間の境界条件と, 研究課題が整理された. 計画後半では, トリチウムとヘリウム複合照射での壁面変質, 第一壁トリチウム捕捉と中性子照射効果, 伝熱流動と界面物質移動, などの相互関係がモデリングの視点で定量的に評価された.

#### Keywords:

fusion reactor, modeling, first wall, neutron irradiation, liquid blanket, MHD effect, tritium, permeation

#### 5.1 研究の目標

磁場核融合炉および慣性核融合炉の開発に必要な炉工学基礎の形成をめざす TITAN プロジェクトでは, 炉システム構成機器での核反応による増殖トリチウムと生成エネルギーの時間的, 空間的移行に関する挙動予測とその制御に関する理工学実験研究が各タスクで実施された[1]. これらに対して当該タスクでは,

- 各タスクでのモデリング研究を横断的に連携する,
  - 各要素インターフェース研究の整合性の向上を図る,
  - 各タスクへの課題をフィードバックすることにより, タスク相互の整合性の高い研究推進に反映させる,
- ことを主な役割とした.

これによって

- (1) 増殖トリチウムと核反応生成エネルギーに関するミクロな物質・熱・流動挙動に基づく, 炉内・炉外構造要素間にわたるマクロな移行挙動に関するシステム統合モデル構築の研究基盤を形成する
- (2) 核融合炉のトリチウム・流動システム構築に向けての整合性の高い研究指針に反映させる
- (3) 磁場核融合炉, 慣性核融合炉設計でのブランケットシステムの最適化に反映させる
- (4) 設計での新しいブレイクスルーの創成と新しい実験研究課題を創成する

の4課題を目標とした[2].

##### 5.1.1 研究の方法と特色

原型炉での主要装置であるブランケットは, 核燃焼プラズマとの相互作用を境界条件として, トリチウム増殖と核

反応生成エネルギーの熱変換およびそれらの高効率輸送と有効利用, および環境影響への負荷低減・遮蔽を主機能とする複合機器システムである. 即ち, ブランケットを単要素機器として扱うのではなく, 核燃焼プラズマと炉外環境を境界条件とする統合システム装置として最適化することが重要である. したがって本タスクでは, 本計画の各タスク実験研究と横断的かつ双方向的に連携することによって, システム最適化設計に向けてのモデリングの実施を並行して進めることを特色とした.

本計画の各タスクでは, 熱・粒子に関する第一壁プラズマ相互作用挙動 (タスク 1-1), ブランケット材料システムでの核的・化学的な複合挙動 (タスク 2-1,2,3), 強磁場下での電磁流体的な複合挙動 (タスク 1-3), 熱交換とトリチウム回収系要素間での熱・物質移行挙動 (タスク 1-2), についてパルス効果等に関する物理工学研究に基づいて, トリチウム移行と流動のメカニズムを実機に近い環境下で明らかにする研究が進められた. これらによって, 各要素過程に関する時間的・空間的分布特性に基づくトリチウム・物質の各挙動時定数, 各輸送係数, それらに関する材料因子の影響等を分離した評価が可能になるとともに, 各タスクの研究要素におけるモデル解析が進められた. 本タスク (Common Task) においては, 図1の模式図に示すように, これらを総合的に組み込み, トリチウムと熱および流動特性に関してシステムとして整合性のある統合モデル構築をめざすこととした. 同時に, 各タスクとの恒常的な連携を基盤にして本タスク研究を進めることにより, 各要素の研究高度化および要素インターフェース研究の整合性の向上

Corresponding author's address: National Institute for Fusion Science, Toki, Gifu 509-5292, Japan

Corresponding author's e-mail: sagara.akio@LHD.nifs.ac.jp

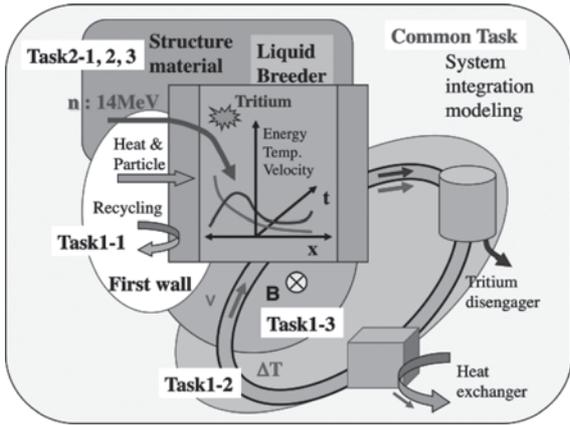


図1 各タスクおよびシステムモデリングの相互関連模式図。

を図るとともに、各タスクへの課題をフィードバックすることにより、整合性の高い核融合炉のトリチウム・流動システムの設計に反映させることとした。

これらにより、炉工学システム統合モデルの構築と方法論の確立を目標とした。

5.1.2 従来の研究との関連及び年次計画

これまでの研究においては、素過程のデータベース化と挙動解明を主な目的として、実験研究条件を絞った基礎的研究としての、材料照射挙動モデル、トリチウム化学挙動モデル、流動境界層モデル等が開発されてきた。米国では、プラズマ壁相互作用での高熱流・物質輸送モデリング、構造材料の中性子・イオン照射効果に関するミクロからマクロまでを繋ぐマルチスケールモデリング、ブランケットの熱・機械構造連結設計モデリング、など以前から重点的に進めている分野がある。一方、日本では、材料界面モデリング、トリチウム挙動モデリング、流動に関する大規模数値計算モデリング、高効率熱エネルギー変換モデリング、などの研究活動が進んできている。

したがって、これらの日米双方の特色を生かした役割分担によって、効率的にシステム統合モデル研究を進展させることができる。本計画の各タスクにおいては、これまでの基礎的研究成果に立脚すると共に、新しく核融合特有の中性子照射、プラズマ熱粒子照射、複雑分岐流動、強磁場環境、等の複合条件における実験研究を行うことにより、各モデルの高度化が進められた。

本タスクでは、図2に示すように、6年計画の前半では主に従来の研究に立脚した課題整理、後半ではシステム統合モデリングに向けての各タスク成果の整理を具体的に実施することとした。以下にその概要を紹介する。

5.2 研究成果の概要

当プロジェクト全体の中間報告は文献[1]に、および当該タスクの最終報告は文献[2]にそれぞれまとめられている。また、図2の年次計画前半での1.と3.の主要課題および主要パラメータの整理と評価に関しては、文献[3]にまとめた。そこで各章のタイトルと内容をまとめたものが表1であり、プラズマエッジからブランケットおよび熱・物質移行までの炉内から炉外に至るシステムを、材料

表1 ブランケットシステムの主要課題と境界条件の整理[3].

原子力学会誌連載講座, 全12回, Vol. 50, No. 6 (2008)~Vol. 51, No. 7 (2009)			
今, 核融合炉壁が熱い! 〈数値モデリングでチャレンジ〉			
章	タイトル	内容	執筆者
1	始めに (磁場や慣性方式での炉設計)	炉心と炉壁と炉外の境界を矛盾無くつなげながらエネルギーを取り出す。そこにはどんな物理と工学が渦巻いているか。	相良(NIFS), 乗松(阪大)
2-1	壁の前で何がおきているか 1. 物理モデル	周辺モデリング手法, 粒子の動き, 流れ, 壁の扱いや電場	滝塚(原機構), 畑山(慶應大)
2-2	壁の前で何がおきているか 2. プラズマの攻撃	原始・電子の動き方, 磁場の効果。	畑山, 滝塚
3	壁の表面で何が起きているか	スパッタリング, 反射, 再付着, 衝撃脱離,	大宅(徳島大), 相良
4	壁の中で何が起きているか	中性子・ガンマ線の動き方のモデリング法, 反応の計算法, 遮蔽	村田(阪大) 今野(原機構)
5	壁はどのくらい熱くなるか	放射線発熱モデリング法, 弾き出しモデリング	真木(IIU), 今野(原機構)
6-1	壁の中は傷まないか 1. 照射ダメージ	機械的特性/マクロモデリング, FEM, 強度, 形状変化, バブル形成	Shrafat(UCLA), 森下(京大)
6-2	壁の中葉傷まないか 2. 照射ダメージの予測	欠陥生成, 核反応生成物, 時間変動, ヘリウム蓄積モデリング	森下(京大), Shrafat(UCLA)
7	核融合材料のメソスケールシミュレーション	交換寿命, 材料強度, 変形, 破壊, 熱電気物性	蕪木, 鈴木, 板倉(原機構)
8	壁が作る燃料をどうするか	トリチウム反応, 溶解, 拡散, 熱勾配・欠陥作用・今後必要なモデル	深田(九大), 小田(東大)
9	壁は熱でどうなるか	逃走電子, アブレーション, 磁場の効果, 熱伝導と中性子損傷との関係	古川(レーザー総研), 功刀(京大)
10	壁の熱をどうするか	冷却モデリング, 色々な流体, 磁場の効果, エネルギー変換, IFE	佐竹(理科大), 功刀
11	まとめと今後の展望	相互関係モデリング, 壁シミュレータへの夢	相良, 乗松

物性工学と中性子工学と伝熱流動工学等による、ミクロからマクロまでをモデリングを中心として、駆伝方式でつなげる初めての試みを実施した。これによって、各要素間の境界条件の整合性を整理し、統合モデルに向けての共通理解を構築した。

統合モデリングの前提となる炉設計に関する図2の前半項目2.については、主にヘリカル炉を例にして文献[4]で日米欧の現状について整理を実施した(図3)。それぞれ液体ブランケットと構造材の組み合わせに特徴がある。

他方、図2の後半項目1.と2.については、各タスク内でもモデリングは実施されて当該特集でも紹介があるので、当該タスクで纏めた物について、以下に紹介する。

5.2.1 Wにおける重水素保持に対するHeの影響

PISCESにおける混合プラズマ照射、およびイオンビームを用いた逐次照射を行ったタングステン重水素昇温脱離実験が宮本, Nishijimaらによって行われた。その結果と比較のため、これまでの他の報告例をまとめ(表2)、それらを図4および図5に整理した[2]。実験の温度条件に強く依存して、ヘリウム照射による試料内部の微細組織変化、特にヘリウムバブルの形成挙動が重水素の保持・放出

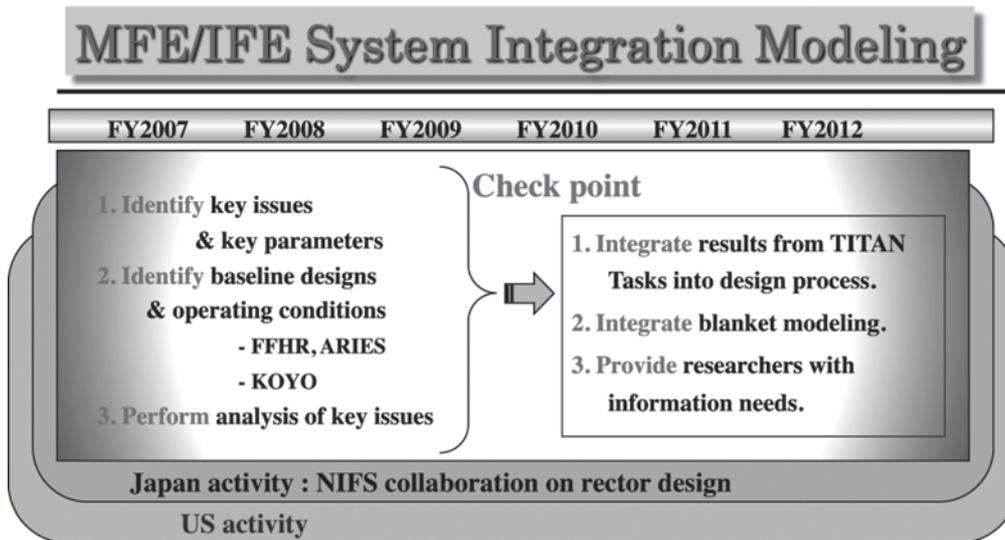
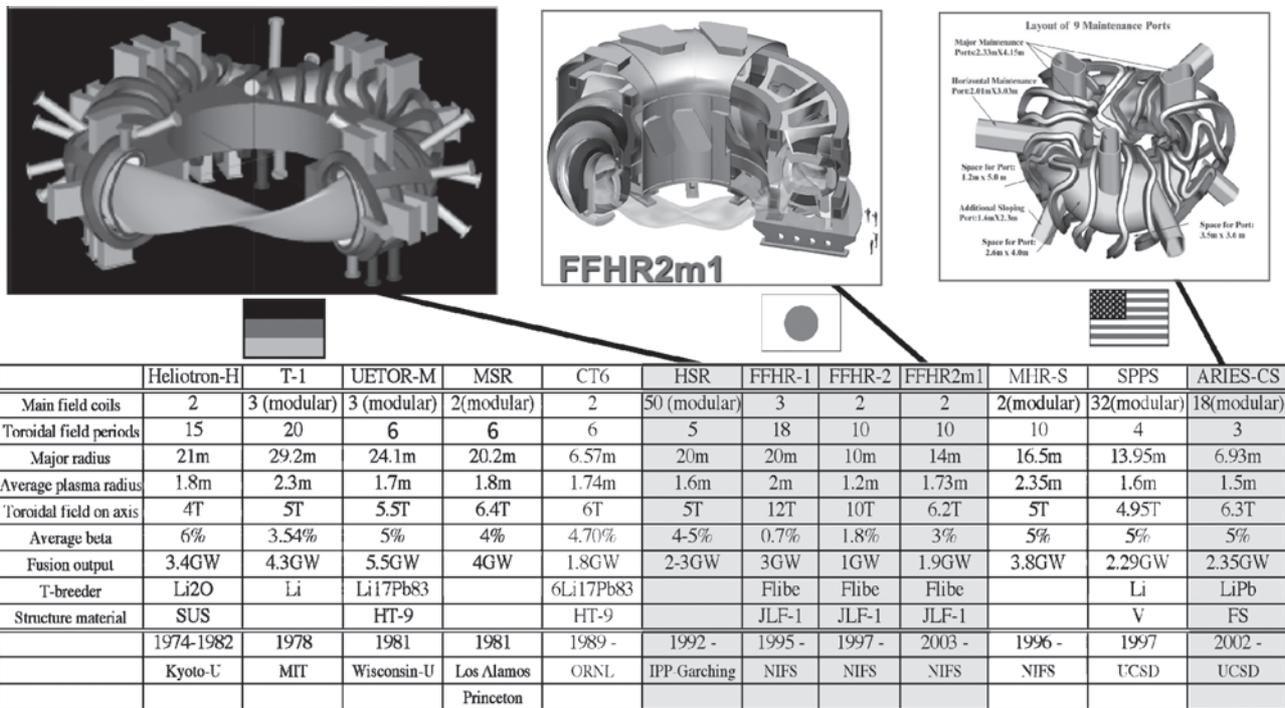


図2 磁場核融合 (MFE) および慣性核融合エネルギー (IFE) に関するシステム統合モデル研究の年次計画。



A. Sagara : 1998.6.2,5 (rev.2006.3.7)

図3 世界のヘリカル炉設計の現状と主な仕様[4].

特性に大きく影響し、現象の把握には内部の損傷組織発達過程の理解が重要であることが示された。一方、現象のモデリングには、損傷組織発達過程について時間的、空間的に広範な領域を取り扱うマルチスケールモデリングの手法が効果的であることが示唆された。また、モデリングの妥当性評価、精度向上のためには、数値計算のみではなく、よく制御された系における検証実験を相補的に行うことの重要性が指摘された。

5.2.2 三面複層コーティング流路の実証実験

自己冷却 Li/V プランケットにおいて、図6に示すような三面複層コーティング流路が提案されており、これまで数値解析および模擬流路を用いた実験によって、MHD 圧力損失低減効果が確認されてきた[5-7]。TITAN プロ

ジェクトにおいては、Aoyagi らが、UCLA の高温 PbLi ループ (TITAN プロジェクトタスク 1-3 により建設されたもので試験区間に最大 1.8 T の磁場印加が可能) の試験区間に長さ 800 mm の三面複層コーティング流路を組み込み、圧力損失測定を行った[8]。

図7に磁場 1.8 T、温度 300℃ の条件での下流部における圧力損失測定結果と、三面複層コーティング流路と通常の導電壁をそれぞれ想定した数値解析結果を示す。実験結果は絶縁コーティングを施していない導電壁における数値解析結果と比べると、10分の1の圧力損失であった。また三面複層コーティング流路での数値解析結果に近い実験値が得られた。1 T 未満の低磁場環境では、実験結果と数値解析結果との間にはわずかに違いがみられたが、その差は 1

T以上の強磁場では小さくなり、また磁場に対しては線形変化であった。したがって、より磁場の大きな核融合炉の環境下であっても数値解析と比べて大きな圧力損失となる可能性は低く、高い圧力損失低減効果を発揮すると期待できる。以上より、三面複層コーティング流路を用いることでMHD圧力損失が大きく低減できることが実験的に実証された。

表2 各種のHe<sup>+</sup>, D<sup>+</sup>およびプラズマ照射と実験条件[2].

	Ion energy: He D	Ion flux: $\Gamma_{He}/He^+ m^{-2}s^{-1}$ $\Gamma_D/D m^{-2}s^{-1}$	Ion fluence: $\Phi_{He}/He^+ m^{-2}$ $\Phi_D/D^+ m^{-2}$	Implantation temperature
○O.Y. Oya	3.0 keV 3.0 keV	$(0.2-1.8) \times 10^{18}$ $1.0 \times 10^{18}$	$(0.2-1.8) \times 10^{22}$ $1.0 \times 10^{22}$	R.T
◇S. Nagata	10 keV 1 keV	- -	$4.2 \times 10^{18}$ , $6.0 \times 10^{21}$ $3.0 \times 10^{21}$	R.T
☆H. Iwakiri	8 keV 4 keV	- -	$(0.1-2.0) \times 10^{21}$ $10^{19}-10^{22}$	R.T
△Y. Sakoi	3 keV 3 keV	$5.0 \times 10^{18}$ $1.0 \times 10^{18}$	$1.0 \times 10^{21}$ $1.0 \times 10^{21}$	R.T
●H.T. Lee	500 eV 500 eV	$10^{18} \times 10^{19}$ $1.0 \times 10^{19}$	$10^{21}-10^{23}$ $(0.5-2.0) \times 10^{23}$	300 K
◆B.I.Khripunov	4 MeV 250 eV	- -	$(1.0-3.0) \times 10^{22}$ $(0.27-1.3) \times 10^{26}$	373 K
★H.T. Lee	500 eV 500eV	$10^{18}-10^{19}$ $1.0 \times 10^{19}$	$3.0 \times 10^{21}$ $2.0 \times 10^{23}$	300 K
▲M. Miyamoto	120 eV 120 eV	$5.0 \times 10^{20}$ $1.0 \times 10^{22}$	$2.5 \times 10^{24}$ $5.0 \times 10^{25}$	573 K
▼D. Nishijima	20-25 eV 80 eV	$(0.25-4.8) \times 10^{22}$ $4.0 \times 10^{21}$	$(1.8-9.0) \times 10^{21}$ $3.0 \times 10^{25}$	700-1600K(He) 550 K (D)
■Y. Sakoi	10 eV	$1.0 \times 10^{21}$	$3.0 \times 10^{22}$	573 K (He)

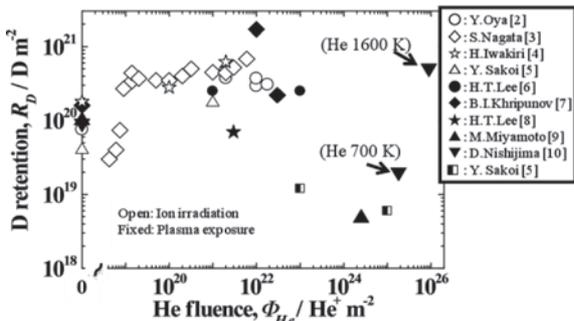


図4 WでのD保持料のHe<sup>+</sup>照射依存性[2].

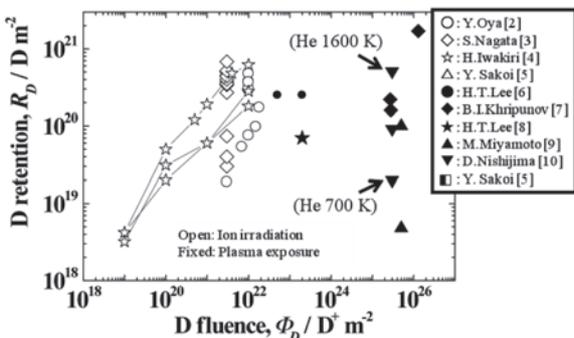


図5 WでのD保持料のD<sup>+</sup>照射依存性[2].

### 5.2.3 Pb-Li での水素の溶解・拡散

LiPb中のトリチウム吸収拡散挙動分析とその結果に基づき、LiPbブランケットからのトリチウム回収について核融合炉システム全体でのトリチウムバランスモデル(図8)を作成し、特にシステムからのトリチウム漏洩について評価した[2]。LiPbブランケット中の水素同位体溶解度、拡散係数、透過係数を実験から評価し、過去の研究と比較するとともに同位体効果を明らかにした。例として、レーザー核融合炉概念設計KOYO-fastのトリチウム回収系、熱回収系の大きさを見積るとともに熱交換器からのトリチウム漏洩の評価をおこなった。流路管内の径方向および流れ方向のトリチウム濃度分布の取り扱いの重要性が指摘された。また、熱交換器から許容量以上のトリチウムの二次冷却水系への漏洩防止の必要性と、適切な冷却系の最適化が課題である。

### 5.2.4 熱サイクルでのトリチウムの漏洩制御

磁場核融合炉でも慣性核融合炉でも炉心プラズマを除けばほぼ系統的にはほぼ同じで、発電規模の差と、燃焼率の差によるトリチウム循環量に差が出る程度である。実用炉クラスの炉を考えた場合、システム効率を高く保つために蒸気発生器の隔壁の温度は高く保つ必要があり、凝縮器隔壁温度も液化点近傍に保つ必要がある。そのため、いずれのシステムでも熱交換器を通してのトリチウム拡散の

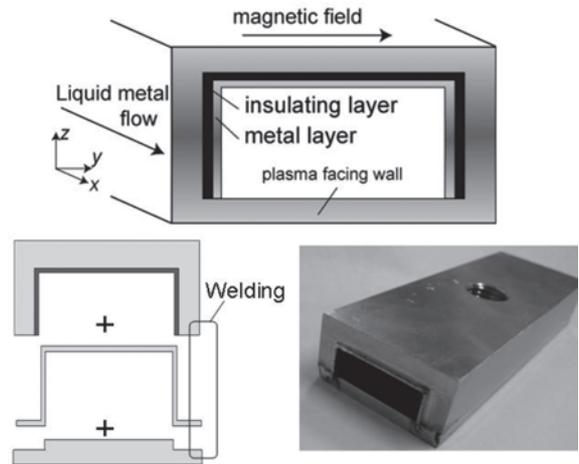


図6 三面複層コーティング流路[8].

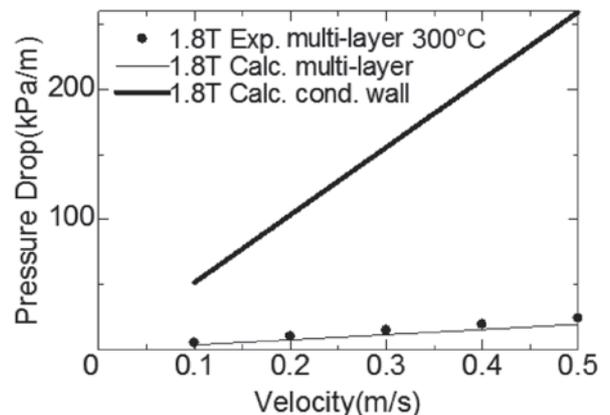


図7 実験・数値解析で評価された圧力損失の速度依存性[8].

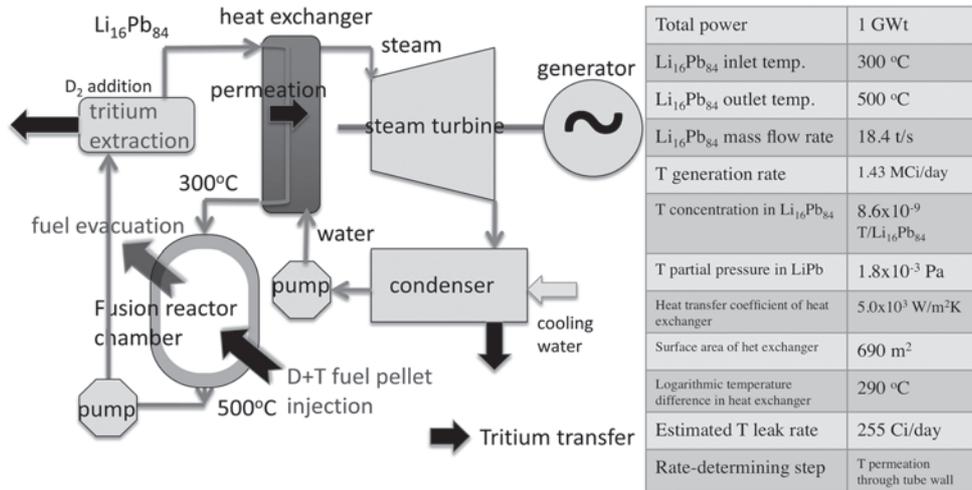


図8 レーザー核融合炉でのLi16Pb84ループとRankine サイクルモデル[2].

抑制は重要な課題となる。また、2次ループに拡散したときの化学的形態も重要である。2次側が液相の場合トリチウム水の形になると思われるが、気相で高温ではトリチウムガスが多くなるという報告もあるので、条件によっては凝縮器にも透過防止対策が必要となる。

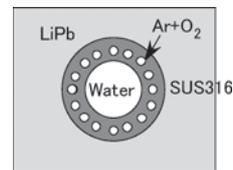
酸化エルビウムなどのコーティングも考えられるが、コーティング法と併用できる方法を施すことが安全性の立場からも望まれる。一つの可能性は図9に示す二重配管を利用してトリチウム水の形で回収する方法である[9]。トリチウム水の形にするのは細管の長さが100 m近くになり、出口付近のスweepガス中のトリチウム分圧が高くなり、十分な透過抑制が期待できなくなる恐れがあるためである。

パイプの内面（2次冷却水側）と酸化回収管表面でのトリチウム分圧をゼロ、液体LiPb側でのトリチウム分圧を1 Paと仮定し、有限要素法コードANSYSで計算した見かけの透過量抑制効果を図10に示した。横軸は内径25 mmの蒸気発生器細管に設けられた直径3 mmの回収細管の本数である。本数を増やすことにより、見かけの熱伝達率が下がるので、その分、面積を増やさなければ必要な伝熱量は確保できない。面積を増やして同じ伝熱量を確保した場合の効果を■で表示した。細管を30本配置することにより、約10<sup>-4</sup>以下に抑制することができる。

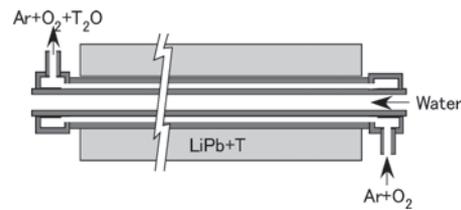
2次ループ内でのトリチウムの化学的形態がまだ十分明らかになっていないが、安全性のためには凝縮器以降の3次ループも必要と思われる。3次ループと、酸化膜コーティングを併用すれば、核融合炉の熱ループからのトリチウムの拡散漏洩を現行の核分裂炉並にすることは可能と思われる。

5.3 まとめ

磁場核融合炉、慣性核融合炉設計で共通の物質・熱輸送循環システムの構築は、原型炉以降の定常運転システムの実現の根幹となる最重要工学要件である。したがって、当該Common-Taskでは、TITANプロジェクトのタスク1-1から1-3、タスク2-1から2-3までの計6サブタスク構成を



(a)



(b)

図9 酸化回収細管をもつ熱交換器用細管の概念[2, 9].

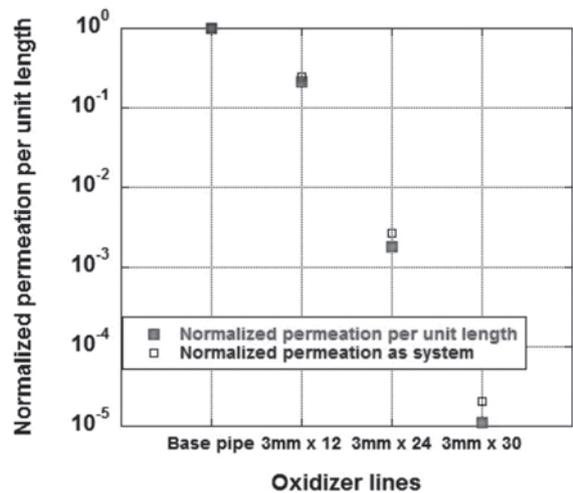


図10 酸化回収管によるみかけのトリチウム透過量の抑制効果。は熱伝達量を同一にした場合[2, 9].

縦糸とし、その実験研究成果をモデリングの横糸によって連結・統合し、結果を各タスク指針にフィードバックすることを主な役割とした。その成果として、トリチウムとヘリウム複合照射での壁面変質、第一壁トリチウム捕捉と中性子照射効果、伝熱流動と界面物質移動、などの相互関係

がモデリングの視点で定量的に評価できたと共に、整合性の高い核融合炉のトリチウム・流動システムの構築に向けての今後の研究指針に反映できた。他方、各要素分野間をつなげる研究は今後も継続的に必須であることは勿論のこと、新しい発想や新分野創成も期待できるので、有機的かつ効率よく、あるいは学際的に連結して作業できる仕組みをつくることも、今後重要である。

#### 参考文献

- [ 1 ] T. Muroga *et al.*, Fusion Sci. Technol. **60**, 321 (2011).
- [ 2 ] A. Sagara *et al.*, Mater. Trans. **54**, 477 (2013).
- [ 3 ] 相良明男 他：日本原子力学会誌 **50**, 378 (2008)~**51**, 563 (2008).
- [ 4 ] A. Sagara *et al.*, Fusion Eng. Des. **85**, 1336 (2010).
- [ 5 ] H. Hashizume, Fusion Eng. Des. **81**, 1431 (2006).
- [ 6 ] M. Aoyagi *et al.*, Fusion Eng. Des. **85**, 1181 (2010).
- [ 7 ] M. Aoyagi *et al.*, Fusion Sci. Tech. **60**, 283 (2011).
- [ 8 ] M. Aoyagi *et al.*, Proc. NTHAS8 (2012) N8P1089.
- [ 9 ] T. Norimatsu *et al.*, Fusion Sci. Technol. **60**, 893 (2011).



プロジェクトレビュー 日米科学技術協力事業 TITAN プロジェクト

6. 日米プロジェクトの新しい展開 –PHENIX 計画–

6. A New Japan-US Joint Research Project –PHENIX–

上田 良夫, 波多野 雄治<sup>1)</sup>

UEDA Yoshio and HATANO Yuji<sup>1)</sup>

大阪大学大学院工学研究科, <sup>1)</sup> 富山大学水素同位体科学研究センター

(原稿受付: 2013年 8月21日)

プラズマ対向材料として現在最も有力視されているタングステンと、水冷却に比べ社会的受容性の観点から多くの利点を有するヘリウムガス冷却によるプラズマ対向機器 (Plasma Facing Component: PFC) を主たる対象として、核融合炉複雑環境下における PFC の健全性と安全性の評価、およびこれらの評価結果に基づく、高い信頼性を有する原型炉ダイバータを実現するための課題の明確化をめざし、2013年(平成23)年 4月から新たに PHENIX (PFC evaluation by tritium Plasma, HEat and Neutron Irradiation eXperiments) 計画が開始された。本章では PHENIX 計画の概要を紹介する。

Keywords:

plasma facing component, tungsten, neutron-irradiation, high heat flux, thermo-mechanical property, tritium inventory

6.1 研究の背景と目的

TITAN 計画を進めることで、第一壁-ブランケット-熱・トリチウム回収系にまたがる物質・熱輸送に関する統合モデルの構築が進み、液体ブランケットシステムにおける熱とトリチウムの移行制御の見通しが得られた。一方で、ダイバータは遥かに高い熱負荷を受けるため、プラズマ対向機器 (Plasma Facing Component: PFC) 開発では、より高効率な除熱法の開発と精密な材料熱負荷特性評価が求められる。このような背景のもと、プラズマ対向材料として現在最も有力視されているタングステンと、水冷却に比べ社会的受容性の観点から多くの利点を有するヘリウムガス冷却による PFC を主たる対象として、核融合炉複雑環境下における PFC の健全性と安全性の評価、およびこれらの評価結果に基づく、高い信頼性を有する原型炉ダイ

バータを実現するための課題の明確化を目標とする研究計画を、TITAN 計画メンバーを中心に進めた。国内の選考過程を経て、本提案が認められ、2013年 4月から新たに PHENIX (PFC evaluation by tritium Plasma, HEat and Neutron Irradiation eXperiments) 計画が開始された。本章では PHENIX 計画の概要を紹介する。

6.2 研究の概要と使用施設

PHENIX 計画は3つのタスクにより構成される。図1にガス冷却ダイバータの開発課題および各タスクの役割分担を、表1に各タスクの達成目標ならびに使用する米国装置

表1 PHENIX 計画の構成, 使用装置, 達成目標。

タスク	使用装置	達成目標
タスク 1 PFC における 総括熱流応答 の解明	He-loop PAL	プラズマ対向材料の熱負荷実験とヘリウムガス冷却系での伝熱現象の解明。タスク 2, 3 で得られる材料特性およびトリチウム挙動に関するデータをもとに、PFC の総括熱流現象を考慮しプラズマ対向材料の使用限界を評価する
タスク 2 中性子照射環境下における要素材の材料挙動の理解 –特徴と照射効果–	HFIR	中性子照射環境下における要素材の基本特性変化の理解, 破壊靱性等を改善した先進材料の中性子照射特性評価を通じた, 原型炉環境下でのダイバータ材料挙動の理解
タスク 3 タングステンとその合金を中心とする PFC 要素材について, ダイバータで想定される高温領域でのトリチウム蓄積・透過挙動とそれに及ぼす中性子照射効果を明らかにする	HFIR STAR/TPE	タングステンとその合金を中心とする PFC 要素材について, ダイバータで想定される高温領域でのトリチウム蓄積・透過挙動とそれに及ぼす中性子照射効果を明らかにする

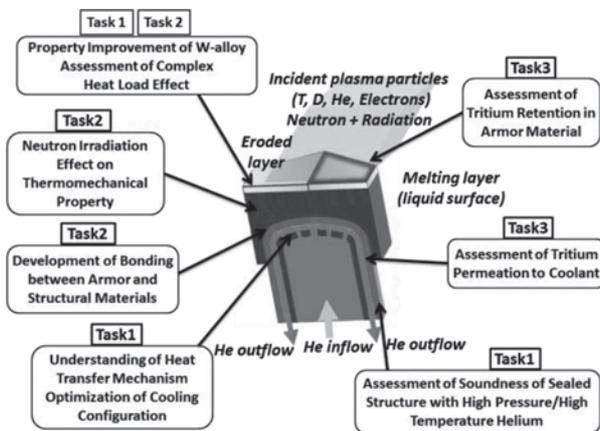


図1 PFCの開発課題と PHENIX 計画のタスク構成。

Corresponding author's address: Graduate School of Engineering, Osaka University, Suita, OSAKA 565-0871, Japan

Corresponding author's e-mail: yueda@eei.eng.osaka-u.ac.jp

を示す。ヘリウムガス冷却は高温ガスタービンサイクルによる高効率発電が可能であり、化学的に不活性で固有の安全性を有する等の優れた特長をもつ。一方で、伝熱性能は水冷却に比べ劣るため、高温・高圧での運転となり材料への負荷が大きくなる。そこで、ヘリウムガス冷却系における伝熱現象を詳細に理解し、PFCの構造を最適化すると共に、高温・高圧・中性子照射という過酷環境下での材料特性変化と、放射性同位元素であるトリチウムの移行を明らかにする必要がある。

以上のことを鑑み、タスク1では中性子照射材を含むタンゲステン材料の定常・パルス熱負荷実験を行い、熱膨張・収縮に伴う組織変化や熱疲労を調べる。中性子照射はタスク2と協力し、TITAN計画でも使用したORNLの研究炉HFIRで行う。熱負荷実験にはORNLのPlasma Arc Lamp (PAL) 施設を用いる。[1]本装置はPHENIXで新たに使用するものであるが、既に放射化した中性子照射材を試験するためのテストセルも構築されている。加えて、本タスクではジョージア工科大(GIT)のヘリウムループを使用した熱伝達試験を実施する。ガス冷却系では衝突噴流による除熱が有望視されているが、衝突噴流熱伝達係数が明らかになっておらず大きな課題となっている。衝突噴流の熱伝達では、噴流域の乱流構造がノズル間隔、ノズル-伝熱面間距離、衝突面形状など多くの影響因子により変化し、それに伴って伝熱機構も大きく変化するため、単純な系以外では経験則が存在しない。そこで本タスクでは、材料試験と冷却性能実験を敢えて切り離し、冷却性能実験を数値モデル高度化のためのベンチマーク試験として実施する。

プラズマ対向材料が中性子照射を受けると、微細組織変化や核変換元素の生成に伴い熱伝導度や破壊靱性などPFCの性能に直結する諸物性が変化することが予想されるが、これまで報告例がほとんどない。そこでタスク2では、タンゲステンおよび破壊靱性や熱伝導度を向上させた先進タンゲステン材料、ならびにこれらアーマー材と構造材の積層材について、高温下での中性子照射による機械的特性および熱特性の変化を調べると共に、詳細な微細組織観察等を通して物性変化の背後にあるメカニズムを明らかにする。先述のように中性子照射にはTITAN計画でも使用したHFIRを用いるが、第一壁・ブランケットを研究対象としたTITAN計画での照射温度が573~923 Kであったのに対し、PHENIX計画では純タンゲステンにおいて顕著な脆化が生じる再結晶温度付近(~1473 K)までの高温照射を行う。現在、高温照射を実現するためのキャプセル設計を進めている。また、本タスクはPHENIX計画全体の中性子照射を統括し、タスク1および3へ中性子照射材を供給する。

タスク3では、PFCの安全性に直結するトリチウム挙動を調べる。TITAN計画では中性子照射されたタンゲステン試料を373~773 Kで高フラックス重水素プラズマにばく露し、水素同位体滞留量が著しく増大することを明らかにしたが[2]、PHENIX計画ではPFCの想定使用温度を考慮し、純タンゲステンの再結晶温度付近(~1473 K)まで

の高温下での中性子照射・プラズマばく露を実施する。プラズマばく露にはTITAN計画でも使用した、世界で唯一の放射性物質を取り扱える高フラックスプラズマ装置TPEを用いる。また、高温ではトリチウム透過がより顕著になる可能性があるため、中性子照射試料についてトリチウム透過実験を行う。過渡状態における透過速度の時間変化とその温度依存性より、中性子照射で形成される捕獲サイトの密度および捕獲エネルギーを評価する。陽電子消滅法により空孔型欠陥のサイズや数密度を調べることで、照射欠陥による水素同位体捕獲機構を明らかにする。加えて、ヘリウム添加プラズマ等を用いて、中性子照射とヘリウム照射の重畳効果について調べる。

図2に熱負荷のパルス幅とパワー密度で表したPFCのデザインウインドウを示す。タンゲステンプラズマ対向材料の運転可能領域は、定常熱負荷の場合は表面温度が再結晶温度(~1400 K)以下、パルス熱負荷(Edge Localized Mode: ELM, ディスラプション)の場合は表面の熔融限界以下に存在すると考えられるが、その境界は明確にはわかっていない。特にパルス熱負荷の場合には、そのエネルギーが熔融限界以下であっても、繰り返し材料に照射されることで表面近傍の膨張や収縮が繰り返され、金属疲労による亀裂が生じる。この現象は材料の延性や微細組織などに依存するが、材料寿命などに与える影響の定量的な評価には至っておらず、プラズマ照射や中性子照射との重畳効果に関するデータもないのが現状である。

本計画では、中性子照射に伴うプラズマ対向材料の熱伝導度変化をも含めてガス冷却PFC中の伝熱過程を理解し、熱応力・熱疲労の発生、照射による破壊靱性の低下、トリチウム挙動の変化等を考慮したうえで、ダイバータの成立性を評価することをめざす。具体的には、除熱性能10 MW/m<sup>2</sup>を目安としたPFCの設計、およびその構造成立性評価と安全性評価(トリチウム滞留・透過評価)、並びにこれらの評価結果に基づく、高い信頼性を有する原型炉ダイバータを実現するための課題の明確化を図る。

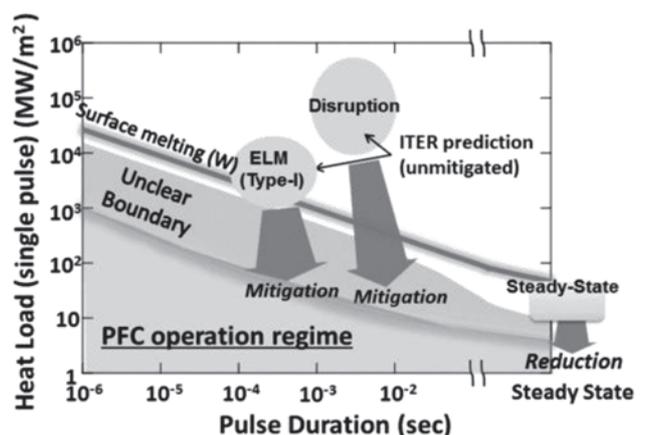


図2 W-PFCの運転可能領域。

### 6.3 今後の展開

現在、プロジェクトを開始して約4カ月を経たところであるが、既に ORNL, INL, GIT に研究者が派遣され、熱伝達試験のプランニング、中性子照射キャプセルの設計、非照射材を用いた熱負荷試験やトリチウム透過実験が進められている。プロジェクト中盤までに中性子照射材に関する初期データを取得する予定である。

### 参考文献

- [1] J.D.K. Rivard *et al.*, The use of highdensity infrared heating for surface modification/coating processes, Proc. 18th Int. Conf. Surf. Modification Technol., 2006, pp.139-146.
- [2] Y. Hatano *et al.*, Nucl. Fusion 53, 073006 (2013).



## プロジェクトレビュー 日米科学技術協力事業 TITAN プロジェクト

### 7. まとめ

#### 7. Summary

奥野 健二

OKUNO Kenji

静岡大学理学部

(原稿受付：2013年8月26日)

日米協力事業 TITAN 計画は「磁場および慣性核融合炉システムにおけるトリチウム・熱流動制御」をテーマに 2007-2012年度実施された。計画のねらいは、強照射、高熱流束、強磁場下の循環流動など核融合炉特有の環境における試験、及び統合モデリングを通じて、核融合炉におけるトリチウムと熱の制御の見通しを明らかにすることであり、第一壁、ブランケット、回収系を跨る物質熱輸送や、照射の複合効果を主テーマとした。

各タスクからの報告にあるように、6年間の TITAN 計画の実施により炉工学に多くの研究成果をもたらしたが、以下に挙げる点も、また TITAN 計画の意義として核融合炉工学分野に及ぼした影響は大きいものとする。1) 材料、ブランケット、トリチウム、プラズマ・壁相互作用、熱流動の要素研究グループが協力してプロジェクトを進めることにより、炉工学の横断的な研究コミュニティが形成された。2) 核融合炉工学を核エネルギーシステム構築に向けて、新たな段階を切り拓いた。3) TITAN の支援研究を通して広く国内の炉工研究の活性化、NIFS 共同研究の活性化をもたらした。4) 若手研究者の育成にも貢献した。

表1は日本からアメリカへの研究のための派遣者数で、学生(内数)は、立ち上げ時期は少ないが、後半になるとほぼ半数を占めている。彼らが TITAN 計画においてアメリカの代表的な研究施設で共同研究を行った経験は、今後に大いに活かされるものと期待している次第である。

表1 TITAN 計画における日本からアメリカへの研究のための派遣数(ワークショップ参加を除く)

年度	日本からアメリカへの派遣数	内学生(博士課程)の派遣数
2007	14	0
2008	13	1
2009	12	3
2010	11	4
2011	9	5
2012	11	5
計	70	18

#### 謝辞

本研究は、はじめに述べたように、日米政府間協定の失効を受けて新しい枠組みを創設することにより共同プロジェクトの新たな展開が可能になったもので、尽力された核融合科学研究所はじめ関係の方々には深くお礼を申し上げます。研究の企画・実施に関しては、核融合科学研究所の日米協力研究計画委員会の委員長(本島修前所長、小森彰夫現所長)、幹事(須藤滋先生)、委員、TITAN アドバイサリ各位にご指導ご協力をいただいた。また、照射済み試料の国内での試験においては、東北大学金属材料研究所量子エネルギー材料国際研究センター(大洗センター)に協力をいただいた。以上の関係者に心から謝意を表す。

本研究がアメリカ側の多大な協力により遂行できたことはいままでもない。最後に、参加協力いただいたアメリカ側の研究者を謝意を込めて列記することで、本レビューの締めとしたい(所属は共同研究当時のもの)。

オークリッジ国立研究所

Y. Katoh, L. Snead, M. Sokolov, R. Stoller

アイダホ国立研究所

P. Calderoni, B. Denny, B. Merrill, R. Pawelko,  
S. Schuetz, P. Sharpe, M. Shimada

カリフォルニア大学ロサンゼルス校

M. Abdou, K. Messadek, N. Morley, S. Sharafat,  
S. Smolentsev

カリフォルニア大学サンディエゴ校

M. Baldwin, R. Doerner, D. Nishijima, R. Raffray,  
D. Sze, M. Tillack, K. Umstadter, J. Yu

カリフォルニア大学サンタバーバラ校

T. Yamamoto

サンディア国立研究所

R. Nygren

パシフィックノースウエスト国立研究所

R. Kurtz

ウィスコンシン大学マディソン校

G. Cao