



## プロジェクトレビュー 日米科学技術協力事業 PHENIX 計画 - 6年間の成果と次期計画 -

### 3. タスク 2 中性子照射タングステンの熱・強度特性

#### 3. Task 2: Thermal and Mechanical Properties of Neutron Irradiated Tungsten

檜木達也<sup>1)</sup>, 長谷川 晃<sup>2)</sup>, 宮澤 健<sup>2)</sup>, 秋吉優史<sup>3)</sup>, 近藤創介<sup>1,2)</sup>  
HINOKI Tatsuya<sup>1)</sup>, HASEGAWA Akira<sup>2)</sup>, MIYAZAWA Takeshi<sup>2)</sup>, AKIYOSHI Masafumi<sup>3)</sup>  
and KONDO Sosuke<sup>1,2)</sup>

<sup>1)</sup>京都大学, <sup>2)</sup>東北大学, <sup>3)</sup>大阪府立大学

(原稿受付: 2020年1月7日)

オークリッジ国立研究所(ORNL)の研究炉 High Flux Isotope Reactor (HFIR)において, 各種タングステン系材料の550°C~1050°Cでの中性子照射試験を行った。核融合環境に近い中性子スペクトルを得るために, 熱中性子遮蔽を行った照射試験も実施し, 基本的な強度特性, 熱特性に関する中性子照射効果に関する知見を得た。国内で開発された K-doped W,W-3%Re 等の新規材料が広範囲の条件で照射後も高い延性挙動を示すことを見出した。

#### Keywords:

neutron irradiation, tungsten, thermal neutron shielding, transmutation, thermal properties, mechanical properties

#### 3.1 諸言

PHENIX 計画の目的の一つは, タングステン系材料の各種特性に及ぼす中性子照射効果を明らかにすることである。しかしながらタングステンの場合, 熱中性子によるレニウム (Re) の生成等核変換の効果が大きく, 特に比較的高い損傷量での中性子照射において影響が顕著となる。核変換効果を考慮した比較的高い線量領域でのタングステンの照射効果はこれまで得られていない。また, これまでに得られているタングステン系材料の中性子照射データは, 800°C程度までが中心であるが, ダイバータでは, 最高1500°C程度までの温度が想定されている。純タングステンでは, 1000°C以上で再結晶が生じるが, 1000°C以上での中性子照射データは非常に限られている。本研究では, タングステンの核変換効果を抑制するための熱中性子遮蔽を行い, 1000°Cを超える照射温度も含めて, 中性子照射を現状候補とされる各種タングステン系材料に対して行うことにより, 核融合ダイバータ用タングステン系材料に対する中性子照射効果の基本的な理解をめざした。また, 熱中性子遮蔽の無い通常のカプセルでの中性子照射も行い, 核変換効果の評価も行った。

#### 3.2 中性子照射タングステン系材料

材料の中性子照射効果を調べるには照射前の材料中の組織が単純でクリアーである方が理解しやすい。一方でタングステンの場合, 核融合炉への適用を考えると, 室温近傍における粒界脆化や再結晶脆化の起こりにくい材料の開発が喫緊の課題となっている。タングステンの脆性抑制にはこれまでに合金化や加工熱処理による粒界や粒内組織の調

整が行われてきた。現時点では工業的背景やコスト, 均質性・再現性などを勘案すると, 国際熱核融合実験炉 ITER のダイバータタイルの製造に用いられている粉末焼結と高温における圧延加工によって作られたタングステンの厚板材料における中性子照射効果を調べるのが核融合炉用タングステンの開発に寄与すると考えた。そこで日本側の試料としては, 微細粒組織で低温での韌性改善が見込まれるいくつかのタングステン系材料について, 合金原料素材, 熱処理, 圧延加工率などをそろえるために, アライドマテリアル社に依頼して, 純タングステン (pure W), カリウム添加タングステン (K-doped W), タングステン-3%レニウム合金 (W-3%Re), およびカリウムとレニウムを複合添加した合金 (K-doped W-3%Re) の4つの材料を照射用試料として作製した。韌性改善が見込まれる微細結晶粒組織とするために, 高温における圧延時の加工率を80%にそろえ, 最終熱処理として900°C・20分の応力除去処理を行った厚板から放電加工により各試験片を切り出し, 表面研磨仕上げをしたものを日本側の共通試料とした。これらの試料は, 2011(平成23)年度から2014(平成26)年度までの核融合科学研究所 LHD 計画共同研究 (核融合炉の中性子照射環境に対応した高熱流束機器用タングステン材料の開発と製造: 研究代表者・長谷川晃) においてある程度まとまった量を作製したものから選択した。米国側は, 学術的にタングステンそのものの照射脆化機構を明らかにすることを目的として単結晶タングステンと, さらにいくつかの市販のタングステンおよびタングステン-レニウム合金などを試料として照射に供した。

日本側の試料については, 中性子照射の準備と並行して

非照射材の引張試験やシャルピー衝撃試験による機械的特性の評価と、最高2300℃までの熱処理による組織変化、熱伝導率などのデータの取得を進めた。また HFIR での熱中性子遮へい及び温度モニター付き照射カプセルを用いた RB\*照射（詳細は次節）が始まり、おおよその照射温度が判明した段階で、照射時間と同じ期間・同じ温度に保持した熱時効試験も開始した。RB\*照射は4サイクル（ $28 \times 4 = 112$ 日）、約2700時間行ったので、熱時効試験は800℃と1100℃で3000時間まで実施し、各温度における微細組織安定性の基礎データを収集し、作製したタングステン系材料の高温環境下での微細組織の安定性[1]のデータを取得した。各試料の照射前における組織の異方性の機械特性への影響[2]、熱伝導特性[3]および強度や温度を下げたときに延性が急激に低下する境界温度である延性脆性遷移温度（Ductile Brittle Transition Temperature: DBTT）などの機械特性[4]のデータも、照射後試験の開始に合わせて収集し、データベース化に備えた。

### 3.3 熱中性子遮蔽効果

米国のオークリッジ国立研究所（ORNL）にある High Flux Isotope Reactor（HFIR）において、上述の各種タングステン系材料に対して中性子照射試験を行った。ガドリニウムにより熱中性子遮蔽を行った RB\*カプセルでは、約550℃、約850℃、約1050℃で0.2~0.7 dpa（displacement per atom）程度の照射を行った。熱中性子遮蔽無しで50×6 mm 径程度の容積を持つ比較的小型の Rabbit カプセルを用いた中性子照射も、800℃、1100℃で0.4~0.5 dpa 程度まで照射を行った。強度や熱拡散等の基本的物性、耐熱負荷特性、トリチウム透過等多様な特性を系統的に評価できるように、日米で550℃の温度領域で406個、850℃の温度領域で389個、1050℃の温度領域で359個の試料を RB\*で照射した。図1の(a)はグラファイトでできたサブカプセルであり、試料の形状に合わせたスロットが彫られており、(b)に示すような試料がスロットに装填された。RB\*カプセルは(c)に示すように4つのサブカプセルが連結し構成された。Rabbit 照射では、800℃、1100℃のカプセルでそれぞれ27個の試料が照射された。

Rabbit 照射試料では微細組織に顕著な核変換効果が認

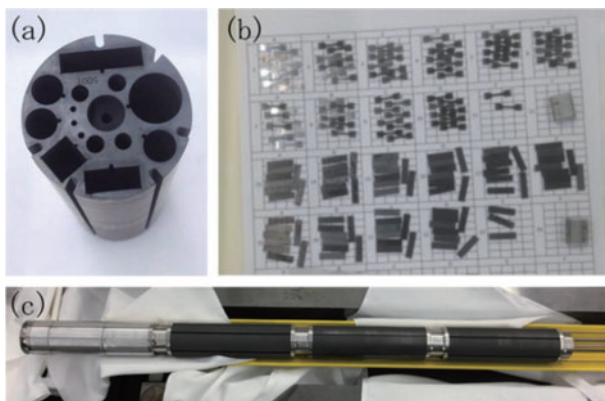


図1 RB\*照射カプセルと照射試料 (a)グラファイト製サブカプセル (b)RB\*照射試料の一部 (c)RB\*照射カプセル。

められた。図2は単結晶タングステンの例であるが、オスミウムやレニウムが局所的に濃化している。核変換“固体”原子が及ぼす母相の転位ループやボイド組織発達への影響の程度は必ずしも明確でないが、少なくとも高温では照射中に比較的容易に拡散したことを示している。弾き出しによる1次、2次欠陥と頻繁に対面し得るこれら異種元素の生成の抑制が、実環境での材料挙動理解に不可欠であると直感的に理解できる。

### 3.4 中性子照射タングステン系材料の熱特性

固体材料中の熱伝導は、大きく分けてフォノンによるフォノン伝導と、自由電子による電子伝導とに分けることができる。セラミックス材料は主に前者により熱を輸送し、欠陥の導入に伴うフォノン-格子散乱や、温度上昇に伴うフォノン-フォノン散乱の増加によって熱拡散率が低下する。タングステン材料は、主に電子伝導により熱輸送を行うが、1/3程度はフォノン伝導によっても熱を輸送しており、欠陥導入によって熱拡散率が低下する。さらに、タングステンが中性子照射により核変換することで生じるレニウムやオスミウムにより熱拡散率に大きな影響を及ぼすことが知られている[5]。PHENIX プロジェクトに於いては、ガドリニウムによる熱中性子遮蔽を施した照射を行っており、核変換量を抑制した条件での欠陥導入により熱拡散率にどのような影響が与えられるかが注目されている。

ここでは、試料として Pure W 及び K-doped W-3%Re の $\phi 6 \text{ mm} \times t 2 \text{ mm}$ の円板で、平面に対して配向方向が平行のものとは垂直のものにそれぞれ照射した結果を報告する。ORNL の LAMDA 実験室内に設置された NETZSCH 社製 LFA-457 を用いて約550℃で中性子照射した試料に対して、100℃~500℃の範囲で熱拡散率測定し、 $\alpha = a/T^n + c$  という定数項を持つ関数を用いてフィッティングを行った[6]。

RB\*で約550℃で照射した材料と非照射材の測定結果を図3に示す。照射後の試料はいずれも室温付近では照射前と比べて明確な熱拡散率低下を示しているが500℃程度で漸近しており、その差は小さくなっている。これは照射による格子欠陥導入によりフォノンが散乱され、低温時では差異が大きかったが、高温ではフォノン-フォノン散乱に

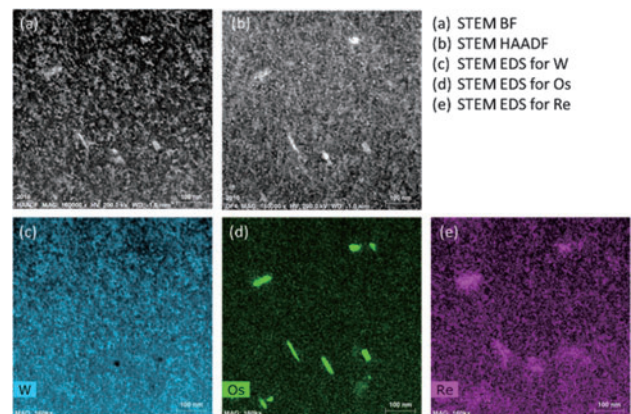


図2 1100℃でRabbit照射した単結晶タングステンの微細組織とSTEM-EDSによる元素分析結果。

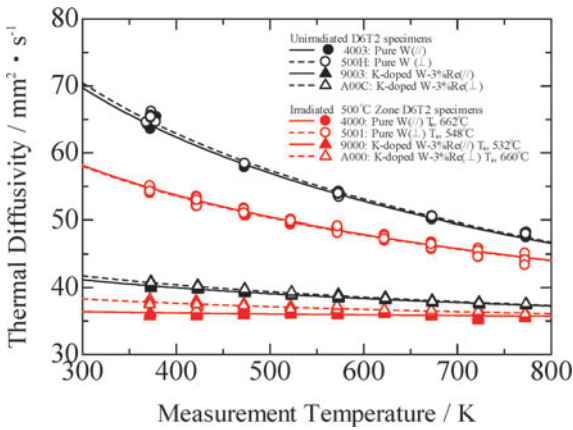


図3 照射前後のタングステン系材料の熱拡散率温度依存性.

より未照射試料に於いてもフォノン伝導の寄与は小さく電子伝導が支配的になっているためと考えられる。高温での未照射試料からの熱拡散率の低下がレニウムの寄与を表すと考えられるが、500℃までの測定に於いてはPure W 照射後試料と未照射のW-3%Re 試料とは後者の方が明らかに小さい値を示している。核変換によるレニウムの生成量は少なくとも3%以下であり、ガドリニウムシールドの効果が確認されたと考えられる。今後、照射後の試料に対して高温での電気伝導度測定を行うことで、熱拡散率の挙動を解釈する手がかりになると考えられる。なお、K-doped W-3% Re 試料は、結晶粒配向方向で差が見られるが、これは照射温度などの照射条件の差によるものであると考えられる。

### 3.5 中性子照射タングステン系材料の強度特性

熱中性子遮蔽を行ったRB\*カプセルにて550℃と850℃で中性子照射した後の室温におけるビッカース硬さ測定による照射硬化量を各合金別にまとめた結果を図4に示す[7]。ここでSRは応力除去処理材を示し、Rは再結晶材を示している。純タングステンではR材の方がSR材よりも照射硬化量がどちらの照射温度においても大きくなっている。一方で、照射温度による照射硬化量の違いは純タングステンではほとんど見られなかったのが特徴的である。

これまでに得られている純タングステンの原子炉照射による照射硬化量の照射量依存性をプロットしたのが図5

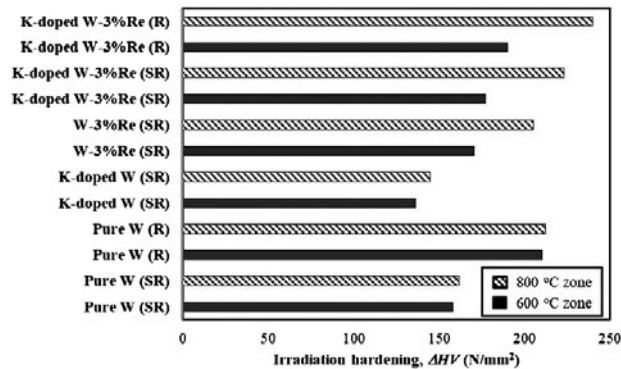


図4 RB\*で550℃および850℃でそれぞれ0.4 dpa および0.7 dpa 照射したタングステン材料のビッカース硬さ測定による照射硬化量[7].

[7]である。今回の照射による照射硬化量は従来の研究によるデータの傾向とほぼ一致していることがわかる。タングステンの中性子照射では核変換により生成するレニウムが析出し始めると照射硬化量が急激に大きくなることが報告されているが、今回の照射では熱中性子遮蔽をしていることと、それらの違いがはっきりと出てくる約1 dpa よりも若干照射量が少なかったことが原因ではないかと考えられるが、透過電子顕微鏡などによる微細組織観察を行うことで、その機構が明らかになると期待される。

純タングステン以外の合金試料では、図4に示すようにいずれも照射温度が高い方が、硬化量が大きくなり、純タングステンとは異なる硬化挙動を示している。またレニウムを3%添加した試料の方が、レニウムを含まない試料よりも硬さが大きくなっている。レニウムを最初から含有していることで、照射量が1 dpa 以下でもW-Reの析出物が形成し、硬化量が大きくなった可能性などが考えられるが、その詳細は今後の微細組織観察によって調べる。

図6および図7は550℃と850℃で照射した各材料のSR材の照射前後の引張試験で得られた応力ひずみ線図である。引張試験温度はいずれも原子炉照射温度よりも低い温度で行った。その理由は照射によって生成した照射欠陥集合体が、試験前および試験中の加熱によって変質することを防ぐためである。非照射の状態では、強度や伸びの試験温度依存性は小さいため、500℃でも700℃でもほぼ同じような応力ひずみ線図となっている。3%のレニウムの添加により、若干伸びが大きくなる傾向は見られるがその差はそれほど顕著では無い。

照射後の応力ひずみ曲線は図6でも図7でも各試料とも非照射材と大きく異なり、試料ごとの違いも顕著に表れている。550℃の照射ではいずれの試料も降伏応力あるいは破壊応力が非照射材の2倍近くまで大きくなるというはっきりとした照射硬化が見られた。一方でpure Wではほとんど塑性変形を伴わずに脆性的に破断したのに対し、W-3%Re および K-doped W-3%Re では非照射材の半分程度ではあるが、伸びを示しているのが特徴である。

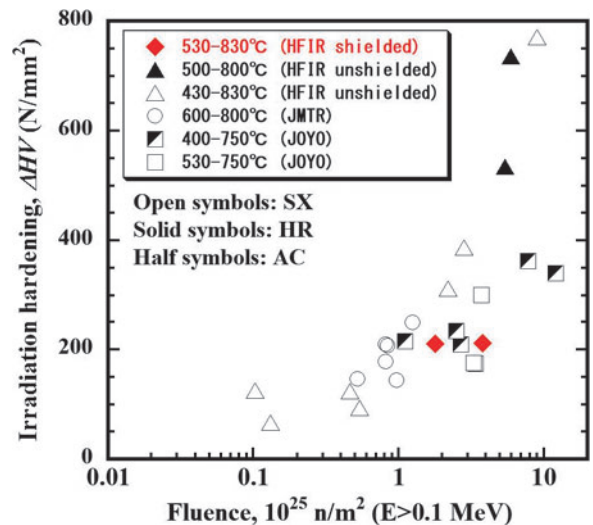


図5 これまでに得られた純タングステンの中性子照射量と照射硬化の関係[7].

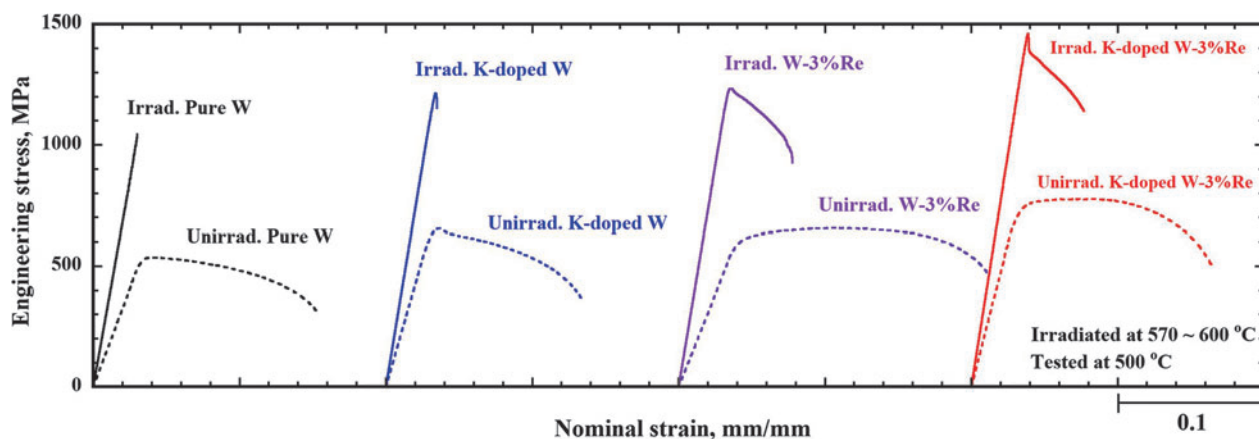


図6 応力除去処理材の非照射試料, および 550°C で 0.4 dpa 照射した後の試料を 500°C で引張試験をした際の応力ひずみ線図[7].

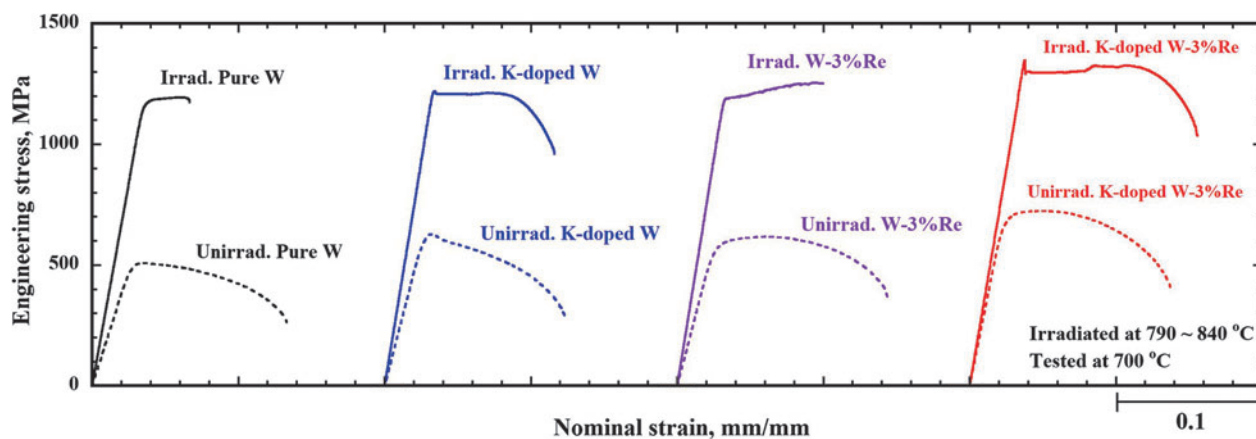


図7 応力除去処理材の非照射試料, および 850°C で 0.7 dpa 照射した後の試料を 700°C で引張試験をした際の応力ひずみ線図[7].

850°Cでの照射でも同じように降伏応力が2倍程度になるという傾向は同じであった。さらに pure W 以外の試料では破断伸びが照射前とほぼ変わらない値を示しており、照射後に破壊までに要するエネルギー、すなわち靱性値が2倍程度になるという照射誘起の高靱性化（タフニング）現象が見られた。破断面観察の結果は、pure W 以外で応力除去処理材特有の扁平な結晶粒組織に由来する多層構造の破面が観察されており、この温度および弾き出し量では格子欠陥集合体形成による硬化は起こるものの、多層の微細粒組織が残っているために、脆化が現れなかったものと考えられる。今後はさらに低い温度での引張試験を行って、照射材における延性と脆性の遷移の挙動を調べる予定である。

1050°Cで照射した試料についても、照射後の引張試験を行っており、データが出つつある。この温度で長期間の照射を行った場合、試料によっては応力除去処理状態の組織（微細な層状組織）が変質している可能性があり、計画している電子顕微鏡による微細組織の観察とあわせて、機械特性評価を進める。

### 3.6 まとめ

熱中性子遮蔽を行った中性子照射試験により、比較的核融合での条件に近い中性子スペクトルで、1000°Cを超える温度を含む温度条件における各種タングステン系材料の照射効果に関する知見が得られた。

熱中性子遮蔽の無いRabbit照射では、ほとんどの試料において核変換で形成されたレニウムと、形成されたレニウム付近にオスミウムが観察され、比較的大きな硬さの変化が見られた。熱中性子遮蔽を行ったRB\*カプセル照射において、550°Cの照射では照射硬化は見られたものの、W-3%ReとK-doped W-3%Reにおいては延性挙動が認められた。850°Cの照射では、K-doped WとK-doped W-3%Reは照射前と同様の伸びと延性挙動を示した。RB\*カプセルでの550°Cで照射したPure W,K-doped W-3%Reともに、熱拡散率の低下が確認された。室温ではPure Wの方がK-doped W-3%Reに比べ50%以上高い値を示したが、照射温度付近の高温ではPure Wの低下が大きいため、差は20%程度であった。

### 参考文献

- [1] K. Tsuchida *et al.*, Nucl. Mater. Energy 15, 158 (2018).
- [2] M. Fukuda *et al.*, Fusion Sci. Technol. 68, 690 (2015).
- [3] M. Fukuda *et al.*, Fusion Eng. Des. 132, 1 (2018).
- [4] S. Nogami *et al.*, Fusion Eng. Des. 140, 48 (2019).
- [5] Mohamed E. Sawan, Fusion Sci. Technol. 66, 272 (2014).
- [6] M. Akiyoshi *et al.*, Fusion Eng. Des. 136 Part A, 513 (2018).
- [7] T. Miyazawa *et al.*, J. Nucl. Mater. 529, 151910 (2020).  
<https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2019.151910>.