

	たんのたかし
氏名	丹野敬嗣
授与学位	博士(工学)
学位授与年月日	平成23年3月25日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科(博士課程)量子エネルギー工学専攻
学位論文題目	タングステン合金における中性子照射効果と固体核変換元素の影響
指導教員	東北大学教授 長谷川 晃
論文審査委員 主査	東北大学教授 長谷川 晃 東北大学教授 阿部 弘亨 客員教授 室賀 健夫 (自然科学研究機構核融合科学研究所)
	東北大学教授 四竈 樹男 東北大学准教授 栗下 裕明

論文内容要旨

核融合炉高熱流束機器、特にダイバータの材料として、高融点、高熱伝導率、高いスパッタリング抵抗性を有するタングステン (W) が重要な候補材料として期待されている。核融合炉内において W は中性子重照射を受けるため、照射損傷導入だけでなく核変換による組成変化が起こる。組成変化を引き起こす主な固体核変換元素は、レニウム (Re) およびオスミウム (Os) である。これらの生成と蓄積により、純 W から W-Re あるいは W-Re-Os 合金へと組成が変化した場合の中性子照射効果に関するデータは少なく、実際に核融合炉を運転した際の W の特性変化は明らかになっていない。

本研究では W 合金の熱処理条件や照射条件の違いを考慮した照射効果、および固体核変換元素の影響を明らかにし、核融合炉高熱流束機器における W の適用条件を示すことを目的とした。具体的には、固体核変換元素を添加したモデル合金を作製し、高速炉 JOYO や混合スペクトル炉 JMTR、HFIR で照射した。照射後に硬さ試験や電気抵抗率測定および熱伝導率への換算、微細組織観察を行うことで、材料因子と照射条件の影響を考察し、核融合炉高熱流束機器における W の使用条件を検討するための特性変化予測を行った。その予測を核融合炉の設計案に適用し、核融合炉運転中の照射硬化や熱伝導率変化について検討を行った。

実験試料には固体核変換による組成変化を模擬した W モデル合金を作製して用いた。合金はアーク溶解と粉末焼結で作製し、アーク溶解(Arc)材は溶製後に 1400°C/1hr で焼鈍し、粉末焼結(PM)材は熱間圧延後に再結晶化(R)処理として 1600°C/1hr、応力除去(SR)処理として 1300°C/1hr または 1400°C/1hr の焼鈍を行った。

中性子照射は高速実験炉 JOYO と混合スペクトル炉 JMTR および HFIR で行った。本研究ではモデル合金を用いることで核変換による組成変化を模擬し、JOYO で照射することにより核融合炉で重照射された場合の、特性変化における組成変化とはじき出し損傷の影響を評価した。さらに JMTR と HFIR でも照射を行うことで、あらかじめ核変換元素を添加したモデル合金を照射した場合と照射下で組成変化が進行する場合の違いを調べた。中性子照射条件は照射温度範囲が 400~800°C、はじき出し損傷の範囲が 0.09~1.54dpa である。中性子照射中の核変

換の影響を評価するために、EURATOM/UKAEA Fusion Association により開発されているコードシステム EASY (European Activation System) を用いて核変換量を計算した。

照射後試験として、照射硬化を評価するためにビッカース試験を行った。また、固溶元素の濃度などに依存し、熱伝導率と関係がある電気抵抗率変化を評価するため、四端子法による電気抵抗測定を行った。さらに、微細組織発達を評価するため、透過型電子顕微鏡(TEM)を用いた微細組織観察を行った。

JOYO で照射された Arc W-Re 合金の照射硬化は損傷量 0.4dpa 以下ではほぼ一定であるのに対し、1dpa 以上では Re 濃度とともに照射硬化が大きくなっていた。Os は Re と比較して、低濃度であっても大きな照射硬化をもたらす、その大きさは Os 濃度 3%以上では飽和していると考えられる。同じ条件で JOYO 照射された W-Re 合金の照射硬化を比較した場合、Arc 材がもっとも大きく、PM SR 材が最も小さかった。よって、PM SR W-Re 合金は内部に含まれる欠陥により照射硬化抑制効果があるといえる。したがって、非照射でより高密度の欠陥組織あるいは小さな粒径を有し、かつ再結晶化温度が高い W であれば、照射硬化をより抑制できる可能性がある。照射温度 500~600°C で照射された W-Re 合金は照射硬化が他の温度と比較して、大きくなる傾向があった。これは微細組織発達と関連があると考えられる。JMTR で照射した場合は、Re 濃度が高い場合に照射硬化の明瞭な照射量依存性が見られ、Re→Os の核変換が照射硬化に影響を及ぼしていると考えられる。HFIR 照射材はどの組成においても、同程度の損傷量の JOYO 照射材と比較して照射硬化が大きく、その原因は熱中性子が多い HFIR で照射したことで核変換による組成変化が進行したためと考えられる。高速炉 FFTF で重照射された W-26Re の照射硬化と比較すると、W-Re 合金の照射硬化は損傷量約 2dpa 以上では飽和する傾向にあるといえる。

非照射材の電気抵抗率評価において、Arc 材と PM R 材、PM SR 材の間に有意な差はなかった。よって、電気抵抗率に材料の製法や熱処理条件は影響しないと考えられる。また、W の電気抵抗率に及ぼす Re と Os の影響はそれぞれ独立であり、W-Re-Os の 3 元系合金の電気抵抗率は以下の式で記述することができる。ここで、 ρ_0 : 純 W の電気抵抗率、 A_i : 固溶元素係数、 C_i : 固溶濃度である。Os の固溶元素係数は Re の約 5.4 倍であり、電気抵抗率において固溶状態の Os が大きな影響を持つといえる。

$$\rho = \rho_0 + \sum_i \Delta\rho = \rho_0 + \sum_i A_i C_i (1 - C_i)$$

また、組成から、電気抵抗率を予測することができる。電気抵抗率から組成を正確求めることはできないが、固溶元素係数の大きい Os の含有量を概算することは可能である。

照射により W-Re 合金中には照射誘起析出物が形成されるが、電気抵抗率変化は小さく、析出物を形成する Re は全体の一部であり、照射後も大半は固溶したままだと考えられる。一方で、W-Os 合金は照射により大幅に電気抵抗率が減少しており、照射によって合金中の Os の 3/4 程度が析出あるいはクラスター化して固溶状態ではなくなると考えられる。よって、Re は照射誘起析出による照射硬化を引き起こすが、ほとんどが固溶したままなので、電気抵抗率および熱伝導率においては材料中の Re が全て固溶している場合と大きな差はないと考えられる。

一方、Os は材料中に存在する Os の大半が析出物あるいはクラスターとなるため、著しい照射硬化を引き起こし、同時に Os 固溶濃度が低下するため、Os による電気抵抗率の増加および熱伝導率の低下は改善されると考えられる。

電気抵抗率から Wiedemann-Flanz 則を用いて熱伝導率を換算し、直接熱伝導率を測った報告例と比較すると、換算に使用するローレンツ数 L を 3.35×10^{-8} とすることで W 合金の熱伝導率を最も正確に換算できることが分かった。Wiedemann-Flanz 則において電気抵抗率と熱伝導率は逆比例の関係にあることから、電気抵抗率と同様に熱伝導率においても材料の製法や熱処理条件は影響しないと考えられ、Re と Os の固溶量によって支配されると考えられる。

JOYO 照射された純 W は約 20% 熱伝導率が低下していたが、その低下幅は核変換量の計算から算出された Re による電気抵抗率増加を反映させた値とほぼ同じであり、熱伝導率低下の主たる原因が照射損傷ではなく、核変換による組成変化であることが分かった。核変換の起こりやすい HFIR で照射すると、固溶 Re や Os の濃度増加により熱伝導率が増加するが、Os は大半が析出するため、核変換量の計算から算出した組成を基に予測されるよりも熱伝導率低下は小さい。Os の固溶濃度を 1/4 として計算することで、安全側に熱伝導率を予測することができる。

本研究で得られた結果および考察から導き出された特性変化予測を、European Power Plant Conceptual Study (PPCS)における model-A (PMA) のダイバータでの W の核変換による組成変化に適用し、中性子照射量に対する W の特性劣化挙動を核変換の影響を考慮して予測した。W-Re 合金の熱伝導率は温度依存性を持つため、その影響を考慮した 750°C における熱伝導率変化の予測をおこなった。その結果を図 1 に示す。照射損傷による熱伝導率低下は 10% 以下と考えられるので、熱伝導率変化において核変換による組成変化の影響が支配的であるといえる。中性子照射量が 5MWy/m^2 以上になると熱伝導率は照射前と比較して約 40% 低下すると予測される。W プレートのパラマ側と冷却管側を比較すると、冷却管側の熱伝導率の方がより早く低下すると予測された。これは冷却管側では冷却水に散乱された低エネルギーの中性子による核変換が熱伝導率変化に大きな影響を及ぼすためと考えられる。すなわち、各部位での中性子エネルギースペクトルに基づいて、核変換による組成変化とその影響を計算・評価することが、熱設計において重要である。

図 2 は熱伝導率と同様に PAM のダイバータにおける W の照射硬化を予測した結果である。照射開始直後は核変換による Re がほとんど存在しないため、約 0.2MWy/m^2 までに、パラマ側と冷却管側ともにボイドによる照射硬化が起こる。その後はボイド格子を形成し組織が安定化することで、照射硬化の増加が一旦止まると予想される。その後、冷却管側では約 5MWy/m^2 で、パラマ側では約 10MWy/m^2 で核変換により生成した Re が影響し始めると考えられる。照射初期に形成されたボイドは Re や Os の濃度の増加とともに収縮し、消滅すると考えられる。したがって、これらの照射量以上ではボイドの照射硬化への寄与は急速に低下すると考えられる。同時に照射誘起析出物である χ 相が形成され、照射硬化への寄与が急速に増加し、以後支配的になると考えられ

る。一般に、ビッカース硬さ Hv1000 以上で材料は脆性挙動を示すと考えられている。純 W の照射前の硬さは約 Hv400 であるから、照射硬化が Hv600 以上の場合に粒界割れなどの脆性破壊挙動を起こしやすくなると考えられる。よって、冷却管側において約 10MWy/m² 以上で、プラズマ側では約 18MWy/m² 以上で、熱応力によるき裂などが発生しやすくなると考えられる。合金化や加工と熱処理、メカニカルアロイング (MA) 法による分散強化などを用いることで粒界強度を上げることができれば、き裂などが発生しやすくなる照射硬化量を増加させ、より大きな中性子照射量まで照射硬化の影響が出にくくすることが可能であると考えられる。

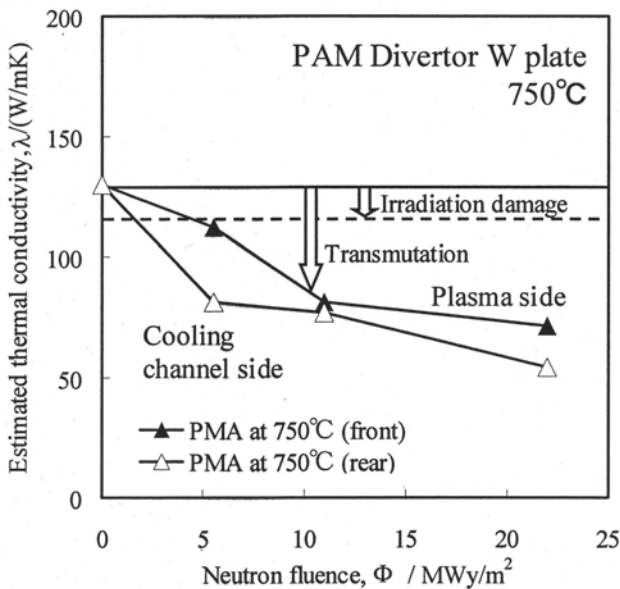


図1 核変換を考慮した W の熱伝導率変化予測

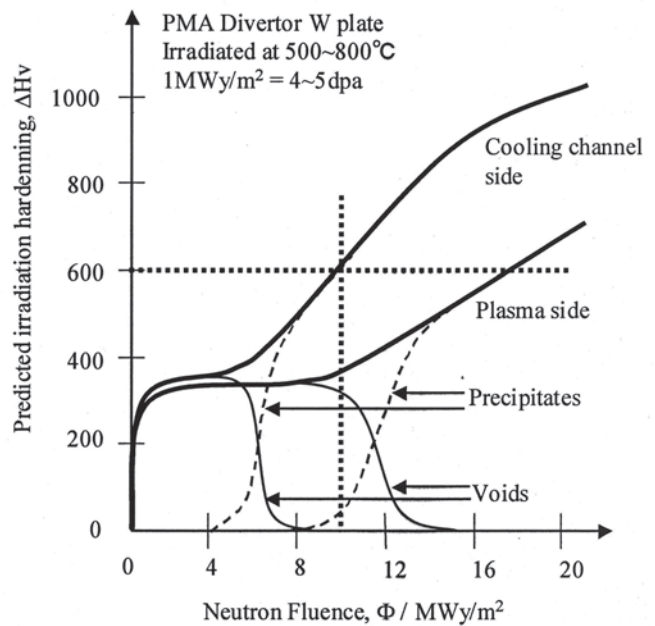


図2 核変換を考慮した W の照射硬化予測

本研究で得られた結果より、核変換を考慮した核融合炉高熱流束機器における W の特性変化に関して、以下のように総括される。

- ① 核融合実用炉において、機器部位ごとの中性子エネルギースペクトルを考慮し、熱伝導率の低下を予測した設計が必要であると考えられる。
- ② 5MWy/m² 以上の中性子照射により、40%程度の熱伝導率低下が予想される。さらに、10MWy/m² 以上の中性子照射では、照射硬化が増大し、熱応力により粒界割れなどのき裂発生の可能性がある。
- ③ より長期間の運転に供するためには、照射硬化の抑制や粒界強化など、材料製造法の改善が必要であると考えられる。
- ④ 熱中性子束を小さくし、核変換による組成変化を抑える設計を行うことができれば、特性劣化の許容限界までの運転期間を延ばすことができると考えられる。

論文審査結果の要旨

タングステン (W) は核融合炉高熱流束機器、特にダイバータの重要な候補材料として期待されている。核融合炉内において W は中性子重照射を受け、照射損傷導入だけでなく固体核変換元素であるレニウム (Re) およびオスミウム (Os) の生成と蓄積し、組成変化する。そこで、核融合炉高熱流束機器における W の特性変化の予測および使用条件の選定に資する検討を行うこと目的とし、固体核変換元素を添加したモデル合金を作製し、実験用原子炉で中性子照射した。

Re を含む W は照射誘起析出により照射硬化し、照射硬化量は損傷量 2dpa 以上で飽和することを明らかにした。応力除去処理を行うことで、照射硬化を抑制できることを見出し、抑制効果が現れる照射条件の範囲を明らかにした。電気抵抗率や熱伝導率が Re や Os の固溶濃度に支配されることを明らかにし、それぞれの固溶濃度から電気抵抗率や熱伝導率を算出する式を導出した。中性子照射材の実験結果を基に、核融合炉高熱流束機器に W を適用した場合の特性変化を定量的に予測した。

本論文は、これらの研究成果をまとめたものであり、全編 7 章からなる。

第 1 章は序論であり、本研究の背景、目的および概要を述べている。核融合炉における W の位置づけや問題点、核変換を考慮した研究の重要性と従来研究についてまとめられている。

第 2 章は実験方法を示しており、実験に用いた試料の詳細や中性子照射、照射後試験の詳細を述べている。

第 3 章では中性子照射硬化の測定結果および材料因子や照射条件の影響を述べている。材料の加工と熱処理条件によって照射硬化挙動が異なることが示されている。これは、照射硬化を抑制する材料開発において重要な知見である。また、照射温度 500~600℃において、照射硬化が他の照射温度よりも増加すること、損傷量 2dpa 以上では照射硬化が飽和することを述べている。これは核融合炉運転中の照射硬化を予測する上で非常に重要な知見である。

第 4 章では電気抵抗率の固溶濃度依存性と照射材の電気抵抗率測定の結果および熱伝導率換算について述べている。固溶濃度から電気抵抗率を算出するための式および Re と Os についての係数を示している。これは固溶濃度から電気抵抗率を算出するとともに、電気抵抗率から試料中の Re や Os がどのような状態で存在しているかを推定するために重要な成果である。電気抵抗率から熱伝導率換算に必要な係数を明らかにしている。これは照射材の熱伝導率予測を行うために有効かつ重要な知見である。照射された合金の電気抵抗率と熱伝導率は Re に支配され、Os の影響は小さいことが示されている。これは中性子照射による核変換を考慮した W の特性変化予測を行うために非常に重要な成果である。

第 5 章では照射材の微細組織発達について述べている。照射後組織の種類ごとに照射硬化への寄与の大きさを評価しており、照射材の照射硬化機構を理解するために重要な知見である。微細組織発達における材料因子と照射温度、核変換それぞれの影響を明らかにしている。これは核融合炉だけでなく中性子照射下で使用される W に広く応用可能な重要な知見である。

第 6 章では、本研究で得られた知見と成果を基に、核融合炉のダイバータで予想される組成変化と中性子照射による W の特性変化を定量的に予測している。実験用原子炉で照射された試料の実験結果を核融合炉設計に反映させた特性変化予測はこれまでにないものであり、核融合炉開発において画期的かつ非常に重要な成果である。

第 7 章は結論である。

以上要するに本論文は、核融合炉高熱流束機器において使用される W に対する中性子照射効果と固体核変換元素の影響を解明し、中性子照射下での W の特性変化予測を可能にするものであり、量子エネルギー工学および材料学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。