6. 核融合炉候補構造材料の中性子照射効果に及ぼす核変換ヘリウムの影響

長谷川 晃
(東北大学工学研究科)

Effects of Transmutation Helium on Neutron Irradiation Behavior
of Candidate Structural Materials for Fusion Reactor

HASEGAWA Akira

Department of Quantum Science and Energy Engineering, Tohoku University, Sendai 980-8579, Japan

(Received 22 November 2004)

Helium effects on the mechanical properties and microstructure of three low-activation structural materials are summarized based on the current understanding of the experimental data they have yielded. Void swelling of these low activation materials is not seriously enhanced by the presence of helium in their expected operating temperature regions. Degradation of the mechanical properties caused by helium is not considered to be serious up to regions of several tens of displacement per atom (dpa). The issues of material data collection for DEMO reactor design are discussed.

Keywords:

low activation material, mechanical property, void swelling

6.1 構造材料における核変換ヘリウム効果の概要

核融合炉における中性子照射環境の特徴は、14 MeV 中性子照射によって材料中に生ずる多量のはじき出し損傷と核変換生成物（異種元素）であり、構造材料の寿命予測のために特性変化を評価する上ではこれらの相乗効果を考えなければならない。核変換生成元素の中でもヘリウムは本解説の第2章などで既に述べられているように、材料中に全く固溶せずにはじき出し欠陥が存在する環境下では空孔型格子欠陥集合体を安定化するため、材料や温度などの条件によっては格子欠陥集合体の核発生や成長を促進し、ポイドスウェリングを増加させたり、粒界キャビティなどを形成し粒界脆化などを引き起こしたりする可能性があることが指摘されている。このような影響は照射する温度によってその現れ方が異なる。構造材料一般におけるのはじき出し損傷と核変換ヘリウムの同時発生環境が材料の機械的特性に及ぼす影響や寸法安定については、高速増殖炉の燃料被覆管用材料のオーステナイトステンレス鋼の場合で多くの知見が得られている。これらを基に構造材料、特に金属材料におけるヘリウム効果を模式的にまとめたのが Fig. 1 である。照射温度ごとにその一般的な影響を以下にまとめる。

(1) 照射温度の低い場合 ($0.3T_m$ 以下, T_m : 材料の絶対温度での融点) Fig. 1 の(a),(b),(c)

照射欠陥の易動度が小さいために欠陥集合体は微細な状態にとどまり、照射量の蓄積により高密度化する傾向を持

つ、はじき出し損傷とともに発生するヘリウムは空孔型の欠陥集合体を安定化させ、欠陥集合体の数密度をさらに上昇させる傾向を持つ。この結果、照射硬化やそれに伴う低温での脆化を促進させる可能性がある。

(2) 照射温度の高い場合 ($0.3 \sim 0.4T_m$ 以上) Fig. 1 の(a),(d),(e)

欠陥の移動度が高いため、格子間原子型の欠陥は粒界やシンクで消滅し、空孔型集合体が主となり、その形態は集

Fig. 1 Schematic illustration of Helium effects on defects behaviors in materials and on material properties.

合体の成長により空洞（キャビティ）状になる．この時の欠陥の数密度は欠陥集合体の合体により低温の場合よりも小さくなり，照射硬化も小さくなる．しかし，このキャビティ（ボイドとも言う）が生成した分だけ体積が膨張し，いわゆるボイドスウェリングを起こす．この時ヘリウムが存在すると，温度が比較的低い場合にはキャビティの大きさは小さいままで数密度が高くなり，温度が比較的高い場合にはキャビティの数密度は低いままでそのサイズが大きくなったりする．

(3)照射温度が高くかつ応力が長期間負荷された場合（高温クリープ環境），Fig. 1 の(a),(d),(f)

結晶内部での転位の運動やヘリウムの結晶粒界への拡散などにより，結晶粒界などの界面上にヘリウムが蓄積しキャビティが形成される．特に粒界上のキャビティと外部負荷応力との相互作用により粒界き裂が発生し破壊に至る．これはクリープ強度が低下するいわゆる高温ヘリウム脆化と呼ばれている．Fig. 1 の(f)のマークが粒界のHeキャビティから発生する粒界き裂を示している．

このようなヘリウム効果に対する対策も考えられている．オーステナイトステンレス鋼の場合，転位や微細な析出など周辺に応力場を持つ欠陥や界面を微細かつ均一に導入し，これらにヘリウムを捕獲させヘリウムの移動を抑制することで，欠陥集合体の成長や粒界キャビティ形成の抑制が図られた．具体的に SUS316 系のオーステナイトステンレス鋼においては，20%程度の冷間加工とTi添加により実際にヘリウムの影響（スウェリングと高温ヘリウム脆化）を抑えた材料が開発されている．オーステナイトステンレス鋼は 14 MeV 中性子照射による放射化が大きくなるため DEMO 炉以降では以下に述べる低放射化構造材料の使用が考えられているが，これらの材料のヘリウムの効果やその抑制のための対策としては，同じようにヘリウムの捕獲サイトの導入が有効と考えられている．

6.2 核融合炉構造材料の候補材料におけるヘリウム効果の概略

核融合炉用低放射化構造材料としては現在のところ低放射化フェライト／マルテンサイト鋼（以下「低放射化フェライト鋼」と呼ぶ）と，バナジウム合金，SiC/SiC 複合材料が考えられている．これらの材料中における 10 MWy/m² の中性子照射後における核変換ガスの生成量は，Table 1 のようになると予測されている[1]．ここで，10 MW/m² の中性子壁負荷は，およそ 100 dpa のはじき出し損傷量に相当する．

生成する核変換ガスとしては (n, α) 反応によるヘリウムと， (n, p) 反応による水素がある．核融合炉の運転条件下の材料中での蓄積量とはじき出し損傷量が多くなった場合において，水素の影響がどのように現われるかについてはまだ十分解明されていないが，水素は材料中にある程度は固溶し，高温では拡散するのでヘリウムほど損傷の組織発達や機械的特性に影響しないであろうと考えられている．そこで水素の効果についてはまた別の機会にまとめることとし，本章では欠陥との相互作用と関係づけてヘリウムの

Table 1 Production rate of transmutation gas elements in candidate structural materials [2].

Structural Materials	Production Elements	Production Rate appm/(10MWy /m ²)
9 Cr-2W	He	1510
	H	3020
V-5Cr-5Ti	He	509
	H	1620
SiC/SiC Composites	He	7800
	H	3130

影響を述べることにする．

Table 1 のデータはブランケットおよび遮蔽材ともに同一の材料で作製したとして第一壁領域における生成量である．ヘリウムの生成量は材料により大きく異なり，同じ壁負荷で比較すると SiC が最も大きなヘリウム生成量となると予測されている．第一壁中のヘリウム生成に大きな影響をおよぼす中性子スペクトルはブランケット領域の構造材料や遮蔽体の材料の選択によって異なるが，野田らの計算によると第一壁領域におけるヘリウムの生成量は，ブランケット・遮蔽領域の材料選択にはそれほど依存しないことが報告されている[1]．一方，第一壁領域からブランケット領域に入ると中性子スペクトルが軟らかくなるため，ヘリウムや水素の生成量は低下する傾向を示す[2]．

構造材料におけるヘリウムの影響を調べるためには，核融合炉環境と同じようにヘリウムとはじき出し損傷を同時に材料中に導入しなければならない．そのためには，(1)核融合炉と類似の高エネルギー中性子を発生する強力中性子源による照射，(2)核分裂中性子でも (n, α) 反応を起こしやすい元素を材料に添加し核分裂炉で照射，(3)トリチウムの核変換を利用したヘリウム注入法（トリチウムトリック法）と核分裂炉照射の併用，(4)多重ビーム加速器による重イオンと He イオンの同時照射，(5)高エネルギー加速器を用いたヘリウムの注入後の試験片の核分裂炉照射などの手法がある．(1)のためには十分なはじき出し損傷量とヘリウムの発生量を確保するために IFMIF などの強力中性子源が考えられる．しかし，現状ではこのような機器が存在しないので，材料や対象とする特性などにより(2)～(5)の方法が取られている．

フェライト鋼の場合には，破壊靱性や延性脆性遷移温度（DBTT）などの機械的特性のデータを得るには比較的大きな試験片が必要となる．そのため (n, α) 反応を起こしやすい Ni や B を添加した候補材料を作製し，それらの核分裂炉での照射が行われている．(3)のトリチウムトリック法は水素の溶解度の高いバナジウム合金にのみ使われている．この場合，核分裂炉内での照射と併用することで，核融合炉近似の He/dpa をもった照射環境を作り出す動的ヘリウム注入実験（DHCE）法が開発され[3]，高速炉を使って実験が行われた．SiC/SiC 複合材料においては現在のところ(2)や(3)に相当する方法が開発されていないので，材料依存性がない(4)と(5)の方法を用いて低放射化フェライト鋼，バナジウム合金とともに微細組織評価および微小試験片技術を用いた機械的特性評価が進められている．以下ではこれま

で日米科学技術協力事業・JUPITER 計画などにより得られた成果をもとに材料ごとに述べる。

6.3 低放射化フェライト鋼におけるヘリウムの影響

低放射化フェライト鋼(主な組成:Fe(7.8)Cr(1.2)W)は溶解製造後の熱処理によりマルテンサイト組織(結晶粒内にラスパケットと高密度の転位を有する)と炭化物の微細な析出物をもつ組織となっている。このような組織には格子欠陥の消滅位置(シンク)が多いので、格子欠陥の易動度の高い温度領域(450 ~ 600)ではボイド形成が起こりにくい。ヘリウムもこれらの内部組織に捕獲されるためにボイドスウェリングへの影響も小さい。多重イオンビーム照射によるとこの温度範囲でのスウェリングは50 dpa 照射後でも0.1%以下と報告されている[4]。

低放射化フェライト鋼の場合には、300 以下の温度における照射硬化とそれによる延性脆性遷移温度(DBTT)の上昇が課題である。この温度領域においては照射欠陥の蓄積とともに照射硬化が増加し、DBTT も上昇する。Fig. 2 は低放射化フェライト鋼の照射硬化量とDBTTの上昇分の関係を示した[5]。フェライト鋼においては、ヘリウムの効果を調べるために、核融合炉用の材料組成には含まれないNiやBを添加した素材を作製し、それを核分裂炉で照射し、核融合炉で想定されるヘリウムの効果を調べている[6,7]。その結果、はじき出しに加えて100 appmのヘリウムが入ることによってDBTTが150-200 程度上昇すると報告されている。ただし、フェライト鋼の析出物などの微細組織の状態はこれらの元素の添加によってかなり変わるために、ヘリウムの効果なのか、添加元素によるものなのかを区別する必要がある。Fig. 3 はヘリウム導入法によるDBTT 上昇とヘリウム濃度の関係を示したものであり[8]、実験方法によってDBTT 変化が異なることがわかる。最近の研究では、添加元素の影響を考慮すると、DBTT の変化におけるヘリウムの影響はNiやB添加材で見られた変化の1/3 程度ではないかと言われている[5]。

フェライト鋼の高温ヘリウム脆化については、DBTT 同様まだ十分なデータが得られているとは言い難い。これまでの加速器によるHe 注入材の高温引張りや高温クリープ試験によれば、300 appm 程度のヘリウムがあっても粒

Fig. 2 Relation between DBTT shift and yield stress increase for 7.9%Cr reduced activation ferritic/martensitic steels. Some of the specimens were doped with Boron and Nickel to introduce helium in the materials [6].

界破壊が見られないことから[9]、数百 appm 程度であればそれほど顕著な高温ヘリウム脆化が起きないのではないかと考えられている。ただし、さらに重照射条件となって200 dpa で3,000 appm という条件になった場合、キャビティの形成が顕著に起こる可能性があり、高温クリープ特性や照射後のDBTT どうなるのかさらに調べる必要がある。

6.4 パナジウム合金におけるヘリウムの効果

核融合炉用候補材料であるV(4.5)Cr(4.5)Ti合金の耐スウェリング性は良好で、比較的高い dpa 領域でも大きなスウェリングを起こすとは考えられていない[600, 30 dpa で約0.3%][10]。照射量が増加するといったスウェリング量が増加するが、その後は減少するとの挙動も報告されている。これらデータは異なる試験片の観察から得られたものなので、照射速度や照射温度履歴などの影響が含まれている可能性があり、今後さらに詳細な検討が必要ではあるが、耐スウェリング材料開発への有益な知見が得られる現象と期待されている[11]。ヘリウムの影響を調べるために加速器によるイオン注入法やトリチウムの放射性壊変を利用するトリチウムトリック法などが用いられている。これらの場合、核融合環境におけるヘリウム生成量とはじき出し損傷量の比に対してヘリウムが多い条件となっているが、加速器により室温で50 appmのヘリウムを予注入した場合には、650 以上の引張り試験で伸びの低下やキャビティの形成が認められている[12]。多重イオンビーム照射の結果では、ヘリウムの存在によりスウェリングが促進される傾向が報告されている[13]。

パナジウム合金の場合、核融合炉環境でヘリウムとはじき出し損傷が共存する環境下を模擬する動的ヘリウムチャージング(DHCE)法により、高速炉環境下ではじき出しとヘリウムの共存条件を作り試験が行われた。Fig. 4 に結果の一例を示す[14]。この場合、450-600 の照射温度

Fig. 3 Dependence of DBTT shift on Helium concentration obtained by several researchers with different test techniques [9].

領域でヘリウムとはじき出しを同時に導入した場合においてはトリチウムトリック法で粒界破壊は観察されず、顕著な伸びの低下は起こっていない。薄板の衝撃曲げ試験後の破壊様式の観察から DBTT は -150 より高くはならないであろうと考えられている[15]。これらのデータからバナジウム合金(V-4Cr-4Ti)においては中性子照射損傷に加えてヘリウムが存在しても深刻な延性低下が起こらないと予想されている[10]。

Fig. 5 にヘリウム注入あるいは DHCE 照射した試験片の引張り試験による全伸びの非照射材と比べた変化をまとめて示す[16]。伸びの低下が見られるが、これらはいずれもヘリウム無しの場合のはじき出し損傷のみの場合に得られている伸びの低下とほぼ同程度であり、200 appm 程度のヘリウムが加わってもそれによる伸びの低下の増加はほとんどないとされている[10]。しかし、高温での寿命を決める因子である照射下クリープへの多量のヘリウムの影響(500 - 1,000 appm)はいまだ不明であり、核分裂炉における DHCE 法とクリープチューブを用いた照射下クリープ挙動

Fig. 4 Results of tensile tests conducted near 400 °C; 0.2% proof stress, UTS and total elongation are shown. Data for control specimens and Helium doped specimens by cyclotron injection are also included in this figure [11].

Fig. 5 Temperature dependence of the normalized total elongation for several V alloys pre-implanted with He and then neutron irradiated. Implantation was performed by cyclotron injection or a modified tritium trick technique [14].

の評価,あるいはIFMIFによるクリープ試験が必要である。

6.5 SiC/SiC 複合材料におけるヘリウムの影響

これまで述べたフェライト鋼やバナジウム合金は延性を持った金属材料であるのに対し SiC はダイヤモンド構造をもったセラミックスであり、通常の条件下では延性を示さず、金属材料とは挙動がかなり異なる。フェライト鋼における Ni や B 添加法やバナジウム合金における DHCE 法のような機械的特性に及ぼすヘリウムの挙動を調べるための模擬照射法は開発されていないため、加速器による多重ビーム照射やヘリウムの予注入法を用いた微細組織発達や微小硬さなどのデータから照射下におけるヘリウムの影響を評価している。

SiC においては、想定運転温度領域である 1,000 °C 前後では格子欠陥の再結合が活発なために見かけ上蓄積される欠陥集合体が少なくなり、スウェリングが小さくなると考えられている。SiC/SiC 複合材料は SiC の繊維と SiC のマトリックスおよび、繊維・マトリックス間の中間層から構成されている。個々の構成要素で照射特性が異なるが、これまでの研究の結果、高結晶性、酸素などの不純物が少ない化学量論組成をもつものが、高温重照射環境下でも寸法変化が少なく耐照射性が高くなると考えられている。イオン照射と中性子照射の効果によるスウェリングを比較したのが Fig. 6 である[17]。600 °C 以下では格子欠陥の蓄積による体積膨張(スウェリング)が見られ、ヘリウムはこのスウェリングを多少増加させる傾向がある。800 °C 照射においては、ヘリウムのない場合ではキャビティが見られないのに対し、ヘリウムが存在すると数 nm 程度の微細なキャビティが形成される傾向が見られている[18]。1,000 °C ではスウェリングを促進する傾向が見られている。ヘリウムの有無によるキャビティスウェリングをまとめたのが Fig. 7 である[19]。核融合炉の運転温度領域である 800 °C から 1,000 °C の範囲では、10 dpa 照射でヘリウムが 1,500 appm 相当

Fig. 6 Swelling in monolithic SiC at 3 dpa plotted against irradiation temperature[17]. Neutron data were taken from literatures.

Fig. 7 Cavity swelling of SiC matrix in advanced SiC/SiC composites at 10 dpa using various irradiation conditions. Single: displacement damage only. Dual_He: 1500 appm He co-implantation. Triple: 1500 appm He and 800 appm H co-implantation [19].

入ってもキャピティスウェリングは0.2%程度にとどまっており、寸法安定性については他の候補材料とほとんど変わらないか、それよりも良好であると考えられている。

一方、機械的な特性についてはまだ十分なデータがない。高純度のSiC多結晶の微小押し込み試験による弾性率の変化は想定運転温度領域では7.7 dpaまでほとんど認められていない[20]。ヘリウムの影響についてはさらにデータが少ないが、加速器によりヘリウムを予注入した高純度のSiC多結晶材料では曲げ破断強度が上昇するなどの影響が見られている[21]。また、SiCの繊維は複合材料におけるき裂進展の際の主な応力分担部材であり、複合材料の強度や照射特性を左右する重要な材料であるが、これに加速器により1 at.%のヘリウムを注入し、多結晶材でヘリウムキャピティが粒界に析出する1,400℃で焼鈍を施した後で引張り試験をしてもほとんど強度の低下が見られず[22]、高温でも顕著な強度低下は起こらない可能性がある。

以上のデータをまとめると、SiC/SiC複合材料は、核融合炉の想定運転温度領域の照射で起こるスウェリングは小さく寸法安定性に優れており、これにヘリウムが加わってもキャピティの核発生が促進されるものの、その影響は小さいと推定される。機械的特性についても、10 dpa程度までは強度および破壊の挙動に大きな変化を生ずることはないと考えられている。金属材料における高温ヘリウム脆化のような現象はこれまでのところ確認されていない。

6.6 構造材料におけるヘリウム効果について

以上述べてきたのは核分裂炉や加速器照射などの方法で明らかになってきた中性子と核変換ヘリウムによる特性変化であった。これまで得られたはじき出し損傷量(フェライト鋼: 約100 dpa以下、バナジウム合金: 約30 dpa以下、SiC/SiC複合材料: 約10 dpa以下)およびヘリウム量の範囲においては、照射による特性の変化は認められるも

の、ヘリウムが加わることによる深刻な特性の劣化は見られていない。しかし本章の最初に述べたように寿命終期では200 dpa程度までの照射量が想定されている。このような重照射領域でかつヘリウムが生成する環境下における照射脆化、高温ヘリウム脆化、スウェリングによる寸法変化についてはデータがなく、はじき出し損傷とヘリウムを同時に注入できるIFMIFなどの強力中性子源による照射が不可欠である。核融合炉の寿命終期までの中性子照射を行っても材料に大きな劣化が起こらないという材料の信頼性を確保するためにも、一刻も早くIFMIFなどの材料照射試験装置・施設を建設し、材料の評価を進めていく必要がある。

参考文献

- [1] T. Noda and M. Fujita, J. Nucl. Mater. 233-237, 1491 (1996).
- [2] L. El-Guebaly, ARIES-AT report (1995).
- [3] D.L. Smith, D.L. Smith, L. Greenwood and B.A. Loomis, J. Nucl. Mater. 155-157, 1359 (1988).
- [4] E. Wakai, T. Sawai, T. Furuya, A. Naito *et al.*, J. Nucl. Mater. 307-311, 278 (2002).
- [5] S. Jituskawa, A. Kimura, A. Kohyama, R.L. Klueh *et al.*, J. Nucl. Mater. 329-333, 39 (2004).
- [6] R.L. Klueh and D.J. Alexander, J. Nucl. Mater. 187, 60 (1992).
- [7] K. Shiba and A. Hishinuma, J. Nucl. Mater. 283-287, 474 (2000).
- [8] A. Kimura, R. Kasada, K. Morishita, R. Sugano *et al.*, J. Nucl. Mater. 307-311, 521 (2002).
- [9] A. Hasegawa, N. Yamamoto and H. Shiraishi, J. Nucl. Mater. 202, 266 (1993).
- [10] H. Matsui, K. Fukumoto, D.L. Smith, H.M. Chung *et al.*, J. Nucl. Mater. 233-237, 92 (1996).
- [11] H.M. Chung, B.A. Loomis and D.L. Smith, J. Nucl. Mater. 212-215, 804 (1994).
- [12] T. Matsushima, M. Satou, A. Hasegawa, K. Abe and H. Kayano, J. Nucl. Mater. 258-263, 1497 (1998).
- [13] N. Sekimura, T. Iwai, Y. Arai, S. Yonamine, A. Naito, Y. Miwa and S. Hamada, J. Nucl. Mater. 283-287, 224 (2000).
- [14] M. Satou, H. Koide, A. Hasegawa, K. Abe, H. Kayano and H. Matsui, J. Nucl. Mater. 233-237, 447 (1996).
- [15] H.M. Chung, L.J. Nowicki, D.E. Busch and D.L. Smith, ANL/FPP/TM-287, ITER/US/IV MAT 10 (1995) 175.
- [16] R.J. Kurtz, K. Abe, V.M. Chernov, D.T. Hoelzer, H. Matsui, T. Muroga and G.R. Odette, J. Nucl. Mater. 329-333, 47 (2004).
- [17] Y. Katoh, H. Kishimoto and A. Kohyama, J. Nucl. Mater. 307-311, 1221 (2002).
- [18] A. Hasegawa, S. Miwa, S. Nogami, A. Taniguchi, T. Taguchi and K. Abe, J. Nucl. Mater. 329-333, 582 (2004).
- [19] S. Miwa, A. Hasegawa, T. Taguchi, N. Igawa and K. Abe, *to be published in Trans. JIM*.
- [20] S. Nogami, A. Hasegawa and L.L. Snead, J. Nucl. Mater. 307-311, 1163 (2002).
- [21] L.L. Snead, R. Scholz, A. Hasegawa and A. Frias Rebelo, J. Nucl. Mater. 307-311, 1141 (2002).
- [22] A. Hasegawa, S. Nogami, T. Aizawa, K. Katou and K. Abe, J. Nucl. Mater. 307-311, 1152 (2002).