

Title	核融合炉環境下における先進タングステン材料の水素同位体照射効果の研究
Author(s)	大宅, 諒
Citation	大阪大学, 2017, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/61716
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

博士学位論文

核融合炉環境下における
先進タンガステン材料の水素同位体照射効果
の研究

大宅 諒

2017年1月

大阪大学大学院工学研究科

内容梗概

磁場閉じ込め方式の核融合発電において、「核融合炉の長期的・安定的な運転」を実証するための実験炉 ITER や原型炉では、プラズマ対向材料にタングステンの使用が検討されている。それは、タングステンが、高融点・高熱伝導率・低損耗といった特長を併せ持ち、他材料の追随を許さない程に適用性の高い材料だからである。

しかし、プラズマ対向材料としてのタングステンには、様々な問題がある。運転中に水素同位体プラズマの照射を受け、水素同位体吸蔵、表面形態変化、表面溶融・損耗といった影響を受ける（水素同位体照射効果）。また、タングステンの最大の弱点はその脆性にあり、熱疲労が機械的破壊につながる。どちらも、核融合炉の長期的・安定的な運転を阻害する可能性があるため、水素同位体照射効果の把握ならびに脆性の改善が必要である。

現在、プラズマ対向材料として更に適性の高いタングステン材料が開発されており、先進タングステン材料と呼ばれる。そのうち、TFGR-W (Toughened, Fine-Grained Recrystallized Tungsten) は、脆性が改善され、優れた機械的特性を示す。そのため、プラズマ対向材料として使用されることが検討されている。しかし、その水素同位体照射効果については明らかになっておらず、それを調べる研究もほとんど行われていないのが現状である。TFGR-W の微細構造上の特徴（微結晶性 / 添加物含有）は、脆性の改善には優位に働くが、水素同位体照射効果に影響を与えることが懸念されている。

そこで、本研究では、TFGR-W の水素同位体照射効果を実験的に調べ、その基礎的な知見を得ることを目的とした。また、それを基に、TFGR-W をプラズマ対向材料として使用した場合の評価を、水素同位体照射効果の観点から検討することも目的とした。

実験手法として、実験炉 ITER の照射環境を模擬した実験室レベルの照射装置を、複数使用した。水素同位体照射環境は複雑である（エネルギー：1~1000 eV, フラックス： $10^{20} \sim 10^{24} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$, 表面温度：500 K~融点超）ため、その照射環境を細分化し、制御された環境下で、水素同位体照射効果を詳細に調べた。

第1章は、序論であり、本研究の背景と目的について述べた。第2章では、タングステン材料として、従来のタングステン材料およびTFGR-W の材料特性を述べた。第3章では、タングステンの水素同位体照射効果として、その理論的なモデルおよび先行研究についてまとめた。第4章では、実験方法として、実験で使用したタングステン試料、照射装置および分析装置について紹介した。

本論文の第 5 章では、TFGR-W の水素同位体吸蔵特性について述べた。そこでは、TFGR-W の重水素吸蔵量は純タングステン (pure W) より多いということが示された。TFGR-W をプラズマ対向材料として使用した場合も、トリチウム蓄積量が大きくなると予測されるが、実験炉 ITER の安全制限値に比べ 1 桁以上少ないため、問題になる可能性は低いと考えられる。また、炉壁の高温になる場所では、W-TiC より W-TaC の方が優位である、という評価を行った。

本論文の第 6 章では、TFGR-W の表面形態変化について述べた。そこでは、TFGR-W でも、従来のタングステン材料と同様に、表面にブリスタの発生を確認した。そのため、プラズマ対向材料として使用する場合も、実験炉 ITER や原型炉の運転中には、ブリスタが発生し、それに伴う剥離やダストの形成の可能性がある。また、粒界強化処理を施した材料の方が、表面形態変化を低減できる点で優位である、という評価を行った。

本論文の第 7 章で、TFGR-W の表面溶融・損耗挙動について述べた。そこでは、TFGR-W を過渡的な高熱負荷に曝すと、表面は溶融し粗い凝固層を形成することが分かった。そのため、そのような高い熱負荷を受ける場所での使用は避けるべきである、という評価を行った。また、表面が溶融しなくても、実験炉 ITER や原型炉の運転中には、添加物の消失と再結晶化により、材料寿命が低下する可能性がある。

以上の知見・評価をまとめると、TFGR-W をプラズマ対向材料として使用した場合、トリチウム蓄積量は許容範囲内であることや、表面形態変化を低減するための方策を示した。しかし、表面の溶融・損耗により材料寿命が低下する可能性があり、それを避けられるプラズマ条件であれば、十分使用可能な材料であるということが分かった。更に、TFGR-W の特長である優れた機械的特性を考慮に入れれば、「核融合炉の長期的・安定的な運転」を実証するために、プラズマ対向材料として非常に有用な材料であるということが示された。

将来の展望として、本研究で得られた知見や実験手法は、新たに開発される材料の水素同位体照射効果を調べ、プラズマ対向材料としての適用性を評価するために、広く適用されることが期待される。本研究により、「核融合炉の長期的・安定的な運転」を実証するために、材料開発と水素同位体照射効果の両方の分野にとって、非常に重要な結果・手法を示すことができた。

目次

第1章 序論	1
1.1 核融合炉の長期的・安定的な運転のための材料選択.....	1
1.2 プラズマ対向材料としてのタングステン.....	2
1.3 先進タングステン材料の開発と課題.....	4
1.4 本研究の目的.....	5
1.5 本論文の構成.....	6
参考文献.....	7
第2章 タングステン材料	11
2.1 緒言.....	11
2.2 タングステン.....	11
2.2.1 タングステンの使用用途.....	11
2.2.2 タングステン材料の製造方法.....	12
2.2.3 タングステンの微細構造と格子欠陥.....	13
2.2.4 タングステンの材料特性.....	14
2.3 先進タングステン材料の開発.....	15
2.4 TFGR-W.....	16
2.4.1 TFGR-Wの開発方針.....	16
2.4.2 TFGR-Wの製造方法.....	17
2.4.3 TFGR-Wの微細構造.....	18
2.4.4 TFGR-Wの特長.....	18
2.4.5 水素同位体照射効果で懸念されること.....	20
参考文献.....	21
第3章 タングステンの水素同位体照射効果	25
3.1 緒言.....	25
3.2 タングステン中の水素同位体挙動の基礎過程.....	25
3.3 TMAP7シミュレーションのモデル.....	25
3.3.1 表面での水素同位体挙動のモデル.....	26
3.3.2 バルクでの水素同位体挙動のモデル.....	27
3.4 TMAP7シミュレーションにおける係数とパラメータ.....	28
3.4.1 再結合定数.....	28
3.4.2 拡散係数.....	29

3.4.3	SRIM シミュレーションコード	29
3.4.4	トラップ・脱トラップ	29
3.5	核融合炉における水素同位体の照射条件	31
3.5.1	粒子負荷	31
3.5.2	熱負荷	32
3.6	タングステンの水素同位体照射効果の先行研究	32
3.6.1	水素同位体吸蔵の先行研究	33
3.6.2	表面形態変化に関する先行研究	35
3.6.3	表面溶融・損耗挙動に関する先行研究	37
	参考文献	38
第 4 章	実験方法	41
4.1	緒言	41
4.2	実験手順	41
4.3	タングステン試料	42
4.4	重水素イオン照射装置	43
4.4.1	イオンビーム照射装置 HiFIT	44
4.4.2	線形プラズマ装置 QST	45
4.4.3	線形プラズマ装置 Pilot-PSI	46
4.4.4	線形プラズマ装置 PISCES-A	49
4.5	トカマクプラズマへの曝露	50
4.6	重水素吸蔵測定	51
4.6.1	核反応法 (NRA 分析)	51
4.6.2	昇温脱離法 (TDS 分析)	53
4.7	表面観察	56
4.7.1	光学顕微鏡 (OM)	56
4.7.2	電界放出型走査電子顕微鏡 (FE-SEM)	57
4.7.3	透過型電子顕微鏡 (TEM)	58
4.8	組成分析	59
第 5 章	水素同位体吸蔵特性	63
5.1	緒言	63
5.2	実験概要	63
5.3	吸蔵された D の深さ分布	64
5.4	吸蔵された D の昇温脱離特性	66
5.5	照射温度が D 吸蔵量に与える影響	68

5.5.1	昇温脱離特性	69
5.5.2	D 総吸蔵量の照射温度依存性	69
5.6	トラップエネルギーの推定	72
5.6.1	初期状態の決定	72
5.6.2	昇温脱離スペクトルのシミュレーション結果	73
5.7	実験炉 ITER や原型炉でのトリチウム蓄積量の予測	76
5.8	高エネルギー粒子およびヘリウムが与える影響	79
5.8.1	高エネルギー粒子の影響	80
5.8.2	ヘリウム照射が与える影響	81
5.9	まとめ	84
	参考文献	85
第 6 章	表面形態変化	87
6.1	緒言	87
6.2	実験概要	87
6.3	D 照射後の表面形態の変化	88
6.4	高フラックス照射が表面形態に与える影響	89
6.5	高フラックス照射が表面近傍での D 密度に与える影響	91
6.6	表面近傍の亀裂とプリスタの発生	91
6.7	粒界強化処理を施した TFGR-W 試料	94
6.8	まとめ	96
	参考文献	97
第 7 章	表面溶融・損耗挙動	99
7.1	緒言	99
7.2	実験概要	99
7.3	プラズマ曝露時の表面温度	100
7.4	プラズマ曝露後の表面変化	101
7.5	プラズマ曝露後の表面組成の変化	103
7.6	プラズマ曝露中の Ti の放出	105
7.7	プラズマ曝露後の表面近傍の添加物	106
7.8	プラズマ曝露後の再結晶化	107
7.9	まとめ	108
	参考文献	110

第 8 章 総括.....	111
謝辞.....	115
付録 A 炭素材料のヘリウム吸蔵特性.....	117
A.1 緒言.....	117
A.2 研究背景.....	117
A.3 実験方法.....	117
A.4 実験結果と考察.....	118
A.5 まとめ.....	119
参考文献.....	119
付録 B 照射回数とタングステン中の水素同位体吸蔵特性.....	121
B.1 緒言.....	121
B.2 研究背景.....	121
B.3 実験方法.....	121
B.4 実験結果と考察.....	122
B.5 まとめ.....	124
付録 C 核融合反応生成粒子がタングステンの水素同位体吸蔵特性に与える影響..	125
C.1 緒言.....	125
C.2 研究背景.....	125
C.3 実験方法.....	125
C.4 実験結果と考察.....	126
C.5 まとめ.....	126
参考文献.....	127
研究業績.....	129

第 1 章 序論

1.1 核融合炉の長期的・安定的な運転のための材料選択

核融合発電の実現可能性を実証するための研究課題として、「核融合炉の長期的・安定的な運転」が挙げられる。炉内で核融合反応を起こし、数年～数十年間の運転を実現するためには、プラズマと炉外の境界領域としての核融合炉内壁（特にプラズマ対向機器）は重要である。核融合炉内環境は非常に複雑で、運転中に、プラズマ対向機器はプラズマから負荷（熱および粒子）を受けることになる。核融合発電の科学技術的実証を行う実験炉 ITER（International Thermonuclear Experimental Reactor）[1] や、経済的実証を行う原型炉では、プラズマ対向機器は大きく分けて 2 つの領域（図 1.1）に分けられ[2-4]、それぞれの役割・構造・配置を以下に記した[5-10]。

【ブランケット】

- 役割： 中性子遮蔽機能（核融合反応で生成する中性子を遮蔽する）
熱利用機能（中性子遮蔽の際の核発熱を利用し発電を行う）
燃料増殖機能（中性子を利用して燃料となるトリチウムを生産する）
- 構造： プラズマ対向面の「第一壁」と内部の「遮蔽ブランケット」から成る
- 配置： 磁力線に対してほぼ平行になるように設置されている。そのため、プラズマからの粒子負荷・熱負荷は比較的低いと考えられる。

【ダイバータ】

- 役割： 粒子制御機能（プラズマの純度を保つために不純物粒子を排気ポートに導く）
- 構造： 受熱部と冷却管をもつ複数のモノブロックから成る
- 配置： 磁力線に交差するように設置されている。磁力線に導かれたプラズマ粒子が入射するため、高い熱負荷・粒子負荷を受けることになる。

「核融合炉の長期的・安定的な運転」を科学技術的に実証するために最も考慮すべきは、これらプラズマ対向機器に使用する材料（プラズマ対向材料）の選択である。プラズマ対向材料は、

- プラズマ対向機器に求められる役割を果たす（ブランケット or ダイバータ）
- プラズマ照射環境下で長期的・安定的に使用でき得る（材料寿命）

の 2 つの観点から、その材料の特性を十分に生かして選択される。プラズマ対向材料として好適な材料を選択するため、これまでにプラズマと材料の相互作用（プラズマ-材料相互作用）に関する研究が積極的に行われてきた[2,11]。

現在、プラズマ対向材料にタングステンを使用することが検討されている[2,12]。実験炉 ITER では、全てのダイバータ板にタングステンを使用するフルタングステンダイバータが導入される[8,13,14]。また、ITER 以降の原型炉等では、タングステンを全てのプラズマ対

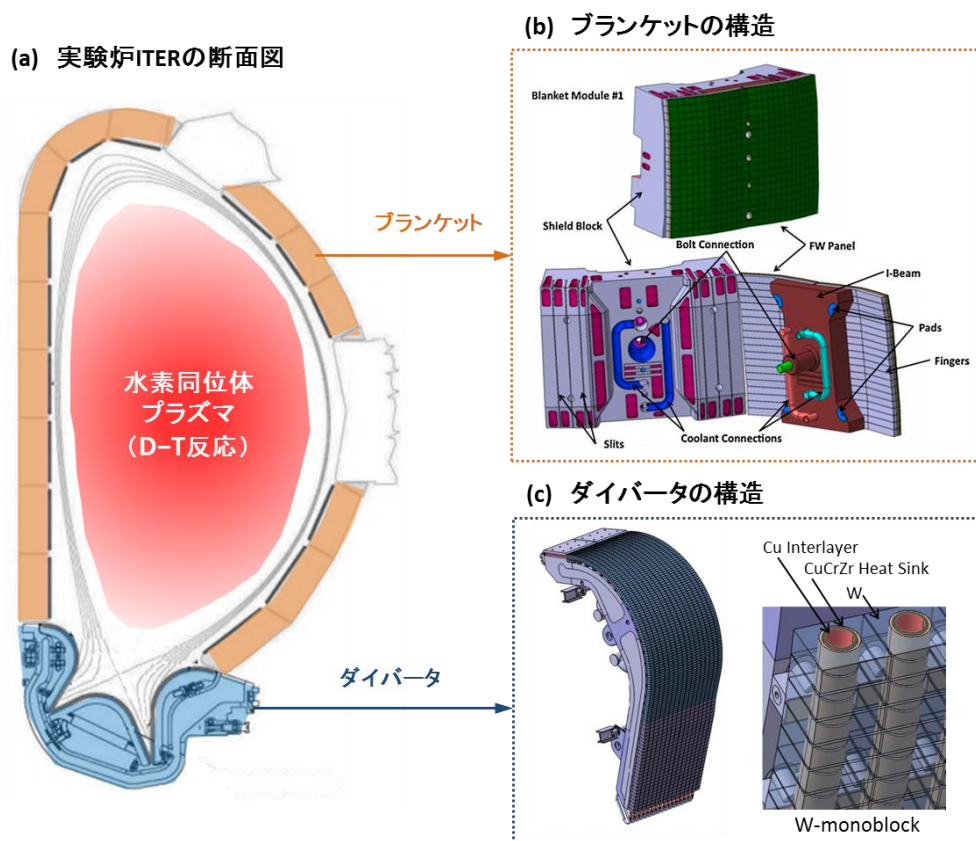


図 1.1 プラズマ対向機器の模式図 (a) 実験炉 ITER の断面図([1]から抜粋し着色)
 (b) ブランケットの構造[2], (c) ダイバータの構造([3]から抜粋)

向面に配置する、表面材料（アーマー材料）として使用することも計画されている。

タングステンが使用される理由として、タングステンの持つ以下のような特性が、プラズマ対向材料としての使用に非常に優位だからである[12]。

- 高融点（～3700 K）： 融点以下の高温に耐え得る
- 高熱伝導率（ $173 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ (300 K)）： 高い除熱性能を持つ
- 高原子番号（74）： スパッタリングによる損耗が起きにくい

プラズマ対向材料としてタングステンを使用することは、これまで数多く行われてきたプラズマ-材料相互作用に関する研究からの帰結である。上記のような特性を併せ持つ材料は、現時点ではタングステン以外になく、他材料（炭素やモリブデン）の追随を許さない。

1.2 プラズマ対向材料としてのタングステン

現在、磁場閉じ込め方式の核融合炉において予定されている核融合反応は、D-T（重水素-トリチウム）反応である。以下にその反応式を記した。



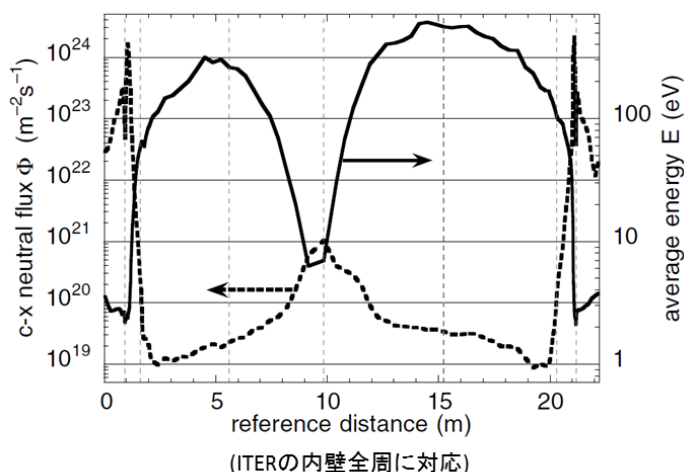
プラズマ対向材料であるタングステンは、運転中に、水素同位体プラズマの照射を受けることになる。実験炉 ITER において、目標の運転条件（エネルギー増倍率 $Q=10$ ）および現行のプラズマ対向機器の構造の場合、水素同位体は、入射エネルギー1~1000 eV、粒子フラックス $10^{19}\sim 10^{24} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、表面温度 500 K~融点（3700 K）超、という複雑な条件で照射される（図 1.2） [1,15,16]。このような条件下では、タングステンは以下のような水素同位体照射効果を及ぼされる [17-20]。

- 水素同位体吸蔵： トリチウムは放射性物質であり、その蓄積量は厳しく制限されている（実験炉 ITER では 700 g）また、燃料のため、燃料効率の低下にもつながる
- 表面形態の変化： 高い粒子負荷により、表面にブリスタと呼ばれる微小な（大きさは数 μm ）構造が形成し、薄片・ダストの発生につながる可能性がある
- 表面が熔融・損耗する： 高い熱負荷により表面が高温になることで、熔融または損耗し、材料寿命が低下する

水素同位体の吸蔵は、水素同位体が照射される全ての領域（粒子フラックス： $10^{20}\sim 10^{24} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、表面温度： $>500 \text{ K}$ ）で起こる。また、表面形態変化や表面の熔融・損耗は、ダイバータの中でも粒子負荷・熱負荷が集中するストライク点と呼ばれる領域（粒子フラックス： $10^{22}\sim 10^{24} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、表面温度：融点付近）やその周辺で起こることが懸念されている。

また、タングステンはその脆性が最大の弱点であり、プラズマ対向材料として使用する際には十分に注意しなければならない。特に実験炉 ITER や原型炉内の環境では、中性子照射や熱負荷を受けて、更に脆くなること（脆化）が問題となる。プラズマ-材料相互作用の観点から、タングステンの脆性は以下の 3 点に大別される [21,22]。

(a) 水素同位体の入射エネルギーとフラックス



(b) タングステンの表面温度

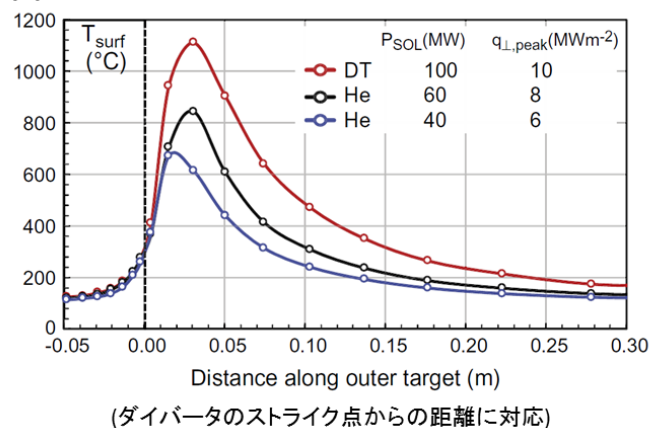


図 1.2 実験炉 ITER 内の水素同位体照射環境

(a) 入射エネルギーとフラックス [15],

(b) タングステンの表面温度 [16]

- 室温脆性： 室温での加工が難しい
- 照射脆性： 14 MeV 中性子の照射を受けることにより脆化する
- 再結晶脆性： 融点以下の温度領域(~1300 K 以上)で再結晶し脆化する

室温脆性により、加工の際には加熱 (>1400 K) が望ましい。また、中性子照射や再結晶により脆化したタングステンは、プラズマから繰り返し熱負荷を受けると、内部に発生した熱応力により金属疲労を起こし、機械的破壊につながる事が指摘されている[23-26]。このようなタングステンの脆性が引き起こす問題は、核融合炉の安定的・長期的な運転を阻害するものである。そのため、脆性が改善されたタングステン材料の開発が望まれているのが現状である。

1.3 先進タングステン材料の開発と課題

現在、タングステンの最大の弱点である脆性を改善し、プラズマ対向材料として更に適性の高いタングステン材料の研究開発が進められている[22]。それらは先進タングステン材料と呼ばれ、その一つに、TFGR-W (Toughened, Fine-Grained Recrystallized Tungsten) が挙げられる。TFGR-W は、タングステン本来の特長である高融点・高熱伝導率・高原子番号に加え、従来のタングステン材料にはない下記の優れた機械的特性を示す[21,27-29]。

- 室温脆性の改善： 室温で塑性加工が可能である
- 照射脆性の改善： 中性子照射脆性が低減されている
- 再結晶脆性の改善： 高温(1300 K 以上)での脆性が低減されている

これらの機械的特性の改善に伴い、繰り返し熱負荷による亀裂の発生が低減されていることも報告されている[30,31]。このような優れた機械的特性は、タングステン材料の微細構造を制御することで実現しており、TFGR-W は下記のような微細構造上の特徴を持つ[21]。

- 微結晶であること： 平均結晶粒サイズは~1 μm
- 添加物を含むこと： チタンカーバイド(TiC) や タンタルカーバイド(TaC)

TFGR-W は、機械的破壊を起こしにくい長寿命のプラズマ対向材料として期待されている。

ただし、TFGR-W をプラズマ対向材料として使用する際には、水素同位体照射を避けることができない。水素同位体照射効果はタングステン材料の微細構造に大きく影響を受けることが分かっている[32-34]。そのため、TFGR-W の微細構造(微結晶である・添加物を含む)を十分に考慮した上で水素同位体照射効果を詳細に理解し、適切な使用条件を判定すること求められる。それは、TFGR-W をプラズマ対向材料として使用するための必須の課題である。

その他の先進タングステン材料としては、K-dope W (カリウムドーパド タングステン) や W-Re (タングステン-レニウム) 合金が挙げられる[35-36]。それらは既に先行研究でプラズマ対向材料としての適用性について積極的に研究されている。しかし、TFGR-W については、その水素同位体照射効果を調べる研究がなされていないのが現状である。

1.4 本研究の目的

本研究では、TFGR-W の水素同位体照射効果を実験的に調べ、その基礎的な知見を得ることを目的とした。また、その応用として、TFGR-W をプラズマ対向材料として使用した場合の評価を水素同位体照射効果の観点から検討することも目的とした。

核融合炉での水素同位体照射環境は非常に複雑である（実験炉 ITER では、フラックス： $10^{20}\sim 10^{24}\text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、表面温度：500 K～融点超）。水素同位体照射効果を詳細に理解するためには、その照射環境を細分化（粒子負荷と熱負荷を分ける等）し、制御された環境下で調べる必要がある。そこで、本研究では、実験炉 ITER の照射環境を模擬した、複数の実験室レベルの照射装置を用いて実験を行った。これらの結果から得た基礎的な知見を基に、プラズマ対向材料として TFGR-W を使用した場合の評価を明らかにした。

本論文では、以下の 3 つの水同位体照射効果を調べた。

■ 水素同位体吸蔵特性（第 5 章）

水素同位体吸蔵は、放射性物質であるトリチウムの安全な取り扱いおよび燃料効率の観点から重要であり、実験炉 ITER の水素同位体照射環境で調べる必要がある。その幅広い照射環境を模擬するため、複数のイオンビーム照射装置やプラズマ照射装置を用いて、粒子フラックスや温度を変化させて実験を行った（粒子フラックス： $10^{20}\sim 10^{22}\text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、表面温度：473～873 K）。また、その実験結果を基に、実験炉 ITER および原型炉でのトリチウム蓄積量の時間発展について予測した。

■ 表面形態変化（第 6 章）

表面形態変化は、粒子負荷により形成されるブリスタが薄片・ダストの発生につながるため重要であり、特に実験炉 ITER のダイバータの照射環境で調べる必要がある。ストライク点およびその周辺領域の粒子フラックスを模擬できる 3 種類のプラズマ照射装置を用いて実験を行った（粒子フラックス： $10^{21}\sim 10^{24}\text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、表面温度：573 K）。また、表面形態変化と水素同位体吸蔵特性の関連も調べた。

■ 表面溶融・損耗挙動（第 7 章）

表面溶融・損耗は、過渡的な高熱負荷により表面が高温になることで発生し、材料寿命の低下につながるため重要である。特に、実験炉 ITER のダイバータのストライク点における照射環境で調べる必要がある。その熱負荷を模擬するために、トカマクプラズマ装置を用いてプラズマ曝露実験を行った（表面温度：1000 K～融点超）。

1.5 本論文の構成

第 1 章は、序論であり、本研究の背景と目的について述べた。第 2 章では、タングステン材料として、従来のタングステン材料および TFGR-W の材料特性を述べた。第 3 章では、タングステンの水素同位体照射効果として、その理論的なモデルおよび先行研究についてまとめた。第 4 章では、実験方法として、実験で使用したタングステン試料、照射装置および分析装置について紹介した。

第 5 章以降は、実験結果およびその考察について記述した。第 5 章では水素同位体吸蔵特性、第 6 章では表面形態変化、第 7 章では表面溶融・損耗挙動について述べた。

第 8 章では、本研究の総括を述べた。本研究で調べ明らかになった水素同位体照射効果について、まとめた。その上で、プラズマ対向材料として TFGR-W を使用する場合の評価について述べた。

付録 A,B,C では、本研究の実験結果や考察を補足するために行われた、実験およびその結果について述べた。

参考文献

- [1] B. Bigot, Nature 522 (2015) 149-151.
- [2] J. Roth, E. Tsitrone, T. Loarer, V. Philipps, S. Brezinsek, A. Loarte, G.F. Counsell, R.P. Doerner, K. Schmid, O.V. Ogorodnikova and R.A. Causey, Plasma Phys. Control. Fusion 50 (2008) 103001.
- [3] A.R. Raffray and M. Merola, Contributors from the ITER Blanket Integrated Product Team, Fusion Engineering and Design 87 (2012) 769-776.
- [4] T. Hirai 「Engineering of In-vessel Components for ITER」 13th International Workshop on Plasma-Facing Materials and Components for Fusion Applications, Rosenheim Germany, May 2011.
- [5] 鈴木哲, 秋場真人, 斉藤正克「講座核融合炉の炉内機器の構造を理解する 3.ブランケットの構造を理解する」 J. Plasma Fusion Res. Vol.82, No.11 (2006) 768-774.
- [6] 河村繕範, 廣瀬貴規, 西宏, 谷川尚, 中島基樹, 権暁星, 宮田訓, 竹村真, 山西敏彦「プロジェクトレビューITER 計画の機器開発・製作の進展 10.ITER テストブランケット計画」 J. Plasma Fusion Res. Vol.92, No.6 (2016) 444-447.
- [7] 鈴木哲, 秋場真人, 斉藤正克「講座核融合炉の炉内機器の構造を理解する 2.ダイバータの構造を理解する」, J. Plasma Fusion Res. Vol.82, No.10 (2006) 699-706.
- [8] 鈴木哲「小特集核融合プラズマおよびダイバータにおけるタングステン研究の進展と課題 5.ITER ダイバータの製作状況とタングステンドイバータの工学課題」 J. Plasma Fusion Res. Vol.87, No.9 (2011) 607-614.
- [9] 仲野友英「小特集タングステンドイバータを用いて熱核融合実験を行う 3.ITER でフルタングステンドイバータを導入するにあたって解決すべき課題とその対策」 J. Plasma Fusion Res. Vol.91, No.3 (2015) 191-196.
- [10] 奥西成良, 木村晃彦, 江里幸一郎, 朝倉信幸「W モノブロックの熱負荷損傷評価」平成 27 年度第一回ダイバータ物理工学合同研究会 2015 年 7 月 30-31 日 つくばサイエンス・インフォメーションセンター.
- [11] J. Roth, E. Tsitrone, A. Loarte, Th. Loarer, G. Counsell, R. Neu, V. Philipps, S. Brezinsek, M. Lehnen, P. Coad, Ch. Grisolia, K. Schmid, K. Krieger, A. Kallenbach, B. Lipschultz, R. Doerner, R. Causey, V. Alimov, W. Shu, O. Ogorodnikova, A. Kirschner, G. Federici, A. Kukushkin, EFDA PWI Task Force and ITER PWI Team, Fusion for Energy, ITPA SOL/DIV, J. Nucl. Mater. 390-391 (2009) 1-9.
- [12] V. Philipps, J. Nucl. Mater. 415 (2011) S2-S9.
- [13] T. Hirai, F. Escourbiac, S. Carpentier-Chouchana, A. Durocher, A. Fedosov, L. Ferrand, T. Jokinen, V. Komarov, M. Merola, R. Mitteau, R. A. Pitts, W. Shu, M. Sugihara, V. Barabash, V. Kuznetsov, B. Riccardi and S. Suzuki, Phys. Scr. T159 (2014) 014006.

- [14] M. Merola, F. Escourbiac, R. Raffray, P. Chappuis, T. Hirai and A. Martin, *Fusion Eng. Des.* 89 (2014) 890-895.
- [15] R. Behrisch, G. Federici, A. Kukushkin and D. Reiter, *J. Nucl. Mater.* 313-316 (2003) 388-392.
- [16] R.A. Pitts, S. Carpentier, F. Escourbiac, T. Hirai, V. Komarov, S. Lisgo, S. Lisgo, A.S. Kukushkin, A. Loarte, M. Merola, A. Sashala Naik, R. Mitteau, M. Sugihara, B. Bazylev and P.C. Stangeby, *J. Nucl. Mater.* 438 (2013) S48-S56.
- [17] T. Tanabe, *Phys. Scr.* T159 (2014) 014044.
- [18] J. Roth and K. Schmid, *Phys. Scr.* T145 (2011) 014031.
- [19] J.W. Coenen, V. Phillips, S. Brezinsek, B. Bazylev, A. Kreter, T. Hirai, M. Laengner, T. Tanabe, Y. Ueda, U. Samm and the TEXTOR Team, *Nucl. Fusion* 51 (2011) 083008.
- [20] J.W. Coenen, B. Bazylev, S. Brezinsek, V. Philipps, T. Hirai, A. Kreter, J. Linke, G. Sergienko, A. Pospieszczyk, T. Tanabe, Y. Ueda, U. Samm and The TEXTOR-Team, *J. Nucl. Mater.* 415 (2011) S78-S82.
- [21] H. Kurishita, H. Arakawa, S. Matsuo, T. Sakamoto, S. Kobayashi, K. Nakai, G. Pintsuk, J. Linke, S. Tsurekawa, V. Yardley, K. Tokunaga, T. Takida, M. Katoh, A. Ikegaya, Y. Ueda, M. Kawai and N. Yoshida, *Material Transaction* 54, 4 (2013) 456-465.
- [22] 核融合エネルギーフォーラム ITER・BA 技術推進委員会「ダイバータ研究開発の戦略的加速の方針に関する評価・検討報告書」(2016年) pp.A17-25.
- [23] T. Hirai, G. Pintsuk, J. Linke and M. Batilliot, *J. Nucl. Mater.* 390-391 (2009) 751-754.
- [24] I.E. Garkusha, I. Landman, J. Linke, V.A. Makhraj, A.V. Medvedev, S.V. Malykhin, S. Peschanyi, G. Pintsuk, A.T. Pugachev and V.I. Tereshin, *J. Nucl. Mater.* 415 (2011) S65-S69.
- [25] J. Linke, R. Duwe, A. Gervash, R.H. Qian, M. Rödiger and A. Schuster, *J. Nucl. Mater.* 258-263 (1998) 634-639.
- [26] S. Wurster, N. Baluc, M. Battabyal, T. Crosby, J. Du, C. García-Rosales, A. Hasegawa, A. Hoffmann, A. Kimura, H. Kurishita, R.J. Kurtz, H. Li, S. Noh, J. Reiser, J. Riesch, M. Rieth, W. Setyawan, M. Walter, J.-H. You, R. Pippan, *J. Nucl. Mater.* 442 (2013) S181-S189.
- [27] H. Kurishita, S. Matsuo, H. Arakawa, T. Sakamoto, S. Kobayashi, K. Nakai, H. Okano, H. Watanabe, N. Yoshida and Y. Torikai, *Phys. Scr.* T159 (2014) 014032.
- [28] H. Kurishita, S. Matsuo, H. Arakawa, T. Sakamoto, S. Kobayashi, K. Nakai, T. Takida, M. Kato, M. Kawai and N. Yoshida, *J. Nucl. Mater.* 398 (2010) 87-92.

- [29] H. Kurishita, S. Kobayashi, K. Nakai, T. Ogawa, A. Hasegawa, K. Abe, H. Arakawa, S. Matsuo, T. Takida, K. Takebe, M. Kawai and N. Yoshida, *J. Nucl. Mater.* 377 (2008) 34-40.
- [30] G. Pintsuk, H. Kurishita, J. Linke, H. Arakawa, S. Matsuo, T. Sakamoto, S. Kobayashi and K. Nakai, *Phys. Scr. T145* (2011) 014060.
- [31] K. Tokunaga, H. Kurishita, H. Arakawa, S. Matsuo, T. Hotta, K. Araki, Y. Miyamoto, T. Fujiwara, K. Nakamura, T. Takida, M. Kato and A. Ikegaya, *J. Nucl. Mater.* 442 (2013) S297-S301.
- [32] A. Manhard, K. Schmid, M. Balden and W. Jacob, *J. Nucl. Mater.* 415 (2011) S632-S635.
- [33] M. Balden, A. Manhard and S. Elgeti, *J. Nucl. Mater.* 452 (2014) 248-256.
- [34] J.W. Coenen, V. Philipps, S. Brezinsek, G. Pintsuk, I. Uytendhouwen, M. Wirtz, A. Kreter, K. Sugiyama, H. Kurishita, Y. Torikai, Y. Ueda, U. Samm and the TEXTOR-Team, *Nucl. Fusion* 51 (2011) 113020.
- [35] Y. Ueda, T. Funabiki, T. Shimada, K. Fukumoto, H. Kurishita and M. Nishikawa, *J. Nucl. Mater.* 337-339 (2005) 1010-1014.
- [36] V.Kh. Alimov, Y. Hatano, K. Sugiyama, M. Balden, M. Oyaidzu, S. Akamaru, K. Tada, H. Kurishita, T. Hayashi and M. Matsuyama, *J. Nucl. Mater.* 454 (2014) 136-141.

第2章 タングステン材料

2.1 緒言

本章では、一般的なタングステン材料の使用用途・製造方法・微細構造・特性について述べた後、本研究で使用した先進タングステン材料 TFGR-W の製造方法・微細構造・特性について説明する。2.2 節で一般的なタングステン材料、2.3 節で先進タングステン材料、2.4 節で TFGR-W について説明した。

2.2 タングステン

本節では、工業的に生産され市販されている一般的なタングステン材料について、その使用用途、製造方法、微細構造と格子欠陥、特性について解説した。また、タングステン材料の短所を克服するの手法、すなわち先進タングステン材料の開発方針について述べる。

2.2.1 タングステンの使用用途

タングステンは様々な特長を持ち、約 100 年来、工業的に利用されてきた。タングステンの代表的な使用用途と、タングステンが選定される理由を、以下にまとめた[1,2]。

- 白熱電球のフィラメント： 真空中で 2200 K 以上の高温になるため、低蒸気圧・高融点であるタングステンが使用される。1908 年にゼネラル・エレクトリック社で発明。
- 耐熱部材： 電気炉等のヒーターや溶解するつぼのような高温部に、高融点であるタングステンが使用される。
- 集積回路検査用のプローブピン： 集積度の高い回路の検査には細いプローブが必要であるため、室温強度の高いタングステンが使用される。
- 核破砕中性子源： アメリカの SNS (Spallation Neutron Source) 計画等で、高密度・小崩壊熱であるタングステンが使用される予定。
- 核融合炉のプラズマ対向材料： 実験炉 ITER や原型炉で使用される。詳細は 2.2.4 項で後述する

本研究で研究対象とする、核融合炉のプラズマ対向材料は、タングステンの使用用途としては比較的新しい。工業的には薄材や線で製造されることの多いタングステンだが、プラズマ対向材料はブロック形状で使用される（実験炉 ITER や原型炉のダイバータではモノブロックとして使用される）[3]。そのため、プラズマ対向材料としてのタングステンは、その製造方法を明らかにしておくことが重要である。タングステンの製造方法については次項で解説し、先進タングステン材料の製造方法は 2.4.2 項で述べた。

また、核融合炉内は、人類にとって未曾有の過酷環境（熱負荷や粒子負荷）である。そのため、プラズマ対向材料として適性を高めることを目的に、タングステンの材料開発が行われる（先進タングステン材料）。それは、タングステンの材料開発分野にとって新境地であり、これまでにはなかった全く新しい観点である。

また、核融合炉のプラズマ対向材料として使用するタングステンの量について述べる。核融合炉一基当たりで使用するタングステンは、例えば実験炉 ITER では 70 t と試算される。（モノブロック 1 個当たり $3\text{ cm} \times 3\text{ cm} \times 10\text{ cm} \times 19.25\text{ g/cm}^3 = 173.25\text{ g}$ 、実験炉 ITER ではモノブロックを 403920 個使用する[4]）ので、 $173.25\text{ g} \times 403920 \approx 70\text{ t}$ ）タングステン鉱石の大部分は中国に埋蔵されており、タングステンの年間生産量は 63100 t（2008 年）である[5]。日本には年間 7750 t の需要がある[5]ため、実験炉 ITER 一基当たりで使用するタングステンは、その 1%程度である。このことから、核融合炉の建設に必要なタングステンは、十分確保可能であると考えられる[6]。

2.2.2 タングステン材料の製造方法

タングステンは室温での製造・加工が困難であるため、粉末冶金による製造が一般的である。粉末冶金とは、JIS（Japan Industrial Standards）規格[7]にて「金属粉の製造および金属粉の圧縮と焼結による金属製品についての技術。…（略）」と定義されている[8]。以下に、タングステン材料の製造工程についてまとめた[9-13]。

タングステンはタングステン鉱石である鉄マンガン重石（ウォールフラマイト、 $(\text{Fe},\text{Mn})\text{WO}_4$ ）や灰重石（シーライト、 CaWO_4 ）等から精錬される。タングステン鉱石をアルカリ水溶液で抽出し、パラタングステン酸アンモニウム（ $5(\text{NH}_4)_2\text{O} \cdot 12\text{WO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ ）を取り出す。パラタングステン酸アンモニウムを 900~1000 K で熱分解させ、酸化タングステン（ WO_3 ）を得る。それを還元し、単体のタングステン粉末を得る。

タングステン粉末は、金型に入れて圧縮し形を整える（成形）。この際、製品形状になるように調整するが、この状態では空隙が多く脆い。そのため、融点以下の温度で加熱し焼き固める（焼結）。この時、粉末の表面エネルギーが減少するように粉末同士は結合するため、空隙は減少し緻密化する。成形と焼結を同時に行う手法は熱間加圧成形と呼ばれ、特に等方圧で熱間加圧成形を行う手法は熱間等方圧加圧法（Hot Isostatic Pressing ; HIP）と呼ばれる。

焼結体は、所望の製品形状・微細構造になるように更に加工される。その際、タングステンの塑性を利用した加工（塑性加工）が行われるが、タングステンは室温では脆性を示すため、塑性が発現する温度まで加熱することが望ましい。その温度領域は、延性を示し（延性-脆性遷移温度 200~700 K 以上）かつ再結晶による脆化を起こさない（再結晶温度 1800 K 以下）範囲である 1400~1800 K で行われる。タングステン材料は、下記のいずれかの塑性加工が行われた後、切断等を行う。

- 圧延加工 (Rolling, ローリング) : 板状の金属材料を更に薄く引き伸ばす加工法
板材を上下一対の回転ロールに挟み込み、圧力をかけて伸ばすため、板の平面方向に結晶粒は引き伸ばされる。微細構造は表面に平行な方向に伸びた結晶粒を持つ。
- 転打加工 (Swaging, スウェージング) : 棒状の金属材料を更に細く伸ばす加工法
棒材を周囲から圧縮して伸展するため、棒方向に結晶粒は引き伸ばされる。微細組織は細長く繊維状の結晶粒を持つ。
- 鍛造加工 (Forging, フォージング) : 金属材料を叩いて変形させる加工法
材料を、工具やプレス機などで機械的に叩いて変形させる。

それぞれの材料におけるプラズマ対向材料への適用性は、積極的に研究されている。実験炉 ITER のタングステン-モノブロックは、圧延加工および鍛造加工で製造されている[14]。

2.2.3 タングステンの微細構造と格子欠陥

一般にタングステン材料は、いくつかの結晶粒の集合から成る微細構造を持つ。結晶粒の大きさは、製造工程に依存するが、一般に 1~50 μm 程度である。1つの結晶粒の中では、タングステン原子は、規則正しく空間的なパターンを持って配列しており、体心立方格子 (Body-Centered Cubic lattice ; BCC) と呼ばれる結晶構造をとる。格子定数は 3.165 \AA である。図 2.1 にタングステンの微細構造および結晶構造を模式的に示す。結晶粒毎に BCC 構造の配向は異なっており、結晶粒同士の境界は結晶粒界と呼ばれる。

結晶中の大部分の原子は規則正しく空間的なパターンを持って配列しているが、一部でその規則性が乱れている。この原子配列の不整は、格子欠陥と呼ばれる[16,17]。製造工程でタングステン材料に潜在的に含まれる欠陥 (固有欠陥) を以下に示し、その模式図を図 2.2 に示す。

- 空孔 : 結晶格子から原子が 1 個だけ抜けた状態のこと (点欠陥)
- 転位 : 結晶格子から原子が 1 列ずれて配列している状態のこと (線欠陥)
- ボイド : 空孔が 3 次元的に集合した空隙のこと (体積欠陥)
- 結晶粒界 : 結晶粒同士の境界のことで、原子が非常に不規則に並ぶ
- 不純物 : 製造過程で混入・侵入し、一般に鉄や炭素、酸素等のことを指す

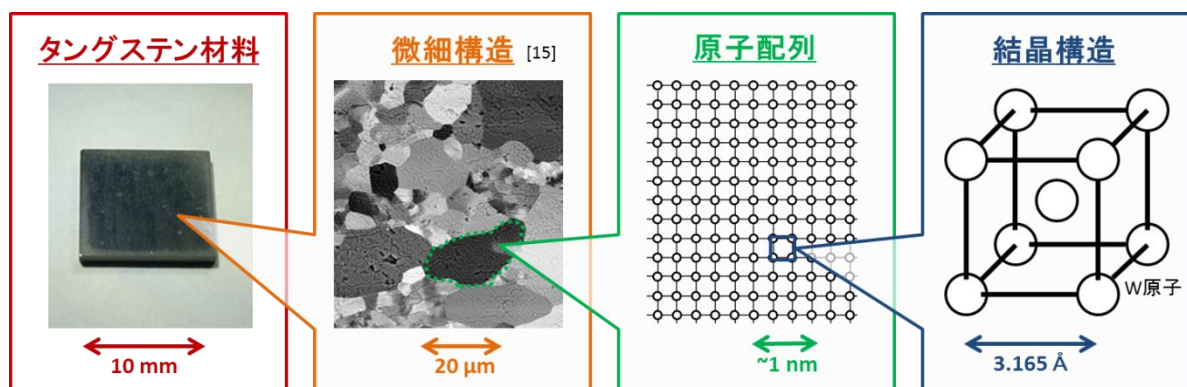


図 2.1 タングステン材料の微細構造と結晶構造 (微細構造は[15]より抜粋)

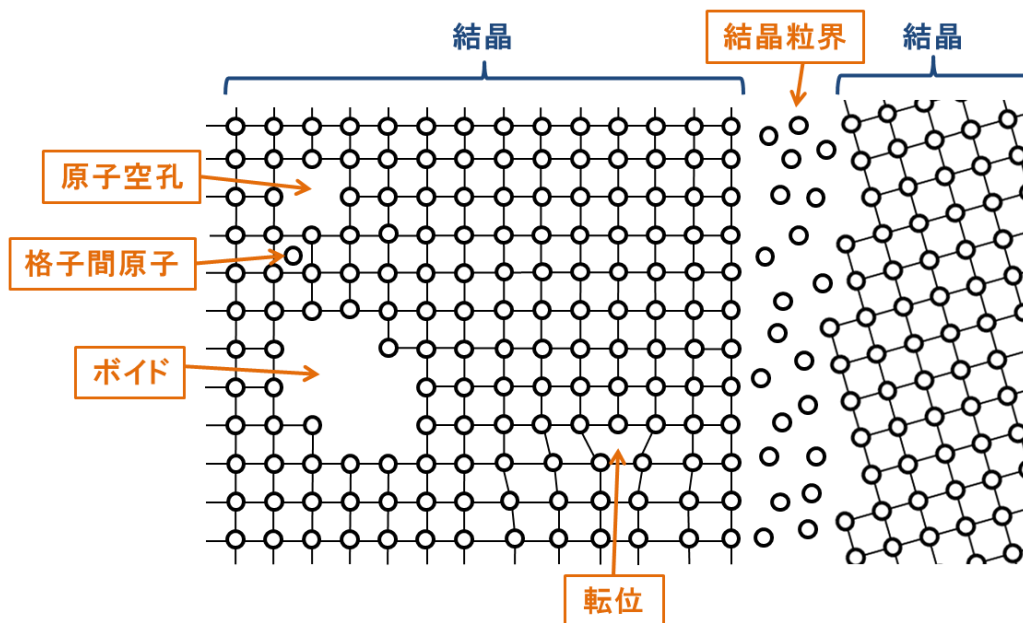


図 2.2 タングステンの結晶構造と格子欠陥

また、高速中性子や高エネルギー粒子の照射によって、新たに格子欠陥が形成されることもある（照射欠陥）。このような欠陥は、入射した高速中性子や高エネルギー粒子が格子点の原子をはじき出すことで形成されるため、空孔やその集合であるポイドが主である[18]。

2.2.4 タングステンの材料特性

タングステン材料の特性を、プラズマ-材料相互作用の観点から述べる。まず、タングステン材料の長所とプラズマ対向材料として優位な点を、以下にまとめた[1,19]。

- 高融点 ($\sim 3700\text{ K}$)： 全ての純金属中最高の融点を持つため、溶融が起きにくい
- 高熱伝導率 ($173\text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ (300 K))： 除熱性能が高いため、冷却で高温を避けられる
- 高原子番号 (74)： 原子をはじき出しが起きにくいいため、損耗されにくい
- 低熱膨張率 ($4.5 \times 10^{-6}\text{ K}^{-1}$ (300 K))： 熱膨張による機械的破壊の可能性が低い

上記の長所を併せ持つ材料は、現時点では、タングステン以外にはなく、他の材料（炭素やモリブデン等）の追隨を許さない。

しかし、タングステン材料はその脆性が最大の短所である[12,20]。タングステンの原子同士は金属結合で結びついており、第六族金属であるタングステンの金属結合は共有結合性が強い。そのため、結晶粒内の原子同士の結合が非常に強く、融点は非常に高い。その一方、結晶粒内以外の領域すなわち結晶粒界では原子間の結合が弱いため、タングステンの結晶粒界は非常に弱く、材料の機械的破壊は結晶粒界での亀裂を起点に発生する。一般に、金属材料の脆性は、延性-脆性遷移温度（Ductile-Brittle Transition Temperature；DBTT）で評価される。プラズマ-材料相互作用の観点から、タングステンの脆性は以下の3つに大別される[20,21]。

■ 室温脆性：室温で加工が困難

タングステンの DBTT が高いことに起因しており、一般的に DBTT は 200~700 K である（室温は 300 K）。DBTT は、材料の微細構造に強い影響を受けるため、微細構造の制御により DBTT を室温以下まで下げることが可能である。

■ 照射脆化：中性子照射により脆化し、損傷を引き起こす原因になる

中性子照射により、原子は格子点からはじき出され格子欠陥が生成される。また、中性子とタングステン原子の核反応により不純物原子（レニウムやオスミウム）の生成も起こり得る。その結果、DBTT が上昇し、脆化する。

■ 再結晶脆化：融点以下の高温で脆化し、損傷を引き起こす原因になる

1300 K から再結晶が始まり、結晶粒は粗大化する。再結晶により機械的に弱い結晶粒界が発達する。その結果、DBTT が上昇し、脆化する。

室温脆性により、タングステン材料の製造・加工を室温で行うことは難しい。そのため、製造は粉末冶金法で行われ、加工は 1400~1800 K に加熱して塑性加工を行うことが望ましい。また、タングステン材料をプラズマ対向材料として使用した場合、プラズマから繰り返し熱負荷を受けると、内部に発生した熱応力により熱疲労を起こし、機械的破壊（亀裂や破断の発生）につながることを報告されている[22-24]。その場合、中性子による照射脆化や、表面温度の上昇による再結晶脆化で機械的破壊が促進される懸念もあり、実験室レベルの試験で確認された [4,25]。脆性が引き起こすこれらの問題は、核融合炉の安定的・長期的運転（数年～数十年）を阻害するものであり、早急に解決することが求められている[21]。

2.3 先進タングステン材料の開発

前述のように、タングステンをプラズマ対向材料として使用する場合には、その脆性が問題となる。そのため、脆性が改善されたタングステン材料の研究開発が進められており、それらは先進タングステン材料と呼ばれる。先進タングステン材料の開発の際には、微細構造の制御により室温脆性の改善 (DBTT の低下)・再結晶脆化の改善 (再結晶温度の上昇)・中性照射脆化の改善を目的としている。これまでに開発された先進タングステン材料としては、以下の 3 つが挙げられる[21]。

■ K-dope W (カリウムドーパド タングステン)

タングステンに K ドープした材料。DBTT は低く、室温付近で延性を示す。また、添加されたカリウムは、タングステンの再結晶を抑制するため、再結晶脆化が抑制されている。

■ W-Re (タングステン-レニウム) 合金

タングステンにレニウム (Re) を混合して合金化した材料。DBTT の低下により、低温での延性を示す。また、再結晶温度が上昇するため、再結晶脆化が抑制されている。

それに加え、中性子との核反応によって生じる Re 原子を既に含んでおり、中性子照射脆化が抑制されることも報告されている。

■ TFGR-W (Toughened, Fine-Grained Recrystallized Tungsten)

タングステンにチタンカーバイド (TiC) やタンタルカーバイド (TaC) を添加し、合金化した材料。本研究の研究対象であり、次節以降でその詳細を述べる。

K-dope W や W-Re 合金については、数多くの先行研究にて、プラズマ対向材料としての適用性について積極的に研究されており、水素同位体照射効果も明らかになっている[26-28]。しかし、TFGR-W については、その水素同位体照射効果を調べる研究はほとんど行われていないのが現状であるため、本研究の研究対象とした。

2.4 TFGR-W

本節では、先進タングステン材料である TFGR-W の開発方針、製造方法、微細構造、材料の特長について解説する。

2.4.1 TFGR-W の開発方針

TFGR-W (Toughened, Fine-Grained Recrystallized Tungsten) は、タングステン材料の脆性を改善することを目的として、東北大学の栗下裕明氏によって研究開発された先進タングステン材料である[19,28-30]。タングステンの脆性は主として結晶粒界の弱さに起因しているため、その弱い結晶粒界を強化することが、TFGR-W の研究開発の基本方針である。以下では、その方針に至った経緯についてまとめた[20,29-31]。

結晶粒界を強化するための方策として、タングステンの本来弱い結晶粒界を原子間結合力の強いものに置き換え、酸素や窒素などの有害な不純物を低減することが挙げられる。結晶粒界を強化するために、遷移金属炭化物 (Transition Metal Carbides ; TMCs) を結晶粒界に析出・偏析させる方策が選択された。また、そのような結晶粒界を高密度に含む (微結晶化する) と、中性子照射による欠陥生成の抑制にもつながり、照射脆化の改善も見込まれるため、非常に有効な方策だと考えられた。ここでは、TFGR-W では、遷移金属炭化物として、チタンカーバイド (TiC) とタンタルカーバイド (TaC) が選択された。

TiC および TaC の添加は、モリブデン (Mo) における材料開発の成功例に倣っている。先行研究[32,33]にて、モリブデンに TiC を添加した材料 (Mo-(0.2-1.0%)TiC) は、中性子照射により延性が増加すること (Radiation Induced DUtilization ; RIDU) が報告され、従来の中性子照射脆性とは真逆の効果を示すことが分かった。タングステンでも同様の効果が期待され、材料開発の出発点として TiC が選択された。しかし、TiC の融点は~3500 K であり、タングステンの融点~3700 K に比べて低いため、タングステン融点付近の高温領域での挙動に不安がある。そのため、遷移金属炭化物の中で融点の高い TaC (融点~4200 K) が、高温での安定性を期待されて選択された。

2.4.2 TFGR-W の製造方法

TFGR-W の製造方法は、粉末冶金法に基づき、メカニカルアロイング (Mechanical Alloying ; MA) - 熱間等方圧加圧法 (Hot Isostatic Pressing ; HIP) - 再結晶ランダム粒界の強化を目的とした粒界すべりに基づく組織制御法 (Grain-boundary Sliding-based Microstructural Modification ; GSMM) により行われた。図 2.3 に製造工程の概略[34]を示し、以下にそれぞれの行程の詳細を述べた[20,29-31]。

- ①メカニカルアロイング (MA) : 組成が均一になった合金粉末を得る方法
純タングステン粉末 (平均粒径 $4.0\mu\text{m}$, 純度 99.9%) とチタンカーバイド (TiC) 粉末やタンタルカーバイド (TaC) 粉末を混ぜ合わせ、均一な組織・組成をもつ混合粉末を作成した。
- ②熱間等方圧加圧法 (HIP) : 粉末材料の成形と焼結を同時に行うための方法
混合粉末を成形後、Ar 及び H_2 雰囲気等で等方的に圧縮 ($1350\text{ }^\circ\text{C}$, 0.2 GPa , 10800 秒間) し、粉末を固め、緻密な構造をもつ焼結体を作成した。
- ③再結晶ランダム粒界の強化を目的とした粒界すべりに基づく組織制御法 (GSMM) : 粒界すべり (超塑性変形) を用いた組織制御の方法
高温で超塑性変形を起こし、結晶粒界で TiC および TaC の粒界析出・偏析を促進し、異方性の少ない再結晶組織を維持することで、結晶粒界を強化した。

区別のため、それぞれの材料の名前には、添加物の種類とその含有量を明記している。例えば、TFGR W-1.1wt%TiC や TFGR W-3.3wt%TaC といった名前が付けられている。

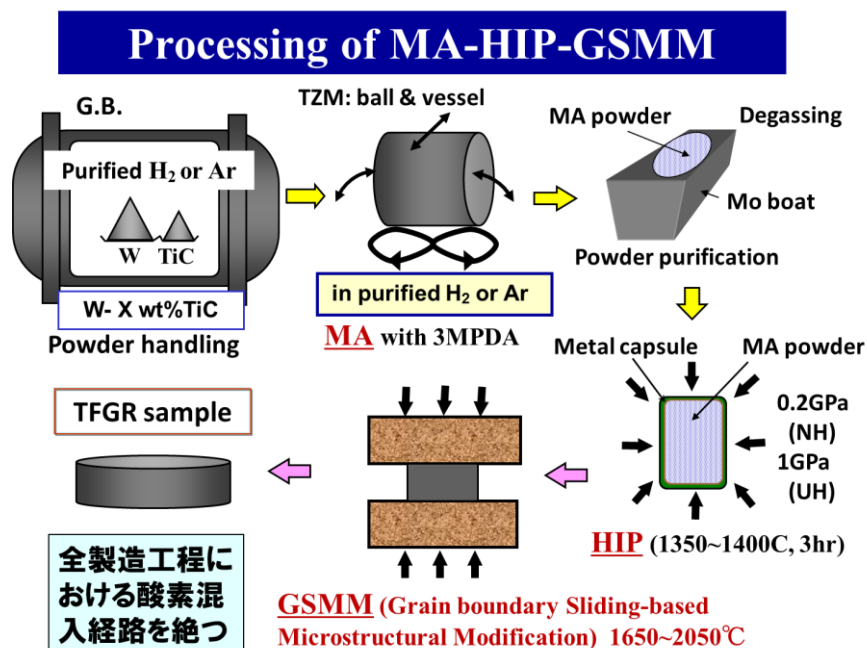


図 2.3 TFGR-W の製造プロセスの概略 [34]

2.4.3 TFGR-W の微細構造

TFGR-W の微細構造を図 2.4 に示す。純タングステン（以下 pure W と表記）に比べ、下記のような微細構造上の特徴を持つ[20,29-31]。

- 微結晶である：平均結晶粒サイズは $\sim 1\ \mu\text{m}$

同様の熱処理（1573 K 程度）を施した純度 99.99% の pure W の場合、平均結晶粒サイズは $\sim 5\ \mu\text{m}$ である。TFGR-W は微結晶のため、結晶粒界を高密度に含む。

- 添加物を含む：TiC および TaC

製造工程中に添加した TiC および TaC は、結晶粒内もしくは結晶粒界に偏析・析出している。添加物のサイズは、結晶粒内で 90~160 nm、結晶粒化で 160~390 nm であることが観察された。

2.4.4 TFGR-W の特長

TFGR-W の特長は、pure W よりも機械的特性に優れていることにあり、室温脆性・照射脆化・再結晶脆化の改善を示す[20,29-31]。

- 室温脆性の改善：室温で塑性加工が可能である
- 照射脆化の改善：中性子照射脆化が引き起こす損傷を低減できる
- 再結晶脆化の改善：高温(1300 K 以上)での脆化が引き起こす損傷を低減できる

これらは、上記の TFGR-W の微細構造上の特徴に起因するものであり、それらの関係を表 2.1 に示した。

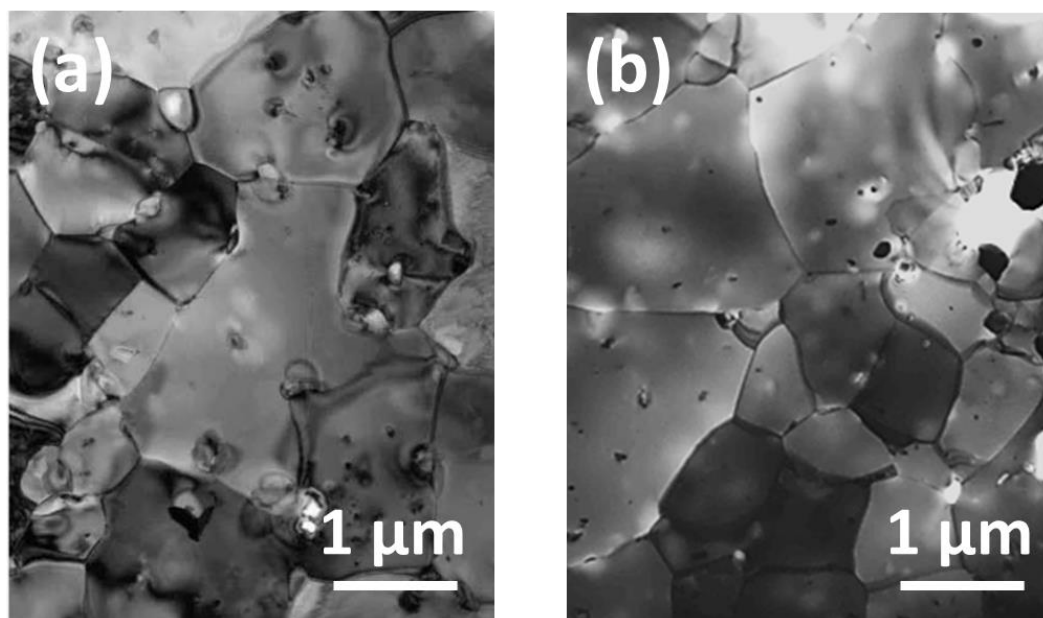


図 2.4 TFGR-W の微細構造の TEM 観察結果（[29]より抜粋）

(a) TFGR W-1.1wt%TiC, (b) TFGR W-3.3wt%TaC

表 2.1 TFGR-W の微細構造と機械的特性の関係

微細構造 機械的特性	微結晶である (平均結晶粒サイズは~1 μm)	添加物を含む (TiC / TaC)
室温脆性の改善	金属材料は結晶粒が小さい程、破壊強度は高い(Hall-Petch の関係)	析出物との強い界面・構成元素が偏析し、粒界を強化する
照射脆化の改善	照射欠陥のシンク (消滅する領域) である結晶粒界を高密度に含む	-
再結晶脆化の改善	-	熱処理中の結晶粒の成長(再結晶)を阻止する

TFGR-W における機械的特性の改善を示す試験結果は、先行研究にて調べられており、以下にまとめた。

■ 室温での機械的特性：

室温で 3 点折り曲げ試験を行った結果[20]、材料を破断させるためにかけた応力（破壊強度）は 4.4 GPa であった。これはタングステン材料の中で最高値である。その破面を観察すると、結晶粒界に沿う粒間破壊だけでなく、粒内破壊も観察され、大部分の結晶粒界が強化されたことが示された。

■ 延性-脆性遷移温度 (DBTT)：

3 点折り曲げ試験で塑性変形の温度依存性を調べた[20]結果、DBTT は、TFGR W-1.1wt%TiC では 240 K、TFGR W-3.3wt%TaC では 420 K であることが分かった。従来のタングステン材料に比べ、DBTT が低下していることが確認された。特に、TFGR W-1.1wt%TiC の 240 K は室温 (~300 K) を下回っていることから、室温で延性を示す。

■ 繰り返し熱負荷への耐性

実験炉 ITER の ELM を想定した繰り返し熱負荷を与える試験を、ドイツ・ユーリッヒ研究開発センターの JUDITH-1 で行った[35] (試料に吸収されるエネルギー密度は 1.1 GW m⁻² で、100 回照射した。毎回、試料表面温度は~2900 K まで上昇した。)。その結果、pure W 試料とは異なり、TFGR W-1.1wt%TiC では表面に亀裂が生じないことが確認された。また、九州大学の応用力学研究所の電子ビーム照射装置でも繰り返し熱負荷を与える実験を行った (1 サイクルで 2 秒間の照射と 7.5 秒間の冷却を行い、それを 1 時間継続した。毎サイクル、試料表面温度は 1523 K まで上昇) [36]。その結果、pure W では、表面は粗くなり結晶粒で亀裂が確認されるような条件下でも、TFGR W-1.1wt%TiC では表面に大きな変化は観察されなかった。

■ 中性子照射耐性

TFGR-W の前身の材料で、製造工程で GSMM を行っていない UFG-W (Ultra-Fine Grained Tungsten) に、JMTR (Japan Materials Testing Reactor) で中性子照射を

行った（フルエンス $2 \times 10^{24} \text{ n m}^{-2}$, 照射温度 873 K） [31]。その後、透過型電子顕微鏡で微細構造を観察すると、**pure W** に比べて、ポイドの密度が減少していることが確認された。また、機械的強度を測定したところ、中性子照射脆化が低減されていることが分かった。このような中性子照射耐性は、本質的に、材料の微結晶性に起因しているため、**TFGR-W** でも同様の効果が期待される。

■ ヘリウムイオン照射耐性

UFG-W に、東北大学のダイナミトロン型加速器でヘリウムイオンを照射した（フルエンス $10^{22} \sim 10^{23} \text{ He m}^{-2}$, 照射温度 823 K） [31]。その結果、**pure W** に比べて、表面損傷が低減されていることが確認された。このヘリウムイオン照射耐性も、本質的に、材料の微結晶性に起因していると考えられるため、**TFGR-W** でも同様の効果が期待される。

2.4.5 水素同位体照射効果で懸念されること

前述のように、**TFGR-W** の微細構造は、タングステン材料の機械的特性の改善には非常に有効である。しかし、**TFGR-W** の微細構造は格子欠陥（結晶粒界や添加物）を多く含み、水素同位体照射効果（水素同位体吸蔵、表面形態の変化、表面溶融・損耗）に対して、以下のような影響が懸念される。

■ 水素同位体吸蔵特性

結晶中の格子欠陥の周辺では、水素同位体はエネルギー的に安定に存在でき、水素同位体は格子欠陥に捕獲（トラップ）される。そのため、**pure W** よりも水素同位体吸蔵が増加することが懸念される。

■ 表面形態変化

結晶粒界の密度が高いため、結晶粒界に蓄積する水素同位体が増加し、表面ブリスタの発生が起きやすくなる。しかし、一方で、**pure W** に比べて、結晶粒界は強化されているので、ブリスタの発生は抑制される可能性も考えられる。

■ 表面溶融・損耗挙動

熱的性質は、タングステンと添加物で大きく異なる。そのため、**TiC** および **TaC** は、**TFGR-W** の熱負荷への応答に強い影響を与えると考えられる。また、プラズマ曝露のより、それら添加物が損耗されることも懸念される。

参考文献

- [1] 栗下裕明「TFGR (Toughened, Fine-Grained, Recrystallized) W-1.1wt%TiC の課題と取組み」2012年3月21日 超高温材料研究センター.
- [2] (社)粉体粉末冶金協会編「紛体粉末冶金便覧」内田老鶴圃 (2010年) pp376-379.
- [3] 長谷川晃「小特集 原型炉に向けてのダイバータの研究開発課題-現状と展望- 5.ダイバータ対向・構造材料と照射影響研究の現状と研究開発」J. Plasma Fusion Res. 92, 12 (2016) 891-896.
- [4] 奥西成良, 木村晃彦, 江里幸一郎, 朝倉信幸「W モノブロックの熱負荷損傷評価」平成27年度第一回ダイバータ物理工学合同研究会 2015年7月30-31日 つくばサイエンス・インフォメーションセンター.
- [5] 足立吟也監修・編集代表「レアメタル便覧」丸善株式会社 (2011年) pp184.
- [6] 長谷川晃「対向材料・機器と照射影響」平成27年度第2回ダイバータ関係サブクラスター合同会合 2016年3月11日 核融合科学研究所.
- [7] 日本工業規格 JIS Z 2500 (1960).
- [8] (社)粉体粉末冶金協会編「紛体粉末冶金便覧」内田老鶴圃 (2010年) pp4.
- [9] (社)粉体粉末冶金協会編「紛体粉末冶金便覧」内田老鶴圃 (2010年) pp374-375.
- [10] C.J. Smithells 著, 川口寅之輔訳「タングステン(冶金法, 性質及び応用についての論説)」金属社 (1944年) pp60-67.
- [11] 日本塑性加工学会編「粉末の成型と加工 -粉からニアネットシェイプへ-」コロナ社, (1994年) pp12-17.
- [12] 紛体粉末冶金協会編「紛体粉末冶金用語辞典」内田老鶴圃 (2001年) pp310-329.
- [13] 井上忠信監修「金属加工が一番わかる 製造業の基礎が身につく金属加工の方法」技術評論社 (2011年) pp26-27, 68-71.
- [14] T. Hirai, S. Panayotis, V. Barabash, C. Amzallag, F. Escourbiac, A. Durocher, M. Merola, J. Linke, Th. Loewenhoff, G. Pintsuk, M. Wirtz and I. Uytendhouwen, Nuclear Materials and Energy (2016), <http://dx.doi.org/10.1016/j.nme.2016.07.003>.
- [15] A. Manhard 「Dueterium Inventory in Tungsten After Plasma Exposure: A Microstructural Survey」Augsburg University, Faculty of Mathematics and Natural Sciences, PhD thesis (2011).
- [16] 小原嗣朗著「金属組織学概論」(1966年) 朝倉書店, pp42-43.
- [17] 幸田成康著「改訂 金属物理学序論」(1964年) コロナ社, pp68-71.
- [18] 石野栞, 蔵元英一, 曾根田直樹「講座 核融合炉構造材料の照射損傷 3.原子のはじき出しと照射欠陥」J. Plasma Fusion Res. 84, 5 (2008) 258-268.
- [19] V. Philipps, J. Nucl. Mater. 415 (2011) S2-S9.
- [20] H. Kurishita, H. Arakawa, S. Matsuo, T. Sakamoto, S. Kobayashi, K. Nakai, G. Pintsuk, J. Linke, S. Tsurekawa, V. Yardley, K. Tokunaga, T. Takida, M. Katoh, A.

- Ikegaya, Y. Ueda, M. Kawai and N. Yoshida, *Material Transaction* 54, 4 (2013) 456-465.
- [21] 核融合エネルギーフォーラム ITER・BA 技術推進委員会「ダイバータ研究開発の戦略的加速の方針に関する評価・検討報告書」(2016年) pp.A17-25.
- [22] T. Hirai, G. Pintsuk, J. Linke and M. Batilliot, *J. Nucl. Mater.* 390-391 (2009) 751-754.
- [23] I.E. Garkusha, I. Landman, J. Linke, V.A. Makhraj, A.V. Medvedev, S.V. Malykhin, S. Peschanyi, G. Pintsuk, A.T. Pugachev and V.I. Tereshin, *J. Nucl. Mater.* 415 (2011) S65-S69.
- [24] J. Linke, R. Duwe, A. Gervash, R.H. Qian, M. Rödiger and A. Schuster, *J. Nucl. Mater.* 258-263 (1998) 634-639.
- [25] S. Wurster, N. Baluc, M. Battabyal, T. Crosby, J. Du, C. García-Rosales, A. Hasegawa, A. Hoffmann, A. Kimura, H. Kurishita, R.J. Kurtz, H. Li, S. Noh, J. Reiser, J. Riesch, M. Rieth, W. Setyawan, M. Walter, J.-H. You, R. Pippan, *J. Nucl. Mater.* 442 (2013) S181-S189.
- [26] G. Pintsuk, J. Compan, T. Hirai, J. Linke, M. Rodig and I. Uytendhouwen, “Effect of Transient Heat Loads on Neutron Irradiated Tungsten and Carbon Based Materials”, *IEEE 22nd Symposium on Fusion Engineering* (2007) pp1-6, ISSN 1078-8891.
- [27] V.Kh. Alimov, Y. Hatano, K. Sugiyama, M. Balden, M. Oyaidzu, S. Akamaru, K. Tada, H. Kurishita, T. Hayashi and M. Matsuyama, *J. Nucl. Mater.* 454 (2014) 136-141.
- [28] Y. Ueda, T. Funabiki, T. Shimada, K. Fukumoto, H. Kurishita and M. Nishikawa, *J. Nucl. Mater.* 337-339 (2005) 1010-1014.
- [29] H. Kurishita, S. Matsuo, H. Arakawa, T. Sakamoto, S. Kobayashi, K. Nakai, H. Okano, H. Watanabe, N. Yoshida and Y. Torikai, *Phys. Scr.* T159 (2014) 014032.
- [30] H. Kurishita, S. Matsuo, H. Arakawa, T. Sakamoto, S. Kobayashi, K. Nakai, T. Takida, M. Kato, M. Kawai and N. Yoshida, *J. Nucl. Mater.* 398 (2010) 87-92.
- [31] H. Kurishita, S. Kobayashi, K. Nakai, T. Ogawa, A. Hasegawa, K. Abe, H. Arakawa, S. Matsuo, T. Takida, K. Takebe, M. Kawai and N. Yoshida, *J. Nucl. Mater.* 377 (2008) 34-40.
- [32] Y. Kitsunai, H. Kurishita, M. Narui, H. Kayano and Y. Hiraoka, *J. Nucl. Mater.* 239 (1996) 253-260.
- [33] 栗下裕明, 橘内裕寿, 桑原鉄也, 長谷川雅幸, 平岡裕, 瀧田朋広, 五十嵐廉, *プラズマ核融合学会誌* 75,5 (1999) 594-603.
- [34] 栗下裕明 「TFGR (Toughened, Fine-Grained, Recrystallized) W-1.1%TiC の課題と取

り組み」共同タンゲステン材料に関する合同研究報告会 核融合科学研究所 2011 年 12 月.

- [35] G. Pintsuk, H. Kurishita, J. Linke, H. Arakawa, S. Matsuo, T. Sakamoto, S. Kobayashi and K. Nakai, *Phys. Scr.* T145 (2011) 014060.
- [36] K. Tokunaga, H. Kurishita, H. Arakawa, S. Matsuo, T. Hotta, K. Araki, Y. Miyamoto, T. Fujiwara, K. Nakamura, T. Takida, M. Kato and A. Ikegaya, *J. Nucl. Mater.* 442 (2013) S297-S301.

第3章 タングステンの水素同位体照射効果

3.1 緒言

本章では、タングステンの水素同位体照射効果について、その理論的な背景と先行研究で明らかになっていることについて述べる。3.2節では、タングステン中の水素同位体挙動の基礎過程について述べた。その基礎過程に基づいて、3.3節にて TMAP7 シミュレーションのモデルについて解説し、3.4節ではその係数およびパラメータについて述べた。また、3.5節では、核融合炉における水素同位体照射条件について説明した。タングステン材料の水素同位体照射効果は先行研究で積極的に調べられており、そのまとめを3.6節で述べた。

3.2 タングステン中の水素同位体挙動の基礎過程

本節では、タングステン材料中における水素同位体の挙動について、その基礎過程を述べる。水素同位体は、タングステン材料表面および内部で、以下の基礎過程を経る。(図 3.1 参照) [1]

- 注入：水素同位体イオンがタングステんに照射され、タングステン結晶中に侵入すること。結晶中の水素同位体は原子状態にあり、格子間に存在している（溶解）。
- 解離：気体状態の水素同位体分子がタングステン材料表面で原子に別れ、タングステン結晶中に侵入すること。
- 拡散：溶解状態の水素同位体原子がタングステン結晶の格子間を通過して移動すること。
- トラップ：溶解状態の水素同位体原子が、格子欠陥などエネルギー準位が低いトラップサイトに捕獲されること。巨視的には、吸蔵されること。
- 脱トラップ：トラップされていた水素同位体原子がトラップサイトから脱離すること。
- 再結合と放出：タングステン材料表面に到達した水素同位体原子が、別の水素同位体原子と結合し、分子としてタングステンから放出されること

3.3 TMAP7 シミュレーションのモデル

本研究では、タングステン中の水素同位体挙動を理論的に理解するために、シミュレーションコードとして TMAP7 (Tritium Migration Analysis Program, version 7) を使用した[1]。TMAP は、1988年にアイダホ国立研究所 (Idaho National Laboratory ; INL) で B. Merill によって最初に開発されたシミュレーションコードである。バージョンアップ版の TMAP4 が更に改良され、最新版の TMAP7 に至った。

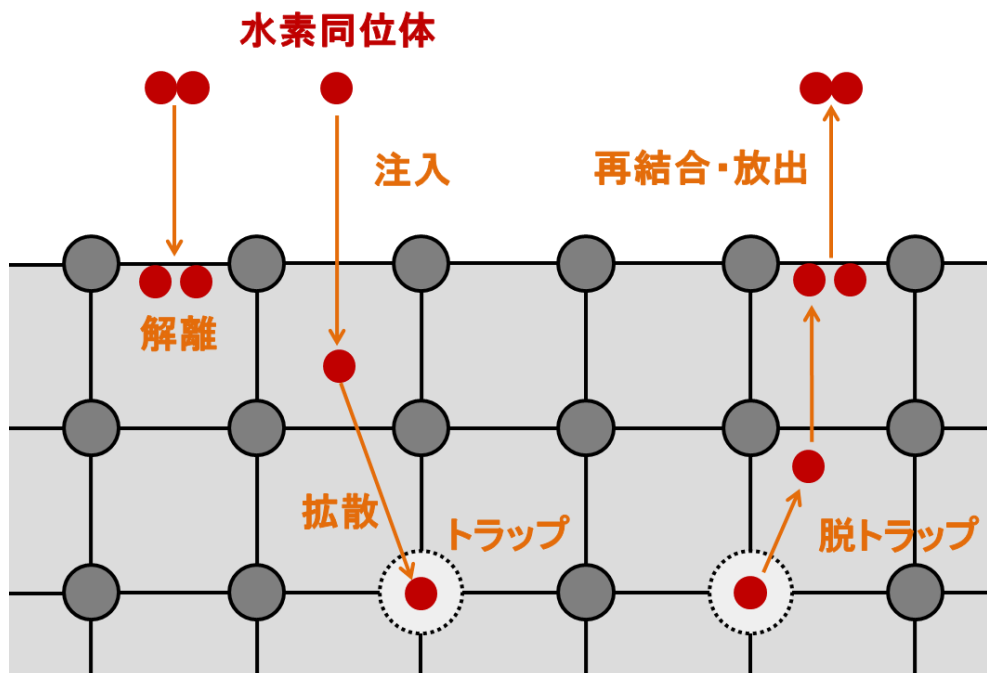


図 3.1 タングステン材料中の水素同位体挙動

本研究では、TMAP7 コードを利用して、タングステン材料からの水素同位体の昇温脱離のシミュレーションや、実験炉 ITER および原型炉内の水素同位体照射環境下でのタングステン材料中の水素同位体蓄積量のシミュレーションを行った。本節では、その TMAP7 コードで用いられている、タングステン材料中の水素同位体挙動のモデルについて解説する[1]。そのモデルでは、タングステン材料を「表面」と「バルク（表面以外の材料内部）」の 2 つの領域に分け、それぞれの領域で前述の基礎過程を考える。深さ x 方向について一次元系を考え、本研究では水素同位体として 1 種類のみ（重水素もしくはトリチウム）を考えた。また、水素同位体の注入はプラズマ照射によって行われるとし、解離は考えていない。

3.3.1 表面での水素同位体挙動のモデル

タングステン材料の表面領域は、タングステン材料の外（真空空間）とバルク領域の境界である。そのため、表面領域における水素同位体の挙動は、バルク領域とは分けて考える必要があり、そこでは真空空間とバルク領域の間で水素同位体の出入りが行われている。数学的には、バルク領域の水素同位体挙動を表す拡散方程式（後述の式(3.2)）の境界条件として記述される。

表面領域において考慮すべき水素同位体の基礎過程は、「解離」「再結合・放出」「拡散」の 3 つである。そのため、表面領域における水素同位体原子の密度変化は、水素同位体原子の粒子数保存の観点から、以下の式で表される。

$$2K_d P - 2K_r C_s^2 + D \frac{dC_s}{dx} = 0 \quad (3.1)$$

K_d : 水素同位体分子の解離定数 [s kg⁻¹ m⁻¹]

P : 材料表面での水素同位体分子の分圧 [Pa]

K_r : 水素同位体原子の再結合定数 [m⁴ s⁻¹]

C_s : 溶解状態にある水素同位体の密度 [m⁻³]

D : タングステン材料中の水素同位体の拡散係数 [m² s⁻¹]

式(3.1)の各項を以下で説明する。

■ 左辺第1項 : $2K_d P$

真空空間に気体状態で存在する水素同位体分子が、タングステン材料表面で2個の水素同位体原子に別れてタングステン材料内部に侵入すること（解離）を表した項である。本研究では、水素同位体のタングステン材料内部への侵入は全て「注入」であるとしたので、水素同位体分子の分圧は考えず（ $P=0$ ）、この項は無視した。

■ 左辺第2項 : $2K_r C_s^2$

タングステン材料表面に存在する2個の水素同位体原子が、お互いに結合し、真空空間へ放出されることにより表面に存在しなくなる（再結合・放出）を表した項である。本研究で使用した再結合定数 K_r については、3.4.1項で後述する。

■ 左辺第3項 : $D \frac{dC_s}{dx}$

タングステン材料中の水素同位体原子がバルク領域を移動して、表面領域に到達すること（拡散）を表した項である。本研究で使用した拡散係数 D については、3.4.2項で後述する。

3.3.2 バルクでの水素同位体挙動のモデル

タングステン材料のバルク領域において、水素同位体原子は、格子間に存在する（溶解状態）かトラップサイトにトラップされている（トラップ状態）。トラップ状態にある水素同位体原子は、巨視的にはタングステン材料に吸蔵・蓄積されている。そのため、バルク領域は、水素同位体の吸蔵・蓄積特性や昇温脱離特性を決定づける重要な領域である。バルク領域での水素同位体挙動は、数学的には拡散方程式で記述される。

バルク領域において考慮すべき水素同位体の基礎過程は、「拡散」「注入」「トラップと脱トラップ」の3つである。そのため、タングステン中の水素同位体の拡散方程式に、注入とトラップ・脱トラップを考慮した、以下の式で表される。

$$\frac{\partial C_s}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C_s}{\partial x^2} + S - \sum_k \frac{\partial C_{tk}}{\partial t} \quad (3.2)$$

S : 溶解水素の生成率 [m⁻³s⁻¹]

C_{tk} : k 番目のトラップサイトにトラップされた水素同位体の密度 [m⁻³]

式(3.2)の各項を以下で説明する。

■ 左辺第 1 項および右辺第 1 項：
$$\frac{\partial C_s}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C_s}{\partial x^2}$$

タングステン材料のバルク領域の水素同位体原子の拡散を、フィックの第 2 法則に基づいて記述した項である。本研究で使用した拡散係数 D については、3.4.2 項で後述する。

■ 右辺第 2 項： S

水素同位体イオンビームやプラズマ照射により、タングステン材料のバルク領域に水素同位体原子が生成されること（注入）を表した項である。注入された水素同位体は、深さ方向 (x 方向) に分布するため、表面領域ではなくバルク領域で考慮する必要がある、式(3.2)で記述される。本研究において、その分布は、SRIM シミュレーションコードにより算出したものを使用した。SRIM コードについては、3.4.3 項で後述する。

■ 右辺第 3 項：
$$\sum_k \frac{\partial C_{tk}}{\partial t}$$

タングステン材料のバルク領域における水素同位体原子のトラップ・脱トラップを表した項である。バルク領域において、水素同位体原子は、溶解状態かトラップ状態のどちらかの状態にある。式(3.2)は溶解状態の水素同位体原子に関する式であるため、トラップは水素同位体原子の消滅として記述されている。ここでは、トラップサイトが k 種類ある場合を考え、それぞれのトラップサイトでトラップされる水素同位体原子の時間変化の和をとっている。本項の詳細は、3.4.4 項で後述する。

3.4 TMAP7 シミュレーションにおける係数とパラメータ

前節の TMAP7 シミュレーションコードのモデルで記述された式(3.1)および式(3.2)を数値的に解くためには、それら式中の項に含まれる係数やパラメータを決定し入力する必要がある。本節では、本研究で使用したパラメータについて解説する。

本節で示した係数は、それぞれ、実験およびシミュレーションによって求められている。本研究では、先行研究[2]に倣ってそれぞれの係数を選定した。また、TMAP7 コードで、水素同位体の昇温脱離挙動や蓄積挙動をシミュレーションする際に最も支配的な過程は、トラップ・脱トラップであるため、後述のトラップエネルギーをパラメータとした。

3.4.1 再結合定数

式(3.1)の右辺第 2 項は、タングステン材料の表面領域において、水素同位体原子が再結合・放出される過程を表した項である。タングステン材料表面における水素同位体原子の再結合定数 K_r は、R.A.Anderl[3]や H.T. Lee[4]によって実験的に求められている。本研究では、先行研究[2]に倣い、R.A. Anderl の実験により求められた再結合定数[2]を使用した。そこでは、再結合定数は以下の式で表される。

$$K_r = 3.2 \times 10^{-15} \exp\left(-\frac{1.16}{kT}\right) \quad [\text{m}^4\text{s}^{-1}] \quad (3.3)$$

k : ボルツマン定数 = 8.63×10^{-5} [eV K⁻¹]

T : 温度 [K]

3.4.2 拡散係数

式(3.1)の右辺第 3 項や、式(3.2)の左辺第 1 項と右辺第 1 項は、タングステン材料中の水素同位体原子が拡散する過程を表した項である。タングステン材料中の水素同位体原子の拡散係数 D については、多数の研究がなされており、それぞれの実験は限られた温度範囲で行われている。そのうち、R.Frauenfelder 氏が行った実験[5]は、1120 K 以上の高い温度で行っており、トラップによる水素の拡散遅延の影響が少ないと考えられる。本研究では、R.Frauenfelder 氏の拡散係数を用いて、その値を低温領域まで外挿した。

$$D = 4.1 \times 10^{-7} \exp\left(-\frac{0.39}{kT}\right) \quad [\text{m}^2\text{s}^{-1}] \quad (3.4)$$

式(3.4)の拡散係数は、軽水素における拡散係数であるため、重水素に変換する必要がある。C.Wert の研究[6]によれば、拡散係数は、拡散する格子間原子（ここでは水素同位体原子）の原子量の平方根の逆数に比例することが分かっている。従って、タングステン材料中の重水素の拡散係数は下式で表され、本研究はこの式(3.5)を使用した。

$$D = 2.9 \times 10^{-7} \exp\left(-\frac{0.39}{kT}\right) \quad [\text{m}^2\text{s}^{-1}] \quad (3.5)$$

3.4.3 SRIM シミュレーションコード

式(3.2)の右辺第 2 項は、水素同位体イオンビームやプラズマから、タングステン材料のバルク領域への水素同位体原子の注入の過程を表した項である。本研究では、注入による水素同位体原子の深さ方向への分布を、SRIM シミュレーションコードで計算した。その分布は、入射粒子のエネルギーによって決まる。

SRIM (the Stopping and Range of Ions in Matter) は、ターゲット材料への入射粒子の飛程を、2 体衝突近似を用いたモンテカルロ法で計算するコンピュータソフトである[6]。理論モデルについては[7,8]に詳しい。SRIM コードは、ターゲット材料への入射粒子の飛程を計算する際に広く利用されている。そこでは、ターゲット材料は非晶質（アモルファス）とし、温度は 0 K と仮定している。トラップサイトの存在は考慮されていない。

3.4.4 トラップ・脱トラップ

式(3.2)の右辺第 3 項は、タングステン材料のバルク領域における水素同位体原子のトラップ・脱トラップを表した項である。式(3.2)では、トラップサイトが k 種類ある場合を考え、 k 番目のトラップサイトにおける水素同位体の密度の時間変化は次式で表される[1]。

$$\frac{\partial C_{tk}}{\partial t} = \alpha_{tk} C_s \left(1 - \frac{C_{tk}}{C_{ok}} \right) - \alpha_{dk} C_{tk} \quad (3.6)$$

C_{tk} : k 番目のトラップサイトにおける水素同位体原子の密度 [m^{-3}]

C_{ok} : k 番目のトラップサイトの密度 [m^{-3}]

α_{tk} : k 番目のトラップサイトのトラップ係数 [s^{-1}]

α_{dk} : k 番目のトラップサイトの脱トラップ係数 [s^{-1}]

ここで、 α_{tk} と α_{dk} は次の式で記述することができる。

$$\alpha_{tk} = N \frac{D}{\lambda^2} \quad (3.7)$$

$$\alpha_{dk} = \nu_0 \cdot \exp\left(-\frac{E_k}{kT}\right) \quad (3.8)$$

N : タングステン材料の数密度 = 6.29×10^{28} [m^{-3}]

λ : 格子定数 = 3.156×10^{-10} [m]

ν_0 : デバイ周波数 = 10^{13} [s^{-1}]

E_k : k 番目のトラップサイトからの脱離エネルギー [eV]

タングステン中の水素同位体のトラップサイトについて、その脱離エネルギーは先行研究で積極的に調べられてきた。タングステン中のトラップサイトは、結晶中の格子欠陥が該当し、空孔・転位・結晶粒界・ボイド・不純物などが挙げられる。これまでの先行研究[2,9,10]で分かっているトラップサイトのエネルギーダイアグラムを図 3.2 に示した。

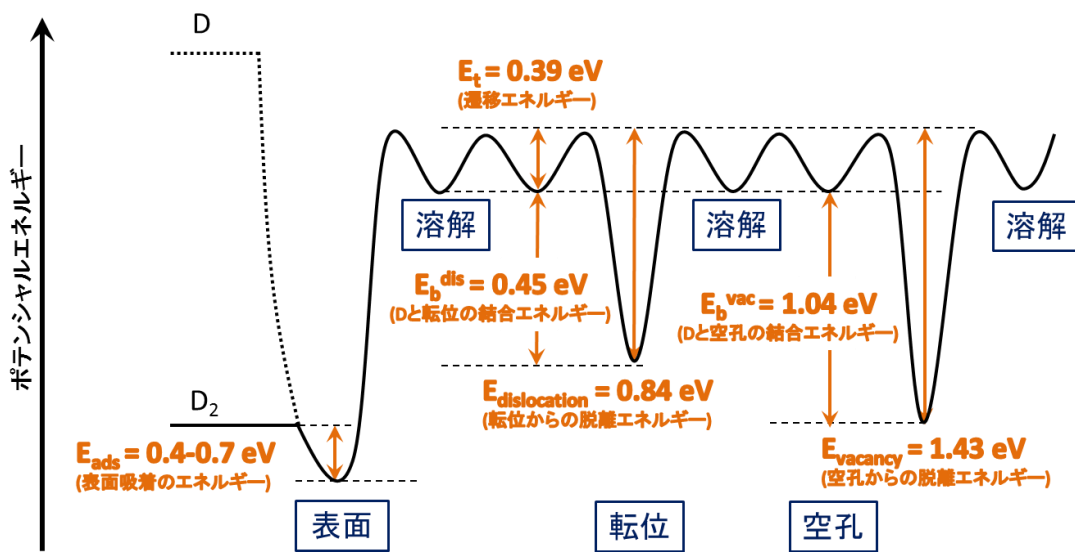


図 3.2 タングステン中の水素同位体のエネルギーダイアグラム [2,9,10]

本研究では、TMAP7 コードを用いて、タングステン試料からの重水素の昇温脱離挙動をシミュレーションした。そこで最も支配的である、トラップサイトからの脱離エネルギー（トラップエネルギー）をパラメータとし、実験結果にフィッティングした。トラップエネルギーを 0.1 eV 単位で変化させて計算を繰り返し、トラップエネルギーを推定した。

3.5 核融合炉における水素同位体の照射条件

本節では、核融合炉において、プラズマ対向壁に水素同位体が照射される時の条件について述べる。本研究では、実験炉 ITER の照射環境を模擬した実験室レベルの照射装置を使用して実験を行っている。また、TMAP7 コードを用いて、実験炉 ITER や原型炉内の水素同位体照射環境下における、タングステン材料中のトリチウム蓄積量もシミュレーションした。本節では、実験炉 ITER や原型炉における水素同位体の照射条件を整理する。

実験炉 ITER や原型炉のプラズマ対向壁が水素同位体照射から受ける負荷は、「粒子負荷」と「熱負荷」に大別される。それぞれの照射条件を以下で述べた。

3.5.1 粒子負荷

水素同位体照射によりタングステン材料が受ける粒子負荷は、4つのパラメータに区別される。以下に、実験炉 ITER の目標の運転条件（エネルギー増倍率 $Q=10$ ）における、それぞれのパラメータの予測値を示す[11-13]。

- エネルギー：照射される水素同位体が持つ運動エネルギーのこと。タングステン材料中でのイオンの注入深さ（飛程）に影響し、式(3.2)の右辺第2項の生成項に関するパラメータである。実験炉 ITER では、1~1000 eV の範囲と予測されている。
- フラックス：単位面積・単位時間あたりに照射される水素同位体の粒子数のこと。式(3.2)の右辺第2項の生成項に関するパラメータである。実験炉 ITER では、 $10^{19} \sim 10^{24} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の範囲と予測されている。
- 照射時間：核融合炉の運転時間のこと。式(3.2)の時間 t に該当するパラメータである。実験炉 ITER の運転終了までの時間は 10^7 秒と予測されている。原型炉の1日の運転時間が6時間とすると、1年分の運転時間は 10^7 秒と想定される。また、照射時間に関連して、単位面積あたりに照射される水素同位体の粒子数（フルエンス=フラックス×照射時間）で評価することもある。
- 照射温度：水素同位体イオンが照射された時のタングステン材料の温度のこと。水素同位体の拡散係数（式(3.5)）と脱トラップ率（式(3.8)）に影響するパラメータである。実験炉 ITER では、500 K~融点超の範囲であると予測されている。

以上のような複雑かつ幅広い条件で、水素同位体はタングステン材料に照射される。そのため、本研究では、複数の実験室レベルの照射装置を組み合わせることで、その幅広い条件を模擬し、実験炉 ITER および原型炉内の照射環境下での挙動を考察している。

3.5.2 熱負荷

水素同位体プラズマが入射すると、タングステン材料は熱負荷を及ぼされる。熱負荷は、定常熱負荷と非定常熱負荷に区別され、非定常熱負荷はさらに3つに区別される。以下に、実験炉 ITER の目標の運転条件（エネルギー増倍率 $Q=10$ ）における、ダイバータのストライク点でのそれぞれの予測値を示す[13,14]。

- 定常熱負荷：全ての運転時間に渡って定常的に入射する熱負荷のこと。実験炉 ITER では、最大で $\sim 10 \text{ MW m}^{-2}$ と予測されている。
- 非定常熱負荷：ある時間間隔で非定常的に入射する熱負荷のこと。閉じ込めプラズマの特定の現象に基づいており、以下の3つに分類される。
 - 緩やかなパルスの熱負荷：突発的なプラズマ攪乱に起因して入射する熱負荷のこと。実験炉 ITER では、 $\sim 20 \text{ MW m}^{-2}$ （10 s 程度）と予測される。
 - ディスラプション：突発的なプラズマ消滅に起因して入射する熱負荷のこと。実験炉 ITER では、 $1\sim 20 \text{ GW m}^{-2}$ （数 ms のパルス幅）と予測される。
 - 周辺局在化モード（Edge Localized Mode ; ELM）：周期的な熱放出現象に起因して入射する熱負荷のこと。実験炉 ITER では、 $0.1\sim 10 \text{ GW m}^{-2}$ （パルス幅 0.1~1 ms）と予測される。

熱負荷を受けた時のタングステンの表面温度は、熱負荷の種類とプラズマ対向材料を含む構造体の冷却構造に強く依存する。実験炉 ITER におけるタングステンダイバータの表面温度を、上記の定常熱負荷と現行のダイバータ構造でシミュレーション計算を行った結果、 $500\sim 1500 \text{ K}$ である[13,15]ことが分かった。しかし、非定常熱負荷（特にディスラプション）によって、実験炉 ITER 運転中に、タングステンの表面温度は融点（ $\sim 3700 \text{ K}$ ）まで上昇することが予測される。前項で述べた照射温度の $500 \text{ K}\sim$ 融点超という範囲は、定常熱負荷と非定常熱負荷の両方を考慮に入れた予測値である。

タングステンの表面溶融は避けるべきであるが、表面温度は融点を超える場合もあるため、その可能性を否定できない。そのため、タングステンの表面溶融の挙動について把握しておくことは、実験炉 ITER やそれ以降の原型炉等の運転方法を定める上で、重要である。本研究では、タングステン材料の溶融・凝固させて、その挙動を調べる実験を行った。

3.6 タングステンの水素同位体照射効果の先行研究

これまで、従来のタングステン材料において、水素同位体照射効果を調べる研究は数多く行われてきた。本節では、それら先行研究で明らかになっている、水素同位体照射効果の実験結果やメカニズムについてまとめる。水素同位体照射効果として、本研究に関係する、水素同位体吸蔵、表面形態変化、溶融・損耗挙動に注目し、それぞれのまとめを次項から述べる。

3.6.1 水素同位体吸蔵の先行研究

本項では、従来のタングステン材料の水素同位体吸蔵特性について述べる。純タングステン（純度 >99%, pure W と表記）について、実験室レベルの水素同位体照射装置を用いて、水素同位体吸蔵特性を調べる研究は数多くなされている。それら先行研究の実験結果をまとめ、以下で述べる。

先行研究では、核融合炉内環境を模擬した実験室レベルの照射装置を用いて、pure W 中の重水素吸蔵量を測定している。それらの結果から、タングステン中の重水素吸蔵量は、前述の 4 つの水素同位体照射パラメータのうち、照射時間（ここではフルエンスで評価する）と照射温度に強く依存していることが分かった。

pure W 中の重水素吸蔵量の照射温度依存性について、図 3.3 にまとめた[16-22]。全体的な傾向としては、低温領域（室温～373 K）に比べ、中温領域（380～673 K）では重水素吸蔵量は増加し、高温領域（>673 K）で減少している。これは、温度上昇に伴い拡散係数（式(3.5)）が増加したことで、重水素原子がタングステンのバルクのより深い領域まで拡散し、トラップされているからだと考えられる。しかし、高温領域になると、脱トラップ係数（式(3.9)）の増加に伴い、重水素原子はトラップサイトにトラップされていても脱離するようになる。

また、重水素吸蔵量のフルエンス依存性について、図 3.3 で示された傾向について述べる。低温領域（室温～373 K）では、フルエンス $10^{23} \sim 10^{26} \text{ D m}^{-2}$ でほぼ同程度の重水素吸蔵量

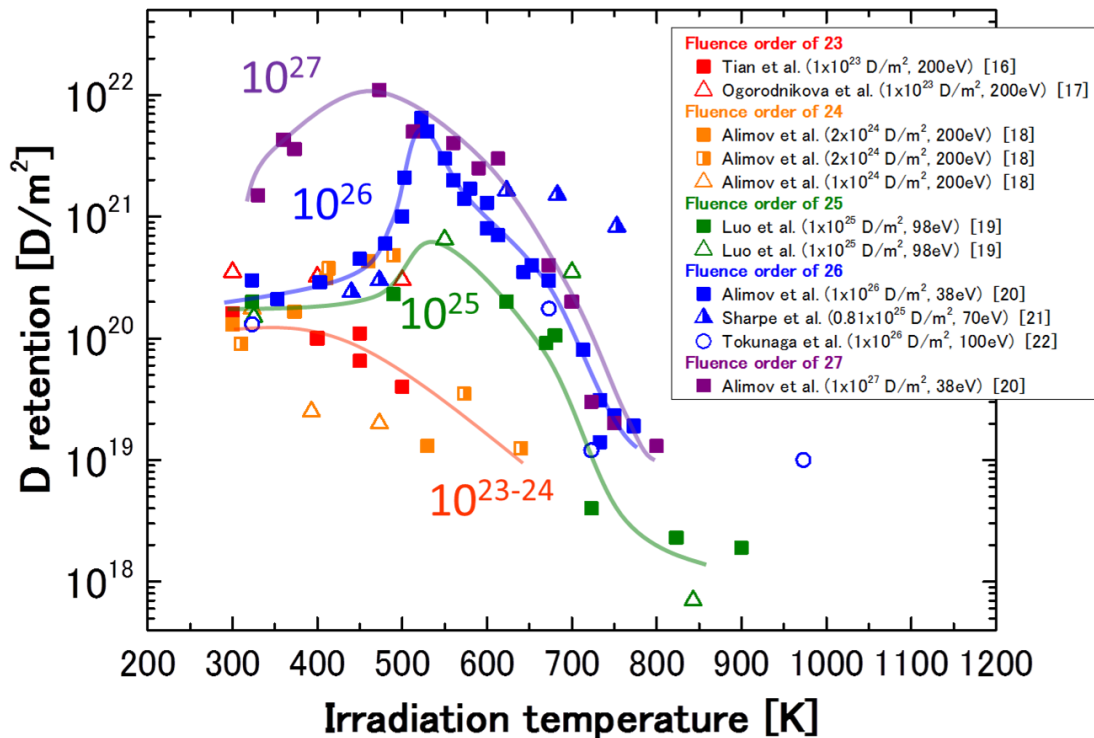


図 3.3 タングステン中の重水素吸蔵量の照射温度依存性 [16-22]

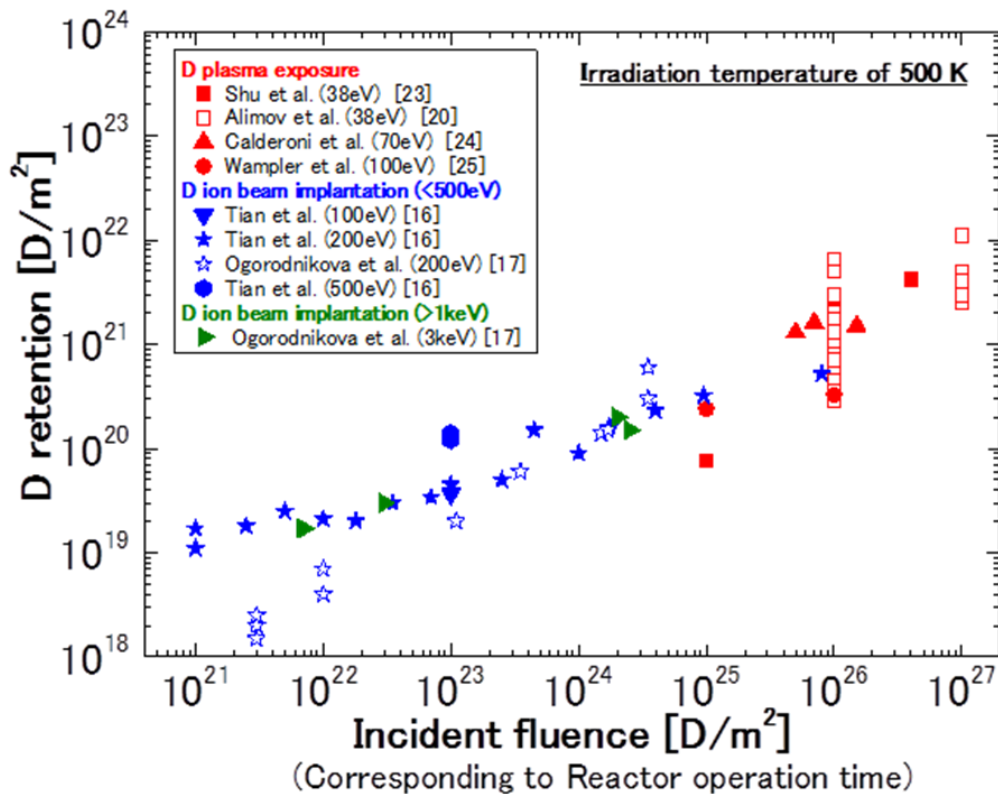


図 3.4 タングステン中の重水素吸蔵量のフルエンス依存性 [16,17,20,23-25]

となっており、この温度範囲では重水素吸蔵量が飽和していることを示唆している。しかし、照射温度が高くなると、中温領域（380～673 K）では、フルエンスが増加すると重水素吸蔵量も増加している。高温領域（>673 K）では、どのフルエンスでも重水素吸蔵量は減少することが分かった。中温領域のフルエンス依存性に着目し、照射温度が 500 K の場合の重水素吸蔵量のフルエンス依存性を図 3.4 に示した[16,17,20,23-25]。ここでは、フルエンスの増加と共に重水素吸蔵量も増加しており、おおよそフルエンスの平方根に比例していることが示された。これは、タングステン中における重水素原子の表面からの拡散距離 d が、フルエンス（照射時間）の平方根に比例していることに起因している[25]。

以上のような傾向に基づき、本研究では、水素同位体吸蔵特性を調べる時には、その照射温度とフルエンスに注意して実験を行った。具体的には、照射温度依存性を調べる実験を行っており、フラックス依存性を調べる際には照射温度とフルエンスを統一することに注意して実験を行った。また、3.5.1 項で述べたように、フルエンスは核融合炉の運転時間に対応しており、運転時間の増加と共にタングステン材料への水素同位体蓄積量も増加すると考えられる。そのため、TMAP7 コードで核融合炉のトリチウム蓄積量のシミュレーションを行う際には、運転時間によるトリチウム蓄積量の発展を調べた。

また、水素同位体吸蔵量は、タングステン材料の微細構造に影響を受けることが分かっている。先行研究[26]では、タングステン材料の熱処理温度を増加させると、重水素吸蔵量が

減少する傾向が示された。これは、熱処理温度の増加に伴い、タングステン材料中のトラップサイト（転位や結晶粒界）の密度が減少していることが起因している。そのため、第2章 2.2.2 項で述べた格子欠陥とその密度を考慮することが、タングステン材料中の水素同位体吸蔵特性を考察する上で非常に重要である。

3.6.2 表面形態変化に関する先行研究

ここでは、従来のタングステン材料の表面形態変化について述べる。純タングステン（純度：>99%、pure W と表記）について、重水素吸蔵実験と同様、実験室レベルの水素同位体照射装置を用いて表面形態変化を調べる研究も数多くなされている。それら先行研究の実験結果をまとめ、以下で述べる。

重水素照射によりタングステンの表面には、ブリスタと呼ばれるミクロンサイズ（ $\sim\mu\text{m}$ ）の突起が発生することが分かっている（図 3.5(a)）[27]。その断面構造を観察すると、ブリスタの直下には、亀裂や空洞が発生していることが確認された（図 3.5(b)）。また、集束イオンビーム装置（Focused Ion beam ; FIB）を使用してブリスタ表面に小孔を作ると、重水素分子ガスが放出されることが分かっている[28]。そのため、ブリスタの形成メカニズムは以下のように考えられている。重水素照射により、タングステン表面近傍の結晶粒内や結晶粒界で高密度に蓄積した重水素原子が、重水素分子を形成して応力（ガス圧）を及ぼし、その応力の緩和現象として亀裂が形成され、タングステン表面にブリスタが形成される（図 3.6）[29]。

また、先行研究[30]によれば、ブリスタが発生するための水素同位体の照射条件は、前述の4つのパラメータのうち、フラックスと照射温度に強く依存していることが分かっている（図 3.7）。図 3.7 に示された通り、フラックス $\sim 10^{22} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ では照射温度 $<700 \text{ K}$ で、

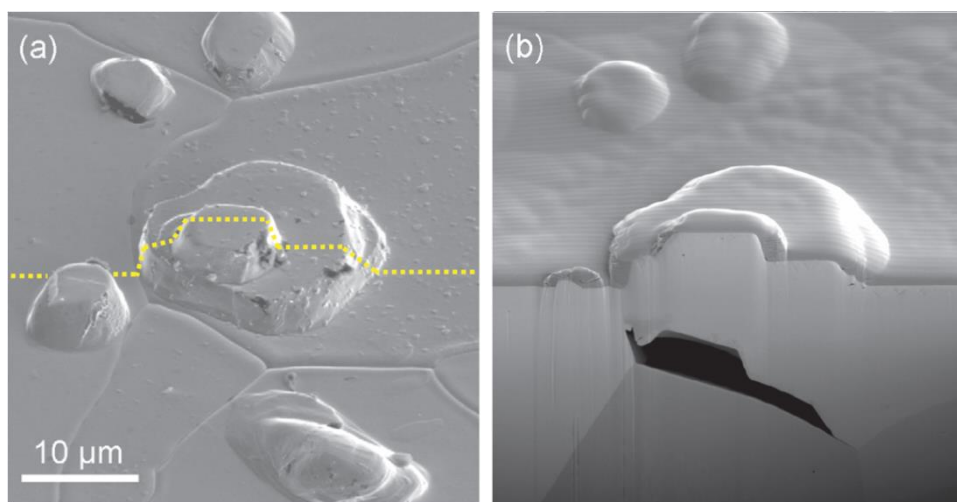


図 3.5 タングステン表面に発生したブリスタ[27]

(a) 表面観察写真 (b) 断面観察写真

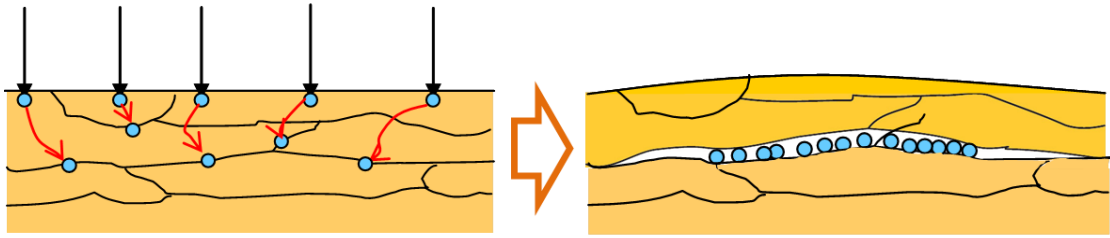


図 3.6 水素同位体照射によるブリスタの形成メカニズム([2,29]より抜粋)

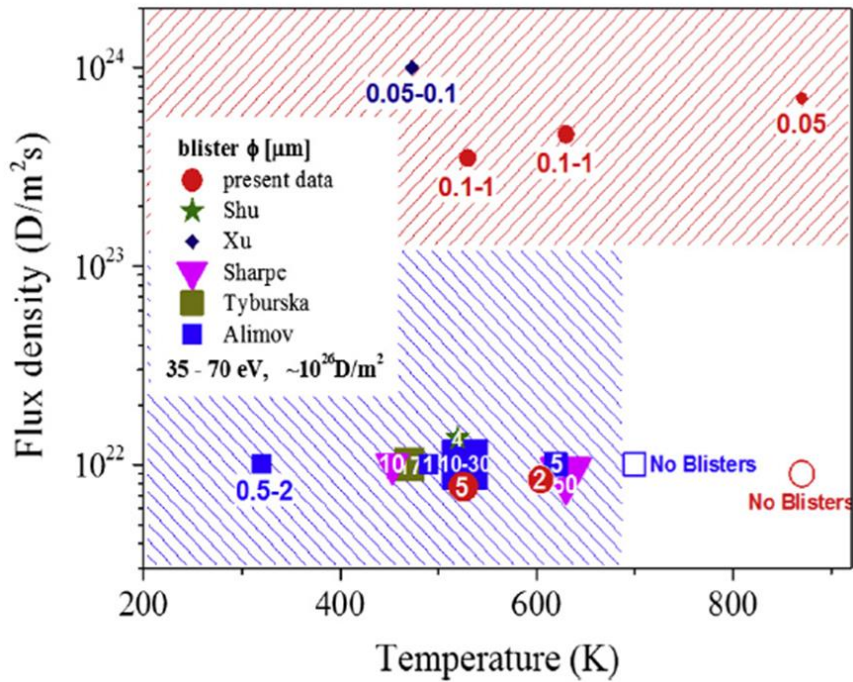


図 3.7 ブリスタが発生するための水素同位体の照射条件 (照射温度とフラックス) [30]

$\sim 10^{24} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ では $< 900 \text{ K}$ で、ブリスタの発生が確認されている。ブリスタの発生のためには、フラックスは少なくとも $10^{22} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、照射温度は高くても 700 K である必要がある。そのため、本研究でタングステン材料の表面形態変化を調べる際には、 $> 10^{22} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ およびそれに匹敵するようなフラックスで照射を行っている。また、照射温度は 573 K に統一し、照射中に 700 K を超えることが無いよう装置の調整を行った。

また、表面形態変化は、タングステン材料の微細構造に影響を受けることが分かっている [2,29]。表面に平行な方向に伸びた結晶粒を持つタングステン材料は、水素同位体照射によりドーム状の比較的大きなブリスタが発生することが確認されている。これは、結晶粒界が表面に平行な方向に伸びており、その結晶粒界に沿うように亀裂が発生していることに起因している。そのため、結晶粒の形状や大きさを考慮することが、タングステン材料の表面形態変化を考察する上で非常に重要である。

3.6.3 表面溶融・損耗挙動に関する先行研究

ここでは、従来のタングステン材料の表面溶融・損耗挙動について述べる。純タングステン（純度： $>99.99\%$, pure W と表記）について、大型トカマクプラズマ装置 TEXTOR で重水素プラズマに曝露し、表面を溶融させる実験が先行研究で行われた[31]。ここでは、その結果についてまとめ、以下で述べる。

先行研究では、pure W を、重水素プラズマに曝露させる実験を行った。pure W はプラズマから $\sim 45 \text{ MW m}^{-2}$ の熱負荷を ~ 5 秒間受け、表面温度は $4000\sim 6000 \text{ K}$ まで上昇した。プラズマ曝露中、pure W 表面からタングステン粒子の放出が確認されており、プラズマへの影響が懸念された。また、プラズマ曝露中に pure W の表面は溶融し、曝露終了後に凝固した。その凝固層の構造は、図 3.8(a)に示した通りで、曝露前の平滑部の高さから数 mm 程度盛り上がっている。凝固層の表面には比較的凹凸が少ない。その断面構造を観察すると、凝固層の中に $100 \mu\text{m}$ 程度の小さな孔が複数確認された。

また、表面溶融・損耗挙動は、タングステン材料の微細構造に影響を受けることが分かっている。先行研究[31]にて、タングステン-タンタル合金 (W-Ta 合金と表記) についても同様のプラズマ曝露実験が行われた。溶融・凝固層を観察すると、表面に亀裂が発生していることが確認された (図 3.8(b))。pure W とは異なる溶融・損耗挙動であり、材料の微細構造の違いが影響していると考えられる。そのため、タングステン以外の不純物の熱的性質を考慮することが、タングステン材料の表面溶融・損耗挙動を考察する上で非常に重要である。

(a) 純タングステン



(b) タングステン-タンタル合金

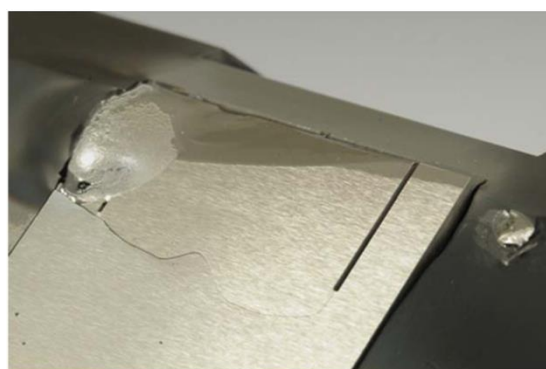


図 3.8 TEXTOR プラズマ曝露後のタングステン試料の表面状態
(a) pure W, (b) W-Ta 合金 ([31]より抜粋)

参考文献

- [1] G.R. Longhurst, “TMAP7: Tritium Migration Analysis Program”, User Manual, Idaho National Laboratory, INEEL/EXT-04-02352 (2006).
- [2] 福本正勝「高エネルギー水素イオンで損傷を与えたタングステン中の水素同位体挙動に関する影響」 大阪大学大学院 博士論文 (2009年).
- [3] R.A. Anderl, D.F. Holland, G.R. Longhurst, R.J. Pawelko, C.L. Trybus and C.H. Sellers, *Fusion Technology* 21 (1992) 745.
- [4] H.T. Lee, H. Tanaka, Y. Ohtsuka and Y. Ueda, *J. Nucl. Mater.* 415 (2011) S696-S700.
- [5] R. Frauenfelder, *Journal of Vacuum Science and Technology* 6 (1969) 388.
- [6] C. Wert and C. Zener, *Phys. Rev.* 76 (1949) 1169.
- [7] J.F. Ziegler, J.P. Biersack and M.D. Ziegler, “SRIM The stopping and ranges of ions in matter”, SRIM Co. (2008), (<http://www.srim.org/>).
- [8] 斉藤誠紀, 河村学思, 井内健介「小特集 周辺プラズマからプラズマ対向材料までのシミュレーションコード・モデルの最前線 4.二体衝突近似・モンテカルロ法によるイオン・固体相互作用シミュレーション」 *J. Plasma Fusion Res.* 86,12 (2010) 690-693.
- [9] A. Van Veen, H.A. Filius, J. De Vries, K.R. Bijkerk, G.J. Rozing and D. Segers, *J. Nucl. Mater.* 155-157 (1988) 1113.
- [10] O.V. ogorodnikova, J. Roth and M. Mayer, *J. Appl. Phys.* 103 (2008) 034902
- [11] R. Behrisch, G. Federici, A. Kukushkin and D. Reiter, *J. Nucl. Mater.* 313-316 (2003) 388-392.
- [12] J. Roth, E. Tsitrone, T. Loarer, V. Philipps, S. Brezinsek, A. Loarte, G.F. Counsell, R.P. Doerner, K. Schmid, O.V. Ogorodnikova and R.A. Causey, *Plasma Phys. Control. Fusion* 50 (2008) 103001.
- [13] R.A. Pitts, S. Carpentier, F. Escourbiac, T. Hirai, V. Komarov, S. Lisgo, A.S. Kukushkin, A. Loarte, M. Merola, A. Sashala Naik, R. Mitteau, M. Sugihara, B. Bazylev and P.C. Stangeby, *J. Nucl. Mater.* 438 (2013) S48-S56.
- [14] 仲野友英「小特集 タングステンダイバータを用いて熱核融合実験を行う 3. ITER でフルタンングステンダイバータを導入するにあたって解決すべき課題とその対策」 *J. Plasma Fusion Res.* 91,3 (2015) 191-196.
- [15] N. Asakura, K. Shimizu and K. Tobita, “Study of Power Exhaust in Edge and Divertor of the SlimCS Demo Reactor”, US-Japan Workshop on Fusion Power Plants and Related Advanced Technologies, UCSD, February 2010.
- [16] Z. Tian, J.W. Davis and A.A. Haasz, *J. Nucl. Mater.* 399 (2010) 101-107.
- [17] O.V. Ogorodnikova, J. Roth and M. Mayer, *J. Nucl. Mater.* 373 (2008) 254-258.
- [18] V.Kh. Alimov and J. Roth, *Phys. Scr.* T128 (2007) 6-13.

- [19] G.-N. Luo, K. Umstadter, W.M. Shu, W. Wampler and G.-H. Lu, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 267 (2009) 3041-3045.
- [20] V.Kh. Alimov, W.M. Shu, J. Roth, S. Lindig, M. Balden, K. Isobe and T. Yamanishi, *J. Nucl. Mater.* 417 (2011) 572-575.
- [21] J.P. Sharpe, R.D. Kolasinski, M. Shimada, P. Calderoni and R.A. Causey, *J. Nucl. Mater.* 390-391 (2009) 709-712.
- [22] K. Tokunaga, M.J. Baldwin, R.P. Doerner, N. Noda, Y. Kubota, N. Yoshida, T. Sogabe, T. kato and B. Schedler, *J. Nucl. Mater.* 337-339 (2005) 887-891.
- [23] W.M. Shu, M. Nakamachi, V. Kh. Alimov, G.-N. Luo, K. Isobe and T. Yamanishi, *J. Nucl. Mater.* 390-391 (2009) 1017-1021.
- [24] P. Calderoni, J. Sharpe, M. Shimada, B. Denny, B. Pawelko, S. Schuetz, G. Longhurst, Y. Hatano, M. Hara, Y. Oya, T. Ohtsuka, K. Katayama, S. Konishi, K. Noborio, Y. Yamamoto, *J. Nucl. Mater.* 417 (2011) 1336-1340.
- [25] W.R. Wampler and R.P. Dierner, *Nucl. Fusion* 49 (2009) 115023.
- [26] A. Manhard 「Dueterium Inventory in Tungsten After Plasma Exposure: A Microstructural Survey」 Augsburg University, Faculty of Mathematics and Natural Sciences, PhD thesis (2011).
- [27] S Lindig, M Balden, V Kh Alimov, T Yamanishi, WM Shu and J Roth, *Phys. Scr.* T138 (2009) 014040.
- [28] M. Balden, S. Lindig, A. Manhard, J.H. You, *J. Nucl. Mater.* 414 (2011) 69-72.
- [29] Y. Ueda, M. Fukumoto, H. Kashiwagi, Y. Ohtsuka, R. Akiyoshi, H. Iwakiri and N. Yoshida 「Effects of simultaneous impurity ion irradiation on tritium behavior near tungsten surface」 9th International Workshop on Hydrogen Isotopes in Fusion Reactor Materials (2008).
- [30] L. Buzi, G. De Temmerman, B. Unterberg, M. Reinhart, A. Litnovsky, V. Philipps, G.V. Oost and S. Möller, *J. Nucl. Mater.*, (2014) 316-319.
- [31] J.W. Coenen, V. Philipps, S. Brezinsek, G. Pintsuk, I. Uytendhouwen, M. Wirtz, A. Kreter, K. Sugiyama, H. Kurishita, Y. Torikai, Y. Ueda, U. Samm and the TEXTOR-Team, *Nucl. Fusion* 51 (2011) 113020.

第4章 実験方法

4.1 緒言

本章では、TFGR-Wの水素同位体照射効果を調べるために行った実験方法について述べる。4.2節で実験手順について述べた。4.3節はタングステン試料について述べた。それらの試料に対して重水素照射を行った実験装置について、4.4節の重水素イオン照射装置と、4.5節のトカマクプラズマへの曝露で説明した。照射・曝露後のタングステン試料について、目的に応じて様々な分析を行った。4.6節では重水素吸蔵量測定装置について、4.7節では表面観察で使用した顕微鏡について、4.8節では表面組成分析装置について説明した。

4.2 実験手順

本研究では、以下の手順で実験を行った。また、その手順を図4.1に図示した。

- ① タングステン試料の準備：TFGR-Wで添加物の異なるTFGR W-1.1wt%TiCとTFGR W-3.3wt%TaCを用意した。比較のため、再結晶化させた純タングステンも用意した。
- ② 重水素照射：試料に対して、イオン照射およびプラズマ曝露を、様々な照射装置や大型トカマク装置を用いて行った。本研究では、水素同位体として重水素を使用した。
- ③ 分析：照射後の試料に対し、吸蔵測定や表面形態観察、表面組成分析を行った。



図 4.1 本研究の実験手順 (タングステン試料・重水素照射・分析)

4.3 タングステン試料

本研究で使用したタングステン試料は、以下の 3 種類である。それぞれの微細構造は図 4.2 に示した。全ての試料は、再結晶化処理を施しており、結晶粒内部の空孔や転位は少ないと考えられる。そのため、水素同位体のトラップサイトは、主に、重水素イオンビームやプラズマ照射の影響が及ぶ領域（数十 μm ）の結晶粒界と添加物であると考えられる。

■ 純タングステン（以下、pure W と呼ぶ）：

アライドマテリアル社製の高純度（99.99%）タングステン材料を使用した。応力除去処理・再結晶化処理として、1573 K で 1 時間の熱処理を行った。片面鏡面研磨の後、さらに 1173 K で 1 時間の熱処理を加え、研磨によって形成された格子欠陥を除去した。試料サイズは 10mm \times 10mm \times t1mm である。図 4.2(a)には、本研究で使用した pure W と同様の熱処理履歴を持つ材料を、走査型電子顕微鏡（SEM）で断面観察した結果を示す[1]。平均結晶粒サイズは \sim 5 μm である。

■ TFGR W-1.1 \sim 1.2wt%TiC（以下、W-TiC と呼ぶ）：

東北大学金属材料研究所で製造され、結晶粒界強化のためにチタンカーバイド（TiC）を重量比 1.1 \sim 1.2%（=原子数比 3.2at.%）だけ添加した材料。pure W 試料同様、片面鏡面研磨の後、さらに 1173 K で 1 時間の熱処理を施した。試料サイズは ϕ 25mm \times t1 mm の 4 分円である。図 4.2(b)には同様の製造履歴を持つ材料を透過型電子顕微鏡（TEM）で観察した結果を示す[2]。平均結晶粒サイズは \sim 1 μm である。

■ TFGR W-3.3wt%TaC（以下、W-TaC と呼ぶ）：

東北大学金属材料研究所で製造され、結晶粒界強化のためにタンタルカーバイド（TaC）を重量比 3.3%（=原子数比 3.2at.%）だけ添加した材料。W-TiC 試料と同様に、片面鏡面研磨、熱処理を施した。試料サイズは ϕ 25mm \times t1mm の 4 分円である。図 4.2(c)には同様の製造履歴を持つ材料を透過型電子顕微鏡（TEM）で観察した結果を示す[2]。平均結晶粒サイズは \sim 1 μm である。

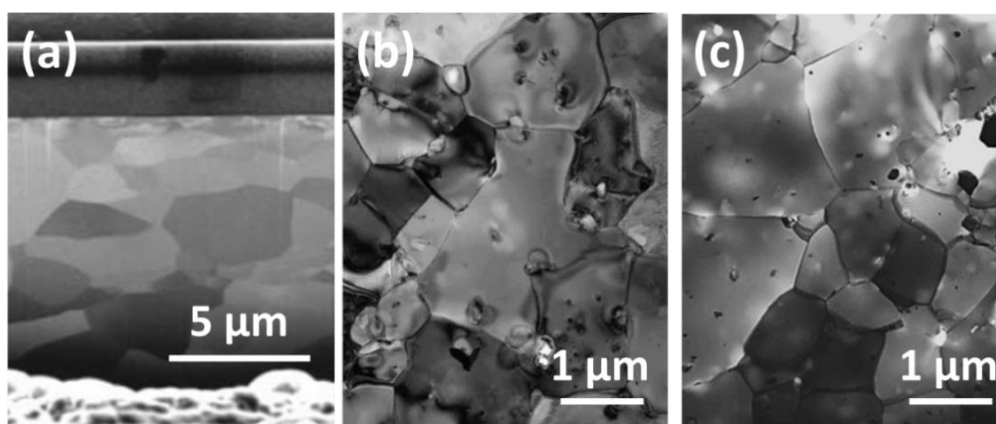


図 4.2 タングステン試料の微細構造

(a) pure W ([1]より抜粋), (b) W-TiC, (c) W-TaC ([2]より抜粋)

4.4 重水素イオン照射装置

前節で述べたタングステン試料について、水素同位体吸蔵特性および表面形態変化を調べるために、重水素の照射を 4 種類の実験室レベルの照射装置を用いて行った（イオンビーム照射装置 1 台、線形プラズマ装置 3 台）。本研究では、大阪大学上田研究室の HiFIT、量子科学技術研究開発機構の線形プラズマ装置（QST）、オランダ基礎エネルギー研究所の Pilot-PSI、カリフォルニア大学サンディエゴ校の PISCES-A を使用した。

4 種類もの照射装置を用いた理由は、実験炉 ITER および原型炉内の水素同位体照射環境が複雑であるためである。プラズマ対向材料であるタングステンは、運転中に、水素同位体プラズマの照射を受ける。その時の照射条件は、実験炉 ITER において、目標の運転条件（エネルギー増倍率 $Q=10$ ）および現行のプラズマ対向機器の構造の場合、入射エネルギー $1\sim 1000$ eV、粒子フラックス $10^{19}\sim 10^{24}$ $\text{m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、表面温度 500 K \sim 融点 (3700 K) 超、という極めて複雑な条件である [3,4]。本研究で使用したそれぞれの実験室レベルの照射装置は、単独ではプラズマ対向壁のある特定領域の照射環境しか模擬できない。そのため、それらを組み合わせることで、実験炉 ITER 内の複雑な照射環境を網羅した。このような実験室レベルの照射装置を使用して、実験炉 ITER やその他の核融合炉の照射環境を模擬することの妥当性は、付録 A にて検討を行っている。

それぞれの照射装置における重水素照射条件を、表 4.1 にまとめた。HiFIT については、第一壁の荷電交換中性粒子の照射環境を模擬した条件（エネルギー 1 keV、フラックス 1×10^{20} $\text{D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ）で、照射時の試料温度 ($473\sim 873$ K) をパラメータとし、それがタングステン試料中の重水素吸蔵に与える影響を調べた。QST については、ダイバータのストライク点周辺（ポロイダル方向に ~ 0.3 m）の照射環境を模擬した条件（エネルギー 50 eV、フラックス 1×10^{22} $\text{D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ）で行った。また、Pilot-PSI については、ダイバータのストライク点の照射環境を模擬した条件（エネルギー 50 eV、フラックス 1×10^{24} $\text{D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ）で行った。QST と Pilot-PSI を比較することで、 $\sim 1\times 10^{24}$ $\text{D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ もの高フラックス照射が、タングステン試料中の重水素吸蔵や表面形態変化に与える影響を調べた。また、PISCES-A については、ダイバータのストライク点周辺（ポロイダル方向に ~ 0.3 m）の照射環境を模擬した条件（エネルギー 100 eV、フラックス 5×10^{22} $\text{D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ）で行い、様々な TFGR-W 試料を用いて、その製造工程の履歴が重水素吸蔵量や表面形態変化に与える影響について調べた。

本研究では、水素同位体として重水素を使用している。実験炉 ITER や原型炉で懸念すべき水素同位体はトリチウムであるが、重水素の化学的性質はトリチウムと同じで、拡散係数は質量の平方根に比例することが確かめられている (3.4.2 項)。そのため、重水素実験からトリチウム挙動を推察することは十分に可能である。

次項から、これらの照射装置の概要と特長を述べる。

表 4.1 各照射装置における重水素照射条件

装置名	HiFIT	QST	Pilot-PSI	PISCES-A
エネルギー	1 keV	50 eV	50 eV	100 eV
フラックス	$1 \times 10^{20} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$	$1 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$	$1 \times 10^{24} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$	$5 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$
フルエンス (照射時間)	$1 \times 10^{24} \text{ D m}^{-2}$ ($1 \times 10^4 \text{ s}$)	$1 \times 10^{26} \text{ D m}^{-2}$ ($1 \times 10^4 \text{ s}$)	$1 \times 10^{26} \text{ D m}^{-2}$ ($1 \times 10^2 \text{ s}$)	$2 \times 10^{25} \text{ D m}^{-2}$ ($4 \times 10^3 \text{ s}$)
温度	473~873 K	573 K	$573 \pm 100 \text{ K}$	573 K

4.4.1 イオンビーム照射装置 HiFIT

大阪大学上田研究室の定常高フラックスイオンビーム照射装置 (High Flux Irradiation Test Device ; HiFIT) は、高エネルギー (1 keV) ・低フラックス ($\sim 10^{20} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$) で重水素イオンを照射することができる装置である[5]。その重水素イオンの照射条件は、実験炉 ITER の第一壁に入射する荷電交換中性粒子を模擬している。本装置を使用して、これまでに様々な軽水素・重水素照射実験が行われた。ここでは、タングステンの水素同位体吸蔵特性や表面形態変化のみならず[6,7]、その高い入射エネルギーを活かしてスパッタリング特性も調べられた。また、水素同位体以外のガス (ヘリウムやアルゴンなど) を混合し、混合イオンビームの照射も可能である。本装置の外観および概念図を図 4.3 に示した[8]。

本装置は、電子サイクロトロン共鳴 (Electron Cyclotron Resonance ; ECR) によりプラズマを点火している。プラズマ端には 3 枚の電極が設置されており、これらに電圧を印加することで、重水素イオンおよびその他の正イオンを引き出すことが可能である。電極の形状により、ビームはタングステン試料付近で集束されるように設計されている。電極に印加する電圧により入射エネルギーを制御している。本研究では、加速電圧は 1 kV に設定した。フラックスの測定系については、まず、ビームの成分は偏向コイルを用いて質量分析を行い、通常時 $\text{D}^+ : \text{D}_2^+ : \text{D}_3^+ = 43 : 20 : 37$ であることが分かっている。次に、カロリメーター (熱量測定) で、先端の銅片の温度上昇からビームのパワー密度を測定し、通常時 $\sim 8 \times 10^3 \text{ W m}^{-2}$ であることが分かっている。これらの測定結果を以下の式に代入し、フラックスの算出を行っている[8]。

$$\Phi = \left[\sum_{N=1}^3 N \cdot x \right] \cdot \frac{P}{e \cdot V_{acc}} \quad (4.1)$$

N : 多原子イオンに含まれる D 原子の数 (例 : D_2^+ なら $N = 2$)

x : 各イオンの割合 ($x < 1$)

P : パワー密度 [W m^{-2}]

e : 電荷素量 = $1.60 \times 10^{-19} \text{ [C]}$

V_{acc} : 加速電圧 [V]

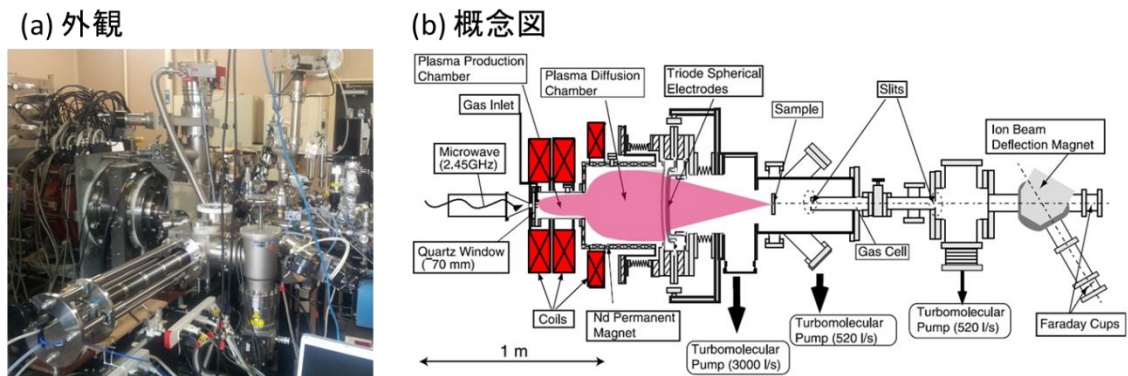


図 4.3 イオンビーム照射装置 HiFIT の (a) 外観, (b) 概念図([5]より抜粋し着色)

タングステン試料の加熱はイオンビーム自身の熱フラックスと、試料背面に設置した赤外線ヒーターを使って行っている。試料の温度は、試料裏面に接触させた K 型熱電対で測定しており、ヒーターでフィードバック制御を行うことで、試料温度を 1 K 単位で調整し保持することができる。試料温度を精度良く制御できるため、本研究では照射時の試料温度をパラメータとした実験を行った。また、ビーム照射部の圧力は、 $\sim 10^{-5}$ Pa である。

本研究では、重水素イオンの照射をエネルギー 1 keV、フラックス $\sim 1 \times 10^{20}$ D m⁻²s⁻¹、フルエンス 1×10^{24} D m⁻²で行った。フルエンス 1×10^{24} D m⁻²に到達するまで、連続的に運転し、その時間は $\sim 10^4$ 秒であった。照射時の試料温度（照射温度）をパラメータとし、473 ~ 773 K の範囲内で、タングステン試料中の重水素吸蔵特性の照射温度依存性を調べる実験を行った。

4.4.2 線形プラズマ装置 QST

青森県六ヶ所村にある、量子科学技術研究開発機構（National Institutes for Quantum and Radiological Science and Technology ; QST）の線形プラズマ装置は、低エネルギー (<100 eV)・高フラックス ($\sim 10^{22}$ D m⁻²s⁻¹)で重水素プラズマを照射することができる[9]。その照射条件は、実験炉 ITER ダイバータのストライク点周辺（ポロイダル方向に ~ 0.3 m）の水素同位体照射環境を模擬している。本装置は、W.M. Shu 氏や V.Kh. Alimov 氏らによって、タングステン中の重水素吸蔵特性や表面形態変化に関する実験が数多く行われてきており[10,11]、タングステンの水素同位体照射効果を調べる装置のうち、国内でも随一の実績を持つ装置である。先行研究では、タングステンの微細構造依存性や照射温度依存性、フルエンス依存性などが研究されてきた[10,11]。本装置の外観および概念図を図 4.4 に示した。

本装置は、アーク放電によってプラズマを点火している。試料に印加するバイアス電圧により入射エネルギーを制御している。本研究では、バイアス電圧は -104 V に設定した。

(a) 外観



(b) 概念図

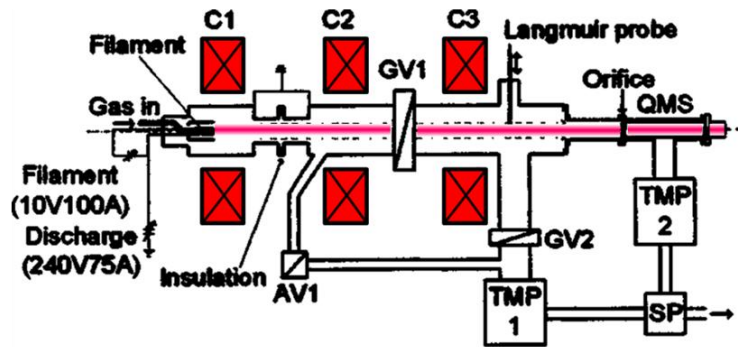


図 4.4 線形プラズマ装置 QST の (a) 外観, (b) 概念図([9]より抜粋し着色)

プラズマ電位が -4 V であることと、重水素プラズマの主成分は D_2^+ イオンであること ($\text{D}^+ : \text{D}_2^+ : \text{D}_3^+ = 10 : 80 : 10$) を考慮すると、入射エネルギーは 50 eV D^{-1} ($= 100\text{ eV} / 2$) である。フラックスは試料および試料ホルダーに流れる電流から算出している。先の調査から電流が 0.65 A の時、フラックス $1.0 \times 10^{22}\text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ であることが分かっているため、以下の式に代入してフラックスを算出した。

$$\Phi = 1.0 \times 10^{22} \cdot \frac{I}{0.65} \quad (4.2)$$

I : 試料および試料ホルダーに流れる電流 [A]

試料の加熱はプラズマ自身の熱で行い、冷却は試料背面からの水冷却で行われる。試料温度の測定は、試料裏面に押し付けられた K 型熱電対により行った。試料温度の調整は、試料と水冷却の熱接触を変化させる (スペーサーの材質・厚さを変える) ことで行っており、 $\pm 10\text{ K}$ 程度の微調整はプラズマ照射中にフラックス値を変更することで行っている。また、プラズマ照射部の圧力は、 $\sim 5 \times 10^{-5}\text{ Pa}$ である。

本研究では、重水素イオンの照射をエネルギー 50 eV 、フラックス $\sim 1 \times 10^{22}\text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、フルエンス $1 \times 10^{26}\text{ D m}^{-2}$ で行った。フルエンス $1 \times 10^{26}\text{ D m}^{-2}$ に到達するまで、連続的に運転し、その時間は $\sim 10^4$ 秒であった。照射時の試料温度 (照射温度) は $\sim 573\text{ K}$ で行っている (pure W では 566 K 、W-TiC では 577 K 、W-TaC では 554 K)。熱平衡状態に達した時 (実験開始後 ~ 10 分経過後)の温度を照射温度とした。照射温度の時間変化は図 4.5 に示す。

4.4.3 線形プラズマ装置 Pilot-PSI

オランダ・ユトレヒトにある、物質基礎研究所 (Foundation for fundamental research On Matter ; FOM) オランダ基礎エネルギー研究所 (Dutch Institute for Fundamental Energy Research ; DIFFER) の線形プラズマ装置 Pilot-PSI (図 4.6) は、低エネルギー ($< 100\text{ eV}$) ・超高フラックス ($\sim 10^{24}\text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$) で重水素プラズマを照射することができる[12]。その照

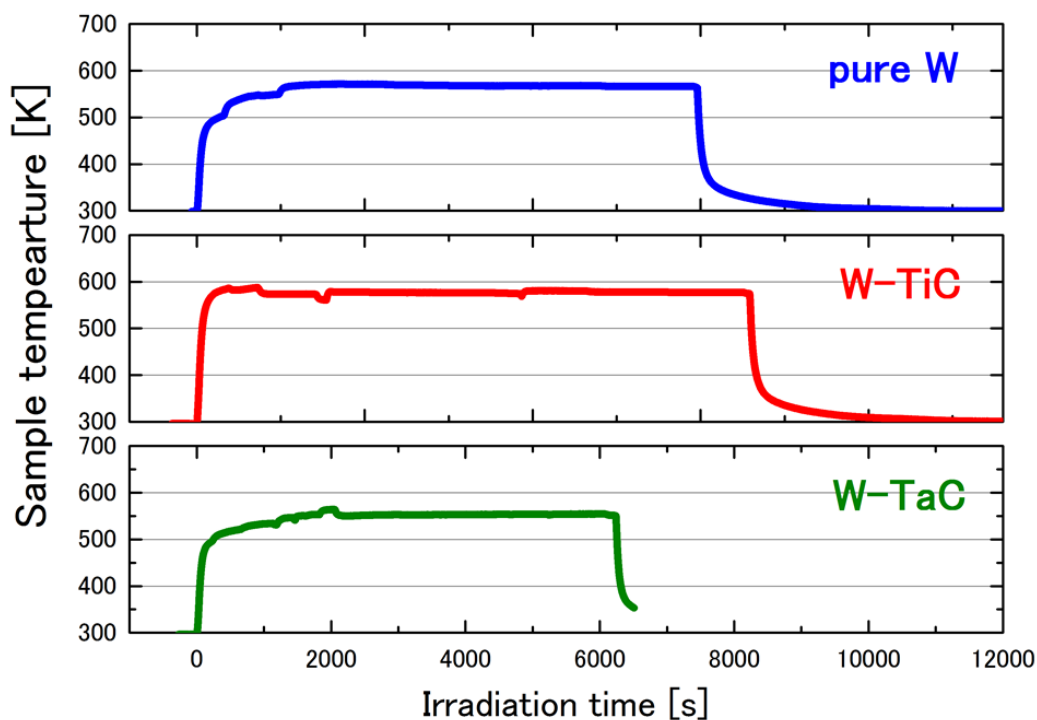


図 4.5 QST 照射時の試料温度の時間変化

射条件は、実験炉 ITER ダイバータのストライク点の水素同位体照射環境を模擬している。本装置は、世界随一の照射フラックスを誇る Magnum-PSI (フラックス $\sim 10^{25} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$) の試験型装置として開発された。Pilot-PSI 自身も、ダイバータのストライク点の照射環境を模擬できる、世界でも有数の装置であるため、近年積極的に利用されており、高フラックス照射や高熱負荷の影響を調べる研究が数多くなされている[13,14]。本装置の外観および概念図を図 4.6 に示した。

(a) 外観



(b) 概念図

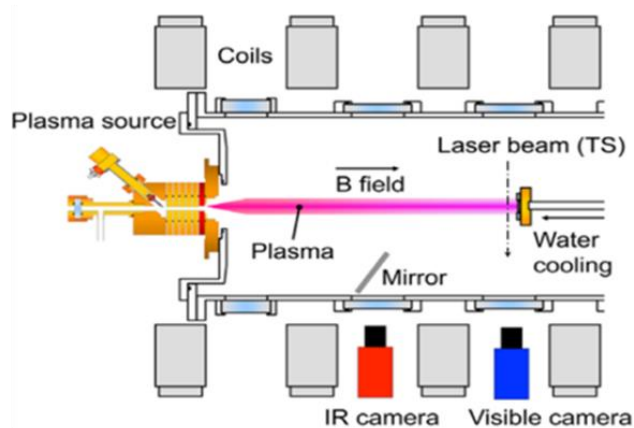


図 4.6 線形プラズマ装置 QST の (a) 外観, (b) 概念図([12]から抜粋)

本装置は、直流アーク放電により、プラズマを点火している。試料に印加するバイアス電圧は 50 V であるため、入射エネルギーは 50 eV である。フラックスの計算は、トムソン散乱を用いてプラズマの電子温度と電子密度を測定し、以下の式に代入した。

$$\Phi = \frac{n_e}{2} \sqrt{\frac{2k_B T}{m_D}} \quad (4.3)$$

n_e : 電子密度 [m^{-3}]

k_B : ボルツマン定数 = 8.62×10^{-5} [eV K $^{-1}$]

T : 電子温度 [K]

m_D : 重水素イオンの質量 [g]

試料の加熱はプラズマ自身の熱によって行い、冷却は試料背面からの水冷却で行った。試料の表面温度は赤外線カメラで測定した。プラズマ照射中、試料温度は上昇を続けるため、所望の試料温度をある程度上回った時点で照射は中断する。そのため、照射を断続的に繰り返し、フルエンスを積算した。このような断続的な照射が、タングステン試料の水素同位体吸蔵特性に与える影響は、付録 B にて検討を行っている。

本研究では、重水素イオンの照射をエネルギー 50 eV、フラックス $\sim 1 \times 10^{24}$ D m $^{-2}$ s $^{-1}$ 、フルエンス 1×10^{26} D m $^{-2}$ で行った。熱平衡状態の試料温度は 573 K を遥かに上回るため、 ~ 673 K を超えた時点で照射を中断した。ある典型的な照射における、照射時の試料温度の時間変化を図 4.7 に示した。10~20 秒程度の照射を繰り返し行い、フルエンスを積算した。フルエンス 1×10^{26} D m $^{-2}$ まで到達するために、合計で $\sim 10^2$ 秒の照射時間を要した。

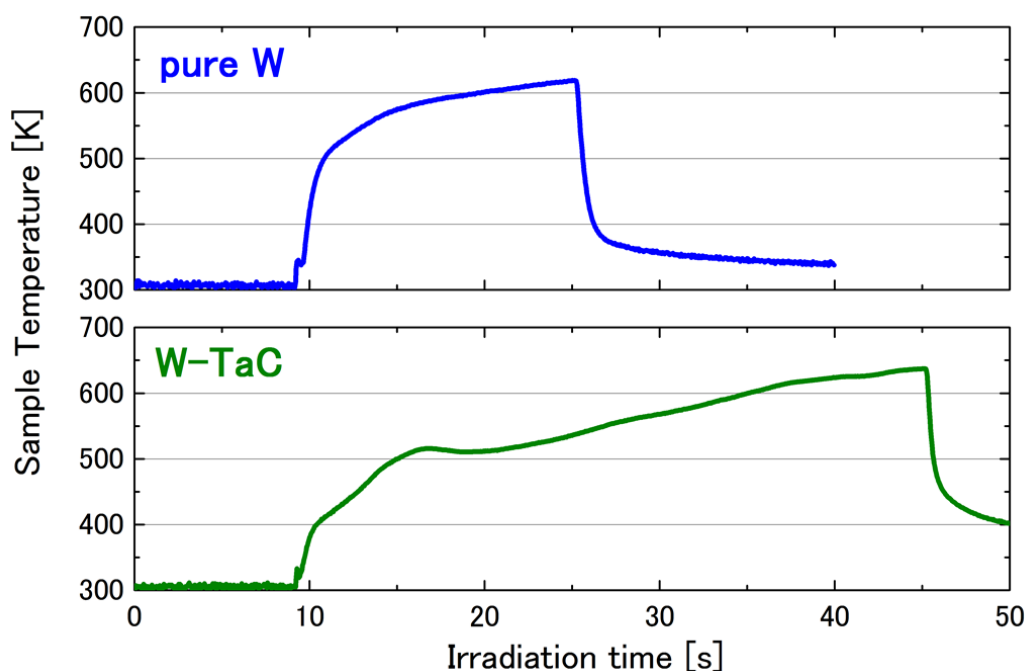


図 4.7 Pilot-PSI 照射時の試料温度の時間変化

4.4.4 線形プラズマ装置 PISCES-A

アメリカ・カリフォルニア州・サンディエゴにある、カリフォルニア大学サンディエゴ校 (University of California, San Diego ; UCSD) の線形プラズマ装置 PISCES-A は、低エネルギー (<100 eV) ・高フラックス ($10^{21}\sim 10^{22} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$) で重水素プラズマを照射することができる[15]。その照射条件は、実験炉 ITER ダイバータのストライク点周辺 (ポロイダル方向に $\sim 0.3\text{m}$) の水素同位体照射環境を模擬している。本装置は、M. Miyamoto や R.P. Doerner によって、タングステン材料中の重水素吸蔵特性や表面形態変化が積極的に調べられてきた[16,17]。本装置の外観および概念図を図 4.8 に示した。

本装置は、アーク放電により、プラズマを点火している。試料に印加するバイアス電圧は -115 V に設定した。プラズマ電位 -15 V を考慮すると、試料への重水素イオンへの入射エネルギーは 100 eV である。フラックスの測定はラングミュアプローブを用いて行い、試料に流れるイオン飽和電流よりフラックスを算出した。試料の加熱はプラズマ自身の熱によって行い、冷却は試料背面からの空気冷却で行った。試料温度の測定は、試料裏面に押し付けられた K 型熱電対により行い、試料温度の調整は冷却空気の流量を調整することで行っている。

本研究では、重水素イオンの照射をエネルギー 100 eV 、フラックス $\sim 5\times 10^{21} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ で行った。フルエンス $2\times 10^{25} \text{ D m}^{-2}$ に到達するまで、連続的に運転し、その時間は $\sim 2\times 10^4$ 秒であった。照射時の試料温度は 573 K で行っている。

(a) 外観



(b) 概念図

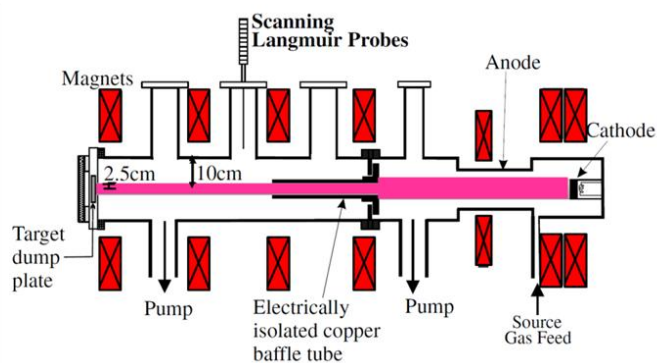


図 4.8 線形プラズマ装置 QST の(a) 外観, (b) 概念図([15]から抜粋し着色)

4.5 トカマクプラズマへの曝露

実験炉 ITER や原型炉におけるプラズマからの過渡的な熱負荷を模擬するために、ドイツ・ユーリッヒ研究開発センターの大型トカマク装置 TEXTOR を用いて実験を行った。TEXTOR では、プラズマ-材料相互作用に関する研究が積極的に行われてきている[18]。

本研究では、リミターロックシステムを利用し、TFGR-W 試料にプラズマ曝露を行った[19,20]。ここでは、東洋炭素社製のグラファイト・リミターを使用し、その傾斜角 36° の屋根部分にモリブデン製のネジで試料を固定した。試料温度を上昇させるため、リミターには冷却機構は備わっていない。リミターは真空容器の下方から挿入され、徐々にコアプラズマに近い方へ上昇させた。試料がプラズマから受ける熱負荷はリミターの位置 r によって決まる。例えば $r=46.2$ cm の場合、トカマクプラズマのスクレープオフ層 (Scrape-off layer ; SOL) に当たり、そこでは試料がプラズマから受ける熱負荷は ~ 45 MW m^{-2} であることが分かっている[18]。本研究では、目標温度に到達するか、試料表面が熔融するまで、リミターの位置調整を行った。(図 4.9)

試料の温度は、赤外線カメラで測定し、試料表面からの不純物の放出は分光計で観測した。TEXTOR における重水素プラズマは、主半径 $R=1.75$ m、小半径 $a=0.47$ m であり、本研究のプラズマパラメータは、プラズマ電流 $I_p=350$ kA、トロイダル磁場 $B_T=2.25$ T、電子密度 $n_e=3.5 \times 10^{19}$ m^{-3} 、中性粒子による加熱パワー $P_{NBI}=1.2$ MW に設定した。本実験のみ、試料のサイズは $\phi 20$ mm \times 2 mm である。

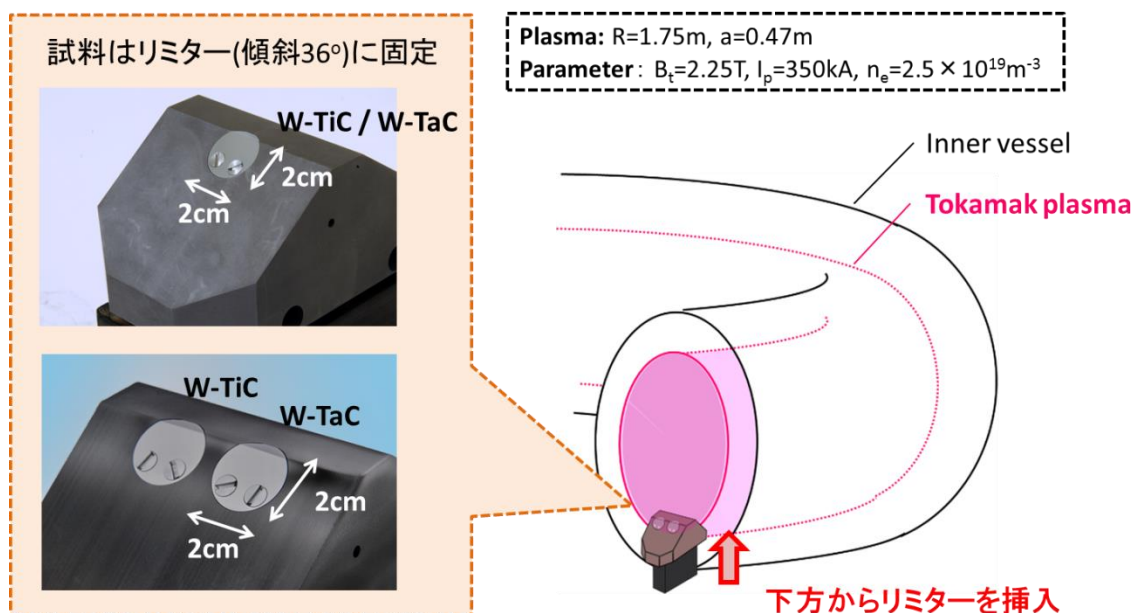


図 4.9 大型トカマク装置 TEXTOR での実験概要

4.6 重水素吸蔵測定

重水素イオン照射およびプラズマ照射後のタングステン試料について、重水素吸蔵量の測定を、核反応法（NRA 分析）と昇温脱離法（TDS 分析）を用いて行った。本研究では、それらの分析装置を使い分け、得られたデータからタングステン中の水素同位体挙動について考察した。NRA 分析ではタングステン試料中に吸蔵された重水素の深さ分布を、TDS 分析ではタングステン試料からの重水素の昇温脱離脱離特性と総吸蔵量を調べるために行った。本節では、それぞれの分析の原理・測定手法・データ解析手法について述べた。

4.6.1 核反応法（NRA 分析）

タングステン試料中に吸蔵された重水素（D）の深さ分布を求めるために、核反応法（Nuclear Reaction Analysis ; NRA）を用いた。NRA 分析とは、入射粒子と標的粒子の核反応によって生成された粒子のエネルギー分布と収量を計測し、試料内部の標的粒子の深さ分布を得る方法である[21-25]。

本研究では、ドイツ・ガルヒンのマックスプランク・プラズマ物理研究所（Max-Planck-Institute for Plasmaphysic）の NRA 分析装置を使用した。核反応として $D(^3\text{He}, \alpha)p$ を利用し、D 照射後のタングステン試料に ^3He イオンビームを照射して、核反応生成物の α 粒子およびプロトンを検出した。図 4.10 にその測定系を示した。

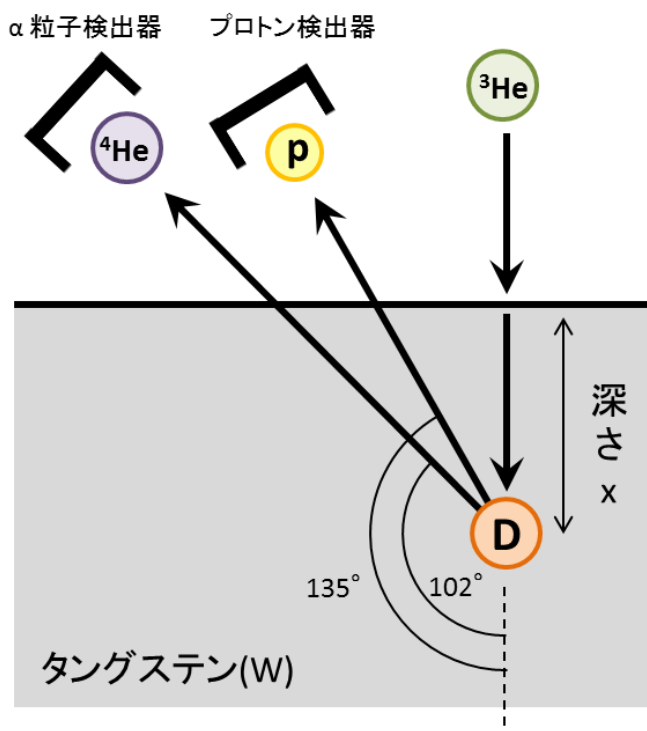


図 4.10 NRA 分析装置の測定系の模式図

NRA 分析の測定原理について、参考文献[21,22]を基に述べる。入射粒子 ${}^3\text{He}$ は、エネルギー E_0 、入射角 0° でタングステン試料に照射される (図 4.10)。試料内部に侵入後、表面から距離 x だけ進む間に ΔE_0 だけエネルギーを失い、エネルギー $E_{in}(x)$ で D と核反応する。エネルギー損失 ΔE_0 は、 ${}^3\text{He}$ に対するタングステンの阻止能 $S_{in}(E)$ を用いて表されるため、 $E_{in}(x)$ は以下のように表される。

$$\begin{aligned} E_{in}(x) &= E_0 - \Delta E_0 \\ &= E_0 - \int_0^x S_{in}(E) dx \end{aligned} \quad (4.4)$$

エネルギー で ${}^3\text{He}$ と D が反応した時、核反応生成粒子 (${}^3\text{He}$ および α 粒子) の角度 θ における放出エネルギーを $E[E_{in}(x), \theta]$ と表すこととする。角度 θ に設置された検出器で検出される前に、核反応生成物はタングステン中を距離 $x/\cos\theta$ だけ進み、その間に ΔE_2 だけエネルギーを失う。エネルギー損失 ΔE_2 は、核反応生成粒子に対するタングステンの阻止能 $S_{out}(E)$ を用いて表されるため、検出器で検出される核反応生成粒子のエネルギー E_d は下式で表される。

$$\begin{aligned} E_d &= E[E_{in}(x), \theta] - \Delta E_2 \\ &= E[E_{in}(x), \theta] - \int_0^{x/\cos\theta} S_{out}(E) dx \end{aligned} \quad (4.5)$$

一方、検出器で検出される核反応生成粒子の収量 $Y(E_0)$ について考える。深さ x と $x + dx$ の間で生じた核反応生成粒子が、微小な検出器立体角 $d\Omega$ で検出された時の収量 dY を考え、それを深さ x および検出器立体角 $d\Omega$ で積分すると、 $Y(E_0)$ は以下の式で表される。

$$Y(E_0) = Q_{He} \int_0^x \int_{\Omega_0} C_D(x) \frac{d\sigma_f(E_{in}(x))}{d\Omega} dx d\Omega \quad (4.6)$$

Q_{He} : ${}^3\text{He}$ ビームの照射フルエンス [m^{-2}]

$C_D(x)$: 深さ x における重水素(D)の密度 [m^{-3}]

$\frac{d\sigma_f(E)}{d\Omega}$: 核反応の微分断面積

以上 3 式から、検出器での核反応生成粒子の収量から、タングステン試料中の D 密度を求めることができる。しかし、これら 3 式において、タングステン中の入射粒子・核反応生成粒子の阻止能は、そのエネルギーに依存する[26]。また、 ${}^3\text{He}$ と D との核反応微分断面積も ${}^3\text{He}$ のエネルギーに依存する[22]。それらの関係は非線形であるため、データの解析は非常に複雑になる[22,26]。そのため、本研究では、吸蔵された D の深さ分布を求めるためのデータ解析にシミュレーションソフト SIMNRA を用いた[27]。ここでは、タングステン試料中の D 密度と深さを入力パラメータとして、測定データである核反応生成粒子の収量

のエネルギー分布をフィッティングした。

また、本研究では、 ^3He イオンの入射エネルギーを変えて行っている (500 keV, 690 keV, 1200 keV, 1800 keV, 2400 keV, 3200 keV, 4500 keV)。それぞれの入射エネルギーは、測定できる D の深さ分解能が異なる。その深さ分解能の決定には、シミュレーションソフト RESOLNRA を使用した[28]。そこで求められた深さ分解能を基に、SIMNRA の入力パラメータである深さ方向の区切り (Layer, 層) を決定した。表 4.2 に本研究で使用した深さ方向の区切りを示した。

また、核反応生成物のうち α 粒子とプロトンでは、測定可能な D の深さ範囲が異なる。タングステン中の阻止能が大きい α 粒子は、タングステン試料の表面近傍の深さ分解能が良いため、本研究では表面から $\sim 0.8 \mu\text{m}$ までの深さ範囲における D 深さ分布を求める時に、その測定データを解析した。また、タングステン中の阻止能が小さいプロトンの場合、 α 粒子よりも深い領域での測定が可能であるため、試料表面から $\sim 8 \mu\text{m}$ までの深さ範囲における D 深さ分布を求める時に、その測定データを解析した。

表 4.2 ^3He の入射エネルギーと深さ方向の区切り

(a) α 粒子の場合		(b) プロトンの場合	
Layer No.	深さ方向の厚さ	Layer No.	深さ方向の厚さ
1	0.000 ~ 0.015 μm	1	0.00 ~ 0.11 μm
2	0.015 ~ 0.174 μm	2	0.11 ~ 1.50 μm
3	0.174 ~ 0.807 μm	3	1.50 ~ 2.53 μm
4	0.807 ~ 1.600 μm	4	2.53 ~ 3.48 μm
5	1.600 ~ 2.548 μm	5	3.48 ~ 5.54 μm
6	2.548 ~ 3.656 μm	6	5.54 ~ 8.07 μm
7	3.656 ~ 4.922 μm		
8	4.922 ~ 6.346 μm		
9	6.346 ~ 7.928 μm		

4.6.2 昇温脱離法 (TDS 分析)

タングステン試料中に吸蔵された重水素の総量の測定には、昇温脱離法 (Thermal Desorption Spectroscopy ; TDS) を用いた。TDS 分析とは、制御された環境で試料を昇温し、試料からの脱離ガスを分析することで、昇温脱離特性を得る方法である[29]。

本研究では、大阪大学上田研究室の TDS 分析装置を用いた。本装置の測定系を図 4.11 に示した。タングステン試料を赤外線加熱することにより、試料から熱脱離したガスは、真空チャンバー内の四重極形質量分析器 (Quadrupole Mass Spectrometer ; QMS) (MKS 製 Microvision 2) を用いて、分子量 (Mass) 毎にその収量が計測される。しかし、収量

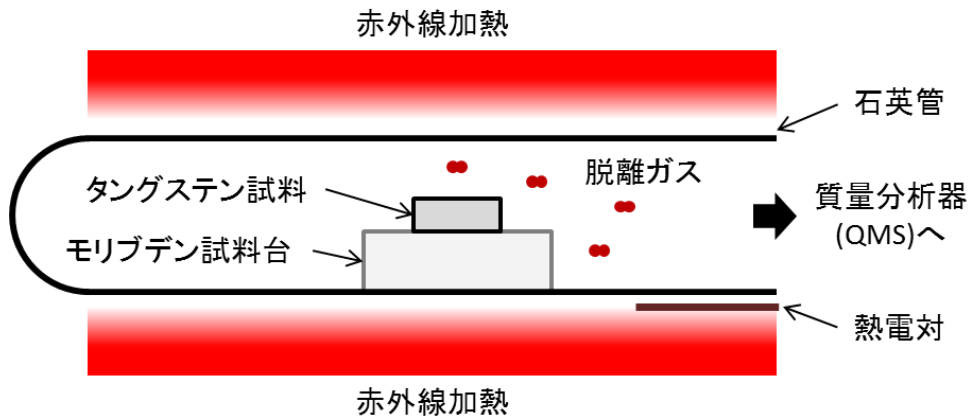


図 4.11 TDS 分析装置の測定系の模式図

は実験室の温度や真空チャンバーの真空度などの実験条件に影響を受けるため、放出ガス量の算出には較正および定量化が必要である。本研究では、流量が絶対較正された重水素分子 (D_2 , Mass4) の標準リークを用いて、較正・定量化を行った。以下では、その解析方法について述べる。

標準リークからの単位時間当たりの重水素分子の放出量が ϕ [$\text{Pa m}^3 \text{s}^{-1}$] で与えられるとする。重水素が理想気体だと仮定すると、気体の状態方程式 $PV = nRT$ から、標準リークから単位時間当たりに放出される重水素の個数 N_{leak} [s^{-1}] は以下の式で与えられる。

$$N_{leak} = \frac{\phi}{RT} \times N_A \quad (4.7)$$

R : 気体定数 = $8.31 \text{ [m}^2 \text{ kg s}^{-2} \text{ K}^{-1} \text{ mol}^{-1}]$

T : 温度 [K]

N_A : アボガドロ定数 = $6.02 \times 10^{23} \text{ [mol}^{-1}]$

単位時間当たりのタングステン試料からの重水素分子の放出量は、その QMS 収量と、重水素標準リークの QMS 収量の比から求められる。

$$N_{D_2} : N_{leak} = P_{D_2} : P_{leak}$$

$$N_{D_2} = \frac{P_{D_2}}{P_{leak}} \times N_{leak} \quad (4.8)$$

N_{D_2} : 単位時間当たりの重水素分子の放出量 [s^{-1}]

P_{D_2} : 試料からの放出される重水素分子の QMS 収量 [a.u.]

P_{leak} : 重水素標準リークの QMS 収量 [a.u.]

式(4.8)から、試料から放出される重水素分子のフラックスは次式で表すことができる。

$$\Gamma_{D_2} = N_{D_2} \times \frac{1}{S} = \frac{P_{D_2}}{P_{leak}} \times N_{leak} \times \frac{1}{S} \quad (4.9)$$

Γ_{D_2} : 単位面積・単位時間当たりに放出される重水素のフラックス [$\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$]

S : 重水素が照射された面積 [m^2]

また、重水素分子以外のガスについて、標準リークは TDS 分析装置に備わっていない。そのため、それらのガスの較正・定量化（単位面積・単位時間あたりに放出されるフラックスの算出）には、QMS における測定感度係数を用いて、次式から求めることができる。

$$N : \frac{\eta}{\eta_{D_2}} N_{leak} = P : P_{leak}$$

$$N = \frac{P}{P_{leak}} \times \frac{\eta}{\eta_{D_2}} N_{leak} \quad (4.10)$$

$$\Gamma = N \times \frac{1}{S} = \frac{P}{P_{leak}} \times \frac{\eta}{\eta_{D_2}} N_{leak} \times \frac{1}{S} \quad (4.11)$$

Γ : 単位面積・単位時間あたりに放出される重水素以外のガスのフラックス [$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$]

η : 重水素分子以外のガスの QMS における測定感度係数

η_{D_2} : 重水素分子の QMS における測定感度係数

以上のようにして求められたフラックスを、測定時間およびその時の試料温度を横軸にとってプロットすると、昇温脱離スペクトル（TDS スペクトル）を得ることができる。ガスの脱離温度はタングステン試料のトラップサイトの脱離エネルギーに対応しているため、脱離温度からトラップサイトの推定を行うことができる。また、昇温脱離スペクトルを時間積分すると、その試料全体に吸蔵された重水素量（重水素総吸蔵量）を算出することができる。

本研究の TDS 分析装置では、昇温速度は 0.1 K s^{-1} で、室温から最大温度 1273 K まで昇温を行った。昇温の際には、石英ガラス管の外側に設置された熱電対で温度を測定し、フィードバック制御を行っている。先の調査で、石英ガラス管の外側の温度と試料温度の差は、最大 20 K であることが確かめられている。また、圧力は $\sim 10^{-7} \text{ Pa}$ である。

図 4.12 に、ある典型的なタングステン試料の昇温脱離スペクトルを示した。試料は W-TiC、D 照射は HiFIT で行い、照射条件はエネルギー 1 keV 、フラックス $\sim 1 \times 10^{20} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 、フルエンス $1 \times 10^{24} \text{ D m}^{-2}$ 、照射温度 573 K で行った。ここでは、重水素系ガスとして、HD、 D_2 、HDO、 D_2O を考えた。HD の QMS 測定感度係数は D_2 (0.35) と H_2 (0.44) の平均を取り 0.395 とし、HDO と D_2O は H_2O の測定感度係数 1 を使用し、データ解析を行った。その結果、タングステン試料中に吸蔵された重水素は、大部分が D_2 として放出されていることが分かった。HD に関しては D_2 の 10% 程度の放出を確認することができたが、HDO および D_2O の放出量は D_2 に比べて極めて少ない。そのため、本研究では、重水素系ガスとして HD の信号と D_2 の信号を考慮した。これ以降では、D 昇温脱離スペクトルおよび D 総吸蔵量は HD と D_2 の和のことを指すこととする。

また、D 照射後試料とは別に、D 未照射の試料の TDS 分析も行っている。その時の昇温脱離スペクトルをバックグラウンドとし、D 照射後試料の昇温脱離スペクトルから減算し、本論文中で結果として示している。

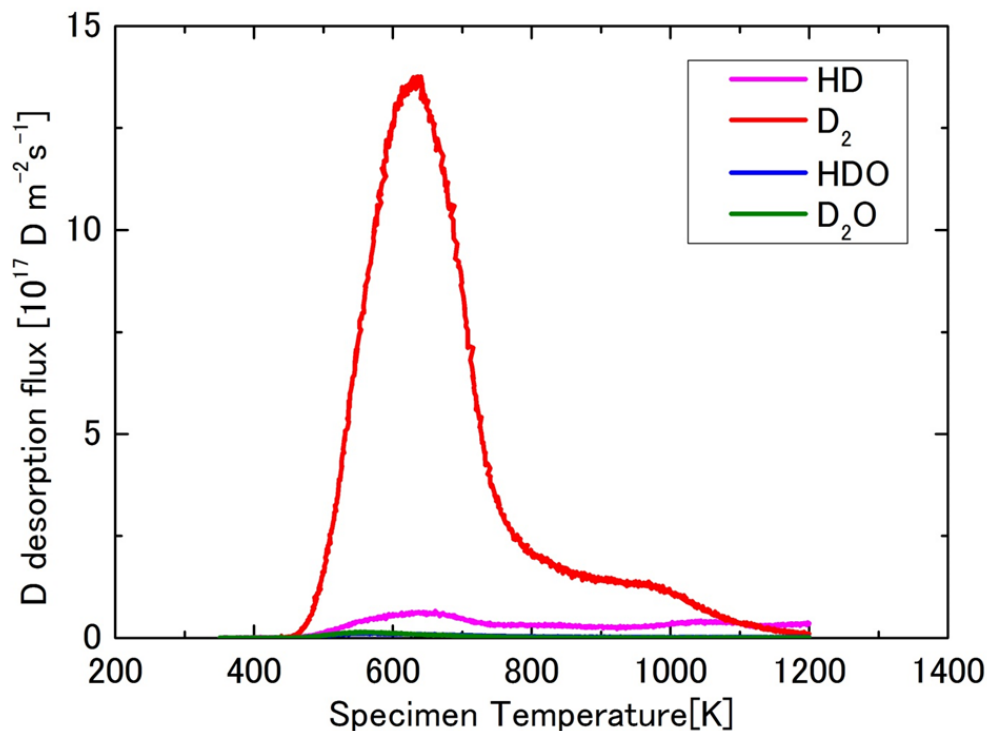


図 4.12 TDS 分析装置で測定した、ある典型的な昇温脱離スペクトル

D_2 と He はともに分子量 4 であり (D_2 は 4.028 amu, He は 4.003 amu)、本研究で使用した TDS 分析装置の QMS では分解能が不足しているため、D と He を分離して検出することはできない。

4.7 表面観察

重水素イオン照射・プラズマ照射後またはトカマクプラズマ曝露後のタングステン試料について、表面の観察を、光学顕微鏡、電界放出型走査電子顕微鏡、透過型電子顕微鏡を用いて行った。本研究では、それらの表面分析装置を使い分け、得られた画像から、タングステンの水素同位体照射効果（表面形態変化と溶融・損耗挙動）について考察した。光学顕微鏡では肉眼で観察できる表面状態をより詳細に観察した。電界放出型走査電子顕微鏡では表面の微細構造の変化を観察した。透過型電子顕微鏡では表面近傍の微細構造の断面観察を行った。本節では、それぞれの分析の原理・手法・特長について述べた。

4.7.1 光学顕微鏡 (OM)

センチメートル (cm) ～ミリメートル (mm) スケールの試料の表面状態を観察するため、光学顕微鏡 (Optical Microscope ; OM) で観察を行った。光学顕微鏡では、試料表面

で反射した可視光をレンズで結像することで、肉眼よりも詳細に試料の表面状態を観察することができる。光学顕微鏡としてデジタル顕微鏡を使用した。デジタル顕微鏡では、撮影した画像をデジタルデータとして保存できるほか、高倍率で撮影した画像を連結することで広い領域を1つの画像に収めることができる。また、表面の粗さプロファイル(>100 μm)の測定も可能である。

本研究では、東北大学金属材料研究所のデジタル顕微鏡（キーエンス製 VHX-2000）を使用した。トカマクプラズマ曝露により、表面が熔融・損耗した試料について、その凝固増の構造や粗さプロファイルを調べるために使用した。

4.7.2 電界放出型走査電子顕微鏡（FE-SEM）

ミクロン（μm）スケールの微細な表面形態を観察するため、電界放出型電子顕微鏡（Field Emission – Scanning Electron Microscope ; FE-SEM）を使用した。FE-SEMでは、試料に電子線（波長~10⁻³ nm）を照射し、試料表面から放出される2次電子を検出し結像することで、試料の微細構造の情報を含んだ画像を得ることができる。2次電子放出の際、試料表面の凹凸に依存してその放出量が増加する（傾斜角効果とエッジ効果、図 4.13）ため、画像のコントラストから凹凸を判断することができる[30]。画像の分解能は、~0.1 nm であるため、光学顕微鏡よりも遥かに詳細な観察を行うことができる。

本研究では、大阪大学片山研究室と東北大学金属材料研究所の FE-SEM 装置(それぞれ、日立製作所製 S-400 と日本電子製 JSM-6010) を使用した。重水素プラズマ照射後のタングステン試料の表面形態変化や、トカマクプラズマ曝露後の試料表面の微細構造の変化を観察するために使用した。

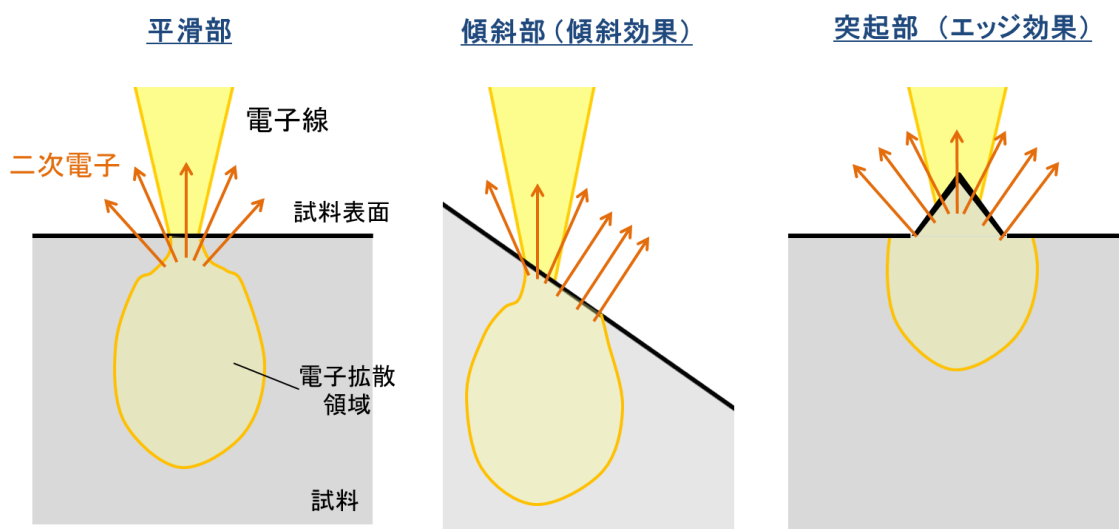


図 4.13 SEMにおける傾斜効果とエッジ効果の模式図

4.7.3 透過型電子顕微鏡 (TEM)

試料の表面近傍における内部の微細構造を観察するために、透過型電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscope ; TEM) を使用した。TEM は、薄い観察試料に対して数十～数百 kV に加速した電子線を照射し、試料との相互作用 (回折・散乱) を受けた電子を検出し結像することで、試料内部の微細構造の情報を含んだ画像を得ることができる。回折は結晶方位に依存してその回折量が変化し (Bragg 反射)、散乱は試料構成元素の重量に依存して散乱量が変化するため、得られた画像から試料内部の微細構造を知ることができる。回折されずに試料を透過した電子による画像を明視野像、回折された電子による画像を暗視野像と呼ぶ[31]。画像の分解能は ~ 0.1 nm であるため、光学顕微鏡よりも遥かに詳細な観察を行うことができる。

本研究では、九州大学応用力学研究所と東北大学金属材料研究所の TEM 装置 (それぞれ、日本電子製 JEM-2000EX II と日本電子製 JEM-2000FX II) を使用した。重水素プラズマ照射後のタングステン試料において、表面近傍の微細構造の断面を観察するために使用した。

TEM でタングステン試料の断面観察を行うためには、試料から観察したい領域の断面を切り出し、それを電子線が透過できる程度に薄膜化する (~ 0.2 μm) 必要がある。このような加工には、九州大学応用力学研究所と東北大学金属材料研究所の集束イオンビーム装置 (Focused Ion Beam ; FIB) (それぞれ、日立製作所製 FB-2100 と FEI 製 Quanta 200 3D) を使用した。加工手順は以下の通りであり [32]、一般にピックアップ法と呼ばれる。

- ① 試料表面の保護 : タングステン試料表面に油性マジックのインクを塗布して (厚さ ~ 0.5 μm のカーボン膜が堆積)、保護膜を作る。試料を FIB 装置に導入した後、更にタングステンカルボニル $\text{W}(\text{CO})_6$ を蒸着して (~ 0.5 μm のタングステン層が堆積)、表面を保護する。(図 4.14(a))
- ② 断面の削り出し : FIB 装置でタングステン試料にガリウム (Ga) イオンビームを照射し、スパッタリングで表面を削る。四方に溝を作り、断面観察ができるような形状に削り出す。(図 4.14(b))
- ③ TEM 観察用ホルダーへのセット : 削り出した断面を、マイクロプローブで表面から取り出し、TEM 観察用ホルダーにセットする。(図 4.14(c))
- ④ 薄膜化 : 再度 Ga イオンビームを照射し、TEM 観察が可能な程度の薄膜 (本研究では厚さ ~ 0.2 μm) にする。(図 4.14(d))

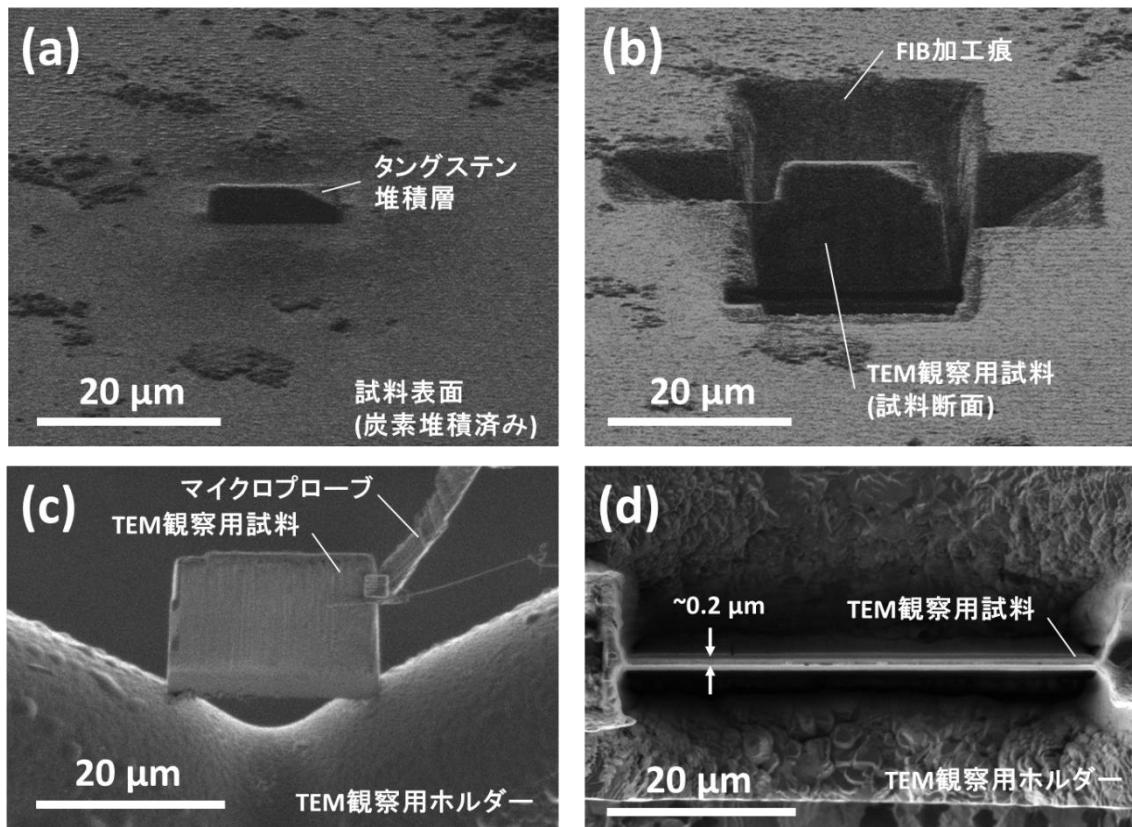


図 4.14 FIB における TEM 試料の作成手順
 (a) 試料表面の保護、(b) 断面の切り出し
 (c) TEM ホルダーへのセット、(d) 薄膜化

4.8 組成分析

試料表面の組成分析は、X線回折法（XRD：X-Ray Diffraction）を用いて行った。XRD 装置では、試料に照射した X 線が、回折された時の角度と強度を測定する。

試料に含まれる結晶に入射した X 線は散乱される。散乱された X 線は干渉し、互いに強め合うことで、特定の方向に回折する。この回折の方向は Bragg の条件によって決定される（図 4.15）。Bragg の条件は、下式で表される[33]。

$$2d \cdot \sin \theta = n\lambda \quad (4.12)$$

d : 結晶面の間隔 [m]

θ : 回折角 [rad]

n : 自然数 = 1, 2, 3, ...

λ : 入射 X 線の波長 [m]

上式において d は、結晶方位 (hkl) と格子定数 a を用いて下式で表される。

$$d = \frac{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}}{a} \quad (4.13)$$

すなわち、X線回折の方向は格子定数に依存するため、XRD測定で得られた回折スペクトルから、試料を構成する化合物の組成を同定することができる。

本研究では、大阪大学森研究室と東北大学金属材料研究所のXRD装置（それぞれリガク製 SmartLab とリガク製 RINT2500V）を使用した。トカマクプラズマ曝露後のタングステン試料について、熔融・凝固層の表面組成を調べるために使用した。

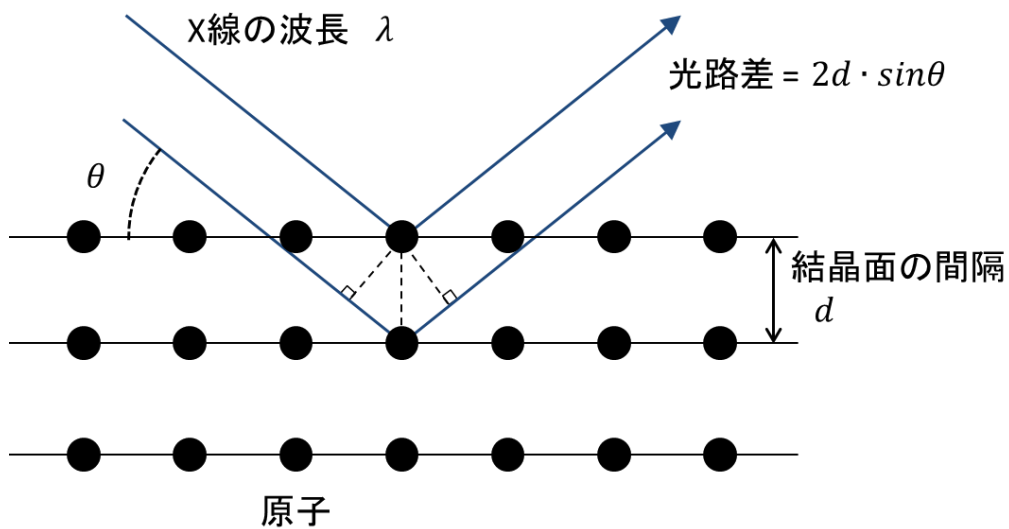


図 4.15 X線回折の原理の模式図

参考文献

- [1] H.T. Lee, E. Markina, Y. Otsuka and Y. Ueda, *Phys. Scr.* T145 (2011) 014045.
- [2] H. Kurishita, S. Matsuo, H. Arakawa, T. Sakamoto, S. Kobayashi, K. Nakai, H. Okano, H. Watanabe, N. Yoshida and Y. Torikai, *Phys. Scr.* T159 (2014) 014032.
- [3] R. Behrisch, G. Federici, A. Kukushkin and D. Reiter, *J. Nucl. Mater.* 313-316 (2003) 388-392.
- [4] R.A. Pitts, S. Carpentier, F. Escourbiac, T. Hirai, V. Komarov, S. Lisgo, A.S. Kukushkin, A. Loarte, M. Merola, A. Sashala Naik, R. Mitteau, M. Sugihara, B. Bazylev and P.C. Stangeby, *J. Nucl. Mater.* 438 (2013) S48-S56.
- [5] Y. Ueda, H. Kikuchi, T. Shimada, A. Sagara, B. Kyoh and M. Nishikawa, *Fusion Design* 62 (2002) 255-261.
- [6] M. Fukumoto, H. Kashiwagi, Y. Ohtsuka, Y. Ueda, M. Taniguchi, T. Inoue, K. Sakamoto, J. Yagyu, T. Arai, I. Takagi and T. Kawamura, *J. Nucl. Mater.* 390-391 (2009) 572-575.
- [7] Y. Ueda, T. Shimada and M. Nishikawa, *Nucl. Fusion* 44 (2004) 62-67.
- [8] 福本正勝「高エネルギー水素イオンで損傷を与えたタンゲステン中の水素同位体挙動に関する研究」大阪大学大学院 (2009).
- [9] G.-N. Luo, W.M. Shu, H. Nakamura, S. O'Hira, M. Nishi, *Rev. Sci. Instrum.* 75 (2004) 4347.
- [10] W.M. Shu, A. Kawasuso, Y. Miwa, E. Wakai, G.-N. Luo and T. Yamanishi, *Phys. Scr.* T128 (2007) 96-99.
- [11] V.Kh. Alimov, W.M. Shu, J. Roth, S. Lindig, M. Balden, K. Isobe and T. Yamanishi, *J. Nucl. Mater.* 417 (2011) 572-575.
- [12] G. De Temmerman, J.J. Zielinski, S. van Diepen, L. Marot and M. Price, *Nucl Fusion*, 51 (2011) 073008.
- [13] Y.Z. Jia, G. De Temmerman, G.-N. Luo, H.Y. Xu, C. Li, B.Q. Fu and W. Liu, *J. Nucl. Mater.* 457 (2015) 213-219.
- [14] G. De Temmerman, J. Daniels, K. Bystrov, M.A. van den Berg and J.J. Zielinski, *Nucl. Fusion* 53 (2013) 023008.
- [15] G. Y. Antar, S. I. Krasheninnikov, P. Devynck, R. P. Doerner, E. M. Hollmann, J. A. Boedo, S. C. Luckhardt, and R. W. Conn, *Physical Review Letter* 87 (2001) 065001.
- [16] R.P. Doerner, M.J. Baldwin, T.C. Lynch and J.H. Yu, *Nuclear Materials and Energy*, 9 (2016) 82-92.
- [17] M. Miyamoto, D. Nishijima, Y. Ueda, R.P. Doerner, H. Kurishita, M.J. Baldwin, S. Morito, K. Ono and J. Hanna, *Nucl. Fusion* 49 (2009) 065035.
- [18] J.W. Coenen, V. Philipps, S. Brezinsek, G. Pintsuk, I. Uytendhouwen, M. Wirtz, A.

- Kreter, K. Sugiyama, H. Kurishita, Y. Torikai, Y. Ueda, U. Samm and the TEXTOR-Team, Nucl. Fusion 51 (2011) 113020.
- [19] B. Schweer, S. Brezinsek, H. G. Esser, A. Huber, Ph. Mertens, S. Musso, V. Philipps, A. Pospieszczyk, U. Samm, G. Sergienko and P. Wienhold, Fusion Science and Technology 47 (2005) 138-145.
- [20] O. Neubauer, G. Czymek, B. Giesen, P. W. Hüttemann, M. Sauer, W. Schalt and J. Schruoff, Fusion Science and Technology 47 (2005) 76-86.
- [21] 久保田直, 落合謙太郎, 沓掛忠三, 林孝夫, 洲亘, 西正孝, 西谷健夫「核反応分析を用いた TFTR プラズマ対向壁表面近傍の水素同位体分布測定」 J. Plasma. Fusion. Res. 81, 4 (2005) 296-301.
- [22] V.Kh. Alimov, M. Mayer and J. Roth, Nucl. Instr. and Meth. In Phys. Res. B 234 (2005) 169-175.
- [23] D. Dieumegard, D. Dubreuil and G. Amsel, Nuclear Instruments and Methods 166 (1979) 731-445.
- [24] Z. Qin, W.N. Lennard, C-S. Zhang, K. GriÅths and P.R. Norton, J. Nucl. Mater. 264 (1999) 228-233.
- [25] Y.Wang et al. 「Nuclear Reaction Analysis; Particle-Particle Reactions」 in 「Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis 2nd Edition」 Materials Research Society (2010) pp37-165.
- [26] J.F. Ziegler 「HELIUM stopping powers and ranges in all elements」 Pergamon Press. (1977).
- [27] M. Mayer 「SIMNRA User's Guide」 Tech. Rep. IPP 9/113, Garching, 1997, and www.rzg.mpg.de/~mam.
- [28] M. Mayer, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B 266 (2008) 1852–1857.
- [29] P.A. Redhead, Vacuum 12,4 (1962) 203-211.
- [30] 日本電子顕微鏡学会関東支部編「走査型電子顕微鏡 -基礎と応用-」 共立出版株式会社 (1976年) pp117-122.
- [31] 九州大学 超高压電子顕微鏡「透過電子顕微鏡研修 初級コース」 2014年版.
- [32] 日立ハイテクノロジーズ「FIB-2100 簡易操作マニュアル」.
- [33] 早稲田嘉夫, 松原英一郎, 篠田弘造「演習 X線構造解析の基礎 必修例題とその解き方」 内田老鶴圃 (2008年) pp62-64.

第5章 水素同位体吸蔵特性

5.1 緒言

本章では、TFGR-W 中の水素同位体吸蔵特性について述べる。水素同位体吸蔵は、放射性物質であるトリチウムの安全な取り扱いおよび燃料効率の観点から重要であり、実験炉 ITER の水素同位体照射環境で調べる必要がある。その複雑で幅広い照射環境を模擬するため、様々なイオンビーム照射装置やプラズマ照射装置を用いて、フラックスや温度を変化させて実験を行った（フラックス： $10^{20}\sim 10^{22}\text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、表面温度：473～873 K）。本研究では、水素同位体として重水素（D）を用いた。

D イオンビーム照射および D プラズマ照射後の TFGR-W 中の D 吸蔵量を調べた。吸蔵された D の深さ分布および昇温脱離特性を調べる分析を行い、TFGR-W 中の微細構造が水素同位体挙動に与える影響について考察した。その結果を基に、TMAP7 シミュレーションコードを用いて、実験炉 ITER および原型炉でのトリチウム（T）蓄積量の時間発展について予測した。また、核融合反応で生成した 14 MeV 中性子やヘリウム（He）の照射が、TFGR-W 中の D 吸蔵量に与える影響についても調べた。

これらの実験・分析結果から、プラズマ対向材料として TFGR-W を使用する場合の評価について、水素同位体吸蔵特性の観点から述べた。

5.2 実験概要

TFGR-W 試料として、W-TiC 試料および W-TaC 試料を使用した。また、比較のために、pure W 試料も使用した。

それらタングステン試料に対して、大阪大学の定常高粒子束イオンビーム照射装置 HiFIT と量子科学技術研究開発機構の線形プラズマ装置（QST）を使用して、D 照射実験を行った。HiFIT では、実験炉 ITER の第一壁の照射環境（エネルギー1 keV、フラックス $\sim 10^{20}\text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ）を模擬しており、照射時の試料温度（473～873 K）をパラメータとし、それがタングステン試料中の D 吸蔵量に与える影響を調べた。QST については、実験炉 ITER ダイバータのストライク点周辺（ポロイダル方向に $\sim 0.3\text{ m}$ ）の照射環境を模擬した条件（エネルギー50 eV、フラックス $1\times 10^{22}\text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ）で行った。

D を照射した後、D 吸蔵量の測定を核反応法（NRA 分析）および昇温脱離分析（TDS 分析）を用いて行った。NRA 分析では、吸蔵された D の深さ分布を求め、表面付近（0～8 μm ）の D 吸蔵量を求めた。また、TDS 分析では、D の昇温脱離スペクトルを求め、試料全体に吸蔵された D 総吸蔵量を求めた。

TDS 分析の結果について、TMAP7 コードを用いてシミュレーションを行った。そこでは、D の昇温脱離スペクトルをシミュレーションし、タングステン試料に含まれるトラップサイトの脱離エネルギー（トラップエネルギー）を推定した。また、実験炉 ITER や原型炉の水素同位体照射環境下で、TFGR-W を使用した場合の T 蓄積量の時間発展のシミュレーションも、TMAP7 コードを用いて行った。

核融合反応で生成した 14 MeV 中性子や He の照射の影響も調べた。14 MeV 中性子が形成する照射損傷を、高エネルギーの鉄 (Fe) イオンの照射で模擬し、HiFIT で D イオン照射を行った。また、HiFIT で He と D の混合ビームを照射する実験も行った。照射後は、D 総吸蔵量を TDS 分析で測定した。

5.3 吸蔵された D の深さ分布

量子科学技術研究開発機構の線形プラズマ装置（以下 QST と表記）を用いて D プラズマ照射を行った。照射条件は、エネルギー 50 eV、フラックス $\sim 1 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 、フルエンス $1 \times 10^{26} \text{ D m}^{-2}$ 、照射温度 573 K で行った。D プラズマ照射後は、NRA 分析を行い、D 吸蔵量や吸蔵された D の深さ分布を測定した。

図 5.1 には、pure W 試料、W-TiC 試料、W-TaC 試料について、NRA 分析の測定範囲（表面から $\sim 8 \mu\text{m}$ ）における D 吸蔵量を示した。表面から $\sim 8 \mu\text{m}$ における D 吸蔵量は、pure W

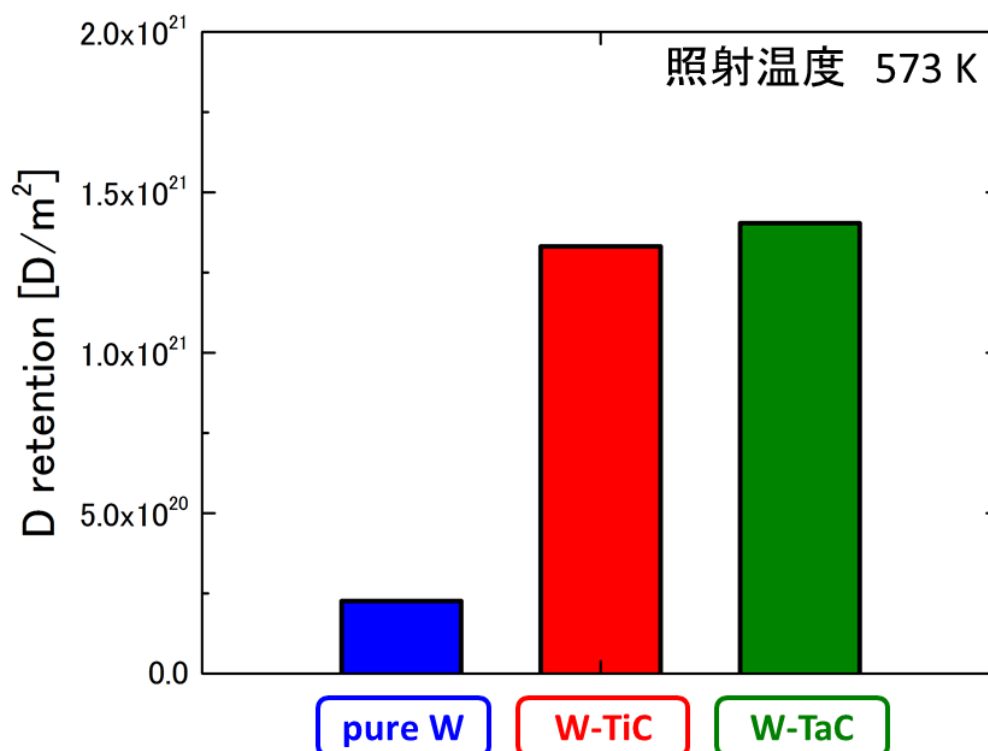


図 5.1 QST 照射後の NRA 分析の測定範囲（表面から $\sim 8 \mu\text{m}$ ）における D 吸蔵量

試料で $2.3 \times 10^{20} \text{ D m}^{-2}$ 、W-TiC 試料で $1.3 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2}$ 、W-TaC 試料で $1.4 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2}$ であった。pure W 試料に比べ、TFGR-W 試料 (W-TiC 試料および W-TaC 試料) の方が D 吸蔵量は桁ほど多いということが分かった。

また、図 5.2 に、各試料における吸蔵された D の深さ分布を示す。実際の D 密度は深さ方向に連続的に変化すると考えられるが、図 5.2 においては、NRA 分析の深さ分解能を考慮し (第 4 章 4.6.1 項)、それぞれの深さ領域における D 密度の平均を示している。pure W 試料の場合、表面近傍の深さ $0.0 \sim 0.1 \mu\text{m}$ の D 密度は $8 \times 10^{-1} \text{ at.}\%$ で、それ以深は減少している。表面から深さ $0.1 \sim 1.5 \mu\text{m}$ の領域では $\sim 6 \times 10^{-2} \text{ at.}\%$ になり、 $1.5 \mu\text{m}$ 以深の領域では $\sim 2 \times 10^{-2} \text{ at.}\%$ でほぼ一定の値を取ることが分かった。TFGR-W 試料では、表面近傍の深さ $0.0 \sim 0.1 \mu\text{m}$ こそ pure W 試料と同等である (W-TiC 試料は $9 \times 10^{-1} \text{ at.}\%$ 、W-TaC 試料は $7 \times 10^{-1} \text{ at.}\%$) が、 $0.1 \mu\text{m}$ 以深の D 密度は $\sim 2 \times 10^{-1} \text{ at.}\%$ でほぼ一定の値を取る。

pure W 試料でも TFGR-W 試料でも、表面近傍 ($0.0 \sim 0.1 \mu\text{m}$) に吸蔵された D の密度は高い。 50 eV で照射された D の注入深さは、SRIM コードで $\sim 2 \text{ nm}$ と計算され、表面近傍の深さ範囲 $0.0 \sim 0.1 \mu\text{m}$ に収まる。そのため、QST でのフラックス $\sim 1 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ の D 照射によって、試料表面近傍で D が高密度になり、トラップサイトが形成されていると考えられる [1-3]。その形成メカニズムは明らかにはなっていないが、照射時間や試料の微細構造が影響している可能性が考えられる。また、試料は通常真空容器で管理し、タングステンと比較的酸化しにくいいため、表面酸化層の影響は小さいと思われる。

これに対し、どのタングステン試料でも、 $1.5 \mu\text{m}$ 以深の領域では D 密度は一定の値であ

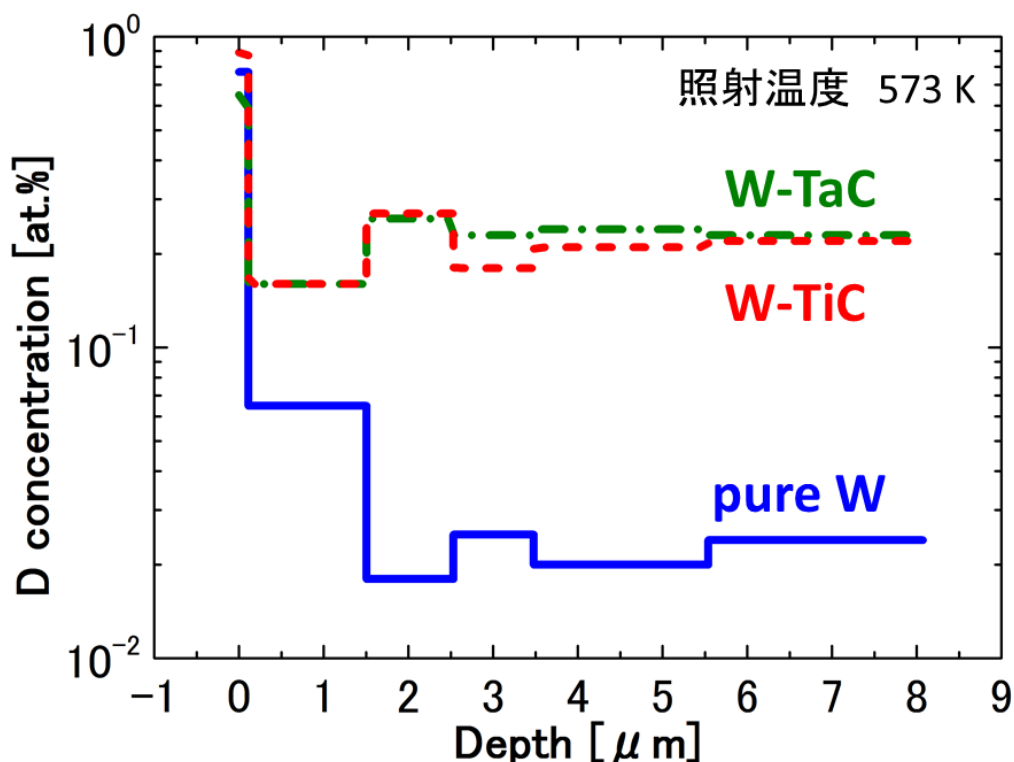


図 5.2 QST 照射後の各試料における吸蔵された D の深さ分布

る。この深さ領域は D の注入深さ (~2 nm) よりも深く、D は注入された後に密度勾配に従ってこの深さ領域まで拡散したと考えられる。そのため、D 照射によるトラップサイトの形成は起こっていないと考えられ、試料に潜在的に含まれるトラップサイト (固有欠陥) に D はトラップされていると考えられる。D 密度が一定の値を示すということは、トラップサイトが D で満たされている、すなわち D で飽和していることを示唆していると考えられる。そのため、この深さ領域での D 密度が、各試料のトラップサイト密度 N_t と等しいと仮定すると、TFGR-W 試料中のトラップ密度 N_t は pure W 試料の ~10 倍である (N_t は、pure W 試料で $\sim 2 \times 10^{-2}$ at.%, W-TiC 試料で $\sim 2 \times 10^{-1}$ at.%, W-TaC 試料で $\sim 2 \times 10^{-1}$ at.%)。図 5.1 にて TFGR-W 試料の D 吸蔵量は pure W 試料よりも多いことが示されているが、これは、TFGR-W 試料のトラップサイト密度が高いことに起因していると考えられる。

5.4 吸蔵された D の昇温脱離特性

前節では、TFGR-W 試料の D 吸蔵量は pure W 試料よりも多く、それはトラップサイト密度が高いことに起因していることが示された。本節では、TFGR-W 試料中に含まれるトラップサイトの種類を調べるために、QST で D 照射後に TDS 分析を行った結果について述べる。各試料の D の昇温脱離スペクトルを、図 5.3 に示す。

pure W 試料のスペクトルは ~700 K にピークを 1 つだけ持つ。これに対し、W-TiC 試料と W-TaC 試料のスペクトルは 2 つのピークがあり、~700 K に大きなピークを 1 つと、

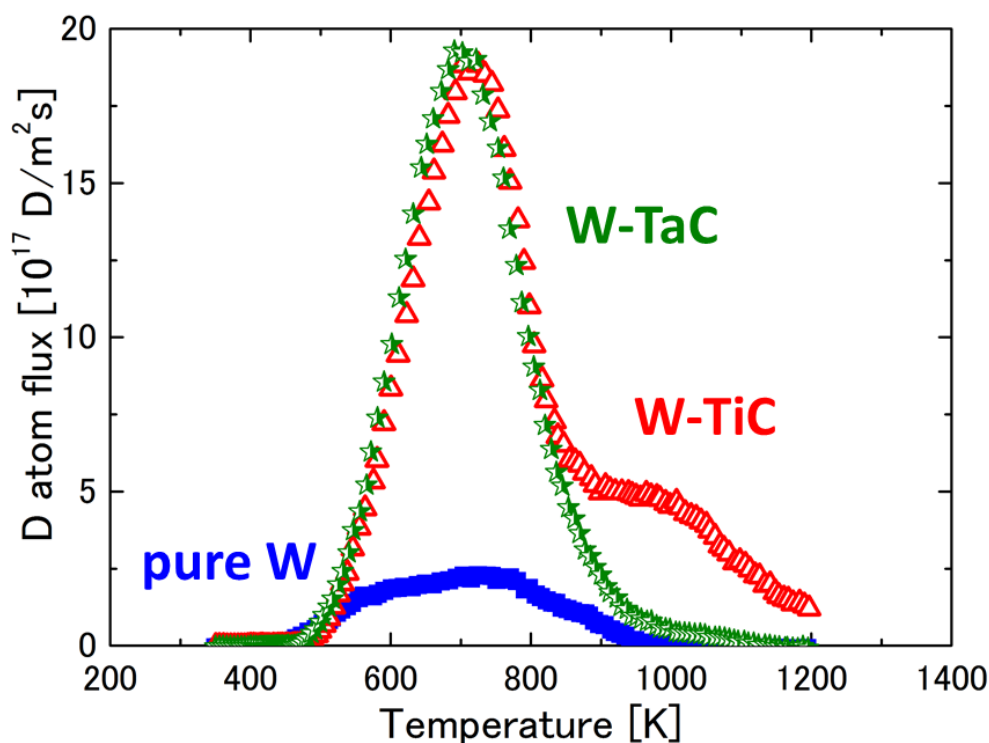


図 5.3 QST 照射後の各試料の D 昇温脱離スペクトル

850~1200 K にブロードなピークを 1 つずつ持つ。TFGR-W 試料の~700 K ピークは、pure W 試料よりも~10 倍高いことが分かる。

図 5.3 の D 昇温脱離スペクトルから、TFGR-W 試料中に含まれるトラップサイトについて考察する。全ての試料は、再結晶化処理を施しており、結晶粒内部の空孔や転位は少ないと考えられる。そのため、水素同位体のトラップサイトは、主に、結晶粒界と添加物であると考えられる。まず、700 K ピークについては、pure W と TFGR-W に共通して存在し、その高さは TFGR-W 試料の方が大きい。そのため、このピークは結晶粒界にトラップされた D の放出に対応していると考えられる。TFGR-W 試料は pure W 試料に比べて微結晶であるため、結晶粒の境界領域である結晶粒界の密度は高いと考えられる。図 5.4 に結晶粒の立方体モデルを示したが、この場合、結晶粒の表面積比は結晶粒サイズの相似比の逆数となる。pure W 試料の平均結晶粒サイズは~5 μm 、TFGR-W 試料は~1 μm であるため、結晶粒の表面積としての結晶粒界の密度は、TFGR-W 試料の方が 5 倍大きいということになる。つまり、~700 K のピークが pure W 試料に比べて高い理由は、TFGR-W 試料が微結晶であることに起因していると考えられる。

850~1200 K ピークは、添加物にトラップされた D の放出に対応していると考えられる。図 5.5 に、チタンカーバイド (TiC) およびタンタルカーバイド (TaC) の板材 (バルク材)

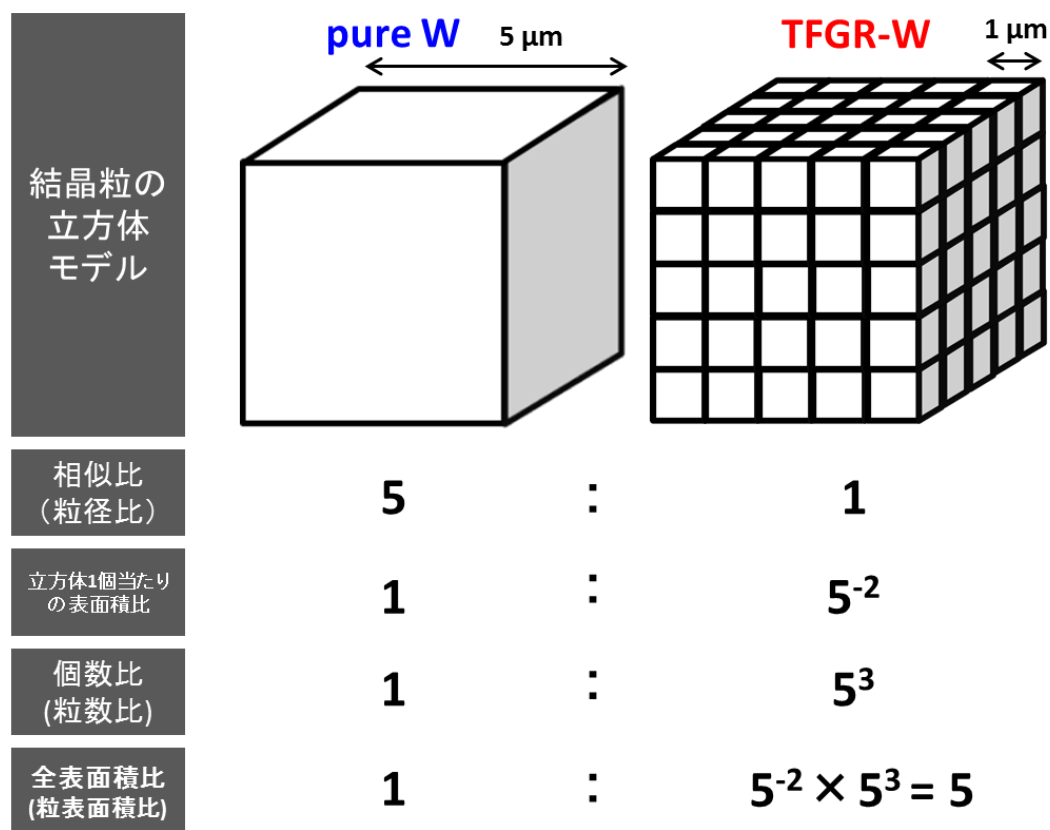


図 5.4 結晶粒の立方体モデルにおける粒径比と表面積比

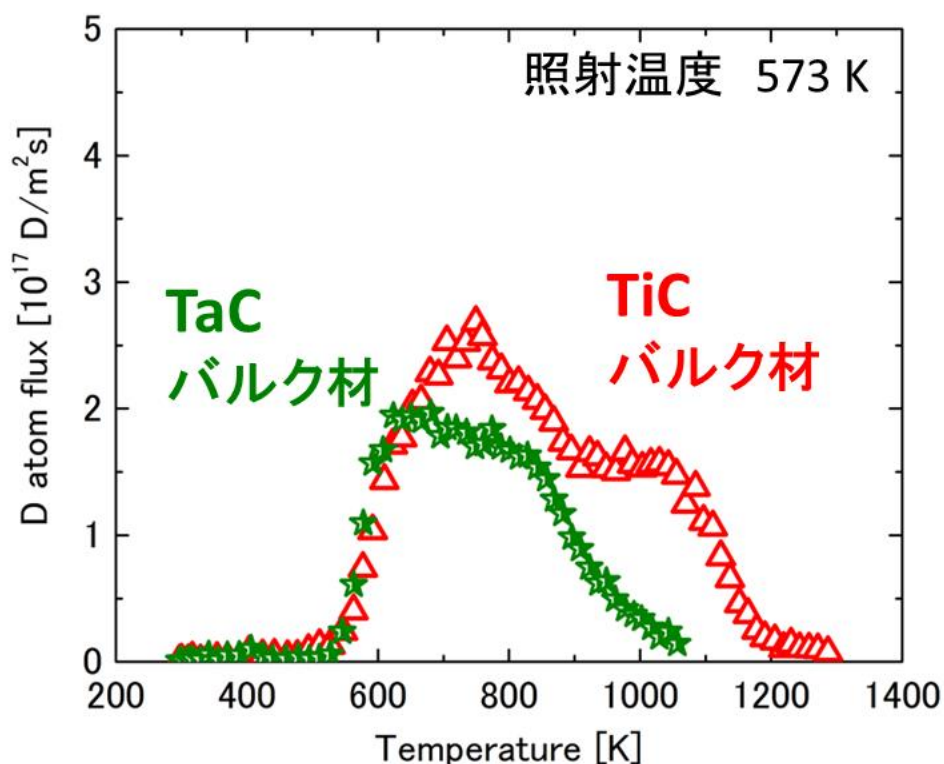


図 5.5 HiFIT 照射後の TiC および TaC バルク材の D 昇温脱離スペクトル

に HiFIT で D 照射を行い、TDS 分析を行った時の D の昇温脱離スペクトルを示した。照射条件は、エネルギー 1 keV、フラックス $\sim 1 \times 10^{20}$ D m⁻²s⁻¹、フルエンス 1×10^{24} D m⁻²、照射温度 573 K で行った。図 5.5 のスペクトルにおいて、850~1200 K の D の昇温脱離挙動が、図 5.3 の TFGR-W 試料のスペクトルに酷似している。このことから、TFGR-W 試料の 850~1200 K ピークは、添加物 TiC および TaC の影響が支配的であると考えられる。また、図 5.5 のスペクトルでは、TiC と TaC のどちらも ~ 700 K にピークを持つ。そのため、図 5.3 の TFGR-W 試料の ~ 700 K のピークも添加物による影響が考えられるが、ここは上記の結晶粒界でのトラップの影響が支配的であると考えられる。

以上のことから、TFGR-W 試料中の微細構造上の特徴である、微結晶性と添加物を含むことが、トラップサイト密度の増加に起因していると考えられる。

5.5 照射温度が D 吸蔵量に与える影響

前節では、TFGR-W 試料に吸蔵された D の昇温脱離特性が示された。図 5.3 で示された温度で D は脱離するため、TFGR-W 試料中の D 吸蔵特性には照射時の試料温度（以下、照射温度と表記する）が影響を与えると考えられる。そのため、大阪大学のイオンビーム装置 HiFIT を用いた実験では、照射温度をパラメータとして D イオン照射を行った。照射条

件は、エネルギー1 keV、フラックス $\sim 1 \times 10^{20} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、フルエンス $\sim 1 \times 10^{24} \text{ D m}^{-2}$ 、照射温度 473~873 K で行った。D 吸蔵量の測定は TDS 分析で行った。TDS 分析により D 昇温脱離スペクトルが得られるが、それを時間積分すると、その試料に吸蔵された D の総量 (D 総吸蔵量) を算出することができる。

5.5.1 昇温脱離特性

図 5.6 に、照射温度が 573 K と 773 K の場合の D 昇温脱離スペクトルを示す。

照射温度が 573 K の場合 (図 5.6(a))、W-TiC 試料および W-TaC 試料のスペクトルは、低温側の $\sim 700 \text{ K}$ に大きなピークと、高温側の 850~1200 K にブロードなピークをもつ。その傾向は、QST 照射の場合 (図 5.3) と同様である。

照射温度が 773 K の場合 (図 5.6(b))、低温側のピークは消滅し、高温側のピークのみ見られる。その理由として、 $\sim 700 \text{ K}$ ピークに対応するトラップサイトにトラップされた D は、照射温度が 700 K を超えると、照射中に脱離してしまうからだと考えられる。これに対し、高温側のピークに対応するトラップサイトにトラップされた D は、照射温度が脱離温度 (850~1200 K) よりも低い温度であるため、照射中に脱離しないと考えられる。このことから、照射温度の上昇により、実効的なトラップサイト密度が減少していると考えられる。また、W-TiC 試料と W-TaC 試料で高温側のピークを比べると、W-TaC の方が低いことが分かる。前節にて高温側のピークは添加物へのトラップに対応していることが示されたが、この場合の TiC 試料と W-TaC 試料の差は、添加物の違いに起因するものと考えられる。すなわち、高温領域での D との親和性は TaC よりも TiC の方が高いと考えられる。

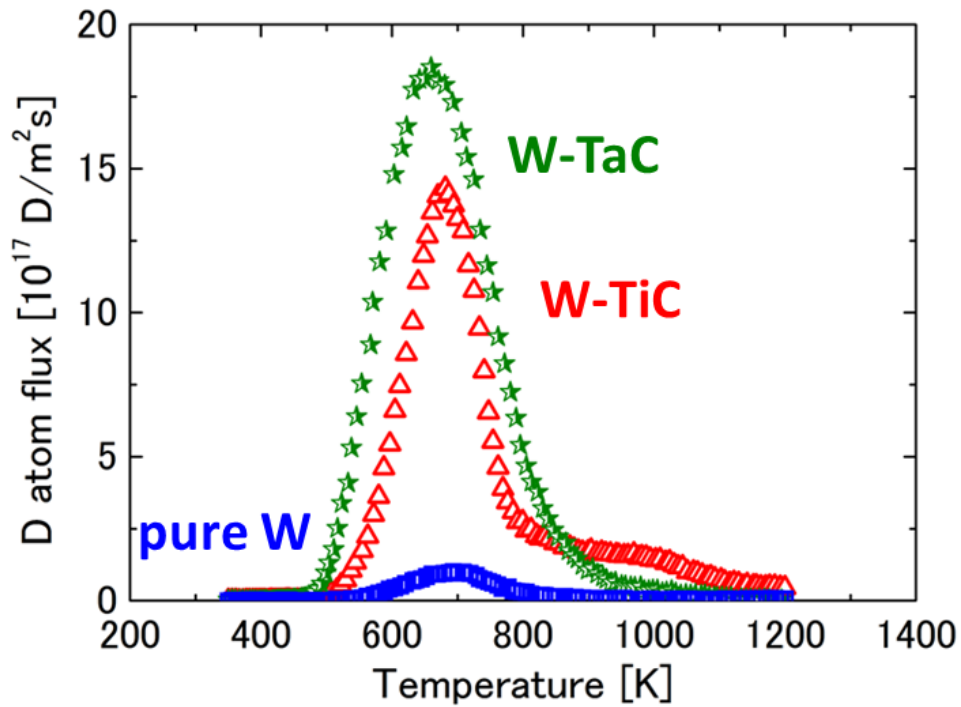
以上のことから、照射温度の上昇により、トラップされる D が減少することが示された。また、それは実効的なトラップサイト密度が減少するからだと考えられる。

5.5.2 D 総吸蔵量の照射温度依存性

図 5.6 の D 昇温脱離スペクトルを時間積分すると、D 総吸蔵量を算出することができ、図 5.7 に D 総吸蔵量の照射温度依存性のグラフを示す。図 5.7 には、図 5.6 で示されていない照射温度の結果 (473 K, 673 K, 873 K) も含んでいる。

TFGR-W 試料中の D 総吸蔵量は、照射温度に強く依存していることが分かった。照射温度 573 K では、TFGR-W 試料の D 吸蔵量は、pure W 試料の 10 倍であり、W-TiC 試料と W-TaC 試料に明確な違いは見られない (pure W 試料では $1.6 \times 10^{20} \text{ D m}^{-2}$ 、W-TiC 試料では $2.2 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2}$ 、W-TaC 試料では $2.8 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2}$)。照射温度を 673 K まで高くしても、TFGR-W 中の D 吸蔵量は依然として多い。しかし、773 K になると、D 総吸蔵量は減少し、TFGR-W 試料の中でも D 吸蔵量に違いが見られ、W-TaC 試料の方が W-TiC 試料よりも D 吸蔵量は少なくなる (W-TiC 試料では $4.8 \times 10^{20} \text{ D m}^{-2}$ 、W-TaC 試料では $7.5 \times 10^{19} \text{ D m}^{-2}$)。これは、前項の図 5.6(b)の昇温脱離スペクトルでも示されているように、W-TaC 試料では高温側のピークが低いことに由来しており、添加物の違いに起因していると考えられる。

(a) 照射温度: 573 K



(b) 照射温度: 773 K

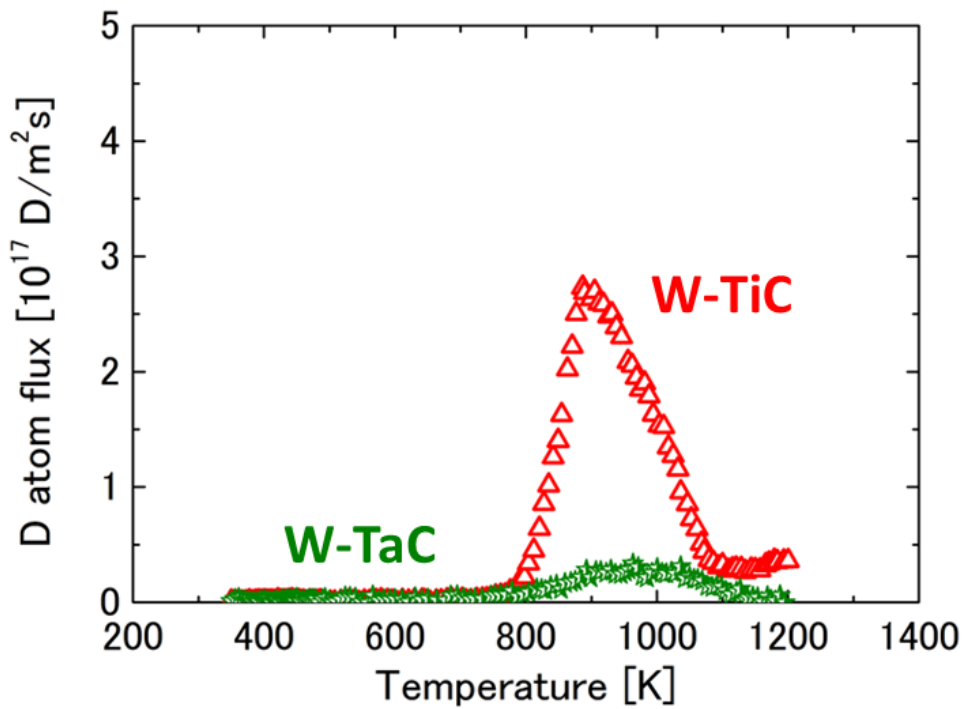


図 5.6 HiFIT 照射後の各試料の D 昇温脱離スペクトル
(a) 照射温度 573 K, (b) 照射温度 773 K

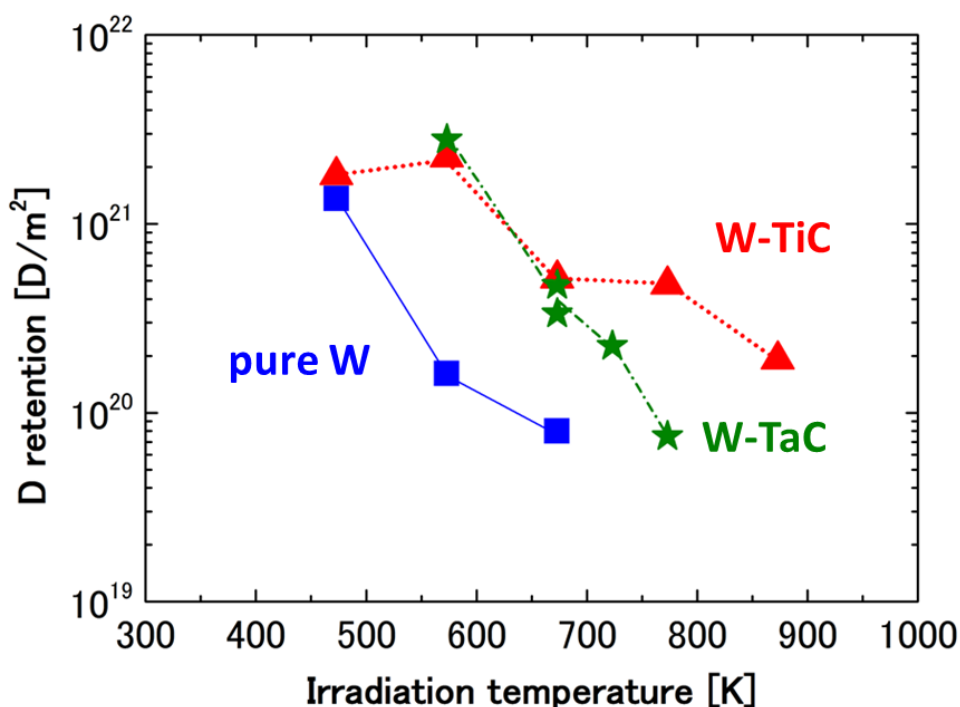


図 5.7 HiFIT 照射後の各試料における D 総吸蔵量の照射温度依存性

ただ、照射温度 473 K の場合には、pure W 試料と W-TiC 試料の D 吸蔵量はほぼ同程度である (pure W 試料では $1.4 \times 10^{20} \text{ D m}^{-2}$ 、W-TiC 試料では $1.8 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2}$)。これは、エネルギー 1 keV の D イオン照射によるトラップサイトの形成が影響していると考えられる。D イオンを高いエネルギーで照射すると、D 注入深さ領域付近のタングステン原子がはじき出され、トラップサイト (照射欠陥) が形成されることが分かっており、その閾値エネルギーは 940 eV と報告されている[4]。HiFIT での D 照射において、エネルギーは 1 keV であるため、照射欠陥が形成されている可能性がある。その影響が、473 K のような低温領域で顕著になるため、pure W 試料において D 吸蔵量が多くなったと考えられる。しかし、W-TiC 試料は照射欠陥のシンクである結晶粒界を高密度に含むため、照射欠陥の生成は抑制されると思われる。そのため、TFGR-W の D 吸蔵量の増大は抑制され、pure W と同等になったと考えられる。

以上のことから、D 吸蔵量の照射温度依存性の全体の傾向として、照射温度を高くすると、タングステン試料中の D 総吸蔵量は減少することが示された。これは、高温になると、照射中に D がトラップサイトから脱離してしまい、実効的なトラップ密度が減少してしまうことを示唆している。そのため、TFGR-W 中の水素同位体吸蔵特性を考える場合は、その照射温度を考慮することが非常に重要である。

5.6 トラップエネルギーの推定

前節および前々節では、TDS 分析を用いて、TFGR-W 試料からの D 脱離特性を調べた。昇温脱離スペクトルの横軸の脱離温度は、トラップサイトのトラップエネルギーに対応している。そのため、D 昇温脱離スペクトルから、トラップエネルギーの推定を行うことができる。本研究では、TMAP7 コードを用いて、D 昇温脱離スペクトルをシミュレーションし、トラップエネルギーの推定を行った。

5.6.1 初期状態の決定

本項では、TMAP7 コードで D 昇温脱離スペクトルのシミュレーションを行うに当たり、設定した初期状態（時間 $t=0$ ）について述べる。本研究では、D 照射後試料に D がトラップされ、吸蔵されている状態を初期状態とした。QST 照射後の D 深さ分布の結果（図 5.2）を基に、トラップされた D の深さ分布を決定した。具体的には、以下の手順で、D の密度と深さ範囲を求めた。

■ 表面近傍のトラップサイト

表面近傍（深さ範囲 0.0~0.1 μm ）の領域において、D 密度はどのタンゲステン試料も高く、それは D 照射の影響だと考えられる（5.3 節）。そのため、この領域のトラップサイトは、試料内部のトラップサイトとは分けて考えた。その密度 N_t は図 5.2 の D 密度と等しいと仮定して、pure W 試料は 8×10^{-1} at.%、W-TiC 試料は 9×10^{-1} at.%、W-TaC 試料は 7×10^{-1} at.% とした。深さ範囲は 0.0~0.1 μm とした。

■ 試料内部のトラップサイト

試料内部（深さ範囲 $>0.1 \mu\text{m}$ ）の領域では、D 照射影響は少なく、D は試料の固有欠陥にトラップされていると考えられる（5.3 節）。トラップサイト密度 N_t は図 5.2 の D 密度と等しいと仮定して、pure W 試料で $\sim 2 \times 10^{-2}$ at.%、W-TiC 試料で $\sim 2 \times 10^{-1}$ at.%、W-TaC 試料で $\sim 2 \times 10^{-1}$ at.% とした。また、図 5.3 の昇温脱離スペクトルが TFGR-W 試料は 2 つのピークから構成されているので、TFGR-W 中のトラップサイトは 2 種類存在すると考えられる。その密度比がピーク面積に比例すると仮定した（W-TiC で 73 : 24、W-TaC で 89 : 11）。また、トラップされた D の深さ範囲 d_t の決定は、TDS 分析で測定した D 総吸蔵量の値を用いて表される以下の式から求めた。その結果、 d_t は、pure W 試料で 33 μm 、W-TiC 試料で 29 μm 、W-TaC 試料で 22 μm であった。

$$d_t = \frac{(R_{total} - R_{surface})}{N_t \cdot \rho_w} \quad (5.1)$$

R_{total} : TDS 分析で測定した D 総吸蔵量 [D m^{-2}]

$R_{surface}$: 表面近傍の D 吸蔵量 [D m^{-2}]

ρ_w : タングステンの数密度 = 6.31×10^{28} [m^{-3}]

5.6.2 昇温脱離スペクトルのシミュレーション結果

前項の初期条件を基に、TMAP7 コードを用いて D 昇温脱離スペクトルをシミュレーションした。シミュレーション計算を高速化するために、1 回の計算では 1 つのトラップサイトのみ考えた。例えば、W-TiC 試料の場合、表面近傍のトラップサイト 1 つ、試料内部のトラップサイト 2 つについて、合計 3 つの計算を行った。それぞれの D 昇温脱離スペクトルの計算結果を足し合わせ、その試料における D 昇温脱離スペクトルとした。

シミュレーションの際には、トラップエネルギーをパラメータとして、0.1 eV 刻みで計算を繰り返した。実験結果 (図 5.3) にフィッティングした。それぞれの試料における結果を図 5.8 に示す。

フィッティングの結果、トラップサイトのエネルギー (ここでは試料内部のトラップサイトのみを抜粋) は表 5.1 で示された通りとなった。その密度と脱離温度も併せて示している。

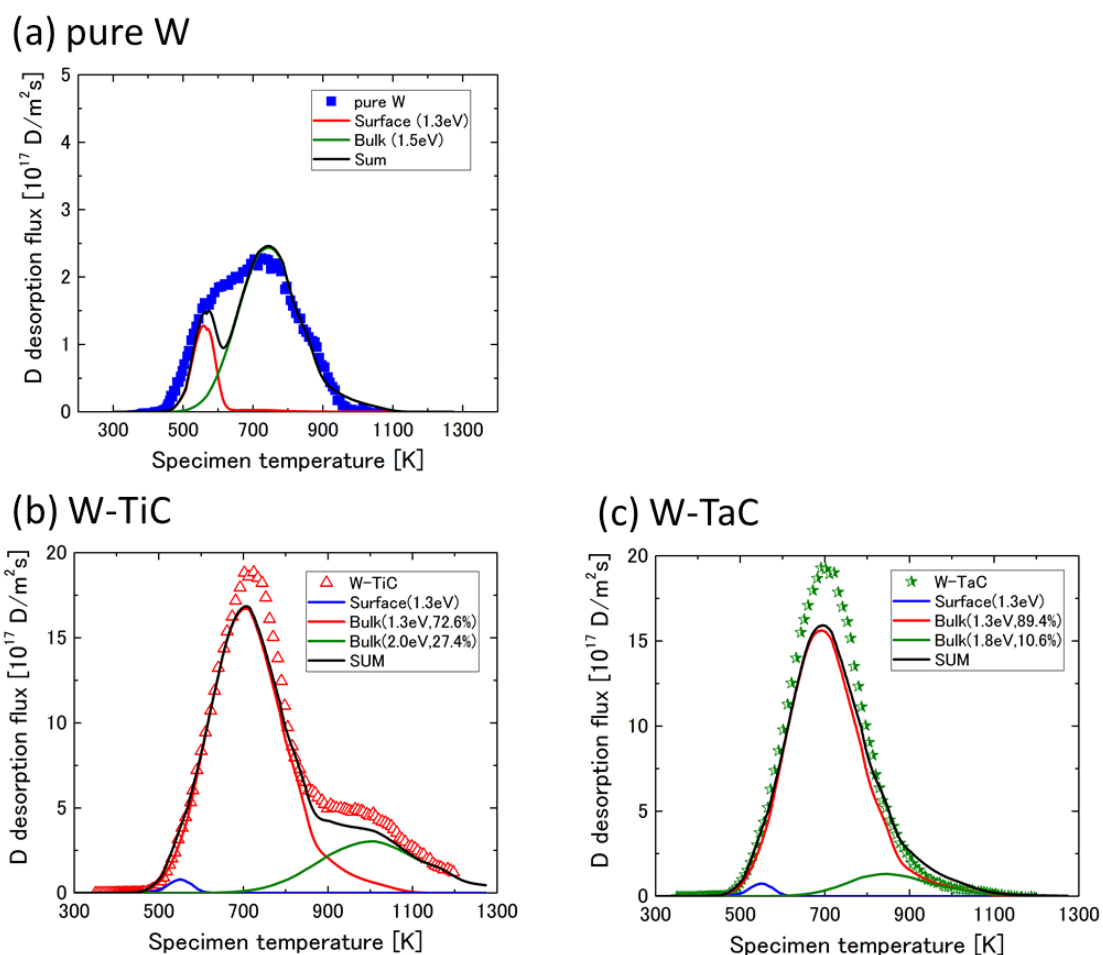


図 5.8 TMAP7 コードによる D 昇温脱離シミュレーションの結果

表 5.1 各試料におけるトラップサイトのトラップエネルギーとトラップ密度

試料	D 脱離温度	トラップエネルギー	密度
pure W 試料	~700 K	1.5 eV	$\sim 2.0 \times 10^{-2}$ at. %
W-TiC 試料	~700 K	1.3 eV	$\sim 1.5 \times 10^{-1}$ at. %
	850 ~ 1200 K	2.0 eV	$\sim 5.0 \times 10^{-2}$ at. %
W-TaC 試料	~700 K	1.3 eV	$\sim 1.8 \times 10^{-1}$ at. %
	850 ~ 1200 K	1.8 eV	$\sim 2.0 \times 10^{-2}$ at. %

表 5.1 より、TFGR-W の場合、トラップサイトは低エネルギーと高エネルギーに大別されるということが分かった。低エネルギーのトラップサイトは、W-TiC 試料でも W-TaC 試料でも 1.3 eV であることが示された。また、高エネルギーのトラップサイトは、W-TiC 試料では 2.0 eV、W-TaC 試料では 1.8 eV であることが示された。

このトラップエネルギーの値を、先行研究で求められた様々なトラップサイトのトラップエネルギーと比較する。O.V. Ogorodnikova[1]によれば、転位は 0.85 eV、空孔は 1.45 eV であると推定されている。また、福本氏[5]によれば、空孔は 1.3 eV、ボイドは 1.8~2.1 eV であると推定されている。5.3 節述べたように、TFGR-W のトラップサイトは、それぞれ、低エネルギー (1.3 eV) が結晶粒界、高エネルギー (2.0 eV および 1.8 eV) が添加物に対応していると考えられる。結晶粒界のトラップエネルギーは空孔より高く、ボイドより低い。また、添加物は、ボイドと同程度であることが示された。しかし、タングステン材料において、結晶粒界も添加物も D がどのような物理でトラップされているかは明らかになっておらず、そのトラップエネルギーを求めた研究はほとんどない。そのため、ここでは、金属材料中の水素同位体挙動の分野では、最も広く研究されている、鉄鋼材料のトラップエネルギーと比較する。

結晶粒界の場合、原子配列が非常に不規則であるため、鉄鋼材料でも水素同位体原子がどのようにトラップされているかは不明確である。鉄鋼材料では、結晶粒界のトラップエネルギーは実験結果から~0.5 eV であると推定されている[6]。本研究の結果と比較すると、タングステン材料の方が大きいことが示された。

また、添加物 TiC については、鉄鋼材料でも強度上昇を目的に添加されており、水素のトラップエネルギーは 0.5~1 eV と推定されている[6]。本研究の結果と比較すると、結晶粒界と同様に、タングステン材料の方が大きいということが分かった。ただ、鉄鋼材料中の TiC の析出状態によってトラップエネルギーが異なることが報告されている (非整合状態では高く、半整合状態では低い) [6]。TiC バルク材の D 昇温脱離スペクトル (図 5.5) にも 2 つのピークが見られるように、W-TiC 試料の D 昇温脱離スペクトルでも、850~1200 K ピークだけでなく、700 K ピークにも TiC の影響が表れていると考えられる (ただ、結晶粒界の影響が支配的だとは考えられる)。鉄鋼材料と同様に、その 2 つのピークの違いはタングステン材料中の TiC の析出状態に依存していると考えられる。

また、TMAP7 コードにおけるシミュレーション計算で注意すべきことについて述べる。それは、TFGR-W 中の水素同位体の拡散係数が pure W 試料とは異なっている可能性があるということである。結晶粒界はトラップサイトであると同時に、拡散経路でもある。TDS 分析中に、D は脱トラップとトラップを繰り返しながら表面に拡散し、遅延が発生する。D 昇温脱離スペクトルの横軸の温度は時間に対応しており（一定の速度で昇温しているため）、拡散遅延の影響は D の脱離温度が高温側にシフトする形で現れる。一方、結晶粒界では水素同位体の拡散が促進され、拡散が速くなる効果（粒界拡散）もある。TFGR-W 試料の場合、結晶粒界を高密度に含むため、これらの複合的な影響を全温度領域で考える必要がある。具体的には、TMAP7 コードにおいて拡散遅延や粒界拡散を考慮する場合、それらの影響を考慮した拡散係数を入力する必要がある。しかし、本研究ではトラップの影響が少ない条件下で求められた pure W 試料の値（第 3 章の式(3.5), R.Frauenfelder の拡散係数）を使用している。そのため、算出されたトラップエネルギーの精度を高めるためには、拡散遅延や粒界拡散を十分に考慮に入れた拡散係数の導出や、もしくはモデルの構築が必要である。また、TFGR-W 試料中の水素同位体の拡散係数を実験的に導出することも必要であると考えられる。

TFGR-W 試料中の水素同位体の拡散係数について、本研究の結果から考察できることを述べる。5.6.1 項にて、トラップされた D の深さ範囲 d_t は pure W 試料でも TFGR-W 試料でも概ね $\sim 30 \mu\text{m}$ であることが示された（pure W 試料で $33 \mu\text{m}$ 、W-TiC 試料で $29 \mu\text{m}$ 、W-TaC 試料で $22 \mu\text{m}$ ）。これは、この照射温度（573 K）において、TFGR-W 試料中の水素同位体の拡散係数は pure W 試料と同等であることを示唆していると考えられる。その理由として、TFGR-W 試料中のトラップによる拡散遅延の影響と、粒界拡散による影響が、573 K では相殺されているからだと考えられる。そのため、573 K に限っては、TFGR-W 試料中の水素同位体の拡散係数は pure W 試料の値（式(3.5)）を使用しても、大きな問題はないと考えられる。次節の実験炉 ITER や原型炉での T 蓄積量の計算において、炉壁温度が 573 K の場合は pure W 試料の拡散係数を使用した。773 K の場合、厳密には拡散遅延と粒界拡散の影響を拡散係数に考慮する必要があるが、本研究では pure W 試料の拡散係数を使用した。そのため、T 蓄積量の時間発展に影響があると考えられるが、飽和した時の T 蓄積量はトラップエネルギーやトラップサイト密度の影響が支配的であるため、試料間での比較や T 蓄積量の制限値を議論することは問題ないと考えられる。

また、次節の実験炉 ITER や原型炉での T 蓄積量の計算では、表面近傍のトラップサイトは考慮に入れないこととする。表面近傍のトラップサイトは照射欠陥が主であると考えられるため、その密度およびトラップエネルギーは、試料や照射条件（エネルギー、フラックス、照射時間）によって大きく異なると考えられる[1-3]。その上、材料内部のトラップサイト（固有欠陥）の方が、試料中の D 吸蔵量に支配的であると考えられるため、以降の T 蓄積量の計算では考慮に入れないこととした。

5.7 実験炉 ITER や原型炉でのトリチウム蓄積量の予測

前節で明らかになった、TFGR-W 試料のトラップサイト密度およびトラップエネルギーを用いて、核融合炉内の照射環境下での T 蓄積量のシミュレーションを TMAP7 コードで行った。ここでは、プラズマ対向材料として、TFGR-W を第一壁の全領域に使用した場合を想定し、実験炉 ITER および原型炉で予測される水素同位体照射条件を入力した。

まず、TMAP7 コードで入力した条件について述べる。プラズマ対向壁（以下、炉壁と表記）としては第一壁を考えた。これは、ダイバータよりも第一壁の方が表面積は大きいこと（実験炉 ITER では、第一壁~700 m² [7]、ダイバータ~120 m² [7]）や、ダイバータは表面温度が上昇することを考慮に入れると、T 蓄積量は第一壁が支配的になると考えられるからである。第一壁の全領域に TFGR-W を使用したと仮定し、比較のため pure W の場合の計算も行った。また、照射される水素同位体は D を想定し、そのうち半分が T として蓄積すると仮定した。実験炉 ITER および原型炉における D 照射条件を、表 5.2 にまとめた。

D 吸蔵量が照射温度に強く依存すること（図 5.7）を考慮に入れ、炉壁温度（照射中の第一壁の温度）は、実験炉 ITER では 537 K、原型炉では 773 K とした。第一壁が受ける熱負荷は低く（<1 MW m⁻²）、タンゲステンの熱伝導率は大きい（173 Wm⁻¹K⁻¹(300 K)）ため、第一壁の温度はブランケットの冷却水温度に等しいと考えられる。冷却水温度は、実験炉 ITER では~573 K [8]、原型炉（ここでは Slim-CS を仮定）では~773 K [9]と計画されており、それぞれの炉壁温度とした。商用炉も原型炉と同様の 773 K と考えられる。

実験炉 ITER の第一壁に照射されるフラックスは 10¹⁹~10²¹ m⁻²s⁻¹の幅があることが、R. Behrisch によって予測されている[7]。本研究では、その下限（1.4×10¹⁹ m⁻²s⁻¹）と上限（1.4×10²¹ m⁻²s⁻¹）を用いて、それぞれ計算を行った。入射エネルギーは 76 eV とした [10]。

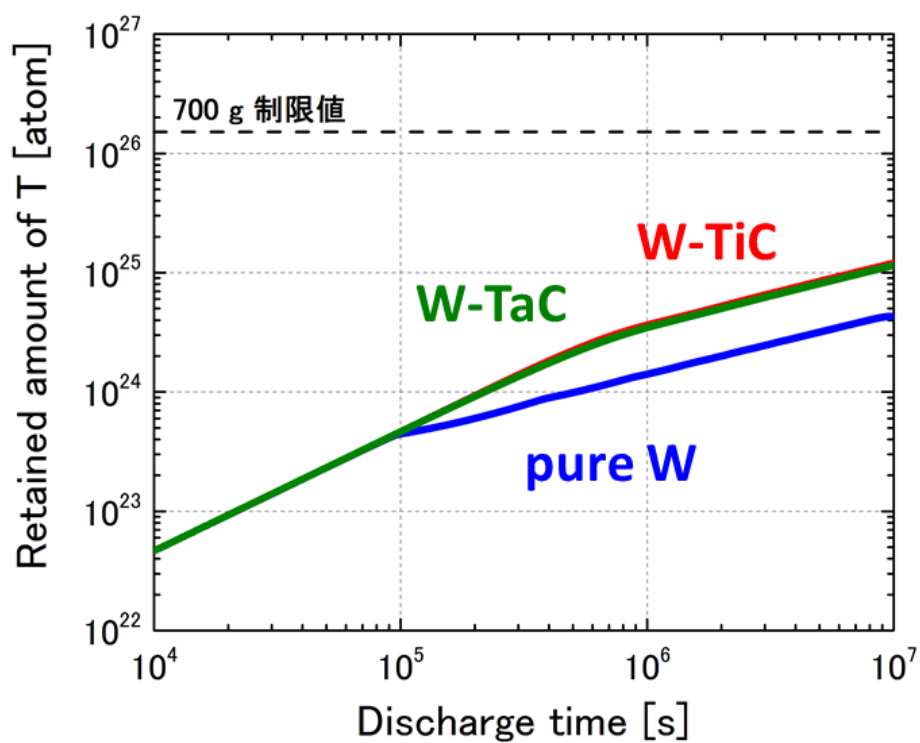
運転時間（TMAP7 コードにおいては計算時間に該当）は、10⁷ s とした。実験炉 ITER の場合、400 s / shot とすると 25000 shot に相当し、実験炉 ITER の運転終了までを想定した。また、原型炉の場合、1 日 6 時間運転すると仮定すると、およそ 1 年分に相当する。

図 5.9 および図 5.10 に、シミュレーションの結果を示した。

表 5.2 TMAP7 コードのシミュレーションで入力した照射条件

条件	実験炉 ITER	原型炉
エネルギー	76 eV	76 eV
フラックス	1.4×10 ¹⁹ , 1.4×10 ²¹ m ⁻² s ⁻¹	1.4×10 ¹⁹ , 1.4×10 ²¹ m ⁻² s ⁻¹
第一壁の厚さ	1 mm	1 mm
総面積	700 m ²	700 m ²
炉壁温度	537 K	773 K
運転時間	10 ⁷ s	10 ⁷ s

(a) 炉壁温度 573 K



(b) 炉壁温度 773 K

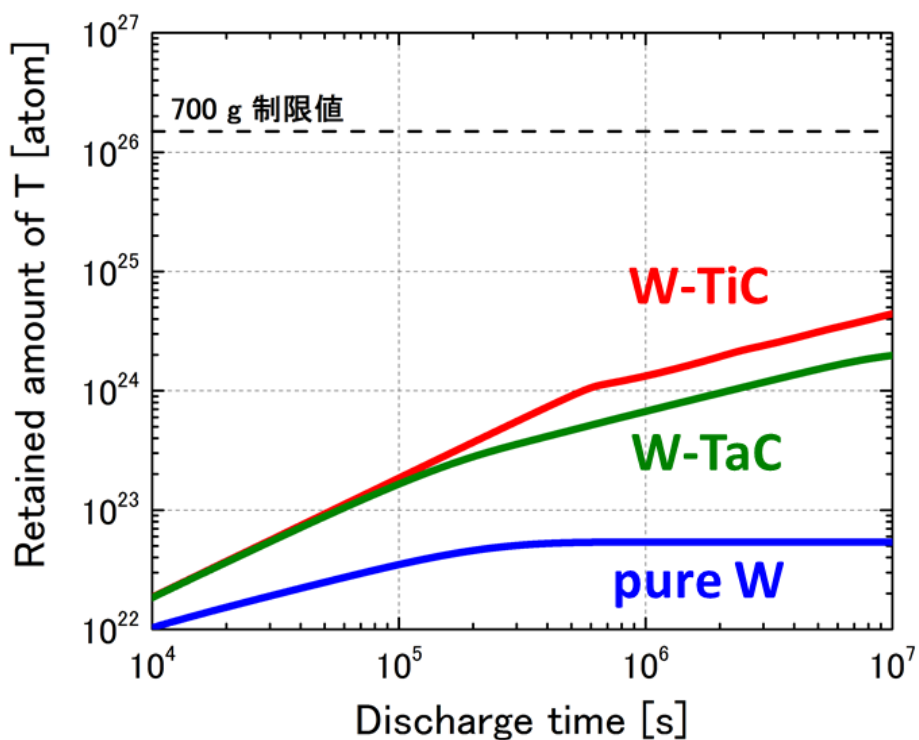
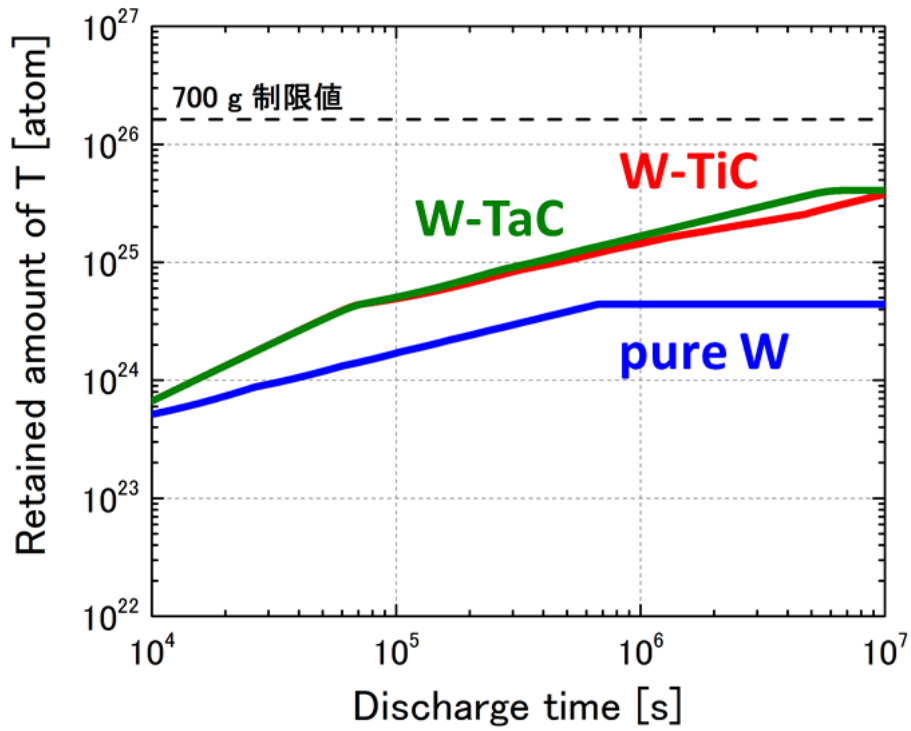


図 5.9 TMAP7 コードによる T 蓄積量のシミュレーションの結果
(a) 炉壁温度 573 K, (b) 炉壁温度 773 K (フラックス : $1.4 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$)

(a) 炉壁温度 573 K



(b) 炉壁温度 773 K

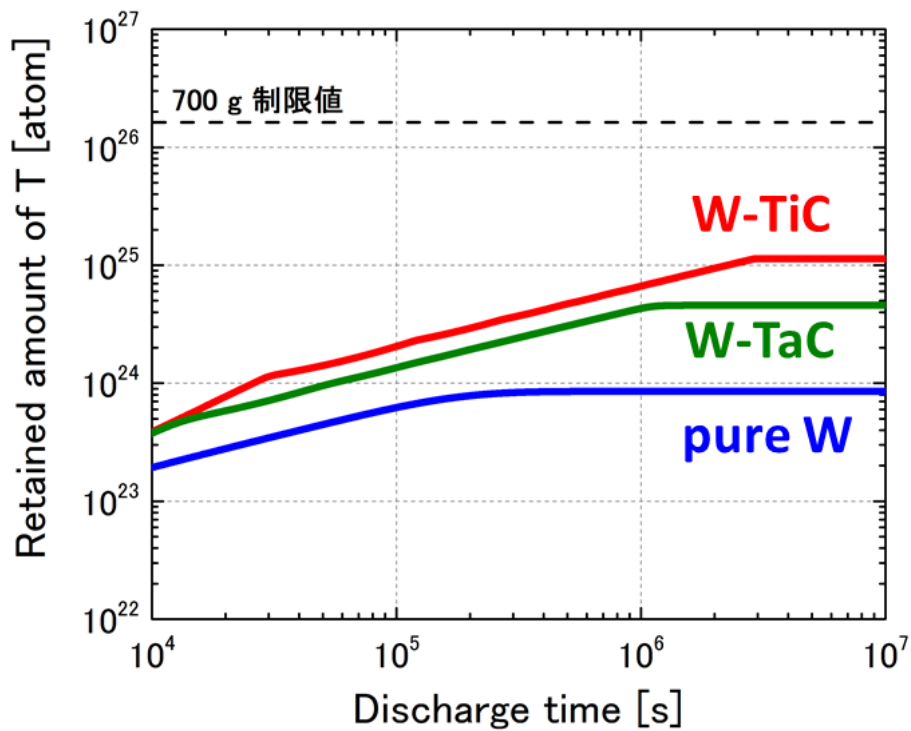


図 5.10 TMAP7 コードによる T 蓄積量のシミュレーションの結果
(a) 炉壁温度 573 K, (b) 炉壁温度 773 K (フラックス : $1.4 \times 10^{21} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$)

実験炉 ITER を想定した炉壁温度が 573 K の場合 (図 5.9(a) および図 5.10(a))、TFGR-W の T 蓄積量は pure W よりも多いことが示された。しかし、実験炉 ITER が運転時間 10^7 s に達しても、TFGR-W の T 蓄積量は 1.1×10^{25} atom 程度 (フラックス $1.4 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$, 図 5.9(a)) および 1.1×10^{25} atom (フラックス $1.4 \times 10^{21} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$, 図 5.10(a)) である。これは、ITER 機構が安全基準に則って定めた (これらすべてが漏洩しても近隣住民に避難の必要はないとされる数値) T 制限値である 700 g ($=1.4 \times 10^{26}$ atom) には 1 桁以上及ばないということが分かった。また、この温度では、W-TiC と W-TaC では明確な違いは見られなかった。

原型炉を想定した炉壁温度が 773 K の場合 (図 5.9(b) および図 5.10(b))、どのタングステン材料についても 573 K の場合と比べて T 蓄積量が減少している。これは、炉壁温度の上昇により、実効的なトラップサイト密度が減少しているからだと考えられる。原型炉の運転時間 10^7 s (1 日 6 時間の運転なら 1 年に相当) では、T 制限値 700 g (これは実験炉 ITER の規定であるが、1 つの基準として原型炉にも適用した) を下回り、飽和の傾向もみられる。そのため、厚さ 1 mm であれば、 10^7 s 以上の運転を行っても、T 制限値 700 g を上回る可能性は極めて低いと考えられる。また、W-TiC と W-TaC を比べると、W-TaC の方が T 蓄積量は少ないことが示された。

また、燃料効率の観点から、この結果を考察する。先行研究[11]では、T の蓄積率 (= 炉壁への蓄積量 / 炉内への供給流量) が 2×10^{-4} 以下であれば、その核融合炉での燃料自給は可能であり、6 年間運転を続ければ次期炉用の燃料を確保することも可能であると報告されている。実験炉 ITER における燃料 T の供給流量は $120 \text{ Pa m}^3\text{s}^{-1}$ であり [12]、それを T の粒子数に換算すると $\sim 2.9 \times 10^{22} \text{ atom s}^{-1}$ である。実験炉 ITER の運転終了時 (10^7 s) までに $\sim 2.9 \times 10^{29}$ atom もの T が炉内に供給されることになる。炉壁への T 蓄積量はその 2×10^{-4} 以下であれば問題なく、それを T 粒子数に換算すると $\sim 5.8 \times 10^{25}$ atom 以下となる。図 5.9 および図 5.10 では、 10^7 s において、どの材料も $\sim 5.8 \times 10^{25}$ atom を下回る。 10^7 s に到達するまでの運転時間に先の計算を適用しても、シミュレーション結果はその値を下回る (10^4 s なら $\sim 5.8 \times 10^{22}$ atom、 10^5 s なら $\sim 5.8 \times 10^{23}$ atom、 10^6 s なら $\sim 5.8 \times 10^{24}$ atom)。すなわち、TFGR-W をプラズマ対向材料 (炉壁) として使用しても、燃料効率の観点から、実験炉 ITER および原型炉の運転を阻害する可能性は低いと考えられる。

5.8 高エネルギー粒子およびヘリウムが与える影響

本節では、D-T 核融合の反応生成粒子である 14 MeV 中性子とヘリウムが、TFGR-W 中の水素同位体吸蔵特性に与える影響について評価した。実験炉 ITER や原型炉では、これらの粒子がプラズマ対向材料であるタングステンに入射し、水素同位体吸蔵特性に影響を与える可能性がある。本研究では、TFGR-W についてその影響を評価する実験を行った。また、本論文の付録 C で、pure W 試料についてその影響を調べた実験について記載した。

5.8.1 高エネルギー粒子の影響

タングステン材料に高速中性子 (14 MeV) が入射すると、水素同位体吸蔵量が増大することが報告されている[13,14]。TFGR-Wについても、プラズマ対向材料として用いる際には、このような中性子の照射を受けることは避けられないため、水素同位体吸蔵特性に与える影響を調べる実験を行った。一般に、高エネルギー粒子による損傷量は、ターゲット原子 (タングステン原子) 1 個あたりに起こったはじき出しの回数を意味する dpa (displacement per atom) で評価する[15]。

本研究では、14 MeV 中性子の照射による損傷を、高エネルギーの鉄イオンの照射で模擬した。このような模擬は、先行研究では軽水素[5]やタングステンの照射[16]で行われ、損傷領域は 0~3 μm 、損傷量は 0.1~10 dpa で水素同位体吸蔵実験が行われてきた。しかし、軽水素の場合、原子量が小さいため、0.3 MeV のエネルギーで損傷領域は~1 μm まで達するが、試料中に軽水素が蓄積し、後の重水素照射の際に同位体交換の影響を無視できない可能性がある。また、タングステンの場合、原子量が大きいため、注入距離が短く、損傷領域が~1 μm 以上到達するためには 20 MeV ものエネルギーが必要になってしまう。そこで、本研究では、軽水素とタングステンの中間程度の原子量をもつ鉄を使用した (原子量は、軽水素 1.01 amu、鉄 55.84 amu、タングステン 183.84 amu)。

試料は、pure W 試料と W-TiC 試料を使用した。本研究では、14 MeV 中性子の照射によってタングステン試料内部に形成される格子欠陥 (照射欠陥のことで空孔やボイド等を指す) を模擬するために、京都大学エネルギー理工学研究所の複合ビーム材料照射装置 DuET [17]にて、鉄イオンを 6.4 MeV で照射する実験を行った。損傷領域は~2 μm まで及び、先行研究[5,16]に倣い、材料内部の損傷量が 1.4 dpa になるようにフルエンスを調整した。照射温度は 573 K で行った。D イオンの照射は、大阪大学上田研究室のイオンビーム照射装置 HiFIT を用いて行い、照射条件はエネルギー 1 keV、フラックス~ $1 \times 10^{20} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、フルエンス~ $1 \times 10^{24} \text{ D m}^{-2}$ 、照射温度 573 K で行った。D 吸蔵量は TDS 分析で測定した。

図 5.11 に、各タングステン試料の D 総吸蔵量を示した。pure W 試料では、損傷なしの試料では $1.8 \times 10^{20} \text{ D m}^{-2}$ 、損傷を与えた試料は $7.8 \times 10^{20} \text{ D m}^{-2}$ であり、損傷を与えることによって D 吸蔵量は $5.6 \times 10^{20} \text{ D m}^{-2}$ も増加することが分かった。それに対し、W-TiC 試料では、損傷なしの試料では $2.1 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2}$ 、損傷を与えた試料は $2.4 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2}$ であり、損傷を与えても D 吸蔵量は $2.4 \times 10^{20} \text{ D m}^{-2}$ しか増加しないことが分かった。

図 5.12 には、TDS 分析で求めた昇温脱離スペクトルを示した。pure W 試料の場合 (図 5.12(a))、損傷を与えた試料では、ピークは全体的に高くなっている。これは損傷を与えることで、新たにトラップサイトが形成されていることを示唆しており、それは空孔やボイドであると考えられる。それに対し、W-TiC 試料の場合 (図 5.12(b))、損傷を与えた試料でもピークは大きく増大しないことが分かった。pure W 試料と W-TiC 試料でこのような違いが表れた理由として、TFGR-W が微結晶であることが考えられる。TFGR-W は微結晶であるため、結晶粒界の密度が高い。結晶粒界は照射欠陥のシンクとして働くため、高エ

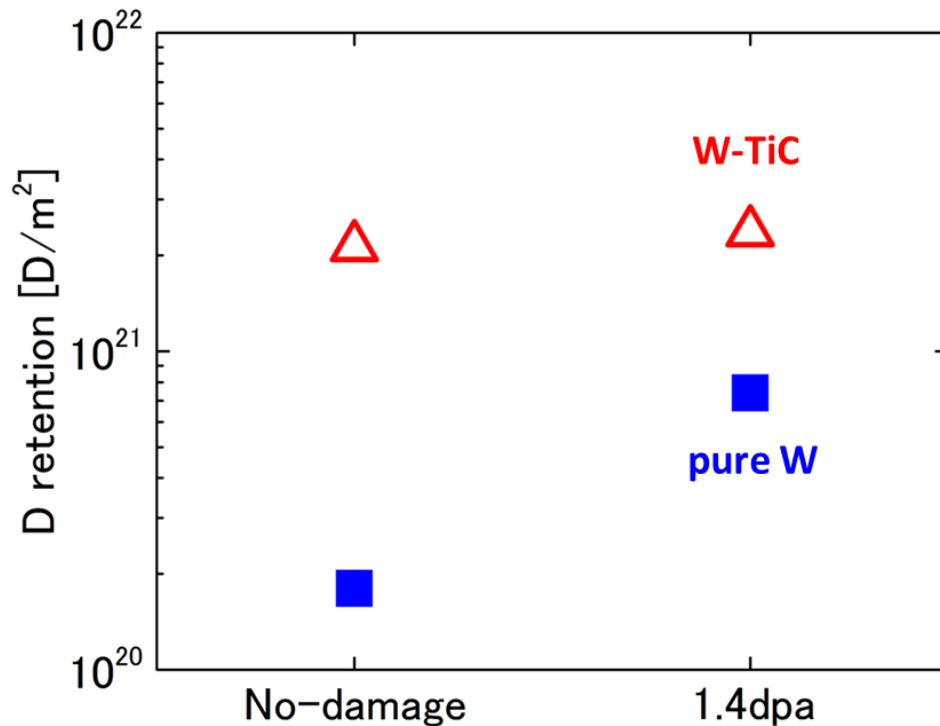


図 5.11 Fe イオン照射により損傷を与えた試料(1.4dpa)と損傷を与えていない試料(No-damage)の D 総吸蔵量

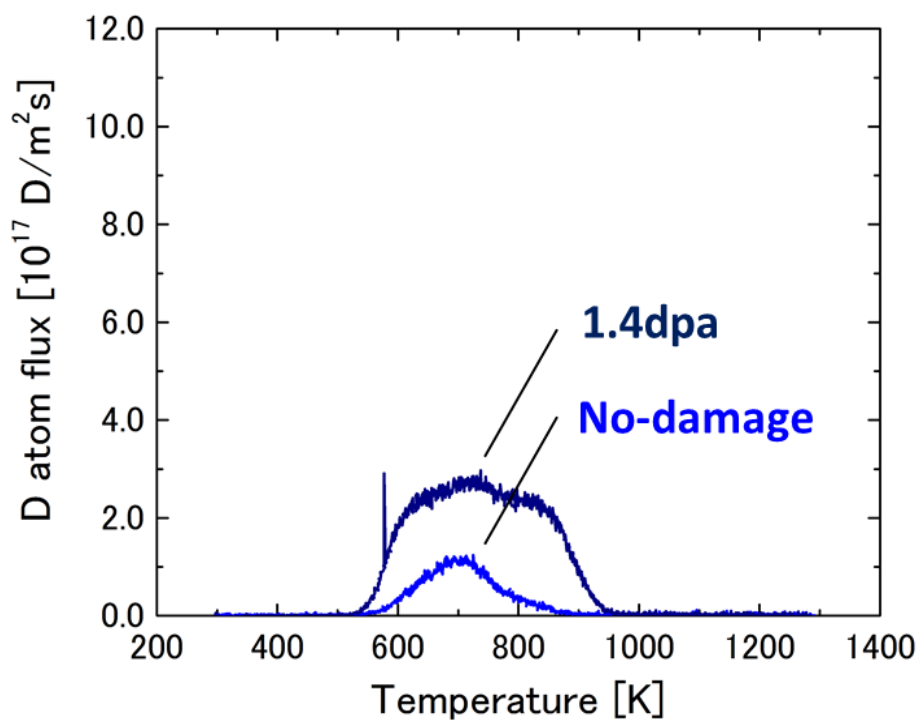
エネルギーの鉄イオン照射による照射欠陥（空孔やボイド等）の形成が抑制され、D 吸蔵量の増大が抑えられたと考えられる。このことから、実験炉 ITER や原型炉において、14 MeV 中性子による T 蓄積量の増大は、TFGR-W では抑制される可能性がある。

5.8.2 ヘリウム照射が与える影響

タングステン材料に、水素同位体イオンと同時にヘリウムイオンが入射すると、水素同位体吸蔵量が減少することが確認されている[18,19]。これは、タングステン材料の表面にヘリウムバブルが形成され、バブルが繋がると、表面への拡散経路となって（実効的に表面積が増えて）、材料内部への水素同位体の拡散が減少するからである。TFGR-W についても、ヘリウムが照射される環境下で使用されるため、その影響を評価する実験を行った。

試料は、W-TiC 試料を使用した。D 照射実験は、大阪大学上田研究室のイオンビーム照射装置 HiFIT を用いて行い、D と He の混合ビーム照射（以下 D+He 同時照射）を行った。照射条件は、エネルギー1 keV、フラックス $\sim 1 \times 10^{20} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、フルエンス $\sim 1 \times 10^{24} \text{ D m}^{-2}$ 、照射温度 473 K で行った。He イオンは、D に対して 5%の割合で混合し、試料に照射した。D 吸蔵量は TDS 分析で測定した。

(a) pure W



(b) W-TiC

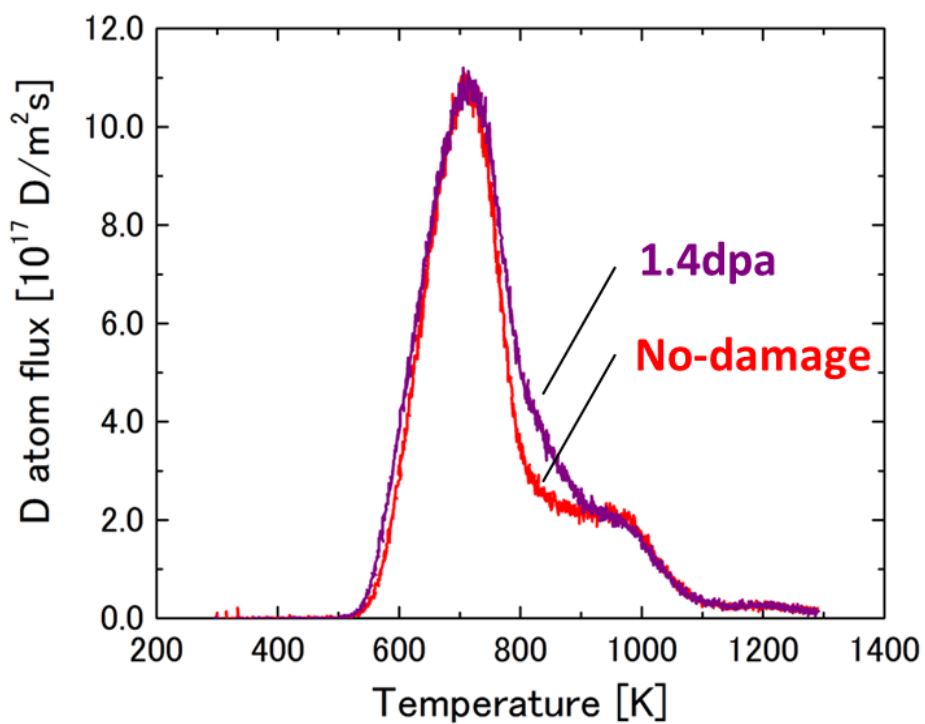


図 5.12 Fe イオン照射により損傷を与えた試料(1.4dpa)と損傷を与えていない試料(No-damage)の D 昇温脱離スペクトル

図 5.13 には、D+He 同時照射後の重水素の昇温脱離スペクトルを示した。また、比較のために D のみの照射（以下 D-only）（照射温度 573 K）の場合も併せて示した。照射温度の違いはあるものの、D+He 同時照射の結果、低温側の~700 K ピークが明確に減少していることが示された。高温側の 850~1200 K ピークについては、わずかに減少していることが確認された。

D₂ と He はともに分子量 4（Mass4）であり（D₂は 4.028 amu, He は 4.003 amu）、本実験で使用した TDS 分析装置の質量分析器では分解能が足りず D₂ と He を分離して検出することはできない。そのため、図 5.13 の縦軸は D₂ と He の和を示している。He も W-TiC 試料に吸蔵されていると考えられるが、He の混合割合は D の 5% であるため、Mass4 の信号は D₂ が支配的であると考えられる。また、D-only 照射と比べて D+He 同時照射では Mass4 の信号が劇的に減少しているため、D+He 同時照射により D 吸蔵量が減少する傾向があるとは考えられる。

D+He 同時照射によって、D 吸蔵量が減少した理由としては、従来のタングステン材料と同様に、He 照射により材料内部に拡散する D が減少したからだと考えられる[14]。このことから、TFGR-W についても、pure W と同様に He 照射により水素同位体吸蔵量は減少すると考えられる。

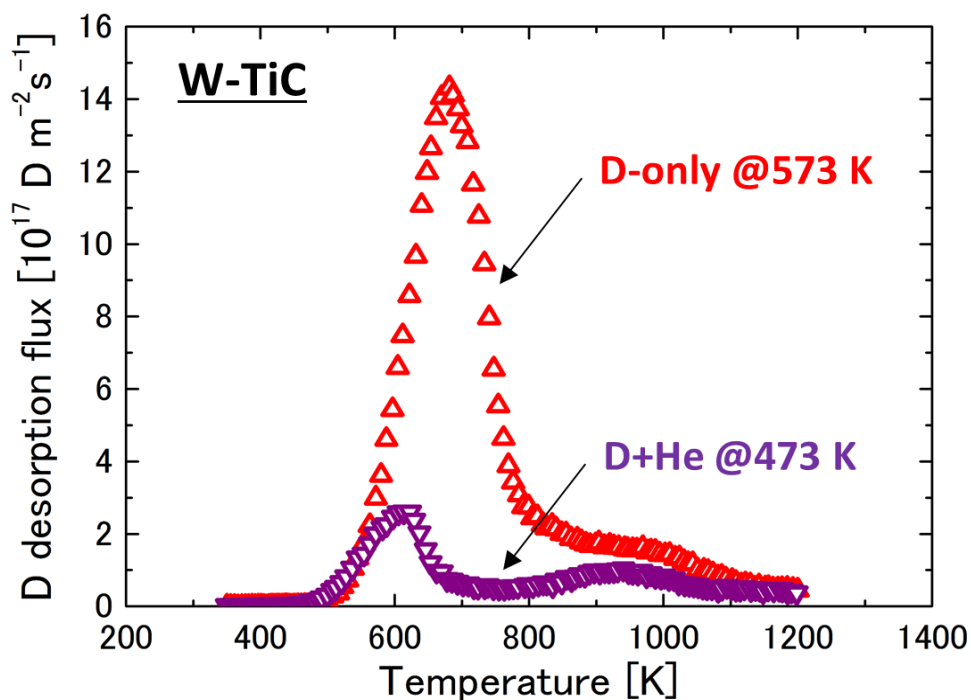


図 5.13 D-only 照射及び D+He 同時照射後の W-TiC 試料の D 昇温脱離スペクトル
(D は Mass4 の信号より算出)

5.9 まとめ

TFGR-W の水素同位体吸蔵特性を、実験炉 ITER 模擬照射環境下 (フラックス: $10^{20}\sim 10^{22}$ $\text{D m}^{-2}\text{s}^{-1}$, 表面温度: $473\sim 873$ K) で調べた結果、以下のことが明らかになった。

- TFGR-W の水素同位体吸蔵量は、pure W に比べて多い。これは、TFGR-W 中のトラップサイト密度が高いことに起因する。
- TFGR-W 中のトラップサイトは、結晶粒界および添加物であると考えられる。
- TFGR-W の水素同位体吸蔵量は温度依存性があり、実験炉 ITER や原型炉で予測される T 蓄積量にも影響ある。炉壁温度 573 K (実験炉 ITER の想定) で TFGR-W の T 蓄積量は pure W より多いが、実験炉 ITER の制限値には及ばない程度である。また、炉壁温度 773 K (原型炉の想定) では W-TaC 使用時の方が T 蓄積量は少ないということが分かった。また、燃料効率で問題になる可能性も低いと考えられる。
- 14 MeV 中性子損傷による T 蓄積量の増大は、TFGR-W では大きな問題にならない。また、He 照射により T 蓄積量は減少すると考えられる。

以上のことから、TFGR-W をプラズマ対向材料として使用する場合は、

- 従来のタングステン材料に比べて T 蓄積量が多いが、それが安全面で問題になる可能性は低い。
- 炉壁で高温になる場所には、W-TaC の方が優位である。

という結論を得た。

参考文献

- [1] O.V. Ogorodnikova, J. Roth and M. Mayer, *J. Appl. Phys.* 103 (2008) 034902.
- [2] G.M. Wright, M. Mayer, K. Ertl, G. de Saint-Aubin and J. Rapp, *Nucl. Fusion* 50 (2010) 075006.
- [3] M. Wirtz, J. Linke, G. Pintuk, J. Rapp and G.M. Wright, *J. Nucl. Mater.* 420 (2012) 218-221.
- [4] W.M. Shu, E. Wakai and T. Yamanishi, *Nucl. Fusion* 47 (2007) 201-209.
- [5] 福本正勝「高エネルギー水素イオンで損傷を与えたタングステン中の水素同位体挙動に関する研究」大阪大学大学院 (2009).
- [6] 南雲道彦「水素脆性の基礎 水素の振るまいと脆化機構」内田老鶴圃 (2008年) pp36-42.
- [7] J. Roth, E. Tsitrone, A. Loarte, Th. Loarer, G. Counsell, R. Neu, V. Philipps, S. Brezinsek, M. Lehnen, P. Coad, Ch. Grisolia, K. Schmid, K. Krieger, A. Kallenbach, B. Lipschultz, R. Doerner, R. Causey, V. Alimov, W. Shu, O. Ogorodnikova, A. Kirschner, G. Federici, A. Kukushkin, EFDA PWI Task Force and ITER PWI Team, *Fusion for Energy, ITPA SOL/DIV, J. Nucl. Mater.* 390-391 (2009) 1-9.
- [8] 河村繕範, 廣瀬貴規, 西宏, 谷川尚, 中島基樹, 権暁星, 宮田訓, 竹村真, 山西敏彦「プロジェクトレビューITER 計画の機器開発・製作の進展 10.ITER テストブランケット計画」*J. Plasma Fusion Res.* Vol.92, No.6 (2016) 444-447.
- [9] 鈴木哲, 秋場真人, 斉藤正克「講座核融合炉の炉内機器の構造を理解する 3.ブランケットの構造を理解する」*J. Plasma Fusion Res.* Vol.82, No.11 (2006) 768-774.
- [10] H. Endo, H.T. Lee, Y. Ohtsuka and Y. Ueda 「Modeling tritium retention in tungsten under mixed helium irradiation」27th Symposium on Fusion Technology, September 24-28th, 2012, Liege, Belgium
- [11] 西川正史, 片山一成「解説 トリチウムから見た核融合炉の成立性」*J. Plasma Fusion* 87, 8 (2011) 203-511.
- [12] M. Glugla, A. Antipenkov, S. Beloglazov, C. Caldwell-Nichols, I.R. Cristescu, I. Cristescu, C. Day, L. Doerr, J.-P. Girard and E. Tada, *Fusion Engineering and Design* 82 (2007) 472-487.
- [13] M. Shimada, Y. Hatano, P. Calderoni, T. Oda, Y. Oya, M. Sokolov, K. Zhang, G. Caof, R. Kolasinski, J.P. Sharpe, *J. Nucl. Mater.* 415 (2011) S667-671.
- [14] Y. Oya, X. Li, M. Sato, K. Yuyama, L. Zhang, S. Kondo, T. Hinoki, Y. Hatano, H. Watanabe, N. Yoshida and T. Chikada, *J. Nucl. Mater.* 461 (2015) 336-340.
- [15] 石野栞, 蔵元英一, 曾根田直樹「講座 核融合炉構造材料の照射損傷 3.原子のはじき出しと照射欠陥」*J. Plasma Fusion Res.* 84, 5 (2008) 258-268.
- [16] V.Kh. Alimov, B. Tyburska-Püschel, Y. Hatano, J. Roth, K. Isobe, M. Matsuyama and T. Yamanishi, *J. Nucl. Mater.* 420 (2012) 370-373.

- [17] A. Kohyama, Y. Katoh, M. Ando and K. Jimbo, *Fusion Engineering and Design* 51-52 (2000) 789-795.
- [18] V.Kh. Alimov, B. Tyburska-Püschel, Y. Hatano, J. Roth, K. Isobe, M. Matsuyama and T. Yamanishi, *J. Nucl. Mater.* 420 (2012) 370-373.
- [19] H.T. Lee, H. Tanaka, Y. Ohtsuka and Y. Ueda, *J. Nucl. Mater.* 415 (2011) S696-700.

第 6 章 表面形態変化

6.1 緒言

本章では、TFGR-W の表面形態変化について述べる。表面形態変化は、粒子負荷により形成されるブリスタが薄片・ダストの発生につながるため重要であり、特に実験炉 ITER のダイバータのストライク点およびその周辺の粒子負荷環境で調べる必要がある。ストライク点およびその周辺領域のフラックスを模擬できる 3 種類のプラズマ照射装置を用いて実験を行った（フラックス： $10^{21}\sim 10^{24}\text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ，表面温度：573 K）。また、表面形態変化と水素同位体吸蔵特性との関連も調べた。水素同位体として重水素（D）を用いた。

D プラズマ照射後の TFGR-W 試料の表面形態を観察した。また、その表面近傍の D 吸蔵量や微細構造の変化を調べる分析・観察も行うことで、表面形態変化のメカニズムについて考察した。また、製造工程の違いにより、機械的特性の異なる様々な TFGR-W 試料を用いて、その表面形態変化を調べる実験も行い、表面形態変化を低減するための方策について検討を行った。

これらの実験・分析結果から、プラズマ対向材料として TFGR-W を使用する場合の評価について、表面形態変化の観点から述べた。

6.2 実験概要

TFGR-W 試料として、W-TiC 試料と W-TaC 試料を使用した。pure W 試料も使用した。

それらタングステン試料に対して、量子科学技術研究開発機構の線形プラズマ装置（以下 QST と表記）、オランダ基礎エネルギー研究所の線形プラズマ装置 Pilot-PSI、カリフォルニア大学サンディエゴ校の線形プラズマ装置 PISCES-A を用いて、D プラズマ照射実験を行った。QST では実験炉 ITER ダイバータのストライク点周辺（ポロイダル方向に $\sim 0.3\text{ m}$ ）の照射環境（フラックス： $\sim 10^{22}\text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ）を模擬できる一方で、Pilot-PSI はストライク点の照射環境（フラックス： $\sim 10^{24}\text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ ）を模擬している。そのため、QST と Pilot-PSI の結果を比較することにより、ストライク点で想定される高フラックスの影響を調べることができる。また、PISCES-A では、製造工程の異なる複数の TFGR-W 試料に D プラズマ照射を行い、その表面形態変化を調べる実験を行った。

プラズマ照射の後、表面形態の変化を走査型電子顕微鏡（SEM）で観察した。また、表面形態の変化が観察された試料に対して、表面近傍（ $< 2\text{ }\mu\text{m}$ ）の断面の微細構造を透過型電子顕微鏡（TEM）で観察した。また、表面近傍（ $0\sim 1\text{ }\mu\text{m}$ ）に吸蔵された D の深さ分布を核反応法（NRA 分析）で測定した。

6.3 D 照射後の表面形態の変化

QST および PISCES-A にて、実験炉 ITER のダイバータのストライク点周辺（ポロイダル方向に ~ 0.3 m）の照射環境を模擬した D プラズマ照射を行った。QST では、エネルギー 50 eV、フラックス $\sim 1 \times 10^{22}$ D m $^{-2}$ s $^{-1}$ 、フルエンス 1×10^{26} D m $^{-2}$ 、照射温度 573 K で行っている。また、PISCES-A では、エネルギー 100 eV、フラックス $\sim 10^{21}$ D m $^{-2}$ s $^{-1}$ 、フルエンス 2×10^{25} D m $^{-2}$ 、照射温度 573 K で行った。D プラズマ照射後、どのタングステン試料表面にも、ブリスタと呼ばれる突起状の構造が発生していることが観察された（図 6.1）。

図 6.1(a)には、pure W 試料に QST でプラズマ照射を行った後、表面形態を SEM で観察した結果を示した。D プラズマ照射後の pure W 試料の表面には、大きさ 2~3 μ m 程度のブリスタが発生していることが確認された。

また、図 6.1(b)および(c)では、W-TiC 試料および W-TaC 試料に、PISCES-A で D プラズマ照射を行った後、表面形態を SEM で観察した結果を示した。D プラズマ照射後の TFGR-W 試料の表面には、どちらも 1~2 μ m 程度の大きさのブリスタが発生していること

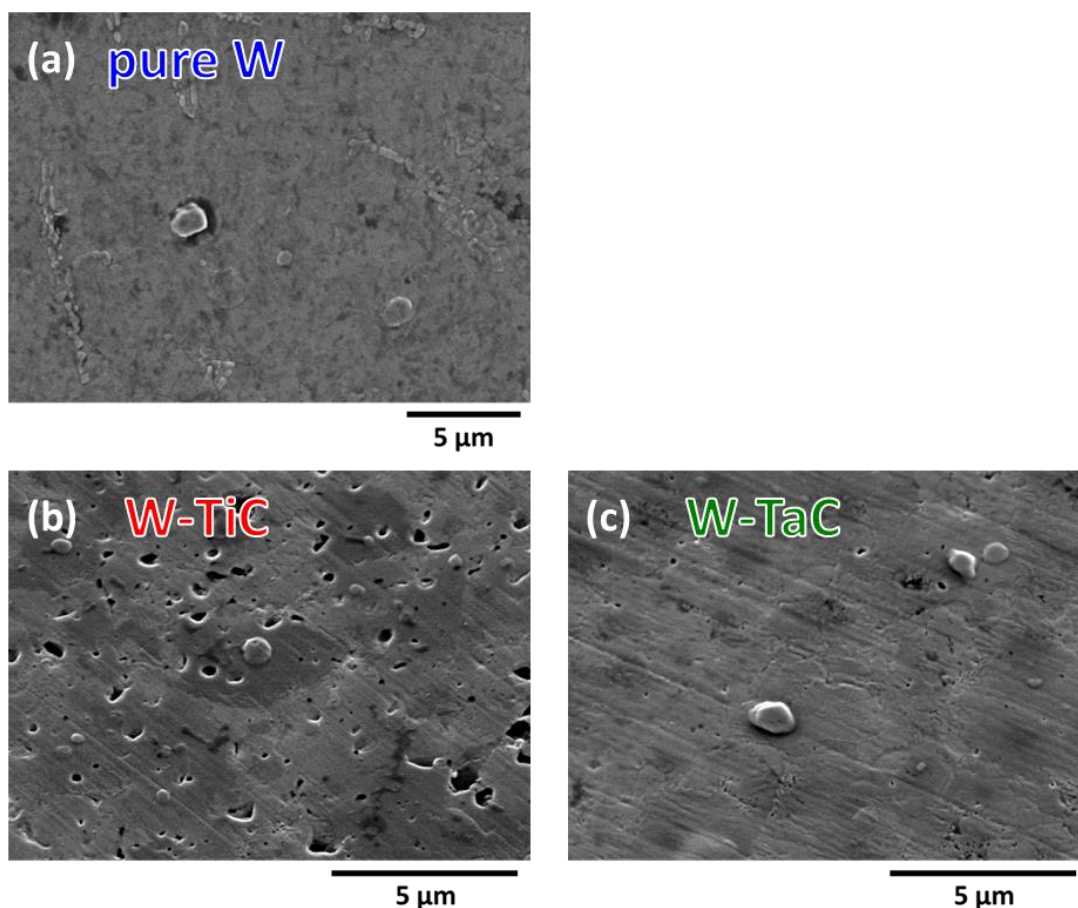


図 6.1 D 照射後のタングステン試料表面
(a) pure W 試料、(b) W-TiC 試料、(c) W-TaC 試料

が確認された。この SEM 画像は試料を 45° 傾けて撮影しているため、凸部のブリスタについては上側が白く映る。反対に、凹部は下側が白く映るが、W-TiC 試料の場合 (図 6.1(b))、表面に 1~2 μm 程度の小孔が多数観察され、その内部は黒く映っている。黒く映っている部分は添加物である TiC だと考えられ、D プラズマ照射により表面の TiC が損耗を受けた結果、多数の小孔が形成されたと考えられる。

照射条件の違いはあるものの、TFGR-W 表面にも、pure W と同様に、ブリスタが形成されていることが確認できた。ここでは、ブリスタの大きさの違いについて、明確な違いは見られなかった。ブリスタの大きさは、タングステン試料の微細構造に影響を受けるが、D プラズマの照射条件にも強く影響を受けることが分かっている[1]。そのため、図 6.1 からは、ブリスタの大きさについて考察することは難しい。

ブリスタの形成メカニズムについては、先行研究にて議論されており、本論文の第 3 章 3.6 節で述べたとおりである。D 照射によりタングステン試料の結晶粒界に蓄積した D 原子が高密度になると、機械的に弱い結晶粒界に亀裂が発生し、表面が隆起する。その隆起がブリスタとして観察される (図 6.2) [2,3]。

6.4 高フラックス照射が表面形態に与える影響

実験炉 ITER のダイバータ領域では、フラックスの勾配が存在しており、その最大はストライク点で $\sim 10^{24} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ にも及ぶ。そこで、そのストライク点で想定されるフラックス ($\sim 10^{24} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$) を模擬できる Pilot-PSI を用いて、高フラックス照射が表面形態変化に与える影響を調べた。Pilot-PSI では、エネルギー 50 eV、フラックス $\sim 1 \times 10^{24} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、フルエンス $1 \times 10^{26} \text{ D m}^{-2}$ 、照射温度の時間平均は $\sim 573 \text{ K}$ で行った。D プラズマ照射を行った後の pure W 試料および W-TaC 試料の表面形態を SEM で観察し、その結果を図 6.3 に示した。比較のため、ストライク点の周辺領域で想定されるフラックス ($10^{22} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$) を模擬した QST を用いて、照射を行った時の結果も併せて示した。

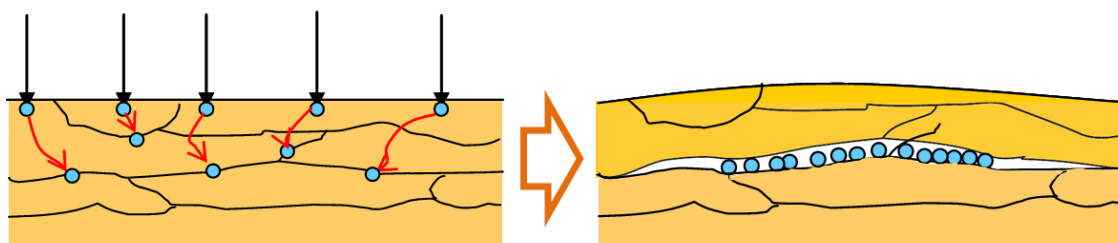


図 6.2 表面ブリスタの形成メカニズム ([2,3]より抜粋)

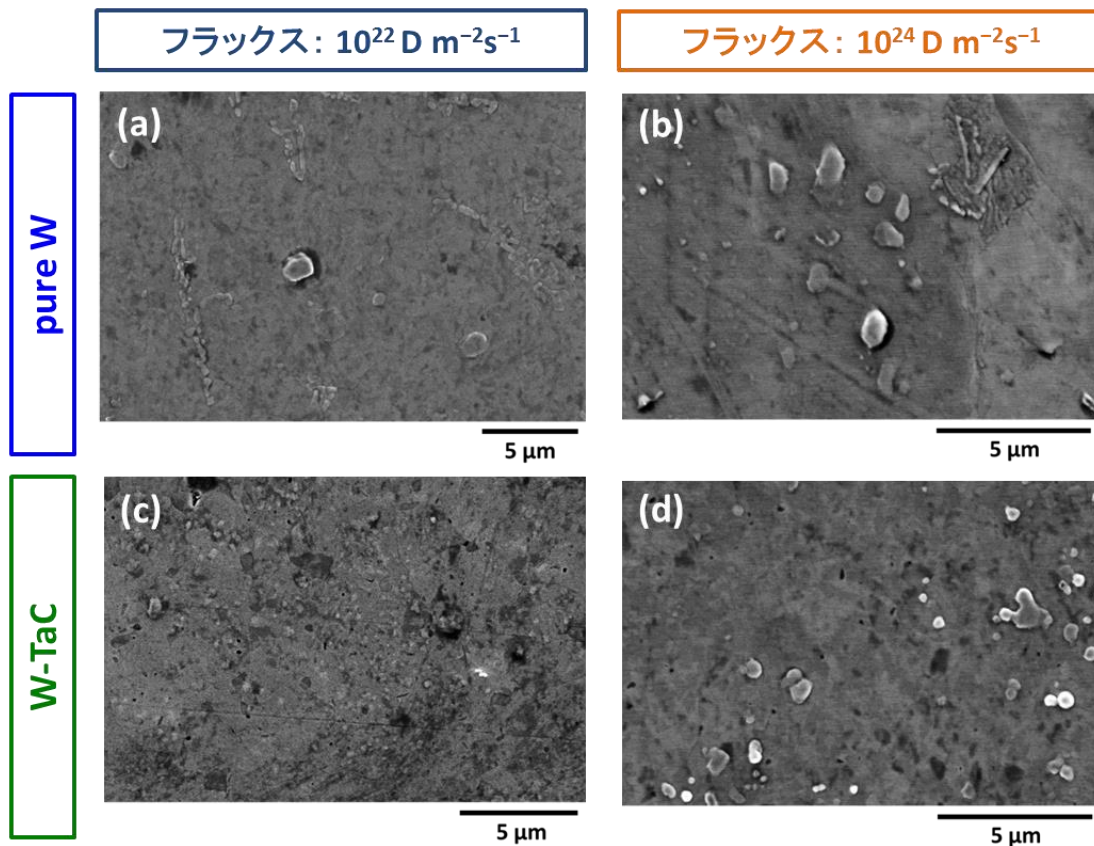


図 6.3 D 照射後のタングステン試料表面

$10^{22} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射後 (a) pure W 試料、(c) W-TaC 試料

$10^{24} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射後 (b) pure W 試料、(d) W-TaC 試料

pure W 試料の場合、 $10^{22} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射後表面 (図 6.3(a)) では、SEM 画像中に数個のブリスタが観察された。ブリスタの大きさは $\sim 2 \mu\text{m}$ であった。これに対し、 $10^{24} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射後表面 (図 6.3(b)) でもブリスタは観察されたが、その密度は $10^{22} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射よりも高くなっている。また、ブリスタの大きさは、どちらも $\sim 2 \mu\text{m}$ 程度であった。

W-TaC 試料の場合、 $10^{22} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射後表面 (図 6.3(c)) では、SEM 画像中に数個のブリスタが観察された。ブリスタの大きさは $\sim 0.5 \mu\text{m}$ であった。これに対し、 $10^{24} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射後表面 (図 6.3(b)) のブリスタ密度は、 $10^{22} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射よりも、高くなっていることが分かった。ブリスタの大きさに関しては、どちらも $\sim 0.5 \mu\text{m}$ 程度であった。

pure W 試料と W-TaC 試料のどちらの場合も、 $10^{22} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射 (図 6.3(a)および(c)) に比べて、 $10^{24} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射 (図 6.3(b)および(d)) の場合の方が、表面に発生するブリスタの密度が高いことが分かった。これは、 $10^{24} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ もの高フラックスで照射することの効果であると考えられる。一方で、ブリスタの大きさに大きな変化は無く、むしろ試料に依存している (pure W 試料で $\sim 2 \mu\text{m}$ 、W-TaC で $\sim 0.5 \mu\text{m}$) ことが確認された。

6.5 高フラックス照射が表面近傍での D 密度に与える影響

前節の結果では、高フラックス照射 ($10^{24} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$) の場合、表面のブリスタ密度が高くなるということが示された。そこで、表面近傍の D 吸蔵量にどのような影響があったかを調べるため、表面近傍 ($<1 \mu\text{m}$) に吸蔵された D の深さ分布を NRA 分析で測定した。その結果を図 6.4 に示した。実際の D 密度は深さ方向に連続的に変化すると考えられるが、図 6.4 においては、NRA 分析の深さ分解能を考慮し (第 4 章 4.6.1 項)、それぞれの深さ領域における D 密度の平均を示している。

pure W 試料の場合 (図 6.4(a))、最表面 $0.0 \sim 1.6 \times 10^{-4} \mu\text{m}$ の D 密度は、 $10^{22} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射で 1.5 at.%, $10^{24} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射で 4.8 at.% であった。それ以深の領域では、D 密度に大きな違いは見られないが、高フラックス照射により最表面で D 密度が高くなることが分かった。

W-TaC 試料の場合 (図 6.4(b))、最表面 $0.0 \sim 1.6 \times 10^{-4} \mu\text{m}$ の D 密度は、 $10^{22} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射で 1.8 at.%, $10^{24} \text{ D/m}^2\text{s}$ 照射で 3.6 at.% であった。また、それより深い領域である $1.7 \sim 8.1 \times 10^{-1} \mu\text{m}$ での D 密度は、 $10^{22} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射で 1.8×10^{-1} at.%, $10^{24} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射で 2.8×10^{-1} at.% であった。すなわち、表面から $\sim 1 \mu\text{m}$ の深さまでの領域では、高フラックス照射の方が D 密度は高いことが分かった。

pure W 試料でも W-TaC 試料でも、高フラックス照射により、表面近傍 ($<1 \mu\text{m}$) に蓄積する D が増加していることが分かった。このことから、図 6.3 の高フラックス照射でブリスタ密度が増加は、表面近傍に蓄積する D の増加に起因していると考えられる。

6.6 表面近傍の亀裂とブリスタの発生

前節の結果では、高フラックス照射により表面近傍 ($<1 \mu\text{m}$) に蓄積する D が増加していることが示された。その深さ領域において、W-TaC 試料の微細構造にどのような変化があったかを調べる分析を行った。図 6.5 には、高フラックス $10^{24} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射後の W-TaC 試料について、その表面近傍の断面を、TEM で観察した結果を示している。TEM 観察をするに当たり、集束イオンビーム (Focused Ion Beam ; FIB) による試料の加工の際に、表面の損傷を防ぐ目的で炭素の保護膜をコーティングしている。その保護膜が、図 6.5 中の試料表面上に白く映って見えている。

図 6.5 には、試料表面から深さ $\sim 0.5 \mu\text{m}$ の所に、粒界に沿った亀裂が発生していることが確認された。この画像では、亀裂の上部にわずかな表面の隆起が確認され、ブリスタの発生の初期段階だと考えられる。この亀裂は、結晶粒界に蓄積する D がガス分子を形成し、結晶粒界に応力 (ガス圧) を及ぼした結果、発生したと考えられる。このような亀裂の発生に起因して、図 6.3(c) に示されたような、ブリスタが発生しているものと考えられる。一般に、タングステン材料表面のブリスタの直下には、亀裂並びに空洞が観察される [2-4]。

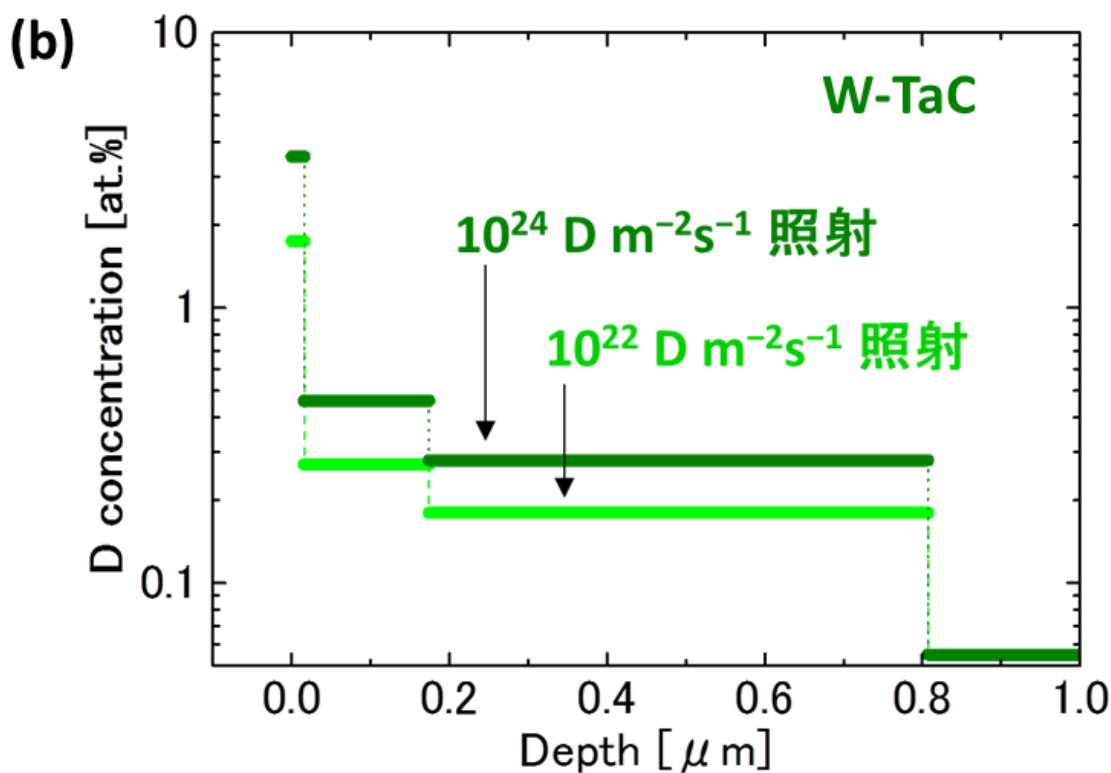
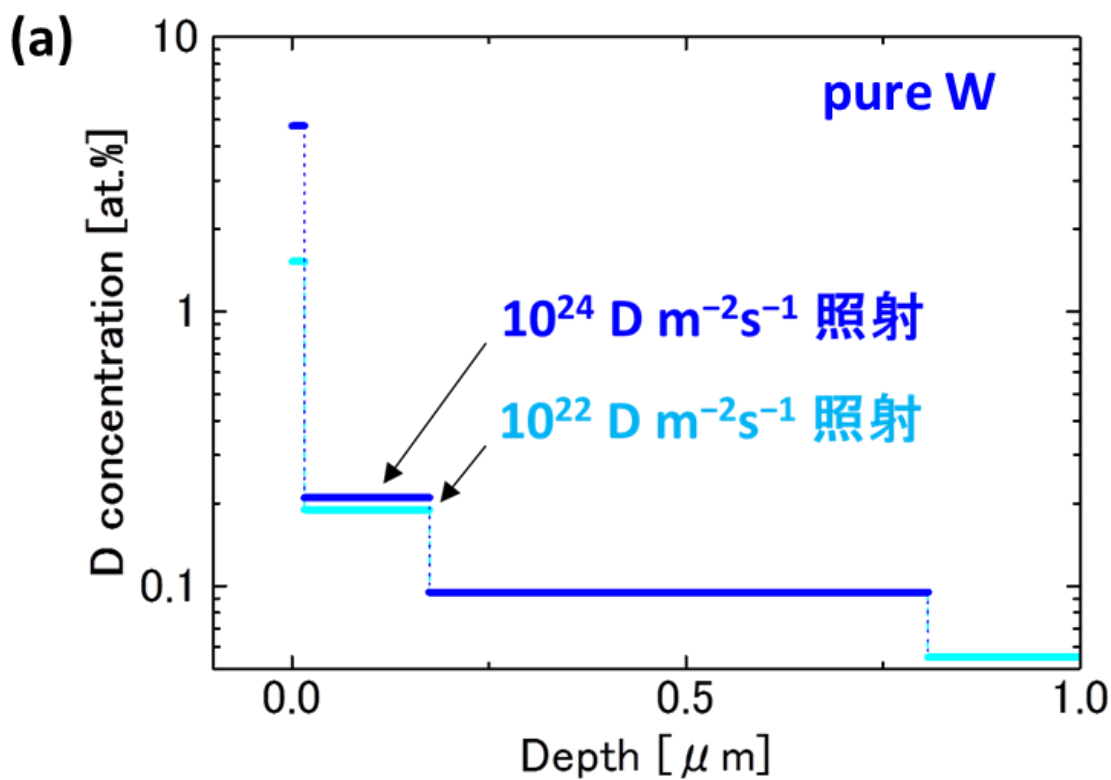


図 6.4 $10^{22} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射および $10^{24} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 照射後試料の表面近傍の D 密度
 (a) pure W 試料、(b) W-TaC 試料

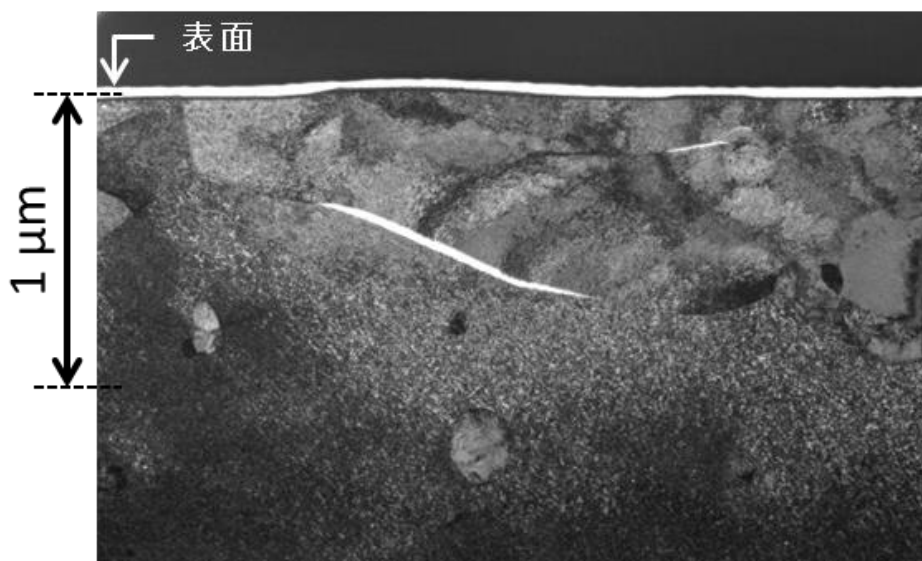


図 6.5 $10^{24} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 照射後 W-TiC 試料の表面近傍の微細構造

第 5 章にて TFGR-W では D は結晶粒界に吸蔵されることが示されており、今回の高フラックス照射でも、D は結晶粒界に蓄積していると考えられる。ただ、前節で示されたように表面近傍で蓄積する D は高フラックス照射で顕著に増加する。ここで、タングステン中の D 原子と空洞中の D_2 分子ガスには、以下のジーベルツの法則が成り立っていると考えられる。

$$C = S \cdot \sqrt{P} \quad (6.1)$$

C : タングステン中の D の濃度 [m^{-3}]

S : 溶解定数 [$\text{m}^{-3} \text{ Pa}^{-1/2}$]

P : 空洞中での D_2 のガス圧 [Pa]

上式は、タングステン中の D 濃度が、空洞中での D_2 のガス圧の 1/2 乗に比例していることを示している。すなわち、高フラックス照射により D が高密度になると、空洞に析出する D_2 分子は増加すると考えられる。その結果として、高密度でブリスタが発生したと考えられる。

図 6.3 に示されたように、ブリスタの大きさは pure W 試料では $\sim 2 \mu\text{m}$ 、W-TaC 試料では $\sim 0.5 \mu\text{m}$ であることが分かっており、W-TaC 試料の方が pure W 試料よりもブリスタは小さい。その理由について考察する。先行研究にて、亀裂の大きさとブリスタ密度には相関があることが分かっている[5]。W-TaC 試料の場合、微結晶であるため、結晶粒界の長さは pure W に比べて短い。そのため、結晶粒界に発生する亀裂も短くなると予想され、発生するブリスタも小さくなったと考えられる。すなわち、W-TaC 試料の微結晶性に起因して、ブリスタが小さくなったと考えられる。

6.7 粒界強化処理を施した TFGR-W 試料

前節で結晶粒界に沿う亀裂とブリスタの発生の関係について述べた。ここでは、結晶粒界の強度とブリスタ密度の関係について調べるため、粒界強化の加工処理を施した W-TiC 試料でブリスタ密度を調べる実験を行った。

TFGR-W 試料の製造工程で、熱間等方圧加圧法 (HIP) を行うが、その時の圧力を 0.2 GPa から 1 GPa に変化させると、試料の破壊強度が上昇することが報告されている (図 6.6) [6]。これは、結晶粒界への添加物の析出が促進されている、もしくは、結晶粒界中の残留気孔が減少することにより、達成されていると考えられる。TFGR-W 試料の機械的強度は、どれ程粒界強度が強化されたかに依存するため、HIP を 1 GPa で行うことにより粒界強度が増加していると考えられる。HIP 時の圧力が 1 GPa (超高压 HIP) の W-TiC 試料と、0.2 GPa (通常 HIP) の W-TiC 試料に、PISCES-A 装置で D プラズマ照射を行った。照射条件は、エネルギー 100 eV、フラックス $\sim 10^{21} \text{ D m}^{-2}\text{s}^{-1}$ で行った。フルエンス $2 \times 10^{25} \text{ D m}^{-2}$ 、照射温度 573 K で行っている。D プラズマ照射後、表面形態の観察を行った結果を図 6.7 に示す。また、ブリスタ密度の算出には、SEM で倍率 8000 倍の写真を 400 枚観察し、その画像に含まれるブリスタの数の平均をとった。

通常 HIP の W-TiC 試料の場合 (図 6.7(a))、D プラズマ照射後表面にブリスタの発生が確認された。ブリスタのサイズは $\sim 0.5 \mu\text{m}$ で、ブリスタ密度は $7.0 \times 10^{-3} \mu\text{m}^2$ であることが分かった。超高压 HIP の W-TiC 試料の場合も (図 6.7(b))、ブリスタの発生が確認され、そのサイズは $\sim 0.5 \mu\text{m}$ であった。しかし、その密度は $0.3 \times 10^{-3} \mu\text{m}^2$ であった。

どちらの W-TiC 試料の表面にもブリスタが観察されたが、その密度は超高压 HIP 処理を

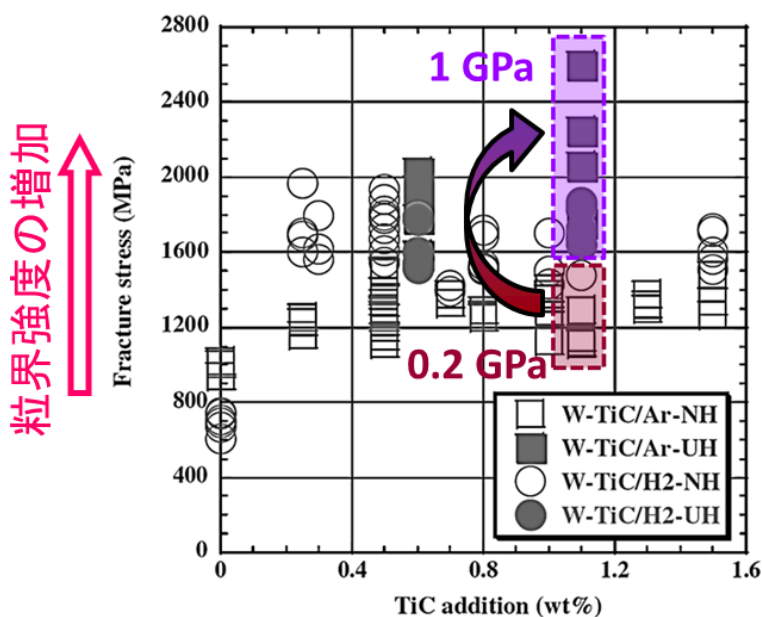


図 6.6 超高压 HIP による破壊強度の増加 ([6]を基に加筆)

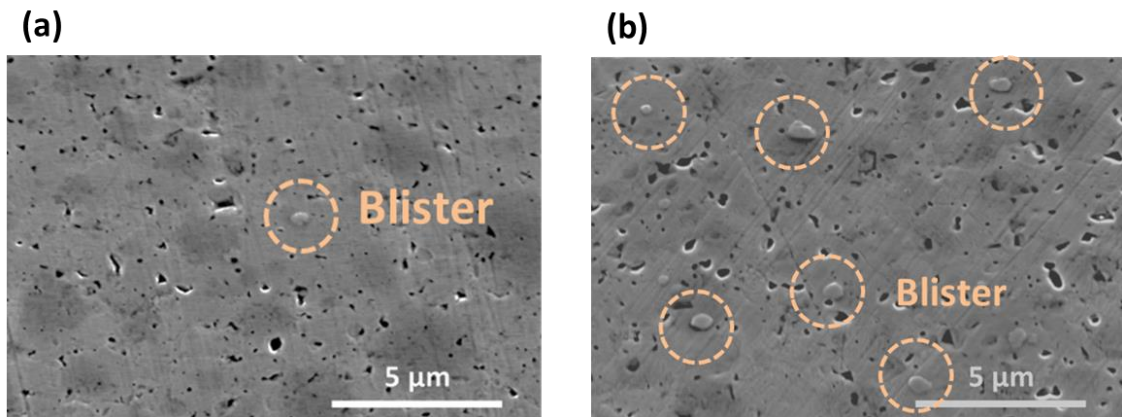


図 6.7 D 照射後の W-TiC 試料の表面形態変化
(a) 超高压 HIP、(b) 通常 HIP

施した試料の方が 1 桁以上低くなることが分かった。この結果は、粒界強化によりブリスタの発生を低減できることを示唆している。

これらの試料について、昇温脱離分析 (TDS 分析) を行い、D 吸蔵量を測定した。その結果を図 6.8 に示す。昇温脱離スペクトルにおいて、どちらの試料も ~750 K にピークを持つが、その高さは大きく異なっている。通常 HIP の W-TiC 試料よりも超高压 HIP の W-TiC

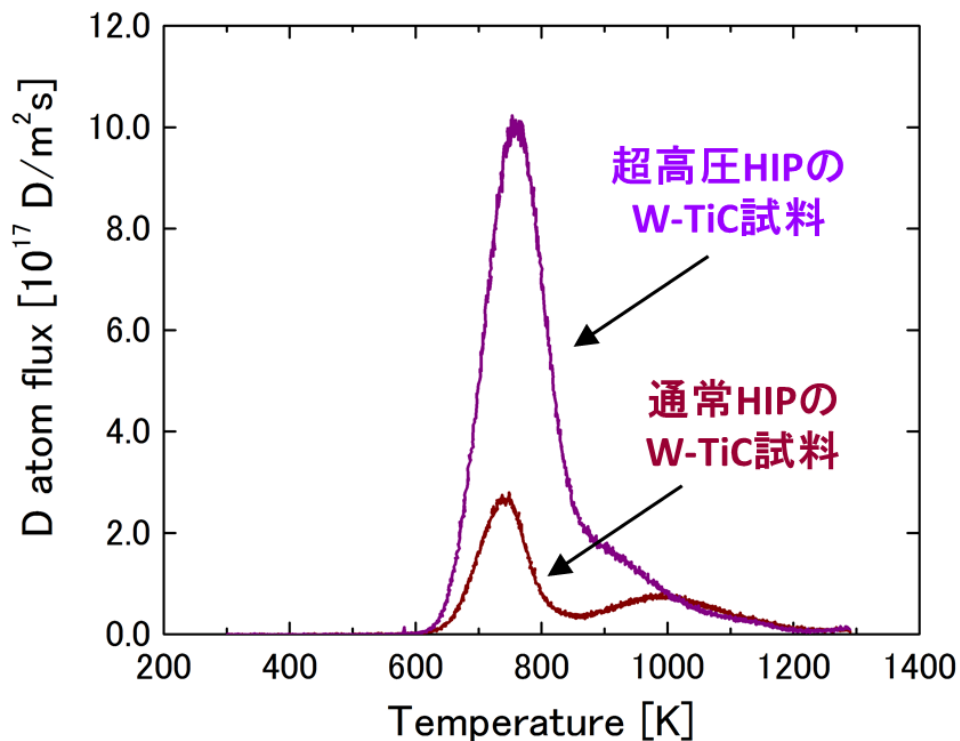


図 6.8 超高压 HIP と通常 HIP の W-TiC 試料からの
D 昇温脱離スペクトル

試料の方がピークは大きくなっていることが分かる。第5章5.4節にて、このピークは結晶粒界にトラップされたDの脱離であることを示した。すなわち、ブリスタが形成されることで、結晶粒界に吸蔵されるDが減少しており、そのような機構が存在する可能性を示唆している。その機構として、(i) 結晶粒界に吸蔵されていたDが脱離する、(ii) 発生した亀裂がDの内部拡散の障壁となっている、の2点が考えられる。また、D総吸蔵量は、通常HIPのW-TiC試料は $4.5 \times 10^{20} \text{ D m}^{-2}$ 、超高圧HIPのW-TiC試料は $1.5 \times 10^{21} \text{ D m}^{-2}$ であった。D昇温脱離スペクトルの~750 Kピークの違いに起因して、ブリスタ密度の低い通常HIPのW-TiC試料の方が、D総吸蔵量は少なくなった。

上記の結果から、超高圧HIPはブリスタ発生の低減には非常に有効であるが、水素同位体吸蔵量が増加するという欠点もあることが示された。

6.8 まとめ

TFGR-Wの表面形態変化を、実験炉ITERのダイバータの模擬照射環境下（フラックス： $10^{21} \sim 10^{24} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ）で調べた結果、以下のことが明らかになった。

- pure Wと同様、TFGR-Wの表面にもブリスタが形成される。
- ダイバータのストライク点で想定されるフラックス（ $\sim 10^{24} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ）では、ブリスタ密度が増加した。これは、高フラックス照射により、表面（ $< 1 \mu\text{m}$ ）付近の結晶粒界に蓄積する重水素（D）が増加し、粒界に沿う亀裂が発生し、ブリスタが発生したと考えられる。
- 結晶粒界の強化によりブリスタの発生が低減されるが、D吸蔵量は増加する。

以上のことから、TFGR-Wをプラズマ対向材料として使用する場合は、

- 従来のタングステン材料と同様、実験炉ITERや原型炉の運転中には、ブリスタが発生し、それに伴う剥離やダストの形成の可能性がある。
- 粒界強化処理を施した材料の方が、表面形態変化を低減できる点で優位である。しかし、水素同位体吸蔵量が増加する懸念がある。

という結論を得た。

参考文献

- [1] L. Buzi, G. De Temmerman, B. Unterberg, M. Reinhart, A. Litnovsky, V. Philipps, G.V. Oost and S. Möller, *J. Nucl. Mater.*, (2014) 316-319.
- [2] Y. Ueda, M. Fukumoto, H. Kashiwagi, Y. Ohtsuka, R. Akiyoshi, H. Iwakiri and N. Yoshida 「Effects of simultaneous impurity ion irradiation on tritium behavior near tungsten surface」 9th International Workshop on Hydrogen Isotopes in Fusion Reactor Materials (2008).
- [3] 福本正勝 「高エネルギー水素イオンで損傷を与えたタンゲステン中の水素同位体挙動に関する研究」 大阪大学大学院 (2009).
- [4] S Lindig, M Balden, V Kh Alimov, T Yamanishi, WM Shu and J Roth, *Phys. Scr.* T138 (2009) 014040.
- [5] M. Fukumoto, Y. Ohtsuka, Y. Ueda, M. Taniguchi, M. Kashiwagi, T. Inoue and K. Sakamoto, *J. Nucl. Mater.* 375,2 (2008) 224-228.
- [6] H. Kurishita, S. Matsuo, H. Arakawa, T. Sakamoto, S. Kobayashi, K. Nakai, T. Takida, M. Kato, M. Kawai and N. Yoshida, *J. Nucl. Mater.* 398 (2010) 87-92.

第 7 章 表面溶融・損耗挙動

7.1 緒言

本章では、TFGR-W の表面溶融・損耗挙動を実験的に調べた結果およびその考察について述べる。溶融・損耗は、熱負荷により表面が高温になることで発生し、材料寿命の低下につながるため重要である。特に、実験炉 ITER のダイバータのストライク点における熱負荷環境で調べる必要がある。その熱負荷を模擬するため、大型トカマクプラズマ装置を用いてプラズマ曝露実験を行った（表面温度：1000 K～融点超）。

プラズマ曝露実験により、TFGR-W 試料の表面を溶融させ、凝固後の表面状態を調べた。凝固層の構造に関して、表面の組成分析およびプラズマ曝露中の不純物放出挙動の結果から、考察を行った。凝固層以外の部分において、微細構造の変化を調べる分析も行った。また、表面が溶融しない条件でのプラズマ曝露も行い、表面近傍の微細構造の変化について調べた。

これらの実験・分析結果から、プラズマ対向材料として TFGR-W を使用する場合の評価について、水素同位体吸蔵特性の観点から述べた。

7.2 実験概要

ドイツ・ユーリッヒ研究開発センターの大型トカマクプラズマ装置 TEXTOR を用いて、TFGR-W 試料を重水素 (D) のエッジプラズマに曝露する実験を行った。本研究では、W-TiC 試料および W-TaC 試料をそれぞれ 2 つずつ用意した。プラズマ曝露実験では、表面を溶融させる条件での実験（以下では溶融実験と表記）と、溶融させない条件での実験（以下では損耗実験と表記）の 2 種類を行った。試料はグラファイト製リミターの傾斜角 36° の屋根部に、モリブデン製の 2 つのネジで固定されている（図 7.1）。リミターは真空容器の下方から挿入され、徐々にコアプラズマに近い方へ上昇させた。試料がプラズマから受ける熱負荷はリミターの位置 r によって決まり、例えば $r=46.2$ cm の場合、 ~ 45 MW m^{-2} であることが分かっている [1]。本研究において、溶融実験では試料表面が溶融するまで、損耗実験では目標温度（タングステンの融点より低い温度： ~ 1700 K）に到達するまで、リミターの位置調整を行った。プラズマ曝露中、試料表面の 2 次元温度分布は赤外線カメラで測定し、試料表面からの粒子の放出は分光計で測定した。TEXTOR における D プラズマは、主半径 $R=1.75$ m、小半径 $a=0.47$ m であり、本研究のプラズマパラメータは、プラズマ電流 $I_p=350$ kA、トロイダル磁場 $B_T=2.25$ T、電子密度 $n_e=3.5 \times 10^{19}$ m^{-3} 、中性粒子による加熱パワー $P_{NBI}=1.2$ MW に設定した。本実験のみ、試料のサイズは $\phi 20$ mm \times 2 mm である。

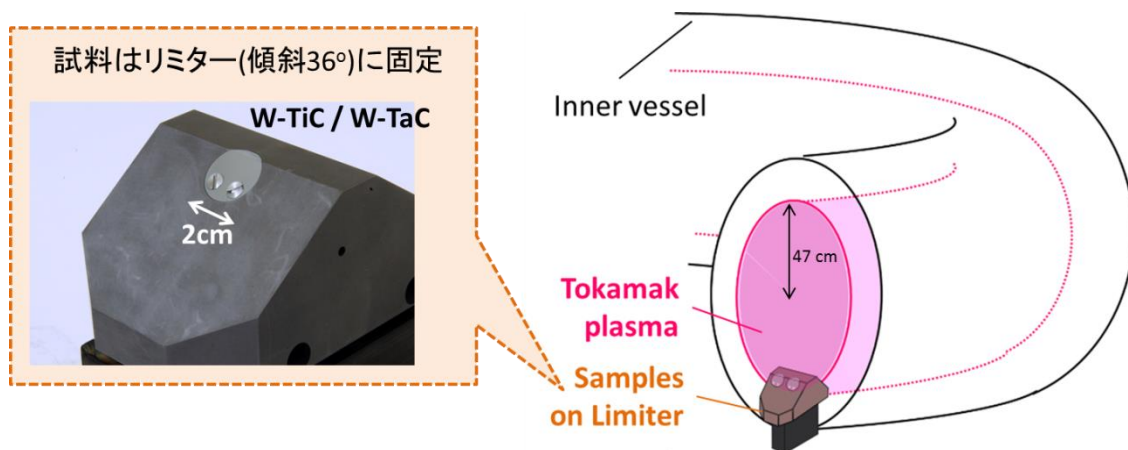


図 7.1 大型トカマク装置 TEXTOR のプラズマ曝露実験概要

プラズマ曝露後の試料に対して、様々な表面分析を行った。表面の粗さプロファイルはデジタル顕微鏡で、表面の微細構造は走査型電子顕微鏡 (SEM) で、表面近傍の断面観察は透過型電子顕微鏡 (TEM) で、表面の組成分析は X 線回折法 (XRD) を用いて行った。

7.3 プラズマ曝露時の表面温度

溶融実験・損耗実験において、それぞれの W-TiC 試料及び W-TaC 試料の、プラズマ曝露中の表面温度について説明する。図 7.2 に、赤外線カメラで TFGR-W 試料の表面温度を測定した結果を示した。溶融実験では試料表面が溶融した時の放電、損耗実験では目標温

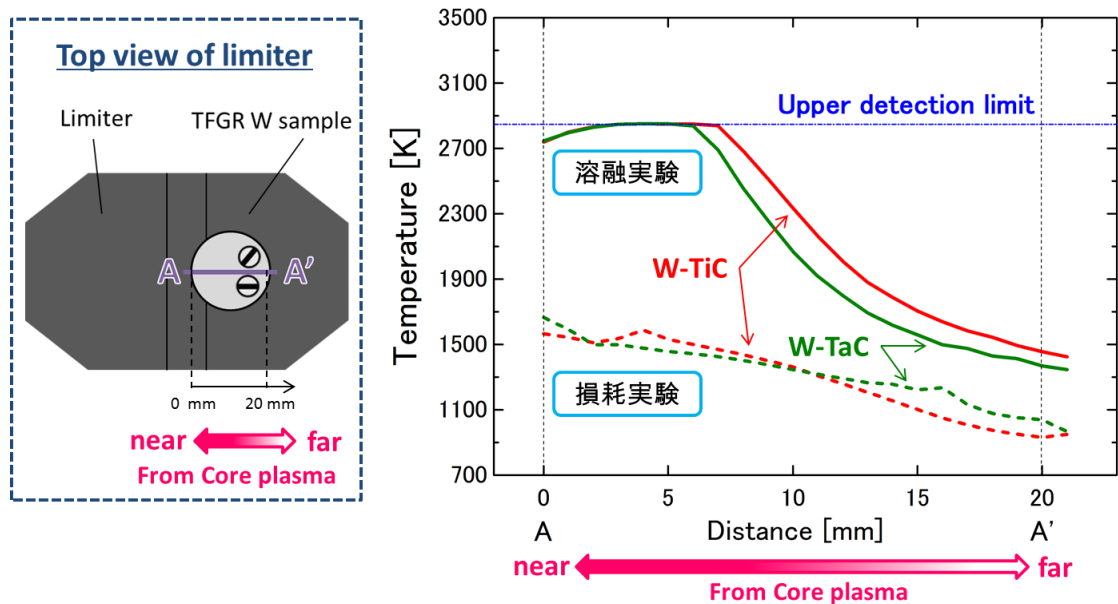


図 7.2 プラズマ曝露中の TFGR-W の試料の表面温度

度である~1700 K に到達した時の放電について記載しており、どちらもプラズマ曝露開始~3.5 s 後に試料の表面温度は最大に達しており、その時の試料表面の温度分布を図 7.2 に示している。

全ての実験・試料について、試料表面に温度勾配が発生していることが確認された。これはリミターが傾斜していることに起因しており、コアプラズマに近いリミター上部の方（図 7.2(a)中の点 A）がプラズマから受ける熱負荷は大きく、試料の表面温度も高くなっている。反対に、コアプラズマに遠い方（図 7.2(a)中の点 A'）では、試料の表面温度は低くなっている。

損耗実験では、W-TiC 試料及び W-TaC 試料ともに、試料温度は最高で~1700 K まで到達しており、最低でも~1000 K であることが確認された。この放電の時のリミター位置は、 $r=45.7$ cm であった。

熔融実験では、赤外線カメラの測定限界が~2800 K であったため、正確な温度を測定することはできなかったが、最高温度は少なくとも 2800 K 以上で TFGR-W の融点に達していると考えられる。最低温度は~1500 K であった。この放電の時に、試料の表面は熔融しており、リミター位置は $r=46.4$ cm であった。

7.4 プラズマ曝露後の表面変化

熔融実験において、プラズマ曝露中の W-TiC 試料および W-TaC 試料の表面温度は、コアプラズマに近い部分（試料上方）で~2800 K（測定限界値）を超え、熔融が観察された。プラズマ曝露終了後は、試料の表面温度が急激に下降するとともに、熔融部は冷えて凝固層を形成した。W-TiC 試料および W-TaC 試料の凝固層の構造を、それぞれ図 7.3(a)と(b)に示す。どちらの試料も、凝固層は複雑な構造をしており、粗い表面を形成していることが分かった。

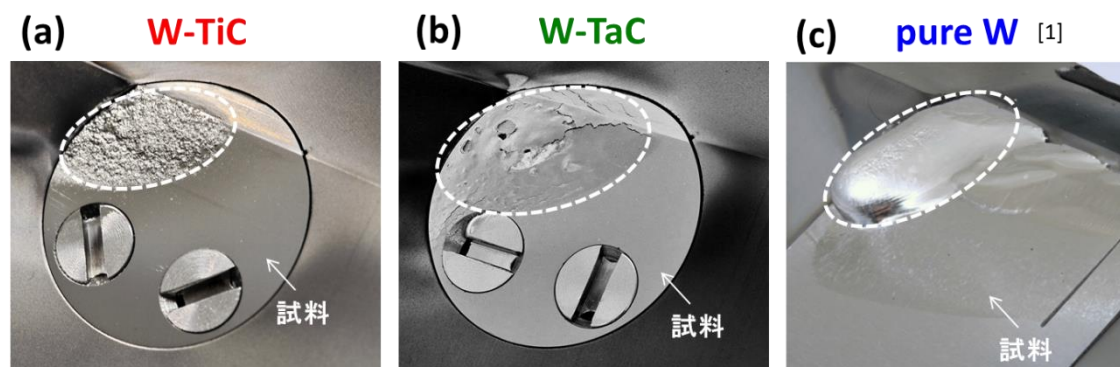


図 7.3 熔融実験後の試料の表面凝固層
(a) W-TiC 試料、(b) W-TaC 試料、(c) pure W ([1]から抜粋)

W-TiC 試料および W-TaC 試料の凝固層について、表面の粗さプロファイルを測定するために、光学顕微鏡であるデジタル顕微鏡を使用した。その結果を図 7.4 に示す。W-TiC 試料 (図 7.3(a)) では、溶融していない平滑部に比べ、凝固層は ~ 0.5 mm 隆起しており、その表面には大きさ ~ 0.1 mm の微小な凹凸が多数観察された。W-TaC 試料の凝固層 (図 7.3(b)) は、ドーム状の構造があり、溶融していない平滑部よりも ~ 0.5 mm 隆起している。その中心付近には、 ~ 0.3 mm の小孔が観察された。また、多数の亀裂の発生も確認され、その長さは ~ 1 cm に及ぶものもある。pure W (純度: 99.9999%) に関しては、J.W. Coenen らが同様の溶融実験を行っている [1]。その時のリミター位置は $r=46.2$ cm で、プラズマ曝露中には試料表面に ~ 45 MW m $^{-2}$ の熱負荷が与えられていたと予想される。その時の凝固層の構造を図 7.3(c) に示す。pure W の凝固層は数 mm 程度隆起しているが、TFGR-W 試料とは

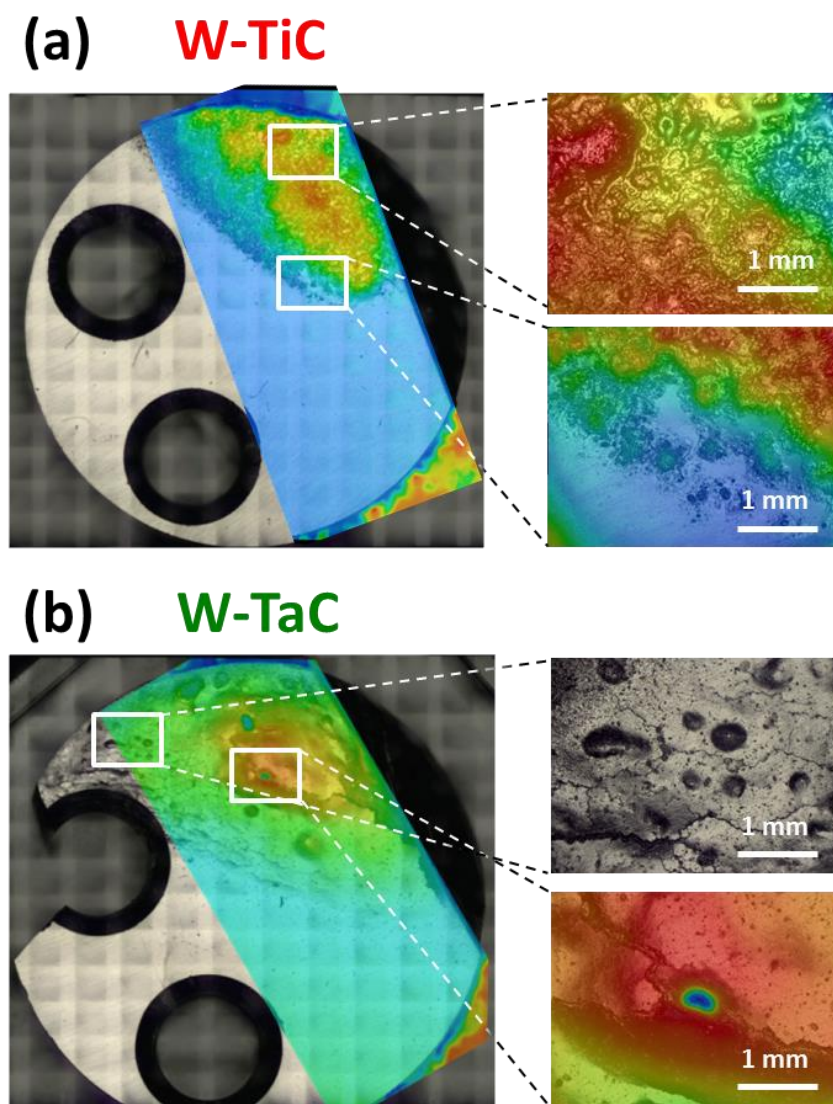


図 7.4 溶融実験後の TFGR-W 試料の粗さプロファイル
(a) W-TiC 試料、(b) W-TaC 試料

異なりその表面に凹凸は少なく、表面粗さは低い。このことから、TFGR-W 試料が熔融すると、表面に粗い凝固層を形成することが分かった。この粗い凝固層により、放電が繰り返されて熱負荷を受けると、試料表面の損耗が促進される可能性がある。

これに対し、損耗実験では、W-TiC 試料および W-TaC 試料の表面温度は、コアプラズマに近い部分（試料上部）において~1700 K まで達していることが観測された。曝露終了後の試料の表面状態を、図 7.5 に示す。どちらの試料の表面も、かなり平滑で、プラズマ曝露前と比べても大きな違いは観察されなかった。デジタル顕微鏡で粗さプロファイルを観察しても、粗さ分解能（~10 μm と考えられる）を下回っていた。このプラズマ曝露の条件では、試料の表面状態に大きな変化は及ぼさないということが分かった。

7.5 プラズマ曝露後の表面組成の変化

熔融実験および損耗実験後の、W-TiC 試料と W-TaC 試料について、XRD で表面の組成分析を行った結果を図 7.6 に示す。図 7.6(a)は熔融実験・損耗実験後の W-TiC 試料について、図 7.6(b)は熔融実験・損耗実験後の W-TaC 試料について示した。

TFGR-W 試料の母相であるタングステン (W) は、XRD スペクトルにおいて 2θ 値で、結晶方位が(110)面のものが 40° 、(200)面が 58° で検出されている。他のどの組成成分よりも突出して高いピークが検出された。

損耗実験後の W-TiC および W-TaC 試料においては、添加物 TiC および TaC の存在がはっきりと確認された。XRD スペクトルにおいてその 2θ 値は、TiC の場合、(111)面が 36° 、(200)面が 42° 、(220)面が 61° で検出された。また、TaC の場合、(111)面が 35° 、(200)面が 43° 付近、(220)面が 60° で検出されている。

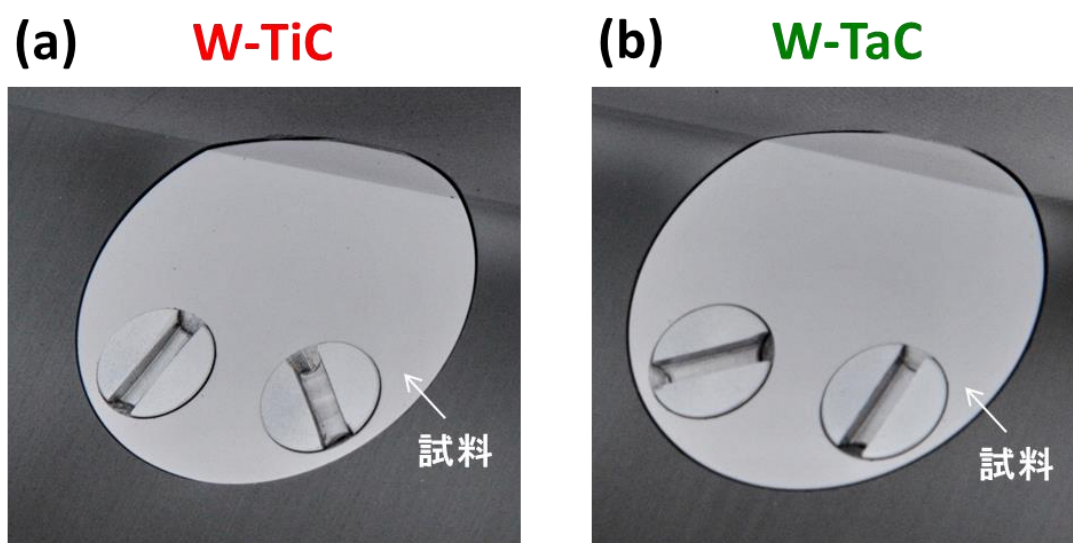


図 7.5 損耗実験後の試料の表面状態
(a) W-TiC 試料、(b) W-TaC 試料

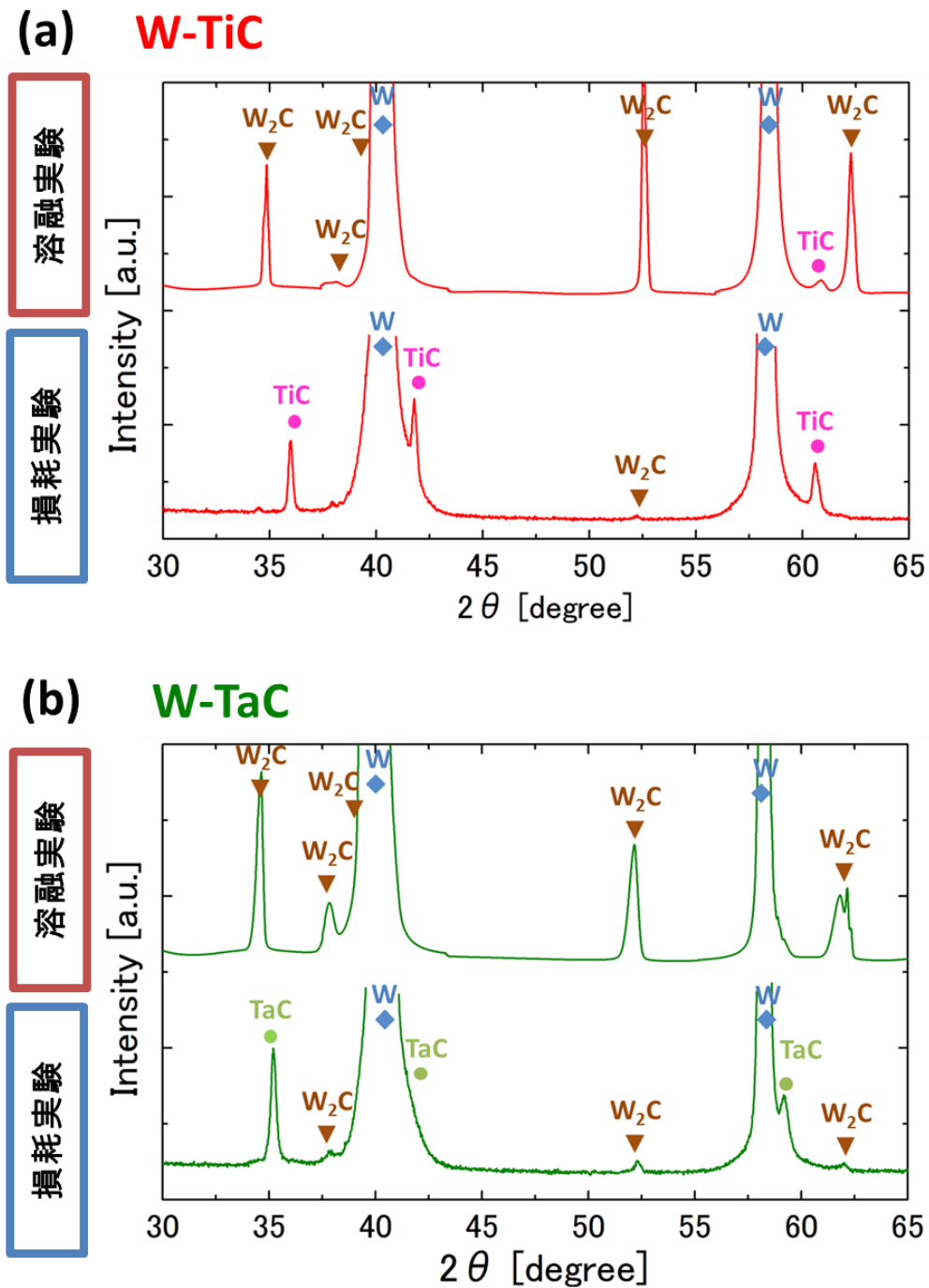


図 7.6 XRD による表面分組成析の結果
(a) W-TiC 試料、(b) W-TaC 試料

これに対し、溶解実験後の W-TiC および W-TaC 試料では、TiC および TaC はわずかに計測される程度で、劇的に減少していることが分かった。その代り、タングステンカーバイド (W_2C) の存在を確認することができた。XRD スペクトルにおいてその 2θ 値は、(110) 面が 35° 、(112)面が 53° 、(300)面が 62° で検出されている。

溶融・凝固後の試料表面に添加物 TiC と TaC が消失し、W₂C が存在していることは、プラズマ曝露による溶融・凝固の過程で添加物である TiC および TaC が分解し、炭素 (C) 原子が TFGR-W 試料の母相である W と結合したことを示唆していると考えられる。

7.6 プラズマ曝露中の Ti の放出

損耗実験時の W-TiC 試料について、プラズマ曝露中にチタン (Ti) の放出が確認された。

図 7.7 は、プラズマ曝露中において、分光計測による Ti の放出強度の時間変化を表したグラフである (スペクトル線 399 nm)。曝露開始後、試料の中心付近の表面温度が 1373 K に達した~3.0 s から Ti の放出が始まり、~4.5 s で試料の表面温度が最大の 1573 K に達した時に放出強度も最大になった。これは、プラズマ曝露により、添加物 TiC に含まれる Ti 原子が放出されていると考えられ、TiC が分解されていることを示唆している。TiC の融点は~3500 K であることや、TFGR-W 試料の製造工程で試料温度は少なくとも~1900 K まで上昇していることを考慮に入れると、TiC の分解および Ti の放出は温度上昇による影響ではなく、プラズマ曝露による影響だと考えられる。先行研究において、炭素材料に水素プラズマを照射しながら加熱すると、炭素材料の沸点よりも低い温度で昇華が始まること確認されており (照射促進昇華) [2,3]、今回の場合も TiC が重水素プラズマに照射されることで分解が促進されたのではないかと考えられる。

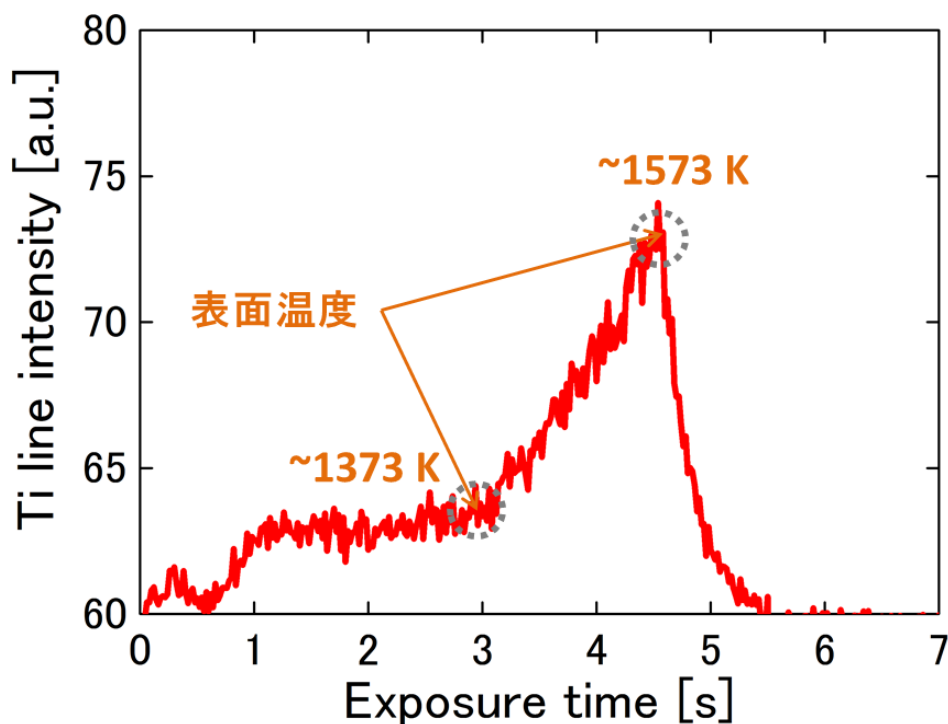


図 7.7 損耗実験においてプラズマ曝露中の W-TiC 試料からの Ti の放出

熔融実験時に Ti 放出の観察は行っていないためデータを示すことはできないが、熔融実験時でも同様に Ti の放出があったと推測される。W-TiC 試料の凝固層では表面に細かな凹凸が観察された。この凹凸が発生した理由として、プラズマ曝露により熔融した TFGR-W 表面で、Ti の放出が突沸のように起こることで、熔融状態の W-TiC 表面が影響を受けたと考えられる。

また、W-TaC 試料に関しては、プラズマ曝露中には Ta の放出は観測されなかった。このような分解挙動の違いが、W-TiC 試料と W-TaC 試料の表面状態の違いに影響したのではないかと考えられる。

7.7 プラズマ曝露後の表面近傍の添加物

図 7.7 の、損耗実験中の W-TiC 試料からの Ti の放出は、TiC が分解していることを示唆している。そのため、表面近傍の TiC を観察するため、微細構造の断面を TEM で観察した結果を図 7.8 に示す。

図 7.8(a)は TEM での観察点を示しており、今回は、プラズマ曝露時の試料表面温度が ~1500 K と ~1000 K に達した部分を TEM 断面観察で選択した。図 7.8(b)および(c)は、それぞれ ~1500 K と ~1000 K の表面近傍の微細構造の TEM 観察結果である。図 7.8(b)と(c)はどちらも、表面近傍 (<10 μm) の領域において <1 μm の空洞が観察された (TEM 写真中の白く光っている部分)。これらの部分には、プラズマ曝露前には TiC が存在していたと推測されるため、プラズマ曝露により TiC が消失したことを示唆していると考えられる。7.6 節でも述べたとおり、TiC の融点 (3443 K) より遥かに低い温度で TiC が分解されており、重水素プラズマが照射されることにより分解や昇華が促進されている (照射促進昇華) と考えられる。損耗実験におけるこの結果から、プラズマ曝露によって表面が熔融しなくても、TiC の消失という点で、W-TiC は D プラズマから損耗を受けていると言える。

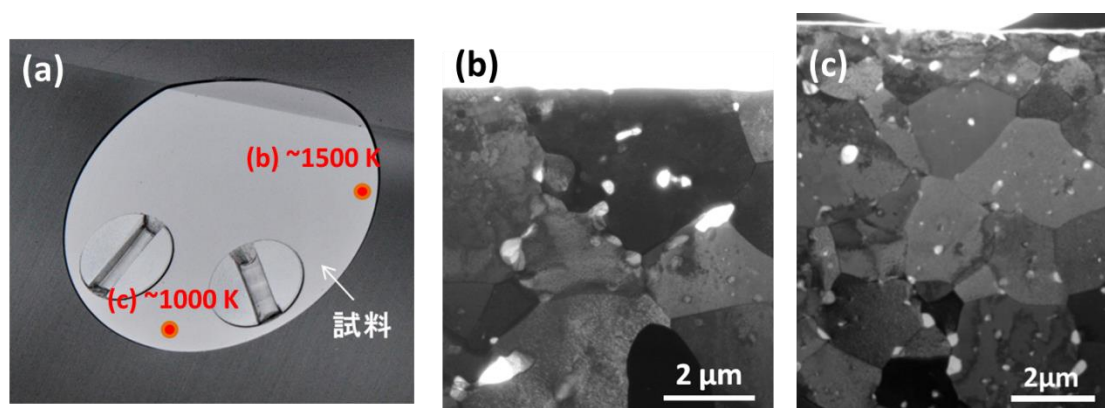


図 7.8 損耗実験後の W-TiC 試料の(a) 表面状態、
表面近傍の微細構造 (b) ~1500 K および(c) ~1000 K

第2章2.4節で述べたように、TiCはTFGR-Wの優れた機械的特性に有益な影響を与えているため、その消失は再結晶の促進や脆性の発現につながる可能性がある。

また、損耗実験後のW-TaC試料の表面近傍の微細構造をTEMで断面観察を行った結果を図7.9に示した。図7.9(a)はTEMでの観察点を示しており、今回はプラズマ曝露時の表面温度が~1700 Kに達した部分をTEM断面観察で選択した。図7.9(b)の表面近傍(<10 μm)において、プラズマ曝露後もTaCが損耗されずに残っていることがはっきりと確認できた。このことから、プラズマ曝露による添加物の損耗の観点では、W-TaCはTaCの損耗をほとんど受けていないため、W-TiCよりも優位であると考えられる。

7.8 プラズマ曝露後の再結晶化

熔融実験後のW-TiC試料およびW-TaC試料において、熔融・凝固層以外の部分での表面の微細構造をSEMで観察した。その結果を図7.10に示した。図7.10(a)にはW-TiC試料、(b)にはW-TaC試料のSEM画像を示した。プラズマ曝露中は、試料表面に温度の勾配が発生していた(図7.2)ため、表面上の2~3点を観察点として選び、プラズマ曝露による温度上昇の影響について考察した。

W-TiCの場合(図7.10(a))、プラズマ曝露中に表面温度が~1700 K、~2100 K、~2300 Kまで達した部分の観察を行った。結晶粒の大きさに注目すると、結晶粒サイズのおおよその平均は、~1700 Kで~1 μm、~2100 Kで~2 μm、~2300 Kで~5 μmであることが分かった。プラズマ曝露中の表面温度が上昇するに従って、結晶粒が成長していることが確認された。これは、表面温度の上昇に伴い、再結晶が起こっていることを示唆している。また、この試料の表面分析の結果では、結晶粒界の強化に有益な添加物TiCの分解・消失が確認されている。そのため、プラズマ曝露による温度上昇ならびに添加物の消失によって再結晶脆化が発現している可能性が考えられる。

また、W-TaCの場合、表面温度が~1300 K、~2100 Kの部分の観察を行った。結晶粒サイズのおおよその平均は、~1400 Kで<1 μm、~2100 Kで>5 μmであることが分かった。

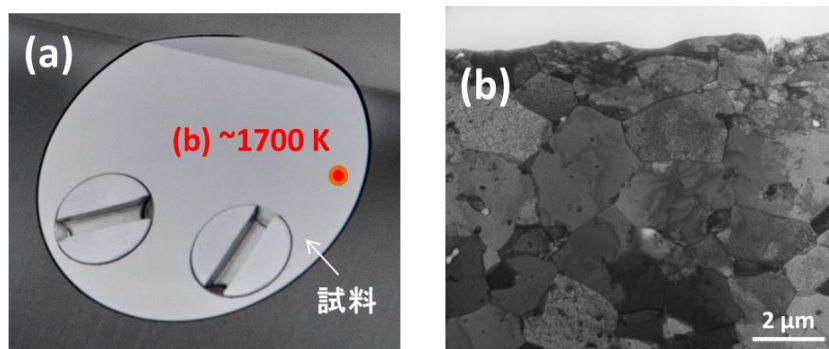


図7.9 損耗実験後のW-TaC試料の(a)表面状態、
(b)~1700 Kの表面近傍の微細構造

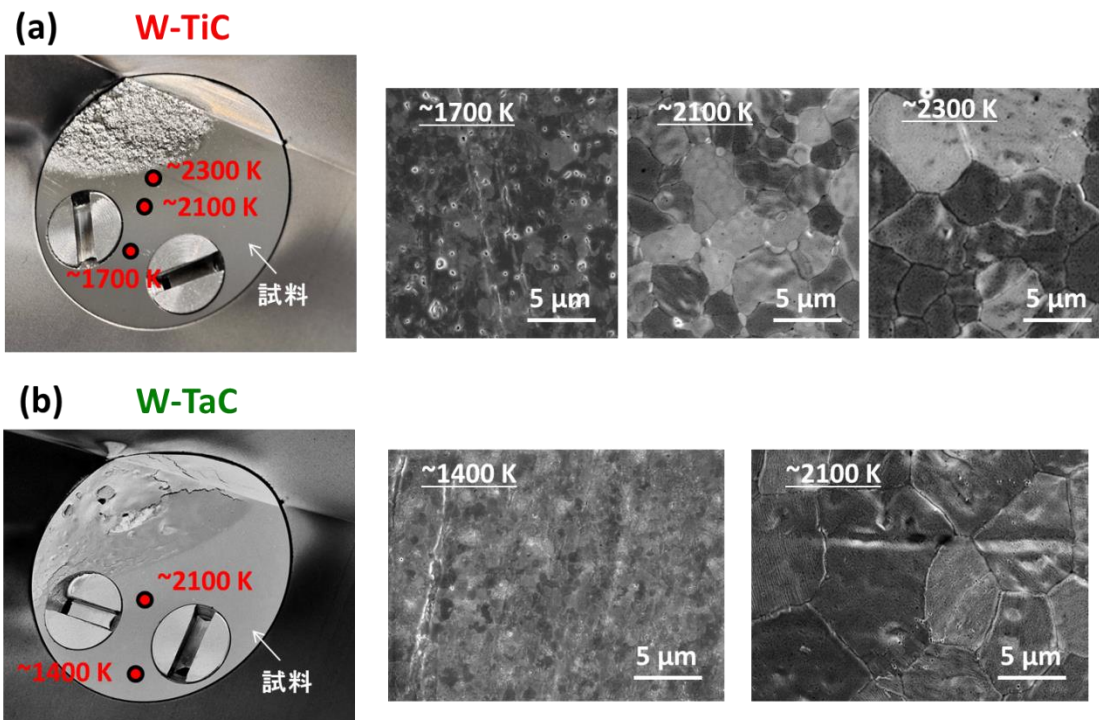


図 7.10 損耗実験後の TFGR-W 試料の表面の微細構造
(a) W-TiC 試料、(b) W-TaC 試料

W-TaC 試料と同様に、W-TaC 試料でもプラズマ曝露による表面温度の上昇により、結晶粒が成長していることが確認された。また、表面分析の結果 (図 7.6)、表面溶融・凝固によって、添加物 TaC の分解・消失が確認されているため、プラズマ曝露による温度上昇ならびに添加物の消失によって再結晶脆化が発現している可能性が考えられる。

7.9 まとめ

TFGR-W の表面溶融・損耗挙動を、実験炉 ITER の過渡的な熱負荷環境下 (熱フラックス： $\sim 45 \text{ MW m}^{-2}$) で調べた結果、以下のことが明らかになった。

- W-TiC 試料および W-TaC 試料を重水素プラズマの高熱負荷に曝すと、表面は溶融する。また、曝露終了後、溶融層は凝固し、粗い表面を形成する。また、凝固層では、添加物 TiC および TaC の分解が確認された。
- 表面が溶融しない条件でのプラズマ曝露では、W-TiC 試料からはプラズマ曝露中に Ti が放出され、表面付近の TiC は損耗を受けている。溶融する条件下でのプラズマ曝露でも Ti が放出されたと考えられ、溶融・凝固層の構造に影響を与えたと考えられる。
- 表面が溶融しない条件でのプラズマ曝露では、W-TaC 試料の TaC は損耗されない。
- 表面が溶融しなくても、表面の結晶粒は再結晶しており、添加物も消失していること

から、機械的特性の低下が懸念される。

以上のことから、TFGR-W をプラズマ対向材料として使用する場合は、

- 表面が溶融する程高い熱負荷を受ける場所での使用は避けるべきである。
- 表面が溶融していなくても、実験炉 ITER や原型炉の運転中には、添加物の消失と再結晶化により、材料寿命が低下する可能性がある。

という結論を得た。

参考文献

- [1] J.W. Coenen, V. Philipps, S. Brezinsek, G. Pintsuk, I. Uytendhouwen, M. Wirtz, A. Kreter, K. Sugiyama, H. Kurishita, Y. Torikai, Y. Ueda, U. Samm and the TEXTOR-Team, Nucl. Fusion 51 (2011) 113020.
- [2] Y. Ueda, K. Shiota, Y. Kitamura, Y. Ohtsuka, M. Isobe and M. Nishikaw, Fusion Engineering and Design 41 (1998) 55-61.
- [3] J. Roth and W. Möller, Nucl. Instrum. Methods B 7/8 (1985) 788.

第 8 章 総括

磁場閉じ込め方式の核融合発電において、「核融合炉の長期的・安定的な運転」を実証するために、プラズマ対向材料として適性の高い先進タングステン材料が開発されている。TFGR-W は、優れた機械的特性を示すことから、実験炉 ITER や原型炉でプラズマ対向材料として使用されることが検討されている。しかし、その水素同位体照射効果については明らかになっていない。

本研究では、TFGR-W の水素同位体照射効果（水素同位体吸蔵特性、表面形態変化、表面溶融・損耗挙動）を実験的に調べて、その基礎的な知見を得ることを目的とした。また、それを基に、TFGR-W をプラズマ対向材料として使用する際の使用条件を水素同位体照射効果の観点から検討することも目的とした。その結果、以下のことが明らかとなった。

第 5 章では、TFGR-W の水素同位体吸蔵特性を、実験炉 ITER の模擬照射環境下（フラックス： $10^{20}\sim 10^{22}$ D m⁻²s⁻¹、表面温度：473~873 K）で調べた結果、以下のことが明らかになった。

- TFGR-W の水素同位体吸蔵量は、pure W に比べて多い。これは、TFGR-W 中のトラップサイト密度が高いことに起因する。
- TFGR-W 中のトラップサイトは、結晶粒界および添加物であると考えられる。
- TFGR-W の水素同位体吸蔵量は温度依存性があり、実験炉 ITER や原型炉で予測されるトリチウム (T) 蓄積量にも影響がある。炉壁温度 573 K（実験炉 ITER の想定）で TFGR-W の T 蓄積量は pure W より多いが、実験炉 ITER の制限値には及ばない程度である。また、炉壁温度 773 K（原型炉の想定）では W-TaC 使用時の方が T 蓄積量は少ないということが分かった。また、燃料効率で問題になる可能性も低いと考えられる。
- 14 MeV 中性子損傷による T 蓄積量の増大は、TFGR-W では大きな問題にならない。また、He 照射により T 蓄積量は減少すると考えられる。

以上のことから、TFGR-W をプラズマ対向材料として使用する場合は、

- 従来のタングステン材料に比べて T 蓄積量は多いが、それが安全面で問題になる可能性は低い。
- 炉壁で高温になる場所には、W-TaC の方が優位である。

という結論を得た。

第 6 章では、TFGR-W の表面形態変化を、実験炉 ITER のダイバータの模擬照射環境下（フラックス： $10^{21}\sim 10^{24}$ D m⁻²s⁻¹）で調べた結果、以下のことが明らかになった。

- pure W と同様、TFGR-W の表面にもブリスタが形成される。
- ダイバータのストライク点で想定されるフラックス（ $\sim 10^{24}$ D m⁻²s⁻¹）では、ブリスタ密度が増加した。これは、高フラックス照射により、表面（ $< 1\ \mu\text{m}$ ）付近の結晶粒界に蓄積する重水素（D）が増加し、粒界に沿う亀裂が発生し、ブリスタが発生したと考えられる。
- 結晶粒界の強化によりブリスタの発生が低減されるが、D 吸蔵量は増加する。

以上のことから、TFGR-W をプラズマ対向材料として使用する場合は、

- 従来のタングステン材料と同様、実験炉 ITER や原型炉の運転中には、ブリスタが発生し、それに伴う剥離やダストの形成の可能性がある。
- 粒界強化処理を施した材料の方が、表面形態変化を低減できる点で優位である。しかし、水素同位体吸蔵量が増加する懸念がある。

という結論を得た。

第 7 章では、TFGR-W の表面溶融・損耗挙動を、実験炉 ITER の過渡的な熱負荷環境下（熱フラックス： ~ 45 MW m⁻²）で調べた結果、以下のことが明らかになった。

- W-TiC 試料および W-TaC 試料を重水素プラズマの高熱負荷に曝すと、表面は溶融する。また、曝露終了後、溶融層は凝固し、粗い表面を形成する。また、凝固層では、添加物 TiC および TaC の分解が確認された。
- 表面が溶融しない条件でのプラズマ曝露では、W-TiC 試料からはプラズマ曝露中にチタン（Ti）が放出され、表面付近の TiC は損耗を受けている。溶融する条件下でのプラズマ曝露でも Ti が放出されたと考えられ、溶融・凝固層の構造に影響を与えたと考えられる。
- 表面が溶融しない条件でのプラズマ曝露では、W-TaC 試料の TaC は損耗されない。
- 表面が溶融しなくても、表面の結晶粒は再結晶している。また、添加物も消失していることから、機械的特性の低下が懸念される。

以上のことから、TFGR-W をプラズマ対向材料として使用する場合は、

- 表面が溶融する程高い熱負荷を受ける場所での使用は避けるべきである。
- 表面が溶融していなくても、実験炉 ITER や原型炉の運転中には、添加物の消失と再結晶化により、材料寿命が低下する可能性がある。

という結論を得た。

上記のように、本研究により、TFGR-Wの水素同位体照射効果（水素同位体吸蔵特性、表面形態変化、表面溶融・損耗挙動）について、基礎的な知見とプラズマ対向材料として使用した場合の評価が明らかとなった。これらのことから、TFGR-Wをプラズマ対向材料として使用した場合、T蓄積量は許容範囲内であることや、表面形態変化を低減するための方策を示した。しかし、表面の溶融・損耗により材料寿命が低下する可能性があり、それを避けられるプラズマ条件であれば、十分使用可能な材料であるということが分かった。更に、TFGR-Wの特長である優れた機械的特性を考慮に入れれば、既存の先進タングステン材料（K-dope WやW-Re合金）よりも、「核融合炉の長期的・安定的な運転」を実証するためのプラズマ対向材料として、非常に有用であるということが示された。

本研究の将来の展望について述べる。

本研究で明らかとなった、TFGR-Wの水素同位体照射効果に関する基礎的な知見は、TFGR-W以外の先進タングステン材料でも適用可能であると考えられる。具体的には、TFGR-Wの水素同位体照射効果は、その微細構造上の特徴（微結晶性や添加物含有）に強い影響を受けることが本研究で示された。そのため、タングステン材料中にTiCやTaC等の遷移金属炭化物（Transition Metal Carbides; TMCs）を含むような合金材料は、TFGR-Wと同様の傾向の水素同位体照射効果を持つと見込まれる。そのため、本研究で得られた基礎的な知見は、タングステン材料に遷移炭化物金属を添加するという方針の材料開発によって、その水素同位体照射効果を推察・評価する上で、極めて重要であると考えられる。

また、本研究では、水素同位体照射効果に関する基礎的な知見を基に、TFGR-Wのプラズマ対向材料としての評価を示した。その評価を検討するために本研究で行った研究手法は、TFGR-W以外の、今後新たに開発される先進タングステン材料にも適用可能であると考えられる。すなわち、本研究の実験手順や手法（照射装置や分析装置を含む）は、新材料の水素同位体照射効果を調べるための、ガイドラインとして広く適用され得る。どのような新材料も、プラズマ対向材料として使用する場合には、水素同位体照射は避けられないため、詳細に調べられる必要がある。その際、本研究の実験手順・手法に倣えば、水素同位体照射効果についての基礎的な知見を得ることができ、更にプラズマ対向材料としての評価を検討することも可能である。

このように、本研究は、「核融合炉の長期的・安定的な運転」を達成し、核融合発電の実現可能性の実証およびその商業的利用のために、材料開発と水素同位体照射効果の両方の分野にとって、非常に重要な結果・手法を示すことができた。

謝辞

本研究は大阪大学大学院 工学研究科 電気電子情報工学専攻 先進電磁エネルギー工学コース プラズマ生成制御工学領域で行われた研究をまとめたものです。本研究の遂行に当たり、充実した研究環境を整えていただき、また、懇切・丁寧にご指導をいただきました大阪大学大学院 工学研究科 電気電子情報工学専攻 先進電磁エネルギー工学コース 上田良夫教授に、感謝の意を表するとともに、厚く御礼申し上げます。

本論文の執筆に当たり、ご指導とご助言を賜りました、兒玉了祐教授、加藤裕史准教授に深く感謝いたします。

大学院在学中に講義でご指導賜りました、飯田敏行名誉教授、田中和夫教授、村上匡且教授、吉村政志教授に深く感謝いたします。

本研究において、研究グループのリーダーとして日ごろから、研究の進め方や研究者としての心構えに至るまで、広くご指導いただきました Lee Heun Tae 助教に心より厚く御礼申し上げます。

研究活動において適切なお助言を賜り、有意義な研究室生活になるようお心遣いを賜りました伊庭野健造助教に深く感謝いたします。

研究活動において適切なお助言を賜りました大塚裕介助教に深く感謝いたします。

熱心なご指導をいただいた特任研究員 西窪明彦博士に感謝いたします。

会計・事務業務を担当していただきました、三和三希子氏に心から感謝いたします。

また、本研究は共同研究で行われており、ご助力いただいた先生方に感謝します。

本研究で使用した TFGR-W を研究開発し、提供いただき、実験結果についてご議論いただきました、東北大学金属材料研究所の栗下裕明准教授に厚く御礼申し上げます。

線形プラズマ装置の操作等行っていただいた日本原子力開発機構トリチウム工学研究グループの林巧博士、山西敏彦博士、小柳津誠博士に感謝します。

透過電子顕微鏡の使用法を懇切丁寧にご教授頂いた九州大学応用力学研究所吉田直亮教授に感謝します。

オランダ基礎エネルギー研究所の Gregory De Temmerman 博士、Thomas W. Morgan 博士に感謝いたします。

ユーリッヒ研究開発センターの Arkadi Kreter 博士、Jan Willem Coenen 博士に感謝いたします。

カリフォルニア大学サンディエゴ校の Russell P. Doerner 博士、西島大輔博士に感謝いたします。

アイダホ国立研究所の Masashi Shimada 博士、Chase N. Taylor 博士に感謝いたします。

本学工学研究科電気電子情報工学専攻先進電磁エネルギーコース 和田隆明氏、大森雅典氏、遠藤博史氏、狩川拓也氏、Peng Han Yee 氏、余美昌氏、首藤健志氏、石田真人氏、上畑和樹氏、添田剛広氏、上西克尚氏、薬師寺高輝氏、山根貴大氏、志田原佑貴氏、原綾音氏、山本真大氏とは同じ研究グループの一員として日ごろから協力し合い、多くのご助力をいただきましたことに御礼申し上げます。特に、昇温脱離分析 (TDS 分析)装置や、研究の進め方について、数多くの助言と助力を賜りました上北一博氏に心より感謝申し上げます。

本学工学研究科電気電子情報工学専攻先進電磁エネルギーコースの、塚谷康輔氏、宮田功一氏、菊繁洋貴氏、奥田啓之氏、嶋田高信氏、浜地志憲博士、三谷在利氏、河合俊昇氏、本庄優太氏、阪本雄祐氏、佐藤大起氏、遠藤晃氏、勝間洋行氏、神田圭祐氏、田中泰史氏、早川雅貴氏、吉川悟氏、井上大輔氏、上田和輝氏、金海浩太氏、志賀紘輝氏、藤本賢介氏、前地剛氏、大森晃平氏、山下直人氏、安藤颯介氏、新谷一真氏、川岸秀彰氏、木村好博氏、田中愛士氏、井上樹氏からは、日常の議論を通じて多くの知識や示唆をいただき、有意義な学生生活にさせていただきました。心から感謝いたします。

最後に、9年間もの大学・大学院生活において、勉学や研究に集中できる環境を支えていただきました、家族に深く感謝いたします。

2017年1月

付録 A 炭素材料のヘリウム吸蔵特性

A.1 緒言

本章では、炭素材料中のヘリウム吸蔵特性について調べた実験結果を述べる。この研究では、プラズマ対向壁への燃料粒子の吸蔵特性について、大型の核融合実験炉と実験室レベルの装置で比較する研究を行っている。その結果を通して、実験室レベルの照射装置を使用して、核融合炉の照射環境を模擬することの妥当性を評価した。A.2 節で研究背景、A.3 節で研究手法、A.4 節で実験結果と考察、A.5 節でまとめについて述べた。

A.2 研究背景

実験炉 ITER の運転初期では、ヘリウム (He) プラズマによる運転が検討されている。その際、燃料粒子である He がプラズマ対向壁に吸蔵される可能性がある。燃料粒子のプラズマ対向壁への吸蔵は、燃料の希釈につながる可能性があるため、その吸蔵特性は詳細に調べる必要がある。

先行研究にて、核融合科学研究所 (National Institute for Fusion Science ; NIFS) の大型ヘリカル装置 (Large Helical Device ; LHD) で He プラズマによる長時間 (~1 時間) 放電が行われた。そこでは燃料粒子であるヘリウムについて、グローバル粒子バランスを調べる研究が行われた[1]。その結果、グラファイト製のダイバータを含む LHD のプラズマ対向壁に、供給したヘリウムの 80%以上が吸蔵されていることが示された。そこで、本研究では、実験室レベルの照射装置を用いて、LHD ダイバータ環境を模擬し、炭素材料中のヘリウム吸蔵特性を調べる実験を行った。その結果に基づいて、LHD のプラズマ対向壁への He 吸蔵における、グラファイト製ダイバータの役割について議論した。また、実験室レベルの照射装置を使用して、核融合炉の照射環境を模擬することの妥当性を評価した。

A.3 実験方法

本研究では、試料として等方性グラファイト IG-380 を使用した (以下、グラファイト試料と呼ぶ)。また、He の照射は、大阪大学上田研究室のイオンビーム照射装置 HiFIT およびプラズマ照射装置 Laplex を用いて行った。照射条件は、HiFIT の場合、エネルギー500 eV、フラックス $\sim 4 \times 10^{19}$ He $\text{m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、フルエンスは $\sim 2 \times 10^{23}$ He m^{-2} と $\sim 2 \times 10^{24}$ He m^{-2} 、照射温度は 373 K と 573 K で行った。また、Laplex の場合、エネルギー250 eV、フラックス $\sim 3 \times 10^{21}$ He $\text{m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、フルエンスは $\sim 1 \times 10^{24}$ He m^{-2} と $\sim 1 \times 10^{25}$ He m^{-2} 、照射温度は 523 K と 903 K

で行った。これらの照射条件は、LHD のダイバータにおける He 照射条件を模擬している。He 吸蔵量は、昇温脱離分析 (TDS 分析) を用いて行った。

また、比較のため、LHD の He 長時間放電で、グローバル粒子バランスの結果についても記載した。

A.4 実験結果と考察

図 A.1 に、HiFIT および Laplex で He 照射後のグラファイト試料における He 吸蔵量を、照射フルエンス依存性として示した。また、比較のために、LHD でのグローバル粒子バランスの結果についても記載した。

照射温度が 903 K の場合を除き、HiFIT や Laplex 照射の結果では、吸蔵率 (= 吸蔵量 / フルエンス) は 0.1~0.5 % に収まることが示された。フルエンスが 10 倍になると、吸蔵量も 10 倍以上になるため、He 吸蔵量に飽和の傾向も見られない。

同様に、グローバル粒子バランスで見積もられる、LHD プラズマ対向壁への He 吸蔵率も 0.1~0.5% の範囲内に収まることが示された。また、放電を繰り返しても (積算フルエンスを増加させても)、He 吸蔵量に飽和の傾向は見られない。これらの結果は上述の、実験室レベルの実験と概ね一致することが示された。

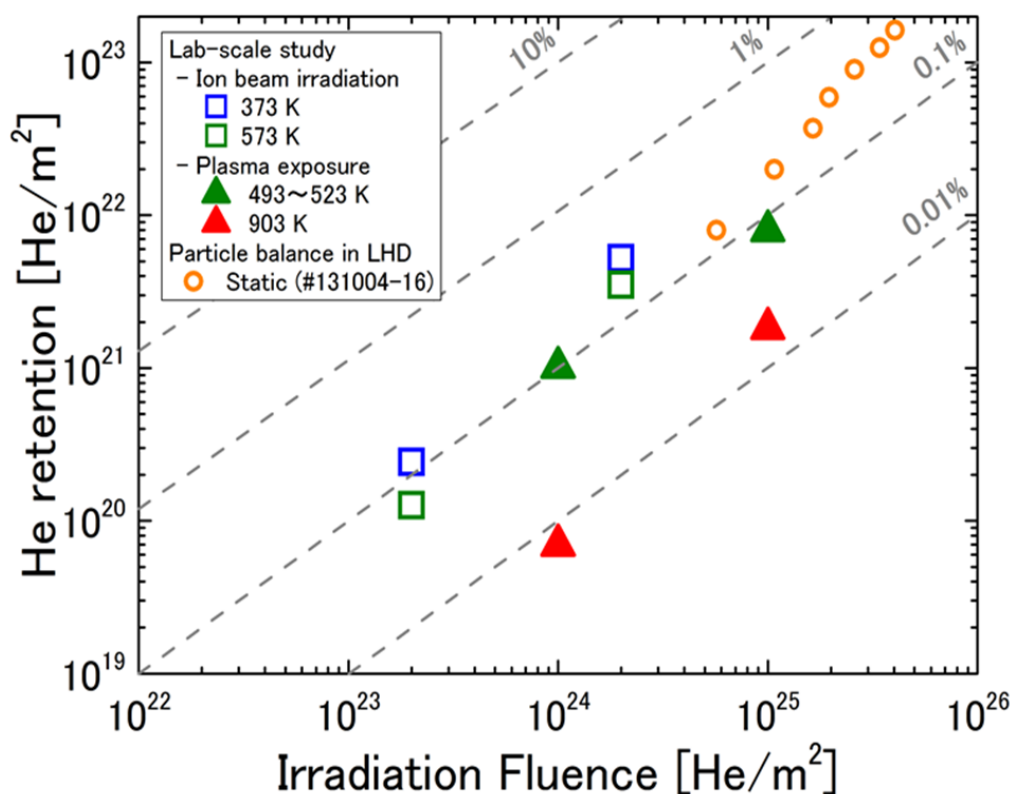


図 A.1 炭素材料中の He 吸蔵量の照射フルエンス依存性

以上のことから、LHD のプラズマ対向壁における He 吸蔵において、グラファイト製ダイバータが果たす役割は大きいと考えられる。

A.5 まとめ

グラファイト試料の He 吸蔵量を実験的に調べた結果、LHD のプラズマ対向壁において想定される He 吸蔵量と概ね一致した。このことから、グラファイト製のダイバータが He 吸蔵に大きな役割を果たしているからだと考えられる。

また、本実験により、実験室レベルの実験結果と核融合実験炉の結果がよく一致していることが示された。そのため、燃料吸蔵特性を調べる研究においては、核融合炉内環境を模擬した実験室レベルの照射装置を使用しても、核融合炉内で起こり得ることを十分に模擬できていることが示された。これは、実験室レベルの研究を行うことの妥当性を示す重要な結果であると言える。

参考文献

- [1] G. Motojima, S. Masuzaki, M. Tokitani, H. Kasahara, Y. Yoshimura, M. Kobayashi, R. Sakamoto, T. Morisaki, J. Miyazawa, T. Akiyama, N. Ohno, T. Mutoh, H. Yamada and LHD Experiment Group, J. Nucl. Mater. 463 (2015) 1080-1083.

付録 B 照射回数とタングステン中の水素同位体吸蔵特性

B.1 緒言

本章では、照射回数の変化がタングステン中の水素同位体吸蔵に与える影響について述べる。実際の核融合炉で断続的な放電を模擬して、タングステンへの断続的な照射が水素同位体吸蔵特性に与える影響を調べた。その結果を通して、実験室レベルで連続照射の実験を行うことの意味や、Pilot-PSI 装置で行われる断続照射が与える影響を考察した。B.2 節で研究背景、B.3 節で研究手法、B.4 節で実験結果と考察、B.5 節でまとめについて述べた。

B.2 研究背景

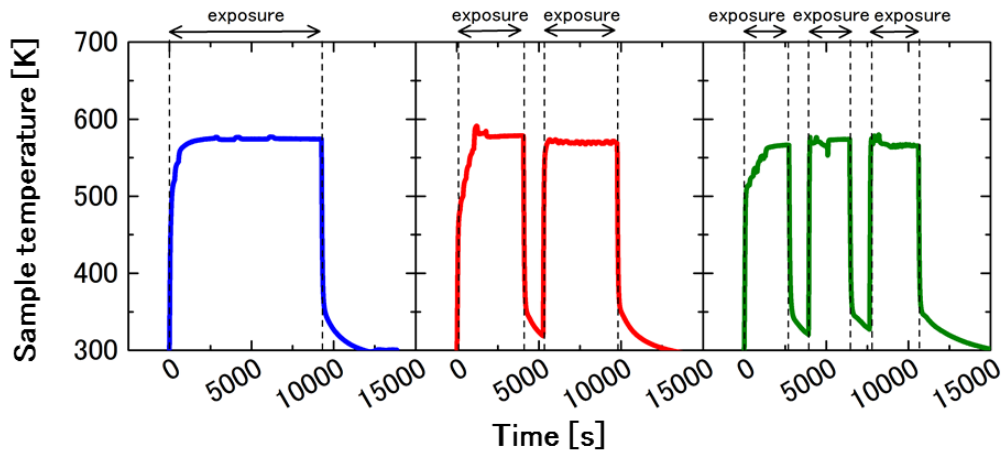
タングステン中の水素同位体吸蔵特性を調べる研究において、実験室レベルの照射装置では、所望のフルエンスに到達するまで連続的に照射が行われる（連続照射）。一方で、実験炉 ITER および原型炉では、断続的な放電が行われるため、タングステンには水素同位体は断続的に照射されることになる（断続照射）。また、Pilot-PSI のような高フラックス照射装置では、照射時の試料温度を保つために、断続的に照射を行ってフルエンスを積算する手法が取られている。

そのため、本研究では、照射フルエンスを統一した上で、照射回数を変化させて実験を行った。その照射回数の変化がタングステン中の水素同位体吸蔵特性に与える影響を調べた。

B.3 実験方法

タングステン試料として、表面を鏡面研磨後、1573 K で熱処理を施した pure W を用意した。その pure W 試料に対して、重水素 (D) プラズマの照射を青森県六ヶ所村の量子科学技術研究開発機構 (QST) の線形プラズマ装置を用いて行った。照射条件は、エネルギー 50 eV、フラックスは $\sim 1 \times 10^{22} \text{ D m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ である。フルエンスを $\sim 1 \times 10^{26} \text{ D m}^{-2}$ に統一し、照射回数を 1~3 回に変化させて照射を行った（それぞれ 1-shot、2-shot、3-shot と呼ぶ）。照射時の試料温度は 573 K と 773 K の実験を行った。実験中の試料の温度変化を図 B.1 に示した。D 吸蔵量の測定は昇温脱離分析 (TDS 分析) を用いて行った。

(a) 照射温度 573K



(b) 照射温度 643K

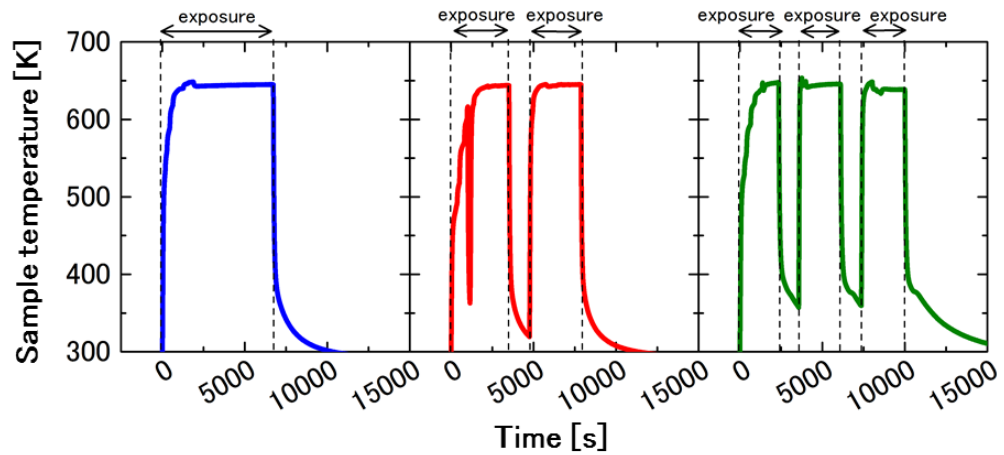


図 B.1 QST 照射中の試料の温度変化
(a) 照射温度 573 K, (b) 照射温度 643 K

B.4 実験結果と考察

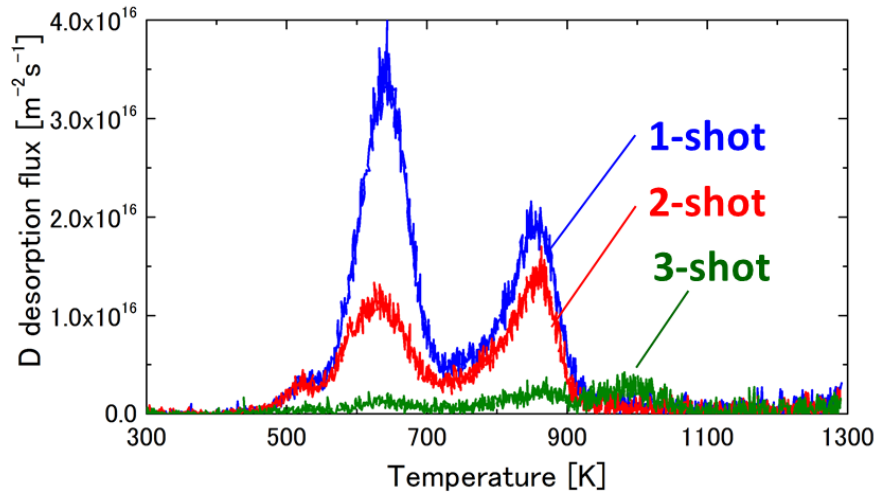
図 B.2 に、D の昇温脱離スペクトルを示した。

照射温度が 573 K の場合 (図 B.2(a))、照射回数が増えると、D 吸蔵量は減少することが示された。1-shot の場合、~720 K ピークと~850 K ピークが見られ、照射回数を重ねると、ピークは減少していく傾向が見られた。

照射温度が 773 K の場合 (図 B.2(a))、照射回数を増やしても、D 吸蔵量に大きな変化は見られなかった。1-shot の場合、~850 K に大きなピークが見られ、照射回数を重ねても、ピークは大きく変化しない傾向が見られた。

これらのことから、連続照射と断続照射の影響は、照射温度に注意する必要がある。高フラックス照射装置である、Pilot-PSI では照射中に試料温度は~673 K まで上昇する。

(a) 照射温度 573K



(b) 照射温度 643K

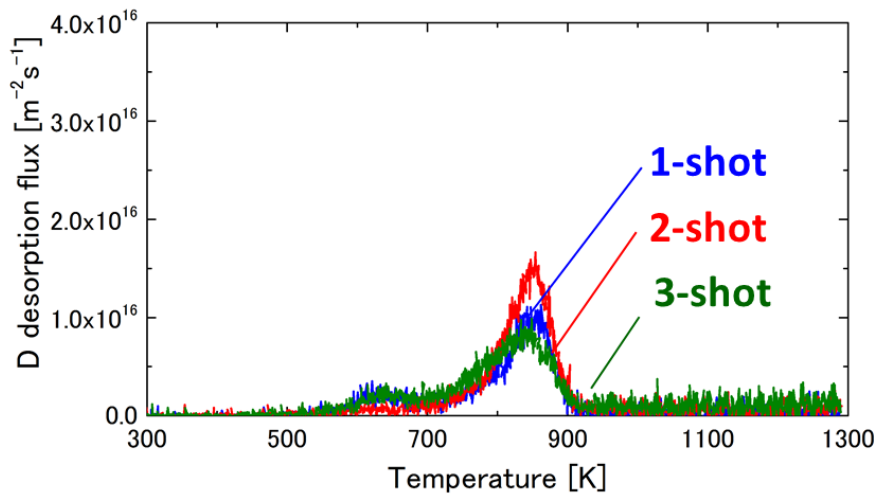


図 B.2 QST 照射後試料の D 昇温脱離スペクトル

(a) 照射温度 573 K, (b) 照射温度 643 K

そのため、断続照射を行っても、D 吸蔵量に与える影響は少ないのではないかと考えられる。また、炉壁温度が 573 K になる実験炉 ITER では、断続照射の影響は無視できないと考えられ、今後、照射回数をもたらすこれらの影響とそのメカニズムを解明する必要がある。

B.5 まとめ

断続照射がタンゲステン中の水素同位体吸蔵特性に与える影響について調べた。その結果、573 K の場合、照射回数が多くなると D 吸蔵量が減少していく傾向が示された。また、照射温度が 773 K の場合は、照射回数が増えても D 吸蔵量に大きな変化は無かった。すなわち、断続照射の場合は、照射温度に注意する必要があるということが示された。

付録 C 核融合反応生成粒子がタングステンの水素同位体 吸蔵特性に与える影響

C.1 緒言

本章では、核融合反応生成粒子がタングステン中の水素同位体吸蔵特性に与える影響について述べる。実験炉 ITER における 14 MeV 中性子とヘリウムの照射を模擬し、タングステン中の水素同位体吸蔵特性を調べる実験を行った。その結果を通して、実際の核融合炉に近い環境下でのタングステン材料の水素同位体吸蔵特性を考察した。C.2 節で研究背景、C.3 節で研究手法、C.4 節で実験結果と考察、C.5 節でまとめについて述べた。

C.2 研究背景

現在の磁場閉じ込め方式の核融合炉では、以下の核融合反応として D-T 反応（重水素-トリチウム）が行われる。



核融合炉運転中に、タングステン材料には水素同位体のみならず、核融合反応生成粒子である 14 MeV 中性子とヘリウムが入射し、タングステン中の水素同位体吸蔵特性に影響を与えることが懸念されている。

そのため、本研究では、それら核融合反応生成粒子が、タングステン中の水素同位体吸蔵特性に与える影響を調べる実験を行った。このような研究は既に数多く行われている [1,2] が、本研究では、本論文と同じ照射装置を使用し、その照射装置のデータベースを増やすという目的も兼ねて実験を行った。

C.3 実験方法

タングステン試料として、1173 K で 30 分間熱処理を施した pure W を用意した。

14 MeV 中性子による照射を模擬するために、本研究では、量子科学技術研究開発機構 (QST) のイオン照射研究施設 TIARA (Takasaki Ion Accelerators for Advanced Radiation Application) で、6.4 MeV で鉄イオンの照射を行った。鉄イオンの照射により、pure W 試料内部には、照射損傷が形成されており、その損傷レベルを dpa (displacement per atom) で評価する。本研究では、0.01 dpa と 0.1 dpa になるように照射フルエンスを調整した。また、比較のため、鉄イオン照射を行っていない試料も用意した。

He イオンの照射は、大阪大学上田研究室の HiFIT を用いて、D の照射の直前に行った（以下、D+He 照射と呼ぶ）。He イオンの照射を条件として、エネルギー1 keV、フラックス $\sim 3 \times 10^{19} \text{ He m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 、フルエンス $\sim 1 \times 10^{21} \text{ He m}^{-2}$ 、照射温度は室温で行った。比較のため、He 予照射をしない実験も行った（D-only 照射）。

また、D 照射も HiFIT で行い、エネルギー1 keV、フラックス $\sim 1 \times 10^{20} \text{ He m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 、フルエンスは $1 \times 10^{24} \text{ He m}^{-2}$ 、照射温度は室温で行った。

D 吸蔵量の測定は、昇温脱離分析（TDS 分析）を用いて行った。本実験では、D₂ と He の信号を分離できる高分解能の QMS（MKS 製 Microvision Plus）も使用したが、He の放出はほとんど観測されなかった。そのため、D₂ と He の信号を分離できない QMS（MKS 製 Microvision 2）で検出された Mass4 の信号は、全て D₂ であるとした。

C.4 実験結果と考察

全ての試料・実験における D の昇温脱離スペクトルを図 C.1 に示す。

まず、鉄イオンの照射の影響について述べる（図 C.1(a)(b)(c)の赤線）。損傷量の増大に伴い、高温側の 700~850 K のピークが増大していることが示された。これは、損傷によって形成された格子欠陥（ボイドなど）に重水素がトラップされていることを示唆していると考えられる。

また、He イオンの照射の影響について述べる（図 C.1(a)(b)(c)の青線）。He イオンを予照射すると、どの損傷量を持つタングステン試料でも、高温側のピークが減少していることが示された。これは、He イオンによって He バブルがタングステンの表面近傍（ $\sim 30 \text{ nm}$ ）に形成され[3]、Fe イオン照射の損傷領域（ $< 2 \text{ }\mu\text{m}$ ）に D が拡散するのを抑制している[4]からだと考えられる。

C.5 まとめ

高エネルギー粒子と He 照射が、タングステン中の水素同位体挙動に与える影響を調べた。その結果、6.4 MeV 鉄イオンの照射により D 吸蔵量は増大すること、また、He イオン照射により D 吸蔵量は減少することが示された。

どちらの核融合反応生成粒子においても、タングステン中の水素同位体吸蔵に顕著な影響を与えることが示された。そのため、水素同位体吸蔵特性を評価する場合において、核融合反応生成粒子が与える影響を把握しておく必要がある。

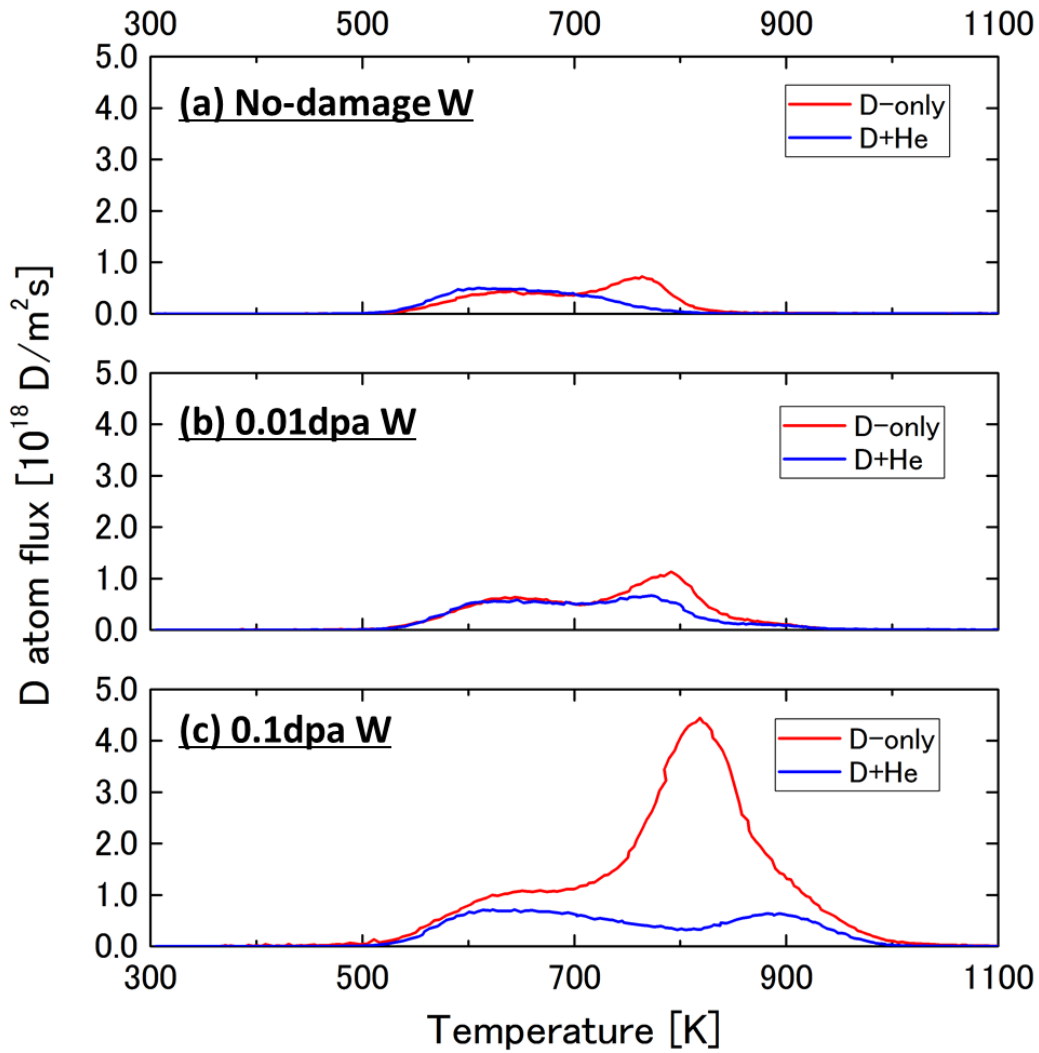


図 C.1 D-only および D+He 照射後試料の D 昇温脱離スペクトル
 (a) No-damage, (b) 0.01dpa W, (c) 0.1dpa W

参考文献

- [1] V.Kh. Alimov, B. Tyburska-Püschel, Y. Hatano, J. Roth, K. Isobe, M. Matsuyama and T. Yamanishi, J. Nucl. Mater. 420 (2012) 370-373.
- [2] Y. Oya, X. Li, M. Sato, K. Yuyama, L. Zhang, S. Kondo, T. Hinoki, Y. Hatano, H. Watanabe, N. Yoshida and T. Chikada, J. Nucl. Mater. 461 (2015) 336-340.
- [3] M. Miyamoto, D. Nishijima, M.J. Baldwin, R.P. Doerner, Y. Ueda, K. Yasunaga, N. Yoshida and K. Ono, J. Nucl. Mater. 415 (2011) S657-S660.
- [4] H.T. Lee, H. Tanaka, Y. Ueda and Y. Ueda, J. Nucl. Mater. 415 (2011) S696-700.

研究業績

原著論文（筆頭著者，査読あり）

- [1] M. Oya, K. Uekita, H.T. Lee, Y. Ohtsuka, Y. Ueda, H. Kurishita, A. Kreter, J.W. Coenen, V. Philipps, S. Brezinsek, A. Litnovsky, K. Sugiyama, Y. Torikai, “Deuterium Retention in Toughened, Fine-Grained Recrystallized Tungsten” *Journal of Nuclear Materials* 438 (2013) S1052-S1054.
- [2] M. Oya, H.T. Lee, Y. Ohtsuka, Y. Ueda, H. Kurishita, M. Oyaidzu, T. Yamanishi, “Deuterium retention in various toughened, fine-grained recrystallized tungsten materials under different irradiation conditions” *Physica Scripta* T159 (2014) 014048.
- [3] M. Oya, H.T. Lee, Y. Ueda, H. Kurishita, M. Oyaidzu, T. Hayashi, N. Yoshida, T.W. Morgan, G. De Temmerman, “Surface morphology changes and deuterium retention in Toughened, Fine-grained Recrystallized Tungsten under high-flux irradiation conditions” *Journal of Nuclear Materials* 463 (2015) 1037-1040.

共著論文（査読あり）

- [1] Y. Ueda, M. Oya, Y. Hamaji, H.T. Lee, H. Kurishita, Y. Torikai, N. Yoshida, A. Kreter, J.W. Coenen, A. Litnovsky, V. Phillips, “Surface erosion and modification of toughened, fine-grained, recrystallized tungsten exposed to TEXTOR edge plasma” *Physica Scripta* T159 (2014) 014038.
- [2] V.Kh. Alimov, Y. Hatano, K. Sugiyama, B. Tyburska-Pueschel, M. Oya, Y. Ueda, K. Isobe, A. Hasegawa, “Influence of He implantation on deuterium trapping at defects induced in W by irradiation with MeV-range W ions” *Journal of Plasma Fusion Research SERIES* 11 (2015) 1-5.
- [3] K. Yakushiji, H.T. Lee, M. Oya, Y. Hamaji, K. Ibano, Y. Ueda, “Influence of helium on deuterium retention in reduced activation ferritic martensitic steel (F82H) under simultaneous deuterium and helium irradiation” *Physica Scripta* T167 (2016) 014067.
- [4] K. Iwano, K. Yamanoi, Y. Iwasa, K. Mori, Y. Minami, R. Arita, T. Yamanaka, K. Fukuda, M.J.F. Empizo, K. Takano, T. Shimizu, M. Nakajima, M. Yoshimura N. Sarukura, T. Norimatsu, M. Hangyo, H. Azechi, B.G. Singidas, R.V. Sarmago, M. Oya, Y. Ueda, “Optical transmittance investigation of 1-keV ion-irradiated sapphire crystals as potential VUV to NIR window materials of fusion reactors” *AIP Advances*

6 (2016) 105108.

- [5] K. Yamanoi, M. J. F. Empizo, K. Mori, K. Iwano, Y. Minami, R. Arita, Y. Iwasa, K. Fukuda, K. Katoh, K. Takano, T. Shimizu, M. Nakajima, N. Sarukura, T. Norimatsu, M. Hangyo, H. Azechi, T. Fukuda, B. G. Singidas, R. V. Sarmago, M. Oya, Y. Ueda, “ZnO crystal as the potential damage-recoverable window material for fusion reactors” *Optical Materials* 62 (2016) 646-650.
- [6] Y. Hamaji, H.T. Lee, A. Kreter, S. Möller, M. Rasinski, M. Tokitani, S. Masuzaki, A. Sagara, M. Oya, K. Ibano, Y. Ueda, R. Sakamoto, “Damage and deuterium retention of re-solidified tungsten following vertical displacement event-like heat load” *Nuclear Materials and Energy* (2016), <http://dx.doi.org/10.1016/j.nme.2016.11.003>.

国際会議報告（筆頭発表者）

- [1] M. Oya, K. Uekita, H.T. Lee, Y. Ohtsuka, Y. Ueda, H. Kurishita, A. Kreter, J.W. Coenen, V. Philipps, S. Brezinsek, A. Litnovsky, K. Sugiyama, Y. Torikai, “Deuterium Retention in Toughened, Fine-Grained Recrystallized Tungsten”, 20th International Conference on Plasma Surface Interactions in Controlled Fusion Devices, P3-039, Eurogress, Aachen, Germany, May 21st-25th, 2012.
- [2] M. Oya, H.T. Lee, Y. Ohstuka, Y. Ueda, H. Kurishita, K. Sugiyama, M. Oyaidzu, T. Yamanishi, “Deuterium Retention in various Toughened, Fine-Grained Recrystallized Tungsten materials under different irradiation conditions”, 14th International Conference on Plasma-Facing Materials and Components for Fusion Applications, A047, Forschungszentrum Juelich, Germany, May 13th-17th, 2013.
- [3] M. Oya, H.T. Lee, Y. Ueda, H. Kurishita, M. Oyaidzu, T. Hayashi, N. Yoshida, T.W. Morgan, G. De Temmerman, “Surface morphology changes and deuterium retention in Toughened, Fine-grained Recrystallized Tungsten under high-flux irradiation conditions”, 21st International Conference on Plasma Surface Interactions in Controlled Fusion Devices, P3-045, Ongaku-do, Kanazawa, Japan, May 26th-30th, 2014.
- [4] M. Oya, Y. Ueda, H. Kurishita, J.W. Coenen, A. Kreter, “Analysis on solidified surface of melted Toughened, Fine-Grained Recrystallized tungsten exposed to TEXTOR edge plasma”, 21st Topical Meeting on the Technology of Fusion Energy, 11135, Disneyland Hotel, Anaheim, California, USA, 9th-13th November, 2014.
- [5] M. Oya, H.T. Lee, K. Ibano, Y. Ueda, G. Motojima, M. Tokitani, S. Masuzaki, “Fluence and Temperature Dependence of Helium Retention in Graphite Materials”, 15th International Conference on Plasma-Facing Materials and Components for Fusion Applications, P-80, Centre de Congres, Aix-en-Provence, France, May

18th-22nd May, 2015.

- [6] M. Oya, C.N. Taylor, M. Shimada, Y. Hamaji, Y. Nobuta, Y. Yamauchi, Y. Oya, Y. Hatano, Y. Ueda, “Helium Pre-implantation Effect on Deuterium Retention in ion-damaged Tungsten”, 17th International Conference on Fusion Reactor Materials, Po 4-82, Eurogress, Aachen, Germany, October 11th-16th, 2015.
- [7] M. Oya, H.T. Lee, A. Hara, K. Ibano, M. Oyaidzu, T. Hayashi, Y. Ueda, Effect of irradiation cycle number on Deuterium retention and blistering in Tungsten, 21st International Conference on Plasma Surface Interactions in Controlled Fusion Devices, P1-100, Pontificia Universita Urbaniana, Rome, Italy, May 30th - June 3rd, 2016.
- [8] M. Oya, H.T. Lee, K. Ibano, H. Kurishita, M. Oyaidzu, T. Hayashi, T.W. Morgan, G. De Temmerman, J.W. Coenen, A. Kreter, Y. Ueda, “Deuterium retention and melting behavior in Toughened, Fine-Grained Recrystallized Tungsten”, 26th IAEA Fusion Energy Conference, MPT/P5-27, Kyoto International Conference Center, Kyoto, Japan, 17th - 22nd October 2016.

国内会議報告（筆頭発表者）

- [1] 大宅諒, 上北一博, 大塚裕介, 上田良夫, 栗下裕明, “先進タングステン系材料における水素同位体挙動”, Plasma conference 2011, 24P080-P, 石川県立音楽堂, 2011年11月22-25日.
- [2] 大宅諒, 大塚裕介, 上田良夫, 栗下裕, “微結晶粒タングステン中の水素同位体挙動”, 第9回核融合エネルギー連合講演会, 28A-83p, 神戸国際会議場, 2012年6月28-29日.
- [3] 大宅諒, 大塚裕介, 上田良夫, 栗下裕明, A. Kreter, J.W. Coenen, V. Philipps, S. Brezinsek, A. Litnovsky, K. Sugiyama, Y. Torikai, “TFGR W 中の水素同位体挙動”, プラズマ・核融合学会 第29回年会, 27pB05, 春日クローバープラザ, 2012年11月27-30日.
- [4] 大宅諒, H.T. Lee, 大塚裕介, 上田良夫, 栗下裕明, A. Kreter, J.W. Coenen, V. Philipps, S. Brezinsek, A. Litnovsky, K. Sugiyama, Y. Torikai, “TFGR W 中の水素同位体挙動”, 日本原子力学会 2013 春の年会, K36, 近畿大学東大阪キャンパス, 2013年3月26-28日.
- [5] 大宅諒, H.T. Lee, 大塚裕介, 上田良夫, 栗下裕明, A. Kreter, J.W. Coenen, V. Phillips, “TEXTOR プラズマに曝露させた TFGR タングステンの表面解析”, 日本原子力学会 2013 秋の年会, B39, 八戸工業大学, 2013年9月3-5日.
- [6] 大宅諒, H.T. Lee, 大塚裕介, 上田良夫, 栗下裕明, 小柳津誠, 山西敏彦, T. Morgan, G.D. Temmerman, “高フラックス照射下での TFGR タングステン中の水素同位体挙動”, プラズマ・核融合学会 第30回年会, 03pC12, 東京工業大学大岡山キャンパス, 2013年

12月3-6日.

- [7] 大宅諒, H.T. Lee, 大塚裕介, 上田良夫, 栗下裕明, 小柳津誠, 林巧, T. Morgan, G.D. Temmerman, “高フラックス照射環境下での TFGR タングステン中の水素同位体挙動と表面変化”, 日本原子力学会 2014 春の年会, E59, 東京都市大学世田谷キャンパス, 2014 年 3 月 26-28 日.
- [8] 大宅諒, H.T. Lee, 上田良夫, 栗下裕明, J.W. Coenen, A. Kreter, “TEXTOR プラズマで損耗/溶融させた TFGR タングステンの表面解析”, 第 10 回核融合エネルギー連合講演会, 19-111, つくば国際会議場, 2014 年 6 月 19-20 日.
- [9] 大宅諒, H.T. Lee, 上田良夫, 栗下裕明, J.W. Coenen, A. Kreter, “TEXTOR プラズマ曝露させた TFGR タングステンの溶融・凝固層の解析”, Plasma Conference 2014, 20aC2-6, 朱鷺メッセ, 2014 年 11 月 18-21 日.
- [10] 大宅諒, 薬師寺高輝, 伊庭野健造, 上田良夫, 時谷政行, 相良明男, H.T. Lee, “水素同位体イオン・ヘリウム同時照射された低放射化フェライト鋼(F82H)の表面形態の変化”, プラズマ・核融合学会 第 32 回年会, 25aD50p, 名古屋大学東山キャンパス豊田講堂, 2015 年 11 月 24-27 日.
- [11] 大宅諒, H.T. Lee, 伊庭野健造, 上田良夫, 栗下裕明, 宮本光貴, 西島大輔, R.P. Doerner, “微量含有元素が TFGR タングステン中の表面形態変化及び水素同位体挙動に与える影響”, プラズマ・核融合学会 第 32 回年会, 26aC03, 名古屋大学東山キャンパス豊田講堂, 2015 年 11 月 24-27 日.
- [12] 大宅諒, Lee Heun Tae, 伊庭野健造, 上田良夫, 小柳津誠, 林巧, “照射回数の変化がタングステン中の水素同位体挙動に与える影響”, 第 11 回核融合エネルギー連合講演会, 15P066, 九州大学伊都キャンパス椎木講堂, 2016 年 7 月 14-15 日.

