



プロジェクトレビュー 日米科学技術協力事業 PHENIX 計画-前半の成果と後半の研究計画-

5. タスク 3 トリチウム挙動および中性子照射効果

5. Task 3: Tritium Behavior and Neutron Irradiation Effect

大矢 恭久, 波多野 雄治¹⁾, 片山 一成²⁾, 山内 有³⁾, 信太 祐二³⁾, 大塚 哲平⁴⁾,
近田 拓未, 原 正憲¹⁾, 大宅 諒⁵⁾, 上田 良夫⁵⁾, 外山 健⁶⁾

OYA Yasuhisa, HATANO Yuji¹⁾, KATAYAMA Kazunari²⁾, YAMAUCHI Yuji³⁾, NOBUTA Yuji³⁾,

OTSUKA Teppei⁴⁾, CHIKADA Takumi, HARA Masanori¹⁾, OYA Makoto⁵⁾,

UEDA Yoshio⁵⁾ and TOYAMA Takeshi⁶⁾

静岡大学, ¹⁾富山大学, ²⁾九州大学, ³⁾北海道大学, ⁴⁾近畿大学, ⁵⁾大阪大学, ⁶⁾東北大学

(原稿受付: 2016年12月20日)

原型炉プラズマ対向材料は極めて高いフラックスのD/Tプラズマに高温で長時間曝露されることから、大量のトリチウムが材料中に蓄積するとともに、冷却材へ透過することが懸念される。PHENIX 計画タスク 3 では原型炉を想定した高温下における中性子照射タンゲステン (W) のトリチウム滞留と透過挙動を明らかにすることを目的に研究を進めており、これまでに、高温で鉄イオンを照射した場合には、室温で照射したのと同じ温度でアニール（熱処理）した場合に比べ、重水素の滞留量が大きく減少することを明らかにした。これは、高温照射中の欠陥のダイナミックな回復によるものである。水素同位体透過挙動では、温度によりトリチウムの拡散経路が変化することが実験的に初めて示された。また、鉄イオン照射 W やヘリウム (He) イオン照射 W では低温で透過率が低下することが示唆された。現在、オークリッジ国立研究所で中性子照射を行っており、今後は中性子照射材中の水素同位体滞留・拡散・透過挙動をさらに詳細に明らかにしていく計画である。

Keywords:

tritium, neutron irradiation, tungsten, plasma irradiation, retention, permeation, PWI

5.1 研究背景と目的

将来の核融合原型炉において、プラズマ対向機器中のトリチウム制御は、トリチウム透過漏えいの抑制やトリチウムリサイクリングの観点から極めて重要な課題の一つである[1, 2]。プラズマ対向機器には 14 MeV の中性子とともに、燃料となる水素同位体及び核燃焼に伴って生成するヘリウムが同時に照射され、中性子及び高エネルギー粒子による照射損傷の形成はダイナミックに変化する。そのため、トリチウムインベントリは非照射の状態とは大きく変化することが考えられる。日米科学技術協力事業における前プロジェクト TITAN 計画では、320~350 K で 0.025 displacement per atom (dpa) まで中性子照射したタンゲステン (W) 中の重水素の滞留とその後の昇温脱離挙動が調べられ、473 K で重水素プラズマ照射した場合には捕捉重水素濃度が約 1 at. % に達すること、捕捉された重水素の放出には 800 K 以上の高温が必要であることが明らかとなった[3-7]。これらの結果から、水素同位体が安定に捕捉されるポイド等の照射損傷がトリチウムインベントリに大きく影響することがわかった。また、中性子照射ではプラズマ対向材料のバルクに均一に照射損傷が導入され、高温ではバルク中へ速やかに重水素が拡散することにより

滞留量が増加することが示された (図 1)。

このようなトリチウムインベントリの増加が原型炉を模擬した高温の照射環境でどのように変化するかを明らかにすることは、核融合炉の実用化を見通すために必要不可欠である。そこで、PHENIX 計画では高線量の中性子照射が可能なオークリッジ国立研究所 (ORNL) の研究用原子炉 HFIR を用いて高温下での中性子照射を行うとともに、中性子照射材を取り扱うことができ、かつトリチウム

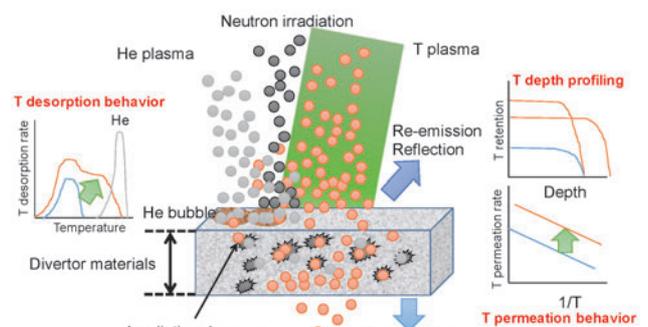


図 1 プラズマ対向材料におけるトリチウム挙動と本研究の位置付け。

corresponding author's address: College of Science, Academic Institute, Shizuoka University

corresponding author's e-mail: oya.yasuhisa@shizuoka.ac.jp

取扱施設であるアイダホ国立研究所 (INL) の Safety and Tritium Applied Research (STAR) 施設で照射後試験を行うことにより、世界に先駆けて、高温中性子照射材におけるトリチウムダイナミクス解明研究を行うこととした[8].

5.2 使用施設

本タスクにおける研究の流れを図2に示す。主な試料としてアライドマテリアル社製の歪取タングステン(W)を用いた。機械的に研磨し鏡面に仕上げた後に、高真空下で1173 Kにて30分間焼鈍した。これらの試料をORNLに送付し、HFIRにて中性子照射を行った。HFIRでは3章でも述べたように低線量照射ではラビットキャプセルを、高線量照射ではガドリニウム (Gd) シールドによって熱中性子による影響を低減するためにRB*キャプセルを用いた。RB*キャプセルについては現在中性子照射中である。これらの試料を今後、INLのSTAR施設に輸送し、直線型プラズマ装置 Tritium Plasma Experiment (TPE) 装置での重水素プラズマ照射と昇温脱離実験を実施すると共に Tritium Gas Absorption & Permeation (TGAP) 装置にてトリチウムガス透過実験を行う計画である。また、タスク2と同様に、米国が保有していた、過去のプロジェクトでHFIRにて中性子照射された単結晶W試料をSTAR施設に輸送し、TPEを用いて重水素 (D) の滞留量を測定した。

これらの中性子照射材を用いた研究にさきがけて、中性子照射材との比較を行うために、京都大学の複合ビーム材料照射装置 (DuET) 及び量子科学技術研究開発機構 (QST) の Takasaki Ion Accelerators for Advanced Radia-

tion Application (TIARA) 装置を用いて、高エネルギー鉄イオン (DuET: 6.4 MeV Fe³⁺, TIARA: 6 MeV Fe²⁺; 打ち込み深さ約 1 μm) の照射も実施した。鉄イオン照射試料をINL及びサンディア国立研究所 (SNL) に輸送し、重水素プラズマ照射実験及びトリチウム (重水素) 透過実験を行った。SNLではトリチウムを取り扱うことはできないが、TGAP装置と異なり、1473 Kをこえる高温での重水素透過実験が可能であり、TGAPと相補的な研究結果が得られることが期待できる。また、一部の試料は国内の大学研究機関においてX線光電子分光分析 (XPS), グロー放電発光分析 (GD-OES), 透過電子顕微鏡観察 (TEM) 等の表面分析を行うとともに、重水素イオン照射実験を行い、低照射量であるがイオンエネルギーを制御した実験を行うことにより、重水素プラズマ照射実験との比較データを集積することとした。

INLのTPE装置はTITAN計画でも使用していたが、トリチウムを取り扱うため放射線管理区域内のグローブボックス中に設置されている。また、1980年代に作られた装置で、制御系はほぼ全てがマニュアル操作であるため、プラズマ照射実験の際には研究者が放射線管理区域内に8時間以上常時滞在する必要があった。放射線管理区域内は換気されているとはいえ、装置からの排熱等で高温であるとともに、トリチウムとベリリウムによる汚染対策のために防護服を着用し続けなければならない、作業者のストレスは非常に大きなものであった。そこで、これらの問題を解消し、実験の効率化と研究者の安全確保を実現するために、リモート制御できる電源及びデータ収集システムが整備された。INLではひとつひとつ安全評価を着実に行う必要があ

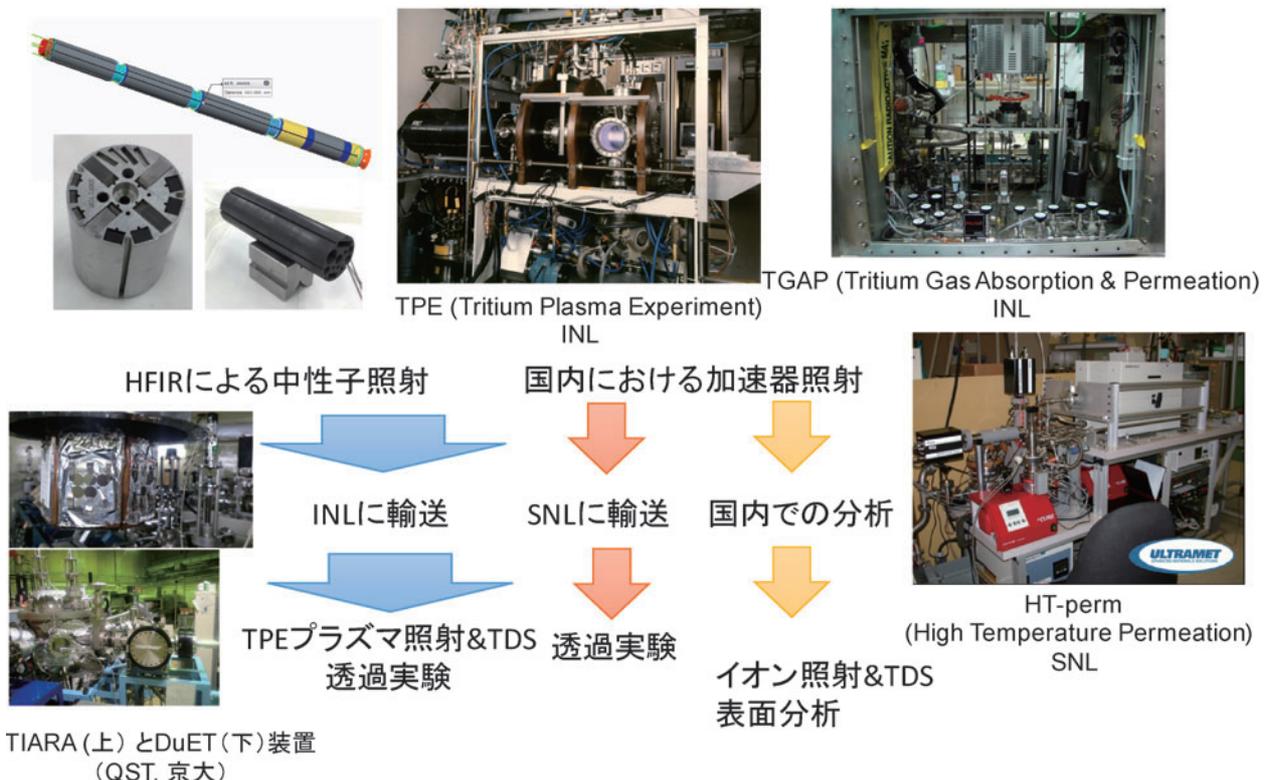


図2 タスク3における使用設備と研究の流れ。

るため、予定していた期間よりも時間はかかったが、試料取り付け時に管理区域内に入る必要があるのみで、その後は管理区域外から制御可能なシステムを構築することができた。本システムを用いることにより、これまでよりも効率的に実験を遂行可能となった。

水素透過挙動評価にはINLのTGAP装置とSNLのHigh Temperature Permeation System (HT-Perm) 装置を用いた。TGAP装置は最高温度が900 Kであるがトリチウムガスを用いることが可能であり、放射能計測により高い感度が得られることから、比較的低温の水素透過量が少ない条件でも透過を評価することができる。トリチウム計測のため、TGAPは上流、下流ともガスフロー環境となっている。透過したトリチウムはエチレングリコールバブラーを用いて捕集し、液体シンチレーションカウンターで定量した。一方、SNLのHT-Perm装置は重水素しか取り扱うことができないが、1473 Kを超える高温での水素透過挙動の評価が可能である。透過してきた重水素を質量分析器にて測定するために、HT-Perm装置では下流側は真空系になっている。

5.3 成果概要

(1) 中性子および重イオン照射したWにおける重水素滞留挙動評価

照射損傷を導入したWにおける重水素滞留・放出挙動を明らかにするために、TIARAにて0.01 dpaおよび0.1 dpaまで鉄イオン照射したWに室温にて1 keV D₂⁺イオンを $1.0 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2}$ まで照射し、D₂ガスの昇温脱離スペクトル (TDS スペクトル) を測定した。その結果を図3に示す。比較のために、非照射W、14 MeV中性子にて 10^{-6} dpaおよび熱中性子炉にて 10^{-4} dpaまで照射損傷を与えたWにおけるTDSスペクトルもあわせて示す。14 MeV中性子照射はQSTのFusion Neutronics Source (FNS) facilityで、熱中性子炉照射は京都大学研究用原子炉 (水冷却) に行ったものである[9, 10]。非照射Wでは主要な重水素放出は400 K付近にあり、ほぼ全ての重水素は600 Kまでに放出することがわかる。これはW表面に吸着および転位ループに捕捉された重水素の放出であると考えられる。一方、鉄イオンを0.01 dpa照射したWでは大きな重水素の放出が700 K付近 (Peak3) に見られることから、重水素が原子空孔に捕捉されたことがわかる。照射損傷量が0.1 dpaまで増加すると、さらに高温側に新たな脱離ピーク (Peak 4) が見られるようになり、ボイドのような欠陥集合体が水素同位体の安定な捕捉サイトを形成することが明らかとなった。熱中性子炉で 10^{-4} dpaまで照射したWでは脱離ピークは非照射Wとほぼ同じ400 K付近に主要な脱離ピークを持つが、14 MeV中性子照射Wでは 10^{-6} dpa程度でも重水素脱離ピークが高温側に広がっていた。このことから、14 MeV中性子によるカスケード損傷で生じる原子空孔が重水素の捕捉に大きく寄与していることがわかる。このように照射損傷量とその分布により重水素滞留挙動は大きく変わる。

米国が保有していた中性子照射単結晶Wは引張試験片

(図4)であり、このタブの部分を取り出し、初期的な実験を行った。図5にHFIRにて673 Kで0.1 dpa中性子照射したのちにTPEにて中性子照射と同様に673 Kにて $5.2 \times 10^{25} \text{ D/m}^2$ まで重水素プラズマ照射したWにおけるTDSスペクトルを示す。比較のために同様の温度で重水素プラズマ照射した非照射材の結果も示す[8]。この結果から明らかなように中性子照射することにより重水素滞留量が増加するとともに、脱離ピークが高温側まで広がっていることがわかる。これは、中性子により形成された照射損傷がバルクまで均一に分布することから、重水素がバルク

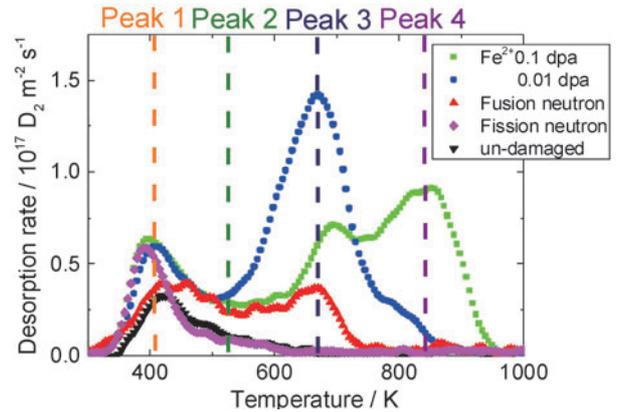


図3 鉄イオンおよび低照射量の中性子を照射したWにおけるD₂ TDS スペクトル (重水素イオン照射: 室温)[9].

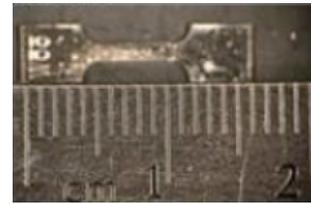


図4 Dプラズマ照射に用いた単結晶W引張り試験片 (673 K, 0.1 dpa).

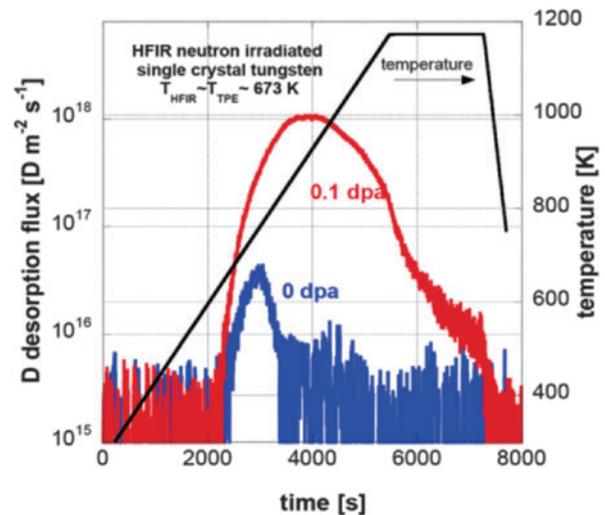


図5 TPEにて重水素プラズマ照射した0.1 dpa中性子照射Wと非照射WのD₂ TDS スペクトル[8]。T_{HFIR}はHFIRでの中性子照射温度、T_{TPE}はTPEで重水素プラズマに曝露した温度である。

中まで拡散し捕捉されるとともに、放出時には脱捕捉と再捕捉を繰り返し表面への拡散に時間を要することにより、ピーク幅が大きく広がったためと考えられる。照射量および照射温度が本研究とは異なるが、TITAN 計画においても 320~350 K で 0.3 dpa および 0.025 dpa まで中性子照射した場合に 900 K を超える温度で大きな重水素脱離ピークを観測しており、また核反応分析法 (NRA) で測定した表面近傍の重水素濃度と滞留量の関係からバルク深部 (50~100 μm) まで重水素が拡散していることが明らかになっており、本結果を支持している。今後、本研究で用いた試料における重水素の深さ方向分析が重要になるとともに、1000 K を超える高温での中性子照射による重水素滞留挙動の変化について明らかにすることにより、原型炉におけるトリチウム滞留挙動を予測することが可能となると考えられる。

照射損傷 W における重水素滞留におよぼす熱影響について調べるために、DuET にて 573 K または 1173 K にて鉄イオン照射した W と、TIARA にて室温で鉄イオン照射した後に高真空下で 573 K または 1173 K で 30 分間アニールした W に、室温にて 1 keV D_2^+ を $1.0 \times 10^{22} \text{Dm}^{-2}$ まで照射した際の D_2 TDS スペクトルを図 6 に示す [11]。573 K アニール試料は主要な脱離ピークが 800 K 付近に見られ、ボイドが十分に回復せず、重水素の主要な捕捉サイトになっていることがわかる。573 K で鉄イオン照射した試料と室温で照射した後 573 K でアニールした試料を比較すると、800 K の脱離ピークが高温鉄イオン照射試料では室温鉄イオン照射後アニール試料と比較すると小さくなっていることがわかる。このことは、高温鉄イオン照射時には照射損傷形成とその回復がダイナミックに進行するため、重水素滞留量が室温で照射した場合よりも低減することを示唆している。特にボイドに捕捉される重水素でその傾向が顕著であり、熱アニリングによるダイナミックな照射損傷の成長・回復挙動の理解が水素滞留挙動予測に重要であると言える。また、高温 (1173 K) ではボイドが減少し、一つの欠陥内に捕捉される水素原子数が増えたため、水素原子一つ当たりの欠陥との結合エネルギーが低下した可能性もあ

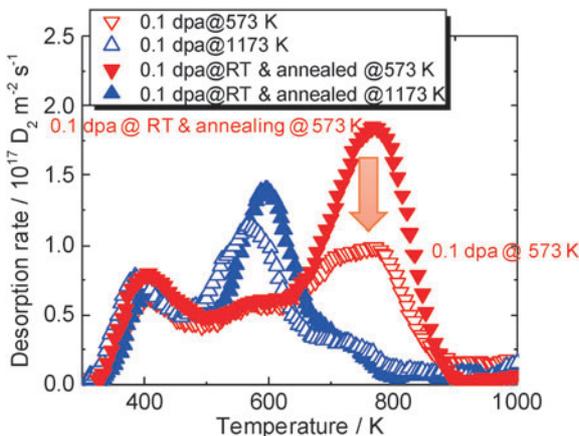


図 6 高温鉄イオン照射 W 試料と室温鉄イオン照射後アニール W 試料に重水素イオン照射した際の D_2 TDS スペクトル [11].

る。今後さらに実験条件を変化させ、詳細な検討を行う計画である。また、高温中性子照射試料における水素滞留挙動評価との比較が重要になってくる。

(2) タングステン中の水素同位体透過挙動評価

トリチウムの透過漏えい制御は核融合炉の安全性を確保するとともに、トリチウムリサイクル向上の観点から重要である。そのためには、中性子照射により照射損傷を導入することにより、どのように物理化学定数が変化するのかあらかじめ知見を集積する必要がある。そこで、PHENIX 計画では中性子照射 W のトリチウム透過挙動を評価し、非照射材と比較するとともに、その He 照射効果についても検討する計画である。そのため、まず初めに非照射材での水素同位体透過挙動を 573 K から 1273 K の広い温度範囲で測定した。その結果を図 7 に示す [12]。873 K 以上の高温における SNL HT-Perm 装置での結果は Frauenfelder らの結果とよく一致していることがわかる [13-15]。一方、INL の TGAP 装置を用いた 900 K 以下の温度での透過実験では Frauenfelder らの結果よりも高い透過率が得られたが、室温への外挿値は Ikeda らが室温近傍で測定した水素透過率と一致した [16]。Oda らは計算機シミュレーションにより水素透過に及ぼす結晶粒サイズの影響について報告している。その結果、結晶粒サイズが小さくなると透過率が上昇する傾向を見出している [17]。本研究で用いた歪取タングステンの結晶粒サイズは TEM 観察の結果から約 3 μm 程度と見積もられており、この結果をシミュレーション結果に適用すると、トリチウムを用いた TGAP 装置での結果は、結晶粒界の影響を大きく受けていることがわかる。すなわち、高温では粒内拡散が主要な水素の透過機構となるが、低温では粒界拡散が主になると結論づけられる。

さらに国内研究として、鉄イオン照射 W における重水素ガス透過について評価した。図 8 にその結果を示す。照射損傷が蓄積すると 973 K では明らかに透過率が低下することが示された。これは水素の拡散経路に重水素が捕捉され

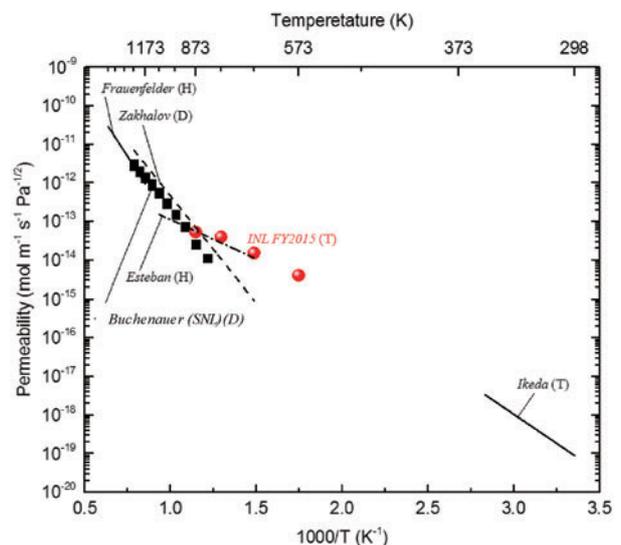


図 7 非照射 W 試料における 573 K から 1273 K の温度領域での水素同位体透過挙動。

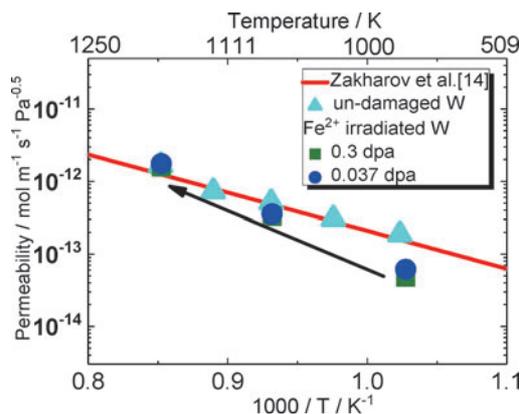


図8 鉄イオン照射 W 試料における重水素透過挙動。

ることにより、W 中での水素拡散経路が減少したことよると考えられる。温度が高くなり照射損傷が回復すると水素の拡散経路も回復し、重水素透過率は非照射材に近づき、1173 K でほぼ非照射材と一致する結果が得られた。さらに1173 K に加熱した後に再度973 K にて透過率を測定するとほぼ非照射材と同じ透過率となることがわかった。このことから照射損傷が水素の透過・拡散挙動に大きく影響していることが明らかとなった。今後、同様の実験を中性子照射材でも実施し、表面近傍だけに照射損傷が導入される鉄イオン照射とバルク全体に均一に照射損傷が導入される中性子照射との水素透過・拡散に及ぼす影響を評価する計画である。

5.4 まとめ

PHENIX 計画タスク3では原型炉環境を模擬した高温中性子照射材におけるトリチウム挙動を明らかとすることを目的として研究を進めている。当初計画していた高温下での水素同位体の滞留・拡散・透過について系統的な研究が進捗している。水素滞留挙動では、高温(673 K)で中性子照射したW中の重水素滞留挙動に関する知見を得ることができた。また、高温で鉄イオンを照射した場合には、

室温で照射したのち同じ温度でアニールした場合に比べ、重水素の滞留量が大きく減少することを明らかにした。これは、高温照射中の欠陥のダイナミックな回復によるものである。今後、重水素深さ分布を明らかにし、その滞留機構について検討する。水素透過挙動については、非照射Wにおいて系統的な実験結果が得られた。温度によりトリチウムの拡散経路が異なることが示された。また、高温での透過挙動の知見を集積することができた。鉄イオン照射WやHeイオン照射Wでは低温で透過率が低下することが示唆された。今後さらに照射量を変化させて、メカニズムの理解につなげる計画である。

ORNLでのHFIR中性子照射が進行し、後半3年ではこれまでよりも多くの中性子照射材を用いた研究が実施できる見通しが得られた。また、TPEの安全かつ効率的な運用ができるようになり、今後、中性子照射材中の水素同位体滞留・拡散・透過挙動を詳細に明らかにすることができると考えられる。

参考文献

- [1] Y. Ueda *et al.*, Fusion Eng. Des. **89**, 901 (2014).
- [2] Y. Oya *et al.*, Fusion Eng. Des. **13**, 211 (2016).
- [3] T. Muroga *et al.*, Fusion Sci. Technol. **60**, 321 (2011).
- [4] M. Shimada *et al.*, Nucl. Fusion **55**, 013008 (2015).
- [5] Y. Hatano *et al.*, Nucl. Fusion **53**, 073006 (2013).
- [6] Y. Hatano *et al.*, Mater. Trans. **54**, 437 (2013).
- [7] Y. Oya *et al.*, Phys. Scr. **T145**, 014050 (2011).
- [8] Y. Katoh *et al.*, Fusion Sci. Technol. *to be submitted*.
- [9] H. Fujita *et al.*, Phys. Scr. **T167**, 014068 (2016).
- [10] Y. Oya *et al.*, J. Nucl. Mater. **461**, 336 (2015).
- [11] S. Sakurada *et al.*, Nucl. Mater. Energy, **9**, 141 (2016).
- [12] D.A. Buchenauer *et al.*, Fusion Eng. Des. **109-111**, 104 (2016).
- [13] R. Frauenfelder, J. Vac. Sci. Technol. **6**, 388 (1969).
- [14] A. Zakharov *et al.*, Fiziko Khim MekhanMat. **9**, 29 (1973).
- [15] G.A. Esteban *et al.*, J. Nucl. Mater. **295**, 49 (2001).
- [16] T. Ikeda *et al.*, J. Nucl. Mater. **417**, 568 (2011).
- [17] T. Oda, Fusion Eng. Des. **112**, 102 (2016).