

講座

中性子照射によるタングステンの材料特性と 水素同位体挙動の変化

Changes in Material Properties and Hydrogen Isotope
Behavior of Tungsten under Neutron Irradiation

1. 核融合炉における中性子スペクトルと核分裂炉による照射実験

1. Neutron Energy Spectrum of Fusion Reactor and Neutron Irradiation Experiments in Fission Reactors

長谷川 晃

HASEGAWA Akira

東北大学金属材料研究所

(原稿受付：2024年8月20日)

DT核融合炉のブランケット第一壁やダイバータでの中性子のスペクトル分布は14 MeVの単一のエネルギーの中性子だけではなく熱中性子を含む広いエネルギー分布を持った中性子が照射される。このような中性子環境にさらされる材料内部にははじき出し損傷や核変換が生じると共に、材料の特性や水素同位体挙動等が変化する。核融合中性子によるこれらの欠陥生成を模擬するためにはどのような中性子スペクトルを持つ核分裂炉等の中性子源を使用すべきかをタングステン (W) を中心に解説する。

Keywords:

neutron energy spectrum, fusion and fission reactor, displacement damage, transmutation elements

1.1 はじめに

本章では核融合炉のプラズマ対向材料の候補として考えられているタングステン (W) の中性子照射下、照射後の材料挙動の変化を評価するための照射研究で使われる中性子照射環境における材料挙動への影響について、材料中に生ずる照射欠陥集合体と中性子のエネルギースペクトルとの関係を中心に解説する。本章では最も実現に近く、また炉工学としても数多くの検討が進められているD-T反応で生ずる中性子による損傷を、現在は十分な強度の核融合中性子発生装置が存在しない中で、いろいろな中性子源を使って照射研究を進めて行く上で留意すべき点について解説する。

1.2 核融合炉の中性子環境

D-T反応を用いた核融合炉では磁場閉じ込め炉、レーザー核融合ともに炉心プラズマから14 MeVの運動エネルギーをもった中性子が発生し、その運動エネルギーがプ

ラズマを囲むように作られるTの増殖ブランケットやダイバータに吸収され、熱エネルギーとして取り出される。この中性子の運動エネルギーが周辺構造材料や冷却材を構成する原子との衝突により少しずつ材料に吸収され、中性子は徐々にエネルギーを失って減速し、やがてどこかの原子に吸収され消滅する。図1は磁場閉じ込め型の核融合炉の炉心周辺の機器の材料組成を1次元的分布に仮定して、核融合中性子の壁負荷1 MW/m² (14 MeV: 4.5 × 10¹³ n/cm²/s) の場合のブランケット第一壁、真空容器および超伝導マグネットにおいて、どのようなエネルギーの中性子があるのかを中性子の輸送計算で得られた結果を示したものである[1]。各部分において14 MeV中性子がピークとなる中性子束を持つが、第一壁においても低エネルギーの中性子も多く存在することがわかる。これは炉を構成する機器の材料中の原子との衝突により、エネルギーを失ってプラズマ側に戻ってくる低エネルギーの中性子もかなりあることを示している。プラズマから離れるにしたがって、中性子束

Institute for Materials Research, Tohoku University, Katahira 2-1-1, Sendai, MIYAGI 980-8577, Japan

author's e-mail: akira.hasegawa.d2@tohoku.ac.jp

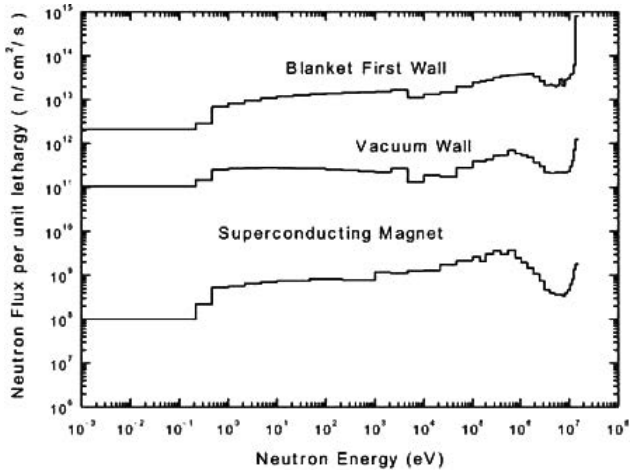


図1 壁負荷1 MW/m² (14 MeV : 4.5 × 10¹³ n/cm²/s) の条件下における核融合炉の第一壁, 真空壁および超伝導マグネットにおける中性子のエネルギースペクトル[1].

(個/m²/s) が低くなり, 運動エネルギーも低エネルギー成分が増えてくる. ここで示したエネルギースペクトルは, 中性子と材料との相互作用を考える上で重要な要素であり, 以下にその相互作用について説明する.

1.3 中性子と原子との相互作用

中性子は材料中の原子との衝突によって種々の相互作用を起こす. それを大別したのが図2(a)である. 大きく分けて中性子が原子核と衝突して反跳する「散乱 (Scattering)」と, 中性子が衝突した原子核に「吸収 (Absorption)」され核反応を起こし, 別の中性子やプロトン, α粒子, 光子などを発生する反応に分けられる. (原子を構成する軌道電子と中性子の相互作用の起こる確率は非常に小さいので無視している.) 衝突された原子核は中性子から運動エネルギーを得る「散乱」反応においては, 衝突前後の運動エネルギーが保存される「弾性散乱 (Elastic Scattering)」と, 運動エネルギーが保存さ

れない「非弾性散乱 (Inelastic Scattering)」に大別される. 衝突された原子核も運動エネルギーを得て散乱されるが, 固体材料の場合は衝突で得たエネルギーが十分高ければ (約数十 eV 以上) 材料中の周囲の原子からの束縛を離れ, その格子位置から飛び出す, いわゆるはじき出しが起こる. 格子位置からの原子のはじき出しが起こるかどうかは衝突・散乱時の方向や得たエネルギー, 周囲の原子の配置等に依存する. このはじき出しが起こりはじめるエネルギーを「はじき出しのしきいエネルギー (E_d : Displacement Threshold Energy)」と呼んでいる. この値は材料の構造や種類により異なり, また同じ材料であっても結晶構造や散乱された方向で幅がある値であるが, 「平均はじき出しエネルギー」として, 鉄の場合は40 eV [2], タングステンの場合は55 eV[3], あるいは90 eV[2] という値が使われている.

吸収反応では, 原子核が中性子を吸収し, その質量が1 amu 増すことで原子核が不安定になり, いくつかの粒子を放出し別の原子核に変わる. これを「核変換 (Transmutation) 反応」という. 核変換反応についてもその反応が顕著に起こり始めるエネルギー領域がある. これらの諸反応の起こりやすさは, 中性子の運動エネルギーに依存し, 衝突断面積として一つ一つの核種について, 例えば日本では日本原子力研究開発機構によりデータベース化[4]され, 誰でもアクセスし利用できる.

この反応の起こりやすさを示す量を断面積という. これは, 対象とする固体中の単位体積当たり N 個の原子があり, 各原子の原子核の周辺 σ の面積の所を中性子が通過すると衝突が起こるものとする. 物質中の単位長さ当たりの衝突数 (a) は, $N\sigma$ で表され, この時 σ を断面積と呼ぶ. 単位は m² であるが, 原子核の大きさ (10⁻¹⁴ m) に合わせて, 断面積の大きさの単位として 10⁻²⁸ m² を 1 barn と表している. 例えば ¹⁸²W (全 W 中の存在比: 26.4 %, 以下 % を省略) について示したのが図2(b)と(c)である[4]. 図2(b)

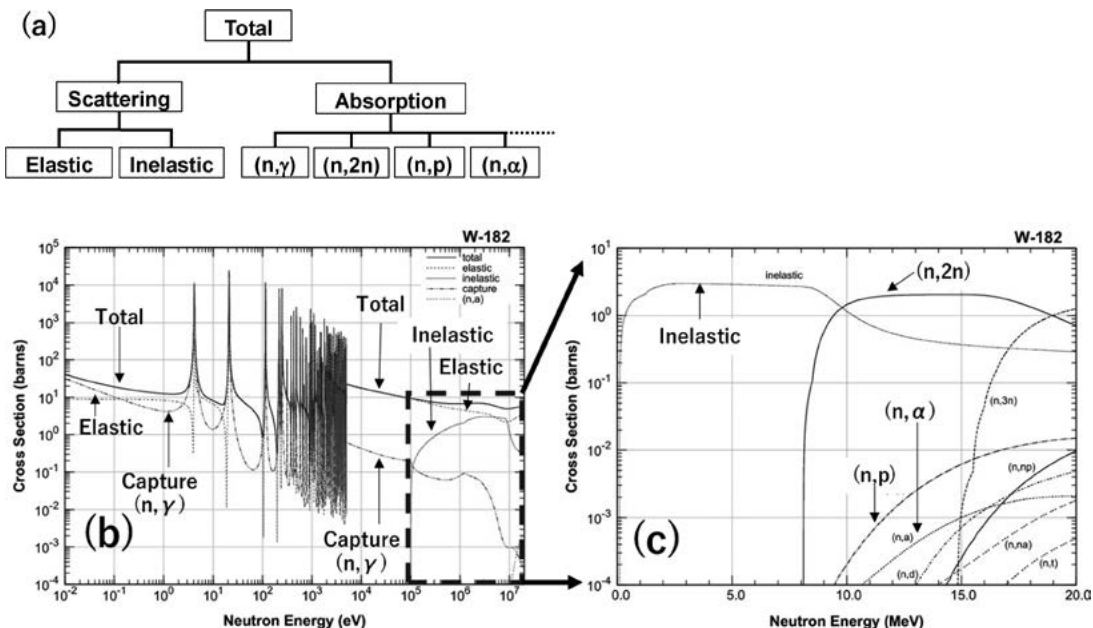


図2 (a) 中性子と原子との相互作用の概要, (b) (c) ¹⁸²W における中性子との反応断面積[4].

ではすべての反応を合わせた全断面積 (Total) に対して、弾性散乱、非弾性散乱、中性子を吸収し光子を放出する捕獲反応 (Capture) などを示す。100 eV から数 keV の領域にピークがたくさんあるのは共鳴反応の領域である。図 2 (b) の 0.1 MeV ~ 20 MeV までの点線で囲った部分を拡大したのが図 2 (c) である。中性子のエネルギーによって各反応の起こりやすさが異なることがわかる。中性子との各反応の断面積は元素ごとに、また同じ元素でも同位体ごとに異なる。弾性散乱の断面積はどの元素もほぼ同じ程度であるが、吸収反応の断面積は大きく異なるのが特徴である。特に中性子捕獲反応では、図 2 (b) の左端よりもさらにエネルギーの低い領域において、エネルギーが低くなるにつれて断面積は $1/v$ 則 (v : 速度) で大きくなっていくのが特徴である。また W の場合、熱中性子捕獲反応が大きいのが ^{182}W (26.4), ^{186}W (28.4) で、 ^{183}W (14.4), ^{184}W (30.6) の順に小さくなり、 ^{184}W は ^{182}W の約 1/20 である。またこの低エネルギー側 (熱中性子、さらに冷中性子とも呼ばれる) の中性子捕獲反応は、元素によっても大きく異なる。同位体全体の平均値として W では 19 barn であるのに対し、大きな方では Hf [115barn: 以下単位省略], B [750], Cd [2400], Gd [44000] であり、小さな方では, Be [0.009], Pb [0.17], Zr [0.18], Na [0.49] という値を示す [5]。構造材料に使われる元素では Fe [2.4] や V [4.7] は W よりも少し小さな中間的な値をとる。大きな方も小さな方も W に比べて 3 桁以上の幅で大きさが異なっている。中性子捕獲断面積の大きな元素は原子炉の出力を制御する制御棒の材料として使われ、小さな元素は冷却材や構造材などに使われている。この中性子捕獲反応の断面積は原子番号との規則的な対応が無く、個別に確認する必要がある。原子炉や核融合炉の材料の中性子照射による放射化のレベルは、この熱中性子捕獲反応の大小と生成核種の半減期で決まることが多く、中性子照射を行うにあたっては元素ごとに同位体も含めて個別に確認する必要がある。一方、高エネルギー側の (n, p) や (n, α) 反応は同位体ごとの違いは比較的小さく、これらの反応が顕著になり始めるエネルギーは低原子番号の元素ほど低く、Fe では数 MeV 程度以上、W では 10 MeV 以上という傾向がある。これは中性子照射場において材料中に発生する水素やヘリウムなどの気体核変換元素の濃度が中性子照射場のエネルギースペクトルに影響されることの原因でもある。また W の場合、 $(n, 2n)$ 反応の断面積が比較的大きい方なので、核融合炉の高速中性子を利用した中性子増倍材として使うことも考えられるが、吸収断面積もそれなりに大きな方なので、今のところ W は増倍材としては考えられていない。

1.4 中性子照射場の特徴

次に中性子照射研究に用いる各照射場の違いについて述べる。図 3 は核融合炉の第一壁と、現在および近い将来利用が可能になることが期待される中性子照射場である HFIR (米国オークリッジ国立研究所) と、JOYO (常陽: 日本原子力研究開発機構)、A-FNS (量子科学研究開発機構) の中性子のエネルギースペクトルを示した。核

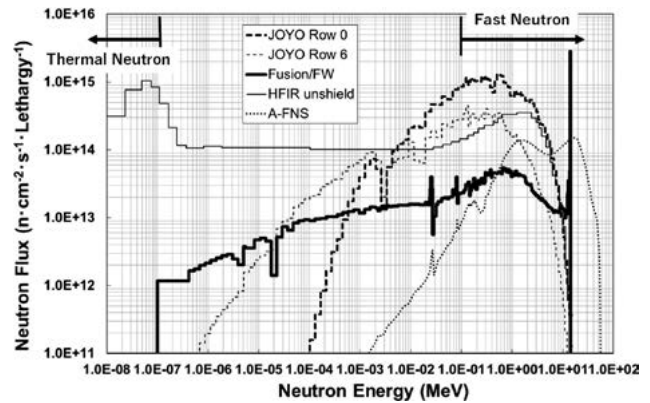


図 3 核融合炉第一壁、材料試験炉 (HFIR)、高速実験炉常陽、強力中性子源 (A-FNS) の中性子のエネルギースペクトル [6-9]。

融合炉第一壁における中性子のエネルギースペクトル [8] を実線で示す。14 MeV に鋭いピークをもつが、低エネルギーまで広がっている。照射試験で用いる原子炉の場合、核燃料の ^{235}U の核分裂で発生する中性子のエネルギースペクトルは常陽の炉心中心の燃料照射領域 (Row-0) とほぼ同じ [7] で、エネルギーの低い熱中性子はほとんど無く、平均のエネルギーは約 2 MeV であるが、それが減速材・冷却材の水によって減速される HFIR では炉心中央の照射孔 (Flux Trap) では低エネルギー側の成分が図 3 のように非常に大きくなる [6]。HFIR はその名前 (High-Flux-Isotope-Reactor) が示すように医療用あるいは工業用に用いる放射性同位元素を効率良く生産する炉であり、エネルギースペクトルは熱中性子を使って核分裂の連鎖反応を制御する発電用の軽水炉とよく似ているが、効率良く同位体を生産するために中性子束が高くなるように炉心が設計されており、炉心部では中性子束が発電用の炉に比べて 2 桁以上高くなっている。常陽は核分裂で発生する高速中性子を用いて ^{238}U から ^{239}Pu に核変換させ、核燃料物質の Pu を生産する高速増殖炉の実験炉であり、そのために中性子は比較的減速しにくい Na を冷却材として用いている。炉心の燃料領域のすぐ外側の材料照射孔 (Row-6) でも低エネルギー成分がかなり少ない。D-Li 反応を使う強力中性子源 (A-FNS) のエネルギースペクトルは、中性子発生領域に最も近い液体 Li ループのバックプレート近傍のもので [9]、10~20 MeV の範囲で核融合炉に比べて幅広くなだらかなピークを持つのが特徴で、40 MeV 程度の中性子もある程度存在する。A-FNS でも中性子発生領域から離れるに従って低エネルギー成分が多くなっていくが、ここでは省略する。

図 3 では中性子のエネルギーが 0.1 MeV 以上を高速中性子とし、0.1 eV 以下を熱中性子としている。この分け方は、中性子のエネルギーが 0.1 MeV 以上で固体材料中のはじき出しが起こり始める領域であり、原子炉ではのはじき出し損傷を起こす中性子量の目安として 0.1 MeV 以上の中性子束を示す慣例による。一方、熱中性子束は原子炉の減速材の水が室温 (20°C) の場合の中性子の運動エネルギーが 0.025 eV というところで使われることが多いが、図 3 では 0.1 eV 以下とした。

実際の相互作用の起こる数は、図3の各エネルギーの中性子束に図2(b)の各反応の断面積を乗じたものを全エネルギーで積分して求めることができるので、この2つのデータは相互作用を定量的に理解する上で重要である。

1.5 中性子照射によるはじき出し損傷について

高速中性子が固体材料中に入射したときに起こる相互作用の全体像は図2にすでに示しているが、個々の原子との相互作用の様子を示したのが図4である。「散乱」と「吸収」常にどちらかが起こるが、まずは散乱により何が起こるかを述べる。図4では1 MeV以上の中性子の場合の衝突の様子を示している。この中性子と材料中の原子との衝突による散乱では、衝突で中性子から運動エネルギーを得た材料中の原子がその結晶格子点の位置からはじき出され、そのはじき出された原子がさらに周囲の原子と衝突し、さらにそれらがまた原子との衝突をくりかえして、中性子との衝突で得た運動エネルギーを周囲の材料中に伝え広めていく。原子がはじき出された後の原子の無い格子点を「空孔 (Vacancy)」と呼び、格子点からはじき出され格子の間にある原子を「格子間原子 (Interstitial Atom)」と呼ぶ。これらは「点欠陥」とも呼ばれている。この空孔と格子間原子は対として生成されるのでこの対を「フレンケル対 (Frenkel Pair)」と呼び、これが「はじき出し損傷」の最小単位である。中性子と衝突して最初に格子点からはじき出された原子を特に「一次はじき出し原子 (Primary Knock-on Atom)」と呼び、「PKA」と呼ばれている。中性子はPKAを作る衝突を繰り返しながら材料中を進む。この時のPKAを生成する衝突間の距離を中性子の「平均自由行程」と呼び、これは散乱の断面積 (σ) と固体中の原子密度 (N) から、 $1/\sigma N$ で与えられる。図2の値を用いると、衝突間の距離は概ね「mm~cm」のオーダーになる。また一つのPKAから連鎖的に広がった衝突を「カスケード衝突 (Collision Cascade)」と呼ぶが、このカスケード衝突の領域の広がりには10 nmのレベルであり、一つのカスケードの中に生成されるフレンケル対の数はFeの

場合、14 MeVの中性子の衝突で作られたPKAでも2000個程度、0.1 MeVの中性子で30個程度である[10]。

このようなPKAを作る衝突は1 MeV程度の中性子でも数百回は繰り返され、衝突のたびに中性子はエネルギーを失い、やがて格子原子をはじき出せないエネルギーレベル (<1 KeV) になっても、原子核との衝突を繰り返し、減速しながら材料中を移動し、やがて中性子捕獲反応によってどこかの原子核に吸収され、消滅する。この吸収反応で核変換も起こる。

一方高エネルギー領域でもこのような散乱に比べれば1/100~1/1000以上起こり難い吸収反応である (n, p) や (n, α) 反応も並行して起こりうる。これらの反応で発生した p (水素) や α 粒子 (ヘリウム) もはじき出し損傷を作る可能性もあるが、それらは散乱反応で作られるはじき出しよりもはるかに少ない[11]。

中性子は固体材料中の原子との衝突ごとにPKAを作り、材料中にカスケード損傷領域を作っていくが、この1個の中性子が止まるまでの固体中でおこる衝突の連鎖によって発生した格子原子のはじき出しの総数(フレンケル対の数)に、中性子の総照射量(個)を乗じ、それをその固体中の原子の総数で除した値を、固体中の原子1個あたりのはじき出し数として displacement per atom : dpa と呼び、中性子により固体中に導入された損傷量を表すパラメータとして使われている。このdpaの求め方を以下に簡単に述べる。詳細は参考文献[12]を参照されたい。

中性子との弾性衝突によって発生したエネルギー E のPKAがどのくらいの数のフレンケル対を発生するか ($\nu(E)$) は、NRT (Norgett-Robinson-Torrens) モデルなどで $\nu(E) = 0.8E/2E_d$ と求めることができる。これからわかるのは、はじき出しの数は、どの程度の大きさのエネルギー (E) を中性子から受け取るのかということ、格子位置からはじき出しのしきいエネルギー (E_d) で決まるということである。格子原子の受け取るエネルギーは2つの粒子の衝突の際の最近接距離や散乱角を決める衝突パラメータなどで変わってくる。中性子との弾性散乱は等方散乱なので、格子原子の受け取る平均エネルギーは、衝突で受け取る最大エネルギーを E_{max} とすると、 $E_{max}/2$ となる[12]。一方、入射中性子(質量: M_1 , エネルギー: E_1) と標的となる格子原子(質量: M_2) の弾性衝突によって格子原子が得ることのできるエネルギーは衝突時の幾何学的なパラメータなどでも変わってくるが、正面衝突の時が最大のエネルギー T_{max} を獲得でき、その値は $T_{max} = E_1 (4M_1M_2)/(M_1 + M_2)^2$ となる。弾性衝突による格子原子の中性子からのエネルギーの獲得効率は双方の質量が等しい $M_1 = M_2$ の時が最大で1となり、 M_1 と M_2 の質量差が大きくなると小さくなる。この獲得効率は中性子とFeとWの場合を例にとると、Feの場合は0.069、Wの場合は0.022となる。はじき出しエネルギーの E_d も材料で異なることから、同じ中性子照射場でも材料によって生成されるはじき出し損傷量は異なることがわかる。第一壁で同じ中性子量の照射を受けても鉄鋼材料とWとではdpa値が異なるのは以上のような理由による。

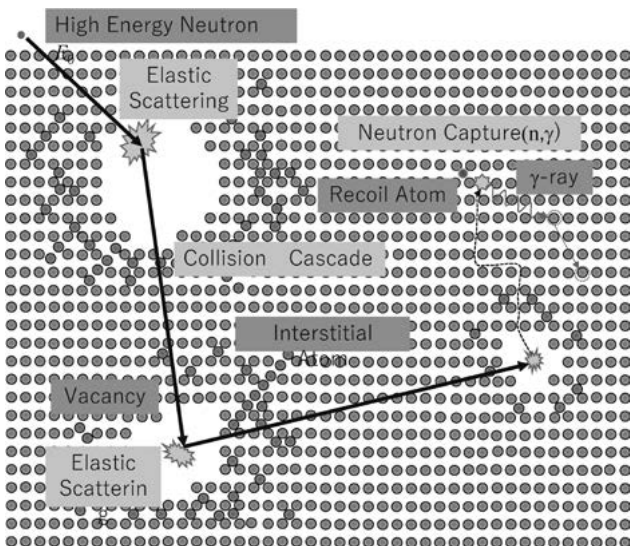


図4 中性子と固体中の原子との衝突の過程.

はじき出し損傷量の dpa 値に及ぼす材料の違いはどのくらいあるのかは SPECTOR コード [13] 等の計算で求められている。HFIR と高速炉と核融合炉の中性子と比較すると、Fe で 1 dpa を得る中性子照射量下で W では 0.27 ~ 0.29 dpa の値をとることが報告されている [13]、はじき出し損傷量としては物質が異なっても、dpa 値への換算係数へのスペクトルの影響はほとんど無いと考えられている。

ここで注意しなければならないのは、dpa 値の意味である。現実には中性子との衝突によって生じた原子空孔や格子間原子は衝突後の数 ps (10^{-12} 秒) の間に隣接するもの同士で結合 (再結合) して、元の格子構造を形成するため消滅してしまう。衝突の連鎖で発生した点欠陥が照射直後の極短時間に再結合して消滅する割合は 99 % 以上 [14] とされており、たとえ大きなカスケードが形成されて点欠陥が数百個発生しても、衝突後の数 ns (10^{-9} 秒) 後までにカスケードの起こった場所に残る原子空孔や格子間原子は数個程度とされている。これらを生き残り欠陥とも呼ぶ。図 4 で示したようなカスケード領域の大きな空隙が残ることはない。ここまでは極めて短時間の現象なので照射場の温度などにはそれほど影響を受けないとされているが、さらに照射材が長時間にわたっておかれた温度やその期間などで、生き残った点欠陥やその集合体の離合集散の起こり方が大きく異なってくる。実際に固体材料の降伏応力や伸びなどの機械特性や、空孔が集まったボイドによる体積膨張 (Void Swelling) などの寸法変化などの挙動は、この生き残った点欠陥がさらされた温度や時間によって決まる原子の拡散によりさらに離合集散が起こり、その結果生成したより大きな欠陥集合体の大きさや数 (単位体積当たりの数密度) などによって決まる。これらについては次回解説する。以上のことから、dpa 値は実際に照射された材料中の欠陥の量を正確に表したパラメータではなく、照射場の強さを示す一つの指標と考えた方がよい。

1.6 中性子照射による核変換について

中子と原子とのもう一つの相互作用である吸収反応によって起こる材料中の原子の核変換について述べる。照射された材料中の原子に核変換を起こす核反応の数は中子線のエネルギースペクトルに強く依存する。図 3 に示す各照射場におけるエネルギースペクトルが、 (n, γ) 反応を起こす熱中子領域を含む低エネルギー領域の中性子束が照射場で大きく異なっている点と、 (n, p) 反応や (n, α) 反応を起こす高エネルギー領域の断面積が元素や同位体によって異なる点を考えなければならない。また核変換の影響については断面積による生成量だけでなく、核変換で放出された元素 (水素やヘリウム) の気体核変換元素と、それらを放出した後に生成した固体核変換元素の材料特性への影響の仕方も考慮する必要がある。

鉄鋼材料の場合、低エネルギー領域の (n, γ) 反応で生成する固体核変換元素の多くは Fe に固溶するので、それらが中性子照射で生成する欠陥集合体の組織発達にそれほど影響するとは考えられていないため、あまり深刻には考えられていない。一方、高エネルギー領域では、核分

裂中子線の平均エネルギーである 2 MeV と核融合中子線の 14 MeV の間で、 (n, p) 反応や (n, α) 反応の起こり方が大きくなる。気体核変換元素である水素や He は、空孔型欠陥集合体のボイドの核発生を促進したり、ボイドを大きく成長させたり、さらに結晶粒界上に He の気泡を形成して粒界脆化を引き起こす可能性が指摘されるなど、欠陥集合体の大きさや数密度に大きく影響することが知られている [12]。例えば鉄鋼材料においては、主な構成元素である Fe や Cr は核分裂炉での照射においては HFIR でも高速炉でも発生する固体核変換元素は欠陥集合体の形成による照射効果に大きな違いは無いと考えられているため、HFIR 等の核分裂炉を使って重照射領域までの照射データが着々と蓄積されてきた。一方、核融合炉の中性子スペクトル下で想定される水素や He の生成による欠陥集合体の組織発達への影響は、核分裂炉では水素や He が核融合炉ほど多量に生成されないことから、十分な強度の核融合中性子源が存在しない中で気体核変換元素の材料特性への影響を明確にするため、より高いエネルギーの中子が得られる A-FNS での照射が強く望まれている。

鉄とは対照的に、W の場合、熱中子領域で起こる (n, γ) 反応の断面積が大きいため、HFIR 等の水冷型原子炉では、W の核変換でできた Re と、この Re がさらに中子線を吸収して核変換で生成する Os が数 % のオーダーで生成される。また、W の場合、 (n, p) および (n, α) 反応が 10 MeV 以上で起こり易くなることから、核融合炉と核分裂炉の材料試験炉では水素および He の発生量が大きく異なるが、まだ断面積が小さいので鉄ほど大量に生成されないのが特徴である。表 1 に磁場閉じ込め型の核融合炉と、材料試験炉の HFIR で 10^{27} 個/m² の中子線を照射した際に W 中に発生するはじき出し損傷 (dpa) と気体核変換元素および固体核変換元素の濃度の計算値を示す [15]。核反応で生成する元素の量が 2 つの炉で大きく異なることがわかる。固体核変換元素は照射量による変化も大きい。原子炉などの照射場の中性子スペクトルによる Re と Os の生成量の照射量に伴う変化を図 5 に示す [13, 16]。ここで、FFTF は米国の高速炉、Starfire は核融合炉である。MP (Mid Plane) は炉心中央部、BC (Below Core) は炉心下部を示す。特徴的なのは、HFIR では 5 dpa までは Re が急に増えるが、その後 Re から Os への核変換が主となり、Re は減少し Os が急激に増えてくる。高速炉 (FFTF) であっても炉心下部では熱中子成分が増えるため核変換

表 1 磁場閉じ込め核融合炉 (MFE) と材料試験炉 (HFIR) における 10^{27} n/m² ($E_n > 0.1$ MeV) 照射後の W 中の核変換元素濃度 [15]。

	MFE	HFIR
dpa	26.4	19.5
He (appm)	17.7	0.12
H (appm)	55.4	0.17
Ta (%)	0.525	0
Re (%)	1.240	0.994
Os (%)	0.038	38.5

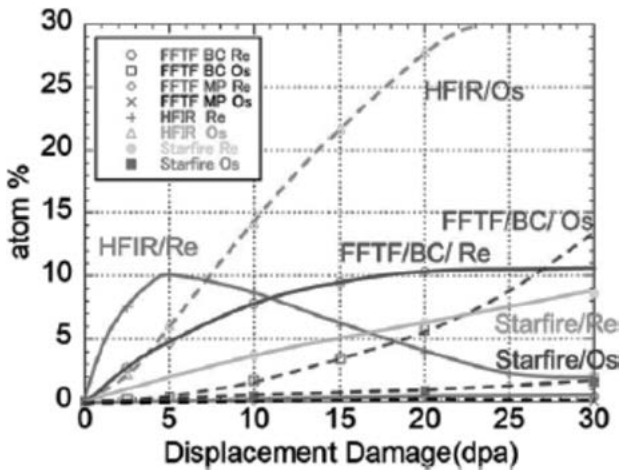


図5 核融合 (Starfire) スペクトルおよび材料試験炉 (HFIR) および高速炉 (FFTF) における中性子スペクトル下での W 中に生ずる Re および Os の濃度の照射量依存性 [13, 16].

が核融合炉よりは大きくなる。核融合炉では Re は比較的ゆっくり増加し、Os もゆっくりと増える。W の場合、中性子スペクトルによって、Re や Os の増加の挙動が異なり、照射場によって核変換元素の生成量や生成速度が大きく異なることを常に考慮しなければならない。

一方、W 中の Re や Os の物性値への影響は 1% 程度でも顕著である。どちらも W 中の固溶限 (Re:25%, Os:8%) があるが、1~3% 程度でも熱伝導率が大きく低下することや、固溶限以下でも照射中に Re や Os を含む W との化合物が析出することによる照射硬化や脆化が報告されている [16]。これらについては、次回の解説で説明する。一方、水素や He の生成量は、A-FNS のような高エネルギー成分の多い照射場では、核融合炉よりも水素や He の発生量が多くなることが予測されている。

1.7 実際の原子炉での中性子照射実験について

ここまで W の照射研究における中性子スペクトルの影響を述べてきた。図 3 に示した中性子スペクトルを考えると、現在主として使われている水冷却型の核分裂炉では、低エネルギーの熱中性子成分が多く、図 5 のように 1 dpa 程度の比較的少ない照射量でも W の場合核変換による Re や Os の濃度は 5% 程度と核融合炉と比べてかなり高くなってしまふ。一方、2026 年度末に再稼働が計画されている常陽のスペクトルとその高速中性子束が高いことを考えると、近い将来の日本における W の照射場として常陽が多いに期待されることである。以下では最近の研究で広く使われている水冷却型の原子炉照射の状況を述べる。W の第一壁やダイバート環境を模擬する照射環境としては、熱中性子成分をできるだけ少なくするような照射キャプセルの使用が必要になる。最近行われている方法は、照射キャプセルの周囲を熱中性子遮蔽体で覆うことである。BR2 (ベルギー) での W 試料の照射では、1.5 mm 厚さのステンレス鋼製の外筒をもつ照射キャプセルを使って熱中性子遮蔽を行っている。この場合は通常のキャプセルに比べて熱中性子束を 20% 程度まで低減するとしている [17]。HFIR でも熱中性子遮蔽を施した照射が 1990 年代

に HFIR-11J, 12J と呼ばれる照射実験でも行われている。この時の熱中性子遮蔽体は Hf や Eu であり、主として低放射化鉄鋼材料の添加元素である W の核変換による影響を調べるためのものであった [21]。最近の筆者らが参加した日米協力事業・核融合分野・PHENIX 計画では HFIR での照射で熱中性子吸収断面積が非常に大きい Gd の 1 mm 厚のパイプを照射キャプセルの外側に設置して照射を行った。Gd の熱中性子吸収断面積は前述のように非常に大きいので、0.1eV 以下の中性子をほぼ完全にゼロにでき [18]、図 6 に示すように熱中性子遮蔽無しに比べて核変換量を 1/10 以下にできると期待された [20]。ただ Gd は熱中性子の吸収能は大きいですが、ある期間を過ぎるとほとんどの Gd が核変換してしまふて吸収能がなくなり、遮蔽効果が無くなってしまふことが課題である。実際に HFIR-19J と呼ばれた照射実験では、当初 6 回の照射サイクル (1 サイクル: 27 日) で約 1 dpa 照射に達するように設計されたキャプセルであったが [18]、実際に原子炉の運転を進めると Gd の燃焼が予想以上に早く、5 サイクルの途中で遮蔽効果が無くなることが予測されたため、dpa よりも熱中性子遮蔽効果を優先して、4 サイクルで照射を中断せざるを得なくなった。この時の Gd の燃焼具合は、HFIR の運転中の出力を一定になるように調整する制御棒の位置の変化から予測して判断されたものである [19]。その結果 HFIR-19J では、熱中性子遮蔽無しの場合では 1 dpa で 8.4% 程度の Re と 3.2% 程度の Os の発生量が、0.7 dpa で約 0.5% 程度の Re 生成量 (Os はほぼ 0%) に抑えた照射を実施することができた [20]。

HFIR-19J は Gd を熱中性子遮蔽体に用いた照射であったが、もう一つの特徴は照射中の試験片領域の温度を 600, 800, 1100°C に保つことのできるようなキャプセルとなっていたことである [18, 20]。照射中の温度は照射影響を評価する上で非常に大事なパラメータであり、HFIR-19J では照射中の試験片の温度を熱電対でモニタしつつ、

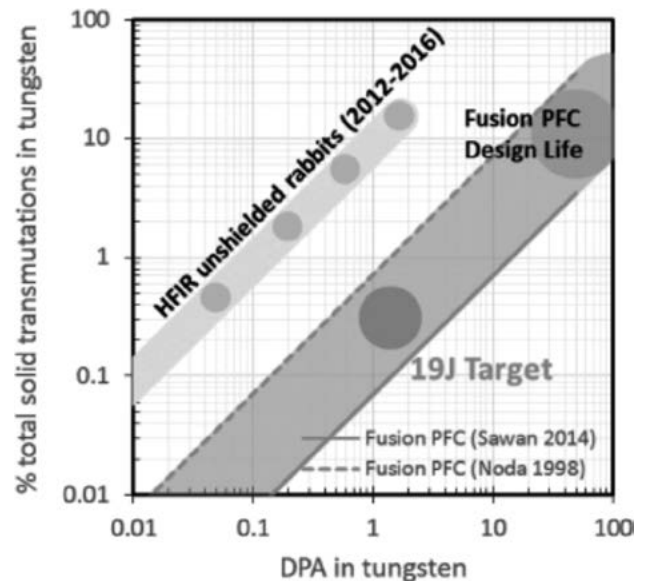


図6 HFIR 炉心の照射で予測された核変換量と熱中性子遮蔽で予測された核変換量の dpa 依存性 [20].

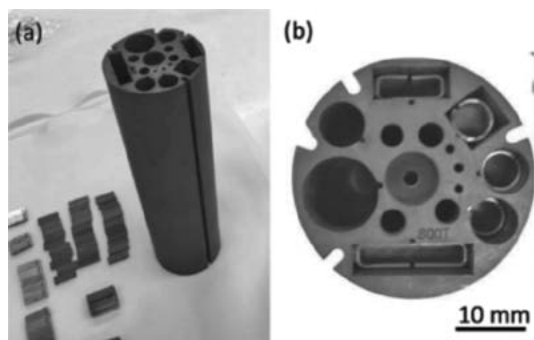


図7 (a) HFIR-19J で用いられた照射キャプセルの外観と試験片, (b) 照射キャプセルの横断面 [20].

試験片周辺を冷却する He/Ne のガスの混合比や流量を制御することで照射中の温度を一定に保つようにした照射キャプセルとなっていた。図7は実際に照射に供したキャプセルの内部の様子で、黒い円筒は試験片を納めるグラファイト製の熱媒体である。図7(b)の中央部分は冷却ガスや熱電対を通すための貫通孔であり、外周側の円孔やスロットに試験片などを挿入して照射した。Gdのパイプはこの熱媒体の外側におかれた。HFIR-19Jではこのような温度計装可能で、かつ、照射温度が当初予定では1200℃をめぐっていたので、耐熱性が期待されたGd金属を熱中性子遮蔽体として用いることになった。このHFIR-19Jの照射キャプセルについては、参考論文に詳細が記載されている[18, 19]。この最近のW照射に狙いを絞った照射実験の詳細と照射後試験の結果等については、次回以降に詳述する。

参考文献

[1] T. Noda *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **329-333**, 1590 (2004).

- [2] ASTM, **12.02**, E521 (1996).
 [3] D.R. Mason *et al.*, *J. Phys. Condens. Matter.* **26** (37), 375701 (2014).
 [4] https://www.ndc.jaea.go.jp/jendl/j40/J40_J.html
 K. Shibata *et al.*, *J. Nucl. Sci. Technol.* **48**, 1 (2011).
 [5] 日本金属学会：金属便覧 第6版 (丸善, 2000) 第10章 原子力材料。
 [6] S.T. Mahmood *et al.*, “Neutron Dosimetry of the HFIR Hydraulic Facility,” ORNL/TM-12831, Oak Ridge National Laboratory (Feb. 1995).
 [7] https://www.jaea.go.jp/04/oarai/facilities_share/joy-omk4/spectrum/index.html
 [8] F. Maekawa, *Fusion Eng. Des.* **51-52**, 809 (2000).
 [9] S. Sato *et al.*, *Nucl. Fusion* **61**, 106026 (2021).
 [10] R. Stoller, *Comprehensive Nuclear Materials* (Elsevier, 2012) 1.11:293.
 [11] M.R. Gilbert, *Nucl. Mater. Energy* **9**, 576 (2016).
 [12] G.S. Was 著／松井秀樹 訳：照射材料科学の基礎 (丸善, 2022).
 [13] L.R. Greenwood, *J. Nucl. Mater.* **212-215**, 635 (1994).
 [14] S.J. Zinkle *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **199**, 173 (1993).
 [15] M.E. Sawam, *Fusion Sci. Tech.* **66**, 272 (2014).
 [16] G. Pintsuk *et al.*, *Comprehensive Nuclear Materials* (Elsevier, 2020) 6.02 Tungsten as a Plasma-Facing Material.
 [17] D. Terentyev *et al.*, *Int. J. Ref. Metals & Hard Mater.* **95**, 105437 (2021).
 [18] J.L. McDuffee *et al.*, DOE/ER-0313/60, p. 205 (2016).
 [19] J.W. Geringer *et al.*, DOE/ER-0313/60, p. 215 (2016).
 [20] L.M. Garrison *et al.*, *Fusion Sci. Tech.* **75**, 499 (2019).
 [21] K. Shiba *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **283-287**, 358 (2000).



はせがわ あきら
長谷川 晃

東北大学金属材料研究所・学術研究員・東北大学名誉教授。1984年東北大学工学研究科原子核工学専攻修了（工学博士）後、科学技術庁金属材料技術研究所（現・物質材料研究機構）・研究員を経て、東北大学工学研究科・助教授・教授、2022年定年退職し、現職。最近の主な研究分野は核融合炉関係のタンゲステン材料の開発と照射効果に関する研究。