

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 6月10日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2010～2012

課題番号：22246121

研究課題名（和文） 核融合炉複合照射環境下で高い適応性を有するタングステンの研究

研究課題名（英文） Study on tungsten materials highly relevant for a complicated irradiation environment in fusion reactors

研究代表者

上田 良夫（YOSHIO UEDA）

大阪大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：30193816

研究成果の概要（和文）：中性子照射耐性が高い微結晶粒タングステン（TFGR-W）および純タングステンについて、核融合炉周辺プラズマ環境における複合イオン照射、および繰り返しパルス熱負荷照射が、水素同位体蓄積や表面状態変化に及ぼす影響を明らかにした。さらに、添加物（TiC と TaC）の評価を行い、今後の材料開発に資する成果を得た。また、ITER のモノブロックに適用可能なサイズの TFGR-W を、超塑性変形を利用した新しい材料開発法により製造することができた。

研究成果の概要（英文）：Effects of mixed ion irradiation and repeated pulse heat load on hydrogen isotope retention and surface morphology changes were studied for pure W and TFGR-W, which is known to be resistant to neutron irradiation. Evaluation of different dispersoids (TiC and TaC) was performed to obtain valuable results to modify its performance. TFGR-W with dimensions of ITER monoblocks was fabricated by a newly developed material processing technique using superplasticity.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	15,500,000	4,650,000	20,150,000
2011年度	9,200,000	2,760,000	11,960,000
2012年度	7,400,000	2,220,000	9,620,000
年度			
年度			
総計	32,100,000	9,630,000	4,173,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・核融合学

キーワード：微結晶粒タングステン、パルス熱負荷、混合プラズマ照射、熱・粒子同時照射影響、陽電子消滅

1. 研究開始当初の背景

核融合実験炉 ITER や原型炉のダイバータ材料として、最も有力視されているタングステンには、水素同位体、ヘリウム、壁材料（W,C など）のイオンが同時照射し、また間欠的な熱負荷や中性子照射が加わる。核融合炉実現のためには、このような複合照射環境下で、高い適応性を有するタングステンの開発が急務となっている。

2. 研究の目的

本研究では、中性子照射耐性が高い微結晶粒タングステン（Toughened Fine-Grained Recrystallized tungsten、以下 TFGR-W）について、複合イオン照射・熱パルス同時環境下での表面状態変化や機械的特性変化を、基礎過程より明らかにする。さらに、ITER のダイバータ機器に適用できる大型微結晶粒

タングステン製造技術を開発し、基礎研究の結果をこの技術開発にフィードバックすることで、複合照射環境下で高い適応性を有する大型タングステン材料を開発する。

3. 研究の方法

(1) 超微細粒タングステンに、核融合炉の周辺プラズマ影響を模擬できる低エネルギー重水素・ヘリウム混合イオンビームやプラズマ、高エネルギーヘリウムイオンビーム、及びパルスレーザーを照射し、材料の表面状態変化や機械的特性との関連性を明らかにする。

(2) 中性子照射耐性の高い微結晶タングステンに超高温領域で超塑性加工を施すことで、ITER のモノブロックサイズ (30x30x12 mm³) に匹敵する大きさの超微細粒タングステン製造法を開発する。

(3) 本基礎研究結果を材料開発にフィードバックして、タングステン材料製造プロセスを改善し、炉内複合照射環境に適応する微結晶粒タングステン製造技術の指針を与える。

4. 研究成果

(1) 混合イオン照射による重水素のダイナミクス

核融合プラズマ中に存在する、不純物イオンが材料中のトリチウム挙動に与える影響を調べるため、重水素とヘリウム (DT 反応で生じる)、炭素 (壁材料)、および窒素 (エッジ冷却ガス) を混合したイオンビーム (エネルギー: 1keV、フラックス: $\sim 10^{20} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、不純物割合: 1~5%) をタングステンに照射して、裏面に透過する重水素量の温度依存性を調べた。不純物がヘリウム、もしくは炭素の場合を図 1 に、窒素の場合を図 2 に示した。

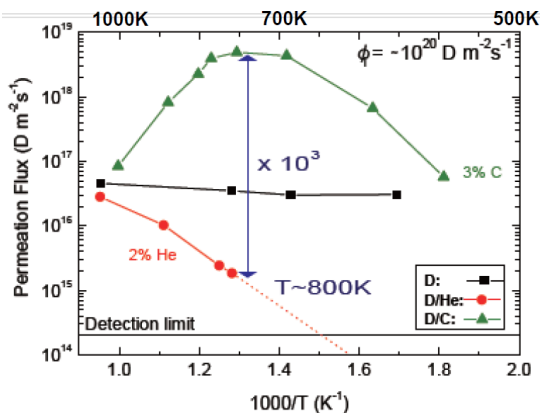


図 1 重水素にヘリウムと炭素を混合した場合の透過フラックス (タングステン厚: 30 μm) の温度依存性

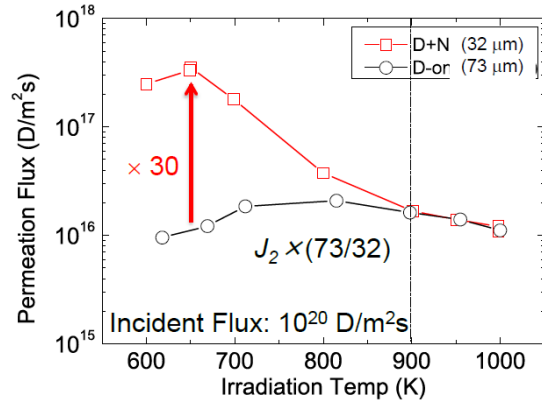


図 2 重水素に窒素を混合した場合の透過フラックス (タングステン厚: 30 μm) の温度依存性

炭素や窒素のようにタングステン表面で化合物を形成する不純物は、透過フラックスが増加する。一方で、ヘリウムバブル層を形成するヘリウムの場合は、透過フラックスが減少する。透過フラックスの増減は、表面近傍の溶解水素密度の増減と直接関係しており、プリスタリングの発生など、表面形状変化と密接にかかわっている。本研究により数%程度の不純物が、核融合炉のトリチウム挙動は表面状態変化に大きく影響することが示唆された。

(2) 重水素イオン照射下での TFGR-W の重水素リテンション

TFGR-W のトリチウムリテンション性能を調べるため、重水素イオン (エネルギー: 50 keV、フルエンス: $\sim 10^{26} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$) を注入してその蓄積量を、昇温脱離法 (TDS) と核反応法 (NRA) で調べた。TFGR-W は、TiC と TaC を添加物として含む材料について調べた。TDS による脱離スペクトルの違いを図 3 に示す。ここで、昇温速度は 0.1 K/s、注入温度は 473 K である。

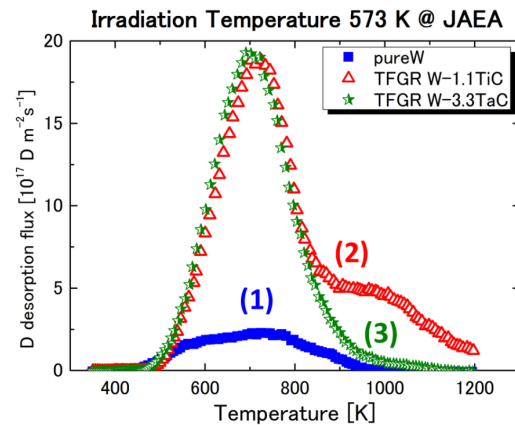


図 3 (1) 純W、(2) TFGR-W1.1TiC、(3) TFGR-W3.3TaC の重水素注入後の昇温脱離スペクトル

図3より、それぞれのタングステンは、700 K 近傍に主たる脱離ピークを持っている。TFGR-W のピークは、純W のピークに比べて非常に大きい。さらに TFGR-W では高温側に別の脱離ピークが存在する。また、この高温側の脱離ピークは、TiC 添加材の方が大きい。

これらのリテンションの違いの理由を調べるため、NRA で同じ試料について深さ分布も調べた。その結果を図4に示す。図4より最表面の重水素蓄積量はそれぞれの試料で差は少なく、内部の蓄積量が大きく違うことが分かった。2種類のTFGR-W は内部の重水素蓄積量が0.2% (タングステン原子比) と高く、一方で純タングステンはその桁小さい値であった。したがって、リテンションの違いは、イオンの影響を受けやすい最表面ではなく、もともとの材料内部の組織の違いによるものであることが分かった。TFGR-W は純W (1300°C熱処理材) に比べて、結晶粒が小さいため、粒界面積が大きく、さらに粒界に添加物が主に存在し、これらが重水素の捕獲サイトになっている可能性がある。

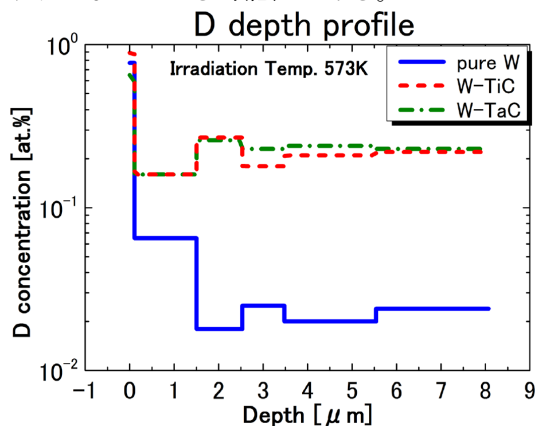


図4 NRAによる、純W、TFGR-W1.1TiC、TFGR-W3.3TaC 中の重水素の深さ分布

図5に全重水素蓄積量の温度依存性を示す。NRAによる値は、深さ8ミクロンまでの積分値である。図5(a)より、TDSによる値は、常にNRAより2~3倍大きく8ミクロンより内部に重水素が拡散して蓄積されていることを示唆している。また、700 K以上の温度領域では、TFGR-W TiCの方が、TFGR-W TaCより吸蔵量は大きい。これはTiCの方が水素化物 (TiD₂) が高温まで安定であることが原因と考えられる。なお、TiD₂の分解温度は1000 K~1100 K付近にあり、脱離スペクトルの高温ピークにほぼ一致している。

トカマクプラズマでは、間欠的な熱・粒子の放出がみられることが知られている。これはエッジプラズマの不安定性に起因し、ELMと呼ばれる。このELMパルス熱負荷の影響を

調べるためレーザーによりELM様の熱パルス (パルス幅: ~0.1 ms、エネルギーフルエンス: 0.1~0.4 MJ/m²) を繰り返し照射して表面の変化を調べた。

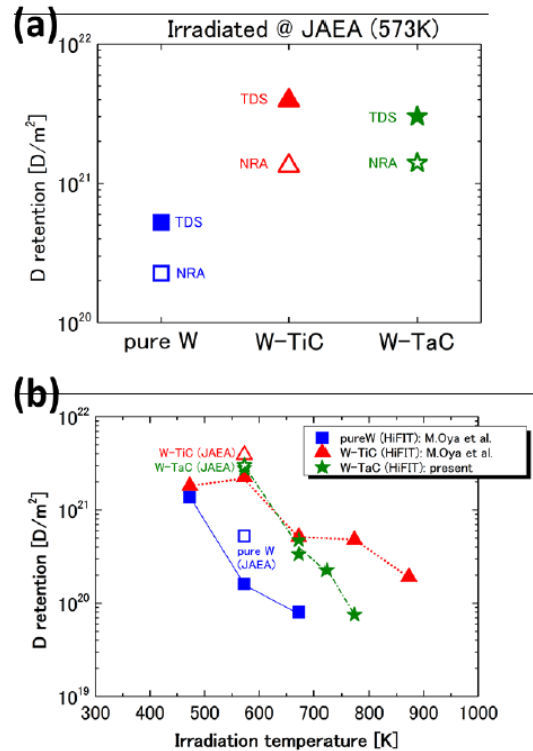


図5 重水素の総蓄積量。(a) TDSとNRAの比較 (573 K)、(b) TDSによる総蓄積量の温度依存性 (3) 繰り返しパルス熱負荷照射による表面状態の変化

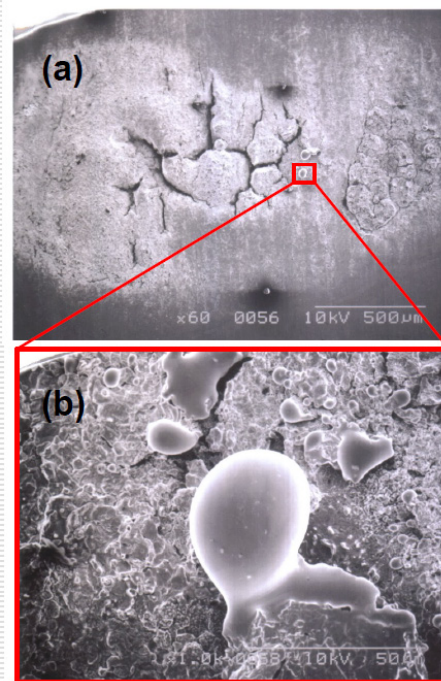


図6 純Wに0.14 MJ/m²の熱負荷を、3x10⁴回与えた場合の表面状態

純Wに繰り返し熱負荷を与えた場合の表面状態を図6に示す。1パルスあたりの熱負荷は(0.14 MJ/m²) 溶融限界(~0.5 MJ/m²)の30%である。このように、溶融限界以下の熱負荷でも繰り返し与えることで、表面に金属疲労に伴う亀裂の発生や、局所的な溶融が現れる。このような現象は、10⁴回以上で顕著となる。このような表面状態の変化は、ダストの発生やプラズマへのタングステン不純物の混入など、問題となる可能性があり、今後さらに検討を続ける必要がある。

次に、TFGR-Wへ繰り返しパルス熱負荷を与えた場合の表面状態の変化、および内部の組織の変化を図7および図8に示す。パルスエネルギーを増加させると((a)(b)→(c)(d)→(e)(f))表面の荒れが増加することがわかる。表面の状態の変化は、TiCおよびTaC添加材ともに大きな違いはない。若干、TaC添加材の方が、亀裂が細かい程度である。

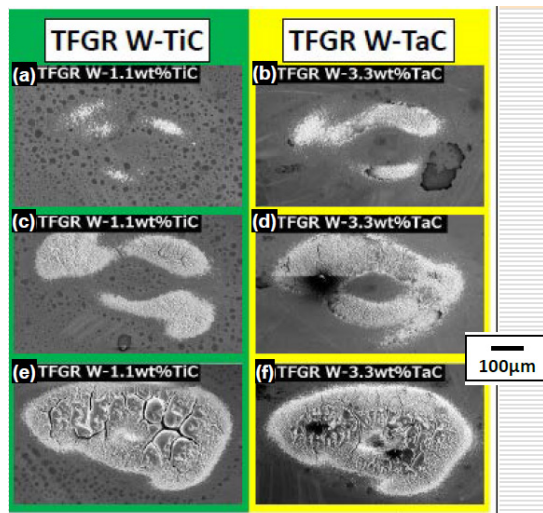


図7 繰り返しパルス熱負荷によるTFGR-Wの表面状態の変化。熱負荷は、(a), (b)0.14 MJ/m²、(c), (d)0.20 MJ/m²、(e), (f)0.34 MJ/m²、繰り返し回数10⁴

しかしながら、内部の結晶組織はパルスエネルギーが増加すると大きく異なる。その様子を図8に示す。0.20 MJ/m²の熱負荷を与えると表面温度は、2050 K程度に上昇する。このようなパルスを繰り返し与えると、TiC添加材の場合は、表面近傍のTiCが失われ(白い点のように見える)、表面付近の結晶粒が温度上昇と熱応力により変形して、表面状態が荒れることがわかる。さらに、0.34 MJ/m²では表面温度が2900 K程度に達し、TiCは内部まで完全に失われ、また温度が再結晶温度を超えていることから、結晶粒の肥大化が進んでいることがわかる。

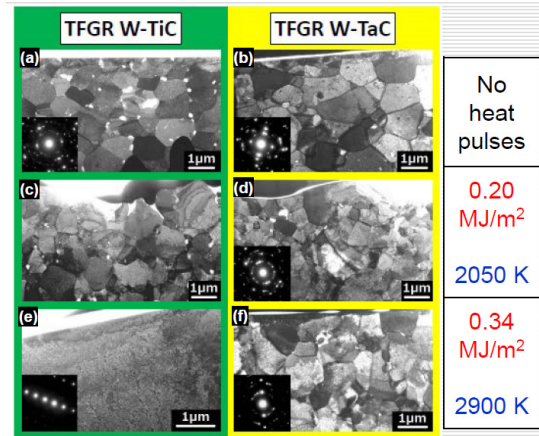


図8 繰り返しパルス熱負荷によるTFGR-Wの表面状態の変化。熱負荷は、(a), (b)熱負荷なし、(c), (d)0.20 MJ/m²、(e), (f)0.34 MJ/m²、繰り返し回数10⁴

一方で、TaC添加材については、TaCの存在がTEM分析からは明確にわからないものの、結晶組織は大きく変化しておらず、高温になってもTaCが安定に存在して、結晶粒の肥大化を抑制していると考えられる。

これらの結果より、表面の荒れなどに対しては、添加材はあまり抑制効果がないが、内部組織については、結晶粒の肥大化を抑制することが明らかになった。また、TaCの方がTiCより高温で安定であり、TaC添加材の方が、バルク材として使用した場合は、高温での使用に有利であることが明確となった。

(4) トカマクプラズマ照射による溶融挙動

トカマクプラズマにさらした場合の溶融挙動、および不純物の放出形態について詳しく調べるため、TEXTOR トカマク装置のルーブリミターに設置して、プラズマ照射実験を行った。このリミターを少しずつプラズマへ近づけ、円板型の試料の上部のみを溶融させた。その様子を図9に示す。

図9より、TiC添加材とTaC添加材ではその溶融挙動が大きく異なることがわかる。TFGR-W TiCでは(図9(a))、細かい凹凸がみられる。一方で、TFGR-W TaCでは(図9(b))、プリスタリングのような表面が盛り上がった部分がみられ、またその一部は失われている。

さらに溶融面を拡大した図を図10に示す。細かい凹凸をよく観察すると、TFGR-W TiCでは(図10(a))、凸部は内部にバブルが存在していて盛り上がっているように見える。これは、TiC(Ti)が、タングステンが溶融する以前に分解・蒸発して、内部に気泡を生

じ、この気泡が破裂したり、あるいは凝固の際に内部に残存することで、細かい表面状態が現れたものと考えられる。一方で、TaC については(図10(b))、TaCがタングステンの溶融時まで、安定に存在したため、TiC 添加材で見られた突沸のような跡は見られず、全体的に溶融したものと考えられる。しかしながら、凝固時の応力や、内部に存在していたTaCを含む不純物を核とした大きな気泡の発生により、TiC 添加材よりは、大きなブリスタリングや亀裂が発生したものと考えられる。

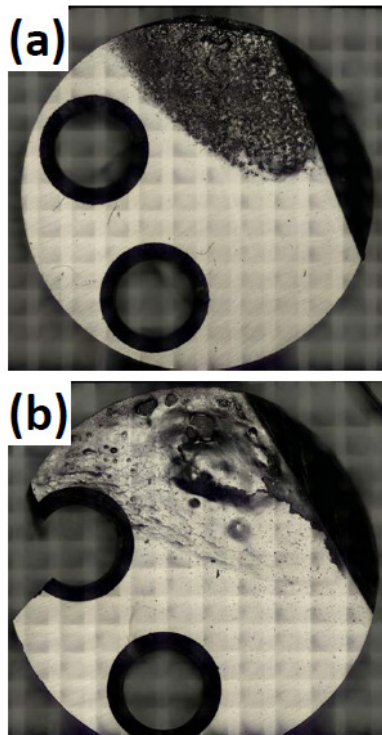


図9 溶融後、表面凝固した試料の様子、(a)TFGR-W TiC、(b)TFGR-W TaC

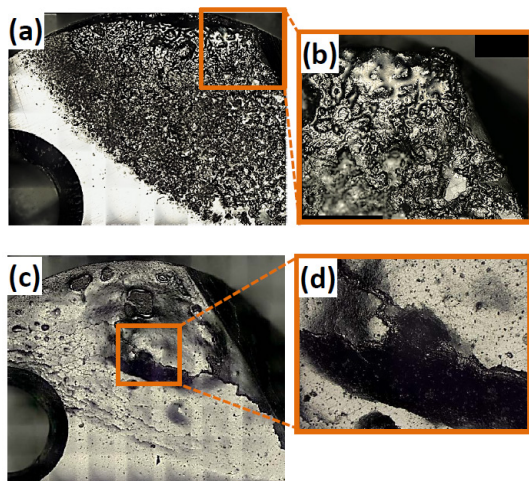
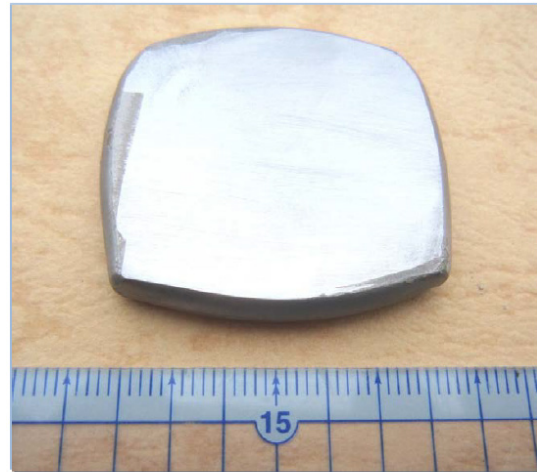


図10 凝固部の拡大図、(a)、(b)TFGR-W TiC、(c)、(d)TFGR-W TaC

(5) ITER モノブロックサイズの TFGR-W 製作

TFGR-W は特にバルクの特長において、純W より有利な点が多いが、大きなサンプルの政策が困難なことが、核融合炉で使用する場合の問題であった。新たに開発した超塑性を生かした製造法により、ITER のモノブロックサイズに匹敵する TFGR-W の製作が可能となった。その製作例を図11に示す。



TFGR W-1.1%TiC

図11 超塑性加工により製作した ITER モノブロックサイズの TFGR-W

(6)まとめ

TFGR-W の混合イオン・パルス熱負荷照射下でのリテンションや表面形状変化について調べた。純W に比べてリテンションは大きいですが、TaC 添加物を用いることにより高温でのリテンションは抑制される。また、温度が上昇した場合の組織安定性は、TaC 添加材の方が高い。溶融限界以下のパルス熱負荷についても、繰り返し回数が増えると表面に荒れや亀裂が生じる。今後、表面の保護や、TaC 添加材の特性向上が望まれる。また、ITER モノブロックサイズの材料開発が可能となり、実用化への道が開けた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 28 件)

- ① Y. Ueda, H. Y. Peng, H. T. Lee, N. Ohno, S. Kajita, N. Yoshida, R. Doerner, G. De Temmerman, V. Alimov, G. Wright, "Helium effects on tungsten surface morphology and deuterium retention", *J. Nucl. Mater.* in print, <http://dx.doi.org/10.1016/j.jnucmat.2012.10.023>, (査読有)

- ② Y. Ueda, H.T. Lee, H.Y. Peng, Y. Ohtsuka, “Deuterium permeation in tungsten by mixed ion irradiation”, Fusion Eng. Des. Vol 87, 1356-1362 (2012), <http://dx.doi.org/10.1016/j.fusengdes.2012.03.006>, (査読有)
- ③ Y Ueda, H. T. Lee (他 9 名, 1 番目), “Recent progress of tungsten R&D for fusion application in Japan, Phys. Scr. Vol. T145, 014029 (2011). doi:10.1088/0031-8949/2011/T145/014029, (査読有)
- ④ Y. Ueda, K. Miyata, Y. Ohtsuka, H.T. Lee (他 15 名, 1 番目), “Exposure of tungsten nano-structure to TEXTOR edge plasma”, J. Nucl. Mater. Vol. 415, <http://dx.doi.org/10.1016/j.jnucmat.2010.08.019>, (査読有)
- ⑤ H. Kurehashi, Y. Ohtsuka, Y. Ueda, H. Kurishita, “Effects of repeated short heat pulses on tungsten”, J. Nucl. Mater. Vol. 417, 487-490 (2011). <http://dx.doi.org/10.1016/j.jnucmat.2010.12.123>, (査読有)
- ⑥ Y. Ueda, “Status of Plasma Facing Material Studies and Issues toward DEMO”, Plasma Fus. Res. 5, S1009 (2010), <http://dx.doi.org/10.1585/pfr.5.S1009> (査読有)
- [学会発表] (計 57 件)
- ① 上田良夫, “TFGR タングステンへの短パルス繰り返しレーザー照射影響”, 第 29 回プラズマ・核融合学会、2012.11.27、クローバープラザ (福岡県)
- ② 大宅 諒, “TFGR W 中の水素同位体挙動”, 29 回プラズマ・核融合学会、2012.11.27、クローバープラザ (福岡県)
- ③ Y. Ueda, “Issues of tungsten as a plasma facing material for ITER and DEMO”, 22th International Toki Conference, 2012.11.21, Ceratopia Toki, Gifu Pref. (Invited).
- ④ T. Kawai, “Effects of repeated short heat pulses on TFGR tungsten”, 27th SOFT, 2012.9.24, Liege, Belgium.
- ⑤ Y. Ueda, “Combined heat load testing of W monoblocks for ITER”, 27th SOFT, 2012.9.26, Liege, Belgium.
- ⑥ M. Oya, “Deuterium Retention in Toughened, Fine-Grained Recrystallized Tungsten”, 20th PSI, 2012.5.22, Aachen, Germany.
- ⑦ Y. Ueda, “Recent Progress of Tungsten R&D for Fusion Application in Japan”, 13th PFMC, 2011.5.12, Julich, Germany, (Invited).
- ⑧ Y. Ueda, “Deuterium permeation in tungsten by mixed ion irradiation”, 10th ISFNT, 2011.9.11, Portland, USA, (Invited).
- ⑨ Y. Ueda, “Helium Effects on Tungsten Surface Morphology and Deuterium Retention”, 15th ICFRM, 2011.10.24, Charleston, USA, (Invited).
- ⑩ H. T. Lee, “Deuterium ion driven permeation through tungsten”, 第 28 回プラズマ・核融合学会、2011.11.24、石川県音楽堂、石川県
- ⑪ 大宅諒, “先進タングステン系材料の水素同位体挙動”, 第 28 回プラズマ・核融合学会、2011.11.24、石川県音楽堂、石川県
- ⑫ 河合俊昇, “短パルス繰り返し熱負荷及びプラズマの同時照射がタングステンに与える影響”, 日本原子力学会 2011 年秋の大会 2011.09.20、北九州国際会議場、福岡県
- ⑬ Y. Ueda, “Exposure of Tungsten Nano-Structure to TEXTOR Edge Plasma”, 19th PSI, 2010.5.25, San Diego, USA.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

上田 良夫 (UEDA YOSHIO)

大阪大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：30193816

(2) 研究分担者

大野 哲靖 (OHNO NORIYASU)

名古屋大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：60203890

栗下 裕明 (KURISHITA HIROAKI)

東北大学・金属材料研究所・准教授

研究者番号：50112298

誉田 義英 (HONDA YOSHIHIDE)

大阪大学・産業科学研究所・准教授

研究者番号：40209333

大塚裕介 (OHTSUKA YUSUKE)

大阪大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号：70294048

(3) 連携研究者

なし