

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 30 年 6 月 11 日現在

機関番号：63902

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2017

課題番号：15K14284

研究課題名(和文)核融合炉で使用後10年以内に再利用可能な低放射化バナジウム合金の開発

研究課題名(英文)Development of low-activation vanadium alloy for recycling within 10 years after use in fusion reactors

研究代表者

長坂 琢也(Nagasaka, Takuya)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・准教授

研究者番号：40311203

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文):本研究では、(1)長半減期の核種を生成する有害放射化不純物の低減、(2)同様に有害放射化合金元素Tiの濃度最小化、さらに(3)希ガスと揮発性の放射化不純物の除去を検討した。(1)では、有害放射化不純物のCoとMoを、従来よりそれぞれ50%及び90%除去することに成功した。(2)では、Ti濃度を従来の4 mass%から1 mass%に抑えても合金の延性が保たれる見込みを得た。(3)では、電子ビーム溶解精製による不純物元素Co, Ni, Cu, Al, Mnの濃度低減を実証した。Ar濃度は精製の有無に関わらず検出限界の10 mass ppm以下となり、溶解で容易に除去できることが明らかとなった。

研究成果の概要(英文):The present study examined (1) reduction in the amount of harmful radioactive impurities generating long half-life nuclides, (2) minimization of the concentration of the alloying element Ti, which is also one of the harmful radioactive elements, and (3) removal of noble gaseous and volatile gaseous radioactive impurities. For the topic (1), harmful radioactive impurities, Co and Mo, were successfully reduced by 50 % and 90 %, respectively, compared with the current alloys. For (2), it was revealed that the alloys maintained ductility even if Ti concentration was reduced in to 1 mass% from the current amount, 4 mass%. For (3), it was demonstrated that the concentration of the impurities, Co, Ni, Cu, Al and Mn, could be reduced by refining with electron beam melting. Ar concentration was below the detection limit, 10 mass ppm, irrespective of the refining, indicating Ar must be effectively removed by melting.

研究分野：低放射化材料開発

キーワード：廃炉・リサイクル技術 接触線量率 高純度化

## 1. 研究開始当初の背景

核融合炉用低放射化材料は使用後 100 年程度の冷却期間を経て再利用することが検討されてきた。バナジウム合金を用いれば、これを 10 年以下にできる可能性がある。成功すれば、再利用までの期間が核融合炉の想定寿命 30~40 年より十分短くなるので、核融合炉の敷地内で使用済みバナジウム合金を保管して同じ核融合炉で再利用ができる。同じ材料を繰り返し使用することで放射化物の総量が減ることに加え、放射化物の運搬も減らすことができる。このことは、放射化物の貯蔵管理や輸送に伴うリスクとコストの大幅な軽減につながり、核融合炉の安全性と経済性の向上に大きく寄与する。

冷却期間を短縮するためには、核融合炉の中性子照射環境で生成する放射性核種  $^{42}\text{K}$ 、 $^{26}\text{Al}$ 、 $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{60}\text{Co}$  及び  $^{94}\text{Nb}$  を低減する必要がある。このうち、 $^{42}\text{K}$  は合金元素 Ti に由来し、その他の核種は合金に含まれる不純物、Al、Mn、Co、Mo、Nb に由来する。 $^{42}\text{K}$  は半減期が 12.4 時間と短い、Ti の放射化反応の途中で経過する親核種  $^{42}\text{Ar}$  の半減期が 32.9 年のために、その生成は  $^{42}\text{Ar}$  の半減期に律速され、30 年後の放射能を大きくする原因となっている。親核種の  $^{42}\text{Ar}$  が希ガスのため金属に固溶しがたいことを利用し、保管・冷却期間中に合金を溶解して脱ガスできれば、バナジウム合金の再利用までの時間を短縮できる可能性がある。脱ガスではバナジウムよりも蒸気圧が高い揮発性放射性核種  $^{26}\text{Al}$  (半減期: 72 万年) や  $^{54}\text{Mn}$  (同: 0.85 年) も除去されるので、さらなる低放射化が期待できる。一方で、Mo、Nb はバナジウムの融点における蒸気圧が低い、脱ガス過程で除去することはできないか、逆に濃縮される懸念がある。

## 2. 研究の目的

既存の核融合炉用バナジウム合金の組成最適化と、製造プロセス、使用後の材料再生プロセスの改良により、使用後 10 年以下の保管・冷却期間で再利用することを目指す。

上記の背景を踏まえ、具体的には(1) 半減期の長い放射性核種を生成する Co、Mo、Nb 不純物の精製除去、(2) 合金成分である Ti 濃度の最小限化、そして(3) 核融合炉で使用後の保管・冷却中における希ガスと揮発性放射性核種 (Ar、Mn 等) の溶解脱ガス除去について見通しを得る。

## 3. 研究の方法

### 3 - 1. 高精製金属バナジウムの試作

高純度低放射化バナジウム合金共通材料 NIFS-HEAT-2 (NH<sub>2</sub>, V-4 mass% Cr-4 mass% Ti) で使用した工業製品の高純度メタバナジン酸アンモニウム (NH<sub>4</sub>VO<sub>3</sub>) を出発材料とした。これをアルカリ溶解、ろ過、アンモニウム化沈殿により精製した。得られた高精製メタバナジン酸アンモニウムを煅焼で五酸化バナジウム (V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) とし、さらにアルミテル

ミット還元でアルミ-バナジウム合金を得た。アルミ-バナジウム合金から、真空中電子ビーム溶解でアルミを蒸発除去し、最終的に高精製金属バナジウムを得た。試作は金属バナジウムの重量で 2 kg 規模で行った。

### 3 - 2. 低 Ti 濃度合金の試作と評価

市販高純度 Cr、Ti をアーク溶解により高精製金属バナジウムに添加し、V- (4-12) mass% Cr- (0-4) mass% Ti 合金の 50 g ボタンを作製した。溶解ボタンはステンレス容器に真空封入後、約 1000 にて熱間プレスを行った。その後封入容器を除去、冷間圧延し厚さ 0.25 mm と 1 mm の板材を得た。熱間プレス圧下率は約 50 %、冷間圧延圧下率は 0.25 mm の板で 95 %、1 mm の板で約 80 % である。加工後の回復・再結晶挙動を調査するため、真空中で 400~1300 °C、1 h の等時焼鈍の後、硬さ試験と引張試験を行った。さらに、グロー放電質量分析 (GD-MS) 法で微量不純物分析も行った。

### 3 - 3. 希ガス・揮発性不純物の除去

Ar 中アーク溶解にて NH<sub>2</sub> 合金に高純度 Mn を 100 mass ppm、500 mass ppm 添加し、高 Mn 不純物合金模擬材を作製した。試料の重量は約 50 g である。次に、電子ビーム溶解装置を用い、真空溶解による精製を試みた。溶解後に化学分析試料を採取し、Ar、Mn 以外にも Co、Ni、Cu、Al 等について不純物分析を行った。

## 4. 研究成果

研究の目的で述べたとおり、(1) 放射化で長半減期の核種を生成する有害放射化不純物の低減、(2) 同様に有害放射化合金元素 Ti の濃度の最小限化、さらに(3) Ar、Mn 等の希ガスあるいは揮発性不純物の除去を検討した。以下にそれぞれの項目における主な成果を示す。

### 4 - 1. 有害放射化不純物の低減

長半減期の核種である  $^{60}\text{Co}$  (半減期: 5.27 年) と  $^{94}\text{Nb}$  (同: 2 万年) を生成する有害放射化不純物の Co と Mo を、従来のバナジウム合金 NH<sub>2</sub> と比較してそれぞれ 50% 及び 90% 除去することに成功した。一方、Al は増加したが、これは真空中電子ビーム溶解を十分にすれば低減できる見込みである。Nb も増加を示したが、合金化前の純バナジウムの段階ではその濃度は低く、合金の Cr 濃度とともに Nb 濃度が上昇することから、今回用いた GD-MS 分析であったため Ar グロー放電で妨害イオン ( $^{53}\text{Cr}$ - $^{40}\text{Ar}$ )<sup>+</sup> が生成し、 $^{93}\text{Nb}^+$  の質量ピークを見かけ上増加させている可能性がある。増加がみかけのものなのかどうかは、他の分析手法で確認する必要があり今後の課題である。

### 4 - 2. 合金元素 Ti 濃度の最小限化

Cr, Ti 濃度を系統的に変化させた高純度の合金を製作し引張試験により強度と延性を評価した。Ti 添加の目的のひとつは、スカベンジング効果、すなわちバナジウム合金の脆化を促進する C, N, O 不純物を、Ti との析出物として固定し無害化することである。本研究により、Ti 濃度を従来の 4 mass% から 1 mass% に抑えてもスカベンジング効果は発現し、合金の延性が保たれる見込みを得た。一方、Ti 濃度を下げると強度は低下するが、Cr 濃度を 12 mass% 程度まで増加させることで固溶強化により補える見通しも得られた。

#### 4 - 3 . 希ガスと揮発性不純物の除去

電子ビーム溶解による精製実験を行い、有害放射化不純物元素 Co, Ni, Cu, Al, Mn について濃度減少を実証した。これらの濃度減少量はバナジウムの融点における蒸気圧により説明できることがわかった。一方、蒸気圧の小さい Mo は精製前の濃度を基準として 10% 程度の濃縮が観測された。溶解前後の重量測定によると、母相合金の蒸発量が元の重量の約 10% であり、Mo の濃度上昇は母相の蒸発による濃縮によって説明できる。Co, Ni, Cu, Al, Mn の減少と Mo 濃縮はトレードオフの関係にあり、今後は合金の接触線量率を最小にするような溶解条件を、放射化計算も用いて明らかにしていくことが課題である。合金中の Ar 濃度は精製の有無に関わらず検出限界の 10 mass ppm 以下であった。Ar を除去するためには真空溶解精製は必要ではなく、例えば Ar 中溶解でも十分に除去できることが明らかとなった。

以上の研究により、有害放射化不純物濃度の低い高精製金属バナジウムの試作に成功し、それを用いた V-12 mass% Cr-1 mass% Ti 合金等が核融合炉で使用後 10 年以内の再利用を可能とするための候補組成として見出された。また、核融合炉で使用後の精製による放射化不純物除去についても見通しと課題が示された。本研究では、加工後熱処理による再結晶、析出挙動や、引張強度、伸びなどの基本的な機械特性をもとに適合組成を検討したが、今後はより試料体積を必要とする破壊試験による靱性の評価や、中性子照射効果、冷却材中での腐食等、核融合炉で必要とされる種々の特性について調査し、最適な合金組成を絞り込むための総合的な研究に発展させる必要がある。

#### 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 0 件)

[学会発表](計 5 件)

長坂琢也, 田中照也, 後藤拓也, 室賀健夫, 相良明男, 野村和宏, 櫻井星児, 吉永英雄, 菅原孝昌, 湯蓋邦夫, 松川義孝,

笠田竜太, 藪内聖皓, 木村晃彦, “核融合炉で使用後 10 年以内に再利用可能な低放射化バナジウム合金の開発”, 日本原子力学会 2018 年春の年会, 2018 年 3 月 26 日~28 日, 大阪大学, 吹田市.

櫻井星児, 野村和宏, 吉永英雄, 長坂琢也, 室賀健夫, 松川義孝, 笠田竜太, “核融合炉用低放射化 V 合金の機械特性に対する Cr 及び Ti 濃度の影響”, 日本金属学会 2018 年春期講演大会, 2018 年 3 月 19 日~21 日, 千葉工業大学, 習志野市.

田中照也, 長坂琢也, 室賀健夫, 外山健, 山崎正徳, “照射済み低放射化バナジウム合金試料の誘導放射能測定による不純物分析”, 日本原子力学会 2017 年秋の年会, 2017 年 9 月 13 日~15 日, 北海道大学, 札幌市.

櫻井星児, 野村和宏, 吉永英雄, 長坂琢也, 田中照也, 相良明男, 佐藤裕樹, “核融合炉用低放射化 V 合金の加工後の熱処理による回復・再結晶挙動に及ぼす Cr 及び Ti 濃度の影響”, 日本金属学会 2017 年秋期講演大会, 2017 年 9 月 6 日~9 月 8 日, 北海道大学, 札幌市.

長坂琢也, 田中照也, 後藤拓也, 相良明男, 野村和宏, 櫻井星児, 吉永英雄, 佐藤裕樹, 菅原孝昌, 湯蓋邦夫, “核融合炉で使用後 10 年以内に再利用可能な低放射化バナジウム合金の開発”, 日本原子力学会 2016 年春の年会, 2016 年 3 月 26 日~28 日, 東北大学, 仙台市.

[図書](計 0 件)

[産業財産権]

出願状況(計 0 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年月日:  
国内外の別:

取得状況(計 0 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
取得年月日:  
国内外の別:

[その他]  
ホームページ等  
無し

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長坂 琢也 (NAGASAKA, Takuya)  
核融合科学研究所・ヘリカル研究部・准教授  
研究者番号：40311203

(2) 研究分担者

田中 照也 (TANAKA, Teruya)  
核融合科学研究所・ヘリカル研究部・准教授  
研究者番号：30353444

(3) 連携研究者

無し

(4) 研究協力者

無し