

## 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—

Japan - US Joint Research Project PHENIX - Accomplishments  
in the First 3 Years and Research Plans in the Second Half -

## 1. PHENIX 計画の概要

## 1. Overview of PHENIX Project

上田良夫, 波多野雄治<sup>1)</sup>, 横峯健彦<sup>2)</sup>, 檜木達也<sup>2)</sup>, 長谷川晃<sup>3)</sup>, 大矢恭久<sup>4)</sup>, 室賀健夫<sup>5)</sup>  
 UEDA Yoshio, HATANO Yuji<sup>1)</sup>, YOKOMINE Takehiko<sup>2)</sup>, HINOKI Tatsuya<sup>2)</sup>, HASEGAWA Akira<sup>3)</sup>,  
 OYA Yasuhisa<sup>4)</sup> and MUROGA Takeo<sup>5)</sup>

大阪大学, <sup>1)</sup>富山大学, <sup>2)</sup>京都大学, <sup>3)</sup>東北大学, <sup>4)</sup>静岡大学, <sup>5)</sup>核融合科学研究所

(原稿受付: 2016年12月20日)

## Keywords:

divertor, DEMO reactors, plasma facing component, tungsten, neutron irradiation, tritium retention, helium coolant

## 1.1 はじめに

国際熱核融合実験炉 ITER では高熱・粒子負荷を受けるダイバータのプラズマ対向材料としてタンゲステン (W) を使用し, 除熱のための冷却材としては水が用いられる。また, その後の原型炉でも, 現在の設計では W プラズマ対向材料と水冷却が主案となっている。しかしながら, W は基本的には脆性材料であり, 特に核融合炉では中性子照射脆化の評価が不可欠であるが, そのための研究は十分ではない。また, 中性子照射により W 中に照射欠陥が形成されるが, これはトリチウム (T) の捕獲サイトとなるため, 核融合炉環境下では W は T 吸蔵量が大きくなるという懸念がある。したがって, 中性子照射された W 材料の熱機械特性や T 吸蔵量を正しく評価し, その結果に基づいてプラズマ対向材料として望ましい W 材料の開発や, ダイバータ機器設計を行うことが, 核融合炉の実現には不可欠である。

これまでに欧州では, 主に ITER を意識し, 機器の特性試験という観点から中性子照射研究が行われた。しかしながら, この研究では, 耐久性評価が主目的であり, 詳細な組織・物性の変化は明らかになっていない[1, 2]。一方, 日本では長谷川らのグループが中心となって, W 材料の照射による物性変化について, 国内外の原子炉を利用して研究を進めてきている[3, 4]。日米科学技術協力事業 PHENIX (PFC Evaluation by tritium Plasma, HEat, Neutron Irradiation eXperiments) 計画ではこれらの研究をベースとし, 原型炉ダイバータを視野に入れた研究として, 高温での照射影響評価 (~1200°C), 核融合炉に近い中性子スペクト

ルを得るための熱中性子を低減した原子炉照射, 及び様々な種類の W 材料の照射影響評価, を新たな研究課題と位置づける。

ダイバータ材料としての W は高熱負荷を受けることから, その温度条件が広い (1200°C~500°C (He 冷却の場合)) ため, この範囲での温度依存性を評価することが重要である。また, 水冷却原子炉の様な熱中性子が多い環境では, 中性子吸収に伴う元素変換 (W→Re→Os, 等) が早く進み, 熱中性子の少ない核融合炉環境での W 照射影響とは異なることが知られており[5], 照射時の熱中性子遮蔽が必要である。さらに, W ダイバータ機器の設計において, 様々な W 材料について照射を行い, 適切な材料選択を行うことも必要である。

また, 原型炉から商用炉を視野に入れた場合は, より安全性を高めるために, 核融合環境でも放射化せず, 化学的反応性もない He ガスを利用した冷却系の利用が望まれる。また He ガスを用いると冷却媒体温度を水より高く設定でき, 高い発電効率を実現できる可能性がある。しかしながら, He ガス冷却を用いた場合は水冷却に比べて冷却能が低く, 効率的な冷却方法の開発が望まれている。

PHENIX 計画は, これら W プラズマ対向機器開発における課題に対し新しい知見を得るため中性子照射試験や高温高圧 He ガスループを用いた伝熱実験を実施し, 原型炉を見据えたダイバータ開発に大きな貢献をすることを目的としている。特に中性子照射試験においては, W の照射影響に対する標準的なデータベースの作成を行うとともに,

corresponding author's address: Grad. Sch. of Eng. Osaka Univ., Suita, OSAKA 565-0871, Japan

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

照射影響を総合的に理解することをめざす。PHENIX 計画は3つのタスクから構成され、それぞれのタスクが相互に協力して研究を進める。以下で各タスクの概要を説明する。

## 1.2 各タスクの概要

PHENIX 計画は3つのタスクからなり、その組織は表1のようになっている。米国側からはエネルギー省(DOE)の取りまとめのもと、オークリッジ国立研究所(ORNL)(タスク1および2)、ジョージア工科大学(GIT)(タスク1)、アイダホ国立研究所(INL)(タスク3)、サンディア国立研究所(SNL)(タスク3)が参加している。

タスク1では、He冷却における伝熱現象について、特にダイバータ環境を想定した高温条件での基礎的な理解を深め、その結果をもとに新しいHe冷却ダイバータの設計を行うことを目的としている。具体的には、GITの高温Heガスループを用いて、400℃程度以上でのHe衝突噴流による伝熱特性の研究とモデリングを行う。さらに、PAL(プラズマアークランプ)を用いて、中性子照射タングステン材の高熱負荷試験を行う。最後に、すべてのタスクから得られた知見を生かして、ダイバータ機器の総括熱流解析と、安全性に対する検討を行う。

タスク2では、様々なW材料をダイバータの温度条件を考慮して500℃~1100℃で中性子照射し、その熱特性や機械的特性の変化を詳細に調べる。中性子照射は、ORNLの研究用原子炉(HFIR)で行うが、照射の際にガドリニウム(Gd)を利用して低速中性子を低減し、元素変換と照射損傷の比率が核融合炉に近い条件で照射を行う。照射試料は、熱機械特性を評価すると共に、タスク1の熱負荷試験、及びタスク3の水素滞留・透過試験に供する。

タスク3では、中性子照射W材料に対して、プラズマ照射、イオンビーム照射、およびガス曝露などの方法を用いて、水素同位体の滞留・透過挙動について詳細に調べる。さらに、高エネルギーイオン照射試料についても実験を行い、その中性子照射損傷との対応性などについても評価を行う。

高線量の中性子照射は長時間を要するうえ、試料の放射化を伴うため照射後に冷却期間を置く必要があり、照射完了後も直ちに試験を始めることはできない。そこでPHENIX計画では、米側研究機関が既に保有していた低線量中性子照射W試料の中からプロジェクトの目的に合うものを選別し、その照射後試験も行う。

表1 PHENIX計画の代表者、プログラムコーディネーターおよび正副タスクコーディネーター。

|          | 日本                                | 米国   |
|----------|-----------------------------------|--|
| 代表       | 上田良夫<br>(大阪大学)                    | D. Clark<br>(US DOE)                           |
| コーディネーター | 波多野雄治<br>(富山大学)                   | D. Clark<br>(US DOE)                           |
| タスク1     | 横峯健彦<br>(京都大学)<br>上田良夫<br>(大阪大学)  | A. S. Sabau<br>(ORNL)<br>M. Yoda<br>(GIT)      |
| タスク2     | 檜木達也<br>(京都大学)<br>長谷川晃<br>(東北大学)  | Y. Katoh<br>(ORNL)<br>L. M. Garrison<br>(ORNL) |
| タスク3     | 大矢恭久<br>(静岡大学)<br>波多野雄治<br>(富山大学) | M. Shimada<br>(INL)<br>D. Buchenauer<br>(SNL)  |

## 1.3 本プロジェクトレビューの構成

本プロジェクトレビューでは、現在4年目の活動が行われているPHENIX計画(6年計画)について、各タスクの研究成果や今後の研究計画について説明を行い、PHENIX計画の全体を理解していただくことを目的とする。次章「2.プラズマ対向機器における総括熱流応答の解明」では、タスク1で実施しているHeループを用いた伝熱実験と熱負荷実験の概要を述べる。「3.タスク2(1)中性子照射計画」と「4.タスク2(2)Wの中性子照射効果」ではPHENIX計画で実施する中性子照射の概要、および米側が保有していた低線量中性子照射W試料を用いて実施した機械特性試験の結果を報告する。「5.タスク3 トリチウム挙動および中性子照射効果」では、トリチウムおよび重水素のW中の透過挙動ならびに高温で中性子あるいは重イオンを照射し損傷を導入したW中の重水素滞留挙動を調べた結果が記載されている。最後に6章において、まとめと今後の研究計画を述べる。

## 参考文献

- [1] M. Roedig *et al.*, J. Nucl. Mater. **329-333**, 766 (2004).
- [2] M. Merola *et al.*, Fusion Eng. Des. **75-79**, 325 (2005).
- [3] A. Hasegawa *et al.*, Mater. Trans. **54**, 466 (2013).
- [4] A. Hasegawa *et al.*, Fusion Eng. Des. **89**, 1568 (2014).
- [5] A. Hasegawa *et al.*, J. Nucl. Mater. **471**, 175 (2016).



## 2. タスク1 プラズマ対向機器における総括熱流応答の解明

### 2. Task 1: Investigation of Overall Heat Flow Response in Plasma-Facing Component

横峯 健彦, 上田 良夫<sup>1)</sup>, 徳永 和俊<sup>2)</sup>, 結城 和久<sup>3)</sup>, 秋吉 優史<sup>4)</sup>, 伊庭野 健造<sup>1)</sup>

YOKOMINE Takehiko, UEDA Yoshio<sup>1)</sup>, TOKUNAGA Kazutoshi<sup>2)</sup>, YUKI Kazuhisa<sup>3)</sup>

AKIYOSHI Masafumi<sup>4)</sup> and IBANO Kenzo<sup>1)</sup>

京都大学, <sup>1)</sup>大阪大学, <sup>2)</sup>九州大学, <sup>3)</sup>山口東京理科大学, <sup>4)</sup>大阪府立大学

(原稿受付: 2016年12月20日)

PHENIX 計画タスク1では, “安全”と“長期健全性”という観点から第一義的現象であるプラズマ対向機器 (PFC) における総括熱流現象を複合熱負荷実験と高熱負荷・高温・高圧伝熱実験によりモデル化することを目的とする。また, タスク1から3で得られる材料特性ならびにトリチウム挙動に対する中性子照射効果のデータに基づき PFC システムの総括熱流応答解析を行い, 安全な PFC 構築の評価基準を与える。

#### Keywords:

plasma facing components, tungsten plasma facing material, helium-cooled divertor, multiple-impinging jet heat transfer

#### 2.1 研究背景と目的

プラズマ対向機器 (PFC) は定常/非定常の熱負荷と粒子負荷を同時に受ける。その結果, 熱応力や熱疲労, 水素/He などの影響が複合的にプラズマ対向材料に及ぼされ, 材料の損傷や脆化およびそれらに伴う異常損耗などによる PFC の健全性の劣化が懸念される。PFC での熱・粒子の流れは, ロバスト設計が要求される PFC において, 特に“安全”という観点から第一義的現象として捉えられている。PFC の総括的な熱流を実験的に模擬することが理想であるが, 核発熱の再現の困難さに加えて, 材料試験と冷却性能試験を同時に行うことは, 安全性の観点からも実施は不可能に近い。しかし, 各要素での熱流現象およびそれに対する材料の応答を PFC システム設計の各要素モデルとして捉え, それらを結び付けるモデリングができれば, PFC の総括熱流現象を解析することができる。よって, 本タスクでは, プラズマ対向材料の複合熱負荷実験と伝熱実験を行い, システム設計によって PFC の総括熱流現象を考慮したプラズマ対向材料の使用限界を把握し, 安全な PFC 構築に対して, 評価基準を与えることを目的とする。

熱負荷実験および伝熱実験の対象としては, 各々, タングステンプラズマ対向材料およびヘリウム冷却ダイバータとした。

#### 2.2 使用施設

本タスクでは, 伝熱実験と熱負荷実験を異なる施設を用いて行う。

##### 2.2.1 伝熱実験—GIT 高温高圧ヘリウムループ

伝熱実験は, ジョージア工科大学 (GIT) 既存の高温高圧ヘリウムループを用いる (図1)。高温高圧ヘリウムを用いた伝熱実験ができる実験装置は現在国内には存在しな

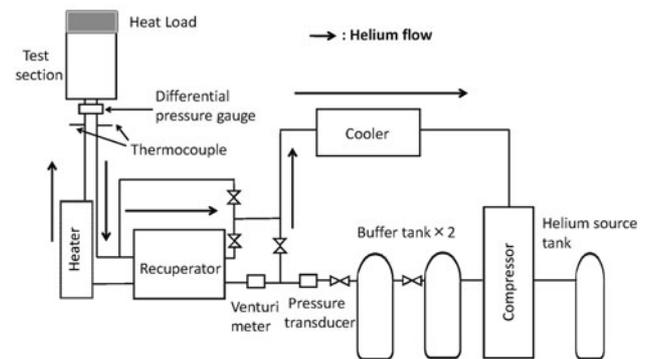


図1 GIT 高温高圧ヘリウムループ。

い。プロジェクト開始時のループの性能は、ガストーチによる熱負荷方式で熱流束は最大2.8 MW/m<sup>2</sup>、作動流体ヘリウムに関しては最高温度300℃、圧力 10 MPa、流量 8 g/sであった。ガス冷却は固有の安全性を有する反面、その伝熱性能の低さが弱点となる。そのため、ヘリウム冷却ダイバータ研究は、その伝熱促進技術に関する研究が従来数多くなされてきた。多くの伝熱促進方式が考えられてきたが、その中でも衝突噴流群が最も冷却性能に優れている。同方式は、EUにおいてはHEMJ (He-cooled modular divertor with multiple jet cooling) として開発が進められてきた[1-4]。また、米国においても、HEMJをはじめとした種々のヘリウムガス衝突噴流群を用いた概念設計案に関する開発研究を行ってきた[5]。しかし、そのほとんどが高伝導材をターゲット（衝突面）に用いて低温度条件（100℃以下）で行われた伝熱実験結果からの予測値あるいは外挿値で、ダイバータの条件下での冷却性能実証は行われていない。より原型炉に近い条件で伝熱実験、すなわち高熱流束負荷を高温、高圧のヘリウムガスで冷却する H<sup>4</sup>test (High heat flux removed by High temperature and High pressure of Helium) を伝熱実験のロジックとし、既存の GIT ループを改造した。4つの"H"のうち圧力、ヘリウムの2点は条件を満たしているが、熱流束およびヘリウムガス温度を大幅に増加させる必要があった。

2.2.2 熱負荷実験—ORNL プラズマアークランプ

熱負荷実験にはオークリッジ国立研究所 (ORNL) のプラズマアークランプ (PAL) 施設を使用する (図2)。PAL 施設は定常高熱負荷試験装置で、表1の性能の2台のランプを有する。PAL 施設ではタスク2から提供される中性子照射 W 試料を用いた熱負荷実験を行い、微細組織の変化やき裂の伸展等を評価する。そのための試料ホルダー、計測



図2 ORNLのPAL施設。

表1 PAL施設の性能。

| PAL System    | 最大入射熱流束 [MW/m <sup>2</sup> ] | 最大吸収熱流束 (1100 KのW材の場合) [MW/m <sup>2</sup> ] | 最大熱流束面積         |
|---------------|------------------------------|---|-----------------|
| Vortex300 高出力 | 27                           | 12.7  | 10 mm × 100 mm  |
| Vortex500 低出力 | 4.2                          | 2   | 180 mm × 180 mm |

システムなどを整備すると共に、熱負荷試験時の放射性物質の飛散を防止するために試料ホルダー部を密閉構造にする必要があった。

2.3 これまでの成果

2.3.1 伝熱実験

先述のとおり、より原型炉条件に近い H<sup>4</sup>test を行うために、GIT ヘリウムガスループの改造を行った。当初ガストーチを用いて最大2.8 MW/m<sup>2</sup>であった熱流束をアイダホ国立研究所のSTAR施設から10 kW高周波誘導加熱装置を借り入れ、現時点では、出力15%で6.6 MW/m<sup>2</sup>まで向上させた。

一方、試験部の製作に関しては以下のように決めた。プロジェクトにおける本伝熱実験の計画では、前半3年間でより原型炉に近い条件下での衝突噴流群の基本的な伝熱特性を把握、その結果に基づき衝突噴流群冷却ダイバータの課題を抽出する。その後の3年間で、最適なダイバータ設計を数値シミュレーションによるダウンセレクションで提案し、その設計案に関連する伝熱実験を行う。

前半3年間で衝突噴流群の伝熱特性を調べるための基本的な流れ場形状は、先行研究であるHEMJの設計に基づくこととした。衝突噴流群伝熱特性には非常に多くのパラメータが影響する。本実験では、高熱流束除去の観点からパラメータに重要度をランク付けするPIRT (Phenomena Identification and Ranking Table) を行い、その中でノズル-伝熱面間距離、噴流レイノルズ数、ノズル出口での乱流強度および層流化発生条件を重要パラメータとした。層流化とは、上流で十分に乱流であった流れが何らかの作用によって、乱れが減衰して層流状態に近づく現象で、流体の物性によるところが大きい。そのため、ヘリウムの層流化に関する情報を他の代替流体を用いた実験から得ることは難しい。試験部の詳細を図3に示す。HEMJ試験部はAISI 302ステンレス製のジェットカートリッジがWL10製のスリーブ (thimble) の中に設置してある。Thimbleの上面に高周波誘導加熱による熱負荷がかかる。ジェットカートリッジ上面には中央に直径(D)1.04 mm、その周辺に六角形状に24個の直径0.6 mmの小孔計25個が開いてあり、そこからヘリウムガスが噴出される。中央の小孔(ノズル)直径Dとノズルと噴流衝突面間の距離Hの比H/Dは0.25から1.5まで変化させた。また、ヘリウム温度は、室温から

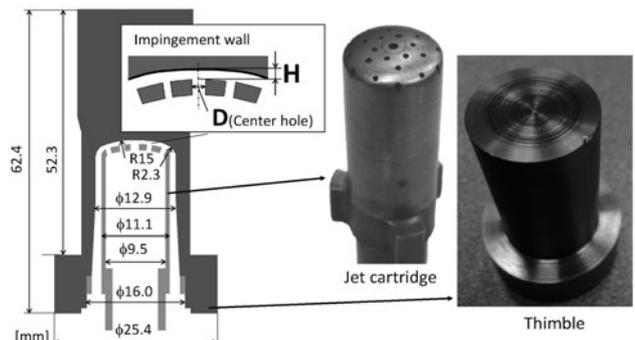


図3 HEMJ試験部詳細。

400℃まで、噴流レイノルズ数は $1.3 \times 10^4$ から $5.4 \times 10^4$ までそれぞれ変化させた。ここでは、その一部を紹介する。

図4は、ヘリウム温度が300℃以下の場合の、 $H/D = 0.5 - 1.0$ における噴流レイノルズ数に対する平均ヌセルト数  $Nu$  の変化を示す。平均ヌセルト数は、

$$Nu = 0.085 Re^{0.590} \kappa^{0.190} \quad (1)$$

で整理することができる。ここで、 $Re$  は噴流レイノルズ数、 $\kappa = k_s/k_f$  で、 $k_s$  は衝突面温度における衝突面材料（ここではWL10）の熱伝導率、 $k_f$  はノズル出口温度におけるヘリウムの熱伝導率である。

従来の研究では、 $H/D$  が小さくなるにつれて伝熱性能が増加する。そのため、更なる伝熱性能向上を狙って  $H/D = 0.25$  での伝熱実験を行った。図5は、 $H/D = 0.25$  および  $0.5$  の場合のレイノルズ数およびヘリウム温度に対する平均ヌセルト数変化を示している。 $H/D = 0.5$  の場合、温度の上昇またレイノルズ数の上昇とともに平均ヌセルト数は増加する。これは従来の100℃以下で行われた実験結果を傾向が一致する。一方、 $H/D = 0.25$  の場合、ヘリウム温度100℃以下では、 $H/D = 0.5$  の平均ヌセルト数を上回り、従来の研究結果と一致するが、200℃以上の高温域で  $H/D = 0.5$  の場合よりも熱伝達率が低下した。さらに同じ  $H/D = 0.25$  で比較すると低温域よりも熱伝達率が減少するという、従来結果では見られない現象が生じた。この原因として、層流化が考えられる。

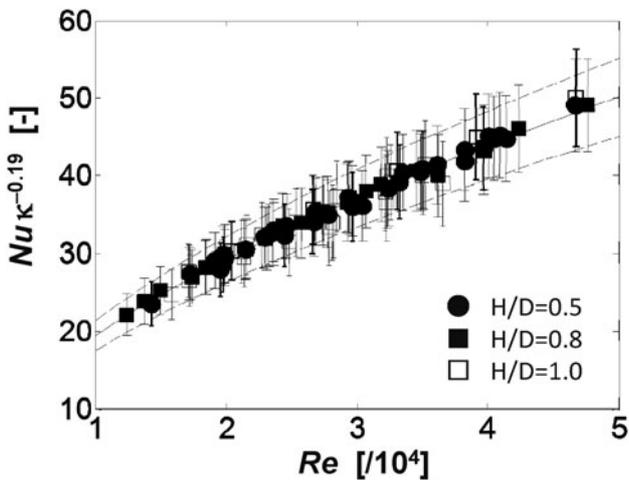


図4 ヘリウム温度300℃以下での平均ヌセルト数。

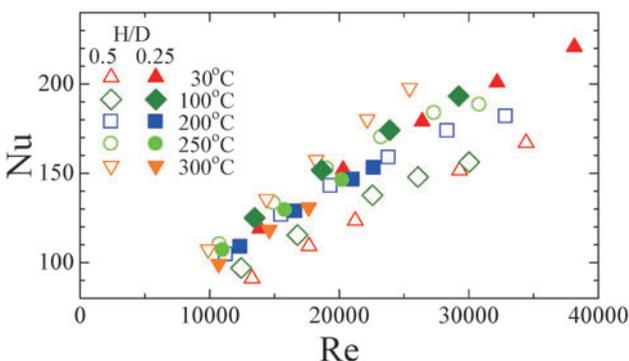


図5  $H/D = 0.25$  および  $0.5$  の場合の平均ヌセルト数。

図6は、HEMJ 流れ場の数値シミュレーション結果を示す。温度場も同時に計算しているが、複雑な流れ場における層流化を再現できる乱流モデルは現時点ではないため、主に流れ場の様子を調べるための計算である。外周の2つの噴流に着目すると、 $H/D = 0.5$  の場合は、噴流構造を維持しているのに対して、 $H/D = 0.25$  の場合には対称的な噴流構造は崩れ、噴流下流に強い加速領域を形成している。この噴流群外周部で、急激に加速されることによって生じる加速層流化と衝突面近傍のヘリウムガスが局所的に高温になることによる物性の変化に起因する加熱層流化とが相乗的に生じている可能性がある。これは、 $H/D$  を小さくしなければ避けられる問題ではなく、高温条件のみでも高速流領域を形成する可能性もあり、層流化の発生条件確認と乱流モデリングが重要となる。

### 2.3.2 熱負荷実験

先述のとおり、照射材の高熱負荷実験 (HHFT: High Heat Flux Testing) を行うために表2のような改造をPAL施設に施した。図7にPAL施設の概要を示す。図7(a)に示すように、PAL施設を使用することで、熱源を試験室から物理的に分離することができ、高い熱流束下での中性子照射材 HHFT を安全に行うことができる[6,7]。照射材試験片のHHFT中の対放射線安全性の向上は、冷却ロッド、試料ホルダーおよび照射材試験片を内包する高真空システム用の半球形キャップチャンバーによる二重閉じ込めによって達成される(図7(a))。ただし、照射材の高い放射線量のため、試験可能な照射材の寸法は厚さ数mmおよび直径10mm未満のものに制限される。試験片は、図7(d)および(e)に示すように、水冷銅合金ロッドに取り付けられた耐熱金属製のホルダーにボルトで固定する。ボルト締め付け領域が高熱流束に直接曝されないため、試験片内の温度分布が不均一になる可能性があり、試験片のボルト締めが熱応力および変形に及ぼす影響は微小薄肉試験片にとっては無視できない。そのため、HHFT中の熱サイクルにおける発生応力シミュレーションのための熱力学的モデルを開発中である。

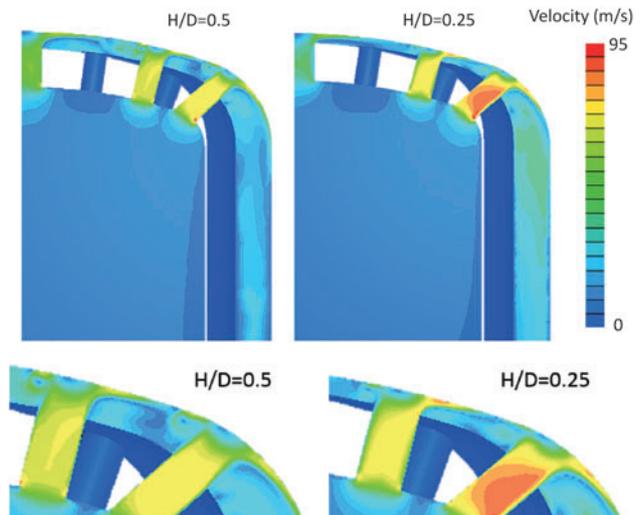


図6 HEMJ 試験部の衝突面近傍流れ場。

表 2 中性子照射材高熱負荷実験のための PAL 改造点.

| Design considerations                                | Adopted solutions   |
|--|---|
| IR heating   | Large quartz window   |
| Quartz window seal                                   | High temperature o-ring   |
| Enclosure overheating                                | <ul style="list-style-type: none"> <li>Enclosure size larger than area of peak power</li> <li>Water cooled enclosure</li> </ul>   |
| W testing: No O <sub>2</sub> at high temperature     | Evacuate enclosure air and backfill with Ar   |
| Quartz window integrity during air evacuation        | Secondary chamber on top of quartz window for equalizing pressure on both sides of quartz window  |
| Liftoff of quartz window                             | Vent and automatic pressure valve and controller  |
| Avoid overheating and cracking of quartz during HHFT | Air knife to cool the quartz window   |
| HHFT   | Impingement water cooling   |
| Temperature measurements                             | K, S, R thermocouples; pyrometer  |
| Containment of volatilized radioactive compounds     | HEPA filter vent for Ar bleeding during experiment <ul style="list-style-type: none"> <li>HEPA filter canister for evacuation of Ar after experiment</li> <li>Testing section enclosed in quartz cylinder</li> <li>Vacuum tight thermocouple feedthroughs</li> <li>No water connections within the enclosure</li> </ul> |

## 2.4 今後の計画

伝熱実験に関しては、前半3年間における H<sup>4</sup>test はほぼ計画通りに進んでいる。今後ヘリウム温度500~700℃の高温実験のデータを補完する。また、層流化の乱流モデリングのための基礎実験を計画しており、現在は国内研究として実施している。今半3年間では、冷却構造の最適化のための数値シミュレーションによるダウンセクションを行い、新しい概念設計およびそれに関連する伝熱実験を行う予定である。

熱負荷実験に関しては、計画前半で行った高出力 PAL 用試験ホルダー設計に基づき照射材 HHFT 装置を完成させ、現在、タスク2との共同で行っているタンゲステン材

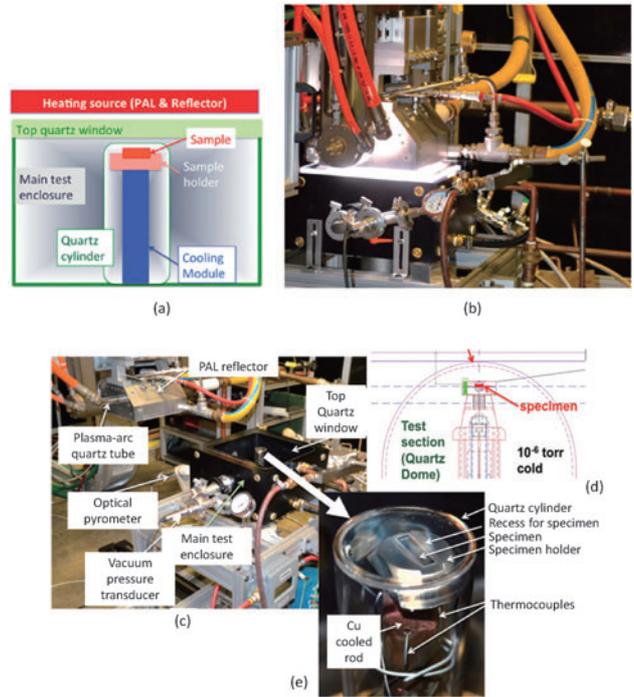


図 7 PAL 施設詳細.

の照射終了後、HHFT を実施する。実験結果に基づき、材料特性（熱拡散率、微細構造、硬度）を評価し、モデリングを行う。

伝熱実験および熱負荷実験により提案する概念設計にタスク2から得られる中性子照射効果、およびタスク3からのトリチウム挙動予測を加え、PFC システムの総括熱流応答解析を行い、PFC 設計条件や使用限界（構造健全性）を明確にする。

## 参考文献

- [1] B. Koncar *et al.*, Fusion Eng. Des. 86, 167 (2011).
- [2] P. Norajitra *et al.*, Fusion Eng. Des. 86, 1656 (2011).
- [3] B. Koncar *et al.*, Fusion Eng. Des. 88, 1831 (2013).
- [4] P. Norajitra *et al.*, Fusion Sci. Technol. 67, 732 (2015).
- [5] M.S. Tillack *et al.*, Fusion Eng. Des. 86, 71 (2011).
- [6] A.S. Sabau *et al.*, Phys. Scr. T159, 14007 (2014).
- [7] A.S. Sabau *et al.*, Fusion Sci. Technol. 66, 394 (2014).



## 3. タスク 2 (1) 中性子照射計画

### 3. Task 2 (1): Neutron Irradiation Plan

檜木達也, 長谷川晃<sup>1)</sup>, 福田 誠<sup>1)</sup>, 田中照也<sup>2)</sup>, 大矢恭久<sup>3)</sup>, 波多野雄治<sup>4)</sup>, 上田良夫<sup>5)</sup>  
 HINOKI Tatsuya, HASEGAWA Akira<sup>1)</sup>, FUKUDA Makoto<sup>1)</sup>, TANAKA Teruya<sup>2)</sup>, OYA Yasuhisa<sup>3)</sup>,  
 HATANO Yuji<sup>4)</sup> and UEDA Yoshio<sup>5)</sup>

京都大学, <sup>1)</sup>東北大学, <sup>2)</sup>核融合科学研究所, <sup>3)</sup>静岡大学, <sup>4)</sup>富山大学, <sup>5)</sup>大阪大学

(原稿受付: 2016年12月20日)

米国のオークリッジ国立研究所にある研究用原子炉 HFIR を用いたタングステン材料の中性子照射試験を行った。熱中性子による核変換の影響を抑制するため、熱中性子遮蔽を検討しガドリニウムによる熱中性子遮蔽キャプセルを開発した。ガドリニウムによる熱中性子遮蔽効果や照射キャプセルの熱分布のモデリングを行い、これまでに知見が不足している高温領域で比較的高い線量での中性子照射試験を実施することができた。

#### Keywords:

neutron irradiation, tungsten, thermal neutron shielding, gadolinium, high temperature, high fluence

#### 3.1 諸言

PHENIX 計画の大きな目的の一つに、タングステン材料の各種特性に及ぼす中性子照射効果を明らかにすることがある。PHENIX 計画では、米国のオークリッジ国立研究所にある High Flux Isotope Reactor (HFIR) を用いて中性子照射試験を行う。しかしながらタングステンの場合、熱中性子によるレニウムやオスニウム生成等の核変換の影響が大きく、今回目的とする比較的高い損傷量では核変換元素の濃度が数%になり材料特性の変化が生じるため、その影響が特に顕著となる。タングステンでは1~2 displacement per atom (dpa) 以上で照射硬化が飽和し始めるとされている[1]。核変換効果を考慮した1 dpaを超える比較的高い線量領域における、中性子スペクトルが核融合環境に近い条件でのタングステンの照射効果データはこれまで得られていない。また、これまでに得られているタングステン材料の中性子照射データは、800℃程度までが中心であるが、ダイバータでは最高1500℃程度までの温度が想定されている。純タングステンでは、1000℃以上で再結晶が生じるが、1000℃以上での中性子照射データは非常に限られている。

本タスクでは、タングステンの核変換効果を抑制するための熱中性子遮蔽を行い、1000℃を超える照射温度も含めて、1 dpaを超える比較的高い線量の中性子照射を、現状候補とされる各種タングステン材料に対して行う。これにより、核融合炉ダイバータ用タングステン材料の中性子照射効果の基本的な理解を得る。本章では、そのための照射技術開発と照射計画の概要を述べる。

#### 3.2 熱中性子遮蔽キャプセルの設計・開発

HFIR における熱中性子領域でのフラックスは、核融合炉で想定されるフラックスに比べて、一桁以上高い[2]。熱中性子遮蔽材には、日米科学技術協力事業 JUPITER 計画で用いられた酸化ユーロピウム[3]、ガドリニウム、炭化ホウ素、ハフニウムで検討を行った。HFIR での6サイクルの中性子照射における遮蔽能力の観点では、酸化ユーロピウムとガドリニウムが候補となったが、取り扱い易さ、これまでの実績、コスト等を踏まえて、ガドリニウムを最終的に選択した。図1はガドリニウムによる熱中性子の遮蔽効果に関する計算結果である。キャプセルの外側(図の

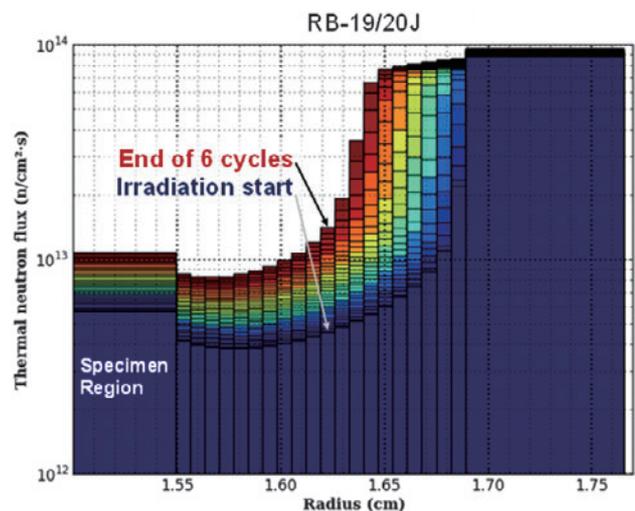


図1 ガドリニウムによる熱中性子の遮蔽効果。

右側)から内側(図の左側)にかけて熱中性子フラックスが減少することが示されている。青から赤への色分けに関しては、照射サイクルごとの遮蔽効果の低下を表している。試料はタングステンとして計算されており、中性子減速の影響も考慮されている。ガドリニウム熱中性子遮蔽により、キャプセル内の熱中性子束は約一桁低下し、核融合炉のスペクトルに近い条件での照射が期待できることが明らかになった。図2は、本研究で開発したガドリニウム遮蔽材の写真である。外側の筒がステンレス鋼で内側がアルミニウムであり、両者の熱膨張係数差により、サンドイッチ構造が圧縮されるようになっている。

### 3.3 中性子照射試験

HFIRにおける材料照射では、主にRB\*と呼ばれる比較的照射スペースの大きい(400×38 mm 径程度)キャプセルとラビットと呼ばれる比較的小さい(50×6 mm 角程度)キャプセルが用いられる。照射温度に関しては、どちらも1000℃を超える高温での実績がある。本研究では、比較的高線量での熱中性子遮蔽を検討したが、簡易的な計算においても、1 mm 程度の遮蔽が必要ということが明らかになった。ラビットキャプセルの場合、遮蔽を考慮すると照射スペースが非常に限られてしまうため、本研究ではRB\*を用いた照射試験(RB19J)を中心に検討することとなった。

RB19J キャプセルは、照射スペースが比較的大きいため、熱中性子遮蔽を考慮しても試験片の自由度は高い。照射温度に関しては、キャプセルを4つのサブキャプセルに分割して制御することにより、条件を振ることが可能であり、PHENIX 計画では、約500℃、約800℃、約1100℃の中性子照射を行った(図3の右下写真で黒色のグラファイトの3つのサブキャプセルがPHENIX 計画の分)。また、コスト削減のため、日本原子力研究開発機構(現:量子科学

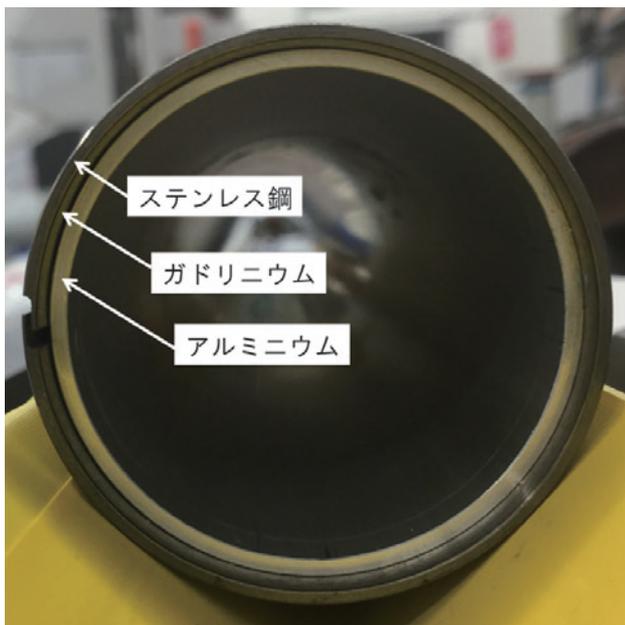


図2 RB19J キャプセルのガドリニウム遮蔽材。

技術研究開発機構)とキャプセルを共同で製作した(図3の右下写真で一番左のサブキャプセルが量子科学研究開発機構の分)。PHENIX 計画では、現在候補となっている各種タングステン材料に対して、強度や熱伝導度等の基本特性評価試験片、熱負荷試験片、トリチウム滞留・透過試験片等多様な試験片を系統的に評価できるようなテストマトリックスを日米共同で作成した。500℃の温度領域で406個、800℃の温度領域で389個、1100℃の温度領域で359個の試料を日米で準備した。タングステンの中性子照射による発熱の影響が懸念されたが、図4に示すように熱計算の結果、おおよそ目標とする温度域に収まることが明らかになった。

図3は、中性子照射のための試料とグラファイトホルダーの写真を示している。円柱状のグラファイトに試料の形状に合わせたスロットを加工し、各スロットに試料を詰めていった。これらを、図2のステンレス鋼/ガドリニウム/アルミニウムの筒の中に入れた。

RB19J キャプセルは、比較的高コストで照射する単位が大きいので、照射条件を振った試験には不向きである。RB\*に関しては、1回だけの照射試験であり、1~1.5 dpaの損傷量をめざして照射を行っているが、基本的には照射量を振ることができない。比較的核変換の影響が小さい低線量の約0.2 dpaでラビット照射を熱中性子遮蔽無しで、800℃、1100℃において実施した。試験片は全て6 mm 径で熱伝導度、強度、微細組織、トリチウム滞留・透過の評価が行われる。また、米国が保有していた、これまでの



図3 RB19J キャプセルの試料とグラファイトホルダー。

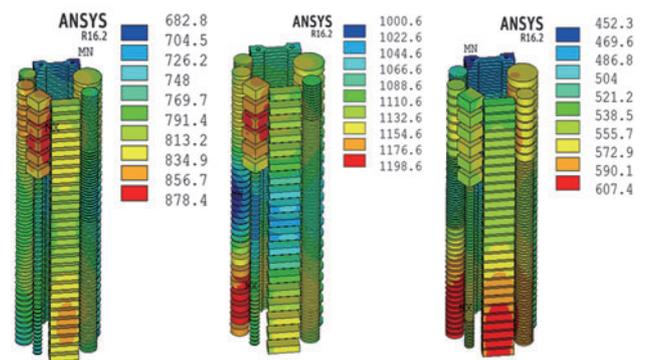


図4 RB19J での中性子照射時の熱計算結果。

プロジェクトで中性子照射された試料（熱中性子遮蔽無し）を活用した評価も進めている。

### 3.4 まとめ

PHENIX 計画では、熱中性子遮蔽を行いながらも比較的大きな容積を確保できるRB19Jキャプセルを用いることにより、タンゲステンで1~1.5 dpa程度の比較的高い損傷量での中性子照射を実施している。従来にない、1000℃を超える高温領域を含む系統的な中性子照射となっている。

プラズマ対向材料候補となり得る様々なタンゲステン材料に関し、比較的低線量では、中性子照射済みの試料、ラ

ビット照射試料により評価を行う。高線量では、熱中性子遮蔽を行ったRB19Jキャプセル照射試料により評価を行う。広範囲な温度、損傷領域での、中性子照射効果を明らかにし、ダイバータ用タンゲステンの適用性、開発指針を得る。

### 参考文献

- [1] A. Hasegawa *et al.*, J. Nucl. Mater. **471**, 175 (2016).
- [2] M.R. Gilbert *et al.*, J. Nucl. Mater. **467**, 121 (2015).
- [3] M.L. Grossbeck *et al.*, Fusion Mater. Semi-Annual Progress Reports, DOE/ER-0313/24, 254 (1998).



## 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-

### 4. タスク 2 (2) タングステン(W)の中性子照射効果

#### 4. Task 2 (2): Neutron Irradiation Effects on Tungsten (W)

長谷川 晃, 福田 誠, 黄 泰現, 近藤 創介<sup>1)</sup>, 野上 修平, 檜木 達也<sup>1)</sup>

HASEGAWA Akira, FUKUDA Makoto, HWANG Taehyun, KONDO Sosuke<sup>1)</sup>,

NOGAMI Shuhei and HINOKI Tatsuya<sup>1)</sup>

東北大学, <sup>1)</sup> 京都大学

(原稿受付: 2016年12月20日)

タスク 2 において HFIR を用いて中性子照射するために再結晶特性や脆化抑制が期待される各種タングステン合金を作製し, ラビットおよび熱中性子遮蔽付きの RB\* キャプセルでの中性子照射のための準備を行った. これまでに過去にラビットキャプセルで中性子照射された単結晶の試験片を用いた低照射領域における照射欠陥の挙動や, 1 dpa 近傍領域における照射硬化の挙動についての基礎的なデータを得ることができた.

#### Keywords:

neutron irradiation, tungsten, microstructure, heat treatment, hardness

#### 4.1 はじめに

PHENIX 計画タスク 2 の目的は, 核融合炉のダイバータの高温条件を含む温度領域 (500~1500°C 程度) におけるタングステン(W)材料の機械特性と熱伝導特性におよぼす中性子照射影響を明らかにし, ダイバータ設計に資する W のデータベースを構築することである. そのためにオークリッジ国立研究所の研究用原子炉 HFIR を使って, W の中性子照射を行い, 照射後試験によって照射影響を明らかにする. さらに, タスク 3 での中性子照射した W におけるトリチウム(T)の滞留および透過挙動を評価するための照射試料や, タスク 1 の耐熱負荷特性を評価する照射試料も供給する.

W の融点は約3420°Cであり金属中で最も高いが, 構造物の材料としての実際の使用では千数百度程度が上限である. また機械機器材料として求められる機械特性は結晶粒の大きさや形状, 結晶粒内の転位密度などの微細組織に強く依存する. 図 1 は W の物理特性と一般的な加工を受けた材料の結晶粒組織の温度依存性を示す. W は融点が高いため, 1000°C を超えても他の金属よりも機械強度が高く, 高温領域では延性も示すが, 体心立方格子 (BCC) の結晶構造を持つことから低温では延性脆性遷移 (DBT) 挙動を示し, この温度 (DBTT) 以下では脆性的な破壊を起こす. また低温領域では粒界が弱いことから, 再結晶し結晶粒径が大きくなると, 粒界を起点として割れる粒界脆化も起こす. ダイバータの材料として使う場合, 使用温度である高温領域での強度も求められる. したがってダイバータ材料として長期に渡って安心して使うためには, (1) DBTT が低い, (2) 再結晶を起こしにくい, (3) 高温強度が高い, と

いう特性が求められる (図 1 中, 太い矢印の傾向) [1]. そのために, 加工や合金添加などによる組織制御や W の改質が試みられてきている.

一方, 中性子照射で導入されるはじき出し損傷や核変換元素の W の特性への影響は, 実際に原子炉で中性子照射することで確認するしかない. しかし W の中性子照射のデータはオーステナイトステンレス鋼や低放射化フェライト鋼, パナジウム合金などに比べて圧倒的に少ない. 重照射のデータのみならず, 照射温度範囲や材料の系統的調査もほとんどない.

W の照射挙動とその機構を理解し, 照射に対する抵抗性の高い材料を開発するために, PHENIX 計画では, 表 1 に示すような材料を照射した. 合金元素や結晶粒組織等に依存しない W そのもの (物質データ) における DBTT の低下や W の照射欠陥の基礎的な挙動研究のために単結晶 (高純

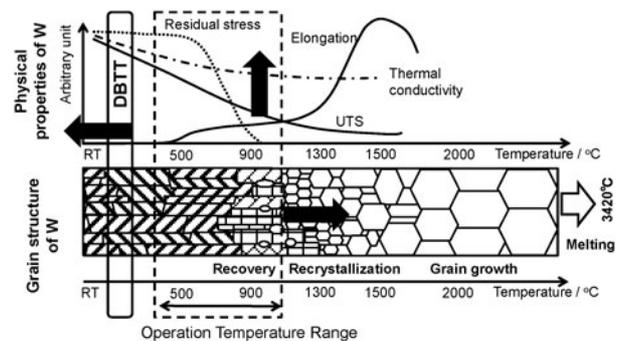


図 1 W の物理特性と, 加工された W の結晶粒組織発達の温度依存性.

表1 RB\*照射したタングステン材料

CW: 冷間加工材, SR: 応力除去処理材, R: 再結晶材.

|                   |               |
|-------------------|---------------|
| 単結晶 W (100) (110) | W 0.2%Re      |
| 多結晶 W CW          | W 3%Re        |
| 多結晶 W SR          | W 3.4%Re      |
| 多結晶 W R           | W 5%Re        |
| 多結晶 ITER ダイバータ材   | W Y203        |
| K ドープ W SR        | UFG W         |
| K ドープ W 3%Re SR   | SiC-W Joint   |
| La ドープ W 3%Re SR  | W coated F82H |

度材)を照射しているだけでなく、図2に示すような組織制御した材料も照射している[2]。このような結晶粒微細化などによる組織制御をすることにより、Wの低温領域での割れを抑制し、合金化によってより高い再結晶温度や高温強度の向上が図られている。照射前の試験によってこれらの合金や組織制御材で前述の(1)~(3)の特性向上が期待あるいは確認されたものを照射試料として供しており、照射硬化や脆化といった材質変化の抑制が期待されている。これらの材料の製造や評価は、LHD計画共同研究や科研費などの資金を活用して行った[3,4]。

これまでのWの中性子照射効果の研究では、原子炉内での照射体積が限られているので試験片の大きさの制限があり、微細組織や硬さのデータが主であった。しかし照射した材料の熱負荷時の変形やき裂発生の予測などには照射材の引張り強さの温度依存性や熱伝導率等の材料データが必要であり、PHENIX計画ではこれらのデータを取得するために引張り試験片や熱伝導率測定試験片などを準備した。

前章で述べたように、照射量は照射効果の機構がはっきりわかる低照射量から、照射硬化などが飽和し始めると言われる1~2 displacement per atom (dpa)程度までを目標に原子炉での照射を行った。また材料試験炉で懸念されるWの熱中性子吸収による核変換で生成されるレニウム(Re)やオスミウム(Os)の影響を抑えるために、核変換元素の濃度が数%になる高照射量の試験において、熱中性子を吸収するガドリニウム(Gd)を熱中性子遮蔽材として核変換を抑制できる照射キャプセルを作製した。またWだけではなく、将来の構造材との接合やWの被覆を考慮し、W/SiCの接合材についても照射も行い、その照射後特性の評価試験方法の開発も行った。一方、原子炉照射試験は、キャプセルの設計から製作・試験片装荷・検査に約1年、照射(1 dpa)に1年、放射能の冷却から試験片取り出しまで約1年と約3年以上の長期間にわたる。さらに、PHENIX計画のメインの照射であるRB\*キャプセル照射では照射温度は3温度あるが、照射量が1レベルしかない。これまで系統的な原子炉での照射研究があまり行われていないWの中性子照射による材料挙動を理解し、解明していくには、より広い条件下での挙動のデータの収集が必要である。そこでPHENIX計画で得られる試験片の照射後実験の準備も兼ねて、米国が保有していた、これまでのプロジェクトにおいてHFIRで低線量中性子照射されたW試料(熱中性子遮蔽無し)の照射後試験も実施した。0.1 dpa以下の低線量では核変換のレベルも低く、照射欠陥

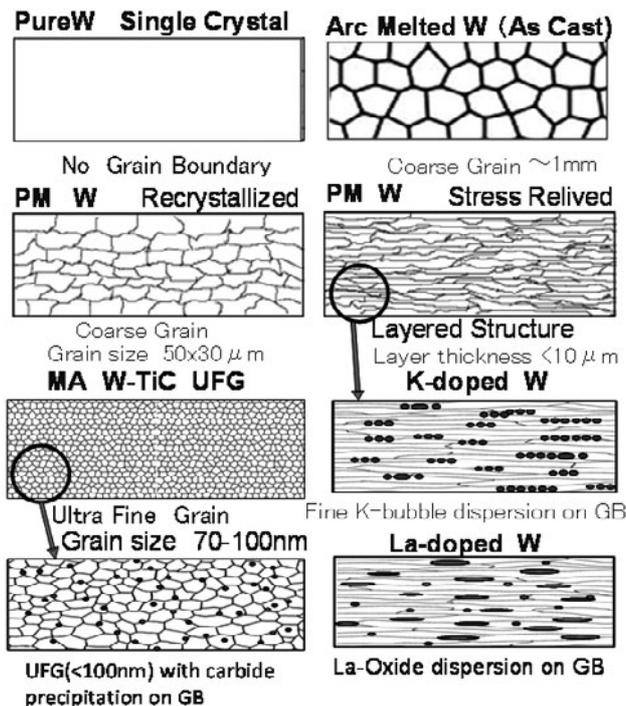


図2 典型的な純WおよびW合金における結晶粒組織の概略。

のみの影響を解明するには十分である。

## 4.2 実験方法

まず始めに、PHENIX計画で日本側が中心となって準備し照射した試料に先行してデータが得られた米国が保有していた中性子照射材の概要を説明する。0.1 dpa以下の低線量照射は、照射時間が原子炉の照射サイクル(約1ヶ月/約0.2 dpa)よりも短いため、原子炉の運転中でも炉から出し入れできるラビットキャプセルを用いて行われた。ただし、ラビットキャプセルは内径が10 mm程度と狭く、熱中性子吸収材を入れることができないので核変換を抑制する熱中性子遮蔽は行っていない。照射は、室温から800℃までの温度範囲で、0.02 dpaから5 dpaまで照射された。試験片は微小引張り試験片形状で、単結晶Wが大部分を占める。そのため、結晶粒の大きさや形状、加工による転位などに依存しないWそのものの基礎データを得ることができる。照射後の試験は陽電子消滅法による格子欠陥の同定や、硬さ測定と引張り試験を行い、照射による微細組織の変化による照射硬化や引張り変形の挙動を調査した。

照射による材料劣化を抑制するには、結晶粒の大きさや形状、転位組織の導入などの工夫が必要である。核融合炉の照射環境下での長期間の使用を目的として、日本で開発した多結晶材や合金などの組織制御材については、PHENIX計画で新たにラビットキャプセルを製作し、800℃と1100℃で1サイクル、約0.2 dpaの照射を行った。ラビットキャプセルなので熱中性子の遮蔽効果はない。この照射試料は熱伝導測定用ディスクの形状であり、照射は既に完了し、現在放射能の冷却中である。

単結晶や微細組織制御した各種W材料の照射は、熱中性子遮蔽を施した大型の照射装置(RB\*キャプセル)で

1~1.5 dpaをめぐりて現在照射中である。PHENIX計画の照射実験の特徴は材料試験炉において核変換を抑制し、より核融合炉に近い中性子環境を実現するこの熱中性子遮蔽にあり、その詳細は第3章で述べられている。引張り試験や熱伝導測定用ディスクなど各種形状の試験片を500, 800, 1100°Cの各温度で照射している。2017年前半で照射を完了し、放射能を冷却したのち、2018年からの照射後試験に向けて照射後試験装置の整備を進めている。

### 4.3 これまでの主な成果

照射欠陥の温度による挙動を明らかにするために、ラビットキャプセル中で室温において低線量 (0.03 dpa) 照射を行った W 単結晶試料の照射硬化量の照射後熱処理による変化と、陽電子消滅法や透過型電子顕微鏡で観察した損傷の温度による変化の挙動を図3に示す[5]。

図の左端は照射前のビッカース硬さである。低線量のため照射硬化量は小さいが、照射後の昇温によって硬さが増加し、600~800°Cで最高となって、その後は硬さが減少することがわかる。これは陽電子消滅法や透過電子顕微鏡による組織観察の結果から、温度が上がったことによるポイドなどの空孔クラスターの核形成および成長と、格子間原子型の転位ループの形成と成長により、W中の転位のすべり運動の抵抗が発生し、その結果、変形能の低下、すなわち硬化を示すようになったと考えられる[6]。焼鈍の温度が上がることで、これらの欠陥クラスターはさらに成長し粗大化したり、また欠陥を放出することで縮小し消滅することから、高温部では硬さの回復が見られるようになったと考えられる。同様の結果はMo等の他の高融点金属材料では報告されている[7]が、Wの中性子照射材の系統的な基本データはこれまであまり取られておらず、照射後の欠陥の基本的な挙動を理解する上で貴重なデータが得られた。

図4はこれまでに得られている純Wの照射硬化量の損傷量 (dpa) 依存性のデータをまとめて示したものである[8]。図4中の①~④がPHENIX計画で得られたデータである。1 dpa以下では熱中性子の多寡にかかわらず、照射硬

化の損傷量依存性はほぼ同じ傾向にあるが、1 dpa以上では、HFIRのように熱中性子の多い水冷却原子炉での照射と、熱中性子の少ないNa冷却の高速炉照射を比べると、HFIRの方が照射硬化量がずっと大きくなる傾向が見られた。これはHFIRでの1 dpa以上の照射では核変換によりReが数~十%程度に達し、WReやWRe<sub>3</sub>といった析出物が多量に形成されることが原因と考えられている[1, 9]。陽電子消滅法や透過型電子顕微鏡による微細組織観察の定量的な評価からもそれが裏付けられた[5, 6, 8]。これらの結果から、HFIRでの1 dpa以上の照射においては熱中性子遮蔽による核変換の抑制の重要性が認識され、前章で述べたように現在熱中性子遮蔽を施した大型のキャプセル (RB19J) での照射が進められている。

### 4.4 今後の課題

照射の終わった試験片は放射化しているため1年程度の冷却が必要であり、その後キャプセルを解体し、米国での照射後試験を行うと共に、一部の試験片を日本へ輸送し、国内でも照射後試験を行う予定である。放射化している試験片の評価には放射線管理区域内での実験が不可欠であり、そのための装置の整備や、効率的な試験片の利用などの照射後実験計画を調整していくことが必要である。

### 参考文献

- [1] A. Hasegawa *et al.*, J. Nucl. Mater. **471**, 175 (2016).
- [2] 長谷川晃: プラズマ・核融合学会誌 **92**, 891 (2016).
- [3] M. Fukuda *et al.*, Fusion Sci. Eng. **68**, 690 (2015).
- [4] A. Hasegawa *et al.*, presented at the 25th IAEA Fusion Energy Conference, Saint Petersburg, Russian Federation, Oct. 13-18, 2014.
- [5] X. Hu *et al.*, J. Nucl. Mater. **480**, 235 (2016).
- [6] X. Hu *et al.*, J. Nucl. Mater. **470**, 278 (2016).
- [7] S. Morozumi *et al.*, J. Nucl. Mater. **108&109**, 417 (1982).
- [8] M. Fukuda *et al.*, J. Nucl. Mater. **479**, 249 (2016).
- [9] M. Fukuda *et al.*, J. Nucl. Mater. **455**, 460 (2014).

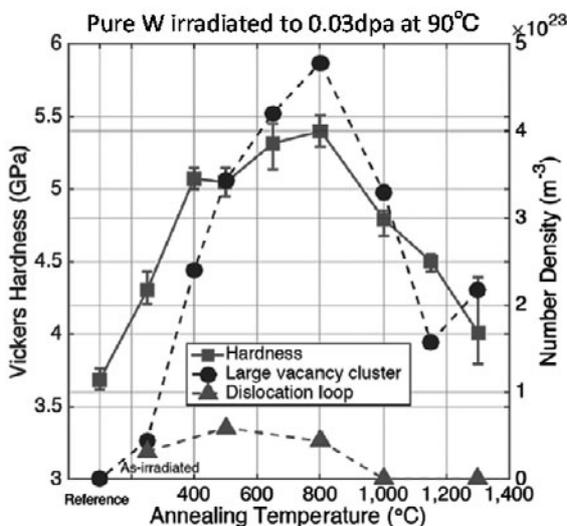


図3 中性子照射したW単結晶の照射後焼鈍による硬さと損傷組織の変化[5]。

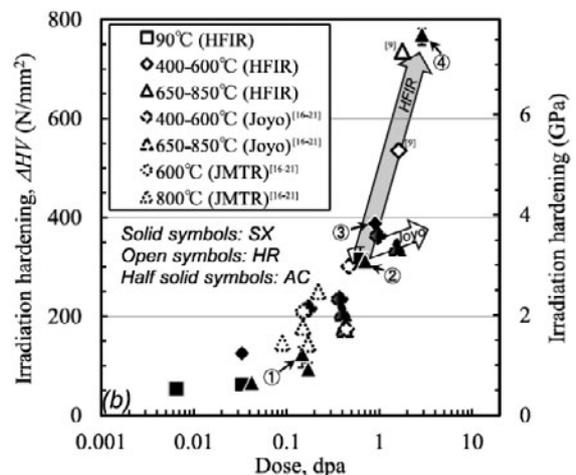


図4 純Wの照射硬化量はじき出し損傷量依存性[7]。



## 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<sup>1)</sup>, 片山 一成<sup>2)</sup>, 山内 有<sup>3)</sup>, 信太 祐二<sup>3)</sup>, 大塚 哲平<sup>4)</sup>,  
近田 拓未, 原 正憲<sup>1)</sup>, 大宅 諒<sup>5)</sup>, 上田 良夫<sup>5)</sup>, 外山 健<sup>6)</sup>

OYA Yasuhisa, HATANO Yuji<sup>1)</sup>, KATAYAMA Kazunari<sup>2)</sup>, YAMAUCHI Yuji<sup>3)</sup>, NOBUTA Yuji<sup>3)</sup>,

OTSUKA Teppei<sup>4)</sup>, CHIKADA Takumi, HARA Masanori<sup>1)</sup>, OYA Makoto<sup>5)</sup>,

UEDA Yoshio<sup>5)</sup> and TOYAMA Takeshi<sup>6)</sup>

静岡大学, <sup>1)</sup>富山大学, <sup>2)</sup>九州大学, <sup>3)</sup>北海道大学, <sup>4)</sup>近畿大学, <sup>5)</sup>大阪大学, <sup>6)</sup>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グステン (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ー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グステン (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ー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ー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

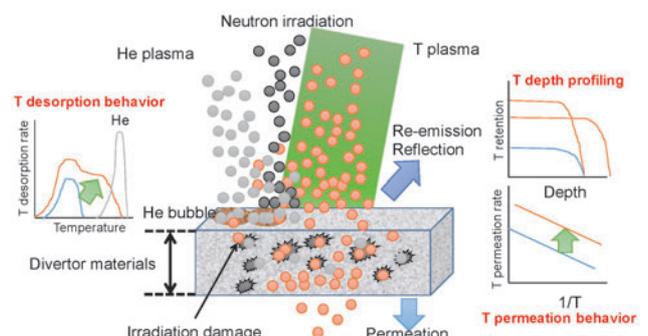


図 1 プラズマ対向材料におけるトリチウム挙動と本研究の位置付け。

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 Fe<sup>3+</sup>, TIARA: 6 MeV Fe<sup>2+</sup>; 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

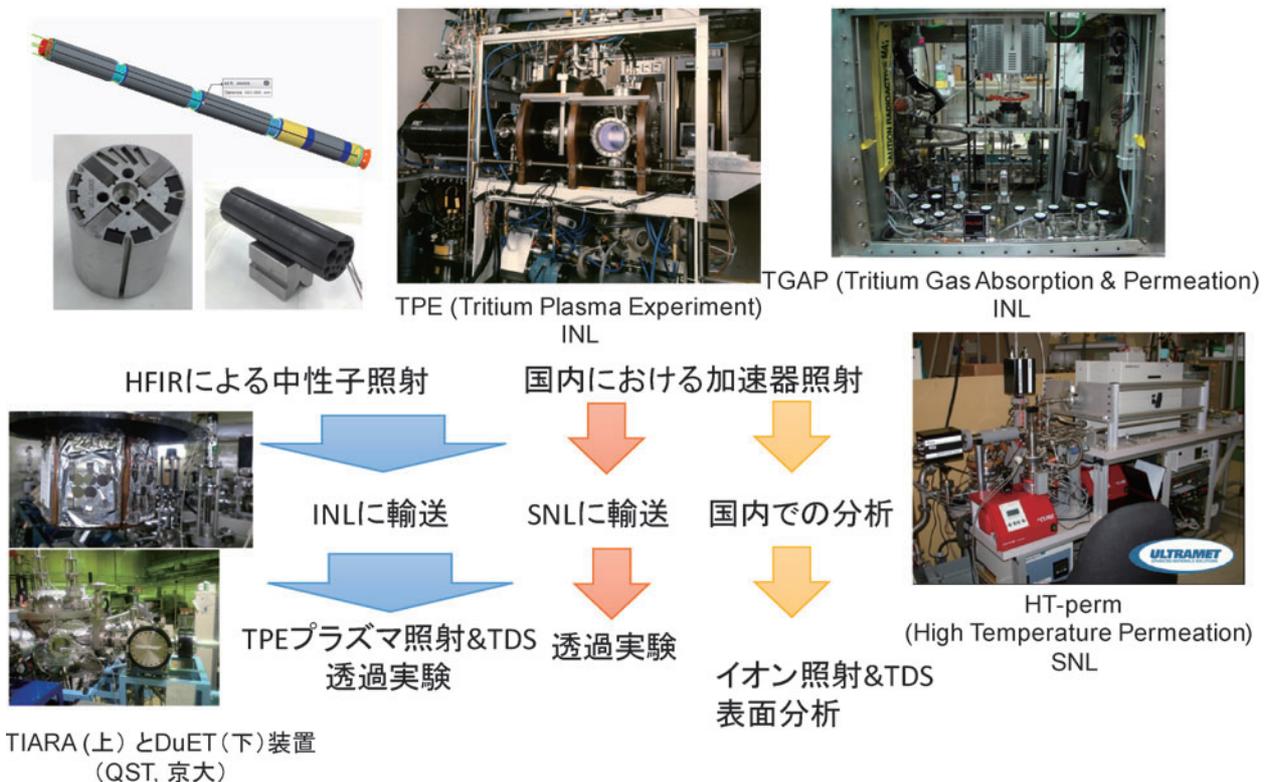


図2 タスク3における使用設備と研究の流れ。

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 D<sub>2</sub><sup>+</sup>イオンを $1.0 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2}$ まで照射し、D<sub>2</sub>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

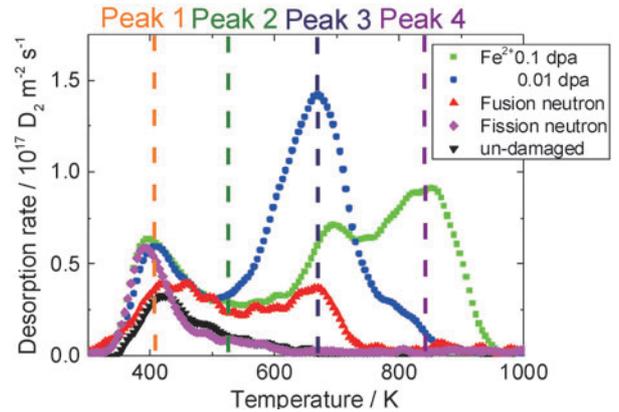


図3 鉄イオンおよび低照射量の中性子を照射したWにおけるD<sub>2</sub> TDS スペクトル (重水素イオン照射: 室温)[9].

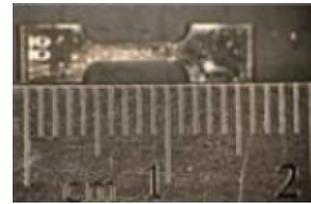


図4 Dプラズマ照射に用いた単結晶W引張り試験片 (673 K, 0.1 dpa).

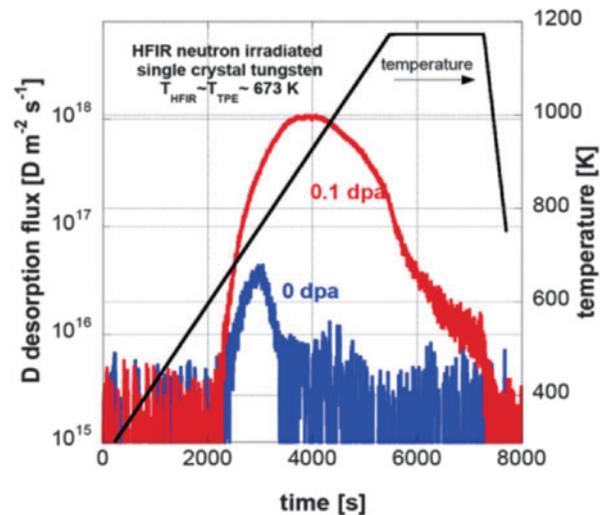


図5 TPEにて重水素プラズマ照射した0.1 dpa中性子照射Wと非照射WのD<sub>2</sub> TDS スペクトル[8]。T<sub>HFIR</sub>はHFIRでの中性子照射温度、T<sub>TPE</sub>はTPEで重水素プラズマに曝露した温度である。

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  $\mu\text{m}$ ) 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  $\text{D}_2^+$  を  $1.0 \times 10^{22} \text{Dm}^{-2}$  まで照射した際の  $\text{D}_2$  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、熱アニー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

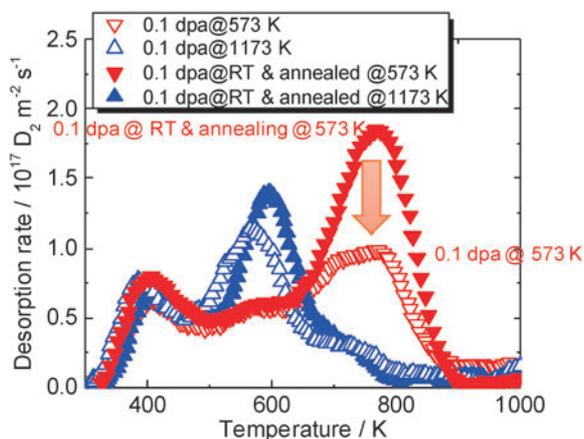


図 6 高温鉄イオン照射 W 試料と室温鉄イオン照射後アニール W 試料に重水素イオン照射した際の  $\text{D}_2$  TDS スペクトル [11].

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  $\mu\text{m}$  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

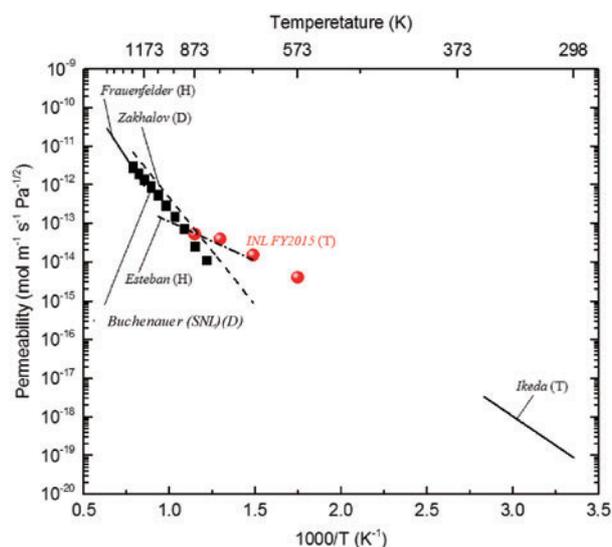


図 7 非照射 W 試料における 573 K から 1273 K の温度領域での水素同位体透過挙動。

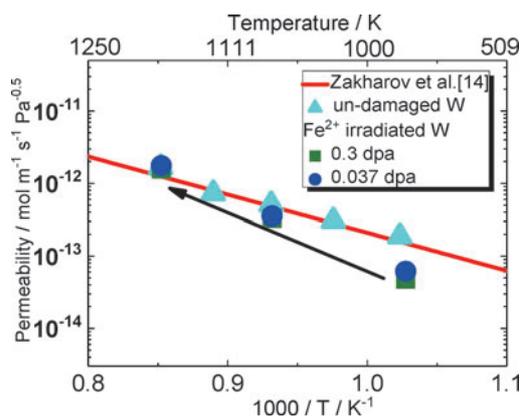


図8 鉄イオン照射 W 試料における重水素透過挙動。

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).



## 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-

### 6. まとめと今後の研究計画

#### 6. Summary and Future Plan

上田良夫, 波多野雄治<sup>1)</sup>, 横峯健彦<sup>2)</sup>, 檜木達也<sup>2)</sup>, 長谷川晃<sup>3)</sup>, 大矢恭久<sup>4)</sup>, 室賀健夫<sup>5)</sup>

UEDA Yoshio, HATANOU Yuji<sup>1)</sup>, YOKOMINE Takehiko<sup>2)</sup>, HINOKI Tatsuya<sup>2)</sup>, HASEGAWA Akira<sup>3)</sup>,

OYA Yasuhisa<sup>4)</sup> and MUROGA Takeo<sup>5)</sup>

大阪大学, <sup>1)</sup>富山大学, <sup>2)</sup>京都大学, <sup>3)</sup>東北大学, <sup>4)</sup>静岡大学, <sup>5)</sup>核融合科学研究所

(原稿受付: 2016年12月20日)

PHENIX 計画は, タングステン (W) をプラズマ対向材料とするヘリウム冷却プラズマ対向機器 (PFC) の核融合炉環境下における健全性および安全性の評価と, 原型炉実現に向けた開発課題の抽出を目的とし, 2013年度から6年計画でスタートした。既に前半の研究をほぼ予定通りに進め, 後半に入った。

タスク1で実施している高温高圧ヘリウムループを用いた衝突噴流群伝熱実験では, 狭隘流路内での層流化に起因する伝熱特性の劣化という問題が見出された。今後ヘリウム温度500~700℃の高温実験のデータを補完すると共に, 層流化の乱流モデリングのための基礎実験を進める。また, 冷却構造の最適化のための数値シミュレーションによるダウンセクションを行い, 新しい概念設計およびそれに関連する伝熱実験を行う。また, タスク2の協力を得て, 中性子照射 W 材料の熱伝導度測定および熱負荷実験を実施する。

タスク2では多様な W 材料についてラビットキャプセルを用いた比較的低線量の中性子照射と, 熱中性子遮蔽を施した RB\*キャプセルによる核融合環境に近い中性子スペクトルでの高線量照射を, これまでにない高温領域 (500~1100℃) で実施した。誘導放射能の減衰を待ち, 2018年のはじめから, これら照射試料について微細組織観察や機械的特性試験を行い, タスク1で得られる熱伝導特性や耐熱負荷特性のデータと合わせて, W 材料を原型炉プラズマ対向材料として使用する際の健全性予測に不可欠なデータベースを構築する。また, 過去のプロジェクトで中性子照射された W 試料の中から PHENIX 計画の目的に適合するものを抽出し, 照射で導入された欠陥の集合・回復過程に関する基礎的データを取得する。

タスク3では, 同様に過去のプロジェクトで高温中性子照射された W 試料に重水素プラズマを照射し, 世界で初めて高温環境下での中性子照射 W 中の水素同位体挙動に関するデータを取得した。また, 非照射材についてトリチウムの透過実験を実施し, 温度によってトリチウムの拡散経

路が変化することを見出した。今後, ラビットキャプセルおよび RB\*キャプセルで照射した試料を用いて, 水素同位体挙動の中性子照射温度・照射量依存性に関するデータベースを構築し, 原型炉でのトリチウム挙動予測の基盤とする。

伝熱実験および熱負荷実験により提案するヘリウム冷却プラズマ対向機器の概念設計に, タスク2から得られる中性子照射効果, およびタスク3からのトリチウム挙動予測を加え, PFC システムの総括熱流応答解析を行い, PFC 設計条件や使用限界, 今後の開発課題を明確にする。

PHENIX 計画はヘリウム冷却 PFC を主眼においてはいるが, W 材料の熱機械的特性やトリチウム挙動に及ぼす中性子照射影響は水冷却システムにも共通する課題である。国内の研究用原子炉が停止している中において, 大規模な中性子照射と照射後試験を実施する機会は極めて限られており, 本研究で得られる照射データベースは核融合コミュニティの貴重な財産となるであろう。迅速な成果の公開と, 関係各所との緊密な情報共有を進めたいと考えている。

また, フレキシブルな照射後試験を実施するため, 照射材の一部を国内へ輸送することを計画している。特に, 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には, 透過電子顕微鏡や陽電子寿命測定装置など材料分析に不可欠な装置群に加え, 直線型プラズマ装置 Compact Divertor Plasma Simulator (C-DPS) や昇温脱離実験装置が整備されており, 核融合炉材料の照射後試験に最適な環境が整っている。今後, 関係各所と協議し, 滞りなく試料の輸送が行えるよう準備する予定である。

以上のように, 中性子照射はほぼ完了しつつある状況ではあるが, 照射後試験はまさにこれから本格化する。極めて貴重な中性子照射試料なので, 照射後試験の進め方についてご助言等をいただければ大変幸いです。

核融合炉の実現には, トリチウムや放射化物の取り扱いに関する知識を有する研究者, 技術者が不可欠である。ま

corresponding author's address: Grad. Sch. of Eng. Osaka Univ., Suita, OSAKA 565-0871, Japan

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

た、ITER 計画などの国際共同研究で我が国が指導的立場を得るためには、国際経験が豊富な研究者、技術者を育成していく必要がある。PHENIX 計画は、このような人材育成の面でも貴重な役割を果たすものであり、若い研究者、博士課程学生の積極的な参加を期待する。

## 謝 辞

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（小森彰夫前所長、竹入康彦現所長）、幹事（金子修先生）、委員各位にご指導ご協力をいただいた。本研究がアメリカ側の多大な協力により遂行できていることはいうまでもない。最後に、参加協力いた

だいたアメリカ側の研究者に心より謝意を表する（所属は共同研究当時のもの）。

D. Clark（米国エネルギー省）、L. M. Garrison, J. W. Gerlinger, X. Hu, Y. Katoh, T. Koyanagi, J. L. McDuffee, C. M. Parish, A. S. Sabau, L. L. Snead（以上 オークリッジ国立研究所）、L. Cadwallader, B. Merrill, R. Pawelko, M. Shimada, C. Taylor（以上 アイダホ国立研究所）、D. Buchenauer, D. Donovan, R. Kolasinski, W. Wampler（以上 サンディア国立研究所）、S. I. Abdel-Khalik, M. Yoda（以上 ジョージア工科大学）