

6. PFC 開発における材料損傷研究

吉田直亮

(九州大学応用力学研究所)

(1995年3月20日受理)

Study on Radiation Damage for Development of PFC

YOSHIDA Naoaki

Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University, Kasuga 816, Japan

(Received 20 March 1995)

Abstract

Neutron irradiation damage of PFC materials such as graphite, CFC, beryllium and high-Z metals are briefly reviewed and issues concerning radiation damage as plasma facing materials are discussed.

Keywords:

PFC, PSI, neutron damage, graphite, CFC, beryllium, high-Z materials, molybdenum, tungsten,

6.1 はじめに

核融合炉におけるプラズマ対向材料は、表面からの熱やプラズマ粒子の流入・侵入に加え、D-T 反応による中性子の照射を受ける。したがって、D-T 放電を目指す ITER 以降のダイバータや第一壁では従来からの課題である熱負荷や水素プラズマ照射に加え、中性子照射による材料特性の劣化が新たな課題となる。現在進められている ITER の工学設計によると、ダイバータおよび第一壁領域での最大中性子束は $1\text{MW}/\text{m}^2$ とされ、基本性能段階および高性能段階 (各10年間) でのフルエンスはそれぞれ $0.4\text{MWa}/\text{m}^2$ 、 $1\text{--}3\text{MWa}/\text{m}^2$ と評価されている。材料の種類や中性子のエネルギー・スペクトルにより異なるが、

$1\text{MWa}/\text{m}^2$ は 10dpa 程度の損傷を引き起こすため、途中交換が前提となるダイバータにおいても、 $1\text{--}数\text{ dpa}$ の中性子照射損傷を覚悟しなければならない。実用炉になれば当然この値は更に大きくなる。

本稿では、プラズマ対向材として検討されている、炭素系材料、ベリリウム、高Z材料、およびそれらとヒートシンク材との接合材の中性子照射効果に関する研究の現状を紹介し、これからの研究課題について検討する。

6.2 炭素系材料

代表的な大型トカマク装置のプラズマ対向材料として使用され成果を上げている炭素繊維強化炭

素材 (CFC) 等の炭素系材料は、中性子の照射により特に大きな影響を受ける。高い熱負荷条件下で使用される高熱流束機器材料では熱伝導率が高いことが要求される。黒鉛の場合、照射量の低い段階から著しい熱伝導率の低下が起こることが以前から知られていたが[1-3]、丸山ら[4]はプラズマ対向材料として開発された高熱伝導性の等方性黒鉛材と CFC 材を中性子照射し、熱伝導率の照射による低下と焼鈍による回復を調べた。Fig. 1 に見られるように200℃での照射では、0.25dpa 以下の低い照射量で熱伝導率が極端に低下し (316 ステンレス鋼の10-数10%程度) 照射前の熱伝導率や材料に関係なくほぼ同じ値を示す。また、1000℃を超える高温まで加熱しても劣化した熱伝導率は完全には回復しない。中性子照射された黒鉛においては、原子はじき出し損傷により生じた格子間原子クラスターや原子空孔によるフォノン散乱が熱伝導率を決めていることから[1,2]、照射による熱伝導率の低下はこの物質の本質的な問題であり、製法に依存せず黒鉛を素材とした材料で共通して起こり、主な散乱源となる格子間原子クラスターや原子空孔が消滅する1200℃以上[3,5]に加熱しないと熱伝導率が回復しないことが理解できる。照射によって形成される C₂ 分子のクラスターも熱伝導率を低下させる重要な欠陥であるが、150-600℃で微小なものは熱分解すると考えられており[2]、照射温度が高くなるにつれて、熱伝導率の低下が少なくなることが期待される。実際、Fig. 1 に見られるように、400℃照射の場合には、熱伝導率は200℃照射ほど極端には低下しない。

Fig. 2 は最近 EU で行われた各種黒鉛材、CFC 材の中性子照射実験のデータを集めたものである[6]。400℃照射では0.1dpa 以上の照射で熱伝導率は照射前の約20%に低下するものの、照射温度が上がるにつれて、照射の影響は少なくなることが示されている。炭素材料は熱伝導率の高い銅などのヒートシンク材に接合して冷却媒体により強制冷却しながら使用されることになるが、1000℃を超える熱流入面から比較的低温の接合面に向けて大きな温度勾配が生じる。上述の中性子

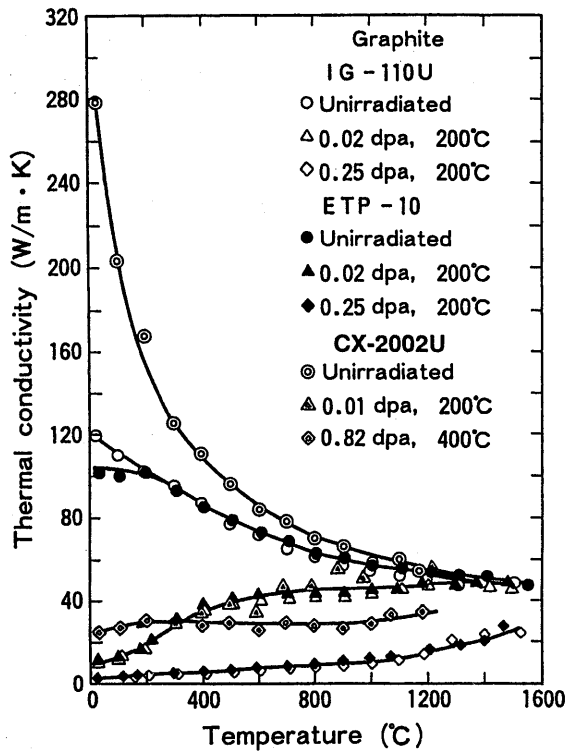


Fig. 1 Degradation of the thermal conductivity of isotropic graphite and CFC by neutron irradiation at 200 and 400°C [4].

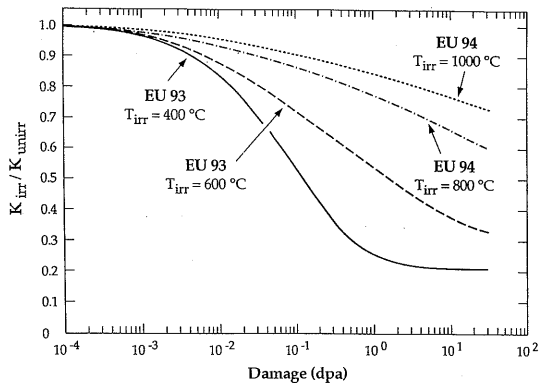


Fig. 2 The ratio of the thermal conductivity of irradiated sample, K_{irr} , to that of unirradiated one, K_0 , for various graphite and CFC at various temperatures above 400 °C [6].

照射データは、照射による熱伝導率の低下を回避し、高い冷却効果を維持するためには、最も温度の低い接合界面近傍でも400-500℃以上に保つ必要があることを示唆している。

照射下の寸法安定性も重要な課題である。結晶構造の異方性から c 軸方向に膨張し、 a, b 方向に収縮する。等方性黒鉛ではマクロには変化が相殺され、体積変化としては比較的小さいが（一般に照射初期にまず減少しその後増加に転じる）、CFC 材では1500°Cでの6 dpaの照射で c 軸方向に+20%、平行な方向に-10%変化したという報告[7]もあり、異方的な大きな寸法変化が問題である。

6.2 ベリリウム

ベリリウムの場合には、中性子照射による原子のはじき出し損傷と、核変換生成物（特にヘリウムの発生、14MeV 中性子に対して617appmHe/dpa）の影響が課題となるであろう。ベリリウムからヘリウムを発生させる核変換のしきいエネルギーが1.4MeVと低いため、原子炉照射によりヘリウムの効果を調べることができる。

300-400°C以下の低温域ではスウェリングは低いが延性低下など機械的性質の劣化が大きな課題である。Fig. 3は種々の照射温度（35-650°C）における照射硬化の増加を照射量の関数として示したものであるが、硬化は400°C以下で特に顕著で、照射量にはほぼ正比例して増加する[8]。これは照射により発生した転位ループやそれらが発展した複雑な転位網組織により転位の運動が阻害されることにより起こったもので、室温近傍では 3×10^{20} n/cm²程度の照射で延性が失われる。

スウェリングはヘリウムの動きが活発になる300°C以上で起こり始め、温度の上昇と共に益々

顕著になる。650°Cで 8.9×10^{21} n/cm²（ $E > 0.85$ MeV）照射したホットプレス法で作製したベリリウムでは18%のスウェリングが起こったことが報告されている[8]。ベリリウムに特徴的なことはスウェリング量は照射温度と共に増加し950°Cの高温でもスウェリングがなお増加傾向を示すことであり、多量のヘリウムによる gas-driven のバブルの成長によりスウェリングが起こっていることを示唆している。600°C以上の高温では大きなバブルが結晶粒界上に形成される[9]。これらはクラックの発生サイトになり照射脆化の原因となる。スウェリングは材料の製造方法や結晶粒径、純度などに敏感であるためこれからの材料開発次第ではある程度抑制できる可能性もあるが、ヘリウムのバブル形成促進効果を押さえ込むことはたやすいことではないように思われる。

6.3 高Z材料

炭素系材料やベリリウムは、中性子照射の影響をもろに受けること、スパッタリングによる損耗が極めて高いことなどが明らかにされるにしたがい、実験炉以降のプラズマ対向材料として高Z材料が再び注目されるようになった。金属材料では、炭素材料のように照射損傷により熱伝導率が大きく低下することはない。しかしながら有力な候補材であるタングステンやモリブデンは、高温では十分な延性を示すもの、ある温度（延性-脆性遷移温度 (DBTT)) 以下では脆くなり延性が低下するため、そのような温度では応力のかかる状態での使用に適さなくなる。以下に述べるように、DBTTが再結晶や照射により室温以上に上昇することが従来の材料の問題点であり、再結晶脆化や照射脆化し難い新材料の開発が進められている。

モリブデンの中性子照射効果に関しては比較的早い時期から研究が行われている。Fig. 4は製造法、熱処理、照射温度（515-815°C）の異なる各種のモリブデン材料とTZM (Mo-0.048% Ti-0.10% Zr-0.013% C)合金のDBTTを中性子フルエンスの関数として示したものである[10]。焼鈍温度が1200°Cを超える再結晶材では特に照射による脆化が顕著で、1dpaの照射でDBTTは

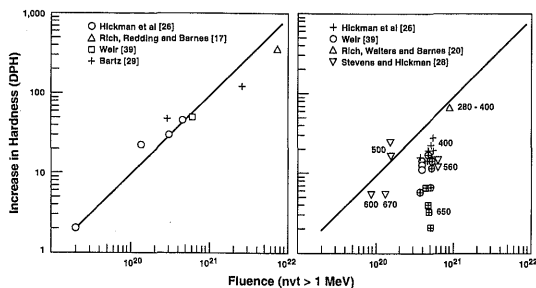


Fig. 3 Increase in hardness as a function of neutron fluence for beryllium (a) irradiated at 35-100°C and (b) irradiated at 280-650°C [8].

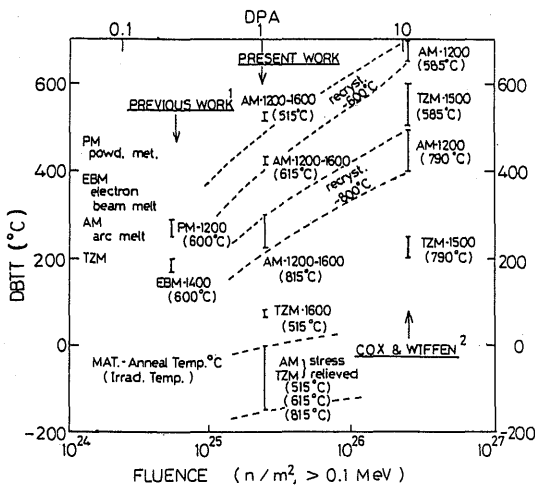


Fig. 4 DBTT in high-temperature irradiated molybdenum as a function of neutron fluence [10].

200°Cを超える。これに対し焼鈍温度が900°C程度の応力除去材では1dpa照射でDBTTは依然0°C以下であり、再結晶を抑え結晶粒径を小さくすることが照射脆化の抑制に有効であることが示されている。最近30dpaまでの中性子照射実験が行われ、重照射領域での照射脆化が調べられた[11]。結晶粒径が2 μmの応力除去材では400°C以下の照射では照射脆化は避けられないものの、500-800°Cの温度領域では重照射後もDBTTが室温以下であることが報告されている。400°C以下の照射脆化をいかに押さえるかが今後の重要な合金開発課題である。

最近、0.1~1.0wt%のTiC微粉末を分散させた高靱性のモリブデン合金が開発され、基本的な機械的性質や耐照射特性が調べられている[12]。TiC微粒子(20nm)により粒界が強化される上に、モリブデンの結晶粒径が0.1-0.4μmと極めて小さいことから照射後も高い靱性を保つことが期待される。Fig. 5に示すように、一般のモリブデン材料では低照射領域から脆化する300°Cでの照射においてもなお靱性を保っている。今後高照射条件での耐照射特性を確認する必要があるが、モリブデンに比べ更に高い耐熱負荷特性を示すことも報告されており、高熱流束機器材料への応用が期待される。

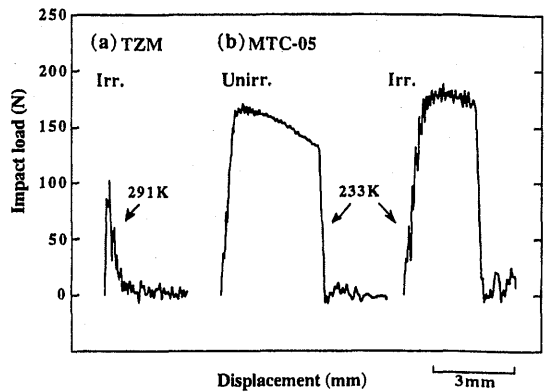


Fig. 5 Examples of recorded impact load-displacement curves for TZM after neutron irradiation of 10^{23} n/m^2 ($E > 0.1 \text{ MeV}$) (a), and Mo-0.5wt%TiC before and after irradiation (b). Test temperature is indicated in the figure [12].

タングステンはスパッタリングのしきいエネルギーが高く(重水素イオンのエネルギーで341eV[12])、融点も高い(3410°C)ため、有力な候補材料として検討が進められている。しかしながら、現在入手できるタングステン材料は未照射状態においても靱性が低く、高い熱応力のかかるような部位への使用には問題がある。中性子照射効果に関するデータは乏しいが、照射脆化の問題はモリブデン以上に厳しいと考えられ、Mo/TiC合金のような新しい耐照射性、耐熱負荷性に優れた材料の開発を含め、早急に研究を進める必要がある。

6.4 接合材

中性子の照射により発生した点欠陥やガス原子(ヘリウム、水素)は結晶界面や相界面など結晶性の不完全な場所に集まる傾向がある。多くの材料で、照射により粒界割れが起こることが知られているが、これは照射により発生した原子空孔やヘリウムが結晶粒界に集まり、粒界に沿ってボイドが多量に形成されたことが原因となっている場合が多い。同様の現象は異質の材料を接合する接合材の接合界面でも起こることが懸念される。また、接合界面近傍では、照射誘起拡散による組成の変動や新相の生成が起こり接合強度が変化する可能性も考えられる。接合材の中性子照射に関す

るデータはまだ極めて乏しいが、銀ロウで接合された CFC/無酸素銅接合材では TiC 層と Cu-Ag 相, Cu 相の界面に高密度のボイドが形成されることが報告されている[13]。素材のみならずコンポーネントとしてのトータルな耐照射性の向上が重要である。

6.5 中性子—プラズマ相乗照射効果

核融合炉におけるプラズマ対向材料は、上述の中性子のみならず表面近傍では高いフラックスの水素やヘリウムの照射を受け、特にエネルギーの高い荷電交換中性粒子により激しいはじき出し損傷を受ける[15]。前者による損傷は材料の中で均一に発生するのに対し、後者による直接的な損傷は表面の極近傍のみに限られるため、独立した問題として取り扱われがちであるが、水素やヘリウムの材料中での拡散は速く、注入レンジを越えた深部にまでその影響が及ぶことが予想される。特に格子欠陥との結合力が強いヘリウムは、中性子照射により形成された格子欠陥と結合し、損傷の蓄積を促進することが予測される。プラズマと中性子の相乗効果はプラズマ対向材料の照射損傷の重要な要素であるにもかかわらずほとんど研究されていない。早急に研究を開始する必要がある。

6. おわりに

次期装置から問題となるプラズマ対向材料の中性子照射損傷について、各種の候補材料の研究の現状と問題点について概説した。交換を前提としないブランケット構造材料に比べ、蓄積照射量が少なく一見対応が容易であるようにも見えるが、いずれの材料もそれぞれ大きな問題をかかえている。しかもプラズマ対向材料は熱、プラズマ粒子、中性子を同時に受け構造材とは比べものにならない程複雑な環境で使用されるため、これらの3つの要素が複合的、相乗的に作用する場合の材料挙動を考えなければならない。実機での複雑な環境を念頭に入れた材料開発と照射研究が望まれる。

参考文献

- [1] H. Maeta, T. Iwata and S. Okuda, J. Phys. Soc. Japan **39**, 1558 (1975).
- [2] T. Iwata and T. Nihira, J. Phys. Soc. Japan **49**, 1916 (1980).
- [3] T. Nihira and T. Iwata, in Point Defects and Defect Interactions in Metals, Ed. J. Takamura *et al.*, (Univ. Tokyo Press, 1982) p.236.
- [4] T. Maruyama and M. Harayama, J. Nucl. Mater **195**, 44 (1992).
- [5] M. Shimotomai, T. Takahashi, M. Doyama and T. Iwata, in Positron Annihilation, Ed. P.G. Goleman *et al.*, (North-Holland P.C., 1982) p.635.
- [6] C.H. Wu and NET Team, Proc. J-US Workshop P243 (Sapporo, 1995).
- [7] C.H. Wu, J.P. Bonal, B. Thiele, G. Tsotridis, H. Kwast, H. Werle, P.J. Goad, G. Federic and G.Vieider, J. Nucl. Mater. **212-215**, 416 (1994).
- [8] D.S. Gelles, G.A. Sernyaev, M. Dalle Donne and H. Kawamura, J. Nucl. Mater. **212-215**, 29 (1994).
- [9] J.M. Beeston, in Effects of Radiation on Structural Materials, ASTM-STP **426** (ASTM, Philadelphia, PA, 1967) 135.
- [10] K. Abe, M. Kikuchi, K. Tate and S. Morozumi, J. Nucl. Mater. **122&123**, 671 (1984).
- [11] 阿部勝憲, 佐藤学, 長谷川晃, 上田一潔: NIFS-PROC-20, 110 (1994).
- [12] H. Kurishita, Y. Kitsunai, H. Kayano, Y. Hiraoka and K. Takebe, Proc. 2nd Japan/China Symposium on Materials for Advanced Energy Systems and Fission and Fusion Engineering (Tokyo, 1994), p199.
- [13] Y. Hirooka, J. Won, S. Keller, R. Boivin, M. Khandagle and J.N. Brooks, Fusion Tech. **26**, 540 (1994).
- [14] H. Watanabe, T. Sato, Y. Miyamoto, T. Muroga, N. Yoshida and M. Akiba, Proc. 2nd Japan/China Symposium on Materials for Advanced Energy Systems and Fission and Fusion Engineering (Tokyo, 1994), p215.
- [15] K. Tokunaga, T. Muroga, T. Fujiwara, K. Tawara, N. Yoshida, S. Itoh and the TRIAM Group, J. Nucl. Mater. **191-194**, 449 (1992).