

高速実験炉「常陽」を用いた材料照射研究と核分裂, 核融合中性子照射相関

室賀, 健夫
九州大学応用力学研究所 : 助教授

荒木, 邦明
九州大学応用力学研究所

吉田, 直亮
九州大学応用力学研究所 : 教授

宮本, 好雄

<https://doi.org/10.15017/4743801>

出版情報 : 應用力學研究所所報. 65, pp.409-424, 1987-12. 九州大学応用力学研究所
バージョン :
権利関係 :



高速実験炉「常陽」を用いた材料照射研究と核分裂、 核融合中性子照射関連

室 賀 健 夫* 荒 木 邦 明†
宮 本 好 雄‡ 吉 田 直 亮‡

概 要

高速実験炉「常陽」を用いた材料照射実験によりモデル合金、純金属の中性子照射効果が明らかになるとともに核融合中性子照射実験との比較により、両者の本質的な差、高速炉照射実験により核融合炉における材料挙動を評価する上での問題点が示された。

Key words: Fission-fusion correlation, Void swelling, Neutron irradiation, Damage rate effects

1. は じ め に

核融合炉材料の照射試験において高速炉を用いる研究が米国、フランス等を中心に活発に行われている。この場合、高速炉条件と核融合条件の材料挙動の関連を求める事が重要な課題である。筆者らは以前、高エネルギー重イオン照射と RTNS-II による核融合炉中性子照射による組織比較を銅において行い、生成欠陥集集体密度に関し、従来用いられている、dpa よりも、カスケード損傷の構造を考慮し、理論的に予測される生成サブカスケード数をパラメータにとる事により、よい相関が得られる事を示してきた¹⁾²⁾。核融合中性子による重照射研究が不可能な現状においては、この様な、相関パラメータの導出、あるいは材料挙動を記述する基本構成方程式の導出を既存の照射施設を用いたデータに関して試み、核融合条件での材料挙動の評価に結びつけるという研究（照射相関研究）が極めて重要な役割を持っていると言えよう。

本報告では近年利用が可能になった高速実験炉「常陽」による照射実験結果を紹介するとともに、RTNS-II を利用した核融合中性子照射実験の結果と比較検討しながら、これらの材料挙動を定める基本的因子について述べる。またこれらの結果を基にして今後行うべき照射研究に方向についても触れた。なお本報告では純ニッケル、高純度 Fe-Cr-Ni 合金について述べる。これらは核融合炉の直接の候

* 九州大学助教授、応用力学研究所

† 文部技官、九州大学応用力学研究所

‡ 九州大学教授、応用力学研究所

補材ではないが、基本的情報が豊富で比較的少ない照射量でも変化が起こるという特徴を持っている。これらは、現在特に核融合中性子照射の照射量が極めて低い量に限られ、その中から様々な情報を導出する必要がある事によって選ばれた材料である。

2. 照射実験の概要

2.1 「常陽」による照射実験

本照射実験は東北大学からの委託により動力炉・核燃料開発事業団が、照射実験解析、組立、照射、解体を行ったものである。照射は「常陽」照射炉心 MK-II の反射体領域に照射用リグ SMIR-6, 7 を装荷し行われた。各照射試験片は計装品キャプセルに Ar/He ガス雰囲気中で挿入し、リグに組み込まれた。照射炉心、リグ等の詳細は文献 3) を参照されたい。

温度は炉内装荷位置における試料片ホルダ及び試料片部の γ 発熱及び中性子発熱とギャップ幅、試料片キャプセル内封入ガス (Ar/He) の混合比を考慮し、計算により求めた。「常陽」においては溶融ナトリウム冷却のため炉の上部を不活性ガスで充填させ容器を完全密封している事などにより、運転時の熱電対による温度計測は今のところ困難でありこの実験でも行われていない。本実験の SMIR-6 の公称 600°C 照射の場合、SiC 温度モニターを用いて間接的に評価したところほぼ 580°C と推定されたとの報告がある⁴⁾。本実験報告では温度は公称値を用いるが、結果の解釈にはこの程度の温度の誤差も考慮する必要がある。

中性子照射量は各照射リグの炉内装荷位置における中性子束分布より積算中性子照射量を求めた。

2.2 RTNS-II による高温長期照射実験

RTNS-II による D-T 中性子の高温照射実験と今までの成果に関しては詳細な報告があるので参照されたい⁵⁾。最近の特色ある照射として昭和 60 年 10 月～61 年 5 月までの高温長期照射実験が挙げられる (担当 東大 河西氏, 北大 義家氏)。この実験では最強部でほぼ $1 \times 10^{23} \text{ n/m}^2$ の照射が 200°C, 450°C で達成された。本報告ではこの照射材料の実験結果を中心に「常陽」照射との比較を行う。

2.3 照射後実験

「常陽」被照射試料は動燃事業団で解体のうえ、また RTNS-II 被照射試料は LLNL よりそれぞれ東北大学金属材料研究所付属材料試験炉利用施設 (茨城県大洗町) へ搬入された。本報告の実験は全て透過電子顕微鏡観察用の試料 (3 mm 径, 0.1 mm 厚のディスク) である。これらの試料は、施設備え付けのテヌボールによる電解研磨の上、透過電顕用薄膜試料とした。観察は日本電子製 JEM-200CX を用いた。

3. 高純度 Fe-Cr-Ni 合金におけるボイド形成と Ti 添加効果

3.1 緒言

オーステナイト鋼の高速炉照射データは HEDL, ORNL を中心に蓄積されつつあり、多くの事が明ら

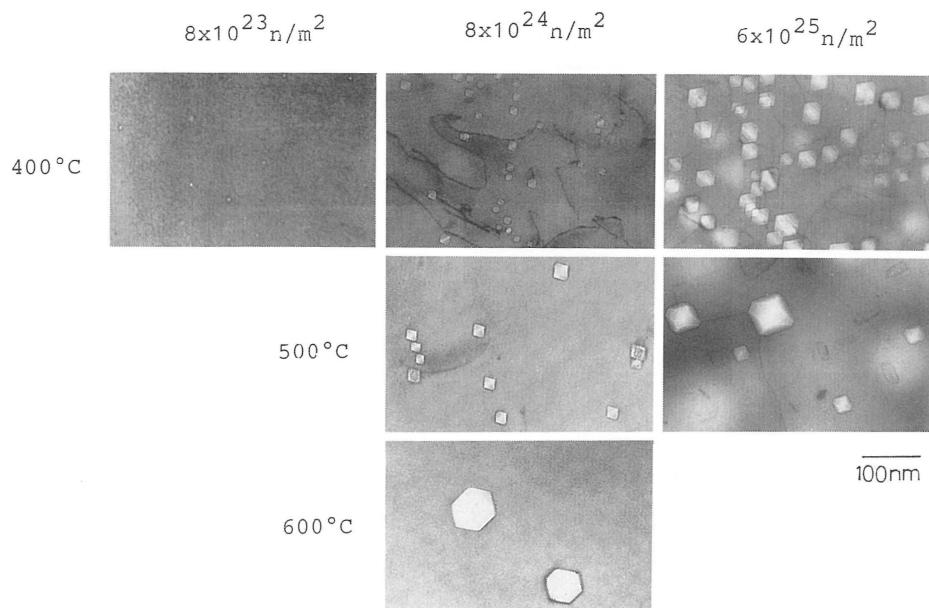


図1 Fe-Cr-Ni合金の「常陽」照射によるボイド形成

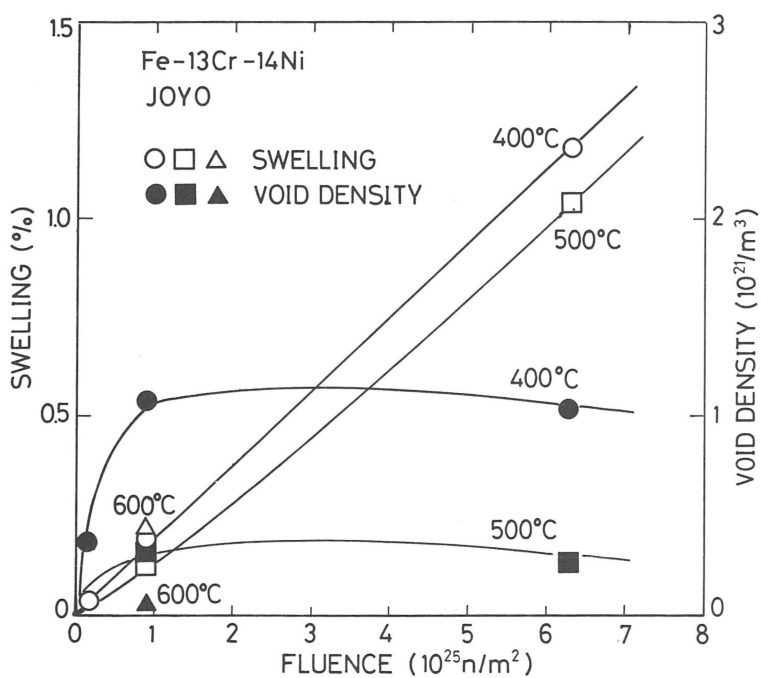
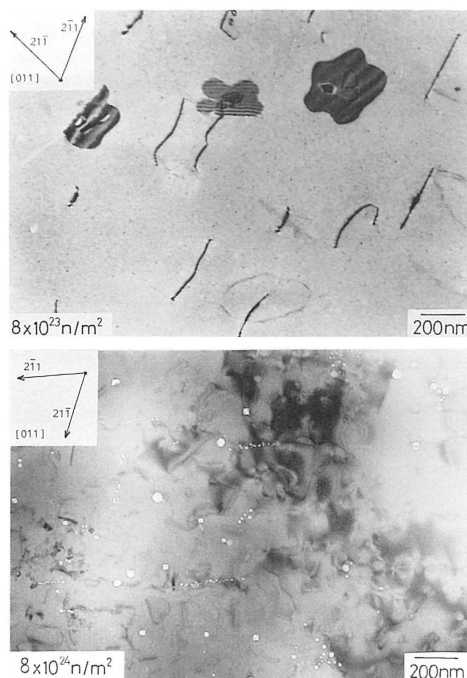


図2 ボイド密度，スエリングの照射量依存性



Fe-13Cr-14Ni-0.12Ti 400°C

図3 Ti添加材の転位組織とボイド分布

しかしこれらの研究方向はいわば現象論に基づくものであり、高速炉データから核融合炉での材料挙動の予測を行う場合信頼性に問題が残る。従ってより核融合条件に近い照射実験を行うとともに、機構論を発展させてゆく必要がある。本研究では基礎過程の抽出に適した高純度合金を利用し、ボイド以外の転位、析出等の詳細な観察も行う事により、遷移領域を中心にスエリングの機構を明らかにする事を目的としている。

ステンレス鋼においては様々な微量元素添加によりスエリングが抑えられる事が知られている。中でもチタンは他の特性をあまり損ねずスエリングを安定的に抑制するので最も注目されており、炭素を同時に添加し、TiC析出物を分散させた改良ステンレス鋼は主要な候補材の一つとなっている。しかしチタンのスエリング抑制効果の機構は幾つかの説があるものの今だ明らかでなく、今後この方向の材料開発を進める上でその基礎過程を明らかにするのが重要と思われる。本研究ではより純粋なチタン添加効果を抽出し、機構解明に寄与する事を目的として高純度材にチタンを添加した試料を用いた。

3.2 実験方法

非接触縦型浮遊帯融解装置を用い、高純度 Fe-13Cr-14Ni (A-1) 及びこれに 0.12 Ti を添加した合金 (A-2) を作製した。これらを常陽において 400°C, $8 \times 10^{23} \text{ n/m}^2$, 400, 500, 600°C, $8 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$ 及び 400, 500°C, $6 \times 10^{25} \text{ n/m}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$) の照射を行い、組織の電顕観察を行った。また比較のため、500°

かとなっている。特にスエリングに関しては 316, 304 ステンレス鋼ではほぼ 100 dpa まで、単純な Fe-Cr-Ni 合金ではやや低い照射量までのデータが得られ、広い範囲の温度、照射量における特性が明らかになっている。

それらによると、一般にオーステナイト鋼の場合スエリングは始め少しづつ増加し(遷移領域)、その後増加率が増え照射量に比例して増加する領域(定常領域)に入る⁶⁾。一般にこのようなスエリングの比例増加は 30% 程度のスエリングでもまだ続くようだが、イオン照射のデータ⁷⁾ からその後飽和する事が予想される。また近年 HEDL のグループは様々な照射条件、試料条件に因らずこの定常領域では 1 dpa 当たりほぼ 1% のスエリングである事を主張し⁸⁾、高速炉条件ではほぼ認められている様である。

このようなスエリングの特性のもとでスエリング量を抑えるには結局遷移領域を引き伸ばす以外なく、その手法の開発に研究の主力が注がれている。

C 11ヵ月の熱履歴を与えた試料 (out-of-pile 加熱試料) の組織観察も行った。

3.3 実験結果と考察

図1に A-1 合金におけるボイド組織を示す。400°C, $8 \times 10^{23} \text{ n/m}^2$ において既に微小なボイドは形成され，照射量，温度とともに大きくなっている事がわかる。図2はこれらのボイド密度，スエリングの照射量依存性を示す。A-1 材ではボイド密度の飽和傾向とスエリングの比例増加が見られ，典型的なオーステナイト鋼のスエリング挙動⁶⁾を示している。しかし A-2 (Ti 添加材) では後で示す様にボイド密度に大きな違いが見られスエリングも少なくなった。図3は A-2 における照射初期の転位組織とその後のボイド分布を示す。転位は [011] 方向から見ると $\langle 211 \rangle$ 方向に広がっている事から (111) 面上のループである事がわかる。ボイドはほぼランダムな分布だった A-1 と大きく異なり，ループと同じ方向に並んでいる様子がわかる。但しこの照射量における転位はすでにタングルしているのでボイドとの直接の対応は得られていない。以上の事から照射初期に形成したループの位置に偏析，析出が起り，そこが後のボイド形成の場になったものと考えられる。この偏析，析出の実体は明らかでないが，Ti が何らかの形で関与している事が予想される。図4, 5は $8 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$ におけるボイドサイズ，密度，スエリングの温度依存性を示す。A-1 と A-2 を比較する事により，Ti の効果として，ボイドの数密度を押さえる (核生成が特殊な場所のみに限定される) 事によってスエリングを抑制する事がわかる。600°C においては A

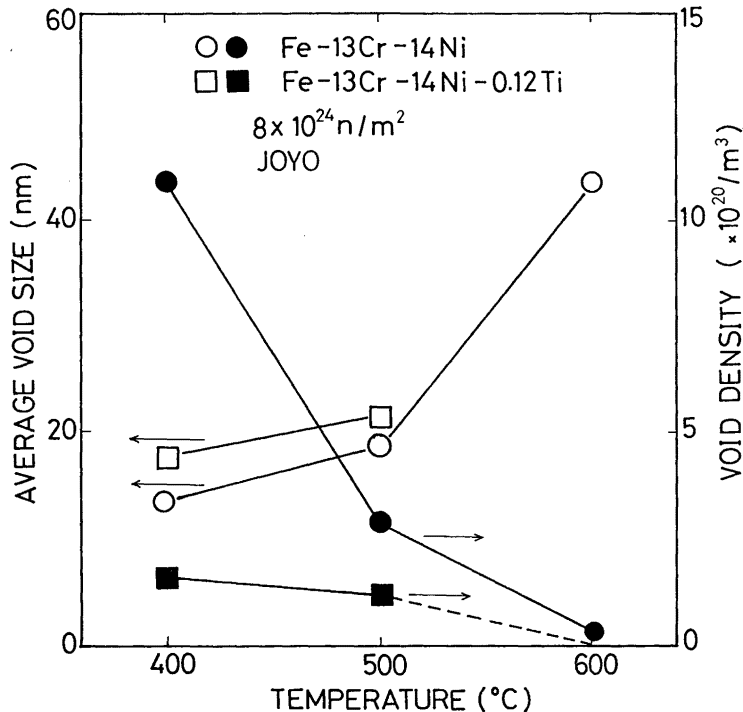


図4 ボイドサイズ，密度の照射温度依存性

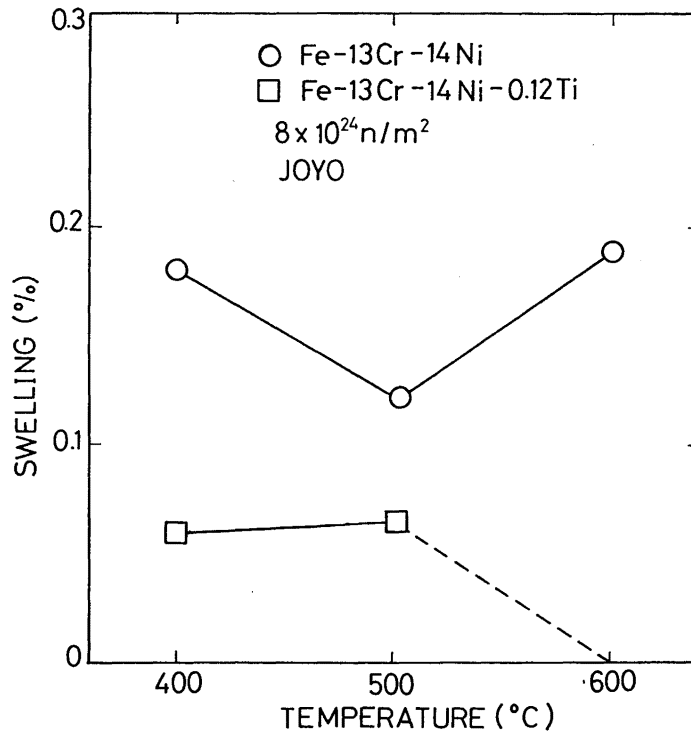


図5 スエリングの照射温度依存性

-1 材のみボイドが観察された。

600°CのA-2材の組織を図6に示す。ここでは転位が複雑に変化している事、マトリクス中に析出物が形成しそこから転位が複雑に発生している様子がわかる。微小なドットコントラストの析出物は図3に見られる様に400°Cからすでに見られていたが600°Cではさらに発達している。また転位の発生している析出物の近傍ではマトリクスの微小ドットコントラストが消えている事から、この析出物は、マトリクスの微小析出物が集まり粗大化したものと考えられる。これらの析出物は out-of-pile 加熱試料では観察されなかったので、照射により誘起されたものと思われる。

一方A-1材では600°Cではボイド密度は低くなり、図7に見られる様に主として低密度の転位の近傍に観察された。またここでは大きなボイドの他、マトリクスに微小なキャビティが見られるいわゆる bi-modal 分布になっている事がわかった。これはマトリクス中にガス状の不純物が存在している事を示している。

以上まとめると600°CにおいてA-2 (Ti 添加材) のみボイドが見られなかった理由として以下が考えられる。

- (1) Ti の析出物が転位近傍に形成し、転位のボイド形成への役割 (パイアス効果) を阻害する。
- (2) Ti の析出物が不純物ガスを吸着し、マトリクスにおけるボイドの核形成を難しくする。

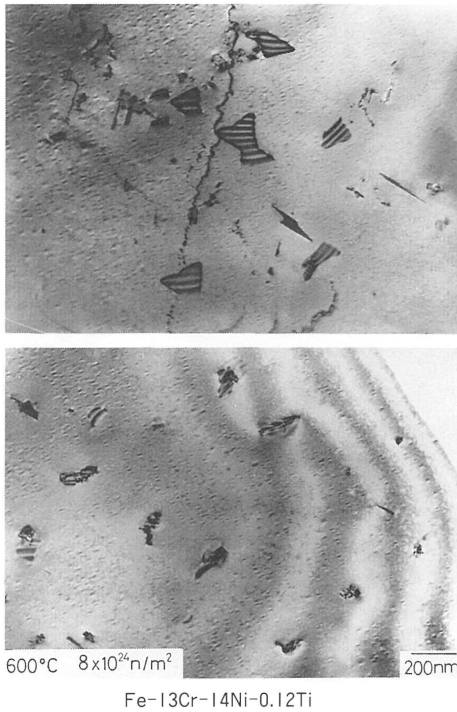


図6 600°CにおけるTi添加材の照射組織

なお、Ti析出物の実体についてはまだ不明であり、今後の検討が必要である。特に後述の損傷導入速度との関連も考慮し検討する必要がある。

4. 純ニッケルのボイド形成と核分裂-核融合中性子照射相關

4.1 緒言

高速炉を用いた核融合炉材料の照射研究においては、得られた高速炉照射データを核融合炉条件での材料挙動の評価に結び付ける点に問が山積している。ここにおいては、高速炉照射の特徴と問題点、核融合環境との違いの材料挙動へ与える効果を充分理解する必要があり、安易なデータ補間、外挿等による予測はむしろ危険である。

一方核融合中性子による照射研究はRTNS-IIを用いて近年活発に行われているが、照射量が極めて少ないため重照射環境での材料挙動に関するデータの抽出という意味では極く限られた内容にとどまっている。しかし、最近の高温長期照射により損傷の蓄積過程がある程度見定められる様になり、「常陽」の照射量にほぼ近い総損傷量のデータが得られる様になってきた。

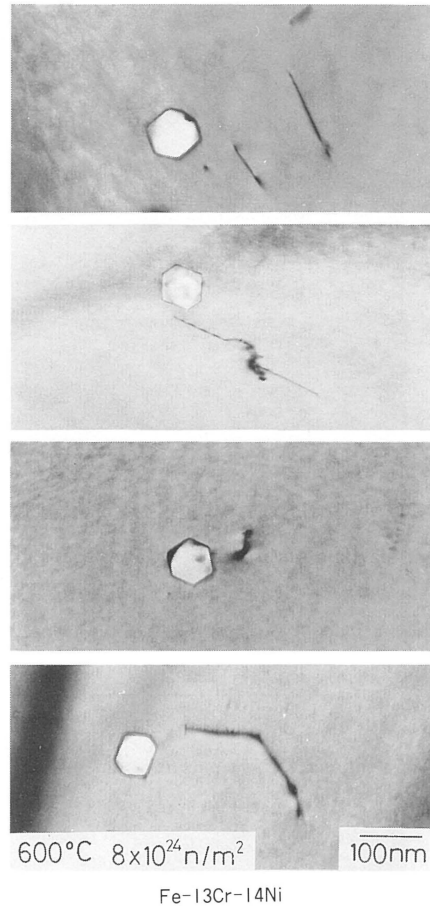


図7 Fe-Cr-Ni合金の600°Cにおける低密度ボイドと転位の関係

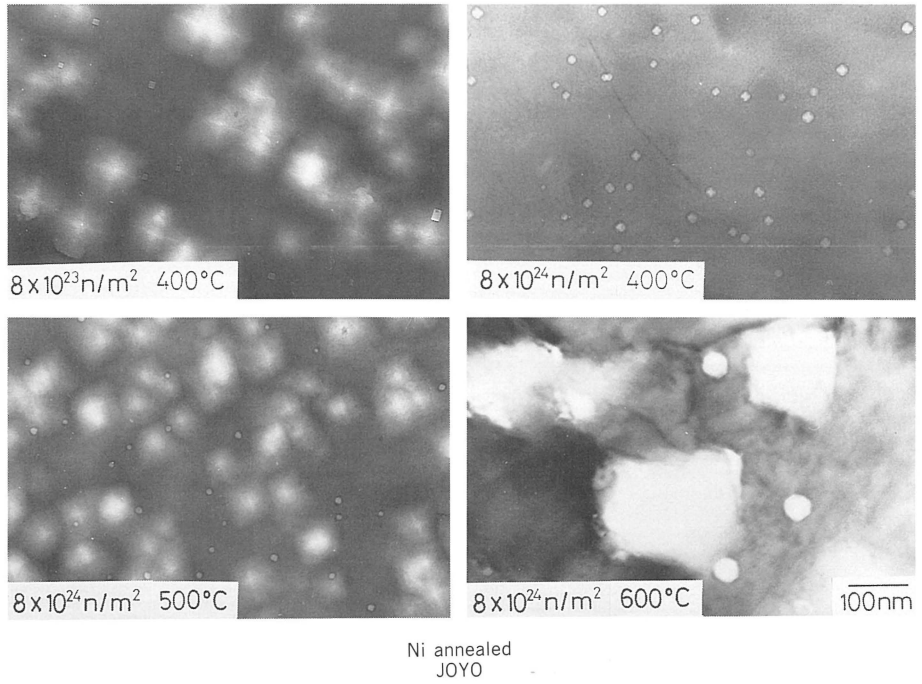


図8 Ni 焼鈍材の「常陽」照射で形成したボイド

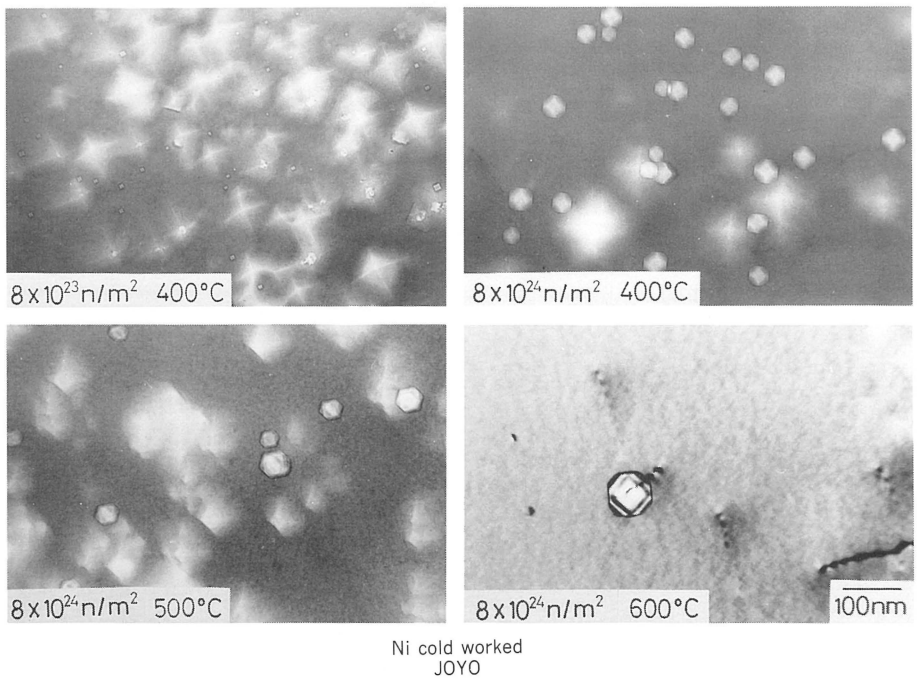


図9 Ni 4%冷間加工材の「常陽」照射で形成したボイド

ここにおいて、目標とする損傷量よりかなり少ない範囲ではあるが、高速炉と核融合中性子の損傷を比較し、その本質的な差、考慮すべきパラメータを把握しておく事が必要と思われる。特に当面の間、装置の制約により核融合中性子による重照射実験は不可能であり高速炉を中心に既存の照射施設を活用する以外ないので、それらの活用法、今後の装置開発方向に指針を与える研究を現在進めなければならない。

本研究ではこのような背景で「常陽」と RTNS-II による照射組織の比較を行い、その差の原因を明らかにする事により今後の照射研究の方向づけを行う事を目的とする。試料に関してははじめに述べた様に、スエリング等重照射での問題に関し限られた照射量の実験から基礎機構まで掘り下げた検討を行いたい。ため、欠陥集合体の特性がよく知られしかも低照射量で既に顕著な組織変化を示す純ニッケルが選ばれた。

4.2 実験方法

Johnson-Matthey 社製 99.99%ニッケルを 900°C 2 時間焼鈍した試料及び圧延により 4%加工した試料を用いた。「常陽」における照射条件は、Fe-Cr-Ni 合金の場合と同じである。RTNS-II における照射は 450°C、最大フルエンス $5.4 \times 10^{22} \text{ n/m}^2$ である。また既報の 475°C、550°C の照射データ⁸⁾も比較検討のため利用した。

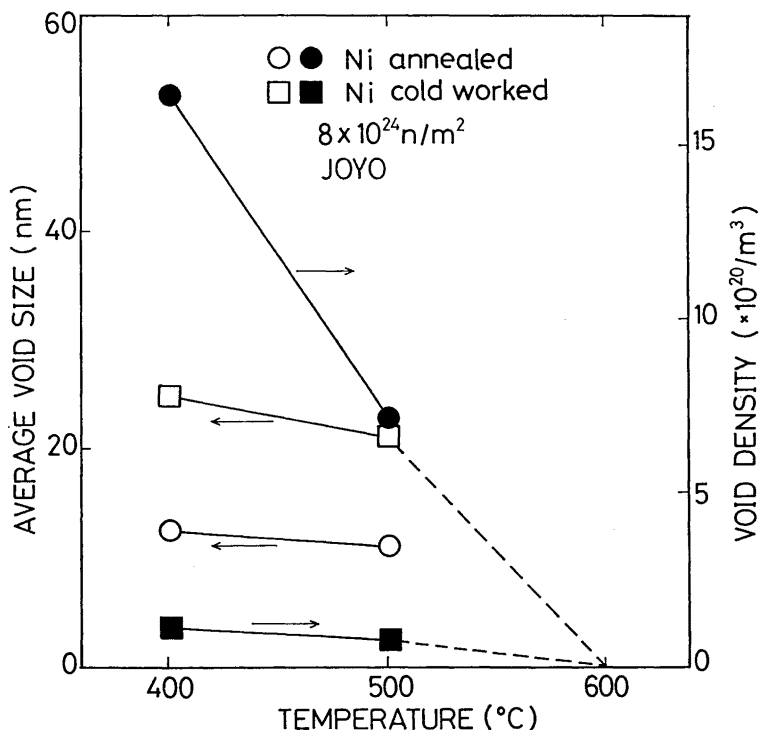


図10 ボイドサイズ、密度の照射温度依存性

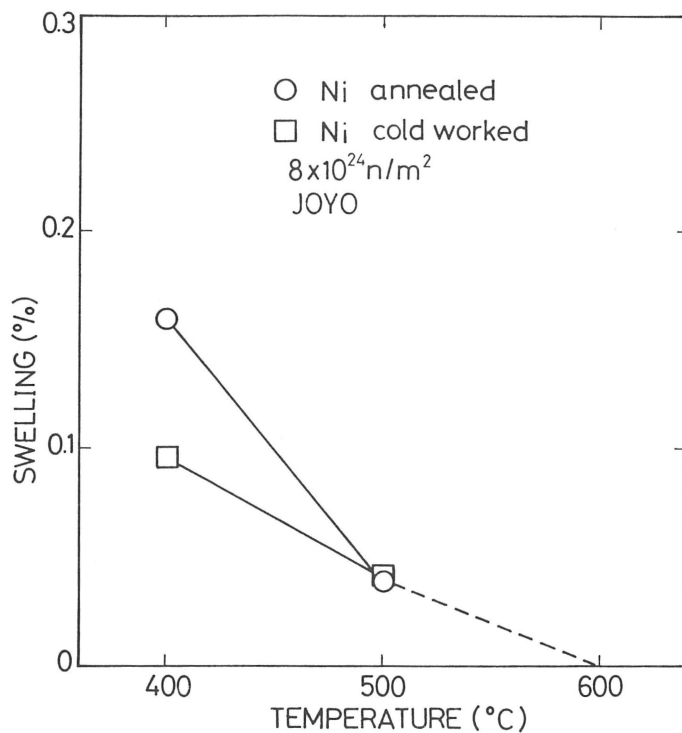


図11 スエリングの照射温度依存性

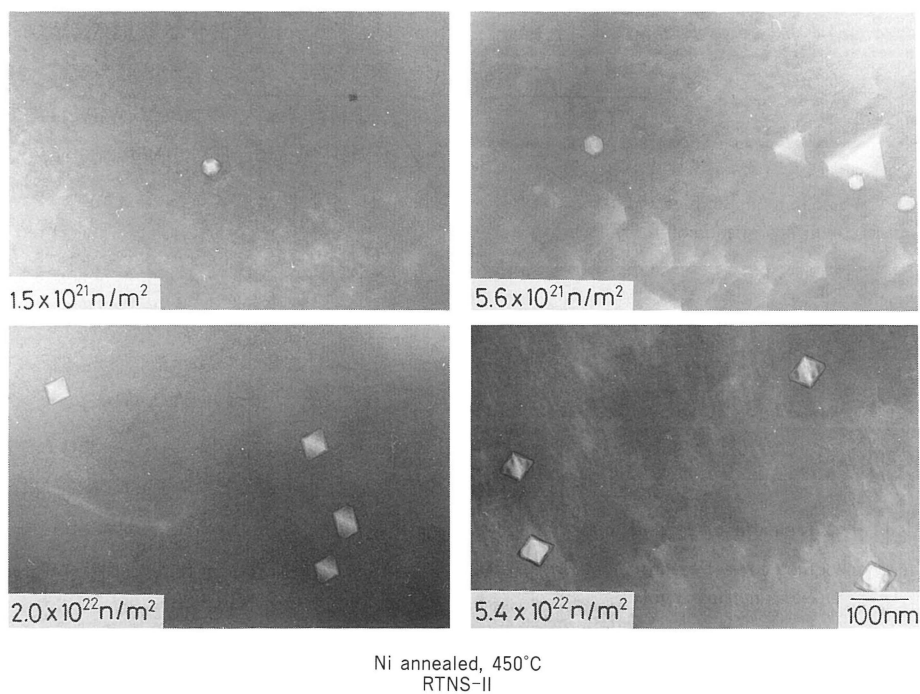


図12 Ni 焼鈍材の RTNS-II 450°C 照射によるポイド

4.3 実験結果と考察

4.3.1 「常陽」の照射によるボイド形成

図8，図9はそれぞれ焼鈍材，4%冷間加工材における「常陽」照射で形成したボイドを示す。どちらも全ての場合にボイドが観察された。ただし600°Cにおいてはボイド密度は極めて低く，スエリングはほとんど0に近い。図10，11は 8×10^{24} n/m²におけるボイドサイズ，密度及びスエリングの温度依存性を示す。400°Cにおいては冷間加工によりスエリングがやや減少し，それは密度の減少によるものである事がわかる。冷間加工材の方がボイドサイズはむしろ大きくなっている。ボイドと転位の密接な関係は600°Cを除いてほとんど見られなかった。

4.3.2 RTNS-IIの照射によるボイド形成と「常陽」照射データとの相関

図12はRTNS-II，450°Cの照射による焼鈍材のボイドを示す。図より照射量が増えるにつれサイズ，密度とも上昇する様子がわかる。図13はこれらと以前に報告した475，550°Cの結果，及び前述の「常陽」

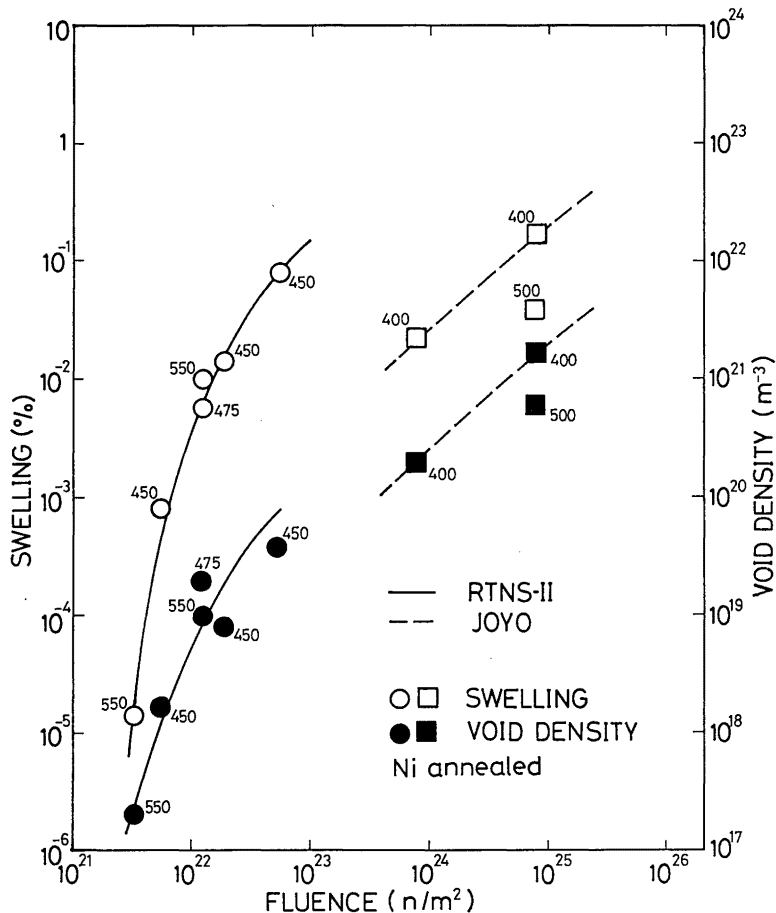


図13 中性子フルエンスをパラメータとした「常陽」，RTNS-II照射によるスエリング，ボイド密度の比較（図中の数字は照射温度）

の結果（スエリング，ボイド密度）を中性子フルエンスをパラメータにプロットしたものである．図より，「常陽」と RTNS-II のデータは全く一致しない事がわかる．図 14 は同じデータを dpa をパラメータにプロットしたもので，ボイド密度はかなり近いが，スエリングは RTNS-II の方がはるかに大きくなっている．

常陽と RTNS-II の照射環境の違いとして

- (a) 中性子エネルギースペクトルの違いによる PKA スペクトルの差
- (b) 核変換生成物の差
- (c) 損傷導入速度の差

が考えられる．(a) としてはカスケード損傷による直接的なボイド核生成，(b) としては He によるボイド核の安定化等が考えられるが，図 14 からわかる様にボイドの密度自身はあまり差がなく，むしろ成長経過の差と思われる．図 15 はボイドサイズの照射量依存性を示す．照射量の増加とボイドサイズは全く対応していない．ここで上記 (c) の可能性について考えると，それぞれのデータは別々の損傷導入

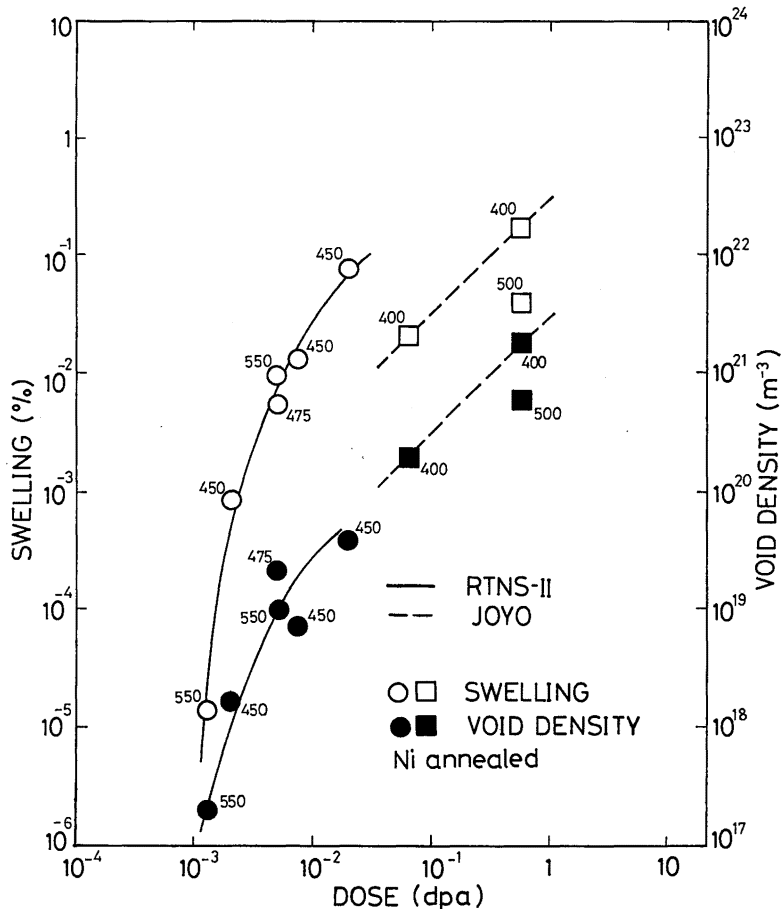


図14 図13と同じデータを dpa をパラメータとして比較した場合

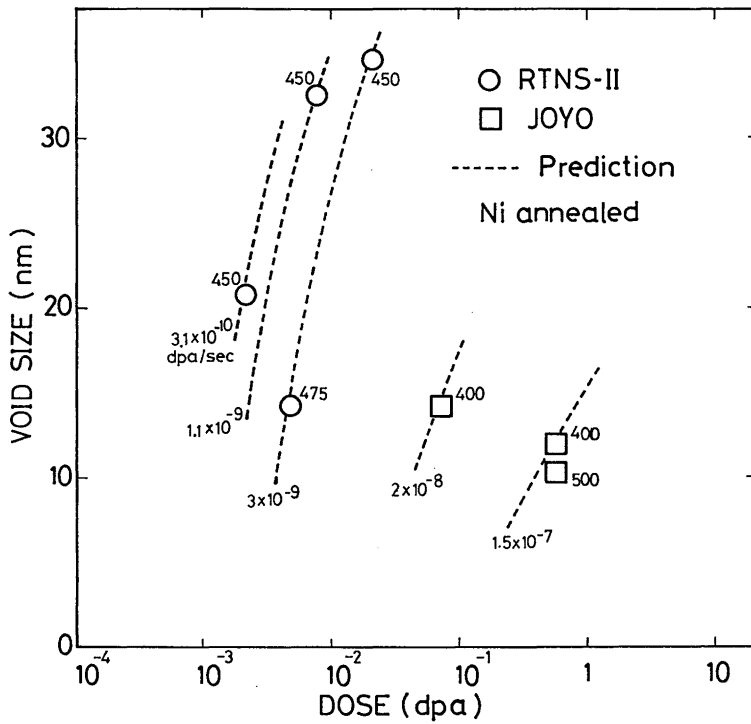


図15 ボイドサイズの照射量 (dpa) 依存性

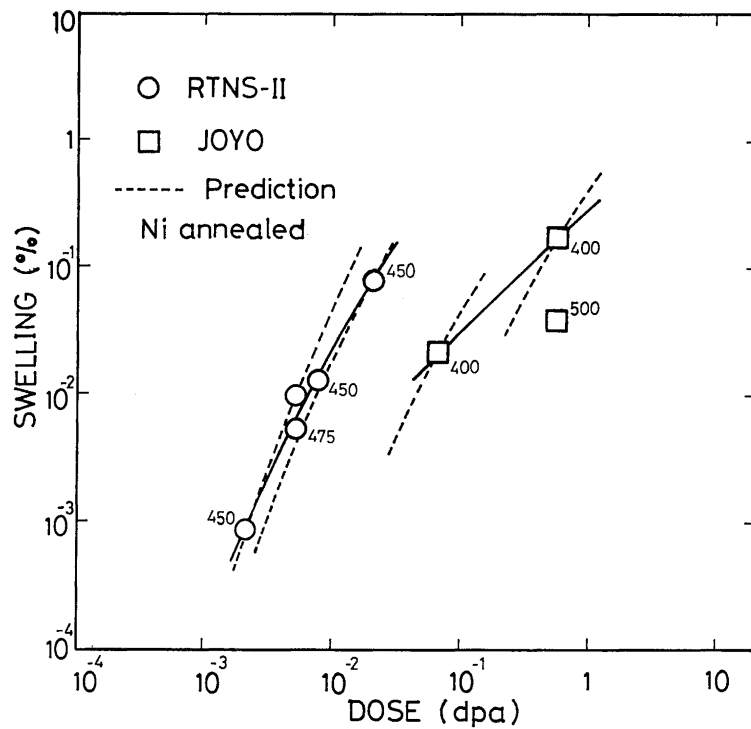


図16 スエリングデータの損傷導入速度依存性の予測

速度であり、その速度固有の成長過程があるという可能性がある。図 15 中の破線は、その場合の各損傷導入速度における成長の予想曲線を描いたものである。この様に考えると図 15 の一見異常な照射量依存性も理解できる。またこの様な仮定をスエリングにも取り入れ図 14 に書き加えると、図 16 の様になる。この様に損傷導入速度によってスエリングの立ち上りが遅れる事は高速炉燃料ピンのスエリングについて報告されている⁹⁾がデータのばらつきが大きく、定常スエリング速度への影響、組織との対応については明らかでない。

損傷導入速度が高い場合は、ボイドの核生成は欠陥の過飽和度が大きくなるため促進され、成長は欠陥の再結合の割合が高いため単位 dpa 当たりでは抑制される事が簡単な計算で定性的には得られる。しかし現実には様々な要素が含まれる。例えば図 17 は「常陽」、RTNS-II の転位密度の照射量依存性を示す。RTNS-II の場合 400°C 以上では転位密度は極めて低い（この値はほぼ焼鈍で残された量程度であり、照射によって形成したものはほとんどないものと思われる）。この様に損傷導入速度により転位ループの形成成長すなわち欠陥のシンク、バイアスの効果が異なってくる事も考慮に入れる必要がある。

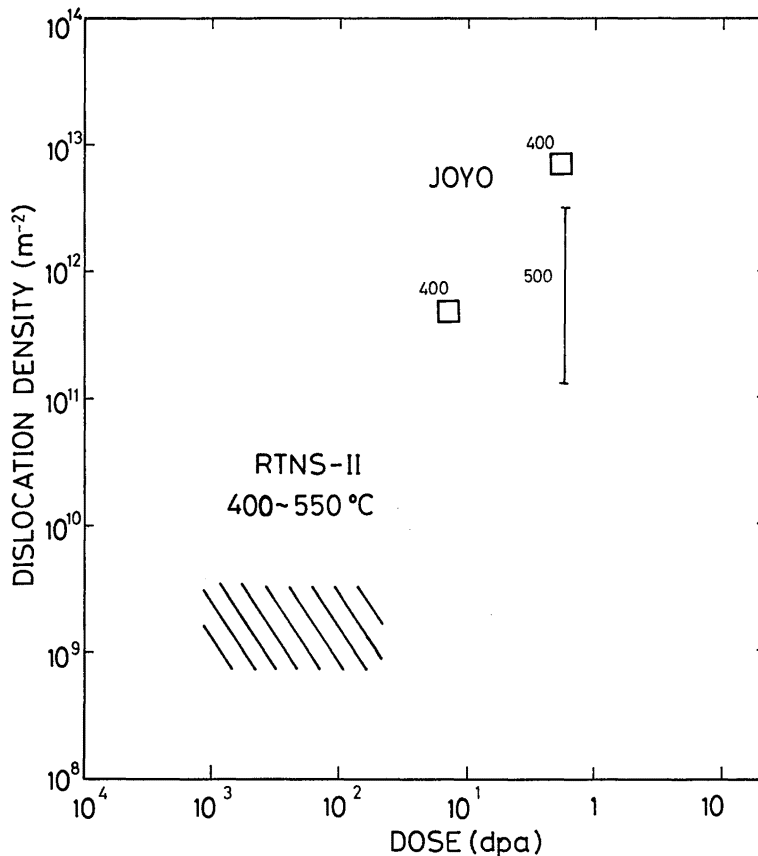


図17 「常陽」、RTNS-II照射された Ni 焼鈍材の転位密度の変化

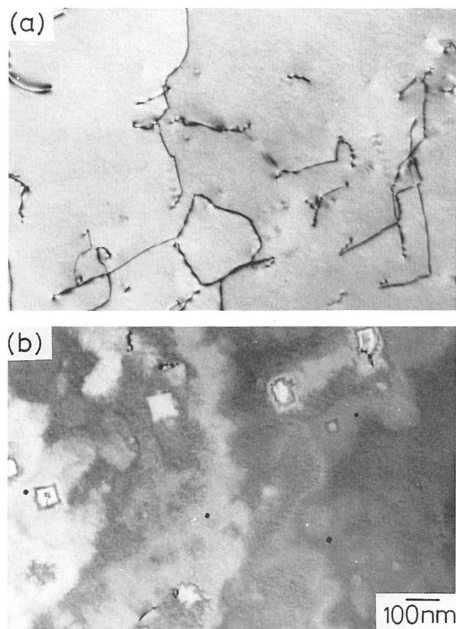


図18 4%冷間加工材のRTNS-II照射組織
(450°C, 5.4×10^{22} n/m²)
(a) 典型的な組織
(b) 転位が局所的に少ない場所

4.3.3 冷間加工の効果

「常陽」の照射においては、冷間加工はボイド密度を下げサイズを大きくする事により結果的にスエリングはやや抑える程度の効果であった。しかしRTNS-II照射では図18で見られる様に大きな効果が得られた。図18(a)は典型的な組織を示す。加工によって導入された転位が多数残りボイドは観察されない。図18(b)は局所的に転位が少なくなった部分(照射前から存在したか、照射中の回復でできたかは不明)のみに形成したボイド(黒い像)を示す。これらからRTNS-II照射条件では4%冷間加工は転位が多すぎるためボイドが形成できない事がわかる。一方我々の既報の実験⁸⁾ではHVEM照射条件(損傷導入速度が「常陽」より $10^3 \sim 10^4$ 高い)では4%冷間加工材では転位密集領域に優先的にボイドが形成した。この様に冷間加工の効果も照射条件によって変化あるいは逆転する場合があります、それらも損傷導入速度の差によって説明できる。

5. ま と め

本研究では、高速炉中性子照射と核融合中性子照射組織を明確に関連づける相關パラメータを導出するには至らなかった。この理由として、パラメータを制御した実験、という目でみると中性子照射に関しては未だデータが乏しい事があげられる。本研究で損傷導入速度の重要性が示されたが、原子炉照射に比べはるかに制御された実験を行ってきたRTNS-II照射においても、照射量と損傷導入速度の両パラメータが分離されていない。

この段階においてまず従来のデータを新しい立場から見直す必要があると思われる。例えばオーステナイト鋼や純ニッケルではスエリングはある潜伏期の後1dpa当たり1%の割合でスエリングが増加するという主張⁶⁾がだんだん受け入れられる様になっている。しかし本実験結果では常陽(照射のニッケル、Fe-Cr-Ni合金)ではこれにある程度近い値となっているが、RTNS-II(照射のニッケル焼鈍材)ではこの割合をはるかに越えたスエリングを示している。従って1dpa当たり1%という主張は高速炉条件程度の損傷導入速度でのみ成立するものと考えられる。

以上の事から、今後の中性子照射実験においては重照射領域の実験を目指す一方、損傷速度に代表される基本的なパラメータを制御した実験を行い重照射データの解釈のための知見を得る必要がある事がわかる。核分裂-核融合中性子照射相關で求めるべきPKAスペクトルの差の効果、核変換の効果の解明

はこれらのデータ蓄積の上で初めて可能になると言えよう。

謝 辞

「常陽」を利用した照射実験で御協力並びにお世話を頂きました動力炉・核燃料開発事業団、東北大学 諸住正太郎先生、RTNS-II照射実験で御尽力頂きました LLNL, 名古屋大学 桐谷道雄先生はじめ各位に深く感謝致します。また「常陽」, RTNS-IIの照射後実験で絶大な御協力御配慮を頂きました東北大金研大洗施設各位に深くお礼申し上げます。また out-of-pile 加熱実験では東大 河西寛氏の御協力を頂きました事を感謝致します。

なお本研究遂行にあたっては文部省科学研究費総合 A (代表, 諸住教授)並びにエネルギー特別研究(核融合) (代表, 桐谷教授) の補助を頂きました事を付記し感謝致します。

参 考 文 献

- 1) 室賀健夫, 江口雅直, 吉田直亮, 佃 昇, 北島一徳, 九州大学応用力学研究所所報第 63 号(昭和 62 年) 245.
- 2) T. Muroga, M. Eguchi, N. Yoshida, N. Tsukuda and K. Kitajima, J. Nucl. Mater. 141-143 (1986) 865.
- 3) 小山真弘, 吉見宏孝, 松野義明, 日本金属学会会報, Vol. 24 (1985) 661.
- 4) 松沢孝男, 鳴井 実, 茅野秀夫, 諸住正太郎, 昭和 61 年度科学研究費補助金(総合 A, 代表 諸住正太郎) 成果報告書(昭和 62 年 3 月) 46.
- 5) 昭和 60 年度科学研究費補助金エネルギー特別研究(核融合)(代表 桐谷道雄) 成果報告書(昭和 61 年 3 月)
- 6) F. A. Garner, J. Nucl. Mater. 122 & 123 (1984) 459.
- 7) A. Kumar and F. A. Garner, J. Nucl. Mater. 117 (1983) 234.
- 8) 吉田直亮, 室賀健夫, 荒木邦明, 宮本好雄, 渡辺英雄, 東北大学金属材料研究所附属材料試験炉利用施設共同利用研究経過報告書, (昭和 61 年 9 月) 199.
- 9) J. L. Seran and J. M. Dupouy, ASTM STP 782 (1982) 5.
(昭和 62 年 5 月 30 日 受理)