

**2020/03/03**

**2019年度日米科学技術協力事業核融合分野事業報告会  
於 新橋ビジネスフォーラム**

# 中性子照射後積層試験片の 熱拡散率測定

秋吉 優史(大阪府立大学)

派遣期間: 2020/1/12 ~ 2/7 (27日間)



# HFIR RB19Jキャプセルにおける Gdシールドによる熱中性子抑制照射

核融合原型炉において問題となる、ダイバータ候補材料の熱負荷特性に及ぼす中性子照射効果を弾き出し損傷及び核変換効果の視点から明らかにすることを本研究の目的としている。

核融合炉ダイバータに於いてタングステン材料中の核変換量と弾き出し損傷量の比は0.08%/dpaと見積られているのに対し、軽水炉であるHFIRのFuel trap regionでは8.5%/dpaにも達する。核変換により生成されるRe,Osの影響を低減するため、比較的熱中性子束の少ないRB\*(large Removable Beryllium facility)において、Gdにより熱中性子をシールドした照射を行った (Gd-157(15.7%):  $2.5 \times 10^5$  barn, Gd-155(14.8%):  $6.1 \times 10^4$  barn)。

Fuel trap region:  $\phi_{\text{fast}} = 1.1 \times 10^{19} \text{ n/m}^2\text{s}$  ( $>0.1 \text{ MeV}$ ),  $\phi_{\text{thermal}} = 1.7 \times 10^{19} \text{ n/m}^2\text{s}$  ( $<0.5 \text{ eV}$ )

Rabit 照射は  
こちらで実施

RB\*:  $\phi_{\text{fast}} = 4.7 \times 10^{18} \text{ n/m}^2\text{s}$  ( $>0.1 \text{ MeV}$ ),  $\phi_{\text{thermal}} = 9.5 \times 10^{18} \text{ n/m}^2\text{s}$  ( $<0.5 \text{ eV}$ ) [1]

照射は2016/6/14から12/9まで4サイクル94日間、出力85MWで実施された。中性子束は試料を装荷したキャプセル中の高さにより異なり、それぞれの試料に対して計算と実測により照射量が評価されている。またタングステン中の弾き出しは高速中性子 ( $>0.1 \text{ MeV}$ )  $10^{25} \text{ n/m}^2$ あたり0.195dpaとして求められる[2]。

[1] T. Daly et al., Proc. of 2012 Advances in Reactor Physics Linking Research, Industry, and Education (PHYSOR 2012).

[2] Mohamed E.Sawan, Fusion Engineering and Design, 87(2012) 551-555.

# Re, Os 生成による熱拡散率低下

W-184 (n,  $\gamma$ ) W-185  $\rightarrow$   $\beta$  崩壊(75.1day)  $\rightarrow$  Re-185  
天然同位体比30.4%, 1.7barn

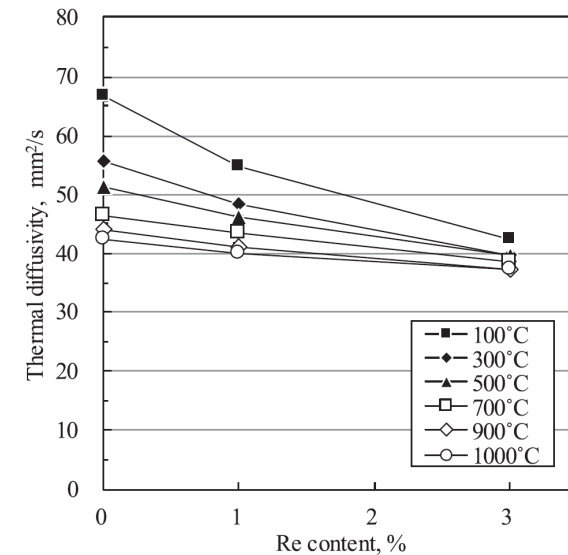
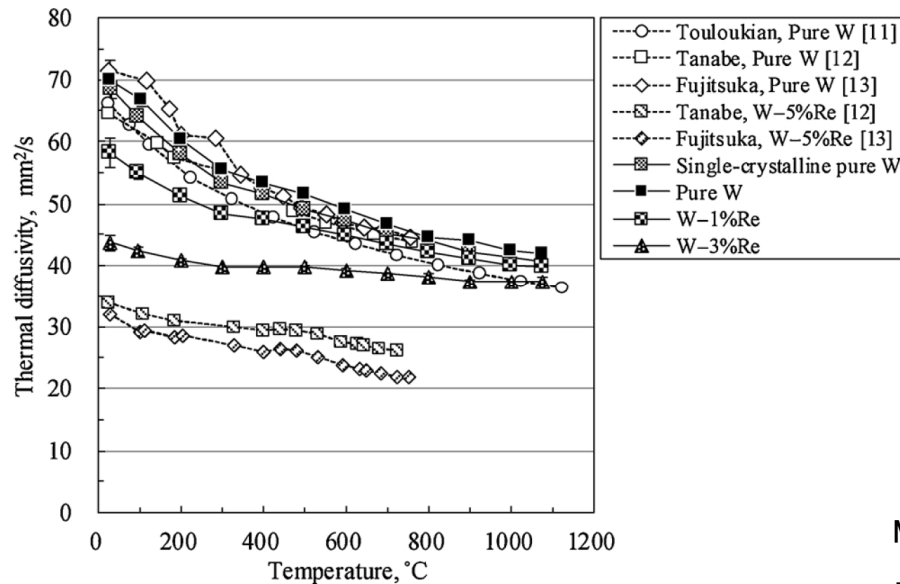
照射後の主要な放射性核種

W-186 (n,  $\gamma$ ) W-187  $\rightarrow$   $\beta$  崩壊(2.37h)  $\rightarrow$  Re-187  
天然同位体比28.4%, 38.1barn

Re-187 (n,  $\gamma$ ) Re-188  $\rightarrow$   $\beta$  崩壊(17h)  $\rightarrow$  Os-188  
天然同位体比62.6%, 76barn

Re-185 (n,  $\gamma$ ) Re-186  $\rightarrow$   $\beta$  崩壊(3.7d)  $\rightarrow$  Os-186  
天然同位体比37.4%, 112barn

Re, Os の生成により  
熱拡散率が大きく低下する



M. Fukuda et al., Fusion Engineering Design, 132 (2018) 1–6.

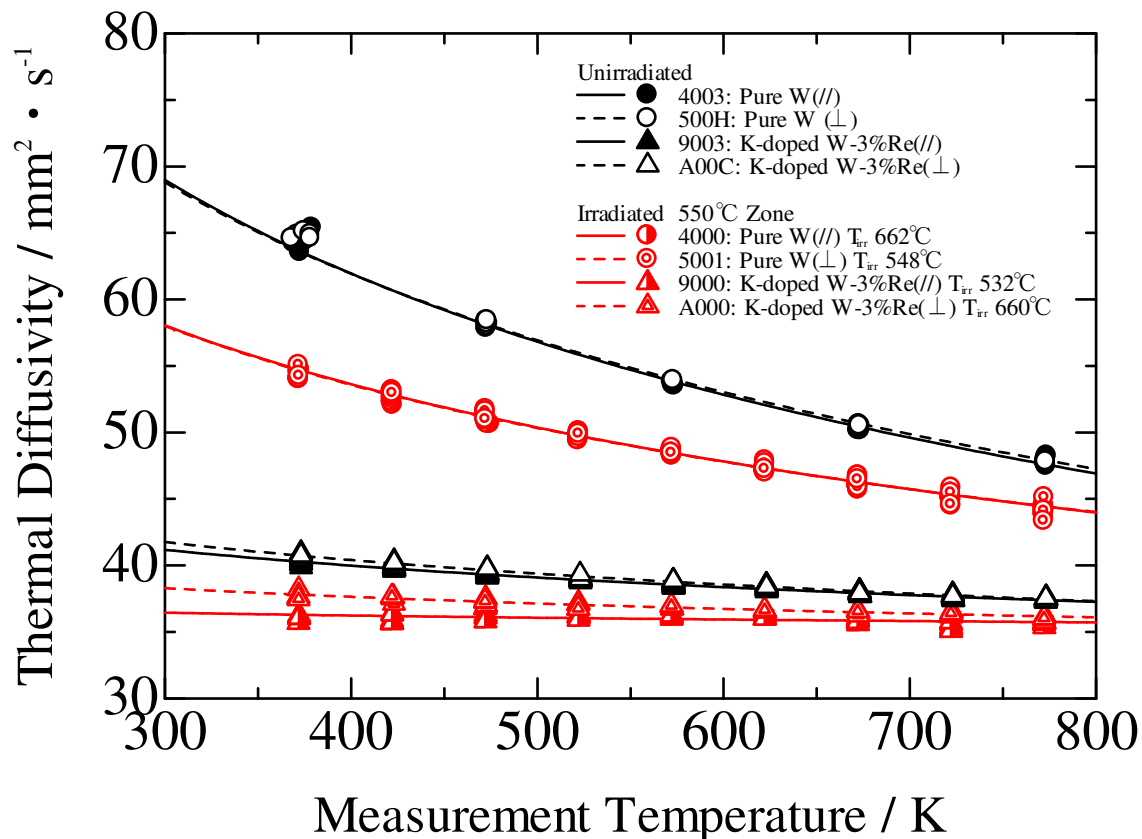
中性子吸収断面積は @0.0253eV, JENDL-4.0より

# HFIR 19J 照射後試料の測定結果

・HFIR 19J キャプセル 500°C zone でのD6T2サイズの照射試料に対して LFA-457により500°Cまでの測定を行った。

Specimen ID	Irradiation temperature (°C)	Neutron fluence ( $10^{25} \text{ n/m}^2 \cdot \text{s}$ )		Dose (dpa)		Component	Grain Orientation
		Calculated	Measured	Calculated	Measured		
4000	662	2.4	2.0	0.46	0.39	Pure W	//
5001	548	1.3	0.78	0.25	0.15	Pure W	⊥
9000	532	1.1	0.53	0.21	0.10	K-doped W-3%Re	//
A000	660	2.3	2.0	0.45	0.38	K-doped W-3%Re	⊥

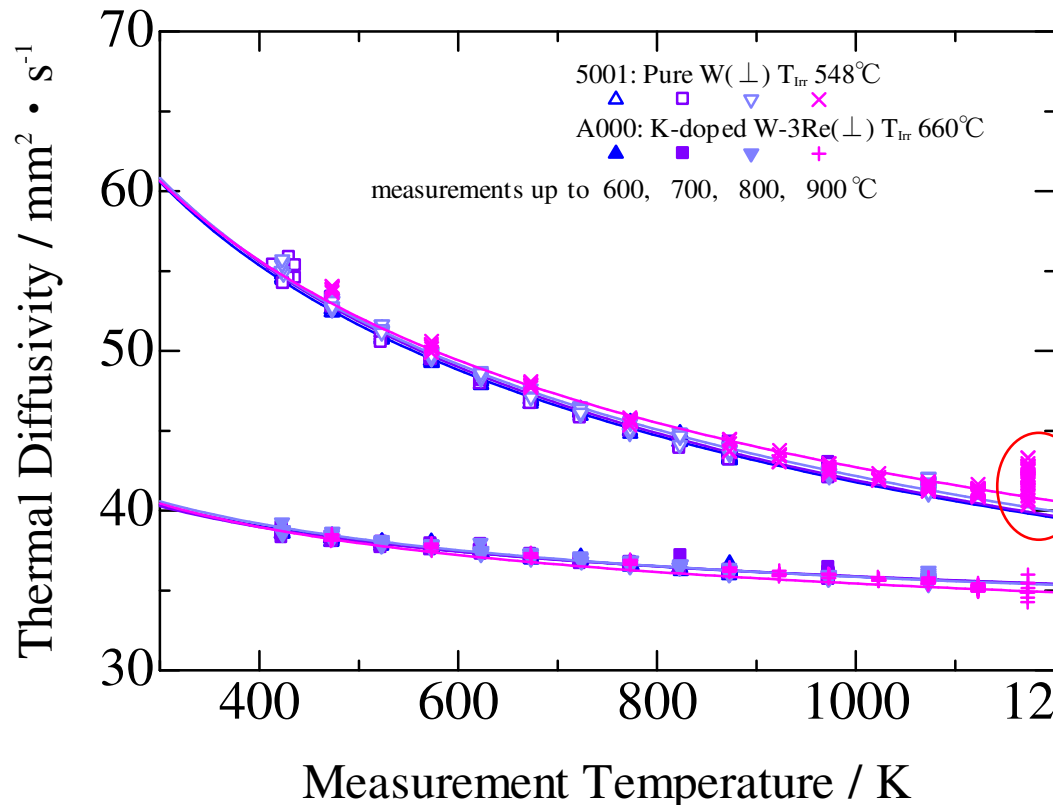
- ・照射後Pure W は未照射3%Re添加材よりも高い熱拡散率を示した。
- ・照射後の試料も高温では未照射試料との差が小さくなった。
- ・未照射試料では結晶方位による差はほとんど見られなかった。
- ・結晶方位の異なる試料は装荷位置が異なり、**損傷量が2倍程度異なるが、それでもほとんど違いが見られなかった。**



**弾き出し損傷による影響は限定的**

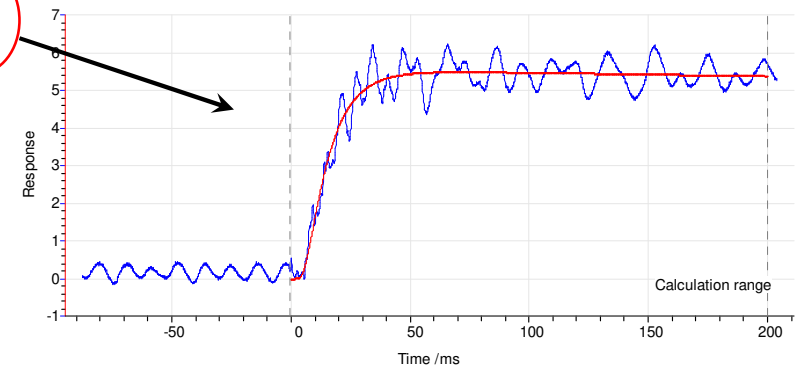
# 中性子照射後試料のアニール試験結果

前ページと同一の試料に対して、LFA-467HT によりアニール試験を行った。室温～目標温度まで測定を行いながら昇温後、1h以上キープ、降温後に翌日再度室温～昇温しながらの測定を繰り返し、温度依存性変化を評価した(等時アニール試験)。さらに1分ごとの測定を行いながらアニールをすることで等温アニールについても評価可能。



・800°Cまでのアニールで回復挙動は見られなかった。現在、1100°Cまでのアニール操作を継続中。

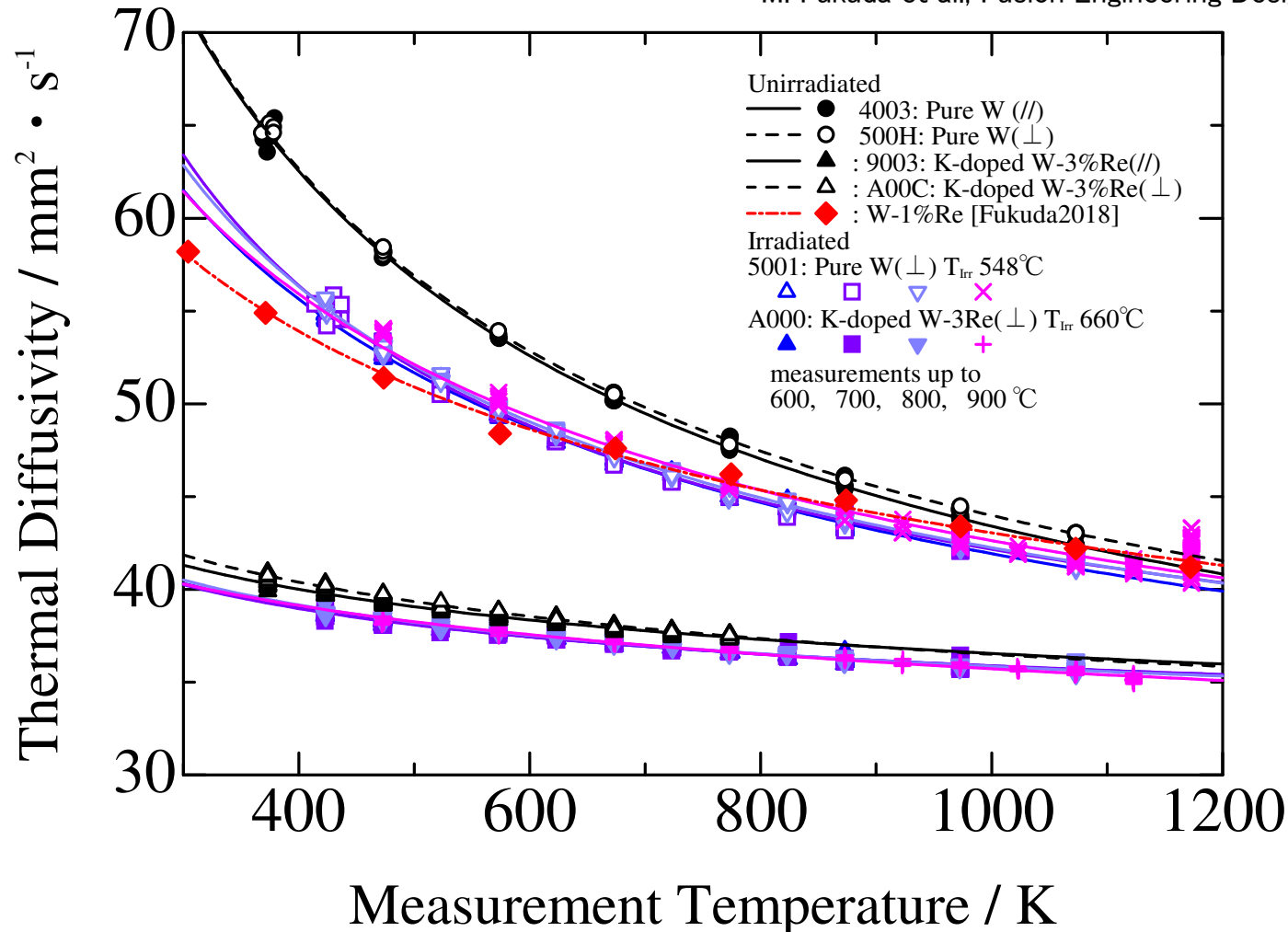
・900での測定に於いて、赤外線信号に周期的なノイズが乗る、Oscillation の問題が顕著となっており、現在それ以上の温度での測定を停止している。



欠陥量が少なく、フォノン伝導に対する寄与が殆ど無ければ、核変換量(及び核変換後の元素の分布状況)によって照射後の熱伝導が予測可能となる。

# 中性子照射後試料と1%Re添加材との比較

M. Fukuda et al., Fusion Engineering Design, 132 (2018) 1–6.



中性子照射後のPure W 試料は、未照射の W-1%Re 試料と非常に近い熱拡散率を示した。温度依存性が若干異なるが、点欠陥の影響か、Re分布状態の違いかは不明。

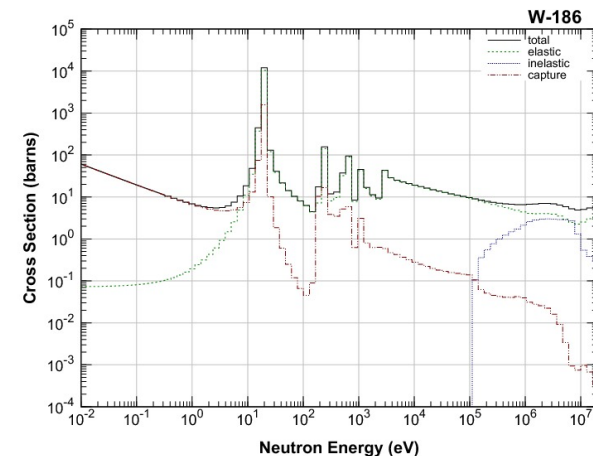
# 核変換生成量の考察

・RB-19J キャプセル内に設置した中性子線量計の実測により熱中性子束が得られている。残念ながら3本設置した線量計の一本が行方不明であり、2本の線量計から得られた線量でこれまで得られている二次式でのフィッティングを行うと、550°C Zoneでの熱中性子束は負の値となっている。

高さ 2.7cm で熱中性子 (< 0.5eV) は  $1.0 \times 10^{24}$  n/m<sup>2</sup>、10.3cmで  $5.8 \times 10^{23}$  n/m<sup>2</sup> と評価されており、550°C Zone は 17~25cm の高さであるため、**大まかに  $5 \times 10^{23}$  n/m<sup>2</sup>** として計算を行った。

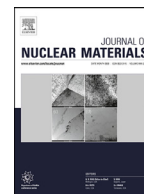
W-186 (n,  $\gamma$ ) W-187  $\rightarrow$   $\beta$  崩壊(2.37h)  $\rightarrow$  Re-187

のみを考慮すると、天然同位体比28.4%, 熱中性子 (0.0253eV) 吸収断面積38.1barn( $10^{-28}$ m<sup>2</sup>) から、**核変換量は0.05% 程度**と見積られた。実際には20eV付近で共鳴吸収を示しており0.5eV~10MeVの積分断面積は474barnある。さらにEpithermal 領域の中性子束は熱中性子よりも50倍程度高いため、Dailyらが照射前に行った見積では、550°C Zone の核変換量は **4cycleで 0.52%** となっている。Pure W 照射後試料に対する熱拡散率測定結果は、W-1%Reより若干高い程度の値となっており、**非常に良い一致を示している。**



JENDL-4.0 (JAEA) より





# Thermal diffusivity of irradiated tungsten and tungsten-rhenium alloys

Masafumi Akiyoshi<sup>a,\*</sup>, Lauren M. Garrison<sup>b</sup>, Josina W. Geringer<sup>b</sup>, Hsin Wang<sup>b</sup>, Akira Hasegawa<sup>c</sup>, Shuhei Nogami<sup>c</sup>, Yutai Katoh<sup>b</sup>

<sup>a</sup> Osaka Prefecture University, Sakai, Osaka 599-8570, Japan

<sup>b</sup> Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN 37831, USA

<sup>c</sup> Tohoku University, Sendai, Miyagi 980-8579, Japan

## ARTICLE INFO

### Article history:

Received 4 March 2020

Revised 16 September 2020

Accepted 8 October 2020

Available online 15 October 2020

### Keyword:

Thermal diffusivity  
Tungsten material  
Neutron irradiation  
Transmutation  
Lattice defect

## ABSTRACT

The Japan-US PHENIX project irradiated tungsten materials in the RB-19J capsule experiment in the High Flux Isotope Reactor (HFIR). A gadolinium (Gd) shielding was used to absorb the thermal neutrons and reduce rhenium and osmium generation in tungsten. Pure tungsten and K-doped W-3% Re samples were irradiated at 532 – 662 °C to dose of 0.21–0.46 dpa, with the grain orientation perpendicular or parallel to the disk surface. Thermal diffusivity measurements were performed from 100 °C to 500 °C. Additional measurements followed after annealing up to 900 °C. Irradiated pure tungsten specimens showed similar thermal diffusivity results compared with an unirradiated W-1% Re specimen in another study. The transmutation amount of Re was calculated to be about 0.52% for those specimens that showed good agreement with this study. Specimens irradiated in this study to different doses presented almost the same thermal diffusivity. Annealing up to 800 °C resulted in no recovery of thermal diffusivity. These results show that the contribution of crystalline defects to degradation of thermal diffusivity is quite limited. In addition, the thermal diffusivity of the irradiated specimens was getting close to that of the unirradiated specimens at elevated temperature.

© 2020 Elsevier B.V. All rights reserved.

## 1. Introduction

Neutron irradiation introduces various changes in the physical properties of materials. Thermal diffusivity is an important property to consider as it is key in the divertor design for a fusion reactor. High heat transfer ceramic materials such as SiC or AlN showed severe degradation in thermal diffusivity after neutron irradiations [1–3]. In these materials, heat is mainly carried by phonon, and the heat transfer is disturbed by neutron induced defect with phonon-lattice scattering.

Tungsten is the primary candidate material for divertor in which some part of heat is carried by phonons like ceramics, and the other part is carried by electron like other metals. In fusion reactors neutron irradiation will induce both crystalline displacement defects and transmutation reactions producing rhenium and osmium. It was reported that the thermal diffusivity of tungsten is strongly reduced by additional elements in the alloy [4]. It is important to understand these effects independently for developing tungsten materials for fusion reactors. Currently, there is limited

available data of tungsten on thermal diffusivity after neutron irradiation [5]. Furthermore, the existing irradiations were performed in fission test reactor with different neutron energy spectra from a fusion reactor. In a fission reactor, the ratio of thermal neutrons that induce transmutations to fast neutrons that induces crystalline defects is relatively higher than that in a fusion reactor. In the case of tungsten materials, the total solid transmutation rate in a fusion divertor is 0.08 %/dpa, while it is about 8.5 %/dpa in the fuel trap region of the HFIR at Oak Ridge National Laboratory (ORNL) [6]. Moreover, it has been reported that specimens irradiated in light-water fission reactors had different microstructures from materials irradiated in fast reactors [7].

Therefore, the US-Japan collaboration project PHENIX irradiated tungsten materials in the RB-19J capsule experiment in the HFIR. The capsule was lined with a 1 mm thick gadolinium (Gd) metal liner. It was located on the inside of the capsule housing and surrounded the specimen holders. Its purpose was to serve as a thermal neutron shield to modify the fast/thermal neutron ratio over the life of the experiment and controlling the rhenium (Re) and osmium (Os) transmutations [8,9].

\* Corresponding author.

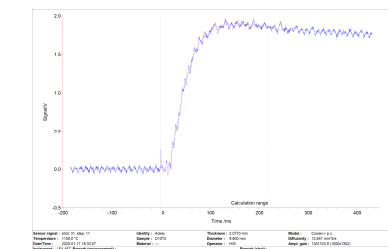
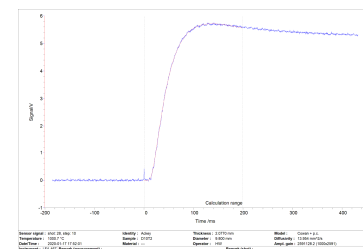
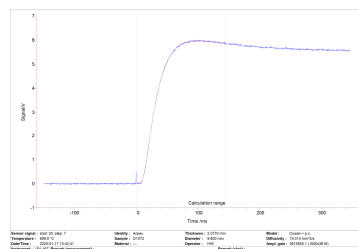
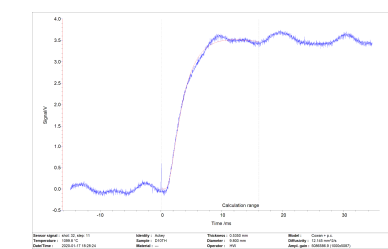
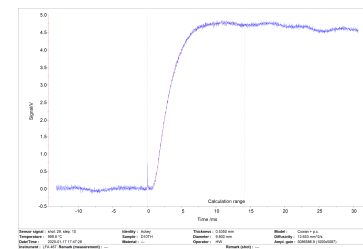
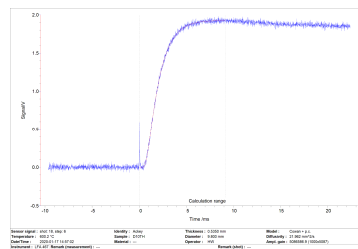
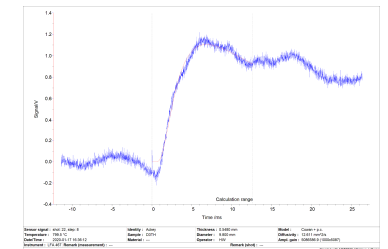
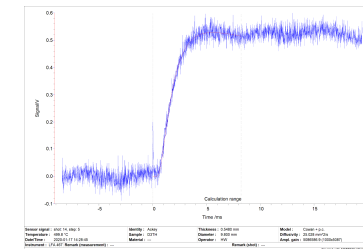
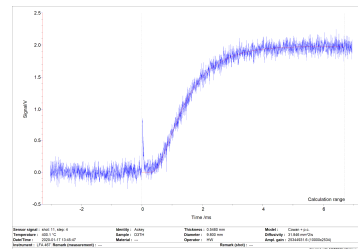
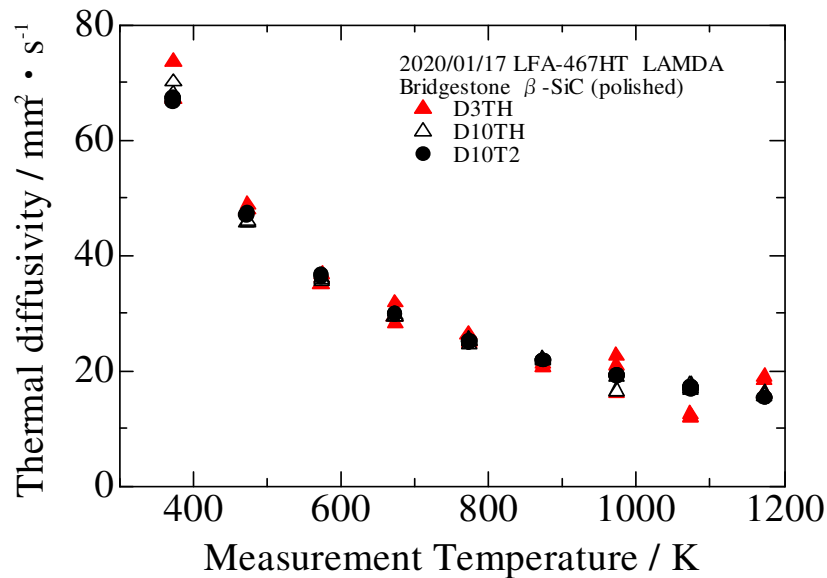
E-mail address: [akiyoshi@riast.osakafu-u.ac.jp](mailto:akiyoshi@riast.osakafu-u.ac.jp) (M. Akiyoshi).



# Oscillation問題の検証

熱拡散率測定時のフラッシュ後の温度上昇曲線(赤外線信号)に、周期的な振動が発生する。微小試料に於いて相対的に振動強度が高く、測定不能になる。

高温においてW試料に塗布したカーボンコーティングがCO<sub>2</sub>となり飛んでしまう問題と切り分けるために、元々表面が黒くコーティング不要なSiC試料の測定を行った。



SiC試料に於いてもOscillationは発生した。元々の赤外線信号強度は測定面積と絶対的な温度上昇量に依存する。薄板試料に於いてフラッシュパルスのパルス幅が小さ過ぎると十分な信号強度が得られない可能性がある。

# 今後の展開

- ・パルス幅の調整、アンプゲインの制御などによりOscillation を可能な限り低減すると共に、測定ショット数を増やして統計処理することで測定の信頼性を向上する。
- ・1100°Cまでのアニール試験を行い、点欠陥の影響を確認する。(生成したReの分布状態が変化する可能性もあり、微構造観察が必要)

・電気伝導度測定 → 核変換による不純物の影響評価

・陽電子消滅寿命測定 → 空孔導入状態の評価

・電子線照射 → 格子欠陥(点欠陥のみ)の導入による影響評価

などと組み合わせることで、と核変換による不純物の影響と格子欠陥による影響とをより明確に分離可能であると考えられる。

・いずれにしても1000°C程度の高温では照射後と未照射の材料の熱拡散率の違いは小さい。工学的にはそれほど大きな問題とはならないと考えられる。

・微小試験片での高温測定を可能とした後に、微小積層試料の測定を行い、界面の評価を行う。