

高熱流下での気相-固相境界および固相内の物質移動 Mass Transport in Solid and at Gas-Solid Phase Boundary under Incidence of High Heat Flux

波多野雄治
Yuji Hatano

富山大学研究推進機構水素同位体科学研究センター

Hydrogen Isotope Research Center, Organization for Promotion of Research, University of Toyama

1. はじめに

核融合炉プラズマ対向材料は高い定常およびパルス熱負荷を受ける。定常熱負荷は材料中に急峻な温度勾配を形成し、パルス熱負荷は表面温度の急激な上昇をもたらす。しかし、このような温度勾配や急激な温度変化が物質輸送に及ぼす影響については、未解明な点が多々ある。本講演では主に水素同位体の輸送現象に着目し、これらの因子の影響について議論する。

2. 固相中の物質移動に及ぼす温度勾配の影響

プラズマ対向材中の温度勾配はどの程度であろうか？例として、ITERでの使用が想定されているものと同程度の大きさのモノブロックWダイバータで10 MW m⁻²の熱を受けることを考える。Wの再結晶を防ぐために表面温度を1300℃程度に保ちつつ、約300℃程度の冷却水除熱しようとする、想定使用温度範囲でのWの熱伝導度が100~200 W m⁻¹ K⁻¹であるので、タイル表面と冷却水配管までの距離は1 cm程度にする必要がある。すなわち、1000 K cm⁻¹という大きな温度勾配が材料中に形成される。

温度勾配が物質の移動を誘起することがLudwig-Sorét効果あるいは熱拡散として知られている[1]。温度勾配下での物質の流れ J は、次式のようにあらわすことができる。

$$J = -D \left(\frac{\partial C}{\partial x} + \frac{Q^* C}{RT^2} \frac{\partial T}{\partial x} \right) \quad (1)$$

ここで、 D は注目している元素の拡散係数、 C は濃度、 x は距離、 R は気体定数、 T は温度である。 Q^* は輸送熱と呼ばれる物理量で、この値が拡散流の温度勾配への応答性を決める。 Q^* は拡散する元素と母相元素の組み合わせによって正の値にも負の値にもなる。 Q^* が正の場合には低温側へ、負の場合には高温側へ向かって拡散が起

こる。

温度勾配下での物質移動を予測するのに決定的に重要な物理量であるにもかかわらず、実は固体中の Q^* の報告例は少なく、またその値を決める物理的機構についての理解も十分ではない。水素同位体に関しては、4族および5族金属中での値が比較的多く報告されている。これは4族金属であるZrの合金が原子炉の燃料被覆管として温度勾配下で使用されること、4族および5族金属中の水素同位体の溶解度と拡散係数が大きく、 Q^* の測定が比較的容易であることによる。図1に、Sugisakiら[2]による報告値を示す。

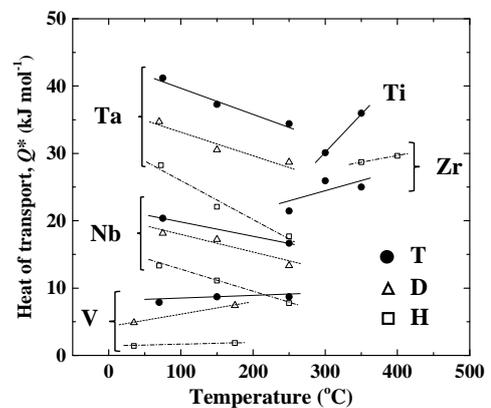


図1 4族および5族金属中の水素同位体の輸送熱 Q^*

図1から、金属中の水素同位体の Q^* に以下のような特徴があることがわかる。

- (1) 大きな同位体効果がある
- (2) 温度依存性を持つ（温度上昇に伴い増大する場合も減少する場合もある）

これらのことから、プラズマ対向材料中の水素同位体移行を予測するには、 Q^* の値を全ての同

位体について比較的広い温度範囲で測定しなければならないことがわかる。

4族および5族金属は水素を発熱的に溶解し、かつ Q^* については上述のように正の値が報告されているが、水素を吸熱的に溶解するFeやNiについては負の値が報告されている[3]。Wと同じ体心立方構造であるFeでは、400~600°Cにおいて $Q^* = -34 \sim -21 \text{ kJ mol}^{-1}$ であり、Hの方がDと比べやや負側に大きい値となっている[3]。ただし、溶解熱と Q^* を結びつける明確な理論があるわけではない。

プラズマ対向材料として最も重要なWについては、残念ながら Q^* の報告例が見当たらないので、とりあえず適当な値を仮定して温度勾配下での水素同位体の移行を評価してみることにする。図2は Q^* の値が仮に 0 kJ mol^{-1} 、 $+40 \text{ kJ mol}^{-1}$ または -40 kJ mol^{-1} であったとして、上述のように 1000 K cm^{-1} の温度勾配下におかれた厚さ1 cmのW層の表面に $10^{24} \text{ T m}^{-2}\text{s}^{-1}$ のフラックスでTが入射した場合の透過量を拡散解析コードTMAP4で[4]計算した例である。拡散係数と表面再結合係数には、それぞれ[5]と[6]に報告されている値を用いた。 $Q^* = \pm 40 \text{ kJ mol}^{-1}$ とした場合には、温度勾配を考慮しない場合($Q^* = 0 \text{ kJ mol}^{-1}$)と比べ、透過速度が一桁程度変化することがわかる。 Q^* の絶対値が大きければ、温度勾配の効果はさらに強く現れる。プラズマ対向機器のT閉じ込め特性を評価する上で、W中の水素同位体の Q^* に関するデータベースを構築することは必要不可欠である。なお、実際には Q^* は温度依存性を有するはずなので、水素同位体移行はより複雑なものとなる。

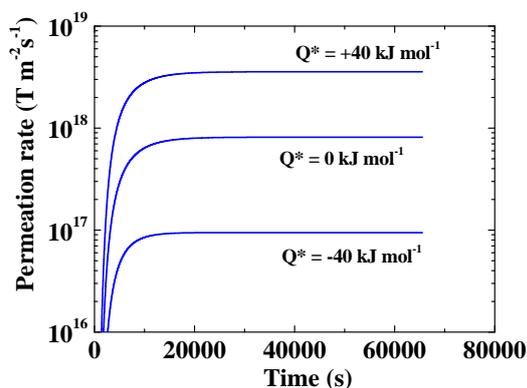


図2 輸送熱 Q^* を図中の値のように設定した場合のW中のT透過速度。W層の厚さは1 cm、表面温度は1300°C、下流側の温度は300°Cとした。また、Tの入射フラックスは $10^{24} \text{ T m}^{-2}\text{s}^{-1}$ とした。

なお、水素同位体のみならず、材料の構成元

素や格子欠陥の拡散も温度勾配により駆動される。すなわち、熱拡散は材料の耐久性にも直結する現象である。実際に、小型化された電子デバイスでは熱拡散による故障が大きな問題となっている[7]。核融合炉環境下では中性子の照射効果(欠陥濃度の増大や照射誘起拡散)が加わるので、温度勾配との相乗効果を明らかにすることは特に重要だと考えられる。また、電界によっても水素同位体や照射欠陥の拡散が誘起される(電界拡散)[1]。核融合炉材料内で生じる誘導起電力が物質移動に及ぼす影響についても評価が必要であろう。

3. 急激な表面温度上昇の効果

プラズマ対向材料へ入射した水素同位体の大部分は、プラズマ側へ再放出される(リサイクリング)。1000 °C以下の温度領域では分子として再放出されるものが大部分である。すなわち、再放出は二次反応であり、その速度定数が先述の表面再結合である。一方で、1000 °C以上の温度領域では原子の状態での再放出(一次反応)も顕著となり、その割合は温度と共に急激に増大する。従って、高温での再放出速度は、低温での測定結果を高温側へ外挿するだけでは評価できない。パルス熱負荷によりプラズマ対向材料の表面温度が急上昇すると、再放出機構の変化により急激に燃料粒子のリサイクリング速度が増大する可能性がある。また、表面に水素同位体やHeのバブルが形成されている場合には、バブルの開裂による急激なガス放出も起こるのである。また、Wは溶融に伴い水素同位体の溶解度が増大するので、その影響についても考慮する必要がある。

参考文献

- [1] P. G. Shewmon 著, 笛木和雄, 北澤宏一訳, 固体内の拡散, コロナ社, 1976.
- [2] M. Sugisaki, H. Furuya, H. Sekiya, K. Hashizume, Fusion Technol. **14** (1988) 723.
- [3] O. D. Gonzalez, R. A. Oriani, Trans. Met. Soc. AIME, **233** (1965) 1878.
- [4] G. R. Longhurst et al., TMAP4 User's Manual, EGG-FSP-10315, doi: 10.2172/7205576.
- [5] R. Frauenfelder, J. Vac. Sci. Technol. **6** (1969) 388.
- [6] R. A. Anderl et al., Fusion Technol. **21** (1992) 745.
- [7] 例えば C. Chen et al., Mater. Sci. Eng. R **73** (2012) 85.