

2015/10/22 量子放射線の世界

核融合炉材料開発の現状 ～ 照射欠陥と材料物性

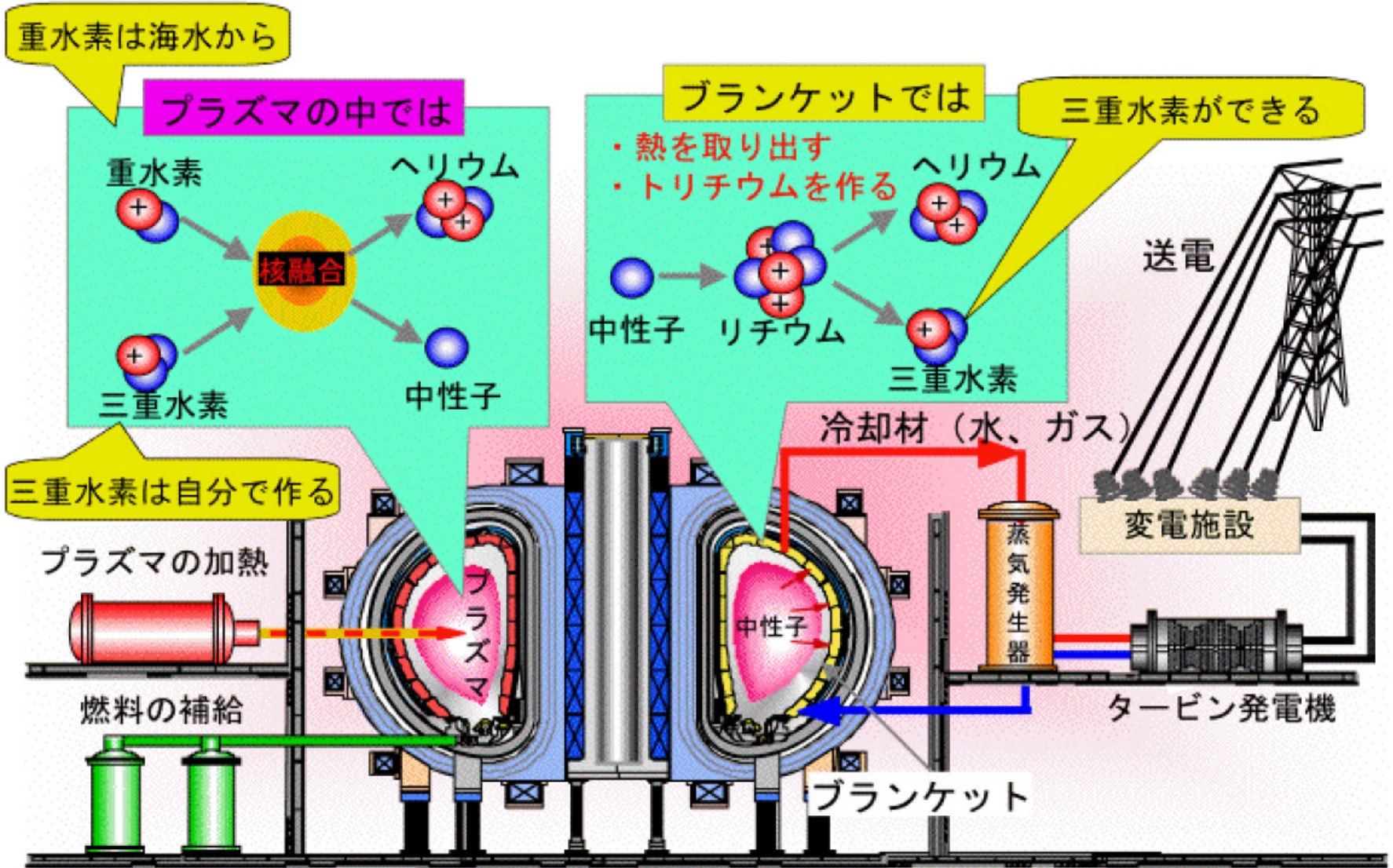
大阪府立大学 地域連携研究機構 放射線研究センター
准教授

秋吉 優史

核融合炉ダイバータ材とは

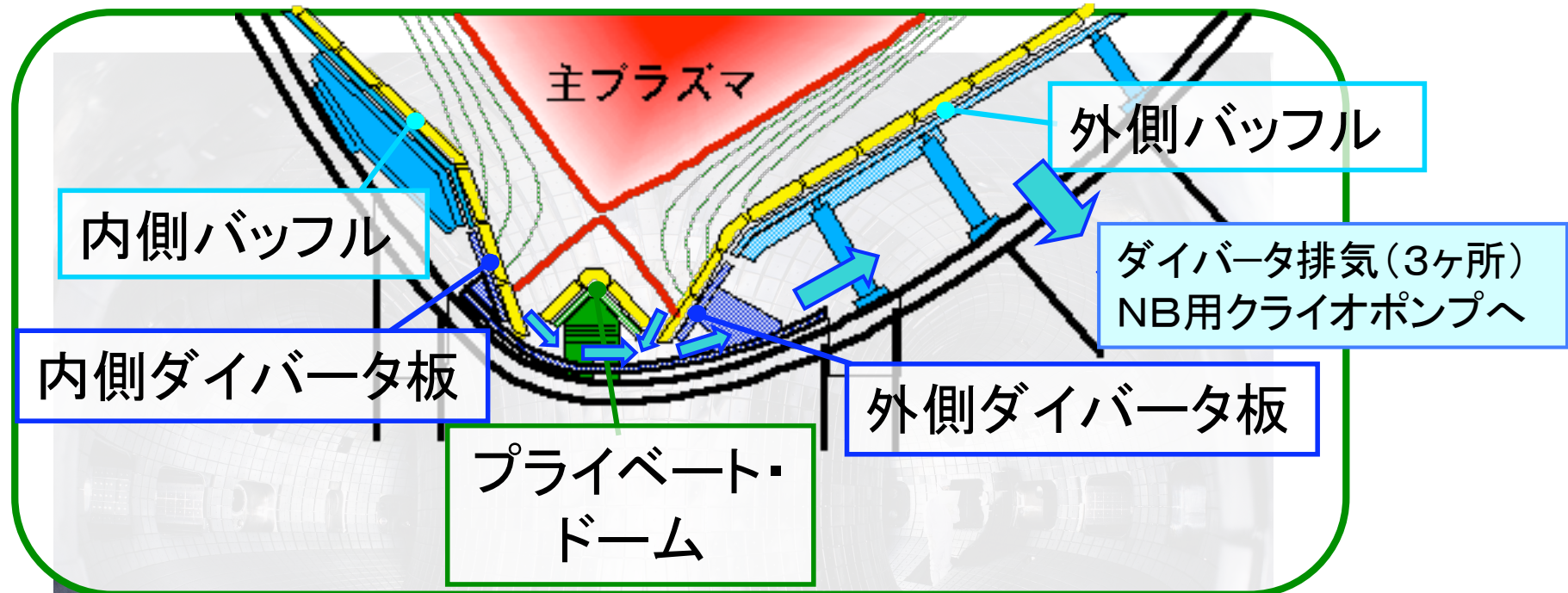
核融合炉の構成

原子力機構の資料より



セミクローズ型ダイバータの構造

— JT-60U 排気付きW型ダイバータ —



主プラズマから放出される熱やプラズマ粒子から真空容器を保護することがダイバータの役割

熱流を下げるだけでなく、放出された水素ガスやエネルギーを失った α 粒子（ヘリウム灰）を常時排気することが大きな役割

ダイバータへの熱流束

□ ITERやDEMO炉でのダイバータへの熱流束

- 固体材料ダイバータでは、 $\sim 10 \text{ MW/m}^2$ が限界と考えられる
- ITER以上のトカマク装置では、放射冷却が必須
- DEMO炉では、ダイバータ板を傾斜させて熱流束を減ずることも必要

	核融合出力	α 粒子加熱	外部加熱入力	SOL領域への熱入力 A	ダイバータ板のピーク熱流束P*	放射冷却によるPの目標値
JT-60U	~ 0	~ 0	20 MW	15 MW	$\sim 10 \text{ MW/m}^2$	
ITER	500 MW	100 MW	75 MW	105 MW	$\sim 40 \text{ MW/m}^2$	5-10 MW/m ²
DEMO	2,300 MW	460 MW	60 MW	390 MW	$\sim 150 \text{ MW/m}^2$	$< 10 \text{ MW/m}^2$

DEMOとITERでは、 P/A が同じと仮定

* SOLへの熱入力がすべてダイバータ板へ入った場合の熱流束

ダイバータ・第一壁の負荷条件 (ITER)

□ ダイバータ熱・粒子負荷条件 (ITER)

- 熱負荷 ($\leq 10 \text{ MW/m}^2$ (定常)、 $\sim 20 \text{ MW/m}^2$ (過渡的))
 - 十分なエッジプラズマ冷却を行うことが前提
- 粒子負荷
 - 粒子束: $\leq 10^{24} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、エネルギー: 数eV \sim 数10eV
 - (定常炉に外挿: フループ(1年): $\sim 10^{31}\text{m}^{-2}$) (きわめて大きい)

□ 第一壁熱・粒子負荷条件 (ITER)

- 熱負荷 ($\sim 0.5 \text{ MW/m}^2$ [$\sim 1 \text{ MW/m}^2$]) (輻射)
- 粒子負荷
 - 粒子束: 10^{19} - $10^{20} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、数100eV) (高速中性粒子)
 - 粒子束: $\sim 10^{18} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、数10eV \sim 数100eV) (イオン)
 - (定常炉に外挿: フループ(1年): $\sim 10^{28} \text{ m}^{-2}$)

イオン入射による損耗

□ 物理スパッタリング

■ 入射イオンによるはじき出し過程、温度依存性なし

→ すべての材料

□ 化学スパッタリング

■ 水素同位体や酸素イオンが炭素材に入射し、炭化水素や一酸化炭素等の揮発性化合物となって、損耗を促進する現象

■ 同様の現象は、Siのエッチング(フッ素、塩素等)でも見られる。

→ 壁材料と入射イオン種の組み合わせによる

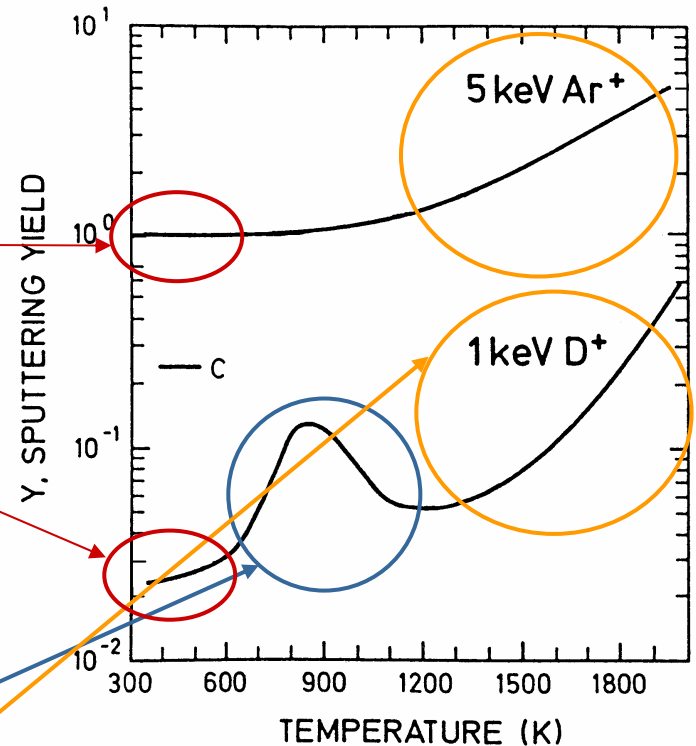
核融合炉では、炭素材が対象

□ 照射促進(誘起)昇華

■ Radiation Enhanced Sublimation

■ イオンが炭素材に入射し、通常の熱昇華温度よりも低い温度で昇華が始まる現象

→ 炭素材(液体金属?)



炭素材の損耗率の温度依存性

壁材料選択の視点

- 高性能炉心プラズマとの共存性
 - 不純物のコアプラズマへの蓄積
 - スパッタリング原子、ダスト
- 壁材料の健全性確保
 - スパッタリング損耗
 - 脆化・劣化→亀裂・破壊・ダスト生成
- 安全性
 - 炉内トリチウム吸蔵量
 - 壁材料の誘導放射能
 - ダスト発生
 - 大気侵入時に爆発(炭素ダスト)、放射性物質の飛散
- 炉内機器の成立性
 - TBR(トリチウム増殖率)への影響
 - 冷却材への透過トリチウムの処理

セラミック材料

高強度

低放射化

核的安定性

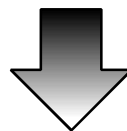
耐腐食性

化学的安定性

寸法安定性

Low Z

高温安定性



過酷な放射線環境下での利用

Application

核融合炉
ダイバータ材料

MA, LLFP 核変換処理
に用いる不活性母材

宇宙環境構造材料

原子炉構造材料

燃料粒子被覆材料

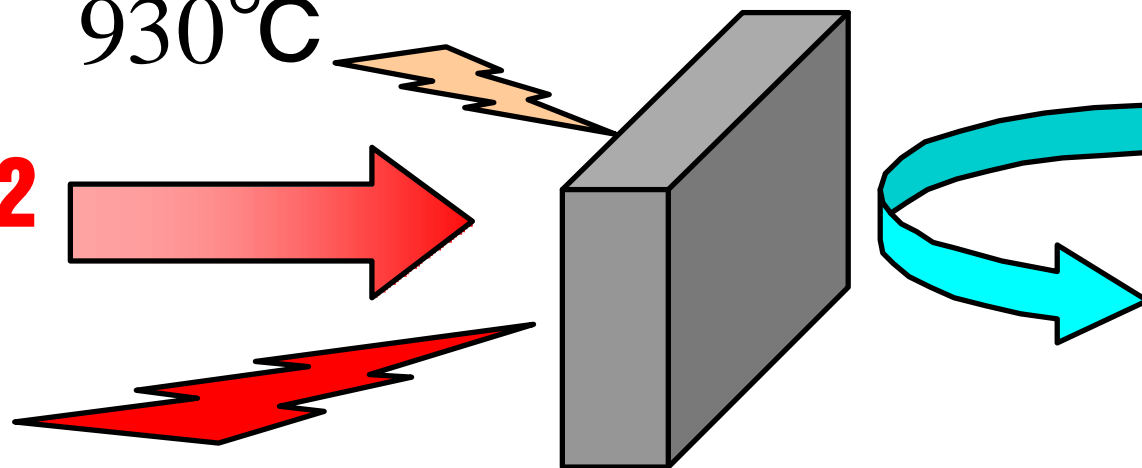
中性子照射に伴うセラミックスの熱拡散率低下

核融合炉ダイバータ材料

Unirradiated SiC: $230 \text{ W/m}\cdot\text{K}$

930°C

10 MW/m^2



He Gas Cooling
 500°C

1cm

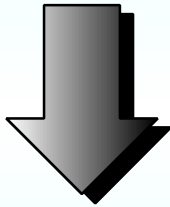
$\sim 15000^\circ\text{C}$

Neutron
Irradiated SiC:
 $7 \text{ W/m}\cdot\text{K}$

照射欠陥とその評価

中性子照射による材料への影響

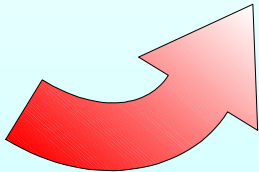
Neutron Irradiation



微構造変化

照射欠陥構造

点欠陥(格子間原子, 空孔)
クラスター, 転位ループ,
積層欠陥, ボイド,
バブル, 粒界クラック



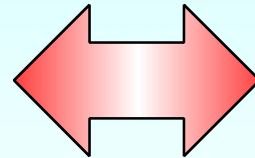
巨視的物性変化

- ・ スエリング
- ・ 熱伝導率
- ・ 機械的強度
- ・ 絶縁性
- ・ 耐酸化性
- etc . . .

発現

材料の様々な角度からの評価

材料物性



微構造

材料がどのような微構造から成り立っているか
を知ることは極めて重要

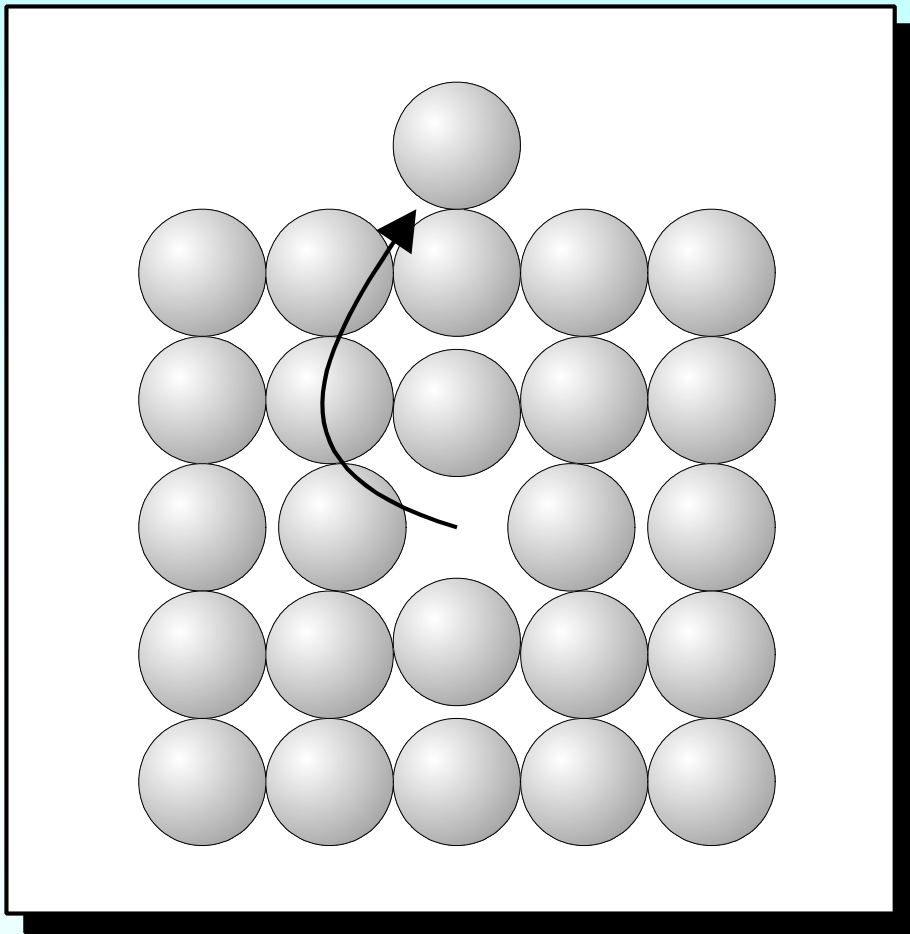
肉眼で見ることができるとような
不均一性を持つ材料

光学顕微鏡で特徴的な構造を
観察できる材料

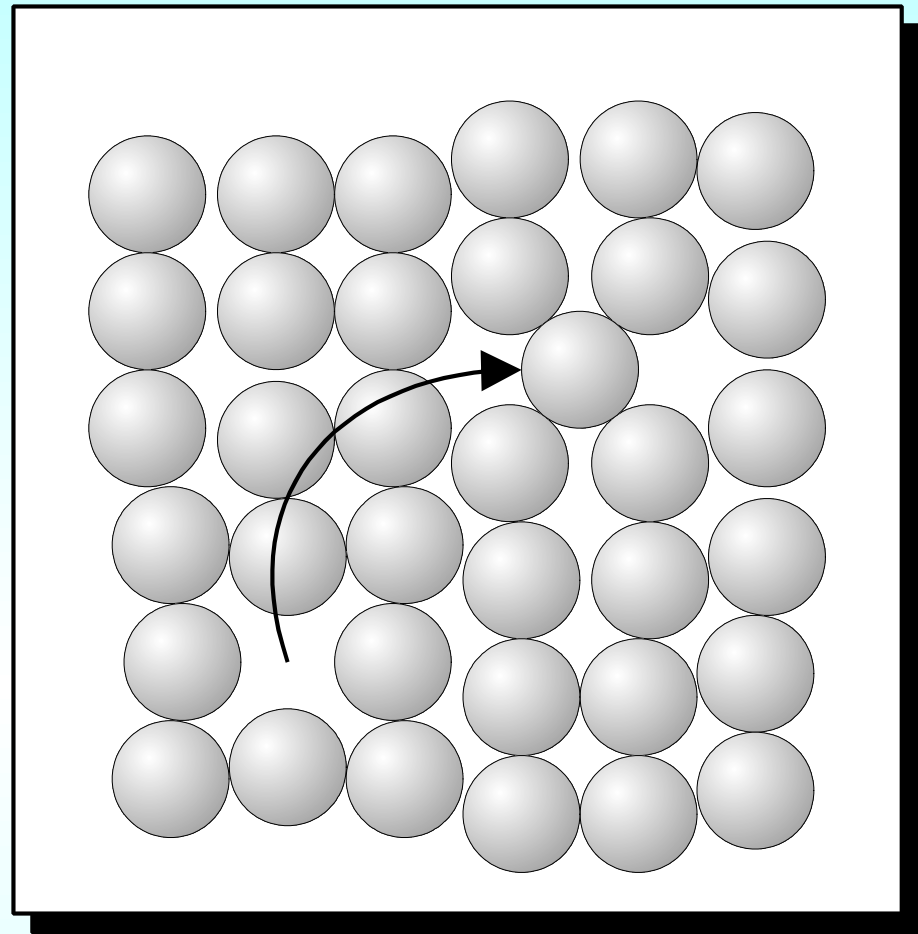
原子レベルの像を観察できる電子顕微鏡
で微構造の乱れを検出できる材料

顕微鏡では観察できない点欠陥

構造の空間的スケールは様々であり、それぞれのスケールの
構造によって発現する物性もまた異なる



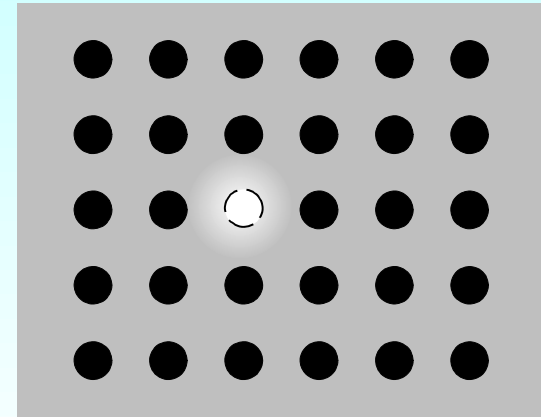
フレンケル欠陥



ショットキー欠陥

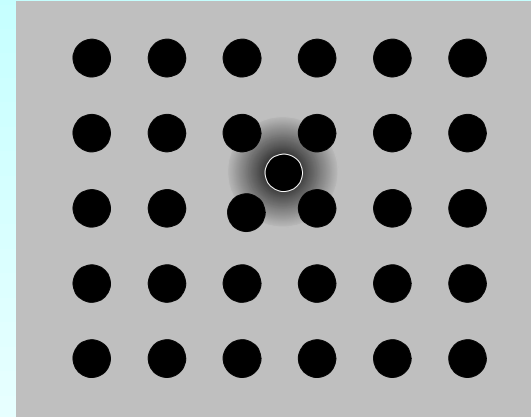
主な登場キャラクター

空孔 Vacancy



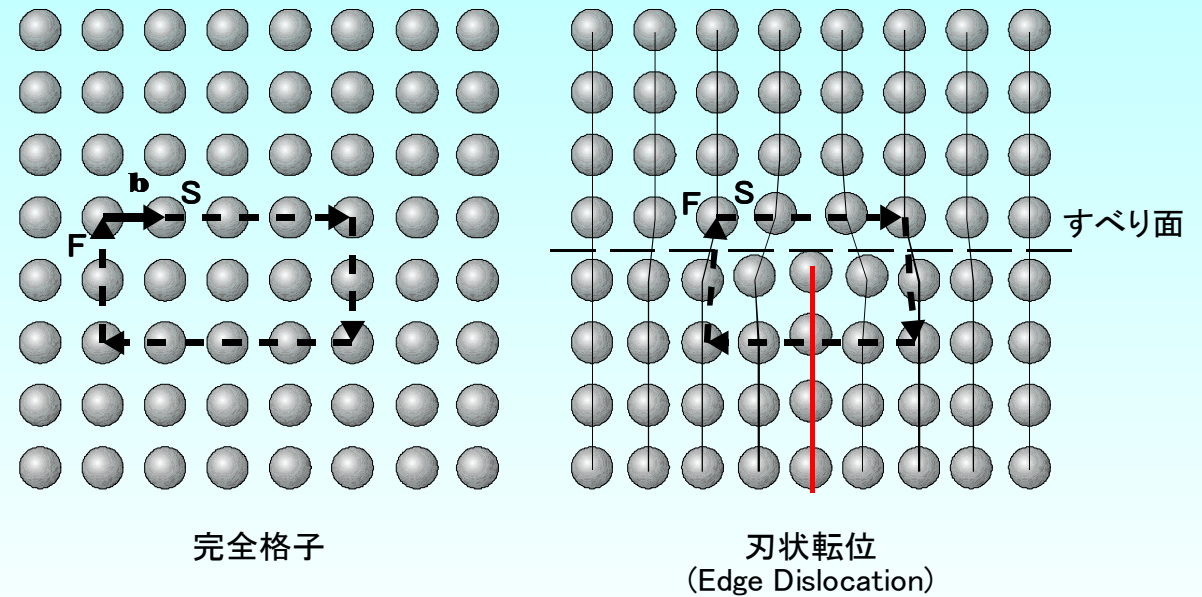
- ・最も基本的な格子欠陥の一つ。結晶格子を構成する原子がはじき飛ばされてあるべき格子点に原子がない状態となった欠陥。
- ・空孔そのものは基本的に結晶格子間隔を縮小する(縮める)方向に作用する。ただし、イオン結晶に於いては静電的反発力により、逆に膨らむ方向に作用する。
- ・空孔は高温にならないと余り移動しない。セラミックスに於いては概ね1000°C前後で動き始めると考えられている。
- ・原子レベルの像を捕らえることができる高分解能透過電子顕微鏡観察(HREM)でも、単一の空孔を観察することはできない。
- ・セラミックスはフォノンにより熱を伝達しており、空孔が導入されるとこのフォノンを散乱するため熱が伝わりにくくなる。

格子間原子 Interstitial atom



- ・空孔と共に最も基本的な格子欠陥の一つ。結晶格子を構成する原子の間に原子が入り込んだ欠陥。
- ・格子間原子は結晶格子間隔を拡大する。
- ・格子間原子は比較的低温でも移動する。セラミックスに於いては概ね400°C前後で動き始めると考えられている。
- ・空孔同様に高分解能透過電子顕微鏡観察(HREM)でも、単一の格子間原子を観察することはできない。
- ・空孔とは異なり、格子間原子は原子が密に充填した状態となるため、熱伝導に与える影響は空孔ほど大きくはないと考えられている。

転位 Dislocation

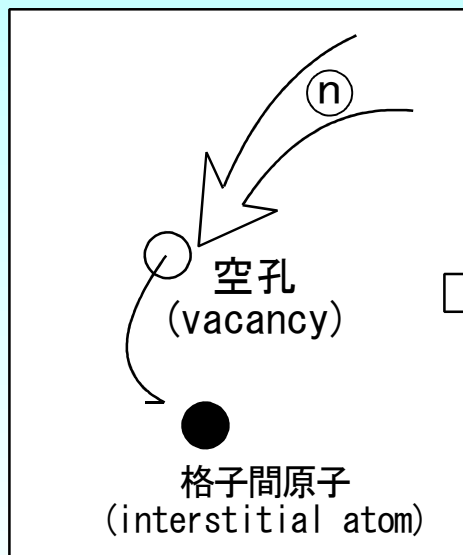


- ・格子面が一層余分に入ったり抜けたり、面内でずれたりする欠陥で、刃状転位とらせん転位、及びその混合転位がある。
- ・格子間型の刃状転位を例にとると、一層余分に入ったエッジの部分以外は歪みは緩和されており、完全格子となっている。このため、空孔・格子間原子が0次元の点欠陥であるとする、転位は一次元の線欠陥であると言える。
- ・格子間型の刃状転位は結晶格子間隔を拡大する。ただし、孤立した格子間原子が与える歪みの和よりも、集合欠陥である転位が与える歪みは小さい。
- ・金属では挿入された面に垂直な、すべり面上ですべり変形が起こり、マクロな変形の原因となるが、セラミックスではすべり変形は出来ず、単に欠陥のシンクとして働く。

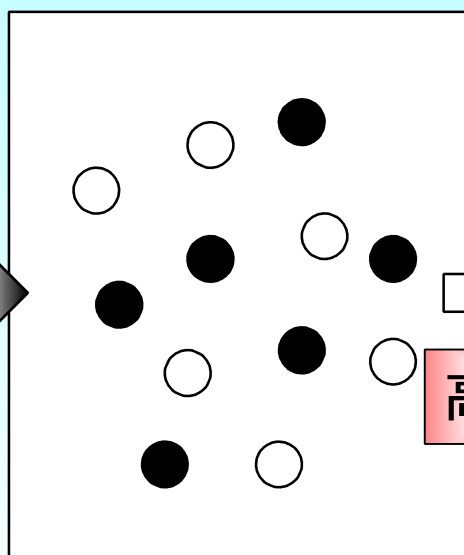
ボイド
Void

バブル
Bubble

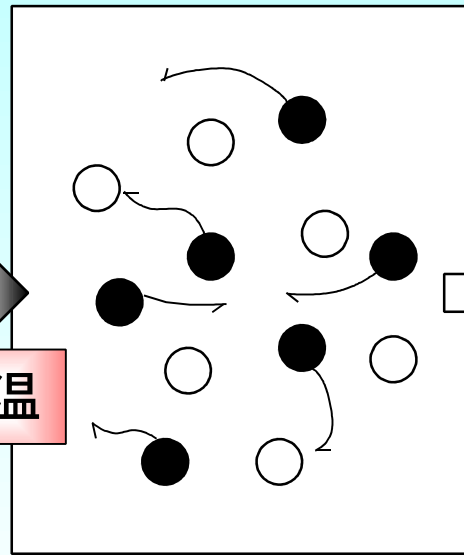
- ・空孔が3次的に集合して形成される欠陥がボイドであり、中には何も入っていない。
- ・それに対してヘリウムなどのガス原子が集まって出来た泡がバブルであり、中にガスが入っているかどうか分からない空隙はキャビティなどと呼ばれたりする。
- ・ボイドは弱い格子収縮効果があるが、個別の空孔が与える寄与の合計よりも小さい。格子間原子の寄与と差し引くと、プラスとなってしまう場合が多い。
- ・バブルはガス圧により弱い格子膨張作用がある。
- ・低温での照射直後には存在せず、アニールにより1000°C以上で生成する場合があるが、結晶中に残っていた空孔をかき集めただけなので量は少ない。1000°C以上の高温で照射した場合次々に生成する空孔のシンクとなるため、大量に生成する。



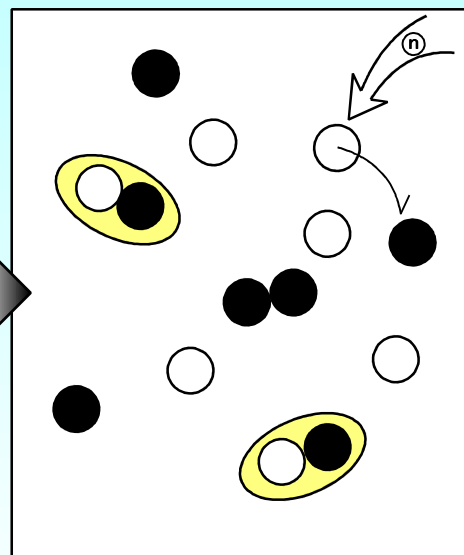
高速中性子による格子原子のはじき出し



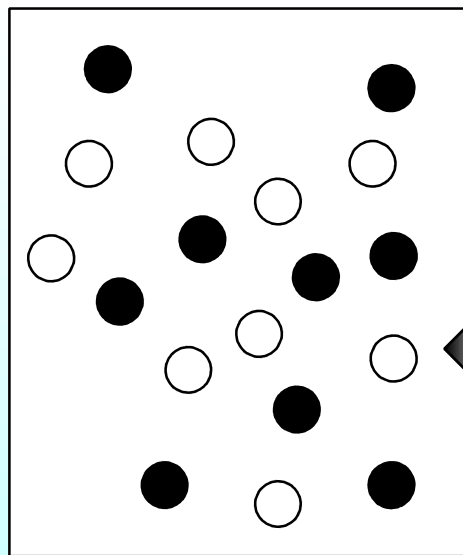
空孔-格子間原子対の蓄積



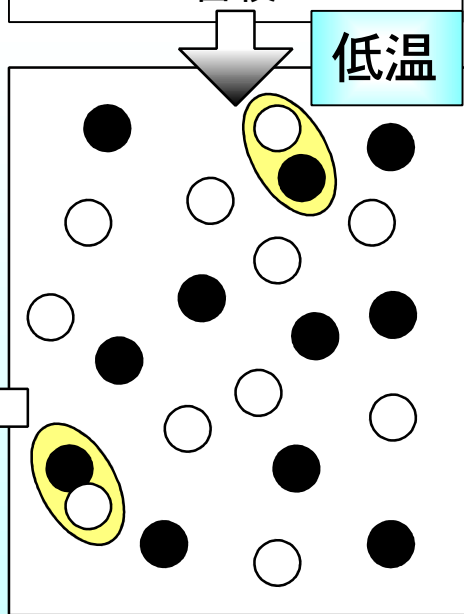
格子間原子の移動度が大きくなる



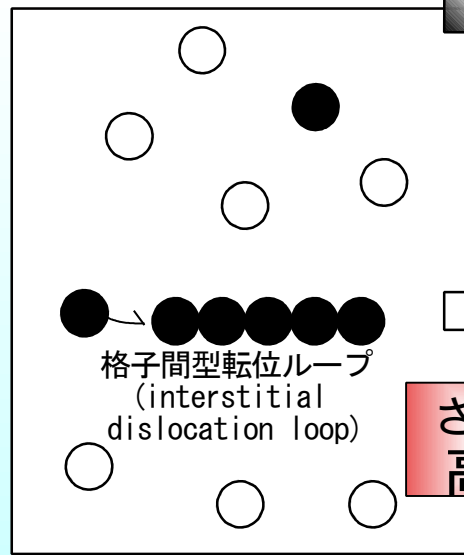
対消滅と対生成が次々と起こる一方、格子間原子同士の対が形成される



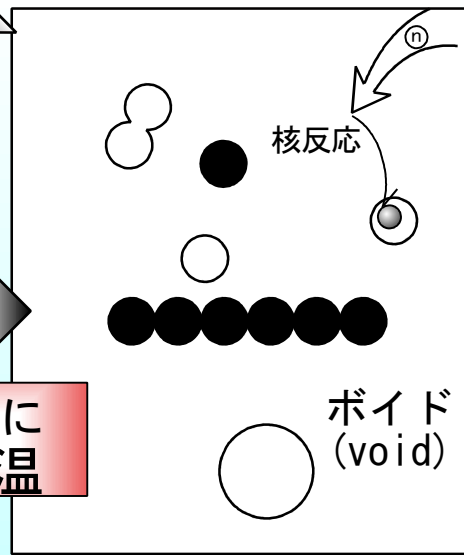
温度により決まる一定の点欠陥濃度で安定



再結合半径以内に生成した格子間原子-空孔の対消滅

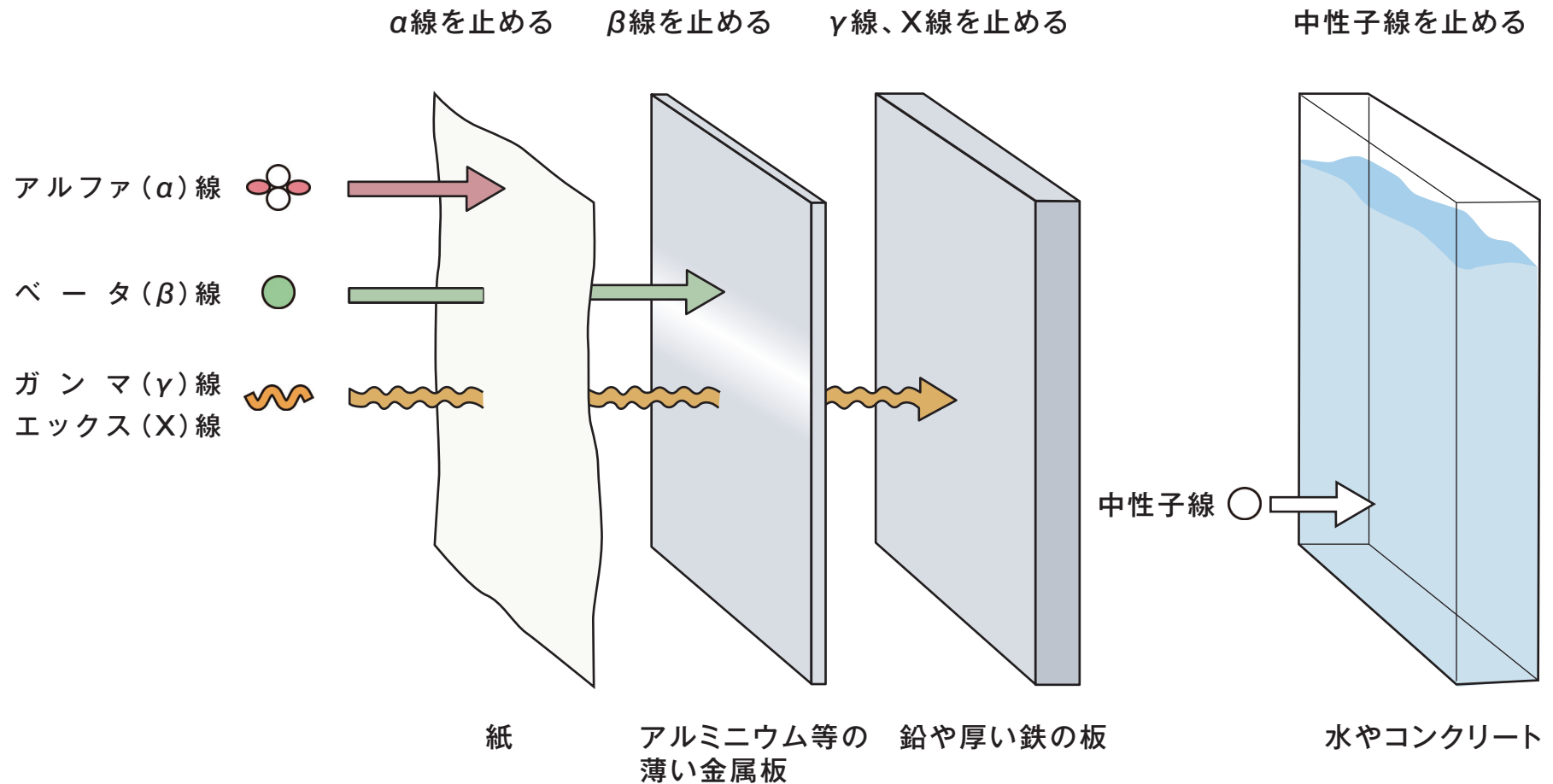


格子間原子対は移動せず次々と格子間原子を吸収して転位ループを形成する



空孔同士が集合し空孔対やボイドを形成する

放射線の種類と透過力



放射線と物質の相互作用

イオンビーム (α 線)

質量が電子に比べてはるかに重いため、電子との衝突によりほとんど曲げられず、少しずつエネルギーを失う。相互作用は電荷の二乗に比例、速度の二乗に反比例(エネルギーに反比例)し、ブラッグピークで急激にエネルギーを放出し、原子核の弾き出しを起こす。

電子線 (β 線)

物質中の電子との衝突によって、簡単に方向やエネルギーが変化するため、まっすぐに進まず、広い範囲に広がる。このため、平均的な飛程という物は求めにくく、最大飛程で評価される。重元素に入射すると、原子核周辺の強い電場で急激に曲げられることにより、制動放射X線の発生割合が大きくなる。

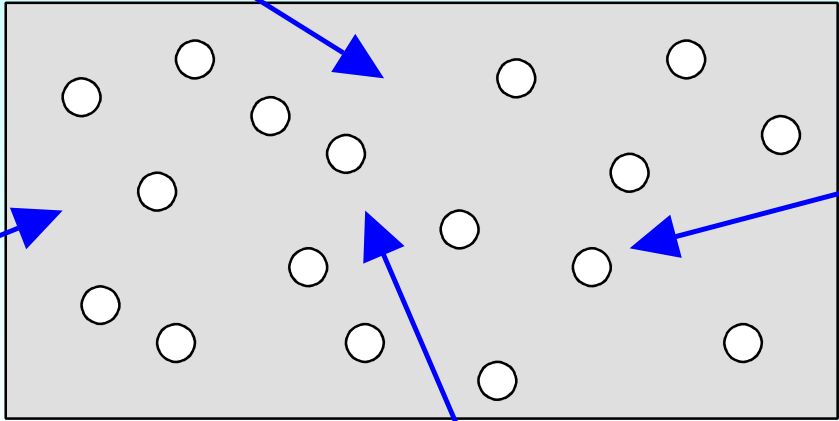
γ 線、X線

物質を進むにつれて指数関数的に強度が弱くなっていくが、その際の線減弱係数は光子のエネルギーによって関与する素過程の違いが変化するため大きく異なる。数MeVの領域では高エネルギーの方が透過力は高い。光電効果、コンプトン効果により物質中で電子線を生成するため、高エネルギーの光子はごく僅かではあるが原子核の弾き出しも起こす。

入射粒子による欠陥導入形態の違い

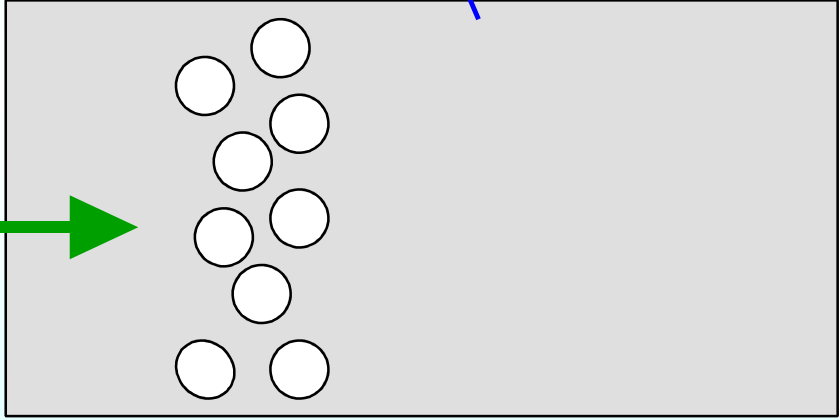
中性子照射

透過力の高い $E > 0.1\text{MeV}$ の高速中性子により試料全体に均質に欠陥が導入される。
Primary Knock-on Atom (PKA) をはじき出した後は狭い領域に欠陥が集中し、カスケードを形成する。



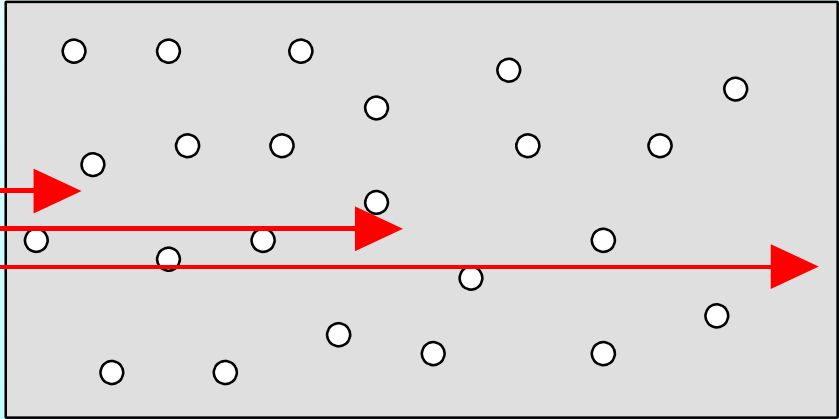
イオンビーム照射

電子励起によりエネルギーを失っていき、ブラッグピーク付近に集中的に欠陥が導入される。
PKAをはじき出した後の挙動は中性子照射と似ていて、カスケードを形成する。



電子線照射

30MeV の電子線は、セラミックス中でおおよそ 10cm 程度の飛程を持つが、平均 PKA エネルギーは 225eV にとどまるため損傷関数は 3.75個となり、フレンケル対などの点欠陥のみが導入されると考えられる。

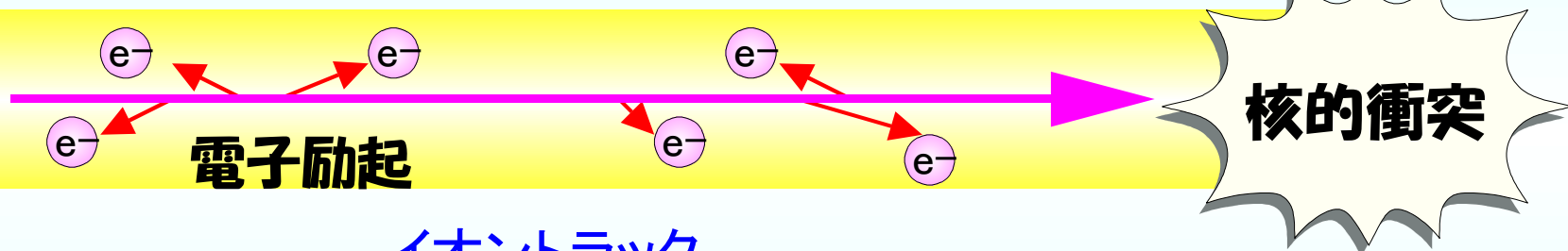


イオンビーム(α 線)の場合

物質に入射したイオンビームはそのほとんどのエネルギーを電子励起により徐々に失い、それに伴い阻止能が増加し(粒子の速度の二乗に反比例)、最終的に核的な衝突を起こす。弾性散乱された物質の原子はさらに他の原子をはじき飛ばしカスケードを形成する。

Primary Knock-on Atom (PKA)

弾性散乱
(弾き出し)



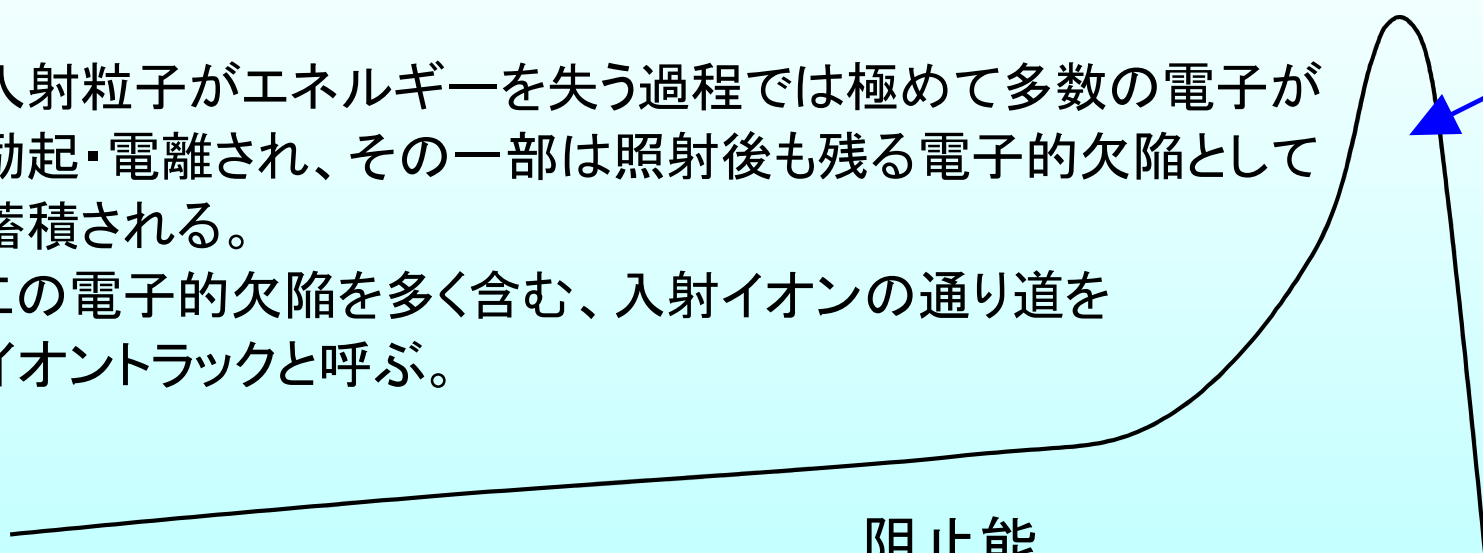
イオントラック

核的衝突

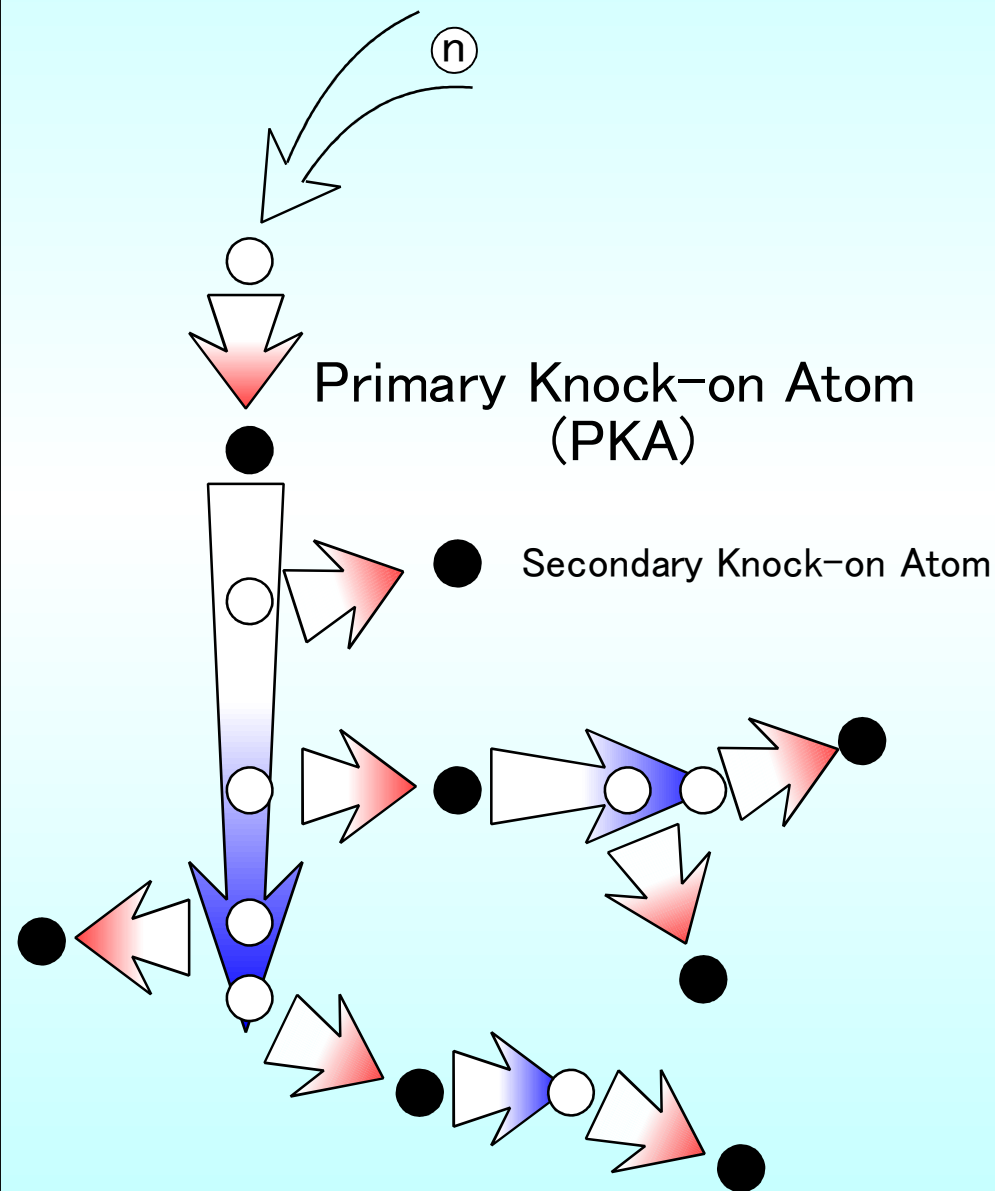
入射粒子がエネルギーを失う過程では極めて多数の電子が励起・電離され、その一部は照射後も残る電子的欠陥として蓄積される。この電子的欠陥を多く含む、入射イオンの通り道をイオントラックと呼ぶ。

ブラッグピーク

阻止能



照射カスケード



入射粒子がある格子原子をはじき飛ばすと、その原子は Primary Knock-on Atom (PKA) となり、この原子がまた別の格子原子をはじき飛ばす。
エネルギーが高いうちは弾き出しの確率は低いが、電子励起により徐々にエネルギーを失い、速度が落ちてくると弾き出しの断面積が増加するため、次々と弾き出しを起こして止まる。
この終端付近の連続して弾き出しが起こる領域を照射カスケードと呼び、瞬間的にその領域にエネルギーが解放されるため超高温状態となり、局所的な溶解状態となる。

電子線(β線)とα線の比較

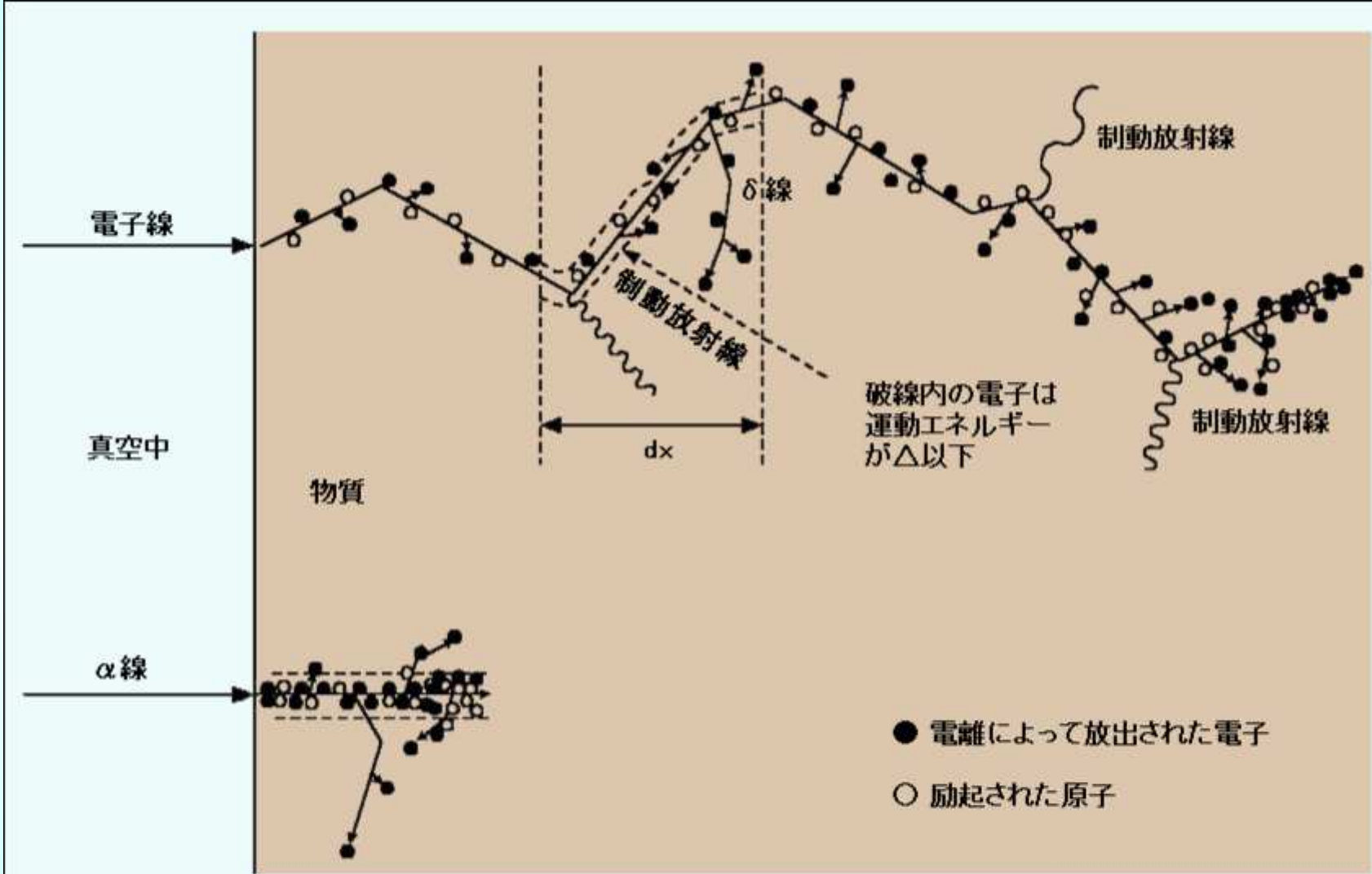


図1 荷電粒子と物質の相互作用

[出典]江藤秀雄(ほか):放射線防護、丸善(1982年12月)、p.54

結晶状態の評価

- 結晶粒外形の評価
 - 物性評価
 - 光学的性質評価
 - 電子状態評価
 - X線回折
- 透過電子顕微鏡観察(TEM)
 - 陽電子消滅法

結晶粒外形の評価

- ・光学顕微鏡
- ・走査型電子顕微鏡 (SEM) など

→ 結晶粒の粒径、異方性などを評価する。

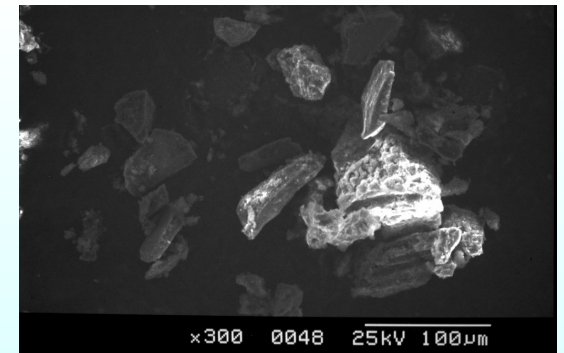
- ・バルク試料の内部や断面観察
→ 切断、研磨といった機械加工が必要
- ・結晶粒外形の観察
→ 結晶粒界を浮きだたせるためのエッチング処理が必要
- ・セラミックスなど絶縁試料の SEM 観察
→ 導電性の物質をコーティングする必要

◎ 試料調整により観察される像の品質は大きく異なる。

外形だけでなく、偏光顕微鏡 (金属顕微鏡) や、最新の走査型電子顕微鏡などでは、結晶粒内の結晶方位に関する情報も知ることができる。

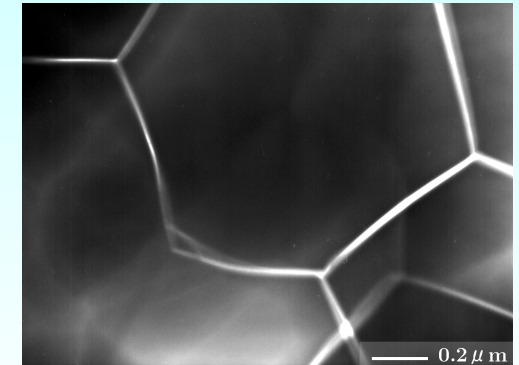


走査型電子顕微鏡 (SEM)



密度評価

完全結晶である場合の真密度と、
実際の材料の見かけの密度の差から、
結晶粒の充填状態を知ることができる。



照射により粒界クラックの発生した
AlN の TEM 写真

焼結体などでは焼結条件により完全に結晶粒が密に充填していない場合がある。
また、材料に照射を行って欠陥を導入する場合は、結晶粒内に歪みが入ることで
結晶粒自体の密度が変化する(スエリング)し、異方性スエリングなどが生じる場合
は、異なる方向を向いた結晶粒の集合体である試料内部に歪みが生じて粒界クラ
ックが発生し、大きな密度変化を生じる場合がある。

マクロな密度変化と、後述する X 線回折測定によるミクロな格子変化と合わせて、
結晶状態がどのように変化したかを相補的に知ることが出来るため、非常に重要
な評価である。

光学的性質評価

透光性のある結晶の場合、波長による光の透過率の違いによって結晶状態を評価できる。

また、波長の短い光や放射線を当てることで励起された結晶構造が脱励起することにより特定の波長の光が放出される場合があり、その波長や強度から結晶構造を知ることができる。



天然の黄色(右)と他は照射トパーズの色
(Museum of Gems より)

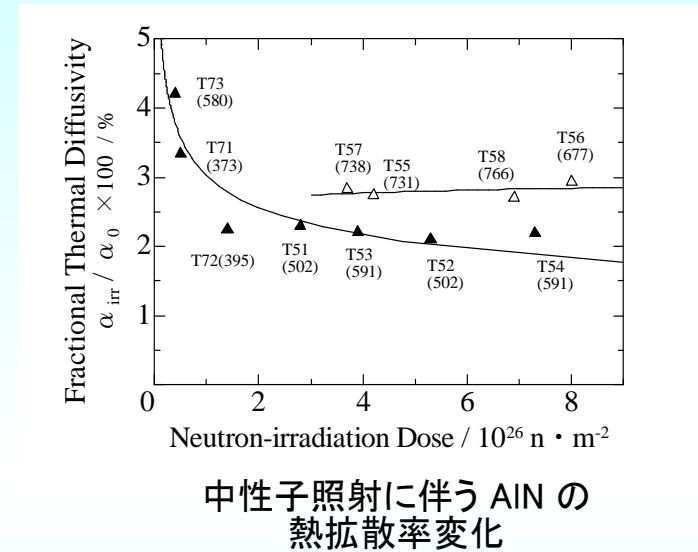
特定の波長の光を色中心 (color center) の生成などによって吸収するようになると、着色して見えるようになる。

ダイヤモンドやサファイア、トパーズなど一部の宝石では照射により着色処理を行っている物がある。

さらに、反射光の波長が入射光の波長からシフトする、ラマン散乱を測定することで、結晶の振動準位や回転準位、電子準位を知ることができる(ラマン分光法)。

熱、電気物性評価

セラミックスの場合、結晶粒内の欠陥の導入状態によって熱伝導率が異なる。
金属試料では照射により電気伝導度が大きく変化することが古くから知られている。

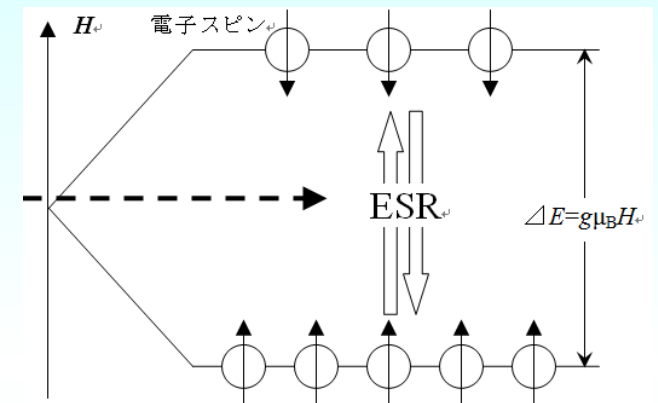


金属などでは自由電子が熱の輸送を行うため、結晶構造変化に余り影響を受けないが、絶縁体であるセラミックスの熱伝導率にもっとも重要な寄与をなす要因は、格子振動すなわちフォノンの寄与である。

広い温度領域にわたって重要なフォノン-フォノン相互作用に加えて、さらに種々の格子欠陥のために非調和性を生じてフォノン-格子散乱が起き、それがさらに平均自由行程を減少させ、熱伝導率に影響する

電子状態評価

ESR (electron spin resonance) 測定や、誘電率、電気伝導度などの測定により、結晶中の電子の分布状態を知ることが出来る。



ゼーマン分裂および電子スピン共鳴(ESR)の概念図

ESR 測定は物質中にある不対電子の量と、その置かれている環境を知る測定方法であり、その対象は磁性体、金属や半導体、有機物中のラジカル、固体中の点欠陥など様々な分野にわたる。

試料中には不対電子が存在する必要があるが、電子が対になっている場合は、電子が二つあることにより効果を打ち消しあってしまうため、信号は得られないため、測定可能な試料は限られる。

X線回折

Laue や Bragg らによって確立された X線回折によって、結晶構造状態評価を行う上で無くてはならない非常に重要な格子面間隔の情報を得ることが出来る。

格子定数 × 空間群 → ある面指数の面

どのような対称性を持てばどのような面間隔を持つ格子面が存在しうるか
→ 230の空間群（結晶構造の対称性をまとめた集合）

様々な組成の結晶に対してこの格子定数と空間群をデータベース化
→ 測定されたスペクトルからどのような結晶であるかを知ることが出来る。

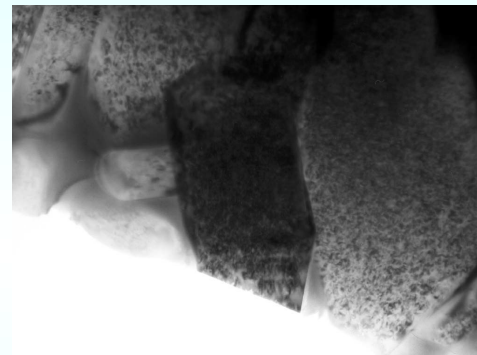
それぞれの回折ピークの詳細な解析（半値幅の変化やピークシフト、相対強度変化など）によって、結晶粒の分布状態や、特定の方向に歪みがかかるなどの応力状態を知ることなども可能となる。

透過電子顕微鏡観察(TEM)

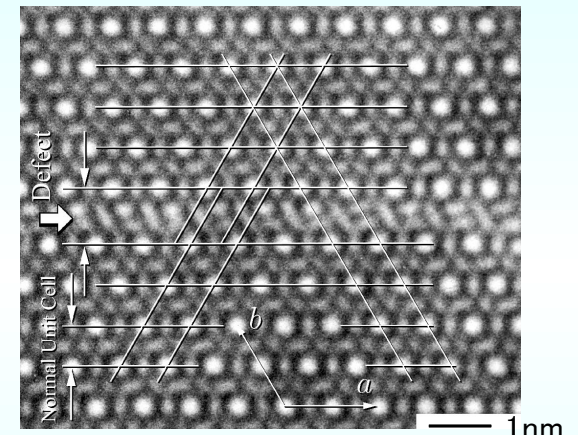
高倍率で結晶状態を観察可能であり、高分解能観察(HREM)では原子の配列状態を直接的に視覚的に知ることが出来る。



日立 H-9000 型 300kV TEM



0.5 μm
中性子照射した $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ の
明視野(Bright Field)像



1nm
中性子照射した $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ 中の
格子欠陥構造高分解能像 (HREM)

ただし、本質的に原子の「規則的な配列状態」を視覚化する装置であり、個別の格子間原子や空孔を検知することは困難であり、アモルファス構造などは捉えることが出来ない。
また、試料調整が決定的に重要な役割を果たしており、いかに試料を電子線が透過しうる nm オーダーまで薄膜化するかが目的の観察を行えるかどうかの鍵を担っている。

陽電子消滅法

陽電子と電子とが対消滅を起こすと、2本の 511keV γ 線が反対方向に放出されるが、そのエネルギーは消滅時の陽電子と電子の運動量の分だけ 511keV からずれている。

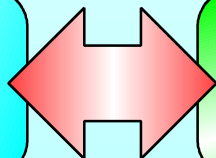
これをドップラーシフトと言い、物質中での電子状態を知る有効な手段として広く利用されている。

物質中に入射された陽電子が電子と対消滅するまでの寿命は、物質に依存するが 100ps~1ns のオーダーであり、消滅相手の電子の密度に大きく影響する。

材料が均一ではなく、陽電子が空孔やその集合体に捕獲されたとき、陽電子の寿命はこれらの欠陥のない試料に比べて長くなる。

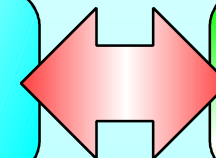
これは、局所的に欠陥のところで電子密度が低くなるためである。

空孔サイズ



陽電子寿命

欠陥の数



長寿命成分
の強度

結晶の欠陥導入状態評価

スエリング

点欠陥, ボイド, バブル,
転位ループ, 粒界クラック
などの複合的発現

XRD

点欠陥, 転位ループ
などによる格子歪み
(異方性の検出可)

熱拡散率

フォノン伝導が主の
セラミックスでは
点欠陥, 特に空孔濃度
を選択的に反映

相補的な測定による 欠陥導入状態評価

透過電顕観察

ある程度の空間的広がりを持つ
構造か, 規則的な周期構造と
して配列した格子を観察可能
(点欠陥は見る事が出来ない)

陽電子消滅寿命

主に空孔やその集合体の
導入状態を評価可能。

セラミックス材料の 照射時熱拡散率評価

セラミックスの熱拡散率

- ・金属と異なり, フォノンによる熱輸送が支配的
- ・未照射試料では粒径や焼結助剤による粒界の組成などで大きく変化

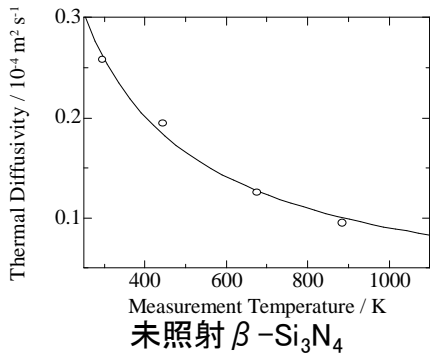
$$\text{熱拡散率 } \alpha = 1/3 \cdot \mu \cdot \lambda$$

μ : フォノンの平均速度 [m/s]

λ : フォノンの平均自由行程 [m]

材料によりほぼ一定で照射により変化しない

照射試料ではフォノンの平均自由行程が極端に短くなるためほとんど影響しない



フォノン-フォノン散乱
温度上昇と共に k/T^n に従って低下していく

フォノン-格子散乱
照射欠陥, 特に空孔の導入密度に従って増加する

様々な散乱機構(フォノン-フォノン散乱, 粒界などによる散乱, 照射により導入された点欠陥や転位による散乱など)に対するそれぞれの散乱の自由行程を $\lambda_a, \lambda_b, \lambda_c, \dots$ とすると, それらの機構全てが寄与する全体としてのフォノンの平均自由行程 λ は

$$1/\lambda = 1/\lambda_a + 1/\lambda_b + 1/\lambda_c + \dots \text{ と表される。}$$

照射フルエンス・照射温度の違いにより、欠陥導入密度が変化する

温度による熱拡散率変化

照射により導入された
欠陥の密度により決まる
フォノン-格子散乱

フォノンの
平均自由行程

ウムクラップ過程による
温度上昇に伴う
フォノン-フォノン散乱

照射中

冷却

照射後

照射温度の変化により欠陥導入密度と
フォノン-フォノン散乱頻度の双方が変化

欠陥導入速度と、消滅・成長速度のバランスで
欠陥濃度が決定 → Transient な空孔の存在

照射温度以下では欠陥導入密度は変化せず、
測定温度に従いフォノン-フォノン散乱頻度のみが変化

室温

フォノン-フォノン散乱,
フォノン-格子散乱
共に照射時と異なる

照射温度

フォノン-フォノン散乱は
照射時と同一だが、
フォノン-格子散乱は
照射時と異なる

照射時熱拡散率評価

前提条件

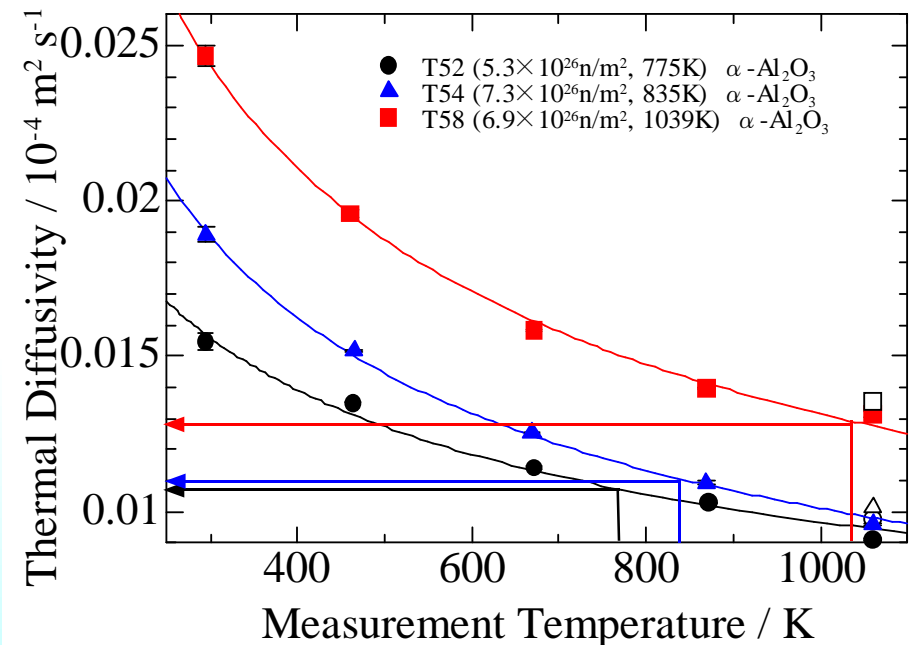
照射量の増加に伴う熱拡散率の低下は
 $3 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ 程度で飽和して一定である

照射温度以下では欠陥導入密度は変化しない

照射直後の試料は照射中と同じ欠陥濃度を保つ

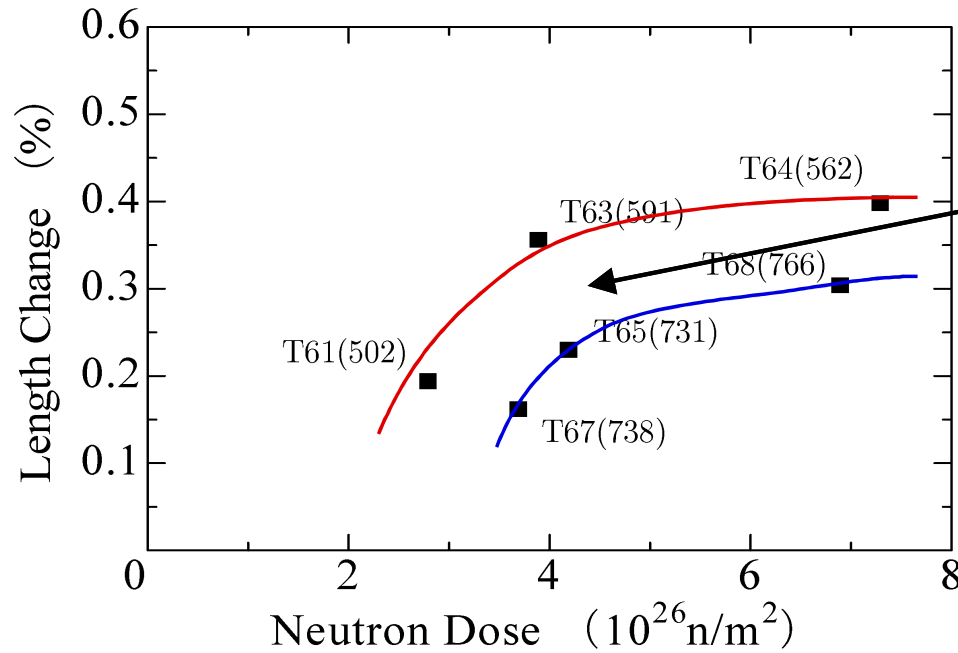
各試料の照射温度での
照射後熱拡散率は
照射時の熱拡散率に等しい

- $-150^\circ\text{C} \sim 140^\circ\text{C}$ の低温で熱拡散率の温度依存性を測定する。
- 得られた熱拡散率測定データを $\alpha = k/T^n$ 式でフィッティングを行う。
- それぞれの試料に対するフィッティングパラメーター k, n を用いて照射温度 T_{irr} における熱拡散率を求める。



高温での照射試料の熱拡散率変化

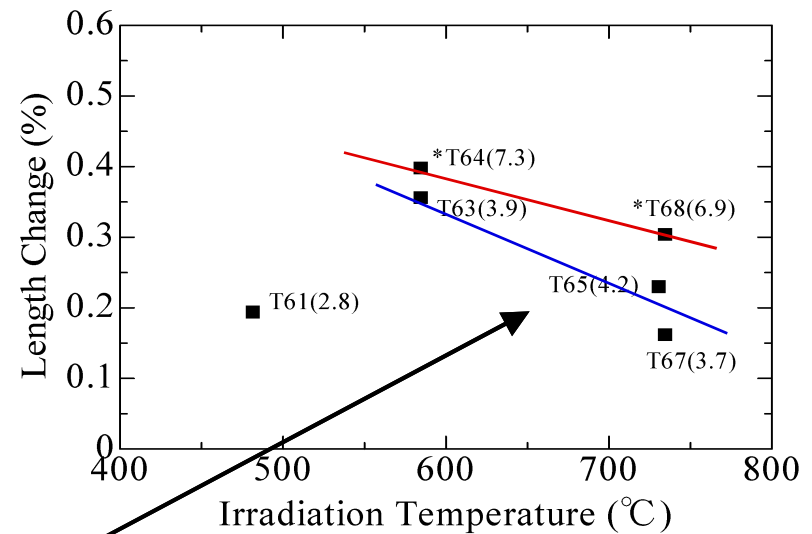
β - Si_3N_4 の照射条件によるスエリングの変化



照射量によるスエリング量の違い

同程度の照射量で比較
高温照射の方が
スエリングは小さい

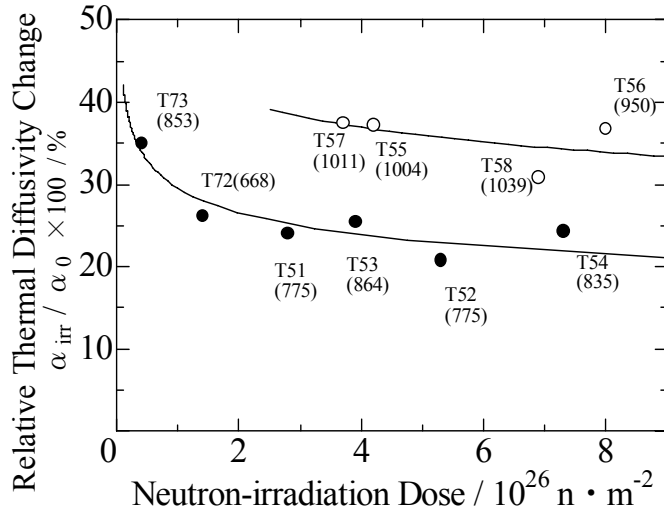
同程度の照射温度の試料で比較
 $4 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ 程度で
飽和する



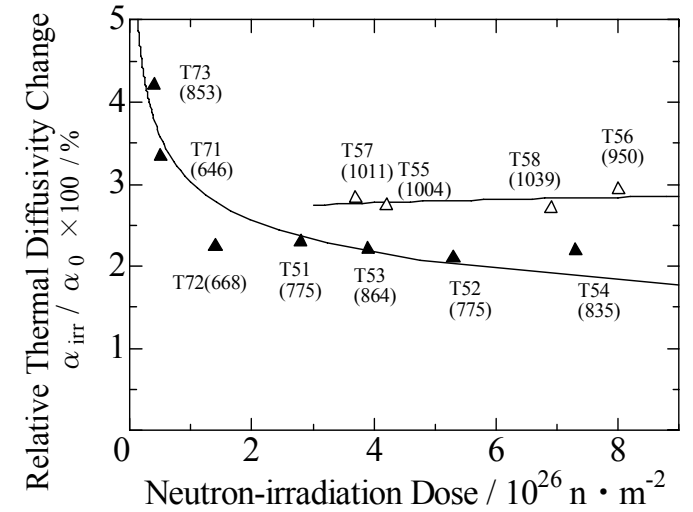
照射温度によるスエリング量の違い

照射量依存性

α - Al_2O_3

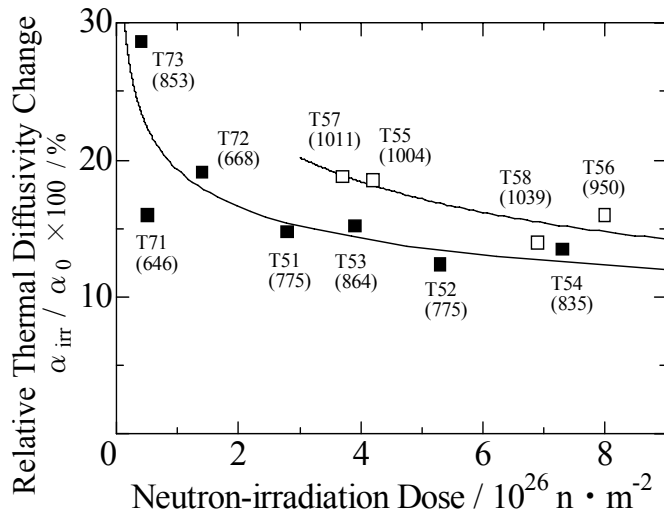


AlN

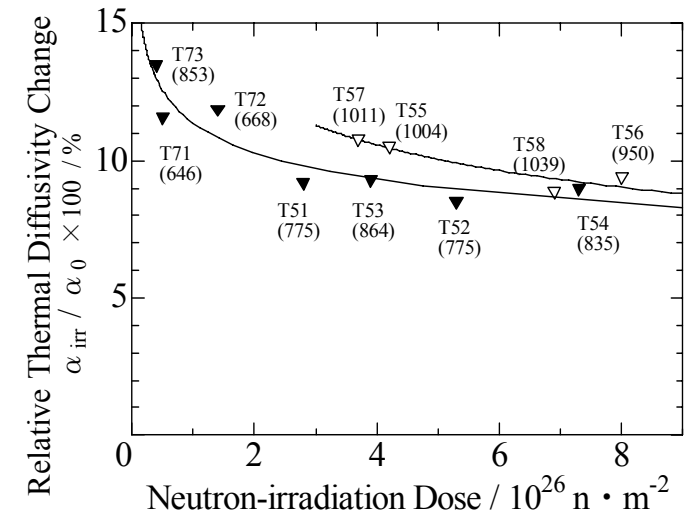


○: 高温で照射された試料
●: 低温で照射された試料
括弧内は照射温度(K)

β - Si_3N_4

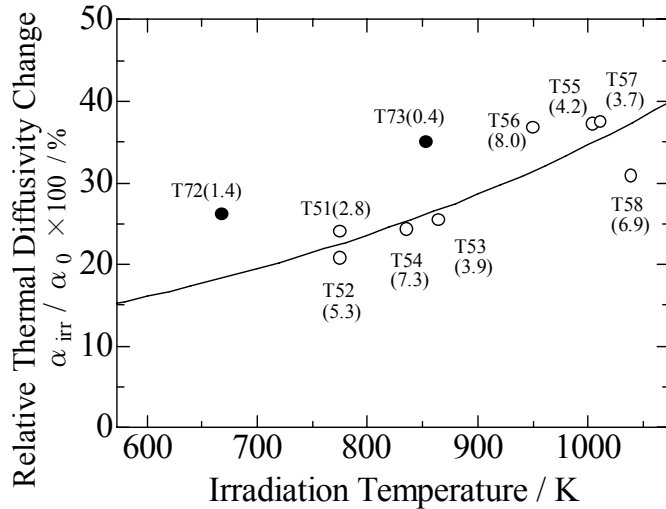


β -SiC

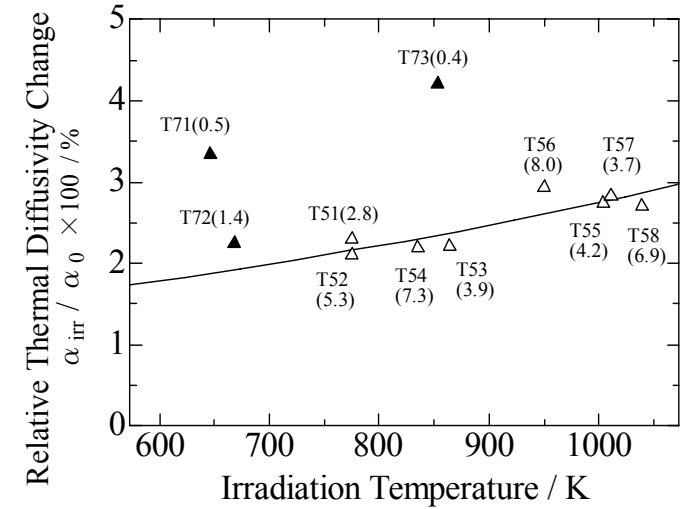


照射温度依存性

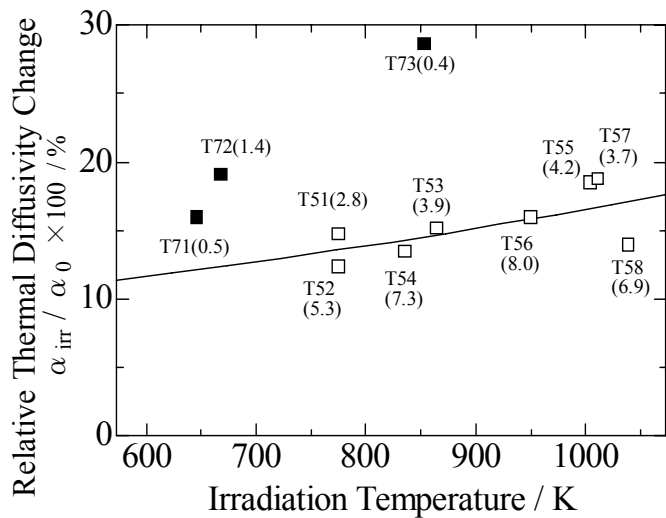
α - Al_2O_3



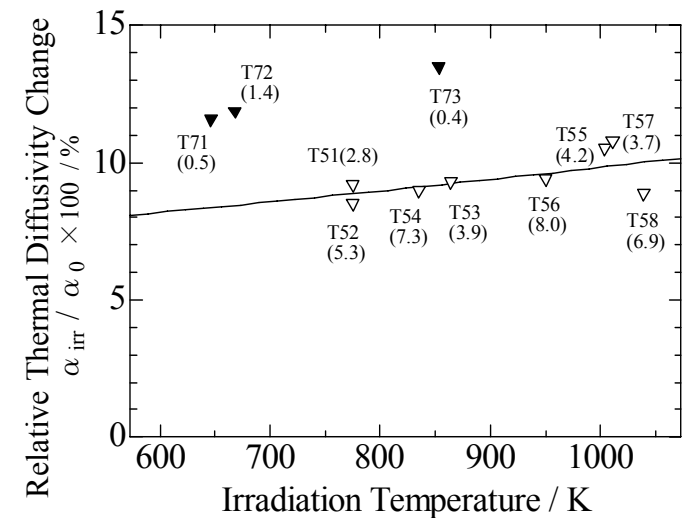
AlN



β - Si_3N_4



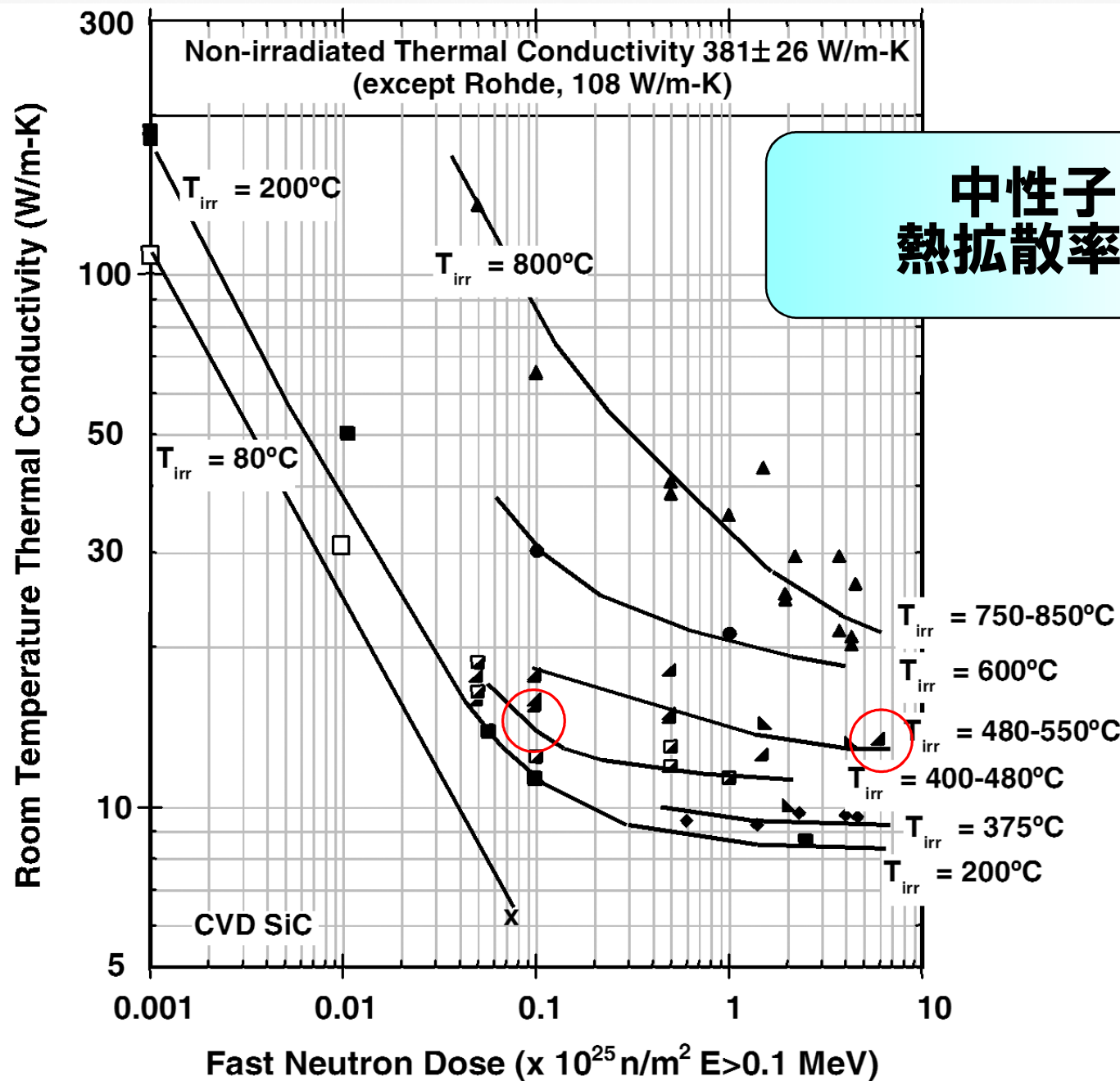
β -SiC



○: 高照射量の試料

●: 低照射量の試料

括弧内は照射量(10^{26} n/m²)



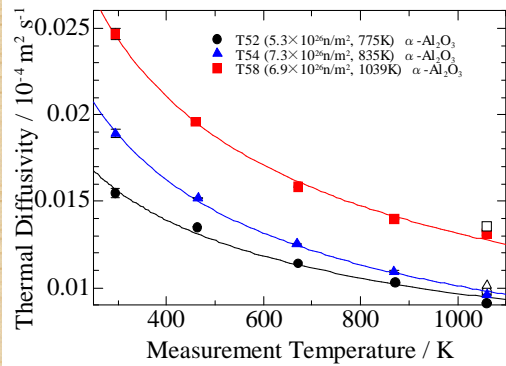
中性子照射後 SiC の
熱拡散率低下の飽和傾向

照射後熱拡散率
Irr@480–550°C 10dpa
 \approx
Irr@400°C 0.1dpa

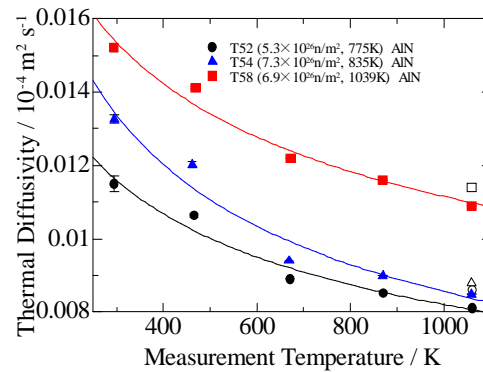
Measurement at Elevated Temperature (Irradiated Specimen)

In the previous works, thermal diffusivity of neutron irradiated ceramics began to recover above 873K. So, the thermal diffusivity at 1073K was modified via $\alpha_{1073} \times \alpha_0 / \alpha_{an}$ where α_{1073} is the thermal diffusivity measured at 1073K (plotted with outline symbols), α_0 the one measured at room temperature before annealing (as-irradiated) and α_{an} the one at room temperature after annealing at 1073K.

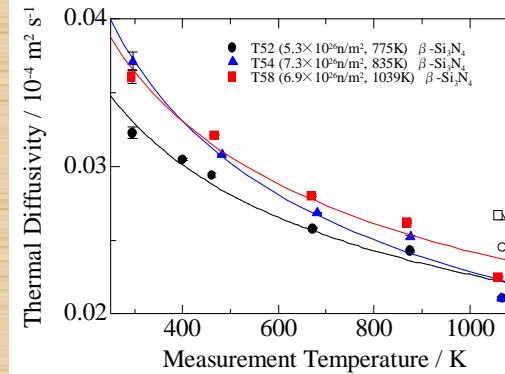
Thermal Diffusivity



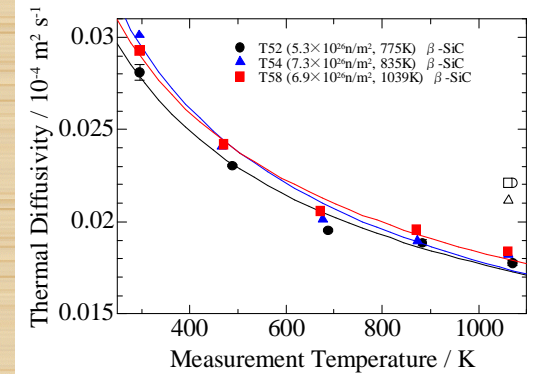
α -Al₂O₃



AlN

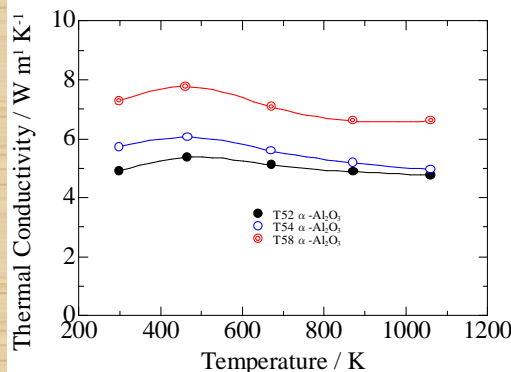


β -Si₃N₄

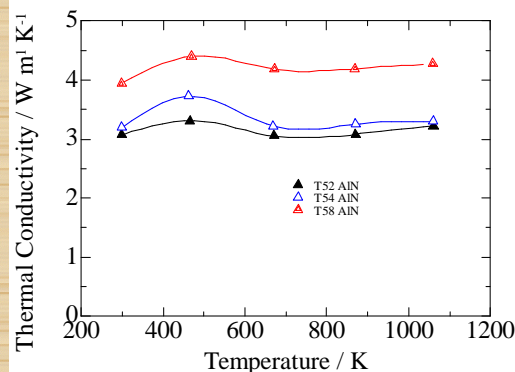


β -SiC

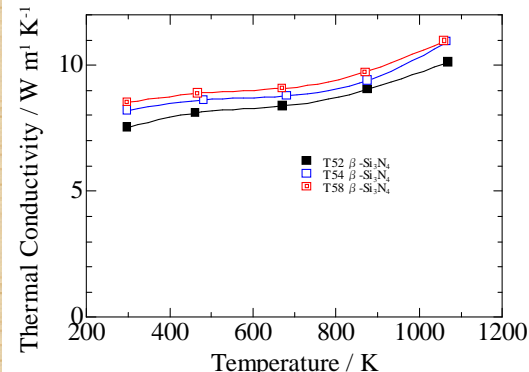
Thermal Conductivity



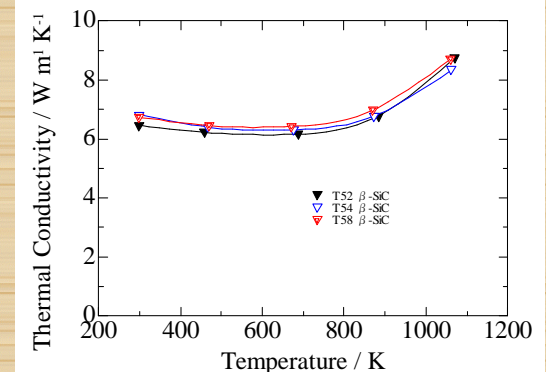
α -Al₂O₃



AlN



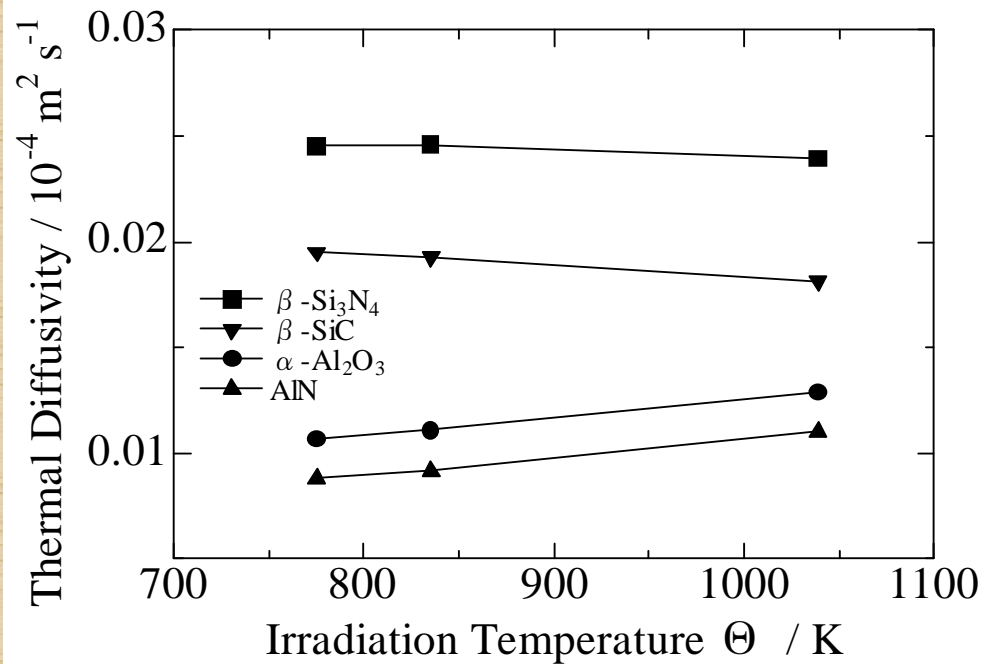
β -Si₃N₄



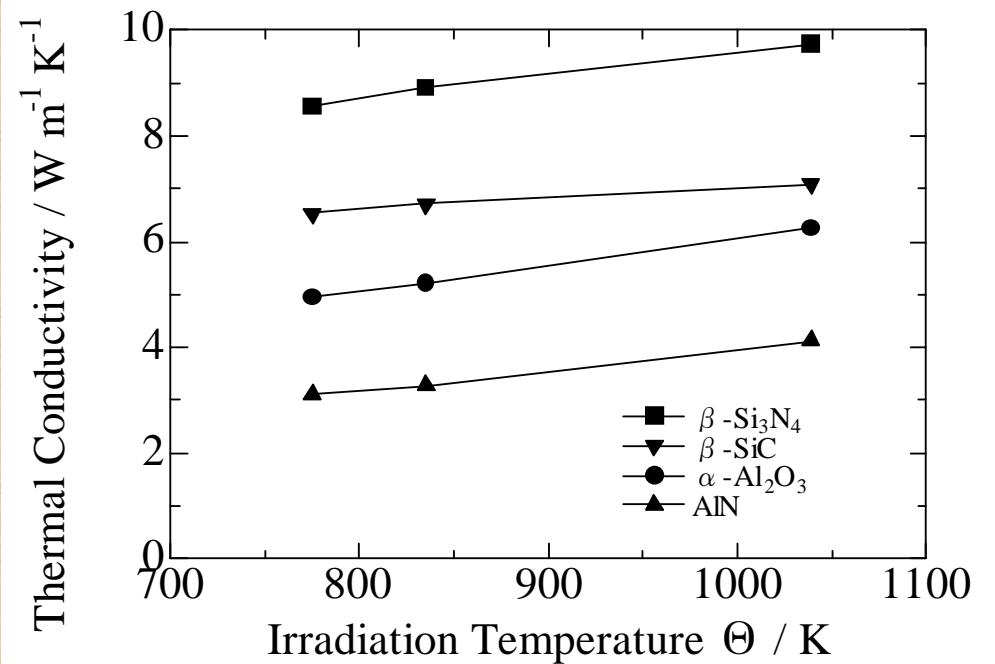
β -SiC

Thermal Diffusivity and Conductivity During the Irradiation

Thermal Diffusivity



Thermal Conductivity



Keep almost the same value

Further Problem

Test Irradiation

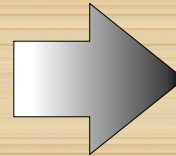
Irradiation temperature was controlled at the objective temperature

Real Divertor

Temperature of the material will be changed with injection heat flux and density of defects

Defect Density

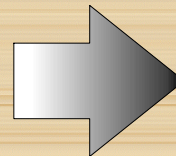
Low



High

Thermal Diffusivity

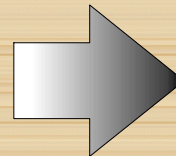
High



Low

Temperature

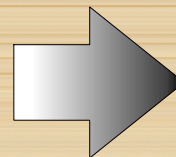
Low



High

Defect Density

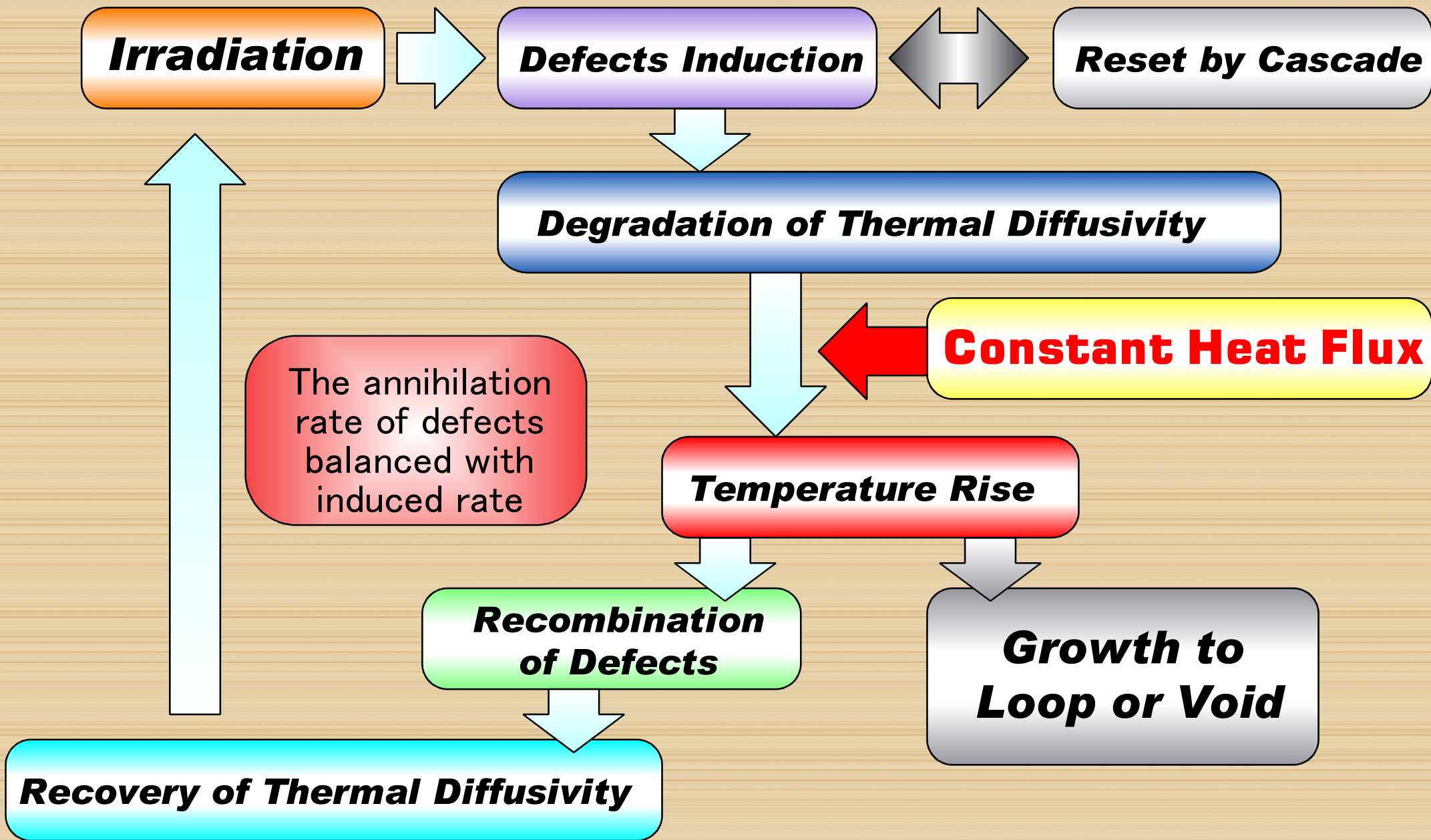
High



Low

**Not
Fixed**



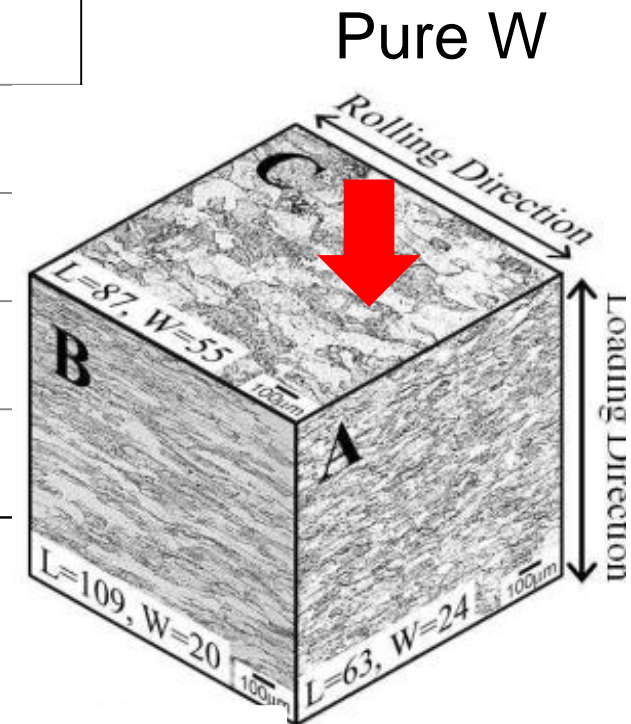
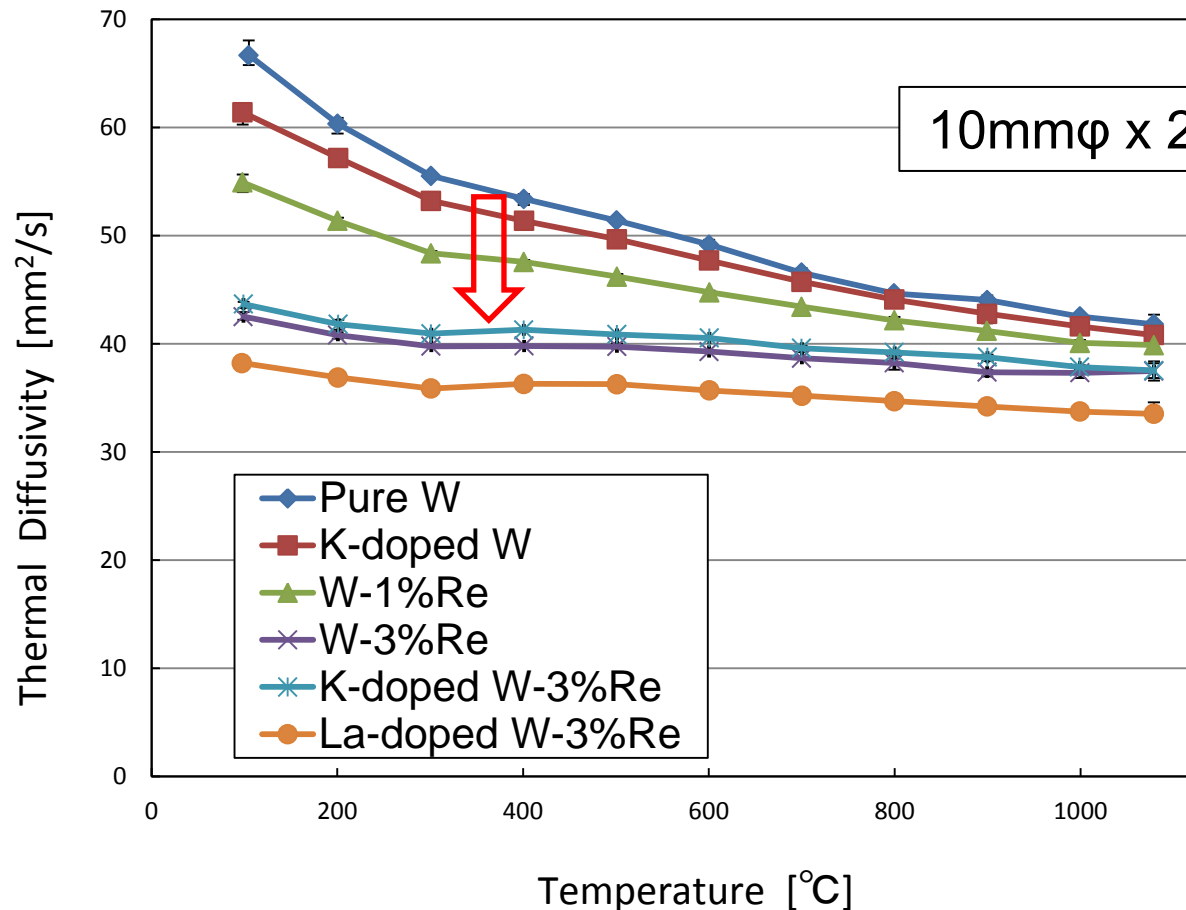


Analysis based on Reaction Kinetics is required

タングステン材料について

- ・非常に融点が高い(3420°C)
- ・Z=74, 密度 19.3g/m³ と非常に重い材料
- ・耐食性、耐スパッタ性に優れる
- ・弾性係数が高いが靱性が低い脆性材料
- ・層状構造を持ち、異方性がある
- ・塑性加工率90%の純タングステンの再結晶温度は1350°Cで、再結晶後は延性、靱性などの機械的特性が低下するが、カリウムやレニウムなどの元素の添加、酸化物粒子分散などで再結晶温度を引き上げることが可能。
- ・ただし、再結晶温度を上げた合金材料は熱拡散率が低下する。
- ・脆性-延性遷移温度以上の高温で機械加工が可能であるが、それ以下での加工は極めて困難
- ・熱伝導の数割程度がフォノン伝導による物で、セラミックス同様の温度依存性があり、照射により低下する(通常の金属は電子伝導で、変化しない)

Thermal Diffusivity of W and W-alloys



- TD of W-alloys were lower than pure W.
- Temperature dependence of TD was not significant by 3%Re addition.
- Anisotropy of TD were not observed.
- Grain boundary effect were not significantly.

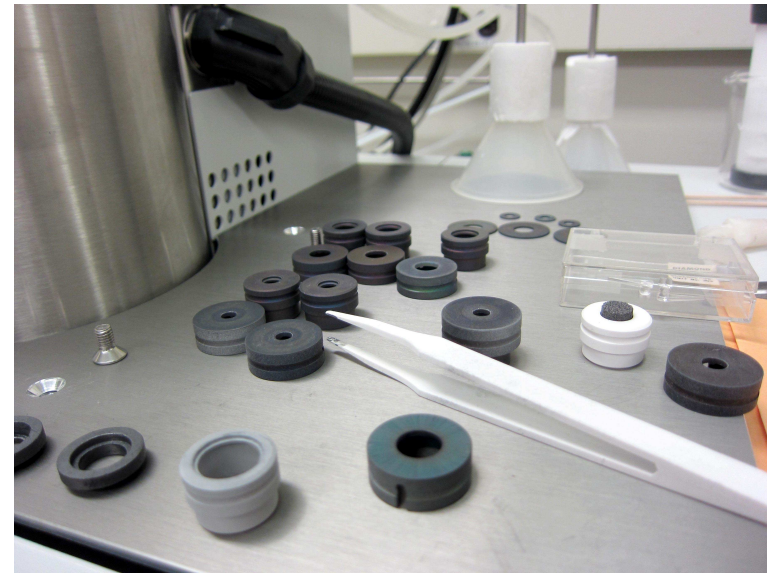
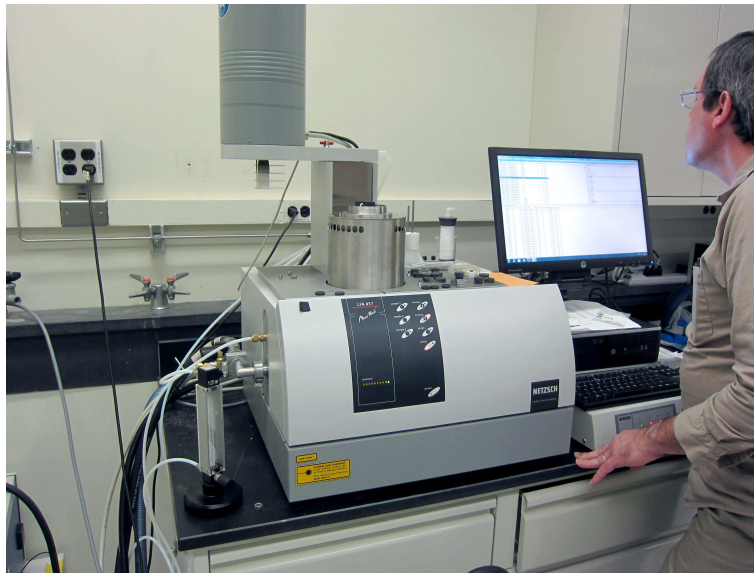
微小試験片での熱拡散率評価

微小試験片測定の実要求

- 中性子束の高い研究炉の炉心の体積が非常に限られている
- 試料の放射能を低減する必要性
- 照射中の γ 発熱を抑えて照射温度をコントロールする 必要性
- 熱拡散率測定での標準試験片 $\phi 10 \times 2\text{mm}$ は、余りにも大きい

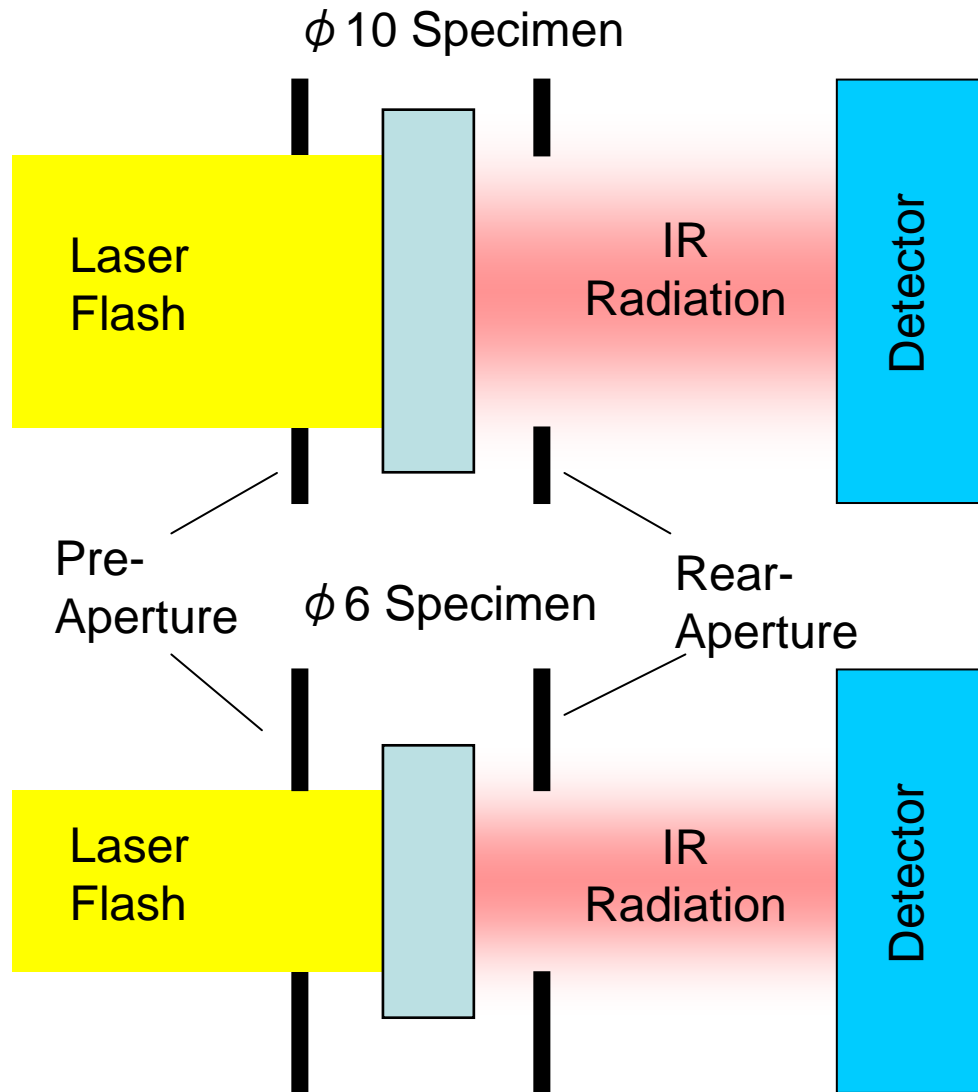
3) Netsche LFA-457による熱拡散率測定

- ORNLに設置されたNetsche LFA-457 熱拡散率測定装置の仕様を確認し、室温～1100度の測定が可能であり、 $\phi 12.7$, $\phi 10$, $\phi 6$ 試料用の治具の存在と形状を確認した。
- ITER Grade W の $\phi 10$ の標準サイズの試料と、 $\phi 6$ 試料に対して室温～500°Cで熱拡散率温度依存性の測定を行ない、試料サイズの違いを評価した。



ORNLの熱定数測定装置 Netsche LFA-457 と測定用治具

Validation of TD measurement using $\phi 6$ specimen



Smaller specimen:

- Radiates smaller amount of IR
→ S/N is smaller (Noisy)

- Measurement at higher temperature gives better S/N

- Leak of heat from specimen side is relatively larger

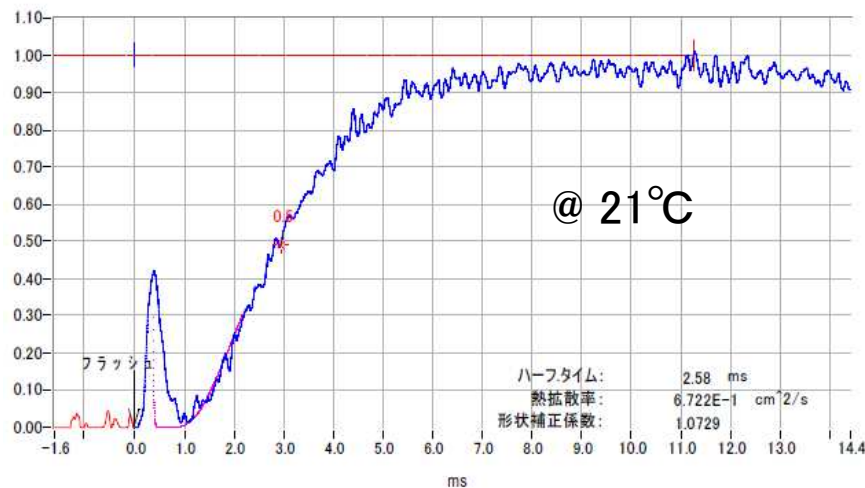
- Require shape adjustment (change with aspect ratio)

Validation of TD measurement using $\phi 6$ specimen

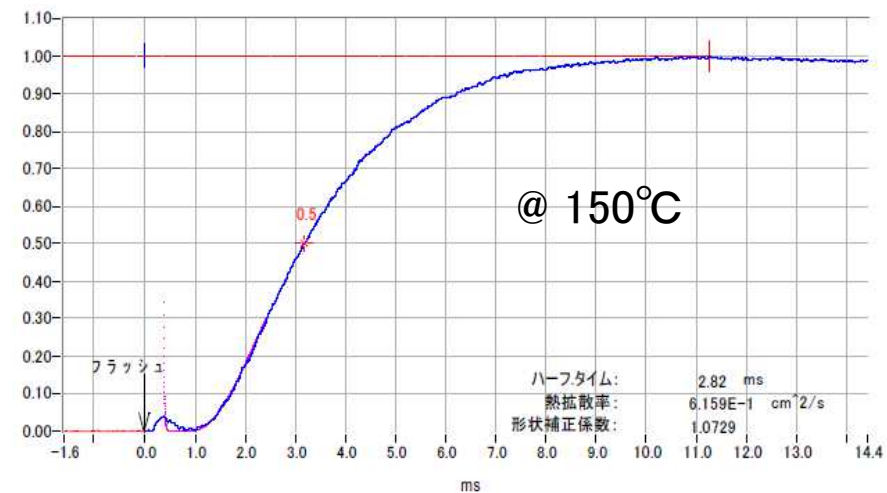
**Measurement at higher temperature
gives better S/N**

**→ Systematic measurement at elevated temperature and
extrapolate it to Room Temperature.**

試料名: ITER-Grade-W_φ10-1080-IR 2/10 測定温度 = 21.10C 試料厚 = 1.0800E+0mm 2015/02/24 14:08 No.1569

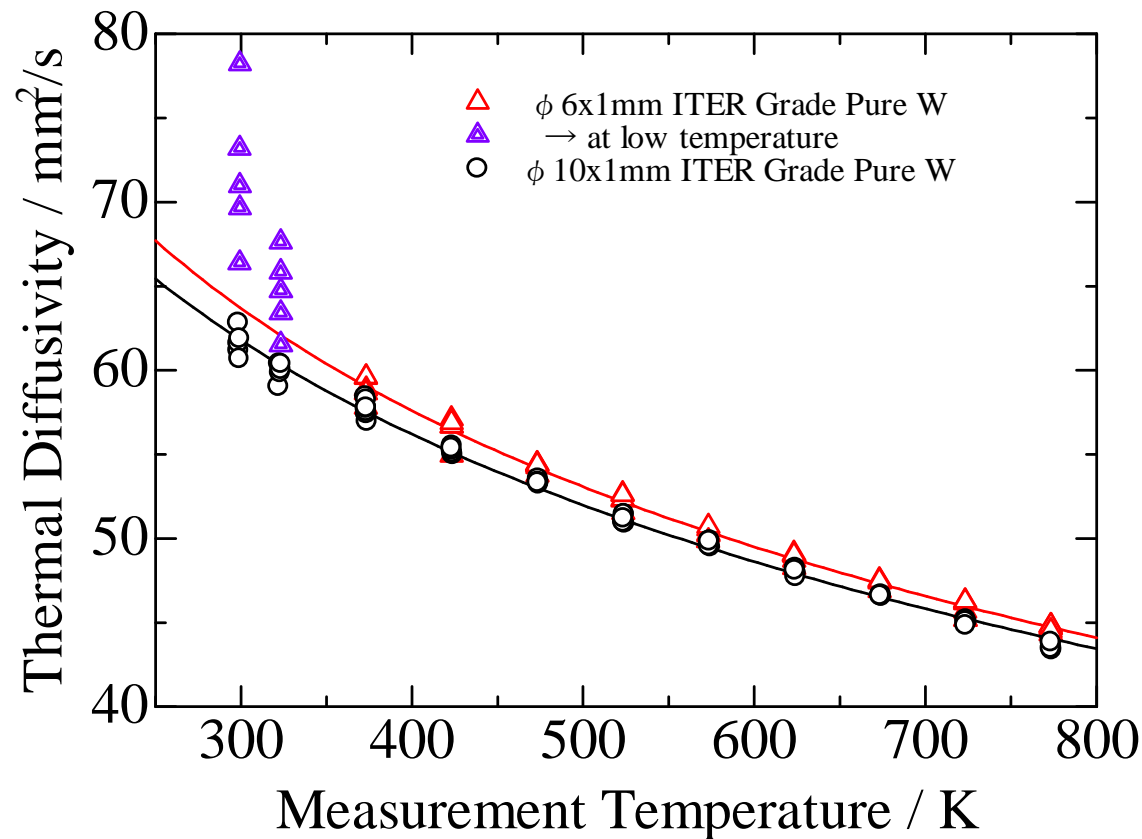


試料名: ITER-Grade-W_φ10-1080-IR 3/10 測定温度 = 150.20C 試料厚 = 1.0800E+0mm 2015/02/24 15:14 No.1569



These results are obtained by TC-7000 with $\phi 10$ ITER-G W for present S/N change with measurement temperature.

4) $\phi 6$ 試料による熱拡散率測定の見証

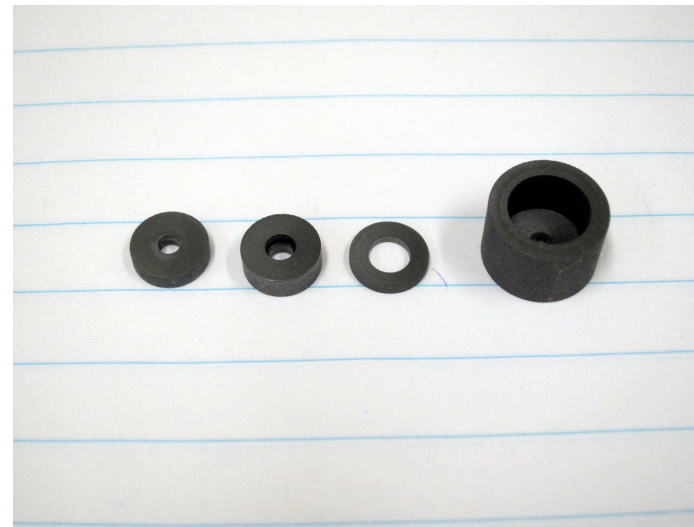
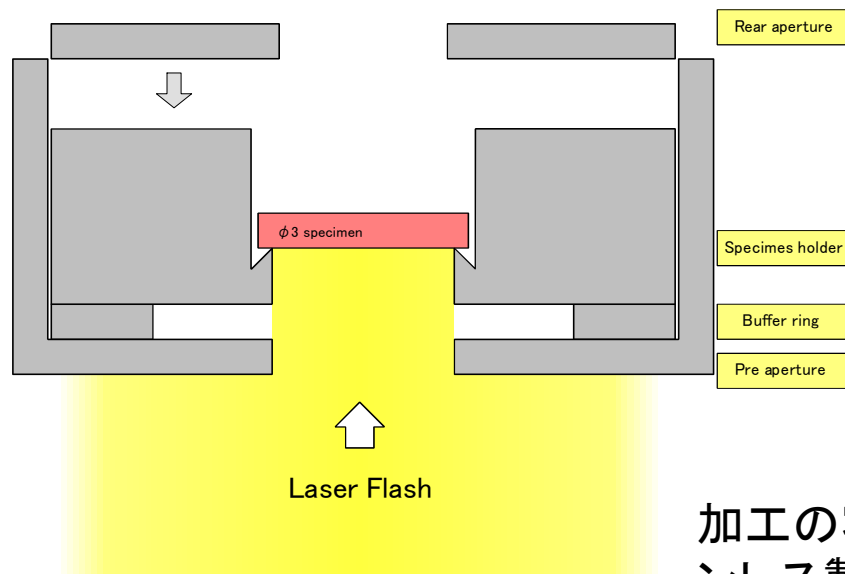


$\phi 6$ 試料は試料面積が小さいため背面からの赤外線放出量が少なく、室温付近ではS/N比が悪いため測定精度が低かったが、 100°C 程度まで昇温することで十分な精度となった。使用している解析モデル(Cowanモデル)では試料形状補正を行なっていないため、今後より適した解析法を検討する。

未照射 ITER Grade タングステン $\phi 10$ 、 $\phi 6$ 試料の熱拡散率温度依存性の比較

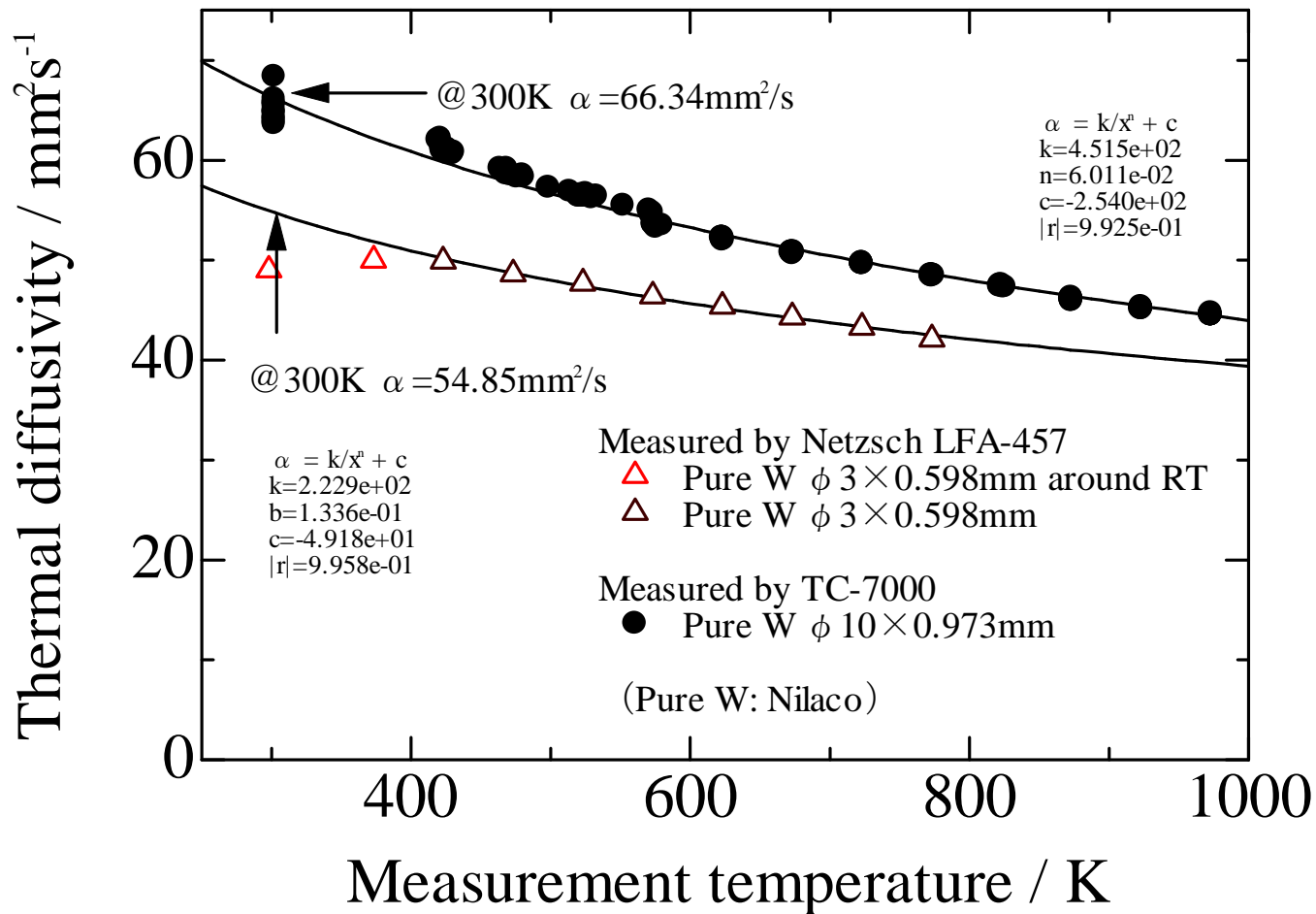
5) $\phi 3$ 試料測定用治具の設計、製作

- RB*装荷の熱拡散率測定用試験片のさらなる微小化の可能性を検討した。メーカー側との打ち合わせを行ない、測定出来る可能性が高いとの結論に達し、 $\phi 3$ の測定用治具の設計、製作を米国側の装置の専門家と共に行なった。



加工の容易な黒鉛で作成した治具。日本国内でもステンレス製の治具を作成し、 $\phi 3$ 試料の測定自体は可能であることを確認した。現在モリブデン合金(TEM材、TZM材)で高温耐久性のある治具を作成中。

φ 3 試料測定妥当性の検証



Required thickness of specimen

Pulse width of Laser Flash in LFA-457: $T_f = 0.33\text{ms}$ (cf. LFA-467: $20\ \mu\text{s}$)

ASTM E1461, JIS R1611, Netzsch recommend. \rightarrow Require $T_f < T_{1/2} / 10$

$$\alpha = 0.1388 t^2 / T_{1/2}$$

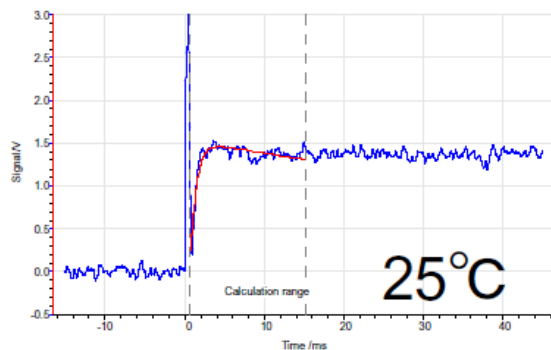
α : thermal diffusivity, t : thickness, $T_{1/2}$: half time

LFA-457

$$T_{1/2} > 3.3\text{ms} \quad (\leftarrow T_f \times 10)$$

Tungsten (unirradiated),

$$\alpha = 66\text{mm}^2/\text{s} \rightarrow t > 1.3\text{mm}$$

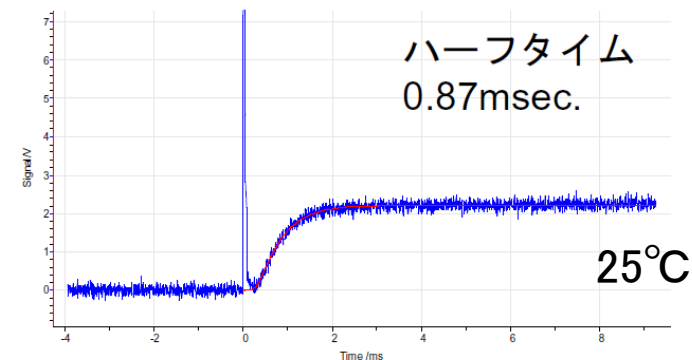


LFA-467

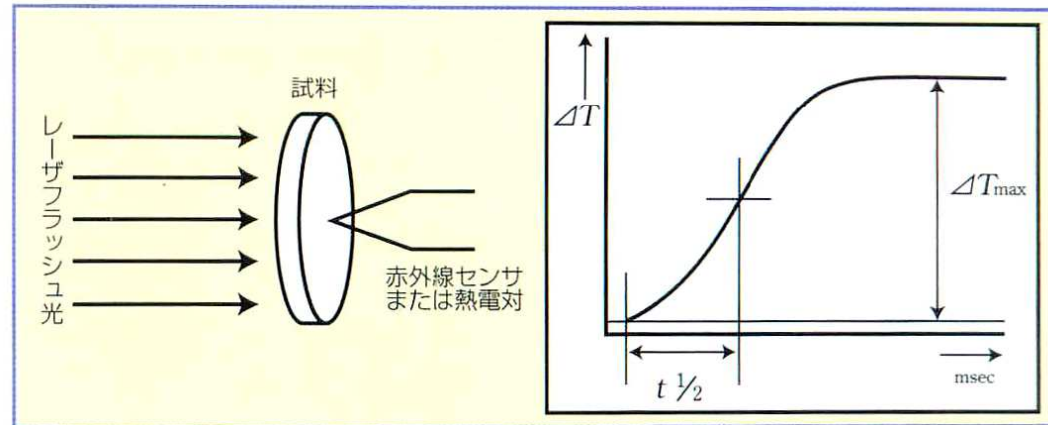
$$T_{1/2} > 0.2\text{ms} \rightarrow t > 0.10\text{mm}$$

Nilaco W, $t=0.598\text{mm}$ \rightarrow

$$\alpha = 68.8\text{mm}^2/\text{s}$$



レーザーフラッシュ法 ～ $t_{1/2}$ 法



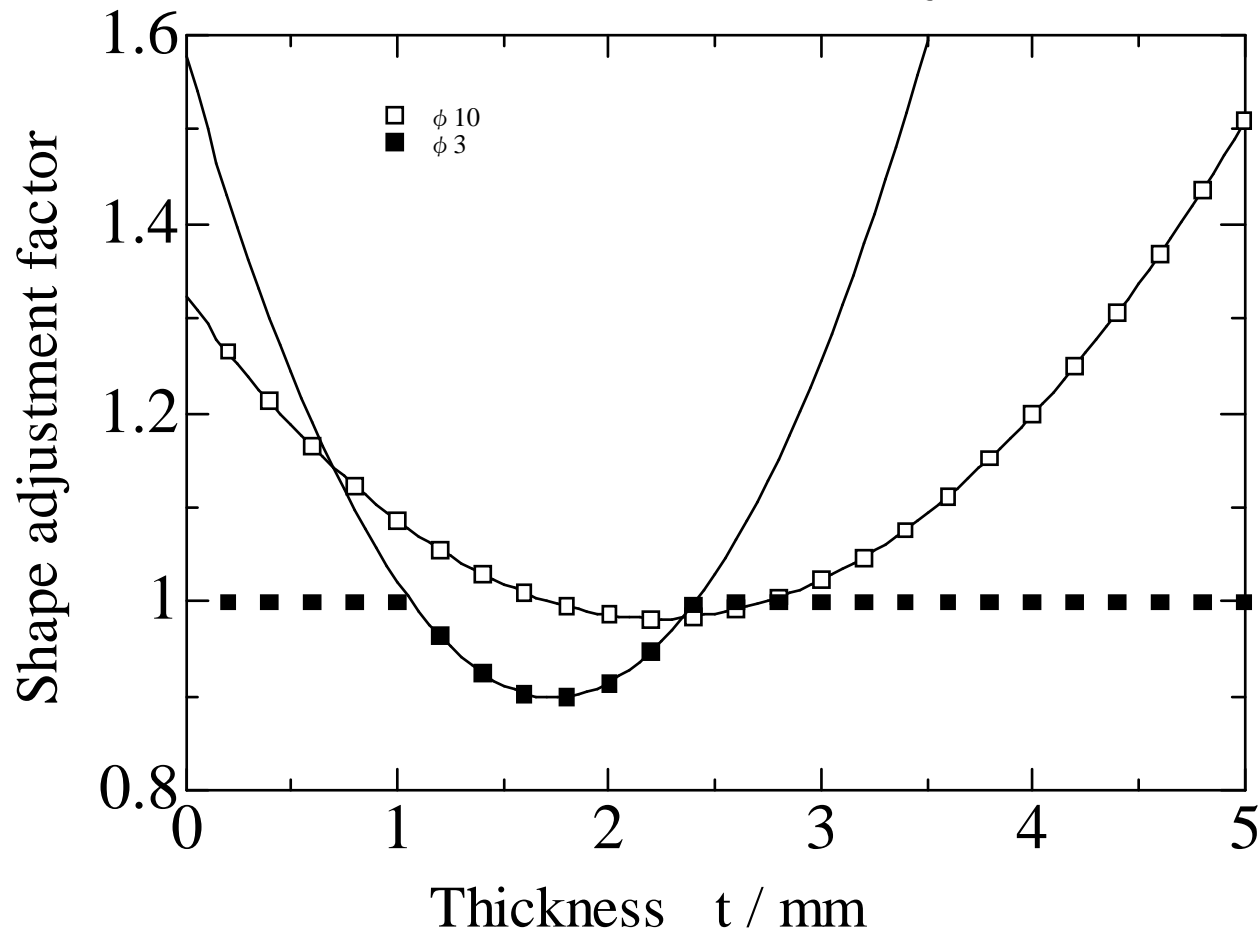
- ・試料は外界と断熱されている。
- ・試料表面は均一にパルス加熱される。
- ・**試料表面を加熱するパルス光の発光時間は、熱が試料表面から裏面にまで伝わるのに要する時間より十分短い。**
- ・試料は均質である。
- ・試料は不透明でパルス光は試料表面付近の十分薄い層で吸収される。

$\phi 3 \times 0.5\text{mm}$ 試料評価法の確立

- ・ $\phi 3 \times 0.5\text{mm}$ のフォームファクタに固定して、熱拡散率の異なる試料を測定し補正式を得る
- ・ $\phi 3$ で厚さの異なる試料を測定して厚さによる補正式を得る
- ・ データ解析の際に $t_{1/2}$ 法を用いずに温度上昇曲線からの正確な解析方法を検討する

厚さによる補正係数の例

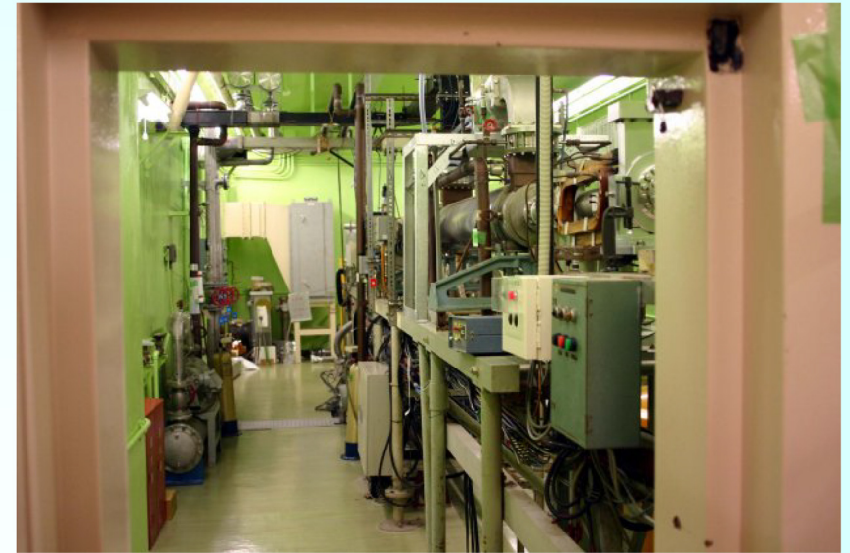
Used in Ulvac TC-7000 system.



ライナックによる電子線照射

KURRI LINAC による電子線照射

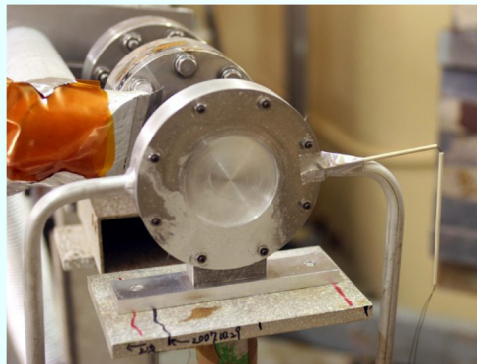
欠陥導入のためのデバイスとして、30MeVの電子線形加速器 KURRI-LINAC を用いた。KURRI LINAC は Lバンド(1.3GHz)の大電力マイクロ波で電子を加速する装置である。最高ビームパワーは10kW(30MeV、500mA、 $4\mu\text{s}$ 幅、180Hz)であり、汎用小型ライナックとしては国内最高レベルの大電流が得られる。



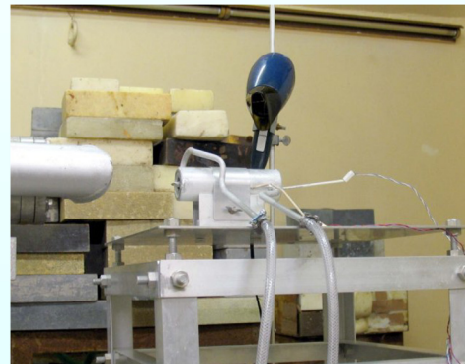
様々な照射温度での照射が可能



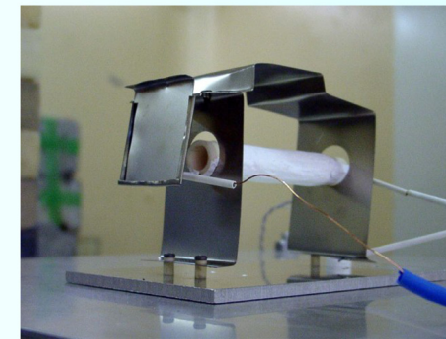
液体窒素温度での
低温照射ホルダー



常温付近での
水冷照射ホルダー



300-400°C程度での
間接水冷照射ホルダー



1000°C程度での
高温照射ホルダー



アルミ製
真空チャンバー

KURRI LINAC の問題点

ターゲット質量を16amu 弾き出しエネルギーを30eVとして30MeVの電子線を照射した場合、最大PKA エネルギーは130keVとなるが、ほとんどが前方散乱となるため平均PKA エネルギーは230eVにとどまり、損傷関数は3.8個となる。このことはクラスターなどの生成は起こらず、ほとんどがフレンケル対の生成に留まることを意味する。

有意な熱拡散率低下を起こす0.01dpa程度を達成するためには、安定して運転可能なKURRI-LINACの最大出力に近い条件で照射を行い、1週間程度かけておよそ $1.5 \times 10^{22} \text{e/m}^2$ を照射する必要がある。

電子線は**照射時に非常に強いX線を発生**する。このため、照射時にターゲットに近付くことは出来ず、ビーム位置の調整などが困難である（CCD等も使用は困難）。またX線による放射線劣化やオゾンなどの発生により、特に有機物は非常に大きなダメージを受け、真空用のOリングや、電気配線などに注意を要する。

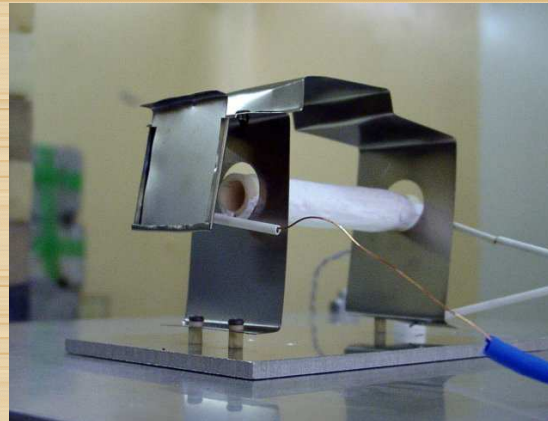
さらに、10MeV以上の電子線は、制動放射X線 → 光核反応を経て、**中性子が発生**し、これにより**試料の放射化**が起こる。（元々KURRI LINACはパルス型の中性子発生装置である）

電子線のエネルギー（加速電圧×電流量）が非常に大きい（MAX 10kWがφ2cm程度に集中する）ため、**試料温度が上昇**し、その冷却 = 温度コントロールが困難。水冷が現在最も安定した温度での照射が可能であるが、それ以上の温度でのコントロールは現在技術開発中。（電子ビームのエネルギー（電流量）を落とせば、空冷などでコントロールは可能だが、照射に時間がかかる）

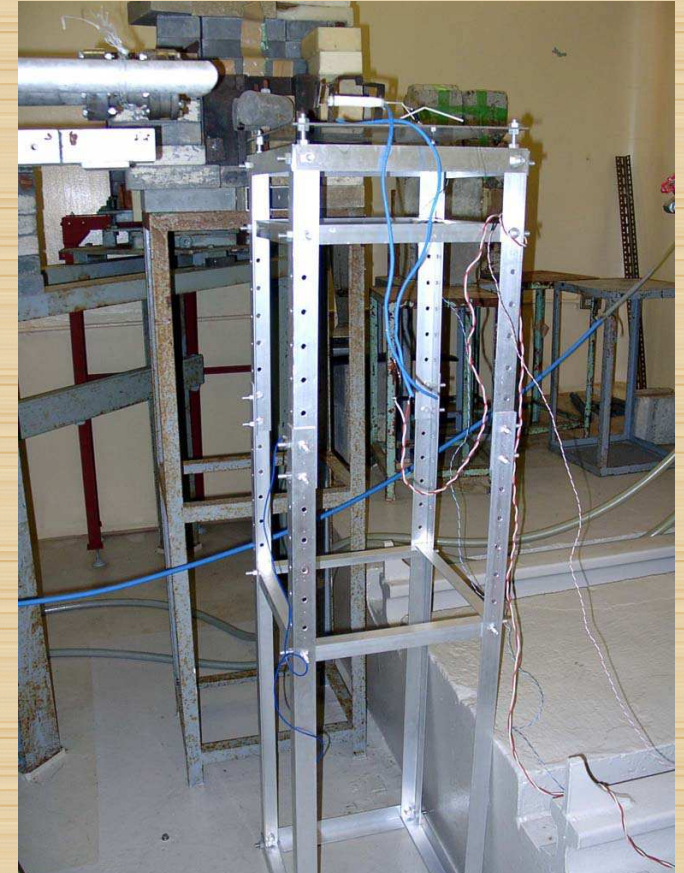
**High Temperature
Irradiation**

**Temperature Control:
Beam Frequency
+ Kanthal heater**

KURL0602



KURL0702



KURL0602: 1095°C

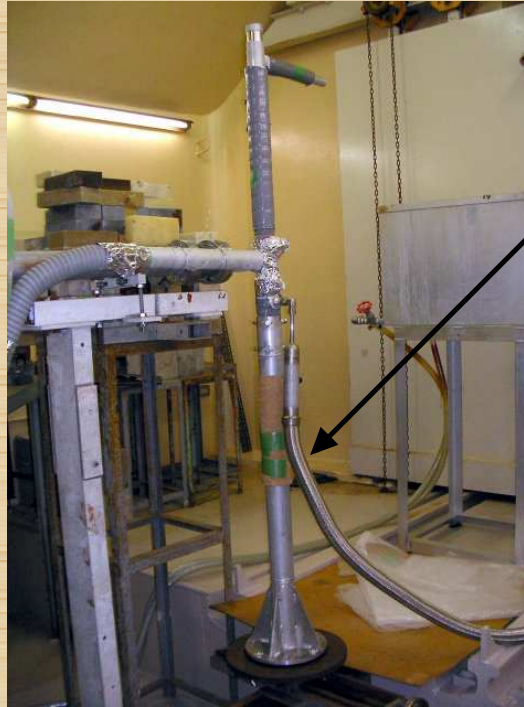
Quartz Glass tube and alumina cement, kanthal heater
30MeV, 3 μ s x 500mA x 30Hz (1.35kW)

KURL0702: 700°C

Alumina tube and alumina cement, kanthal heater
30MeV, 3 μ s x 530mA x 12Hz (0.57kW)

Low Temperature Irradiation

KURL0604: -165°C / 1.35kW
Liquid Nitrogen cooled system
30MeV, $3\ \mu\text{s}$ x 500mA x 30Hz



KURL0604

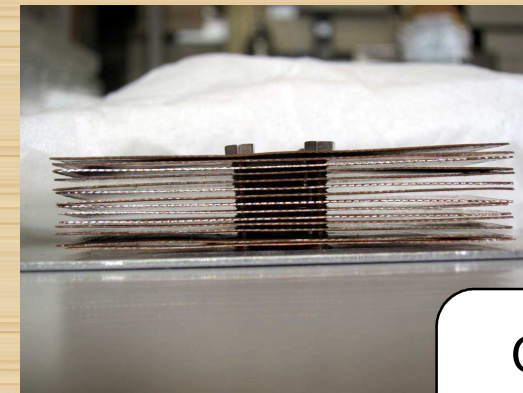
Liquid Nitrogen Supply



Cu heat sink in Water chamber

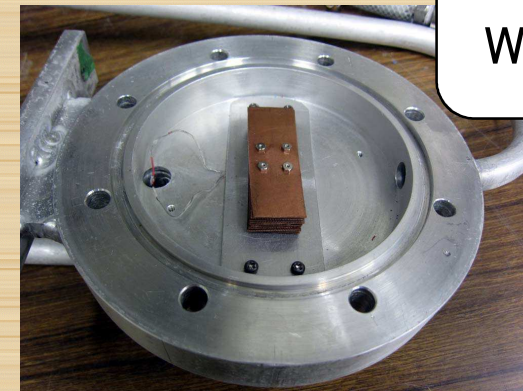
KURL1201: 80°C / 6.0kW
32MeV, $4\ \mu\text{s}$ x 590mA x 80Hz

KURL1401: 90°C / 4.7kW
28MeV, $4\ \mu\text{s}$ x 600mA x 70Hz



KURL1201
KURL1401

Cu Heat sink
put in
Water chamber



**Very Stable and
Established Irradiation
System**

**Medium Temperature
Irradiation Trial**

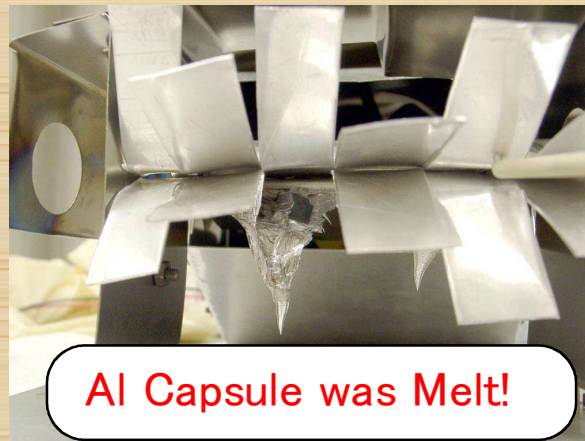
KURL0803: 380°C / 3.96kW
Air cooling system (Surface)
30MeV, 4 μ s x 550mA x 60Hz



KURL0603: 45°C / 1.35kW
Indirect Water cooling system
(Surface)
30MeV, 3 μ s x 500mA x 30Hz



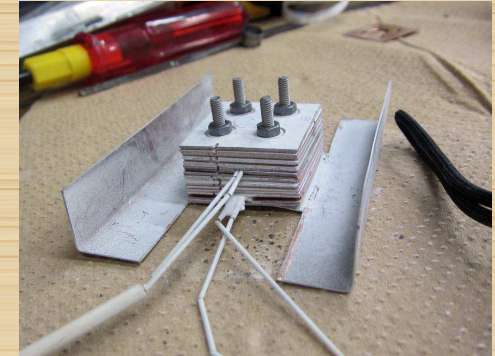
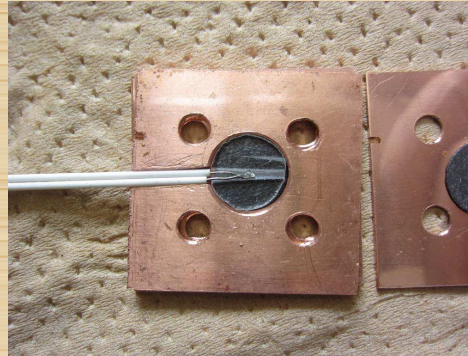
KURL0901: 480°C ? / 3.96kW
Air cooling system
(Fan controlled)
Al capsule and Al Heat sink
30MeV, 4 μ s x 550mA x 60Hz



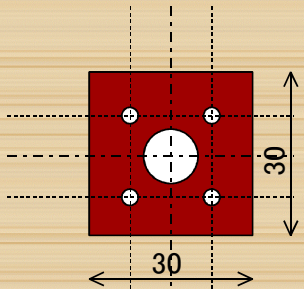
KURL0903: 350°C / 4.99kW
Indirect Water cooling system
Al water Jacket and Cu Capsule
30MeV, 4 μ s x 520mA x 80Hz



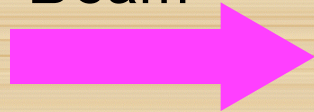
Medium Temperature Irradiation



$t = 0.7\text{mm}$
Cu Specimen Holder

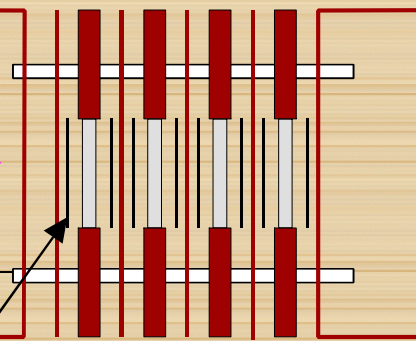


30MeV
Electron
Beam



□ 15mm Al
Square tube

Cooling Water

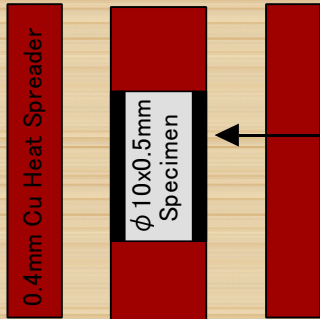


Ti screw and nut

Vertical orientated
Graphite seat
($90\text{ W/m}\cdot\text{K}$)

□ 15mm Al
Square tube

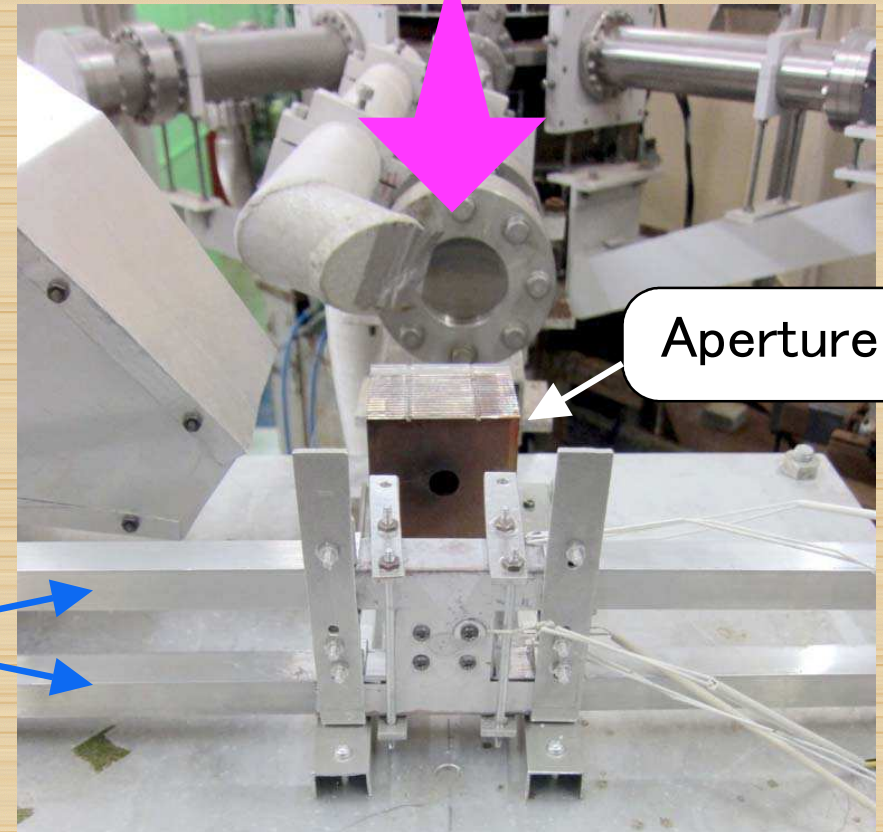
Cooling Water



0.4mm Cu Heat Spreader

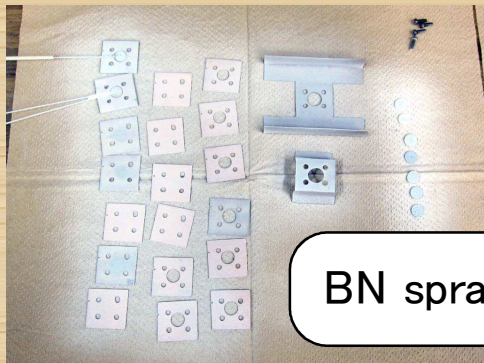
$\phi 10 \times 0.5\text{mm}$
Specimen

Beam



Aperture

Al water pipe



BN spray coating

Indirect Water cooling system Cu Heat sink and Al water pipe

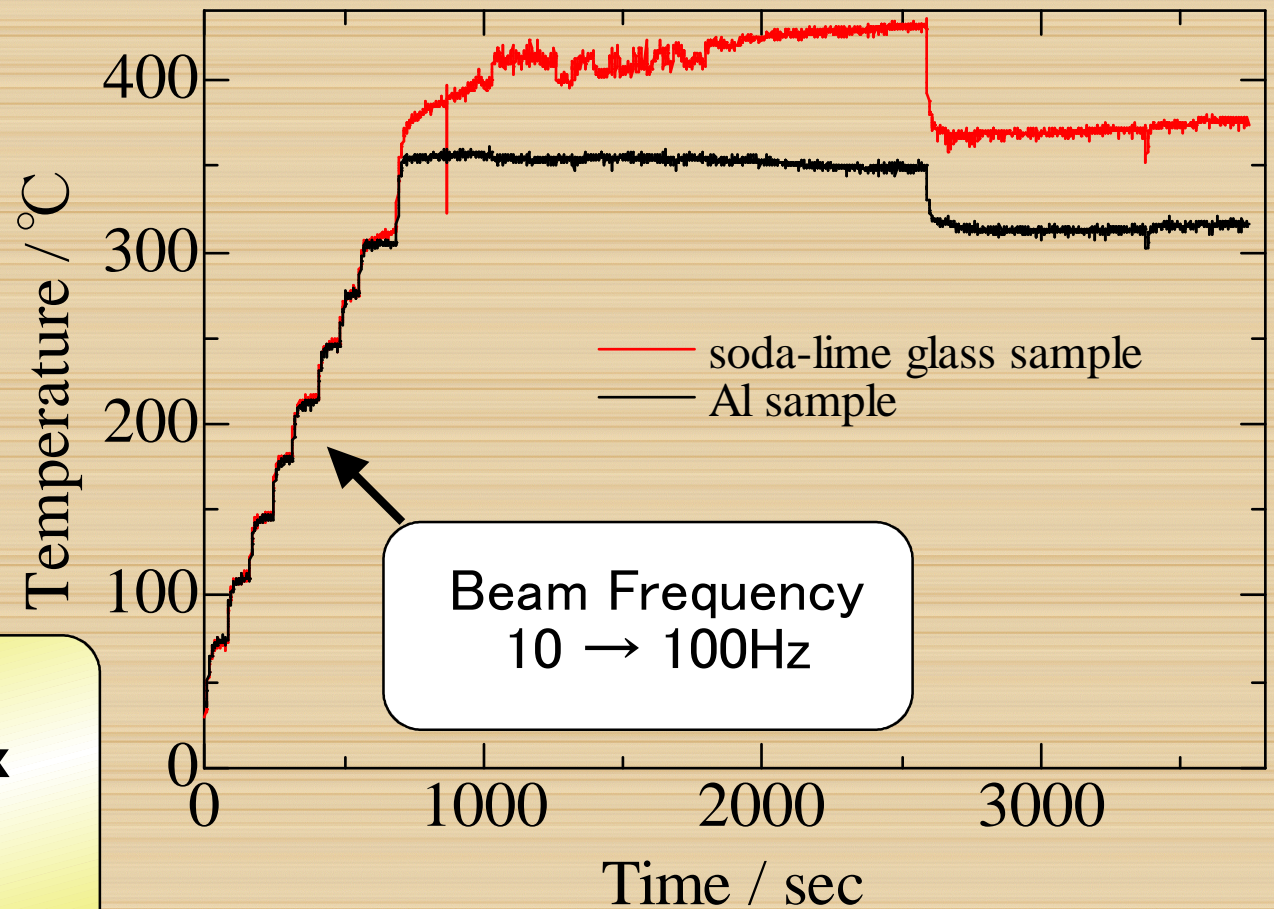
KURL1301: 300 °C / 5.84 kW
32MeV, 4 μ s x 570mA x 80Hz

KURL1302: 380 °C / 5.63 kW
32MeV, 4 μ s x 550mA x 80Hz

**Get over the high heat flux
(> 10 MW/m)**

**Achieved a reliable irradiation
at around 400°C**

KURL1302



Radio Activity

KURL1302: 2013/3/11 16:45 → 3/14 16:00 (non-stop)
32MeV 2.82×10^{20} e → 0.01 dpa

Surface dose rate:

2013/3/17: **14.2 mSv/h**

2014/4/14: **318 μ Sv/h**

Specimens:

Sapphire,

α -Al₂O₃ (Toray A-999),

AlN (Tokuyama SH-50, wo Y₂O₃),

β -SiC (Bridgestone Pure beta, p-type),

β -SiC (Tokai Carbon n-type translucent and non-translucent) ,

α -SiC (Nippon Steel 4H n-type single crystal)

Cu-64: $T_{1/2}$ 12.7h

Co-60: $T_{1/2}$ 5.27y

大阪府立大学 放射線研究センター

- 研究機関としては西日本で最大規模のCo-60線源（合計約3.7TBq）による γ 線照射施設を有する。
- 10MeVで平均電流50 μ Aの電子線ライナック
- 600keVで1mAのコッククロフト・ウォルトン型電子線加速器
- 多数の非密封RI取扱実験室

