



講座 中性子照射によるタングステンの材料特性と水素同位体挙動の変化

3. 中性子照射タングステンやタングステン合金における水素蓄積・透過挙動

3. Hydrogen Isotope Retention and Permeation Behavior in Neutron-Irradiated Tungsten and Tungsten Alloys

信太祐二, 大矢恭久¹⁾
NOBUTA Yuji and OYA Yasuhisa¹⁾
北海道大学, ¹⁾静岡大学
(原稿受付: 2024年10月10日)

核融合炉開発において、燃料である重水素およびトリチウムに直接曝されるプラズマ対向材料中の水素蓄積・透過挙動を理解することは、炉設計上必要不可欠である。しかし、核融合炉条件を模擬した状態での水素蓄積・透過評価は、人類がまだ核融合炉を持っていないため極めて難しい。特に、核融合炉特有の過酷環境条件を模擬することが大きな課題である。そのため、核融合炉条件を外挿できる実験条件での知見を集積していく必要がある。本章では、研究用原子炉を利用した中性子照射タングステン試料の作成方法および各研究施設への試料の輸送・利用方法、水素蓄積・透過挙動の評価手法の基礎や実験を行う際の注意点を解説するとともに、これまでの日米科学技術協力事業で得られた評価結果についても紹介する。

Keywords:

tungsten, neutron irradiation, hydrogen retention and permeation behavior, hydrogen isotope effect, helium effect, transmutation effect

3.1 はじめに

現在建設中の国際熱核融合実験炉ITERは、2035年から重水素 (D) とトリチウム (T) を用いた核燃焼プラズマ実験が行われる予定であり、プラズマを取り囲む材料は初めて本格的に中性子の照射を受けることになります。中性子が金属材料に照射されると、材料を構成する格子原子が中性子との衝突により元の位置からはじき出され照射欠陥を形成するとともに、核変換により他の元素が生成されるなどして材料内部のマイクロ構造が変化し、材料機械的特性が大きく変化します。そのため、核融合炉の安全性評価で重要となるプラズマ対向材中での水素蓄積・透過挙動も大きく変化することが予測されます。日米科学技術協力事業では、このような水素同位体挙動に及ぼす中性子照射影響を明らかにするため、中性子照射材を用いた様々な研究が行われてきました。本講座の前号および前々号では、中性子照射したタングステン (W) の主に機械的特性の変化について説明されていますが、本章では、中性子照射したWおよびタングステン - レニウム (W-Re) 合金の水素蓄積・透過挙動について解説します。ちなみにここでいう「水素 (Hydrogen)」とは、軽水素 (Protium, H) だけではなく、重水素 (Deuterium, D) と三重水素 (Tritium, T) も包含した用語としてとらえてください。

まず、なぜこの水素蓄積・透過挙動を調べる必要があるのかについて説明します。水素の特徴的な性質として、他

元素に比べて金属内に侵入しやすいこと、そして、すべての元素の中で金属中をもっとも速く移動する (拡散する) 元素であることが挙げられます。どのくらい速いかというと、例えば、純鉄の中では、室温の拡散係数は約 1×10^{-8} (m^2/s) にもなり [1], 1 mm 厚の鉄板だと室温でも 100 秒程度で片側から反対側まで到達することになります。このように速く動ける理由は、大雑把に言ってしまうと、あらゆる元素の中で水素原子のサイズが最も小さい (中性原子 H^0 では半径 0.053 nm (ボーア半径)) ため、結晶格子間を素早く動き回ることができることに起因します [2]。プラズマを取り囲むプラズマ対向材およびその内部を走る冷却管は金属で構成されるため、T を燃料とする核融合炉では、高温であるプラズマ対向材にプラズマからの T が侵入・透過し、その内部の冷却管壁も透過し、冷却管内を流れる冷却水に混入し、最終的には外部環境に放出されてしまう (漏洩する) ことが起きかねないわけです。このようなことが起これば安全な核融合炉の実現はありえませんし、社会に受け入れられることもないでしょう。また、プラズマ対向材中に蓄積した T は、プラズマ対向機器のメンテナンス・交換時にプラズマ対向材から放出されると、作業員の被ばくにつながります。T は外部被ばくは問題になりませんが、体内に取り込むと全身に分布するため内部被ばくが問題になります。さらに、トリチウムは自然界にはほとんど存在しない (半減期: 12.3 年) 大変貴重な物質であるため、

材料中に留まり続けると燃料の無効貯蔵（デッドストレージ）となり、有効に利用できないとともに、放射壊変によりヘリウム 3 (^3He)の蓄積につながります。以上のように、核融合炉の安全性や燃料リサイクルの観点から、プラズマ対向材の水素蓄積・透過挙動を正確に把握しておくことが必要です。

では、金属の水素蓄積・透過挙動はどの程度わかっているのでしょうか。例えば、水素の挙動に関する重要な拡散係数や溶解度などはかなり古くから調べられています[3-5]。また、イオン照射やプラズマ照射実験により、金属に注入された水素の蓄積・透過挙動についても多くの研究者により調べられてきました。このような既知の情報を使えば、核融合炉のプラズマ対向材中にTがどれくらい蓄積するのか、どのくらい材料中を透過するのか、などについてきちんと予測できるのでは？と思われるかもしれませんが、実際はそうではありません。DとTを燃料とする核融合炉では、核融合反応によって中性子とヘリウム (He)が生成され、それらがプラズマ対向材料に照射されることとなります。さらに、材料中では、中性子と金属原子との核反応により他の元素が生成される（核変換する）こととなります。このような現象が起こると、後述するように、金属中のミクロな構造が変化し、それにより水素蓄積・透過挙動が変化するのはです。また、核融合炉の運転温度も金属中のミクロな構造に影響することから、水素挙動に大きく影響します。そのため、“核融合環境下”における水素蓄積・透過挙動を予測できる（外挿できる）知見を集積しないといけないのです。これらが明らかになることで、核融合炉の設計や使用する材料の選択、T透過防止策などに具体的に貢献できるデータとなります。

プラズマを取り囲むプラズマ対向材料として、ITERではWが使用され、それ以降の原型炉でもWが有望視されています[6-8]。核融合炉内では、Wは濃度の高いTに曝されるため、TがW内部に侵入しやすい環境にあります。そのため、近年はWの水素蓄積・透過挙動が精力的に調べられています。ちなみに、このような実験はDを使用することが多いのですが、放射性物質であるTを使用できる施設もいくつかあり、Tから放出されるベータ線を利用した独創的な研究も行われています[9]。Wがプラズマ対向材として選ばれた理由はいくつかありますが、そのひとつは水素の溶解度が小さいことがあげられるでしょう。つまり、Wは基本的に水素をあまり蓄積しない材料なのです。しかし、日米科学技術協力事業TITAN計画における実験で、中性子照射による照射欠陥が形成されることで水素蓄積量が桁違いに増大し、また、そのような欠陥に捕捉された水素はかなり高温で脱離する（強く捕捉される）ことが明らかになってきました[10, 11]。さらに、TITANに続くPHENIXやFRONTIER計画において、核変換ReやHe照射、中性子照射量・照射温度などが水素蓄積・透過挙動におよぼす影響、軽水素と重水素の同位体効果など、中性子照射Wの水素蓄積・透過挙動がさらに詳細に調べられてきました[12]。

本講座では、3.2節において中性子照射試料を使った実

験をどのような手順で進めているのか、3.3節で上に述べた主に日米共同研究PHENIX計画とFRONTIER計画で明らかになった水素蓄積・透過挙動に及ぼす中性子照射影響について述べます。

本章は他分野の方にもわかるようにできるだけ丁寧に説明しているつもりです。この講座を読んでいただき、核融合環境下における材料中の水素の振る舞いがいかにダイナミックに変化するのか、その面白さと重要性を理解していただければ幸いです。

3.2 研究の流れ

核融合炉の過酷環境を模擬した試料を作成するために、中性子照射する必要があります。国内では京都大学・近畿大学の原子炉または日本原子力研究開発機構のJRR-4で中性子照射を行うことができますが、これらは中性子フラックスが低く核融合炉環境を模擬することができません。そのため、米国オークリッジ国立研究所 (ORNL)にある高中性子束アイソトープ原子炉 (HFIR)を用いました。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、Rabbit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ています。照射温度も 1000°C を超える照射が可能で[13]。RB*は照射コストが高いため、実験の用途によりRB*とRabbit照射を使い分けて実施しました。中性子照射前にはORNLでキャプセルのデザイン、導入する試料の形状・サイズ・不純物の含有量などに基づいて熱計算し、希望の照射が可能かの検討が綿密に行われます。また、RB*は比較的大きいサイズであるため、ガドリニウムシールドによる熱中性子遮へいを入れることにより、熱中性子束を約一桁下げることが可能です。これにより、中性子照射後の試料の放射化が低減でき、照射後試験を早く開始することが可能となります。また、熱中性子との核変換による影響を低減することもできます。これらの試料をORNLからアイダホ国立研究所 (INL)に輸送し、トリチウムプラズマ照射装置 (TPE)を用いてDプラズマ照射を行いました。TPEでは試料ホルダー裏の冷却水との接触とプラズマからの入熱を制御することにより照射温度が決まります。照射エネルギー 100 eV、フラックス $(5 - 8) \times 10^{21} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 程度とし、フルエンスを $5 \times 10^{25} \text{ m}^{-2}$ まで照射しました。その後、昇温脱離実験 (TDS)を行い、Dの放出挙動を評価しました。また、一部の試料は、**図1**に示す実験の流れにしたがって、日本国内で照射後試験を行うために、INLから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 (IMR-Oarai)に試料を輸送しました。IMR-Oaraiはこれまでに外国から中性子照射材を受け入れたノウハウが十分にあります。IMR-Oaraiで試料を受け入れると、IMR-Oaraiの管理区域内にあるCompact Divertor Plasma Simulator (CDPS)を用いたプラズマ照射実験や国内の大学への輸送が可能になります。ただし、試料は放射化しているため放射性物質の許可数量を持っている管理区域に限ります。静岡大学では一部の試料を受入れ、管理区域内に設置され

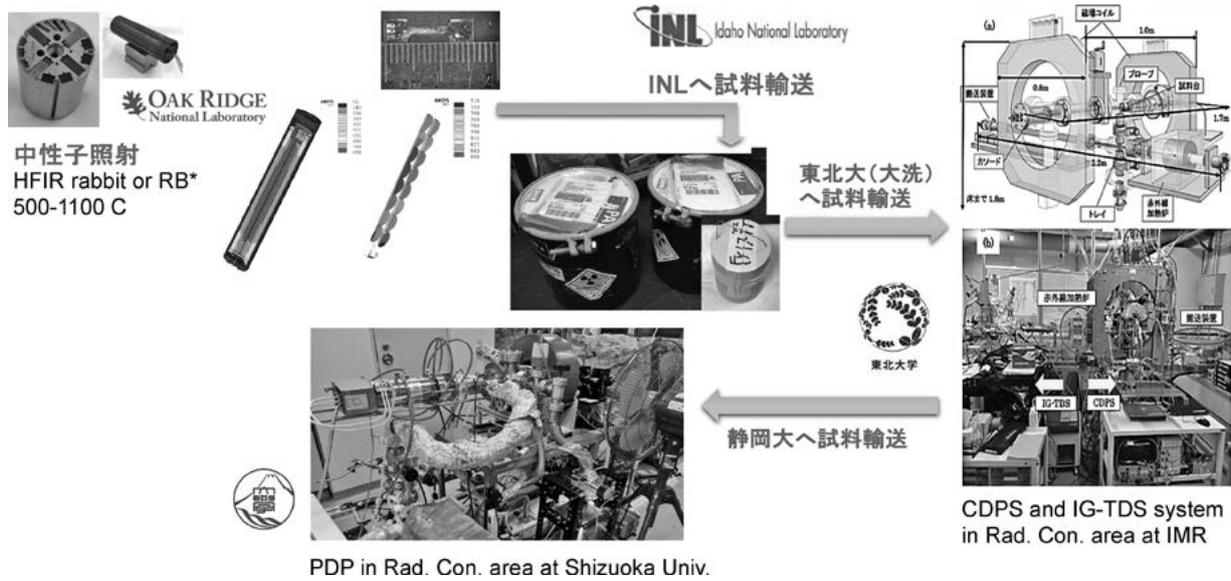


図1 日米共同研究における中性子照射・水素蓄積・透過実験の流れ。

ているプラズマ駆動透過実験装置 (PDP) を使った水素の透過実験を行うことが可能です[14, 15]. 図2にPDP装置の概略図を示します. 13.56 MHzのRFプラズマを発生させ, H, D, He混合プラズマを試料に照射し, 透過してきたガス種を質量分析計で測定するシステムになっています. 試料は室温~600°C程度まで赤外線加熱が可能です. 通常, 試料の加熱にはフィラメントやヒーターが用いられるのですが, 透過してきた水素が分解しないように赤外線加熱を使うように工夫したものです. また, プラズマ中のH, D, Heの比は分光器を使って測定します. プラズマ特性はダブルラングミュラープローブで評価できます.

3.3 水素蓄積・透過挙動

3.3.1 重水素滞留に及ぼすRe添加効果

DとTを燃料とする核融合炉では, 中性子照射による核変換によりW材料内部でReが生成され (W→Re), 原型

炉でのRe生成量は5年で4%程度と予測されています[16, 17]. また, WにReを意図的に添加することにより機械特性向上と再結晶温度の上昇が期待できるため, Reを初期添加したW-Re合金の研究も進んでいます[18, 19]. このような背景を鑑み, W中のReが機械特性や水素蓄積・透過挙動に与える影響を調べるため, PHENIXおよびFRONTIER計画では, Wに予め3-10%のReを添加したW-Re合金を用意し, ORNLのHFIRで中性子照射しました. このW-Re試料の一部をINLに輸送し, これらの試料にTPE装置を用いてDプラズマ照射を行い, Dの蓄積挙動を昇温脱離分析で調べました[20]. 読者の中には, W中に少しぐらいReが混ざったところで水素の挙動は何も影響を受けないと思われる方がいるかもしれませんが, 以下に説明するように, 中性子照射を受けるとこのReの存在が大きく影響するのです.

この実験で用いた試料は, 多結晶純WとRe濃度5at.%のW-5%Re合金であり, 照射損傷量 (Displacement per atom: dpa) はそれぞれ0.35 dpa (中性子照射温度: 591°C) および0.26 dpa (519°C) でした. なお, このdpaとは, 材料内の中性子照射領域内にある格子原子が中性子照射により平均何回はじき出されたかを示す値です. 図3に, Dプラズマ照射した各試料の昇温脱離スペクトルを示します. Dプラズマ照射中の試料温度は550°C (823 K) で, その他の照射条件は前節で説明した通りです. プラズマ照射後, 昇温脱離分析装置に試料を移して真空排気し, 圧力が 10^{-5} Paのオーダーになってから分析を行いました. なお, プラズマ照射してから昇温脱離分析までは基本的に同日に行っています. 昇温脱離分析では, 試料の温度を一定の昇温速度 (Ks^{-1}) で上昇させ, その過程で試料から放出されるガスを, 通常, 四重極質量分析計で検出します. この分析で得られた昇温脱離スペクトルの縦軸の信号強度 (電流値, A) を, 標準リークを利用した四重極質量分析計の感度測定結果をもとに, 放出率 (単位時間・面積あたりの放出速度, $molec. m^{-2}s^{-1}$) に換算し, これを時間

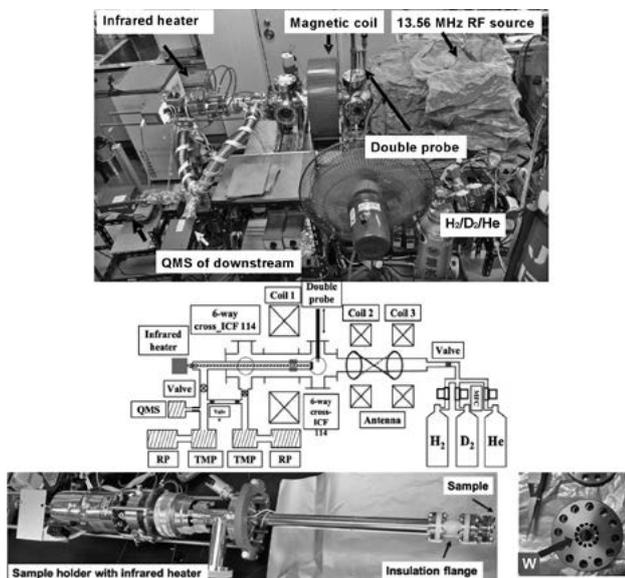


図2 静岡大学に設置されているプラズマ駆動透過装置。

積分することで放出されたガスの蓄積量を求めることができます。また、得られたスペクトルのピークをシミュレーション計算とフィッティングすることにより、放出されたガスの材料内における捕捉エネルギーなどの物性値を求めることもできます[21]。

図3をみると、中性子照射していない試料（D蓄積量 $9.27 \times 10^{19} \text{ Dm}^{-2}$ ）に対し、中性子照射した純W（D蓄積量 $5.36 \times 10^{20} \text{ Dm}^{-2}$ ）は放出率が大きく増加していることがわかります。これは中性子照射により形成された照射欠陥がDの捕捉サイトとなることでD蓄積量が増大したためであり、この結果はこれまでの日米科学技術協力事業で得られたものと同様の傾向を示しています[22-24]。一方、W-5%Reの放出スペクトルを見ると、非照射Wの結果とほとんど変わらず、当然ながら蓄積量も同程度（D蓄積量 $1.12 \times 10^{20} \text{ Dm}^{-2}$ ）となりました。つまり、W-5%Reは中性子照射を受けたにもかかわらずD蓄積量がほとんど増加しなかったのです。この理由を調べるため、陽電子寿命測定（PAS）を行い、中性子照射欠陥形成状況を調べました。

PASでは、 ^{22}Na から放出された陽電子が試料に照射され、陽電子が材料内部で消滅するまでの時間を測定します。照射欠陥のような空孔ができていると、陽電子が陰電子と再結合するまでの時間が長くなるので、この違いを見ると照射欠陥の様子を知ることができます。これにより、中性子照射により材料内部に形成された空孔および空孔集合体の比率や、空孔集合体の大きさを評価することができ、また、空孔集合体のサイズや生成割合が大きくなると寿命が延びることが知られています[25-27]。ただし、PASで測定できる空孔集合体の大きさは最大でV₄₀（空孔40個の集合体）程度までであり[26]、これ以上の大きさになると透過型電子顕微鏡など別の分析手法を使う必要があります。図4に各試料のPAS測定結果を示します。図中の τ_1 は主に空孔、 τ_2 は空孔集合体で消滅した陽電子の寿命であり、上部の図はそれぞれの欠陥で消滅した陽電子の割合を示しています。また、 τ_{ave} はその割合を考慮して求めた平均の陽電子寿命を示しています。中性子を照射していない純Wの τ_{ave} （115ps）に対し、中性子照射した純Wの τ_{ave} （310ps）は平均寿命が大きく増加しました。一方、中性子照射したW-5%Re試料では、空孔集合体の生成割

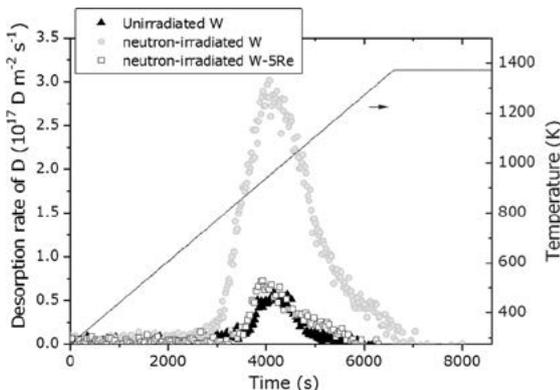


図3 中性子照射 W および W-5%Re における D₂ の TDS スペクトル。

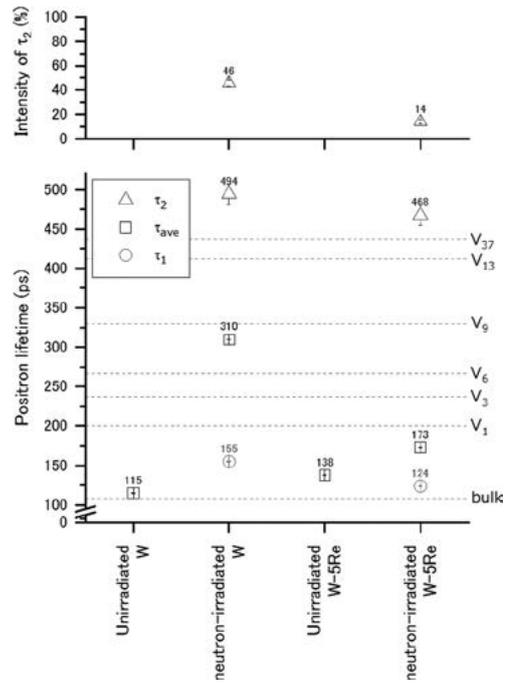


図4 中性子照射 W および W-5%Re における陽電子寿命測定結果。上図は空孔集合体で消滅した陽電子の割合、下図は空孔および空孔集合体で消滅した陽電子の寿命とその平均値。下図の右縦軸は空孔集合体に含まれる空孔の数を示す。

合が低く、 τ_{ave} も中性子照射していないものと比べてそれほど増加していないことがわかります。このことは、中性子照射により W-5%Re 中に空孔集合体がほとんど形成されなかったことを意味しており、W中にReが存在することで空孔集合体の形成が抑制され、その結果、中性子照射した純Wに比べて水素蓄積量が大きく減少することが明らかになりました。このようなRe効果の発生機構は以下のように考えられます。W中のRe原子はW原子と安定な混合ダンベルを形成することが数値シミュレーションにより調べられています[28]。混合ダンベルとは、ある一つの格子位置にW原子とRe原子が1個ずつ共存している状態です。このW-Reダンベルは回転障壁エネルギーが低く3次元的に回転するため、Re格子間原子がランダムな方向に動きやすく、そのため中性子照射により形成された空孔と出会う確率が高まります[28, 29]。再結合すると、混合ダンベルを作っていたW原子とRe原子は各々別の格子位置に落ち着くことになり、結果的に空孔が一つ消滅することになり、空孔の集合も起きにくくなります。以上の理由から、水素の捕捉サイトとなる空孔やその集合体の形成が抑制されたと考えられます。このように、Wに他元素を混合することで水素蓄積量が減少する現象は、Re以外の元素でも観測されており、実験と数値シミュレーションの両面から評価が進められています。例えば、クロム原子をWに意図的に混ぜることにより、Reの場合と同様に水素蓄積量を減らすことができた成功例も報告されています[30, 31]。

中性子照射下において、W中に存在するReが水素蓄積量に大きく影響することがおわかりいただけたと思います。上に述べたように、現在はW中に他元素を意図的に

添加することで能動的にトリチウム蓄積を低減させようとする先進プラズマ対向材開発研究も行われており、今後の進展が期待されます。ただし、水素蓄積量のみならず材料の機械的特性的改善も重要な視点となることにも留意する必要があります。

3.3.2 重水素蓄積に及ぼす中性子照射量・照射温度の影響

水素蓄積に及ぼす中性子照射影響を考える場合、主には中性子照射欠陥と水素との相互作用と、核変換による壊変生成物と水素との相互作用を考慮する必要がありますが、ここでは主に前者について取り扱います。中性子照射欠陥種の生成・消滅・成長を考慮するためには、照射中の温度とともに、水素同位体プラズマ照射時の温度が重要となります。図5には400℃以下の比較的低温・低照射量の中性子照射試料を用いて、INLのTPEにてDプラズマ照射した際のTDSスペクトルを示します[22]。中性子照射していない非照射Wでは300℃付近に主要な放出ピークが見られますが、中性子照射Wでは高温側に新たな放出ピークが現れ、500℃以上の高温側で放出が顕著になることがわかります。これは種々の照射欠陥が形成し、水素同位体が安定に捕捉できるサイトが形成されたことを示唆しています。D蓄積量は中性子照射量が高いと増加しますが、中性子照射温度およびプラズマ照射温度に大きく影響することがわかります。照射温度が高ければ蓄積量が減少するということが、安全管理上良いことですがTDSの高温側に新たな放出ピークがみられ、安定な捕捉サイトが形成されるというのが大きな問題だと言えます。図6に300℃(573 K)を超える高温で中性子照射(0.1 dpa)し、ほぼ同じ温度でTPEにてDプラズマ照射した際のTDSスペクトルを示します[23, 32]。360℃(633 K)で照射した際には630℃(903 K)付近に大きな放出ピークが見られます。

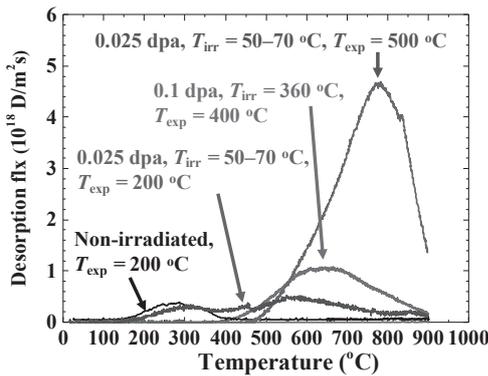


図5 400℃以下の低温中性子照射したWにおける重水素TDSスペクトル (T_{irr}は中性子照射時の温度, T_{exp}はDプラズマ照射時の温度)。

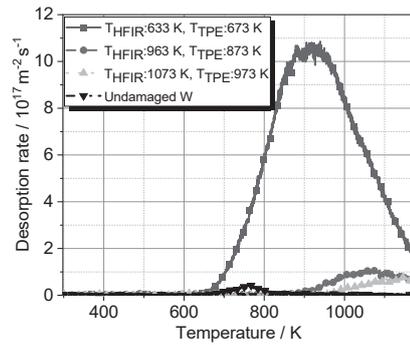


図6 400~800℃の高温中性子照射したWにおける重水素TDSスペクトル (T_{HFIR}は中性子照射時の温度, T_{TPE}はDプラズマ照射時の温度)。

600℃(873 K)を超える高温中性子照射の場合には、D放出ピークは小さくなりますが、700℃(973 K)を超える高温側に放出ピークがシフトしていることがわかります。図7にNRAにより調べたDの深さ方向分析の結果を示します。360℃(633 K)ではDが内部まで蓄積していますが、600℃(873 K)を超える高温で中性子照射した場合は、Dの蓄積量は少ないものの、プラズマ照射温度が高いため、内部から表面に向かってD濃度が減少している様子が見られます。これは中性子照射中の温度が高温であったために欠陥の回復によって捕捉サイトが減少し、それに伴い内部から表面へのDの拡散が促進されたためと考えられます。表1に示すように、HIDTシミュレーションによりD挙動を解析し、TMAP7コードによる解析結果と比較するとよく一致しており、捕捉サイトにおける水素の結合エネルギーは中性子照射温度が上昇すると1.43 eVから2.07 eVまで増加することがわかります。これは高温中性子照射によって、照射欠陥密度が減少し、捕捉サイトが減少するとともに、一部が互いに結合し安定な欠陥集合体やボイドを形成したためであると考えられます。

このように、中性子照射欠陥が形成されることにより水

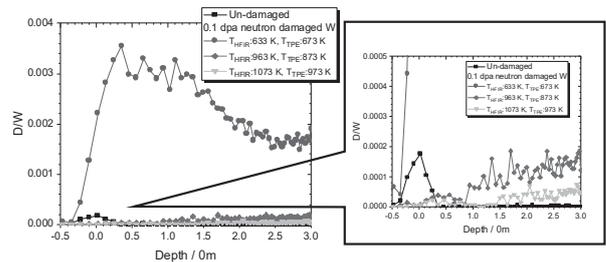


図7 400~800℃の高温中性子照射下Wにおける重水素深さ方向分析結果 (T_{HFIR}は中性子照射時の温度, T_{TPE}はDプラズマ照射時の温度)。

表1 中性子照射Wにおける照射条件とシミュレーションによる解析結果のまとめ。

Neutron irradiation temp. [K]	TPE exposure temp. [K]	Trap conc. by HIDT [Trap/W]	Binding energy by HIDT [eV]	Binding energy by TMAP [eV]	Retention by TDS [D m ⁻²]	Possible trap site
633	673	2.2 × 10 ⁻³	1.43	1.41	1.9 × 10 ²¹	Vacancies
963	873	1.5 × 10 ⁻⁴	1.92	1.91	1.5 × 10 ²⁰	Vacancy clusters
1073	973	4.9 × 10 ⁻⁵	2.07	2.21	1.2 × 10 ²⁰	Voids

素蓄積量のみならず水素捕捉状態も大きく変化し、さらに、中性子照射欠陥の欠陥密度や欠陥状態が照射温度にも大きく影響することがわかりただけでしょう。

3.3.3 中性子照射材の重水素蓄積に及ぼすHe照射効果

DT核融合反応では、中性子とHeが生成されるため、プラズマ対向材には中性子のみならずHeが照射されることとなります。中性子照射によりWの水素蓄積量が増加することはこれまで述べた通りです。一方、Heプラズマが照射されるとどうなるのでしょうか。中性子照射していないWにおけるHe効果については、イオン/プラズマ照射などの実験により多くの研究者によって調べられてきました。その結果、Heの照射条件によっては中性子照射とは逆の効果、すなわち水素蓄積量を減少させる効果があることがわかってきました[33-35]。このような効果は、He照射により引き起こされるマイクロ構造の変化と関連があります。Heは金属に固溶しない上、欠陥(空孔やその集合体、粒界、転移、など)との相互作用が非常に強く、そこに集合しやすい性質があります。特徴的なのは、このような欠陥にHeが集合することで、高圧のHeガスが詰まったHe気泡(Heバブル)が形成され、材料内部のマイクロ構造を大きく変化させることがあげられます。このような金属中のHe挙動については過去の本学会誌にも掲載されているので[36-38]、興味のある方は参考してください。Heバブルが高密度に形成されるとHeバブル同士が連結し、表面まで到達するマイクロな孔(オープンポアー)が形成されることがあります[35]。このような材料に水素が入射すると、オープンポアーの表面で水素原子同士が再結合し、水素分子の形でポアーを通して表面から放出され、結果的に水素蓄積量が減少すると考えられています[38]。このように、水素蓄積に及ぼす中性子照射とHe照射の効果はほぼ真逆のものです。これらの重畳効果については実際に中性子照射したWを使って実験するまでわからなかったのです。この疑問を解明するため、中性子照射したWに、INLのTPE装置を使ってDとHeの混合プラズマ照射実験を行いました。また、照射した表面のマイクロ構造を透過型電子顕微鏡で観察しました。なお、本実験の詳細については[12, 39]に詳細が記載されているので、図表についてはそちらを参考にしてください。

使用した試料は800℃または1100℃で中性子照射した多結晶純Wで、照射損傷は0.3 dpaです。分光測定により評価したD + He混合プラズマ中のHeイオン密度は5.6%あるいは0.8%であり、入射イオンのエネルギーは100eV程度です。なお、この5.6%というHeイオン密度は、核融合プラズマ中のものと比較的近い値です[40, 41]。プラズマ照射後、Dの放出挙動・蓄積量を昇温脱離分析で調べました。また、比較のため同種の試料に対し同条件でDのみのプラズマ照射も行いました。その結果、Dプラズマ照射した試料では、D蓄積量が $(1.3-2.0) \times 10^{21} \text{ Dm}^{-2}$ でしたが、D + He混合プラズマを照射した場合はDの放出が検出されませんでした。すなわち、D + He混合プラズマ照射ではDがほとんど蓄積しなかったということです。D + Heプラズマ照射した試料表面を透過型電子顕微鏡で観察し

たところ、表面近傍に数nm程度のHeバブルが表面から20 nm程度まで高密度に形成されていることがわかりました。このことから、中性子照射Wにおいても、上述したように、Heが照射されることでDの再放出が促進されたと考えられます。

このように、水素蓄積に対する効果については、中性子照射ではなくHe照射の方に軍配が上がったということになります。この結果をもとに、水素蓄積に対してあらゆる照射条件でHe効果が勝ると言えるわけではありませんが、He効果が大きく影響するとは言えるでしょう。W中の水素蓄積量が減ることはT安全の点から見れば望ましい結果と言えます。ただし、He照射により引き起こされる表面のマイクロな剥離[42-44]やFuzz構造の形成[37]は、Wの物理特性の劣化やダストの発生、損耗の促進などにつながるため、He照射がすべて良い効果をもたらすわけではないことに注意すべきです[45-46]。

ここで述べたHe効果は多結晶Wの結果ですが、現在、Reを添加したW-Re合金や超微細構造タングステン(UFG-W)のような先進プラズマ対向材料についても同様の実験が進められており、添加元素や微細構造によりHe効果がどのように変わるかについても明らかになる予定です。また、実際の核融合炉を模擬するにはD + He + 中性子の同時照射も必要な課題となると思われます。

3.3.4 H/D混合プラズマ透過に及ぼす照射損傷影響

プラズマ対向材中の水素同位体挙動を明らかにする上で、水素の透過挙動を明らかにすることは炉外への漏洩量を評価する上で重要です。前章までに述べてきた昇温脱離分析は、プラズマ対向材中に蓄積した水素について、試料を加熱することにより放出させるものであり、主として照射欠陥などの捕捉サイトに捕捉された水素を評価していると考えられます。一方、透過実験における定常透過では、異なる水素同位体を用いている場合には、同位体交換を考慮する必要がありますが、照射欠陥に捕捉された水素はほぼそのまま捕捉され続けると考えると、固溶した水素を主に測定していると考えられます。特に、核融合炉ではDとTを混在していると共に、不純物としてHが存在していることから、複数種の水素同位体を考慮した透過挙動の理解が重要であると考えられます。

そこで、PDP装置を用いて、450℃~650℃の温度範囲でH+D混合プラズマ(H:D=50:50)照射を行い、その際のW試料(厚み0.5 mm)の水素透過挙動を測定しました。図8にHおよびDのプラズマ照射温度における透過フラックスをまとめました。鉄イオン照射は6 MeV Fe^{2+} (照射深さ: ~1 μm)を1 dpaまで照射した試料、中性子照射試料はHFIRにてRB-19Jで熱中性子遮へいし0.3 dpaまで500℃(773 K)および800℃(1073 K)で中性子照射したW試料の結果になります。鉄イオン照射材は、鉄イオン照射面が上流側(プラズマが当たる側)になっています。非照射試料と比較して、鉄イオン照射試料では550℃(773 K)以下の低温で透過フラックスがH, Dともに低下していることがわかります。一方、中性子照射材では低温

側で透過フラックスが非照射試料と比較して高くなっていることがわかります。つまり、鉄イオン照射材では、高密度の鉄イオンによる照射欠陥が上流表面近傍に集積しており、そこにプラズマ照射されると水素が照射欠陥に高密度に捕捉され水素の拡散経路が減少したため、透過フラックスが減少したことが考えられます。一方、中性子照射材では中性子照射欠陥がバルク全体に均一に導入され、0.3 dpaと照射欠陥密度も低いため、一部の水素は照射欠陥に捕捉されますが、多くの水素は照射欠陥を拡散経路として透過していると考えられます。温度が高くなると照射欠陥が回復するため、透過フラックスは非照射材とほぼ一致すると考えられます。これをHとDの透過フラックス比でまとめると図9のようになります。中性子非照射材では、低温で大きな同位体効果が見られ、H:Dの透過フラックスの比がおよそ2:1になることがわかりますが、高温になるに従い同位体効果は小さくなり、650℃(873 K)を超えるとほぼ1:1になり、同位体効果は見られなくなります。一方、中性子照射材では低温でも同位体効果は小さく3:2程度ですが、温度が高くなってもこの割合はほぼ一定でした。このことから、固溶している水素の透過プロセスにおいて照射欠陥の存在が影響している可能性が考えられます。上流表面からの再放出、透過過程における中性子照射欠陥との相互作用、照射欠陥に捕捉されている水素との相互作用などが複合的に寄与している可能性が考えられま

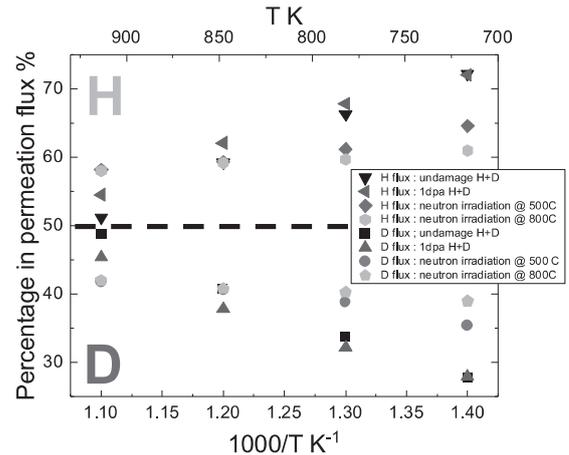


図9 H+D混合プラズマ照射におけるHとDの透過フラックス比(50%のところでH:D=1:1の透過フラックスとなる)。

す。

水素透過フラックスは通常、アレニウスプロットすれば直線で外挿できるのですが、照射欠陥を有する材料では、プラズマ照射温度が高くなるとともに材料中の照射欠陥分布や密度もダイナミックに変化するため、直線で外挿できないと考えられます。今後、先進プラズマ対向材であるW合金などでも透過挙動評価を行う必要がありますが、照射欠陥のみならず、微量添加元素の挙動によりさらに複雑に変化していくことが考えられます。

3.4 最後に

核融合炉中の水素蓄積・透過挙動について概観してきました。プラズマ対向材中の水素蓄積・透過挙動は、中性子照射量、温度、He、核変換元素などにより大きく変化することがおわかりいただけたのではないかと思います。また、単純な中性子照射量だけでは水素蓄積量を評価するのは難しく、中性子照射時の温度などにより刻々と照射損傷挙動が変化すると、それに伴って水素蓄積・透過挙動も変化していきます。特に核融合炉では核融合反応で生成した中性子を含む高エネルギー粒子による照射欠陥生成と、熱による照射欠陥回復がダイナミックに起こり、核変換によって材料自体が変化していく状況での水素蓄積・透過挙動評価になるのでかなり困難を極めますが、それ故に研究の楽しさもあります。実験ではパラメータを振りすぎると現象が理解しにくくなりますので、着眼点を明確に、外挿性のある知見を積み重ねる必要があります。限られた条件でしか実験はできませんので、シミュレーション研究の方々と協力して、メカニズムの解明や実環境での予測に繋げていくことが今後ますます大切になってくると思います。

参考文献

- [1] H. Hagi, Mater. Trans. **35**, 112 (1995).
- [2] 深井 有 他：水素と金属 (内田老鶴圃, 1998).
- [3] R. Frauenfelder, J. Vac. Sci Technol. **6**, 388 (1969).
- [4] R. A. Oriani, Acta Metallurgica **147**, 18 (1970).
- [5] F. Reiter *et al.*, A Compilation of tritium (Publications

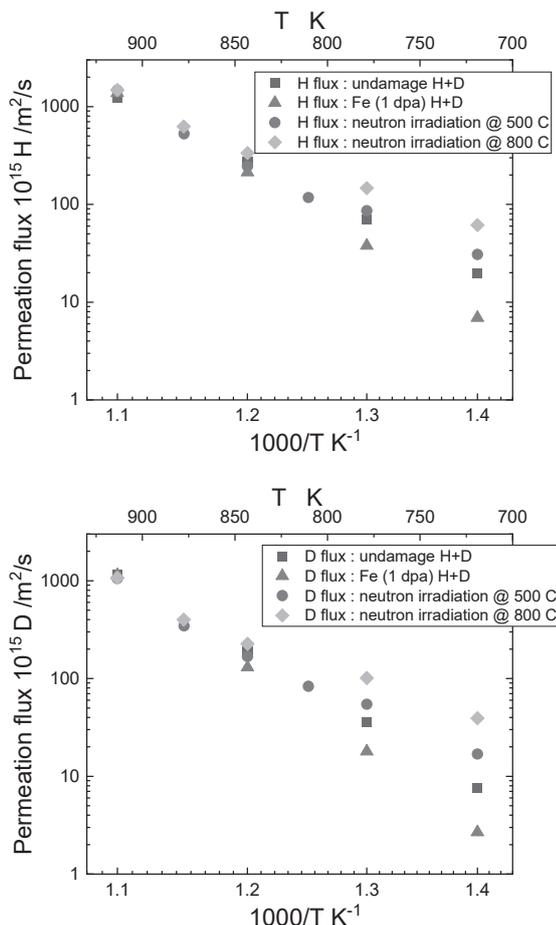


図8 H+D混合プラズマ照射における種々のW試料における透過フラックス(上段:H、下段:D)。

- office of the European Union, 1993).
- [6] Y. Ueda *et al.*, Phys. Scr. T145, 014029 (2011).
- [7] J. Roth *et al.*, J. Nucl. Mater. 390, 1 (2009).
- [8] J. Roth and K. Schmid, Phys. Scr. T145, 014031 (2011).
- [9] 波多野雄治：プラズマ・核融合学会誌 96, 300 (2020).
- [10] M. Shimada *et al.*, J. Nucl. Mater. 415, S667 (2011).
- [11] 波多野雄治 他：プラズマ・核融合学会誌 89, 725 (2013).
- [12] 上田良夫 他：プラズマ・核融合学会誌 96, 129 (2020).
- [13] 檜木達也 他：プラズマ・核融合学会誌 93, 133 (2017).
- [14] M. Zhou *et al.*, Fusion Eng. Des. 160, 111853 (2020).
- [15] Y. Oya *et al.*, Fusion Eng. Des. 194, 113722 (2023).
- [16] M.R. Gilbert and J.C. Sublet, Nucl. Fusion 51, 043005 (2011).
- [17] H. Bolt *et al.*, J. Nucl. Mater. 307, 43 (2002).
- [18] S. Nogami and A Hasegawa, Fusion Eng. Des. 148, 111323 (2019).
- [19] J. Shi *et al.*, Nucl. Mater. Energy 38, 101609 (2024).
- [20] Y. Nobuta *et al.*, J. Nucl. Mater. 566, 153774 (2022).
- [21] J. Likonen *et al.*, Nucl. Mater. Energy 19, 166 (2019).
- [22] Y. Hatano *et al.*, Nucl. Fusion 53, 073006 (2013).
- [23] M. Shimada, *et al.*, Fusion Eng. Des. 136, 1161 (2018).
- [24] M. Yajima *et al.*, Nucl. Mater. Energy 21, 100699 (2019).
- [25] S. Tanigawa *et al.*, J. Nucl. Mater. 133-134, 463 (1985).
- [26] T. Troev *et al.*, Nucl. Instrum. Meth. B 267, 535(2009).
- [27] T. Toyama *et al.*, J. Nucl. Mater. 499, 464 (2018).
- [28] T. Suzudo *et al.*, Model. Simul. Mat. Sci. Eng. 22, 075006 (2014).
- [29] Y. Hatano *et al.*, Nucl. Mater. Energy 9, 93 (2016).
- [30] J. Wang and Y. Hatano, J. Nucl. Mater. 559, 153449 (2022).
- [31] J. Wang *et al.*, Mater. Des. 229, 111899 (2023).
- [32] Y. Oya *et al.*, J. Nucl. Mater. 539, 152323 (2020).
- [33] M.J. Baldwin, Nucl. Fusion 51, 103021 (2011).
- [34] V. Kh. Alimov *et al.*, Phys. Scr. T138, 014048 (2009).
- [35] M. Miyamoto *et al.*, J. Nucl. Mater. 415, S657 (2011).
- [36] 森下和功：プラズマ・核融合学会誌 81, 13 (2005).
- [37] 高村秀一：プラズマ・核融合学会誌 94, 294 (2018).
- [38] 宮本光貴 他：プラズマ・核融合学会誌 89, 335 (2013).
- [39] Y. Nobuta *et al.*, Fusion Sci. Technol. 77, 76 (2021).
- [40] M. Shimada, J. Nucl. Mater. 337-339, 808 (2005).
- [41] M. Abdou *et al.*, Nucl. Fusion 61, 013001 (2021).
- [42] D. Nishijima *et al.*, J. Plasma Fusion Res. 81, 703 (2005).
- [43] C. Fan *et al.*, Acta Materialia 254, 118993 (2023).
- [44] 増崎 貴：プラズマ・核融合学会誌 92, 2 (2016).
- [45] N. Taylor *et al.*, Fusion Eng. Des. 86, 619 (2011).
- [46] S.I. Krasheninnikov *et al.*, Plasma Phys. Control. Fusion 53, 083001 (2011).



のぶ た ゆう じ
信太祐二

北海道大学大学院工学研究院 応用量子科学部門 助教。実機におけるプラズマ壁相互作用を経て、現在は材料中の水素同位体挙動とレーザー表面改質を利用した耐熱性の向上に関する研究を行っています。日米共同研究はいろいろな意味で成長させてくれます。特に若い人にはぜひチャレンジしてほしいです。



おお や やす ひさ
大矢恭久

静岡大学大学院理学領域 准教授 主な研究分野は核融合炉材料中における水素同位体挙動評価。最近、瀬長島でのんびりくつろぎたいなと思ったりしています。自宅ではハムスター（ジャガリアン）をこよなく愛しています。