



2. 中性子照射によるタングステン材料の特性変化とその評価方法

2. Material Property Change of Neutron Irradiated Tungsten Materials and its Evaluation Methods

長谷川 晃

HASEGAWA Akira

東北大学金属材料研究所

(原稿受付: 2024年9月18日)

中性子照射した材料の照射影響の評価手法（硬さ、引張、靱性、微細組織熱特性等の評価方法）とその評価試料の作製方法および注意点について、熱中性子遮蔽を施して照射した HFIR-19J の場合等を例にとり、照射後試験を円滑に進めるための準備作業を含めて、照射後試験の主要な結果を紹介する。

Keywords:

Neutron irradiation, post irradiation experiments, displacement damage, nuclear transmutation

2.1 はじめに

原子炉を用いた材料の照射研究を行うにあたっては、原子炉照射の機会が少ない現状を鑑み、今後の照射後試験を円滑に進めるために、照射実験の準備作業の段階から関わる機会の無かった研究者の皆さんにそのノウハウをお伝えすることを念頭に、2014年から2020年まで行われた日米協力事業・核融合分野・PHENIX計画でのタングステン(W)材料の照射の事例を中心に述べる。

2.2 原子炉照射の準備段階

PHENIX計画で用いたORNL (Oak Ridge National Laboratory) のHFIR (High Flux Isotope Reactor) での可動ベリリウム反射体領域 (Removable Beryllium: RB) における照射サイクル番号19Jの照射 (HFIR-RB19J: 以後HFIR-19J) の特徴は、(1) 照射中のキャプセルの温度を熱電対 (Thermocouple: TC) により測定しつつ、冷却ガスの流量や組成で温度制御が可能な照射装置 (リグ) を使って、(2) 高熱流束機器用材料を対象としていたのではほとんどの試料がW合金であったこと、(3) 熱中性子によるWの核変換を抑制するためにガドリニウム (Gd) の熱中性子遮蔽体を用いたこと、(4) ITER等の今後の装置に使用されるような実用に近いW材料を中心として、(5) 炉内の照射温度が実用材料の再結晶温度前後に達することであった。また(6) HFIR-19Jに先がけてGdの遮蔽を使わない、熱電対による温度計装のないラビットキャプセルによる照射も行っていたことも特徴である。

学術的にW材料等の照射損傷の機構的な議論する場合には、内部の微細組織が単純な再結晶材や単結晶を使うことが多い。しかし核融合炉用のW材料においては低温脆化や再結晶による粒界脆化を抑制した材料の使用が求めら

れていること、それらの材料が実際の核融合炉のプラズマ対向機器の環境に近い温度条件下での中性子照射でどのような影響を受けるかを明かにすることなどが求められている。また、照射キャプセルの体積が限られていることもあり、網羅的に材料組成を振った合金等のテストマトリックスではなく、比較的単純な組成で、素材の均質性が高く材料特性の再現性の高い工業的な規模で作製された素材を使い、しかも様々な特性を調べられるような形状の試験片を使ったテストマトリックスが考えられた。さらに通常であれば、強度や延性を増すために施した加工や熱処理により導入した結晶粒組織や転位構造などの微細組織の効果を帳消しにしてしまう再結晶温度域での照射は行わないが、ダイバータの使用要件の最高使用温度の目途をつけるためにも再結晶温度近傍の高温の照射も行うことになった。高温環境では加工組織や粒界形状が非照射下でも変化するので、得られた結果がはじき出し損傷によるものなのか、高温環境によるものなのか、さらにはWの場合は中性子とWとの核変換により生成するレニウム (Re) 等の影響なのか、それらを区別できるような研究計画にする必要があった。

照射研究においては、予算やマンパワーの制限から試料提出時に入手可能なだけの素材の手配になってしまうことが多い。しかしPHENIXにおけるHFIR照射研究においては、以前のWの少量溶解材の経験などをもとに、実用に供しうる素材を絞り込み、さらに核融合科学研究所 (NIFS) のLHD計画共同研究の支援もあって、実際の照射に供するに必要な素材量の数倍の量の素材を準備できた。それらを使って、照射後実験を開始する前には非照射材のほとんどのデータが得られ、照射が始まると実際の照射温度での長時間時効実験を開始することで、照射環境と

同じ温度で照射期間とほぼ同じ期間加熱された熱時効のデータもそろえることができた。残った試料については今後の追加されるかもしれない原子炉での照射研究などに使えるように整理しアーカイブ試料として保管するようにしている。HFIR-19Jの照射条件は照射マトリックス上でわずかなポイント（3つの温度）でしか得られていないが、次ぎの照射機会と同じ素材のさらに広い条件下でのデータを取得できるように、豊富な材料ストックとそれらの継続的な管理は照射研究の前提として必要と考えている。

Wの場合、試験片作製時における特有の課題がある。それはW素材が室温では硬く脆く機械加工しづらいことと、元の素材が数mm以上の厚さをもった厚板であるため、厚さ0.2–0.5 mm程度の薄板状の引張試験片やdisk状の試験片形状への加工が放電加工以外では難しいことである。この放電加工時の放電溶融により切断面の表面に再結晶などの熱影響部が入るので、最終的には機械研磨などでこの熱影響部を除去する必要がある。これらを修正・除去するために放電加工面の研磨紙等による表面の仕上げ研磨が行われるのであるが、Wは室温ではかなり硬く、研磨にも手間がかかる。さらに引張試験片では応力や歪みが集中する試験片のゲージ部の稜線に加工時に入った脱粒やき裂などがあると、照射前後の取り扱い時、あるいは引張試験時にそこから脆性破壊を起こしてしまい、中性子照射材の特性評価の精度が下がってしまう。したがって、機械特性評価のための試験片ではそれらを除去するために、最終的には研磨粒度#1500～#2000程度の研磨紙による試験片表面およびエッジ部が滑らかになるように、手作業で状況を確認しながら研磨しておくことが必須である。実験に必要な試験片が数百枚と多くなると、これらの試験片の準備は大変になるため、試験片加工の専門業者に試験片製作を委託することになるのだが、1枚あたり数千～数万円かかる。総枚数も多いことから、その製作費用も多額になる。日米協力事業の照射では国内経費の中で試験片作製費を支援いただいたのでなんとか手配できたが、Wの照射においては十分な量の試験素材と試験片の加工費用の確保は負担が大きいことに留意しておく必要がある。

照射に至るまでの試験片準備の過程を図1に示す[1]。HFIR-19Jの照射リグは高価なため、大学と量子科学技術

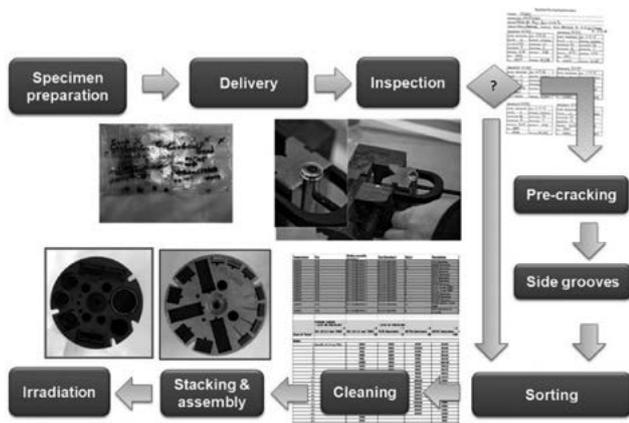


図1 照射試料の装荷とリスト作製、キャプセル製作の概要[1]。

研究開発機構（QST）の日米協力の照射実験をまとめて行ったので、4つの異なる温度のキャプセルを使った。大学側では500, 800, 1200℃の設定温度で、QST側は低放射化鉄鋼材料用の300℃を設定温度とする照射キャプセルを使用した。これに各種の形状、大きさの試験片を、日米双方から約1300個を装荷するにあたって、図1にあるような各工程での検査が必要になった。またそれぞれの試験片がキャプセル内のどの位置に配置されたのか、照射条件を個別にわかるようにするために、試験片へのIDの刻印による区別や、照射マトリックスのデータベース化を行った。試験片提供者も複数あり、これら多種多様な試験片をすべてキャプセル内のホルダーに所定の許容寸法範囲内に納めなければならない。試験片については所定の許容寸法に収まるのかを個別に測定し、大きなものは再加工か照射から除外された。照射前のこれらの複雑な準備工程は主にORNLのスタッフと、日本からの派遣研究者の手によって実施された。これらに関わる照射キャプセルの構造や試験片の配置などの情報は、参考文献[1]の米国エネルギー省（DOE）のレポートで報告されている。このような情報の研究者間での共有と開示も、数多くの照射後試験を実施する上で重要な準備のひとつである。

2.3 試験片の放射化

HFIRのような軽水炉での照射の場合、水冷却炉のため熱中性子が非常に多く、1dpa近いはじき出し損傷量を与える中性子照射量になると、熱中性子の捕獲反応によるWの核変換でレニウム（Re）が約10%、オスミウム（Os）も数%近く発生する。本講座第1章[2]でも述べたようにHFIR-19Jでは核融合炉環境に近い照射をするために、照射キャプセルに熱中性子を吸収するGd製の遮蔽体を装荷した照射になった。照射後試験を実施する上ではこれらの核変換元素の生成量とともに、試料の放射化による作業領域の放射線量や、試験片に含まれる放射性物質の種類や量（Bq）の情報も必要となる。図2は純Wの1gの試料を熱中性子遮蔽の有る無しでHFIRで6サイクル照射した後の試験片表面から30 cmの位置での空間線量率（Sv/h）の照射後の時間に伴う変化を、HFIR-19Jの照射開始前に田中照也先生（核融合研）に計算していただいたものである[3]。1gのWとは、直径6 mm、厚さ2 mmの円板（disk）試験片1個（1.1 g）に相当する。ちなみに微小引張試験片（SS-J, 0.5 mmt）は0.41 g、透過電子顕微鏡（Transmission Electron Microscope : TEM）観察用disk試料（直径3 mm, 0.25 mmt）は0.03 gである。図2で示したデータの高速中性子の照射量は遮蔽無しの方が約2倍大きいけれど、それを割り引いてもW 1gあたりの放射線の線量は遮蔽有りの方が約1/5程度と小さくなっており、熱中性子捕獲反応を抑えると放射線のレベルも低くなることわかる。

図2の照射後1年あたりまでのW試料の主な放射線源はW-181である。これは天然の同位体存在比が0.14%と非常に少ないW-180の中性子捕獲反応で生じる核種で、半減期が140日とWの放射性同位体の中では比較的長い核種

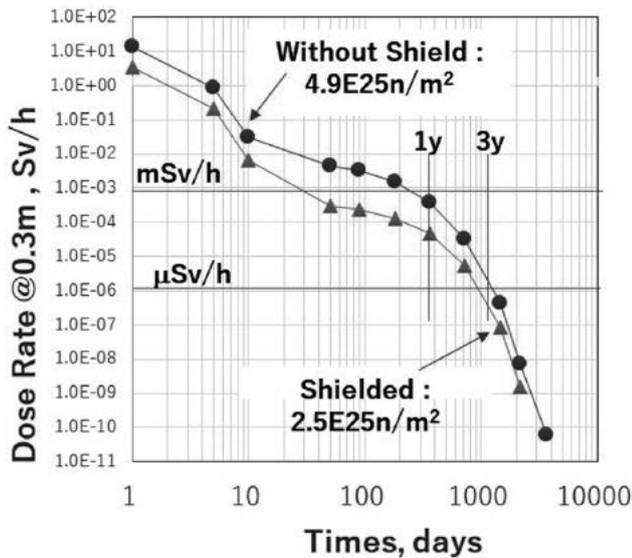


図2 純W試料の1gをHFIRで6サイクル照射した後の表面から30 cmにおける空間線量率の時間変化におよぼす熱中性子遮蔽の効果 [3].

である。他の主なWの同位体から中性子捕獲で生じる放射性的核種はもっと半減期が短く、 β 線しか出さない核種もあるので、空間線量率への寄与は小さい。図2から照射後約1年で試験片からの放射線量は照射直後に比べて1/100,000程度、3年以上では1/10,000,000程度になることがわかる。一方、放射線管理は放射性核種の量、すなわちBq数で行う。照射試験片の輸送や貯蔵などの放射線管理においては、表面線量率（あるいは試験片周辺の空間線量率）に加えて個別の核種の種類と量（Bq）の把握が重要になる。

照射後の作業は照射キャプセルの解体から始まるが、照射終了直後は試験片はもとより、ステンレス鋼などからなる照射リグ全体の放射化が非常に大きく、解体作業は慎重に進められなければならない。図3は、HFIR-19Jの照射後に炉から照射リグを取りだし、HFIR施設内の水槽で約3ヶ月冷却した後に、ORNLのホットラボに搬入し照射キャプセルを解体した際の状況である。図3(a)のようにしてホットセル内のマニピュレーターをセル外から分厚い鉛ガラスを通して目視しながらの遠隔操作で照射リグを解体し、各温度のキャプセルを取り出し、そこから試験片を慎重に取りだし、図3(b)のようにセル内で1個ずつ試験片に打ったIDを確認し、弁別し区分けしている。Wは元々脆い上に照射の影響でそれがさらに顕著になるので、この取り出しを慎重に行わないと多くの試験片が照射後試験の前に破損し失われてしまう。今回我々の用いたW試料は厚みもあってこの段階での試験片の破損はほとんど報告されていない。試験片の弁別においてはセル内の顕微鏡を用いるのであるが、表面が照射中の酸化等で多少変色・変質しても読み取れるよう試験片のIDの刻印（レーザーによる刻印）の健全性も非常に重要となる。

図3のようにして弁別した試験片は専用の容器に入れ、放射線の遮蔽の厳重なホットセルから通常の放射線管理区域の実験棟に移し、そこでさらに1個ずつ個別の容器に移

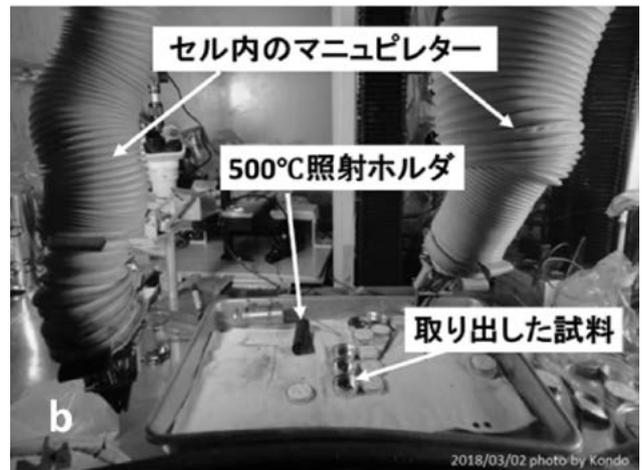


図3 ORNLのホットラボにおける遠隔操作での照射キャプセルの解体の状況（近藤創介先生（東北大）による）。

して貯蔵庫に保管し、必要に応じてそれらを取り出して照射後試験を行うことになる。照射後試験を実験者が自分の手で試験片を扱う（ハンズオン）作業を行うのであれば、作業空間の線量は10 μ Sv/h以下のレベルにとどめたいところである。2018-2019年当時にORNLで照射後試験（引張試験）をハンズオンで行った際はそれなりに線量もあったようであるが、2022年に日本に輸送された際は照射後5年以上たっていたこと等より、照射後試験のために数個の試験片を同時に鉛の放射線遮蔽体などを使わずにハンズオンで扱っても、作業員の被ばく量は1日あたり10 μ Sv以下とほとんど無かった。これは比較的短寿命の核種がメインのWを主な対象としたメリットであり、鉄鋼材料では不純物(ppm)レベルの含有量のCo-59の核変換でCo-60(半減期:5.3年, 放出 γ 線:1.17 MeV, 1.33 MeV)が生成し、その線量が数年単位で時間が経ってもなかなか低くならず、また高エネルギーの γ 線を出すため、取り扱い時も鉛遮蔽体等を使用するなど作業効率が悪いのに比べると、Wではある程度の冷却期間をとれば照射後試験がずいぶんやりやすいといえる。

2.4 照射後試験

2.4.1 照射量と照射温度の評価

照射実験においてまず必要なのは照射条件の特定であ

る。HFIRでの中性子の照射量の評価（ドジメトリ）には、中性子による核変換によって生ずる放射能の挙動がすでにわかっているいくつかの高純度の金属試料（Fe, Ti, Nb, およびV-1%Co合金）をドジメトリ用のモニター試験片として照射キャプセルに照射試験片と同梱し、照射後にそれらを取りだし、PNNL（Pacific Northwest National Laboratory, WA）に送ってその放射能の解析を行った。各キャプセル位置における熱中性子中性子エネルギー（ E_n ） $< 2.1\text{eV}$ 、エピサーマル中性子（ $E_n = 0.5 - 76\text{keV}$ ）、高速中性子（ $E_n > 0.1\text{MeV}$ ）の各中性子束の炉内で分布を図4に示すように求め[4]、さらにSPECTER Code[5]を使って炉内の位置におけるはじき出し損傷量の評価を行った。SPECTERでははじき出し損傷量（dpa）を求めるためのWのはじき出しのしきいエネルギーは90eVであった[5]。HFIR-19Jでの解析に用いた3つのキャプセルの内、800℃キャプセルのモニター材の一部が照射中に損傷を受けたため評価できなかったが、1200℃と500℃の2つのキャプセル内の高速中性子束（ $E_n > 0.1\text{MeV}$ ）とW中のはじき出し損傷量は下記のように報告されている[4]。

1200℃キャプセル： 3.62E25n/m² 0.58dpa(W)

500℃キャプセル： 2.44E25n/m² 0.39dpa(W)

800℃キャプセルの照射量は、図4から約3.1E25 n/m² 0.49 dpa (W) と推定される。

当初、HFIR-19Jの照射は1サイクルが27日で、燃料交換のための休止期をはさんでWの1 dpa相当になる6サイクルの照射が予定されていた。HFIRでは燃料の燃焼が進んでも炉の出力が一定になるように、熱出力等をモニターしながら制御棒位置を調整している。これらのデータによりGd遮蔽体の寿命も照射中に評価する仕組みであった。照射が進むにつれて、Gdの燃焼が予想以上に進み、第5サイクルの途中でGdがほぼ燃焼し尽くしてしまうことが予想されたため、はじき出し損料量よりも核変換の少ない照射が完遂されることを優先して、HFIR-19Jでは第4サイクルで照射を終えることになった。

照射温度については、HFIR-19Jでは各照射キャプセル内に照射温度測定用の熱電対が各3対ずつ装荷され、照射中の温度をモニターしながら照射が行われた。照射中の各キャプセルの温度は熱電対によれば、炉の出力が定格になった際には500℃キャプセルでは少し高め温度（600℃

近辺）で、800℃キャプセルはほぼ設定温度、1200℃キャプセルは少し低めの温度（1100℃近辺）となった。キャプセル内の冷却ガスのHe/Neの組成と流量の調整では当初の設定温度にすることができなかったため、800℃はそのまま保つようにして、それぞれ600℃付近と1100℃付近で照射を進めることになった。さらに照射が進むにつれて800℃および1200℃キャプセルの3対の熱電対が照射途中で順次破断して温度測定ができなくなった。また同じ照射リグの最下段のQSTの300℃のキャプセルの熱電対も途中で3対とも破断してしまった。この破断の原因としては熱電対が0.1mm以下と非常に細かったことと、照射リグ上部の取り出し部分から照射キャプセルまでの距離が長く、炉心に配置された熱電対の照射損傷により破断したと推定されている。最後の4サイクルまで温度データが得られた照射リグ最上部の500℃キャプセルの温度が最初から最後まで照射中はほぼ一定であったので、破断した熱電対のキャプセル温度も破断前とほぼ同じく照射の初期と同じ温度であったとして、各試料の照射温度はキャプセル内の位置にもよるが、計算によって以下のように報告されている。

500℃キャプセル： 600℃ 529℃～613℃

4サイクル通してTCで測定

800℃キャプセル： 800℃ 800℃

2サイクル途中でTC破断

1200℃キャプセル： 1100℃ 1050℃～1100℃

3サイクル途中でTC破断

さらに照射後の評価にはなるが、試験片と同梱したSiCの温度モニターを照射後に取りだし、照射後焼鈍中の電気抵抗変化から照射温度を評価した。その結果は、500℃と800℃のキャプセルでは575℃と776℃と報告されており[6]、熱電対の温度とほぼ同じであったとしている。ただ、この温度は照射終期の温度であり、途中の温度履歴に大きな変動があった場合や、照射期間を通しての平均の温度を示すものではないことに注意が必要である。一方、1200℃近傍の温度領域ではSiCの電気抵抗の高温での測定が技術的にも難しく、また電気抵抗の原因となるSiC中の照射欠陥の生成挙動が800℃以下とは異なり、測定の原理的にも精度がでないため、SiCモニターでの1200℃キャプセルの照射温度評価の結果は報告されていない[6]。これらの結果は、SiCモニター材を使った場合、800℃以下はそれなりに温度の評価ができていると考えられるが、800℃よりも高温での照射では温度の評価が容易ではないことを物語っている。

2.4.2 照射後の試験片の特性評価

HFIR-19Jの照射後にORNLに日本側の研究者が派遣されいくつかの照射後試験を行っているが、以下ではそれらと米国側研究者の成果なども含めて紹介する。なお、照射に用いた主な日本側のW材料の非照射および照射材のデータについては、文献でまとめられている[7]。照射したW中の水素の挙動の評価については、次回の解説で述べられる予定である。中性子照射材においては試験片の放射化による作業者の被ばくや放射性廃棄物への対応などが

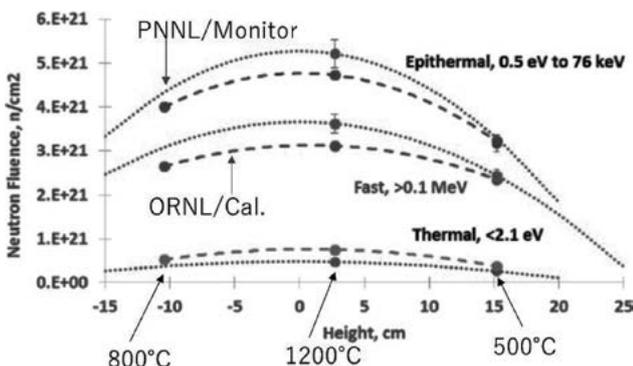


図4 HFIR-19Jの照射位置における各エネルギー領域の中性子照射量[4]。

必要で、管理区域内に設置された実験装置しか用いることができないという制約がある。世の中の測定装置は日進月歩で毎年のように進歩しているが、管理区域の制限があるため中性子照射材に対しては最新の材料評価技術が適用できないことが多く、材料研究者としてはもどかしいところでもある。

2.4.2.1 照射前の試験片表面の処理と硬さ測定

照射した試験片は原子炉の中で600~1100℃で約4ヶ月にわたってキャプセル内を流れるHe/Ne混合ガスにさらされていたことから、ガス中の不純物酸素等により表面が酸化している可能性がある。一方、この酸化した表面層を除去するための機械研磨は放射性物質である研磨屑の粉塵を発生させることもあり、ORNLでの硬さ測定(2018年)では表面の酸化膜などの研磨を省略してSS-J試験片を用いて硬さ試験や引張試験を行った[8,9]。試験片材料の機械的な強度は、ダイヤモンドの四角錐形状の圧子を試験片表面に所定の力で押し込んだ時に表面にできる圧子痕の大きさから推定できる。その一種であるビッカース硬さ測定が、放射化した試料の機械的強さの変化によく用いられている。ビッカース硬さ試験は引張試験片のタブ部(試験片の掴み部)で、試験片表面は照射ままの状態室温において測定荷重200 gf、荷重時間:15秒で行った[8]。一方、1200℃キャプセル照射材においては、図5(a)に示すように試験片表面が黒色に変色した領域が見られ、さらに図5(b)に示すように照射後の引張試験で破断した破面の表面付近には10~20 μm程度の厚さの変質層も見られていた[9]。図5(c)は比較的金属光沢が見られた領域で硬さ測定をした際のビッカース圧痕周辺の表面観察結果である。圧痕周囲の黒い領域や凹凸などが見られた。ORNLではまだ放射能レベルが高く、この試験片の表面研磨ができなかったため、1200℃照射材の硬さ測定は行わなかった。この黒く変色したものはキャプセル内の温度媒体に用いたグラファイトに起因するものと推定されるが、図5(a)のように同じ試験片でも変色域がはっきり出ているものと、そうでないものがあり、また図5(b)のように破断面でも変質層が破面にはっきりと出ているものと無いものがあるなどバラツキがあった。

2022年初頭に東北大学・金属材料研究所・附属量子エネルギー材料科学国際研究センター(以後「大洗研」)に輸送した試料においては、照射後5年以上が経って表面線量も低下していたので、ホットラボ内で汚染が広がらないようにフード内で、小型の研磨治具に試験片を固定し、ビニール袋等で養生してハンズオンの状態で組織観察

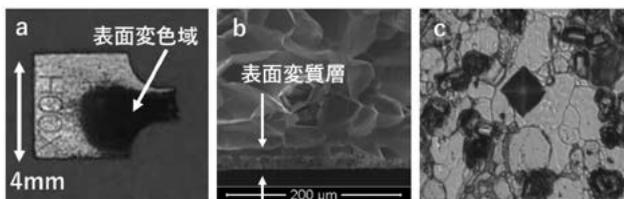


図5 HFIR-19Jの1200℃キャプセルで照射し、500℃の引張試験にて脆性的に破断した純W再結晶材のa)破断試験片の表面写真、b)破断面のSEM像、c)表面のビッカース圧痕。

用のTEM disk試験片の表面を研磨紙(#400~2000)による機械研磨で、表面から50 μm程度を研磨した上で硬さの測定や電気抵抗測定を行った。その結果を図6(a)、(b)に示す[10]。500℃、800℃キャプセル照射材については、ORNLで取ったデータと比較しても、表面の機械研磨の有無による照射硬化量の違いはほとんどなく、500℃照射よりも800℃照射材の方が照射硬化量が大きくなるという傾向も変わらなかった。一方、1200℃照射材では機械研磨で黒色の変色層は簡単に落とせたものの、その下の硬化層が硬く、さらに3 mm diskのほぼ全面に均一にできていた。やや粗めの研磨紙で30 μm程度研磨すると急に軟らかい下地が現れてきて、表面硬化層と軟らかい下地との間が明確に区別でき、図5(b)の表面変質層が硬化層であることがはっきりとわかった。我々の過去のJMTRやJOYO、HFIR-14J等の照射はいずれも800℃以下の照射であり、今回のHFIR-19Jの1200℃照射は初めての照射条件であり、このような表面硬化層はこれまで経験したことがなかった。今のところ表面硬化層が形成された理由については、反応層そのものの分析を行っていないので詳細は不明であるが、1200℃とこれまでにない高温で、かつキャプセル内の試料ホルダーにグラファイトを使っていたのでその炭素によるW炭化物ではないかと考えている。ただ、グラファイトホルダーに接触していない部分にも形成されていたことから、その生成の機構は今のところ不明である。

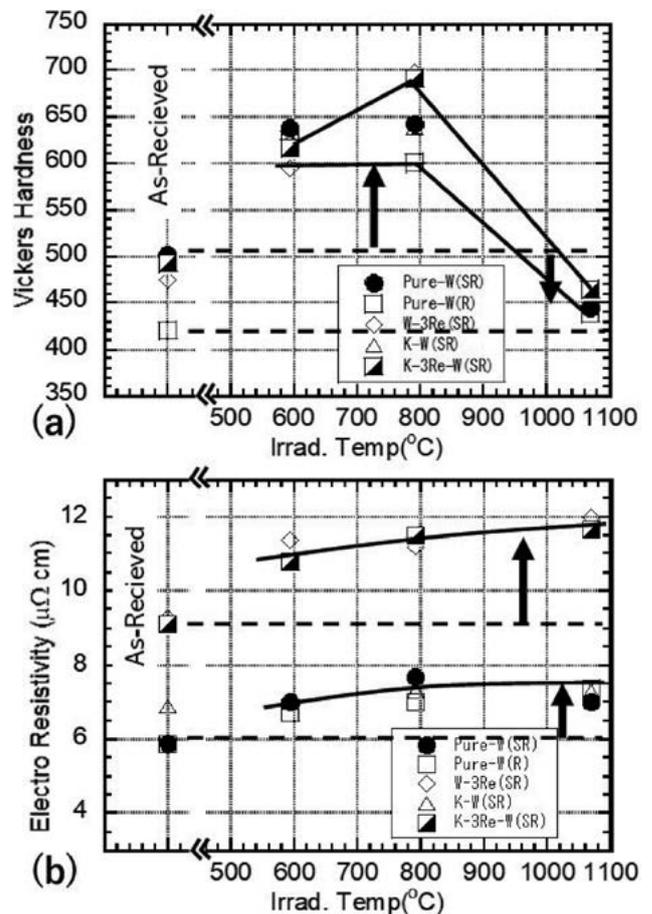


図6 HFIR-19Jで照射したW合金の硬さ(a)と、電気抵抗(b)の測定結果[10]。

2.4.2.2 電気抵抗測定

図6(b)に示す照射後の電気抵抗測定結果[10]は、上述のように表面を研磨したTEMdisk試験片を使って、室温で4端子法を使って行った。測定は以前にJMTRやJOYOで測定した手法を用いた[11]。HFIR-19Jで照射した他のW試料のデータも同様に測定され、報告されている[12]。硬さ測定では500℃、800℃と1200℃で照射硬化の挙動が大きく異なったが、電気抵抗測定では照射温度よりも、中性子照射量に依存するような結果が得られた。HFIR-19Jでは純W系の試料と、3% Reを含む合金系の試料を照射したが、図6(b)のように電気抵抗の照射温度依存性の特徴が純W系と3% Re添加材の2つの傾向にはっきりと分かれた。非照射の状態でも3% Reの添加材では純W系に比べて電気抵抗が約50%高く、照射による電気抵抗の増加分は純W系とW-3Re系でそれぞれ非照射材の約20%および25%増であった。これから照射後の室温での電気抵抗への影響は、照射欠陥集合体よりも核変換によるReの影響の方が大きいと考えられる。

2.4.2.3 照射後の微細組織変化

TEM観察用にはdisk試験片の両面の表面50μm、計100μm程度を機械研磨で落とし、それをツイングジェット研磨装置を用いた電解研磨で観察用薄膜を作製し、観察に供した。Wの電解研磨は2%NaOH水溶液を使って、室温で20Vの電圧で行った。Wは鉄鋼材料等の金属に比べて電解研磨はやりやすい。また使用後の放射性物質を含む廃液の処理も、希塩酸で中和して食塩水にするので、石膏での廃液固化処理も安全で容易に行えた。

HFIR-19Jで照射した試験の微細組織観察は、diskから電解研磨で作製した薄膜のTEM観察[13]と、FIB(Focused Ion Beam)装置を用いて針状試料を作りAtom Probe解析(APT)が行われている[14]。W材料の中性子照射では核変換で生ずるReやOsが、非照射環境下ではそれらの固溶限以下の濃度でもWRe_x系の析出物を生成することが知られており[15]、照射欠陥集合体と核変換元素の相互の関係を調べることでWの照射研究の主流になっている。最近ではS-TEMと高感度元素分析装置を組み合わせた研究も海外で発表されている[16, 17]。これらの試料はFIBを用いて作られた大きさ数百nm四方の非常に小さな形状の試験片を使うことから、比較的放射能レベルの高い試料であっても、観察用の試験片の放射能レベルが非常に小さく、取扱以上の被ばくの恐れが低減されている。一方、電解研磨で作製した試料は大きさが直径3mm、厚さ0.2mm程度で多少放射線量が大いものの、試験片の取扱いが容易かつ観察視野が非常に広く、スパッターで試験片を作製するFIBの場合のような表面に微細な欠陥が入らないことから、照射温度の低い場合のような欠陥集合体が小さな試料における観察には有利である。HFIR-19Jの純Wの微細組織については現在も解析が進行中で、これまでにその一部が発表されている[13, 14]。図7に純Wの材料製作時の圧延加工により圧延方向に引き伸ばされたような微細な結晶粒と、その粒内の転位組織と亜粒界組織を残して低温での延性改善をはかった応力除去熱処理

(SR)材のTEMによる照射後の微細組織観察の結果を示す[13]。図7(a)500℃および(b)800℃照射の試料においては、図中に示したような加工による長い転位と細かな黒い斑点状の転位ループと、白く抜けた斑点として見られる小さなボイドが主な組織であり、(c)1200℃照射では転位ループは観察されず、図中に示した比較的大きなボイドが観察された。また1200℃照射材では、核変換ReとWの化合物からなる針状またはロッド状の析出物が、母相中と一部のボイドの表面上にも存在していることも観察された。図6(a)で見られた照射後の硬さが800℃と1200℃で大きく異なったのは、照射前にSR材中に存在した亜粒界等の転位組織と、図7で示した照射で導入された欠陥集合体の種類やその大きさと数密度が、照射温度1000℃前後を境に大きく変わったことによると考えられる。つまりSR材においては500℃および800℃照射では元々の転位や亜粒界組織が残存しており、それに加えて微細で高密度な欠陥集合体が導入されて硬さの増加(照射硬化)となったのに対し、1200℃照射においては高温環境下でSR材中にあった加工による転位組織等が回復したことによる硬さの低下(軟化)と、同時並行的に粗大なボイドや析出物が形成されたことによる硬化との差し引きで、照射前よりも硬さが低下する照射軟化となったと考えられる。一方、照射前の再結晶熱処理により結晶粒が粗大化し、粒内に亜粒界や転位などがほとんどない再結晶材(R材)では、500℃と800℃の照射では細かく密な照射欠陥集合体による大きな照射硬化が得られ、1200℃照射では高温での照射で粗大化して数密度が小さくなった照射欠陥集合体などが導入された分だけのわずかな照射硬化となったことが分かった。これら照射挙動の純Wを含めたW合金における粒界や亜粒界・転位組織等と、転位ループやボイドおよび析出物の詳細な解析を行った結果と考察については、今後論文として発表される予定である。一方、TEM観察に比べるとAPTでは観察領域は狭いが、針状試料のTEM観察後にAPTを行うことで、TEMで観察された欠陥集合体への核変換元素の偏析がサブnm程度の非常に高い位置分解能で、かつ局所的に微量元素の定量的な結果を得ることができている[18, 19]。実際にAPTではボイドや転位ループの周辺に、析出物になる前の状態の偏析としてReやOsの存在が観察されている。FIBでのAPT用試料のサンプリングにあたっては、HFIR-19Jの1200℃照射のように表面変質層があるような場合は、FIB処理の前に表面反応層の除去が必要になる。また、FIBでは試料作製の段階で細い針

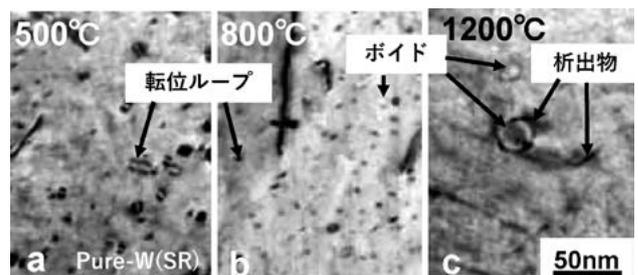


図7 HFIR-19Jで照射後の純W(SR)材の透過電子顕微鏡写真。吉田健太先生(東北大)撮影。

状試料の表面にスパッターイオンによる微細な欠陥が入ることが課題であったが、最近の試料作製装置等の向上により、以前よりも表面損傷の少ない試料ができるようになってきた[17]、今後の研究の進展が期待されている。

高温照射におけるW材料の再結晶等の結晶粒組織の変化については、EBSD (Electron Backscatter Diffraction) により比較的容易にかつ定量的にデータが得られるようになった。HFIRのラビット照射材の照射後のEBSD試験により、照射誘起の再結晶の可能性が報告されている[20]。ただ報告されたこの現象については、ラビットキャプセル照射のもので850℃以上としている照射温度がSiCモニターを使って得られたもので、前述のように温度の精度などに課題があることと、一般にWの加工材等の再結晶温度は1200℃程度とされているが、それは1時間程度の短時間の保持の場合が多く、非照射下での数ヶ月という長時間の組織変化のデータ[7, 21]と比較する必要がある。ただ、19Jの1200℃キャプセル中の3% Reを添加した材料では、非照射では1100℃で3000時間でも再結晶しなかったにも拘わらず、照射後のEBSD観察の結果から再結晶がかなり進んだ状況になっていたことから、3%Re添加合金では照射誘起の再結晶が起こっていた可能性が高く、これについては現在も調査中である。

2.4.2.4 引張試験

微小な引張試験片 (SS-J) を照射して、照射後に種々の温度において引張り強さや伸びを評価することで、低温では脆性的な挙動を示すW材料の照射中の温度領域での機械特性の評価を行うことができる。ORNLで行ったHFIR-19Jの800℃照射材の700℃での引張試験で得られた応力ひずみ線図を図8に示す[7]。HFIR-19Jの照射では室温での照射硬化が最も大きかった800℃照射材において、700℃で引張試験をした場合には、非照射材料の2倍まで降伏応力が上昇したものの、破断までの伸びが非照射材とはほぼ同じ程度となるという興味深い結果が得られた。これらの照射材料は、非照射では延性的な挙動を示す500℃での照射後の引張試験ではほとんど伸びを示さなかったことから、低温領域では脆化が進んでいるが、照射温度領域では意外にも延性が保たれることが示された。このような挙動がダイバータタイルのような1cm程度の距離の間で1000℃近いプラズマ対向面から、冷却管近傍の

300~400℃という大きな温度勾配が発生するような部材の運転中におけるき裂の発生や変形の挙動にどのような影響を及ぼすのか今後の解析が待たれる。表面変質層が観察された1200℃キャプセルの試料については、500℃で脆性破壊をした再結晶材の破断面には図6(a)に示すような硬化層が見られたが、応力除去処理したW材では、照射中に再結晶が起こりかつ照射硬化が起こったものの、高温の900℃での引張試験では非照射材と強度や伸びにおいてほぼ同じ変形挙動を示した[8]。試験片表面を観察すると表面硬化層は変形の初期に表面の歪みに垂直な方向にき裂が多数生成して、延性的に変形する下地のWに密着して変形していることから、高温環境下では脆化への影響は少ないのではないかと考えられている。核変換効果を加速して見られると考えると照射した3% Re添加合金ではわずかに強度が上昇しているものの、伸びは純W系材料よりも大きくなっている。TEM観察では3% Re合金では析出物が多く観察されており、照射誘起の WRe_x 析出物が、高温では延性低下よりも延性維持に影響している可能性も考えられ、W材料における核変換元素と欠陥集合体や、粒界組織等への高温環境下での照射影響の現れ方についてはさらに研究を続ける必要がある。

2.4.2.5 熱拡散率の測定

核融合炉のダイバータにおいては冷却機能を担保する熱伝導特性の中性子照射後の挙動の解明が必要とされて

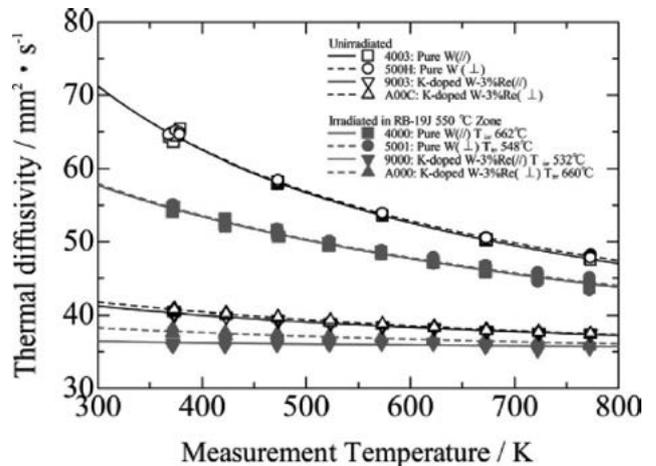


図9 HFIR-19Jにおいて500℃キャプセルで照射したW合金の熱拡散率の試験温度依存性[24]。

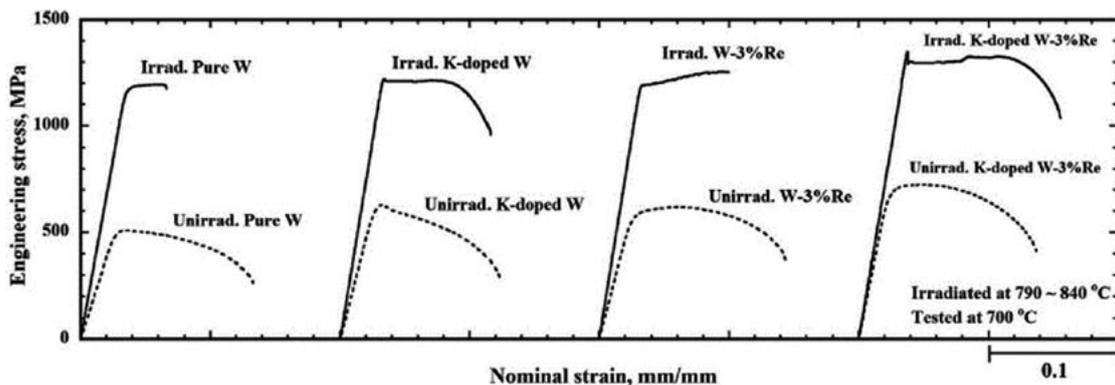


図8 HFIR-19J照射材の800℃照射、700℃での引張試験における応力ひずみ線図[8]。

いる。熱特性を測定評価するには比較的大きな試験片(10 mm ϕ ×2 mm)が必要とされるが、原子炉照射の場合の試験片の放射化による実験作業者の被ばく低減のために、より小型の試験片による測定手法の開発が行われた[22, 23]。熱伝導率を求めるには熱拡散率と比熱の測定温度依存性のデータが必要であるが、管理区域内では比較的容易に測定が可能な熱拡散率の評価が行われている。HFIR-19Jの照射では6 mm ϕ ×2 mmの試験片が採用され、ORNLにおいて実施された結果が報告されている。図9に500℃キャプセルの試料を使った結果を非照射材の場合と比較して示す[24]。非照射のWにおいては、Re濃度が0%から3%程度までの増加の間で熱拡散率ははっきりと低下する傾向がある[22]。一方で素材の加工の有無や結晶粒径の影響は比較的小さいことがわかっている[22]。図9に示すように純Wの照射材では非照射材に比べて熱拡散率が低下しており、W-Re合金を含む非照射材のデータと比較して、この熱拡散率の低下が主にReによると仮定して換算すると照射した純W中のRe濃度は0.52%となると報告されている[24]。その後のORNLでの熱拡散率測定の結果に加えて、電気抵抗測定、さらに波長分散型のX線解析で求めたRe分析の結果や、損傷組織や結晶粒組織等の影響を勘案した解析の結果が報告されている[12]。

2.4.2.6 延性脆性遷移挙動 (Ductile Brittle Transition Temperature: DBTT)

Wの低温脆性の典型的な例として、中央に切り欠き(ノッチ)のついたシャルピー試験片や切り欠きのない曲げ試験片を用いた破壊挙動の評価試験が行われている。JISの規定ではこの試験には10×10×55 mmの大きさの角材状の試験片が使われるが、この大きさでは原子炉照射のキャプセルとはほぼ同じ大きさであり、その重量も106gと大きくなり、放射化の観点からも原子炉での照射試験にはこの大きさでは使えない。またDBTT曲線を求めるためには試験温度依存性を求めるため少なくとも10本程度の試験片は必要とされていることから、EUでは試験片サイズを3×4×27 mm:6.25 gと小さくしたノッチ付き試験片での衝撃試験[25]や、ノッチ無しの曲げ試験(1×1×12 mm:0.23 g)で各種のW材料の延性脆性挙動の評価[26]が進んでいる。その結果、板材や丸棒の加工材では試験片と素材の加工方向の関係が重要であること、非照射状態では結晶粒径を小さくすればDBTTが低くなり、上部棚エネルギーが高くなるという低温側の延性改善の傾向が得られている。それらのデータを元に、ベルギーのBR-2 (Belgian Reactor-2) 炉で照射し、SCK-CENのホットセル内で、大気中において225℃~600℃までの温度範囲で、中性子照射したノッチ無しの試験片による曲げ試験を行って得られた延性脆性遷移挙動への中性子照射影響の評価が報告されている。図10にその結果得られたDBTTの照射前後の値を示した[27]。BR-2照射ではHFIR-19Jで照射したW材料も使われており、合金化で粒径を小さくしたK-doped W材料での低温での延性改善と、中性子照射後のDBTT上昇の抑制が見られたことと、3% Re添加したK-doped W材料では非照射ではDBTTが0℃とかなり

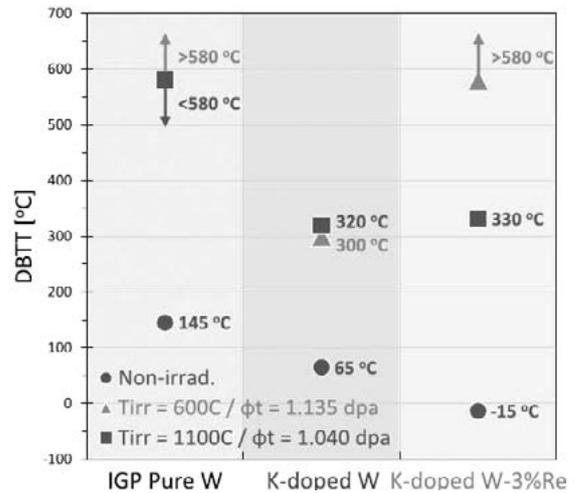


図10 BR-2で中性子照射したタングステン材料の曲げ試験で求めた延性脆性遷移温度[27]。

改善されたものの、照射後はDBTTが最も上昇してしまったという結果が得られている[27]。

2.5 まとめ

W材料の原子炉での中性子照射試験とその後の特性評価試験について、その実験の進め方を中心にまとめた。これらの成果の詳細は参考文献で公表されている。また一部は論文化に向けてまとめられつつある。これらの照射特性は文中で述べたような中性子照射材特有の性質、すなわち中性子照射で形成されるnmサイズの照射欠陥集合体から、数 μ mの亜粒界とその中の転位組織、そして100 μ m程度の結晶粒界までのマルチスケールの微細組織が影響していると考えられている。また原子レベルではReやOsなどの核変換元素の生成と、それらと欠陥集合体との相互作用の材料特性への影響も考慮しつつ、非照射状態でのW材料の低温脆性改善の機構と中性子照射後のDBTT上昇の機構などとの関係についての解明が、これまでに得られた多くの成果や、既存の照射試料への新たな技術を駆使した微細組織の解析を適用するなどして現在も進められている。

参考文献

- [1] J.W. Geringer *et al.*, DOE/ER-0313/60 (2016) 10.4.
- [2] 長谷川 晃: プラズマ・核融合学会誌 **101**, 3 (2025).
- [3] T. Tanaka, *unpublished* (2015).
- [4] L.R. Greenwood, DOE/ER-0313/67, 160 (2020).
- [5] L.R. Greenwood SPECTER: ANL/FPP-TM-197 (1985), DOE/ER-0314/30 (2001) 214-219.
- [6] H. Wang *et al.*, J. Nucl. Mater. **540**, 152370 (2020).
- [7] S. Nogami *et al.*, J. Nucl. Mater. **43**, 152506 (2021).
- [8] T. Miyazawa *et al.*, J. Nucl. Mater. **529**, 51910 (2020).
- [9] T. Miyazawa *et al.*, J. Nucl. Mater. **542**, 152505 (2020).
- [10] 長谷川 晃 他: 日本原子力学会 2022年秋の大会 講演概要集.
- [11] T. Tanno *et al.*, J. Nucl. Mater. **386-388**, 218 (2009).
- [12] J.R. Echols *et al.*, Acta Mater. **257**, 119025 (2023).
- [13] 長谷川 晃 他: 日本金属学会 2022年秋の大会 講演概

要集.

- [14] Y. Nobuta *et al.*, J. Nucl. Mater. **566**, 153774 (2022).
- [15] A. Hasegawa *et al.*, J. Nucl. Mater. **47**, 175 (2016).
- [16] M. Durrschnabel *et al.*, Scientific Reports **11**, 7572 (2021).
- [17] M. Klimenkov *et al.*, J. Nucl. Mater. **572**, 154018 (2022).
- [18] T. Hwang *et al.*, J. Nucl. Mater. **507**, 78 (2018).
- [19] K. Inoue *et al.*, MTLA **32**, 101963 (2023).
- [20] H. Gietl *et al.*, J. Alloys Comp. **90**, 1634191 (2022).
- [21] K. Tsuchida *et al.*, Nucle. Mater. Energy **15**, 158 (2018).
- [22] M. Fukuda *et al.*, Fusion Eng. Des. **132**, 1 (2018).
- [23] M. Akiyoshi *et al.*, Fusion Eng. Des. **136**, 513 (2018).
- [24] M. Akiyoshi *et al.*, J. Nucl. Mater. **543**, 152594 (2021).
- [25] M. Rieth *et al.*, Int. J. Ref. Metals Hard Mater. **28**, 679 (2010).
- [26] S. Nogami *et al.*, Fusion Eng. Des. **135**, 196 (2018).
- [27] S. Nogami *et al.*, J. Nucl. Mater. **553**, 153009 (2021).