



解説

PHENIX プロジェクトにおける 中性子照射タングステン材の熱拡散率測定

Thermal Diffusivity Measurement on Neutron Irradiated Tungsten Materials in PHENIX Project

秋吉 優 史

AKIYOSHI Masafumi

大阪府立大学 放射線研究センター

(原稿受付：2020年7月19日)

核融合炉材料，特に高い熱負荷を受けるダイバータ材料に於いて熱拡散率は極めて重要であるが，中性子照射によって大きく低下することが知られている．候補材料の一つであるタングステンに於いては格子欠陥の導入による寄与と核変換元素の導入による寄与の両方を考慮しなければならない．PHENIX プロジェクトではガドリニウムシールドを用いて熱中性子束を減らし核変換を抑制した極めてユニークな研究が行われており，その一部を紹介する．

Keywords:

Thermal diffusivity, neutron irradiation, tungsten, miniature specimen

1. はじめに**1.1 核融合炉材料と熱物性**

核融合炉の開発に於いてダイバータ板への高い熱流束（ $\sim 10 \text{ MW/m}^2$ ）は克服しなければならない問題の一つであり，様々な耐熱材料が検討されてきた．ただ単に高い熱流束と言うだけであれば，例えば SiC セラミック材料は $230 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ 程度の高い熱伝導率を示すため，1 cm の厚さの材料に対して背面を 500°C に冷却すれば， 10 MW/m^2 の熱負荷を受けても表面温度は 930°C に留まり，全く問題は無い．ところが核融合炉に於いては大量の高速中性子が材料に入射するため，材料の結晶に格子欠陥を導入し，SiC の場合，熱伝導率が $7 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ 程度にまで著しく低下することが知られている [1]．この熱伝導率と背面温度，熱流束から単純に表面温度を求めると $15,000^\circ\text{C}$ 程度という値になってしまい，当然耐えることはできない．

固体材料中の熱の伝導は，主にフォノン伝導と電子伝導とに分けることができる．前者は結晶格子間の振動を量子化したフォノンによって熱が伝導され，後者は自由電子によるものである．セラミックスでは前者が，金属では後者が主な熱伝導の担い手となる．フォノン伝導は結晶格子の振動による熱伝導であるため，中性子照射により格子欠陥が導入されるとフォノンが散乱され，熱伝導が低下する（フォノン-格子散乱）．また，温度が上昇することによっても，熱振動によりフォノンが散乱される（フォノン-フォノン散乱）．

1.2 熱拡散率と熱伝導率

セラミックス中の熱拡散率 α [m^2/s] は $\alpha = vl/3$ と表される．ここで v はフォノンの平均速度 [m/s] であり，照射によりほとんど変化しないと報告されている [2]．一方， l はフォノンの平均自由行程 (m) であり，照射前後で大きく異なる．照射された試料中では $1/l_1 = 1/l_0 + 1/l_d$ と平均自由行程が変化する．ここで l_1 は照射後のフォノンの平均自由行程， l_0 は未照射試料中のフォノンの平均自由行程， l_d は照射により導入された欠陥によるフォノン散乱の平均自由行程で，欠陥の間の平均距離に相当すると考えられる．結晶粒の粒度分布や結晶粒の形状，結晶粒界面部分の組成といった比較的マクロな構造は数 100 nm ～数 μm 程度のオーダーであり，常温に於いてはフォノン-フォノン散乱の寄与も大きいため，それらを全て加味した照射前の平均自由行程 l_0 は数 10 nm 程度である．これらのマクロな構造は製法などにより異なり，未照射の製品の熱拡散率の違いとなって現れる．

その一方で中性子照射により導入される欠陥は，点欠陥や転位ループなど欠陥の種類により大きさが異なるが，最も寄与が大きい空孔は 0.1 nm 程度であり，中性子照射後の l_d は常温に於いて $0.5\sim 1.5 \text{ nm}$ 程度であった [3]．このため，照射後の試料中でのフォノンの平均自由行程は $l_1 \approx l_d$ となり， l_0 つまり未照射試料中での結晶粒界等の差異による影響は小さいことがわかる．

さらにセラミックスの熱拡散率 α は温度 T と共にフォノン-フォノン散乱によって $\alpha = k/T^n$ に従って低下するが

(k, n は定数), この熱拡散率の温度依存性を左右する n パラメータは, 欠陥導入状態によって変化し, 室温での測定だけでは照射温度における熱拡散率の推定を行うことができない. また, 熱伝導率 K [W/K·m] は熱拡散率 α [m²/s] と比熱 C_p [J/K·kg], 密度 ρ [kg/m³] の積 $K = \alpha C_p \rho$ で表されるが, 比熱, 密度の照射による変化は小さいため (< 2%), 無視できる. このため照射影響については熱拡散率についてのみ考慮する.

1.3 タングステン材料と PHENIX プロジェクト

現在ダイバータ材料の候補としてタングステン材料が検討されており, 日米科学技術協力事業 PHENIX プロジェクトに於いて, 様々なタングステン材料に対する中性子照射影響が検討された. タングステンは金属材料であるが, 熱伝導の 1/3 程度がフォノン伝導によるものであり, 中性子照射による格子欠陥導入に伴い熱拡散率の低下が見られる [4]. さらに, 中性子照射によるもう一つの影響として, 核変換に伴う不純物元素の導入を考慮する必要がある. タングステンは核変換により, レニウム, オスミウムと言った元素に変換されるが, これらの元素の添加により, 大きく熱拡散率が低下することが知られている [5].

タングステンに中性照射を行うと核変換によりこれらの核種が生成し, 無視することのできない影響を与える. タングステン材料のうち天然同位体比が 30.4% の ¹⁸⁴W は熱中性子に対する断面積 1.7 barn で中性子捕獲を行い, ¹⁸⁵W に核変換される. ¹⁸⁵W は半減期 75.1 日で ¹⁸⁵Re に β 崩壊する. さらに ¹⁸⁵Re は熱中性子に対する断面積 112 barn で中性子捕獲を行い, ¹⁸⁶Re に核変換され, 半減期 3.7 日で ¹⁸⁶Os に β 崩壊する. 一方で, 天然同位体比 28.8% の ¹⁸⁶W は熱中性子に対する断面積 38.1 barn で中性子捕獲を行い, ¹⁸⁷W に核変換され, 半減期 23.7 時間で ¹⁸⁷Re に β 崩壊する. さらに, ¹⁸⁷Re は熱中性子に対する断面積 76 barn で中性子捕獲を行い, ¹⁸⁸Re に核変換され, 半減期 17 時間で ¹⁸⁸Os に β 崩壊する. こうして, 純粋なタングステン材料中に均一にレニウムやオスミウムが導入され, 材料の熱拡散率に大きな影響を与える. また, 照射前にわざとレニウムを添加した材料の照射も行っているが, レニウムの天然同位体比は ¹⁸⁷Re が 62.6%, ¹⁸⁵Re が残りの 37.4% を占めており, 上記と同じ反応を起こしてオスミウムに変換される.

ところが, 核融合炉環境と, 材料試験のために原子炉, 特に軽水炉で照射を行う場合, その中性子エネルギースペクトルが大きく異なり, 軽水炉では熱中性子の割合が高いため, 格子欠陥の導入量に比べて核変換量が大きくなってしまい, 実際の核融合炉環境を模擬できないことが明らかになっている [6, 7].

このため, PHENIX プロジェクトに於いては, アメリカオークリッジ国立研究所 (ORNL) の HFIR (High Flux Isotope Reactor) の比較的熱中性子束の少ない RB* (large Removable Beryllium facility) に於いて, RB-19J キャプセル中に 1 mm 厚のガドリニウムのシールドを施すことで, 熱中性子を吸収し, 核融合炉のスペクトルに近づけるという極めてユニークな照射を行った [8, 9]. 照射温度は 550°C, 850°C, 1050°C の 3 つの領域で実施され, それぞれの試料に

対して照射温度モニタと計算から照射温度が与えられている. RB* 領域での中性子束は 85 MW での運転時に 4.7×10^{18} n/m²s ($E > 0.1$ MeV) 及び 9.5×10^{18} n/m²s ($E < 0.5$ eV) であり, ガドリニウムシールドにより, 1×10^{17} n/m²s ($E < 0.5$ eV) 程度にまで熱中性子を減衰させることができると見積られている [10, 11].

その一方で依然核変換に伴う放射化の問題は照射後の試料を用いた実験を実施する上で大きな問題である. タングステンの場合は主な生成核種は ¹⁸⁵W で, 半減期 75.1 日, 433 keV の β 線を放出する核種であり, 数年の冷却期間を設ければ問題はなくなるのであるが, 研究期間の限られたプロジェクトに於いては施設の取扱数量以下に放射能を抑える必要があるため, PHENIX プロジェクトに於いては熱拡散率測定を始めとして様々な物性評価を微小試験片により実施した. 一般的なレーザーフラッシュ法による熱拡散率測定用の試験片は $\phi 10 \times 2$ mm 程度の円板状であるが, $\phi 3 \times 0.5$ mm という, 透過電顕試料 (TEM disk) サイズの試験片での熱拡散率測定を実施した.

2. 熱拡散率の測定手法

2.1 様々な熱拡散率測定法

熱伝導率の測定方法は定常法と非定常法に大別できる. 定常法では温度勾配と熱量を測定することによって絶対値が求められる. 非定常法には過渡的熱流法と周期的加熱法がある. 過渡的熱流法は急激な温度変化を与え, その時間変化から熱伝導率を, また, 周期的加熱法は周期的な温度変化を与え, その位相のずれや減衰率から熱拡散率を測定する方法である. 過渡的熱流法には細線法とレーザーフラッシュ法がある.

レーザーフラッシュ法は 1961 年に Parker らにより報告され [12], その測定の迅速性並びに熱拡散率と熱容量の同時測定が可能であること, また, 微少な試料での測定 (直径 ~ 10 mm, 厚さ 0.5 \sim 2 mm) や広い温度域で測定が可能であり, 広範囲な熱拡散率に適用できることなどから, 広く一般に用いられている方法である [13]. 特に, 熱拡散率が測定温度によって変化する場合, 試料に大きな温度差を生じさせる測定法では測定温度を一義的に定義できず, 熱伝導率が温度履歴の影響を受ける (アニールにより回復が起こる) 中性子照射試料などでは, 測定時間が短く, 測定に伴う温度上昇の小さいレーザーフラッシュ法が適している.

2.2 レーザーフラッシュ法の原理

一様な温度に保持されている加熱炉または冷凍機の中に支持された厚さ L の試料小円板の表面に, 固体レーザーをフラッシュすることにより, 時刻 $t = 0$ において瞬間的に熱量 Q を与え, 小円板の裏面の温度 $T(L, t)$ の上昇を高感度熱電対や赤外線検出器などで観測する. この際, 熱拡散率の低い試料や透光性の有る試料, 金属光沢が有り入射光を反射してしまう試料の場合, 表面に熱伝導の良い黒色の物質をコーティングしておき, フラッシュによる供給エネルギーの吸収を大きくし, さらにフラッシュに対して不透明化して, コーティングされた物質の層に相当する十分薄い

円板表面内における温度分布を一様化する必要がある。

以前はいくつかの仮定を置いて近似すると試料背面温度が最高温度の半分に上昇するまでの時間 $t_{1/2}$ と、試料厚さ L のみによって熱拡散率 α を $\alpha = 0.140L^2/t_{1/2}$ として求める、 $t_{1/2}$ 法が用いられていたが、近年では温度上昇曲線をカーブフィッティングすることにより試料表面からの熱損失や透光性なども考慮する、Cowan モデルや Cape-Lehman モデルなどが解析用ソフトウェアに組み込まれている場合があり、より正確な評価が可能である [14, 15]。また、入力パルスについてもモニタされ、波形を用いた補正も行われている場合がある [16]。

いずれの場合に於いても、測定の際にはできる限り理想的な条件で実験を行う必要がある。

1. 試料は外界と断熱されている。
2. 試料表面は均一にパルス加熱される。
3. 試料表面を加熱するパルス光の発光時間は熱が試料表面から裏面にまで伝わるのに要する時間より十分短い。
4. 試料は均質である。
5. 試料は不透明でパルス光は試料表面付近の十分薄い層で吸収される。

2.3 微小試験片測定上の問題点

前述した通り試料の放射化の問題のため、微小試験片を用いた測定を行う必要があることがプロジェクトの開始時から明らかとなっていたが、TEM Disk サイズの微小試験片を用いた測定技術は確立されておらず、様々な検討が必要であった [17]。

まず、単純に小さい試料を測定すること自体は、外界との断熱性を考慮した治具を作成することで、比較的容易に達成することができる。入力パルスを受光する面積と、試料背面からの赤外線放出を行う面積が縮小されるため、試料からの赤外線信号とノイズの S/N 比が小さくなるが、入力パルスの強度を上げることなどである程度対応可能である。

しかしながら、試料厚さが薄くなることに伴い、前節の「3. 試料表面を加熱するパルス光の発光時間は熱が試料表面から裏面にまで伝わるのに要する時間より十分短い。」という条件から外れてしまう場合がある。JIS R1611 や ASTM E1461 においては、フラッシュパルスの幅 t_f は $t_{1/2}$ の10分の1より短いことが求められている。汎用的な熱拡散率測定装置である、NETZSCH LFA-457 においては、 $t_f = 330 \mu\text{s}$ で、未照射の純タングステンの熱拡散率は $66 \text{ mm}^2/\text{s}$ であるため、 $\alpha = 0.140L^2/t_{1/2}$ の関係式から厚さ $L > 1.25 \text{ mm}$ である必要があることがわかる。中性子照射により若干の熱拡散率低下が予想されるが、0.5 mm 厚の試料では温度上昇曲線はフラッシュパルスに埋もれてしまい正確な評価を行えないことが予想される。実際に未照射の微小純タングステン試料に対して測定を行った結果を図1に示す。温度が低いうちは面積が小さいことに起因する S/N 比の低さから大きくばらついており、プランク則に従って放出される赤外線量が大きくなるため150℃程度から値は落ち着いたが、依然として標準試験片よりも小さい

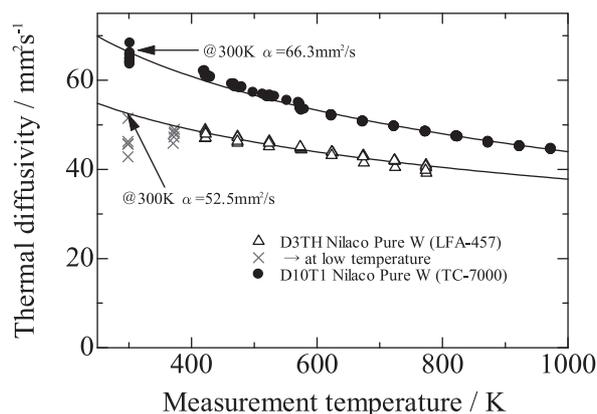


図1 NETZSCH LFA-457 熱拡散率測定装置（フラッシュパルス幅 $330 \mu\text{s}$ ）で直径 3 mm 厚さ 0.5 mm (D3 TH) 微小試験片を測定した結果と、D10 T1 直径 10 mm 厚さ 1 mm の試料に対する測定結果との比較。D3 TH 試料は厚さが薄すぎるため、本来よりも低い熱拡散率と評価されている。

熱拡散率を示した。

このため、PHENIX プロジェクトに於いては従来フラッシュ光源に用いられてきたレーザーではなく、キセノンフラッシュ光源を用いた NETZSCH LFA-467/467HT を用いて微小試験片による熱拡散率測定を行っている [18]。フラッシュパルスの幅 t_f は可変であり、最小で $20 \mu\text{s}$ にまで短くすることができるため、未照射の純タングステンの場合試料厚さは 0.31 mm あれば良い計算になる。また、赤外線センサー側の光学系を絞り、最小で $\phi 2.7 \text{ mm}$ の範囲から集光することで、S/N も向上している。ところが、そのまま従来の測定手法で測定を行うと、大幅に低い熱拡散率として評価されてしまう場合がある。タングステンのように金属光沢を持つ試料は、表面でのフラッシュパルスの吸収率を高め、背面からの赤外線放出率を向上するために、通常カーボンスプレーを塗布する。しかしながら一般に用いられているグラファイトスプレーは数 μm ~ $10 \mu\text{m}$ 程度の層状構造となっており、0.5 mm 程度の厚さの熱拡散率の高い試料に対しては、温度上昇曲線に無視できない余分な時間を付与し、熱拡散率が低く見積られる。そのため、十分薄い層を形成し、測定に影響を与えない、グラフェンナノプレートレットスプレーが必要不可欠である [19]。

図2は、LFA-467HT を使用して、同じ未照射純タングステン試料（高温における圧延時の加工率 80%、熱処理 900°C 、20分、厚板から各試験片を切り出し）の異なるサイズの試料を、従来のグラファイトスプレーとグラフェンスプレーそれぞれで処理して測定した結果である。グラファイトスプレーでは標準サイズの試験片では無視できた差が、厚さ 0.5 mm の試料では無視できなくなっているが、グラフェンスプレーの場合は、D3TH の TEM Disk サイズの試験片でも、標準試験片と同等の結果が得られている (DxTy は、直径 x mm、厚さ y mm (0.5 mm は H と表記) の円板試料を意味する)。

なお、1 mm 厚の純タングステン試料に通常のグラファイトスプレーを薄く、疎らに塗布した場合、表面被覆率が低いと S/N の低下のため本来の値からの乖離が見られた

(図3). 単純に見た目上薄く塗ったとしても意味は無く、通常の試験片ではきちんと試料全面に塗布を行う必要がある。

3. これまでの照射後熱拡散率研究

3.1 SiC とタングステンの照射後熱拡散率

核融合炉材料として検討されている SiC の中性子照射後熱拡散率は、古くは1973年の Price らによって研究が行われ、中性子照射後は試料の種類によらず熱拡散率がほとんど同じ値まで減少し、温度が上昇してもほとんど値が変化しないことが報告されている [20]。照射後試料を1500℃まで等時アニール（1時間程度の一定時間高温で保持した後に、常温に戻しての測定を繰り返す）することにより照射前の熱伝導率に完全に回復することが Thorne らにより報告されている [21]、Corelli らは粒径の微細な常圧焼結の SiC は1500℃の等時アニールにより完全に回復したが、粒の大きな SiC は1500℃の等時アニールでも完全に回復しなかったと報告している [22]。

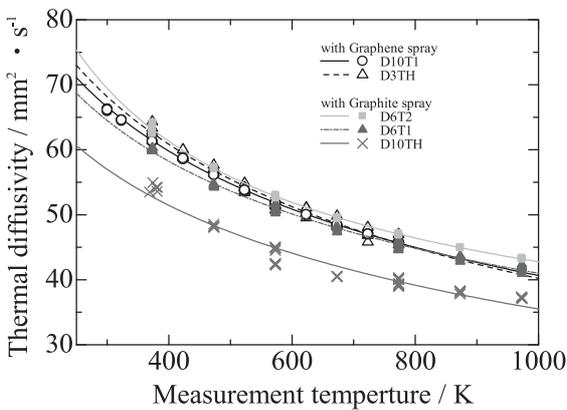


図2 NETZSCH LFA-467HT 熱拡散率測定装置（フラッシュパルス幅 20 μs）で純タングステン製の厚さ 1 mm (T1) もしくは 2 mm (T2) の試験片と、0.5 mm (TH) の試験片をグラファイトスプレー、グラフェンスプレーでそれぞれ処理した場合の測定結果。厚さ 0.5 mm の試料をグラファイトスプレーで処理すると、有意に低い熱拡散率を示すことが分かる。

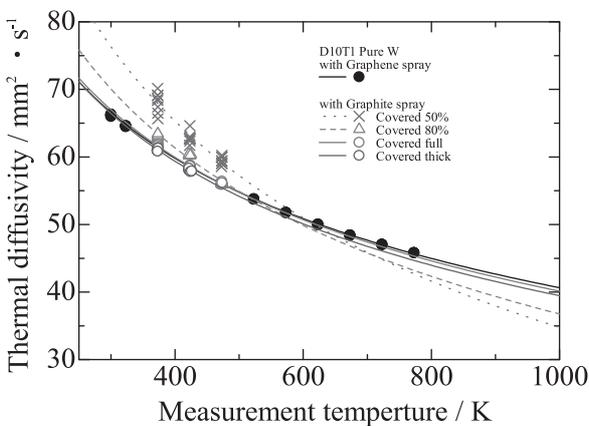


図3 NETZSCH LFA-467HT で純タングステン製の直径 10 mm, 厚さ 1 mm の試験片に対して、従来のグラファイトスプレーを塗布する量を変化させたときの熱拡散率の変化。疎らに塗布すると、S/N 比が悪く、やや高い熱拡散率を示した。

矢野や筆者らによって高速実験炉常陽 Mk-II 炉心で数十 dpa まで中性子重照射した SiC について、照射後 (As-irradiated) の照射条件による違いと高温アニール挙動がスエリング測定、微構造観察と合わせて評価された。転位ループがお互いに抑制し合いそれ以上欠陥導入しても再結合して消えてしまうナノパーティション構造により熱拡散率の照射量に対する低下は $3 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ 程度で飽和し以降は照射温度が高いほど点欠陥の導入量は少ないこと、照射温度付近からの穏やかな回復と、空孔が再結合する1200℃程度からの急激な回復が見られるが、転位ループ形成が見られる高温照射の試料については1500℃までのアニールでも完全に回復しないことなどが明らかにされた [3, 23-25]。さらに、Snead らによって照射温度と照射量の依存性が網羅され、スエリングとの相関についても整理された [1]。

タングステンに対する照射後熱拡散率のデータは極めて限られており [4]、系統的な照射後熱拡散率のデータが求められている。

3.2 照射時熱拡散率の評価

従来の照射後熱拡散率測定の多くは、照射後に室温での測定を行い、照射条件による整理を行うか、等時アニール処理を行った後に室温に降温して測定を行い、回復挙動の評価を行うものであったが、フォノン伝導は欠陥の導入状態に加えて試料の温度によっても異なるため、実際の照射時の照射温度における熱拡散率は求められなかった。

実際の照射時は照射時のみに存在する欠陥の存在が加わるため、照射後の試料の測定よりも熱拡散率が低い可能性があるが、イオンビーム照射時の陽電子消滅寿命測定と、弾き出し欠陥の損傷速度の考察から、照射時のみに導入されている欠陥量は無視できる程度であると言える [26]。また、アニール挙動から照射温度付近までは欠陥の回復は見られないことから、昇温しての熱拡散率測定を行い、温度依存性を評価して、照射温度における熱拡散率を求めること（照射試料は貴重であるため、測定は照射温度以下に留め外挿で評価する）、照射時の熱拡散率を評価することができる。SiC については $3 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ 程度で照射量に対する熱拡散率低下が飽和したため照射温度についてのみ照射時熱拡散率の整理を行った結果が図4である。照射温度が

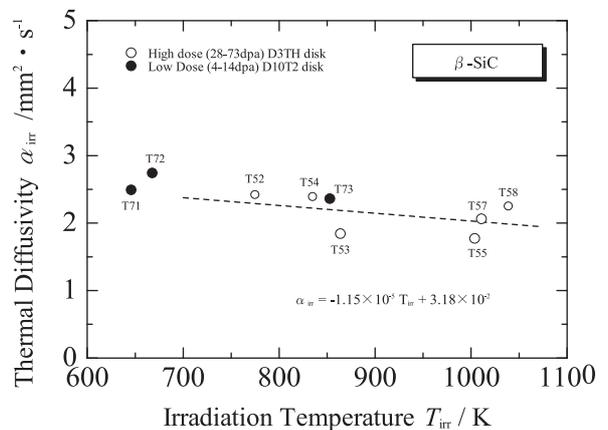


図4 様々な照射条件で照射した β -SiC の照射時熱拡散率の評価結果。

高いほど欠陥導入量は小さいため室温での熱拡散率は高いが、高温になるとフォノン-フォノン散乱のため未照射試料であっても熱拡散率は低下するため、結果的に照射温度依存性は非常に小さく、若干高温で低下した[27]。なお、熱伝導率に関しては高温で比熱が上昇するため、わずかに高温の方が高くなる。

4. PHENIX プロジェクトにおける中性子照射タングステン材料の熱拡散率測定

1.3節で説明した通り、PHENIX プロジェクトでは Gd シールドにより熱中性子束を抑えた照射を行い、核変換によるタングステン中のレニウム、オスミウムの生成を抑制している。試料はアライドマテリアル社製の、厚板応力緩和材である。80% の延伸加工の後、900℃20分の熱処理を行っている。円板状に打ち抜いた試料の面内が圧延した結晶粒方向に対して平行な物と、垂直な物の双方を照射しているが、結晶粒の方向は照射前の熱拡散率に影響を及ぼさないことが明らかになっている[5]。

ここで取り扱う試料の、ID、照射温度、照射量、組成、結晶粒の方向(円板面に平行の物を//、垂直の物を⊥と表記)を表1にまとめた。試料サイズはいずれも直径6mm、厚さ2mmの試料である。照射温度、照射量は実測値に基づくが、照射量モニタに関してはわずか2本の試料から評価しており、熱中性子束については過去の傾向から得られた計算式でフィッティングすると負の値となってしまう正しく評価できていない。

なお、本来 TEM disk サイズの微小試験片の測定を行う予定であったが、NETZSCH USA 側の手違いでグラフェンスプレーとして供給された製品が一般的なグラファイトスプレーであり、派遣期間中の微小試験片の測定が不可能となったため、別の試験で使用を予定していた試料の測定を急遽行った。米国への派遣で研究を行う場合は、こういったことが無いように十分事前に情報交換を行うと共に、致命的なトラブルがあった場合でも他の研究が可能となるよう十分な事前準備が必要である。

表1に示した照射後試験片および同等の未照射の試験片についても LFA-457 を用いて室温から500℃までの測定を行った。結果を図5に示す。照射後試験片は、ORNL の Low Activation Materials Development and Analysis Laboratory (LAMDA) 内で測定した。さらに、5001(純タングステン)、A000(カリウム添加 Re 3% タングステン材)については、900℃までのアニール操作を行い、回復挙動の評

表1 PHENIX プロジェクトで熱拡散率測定を行った中性子照射後試料の一覧。

試料 ID	照射温度 (°C)	Dose (dpa)	組成	結晶粒方向
4000	662	0.39	純 W	//
5001	548	0.15	純 W	⊥
9000	532	0.10	K-doped W-3%Re	//
A000	660	0.38	K-doped W-3%Re	⊥

価を行った。その結果を図6に示す。

まず、純タングステン試料については、15% 程度の熱拡散率低下が見られた。結晶粒方向の差異による違いは見られなかった。一方、カリウム添加 Re3% タングステン材においては、熱拡散率の低下は10%以下に留まり、結晶粒の異なる試料の間で若干の差が見られた。しかし、結晶粒が試料平面に対して平行に配位している ID: 9000試料は照射温度532℃、照射量0.10 dpa であるのに対して、結晶粒が試料平面に対して垂直に配位している ID: A000では、照射温度660℃、照射量0.38 dpaと照射時に炉心に近い位置に装荷されている。高い照射量でより多く核変換の起こっている A000の方が高い熱拡散率を示しており、照射温度に起因する点欠陥残存量の差がより大きく影響していると考えられる(導入量は照射量で決まるが、その後の格子間原子移動に伴う再結合は照射時の温度によって左右される)。

純タングステン試料は中性子照射により熱拡散率が低下したが、その熱拡散率は未照射の3%レニウム添加剤よりも高い値に留まっている。なお、カリウムは結晶粒の組織制御のために添加されており、熱拡散率に影響を及ぼさず、照射前の熱処理の過程で揮発している[5,28]。また、同報告では1%レニウム添加したタングステン試料は

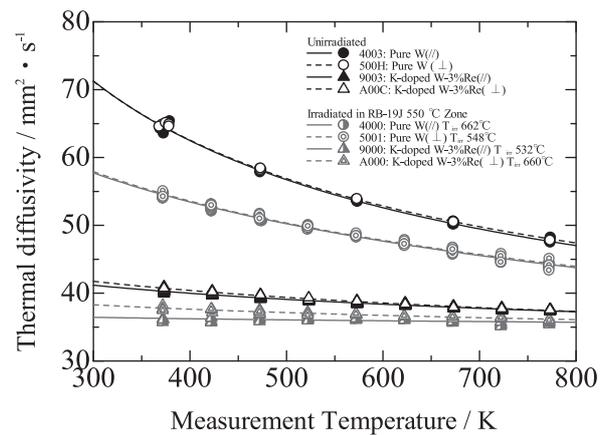


図5 PHENIX プロジェクトで中性子照射したタングステン材料の照射前後の熱拡散率。照射による格子欠陥及び核変換元素の導入により15%程度の熱拡散率低下が見られた。

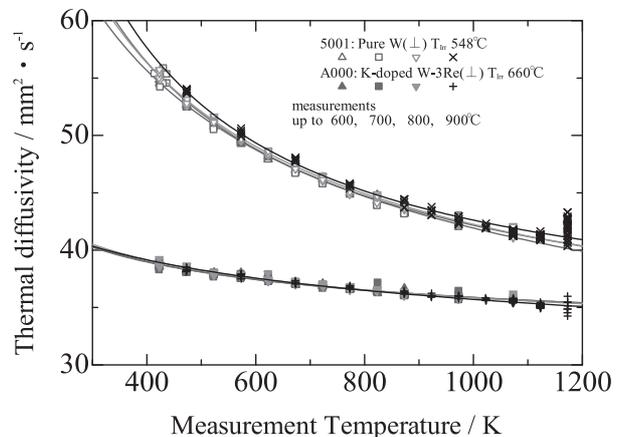


図6 PHENIX プロジェクトで中性子照射したタングステン材料を900℃まで照射後アニールした結果。900℃までのアニールでは回復は見られない。

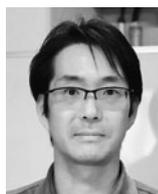
401°Cに於いて熱拡散率 $47.6 \text{ mm}^2/\text{s}$ を示しており、今回の中性子照射後純タングステン試料が400°Cで $47.5 \text{ mm}^2/\text{s}$ (ID: 5001), $46.1 \text{ mm}^2/\text{s}$ (ID: 4000) を示したのと非常に近い値となった。通常の HFIR 炉心での照射では、0.3 dpa まで照射すると核変換量は 2.6% に相当し、格子欠陥による熱拡散率低下も考慮すると、ガドリニウムシールドによる熱中性子量の制御は有効に機能していると考えられる。ただし、W-186 の中性子吸収断面積は 20 eV 程度に大きな共鳴吸収ピークを示しており [29, 30], 単純に熱中性子量だけでは核変換量の評価はできない。今後、中性子照射後試料に対する元素分析による核変換量評価が待たれる。

今回の結果だけでは熱拡散率低下に於ける格子欠陥による影響と、核変換による影響を切り分けることはできないが、より高温でのアニールに伴う格子欠陥の回復と陽電子寿命測定による格子欠陥導入状態の評価、電気伝導率測定による熱の電子伝導に与える核変換元素の影響評価、そして多数の微小試験片測定による照射条件の違いからの考察、さらに同一の試料に対してガドリニウムシールド無しラビット照射を行った試料に対する測定結果などから、タングステンに与える照射効果について多くの知見が得られると考えられる。

参考文献

- [1] L.L. Snead *et al.*, J. Nucl. Mater. **371**, 329 (2007).
- [2] J.C. Corelli *et al.*, J. American Ceram. Soc. **66**, 529 (1983).
- [3] M. Akiyoshi *et al.*, J. Nucl. Mater. **367-370**, 1023 (2007).
- [4] M. Fujitsuka *et al.*, J. Nucl. Mater. **283-287**, 1148 (2000).
- [5] M. Fukuda *et al.*, Fusion Eng. Des. **132**, 1 (2018).
- [6] M.E. Sawan, Fusion Sci. Tech. **66**, 272 (2014).
- [7] A. Hasegawa *et al.*, J. Nucl. Mater. **471**, 175 (2016).
- [8] L.M. Garrison *et al.*, Fusion Sci. Technol. **75**, 1 (2019).

- [9] Y. Katoh *et al.*, Fusion Sci. Technol. **72**, 222 (2017).
- [10] J.L. McDuffee *et al.*, Fusion Mater. Semiannual Prog. Rep., DOE/ER-0313/60, 205 (2016).
- [11] L.R. Greenwood *et al.*, Fusion Mater. Semiannual Prog. Rep., DOE/ER-0313/67, 160 (2019).
- [12] W.J. Parker *et al.*, J. App. Physics **32**, 1679 (1961).
- [13] 社団法人日本セラミックス協会：セラミック工学ハンドブック (技報堂出版, 1989).
- [14] J.A. Cape and G.W. Lehman, J. Appl. Phys. **34-7**, 1909 (1963).
- [15] 馬場哲也：第17回日本熱物性シンポジウム論文集, p379 (1996).
- [16] T. Azumi and Y. Takahashi, Rev. Sci. Instrum. **52**, 1411 (1981).
- [17] M. Akiyoshi *et al.*, Fusion Eng. Des. **136**, Part A, 513 (2018).
- [18] <https://www.netzsch-thermal-analysis.com/us/products-solutions/thermal-diffusivity-conductivity/lfa-467-ht-hyperflash/>
- [19] Y. Ishibashi *et al.*, Thermophys. Prop. **37**, 242 (2016).
- [20] R.J. Price, J. Nucl. Mater. **48**, 47 (1973).
- [21] R.P. Thorne and V.C. Howard, Proc. Br. Ceram. Soc. **7**, 439 (1967).
- [22] J.C. Corelli *et al.*, J. Am. Ceram. Soc. **66**, 529 (1983).
- [23] T. Yano *et al.*, J. Nucl. Mater. **289**, 102 (2001).
- [24] M. Akiyoshi *et al.*, J. Nucl. Mater. **329-333**, 1466 (2004).
- [25] M. Akiyoshi and T. Yano, Prog. Nucl. Energy **50**, 567 (2008).
- [26] M. Akiyoshi *et al.*, S. Costas (Ed.), *Advances in Ceramics - Characterization, Raw Materials, Processing, Properties, Degradation and Healing* (InTech, 2011) p.39.
- [27] M. Akiyoshi, J. Nucl. Mater. **386-388**, 303 (2009).
- [28] S. Nogami *et al.*, Fusion Sci. Technol. **72**, 673 (2017).
- [29] https://www.ndc.jaea.go.jp/j40fig/jpeg/w186_fl.jpg
- [30] K. Shibata *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. **48**, 1 (2011).



あき よし まさ ふみ
秋吉 優 史

大阪府立大学放射線研究センター 准教授、博士 (工学) (東工大)。現在は FRONTIER プロジェクトで核融合炉材料開発に携わっていますが、昨今の状況で本年度はオーケリッジに行けないのが残念です。近年は教育現場で用いられる「クルックス管」からの X 線に関する放射線安全管理に注力しており、また今年から感染制御という全くの異分野の研究を始めています。