

共同利用研究経過報告書

平成20年度

—第25回 平成21年7月—

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

まえがき

本センター（量子エネルギー材料科学国際研究センター：旧材料試験炉利用施設）は、東北大学金属材料研究所の附属施設として日本原子力研究開発機構（JAEA）の大洗研究開発センター構内に位置し、主に JAEA の材料試験炉（JMTR）及び高速実験炉（JOYO）を利用して原子力材料の研究を進めてまいりました。毎年 60～70 件の研究課題を採択し、共同利用者の延べ人数は年間約 2000～3000 人・日に達しています。

共同利用の課題募集は毎年一回（11月）行っております。募集に先立ち例年9月に大洗研究会を開催し、前年度の共同利用研究の成果をご報告いただくと共に次年度の研究計画を討論して頂き、次年度の課題募集に共同利用者のニーズを反映できるよう努めています。応募を受けた研究課題は、所外委員を含む複数の委員による評価の後、採択専門委員会及び共同利用委員会の審議を経て採否を決定しております。

JMTR は平成 23 年度の運転再開を目指して改修作業中で、原子炉関連機器の補修及び高度照射設備の新設を進めております。この間 JAEA 東海の JRR-3 やベルギー国原子力研究所（SCK/CEN）の BR2 等の原子炉で照射実験を続けることにより JMTR 休止中の影響を極力抑制しています。BR2 の BAMI キャプセルでは、国内の原子炉では不可能であった高フルエンス、低温の照射技術を確立しました。20 年度には、老朽化した走査型電子顕微鏡及び X 線回折装置等を更新して照射後試験設備の充実を図り、JMTR の運転再開に備えることができました。また、アクチノイド元素関連研究では、研究基盤整備の一環として全国研究ネットワーク整備（J-ACTINET）を進めています。本ネットワークにより外部の研究組織及び設備をより有機的に結び付けた研究展開が図れるものと期待しております。

本報告書は平成 20 年度の大洗センターにおける共同利用研究成果をとりまとめたものです。本報告書をご一読頂き、今後のセンター運営に関して忌憚のないご意見を頂ければ幸いに存じます。

センター長 四竈 樹男

共同利用研究経過報告書（20年度） 目次

I. 軽水炉関連材料

- 1 電磁計測技術による圧力容器鋼およびモデル合金の照射損傷組織の非破壊評価
岩手大学工学部附属金属材料保全工学研究センター 鎌田康寛
- 2 軽水炉寿命延長時における照射脆化支配因子の検討
京都大学エネルギー理工学研究所 木村晃彦、笠田竜太
- 3 3次元アトムプローブと陽電子消滅法による原子炉材料の広領域解析
東北大学金属材料研究所 永井康介、井上耕治、畠山賢彦、外山健
土屋直柔、蔵本明、高見沢悠、長谷川雅幸
- 4 原子炉圧力容器鋼溶接熱影響部における粒界偏析に注目した照射脆化の評価
日本原子力機構 西山裕孝、勝山仁哉、鬼沢邦雄
東北大学金属材料研究所 永井康介、長谷川雅幸
- 5 三次元アトムプローブによる原子力用低炭素ステンレス鋼の
応力腐食割れ機構に関する研究
日本原子力機構 近藤啓悦、三輪幸夫、大久保成彰、塚田隆
- 6 クリアランスレベル以下にするための低放射化材料設計
東北大学大学院工学研究科 長谷川晃、佐藤学、野上修平
- 7 超臨界圧軽水冷却原子炉の材料開発
東北大学金属材料研究所 四竈樹男、佐藤裕樹、栗下裕明、鳴井実
二田伸康、笠原茂樹、金田潤也、鹿野文寿、阿部由美子
- 8 微小き裂成長挙動に基づく低放射化フェライト鋼の疲労寿命評価
東北大学大学院工学研究科 野上修平

II. 核融合炉関連材料

- 1 HFIR で温度変動照射したバナジウム合金の損傷組織
東北大学金属材料研究所 佐藤祐樹、末光洋一郎、松井秀樹
- 2 バナジウム合金の照射効果に及ぼすイットリウム添加の影響
東北大学大学院工学研究科 佐藤学
- 3 レーザー溶接されたY添加低放射性バナジウム合金の中性子照射効果
九州大学応用力学研究所 渡辺英雄、吉田直亮
- 4 低放射化バナジウム合金の照射熱処理による機能修復
福井大学大学院工学研究科 福元謙一
- 5 タングステン被覆接合したバナジウム合金の機械的性質
東北大学大学院工学研究科 佐藤学、佐藤隆司、長谷川晃
- 6 HFIR 照射したバナジウム合金溶接部材の強度特性と微細組織
核融合科学研究所 室賀健夫、長坂琢也
総合研究大学院大学 李艶芬

- 九州大学応用力学研究所 渡辺英雄
- 7 核融合炉用低放射化材料被覆部材・異種接合材の照射効果
核融合科学研究所 室賀健夫、長坂琢也、菱沼良光、田中照也
九州大学応用力学研究所 渡辺英雄
総合研究大学院大学 李艶芬
東北大学大学院工学研究科 原法義
- 8 核融合炉用炭素材料の中性子照射効果
近畿大学理工学部 渥美寿雄
九州大学大学院総合理工学府 田辺哲朗
東北大学金属材料研究所 四籠樹男
富山大学水素同位体科学研究センター 波多野雄治
兵庫教育大学大学院 庭瀬敬右
- 9 先進核融合ブランケット用鉄鋼材料の接合被覆界面における照射影響評価
京都大学エネルギー理工学研究所 木村晃彦、笠田竜太、Noh Sanghoon
- 10 超微細結晶粒・ナノ粒子分散組織を有する高融点合金の微細組織変化
および相変態に及ぼす中性子照射効果
愛媛大学大学院理工学研究科 仲井清眞、小林千悟、阪本辰顕
古野智也（大学院）、梶岡道生（大学院）
東北大学金属材料研究所 栗下裕明、鳴井実、山崎正徳
- 11 耐照射特性、低温靱性および高温強度に優れた高融点遷移金属の開発
東北大学金属材料研究所 栗下裕明、荒川英夫、鳴井実、山崎正徳
愛媛大学理工学研究科 阪本辰顕、小林千悟、仲井清眞
岡山理科大学理学部 平岡裕
- 12 多段内部窒化－酸化法により組織制御した Mo 合金の耐照射特性
応用科学研究所 長江正寛、仲山裕之
東北大学金属材料研究所 鳴井実、栗下裕明
- 13 核融合炉高熱流束機器用タングステン合金における照射効果に
及ぼす固体核変換元素の影響
東北大学大学院工学研究科 長谷川晃、丹野敬嗣、賀建超、藤原充啓
佐藤学、野上修平、阿部勝憲
東北大学金属材料研究所 宍戸統悦
- 14 核融合反応で生成したアルファ粒子計測のためのシンチレータへの
中性子照射損傷の解明
核融合科学研究所 西浦正樹、長坂琢也、井戸毅
京都大学 山本聡
東北大学金属材料研究所 四籠樹男、鳴井実
東北大学大学院工学研究科 笹尾真実子
大阪大学大学院工学研究科 藤岡加奈、藤本靖、中塚正大

- 15 超伝導マグネット材料の照射効果
核融合科学研究所 西村新、室賀健夫、長坂琢也、菱沼良光、田中照也
物質材料研究機構 竹内孝夫
大阪大学大学院工学研究科 西嶋茂宏
東北大学金属材料研究所 四竈樹男、栗下裕明、渡辺和雄、西島元
- 16 低放射化鉄鋼材料の疲労挙動に及ぼす中性子照射の影響
京都大学エネルギー理工学研究所 香山晃、金東賢、檜木達也
日本原子力機構 金思雄
東北大学金属材料研究所 鳴井実
- 17 次世代原子力エネルギー用 SiC/SiC 複合材料及び SiC の中性子照射効果
京都大学エネルギー理工学研究所 香山晃、檜木達也、小沢和己
川島悠右、小柳孝彰
東北大学金属材料研究所 鳴井実

Ⅲ. 照射基礎・他

- 1 ジルコニウム基金属ガラスのアモルファス構造に対する中性子照射効果
東北大学金属材料研究所 土屋文、四竈樹男、永田晋二、鳴井実、山崎正徳
- 2 Zr 基バルク金属ガラスの中性子照射による機械的性質の変化
兵庫県立大学工学研究科 山崎徹、山田昌弘 (院生)
東北大学金属材料研究所 横山嘉彦、栗下裕明、鳴井実、山崎正徳
- 3 Pd-P 基および Zr 基バルク金属ガラスの構造緩和に及ぼす中性子損傷効果
東京理科大学 春山修身
東北大学金属材料研究所 栗下裕明、木村久道、川崎雅司、湯蓋邦夫
九州工業大学 高原良博
- 4 原子空孔の動きが活発でない温度領域における金属中の照射損傷構造発達過程の解明
京都大学原子炉実験所 義家敏正、徐虫レ、佐藤紘一
- 5 ^{197}Au メスバウアー分光による Au クラスターの研究
京都大学原子炉実験所 小林康浩
東北大学金属材料研究所 本間佳哉
東京大学大学院総合文化研究科 小島憲道
- 6 三次元アトムプローブによる超急速短時間加熱鋼の炭化物微細分散効果の検証
岡山県立大学 福田忠生、尾崎公一
東北大学金属材料研究所 永井康介、外山健
- 7 シリカ系光学材料の中性子照射効果
東京工業大学原子炉工学研究所 矢野豊彦、吉田克己
- 8 陽電子消滅、電子スピン共鳴、光吸収法による
シリコンおよびガラスの低温電子線照射欠陥の研究
東北大学金属材料研究所 井上耕治、長谷川雅幸、永井康介、畠山賢彦
外山健、武内伴照、土屋直柔、高見澤悠、蔵本明

- 9 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法による岩石・鉱物の形成年代測定
 山形大学理学部地球環境学科 岩田尚能、齋藤和男
 海洋研究開発機構 佐藤佳子、熊谷英憲、羽生毅
- 10 中性子照射を利用した ^{40}Ar - ^{39}Ar および I-Xe 法による隕石・地球鉱物の年代測定
 東京大学大学院理学研究科 長尾敬介、角野浩史、平野直人
 関東学園大学 瀧上豊
 産業技術総合研究所 石塚治
- 11 中性子照射による配向性 AlN の機械的特性変化に関する研究
 物質・材料研究機構 鈴木達、打越哲郎、目義雄
- 12 陽子線励起圧力波抑制バブリング用メゾノズル付き高融点金属材料の開発
 日本原子力機構 二川正敏、勅使河原誠、粉川広行、長谷川勝一
 東北大学金属材料研究所 栗下裕明、荒川英夫
 茨城大学工学部 大曾根龍次、Ahmed Bucheeri、前川克廣

IV. 革新炉関連材料

- 1 炭素系材料の組織と特性に及ぼす照射損傷効果とその焼鈍効果の究明
 茨城大学工学部 車田亮
- 2 先進原子力システム用ナノ酸化物粒子分散強化鋼における照射効果
 京都大学エネルギー理工学研究所 木村晃彦、笠田竜太、Lee Jaehoon
- 3 水素化物中性子吸収材の開発
 東北大学金属材料研究所 小無健司、鳴井実、土屋文
 大阪大学大学院工学研究科 黒崎健
 東京大学大学院工学研究科 鈴木昌大
 日本原子力機構 勅使河原誠

V. アクチノイド

- 1 固体抽出剤によるクロマトグラフィーを用いたランタノイドとアクチノイドの分離
 東京工業大学原子炉研 鈴木達也、田中真以子
 東北大学金属材料研究所 山村朝雄、本間佳哉、白崎謙次
- 2 緩衝材中のアクチノイド元素の移動に関する研究
 九州大学大学院工学研究院 出光一哉、稲垣八穂広、有馬立身
 池内宏知、秋山大輔
 東北大学金属材料研究所 原光雄
- 3 マイナーアクチノイド含有酸化物燃料照射挙動の微視的観点からの評価
 日本原子力機構 逢坂正彦
- 4 ウラン化合物磁性記憶材料の探索と物性研究
 東北大学金属材料研究所 李徳新、本間佳哉、山村朝雄
 物質・材料研究機構 二森茂樹
 京都大学・人間・環境学研究科 小山田明

- 5 超ウラン化合物の超音波による研究
岩手大学大学院工学研究科 中西良樹、吉澤正人
- 6 α 線放出核種の内用放射療法への適応
金沢大学医学系研究科 鷺山幸信、天野良平
金沢大学医学部 永井里佳、小田雄一
金沢大学学際科学実験センター 小川数馬
東北大学金属材料研究所 山村朝雄、佐藤伊佐務
- 7 強相関アクチノイド化合物の物理と化学の研究
日本原子力機構 芳賀芳範
- 8 メスバウアー分光による強相関物質の研究 (II)
東北大学金属材料研究所 本間佳哉、小無健司
日本原子力機構 中田正美、逢坂正彦、赤堀光雄、中村彰夫、芳賀芳範
大阪大学基礎工学部 那須三朗
フランス原子力庁 青木大
- 9 ウラン電池に使用するウラン錯体 (III価、V価) と隔膜に関する研究
東北大学金属材料研究所 山村朝雄、大田卓、白崎謙次
李徳新、塩川佳伸
- 10 核燃料リサイクルへの超臨界水利用技術の応用に関する研究
東北大学金属材料研究所 山村朝雄、白崎謙次、森知紀
杉山亘、佐藤伊佐務
- 11 未知中性粒子の探索実験
高エネルギー加速器研究機構 三浦太一、菅井勲、川上宏金
東北大学金属材料研究所 鈴木吉光、渡部信
- 12 常磁性体 NpCd_{11} の巨大磁気抵抗効果の研究
大阪大学大学院理学研究科 摂待力生
- 13 アクチノイド及びランタノイドの水溶液化学
東北大学金属材料研究所 佐藤伊佐務、原光雄
静岡大学理学部 宮下直、矢永誠人、菅沼英夫、奥野健二

VI. 関連論文

論文リスト

掲載論文

VII. 資料

共同利用募集

採択一覧

I . 軽水炉関連材料

電磁計測技術による圧力容器鋼およびモデル合金の照射損傷組織の非破壊評価

研究代表者 岩手大学工学部附属金属材料保全工学研究センター 鎌田康寛

1. 背景と目的

原発の長期利用に伴い、軽水炉圧力容器の健全性評価に使われている監視試験片の不足が懸念される。その対策の1つとして我々は電磁気的非破壊評価法の利用について検討している。本課題はその基礎研究として、圧力容器材 A533B 鋼およびモデル合金の、照射前後での機械特性・損傷組織と磁気・超音波特性の関係を解明することを目的としている。本年度は、引き上げ照射後の硬度試験・TEM 観察を行い、硬度・組織の照射量依存性を調べ、以前行った照射中その場磁気計測により得られている磁気特性の変化挙動[1]と比較した。

2. 実験方法

照射中その場磁気計測実験と同一試料の、A533B 鋼 (Cu 濃度 0.16%) および純鉄に対して、290°C、5 条件 (05 M-16U : 照射時間 47~1197h, 照射量 $0.3\sim 9.9\times 10^{19}\text{n/cm}^2$) で JMTR 照射した。それらのビッカース硬度を測定した。純鉄については TEM 観察を行った。

3. 実験結果

その場磁気計測により得られた保磁力の照射量依存性を図 1 に示す。A533B 鋼では初期の増加後、緩やかに減少したのに対し、純鉄では照射量とともに単調に増加した[1]。引き上げ照射実験 (05M-16U) により得られた硬度の照射量依存性を図 2 に示す。あわせて前回の実験 (02M-72A, 03M-43A) の硬度を示した (白抜き印)。今回得られた硬度の照射量依存性は、前回の結果と同様の傾向を示しており、照射実験の再現性が確認できた。A533B 鋼および純鉄ともに照射により硬度が増加したが、純鉄では照射直後に増加した後はほとんど変化しなかった。これは保磁力の単調な増加挙動 (図 1) と大きく異なる。図 3 に純鉄の TEM 写真を示す。低照射試料では照射欠陥をはっきり確認できなかったが、高照射試料では転位ループが観察された (図 3(b) 矢印)。純鉄の硬度および保磁力の照射量依存性の違いは、前者が転位ループの数密度変化、後者がサイズ変化と関係することによって考えている。

参考文献：

[1] S.Takahashi et al., J. Appl. Phys. 100 (2006) pp 023902 1-6.

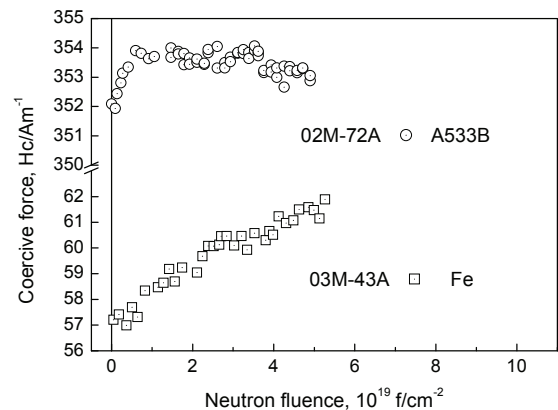


図 1 保磁力の照射量依存性

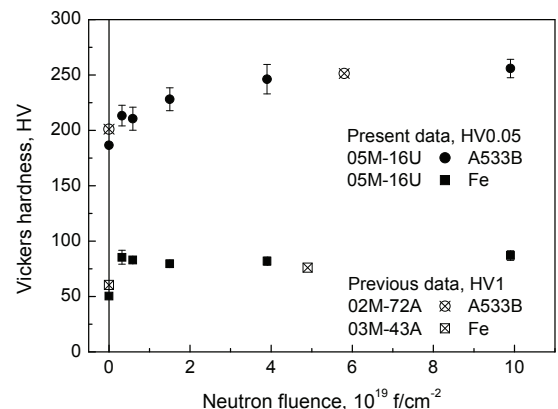


図 2 硬度の照射量依存性

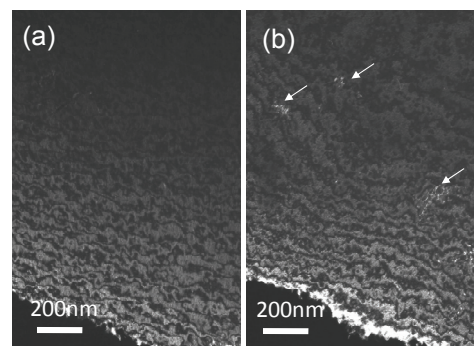


図 3 照射した純鉄の TEM 写真 (a) $0.3\times 10^{19}\text{n/cm}^2$, (b) $9.9\times 10^{19}\text{n/cm}^2$

軽水炉寿命延長時における照射脆化支配因子の検討

京都大学エネルギー理工学研究所 木村晃彦、笠田竜太

(背景)現在までに、圧力容器(RPV)鋼に含まれる元素個別の照射硬化や微細組織発達に与える影響の抽出を目的に共同利用研究を行った成果として、JMTRにおいて照射したFe-Mn系モデル合金において顕著な照射硬化が確認され、モデル合金中のMnがマトリクス損傷の生成・成長過程に大きな影響を与えていることを明らかにした。しかしながら、実機RPV鋼(特に低Cu材)におけるマトリクス損傷の形態に及ぼすMnやその他の合金元素の影響は明らかになっていない。そこで、平成20年度においては、試験炉照射したRPV鋼やモデル合金における照射硬化挙動やマトリクス損傷の発達挙動を、材料強度試験、透過型電子顕微鏡試験(TEM)、陽電子消滅法(PAS)等によって調査し、試験炉レベルの高損傷速度領域における高経年化RPV鋼におけるマトリクス損傷に起因する照射硬化挙動を明らかにすることを目的として研究を進めた。

(実験方法)JMTRにおいて、01M-02U、02M-52U、02M-54U、04M-16U、04M-17Uにおいて、Fe-Mn系モデル合金に対して照射温度290°Cで中性子照射を行った。照射後試験として、引張試験、TEM組織観察、PASを実施した。

(実験結果・考察)照射硬化量の照射量依存性を図1に示す。横軸は中性子照射量をdpaに置き換えた値、縦軸は降伏応力の非照射材からの増加量を示しており、D.E.Alexanderらによる低線量試験結果と合わせて示してある^[1]。0.1dpa付近においてFe-Mn合金の照射硬化量が急激に増加していることがわかる。図2に04M17U($5.0 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$)で中性子照射したFe-1.4MnのTEM組織観察結果を示す。図から、Fe-1.4Mnでは転位ループ(マトリクス損傷)が微細化かつ高密度化していることが分かる。

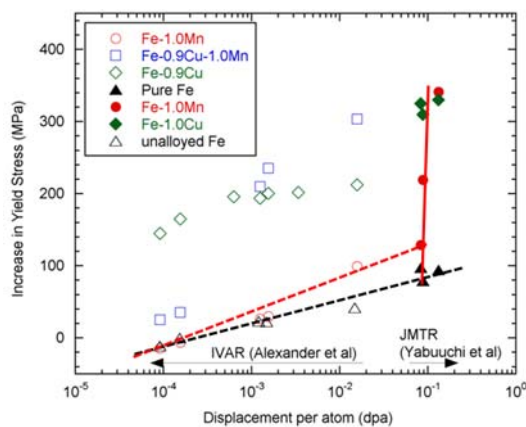


図1 Fe-Mn系モデル合金の降伏応力変化量の照射量依存性

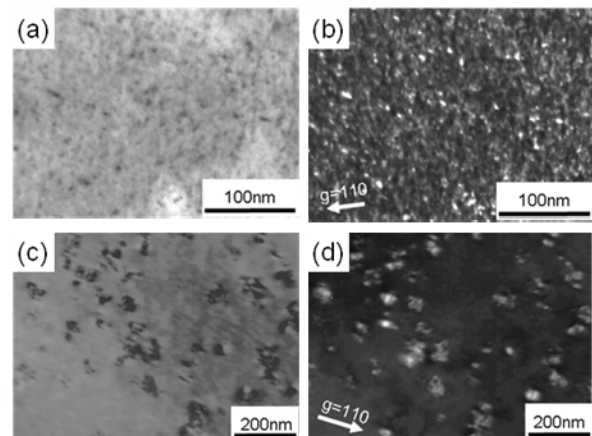


図2 Fe-1.4MnおよびPure-FeのTEM組織観察結果(照射量; $5.0 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$)

(a)Fe-1.4Mn(B.F.) (b)Fe-1.4Mn(D.F.) (c)Pure-Fe(B.F.) (d) Pure-Fe(D.F.)

図 3 に 04M16U、04M17U で照射した Fe-0.1Mn、Fe-1.4Mn および Pure-Fe の陽電子寿命測定結果を示す。この結果から、著しい照射硬化を示す Fe-1.4Mn では、硬化の促進を示さなかった Fe-1.4Mn や Pure-Fe に比べて、高濃度の単空孔がマトリックス中に形成されていることがわかり、その濃度は測定可能濃度の飽和レベルまで形成している。

以上の結果からモデル合金中で Mn が空孔のトラップサイトとして働くことで、格子間原子との対消滅の量を減らし、その結果マトリックス損傷が微細化かつ高密度化する結果となることが推察される。このような点欠陥トラッピング過程は、実機材料における低損傷速度下でも起こりうる現象であり、照射硬化・脆化への影響については慎重な検討を要するものの、マトリックス損傷組織発達に及ぼす Mn による点欠陥トラッピングの影響は重要な因子であると言えよう。しかしながら、Mn と格子間原子をトラップすることも報告されており、本研究で用いているようなモデル合金系においても、照射条件の影響等について、更なる検討を必要としている。

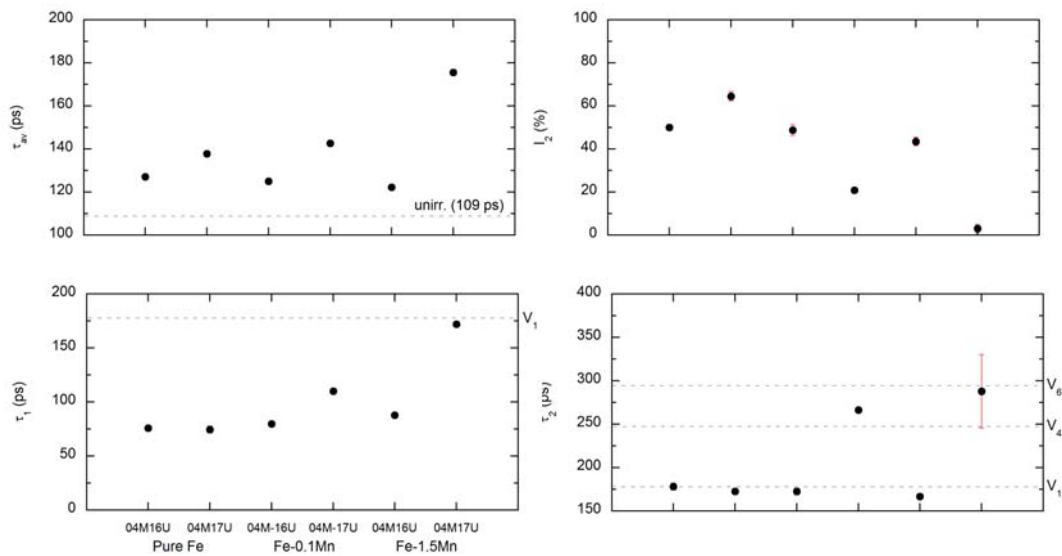


図 3 Fe-Mn 系モデル合金および Pure-Fe の陽電子寿命測定結果

(今後の計画)平成 21 年度は、Mn 自体のクラスタリングの有無を明らかにするために、LEAP 測定を希望している。

(参考文献)

- [1] D.E. Alexander et al., Proceedings of The 9th International Symposium on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems-Water Reactors, (1999) 827-833.

課題名：M41-1

3次元アトムプローブと陽電子消滅法による 原子炉材料の広領域解析

所属・氏名： 東北大学金属材料研究所・永井康介、井上耕治、畠山賢彦、外山健
土屋直柔、蔵本明、高見沢悠、長谷川雅幸

原子炉圧力容器鋼（低合金鋼 A533B）やシュラウド鋼（SUS316L）等の原子炉材料の照射損傷機構を原子レベルから明らかにし、将来の機械的性質を予測することは究極の目標である。これまで我々は、原子炉圧力容器鋼の実機監視試験片およびそのモデル合金について、陽電子消滅法と3次元アトムプローブ法を同一の照射試料に対して測定し、Cu 富裕析出物、マトリックス欠陥の形成など、脆化の主因となるべきナノ組織を明らかにしてきた [1-5]。しかしながら、これら原子炉材料の多くは複雑な組織をもつことから、より大きな構造を含めた広領域の解析が必要である。

例えば、圧力容器鋼では、マトリックス中の不純物・溶質クラスターだけでなく、硬化を伴わない脆化の原因と考えられるP等の粒界偏析や炭化物・マトリックス界面の観察も重要である。従来の3次元アトムプローブでは、10nm 四方×100nm 程度の微小な領域しか測定できないため困難であったが、東北大金研大洗センターに導入した局所電極アトムプローブ（LEAP）を用いると、より大きな体積（60nm 四方×200nm 以上）の観察が可能になった。さらに、レーザー誘起による LEAP（Laser-LEAP）では、試料破損の確率を低減でき、脆化した試料、粒界や炭化物のような破壊しやすい試料の測定ができるようになってきた。従来の測定では、針状試料の破損が起こりにくい領域のみしか観察できていない可能性があり、観察していない領域が機械的特性に大きく影響している可能性があるため、このような測定は非常に重要である。

以上のような、測定技術の進歩を基に、Laser-LEAP を用いて、複雑な組織を持つ実機あるいは実機相当材料に対して広い領域の原子レベルの解析を行い、より俯瞰的に原子力材料の組織、特に粒界偏析や炭化物を中心に明らかにすることを目的とした。今年度は、欧州加圧水型軽水炉（ベルギー-Doel-4：Cu 等の不純物濃度を抑制した第二世代型）監視試験片の解析を中心に行い、(1) Mn-Ni-Si クラスター、マトリックス欠陥の形成を解析した。観察されたクラスターによる硬化だけでは、Vickers 微小硬度の上昇を説明できないことがわかった。(2) P 等の粒界偏析濃度が照射によって上昇することがわかった。(3) 炭化物観察に成功した。本報告書では、その中から照射による炭化物組成の変化についての結果を示す。

未照射材の炭化物のアトムプローブ観察に関しては昨年度に成功し[6]、C だけでなく、Mn, Cr, Mo が濃化していること、Si は逆に炭化物内部で濃度が低下していること、P は界面のみに偏析していることがわかった。また、Cr, Mn については、炭化物内部でも炭化物-マトリックス界面に近い部分の濃度が高く、炭化物中心部では濃度が少し低下していることもわかった。図1に、 $3.3 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$ 照射（約10年間運転）した Doel-4 監視試験片中炭化物の Laser-LEAP 観察結果（3次元元素マップと濃度プロファイル）を示す。また、図2には未照射材の濃度プロファイルとの比較を示す。未照射材で観察された炭化物と、ほぼ同様の特徴を持った炭化物が観察されたが、照射によって以下の変化が明らかになった：(1) Mn, Mo, Cr は界面に近い部分の濃度上昇がより顕著になった。(2) P の界面偏析濃度が上昇した。(3) 界面における C の濃度プロファイルが、照射後は若干緩やかになった。照射による C の再固溶に起因している可能性がある。

破壊の起点となる炭化物の、上記のような照射による変化は、圧力容器鋼の硬化を伴わない照射脆化に寄与する可能性がある。

- [1] Y. Nagai et al., Phys. Rev. B 61 (2000) 6574.
- [2] Y. Nagai et al., Phys. Rev. B 63 (2001) 134110.
- [3] Y. Nagai et al., Phys. Rev. B 67 (2003) 224202.
- [4] Y. Nagai et al., Appl. Phys. Lett. 87 (2005) 261920.
- [5] T. Toyama et al., Acta Material. 55 (2007) 6852-6860
- [6] 外山健等：まてりあ 47 (2008) 610

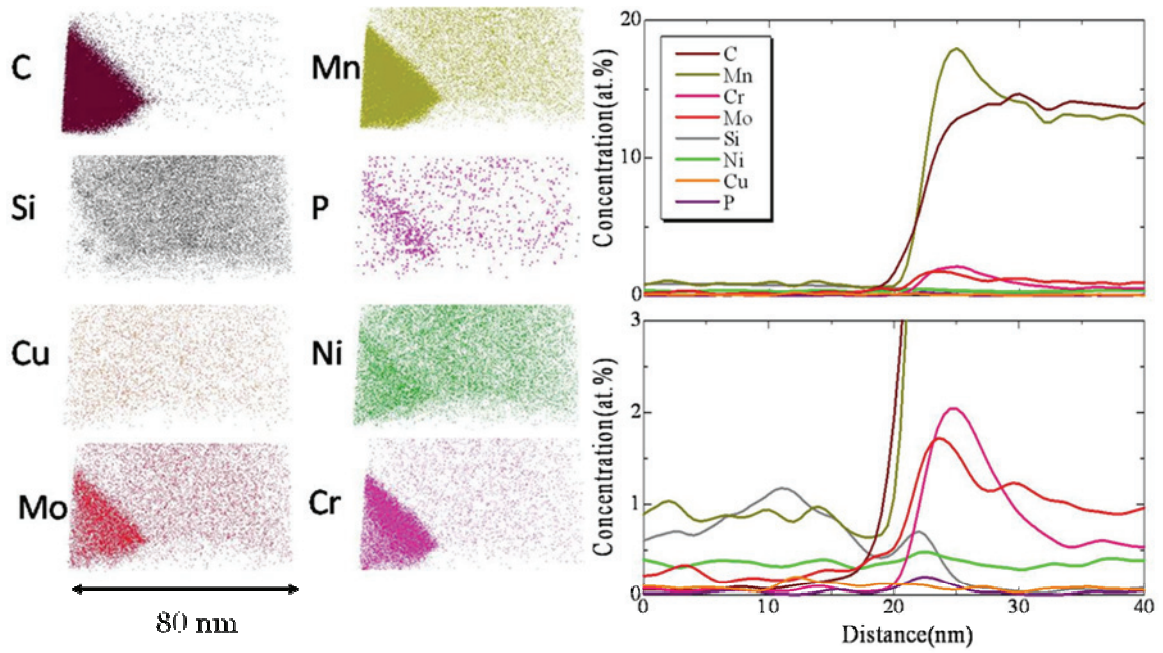


図1 : Doel 4 炉監視試験片 $3.3 \times 10^{19} \text{n/cm}^2$ 照射材の Laser-LEAP による 3次元元素マップ (C, Mn, Cr, Mo, Si, P, Ni, Cu) およびマトリックス-炭化物界面を横切るロード中の各元素の濃度プロファイル。

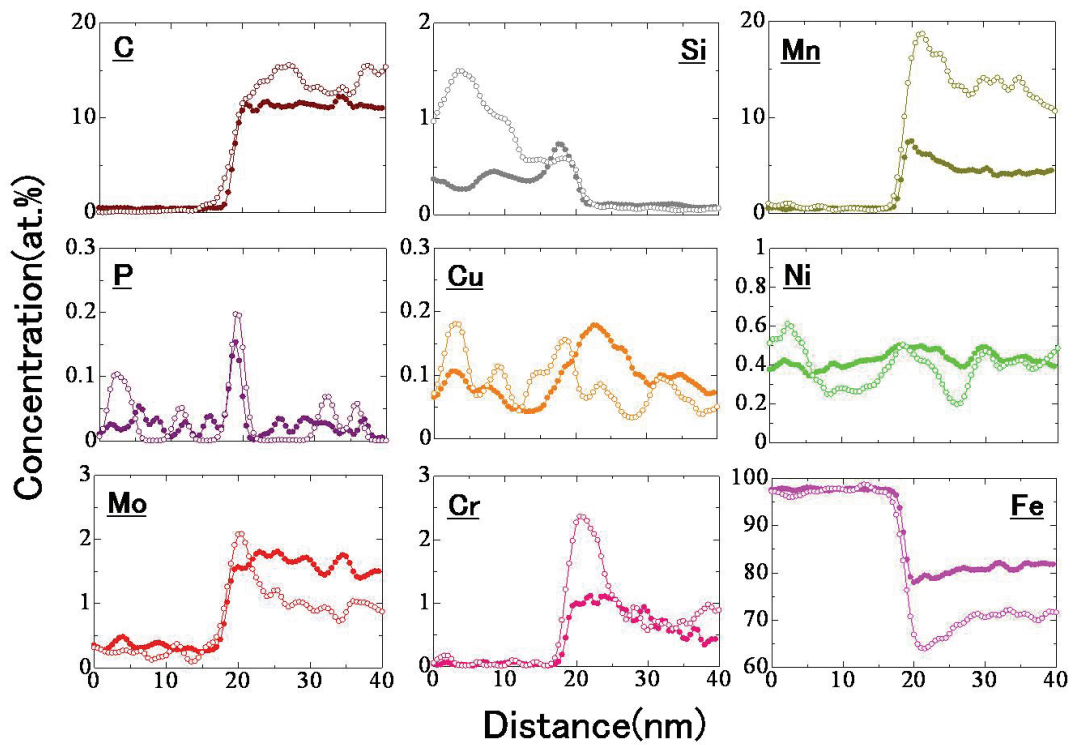


図2 : 界面付近の濃度プロファイルの未照射材と照射材の比較。

原子炉压力容器鋼溶接熱影響部における粒界偏析に注目した照射脆化の評価

日本原子力研究開発機構 西山裕孝、勝山仁哉、鬼沢邦雄
東北大学・金研 永井康介、長谷川雅幸

1. 研究の目的

米国では、組織的・強度的に不均質である原子炉压力容器鋼の溶接熱影響部について、その照射脆化は母材で代表されるという見解から、監視試験片として溶接熱影響部試験片の装荷は義務でない。国内では、溶接熱影響部試験片に関する監視試験データが充分でなく、機構論的な考察や科学的合理性が必ずしも明確にされていないことから、規格・基準から溶接熱影響部試験片を除外する判断ができないため、これまで通り試験片を装荷することとなっている。溶接熱影響部試験片の必要性を判断するためには、溶接熱影響部における照射脆化の程度を、母材の場合と比較し、機構論的な観点から明らかにする必要がある。本研究は、原子炉压力容器用 A533B 鋼の溶接熱影響部で、照射脆化の進行を陽電子消滅法と 3 次元アトムプローブにより明らかにしようとするものである。

2. 研究の経過

溶接熱影響部の組織は、母材とは違い溶接による熱履歴に応じた数種類の組織を含む非均質部であり、粗粒、細粒、および 2 相領域などに分類される。粗粒部は、結晶粒が大きく、また硬さが高いことから、非照射材においても粒界破壊を呈する。したがって、結晶粒内における照射脆化を調べるとともに、粒界脆化元素であるリン(P)や強化元素である炭素(C)等の、中性子照射による粒界偏析濃度の変化等を知ることが重要である。最近、局所電極型アトムプローブ(LEAP)により、従来に比べて広い領域を高速で観察できるようになったが、試料の最終加工を集束イオンビームを用いて最適な形状にすることで、更に広い領域の観察が可能となり、粒界を含む領域を効率よく観察できるようになってきた。また、本研究の対象である粒界は、LEAP 観察中に起こりうる試料破壊の起点となりやすいが、レーザーパルスを試料に与える Laser-LEAP を用いて破壊率を下げることで、通常では困難な粒界の観察が可能となってきた。こうした手法により、溶接熱影響部の非均質な組織のそれぞれにおいて粒界を狙った観察を行うことができ、それらにおける照射脆化の特徴的な性質を明らかにすることができると考えられる。

当該年度は、表 1 に示す A533B 鋼について、その溶接熱影響部を熱処理により模擬した試料(1H、1L、1F、2L、2F、2I、2S)の非照射材の LEAP 観察を行い、マトリックス中でのクラスター形成および粒界における溶質原子の偏析の有無を調べた。図 1 に、母材中の粒界の LEAP 観察結果のうち、粒界偏析の見られた元素のみをプロットした。図の右上から左下方向に走っている濃く見える部分が粒界であり、母材では C、P、Mo がはっきりと偏析していることが確認された。一方、溶接熱影響部模擬材では、それぞれ表 2 に示すような元素が粒界に偏析していた。いずれの試料でも C のピーク濃度は 0.5–0.7at.% 程度であった。熱処理による差異は小さく、系統的な変化は見られなかった。この傾向は Mo でも同様であり、いずれの試料でもピーク濃度は 0.3–0.6at.% 程度であった。Mn と P では、試料によりピーク濃度にやや差異が見られた。また、偏析の幅(半値幅)は、元素・熱処理条件にあまり依存せず、2–3nm 程度であった。

今後、これら溶接熱影響部の各組織を模擬した非照射材における粒界偏析元素および濃度が、中性子照射によってどのように変化するかを同様の手法により分析を進める。

表 1. A533B 鋼の化学組成 (wt.%).

C	Si	Mn	P	S	Cu	Ni	Cr	Mo	V	Al
0.2	0.25	1.41	0.010	0.006	0.12	0.65	0.12	0.54	0.003	0.023

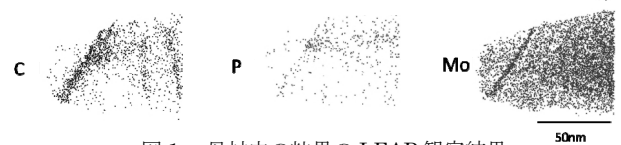


図 1. 母材中の粒界の LEAP 観察結果.

表 2. LEAP 観察による粒界偏析元素.

母材	: C · P · Mo
1H	: C · Mn · P · 〈Cu〉 · 〈Ni〉 · Mo
1L	: C · Mn · P · Cu · Mo
1F	: C · Mn · P · Cu · Ni · Mo
2L	: C · 〈Ni〉
2F	: C · Mn · P · 〈Cu〉 · Ni · Cr · Mo
2S	: C · Mn · P · Cu · Ni · Mo
2I	: C · Mn · P · Mo

三次元アトムプローブによる原子力用低炭素ステンレス鋼の応力腐食割れ機構に関する研究

原子力機構 近藤啓悦、三輪幸夫、大久保成彰、塚田隆

【緒言】 沸騰水型軽水炉炉内構造材料であるオーステナイト系ステンレス鋼は、長期間使用されることにより照射誘起応力腐食割れ (Irradiation Assisted Stress Corrosion Cracking; IASCC) を発生することが報告されている。IASCC の発生には、照射硬化や照射誘起偏析のような照射損傷に起因する材料劣化に加え高い残留応力が必要であるが、それら損傷事象の照射量依存性が異なることから、照射量の増加と共に IASCC の発生確率が単調に高くはならず、その発生予測は困難なものとなっている。よって、照射損傷に起因する複数の損傷事象が複合的に作用することによってもたらされる材料のマクロ特性変化を定量的に評価する必要がある。本研究では、炉内構造材料である SUS316L を用いて照射と応力の複合作用が材料の腐食特性に及ぼす影響について検討する。

【実験】 供試材は溶体化処理した SUS316L である。平板状の試験片に対して電解研磨による最終表面処理を行った後に、試験片を曲げ変形させることにより試料表面付近に塑性ひずみを与えた。ひずみ付与条件は2%および7%の引張ひずみ、2%の圧縮ひずみとした。これらひずみ付与材とひずみ付与なし材に対して、高崎量子応用研究所 TIARA のトリプルビーム照射装置を用いて試験片温度 330°C で照射量 1~45dpa まで 12MeV, Ni³⁺イオン照射試験を実施した。イオン照射材に対して、電気化学的再活性化(EPR)法を実施し表面の腐食特性を評価した。また、収束イオンビーム(FIB)加工装置を用いて、非 EPR 試験領域から試験片をマイクロサンプリングし、東北大学・量子エネルギー材料科学国際研究センターのレーザー補助局電極型アトムプローブ装置により照射領域の溶質元素分布を解析した。

【結果と考察】 シングル・ループ EPR 試験によって評価されたイオン照射材の再活性化電気量 (Pa 値) の照射量依存性を図 1 に示す。ひずみのない条件で照射した試料の Pa 値は照射量と共に増加し、12dpa で飽和状態になった。一方、ひずみ付与した状態で照射した試料の Pa 値は、ひずみなしの場合よりも小さく、耐食性劣化が抑制されていた。ひずみ付与条件によっても Pa 値の損傷量依存性が異なり、2%圧縮ひずみ材で耐食性が最も抑制され、次いで2%引張ひずみ材、7%引張ひずみ材の順であった。

ひずみなし材とひずみ付与材において照射材の耐食性劣化の程度が異なった原因を調べるため、3DAP により 6dpa 照射材の照射領域の溶質元素分布を評価した。その結果、いずれの照射材も粒内においてフランク・ループや転位周辺に Si、N が濃化、Cr、Fe の希薄化が観察された¹⁾。図 2 に、付与したひずみレベルと、偏析領域における元素の濃度変化量の関係を示す。照射したひずみなし材と比較すると高い耐食性を示した2%圧縮および引張ひずみ材において、Si、Ni の偏析が抑制されていた。一方7%引張ひずみ材中での濃度の変化量は、ひずみなし材と同レベルであった。同一の照射量であっても、付与したひずみレベルによって照射誘起偏析挙動が変化したが、耐食性劣化挙動に変化をもたらした原因の一つと考えられた。

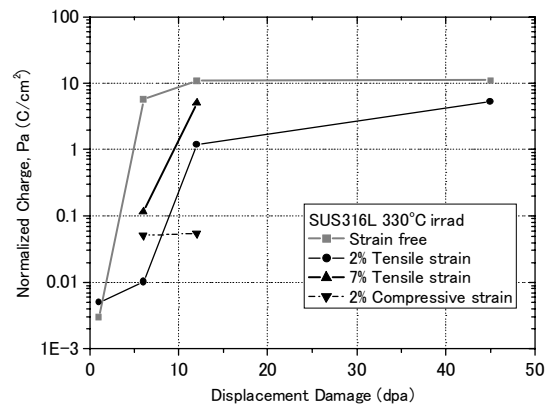


図 1. 再活性化電気量(Pa 値)の損傷量依存性

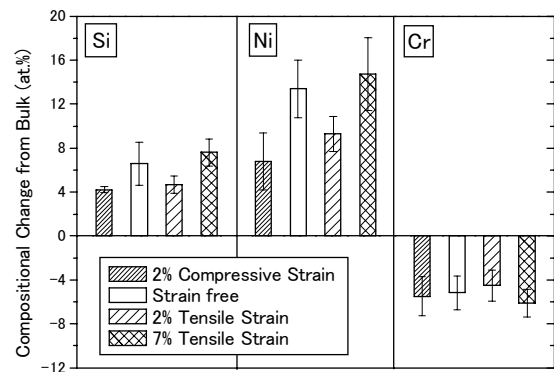


図 2. 付与したひずみ量と照射誘起偏析領域における濃度変化量の関係

クリアランスレベル以下にするための低放射化材料設計

長谷川晃¹⁾、佐藤 学¹⁾、野上修平¹⁾
東北大・工¹⁾

1. 緒言

軽水炉の生体遮蔽壁などで用いられる鉄筋コンクリート構造体は、運転期間中に中性子の照射により放射化し、廃炉時には低レベル放射性廃棄物となる。また、それらの放射化した鉄筋コンクリート構造体の残留放射能濃度は⁶⁰Co、¹⁵²Eu、¹⁵⁴Euが大部分を占める。よって、残留放射能濃度を大幅に低減するためには、これらの核種の生成元となるコバルト (Co)、ユウロピウム (Eu) の含有量の少ない原料を選定し使用することが重要である。具体的な放射化量の低減目標としては、2005年に制定されたクリアランス制度に定められている放射能濃度 (クリアランスレベル) 以下にすることとし、そのために鉄筋およびコンクリートの様々な原材料中の Co、Eu 含有量の分析し、データベースを構築した。さらに、低放射化のための原材料選定に有効に活用するため、データベースと連携して材料選定を支援するツールを開発した。

2. 元素分析方法

本研究で分析対象とする Co と Eu は、非常に微量であっても放射化量に大きく影響する。このため、ppb オーダーまで分析が可能とされる機器中性子放射化分析法を利用して元素分析を実施した。昨年度までに、コンクリートの原料であるセメント、骨材や、セメントの原料である石灰石、粘土、鉄原料、石膏、鉄筋の原料である鉄鉱石、コークスなど約 600 種類の材料の元素分析を行った。今年度は、中性子照射施設として JRR-3 を利用し、280 個のサンプルを分析した。サンプルは粉状に粉砕して放射化の程度に応じて約 50mg と約 100mg に計量し、石英ガラス管に減圧封入して照射用キャプセルに詰め込んで中性子照射した。照射条件は、熱中性子束密度 $9.6 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2/\text{s}$ 、高速中性子束密度 $1.7 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2/\text{s}$ とし、サンプルの予測放射化量に応じて 11 分あるいは 110 分間照射した。照射後のサンプルは数ヶ月冷却した後、東北大学工学研究科放射性同位元素実験室にて γ 線測定を行った。分析対象元素は Co、Eu、Fe、Sc、Cs の 5 種類とし、各元素の定量は同条件で中性子照射した鉄鋼標準物質及び標準岩石試料の γ 線スペクトルの比較を行い計算により求めた。

3. 結果

これまでに分析した原材料および製品であるセメントの数は約 1300 に達し、データベースとして十分な数を持つようになった。これらのデータを基に、これまでに作成した低放射化材料選定評価システムに機能の追加や改良を行うとともに、照射条件および放射化計算条件の設定の拡張と核種毎の D/C 内訳の作図機能を作成し (下図)、どの材料のどの元素の低減が低放射化に優位に効くかを明確に知ることができるようにさせた。また、いくつかの原材料の中から低放射化の組み合わせを計算する機能 (製造シミュレーション機能) を改良し、 Σ D/C や原料コスト計算に加えて原料ごとの Σ D/C 内訳をグラフで表示する機能や元素相関図の表示機能を作成した。これらの機能により低放射化のための原料選定指針を明確化することができると考えられる。

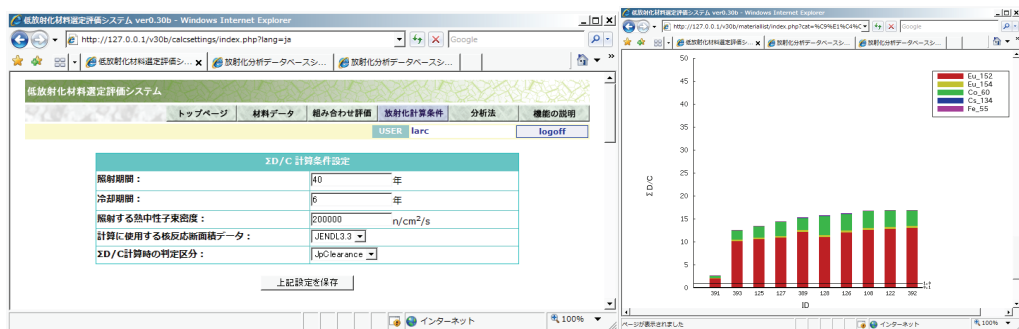


図 1 放射化計算の設定画面 (左) と Σ D/C 作図機能 (右)

超臨界圧軽水冷却原子炉の材料開発

四竈樹男、佐藤裕樹、栗下裕明、鳴井実、二田伸康、笠原茂樹、金田潤也、鹿野文寿、阿部由美子
東北大学金属材料研究所

第4世代原子炉候補として超臨界圧軽水冷却原子炉(SCWR)は、経済性、安全性に優れるだけでなく、火力発電分野において長期にわたって実績のある冷却システムを採用しているために、開発リスクやコストの点でも有利と考えられている。しかしその実用化のためには、燃料被覆管をはじめSCWR炉内環境に適用可能な材料の開発が不可欠である。本研究では、腐食特性、中性子照射に関連する材料劣化データに加え、高温での機械特性、相安定性等の評価を行い、候補材の絞り込みと材料特性データを拡充し、SCWRの設計に資するデータベースを構築する。

照射損傷と超臨界圧水中腐食の複合効果

材料試験炉JOYO(照射条件： 1.2×10^{26} n/m²、600°C)及びJMTR(照射条件： 5.0×10^{24} n/m²、600°C)において照射した供試材を用いて、超臨界圧水中における供試材の腐食挙動に及ぼす中性子照射の影響を評価した。

図1は浸漬試験を実施した試験片それぞれの重量変化を比較した結果を示す。SUS310Sにおいては、1点を除いていずれの試験片においても正の重量変化が認められた。またJOYO照射した供試材よりもJMTR照射した供試材の方が重量増は大きくなった。同様の傾向は、H2材においても認められた。一方材料照射マトリックスの都合により、T6N材とT3材については同一供試材で直接JOYO照射とJMTR照射の結果を比較することは出来なかったが、T6N材でSUS310SおよびH2材と同様にJMTRの照射により、重量増加が増える傾向が見られた。

図2は、供試材ごとの超臨界圧水中での腐食による重量変化の傾向を検討した結果を示す。今回の結果より、非照射材と照射材の重量変化挙動はオーダで同程度と評価することが出来た。また耐食性の点で難があると評価されたSUS316Lに比べて重量変化は十分小さく、中性子照射を受けても、SUS310S及びその改良材は十分良好な耐食性を示すことが期待されることが判った。引き続き、照射後のマイクロ組織、酸化皮膜の性状解析等に関する知見を総合した評価を進める必要がある。

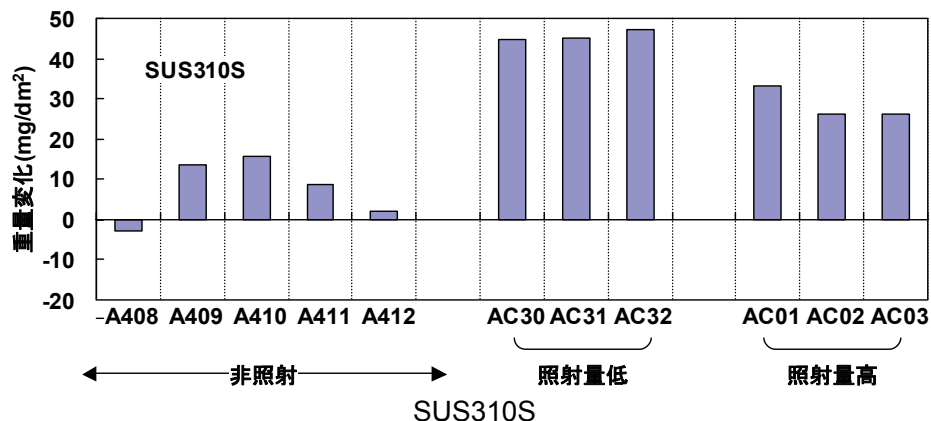


図 1(1) 各試験片の重量変化の比較
(試験条件：600°C 25MPa DO：8ppm 浸漬時間 500 時間)

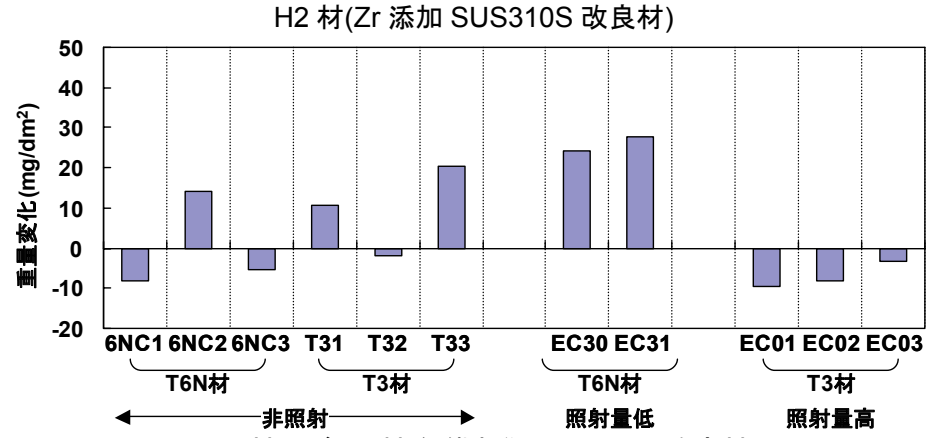
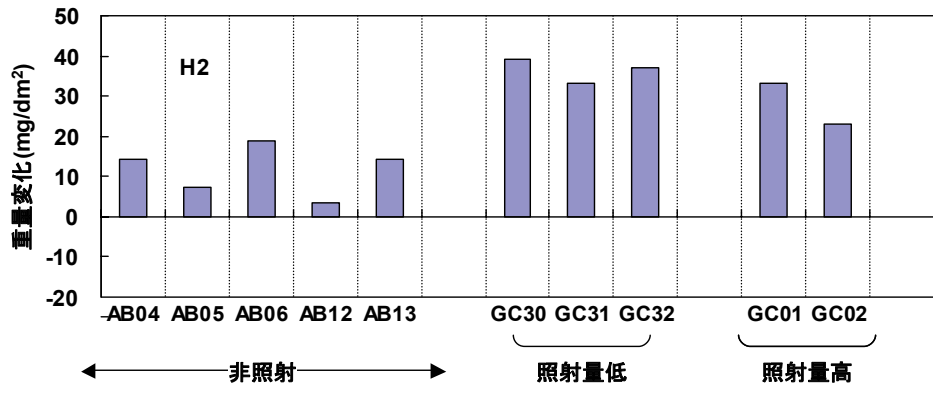


図1 各試験片の重量変化の比較

(試験条件：600°C 25MPa DO：8ppm 浸漬時間 500時間)

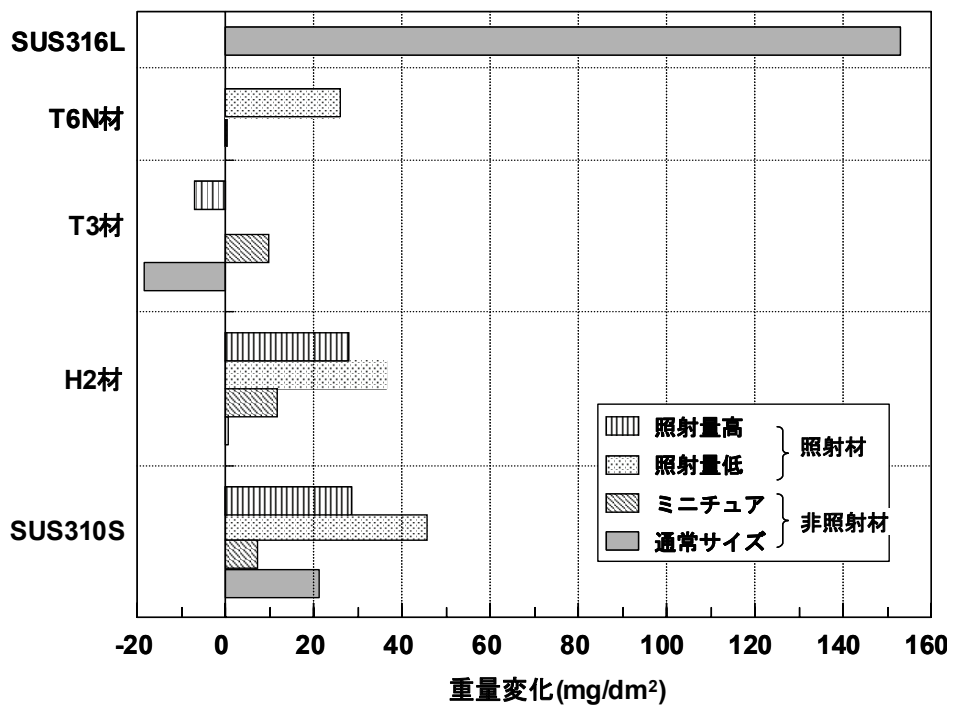


図2 超臨界圧水中腐食(重量変化)に及ぼす中性子照射の影響

(試験条件：600°C 25MPa DO：8ppm 浸漬時間 500時間)

微小き裂成長挙動に基づく低放射化フェライト鋼の疲労寿命評価

東北大学大学院工学研究科
野上修平

1. 研究目的

低放射化フェライト鋼は、原型炉ブランケットおよびテストブランケットモジュール用の構造材料として開発が進められている。原型炉ブランケットにおいては、交換ブランケットに対しては運転初期のパルス運転モード時やディスラプション等による計画外停止に伴う熱疲労、恒久ブランケットに対してはメンテナンス時の熱疲労や冷却媒体流動による高サイクル疲労が想定されることから、構造設計の上で疲労寿命評価は必要不可欠である。核融合炉材料の疲労に関しては、主に S-N 曲線に基づく破損寿命の評価が進められてきたが、破損に至るまでのき裂成長挙動評価や、き裂寸法に基づく余寿命評価はなされていなかった。本研究では、低放射化フェライト鋼を対象に、微小き裂成長挙動に基づく低放射化フェライト鋼の疲労寿命評価手法を開発することを目的とする。

2. 研究経過

低放射化フェライト鋼 F82H を用いて微小砂時計型疲労試験片 SF-1 (最小断面直径: 1.25 mm、試験部曲率: 10 mm) を製作し、ひずみ制御低サイクル疲労試験を実施した。試験は、室温大気中において、全ひずみ範囲 0.8~3.0%、ひずみ速度 0.02~0.04%/s、両振り三角波において実施した。試験片に発生した微小き裂表面長の測定のため、破損繰返し数の 1/5 程度の繰返し数毎に試験を停止し、アセチルセルロースフィルムを用いて試験片表面のレプリカを採取した。

図 1 に、低放射化フェライト鋼 F82H の微小砂時計型疲労試験片 SF-1 および種々の鉄鋼材料¹⁻³⁾の標準平滑丸棒試験片 (直径: 8~10 mm) における、き裂表面長 (2c) と寿命比 (N/Nf, Nf: 破損寿命) との関係を示す。両者とも、 $2c = A \exp(B(N/N_f))$ (A および B は定数) の関係を有しており、試験の早々期に表面長 0.05~0.1 mm の微小き裂が発生し、破損寿命時のき裂表面長は試験片直径と同程度であった。従来の研究より、寿命比で整理した微小き裂成長挙動は材料種や試験条件に関わらず一つの曲線で表されるため、両者の挙動の相違 (上記定数 A および B の相違) は、試験片形状およびサイズの相違に起因すると考えられる。よって、形状やサイズの異なる試験片の微小き裂成長挙動に基づき疲労寿命を評価する場合には、破損寿命時のき裂寸法に違いがあることを認識することが必要であると考えられる。

3. まとめ

低放射化フェライト鋼 F82H 微小砂時計型疲労試験片の室温大気中低サイクル疲労における微小き裂成長挙動を明らかにし、種々の鉄鋼材料の標準平滑丸棒試験片と挙動を比較した。今後は、評価手法を体系化するため、低放射化フェライト鋼 F82H の微小き裂成長挙動に及ぼす試験片形状・サイズ効果を明らかにする予定である。

参考文献

- 1) S. Nogami et al., J. Soc. Mater. Sci., Japan, Vol.56, No.2 (2007) pp.150-156.
- 2) S. Sakurai et al., J. Soc. Mater. Sci., Japan, Vol.35, No.389 (1985) pp.76-81.
- 3) N. Isobe, Ph'D thesis of Ritsumeikan University, (2001).

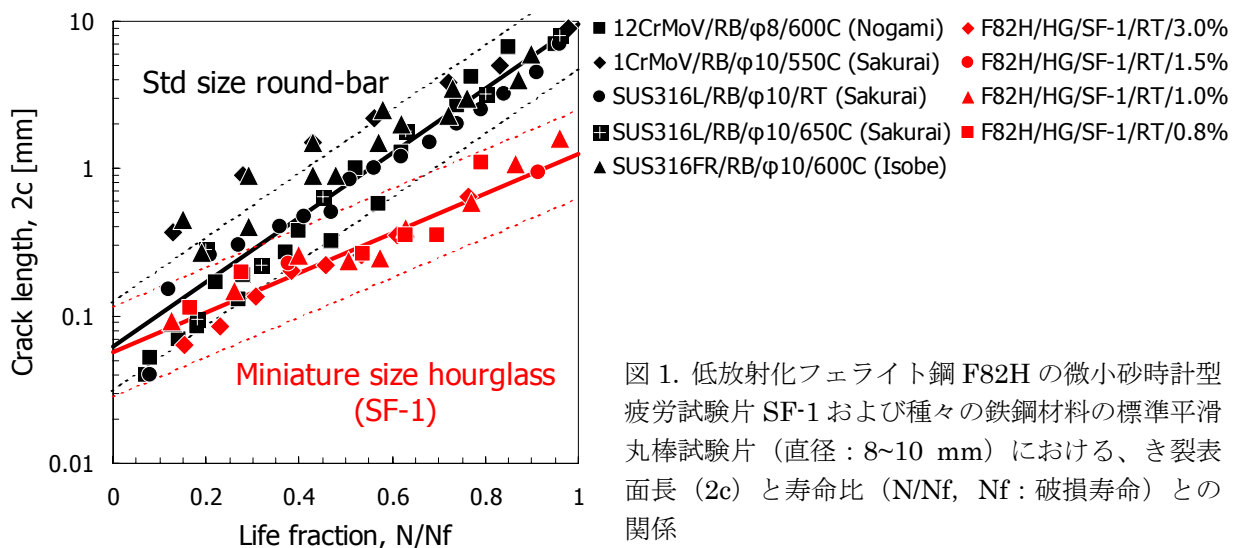


図 1. 低放射化フェライト鋼 F82H の微小砂時計型疲労試験片 SF-1 および種々の鉄鋼材料の標準平滑丸棒試験片 (直径: 8~10 mm) における、き裂表面長 (2c) と寿命比 (N/Nf, Nf: 破損寿命) との関係

II. 核融合炉関連材料

HFIR で温度変動照射したバナジウム合金の損傷組織

東北大・金研 佐藤裕樹、末光洋一郎（院生）、松井秀樹（教育研究支援員、現・京大エネ研）

中性子照射下における照射温度の変動が材料の損傷組織発達に大きく影響する場合のあることが過去の JMTR を用いた温度変動照射試験から明らかにされた。これらの結果は主として低照射量領域の場合であった。一方、照射初期の温度変動効果は転位網とボイド組織が十分に発達するまでの間に失われ、高損傷領域ではその影響が無視できる可能性もある。損傷組織発達における温度変動効果を実験的に検証することは重要である。本課題では米国 HFIR(MFE-RB-13J)にて温度変動下および一定温度下において 4dpa まで照射されたバナジウム合金の損傷組織を TEM 観察し、転位とボイド組織に温度変動の効果がある程度認められるか明らかにすることを目的とする。

当該照射は 1998 年 7 月から 1999 年 5 月にかけて行われ、照射量は 4dpa で、照射温度は(1)300°C一定、(2)500°C一定、(3)300°C/500°C変動、(4)200°C/350°C変動の 4 条件であった。各条件では計 8 サイクルの照射が行われ、温度変動型では各サイクルの初期の約 10%の期間が低温で照射された。一定温度型ではヒーターを用いて温度変動は 20°C以内に抑えられている。これらの試料のうち著しいボイド組織の発達が見込まれる条件(2)および(3)の TEM ディスク試料を平成 20 年 11 月に米国オークリッジ研究所から東北大金研アルファ放射体施設に返送した。試料の仕分けを行い、電解研磨して TEM 観察を行った。

これまでの研究からバナジウムにアンダーサイズ元素を添加すると巨大スエリングが、またオーバーサイズ元素では顕著なスエリング抑制作用が報告されている。これらの作用に温度変動がどのように影響しているのかという視点で整理する予定であったが、手続き上の問題で試料返送が遅れたため、本年度はバナジウム合金におけるボイドと転位組織の発達過程を照射量の関数として精密に検討することを主題とした。この結果に基づいて温度変動効果の詳細な検討は来年度に行うこととする。

試料は純バナジウム、アンダーサイズ溶質元素 (Fe, Si, Cr) とオーバーサイズ溶質元素(Nb, Ti)を添加した二元合金、さらに実用材料に近い三元合金 V-4Cr-xTi (x=0.1, 0.3, 3 at.%) と V-4Cr-4Nb である。中性子照射条件は 1) JMTR(98M-5U)による 500°C多段多分割照射で損傷量は 0.011、0.033、0.116、0.360dpa の 4 種類、さらに今回入手した 2) HFIR、510°Cの一定温度照射、照射量は 4dpa である。

図 1 に V-0.3Fe での TEM 観察結果を示す。ここでは損傷量が 0.011dpa の段階から、ボイドが形成され、その後ボイド表面に Fe の偏析によると考えられるひずみコントラストが生じ、さらにその周囲に転位ループが形成され、ボイド及び転位ループが成長する、という組織発達過程が観察された。ボイドの周

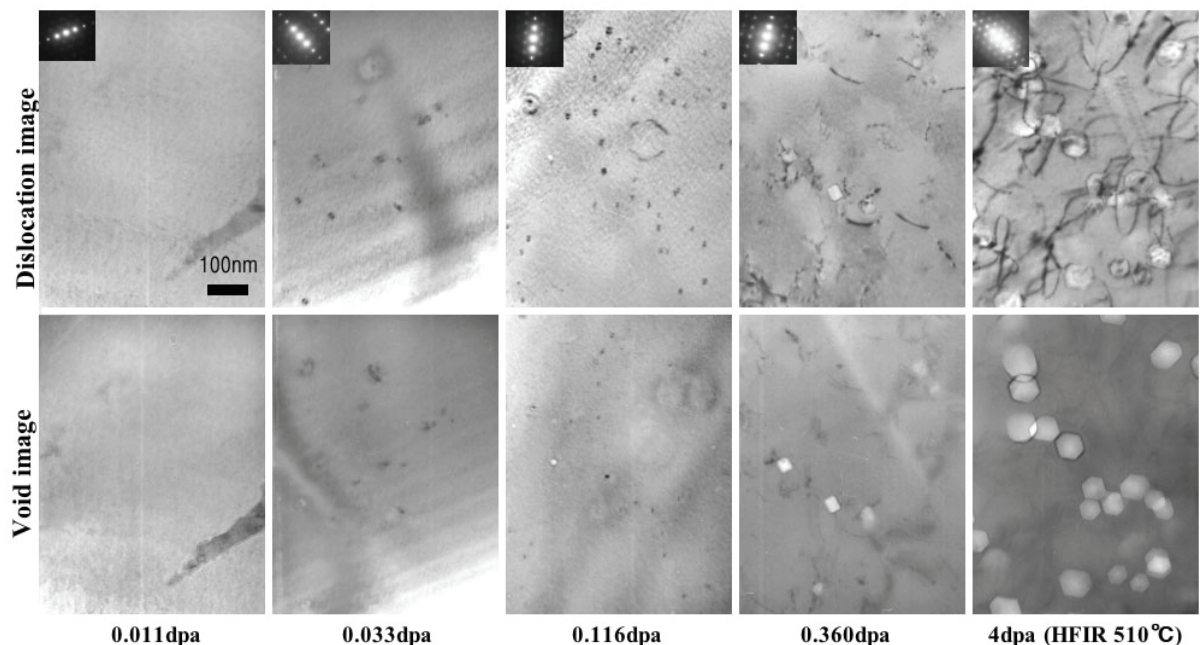


図 1 V-0.3Fe の TEM 観察結果

囲以外から形成されたとみられる転位ループは観察されなかったため、これら転位ループはすべてボイド表面への Fe 偏析によって生じたミスフィット転位を起源とし、照射で導入された格子間原子を吸収して成長したものと考えられる。純バナジウムでは低照射量 0.011dpa においてボイドと転位ループがそれぞれ別個に形成されていることと比較すると、Fe の添加によりマトリクス内では転位ループの形成が抑制されていることがうかがわれる。さらに、V-Fe 合金の Fe 添加量を上げるとボイド形成が始まる照射量は高照射量側にシフトしたため、Fe の添加はボイドの核形成をも抑制していると考えられる。しかし 1dpa 以上ではボイドの成長が著しく、これは巨大スエリングの始まりに相当すると考えられる。

図 2～4 に各二元合金におけるボイド発達過程を示した。上記の Fe 以外のアンダーサイズ元素 Si では 0.011dpa の低照射量から既に顕著なボイドの成長がみられたのに対して、Cr では 4dpa においてもボイドの形成・成長はともに抑制されたままであった。また、スエリング抑制効果を持つとされるオーバーサイズ合金では、V-Ti ではボイドは全く形成されていなかったが、V-Nb ではボイドが形成されていた。数 10dpa の高照射量ではアンダーサイズ元素の添加により一様に巨大スエリングを起こすことが知られているが、本実験で対象とした 4dpa 以下の範囲では損傷組織は添加元素のサイズ因子と単純な対応関係がみられないことが明らかとなった。バナジウム合金にみられる巨大スエリングは少なくとも数 dpa 以上の領域から始まるものと考えられる。これらはバナジウム二元合金でみられる顕著なスエリング促進および抑制機構を考察するにあたり重要な情報である。

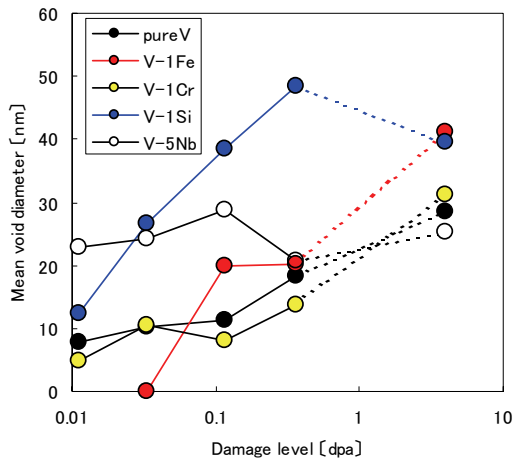


図 2 : V 基二元合金のボイド平均直径

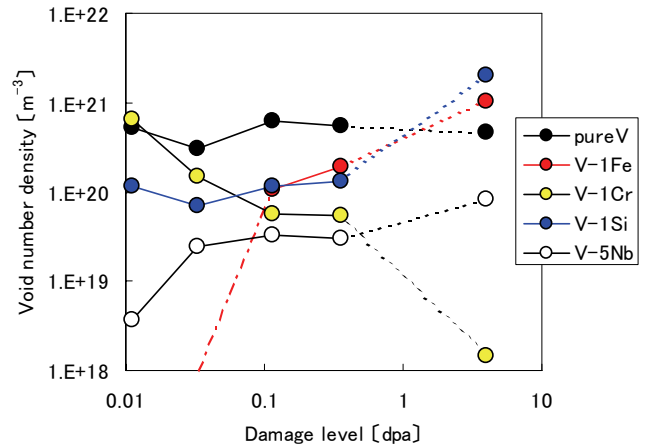


図 3 : V 基二元合金のボイド数密度

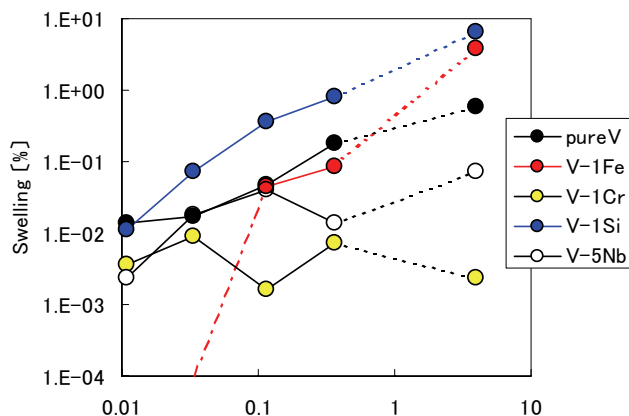


図 4 : V 基二元合金のスエリング量

バナジウム合金の照射効果に及ぼすイットリウム添加の影響

東北大学大学院工学研究科 佐藤 学

[目的] プロセスの改善やイットリウム添加などによる侵入型不純物制御によりバナジウム合金の機械的性質の向上が図られてきた。このような合金開発はこれまで中性子重照射した後の引張試験結果に基づき進められたが、近年の数 dpa までの中性子照射後のシャルピー衝撃試験の結果からプロセス改善のみによる侵入型不純物濃度の制御に比較してイットリウム添加がより効果的である傾向が見られている。シャルピー衝撃試験やマイクロ組織観察などの照射後試験により照射効果に及ぼすイットリウム添加効果を明確にすることを目的とする。

[研究経過] イットリウム添加のレビテーション溶解法などにより侵入型不純物原子濃度を制御した方法で数種類のバナジウム合金を作製し、熱間加工を経て板状試験片とした。試験片への加工後は真空中での再結晶熱処理を 900°C または 950°C で 1 時間行った。引張試験片や微小シャルピー衝撃試験片は JOYO をはじめとする照射炉にて中性子照射を行い照射後試験に供した。

[研究成果] 微小硬さ試験、引張試験、シャルピー衝撃試験によりイットリウム添加の効果を調べた。図 1 にはシャルピー衝撃試験での吸収エネルギー (E) の試験温度依存性を示す。試験で得られた吸収エネルギー E_0 は試験片の幅 B とリガメント長 (試験片厚さ - ノッチ深さ) を用いて $E = E_0 / (Bb^2)$ と規格化した。照射前 V-4Cr-4Ti-0.1Si-0.1Al-0.1Y 合金の上部棚エネルギー (USE) は比較的大きいが 400°C 約 2dpa の照射により減少している。tanh 関数でフィッティングしたときの変曲点を延性脆性遷移温度 (DBTT) とすると照射による変化はほとんど見られない。一方、V-4Cr-4Ti-0.1Si-0.1Al-0.3Y 合金の USE は照射前でも小さく照射によってさらに減少しているが DBTT の変化はない。-196°C の試験での破断面はディンプルのある延性的な様式を示していた。引張試験では著しい照射硬化を伴い、変形が局所的に生じることによる均一伸びの喪失が侵入型不純物元素濃度の高い合金などで観察される場合がある。本合金系では初期ひずみ速度が $6.7 \times 10^{-4} / s$ の室温での引張試験では観察されていない。しかしながら、低い試験温度でかつひずみ速度の速い衝撃試験では変形が局所的に生じる変形様式となる可能性や析出物の形成が破壊の起点となることなどが吸収エネルギーの低下機構として考えられる。

[まとめ] 照射後の機械的性質は侵入型不純物元素濃度の制御によって改善されることが再確認できた。照射後の機械的性質の差異にはマイクロ組織発達、特に析出物の形成挙動が影響していると考えられ、その解明と溶接性・接合性や疲労・クリープ特性に及ぼす影響についても明らかにしてゆくことが合金開発の要点であると考えている。

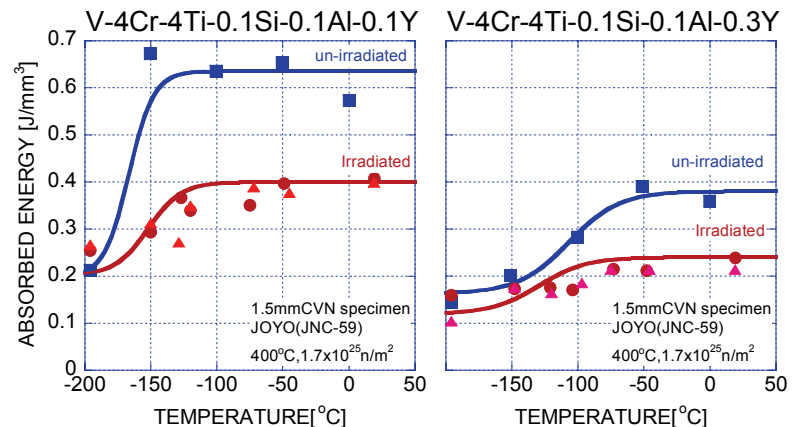


図 1 V-4Cr-4Ti-0.1Si-0.1Al-Y 合金の微小シャルピー衝撃試験における吸収エネルギーの試験温度依存性

レーザー溶接されたY添加低放射性バナジウム合金の中性子照射効果

九州大学 応用力学研究所 渡辺英雄・吉田直亮

1. 緒言

V-4Cr-4Ti 合金は、高温照射 (873K) 環境下で雰囲気中の酸素が混入し、Ti (CON) の形成・成長に大きく寄与することが懸念されている。一方、酸素のゲッターリング作用を有する Y を合金に添加することにより Ti (CON) の成長を抑制する効果が期待されている¹⁾。BR2 を用いた中性子照射 Y 添加溶接材については、現在照射後試験が進行中のため、本報告書では、レーザー溶接 Y 添加 V-4Cr-4Ti 材に対して重イオン照射実験を高温 (873K) で行い、溶接母材の内部組織変化における Y 添加元素効果について報告する。

2. 実験方法

試料は V-4Cr-4Ti (NIFS-HEAT2), V-4Cr-4Ti-0.1Y, V-4Cr-4Ti-0.15Y, V-4Cr-4Ti-0.2Y (NIFS 提供) を用いた。重イオン照射実験は、九州大学応用力学研究所設置の HVEE 社製タンデム型加速器を用い、2.4MeV の Cu²⁺ イオンを 873K の一定温度で照射した。照射量は 0.75-12dpa である。照射後の試料は、電界研磨により損傷ピーク近傍 (500nm) まで研磨した後、背面研磨法により薄膜化した。一方、重イオン照射時の酸素の混入効果を調べるために、照射後に FIB 加工観察装置を用いて内部組織観察用試料を作製した。これらの試料について透過型電子顕微鏡を用いて内部組織観察を行った。

3. 実験結果および考察

非溶接材の内部組織は大きさ数 10nm の塊状の Ti(CON) が観察された。しかしながら溶接を施した試料は、溶融部および熱影響部で塊状の Ti(CON) が観察されなかった。これは、溶接時の入熱により Ti(CON) がマトリクス中に再固溶したためと考えられる。また、溶接時の熱応力によって導入されたと考えられる転位が観察された。今回の溶接実験ではビード中心から 1mm まで溶融したが、内部組織観察よりビード中心から 5mm まで熱の影響が達していることが明らかになった。硬度測定の結果、溶融部ならびに熱影響部で硬度が上昇し、非熱影響部と比較して溶融部では 3 倍程度硬度が上昇した。これは Ti(CON) の再固溶によるマトリクス中の不純物濃度が上昇したことが原因と考えられる。図 1 に重イオン照射後の損傷ピークにおける母材の内部組織観察結果を示す。いずれの試料においても照射によって転位ループや板状の Ti (CON) が形成され、照射量の増加に伴い Ti (CON) が成長した。しかしながら、Y を添加した試料は NIFS-HEAT2 と比較して、照射量の増加に伴う Ti (CON) のサイズの増加量が小さく、成長が抑制された。図 2 に V-4Cr-4Ti-0.15Y に 873K, 7.5dpa 照射した試料の照射断面観察結果を示す。照射面から 1.25 μm まで損傷領域が形成され、転位や Ti(CON) が観察された。さらに、損傷領域を超えた場所においても微細な Ti(CON) が高密度に観察された。これは照射によって形成された空孔の拡散に伴う Ti の移動によって形成されたと推測され、高温照射下における雰囲気中の酸素の影響は試料深くまで達することが明らかになった。

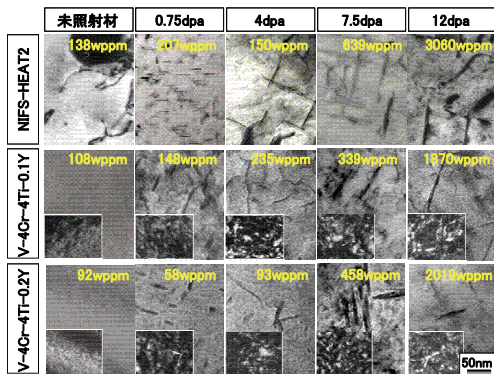


図 1 Y 添加溶接材の照射量依存性 (参考論文)

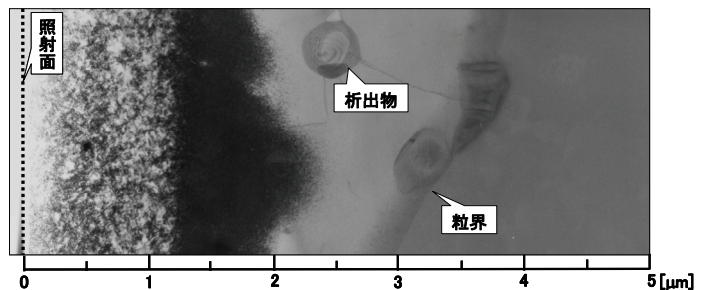


図 2 873K 照射後照射断面観察結果 (0.15Y 添加母材部分、7.5dpa 照射後)

1. 渡辺英雄、山崎和宏、吉田直亮、長坂琢也、室賀健夫、許 男鎮、篠崎賢二、Journal of Plasma and Fusion Research, 84(2008),446-450

低放射化バナジウム合金の照射熱処理による機能修復

福井大学大学院工学研究科 福元謙一

1. 緒言

低放射化バナジウム合金(V-4Cr-4Ti)は核融合装置の第一壁およびブランケットの候補材である。バナジウム合金は低誘導放射能、高温強度そして高温下での耐照射損傷性の点で他の候補材料に対して優れた点を示している。一方でバナジウム合金は400°C以下で0.5dpa (dpa : はじき出し損傷量) 以上の中性子照射により著しい照射硬化が生じ、照射脆化することが知られている。低温での照射脆化を改善することが出来れば、バナジウム合金の核融合炉使用運転温度領域を現在の400-700°Cから低温側に拡張することができ、安全性及び経済性に優れた核融合炉ブランケットシステムを提案することができる。

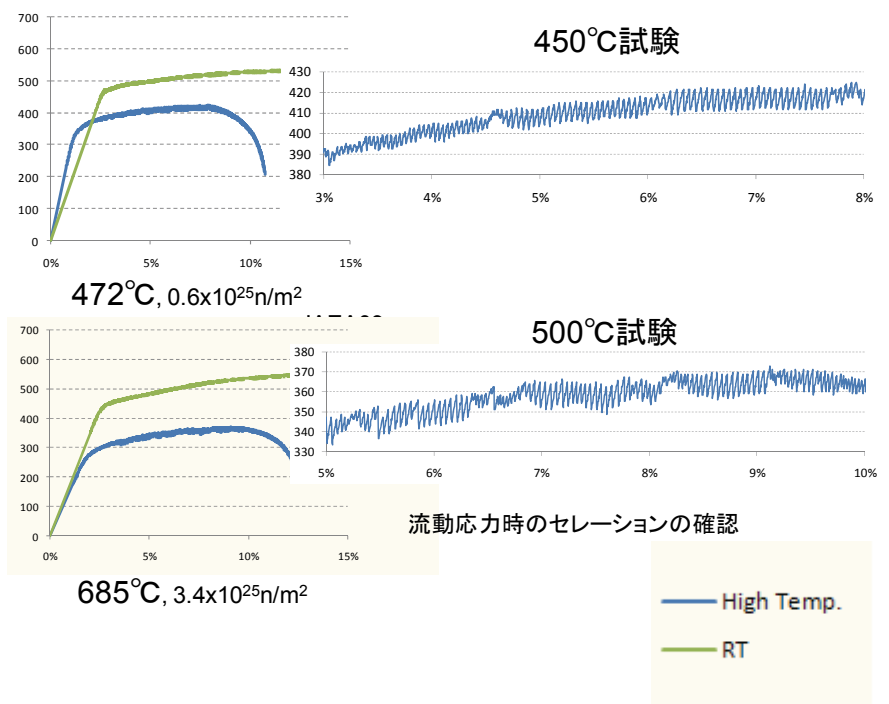
本研究では低温で中性子照射された低放射化バナジウム合金の熱処理を行い、照射硬化を低下・緩和させるための最適熱処理条件について探索する。熱処理に伴う照射組織の回復過程と機械的性質の修復の相関性について調べ、照射による脆化・硬化などの材料劣化からの回復・修復を行う熱処理条件を予測する相関則を明らかにする。今年度は大洗センターに高温引張試験機の導入が行われたため、高温引張試験機の動特性を理解し本研究への利用可能か適正を調べた。また高温引張試験を行い引張特性への試験温度効果、特に動的歪み時効に着目して研究を行った。

2. 実験

試料には純V、二元系V合金(5Cr,5Ti)、V-4Cr-0.1Ti、V-4Cr-0.3Ti、V-4Cr-1TiおよびNIFS-Heat2合金を用いた。常陽炉で照射温度均一化のため液体Na封入型照射キャプセル照射技術法を開発した。Na封入はJAEA大洗工学センターで行った。常陽照射(MNTR-01,02)は2サイクル照射で、照射温度は450~700°C(±30°Cの不確実性)で、中性子照射量は $1.1\sim 12\times 10^{25}\text{n/m}^2$ ($E>0.1\text{MeV}$)、pureV損傷量換算で1.7~5dpaであった。SMIR-27は4サイクル照射で、照射温度は454、601°Cで、中性子照射量は約 $14\times 10^{25}\text{n/m}^2$ ($E>0.1\text{MeV}$)、pureV損傷量換算で6dpaであった。照射後液体Naキャプセル解体をJAEA大洗工学センターMMF施設のホットセルで行った。試料からのNaを除洗を東北大金研大洗センターホット施設内のグローブボックスで行った。照射後試験としてクリープ測定、引張試験、TEM観察を行った。変形試験では水素の影響を除去するため横型真空炉で400°C、5時間の水素除去熱処理を行った。

3. 結果・考察

図にNIFS-Heat2合金の472°C照射および685°C照射したV-4Cr-4Ti合金の室温及び高温引張試験の応力歪み曲線を示す。高温試験温度は472°C照射では450°Cで、685°C照射材では500°Cで行った。高温引張試験では試験前の均一温度に10分程度保持した後試験を行っている。室温変形に比べて降伏応力及び最大引張強度の低下が見られる。また別の試料においては大きな塑性不安定性が見られ、試験温度の増加により塑性不安定性が増加する傾向が見られた。高温試験では動的歪み時効を示すセレーションが流動応力変形時に見られ、試料内部に固溶したガス不純物の存在が見られた。このセレーション幅は非照射試料に比べ小さいことからガス原子の多くは欠陥集合体にトラップされて自由に動けるガス原子数が少なくなっていることを意味している。次年度以降は等時焼鈍による照射硬化低減効果と微細組織の相関性について研究を行う。



タングステン被覆接合したバナジウム合金の機械的性質

東北大学大学院工学研究科 佐藤 学、佐藤隆司、長谷川晃

[目的] タングステンなどの金属やイットリアなどのセラミックスをバナジウム合金へ被覆接合することにより核融合炉用の材料システムとしての機能向上を図ることを検討している。異種材料の接合界面の構造や接合機構は中性子照射効果の観点からも基礎的理解を深めることが必要である。バナジウム合金を基板材料とした異種材料接合被覆材の作製と評価を行うと共に、異種材料接合界面における照射効果に関する基礎的知見を得ることを目的とする。

[研究経過] 基板材料としてのバナジウム合金の加工熱処理条件及び化学組成範囲についてはほぼ確立している。接合被覆材の界面強度について、短パルスのレーザー照射による衝撃波を用いた皮膜の引張応力条件による剥離強度評価を行うための手法はほぼ確立した。またスクラッチ法によるせん断応力条件による剥離強度の評価により合金添加元素の効果について調べた。タングステンとバナジウム合金、イットリアとバナジウム合金を対象としており、皮膜および基材の弾性定数の評価を計算も含めて進めている。皮膜および基材の機械的性質、特に弾性定数に及ぼす照射効果について調査し、照射済みのバナジウム合金について照射後試験を行い、照射効果についてのデータベース拡充を進めている。

[研究成果] レーザー照射による衝撃波を用いて皮膜の剥離強度を測定する装置は、図1の右側に示すような衝撃を加える部分と、左側の衝撃力を評価するための表面変位速度を計測する干渉計から構成する。Nd:YAG レーザーは最大出力 1.6 J でパルス幅は約 7ns である。基板材料の組成や皮膜の力学的性質および厚さによって対象とする界面に負荷できる応力は異なるが、バナジウム合金を基板材料とする場合にはおよそ数百 MPa の応力を負荷することができる。剥離強度は異なる出力条件の照射によって剥離が生じる条件と生じない条件の臨界出力条件を求め、対応する応力を評価する。表面変位速度変化を干渉計で計測することにより衝撃波の重ねあわせと弾性パラメータや密度から評価できる。非照射の条件ではプラズマスプレイ法でバナジウム合金上に作製した約 100 ミクロン厚のイットリア皮膜の剥離強度は約 600MPa と評価された。一方、タングステン皮膜の場合には剥離は観察されなかった。皮膜の剥離には皮膜自身の破壊と界面の剥離の両方が生じることが必要である。今後は応力負荷条件を変更し強度評価を進める予定である。

[まとめ] 被覆接合は構造材料を健全に維持する観点から重要な役割を担っており、皮膜を物理的に健全に保持するために必要な界面における強度特性についての知見が重要である。バナジウム合金におけるイットリアなどの酸化

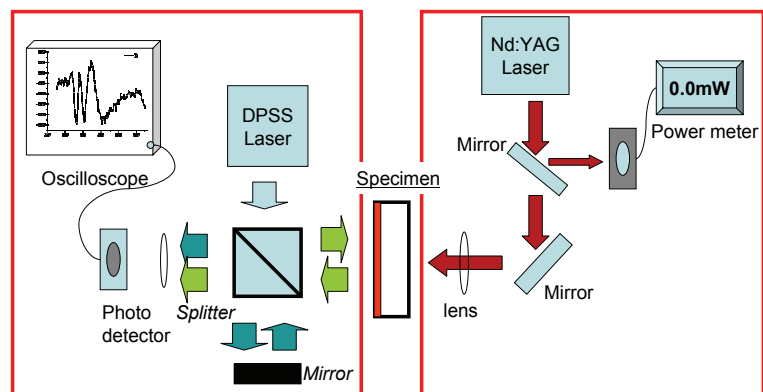


図1 レーザー衝撃を用いた皮膜剥離強度の測定装置の模式図
中央の試験片の左側が皮膜側。図の右側の Nd:YAG のパルスレーザー照射により皮膜裏側から衝撃波を発生させる。衝撃による応力は図の左側の干渉計を用いた表面変位速度の測定から評価する。

物やタングステンなどの金属の被覆について評価を進める。

HFIR 照射したバナジウム合金溶接部材の強度特性と微細組織

核融合科学研究所 室賀健夫、長坂琢也、総合研究大学院大学 李艶芬、九大応用力学研究所 渡辺英雄
実験目的

日米科学技術協力 JUPITER-II 計画は、平成 18 年度をもって終了し、多くの HFIR 照射試料が大洗センターに搬入されている。HFIR では、液体リチウム雰囲気での核融合炉候補低放射化バナジウム合金 (V-4Cr-4Ti) の照射試験が行われた。本研究では、バナジウム合金の溶接部材の照射特性に注目し、液体リチウム環境での照射による強度特性変化と組織変化を明らかにするとともに、常陽ナトリウム雰囲気照射や JMTR ヘリウム雰囲気照射と比較し、照射環境効果を明らかにすることを目的とする。

方法

723、873 K で 3.7 dpa 照射された HFIR-17J 試料は、平成 18 年度末-19 年度初めにかけて米国オークリッジ国立研究所から大洗センターに輸送された。バナジウム合金母材及び溶接金属シャルピー試験片について、衝撃破壊試験吸収エネルギーの温度依存性を求めた。さらに、873 K×1 hr で照射後熱処理を行い、照射後焼鈍効果を明らかにした。破面 SEM 観察、微小硬度測定、TEM 観察をおこない、組織変化と強度特性の相関を明らかにした。以上の結果を常陽ナトリウム雰囲気照射、JMTR ヘリウム雰囲気照射試験結果と比べ、照射雰囲気効果、特に C, N, O 等不純物の進入放出との関連について検討した。

結果

図 1 に HFIR 照射されたバナジウム合金溶接材の衝撃吸収エネルギーの温度依存性を示す。母材については、照射前、照射まま、873 K×1 hr 照射後焼鈍材のいずれの条件でも延性-脆性遷移温度 (DBTT) は液体窒素温度 (77 K) 以下であり、極めて良好な耐照射性を示した。溶接金属では照射前の DBTT は 77 K 以下であった。照射ままの DBTT は試験片不足により評価できなかったが、375 K よりは低い。873 K 照射後焼鈍材では DBTT が 250 K であった。母材の硬さは、照射前が 144 Hv、照射ままが 190 Hv であるのに対し、溶接金属は照射前が 175 Hv、照射ままが 241 Hv であった。母材、溶接金属の照射硬化はそれぞれ 46、66 Hv である。以上から、溶接金属では母材と比較して照射脆化・照射硬化が促進されることが明らかとなった。図 2 に照射ままの微細組織を示す。溶接金属、熱影響部では母材と比較して転位密度が高く、一方で析出物はほとんど観察されなかった。溶接金属、熱影響部では、溶接によって Ti-C, N, O 析出物が分解されて固溶 C, N, O 不純物が増え、それが転位と相互作用し、その運動や合体消滅を阻害することが高転位密度と、さらには硬化促進をもたらしていると考えられる。873 K の照射後焼鈍では、これらの転位が熱的に回復し、硬さが 219 Hv まで低下しており、その有効性が確認できた。これらの実験結果及びメカニズムは、JMTR 及び常陽照射の結果とも整合している。本研究ではさらに、リチウム雰囲気では照射脆化が小さい傾向も示唆されたが、確証は得られなかったため、今後は国内でもリチウム雰囲気照射を行うことが期待される。

発表論文

T. Nagasaka, T. Muroga, H. Watanabe, M. Yamazaki, K. Shinozaki, "Impact property of low activation vanadium alloy NIFS-HEAT-2 and its weld after neutron irradiations to 8.5 dpa", The 9th International Symposium on Fusion Nuclear Technology, Dalian, China, Oct. 11-16, 2009.

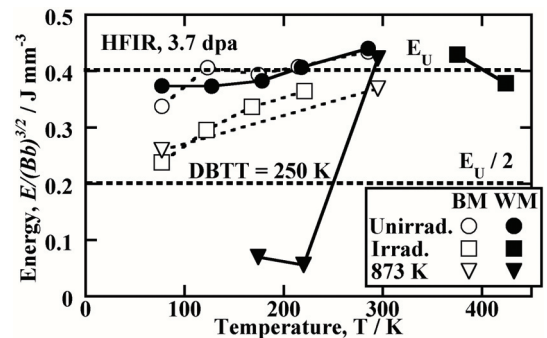


図 1 HFIR 照射されたバナジウム合金溶接材の衝撃特性 (BM: 母材, WM: 溶接金属)

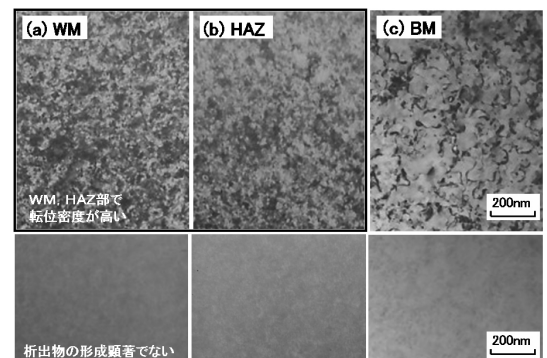


図 2 HFIR 照射したバナジウム合金溶接材の照射まま微細組織 (HAZ: 熱影響部)

核融合炉用低放射化材料被覆部材・異種接合材の照射効果

核融合科学研究所 長坂琢也、室賀健夫、菱沼良光、田中照也、九大応用力学研究所 渡辺英雄、総合研究大学院大学 李艶芬、東北大工学研究科 原 法義

実験目的

核融合炉用バナジウム合金共通材料 NIFS-HEAT (V-4Cr-4Ti 合金)により、板材、管材、線材、溶接材の製造性が実証されている。溶接材については照射後試験が進展している。バナジウム合金をブランケットに適用するには、大型製造性や、溶接法確立の他、第一壁被覆、絶縁(MHD)被覆、他材料との異種溶接が必要である。本研究では、被覆材の照射硬化、結晶性変化、バナジウム基盤との界面の特性変化、及びそれらが部材の機械特性に及ぼす影響を明らかにし、被覆部材の耐照射性に見通しを得ることを目的とする。一方、低放射化材料（フェライト鋼、バナジウム合金）と既存原子力材料である 316 鋼との異種溶接材について、接合部の照射損傷のメカニズム及び、使用可能条件を明らかにすることを目的とする。

方法

第一壁被覆部材については、プラズマスプレー法により、バナジウム合金上にタングステン被覆を作製し非照射の熱物性を明らかにした。異種溶接材においては、低放射化フェライト鋼と 316 鋼の電子ビーム溶接材を試作し溶接条件を明らかにした。

結果

プラズマスプレー法によるタングステン (VPS-W) は、密度が 17.1 g cm^{-3} であり、焼結タングステン (Bulk W-P) の 18.8 g cm^{-3} の 90% であった。線膨張係数、比熱については、VPS-W と Bulk W-P の間に違いは無かった。図 1 には熱伝導率を示す。VPS-W の熱伝導率は、温度依存性が小さく、室温から 800°C を通して $50 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ であり、これは室温で Bulk W-P の 30%、 800°C で 50% である。VPS-W の熱伝導率は Bulk W-P よりも小さかったものの、バナジウム合金の熱伝導率が $30 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ 程度で、これよりも大きく、第一壁から冷却材への熱輸送に悪影響を及ぼすことは無いと考えられる。Bulk W-P と VPS-W の電気伝導率はそれぞれ、 8.56 、 $16.6 \text{ } \Omega \text{ cm}$ であり、熱伝導率の低下と相関があることが明らかとなった。これら被覆材は常陽で照射済みであり、20 年度はナトリウムの除去まで終了した。21 年度には、被覆材の機械的特性、熱伝導率変化に注目し照射後試験を進める。

図 2 にフェライト鋼-316 鋼の異材溶接部の照射後焼鈍 ($750^\circ\text{C} \times 1 \text{ h}$) の硬さを示す。溶接位置が突き合わせ位置の場合には溶接後熱処理後も溶金部の硬さが 400 Hv あり脆化していると考えられるのに対し、溶接位置を 316L 側に 0.2 mm シフトすることで、この硬化を回避することができた。20 年度はこの条件で BR-II 照射の試料を作製した。21 年度以降で照射後試験を実施する予定である。

発表論文

N. Hara, S. Nogami, T. Nagasaka, A. Hasegawa, H. Tanigawa, T. Muroga, "Mechanical Property Changes and Irradiation Hardening due to Dissimilar Metal Welding with Reduced Activation Ferritic/martensitic Steel and 316L Stainless Steel", 18th Topical Meeting on the Technology of Fusion Energy, Sep. 28-Oct. 2, 2008, San Francisco, USA.

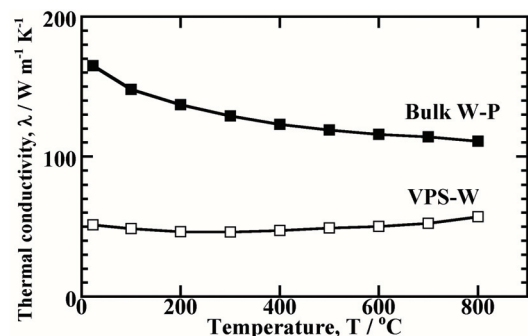


図 1 焼結 W (Bulk W-P) と真空プラズマスプレー W (VPS-W) の熱伝導率

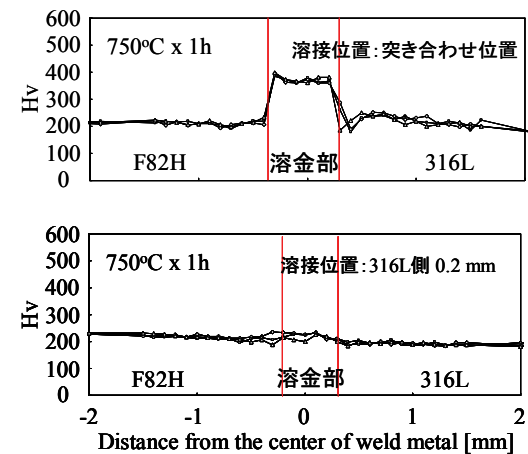


図 2 異材溶接部の硬さ (溶接後熱処理後)

核融合炉用炭素材料の中性子照射効果

渥美 寿雄 (近畿大学 理工学部)
四竈 樹男 (東北大学 金属材料研究所)
田辺 哲朗 (九州大学大学院 総合理工学府)
波多野 雄治 (富山大学 水素同位体科学研究センター)
庭瀬 敬右 (兵庫教育大学大学院 学校教育研究科)

1. はじめに

炭素材料は、原子番号が低く、高い熱伝導度、耐熱衝撃性など優れた特性を持つ反面、中性子照射によって熱伝導度の低下や水素保持量の増加を起し、ITERクラスの核融合実験炉では、プラズマ対向壁に用いることが問題とされている。しかし、これらの特性変化は、高温で使用することにより大きく緩和する可能性があり、炭素系材料を見直す意見も出されている。このため本研究では、炭素材料の中性子照射によるミクロ、およびマクロな特性変化、水素保持および水素吸放出特性の変化を調べることを目的とした。本年度は、この目的で新たに照射した試料が得られておらず、平成16年度に照射、19年度に解体した材料について水素保持と拡散挙動を測定し、評価を行った。

2. 方法

1) 中性子照射

試料は、等方性黒鉛、CFC材を用い、JMTRの水カラビット(UH-26, 28, 29, 30, U-165, 166, 172, 174, 180)により照射を行ったものである。

2) 水素吸収実験

照射後の試料は、1273Kで2時間の脱ガス処理を行った後、同温度、10kPaの水素雰囲気中に約30時間保持し、圧力変化より吸収速度ならびに吸収量を測定した。

3. 結果

中性子照射により、黒鉛中の水素拡散係数は、約0.1dpaを最小値として照射前の約1/50に低下し、その後回復する傾向が見られた。これは、水素の移動が、欠陥サイトの強い捕獲効果を受けるため、水素リテンションが飽和する0.1dpa以上では、捕獲効果がそれ以上に増加せず、結晶子の微細化あるいは粒界の拡大により易動度が増加したものと思われる(Fig.1(a))。一方、層間への水素の侵入に対しては、捕獲効果のみに依存し、照射量の増加による構造変化の影響を受けなかった(Fig.1(b))。照射後焼鈍では、水素リテンションが低下、拡散係数が増加するという結果が得られた(Fig.2)。この変化は、欠陥サイトの回復によるもので、サイト(Trap)により異なる挙動を示した。

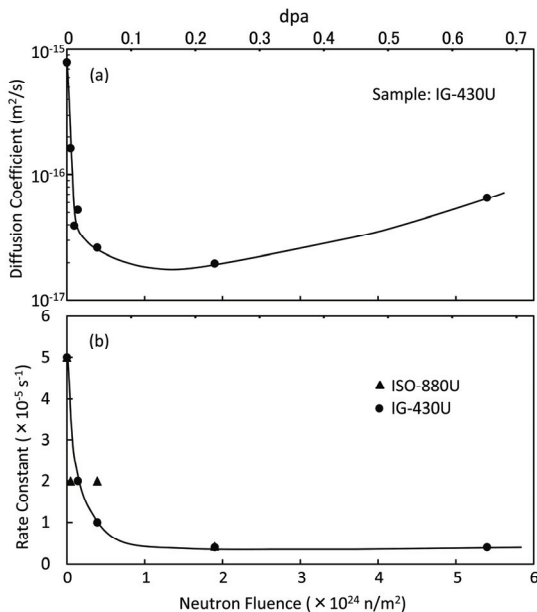


Fig.1 中性子照射量の増加に伴う、(a)水素拡散係数および (b)結晶子中への水素透過速度定数の変化 (水素吸収温度：1273K, 圧力：10kPa)

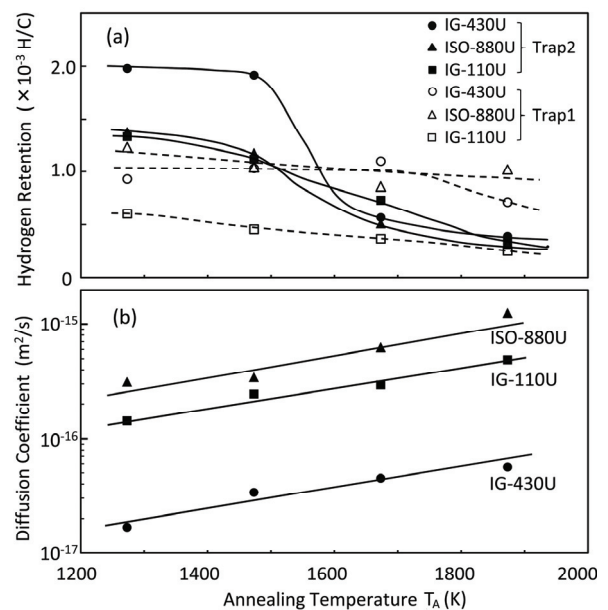


Fig.2 照射後焼鈍による(a)水素リテンションおよび (b)水素拡散係数の変化 (照射量： $3.9 \times 10^{23} \text{n/m}^2$ (0.047 dpa)、水素吸収温度：1273K, 圧力：10kPa)

先進核融合炉ブランケット用鉄鋼材料の接合被覆界面における照射影響評価

京都大学エネルギー理工学研究所 木村晃彦、笠田竜太、Noh Sanghoon

(背景・目的)低放射化フェライト (RAF) 鋼の照射データベースの蓄積は、現在 JAEA を中心とした全国体制の下で実施されており、ITER-TBM や BA の活動を通して、RAF 鋼研究の重要性がいよいよクローズアップされている。一方では、TITAN 計画において、HFIR 利用による RAF 鋼や ODS 鋼における接合部や被覆部におけるトリチウム挙動と照射影響評価が、大学グループによって進められようとしている。そこで本研究では、RAF 鋼および ODS 鋼による先進核融合ブランケットの設計を目指して、先進技術による接合や被覆を施した部材の界面における照射下健全性を、TITAN 計画照射材の照射後試験とともに多角的に評価することを目的とする。本年度は、照射に供する接合被覆材の開発を進めるとともに、照射後試験を考慮した接合強度特性評価手法の検討を進めた。

(実験方法)ODS 鋼どうしの接合や、ODS 鋼と W を接合する手法として、液相拡散接合法の適用を検討した。用いた ODS 鋼は、高クロム ODS 鋼 (Fe-19Cr-0.2Ti-0.3Y₂O₃) である。液相拡散接合法では、W と ODS 鋼の間にインサート材として Fe 基アモルファス材料を用いた。比較のために、インサート材を用いない固相接合についても実施した。接合試験は真空ホットプレスによって 2MPa の加圧下において、1180-1200°C、4 時間までの条件で、表 1 のように実施した。これらの接合・被覆材の接合強度を簡便に調べる方法として、スモールパンチ (SP) 試験を採用することとした。SP 試験は、直径 3mm の TEM 用ディスク試験片を流用できるため、これまでも照射後試験法のひとつとして、RAF 鋼、ODS 鋼等の照射脆化研究等に用いてきた実績を有している。

(実験結果及び考察)開発した ODS-W 接合材に対する SP 試験後の SEM 観察結果を図 1 に示す。1 行目の写真は、試験片の破壊形態の概観を示している。何れの条件においても、ODS 鋼部分において主要な延性破壊が生じているとともに、ODS-W の界面付近において直線状の剥離破壊が確認されるが、条件 3 においては割れが W 内部に分岐し、接合界面が保持されている部分も見られる。2、3 行目の写真は、界面における ODS 側と W 側の破面をそれぞれ示している。条件 3 においては、ODS 側も W 側も平坦な破面が観察されたため、十分な拡散による接合が為されていないと考えられる。接合時間を長くした条件 4 においては、ODS 側において相互拡散層と思われる破面が観察され、W 側では同様の相互拡散層での破面に加え W の粒界破壊と思われる破面が観察された。一方、固相拡散接合である条件 5 においでは、相互拡散層と思われる破面が支配的だったが、固相拡散接合界面では液相拡散接合と異なり、試料の切断加工中にも容易に割れが生じる傾向にあった。これらの接合強度特性の定量評価が今後の課題となるが、W 内部で破壊するような高い接合強度を有する条件を見出しつつあり、今後は照射材の接合強度評価を進める計画である。

表 1 ODS 鋼と W の液相拡散接合・固相拡散接合における接合条件

試料番号	母材	被覆材	接合条件	被覆材組成	母材組成	接合条件
3	ODS鋼+W	K1+#2605S2+K1	1200°C, 1h, 2MPa	Fe-19Cr-0.3W	Fe-3B-5Si	液相拡散接合
4	ODS鋼+W	K1+#2605S2+K1	1200°C, 4h, 2MPa	Fe-19Cr-0.3W	Fe-3B-5Si	液相拡散接合
5	ODS鋼+W	K1+W	1200°C, 4h, 2MPa	Fe-19Cr-0.3W	なし	固相拡散接合

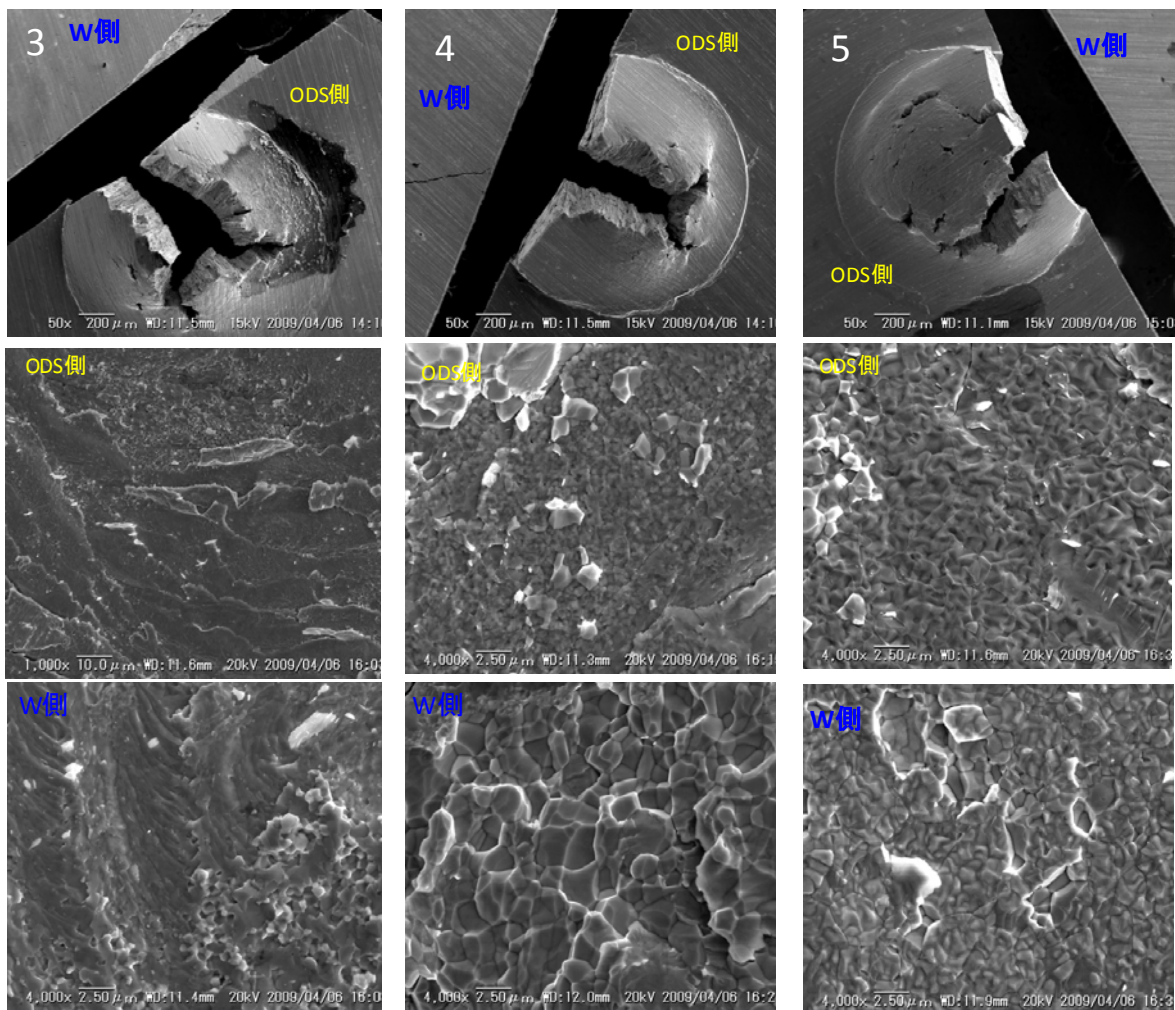


図 1 ODS-W 接合材に対する SP 試験後の破面の SEM 観察結果

(今後の計画)平成 21 年度は、新たに開発した被覆・接合材に対する BR-2 照射実験を希望している。

超微細結晶粒・ナノ粒子分散組織を有する高融点合金の 微細組織変化および相変態に及ぼす中性子照射効果

愛媛大学大学院理工学研究科

仲井清眞、小林千悟、阪本辰顕、古野智也（院生）、梶岡道生（院生）

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

栗下裕明、鳴井 實、山崎正徳

【目的】 核融合炉候補材料として、我々はこれまでメカニカルアロイング（MA）法を用いた粉末冶金法により Y_2O_3 等のナノ粒子を分散させた超微細結晶粒組織を有するV合金、ならびにTiCを粒界分散させたW合金を作製し、V合金の高温強度および耐照射性の改善、ならびにW合金の脆化（低温脆化、再結晶脆化、照射脆化）の改善に関する研究を行ってきた。その結果、V合金に関して、Wによる固溶強化およびTiCによる分散強化により $1050^{\circ}C$ 以下でV-4Cr-4Tiより高い高温強度を得た。W合金に関してはその結晶粒微細化による超塑性を利用して塑性加工を加えることにより室温にて延性が発現することを見出した。本年度は、照射前の性質を調べることを目的とし、V合金についてはV-Y-W-TiC合金の優れた高温強度の発現機構を明らかにするためにV-Y-W-TiCとV-Y-W-VC合金の高温強度に及ぼす組織の影響を調べた。Wについては、塑性加工による室温延性発現機構に関する知見を得るために高温塑性加工の組織に及ぼす影響を調べた。

【実験方法】 V合金：原料粉末として市販のV、Y、W、TiC、VCを用い、V-1.6Y-8.5W-0.8TiC (mass%)、V-1.6Y-8.5W-0.8VCの組成に配合した。それらの粉末を純化した H_2 雰囲気下で70hr、3軸加振型ボールミルによりMA処理した後、 $1000^{\circ}C$ で3hrの熱間等方加圧（HIP）により焼結した。さらに $1200^{\circ}C$ 、真空下で1hr焼鈍した。相の同定をX線回折測定により、組織観察を透過型電子顕微鏡により行った。引張試験には微小試験片（ゲージ部寸法：厚さ0.4mm、幅1.2mm、長さ5.0mm）を用い、 $900\sim 1200^{\circ}C$ の温度範囲、 $1\times 10^{-4}\sim 1\times 10^{-2} s^{-1}$ の初期歪速度、 $2\times 10^{-6} torr$ 以下の真空下で高温引張試験を行った。

W合金：原料粉末として市販のWおよびTiCを用い、W-0.25~1.5TiC (mass%)の組成に配合した。それらの粉末を純化したArあるいは H_2 雰囲気下で3軸加振型ボールミルによりメカニカルアロイング処理した後、軟鋼カプセルに充填し、 $1350\sim 1400^{\circ}C$ で3hrの熱間等方加圧（HIP）により焼結した。得られた焼結試料の中で超塑性変形能に優れている組成のW-(1.0~1.1)%TiCについて $1600\sim 1850^{\circ}C$ で塑性加工した。塑性加工材とHIPまま材に対し、ビッカース微小硬度測定ならびに透過型電子顕微鏡(TEM)による組織観察を行った。

【結果】 V合金：V-1.6Y-8.5W-0.8TiCがこれまで報告してきたV合金の中で最も高い強度を示した。Table 1にV-1.6Y-8.5W-0.8TiCとV-1.6Y-8.5W-0.8VCの結晶粒径と分散粒子径を示す。両者の間で結晶粒径にほとんど差がないが、V-1.6Y-8.5W-0.8TiCでは分散粒子が小さく、高密度に分散している(Fig.1)。一方、降伏強度の試験温度および歪速度依存性の結果から、 $950\sim 1150^{\circ}C$ の温度範囲での変形の活性化エネルギーはV-1.6Y-8.5W-0.8TiCで約440kJ/molであり、V-1.6Y-8.5W-0.8VCで約430kJ/molであった。これらの値はWの相互拡散の活性化エネルギー（357-393kJ/mol）に近い。また、その温度域での塑性歪速度の応力指数（n値）はV-1.6Y-8.5W-0.8TiCで6、V-1.6Y-8.5W-0.8VCで4であり、TiCの添加によりn値が増加した。これは変形応力に占める内部応力の寄与が大きいことを示しており、上述した組織観察の結果から、V-1.6Y-8.5W-0.8TiCのほうが分散粒子による内部応力が高いことによると考えられる。

W合金：W-(1.0~1.1)%TiCのAr雰囲気MA処理材に $1650^{\circ}C$ で塑性加工を施した場合の母相の平均結晶粒径、TiCの粒径および密度をTable 2に示す。また、それらのTEM写真をFig.2に示す。水素雰囲気処理材(Table3)とAr雰囲気処理材のいずれにおいても、塑性加工により母相の平均粒径は1桁程度増加し、分散粒子(TiC)も粗大化していた。また、Ar雰囲気処理材では塑性加工

により密度が増加しているが、その相対密度は測定誤差範囲内で理論密度に等しかった。これは、HIP焼結体で存在するナノサイズのArバブル（既報）が塑性加工の過程で除去されたためと考えられる。一方、水素雰囲気処理材では塑性加工の前後で密度に差は見られなかった。このことは、Ar雰囲気処理材では延性に有害なArバブルの除去が室温延性の改善の一因であることを示しているが、水素処理材の結果は、密度以外にその要因があることを示唆しており、塑性加工により粒界が強化されたものと考えられる。

照射材に関しては、BR2にてV合金とW合金の照射を行った。これらの試料を用いた実験は今後の課題である。

Table 1 V合金の母相の粒径と分散粒子径

材料名称	母相 D / nm	分散粒子 d / nm
V-1.6Y-8.5W-0.8VC	410	30
V-1.6Y-8.5W-0.8TiC	434	13

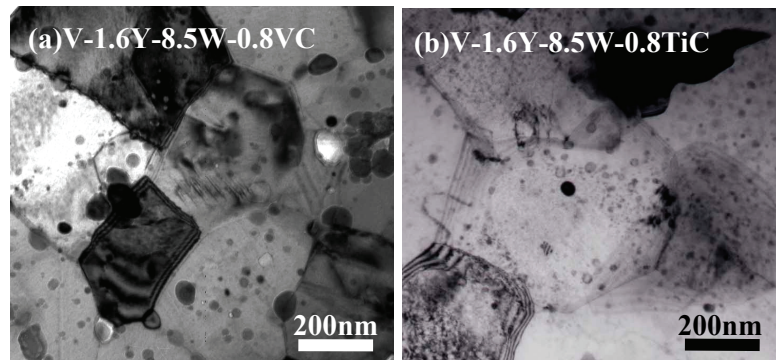


Fig. 1 V-1.6Y-8.5W-0.8VC および V-1.6Y-8.5W-0.8TiC の明視野像.

Table 2 W合金（Ar雰囲気材）の母相の粒径と分散粒子径と密度

	Wの平均粒径	TiCの粒径	密度
W-1.1TiCHIP まま材	55 nm	約 40 nm	17.8 g/cm ³
W-1.0TiC 塑性加工材	555 nm	約 150 nm	18.3 g/cm ³

Table 3 W合金（H₂雰囲気材）の母相の粒径

	Wの平均粒径
W-0.8TiC HIP まま材	181nm
W-1.1TiC 塑性加工材	1370nm

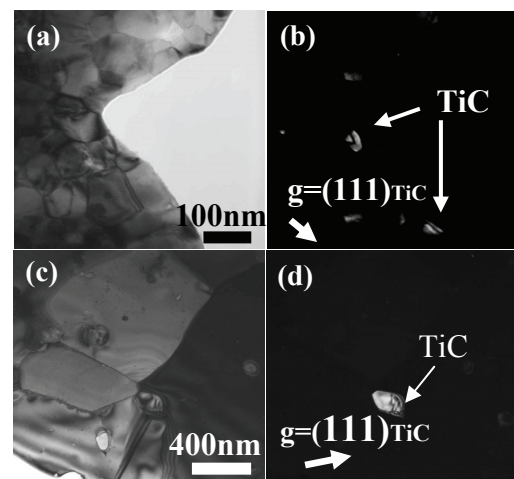


Fig. 2 W-1.0TiC/Ar の(a,b)HIP まま材と (c,d)塑性加工材の TEM 写真.

耐照射特性、低温靱性および高温強度に優れた高融点遷移金属の開発

(東北大金研) 栗下裕明、荒川英夫、鳴井 實、山崎正徳、(愛媛大理工) 阪本辰顕、小林千悟、
仲井清眞 (岡山理大理) 平岡 裕

目的: 周期律表VIA および VA 族の高融点遷移金属は優れた多くの特性をもつが、照射環境下で高温構造材料として使用するためには、照射脆化 (VIA, VA 族)、低温脆化 (VIA 族) および高温強度 (VA 族) の改善が不可欠である。これらの改善のために、研究代表者等は超微細結晶粒 (粒径: 50~300 nm)・粒子分散組織をもつ W-TiC および V-Y-W 合金を試作しその特性評価を進めている。その中で、平成 18~19 年度に見出した超微細粒 W-TiC における超塑性発現とそれに及ぼす TiC 添加量および MA 雰囲気の効果は、W-TiC の低温靱性改善に不可欠な塑性加工技術の確立のために活用可能と考えられ、また V-1.6Y と V-Y-W-C 系でそれぞれ見出した照射誘起マルテンサイト相形成と優れた高温強度の発現は V の照射脆化改善と高温強度改善のために活用可能であると考えられる。そこで本研究では、以上の研究を進展させることにより、W と V 合金の低温脆化、照射脆化および高温強度のさらなる改善を図ることを目的とする。

経緯: 低温靱性: W-TiC の延性脆性遷移温度 (DBTT) を室温以下にするためには、その破壊強度を高め、降伏強度を低下させることが必要である。破壊強度を高めるためには、粒界の強化と残留気孔の除去が必要であり、降伏強度を下げるには、結晶粒径の調整 (増加) が必要である。このような組織を実現するために、超微細粒 W-(0-1.5)%TiC の超塑性挙動に基づき、W-1.1%TiC の HIP 焼結体について高温 (1600~1850°C)、真空下で圧縮塑性加工を施した。塑性加工後の組織は、再結晶・粒成長組織を示し、HIP 焼結体に比べて結晶粒径が 1 桁程度増加し、粒界 TiC のサイズと数密度が増加した。残留気孔は無視できるレベルに低下した。塑性加工材について室温 3 点曲げ試験を行った結果、破壊強度の増加 (最大 4.4GPa) および降伏強度の低下が認められ、室温で曲げ延性を示した (DBTT: 室温付近)。破面は主に結晶粒内であった。以上のことから、W-1.1%TiC 塑性加工材の粒界は、再結晶・粒成長組織であるにもかかわらず極めて強化されていることになる。

再結晶・粒成長状態での粒界強化を実現できたことは、再結晶脆化に関する現在の認識 (再結晶温度をできる限り高め再結晶させないことが唯一の再結晶脆化の防止策) に代わり、再結晶しても脆化しない W 材料を開発可能であることを示唆する。W 材料は 3410°C もの高融点と多くの優れた特性をもちながら、1000~1500°C の低い温度で再結晶・粒成長して著しい再結晶脆化を示すために高温での使用が極めて限られていた。したがって、再結晶しても脆化しない W 材料が開発されれば、極めて重要な意味をもつ。

粒界強化を維持した状態での結晶粒径の調整により、室温延性のさらなる向上が期待されることから、DBTT を室温以下にもち、熱サイクルや熱衝撃に対しても強い高靱性 W-TiC 開発の見通しが得られたと思われる。今後の主な課題は、製造可能な材料寸法のスケールアップであり、そのためには新たな塑性加工技術の開発が必要である。

照射脆化: 照射脆化の観点からは結晶粒径が小さいほど有利であるが、W-1.1%TiC 塑性加工材における TiC 粒子のサイズ・密度の増加、粒界強化、および照射前の DBTT の低下により、照射後も DBTT が低いものと期待される。塑性加工材の中性子照射は BR2 を用いて実施予定である。

高温強度: TiC を 0.8% 添加し、W を固溶させた W-1.6Y-8W-0.8TiC は、これまで作製した超微細結晶粒・粒子分散 V 合金の中で最も優れた高温強度を示した。高温強度は結晶粒径と試験時間に依存するので、W-1.6Y-8W-0.8TiC の長時間クリープ特性を評価するために、結晶粒径の異なる微小引張試験片と試験治具を作製し、核融合研との共同研究によるクリープ特性評価を進めている。

多段内部窒化－酸化法により組織制御した Mo 合金の耐照射特性

(財)応用科学研究所 長江 正寛(代表者)
東北大・金研 鳴井 實, 栗下 裕明

1. 研究目的

Mo などの高融点高 Z 金属を核融合炉プラズマ対向機器などの照射環境下での構造材料として使用するためには照射脆化の改善が必須の課題である。本研究では内部窒化や内部酸化によって窒化物または酸化物粒子を分散させた Mo 合金に対して高速中性子照射を行い、析出粒子の形態やサイズなどの違いが照射脆化抑制効果に及ぼす影響について検討することを目的とする。

2. 実験経過

本研究に使用した試料は粉末冶金法で作製した Mo-1.0wt%Ti 合金ならびに Mo-1.0wt%Zr 合金である。厚さ 1mm の圧延材を約 0.3mm の厚さとなるよう機械研磨し、打ち抜き加工により直径 3mm の TEM ディスクを作製した。その後、最終的な厚さが約 0.15mm となるように機械研磨し、電解研磨を行った。これらを真空中 1500°C にて 1h 加熱して再結晶化させた後、以下に示す 5 種類の条件で窒化または希薄 CO ガス熱処理を行った。

窒化処理 (1 気圧 N₂ 気流中)
1100°C-16h
1300°C-16h
1500°C-9h
1600°C-9h

希薄 CO ガス熱処理(CO/Ar=1/49 の混合ガス気流中)
1400°C-9h

今回作製した照射前試料の代表的組織例を図 1 に示す。図 1(a)は 1100°C で窒化した Mo-1.0Ti 合金であり、数 nm サイズの円盤状 TiN 粒子が整合歪場を伴って析出している。図 1(b)は 1600°C で窒化した Mo-1.0Ti 合金であり、長さが 100~200nm 程度の棒状 TiN 粒子が析出している。一方、図 1(c)は 1600°C で窒化した Mo-1.0Zr 合金であるが、(b)の Mo-1.0Ti 合金とは異なり、整合歪場を伴う 30nm 程度の円盤状 ZrN 粒子が析出している。図 1(d)は 1400°C で希薄 CO ガス熱処理した Mo-1.0Zr 合金であり、長さが 30nm 程度の角柱状 ZrO₂ 粒子が析出しているが、明確な歪場は認められない。この様に、熱処理温度、雰囲気、溶質元素(TiまたはZr)の違いにより、析出物のサイズ、形態、歪場の有無などが異なっており、本研究ではこれらが照射脆化抑制効果に及ぼす影響を検討する。

照射条件は以下に示す 2 条件であり、照射後試料についての硬さ試験ならびに TEM 観察は平成 22 年度に予定している。

照射条件: ①290°C, 5×10^{24} n/m² ②400°C, 5×10^{24} n/m² (08M-13BR, 14BR)

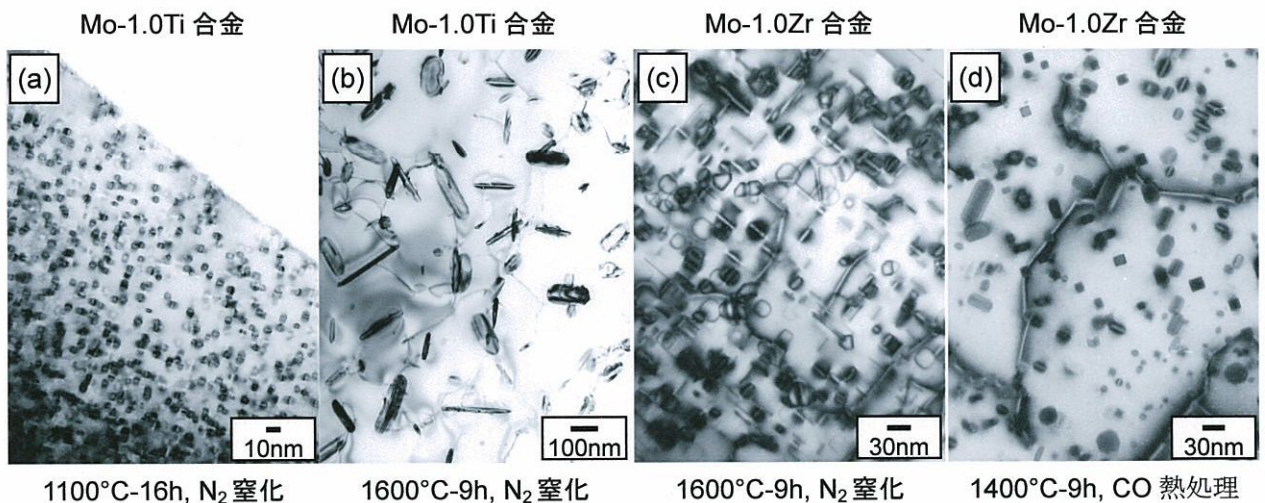


図 1. 本研究で作製した照射前試料の代表的組織例

核融合炉高熱流束機器用タングステン合金における 照射効果に及ぼす固体核変換元素の影響

東北大工、東北大金研*

長谷川晃、丹野敬嗣、賀建超、藤原充啓、佐藤学、野上修平、阿部勝憲、宍戸統悦*

1. はじめに

タングステン(W)はその特性から核融合炉のプラズマ対向壁の有力な候補材料として考えられている。W 中には中性子照射によって固体核変換元素であるレニウム(Re)やオスmium(Os)が生成し、W-Re-Os の 3 元系合金に変化することが予測されている。しかし、核融合炉照射環境下で予想される組成の W-Re-Os 合金における熱伝導率や析出の挙動は分かっていない。そこで W の核変換を想定した W-Re-Os 合金に中性子照射を行い、これまでに Re や Os の析出物が高密度に形成することで大きな照射硬化が起こるなどが分かっている。本研究では 2 元系および 3 元系合金における Re および Os の挙動を明らかにすることを目的として、電気抵抗率測定と微細組織を比較することで定量化を試みた。

2. 実験方法

実験には W に Re や Os を添加してアーク溶解炉で溶製したモデル合金を用いた。合金は TEM ディスク試験片に加工後、1400°C の真空中で 1 時間等温保持した。この試験片に対し、高速実験炉 JOYO にて中性子照射を行った。照射温度と照射量の範囲はそれぞれ 400-750°C、0.17-1.54dpa である。照射による核変換元素濃度変化および照射誘起析出挙動を調べるため、四端子法による電気抵抗測定と透過型電子顕微鏡(TEM)による微細組織観察を行った。

表 1 W の電気抵抗率における
不純物係数

	Binary	Ternary
A_{Re}	138	108
A_{Os}	602	583

表 2 電気抵抗率から算出した照射後の固溶量(2 元系)

Nominal content (mass%)	Estimated solution content C_i (mass%)				
	unirrad.	0.17dpa 400°C	0.37dpa 500°C	0.40dpa 740°C	1.54dpa 750°C
W-xRe					
5	5.3	6.4	6.1	6.4	4.7
10	11.6	14.4	12.0	-	10.6
26	24.7	24.9	26.6	29.0	36.7
W-yOs					
3	4.3	2.1	1.6	1.4	1.3
5	6.0	3.4	2.4	2.4	1.7

3. 実験結果と考察

非照射材の電気抵抗測定の結果より、固溶している Re および Os の影響を含めた電気抵抗率 ρ は次式で表すことができる。

$$\rho = \rho_0 + \sum_i A_i (C_i/100)(1 - C_i/100)$$

ここで ρ_0 は純 W の電気抵抗率、 A_i は表 1 に示す不純物係数、 C_i は Re または Os の質

量分率[mass%]である。これを用いて測定した電気抵抗率から照射による固溶量の変化を算出すると表 2 のようになった。W-Re 合金において、照射後の算出量が増加しているが、これは析出物体積が増加による抵抗増加が影響している可能性がある。それを考慮しても、本実験条件の範囲における固溶量の減少は、Re については 20%、Os については最大 70% に達すると考えられる。3 元系については Re と Os の区別が難しいが、最大で 50% 程度固溶量が減少したと考えられる。

750°C で 1.54dpa 照射後の W-5Re-3Os の微細組織を図 1 に示す。W-3Re や W-5Os の 2 元系合金と同様に針状あるいは板状の析出物が観察された。析出物の大きさは W-Re の 2 元系と比較して半分程度になったが、数密度は $1.5 \times 10^{23} \text{m}^{-3}$ から $7.0 \times 10^{23} \text{m}^{-3}$ に増加した。一方、400°C で 0.17dpa 照射した試料に析出物は観察されなかった。W-25Re-3Os 合金についても同様の結果となった。

析出物体積から見積もられる Re、Os の固溶量変化は最大でも 15% 以下であり、電気抵抗率変化から考えられる量よりかなり少ない。したがって、固溶あるいは析出物のほかに、析出の核形成の段階およびその周辺で高濃度化した Re、Os が相当量あると考えられる。

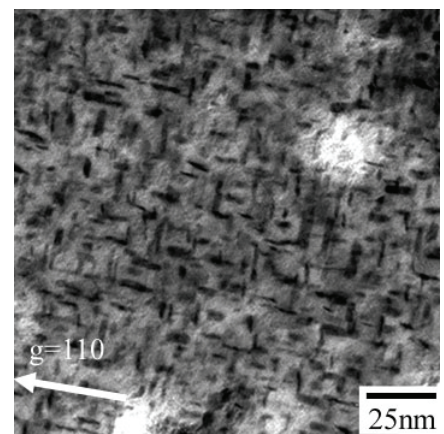


図 1 750°C で 1.54dpa 照射した
W-5Re-3Re に形成した析出物

核融合反応で生成したアルファ粒子計測のためのシンチレータへの 中性子照射損傷の解明

核融合科学研究所 西浦正樹、長坂琢也、井戸毅
京都大学 山本聡
東北大学 四竈樹男、鳴井実、笹尾真実子
大阪大学 藤岡加奈、藤本靖、中塚正大

実験目的

国際熱核融合実験炉 ITER のプラズマにおいて DT 反応で発生するアルファ粒子の閉じ込め物理の研究が自己点火を維持するために非常に重要である。アルファ粒子計測のために核融合炉の真空容器壁面にシンチレータを組み込んだ計測器を設置するが、そのような高温・高放射線下で利用できるシンチレータの開発が急務となっている。世界各国でシンチレータの開発研究が行われているが、中性子照射に関するデータは存在しない。本研究では、昨年度提出した BR 2 における高中性子照射条件のシンチレータと本年度新たに行う JRR-3 のラビット照射による低中性子照射条件のシンチレータに関して、シンチレーション特性、結晶構造及び微細組織の変化とその機構を明らかにする。以上に加え、シンチレータの蛍光を計測ポートまで効率良く伝送しなければならない。その伝送効率を評価するために ITER 損失アルファ粒子計測のリレーレンズ光学系を設計した。必要となる光学コンポーネント（石英レンズと平面鏡）の中性子照射環境下での特性予測、寿命予測を行う。

状況

粉末状の蛍光体を焼結させ、直径 10mm 厚さ 1mm の多結晶 $1\text{mol}\% \text{Ce}:\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (Ce:YAG) 焼結体と non doped $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 焼結体を作成した。それら試料をそれぞれ 3 枚ずつと反射防止コーティングされた石英レンズ 1 枚を 2 組用意した (図 1)。

Ce:YAG に関しては、その発光効率の照射量依存性と経時変化による発光効率の回復を昨年度報告したが、添加した発光中心の Ce によるものか母材の YAG によるものかを明らかにする実験である。封入された試料は JRR-3 にて 12 時間で熱中性子束 $8.9 \times 10^{13} \text{n/cm}^2/\text{sec}$ と 48 時間で $9.6 \times 10^{13} \text{n/cm}^2/\text{sec}$ の条件でラビット照射を行った。

光学コンポーネントである MgF_2 コーティングを施したアルミ平面鏡の放射線照射による反射率の特性変化を調べるために、上と同様の条件でラビット照射を行った。

高照射における各コンポーネントの特性変化を調べるために、BR-2 照射用の石英試料を用意した。石英試料 (信越石英提供) はそれぞれ OH、水素、フッ素濃度が制御されたものを用意した。

照射後試験は量子エネルギー材料科学国際研究センターにて行う予定である。

本研究は科学研究補助金特定領域研究「プラズマ燃焼のための先進計測」における H19 年度公募研究「燃焼プラズマで生じる損失アルファ粒子の検出器設計と開発」の一部として実施された。

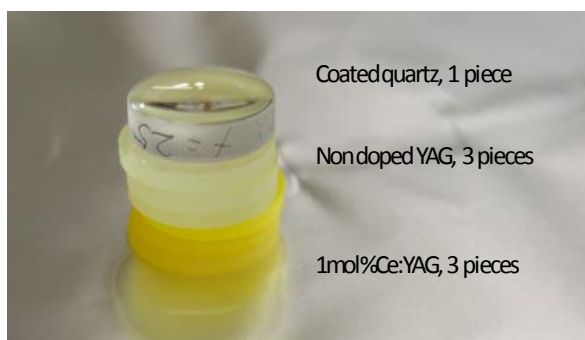


図 1. JRR-3 ラビット照射のために用意した ITER 損失アルファ粒子計測用の無機蛍光体 ($1\% \text{Ce}:\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ と non doped $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$) とその光伝送用石英レンズ。

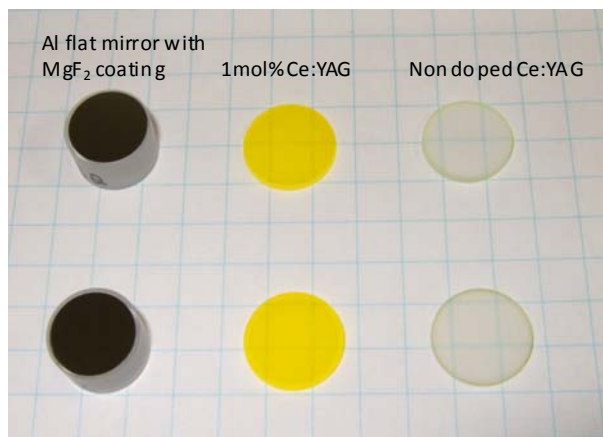


図 2. JRR-3 ラビット照射を行った無機蛍光体 ($1\% \text{Ce}:\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ と non doped $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$) と光伝送用 MgF_2 コート Al 平面鏡。

超伝導マグネット材料の照射効果

核融合科学研究所 西村 新、室賀健夫、長坂琢也、菱沼良光、田中照也、物質材料研究機構 竹内孝夫、大阪大学 西嶋茂宏、東北大学 四竈樹男、栗下裕明、渡辺和雄、西島 元

研究目的

核融合装置では D-D や D-T 反応によって核融合中性子が創出され、その運動エネルギーを熱エネルギーに変換することにより核融合エネルギーを使用することができる。運動エネルギーを熱エネルギーに変換する機器がブランケットであり、中性子の遮蔽、トリチウムの増殖、中性子の増倍が主たる役割である。しかし、高速中性子はブランケットや真空容器を透過するとともに、プラズマ加熱用のポートから漏洩し、超伝導マグネットに到達する。このような中性子照射による超伝導マグネット材料の特性変化を明らかにすることが本研究の目的である。

平成 20 年度は共同研究の二年目にあたり、超伝導材料の中性子照射後の特性変化評価、絶縁材料の JRR-3 での照射と照射後試験などを実施した。

超伝導線材の中性子照射効果

14 MeV 中性子を $1.78 \times 10^{21} \text{ n/m}^2$ 照射した NbTi 線材、Nb₃Sn 線材、Nb₃Al 線材の 28T ハイブリッドマグネットでの超伝導特性評価試験を実施した。実験には東北大学金属材料研究所のアルファ放射体実験室、強磁場材料研究センターの協力を得た。実験により得られた臨界電流 (I_c) の磁場依存性を図 1 に示す。NbTi 線材では照射の影響はほとんど見られず、臨界磁場 (B_{c2}) も変化しない。Nb₃Sn 線材は照射により明らかに I_c は増加した。しかし、磁場が高くなるにつれて I_c の増加の程度は小さくなり、20T 以上ではほとんど増加が認められなかった。 B_{c2} も約 25.5T と、明確な照射の影響は認められていない。Nb₃Al 線材では実験の範囲内では照射の影響は認められなかった。また、 B_{c2} も変化しなかった。しかし、6T 付近では照射によって I_c が増加すると報告されており、低磁場側では I_c が増加している可能性がある。照射前後の B_{c2} を測定したのは世界初であり、系統的な研究の継続が望まれている。

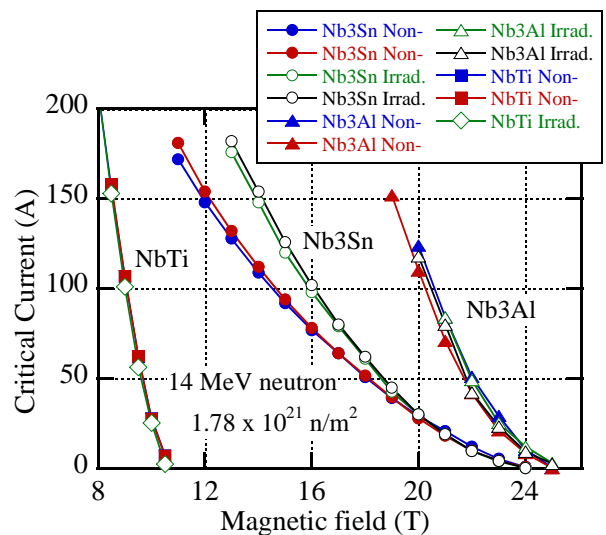


図 1 14 MeV 中性子の照射前後の臨界電流。
(照射量： $1.78 \times 10^{21} \text{ n/m}^2$ 。試験温度：4.2K)

電気絶縁材料の中性子照射効果

シアネートエステルは耐放射線性に優れているという報告がある。そこでガラスクロスとポリイミドフィルムを交互に 10 層積層した GFRP を試作し、その層間せん断強度 (ILSS) に及ぼす中世照射の影響を検討した。照射は JRR-3 で実施し、 $1 \times 10^{21} \text{ n/m}^2$ 、 $1 \times 10^{22} \text{ n/m}^2$ まで照射した。ILSS 試験は室温および液体窒素中 (77K) で実施した。実験結果を図 2 に示す。室温では $1 \times 10^{22} \text{ n/m}^2$ まで照射した試料で層間せん断破壊が生じ、ILSS は低下した。しかし、未照射試料も含め、すべての試料で層間せん断破壊を生じた 77K 試験では、 $1 \times 10^{22} \text{ n/m}^2$ 照射した試料の ILSS の低下の度合いは室温での結果に比べ小さくなった。層間破壊はポリイミドフィルム面上で生じていると思われる、破壊様式の確認が必要である。

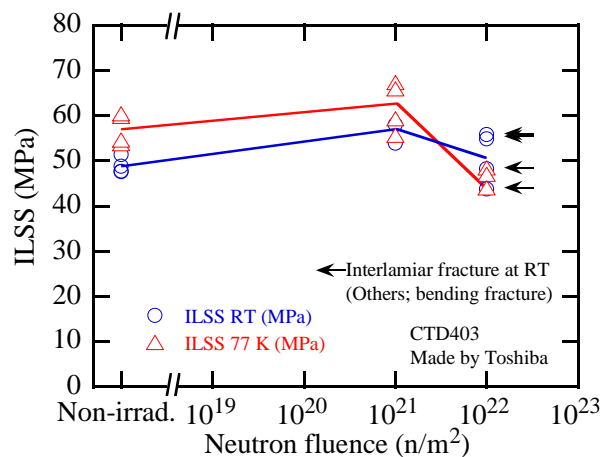


図 2 層間せん断強度と照射量の関係

低放射化鉄鋼材料の疲労挙動に及ぼす中性子照射の影響

香山晃¹、金東賢¹、金思雄²、檜木達也¹、鳴井實³

1: 京大エネ理工研、2: 原子力機構、3: 東北大金研

【緒言】 核融合炉発電システムにおける第一壁・ブランケット用構造材料としての低放射化フェライト鋼は、最も実用段階に近い候補材料である。核融合炉における運転条件や材料寿命決定においては、材料の疲労特性が重要な問題である。今までの研究から試験片の表面粗さは低サイクル疲労寿命を低下させる一つの原因であり、介在物は疲労亀裂の発生と進展に影響を与える因子として作用することが解明された。本研究では、低放射化フェライト鋼の疲労特性に関する材料設計基盤を構築するために、鋼中に存在する介在物の組成及びサイズ分布に注目し、疲労寿命に悪影響を及ぼす介在物を明らかにすることを目的とする。

【実験方法】 供試材は、低放射化鉄鋼材料 F82H-IEA(Fe-8Cr-2W、以下 IEA 鋼)と同時に、介在物の形成を抑制した F82H 調整鋼を用い、低サイクル疲労寿命評価と微細組織観察を行った。特に、F82H 調整鋼は、既存の F82H-IEA 鋼における溶解法のみでは Ta 酸化物単体やアルミナといった介在物を完全に除去することが困難であるため、脱硫や非金属介在物の除去のため用いられている二次精錬方法のエレクトロslag再溶解(Electroslag Remelting : ESR)を施した鋼が溶製された。この調整鋼を CA200-ESR 鋼(以下 ESR 鋼)とする。

【実験結果】 図 1 に SEM 観察と EDS 分析結果に基づいた鋼中に分布されているそれら介在物の種類別サイズ分布を示す。IEA 鋼は Ta 系および複合酸化物の介在物が多く分布されているが、ESR 処理鋼においては、わずかながらアルミナが観察されたものの複合酸化物や Ta 酸化物は観察されないことから、ESR 処理により Ta 系酸化物が除去可能であることが明らかとなった。

いずれの鋼も介在物は一様に分布しておらず、バラつきをもって分布していた。IEA 鋼には 2~4 μ m 程度の複合酸化物が多く分布し、ESR 鋼には 2 μ m 以下の微細なアルミナが数多く分布していることが確認された。すなわち、ESR 処理することにより粗大な複合介在物が減少し、形成された介在物のサイズも微細化されることがわかった。IEA 鋼と ESR 鋼における疲労寿命と歪み振幅の関係を図 2 に示す。低サイクル疲労寿命評価と鋼中に存在する介在物の観察結果と比較分析すると、粗大な複合介在物(アルミナと Ta 酸化物が複合化した介在物)を多く含む IEA 材の疲労寿命($\sigma \cdot t = 1.0$ と 0.4% で $N_f = 1040$ 、41639cycle)に比べ、微細な Al₂O₃ 介在物 (Ta 酸化物を含まない)を多く含む ESR 材の疲労寿命($\sigma \cdot t = 1.0$ 、0.4% で $N_f = 2010$ 、74115cycle)が優れていることが確認された。これらの結果から、核融合炉用構造材料として ESR 処理などによる高純度 F82H 鋼の必要性が明らかとなった。

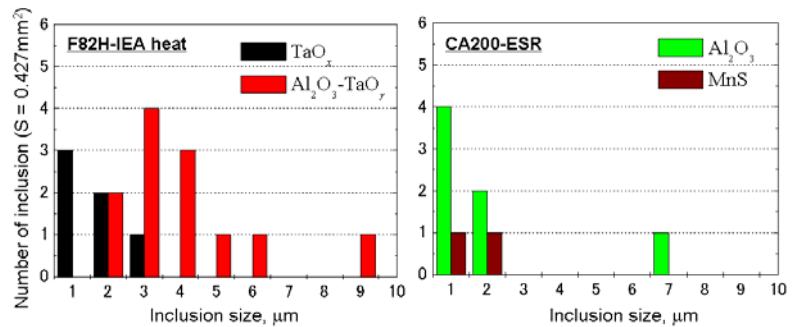


図 1 鋼中に分布されている介在物のサイズ分布度

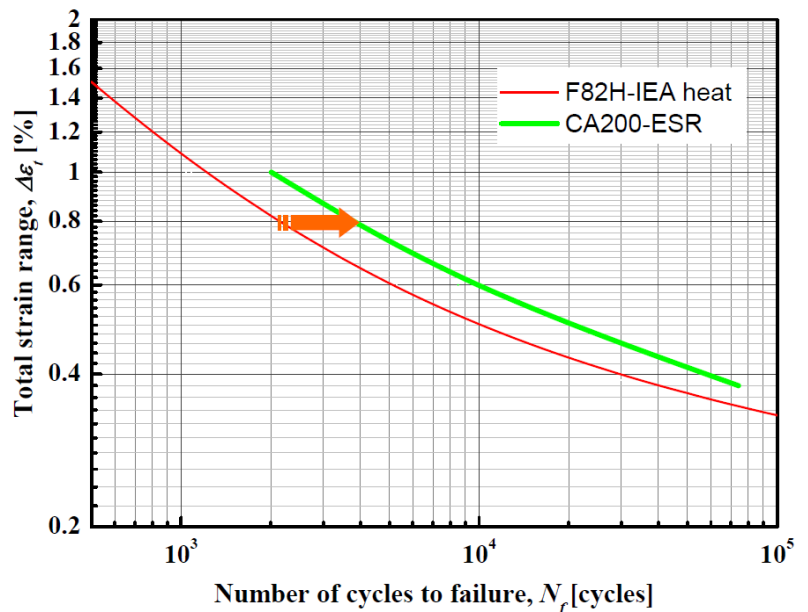


図 2 F82H IEA heat 鋼及び CA200-ESR 鋼の疲労寿命特性

次世代原子力エネルギー用 SiC/SiC 複合材料及び SiC の中性子照射効果

香山晃¹、檜木達也¹、小沢和巳¹、川嶋悠右¹、小柳孝彰¹、鳴井實²

1: 京大エネ理工研、2: 東北大金研

【緒言】

これまでの共同利用研究における各種強度試験により、先進 SiC/SiC 複合材料（以下 SiC/SiC）の優れた耐照射形状・強度安定性が明らかにされつつあり、作製技術の進歩もあり従来の核融合へだけではなく、先進核分裂炉への応用も検討されるようになってきた。従来試験されてきた SiC/SiC 複合材料は CVI 法や PIP 法によって作製されたものであったが、現在進展が著しい NITE 法で作製された先進 SiC/SiC の耐照射強度特性に関する理解は進んでいるとは言えない。本研究では、NITE-SiC/SiC の強度特性に対して中性子照射が与える影響を明らかにすることを目的とした。

【実験方法】

供試材として、先進 NITE-SiC/SiC (Pilot Grade #3) を用いた。これは、TyrannoTM-SA 3rd (TySA) を強化繊維とし、NITE 法にてマトリックスを付与したものである。織物構造は一方向に強化したもの (Unidirectional: UD, 以下 UD 材) と、0°/90°方向に積層させたもの (Crossply: CP, 以下 CP 材) の 2 種類を用いた。界面相はともに 500nm 程度の熱分解炭素である。また、NITE-SiC/SiC 複合材料の主要構成要素であるマトリックスの参照材となる同様な焼結条件で作製したモノリシック SiC も用いた。中性子照射は JMTR にて実施された。引張試験に用いた材料の照射温度は 600°C、照射量は 0.52 x 10²⁵ n/m² (SiC 換算でおよそ 0.52 dpa) であった (05M-19U)。中性子照射後は除負荷/再負荷サイクル引張試験を実施した。また、得られた引張カーブに対してヒステリシスループ解析を実施し、界面強度特性を見積もった。加えて、引張試験後の試料の破断面は SEM 観察に供した。曲げ試験に関しては、上記の 05M-19U に加えて、04M-17U、04M-18U の照射材 (400°C、0.5dpa、600°C、0.55dpa、750°C、0.64dpa) を用いた。

【実験結果】

UD 材、CP 材ともに、これまでに報告されている CVI 材と同様に比例限度応力も最大強度も照射による劣化は見られなかった。これは、CVI 材と同様に NITE 材も耐照射特性に優れた高結晶性の SiC 繊維とマトリックスで構成されているためと考えられる。しかしながら、図 1 に示すように UD 材に関して、ヒステリシスループ幅が減少しており、比例限度力が維持され、SEM 観察においてプルアウト長さに有意な変化が認められなかったことから、界面摩擦応力の上昇が示唆された。マトリックス損傷関数等の解析の結果と合わせて、中性子照射により、繊維、マトリックス、界面それぞれの変化は生じ、界面特性の変化等は生じるものの、総合的な結果としては、比例限度応力や最大強度の値への中性子照射による影響は非常に限られていることが明らかになった。

モノリシック SiC に関しては、曲げ試験により評価を行った。15 本~20 本程度の同条件で照射した試料を評価することにより、統計的なばらつきに及ぼす中性子照射の影響の評価も行った。図 2 は非照射材、中性子照射材の強度のワイブル分布を示している。照射温度、照射量に依存する傾向は見られず、若干の強度の低下とばらつき増加が見られた。照射後においても非常に高い強度を示していることと、引張試験の結果を考慮してもマトリックスの特性の変化が照射後の複合材料の強度特性に及ぼす影響は限られていると考えられる。

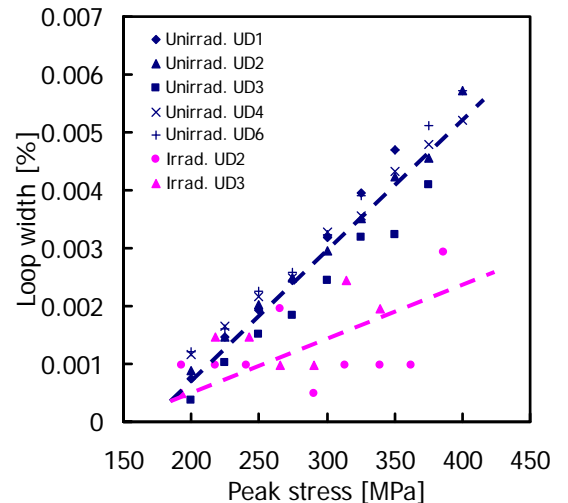


図 1: ヒステリシスループ幅に及ぼす中性子照射効果

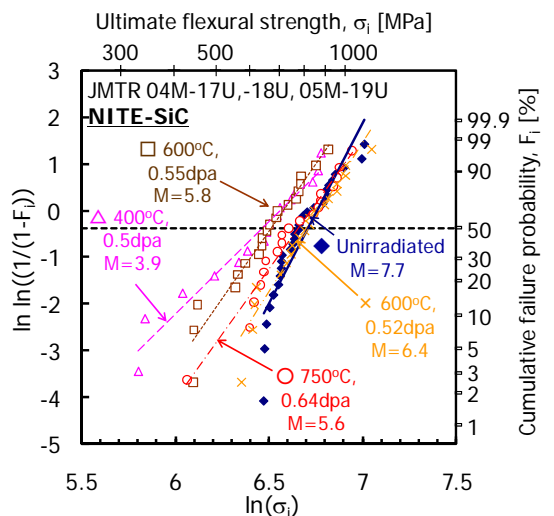


図 2: モノリシック NITE-SiC の曲げ強度特性に及ぼす中性子照射効果

Ⅲ. 照射基礎・他

ジルコニウム基金属ガラスのアモルファス構造に対する中性子照射効果

東北大学 金研 土屋文、四竈樹男、永田晋二、鳴井実、山崎正徳

1. はじめに

アモルファス構造の金属ガラスは優れた機械的特性を有するため、宇宙や原子炉内の放射線環境下で実用可能な新機能材料として有望視されている。実現させるためには、中性子照射下における金属ガラスアモルファス構造の安定性に関する基礎的実験データの収集が必要である。日本原子力研究開発機構大洗研究開発センターのJMTRにおいて、ラビット照射されたジルコニウム基金属ガラスの結晶化温度を測定し、金属ガラスのアモルファス構造に対する中性子照射効果について明らかにすることを目的とする。

2. 実験

本研究において使用された試料は東北大学金属材料研究所附属金属ガラス総合研究センターにおいて作製された縦・横 5×5 mm、厚さ 50 μm のリボン状ジルコニウム基金属ガラス(組成: $Zr_{55}Ni_{15}Al_{10}Cu_{30}$)であった。平成 16 年度に JMTR を利用して $Zr_{55}Ni_{15}Al_{10}Cu_{30}$ 試料の中性子照射実験を行った。JMTR は、高い中性子束が得られるように設計され、短時間で照射試験を行うことが可能な軽水減速冷却タンク型の材料試験用原子炉である。本研究では、水カラビット照射設備を利用して、JMTR の運転を停止することなく、直径 32 mm、長さ 150 mm のステンレス製水カラビット照射用試料ホルダーを必要に応じて炉心に水流によって出し入れし、照射量を調節した。その試料ホルダー内には 0.1 MPa の He ガスが充填された。50 MW の最大原子炉熱出力到達時では、最大高速中性子束(>1 MeV)、最大熱中性子束(<0.683 eV)およびガンマ発熱率はそれぞれ $7.7 \times 10^{16} \text{ n/m}^2 \cdot \text{s}$ 、 $1.1 \times 10^{18} \text{ n/m}^2 \cdot \text{s}$ および 1.1 W/s であった。3 本の試料ホルダーはそれぞれ 10 時間、72 日間および 144 日間まで照射された。即ち、高速中性子照射量は各試料ホルダーにおいて 2.8×10^{21} 、 2.0×10^{22} および $4.0 \times 10^{22} \text{ n/m}^2$ であった。各照射量において 3 種類の異なる照射温度の試料を得るため、 $Zr_{55}Ni_{15}Al_{10}Cu_{30}$ 試料は熱媒体によって封入された。熱媒体の材質は①アルミニウム、②および③鉄であった。アルミニウムおよび鉄の室温付近(300 K)における熱伝導率はそれぞれ 2.37 および 0.803 W/cm·K である。また、熱媒体の直径はそれぞれ①15、②14 および③10 mm であった。ガンマヒーティングによって発生した熱の放出量は、熱伝導率の異なる熱媒体および熱媒体と試料ホルダー間にギャップを取ることで変化することによって変化する。原子炉照射下における試料温度は、照射後に温度モニターとして試料ホルダーに試料と共に同封された融点既知の金属の熔融状態を光学顕微鏡で観察することによって、それぞれ約 373、513 および 573 K と評価された。これらの原子炉照射された試料の熱的安定性について示差走査熱量測定(DSC: Differential Scanning Calorimetry)を用いて調べた。

3. 結果および考察

100 ml/min の Ar ガス流量および 0.17 K/s の昇温速度で測定された未照射および照射試料の DSC スペクトルを図 1 に示す。ガラス転移に伴う吸熱および結晶化に伴う発熱ピークが未照射および照射試料の DSC スペクトル中に観測された。未照射試料について、ガラス転移温度 T_g および結晶化開始温度 T_x はそれぞれ約 676 および 757 K であった。各照射温度において照射された試料の T_x における高速中性子照射量依存性を図 2 に示す。513 K 以下および $4.0 \times 10^{22} \text{ n/m}^2$ まで照射された試料の T_x は未照射試料の T_x とほぼ同じであるが、573 K において照射された試料の T_x は照射量の増加と共に減少し、 $4.0 \times 10^{22} \text{ n/m}^2$ の照射量において 22 K まで低下することがわかった。

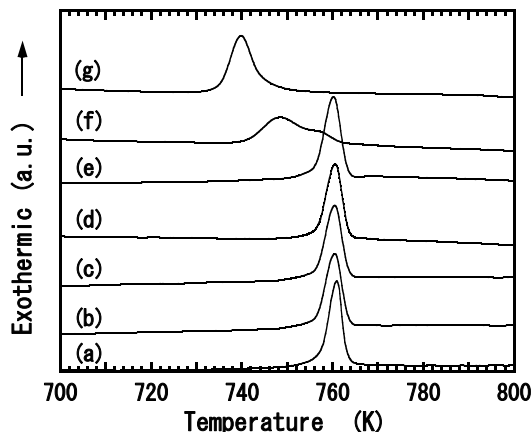


図 1 高速中性子照射および未照射 $Zr_{55}Ni_{15}Al_{10}Cu_{30}$ 試料の DSC スペクトル。

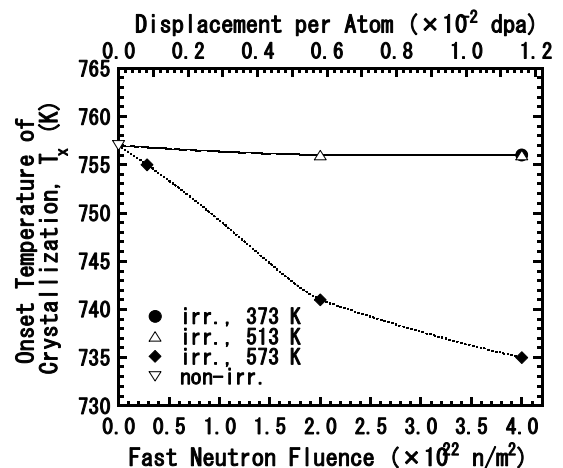


図 2 結晶化開始温度の線量依存性。

Zr 基バルク金属ガラスの中性子照射による機械的性質の変化

兵庫県立大学工学研究科 山崎 徹, 山田昌弘 (院生)
 東北大学金属材料研究所 横山嘉彦, 栗下裕明, 鳴井 實, 山崎正徳

1. 目的

最近の研究結果から申請者らは、亜共晶組成の Zr 基金属ガラスは、構造緩和脆性が生じにくいことを明らかにしている。このような耐構造緩和脆性能は中性子照射脆性にも適応できることが考えられる。従来の金属ガラスに関する照射実験では照射に伴う温度上昇があったため、純粋な中性子線照射による金属ガラスの脆化を観察することが出来ず、加熱に伴う構造緩和脆化を見ていた可能性が高い。しかし我々が開発した亜共晶組成の Zr 基バルク金属ガラスは構造緩和することで脆化挙動を全く見せないため、完全に構造緩和してガラス構造を統一化した試験片を用いて中性子線照射実験を行うことが可能になる。得られた中性子照射試験片を用いて貴研究施設の衝撃破壊靱性試験器を用いて脆性評価を行うことを目的とする。

2. 実験方法

本研究では共晶組成である $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ および、 $Zr_{55}Cu_{30}Ni_5Al_{10}$ 金属ガラス合金を基準として、Zr-rich 側の組成を有する種々の合金を作製し、Uノッチ型シャルピー衝撃試験片を作製した。Fig. 1 に、本研究に供した Zr-Cu-Ni-Al 系金属ガラスの合金組成を示す。これら合金を、それぞれの T_g 温度よりも 30K 低い温度で 2 時間の構造緩和処理を行い、大洗センターに設置されている計装化シャルピー試験機を用いて衝撃試験を行った。試験片形状は長さ 60mm、幅 10mm、厚さ 5mm の大型試験片である。各試料について 3 回の試験を行い、その平均値を衝撃値とした。また、中性子照射実験用および寸法効果を比較検討するための試験片として、長さ 20mm、幅 1.5mm、厚さ 1.5mm の Uノッチ型の小型衝撃試験片を作製した。

3. 実験結果

共晶組成である $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ および、 $Zr_{55}Cu_{30}Ni_5Al_{10}$ 金属ガラス合金を基準として、Zr-rich 側の組成を有する種々の合金を作製し、Uノッチ型の小型衝撃試験片に加工した後、現在、中性子照射実験を依頼中である。また、Table 1 に示すように、Zr-Cu-Ni-Al 系合金については、未照射材の衝撃試験を実施した。これから明らかのように、共晶組成の $Zr_{55}Cu_{30}Ni_5Al_{10}$ 金属ガラス合金に比べて、Zr-rich な $Zr_{65}Cu_{20}Ni_5Al_{10}$ 金属ガラス合金は、構造緩和熱処理を施した後でも、衝撃値の低下は見られず、むしろ熱処理により衝撃値が上昇していることが分かる。その他の合金組成では、Zr 含有量が多いほど、熱処理による脆化の程度は少なくなる傾向はあるが、いずれも脆化の進行が認められる。以上のことから、耐構造緩和脆性能の著しく高い $Zr_{65}Cu_{20}Ni_5Al_{10}$ 金属ガラス合金においては、中性子照射による耐脆化性能も非常に優れていることが期待される。次年度以降には、Zr-Cu-Al 系金属ガラス合金も含めた中性子照射材について検討を加える。

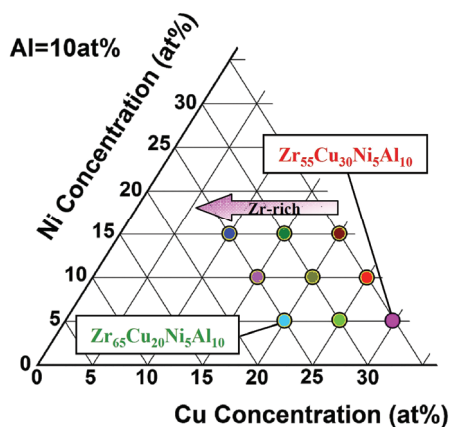


Fig. 1 本実験に供した $Zr_{55-65}Cu_{10-30}Ni_5-15Al_{10}$ 金属ガラスの合金組成

Table 1 $Zr_{55-65}Cu_{10-30}Ni_5-15Al_{10}$ 金属ガラスにおける CUE (Uノッチシャルピー衝撃値). いずれも未照射材。熱処理はそれぞれの合金の T_g よりも 30K 低い温度で実施。

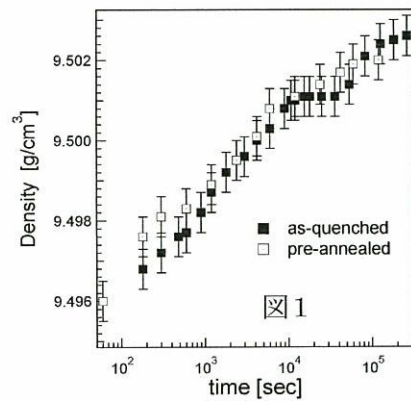
Sample	熱処理前	熱処理後	差
$Zr_{65}Cu_{20}Ni_5Al_{10}$	83	86	-3
$Zr_{60}Cu_{25}Ni_5Al_{10}$	92	66	26
$Zr_{65}Cu_{15}Ni_{10}Al_{10}$	85	75	10
$Zr_{60}Cu_{20}Ni_{10}Al_{10}$	94	53	41
$Zr_{55}Cu_{25}Ni_{10}Al_{10}$	74	45	29
$Zr_{65}Cu_{10}Ni_{15}Al_{10}$	82	69	13
$Zr_{60}Cu_{15}Ni_{15}Al_{10}$	73	47	26
$Zr_{55}Cu_{20}Ni_{15}Al_{10}$	60	47	13

単位: kJ/m^2

Pd-P 基および Zr 基バルク金属ガラスの構造緩和に及ぼす中性子損傷効果

東理大・春山修身、東北大金研・栗下裕明、東北大金研・木村久道、東北大金研・川崎雅司、東北大金研・湯蓋邦夫、九州工大・高原良博

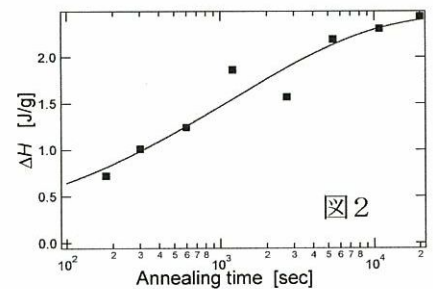
[はじめに] 照射試料がまだ戻ってきていないため、未照射 as-quenched 試料の構造緩和挙動を、精密密度測定を用いた体積緩和と、熱補償型の走査型熱量計で測定した比熱曲線から求めた enthalpy 緩和により調べた結果を報告する。バルク金属の構造緩和の研究は、そのバルク特性を生かして最近きわめて定量的に行われている。測定に用いられる物理量は、粘弾性、陽電子寿命、エンタルピー、密度などである。これらは構造緩和の kinetics を調べるための静的な測定であるが、内耗、中性子非弾性散乱、超音波測定などを用いた動的な測定により、金属ガラス構造が均一な Topological disorder 相ではなく、構造緩和を容易に起こす領域とほとんど構造緩和をしない領域とからなる不均一構造であることが明らかにされつつある。本報告では、Pd-P 基 3 元バルク金属ガラスである $Pd_{46}Cu_{35.5}P_{18.5}$ と代表的な Zr 基 4 元バルク



金属ガラスとして知られている $Zr_{55}Cu_{30}Ni_{15}Al_{10}$ についてその構造緩和挙動を調べた。

[測定法] Pd 基試料は、水焼き入れ法により、また、Zr 基試料は傾斜金型铸造法によりいずれも 8 mm 径の試料として作成した。相の同定は、Cu-K α 線を用いた X 線回折で行った。密度測定は焼鈍後に室温で行い、装置は Mettler Toledo AX26 電子天秤に自家製の密度測定ユニットを組み込んで用いた。浸液は、表面張力と蒸気圧の小さいことから n-Tridecane を用いた。比熱曲線は、Perkin Elmer Diamond DSC を用いて室温から結晶化開始温度直前まで測定した。

[結果と考察] 図 1 は $Pd_{46}Cu_{35.5}P_{18.5}$ as-quenched 試料と、過冷却液体領域で十分に前焼鈍してその温度で Free volume を平衡値にした試料を 537 K で焼鈍したときの密度緩和曲線である。As-quenched 材では 2 段の緩和過程がはっきりと現れている。一方、前焼鈍した試料でも変化が 2 段で見えているので、この挙動は As-quenched 材中の Free volume の分布の不均一性によるものではなく、この合金系に特有な現象であると判断している。これに対して図 2 は緩和を enthalpy 変化 (実際は減少) として表したもので 1 段階の変化として現れている。Enthalpy 変化は緩和に伴う熱の放出であり、これは緩和時の原子間距離の変化に伴うポテンシャルエネルギーの変化に対応している。アモルファス構造では原子間距離



が近くて、主として harmonic なポテンシャルエネルギー変化を示す領域と anharmonic な変化を示す領域の混合と考えられるので、enthalpy 変化が volume 変化と必ずしも比例しないと考えている。Zr 基バルク金属ガラスについては

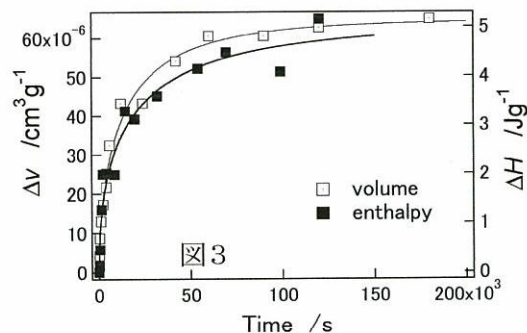


図 3 に、前焼鈍したのちに 643 K で測定した体積緩和と enthalpy 緩和曲線を示す。この場合は両方の緩和過程にそれほど大きな違いはなく、構造緩和過程から見たとき Pd-P 基金属ガラスと Zr 基金属ガラスにはかなりの違い

があることがわかる。また、単調な（1段階）緩和曲線の場合、その kinetics は合金系と測定法の違いによらず拡張指数関数型（Stretched exponential type）の緩和関数でよく表せ、このとき緩和時間と緩和指数はいずれも強い温度依存性を持ち、ガラス固体を緩和させる温度が過冷却液体領域に近づくほど Debye 型の緩和に近づくことが知られている。図4は、ガラス個体領域のさまざまな温度で fully relaxed 状態（過冷却液体状態）に近い状態まで構造緩和させた $Zr_{55}Cu_{30}Ni_{15}Al_{10}$ ガラスの一原子体積と液体の一原子体積を、温度の関数としてプロットしたものである。ここで、密度測定は室温での測定なので、原子体積はガラスの熱膨張係数 ($3.18 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$) を使って in-situ の値に換算している。また、凝固温度、 T_m 、以上の高温液体の体積は Electro-levitation 法で求めている。一原子体積の温度依存性は、Cohen and Turnbull [1]モデルが予想している比例関係でなく、Cohen and Grest [2]が提案したアモルファス構造の不均一モデル（liquid-like cluster と solid-like cluster との混合）でよく表せることがわかった。平衡液体および過冷却液体の原子体積の温度依存性は、 $Pd_{40}Ni_{40}P_{20}$ および $Pd_{43}Cu_{27}Ni_{10}P_{20}$ 合金でも調べられているが、Zr 基金属ガラスと異なり Cohen and Turnbull モデルに従うという報告がなされている。これは、Pd-P 基ガラスは Zr 基ガラスに比べると Fragile な液体構造をしているので、見かけのガラス転移温度、 T_g 、以下のガラス固体領域では粘性の急激な増大のために原子の集団運動が困難となり、 T_g からあまり離れた低温での緩和挙動が調べられていないためと考えられる。図4で fitting 曲線を室温付近まで外挿すると as-cast 試料の室温での原子体積（◇）を超えてしまう。As-cast 試料は図の T_f 付近の過冷却液体の構造を凍結しているので、温度のずっと低い室温付近の過冷却液体に比べて多くの平衡 Free volume を含むはずであり、当然体積は大きくなくてはならない。このパラドックスは Cohen and Grest が予想した真のガラス転移（一次相転移）が図中の温度 T_{ig} で起きるとすると回避できる。 T_{ig} は fitting 曲線の傾きがガラスの熱膨張係数と等しくなる温度として決定した。また、真のガラス固体の温度依存性は直線で近似し、室温での結晶相の原子体積（●）を上回るように引いてある。

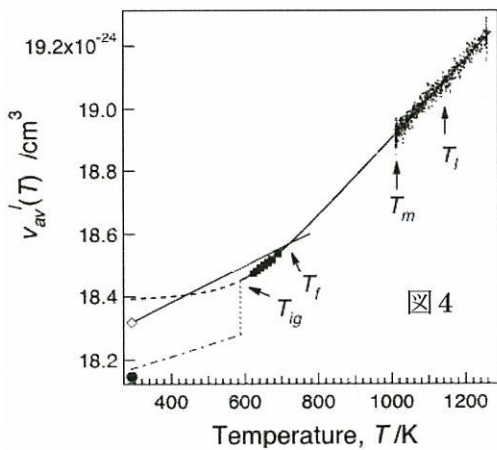


図4で fitting 曲線を室温付近まで外挿すると as-cast 試料の室温での原子体積（◇）を超えてしまう。As-cast 試料は図の T_f 付近の過冷却液体の構造を凍結しているので、温度のずっと低い室温付近の過冷却液体に比べて多くの平衡 Free volume を含むはずであり、当然体積は大きくなくてはならない。このパラドックスは Cohen and Grest が予想した真のガラス転移（一次相転移）が図中の温度 T_{ig} で起きるとすると回避できる。 T_{ig} は fitting 曲線の傾きがガラスの熱膨張係数と等しくなる温度として決定した。また、真のガラス固体の温度依存性は直線で近似し、室温での結晶相の原子体積（●）を上回るように引いてある。

References

- [1] Cohen MH, Turnbull D. J Chem Phys 1959;31:1164.
- [2] Cohen MH, Grest GS. Phys Rev B 1979;20:1077.

原子空孔の動きが活発でない温度領域における

金属中の照射損傷構造発達過程の解明

京都大学原子炉実験所
義家敏正、徐 虫レ、佐藤紘一

金属材料における中性子照射効果研究の目的の1つは、損傷構造発達過程の解明である。照射効果の多くの現象は熱活性化過程である。従ってそれを理解するためには、照射損傷構造発達に及ぼす温度の効果を知ることが必要である。そのためには、原子空孔の動きが活発でない低い温度領域から高温領域までの照射損傷構造発達過程を調べ、熱活性化過程を解明しなければならない。

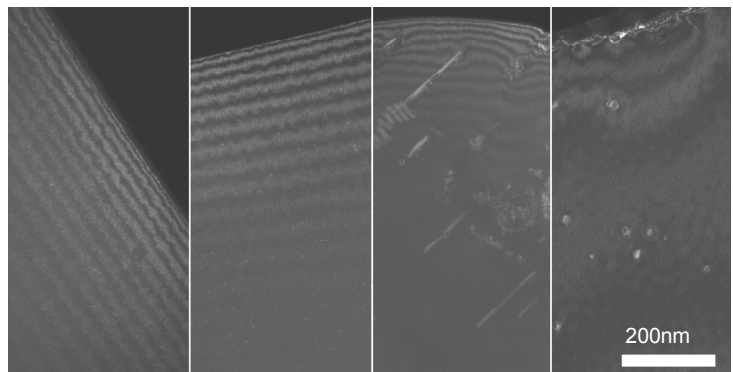
中性子の高温、重照射により発生するポイドは、材料の強度特性に大きな影響を与える。ポイドスウェリングは原子空孔の集合により起こるが、その前に点欠陥反応のアンバランスが起き、それらが重要な役割を果たす。ポイドスウェリングについて、過去に多くの研究がなされ重要な知見が得られてきた。オーステナイト系ステンレス鋼やフェライト鋼のような実用合金についても、多くの実験がなされているが、その詳細な機構については解明されていない点が多く残されている。

オーステナイト系ステンレス鋼ではポイドが透過型電子顕微鏡で観察される前に、ポイド形成の潜伏期間があること、その期間が長いほど耐照射が高いことが知られている。しかし、その期間における損傷構造については実験的には殆ど分かっていない。本研究はオーステナイト系ステンレス鋼にポイドが生成するまでの基礎的な点欠陥過程を解明し、ポイドスウェリング挙動の予測やシミュレーション技術の構築に繋げることを目的とする。試料はTi添加改良型SUS316鋼を用いた。

図1に示すように透過型電子顕微鏡観察の結果、14MeVのD-T中性子を363Kと563Kで照射した試料では、非常に微細な欠陥が観察された。積層欠陥四面体か格子間原子型転位ループである。JOYOによる673Kの照射では大きな格子間原子型転位ループが存在した。同じくJOYOによる773K照射で観察された欠陥は析出物である。

図1の下の表に陽電子消滅寿命測定の結果を示す。363Kと563K照射では陽電子寿命は2成分に分解できなかった。原子空孔の陽電子消滅寿命は約180ps、刃状転位の陽電子消滅寿命は120ps程度、析出物とマトリックスとの界面の寿命は一般的には130ps程度であるので、透過型電子顕微鏡観察の結果とは一致していない。

ステンレス鋼中の原子空孔が長距離移動できる温度は473K以上とされているので、陽電子消滅寿命測定の結果からは、原子空孔が移動できない温度(363K)では原子空孔が単体で存在し、移動できる温度(563K)になると原子空孔が陽電子消滅寿命値の低い欠陥集合体、例えば積層欠陥四面体、になると考えられる。照射温度が773Kと高くなり照射量が更に増えるとポイドの形成が開始すると予測できる。



Irradiation conditions	363K, 14MeV neutrons, 0.02dpa	563K, 14MeV neutrons, 0.02dpa	673K, fission neutrons, 5dpa	773K, fission neutrons, 5dpa
Mean lifetime	173.4±0.3ps	127.3±0.3ps	126.8±0.5ps	134.5±0.5ps
Short Long Intensity			85.3±25 141.8±13.3 60.5±18.2	102.3±6.6 187.3±12.8 29.6±5.8

図1 RTNS-II および JOYO で照射した Ti 添加改良型 316 鋼の損傷構造と陽電子消滅寿命。

^{197}Au メスバウアー分光によるAuクラスターの研究

京都大学原子炉実験所・小林康浩、東北大金研・本間佳哉、
東京大学大学院総合文化研究科・小島憲道

1. はじめに

北大触媒研の佃グループによって、Au原子の数が1個の精度で管理されたAuナノクラスターが作成されている。その中でも $\text{Au}_{25}(\text{SG})_{18}$ (SGはグルタチオンで保護材として働く)というクラスターが非常に安定して得られるが、その構造については議論が続いている。 ^{197}Au メスバウアー分光はAu原子周囲の局所状態解明に有効なことからクラスターの構造を理解するための有効な手段となる。 ^{197}Pt は半減期が18時間と短く、原子炉での線源作成後速やかな測定が必要となる。大洗センターは照射場(東京大学開放研の共同利用によるJRR-3, JRR-4)に近く、しかも最近アクチノイド元素実験棟にメスバウアー分光器が設置された。本課題では、 ^{197}Au メスバウアー分光を立ち上げ、Auナノクラスターの評価、特にスペクトル形状の温度変化から各サブスペクトルの无反跳分率の比を求めることを目的とする。

2. 研究経過

^{197}Pt を97%富化したPt金属片(約163mg)を日本原子力研究開発機構 原子力科学研究内のJRR-3 HR2にて30分間の熱中性子照射を行い、 $^{196}\text{Pt}(n, \gamma)^{197}\text{Pt}$ 反応により、メスバウアー線源を作成する。放射化した照射用カプセルの減衰を約5時間待った後に開封し、大洗センターへ貸切便で搬送する。照射直後の ^{197}Pt の線量は約670MBqである。ここまでのプロセスは東京大学開放研の共同利用の枠組みで行う。大洗センターに到着した線源はヘリウム冷凍機で冷却されたメスバウアー分光用クライオスタットに装着し、メスバウアースペクトルの測定を行う。線源を駆動するトランスデューサーは線源まで伸びる長いロッドをスムーズに駆動するために正弦波形で駆動している。

図1に大洗センターで得られたAu箔の ^{197}Au メスバウアースペクトルと過去に原子炉実験所で測定したスペクトルとの比較を示す。冷凍機の振動によるスペクトル線幅の広がりや若干見られるがスペクトル測定に致命的な影響は及ぼさないと考える。また、この点については試料ホルダー取り付け部分の改良を計画しており、来年度には改善される予定である。図2に本実験で得られた $\text{Au}_{25}(\text{SG})_{18}$ クラスターの ^{197}Au メスバウアースペクトルを示す。サブスペクトルは過去に測定した結果を参考にして解析を行った結果であり、サブスペクトル比率は考えられている $\text{Au}_{25}(\text{SG})_{18}$ クラスターの構造とほぼ合致する。しかし、今回得られたスペクトルは吸収率が低く、細かい解析をするには十分なスペクトルとは言えない。これは線源の強度の不足と試料周辺のコリメートが不十分でS/N比が低下したことが原因と考えられる。許認可の問題から線源の強度を上げることはできないが、今後は十分なコリメートを行うことと試料量を増やして吸収を大きくすることでS/N比の向上を目指す。

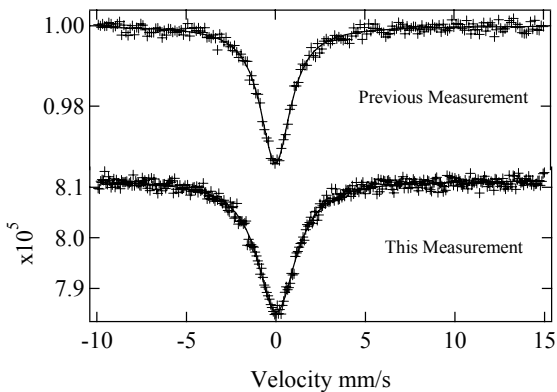


図1 過去に測定したAu箔のメスバウアースペクトルと今回測定したスペクトルの比較

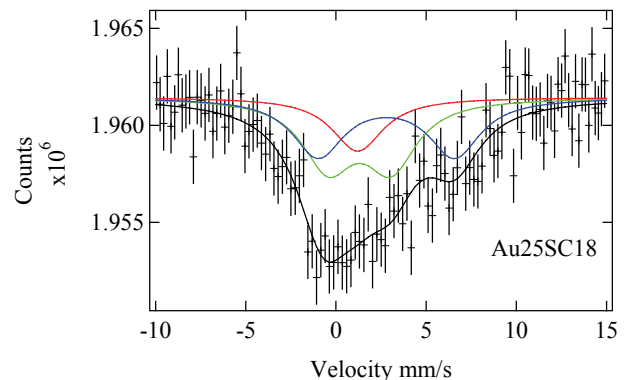


図2 $\text{Au}_{25}(\text{SG})_{18}$ クラスターの ^{197}Au メスバウアースペクトル

三次元アトムプローブによる超急速短時間加熱鋼の炭化物微細分散効果の検証

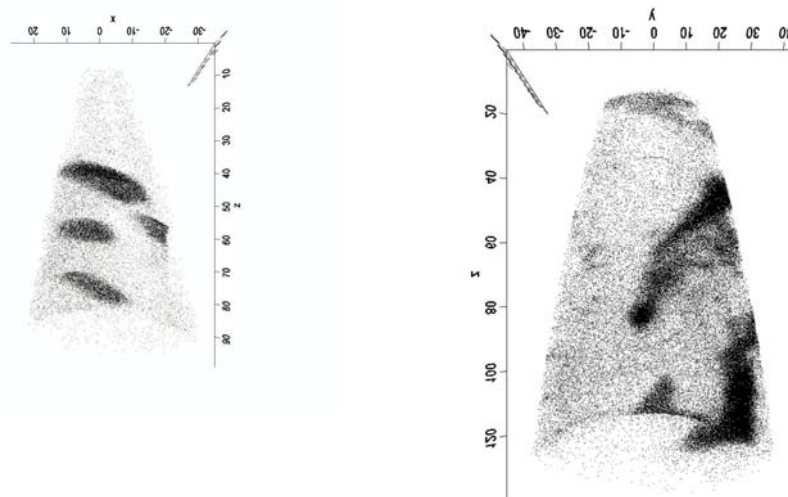
岡県大 福田忠生, 尾崎公一, 東北大・金研 永井康介, 外山健

1. はじめに

鉄鋼材料の特性向上には結晶粒微細化強化, 炭化物析出強化が有効である. これまでの研究により超急速短時間加熱を施した炭素鋼において強度を損なうことなく延性の向上が可能であることが明らかになっている. この原因として, 電子顕微鏡による観察結果から超急速短時間焼戻しによる炭化物の結晶粒界および結晶粒内への微細分散が関与していると推測されるが, 電子顕微鏡での観察限界であり断言できない. 本研究では, 超急速短時間加熱を施した試験片を三次元アトムプローブによって測定し, 短時間加熱による炭化物の微細分散の効果を検証した.

2. 研究経過

本研究では, 炭化物の成長過程を明らかにする目的のもと, 2条件の焼戻温度 (ビッカース硬さ) の異なる超急速短時間加熱材の測定を行った. 引張試験において延性破面を示した焼戻温度 723 K (HV450) と脆性破面を示した 628 K (HV650) である. 以下に, その測定結果を示す.



(1) 焼戻温度 723 K (HV450) (2) 焼戻温度 628 K (HV650)

図 1 三次元アトムプローブによる測定結果(炭素原子)

図に示すように, 焼戻温度 628 K (HV650) と比べ焼戻温度 723 K (HV450) では炭素原子が規則的に密集しており, パケット上に炭化物が析出していることを確認した. この結果はこれまでの SEM 観察結果とも一致している. 本研究では焼戻時間を 1.0 sec と同様に設定しているため, 投入熱量は焼戻温度 628 K (HV650) の方が低いことになる. 焼戻温度 628 K (HV650) の炭素測定結果が, 焼戻温度 723 K (HV450) よりも規則的でないのは, 熱量不足により十分に炭化物析出が完了していない状態である可能性が示された.

また, 本結果の妥当性を示すためには炉加熱材による緩速加熱材の測定結果と比較する必要があると考える. そのため, 今後は本研究で用いた試験片と同様のビッカース硬さを有する炉加熱材の測定を行い, 超急速短時間加熱による炭化物形成状態をと比較検討し, さらなる検証を行う.

シリカ系光学材料の中性子照射効果

東京工業大学 原子炉工学研究所 矢野豊彦、吉田克己

シリカ系素材は、光ファイバーや光学窓材として、原子炉や核融合炉に於いて信号伝送に必須な素材である。また、光ファイバー自体が、中性子束密度測定や、温度測定に応用可能なことが明らかになりつつある。また、最近では、シリカファイバーに、規則的にレーザーを反射する部位を形成して (Fiber Bragg Grating)、終端よりレーザーを入射し、回折してきたレーザーの波長変化から多点の温度や応力状態を同時に観測できるセンサーとしての活用が可能になり、原子力機器の健全性検証への応用が検討されている。しかしながら、中性子照射がこれらの部材に及ぼす体積変化などの物理的な影響は、極めて大きいにもかかわらず、高純度材料を用いた詳細な検討はされていない。

非晶質及び結晶質 SiO_2 の物理的特性に関する中性子照射効果の報告は、原子力材料開発の初期に行われており、結晶質は照射により 14%もの大きな体積膨張を示し、非晶質 SiO_2 は約 3%の収縮を示し、およそ $1 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$ 程度で両者の密度は約 2.26 g/cm^3 で一致することが報告されている。

本研究では、不純物 OH 濃度の異なる高純度非晶質シリカガラス 3 種と、結晶質 SiO_2 の中性子照射を行い、照射後試験により体積変化や熱伝導率変化を求める予定であり、照射用試料を作製し、BR-IIにて低温で照射量を広く変化させて中性子照射を行っている。同試料の照射後試験は今後になるので、以前に JMTR 照射した類似の試料に関する評価結果を以下に記す[1]。

1. 実験方法

長手方向が c 軸及び $[11\bar{2}0]$ 方向の Quartz 単結晶 ($4 \times 2 \times 25 \text{ mm}$) と OH 濃度が 800 ppm のシリカガラス ($4 \times 2 \times 25 \text{ mm}$) を作製した。同じく熱伝導率測定用に直径 10 mm × 厚さ 1 mm の円板状の試料も作製した。これらの試料を JMTR にて、速中性子照射量 $3.0 \times 10^{23} \text{ n/m}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$)、照射温度 140°C 、及び $6.9 \times 10^{23} \text{ n/m}^2$ 、照射温度 300°C にて照射した。照射前後で、マイクロメータによる長さ変化、レーザーフラッシュ法により熱拡散率、X線回折法により格子定数を測定した。また、照射後の試料を $100 \sim 1000^\circ\text{C}$ にて各 1 時間、真空中で熱処理し、室温まで冷却してそれぞれの物性値を測定した。

2. 結果と考察

非晶質 SiO_2 の巨視的寸法は照射により -0.81% ($3.0 \times 10^{23} \text{ n/m}^2$) 及び -0.73% ($6.9 \times 10^{23} \text{ n/m}^2$) それぞれ収縮を示した。図 1 には、非晶質 SiO_2 の照射後アニールによる長さの回復を示す。いずれの試料ともに照射温度よりやや高い温度から膨張 (回復) が始まり、 500°C 以上で回復の速度が速くなり、 1000°C において、ほぼ照射前の値に回復していることが分かる。照射前の熱伝導率の熱拡散率は $8.6 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{s}$

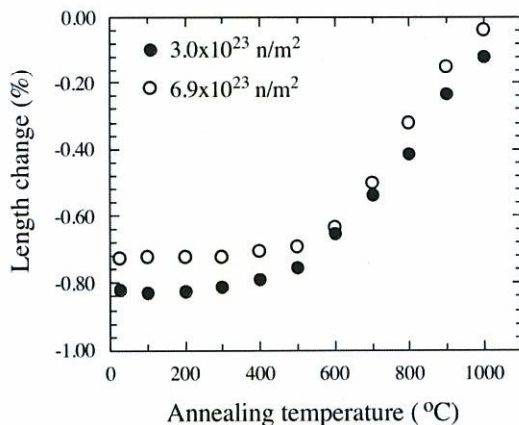


図 1 非晶質 SiO_2 の巨視的寸法の照射後アニールによる変化

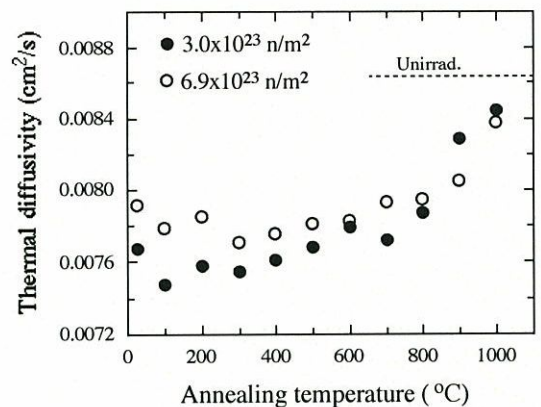


図 2 非晶質 SiO_2 の熱拡散率の照射後アニールによる変化

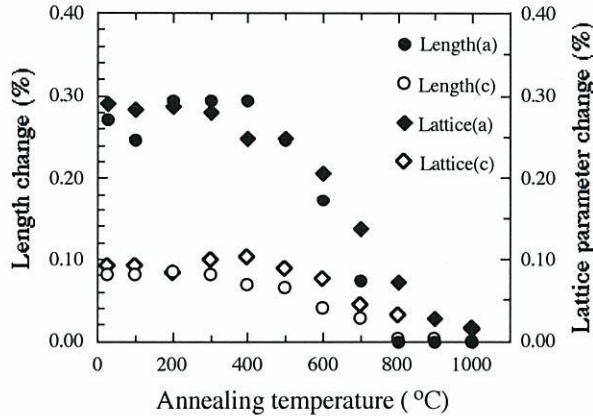


図3 結晶質 SiO₂ の格子定数と巨視的寸法の照射後アニールによる変化(3.0×10²³ n/m²)

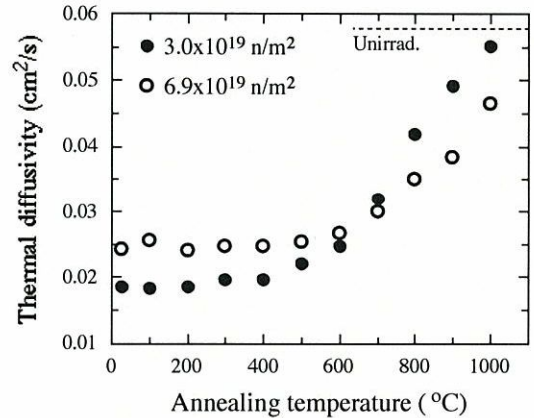


図4 結晶質 SiO₂ の熱拡散率の照射後アニールによる変化

であったが照射により、図2に示すようにいずれもわずかに減少を示した(左端の値)。熱拡散率の照射後アニールによる回復は、図2に示すように、巨視的寸法の回復挙動とほぼ類似の傾向であった。

中性子照射による非晶質 SiO₂ の密度は照射により上昇し、 $\sim 5 \times 10^{23}$ n/m² で最大値(+2.5~3%)をとり、それ以上でやや減少し、 $\sim 1 \times 10^{24}$ n/m² 以上ではほぼ一定の値(~ 2.26 g/cm³)となると報告されている。今回の試料の寸法変化から求めた密度上昇は照射量の順に+2.44%と+2.17%であり、ほぼ報告値に一致したが、照射量が多い方がやや密度が低かったのは、照射温度が約 160°C 高かったことに関係すると考えられる。照射後の巨視的寸法の回復挙動に関しても、低温照射試料は従来の報告に類似しているが、高温照射試料では、回復が照射温度より高い温度から始まっていることが異なり、照射欠陥の状態に差があることが示唆される。熱拡散率は、既往の報告では、高密度化に伴い上昇することが報告されているが、本実験ではわずかではあるが減少するという異なる結果が得られた。この原因は分かっていない。

中性子照射量が 3.0×10^{23} n/m² の結晶質 SiO₂ の巨視的寸法は、a 軸方向(c 軸に垂直方向)に 0.31%増加し、c 軸方向には 0.09%増加して、著しい異方性を示した。照射量が 6.9×10^{23} n/m² の試料では、a 軸方向に 0.99%、c 軸方向には 0.17%と同様に、大きな異方性を示したが、試料間のばらつきが大きかった。図3に、照射量が 3.0×10^{23} n/m² の結晶質 SiO₂ の格子定数と巨視的寸法の照射後アニールによる回復挙動を示す。a 軸、c 軸ともに、照射温度(140°C)よりやや高い 300~400°C から回復が始まり、連続的な回復を示し、a 軸、c 軸ともにおよそ 900~1000°C で、照射前の値に回復していることが分かる。また、格子定数から求めた変化率と巨視的な長さ測定値がほぼ一致していることがわかる。

中性子照射前の試料の熱拡散率は 6.34×10^2 cm²/s であったが、照射量 3.0×10^{23} n/m² では 1.86×10^2 cm²/s、照射量 6.9×10^{23} n/m² では 2.42×10^2 cm²/s と、大幅な低下を示した。両試料の熱拡散率の照射後アニールによる変化を図4に示す。照射量 3.0×10^{23} n/m² では 400°C 付近から、照射量 6.9×10^{23} n/m² では 600°C 付近から回復が始まり、低温照射試料の方が回復が早く、1000°C アニール後にはほぼ照射以前の値にもどったが、高温照射試料では 1000°C アニール後も完全には回復しなかった。

結晶質 SiO₂ の中性子照射効果に関しては、 $< \sim 5 \times 10^{23}$ n/m²、 $5 \sim 11 \times 10^{23}$ n/m²、 $> \sim 11 \times 10^{23}$ n/m² の3つのステージに分けられると報告されている。最後のステージでは完全な非晶質化が起こるとされている。今回の照射条件は照射量においては、最初のステージと中間のステージに属し、非晶質化は見られない。巨視的長さ、格子定数及び熱拡散率の回復がほぼ同期して起こっていることから、生成した照射欠陥は点欠陥や比較的小さい点欠陥クラスターで有ることが想定されるが、格子定数の大きな異方性の原因については転位ループの配向した形成などが考えられるが今後の検討課題である。

[1] T. Yano, K. Fukuda, M/ Imai and H. Miyazaki, J. Nucl. Mater., 367-370 (2007) 730-735

課題名：M41-43

陽電子消滅、電子スピン共鳴、光吸収法による シリコンおよびガラスの低温電子線照射欠陥の研究

所属・氏名： 東北大学金属材料研究所・井上耕治、長谷川雅幸、永井康介、畠山賢彦
外山健、武内伴照、土屋直柔、高見澤悠、蔵本明

Si や Ge 中の単空孔の回復挙動は、荷電状態に依存するが、単空孔は室温よりも十分低い温度で動き始め、空孔集合体や空孔不純物複合体を形成する。 $\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x}$ は全組成域でダイヤモンド構造の固溶体を形成するが、 $\text{Si}_x\text{Ge}_{1-x}$ 中の単空孔の回復挙動が Si や Ge の場合と比べて、どのように変化するのかを調べることは興味深い。

チョクラスキー法を用いて作成された SiGe 単結晶を液体窒素温度で電子線照射 ($2\text{MeV}, 2.5 \times 10^{17} [\text{e}/\text{cm}^3]$) した。照射後、陽電子寿命および同時計数ドップラー広がり (CDB) 法の等時焼鈍実験 (80K ~ 450K, 10K ステップ, 30 分) を行った。測定温度は 80K とした。

図 1 に陽電子寿命スペクトルの 2 成分解析結果を示す (300K ~ 330K では 1 成分解析)。290K までは τ_2 が徐々に短くなったが 350K ~ 400K では焼鈍温度とともに τ_2 が長くなった。図 2 に CDB 測定から得られた高運動量領域 (HMCF) の焼鈍温度依存性を示す。290K までは Ge 電子との消滅割合が増加するが、350K を超えると減少した。このことから、300K までは空孔型欠陥の周囲に原子半径の大きな Ge 原子が増加することによって、空孔の実効サイズが減少していると考えられる、これは、空孔の周りに Ge が存在することによって空孔が安定かすることを示唆する。また、350K を超えると空孔が移動して複空孔を形成したと考えられる。

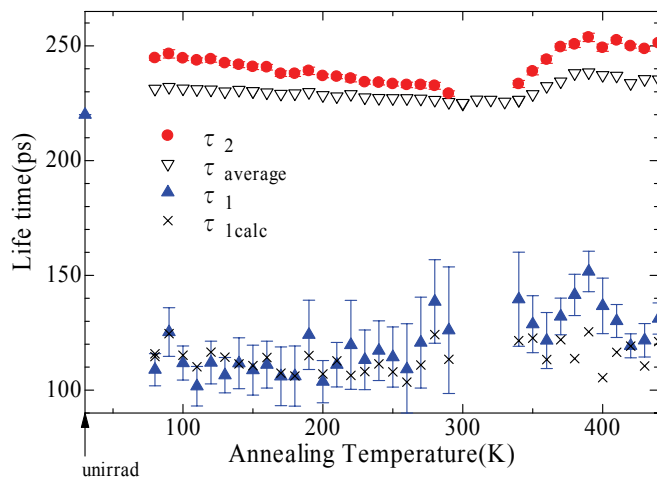


図 1 $\text{Si}_{0.85}\text{Ge}_{0.15}$ 陽電子寿命の焼鈍温度依存性

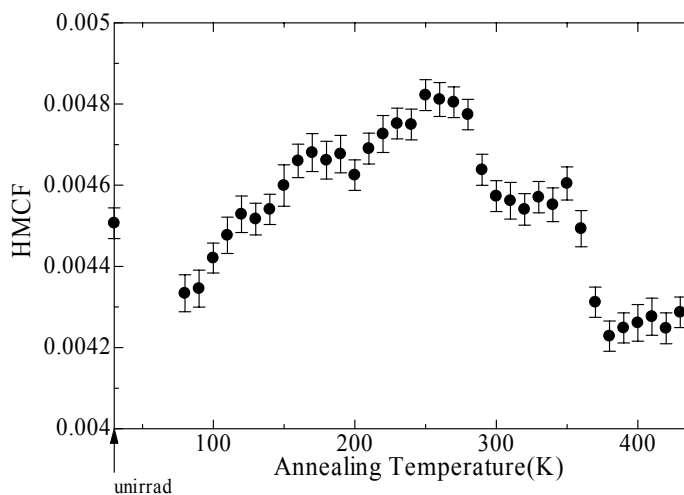


図 2 $\text{Si}_{0.85}\text{Ge}_{0.15}$ の HMCF 焼鈍温度依存性

^{40}Ar - ^{39}Ar 法による岩石・鉱物の形成年代測定

山形大学理学部地球環境学科 岩田尚能・齋藤和男
(独) 海洋研究開発機構 羽生毅・熊谷英憲・佐藤佳子・田村肇

1. はじめに

^{40}Ar - ^{39}Ar 法は K-Ar 年代測定法の発展形である。K-Ar 法では、岩石・鉱物試料に含まれる K 量を蛍光光度分析もしくは原子吸光分析、放射壊変起源 ^{40}Ar 量を質量分析で求め、その量比を基に年代が求められる。 ^{40}Ar - ^{39}Ar 法では、原子炉内で試料に中性子を照射することで試料中の K の一部を ^{39}Ar に変換 ($^{39}\text{K}(\text{n}, \text{p})^{39}\text{Ar}$ 反応) し、K 起源の ^{39}Ar と放射壊変起源 ^{40}Ar との同位体比から年代を求める。 ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代は Ar 同位体比の測定だけで得られるため、試料を段階的に加熱することで、各温度段階で抽出されるそれぞれの Ar ガスで年代を求めることができる。形成後に変質などの二次的な影響を受けた岩石・鉱物試料では、低温で抽出される Ar ガスにおいてみかけの年代が若くなるなどの年代の異常がみられることが知られている。これらの異常の有無により、分析によって得られた試料の年代値の信頼性を検討できるのが ^{40}Ar - ^{39}Ar 法の利点である。本共同利用は ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代測定法を用いて、岩石・鉱物から信頼性の高い年代を得ることを目的としている。

2. 2007 年度の照射試料

2007 年度は下記の試料について照射を行った。分析は順次行う予定である。

(1) 年代標準試料

年代が既知である年代標準試料 (MZ94, HD-B1, SORI93B など) の照射を行った。

(2) 年代未知試料

フィリピン海南部・アユトラフの海嶺玄武岩、南大西洋中央部・セントヘレナ島の海洋島火山岩、南太平洋・オントンジャワ海台から回収された玄武岩質岩石など、海水の影響などで変質しやすく、K-Ar 法では信頼性の高い年代値が得られないと予想される海洋底・海洋島の岩石について照射を行った。

3. ジュラ紀から古第三紀の年代を持つと予想される火山岩試料の ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代測定

西部赤道太平洋域オントンジャワ海台 (Ontong-Java Plateau, 以下 OJP) ライラ海盆は、海嶺に近接する海盆であり、他の OJP の火山岩と地質構造的な噴出形態が異なること、かんらん石を多く含むピクライト質玄武岩が噴出していることで、注目を集めている地域である。

この地域から採集された岩石試料について K-Ar 年代測定を行ったところ、9000 万年前という年代値が得られた。また、この試料から斑晶鉱物 (輝石) を分離して ^{40}Ar - ^{39}Ar 測定を行ったところ、1 億 1300 万年前という年代が得られた。一方、全岩試料での年代は 6800 万年前であった。

斑晶鉱物 (輝石) の年代値が全岩 (K-Ar, ^{40}Ar - ^{39}Ar 法) での年代値より古い理由として、(1) 輝石中に過剰アルゴンが含まれていること、(2) ライラ海盆下で固結していた古いマグマが再溶解した際、溶け残った古いマグマ起源の斑晶が混入したこと、(3) OJP の火成活動の影響を受け、ライラ海盆下でマグマ溜まりが長時間存在していたこと、などが考えられる。今後、詳細な火山地質学的検討および同位体化学分析を行うことで、その原因を明らかにする予定である。

ライラ海盆での年代測定の結果は、統合国際深海掘削計画 (IODP) の巨大火成岩区 (LIPs) プロジェクトを進める上で有用であり、2007 年に開催された IODP の国際推進会議でも引用されている。年代値の不一致の原因を解明したのち、速やかに年代測定結果を学術雑誌に投稿する予定である。

中性子照射を利用した ^{40}Ar - ^{39}Ar および I-Xe 法による隕石・地球鉱物の年代測定

研究代表者 長尾敬介 (東京大学大学院理学系研究科)

研究協力者 瀧上豊 (関東学園大学)、角野浩史 (東京大学)、石塚治 (産業技術総合研究所)、平野直人 (東京大学)

1. 方法

^{40}Ar - ^{39}Ar および I-Xe 年代測定法は、中性子照射による核反応 $^{39}\text{K}(\text{n}, \text{p})^{39}\text{Ar}$ および $^{127}\text{I}(\text{n}, \gamma)^{128}\text{I} \rightarrow ^{128}\text{Xe} + \beta^-$ により岩石・鉱物試料中の K や I を希ガス同位体に変換して測定し、これらが固化した年代を求める方法である。前者は K-Ar 法では得られない詳細かつ信頼度の高い年代、後者は惑星・隕石などの 45.6 億年前の 100 万年程度の形成年代の違いを測定するものである。東京大学では、放射線管理区域である東京大学・アイソトープ総合センターの耐震補強工事のために年度始めまで同施設が利用できず、また装置の再立ち上げに約半年間を要したため、とくに隕石の I-Xe 年代測定がほとんどできなかったが、 ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代測定は東京大学と産総研でおこなわれた。また東京大学では、装置の再立ち上げを機会に試料加熱炉の更新と希ガス精製ラインの改良を行った。これにより従来よりも一桁低いブランクを達成でき、希ガス元素ごとの分離も可能になったことから、照射試料の全希ガス分析によるハロゲンその他の多元素同時分析を開始した。

2. ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代測定による火山活動史の研究

[産総研グループ]

- 1) 日本周辺海域の基盤岩精密年代測定によるフィリピン海地域の地質構造発達史の解明と大陸棚画定調査への貢献。
2008 年 11 月 12 日に政府は国連に大陸棚延伸のための申請書を提出したが、この中に本研究の成果である ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代測定結果が多数掲載されており、大陸棚延伸を主張する上で重要な根拠を提供している。
- 2) 火山・地震災害予測に関わる広域火山灰及び若い溶岩の年代測定技術の確立
- 3) 深海底掘削による海洋性島弧 (伊豆小笠原弧) の成長発達史の解明
- 4) 伊豆小笠原マリアナ前弧域における系統的年代測定による島弧形成メカニズムの解明
- 5) 高精度年代測定と岩石磁化強度測定による詳細な地球磁場強度変動パターン解明

[東京大学グループ]

- 1) プレート屈曲に伴う新しいタイプの火山活動に関する研究

プレート屈曲域で活動する新タイプの火山「プチスポット火山」の活動年代の分布から噴出場の成因とテクトニクスを理解するために、溶岩の ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代測定を行った。この火山は、日本海溝へのプレートの沈み込みに伴いプレートが屈曲し、それに伴う割れ目に沿ってマグマが上昇するというメカニズムが考えられている (Hirano et al., 2006, Science)。本年度の最新の調査により、プチスポット火山が当初に発見された日本海溝域に限らず、北西太平洋プレート上により広範囲に分布することが分かってきた。それらの溶岩試料の ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代測定結果から、その活動期間は、850 万年前以降現在までの長い間断続的に継続していることが判明した (Hirano et al., 2008, Basin Res.)。

このような状況は、プチスポット火山がこれまで知られていたあらゆるタイプの火山活動では説明が出来ないことや、それ以外にも、世界の海洋底でこのような火山が多く存在している可能性があることを示す。更に今年度後半にはチリ海溝沖で新たに調査航海が行われ、同様の溶岩試料が得られた。今後引き続きそれらの年代測定を行い、噴出時とプレート挙動のタイミングを計ることにより、同火山の成因と世界的普遍性を明らかにしていく予定である。

- 2) 非常に若い珪長質深成岩類の発見

大陸地殻の最上部を構成する、花崗岩に代表される深成岩類がどのようなプロセスにより形成したかは、地質学的に重要な問題である。日本海上の火山島である鬱陵島では、140 万年前から 6000 年前まで、玄武

岩～流紋岩からなるアルカリ火山岩が噴出し、島を形成している。9000～6000年前の噴火の噴出物中には、花崗岩と同様の珪長質深成岩の一種である monzonite の岩片が含まれている。この monzonite について ^{40}Ar - ^{39}Ar 、K-Ar 及び Rb-Sr 年代測定を行ったところ、約 20 万年という、珪長質深成岩類としては非常に若い固化年代を得た。この年代は、日本列島で報告されている最も若い花崗岩類の 100 万年と比べてもさらに若い。monzonite に含まれる角閃石の He 及び Ar の同位体比と、monzonite の Sr-Nd 同位体組成及び主成分・微量元素組成から、マントルから上昇したアルカリ玄武岩マグマが、地殻直下のマグマ溜りで分化して流紋岩質マグマになる過程で、その一部は順次上昇・噴出して鬱陵島を形成した一方で、マグマ溜りの外縁部でゆっくり固まった流紋岩質マグマが monzonite となったという、一連の形成プロセスが明らかになった (Kim et al., 2008, Chem. Geol.)。これは大陸縁辺部で地殻が成長していく過程の一端を垣間見ていると考えられる。

3. ハロゲン地球惑星科学の開拓に向けた、多元素同時分析手法の立ち上げ

[東京大学グループ]

鉱物あるいは岩石試料に中性子を照射し、K や I の核反応により生成した ^{39}Ar や ^{128}I を定量することで、Ar や Xe の同位体比分析のみで精度よく年代を決定できる点が、 ^{40}Ar - ^{39}Ar 及び I-Xe 年代測定法の最大の特徴である。しかし同時に希ガス同位体に変換されている他の元素については、 ^{40}Ar - ^{39}Ar 年代計算の補正に用いられる Ca を除いて、ほとんど見過ごされ定量されてこなかった。希ガス質量分析が極めて高感度であることを利用すると、全希ガス元素 (He, Ne, Ar, Kr, Xe) の同位体分析により、 ^{40}Ar - ^{39}Ar 及び I-Xe 年代と同時に、ハロゲン元素 (Cl, Br, I) や Li, Mg, Ba, Se, Te, U といった元素が、他の手法に比べて数桁以上高感度に定量できる。この手法を国内で初めて実用化するために、希ガス分離用冷却トラップを活用した全希ガス分析のルーチンを立ち上げた。

炭素質隕石の一つである Allende 隕石は、落下回収量が多く上記の元素の分析値が多く報告されていることから、これを分析対象としてこの手法の評価を行った。その結果、これまでの報告値と矛盾しない K、Ca、Cl 濃度と、 ^{40}Ar - ^{39}Ar 及び I-Xe 年代を得た。一方、200～2000ppb と幅広い値が報告されている I の濃度については、この隕石の形成時に捕獲した放射壊変起源 $^{129}\text{Xe}^*$ との相関から、ほとんどの I が地表におけるコンタミネーション由来である可能性が高く、隕石そのものに含まれる I はたかだか数十 ppb 程度であることが示された。同様に U から生成した Xe についても、段階加熱による希ガス抽出において低温で多量に放出されたことから、試料表面に付着した U の影響が大きいと考えられた。現在は更にこの手法の評価を進めるために、ハロゲン濃度が報告されている地質標準試料などの分析データを蓄積している。

中性子照射による配向性 AlN の機械特性変化に関する研究

(独) 物質・材料研究機構 鈴木 達、打越哲郎、目 義雄

[目的]

物質の諸特性は結晶面や軸方位により異なる場合が多く、多結晶体における個々の結晶方位を揃えたりするなどの配向制御は、近年特に注目されている組織制御手法の一つである。AlN は熱伝導性が高く、電気絶縁性に優れ、機械的強度が高いなどの優れた特性を有しているが、高速中性子を照射した AlN では、格子定数の異方的な膨張が機械特性の劣化の要因となることが指摘されている。本研究では、強磁場中コロイドプロセスにより作製した配向性 AlN への照射を行ない、配向制御が照射損傷へ及ぼす影響を調べることで、耐照射性向上の指針を得ることを目的とする。

[研究経過]

従来、非磁性物質として扱われてきたアルミナ、チタニアなどの反磁性体では、その磁化率が極めて小さいことから磁場を利用した組織制御は行われてこなかった。しかし、我々のグループでは 10 テスラ級の強磁場とコロイドプロセスを用いることで、反磁性や常磁性のセラミックスであっても、配向制御が可能であることを見出している。

六方晶系の結晶構造である窒化アルミニウムは結晶磁気異方性を持ち、静磁場による配向制御により磁化容易軸である a, b 軸配向が可能であり、さらに、回転磁場を用いた場合には磁化困難軸である c 軸配向制御が可能となった。0.7 μm の AlN に 0.5 mass% の Y_2O_3 を焼結助剤として添加し、これらの原料粉末を粒子同士の相互作用を制御してエタノールに分散しサスペンションを作製した。このサスペンションをスリップキャストにより固化成形するときに静磁場または回転磁場を印加した。このとき超伝導磁石を回転させることが難しい為にスリップキャストするモールドを回転させて実効的に回転磁場を与えた。回転磁場中で固化した成形体は磁場から取り出し、磁場印可なしで窒素中 1900 $^\circ\text{C}$ で 2 時間焼結することにより試料を作製した。図 1 には、静磁場および回転磁場を用いた場合の AlN の c 軸と試料鉛直方向とのなす角 θ の分布を示す。静磁場では c 軸が磁場印可方向と垂直面内にあり、 $\theta > 70^\circ$ となる組織粒が 8 割以上であるのに対して、回転磁場を用いることで、 c 軸と回転軸とのなす角が $\theta < 20^\circ$ となる組織粒が 7 割程度あり、 θ が 40° 以上傾いている組織粒は 1 割程度となることがわかる。微構造組織は、AlN と Y_2O_3 とが反応した $\text{Al}_5\text{Y}_3\text{O}_{12}$ 酸化物粒子が数百 nm の粒径で粒界多重点に分散しており、AlN の平均粒径が 2.5 μm となっていた。

また、照射前の試料の曲げ強度を測定したところ、配向方向に依存して若干の差があるように見られた。 c 軸配向方向と平行に亀裂が進展する場合よりも c 軸配向方向に対して垂直方向に亀裂が進展する方位で強度が高く、ランダム材での強度が一番低い。この強度の方位依存性が有意義な差であるかどうかも含めて、現在さらに検討を進めている。

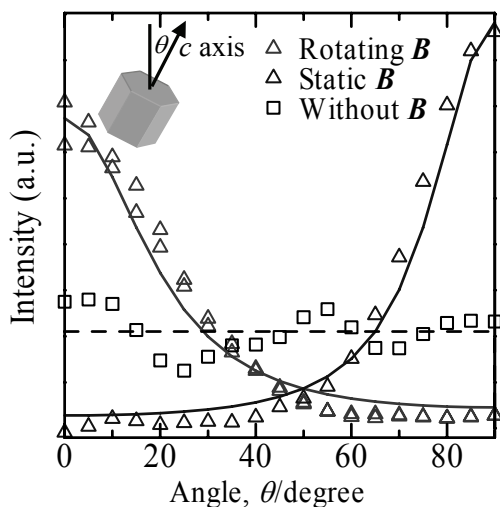

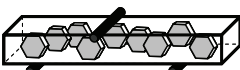



図 1. 磁場配向した AlN の c 軸方位の分布

表 1. 配向制御 AlN の曲げ強度

亀裂方向	曲げ強度 (MPa)
 c -axis // 亀裂進展	449
 c -axis \perp 亀裂進展	469
 ランダム材	426

陽子線励起圧力波抑制バブリング用メゾノズル付き高融点金属材料の開発

原子力機構・J-PARC センター 二川 正敏, 勅使河原 誠, 粉川 広行, 長谷川 勝一
東北大・金研 栗下 裕明, 荒川 英夫
茨城大学 A.Bucheeri, 大曾根龍次, 前川克廣

1. はじめに

J-APRC(Japan Proton Accelerator Research Complex)の物質生命科学実験施設では, 大強度陽子線の水銀に入射して核破砕反応により得たパルス陽子線を利用した先駆的研究を展開している. このとき, 水銀中には陽子線入射時の熱衝撃に起因する圧力波が生じ, その伝播過程で生じたキャビテーションにより水銀ターゲット容器内壁は損傷を受ける. ターゲット容器の耐久性向上及び運転安定性を確保するために, 圧力波を低減すること不可欠である. 圧力波を抑制するための方策として, 水銀中にマイクロバブルを注入することを検討中である. 本研究では, 水銀との共存性, 耐浸食性, 照射特性に優れた高融点金属について, 粉末焼結法により微小気泡生成用メゾノズルの製作を試みた.

2. 研究経過

水銀中へのマイクロバブル生成のための微小ノズルの製作法を確立するために, 粉末焼結法による微小貫通穴製作法を提案した. 具体的には, ガラスファイバーを含有した金属粉末の圧粉体を作成し, 高真空炉内でガラスの軟化点以上で焼結を行い, ガラスを軟化, あるいは気化させて微小貫通穴を製作する手法である. 前年度までの研究では, 高融点金属であるモリブデン-石英, 及び水銀ターゲット容器構造材である SUS316L-パイレックスの組み合わせにおいて焼結条件の最適化を行った. その結果, モリブデン-石英の組合せでは, 図1に示すように, 直径約 100 μm の微小貫通穴を形成することに成功した. しかしながら, SUS316L-パイレックスの組み合わせでは, 焼結体内にパイレックスが残留し, 微小貫通穴を形成することができなかった. 今年度は, モリブデン-石英における微小貫通穴の形成機構を解明すると共に, SUS316L-パイレックスでの貫通穴形成を行うための実験的考察を試みた.

3. 研究成果

焼結温度下におけるガラスの挙動を調べるために, モリブデン粉末, 及び SUS316L 粉末の圧粉体の上に, 直径 1mm の石英及びパイレックスのロッドを配置し, 真空雰囲気中で電気炉内により 1030 $^{\circ}\text{C}$ まで加熱した. その後, 高周波誘導加熱装置にてモリブデンは 1875 $^{\circ}\text{C}$, SUS316L は 1300 $^{\circ}\text{C}$ まで昇温し, それぞれ 1 時間保持した後, 徐冷した. 焼結後は, 焼結体の相対温度 T_{rel} (焼結温度 T /粉末の融点 T_m) に対する相対密度 ρ_{rel} (焼結体の密度 ρ /バルク材の密度 ρ_{bulk}) の計測を行うと共に, 圧粉体上に配置したガラスロッドの変化を観察した.

図2に相対温度に対する相対密度の変化を示す. モリブデン, SUS316L 共に圧粉体の成形圧力によらず相対温度が 0.4 を超えると急激に相対密度が増加する傾向が見られた. また, 相対温度の増加に対する相対密度の変化は, 次式により近似できる.

$$\rho_{rel} = A \exp(BT_{rel}^4)$$

ここで, A 及び B は材料及び圧粉体成形圧力に依存する定数である. 相対温度の増加に対する相対

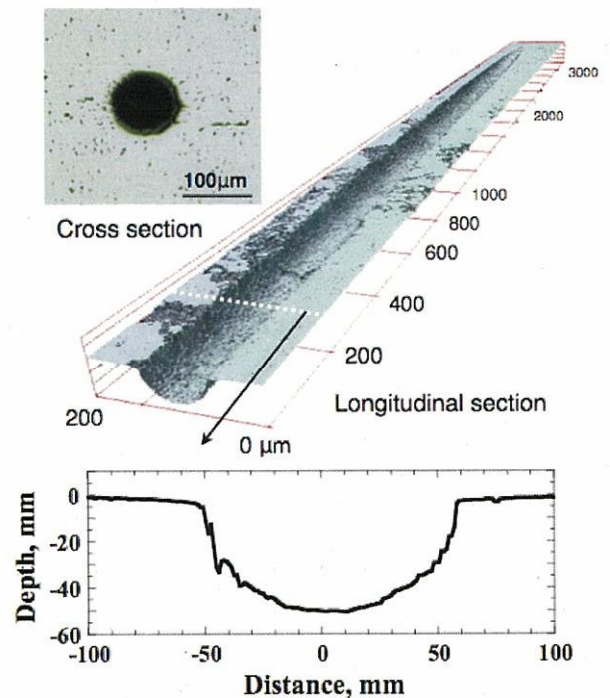


図1 モリブデン-石英により形成した微小貫通穴の断面写真

密度の増加率は、SUS316L と比較してモリブデンの方が高いことが分かる。これは、モリブデンの熱伝導率が SUS316L の約 8 倍高いことに起因すると考えられる。

焼結前、1030°C 加熱後、及び焼結後のガラスロッドの様子を図3に示す。パイレックスでは、1030°C 及び焼結温度である 1300°C 加熱後において、端部の変形が観測された。1875°C 加熱後では、軟化によって流動性が増し、顕著な形状の変化が観測された。石英では、1030°C 及び 1300°C 加熱後ではパイレックスと同様に端部が変形している。一方、1875°C 加熱後では、焼結体上に石英は残留していなかった。石英を配置した周囲を EDS 分析した結果、石英の主成分であるケイ素は検出されなかった。石英は 1300°C から 1875°C の昇温過程で蒸発したものと考えられる。以上より、焼結過程において微小貫通穴を形成するためには、ガラスファイバーの蒸発が必要であり、1300°C で蒸発するファイバーを用いることにより SUS316L で微小貫通穴を形成できると考えられる。

4. まとめ

ガラスファイバーを含有した金属圧粉体の焼結により微小貫通穴を形成する手法を提案し、焼結条件の最適化を行った。さらに、焼結による微小貫通穴の形成機構について実験的考察を行った。その結果、相対温度による相対密度の変化を推定する実験式を得た。また、微小貫通穴を形成できたモリブデン-石英の組み合わせでは、焼結温度まで加熱した石英が蒸発することを確認した。一方、圧粉体内にファイバーが残留した SUS316L-パイレックスの組み合わせでは、焼結温度まで加熱してもパイレックスは軟化によりわずかに変形するのみであった。従って、微小貫通穴の形成には、ファイバーの蒸発温度が重要な要因の一つであると言える。

5. 発表論文

口頭発表

大曾根龍次, Ahmed Bucheeri, 栗下裕明, 加藤昌宏, 直江崇, 二川正敏, 山崎和彦, 前川克廣, “粉末焼結法によるバブリングノズルの開発”, 日本機械学会年次大会, 2008年8月3~7日, 横浜国大.

Ahmed Bucheeri, Hiroaki Kurishita, Ryuji Osone, Takashi Naoe, Masahiro Katoh, Masatoshi Futakawa, Katsuhiro Maekawa, “Fabrication of a micro-nozzle by using thermal mismatch of metal powders,” RCS セミナー, 2009年3月2日, 茨城大学.

投稿論文

Ahmed Bucheeri, Hiroaki Kurishita, Ryuji Osone, Takashi Naoe, Masahiro Katoh, Masatoshi Futakawa, Katsuhiro Maekawa, “Meso-nozzle fabrication for refractory metals using thermal-property mismatch,” Journal of Materials Processing Technology, submitted.

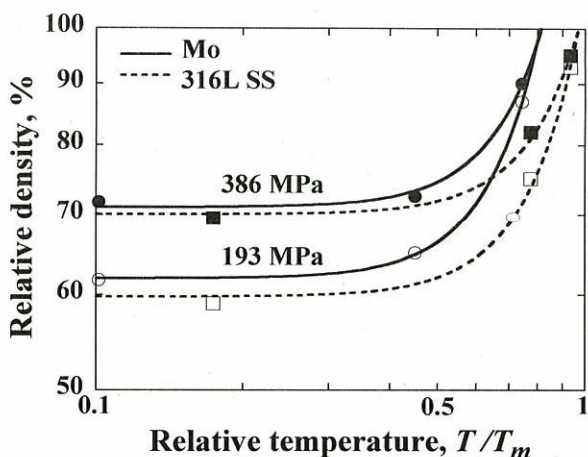


図2 相対温度に対する相対密度の変化

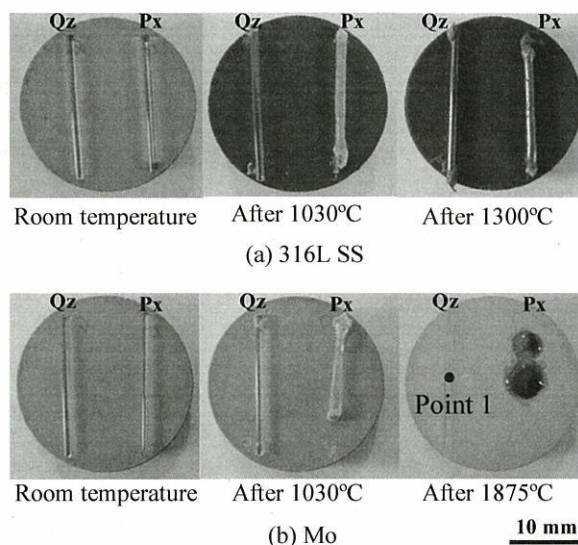


図3 圧粉体上に配置した石英(Qz)及びパイレックス(Px)の変化

IV. 革新炉関連材料

炭素系材料の組織と特性に及ぼす照射損傷効果とその焼鈍効果の究明

茨城大学工学部：車田 亮

研究目的： 炭素系材料は、高温での優れた強度特性や高い熱伝導特性を有するため、高温ガス炉をはじめ核融合実験装置などの高温炉内構造材料として使用されている。しかし、照射により微細組織や機械的性質が変化することや著しく熱伝導特性が低下することなどが問題とされている。そのため、耐照射損傷性と高熱伝導性を兼ね備えた高性能炭素系複合材料の開発が進められている。その開発には、その構成組織（炭素繊維や黒鉛マトリックスなど）の良好な選択が非常に重要である。そこで、本研究では、耐照射損傷性と高熱伝導性を有する高性能炭素系複合材料の開発に役立つ知見を得るために、炭素系複合材料および炭素繊維の組織と特性に及ぼす照射損傷効果およびその焼鈍回復現象を究明することを目的とする。

研究内容： 日本原子力研究開発機構の TANDEM 加速器を用いて Ni^{13+} イオンを $4.5 \times 10^{-3} \text{dpa}$ まで照射した 2 種類のカーボンアロイ（黒鉛と C/C コンポジットに銅チタン合金を含浸させた炭素系複合材料；IG-430U/CuTi, CX-2002U/CuTi）⁽¹⁾ と、その比較材として、高温耐熱構造材料として注目されているタングステンと銅との接合材料について、九州大学応用力学研究所の高エネルギーイオン発生装置を用いて Cu^{2+} イオンを照射した。カーボンアロイとタングステン-銅接合材について、TEM・SEM による微細組織およびダイナミック硬さなどの機械的性質に及ぼす照射効果と高温熱処理によるその回復現象の究明を行った⁽²⁻⁵⁾。

照射後の真空熱処理は、イスズ管状炉 KR-19K（均熱部：内径 $\Phi 40 \text{mm}$ x 長さ 200mm ）を用い、ロータリーポンプとターボポンプにより石英ガラス管内を 10^{-3}Pa 程度の真空にして行った。高温熱処理温度は 673K および 1073K とし、熱処理時間は 100min とした。熱処理の昇温速度は、設定温度の 95% までは 20K/min で、設定温度近くでは 5K/min に設定し、保持時間後は降温速度数 K/min の炉冷とした。（施設利用期間：平成 20 年 9 月 16 日～平成 20 年 9 月 19 日）

超微小硬さ試験におけるダイナミック硬さ ($D_h = 3.8584 \text{L/h}^2$) は、圧子の押し込み荷重 (L) と押し込み深さ (h) から算出される硬さであり、試験片の塑性変形と弾性変形とを含んだ状態での機械的性質が評価できる。ダイナミック硬さは、島津製作所製ダイナミック超微小硬度計 (DUH-201) を用いて測定した。また、TEM・SEM による表面組織の変化も観察した。

平成 20 年度の研究成果： Fig.1 は、 Ni^{13+} イオン照射したカーボンアロイのダイナミック硬さに対する高温熱処理による変化を示す。カーボンアロイの黒鉛部分は、イオン照射により、転位密度の増加及び残留圧縮応力の発生などによりダイナミック硬さが増大した。イオン照射後の真空中、 $673[\text{K}]$ 、 $100[\text{min}]$ の焼鈍熱処理ではその照射硬化の回復が不十分であるが、イオン照射後の真空中、 $1073[\text{K}]$ 、 $100[\text{min}]$ の焼鈍熱処理ではダイナミック硬さが未照射材の 1.1 倍まで回復し、アニーリングによる実用寿命の延長が期待できた。

Fig.2 は、接合界面のイオン照射後の TEM 像を示す。イオン照射による点欠陥や接合時の転位の集合体である線状欠陥が確認できる。これらの点欠陥や線状欠陥は、アニーリングによりその数と大きさが減少したことが確認できた。

(参考文献省略)

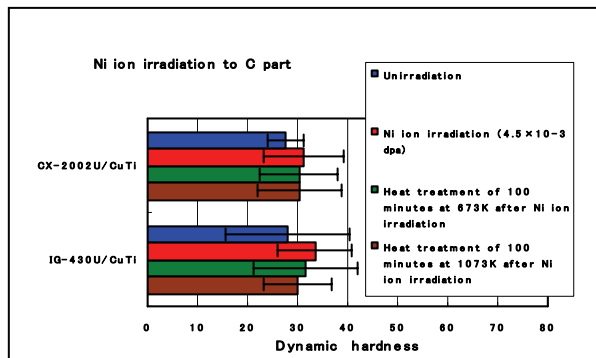


Fig.1 Dynamic hardness of carbon alloys

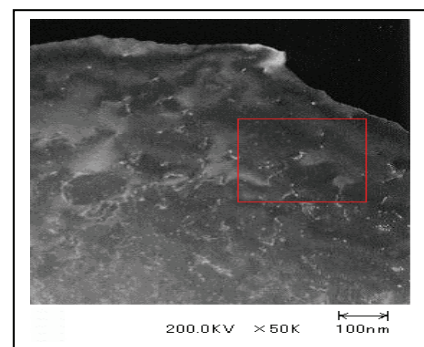


Fig.2 TEM image of joining boundary after ion irradiation

先進原子力システム用ナノ酸化物粒子分散強化鋼における照射効果

京都大学エネルギー理工学研究所 木村晃彦、笠田竜太、Lee Jaehoon

(背景・目的)JAEA が Na 高速炉燃料被覆管用に開発したマルテンサイト系酸化物分散強化 (9Cr-ODS) 鋼は、高温クリープ強度特性に優れ、使用温度を 700°C まで上昇させることにより、熱効率の飛躍的な向上が可能になると期待されている。しかし、9Cr-ODS 鋼を超臨界圧水や液体金属環境である先進的なブランケットの構造材料として用いる場合は、耐環境特性に問題が生じてくる。京都大学を中心とするグループでは、耐環境性に極めて優れた高クロム ODS 鋼の開発に成功しつつあるが、Cr の増量により Fe/Cr の相分離に伴う熱時効脆化および照射脆化が促進されることが懸念されている。また、ナノスケールの酸化物分散粒子と微細結晶粒を併せ持つ、所謂ナノコンポジット材料である ODS 鋼の照射効果についての学術的興味世界的に高まっている。そこで本研究においては、高クロム (14-19%)Cr-ODS 鋼の照射下相安定性と強度特性を評価し、これらの相関を明らかにすることを目的とする。

(実験方法) Cr 量や Al 量、その他の微量添加元素を変化させた高クロム ODS 鋼を用いた。照射は BR-2 を用いて、290~300°C において、 $4.0 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$ まで行った (06M-4BR)。用いた試験片は、SS-J2 タイプの微小引張試験片である。引張試験は、室温においてクロスヘッド変位速度 0.2mm/min にて行った。

(実験結果及び考察)

図 1 に、引張試験によって得られた 0.2%耐力、全伸びの変化量の Cr 量依存性を示す。これまでに、比較的低線量の照射実験結果に関する論文で報告しているように^[1,2]、約 300°C における高クロム ODS 鋼の照射硬化の Cr 量依存性は、今回の照射実験においても確認されなかった。また、この温度域での高クロム ODS 鋼の照射硬化の主要因は、転位ループの形成によるものと考えているが、転位ループの形成挙動に対して Cr 量の影響が極めて小さいことを示唆している。また、Al 非添加鋼や W 添加鋼での照射硬化感受性は他の鋼種に比べて若干ではあるが小さい。全伸びに対する影響を見ると、これらの Al 非添加鋼や W 添加鋼では、照射による全伸びの低下がほとんど見られないのに対して、他の鋼種では全伸びの低下が比較的大きい。これまでに多数報告してきた ODS 鋼において見られる延性低下を伴わない照射硬化現象については、高密度に分散したナノ酸化物粒子と転位の相互作用を通して説明しているが、高照射量域においては W や Al 等の添加元素の影響によって、延性低下が起こりうることを示している。

今回の照射実験は、ODS 鋼の使用条件として想定される照射温度の下限を下回るものではあるが、通常のフェライト/マルテンサイト系鉄鋼材料の照射硬化・脆化とは異なる照射温度依存性を有すると考えられており、特に熱時効脆化の影響が大きい 400~600°C 付近で

の照射実験を進める必要がある。

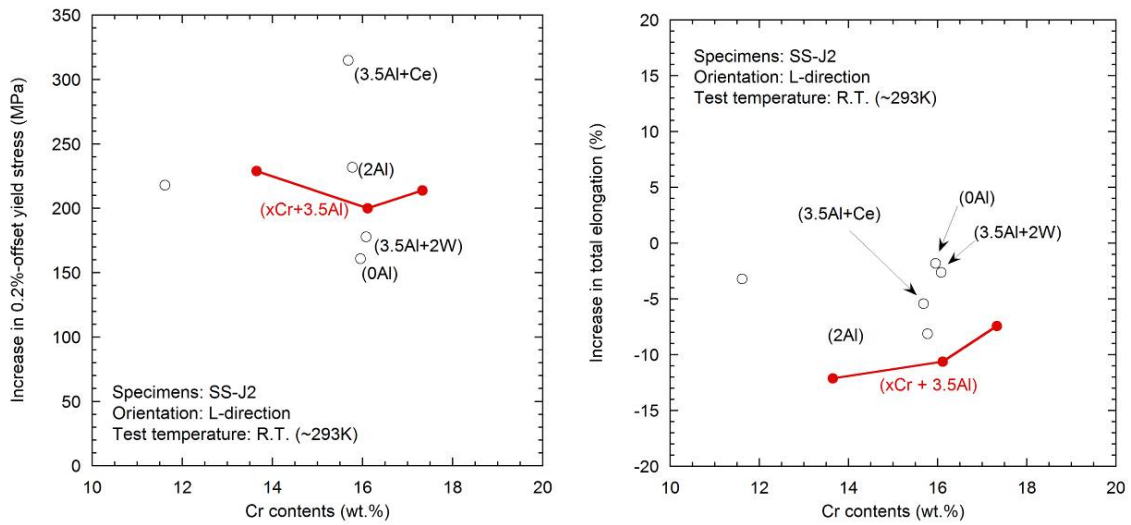


図 1 引張試験によって得られた 0.2%耐力、全伸びの変化量

(今後の計画)平成 21 年度は、JOYO による重照射材の特性評価を進める予定である。また、ODS 鋼におけるナノ酸化物粒子の照射下安定性を調べるために LEAP 測定を希望している。

(参考文献)

1. R. Kasada, H. S. Cho, N. Okuda, A. Kimura, "Effects of neutron irradiation and thermal aging on mechanical properties of ODS ferritic steels for advanced nuclear systems", Materials Science Forum 561-565 (2007) 1773-1776.
2. H. S. Cho, R. Kasada, A. kimura, "Effects of neutron irradiation on the tensile properties of high-Cr oxide dispersion strengthened ferritic steels", journal of Nuclear Materials, 370 (2007) 239-243.

水素化物中性子吸収材の開発

東北大学金属材料研究所 小無健司、鳴井実、土屋文
阪大工 黒崎健 東大工 鈴木昌大
原子力機構 勅使河原誠

1. はじめに

エネルギーの長期的安定供給および環境負荷の低減のために高速増殖炉の開発が進められている。高速増殖炉ではこれまで中性子吸収材として炭化ホウ素 (B_4C) が用いられてきた。しかし炭化ホウ素は中性子を吸収するとヘリウムガスを発生し膨れを生じるため長期間の使用が困難になっていた。ハフニウム (Hf) は中性子吸収によりヘリウムガスを発生しない材料の一つである。ハフニウム水素化は、現在高速炉で通常利用されている B_4C に比べて、①ヘリウムガススエリングが起こらないことおよび②核的に長寿命で有ることの2つの優位性を持っている。本研究ではこの性質を利用して新たな中性子吸収材を開発する。

2. 研究経過

(1) 「常陽」照射 SMIR-27(2)

平成 18 年度に引き続き、「常陽」MK-III 炉心第 6 サイクル運転(平成 19 年 3 月 7 日(水)から平成 19 年 4 月 11 日(水))において、反射体領域(第 6 列)で照射を実施した。ハフニウム水素化物については 2.92×10^{21} (n/cm²)、ガドリニウム含有ジルコニウム水素化物については 3.25×10^{21} (n/cm²)、の高速中性子 ($E > 0.1$ MeV) の照射量が達成できたと推定された。また照射温度はハフニウム水素化物については 590°C 程度、ガドリニウム含有ジルコニウム水素化物については 580°C 程度と推定された(図 1)。

(2) 照射後試験

照射完了後、PIE を実施するため、炉心から取り出し、東海研究開発センターで水素化物の X 線回折、水素分析、熱拡散率測定を、大洗研究開発センターで水素化物及び被覆管材料の金相試験を実施中である。

3. 成果発表

(1) K. Konashi, et al., 'Study on an innovative Fast Reactor utilizing Hydride Neutron Absorber', Proc. of ICAPP' 08, June. 8-12, 2008, Anaheim, USA.

(2) 佐々木新治、曾我知則、前田宏治、伊藤和寛、小無健司、'高速炉用水素化物の照射後試験結果—照射条件評価、EPMA 分析—', 日本原子力学会 2009 年春の年会 Mar. 23-25, 2009, 東工大

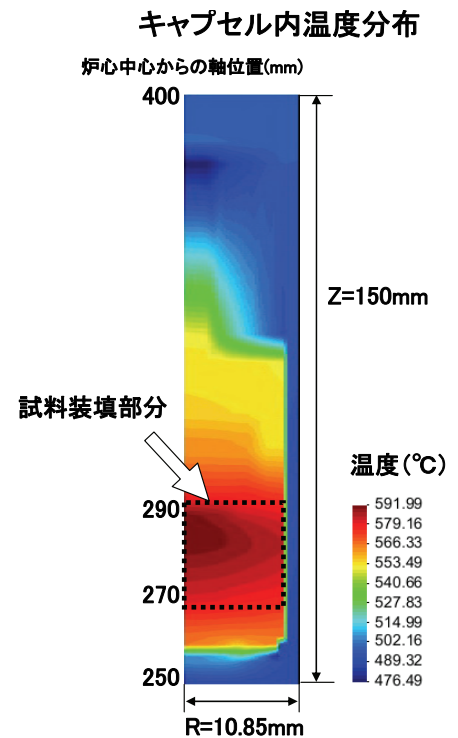


図1 照射キャプセル内温度分布

V. アクチノイド

固体抽出剤によるクロマトグラフィーを用いた

ランタノイドとアクチノイドの分離

(東京工大・原子炉研)鈴木達也,田中真以子

(東北大学・金研)山村朝雄、本間佳哉、白崎謙次

【はじめに】

核燃料サイクルの環境負荷低減性の向上を図るため、長寿命のアクチノイド(An)及び核分裂生成物の「分離・核変換」による、放射性廃棄物の放射能及び放射性毒性の低減に関する基礎・基盤研究を進めており、本研究は、ピリジン等を樹脂に固定した固体抽出剤を用いてアクチノイドやランタノイドの分離を目的として研究を行っている。昨年度までは3級ピリジン樹脂を用いて3価のアクチノイドであるアメリシウム(Am)とキュリウムの樹脂への吸着挙動とランタノイドの分離について研究を行ってきた。平成20年度は今まで3級ピリジン樹脂への吸着挙動を調べていなかった。ネプツニウム(Np)に着目して研究を行った。

【実験手法】

今回の研究では γ 線での測定が容易な Np-239 を用いた。Np-239 は半減期 2.357 日であることから、Am-243 の壊変で生じたものをミルキングで取り出して用いた。ミルキングでは放射平衡の状態にある Am-243 を 9M の塩酸溶液に調整した後、塩酸ヒドロキシルアミン(NH₂OH・HCl)を用いて Np を 4 価に調整した。3 価の Am は塩酸溶液では陰イオン交換樹脂に吸着せず、4 価の Np は高濃度の塩酸溶液で陰イオン交換樹脂に吸着することを利用して分離を行うためである。調整した試料を陰イオン交換樹脂(AG1X8, 室町化学)を充填したカラムに着点した後、9M 塩酸を流して Am を流しだし、樹脂に吸着させた Np を 0.1M 塩酸で溶離回収した。今回の Np の吸着試験では Np(VI)の吸着について試験を行うことにしたので、回収した Np を 6 価に調整した。調整方法はまず回収した Np を蒸発乾固し、その中に濃硝酸と過塩素酸を加えて蒸発乾固を数回繰り返すことにより酸化させた。最後に 1M 塩酸を加えて、ストックソリューションとして、このストックソリューション 0.1ml と適当な濃度の試料(0.5, 1, 3, 6, 9M, 濃塩酸)を 1.1ml 混ぜ合わせて Np 溶液試料を作成した、そこから 0.2ml 取り出し(試料 A)、残りの 1ml の試料にピリジン樹脂 0.1g(比重 1.23)を加えて 1 時間ほど攪拌しながら放置した後、その中から 0.2ml の試料(試料 B)を採取した。試料 A および B の γ 線を測定することにより、溶液あるいは樹脂中に分配された Np の量を見積もり、分配係数を評価した。

【結果と考察】

得られた分配係数を図に示す。なお、図中には示されていないが塩酸濃度 1M 以下では樹脂への吸着は観測されなかった。図を見ると得られた分配係数の形は、一般的に知られている 4 価 Np の陰イオン交換樹脂(4 級アンモニウム型強塩基性陰イオン交換樹脂)への塩酸溶液における分配係数の形と非常に似た形状を持っている。ただ、6 価 Np の塩酸溶液における分配係数はあまり知られていないが、一般に 6 価 Np の化学的特性は 6 価 U と似た化学的特性を持つことが知られており、6 価 U の陰イオン交換樹脂への分配係数は得られた分配係数の値と似たものであることが知られている。今回試験を実施するに当たり、Np の価数を調整したつもりには成っているが、施設における制約などから Np の価数を確認する手段を持っていないため、価数を実験的に確認することができていない。したがって、今回、実験で得られた分配係数が本当に 6 価のものであるのか、あるいは 6 価にならず、4 価のままであったかは確認できていない。過去の試験において、今回用いた価数調整法により Np の価数が制御できることはマクロ量では確認できているが、今回のようなトレーサーレベルにおいてはマクロ量と同じ現象であると断言はできない。今後、更に 4 価、5 価の実験を行うこと、また価数について確認する方法を行うことにより、今回の結果も含めてデータを蓄積して議論する必要がある。

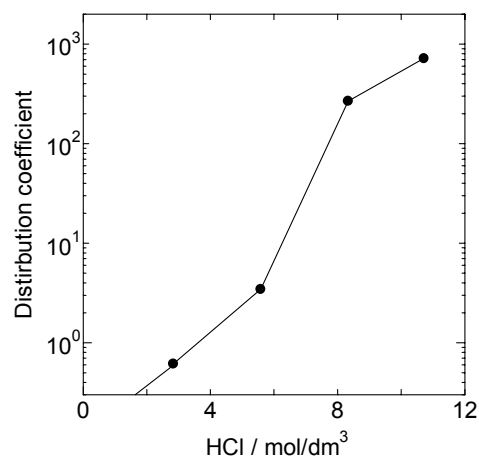


図 Np(VI)の塩酸溶液におけるピリジン樹脂への吸着特性

緩衝材中のアクチノイド元素の移動に関する研究

九州大学・工 出光一哉、稲垣八穂広、有馬立身、池内宏知、秋山大輔
 東北大学 原光男

1. 目的

スメクタイトは緩衝材（ベントナイト）の主要成分鉱物であり、また、花崗岩等の亀裂内部の充填鉱物の一つもある。スメクタイトへの核種の吸着およびその中での拡散挙動は処分場の安全性評価上重要なパラメータである。本研究では、九州大学で開発した電気化学的方法を用いて、核種としてプルトニウムを用い、スメクタイト試料（クニミネ工業製、クニピアF）中での移行加速実験を行った。実験は鉄片および腐食生成物を伴う還元環境で行った。

2. 実験

スメクタイト試料を直径 10mm、高さ 10mm の円筒形状で乾燥密度 1.4 Mg/m^3 に圧縮成形した。この試料を図 1 に示すカラムに取り付け、ベントナイト試料の一面を炭素鋼と接触させ、他の面を 0.01M NaCl 溶液と接触させた。試験では炭素鋼を作用極、溶液中に浸した白金板を対極とし、同じく溶液に浸した参照電極 (Ag/AgCl) とともにポテンシオスタットに接続した。炭素鋼とベントナイト試料の界面にプルトニウムを含む溶液 (^{238}Pu を $1 \text{ kBq} : 5 \times 10^{-11} \text{ M}$ 含む) 約 $10 \mu\text{L}$ を塗布した後、炭素鋼に電位を印加した。炭素鋼の電位を一定に保ち (-150、150 mV vs. Ag/AgCl)、168 時間

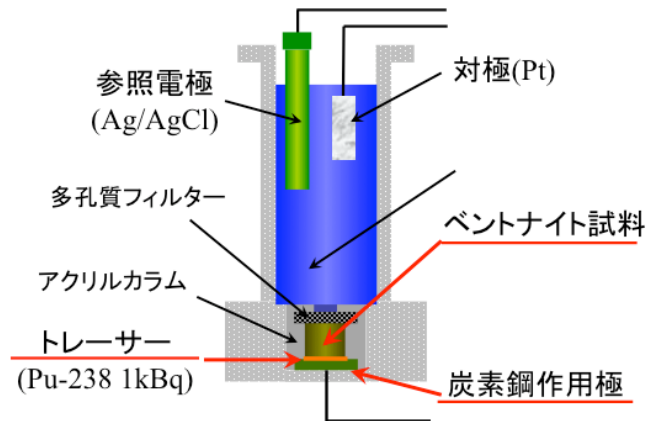


図 1 電気化学的移動実験装置

維持した。各々の試験終了後、試料を 0.5~1.0mm の厚さにスライスし、1N HCl でスライス片中のプルトニウムを脱離後、液体シンチレーション検出器を用いて定量し濃度プロファイルを得た。

3. 結果

図 2 に炭素鋼に電位を印加した後のプルトニウムの濃度分布を示す。プルトニウムは陰極に向かって移動し、印加電位に応じて濃度分布の進展が見られた。

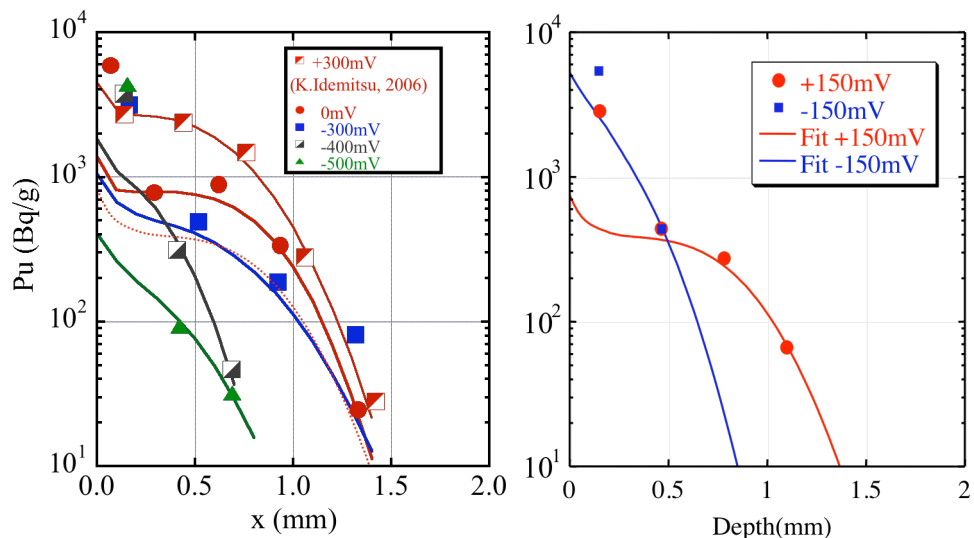


図 2 電位印加によるプルトニウムの濃度分布 (168時間)
 左：過去の結果 (点線で今回の結果も併記)、右：今回の結果

図2に示されるように印加電圧とプルトニウムのベントナイトへの侵入量には相関がある。同様の相関関係が鉄イオンにも認められる。測定した電流の時間変化から求めた投入電荷量と鉄、プルトニウムの侵入量を図3に示した。鉄イオンの侵入量は電荷量と比例関係を示し、投入された電荷がほぼ100%2価の鉄の生成に使われたことを示している。一方、プルトニウムの侵入量は電荷量と概ね正の相関を持っている。

プルトニウムの濃度分布の解析には、下式の移流（電気泳動）分散方程式を用いて解析を行った。

$$\frac{\partial C(x,t)}{\partial t} = D_a \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - V_a \frac{\partial C}{\partial x}$$

ここで、 D_a は見かけの分散係数、 V_a は見かけの電気泳動速度である。この方程式に、トレーサの全量保存、鉄との界面を越えたトレーサの移動の禁止の条件を加えると、下式の解析解が得られる。

$$C(x,t) = \frac{M}{2\sqrt{\pi D_a t}} \left\{ \exp\left(-\frac{(x-V_a t)^2}{4D_a t}\right) + \exp\left(-\frac{(x+V_a t)^2}{4D_a t}\right) \right\}$$

しかしながら、プルトニウムは全量が移動するわけではない。プルトニウムのベントナイトへの侵入速度を正確に求めることはできないが、鉄と同様、電流と比例するものと仮定し、その量を $M(t)$ とすると下式の解析解が得られる。

$$C(x,t) = \int_0^t \frac{M(t-\tau)}{2\sqrt{\pi D_a \tau}} \left[\exp\left(-\frac{(x-V_a \tau)^2}{4D_a \tau}\right) + \exp\left(-\frac{(x+V_a \tau)^2}{4D_a \tau}\right) \right] d\tau$$

図2に示されている直線は上式を用いてフィッティングを行った結果である。

得られたそれぞれのイオンの移動速度から拡散係数を推定した。鉄イオンはプルトニウムに比べ約10倍の速度で移動する。鉄イオンのみかけの拡散係数が約 $10^{-12} \text{m}^2/\text{s}$ であることからプルトニウムのみかけの拡散係数を約 $10^{-13} \text{m}^2/\text{s}$ と推定した。この拡散係数と得られた分散係数を図4に示す。

鉄の分散係数はみかけの拡散係数よりも大きく、これは移流に伴う動的分散が大きいためと考えられる。一方、プルトニウムでは推定したみかけの拡散係数と分散係数がほぼ同じであり、動的分散の影響が少ないものと考えられる。

3. 結論

- (1) プルトニウムは全量がベントナイト中に侵入するわけではなく、その量は侵入した鉄イオンの量と相関がある。
- (2) 鉄イオンには動的分散が認められみかけの拡散係数よりも分散係数の方が大きくなったが、プルトニウムでは拡散係数と分散係数には大きな違いが見られなかった。よって、Puの見かけの拡散係数は $10^{-13} \text{m}^2/\text{s}$ 以下と推定された。

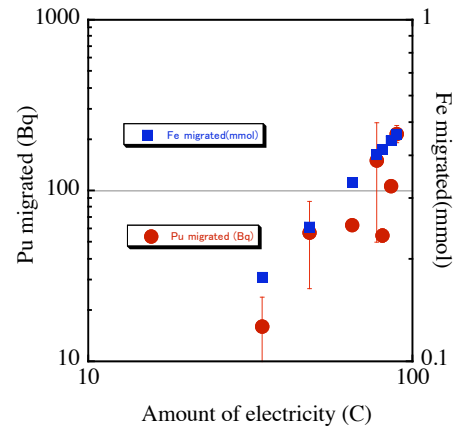


図3 電荷量と鉄、プルトニウム量

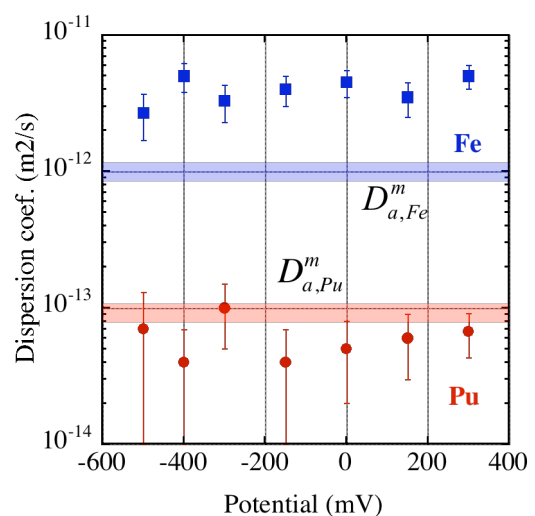


図4 得られた分散係数と拡散係数推定値

マイナーアクチニド含有酸化物燃料照射挙動の微視的観点からの評価

日本原子力研究開発機構 大洗研究開発センター
燃料試験課 (AGS) 逢坂 正彦

1. 研究目的

電気伝導率測定による欠陥構造、NMR 測定による電子構造等のミクロスケールの情報と、電気化学インピーダンス測定による結晶粒・粒界・異物質界面等のメソスケールの情報を用いて、マイナーアクチニドを含有する高速炉用酸化物燃料の照射における基礎挙動解釈の手がかりとすることを目的とし、酸素不定比を正確に制御するための技術を確認するための実験および $(\text{Pu,Am})\text{O}_{2-x}$ の NMR 測定を行った。

2. 実験

(1) 酸素不定比調製技術

アクチニド二酸化物は雰囲気・温度条件・金属組成によって決定される酸素不定比性を有している。NMR 測定用の試料調製は高温化学反応を利用した固相反応を利用していることから、アクチニド二酸化物の酸素組成を正確に定比 (O/M=2) に調製するための条件を評価する必要がある。このため、平衡酸素ポテンシャルを調整した雰囲気における定温測定により、アクチニド二酸化物を模擬した CeO_{2-x} と $(\text{Ce,Gd})\text{O}_{2-x}$ の酸素分圧 (酸素ポテンシャル) を測定した。アクチニド酸化物を含めたこれら化合物の定比調整条件を調べ、化学熱力学法を用いた解析により、任意の金属組成・温度・酸素ポテンシャルにおける不定比を高精度で計算できるよう整備した (右図)。また調整した CeO_{2-x} を大気雰囲気中・室温で保持し、その重量変化を調べたところ、高密度焼結体であってもわずか 2 日程度で定比に戻ることが判明した。

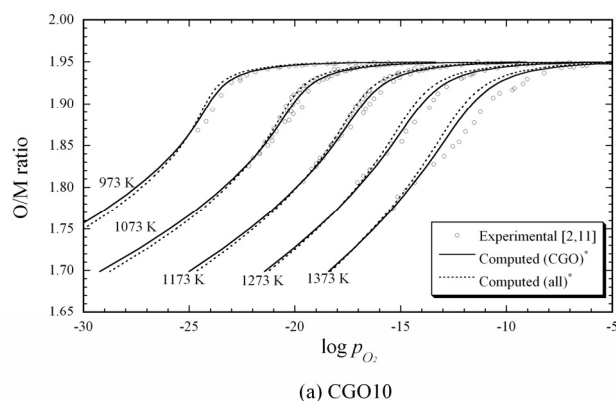


図 化学熱力学法による $(\text{Ce}_{0.9}\text{Gd}_{0.1})\text{O}_{2-x}$ 不定比の再現曲

(2) $(\text{Pu,Am})\text{O}_2$ の NMR 測定

窒化物を経由する方法で調製した NMR 測定用 $(\text{Pu}_{0.91}\text{Am}_{0.09})\text{O}_2$ を金研アクチノイド棟に輸送し、NMR 測定を行った。スペクトルの線幅は純粋な PuO_2 に比べてかなり広がる等、Am が導入されたことによる酸素の周りの電子状態への影響が実験的に明らかとなった。

3. 成果および今後の展開

今後は種々の酸素不定比 CeO_{2-x} 、アクチニドと希土類固溶体試料を調製し、NMR 測定、電気伝導率測定等を実施することにより、欠陥構造評価等のマイクロ情報を取得していく予定である。

ウラン化合物磁性記憶材料の探索と物性研究

李徳新、本間佳哉、山村朝雄、二森茂樹^A、小山田明^B

東北大・金研、物質・材料研究機構・強磁場センター^A、京都大・人間・環境学研究科^B

最近、我々はNMAD(Nomagnetic Atom Disorder)
ウラン化合物 U_2PdSi_3 および U_2AuGa_3 において、5f電子系
磁性体として初めて磁気メモリ効果を見出した。従来の
稀薄 3d電子系および 4f電子系の磁気記憶材料とは異なり、
非磁性原子の乱れに起因するランダム的なf-d(p)混成は
5f電子系化合物の磁気メモリ効果に重要な寄与をす
ることが考えられる。本研究では、ウラン化合物磁気
記憶材料を探索すると共に、 U_2TSi_3 と U_2TGa_3 (T=遷移
金属) を主なターゲットに選択し、元素置換、組成変
化、外部圧力の「三つの手段」を利用してf-d(p)混成の
能動的な制御を実現する。「三つの手段」により磁気
メモリ効果の変化およびその変化の規則性を観測し、3d
および 4f電子系物質と比較する上で、5f電子系磁気メモ
リ効果の特徴を究明する。物性物理学の立場から、ウ
ラン化合物における磁気メモリ効果の物理描像を記述
することおよび発現機構を解明することが本研究の目的
である。ここでは、 U_2PdSi_3 単結晶に対して磁気メモ
リ効果の測定結果を報告する。

図 1 に U_2PdSi_3 単結晶c面内においてZFC磁化率の磁
気メモリ効果の一部分の測定結果を示す。ZFC 過程中、
試料をそれぞれ $T_w=10, 9, 8, 7$ Kで 1 時間保温した後、4.5K
まで温度を下げる。それから 50 Oeまでの磁場をかけて、
温度上昇とともに磁化率を測定する。図 2 に示したよう
に、測定した曲線と参考曲線(通常ZFC磁化率曲線)の
差(ΔM_{ZFC})から明らかなマイナスピークが観測され、最大
のピーク値は 9 K付近で現れた。これはスピングラス物質
特有な磁気メモリ効果である。図 3 は、ZFC磁気緩和の測
定結果である。測定前、試料を零磁場中 8 Kまで冷却した
後、50 Oeの磁場をかけて磁化の時間変化 ($M(t)$) を 1 時
間測定する。その後磁場が変わらず温度を 5 Kまで下げ、
5 Kで $M(t)$ を 1 時間測定する。それから温度が 8 Kに戻って、
再び $M(t)$ を 1 時間測定する。最後、繰り返し同様な測定
を行う。試料の磁化は 5 Kで 2 回の緩和を通った後、それ
ぞれ元の状態に回復し、明瞭な磁気メモリ現象が観測され
た(図 3 の挿入図)。以上の結果により、スピングラス
転移温度以下で、 U_2PdSi_3 は磁気記憶性質を持ち、そのメ
モリ効果は 9 K前後で最も顕著である。

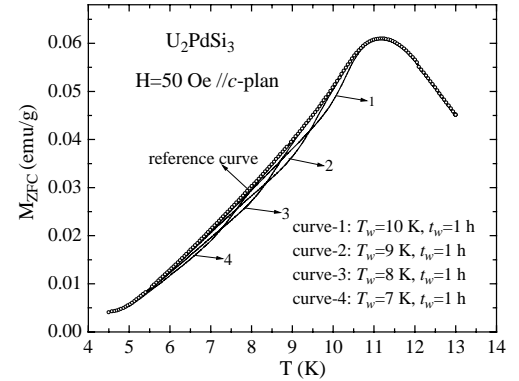


Fig. 1 The temperature dependence of the ZFC susceptibility of U_2PdSi_3 single crystal recorded at $H=50$ Oe//c-plan with a stop of 1 h at $T_w=10, 9, 8,$ and 7 K during the cooling process. The reference curve is measured without such a stop.

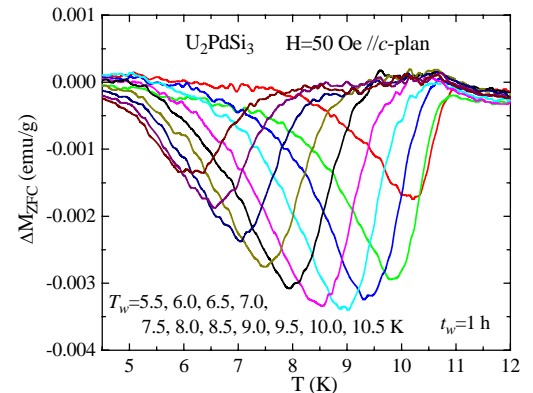


Fig. 2 Difference of the ZFC susceptibility of U_2PdSi_3 single crystal recorded at $H=50$ Oe//c-plan. The ZFC process is intermitted at $T_w=5.5, 6, 6.5, 7, 7.5, 8, 8.5, 9, 9.5, 10$ and 10.5 K for 1 h.

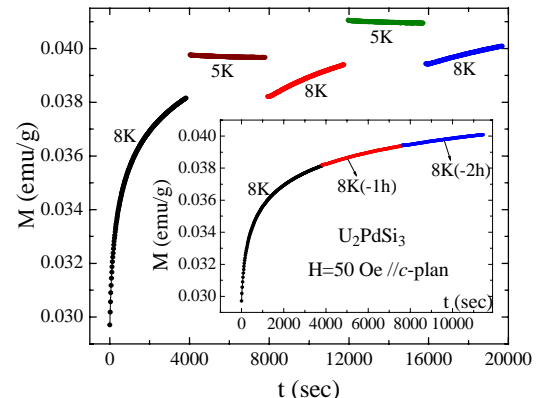


Fig. 3 The ZFC magnetic relaxation measurement at 8 K with a decrease in temperature to 5 K for 1 h. The inset shows the data as a function of total time spent at $T=15$ K.

超ウラン化合物の超音波による研究

岩手大学大学院工学研究科 中西良樹 吉澤正人

ウランあるいは超ウラン元素を含む化合物は 5f 電子系がその電子状態を支配している。これまで磁性分野で精力的に研究が行われている 3d 遷移金属系、4f 希土類系に比べると未開拓分野が数多く残された研究領域である。この背景には、扱っている対象試料が放射性物質であり、厳しく規制および訓練された機関でのみ使用が可能であるという制約に大きく起因する。しかしながら、最近 PuCoIn5 において超伝導転移温度 18 K が報告されて以来、ウランおよび超ウラン化合物の 5f 電子状態に対する関心が著しく高まった。[1] 5f 電子系はその波動関数の空間的な広がりから 3d 電子系と 4f 電子系の間位置する電荷分布を有すると考えられている。この状況が 5f 電子の遍歴性と局在性、つまり伝導性と磁性の両特性を 5f 電子自身が担う特殊な系を産み出す源になる。

超音波測定は高周波電気信号を圧電素子により超音波信号に変換し結晶中に入射しその線形応答を検出することにより結晶中を伝搬する音速およびその吸収率を見積もる実験手段である。入射された超音波は結晶中で格子歪みを誘起し、“歪み場”をもたらす。この歪み場に反応する秩序変数の応答を我々は固体中に見ることになる。実際に f 電子系においては f 電子の電気四重極モーメントの歪み場に対する応答を主に観測している。換言すると、超音波は 5f 電子の局在性を測る有力なプローブとなり、5f 電子系で盛んに議論されている局在性と遍歴性の決定に大きな示唆を与え得ることになる。このような研究背景のもとに我々は超音波測定装置一式を大洗研究施設に持ち込み、施設既存の実験装置と組み合わせることで放射性物質の超音波測定を可能にした。

装置の試験運転も兼ねて測定した充填スクッテルダイト $\text{UFe}_4\text{P}_{12}$ の横波弾性定数の結果について報告する。図 1 は $\text{UFe}_4\text{P}_{12}$ の横波弾性定数の温度変化である。超音波測定は結晶主要軸に縦波あるいは横波を入射することで格子歪み場が結晶中を伝搬し、その線形応答を観測することになる。本研究で用いた $\text{UFe}_4\text{P}_{12}$ は試料長が約 0.8 mm 程度と大変微小かつ結晶面が (111) 面で劈開しやすいという特徴を有した試料であった。従って、今回は結晶軸 [111] 軸に横波を伝搬させた $(C_{11}-C_{12}+C_{44})/3$ に対応する弾性定数の温度変化を測定した。これは空間対称性 Γ_3 および Γ_5 をもつ対称化された歪みの線型応答の足し合わせである。この結果のみからは $\text{UFe}_4\text{P}_{12}$ の詳細な議論は困難であることを予め述べておく。温度減少に伴い単調に弾性定数 $(C_{11}-C_{12}+C_{44})/3$ は増加する。これは結晶の非調和格子振動が抑えられ、物質が硬くなる傾向を表している。しかし、約 20 K 付近からその傾きが小さくなり僅かに減少傾向に転ずる。

今回は、大洗施設既存のガラスデュワーと超音波装置の組合せによりゼロ磁場における測定を行なった。今後は磁場中測定のために、施設内に設置されている SQUID 磁化測定装置との組合せを試みる予定である。SQUID 磁化測定装置の試料ホルダー先端を改良し超音波測定ホルダーとして用い、磁場中超音波測定を行なえる環境を整え、磁場中の研究を推進する予定である。また、ウラン系の後、超ウラン系の超音波測定を可能にするために、試料密閉型の試料ホルダー作成を現在行なっている。自己発熱の大きい超ウラン化合物については、本研究で用いた冷却能力の高いガラスデュワーを用いて研究を行う予定である。

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において超音波測定装置を持ち込み、充填スクッテルダイト化合物 $\text{UFe}_4\text{P}_{12}$ について単結晶試料を用いた弾性定数の測定を行った。ゼロ磁場下で強磁性転移温度 3.15 K において明瞭な弾性異常を観測した。今後は U あるいは Pu、Np 原子を含む他の化合物について超音波を用いた弾性定数の測定を行ない、未だ明らかにされていない 5f 電子状態について包括的な理解が可能になるよう、電荷感受率の立場から示唆に富んだ情報を提供していきたい。またこの系は微小試料が多いため、サファイア等を緩衝台として用いた測定も確立していく予定である。

本研究は東北大学金属材料研究所および日本原子力研究開発機構との共同研究である。

参考文献

- [1] J.L. Sarrao et al., Nature, **420** (2002) 297.

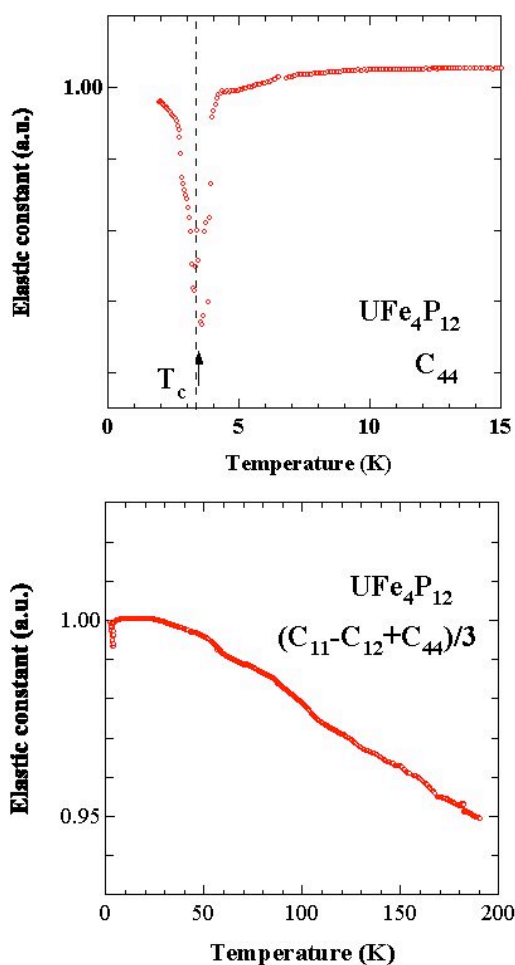


図 1

$\text{UFe}_4\text{P}_{12}$ の弾性定数の温度変化。上図は転移温度近傍の拡大図。

α線放出核種の内用放射療法への適応

金沢大学医学系研究科	鷲山幸信、天野良平
金沢大学医学部	永井里佳、小田雄一
金沢大学学際科学実験センター	小川数馬
東北大学金材研	山村朝雄、佐藤伊佐務

はじめに

死亡率の高い癌には肺がん、乳がん、前立腺がん、甲状腺癌などがあげられる。このような癌は骨転移のリスクが高く、原発巣の成長により骨転移が発生すると、それに伴う疼痛等により予後が悪くなる場合が多い。骨転移の治療方法には、疼痛の軽減を目的として行うことが多い放射線治療や、骨転移に伴う骨関連事象の発現を抑制できるものとしてビスホスホネート製剤、さらに最近保険適用となったβ線放出放射性医薬品⁸⁹SrCl₂などがある。⁸⁹SrCl₂はβ線を利用した疼痛緩和剤であるが、β線の飛程が長いこと、腫瘍縮退を目指した線量の投与は同時に骨髄毒性を発生させるために制限されている。これに対しα線は飛程が短くRBEが高いこと、早期の骨腫瘍を治療する可能性を持つ。そこで本研究ではα線放出薬剤²²⁷Th-EDTMP および²²³RaCl₂を用いた造骨性骨転移の治療効果を検討するために、溶骨性骨転移モデルラットおよび造骨性骨転移モデルラットを用いてさらに治療実験を試み、α線による疼痛緩和、抗腫瘍効果、および骨髄毒性について検討した。

実験

Sprague-Dowley系7週齢雌ラットの左頸骨にラット乳がん細胞MRMT-1を 1×10^3 個移植し溶骨性骨転移モデルを作成した。またCopenhagen系4週齢雄ラットの左頸骨にラット前立腺がん細胞Mat-Ly-Luを 1×10^3 個移植し造骨性骨転移モデルを作成した。それぞれ腫瘍移植後2週間でX線撮影により頸骨上の骨病変を確認した後、²²⁷Th-EDTMPを250kBq/kg体重として溶骨性骨転移モデルに尾静脈投与し、²²³RaCl₂は125kBq/kg体重として造骨性骨転移モデルラットに尾静脈投与した。投与前および投与後3週間まで経時的に治療効果と毒性を調べた。治療効果の評価にはvon Frey式痛覚試験と腫瘍体積測定を行った。毒性評価には体重測定や、血球数計測を行った。von Frey式痛覚試験はラットの足裏に機械刺激を加え、急性痛を評価する試験である。von Freyファイラメントをラットの足底に垂直にあて、ラットが足をあげる機械刺激の閾値(ニュートンで表記)を測定した。解析では右足底と骨転移のある左足底の機械刺激の閾値の左右比を求めた。

結果と考察

ラット乳がん細胞MRMT-1を移植したラットは、移植後3週間で左頸骨に溶骨を認めた。またラット前立腺がん細胞Mat-Ly-Luを移植したラットは、移植後3週間で左頸骨に造骨を認めた。したがって骨転移の性質(溶骨性、造骨性)の違いによる放射性医薬品の治療効果の違いを検証することが可能になった。これらの骨転移モデルに対して²²⁷Th-EDTMPまたは²²³RaCl₂を投与したが、疼痛緩和および腫瘍増殖抑制を示す結果は得られなかった。溶骨性並びに造骨性の骨転移モデルラットに対するvon Frey式痛覚試験では、治療開始後から徐々に痛みが強くなる傾向が見られた。また腫瘍は治療開始からも増殖し体積が大きくなっていった。以上より、今回の検討では疼痛緩和効果や腫瘍増殖抑制効果は示されなかった。この原因を探るために治療開始後3週間のモデルラットに^{99m}Tc-HMDPを投与して大腿骨のオートルジオグラフィーを行った。その結果、骨転移部位への^{99m}Tc-HMDPの集積が確認された。また^{99m}Tcの放射能が充分減衰した後に予め投与してあった²²³Raのα線によるオートルジオグラフィーを行ったところ、²²³Raは骨転移部位への周辺に集積しているのが確認されたが^{99m}Tc-HMDPの集積部位とはやや異なる結果となった。これは²²³RaCl₂を投与した時期と^{99m}Tc-HMDPを投与した時期が異なり、その間に骨代謝が進んだ結果と解釈される。今回の検討では²²⁷Th-EDTMPまたは²²³RaCl₂をモデルラット作成後2週間で投与したが、その時点では既に腫瘍は十分成長している可能性がある。今後はより早期の骨転移がまだ判断できない状態で(予防的に)α線放出核種を投与することを検討する。

平成 20 年度共同利用研究経過報告書

採択課題:F41-10 強相関アクチノイド化合物の物理と化学の研究

日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター 芳賀芳範

物質開発と精密な物性測定により、アクチノイドの 5f が示す様々な特性を明らかにしてきた。今年度に得られた主な成果を以下に示す。

(1) ネプツニウム化合物として初めての重い電子系超伝導体 NpPd_5Al_2 [1]について、NMR 測定及びバルク物性測定を推進した。NMR 測定では、常伝導状態の物性が異方的な磁気揺らぎに支配されていることや、超伝導ギャップが異方的であることを明らかにし、この物質の超伝導が通常の BCS 型とは著しく異なることを示した[2]。また極低温、高磁場における熱物性・磁気測定は、常伝導状態において存在していた異方的な磁気モーメントや重い電子状態が超伝導状態で消失する著しい異常を見いだした。以上の結果は、常伝導・超伝導の特性に 5f 電子の磁気モーメントが大きく関与していることを示している。一方 Np を U に置換した物質をいち早く見だし、同じ結晶構造が広くアクチノイド・希土類系に存在することを示唆した。[3]

(2) Np 化合物として初めてのスクッテルダイト化合物 $\text{NpFe}_4\text{P}_{12}$ について、NMR の立場から磁氣的性質を詳細に調べた[4]。外部磁場のもとで、強磁性的揺らぎが著しく押さえられ、同時に負の磁気抵抗も観測されることから、伝導電子に対する磁気散乱が極めて強い系であることを示した。

(3) 局在的磁性を示すと考えられていた一連のウランカルコゲナイドについて、気相成長による単結晶を育成し、その物性の異方性を含め、詳細な研究を行った。UTeS はキュリー点 87 K の強磁性体である。電気抵抗及びホール効果測定から、キャリア濃度は通常金属の 1%程度と見積もられた。圧力を加えると、電気抵抗が著しく減少するとともに、キュリー点が増大することを明らかにした[5]。強磁性相互作用が RKKY 相互作用による場合、キャリア濃度の増大は転移温度の増大をもたらすため、この振舞は定性的に説明できる。この結果をヒントとして、Te を S に置換した $\beta\text{-US}_2$ を調べた。この物質は UTeS に比べてさらにキャリア数が少なく、基底状態ではキャリア数ゼロの半導体である。UTeS の圧力実験から類推されるように、キャリア数が少ないことを反映して磁気転移温度は低温に押さえ込まれている。 $\beta\text{-US}_2$ に圧力を加えると、電気抵抗が急速に減少するとともに、2 GPa 以上の圧力で磁気転移と思われる異常が観測された。8 GPa まで電気抵抗は下がり続け、高圧の極限では UTeS と同様の半金属的強磁性体に移り変わると考えられる[6]。この物質では巨大磁気抵抗も観測されており、次年度以降、実験を発展させて行きたいと考えている。

[1] “Heavy Fermion Superconductivity with the Strong Pauli Paramagnetic Effect on NpPd_5Al_2 ”, D. Aoki, Y. Haga, T.D. Matsuda, N. Tateiwa, S. Ikeda, Y. Homma, H. Sakai, Y. Shiokawa, E. Yamamoto, A. Nakamura, R. Settai and Y. Onuki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **77 Suppl. A** (2008) 159-164.

[2] “ ^{27}Al NMR Evidence for the Strong-Coupling d -Wave Superconductivity in NpPd_5Al_2 ”, H. Chudo, H. Sakai, Y. Tokunaga, S. Kambe, D. Aoki, Y. Homma, Y. Shiokawa, Y. Haga, S. Ikeda, T.D. Matsuda, Y. Onuki and H. Yasuoka, *J. Phys. Soc. Jpn.* **77** (2008) 083702-1-4.

[3] “Crystal Structure and Magnetic Properties of the new Ternary Actinide Compounds AnPd_5Al_2 (An = U, Np)”, Y. Haga, D. Aoki, Y. Homma, S. Ikeda, T.D. Matsuda, E. Yamamoto, H. Sakai, N. Tateiwa, N.D. Dung, A. Nakamura, Y. Shiokawa and Y. Onuki, *J. Alloys. Compds.* **464** (2008) 47-50.

[4] “ ^{31}P -NMR Study of the Neptunium-Based Filled-Skutterudite $\text{NpFe}_4\text{P}_{12}$ ”, Y. Tokunaga, D. Aoki, Y. Homma, H. Sakai, H. Chudo, S. Kambe, T.D. Matsuda, S. Ikeda, E. Yamamoto, A. Nakamura, Y. Haga, Y. Shiokawa, Y. Onuki and H. Yasuoka, *J. Phys. Soc. Jpn.* **77 Suppl. A** (2008) 211-213.

[5] “Pressure Effect on Ferromagnet UTeS”, S. Ikeda, H. Sakai, T.D. Matsuda, N. Tateiwa, D. Aoki, Y. Homma, A. Nakamura, E. Yamamoto, Y. Shiokawa, M. Hedo, Y. Uwatoko, Y. Haga and Y. Onuki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **77 Suppl. A** (2008) 359-361.

[6] “Pressure Effect on Paramagnet β -US₂”, S. Ikeda, H. Sakai, T.D. Matsuda, N. Tateiwa, A. Nakamura, E. Yamamoto, D. Aoki, Y. Homma, Y. Shiokawa, M. Hedo, Y. Uwatoko, Y. Haga and Y. Onuki, *Physica B: Condensed Matter* **403** (2008) 893–894.

メスバウアー分光による強相関物質の研究 (I I)

東北大・金研 本間佳哉, 小無健司, JAEA 中田正美, 逢坂正彦, 赤堀光雄, 中村彰夫, 芳賀芳範
フランス原子力庁 青木大, 阪大・基礎工 那須三郎

1. はじめに

我々は、平成15年度からネプツニウム化合物の物性研究に取り組んできた。5f 電子の軌道の自由度が関与する多段の磁気転移が NpTgGa_5 において観測された。 NpRhGa_5 や NpNiGa_5 では中性子回折によりその磁気構造を解明するに至ったが、 NpFeGa_5 では Fe の磁気モーメントの振る舞いやスピン構造の再配列に関して解明すべき点が残されていた。そのような状況の中で RI に関する法令の改正があり、中性子回折実験のために Np 試料を移送することが難しくなった。そこで、我々は金研・大洗センター・アクチノイド元素実験棟 (Ac 棟) において、Np-237 メスバウアー分光を立ち上げ、Np 化合物の磁気転移や電子状態を評価することを計画した。メスバウアー分光は、既に JAEA の神戸らが Ac 棟において進めていた NMR と相補的な微視的プローブであるが、磁性を担う Np の原子核を直接観測できるメリットがあるため Np 磁性化合物の評価には有効であることが期待された。

2. Np-237 メスバウアー分光

ドイツ・マインツ大学より40年前に使用していた Am-5%Th 合金線源の譲渡を受けたが、図1に示すようにブロードな吸収スペクトルとなり、Np-237 メスバウアー分光には自前での Am-241 線源の製造が不可欠となった。カップリング還元法 (CR 法) により少量の Am-241 (37MBq) 酸化物と Pd 金属による合金化を試みた (CR 法による合金生成は、前年度 UO_2 と Pd で確認・報告済み)。半導体検出器の利用により僅かな Am-241 の発光から共鳴スペクトルを得ることが出来たが、 AmO_2 同様の Np^{4+} と Np^{5+} のピークに分裂しており、還元が不十分であったと考えられる。平成21年度には数百~1ギガベクレルのマクロ量の Am-241 を用いて、合金線源の製造を再度試みる予定である。

Pu 酸化物を長期保存して Am が生成した (Pu-9%Am) O_2 の発光メスバウアー分光も測定した。スペクトルはアルファ壊変の反跳後に宿主内にトラップされた Am の化学状態を反映しており、今後、酸化物燃料の結合状態の評価に利用していく計画である。

3. Fe-57 メスバウアー分光

前年度から行ってきた NpFeGa_5 に加え、強磁性 ($T_c=23\text{K}$) を示すスクッテルダイト化合物 $\text{NpFe}_4\text{P}_{12}$ の Fe-57 メスバウアー分光を測定した。温度に殆ど依存しない $QS=0.4\text{mm/s}$ の四極子分裂が観測され、さらに T_c 以下では内部磁場によりひた非対称のスペクトルとなった。電場勾配の主軸と磁気モーメントの向きの偏りによらずのものであるが、4.6K でも 1T 程度であり、磁気モーメントは Fe ではなく Np が担っていると考えられる。

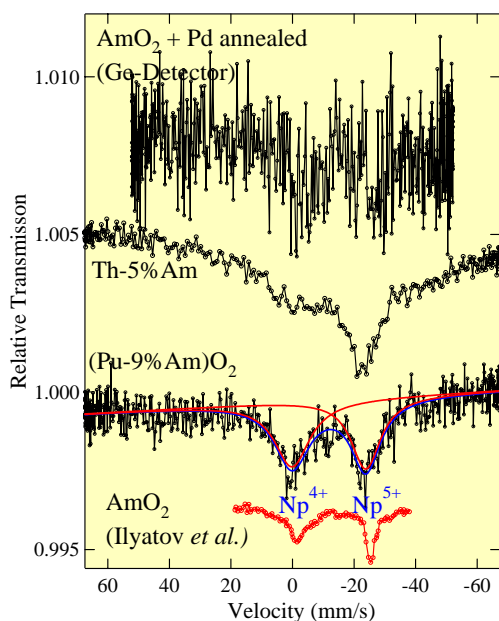


図2. 核種 Am 線源の Np-237 発光メスバウアー分光 (吸収体 = NpO_2)

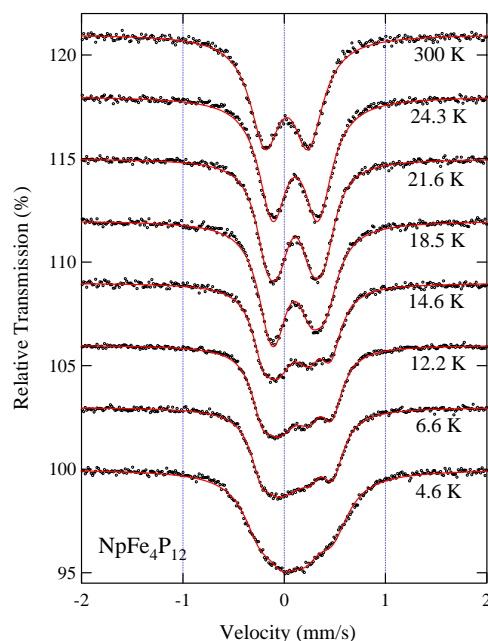


図1. $\text{NpFe}_4\text{P}_{12}$ の Fe-57 メスバウアー分光

ウラン電池に使用するウラン錯体（III価、V価）と隔膜に関する研究

東北大金研 山村 朝雄、大田 卓、白崎 謙次、李 徳新、塩川 佳伸

[目的] 非プロトン性溶媒においてウランの二組の酸化還元対が高速反応であることを利用し、風力発電等の出力平滑化のための二次電池を提案し研究している[1,2]。負極活物質の充電状態であるウラン III 価錯体は、ピアソンの HSAB (Hard and Soft Acids and Bases) 理論では分類されていない。しかし、ウラン III 価錯体には多数の非ウェルナー型錯体 (有機金属錯体) が知られており、ウラン III 価化学の本質的特徴がウラン III 価イオンの軟らかさにあることを示唆している。ウランの III 価～VI 価全てに対して錯形成する配位子は、硬軟の両方の金属イオンに配位結合する必要がある。

置換マロンアミド誘導体は、抽出剤として広範囲に研究され、軽アクチノイドの VI 価、IV 価や希土類、アメリシウム III 価と安定錯体をつくり、核燃料再処理として開発されている DIAMEX 法の有力な抽出剤である。置換マロンアミドのうち *N,N,N,N*-テトラメチルマロンアミド (tmma) 配位子 (Fig. 1) のウラン III 価錯体 ($U(tmma)_4(BPh_4)_3$) の調製法が知られている。我々は $U(tmma)_4(BPh_4)_3$ の *N,N*-ジメチルホルムアミド中での電気化学的検討を行い、U(III)/U(IV)酸化還元電位が過塩素酸塩のそれとほぼ同じで、溶媒分子が tmma 配位子とウラン III 価イオンに対して競争的であることを示唆する結果を得た[3]。

本研究では、溶媒中においてウラン III 価に対する安定な配位を目的として、ウランと希土類の tmma 錯体において、結晶構造を決定し、比較、検討を行った。

[成果] ウラン III 価の簡便な調製法を用いて、tmma を配位子としたウランと希土類 (La, Eu, Gd) の III 価錯体を調製し、単結晶構造解析を行った (Fig. 2)。それぞれの金属中心に対して tmma 配位子が 4 つ配位しており、酸素原子が八配位した square antiprism の配位構造を取っている (Fig. 3)。M-O の平均結合距離は、希土類に対してはイオン半径の増大により、長くなっているが、ウランは希土類のイオン半径に対する M-O 距離の直線からはずれており、希土類より結合が強いと考えられる。また、tmma の C=O の平均結合距離は希土類ではすべて同じ程度であるのに対し、ウランでは希土類より長くなっている。U-O の結合が強いことにより、C=O の結合が弱くなっていることを示唆する (Fig. 4)。

[1] 塩川佳伸, 山村朝雄, 青木大, 本間佳哉, 大貫惇睦, ウラン・ネプツニウムの新しい金属調製法を端緒としたアクチノイド科学への新展開. 日本原子力学会誌, 49 (2007) 755-761.

[2] T. Yamamura, K. Shirasaki, H. Sato, Y. Nakamura, H. Tomiyasu, I. Satoh, Y. Shiokawa, *J. Phys. Chem. C*, **111** (2007) 18812-18820.

[3] T. Yamamura, K. Shirasaki, D. X. Li, Y. Shiokawa, *J. Alloys Compds.*, 418 (2006) 139.

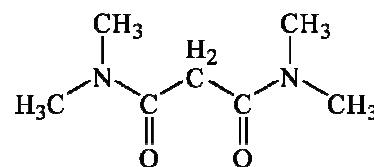


Fig. 1 *N,N,N,N*-テトラメチルマロンアミド (tmma) 配位子

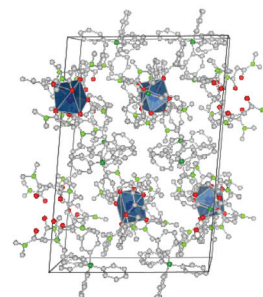


Fig. 2 $U(tmma)_4(BPh_4)_3$ の結晶構造
crystal data : 123 K, Monoclinic $P2_1/a$,
 $R1 = 0.0617$

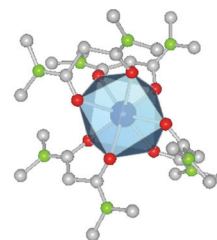


Fig. 3 $U(tmma)_4(BPh_4)_3$ のウラン第一配位圏

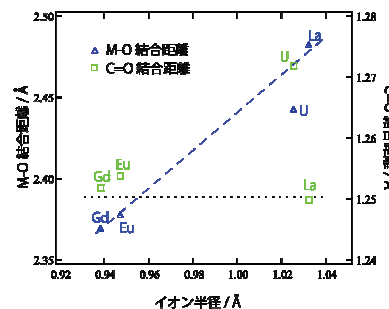


Fig. 4 $M(tmma)_4(BPh_4)_3$ (M ; U, La, Eu, Gd) の金属イオン半径に対する M-O と C=O の平均結合距離

核燃料リサイクルへの超臨界水利用技術の応用に関する研究

東北大金研 山村 朝雄、白崎 謙次、森 知紀、杉山 亘、佐藤 伊佐務

[目的]

アクチノイド二酸化物 (AnO_2) のうち、 UO_2 は軽水炉燃料として利用され、 UO_2 と PuO_2 の物理的混合物は混合酸化物 (MOX) 燃料として利用される。 AnO_2 のうち UO_2 は、 UO_3 または U_3O_8 を 800°C から 1100°C にて水素還元することにより調製される。酸化物の顆粒の平均粒径は $100\ \mu\text{m}$ から $400\ \mu\text{m}$ 程度である[1]。従来、共沈法、溶媒蒸発法により製造されるが、酸化物結晶の大きさの調整を行う工程 (粉碎、造粒) が必要であるという欠点がある。超臨界エタノールを利用した方法として、硝酸ウランを出発物質とする水やエタノールを用いたウラン酸化物 UO_2 、 U_3O_8 の超臨界水熱合成による調製の報告がある[2]。

ピューレックス法再処理が抱える放射性廃棄物の発生、経済性、核拡散抵抗性等の問題への対処のため、超臨界水のプロセス用媒体としての特異な性質を利用すれば、MOX粉末製造において酸化状態や粒径の制御、セシウム等核燃料生成物との群分離が可能であるとともに、アクチノイド炭酸錯体生成による核拡散抵抗性の高い再処理技術と組み合わせることができる。

そこで、我々は、酸化物燃料製造プロセスについて、ウランおよび、プルトニウムの代替としてのネプツニウムについて扱い、超臨界水処理法による水溶液からのウランやネプツニウムの酸化物微粉末の組成・粒径の高度調整法の開発を進めている。

本研究では、ウラン水溶液から出発する超臨界水熱合成についてオートクレーブを用いて行い、生成する UO_2 の結晶形、結晶サイズの制御(A)、低温 ($\sim 100^\circ\text{C}$) でも進行する水熱合成プロセス(B)について研究を行った[3]。さらに、より簡素で極少量の廃棄物しか発生しない流通式超臨界水熱合成装置を用いて UO_2 の調製(C)を行い、その形状と結晶サイズについて検討した。

[成果]

以下に示す方法で実験を行った[3]。ウラン炭酸水溶液および添加剤をオートクレーブに投入し、30分間設定温度 450°C に保持した。その後室温まで急速冷却した(A)。ウラン(IV)溶液を用い、(A)の場合と同様の実験を $390\sim 100^\circ\text{C}$ で行った(B)。流通式超臨界水熱合成装置を用い、 390°C の超臨界水にウラン(IV)溶液を混合することで反応を行った(C)。各実験で固相と液相を回収した。固相の XRD および SEM による分析や観察を行った。

図に示したように、添加剤の種類を変えることで所定の結晶形、結晶サイズの UO_2 の結晶を得た(A)。 UO_2 の結晶形、結晶サイズの制御が可能になった。ウラン(IV)溶液を原料として用いると、 100°C 以上で、 $U(IV)\rightarrow UO_2$ の反応が進行することが明らかになった(B)。(B)の条件を基にして、流通式超臨界水熱合成装置による UO_2 の調製に成功した(C)。この結果は、燃料製造のための大量合成の可能性を示唆している。

[謝辞]

大洗センターの鳴井実助手、渡部信技術専門職員、山崎正徳技術専門職員、小川豊技術補佐員、畠山賢彦助教には大変お世話になりました。ここに謝意を表します。

[1] 「高度燃料技術」研究専門委員会編、最新核燃料工学-高度化の現状と展望-、日本原子力学会、2001年、p. 442。

[2] M. Sato, et al., J. Nucl. Sci. Technol., 40 (2003) 343.

[3] 山村朝雄、白崎謙次、佐藤伊佐務、富安博、森知紀、PCT/2009/055458.

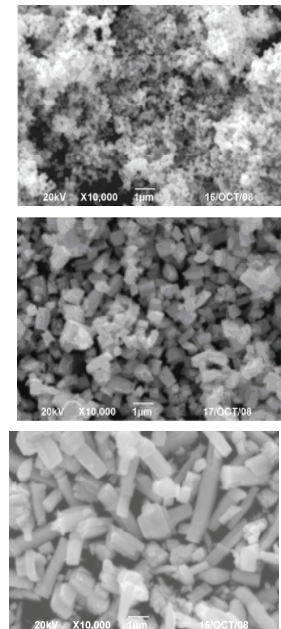


図 種々の結晶形の UO_2 の SEM 像：球状 (上)、立方体 (中)、直方体 (下)

課題名：未知中性粒子の探索実験 (F41-3)

研究代表者	三浦 太一	高エネルギー加速器研究機構 大強度陽子加速器計画推進部 (J-PARC)
研究協力者	鈴木 吉光	東北大 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 安全管理部
	渡部 信	東北大 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 業務部 アクチノイドラボ
	菅井 勲	高エネルギー加速器研究機構 加速器研究施設
	川上 宏金	高エネルギー加速器研究機構 素粒子原子核研究所

共同利用研究経過：

陽電子線 (今回は ^{88}Sr) を重い原子 (今回は Th) に照射することで生成されるといわれている「未知中性粒子」を探索する実験は、つくばの高エネルギー加速器研究機構 (KEK) で準備が進んでいる。その標的の Th 箔を東北大 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のお世話で取得しようというのが、この共同利用実験を申請した目的である。

KEK では、既存のソレノイドコイルを利用した電子陽電子対を同時計測法で時間スペクトル上に観測するための分析装置を構築し、最近放射線管理区域の新しい実験室に搬入した。このソレノイドコイルは直径 350、長さ 1500 の大きさがあり、その左右中心で、軸方向の中心から下 20 ミリ外れた位置に鉛容器中に入れた ^{88}Sr 線源を設置し、ソレノイド軸の中心に置いた Th 標的を照射し、生成する「未知中性粒子」が崩壊するとき 330 keV のエネルギーで反対方向に放出される電子陽電子対を 2 組のスリットで運動量分析し、中心から 497 ミリの位置に置いた 2 台の検出器で検出し、同時計数法で時間スペクトルを測定し、ピークを検出しようという実験である。検出器としては、最初は Si SSD を想定していたが、もう少し S/N のよいデータを得るように上下 2 分割したプラスチックシンチレータによりパーバ散乱に起因する同時計数バックグラウンドを抑制しようとその系を製作している。これが思惑通り威力を発揮すればよりきれいなデータが得られると期待している。

管理区域に移動したばかりで、これからそのセットアップをすることになっているが、これまでの磁場測定では新しく製作した空芯コイルは予定通りに磁場の一様性を改善できる見込みである。再度磁場測定をしてそれを確認したら、 ^{60}Co によるバックグラウンド測定、 ^{22}Na による模擬実験を行って実験の目処を付ける予定である。

従って、来年度から共同利用を行って Th 標的を入手し予備実験を開始したい。

常磁性体 NpCd_{11} の巨大磁気抵抗効果の研究

大阪大学・大学院理学研究科

撰待 力生

アクチナイド化合物がもつ $5f$ 電子は、結晶構造や、 $5f$ 電子間あるいは $5f$ 電子と他の伝導電子の相互作用、混成効果により様々な磁性や電子物性を示す。多くのネプツニウム化合物が磁気秩序を示す中で、本研究でとりあげた NpCd_{11} は、低温まで磁気秩序を示さない常磁性体の 1 つである。 NpCd_{11} の結晶構造は、 BaHg_{11} 型立方晶 ($\text{Pm}3\text{m}$) の結晶構造で、格子定数は 9.288\AA である。 Np は単位胞に 1 つあり、そのまわりを Cd からなるかごで囲われており、 Np - Np 間の距離が長いことに特徴がある。したがって、 Np の $5f$ 電子間のオーバーラップは小さく、 $5f$ 電子は局在的な性質を持つものと期待される。

測定に用いた単結晶の NpCd_{11} は、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において、 Cd の自己フラックス法により育成された。得られた単結晶の残留抵抗は $\rho_0 = 0.0049 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ と非常に小さく、また残留抵抗比は $\text{RRR}(=\rho_{\text{RT}}/\rho_0) = 1200$ に達する非常に良質なものである。本研究では、 NpCd_{11} のフェルミ面や Np の $5f$ 電子の性質を調べるために、磁気抵抗の実験をおこなった。

図 1 (a) に電流 J を $\langle 110 \rangle$ 方向に流し、磁場 H を (110) 面内で $\langle 100 \rangle$ から $\langle 111 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ へと傾けていったときの横磁気抵抗の角度依存性の様子を示す。横磁気抵抗は、 $\langle 111 \rangle$ と $\langle 110 \rangle$ で最小値を示している。次に、図 1 (b) に横磁気抵抗の磁場依存性の様子を示す。図から明らかなように、 $\langle 111 \rangle$ と $\langle 110 \rangle$ 方向では横磁気抵抗は飽和傾向を示しているのに対し、 $\langle 100 \rangle$ から 9 度傾いた方向では、増大の傾向を示し、15 T では $\Delta\rho/\rho_0$ が 200 近くに達している。

NpCd_{11} の $5f$ 電子が局在しているとする、 Np の電子配置は $\text{Np}^{3+} (5f^4)$ となり、価電子としては Np の $6d^1 7s^2$ 、 Cd の $4d^{10} 5s^2$ となり、 NpCd_{11} の単位胞には奇数個の価電子がある。したがって、 NpCd_{11} は uncompensated metal と考えられる。uncompensated metal の場合、フェルミ面が閉じていれば、横磁気抵抗は飽和の傾向を示す。しかし、フェルミ面が多重連結し、オープン軌道がある場合には、磁場方向や電流方向により、磁気抵抗は増大することになる。今回の実験から、 NpCd_{11} は $\langle 110 \rangle$ 方向にオープン軌道を持つフェルミ面をもつことが明らかとなった。

これらの成果は、他の磁気測定、dHvA 効果の実験等とあわせ、Y. Homma *et al.*, "Magnetic and Fermi surface Properties of NpCd_{11} ": として JPSJ に投稿中である。

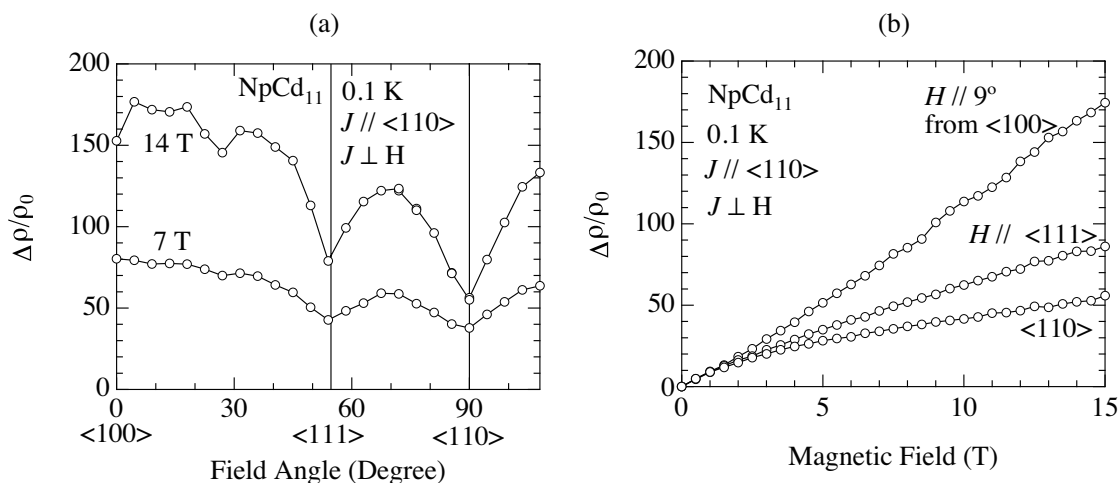


図 1: NpCd_{11} の磁気抵抗の (a) 角度依存性と (b) 磁場依存性

アクチノイド及びランタノイドの水溶液化学
 (東北大・金研) 佐藤伊佐務、原光雄
 (静岡大・理) 宮下直、矢永誠人、菅沼英夫、奥野健二

【はじめに】

マイナーアクチノイドと呼ばれる Am, Cm 等には長半減期を有する核種があり、現行の TBP を使用する PUREX 法ではこれらが高レベル廃棄物として地層処分されることになるので、その分離・消滅処理が検討されている。このうちとくに 3 価アクチノイド(An)は、核分裂生成物中に多量に含まれている 3 価ランタノイド(Ln)と化学的性質が類似するので、これらの分離法が研究されている。

分離法としてイオン交換法、溶媒抽出法等があるが、我々はジオクチルアミンと二硫化炭素からジオクチルアンモニウムジオクチルジチオカーバメイト(DOA⁺・DODTC⁻)を合成し、抽出剤として使用した。



この抽出剤では、金属イオン(M)とは右図のようにジオクチルジチオカーバメイト (DODTC) が解離して抽出剤として働き、4 員環のキレートをつくり、3 価 An 及び Ln とは M(DODTC)₃ の化学形で抽出する。これを用いた抽出で、²⁴¹Am と ¹⁵²Eu 分離係数(D_{Am}/D_{Eu})が 2.8×10⁴ となり、今まで報告されていた一番大きな値である Zhu¹⁾らの値 (5.9×10³) を大きく上回った。さらに、数種類の試薬を混合して合成される生成物をそのまま抽出剤として用いる *in situ* 抽出剤生成法を応用することによって、分離係数が 3.2×10⁴ という大きな値を得た。

今回は、DODTC のオクチル基を置き換えたときの抽出挙動の変化をみるため、置換基としてブチル基、フェニル基等が窒素原子と結合した 15 種類の二級アミンと二硫化炭素を反応させて抽出剤を調製し、*in situ* 抽出剤生成法で実験を行った。

【研究成果】

15 種類の合成した抽出剤のうち、大きな分離係数を示した次の 5 種類のアミン、すなわち DBuA (Di-*n*-butylamine)、DOA (Di-*n*-octylamine)、BEEA (Bis(2-ethoxyethyl)amine)、BPEA (Bis(2-isopropoxyethyl)amine)、及び TBEA (N,N,N',N'-Tetrabutyl-diethylenetriamine) を使用して合成した生成物を、*in situ* 抽出剤生成法として使用して得られた抽出結果を表 1 に示す。

表 1 各種アミンを使用して合成された抽出剤の分離係数と分離使用可能範囲

アミン	分離係数	pH _{eq}	[H ⁺] _{init}
DBuA	1.0 × 10 ⁴ (pH _{eq} = 6.6)	6.25 ~ 6.6	0.25 ~ 0.28
DOA	3.2 × 10 ⁴ (pH _{eq} = 6.25)	6.0 ~ 6.25	0.20 ~ 0.25
BEEA	4.5 × 10 ⁴ (pH _{eq} = 6.6)	6.4 ~ 6.6	0.28 ~ 0.29
BPEA	5.5 × 10 ⁴ (pH _{eq} = 6.4)	6.2 ~ 6.4	0.24 ~ 0.28
TBEA	1.4 × 10 ⁴ (pH _{eq} = 6.9)	6.9 ~ 7.0	0.16 ~ 0.21

ここで、pH_{eq} は抽出平衡後の水溶液中の pH、[H⁺]_{init} は抽出前の水溶液中の水素イオン濃度、及び分離係数はカッコ内の条件における最大値を示す。これら 5 種類の抽出剤のいずれも Am と Eu の分離係数が 10⁴ 以上となった。

1) Y. Zhu, J. Chen, R. Jiao, *Solvent Extr. Ion Exch.*, **14** (1996) 61.

VI. 関連論文

論文リスト(2008年)

No.	代表者	著者	題 目	雑誌、プロシーディング名	巻、号、(年)、ページ	分類
1	木村 晃彦	Tanigawa, H., Hirose, T., Shiba, K.,	Technical issues of reduced activation ferritic/martensitic steels for fabrication of ITER test blanket modules	Fusion Engineering and Design	83 (2008) 1471-1476	1-①
2	木村 晃彦	Kimura, A., Cho, H., Toda, N., Kasada, R., Kishimoto, H., Iwata, N., Ukai,	Super ODS steels R&D for cladding of highly efficient nuclear plants	Societe Francaise d'Energie Nucleaire - International Congress on Advances in Nuclear Power Plants - ICAPP 2007, "The Nuclear Renaissance at Work"	4 (2008) 2148-2154	1-①
3	S. Maruthamuthu	S. Maruthamuthu, N. Muthukumar, M. Na	Role of air microbes on atmospheric corrosion	CURRENT SCIENCE	94(3) (2008) 359-363	該当なし
4	土屋文	B. Tsuchiya, A. Moroño, E. R. Hodgeson, S.	Change in hydrogen absorption characteristic of SrCe _{0.95} Yb _{0.05} O _{3-δ} by electron beam modification	Solid State Ionics	179 (2008) 909-912	1-⑦
5	土屋文	B. Tsuchiya, Y. Konishi, S. Nagata and T.	A Water Splitting Model of Coulomb Interactions of Its Dipole with Surface Defects of Hydrogen Implanted Perovskite Oxide	Solid State Ionics	179 (2008) 1128-1132	1-⑦
6	土屋文	K. Morita, B. Tsuchiya, S.	Protonic Conduction Processes of Gamma-ray Irradiated Perfluorosulfonic Acid Membranes	Solid State Ionics	179 (2008) 793-796	1-⑦
7	土屋文	J. -H. Kim, B. Tsuchiya, S.	Effects of Ion Beam Surface Modification on Proton Conductivity of BaCe _{0.9} Y _{0.1} O _{3-δ}	Solid State Ionics	179 (2008) 1182-1186	1-⑦
8	土屋文	B. Tsuchiya, R. Yasuda, M. Teshigawara, K.	Isotope Effects in Thermal Neutron Transmission and Backscattering Processes for α -phase Zirconium Hydrides and Deuterides	J. Nucl. Mater.	376 (2008) 60-65	1-⑧
9	土屋文	B. Tsuchiya, M. Oku, R. Sahara, S. Nagata, T.	Electronic Structure of the Bulk of Titanium Hydrides Fractured in Ultrahigh Vacuum by XPS Surface Analysis	Journal of Surface Analysis	Vol. 14, No. 4 (2008) 424-427	1-⑧
10	土屋文	K. Konashi, B. Tsuchiya, M. Narui, S.	Irradiation of hydride fuels in JMTR	The Nuclear Renaissance at Work	4 (2008) 2539-2545	1-⑦
11	土屋文	Y. Arita, T. Ogawa, B.	Heat Capacity Measurement and DSC Study of Hafnium Hydrides	J. Therm. Anal. Calorim.	92 (2008) 403-4065	1-⑧
12	福元 謙一	K. Fukumoto, H. Matsui, H. Ohkubo, Z. Tang.	Identification of ultra-fine Ti-rich precipitates in V-Cr-Ti alloys irradiated below 300 ° C by using positron CDB technique	Journal of Nuclear Materials	373, 2008, pp.289-294	1-⑤
13	福元 謙一	K. Fukumoto, M. Narui, H. Matsui, K. Ito,	Development of irradiation capsules in liquid metal environment in Joyo and their application to irradiation creep measurement of vanadium alloys	Journal of Nuclear Science and Technology	45, 2008, pp.171-178	1-⑤
14	福元 謙一	K. Fukumoto, M. Narui, H. Matsui, T.	Irradiation Creep Behavior of Vanadium Alloys during Neutron Irradiation in a Liquid Metal Environment	Plasma and Fusion Research	3, 2008, 017 pp.1-7	1-⑤

15	福元 謙一	福元謙一, 松井秀樹	ナトリウム雰囲気下クリープ変形によるバナジウム合金中の析出挙動	まてりあ	47巻, 12号, 2008, p611- p611	1-⑤
16	長谷川 晃	T. Tanno, A. Hasegawa, M.	Precipitation of Solid Transmutation Elements in Irradiated Tungsten Alloys	Mater. Trans.	49, 10(2008) 2259-2264	1-⑥
17	義家敏正	Q. Xu, T. Yoshiie and K.	Formation of Cu precipitates and vacancy clusters in neutron-irradiated Fe-Cu alloys	Phil. Mag. Lett.	88 (2008) 353-362.	1-⑦
18	矢野豊彦	吉田克己、吉田奈央、橋本和明、戸田善起、金井啓	長寿命放射性ヨウ素の回収と核変換用焼結体の作製.	無機マテリアル	15, 71-78 (2008).	1-⑧
19	Foyohiko Yan	Saishun Yamazaki, Masamitsu Imai	Recovery of Neutron-Induced Damage of SiC by Thermal Annealing up to 1400oC	Progress in Nuclear Energy,	50 [2-6], 601-605 (March, 2008).	1-③
20	車田 亮	T. Oku, A. Kurumada, Y. Imamura, M.	Effects of ion irradiation on the hardness properties of graphites and C/C composites by indentation tests	J. of Nuclear Materials	381(2008) 92-97	1-④
21	李徳新	L. Jia, J. R. Sun, F. W. Wang,	Volume dependence of the magnetic coupling in LaFe13-xSix based compounds, .	Appl. Phys. Lett.	92 (2008) 101904 1-3	2-①
22	鎌田康寛	Y. Kamada, S. Takahashi, H. Kikuchi, S.	Effect of pre-deformation on the precipitation process and magnetic properties of Fe-Cu model alloys	J. Mater. Sci	44 (2009) 949-953	1-①
23	鎌田康寛	Y. Kamada, S. Chigusa, T. Ohtani, H.	Copper precipitation process of thermally aged Fe-Cu alloys evaluated by EMAR method	Proc. of Symposium on Ultrasonic Electronics	29 (2008) 49-50	1-①
24	渡辺英雄	渡辺英雄、山崎和宏、東嶋 彬、長坂琢也、室賀健	YAGレーザー溶射されたV-4Cr-4Ti合金の照射組織に及ぼす溶接後熱処理の効果	Journal of plasma and Fusion Research	84,1 (2008), 46-50	1-⑦
25	渡辺英雄	曾根田直樹、佐藤紘一、渡辺英雄	高エネルギー粒子照射下の照射損傷組織形成	Journal of plasma and Fusion Research	84,6 (2008), 383-394	1-⑦
26	渡辺英雄	渡辺英雄、鱒淵俊児、吉田直亮	HVEM照射による軽水炉圧力容器鋼の欠陥挙動解析	まてりあ	47, 12(2008)	1-⑦
27	渡辺英雄	渡辺英雄、吉田直亮	イオン照射した低放射性V-4Cr-4Ti合金の表面近傍での微細チタン酸化物の形成	まてりあ	47, 12(2008)	1-⑦
28	渡辺英雄	吉田直亮、岩切宏友	タングステンにおける低エネルギーヘリウムイオン照射損傷	まてりあ	47, 12(2008)	1-⑦
29	渡辺英雄	吉田直亮、時谷政行	ミクロスケールのプラズマ・壁相互作用	Journal of plasma and Fusion Research	47, 12(2008)929-936	1-⑦
30	井上 耕治	Z. Tang, T. Toyama, Y. Nagai, K. Inoue	Size-Dependent Momentum Smearing Effect of Positron Annihilation Radiation in Embedded Nano Cu Clusters	J. Phys.: Condens. Matter	20 (2008) 445203-1~5	1-⑧
31	井上 耕治	K. Inoue, F. Yano, A. Nishida, T.	Three dimensional characterization of dopant distribution in polycrystalline silicon by atom probe microscopy	Appl. Phys. Lett.	93 (2008) 133507-1~3	1-⑧

32	井上 耕治	外山健、永井康介、唐政、井上耕治	陽電子量子ドット閉じ込めを利用したFe中Cuナノ析出物の寸法評価法の開発	鉄と鋼	95, 2 (2009) 118-123	1-⑧
33	塚田隆	近藤啓悦、三輪幸夫、大久保成彰、加藤敏行、岡田啓	ひずみ付与下でイオン照射したSUS316Lステンレス鋼の腐食特性	第3回 高崎量子応用研究シンポジウム	2008年10月、高崎シティギャラリー	1-①
34	栗下裕明	H. Kurishita, S. Kobayashi, K. Nakai, T. Ogawa, A. Hasegawa, K.	Development of ultra-fine grained W-(0.25-0.8)wt%TiC and its superior resistance to neutron and 3MeV He-ion irradiations	J. Nucl. Mater	377(2008)34-40	1-⑥
35	栗下裕明	S. Matsuo, S. Matsuo, H. Kurishita, H. Arakawa	Deformability enhancement in ultra-fine grained, Ar-contained W compacts by TiC additions up to 1.1%,	Mater. Sci. Eng.	A492(2008) 475-480	1-⑥
36	芳賀芳範	D. Aoki, Y. Haga, T.D. Matsuda, N.	“Heavy Fermion Superconductivity with the Strong Pauli Paramagnetic Effect on NpPd5Al2”	J. Phys. Soc. Jpn.	77 Suppl. A (2008) 159	2-①
37	芳賀芳範	H. Chudo, H. Sakai, Y. Tokunaga, S.	“27Al NMR Evidence for the Strong-Coupling d-Wave Superconductivity in NpPd5 Al2”	J. Phys. Soc. Jpn.	77 (2008) 083702-1-4.	2-①
38	芳賀芳範	Y. Haga, D. Aoki, Y. Homma, S. Ikeda, T.D. Matsuda, N.	“Crystal Structure and Magnetic Properties of the new Ternary Actinide Compounds AnPd5Al2 (An = U, Np)” ,	J. Alloys. Compds.	464 (2008) 47-50.	2-①
39	芳賀芳範	Y. Tokunaga, D. Aoki, Y. Homma, H. Sakai, H.	“31P-NMR Study of the Neptunium-Based Filled-Skutterudite NpFe4P12” ,	J. Phys. Soc. Jpn.	77 Suppl. A (2008) 211-213.	2-①
40	芳賀芳範	S. Ikeda, H. Sakai, T.D. Matsuda, N.	“Pressure Effect on Ferromagnet UTeS” ,	J. Phys. Soc. Jpn.	77 Suppl. A (2008) 359-361.	2-①
41	芳賀芳範	S. Ikeda, H. Sakai, T.D. Matsuda, N.	“Pressure Effect on Paramagnet β -US2” ,	Physica B: Condensed Matter .	403 (2008) 893-894	2-①
42	永井 康介	木村晃彦、永井康介、藤井克彦、西村裕也、金澤博志	高度解析技術が原子力材料研究に与えたインパクト—最新技術がここまでわかってきた	日本原子力学会誌	50 (10) (2008) 630-634	1-①
43	永井 康介	外山健、土屋直柔、畠山賢彦、永井康介、長谷川敏	原子炉圧力容器鋼中ナノ炭化物の三次元アトムプローブ観察	まてりあ	47 (2008) 610-610	1-①
44	永井 康介	C. Y. Lee, W. N. Kang, Y. Nagai, Z. Tang, T. Toyama, Y. Nagai, K. Inoue,	The Characterization of MgB2 Thin Film by Slow Positron Annihilation Spectroscopy	Journal of the Korean Vacuum Society	17, 2 (2008)160-164	1-⑧
45	永井 康介	Z. Tang, T. Toyama, Y. Nagai, K. Inoue,	Size-Dependent Momentum Smearing Effect of Positron Annihilation Radiation in Embedded Nano Cu Clusters	J. Phys. : Condens. Matter	20 (2008) 445203-1~5	1-⑧
46	永井 康介	K. Inoue, F. Yano, A. Nishida, T.	Three dimensional characterization of dopant distribution in polycrystalline silicon by atom probe microscopy	Appl. Phys. Lett.	93 (2008) 133507-1~3	1-⑧
47	永井 康介	Y. Nishiyama, K. Onizawa, M. Suzuki, J.W.	Effects of neutron-irradiation-induced intergranular phosphorus segregation and hardening on embrittlement in reactor pressure vessel steels	Acta Mater.	56 (2008) 4510-4521	1-①

48	永井 康介	K. Mondal, T. Ohkubo, T. Toyama, Y.	The effect of nanocrystallization and free volume on the room temperature plasticity of Zr-based bulk metallic glasses	Acta Mater.	56 (2008) 5329-5339	1-⑧
49	永井 康介	K. Ito, T. Oka, Y. Kobayashi, Y. Shirai, K. Wada,	Interlaboratory comparison of positron annihilation lifetime measurements for synthetic fused silica and polycarbonate	J. Appl. Phys.	104(2) (2008) 026102	1-⑧
50	長尾 敬介	J.S. Collier, V. Sansom, O. Ishizuka, R.N.	Age of Seychelles-India break-up	Earth and Planetary Science Letter	272 (2008) 264-277	1-⑧
51	長尾 敬介	O. Ishizuka	Volcanic and tectonic framework of the hydrothermal activity of the Izu-Bonin arc	Resource Geology	58 (2008) 206-219	1-⑧
52	長尾 敬介	K.H. Kim, K. Nagao, H. Sumino, T. Tanaka, T. Hayashi, T.	He-Ar and Nd-Sr isotopic compositions of late Pleistocene felsic plutonic back arc basin rocks from Ulleungdo volcanic island, South Korea: implications for the genesis of young plutonic rocks in a back arc basin	Chemical Geology	253 (2008) 180-195	1-⑧
53	長尾 敬介	N. Hirano, A.A.P. Koppers,	Seamounts, knolls and petit spot monogenetic volcanoes on the subducting Pacific Plate	Basin Research	20 (2008) 543-553	1-⑧
54	山村 朝雄	K. Yubuta, A. Nomura, T.	Anomalous behavior of hardness and crystal structure in CeRh ₃ B (x = 0-1) phase.	J. Alloys Compd.	451 (2008) 301-304	1-②
55	山村 朝雄	T. Yamamura, D. Li, M. Kuznietz,	Magnetic ordering in (Th,U)Co ₂ X ₂ (X=Ge, Si) solid solutions. J. Appl. Phys., 103 (2008) 07A916.	J. Appl. Phys.,	103 (2008) 07A916	2-②
56	山村 朝雄	D. X. Li, T. Yamamura, S.	Re-entrant spin-glass behaviour in CeAu ₂ Si ₂ .	J. Alloys Compd.,	451 (2008) 461-463.	1-⑧
57	山村 朝雄	D. Li, S. Nimori, T.	Ac susceptibility studies of the spin freezing behavior in U ₂ CuSi ₃ .	J. Appl. Phys..	103 (2008) 07A916.	2-①
58	山村 朝雄	M. Kuznietz, D. Li, T. Yamamura,	Magnetic properties of the comopunds ThCo ₂ Ge ₂ and ThCo ₂ Si ₂ .	J. Magn. Mater.,	320 (2008) 2402-2405	2-②
59	山村 朝雄	A. V. Andreev, E. A. Tereshina,	, Magnetic properties of U ₂ (Fe _{1-x} Ni _x) _{13.6} Si _{3.4} single crystals.	J. Alloys Compd.,	461 (2008) 6-8	2-②
60	山村 朝雄	A. V. Andreev, E. A. Tereshina,	Magnetic properties of U ₂ Co _{17-x} Si _x single crystals.	J. Alloys Compd.	450 (2008) 51-57.	2-②
61	山村 朝雄	T. Yamamura, K. Shirasaki, S. Ohta, D. X. Li, Y. Homma, I. Satoh	Crystal structure, magnetism and electrochemistry of diamide complexes of Europium(II), 25th Rare Earth Research Conference (RERC08),	25th Rare Earth Research Conference (RERC08), The University of Alabama, Tuscaloosa, AL,	June 22-26, 2008,	2-①
62	山村 朝雄	T. Yamamura, K. Sato, S. Ohta, D. X. Li, K. Shirasaki, I.	Studies on structure, spectroscopy and magnetism of M(tm ₄) ₄ (BPh ₄) ₃ (M= Gd, U) Plutonium Futures :	he Science conference 2008, Dijon, France, 7-11, July, 2008,	Dijon, France, 7-11, July, 2008,	2-②
63	山村 朝雄	K. Shirasaki, T. Yamamura, I. Satoh, Y.	Catalytic reduction of U(III) from U(IV) by electrolysis in aprotic solution Plutonium Futures :	The Science conference 2008,	2008; Dijon, France, 2008.	2-③

64	山村 朝雄	K. Shirasaki, T. Yamamura, Y. Homma, S. Ohta, D. X. Li, I.	Magnetism and Mossbauer Spectroscopy of Europium(II) β -diketone complexes, 25th Rare Earth Research Conference (RERC08), .	25th Rare Earth Research Conference (RERC08), The University of Alabama, Tuscaloosa, AL, .	June 22-26, 2008,	2-①
65	山村 朝雄	S. Ohta, T. Yamamura, K. Shirasaki, D. X. Li, I. Satoh, Y.	Uranium(V) complexes with 5f1 configuration and their functional chemistry, Plutonium Futures : The Science conference 2008,	25th Rare Earth Research Conference (RERC08), The University of Alabama, Tuscaloosa, AL,	June 22-26, 2008	2-②
66	山村 朝雄	S. Ohta, T. Yamamura, D. X. Li, T. Komatsubara, I.	. Magnetic Properties of Ce ₂ CuSi ₃ and Nd ₂ CuSi ₃ Single Crystals, 25th Rare Earth Research Conference (RERC08), , .	25th Rare Earth Research Conference (RERC08), The University of Alabama, Tuscaloosa, AL,	June 22-26, 2008	1-⑧
67	山村 朝雄	Y. Izumizaki, K. C. Park, T. Yamamura, H. Tomiyasu, R.	Exothermic hydrogen production system in supercritical water from biomass and usual domestic wastes with an exploitation of RuO ₂ catalyst.	Prog. Nucl. Energy, .	50 (2008) 438-442.	2-③
68	佐藤伊佐務	S. Miyashita, I. Satoh, M. Yanaga, K. Okuno, H.	Separation of Am(III) from Eu(III) by extraction based on in situ extractant formation of dithiocarbamate derivatives	Progress in Nuclear Energy	50(2008)499-503	2-③
69	佐藤伊佐務	T. Mori, Y. Ishii, K. Hayashi, M. Yanaga, I.	Separation of Am(III) from Eu(III) using an improved system of flow-counterbalanced capillary electrophoresis	Chemistry Letters	37(1) (2008) 48-49	2-③
70	香山晃	谷川博康、室賀健夫、檜木達也	核融合炉ブランケット構造材料開発～低放射化フェライト鋼、バナジウム合金、炭化珪素複合材料～、	まてりあ	第47巻第9号 (2008) p. 464-468	1-③、①、⑤
71	香山晃		ガス冷却炉用セラミック構造材料の開発、	まてりあ	第47巻第9号 (2008) p. 455-458	1-③
72	香山晃	K. Abe, A. Kohyama, S. Tanaka, C. Nambu, T. Terai	Development of advanced blanket performance under irradiation and system integration through JUPITER-II project,	Fusion Engineering and Design	83 (7-9), (2008) pp. 842-849	

注:分類基準

1. 材料研究 ①鉄鋼、②金属ガラス、③SiC複合材、④炭素、⑤バナジウム、⑥高融点金属、⑦照射基礎、⑧その他
2. アクチノイド研究 ①アクチノイド合金固体物性、②核燃料物性、③溶液化学、④その他

VII. 資料

平成20年度共同利用研究募集要項

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

1. 募集事項：

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（以下「当センター」と略記する）は、大学を中心とする研究者による原子力材料・アクチノイド元素に関する研究を推進・支援して行くとともに、関係各機関との連携より当該分野における研究基盤の強化を目指しております。平成20年度においても原子力材料・アクチノイド元素に関する研究課題を所内外から広く公募いたします。

例年通り9月6～7日に大洗研究会を開催し原子炉照射を利用した材料研究やアクチノイド関連研究の、最近の進展および今後の計画などを中心に議論致しました。この議論を基に、照射マトリックス（別紙1）を立案しましたので、照射関連研究に関してはこれを参考に応募下さい。またアクチノイド元素に関する研究については、日本原子力研究開発機構（JAEA）、京都大学原子炉実験所とともに国内研究者間のネットワーク化を進めています。核燃料関連研究、核燃料サイクル関連研究のみならず基礎的なアクチノイド合金固体物性研究も推進・支援しておりますので応募下さい。

2. 申請資格：

国・公・私立大学及び国立研究機関（独立行政法人及び特殊法人を含む。以下同じ）等の教員及び研究者です。研究組織には、技術一般職員及び大学院生を含めることができます。なお、民間企業や法人等と共同で実施する研究に関しては、その旨明記してください。なお、旅費の支給は原則として国立大学法人、大学共同利用機関法人、公立、私立の大学の研究者（大学院生を含む）のみを対象とします。

3. 申請方法：所定の申請書（様式1）に必要事項を記載し、郵送及びメール添付にてお送り下さい。

尚、郵送いただく書類には研究代表者及び所属長の捺印をお願いします。

申請書の課題は下記の分類に沿って記入して下さい。

1. 材料研究

- ①金属ガラス関連研、②SiC 複合材料関連研究、③炭素材料関連研究、④バナジウム関連研究
- ⑤高融点金属関連研究、⑥照射基礎技術関連研究、⑦その他、⑧鉄鋼材料

2. アクチノイド研究

- ①アクチノイド合金固体物性研究、②核燃料物性研究、③溶液化学研究、④その他

期限：平成19年12月20日（木）必着。

申請書提出先：〒311-1313、茨城県東茨城郡大洗町成田町

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 業務部

Tel:029-267-3181 Fax:029-267-4947 E-mail:kyodo@imr.tohoku.ac.jp

注1) 本要項は、当センターのホームページ (<http://www.imr-oarai.jp>) に掲載されております
また申請書（様式1）をここからダウンロードできます。

4. 照射条件

これまで全国大学共同利用施設として、日本原子力研究開発機構（JAEA）大洗研究開発センターに設置されている材料試験炉（JMTR）、高速実験炉「常陽」（JOYO）を利用した研究の場を提供して来ました。平成17年度よりこれらに加えてJAEA東海研究開発センターのJRR-3及びベルギー・モル研究所に設置されている原子炉（BR2）を利用した研究課題の募集を行って来ました。JMTRに関しては運転休止中なので過年度に照射した試料の照射後試験のみとなります。またJOYOについては、定期検査中のため現状では照射計画はありませんが、21年度に向けての照射の要望があれば受付け致します。

5. 試験設備：

当センターの共同利用研究に使用できる試験設備は別紙2の「共同利用研究設備一覧」の通りです。尚、三次元アトムプローブ(局所電極型)は、材料照射工学研究部門の管理となっております。詳しくは業務部・畠山(hatake@imr.tohoku.ac.jp)にお問い合わせ下さい。また、アクチノイド物性測定機器(磁化測定装置、ドハース・ファン・アルフェン効果測定装置、核磁気共鳴測定装置)はJAEAの所管となっているので、これらの機器の利用希望者は当センター業務部にお問い合わせ下さい。

6. 採否：

申請書は、評価委員会の評価をうけた後、採択専門委員会によって判定され、共同利用委員会の議を経て採否の決定を受けます。採否については平成20年2月下旬に、評価結果を付して申請者に郵送で通知します。評価項目としては、目標設定の適切さ、当センターで実施する必然性、準備状況、遂行能力、従来成果等です。申請書の作成に際してはこれらの点にご留意下さい。

7. 共同利用研究経過報告等の提出：

研究代表者は、当センターで刊行する「共同利用研究経過報告書」(この申請課題については21年2月)の原稿、及び次項に記載の論文と成果リスト等を提出して下さい。

8. 論文の提出など：

共同利用研究による学術論文を専門誌等に発表するとき、及び修士や博士の学位論文を大学に提出するときには、謝辞に当センターにおける共同利用研究による旨を明記下さい。当センターの英文名は次の通りです。

International Research Center for Nuclear Materials Science,
Institute for Materials Research (IMR), Tohoku University

年度末に研究成果調査を行います。学術誌等に発表した論文については、論文名、著者名リスト、雑誌名(単行本については書名、出版社名)、巻号、発表年、ページを、学位論文については論文名、学位名称、氏名、取得大学、研究科、専攻、取得年度、等を記載して提出して下さい。また、学位論文については当該年度内提出予定を含めて下さい。

9. 留意事項：

- ・ 研究の実施に当たって放射線業務を行う者は、その所属する機関において放射線業務従事者として登録されている上に、当センターへの登録が必要となります。
- ・ 照射後試験の実施にあたっては生成放射性核種の種類と量について評価を行うため、提出試料に関する分析データ(微量成分を含む)の提出を求めることがあります。
- ・ 共同利用研究を行う大学院生は当センターの定める傷害保険に加入する必要があります。
- ・ 希望者は金研大洗センターの宿泊所(有料)の利用が可能です。

10. 問い合わせ

- ・ 募集、研究に関する問い合わせは、以下にお願いします。

〒311-1313, 茨城県東茨城郡大洗町成田町

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 業務部

Tel:029-267-3181 Fax:029-267-4947 E-mail:kyodo@imr.tohoku.ac.jp

20年度申請書採択(材料)

受付番号	所属	代表者氏名	課題	試料	照射炉	備考
M41-1	東北大金研	永井 康介	3次元アトムプローブと陽電子消滅法 による原子炉材料の広領域解析	Fe合金: Fe-Cu-Ni(P,S,Mn), A533B,SUS316L	BR2	
M41-2	岡山県立大	福田 忠生	三次元アトムプローブによる超急速短時間加熱鋼の炭化物微細分散効果の検証	炭素鋼	コールド	新規
M41-3	福井大	福元 謙一	低放射化バナジウム合金の照射熱処理による機能修復	V-4Cr-4Ti V-0.05Ti	JOYO(Naボンド)	
M41-4	原子力機構	二川 正敏	陽子線励起圧力波抑制バブリング用メゾノズル付き高融点金属材料の開発	W,Mo,SUS316	照射なし	
M41-5	兵庫県立大	山崎 徹	Zr基バルク金属ガラスの中性子照射による機械的性質の変化	Zr60Cu30Al10	BR2	新規
M41-6	核融合研	西村 新	超伝導マグネット材料の照射効果	Nb3(Sn, Al)、NbTi, YBCO, Bi2223	JRR-3	
M41-7	東京大	長尾 敬介	中性子照射を利用した ⁴⁰ Ar- ³⁹ ArおよびI-Xe法による隕石・地球鉱物の年代測定	ケイ酸塩、(例) K2Mg6Si8O20(OH) 4	JRR-3	
M41-8	核融合研	室賀 健夫	HFIR照射したバナジウム合金溶接部材の強度特性と微細組織	V-4Cr-4Ti	HFIR照射済み	
M41-9	東北大	山田 和芳	中性子核変換ドーピングによる超伝導などの新規電子物性の探索	SiC, C(B) Cu(La,Ca,Ba,Sr)酸化物		新規
M41-10	岩手大	鎌田 康寛	電磁計測技術による圧力容器鋼およびモデル合金の照射損傷組織の非破壊評価	A533B, JRQ材、純鉄、Fe-Cu(0.10.9%)	照射済み	
M41-11	茨城大	車田 亮	炭素系材料の組織と特性に及ぼす照射損傷効果とその焼鈍効果の究明	C-10Cu-1Ti	TANDEM照射	
M41-12	原子力機構	西山 裕孝	原子炉圧力容器鋼溶接熱影響部における粒界遍析に注目した照射脆化の評価	A533B	照射済み	
M41-13	東北大金研	栗下 裕明	耐照射特性に優れたナノ組織制御ステンレス鋼の開発	ZrC,TiC分散 SUS	照射済み	日立、石橋

受付番号	所属	代表者氏名	課題	試料	照射炉	備考
M41-14	九州大	渡辺 英雄	レーザー溶接されたY添加低放射化バナジウム合金の中性子照射効果	V-4Cr-4Ti	照射済み	
M41-15	東北大	野上 修平	微小き裂成長挙動に基づく低放射化フェライト鋼の疲労寿命評価	Fe-8Cr-2W	BR2	
M41-16	東北大	長谷川 晃	核融合炉高熱流束機器用タングステン合金における照射効果に及ぼす固体核変換元素の影響	W-Re-Os	照射済み	
M41-17	東北大	長谷川 晃	クリアランスレベル以下にするための低放射化材料設計	鉄、セメント、岩石	JRR-3	
M41-18	山形大	岩田 尚能	^{40}Ar - ^{39}Ar 法を用いた岩石・鉱物の形成年代測定	ケイ酸塩、(例) K ₂ Mg ₆ Si ₈ O ₂₀ (OH)	JRR-3	
M41-19	東北大金研	佐藤 裕樹	HFIRで温度変動照射したバナジウム合金の損傷組織	V-Cr,Fe,Si,Mo,Ti,Nb	照射済み	
M41-20	東北大	佐藤 学	バナジウム合金の照射効果に及ぼすイットリウム添加の影響	V-Ti,Cr,Si,Al,Y	照射済み	
M41-21	東北大	佐藤 学	タングステン被覆接合したバナジウム合金の機械的性 (HFIR照射材の照射後試験)	V(W,Y)	HFIR照射済み	
M41-22	東北大金研	土屋 文	ジルコニウム基金属ガラスのアモルファス構造に対する中性子照射効果	55Zr-30Cu-15Ni-10Al	JRR-3	新規
M41-23	核融合研	西浦 正樹	核融合反応で生成したアルファ粒子計測のためのシンチレータへの中性子照射損傷の解明	Y ₃ Al ₅ O ₁₂ (Ge)	JRR-3	
M41-24	京都大	義家 敏正	原子空孔の動きが活発でない温度領域における金属中の照射損傷構造発達過程の解明	Ni-Si,Sn Fe-Cu,Mn	BR2	
M41-25	東工大	矢野 豊彦	シリカ系光学材料の中性子照射効果	Si, SiO ₂	BR2	新規
M41-26	京大原子炉	小林 康浩	^{197}Au メスバウアー分光によるAuナノクラスターの研究		JRR-4(開放研)	
M41-27	応用化学研	長江 正寛	多段内部窒化一酸化法により組織制御Mo合金の耐照射特性	Mo-1.0(Zr,Ti)	BR2	
M41-28	京都大	木村 晃彦	先進核融合炉ブランケット用鉄鋼材料の接合被覆界面における照射影響評価	Fe-9Cr-2W, Fe-19Cr	JRR3, BR2, JOYO	
M41-29	京都大	木村 晃彦	軽水炉寿命延長時における照射脆化支配因子の検討	Fe-1.6Mn-Ni	BR2, JRR3	

受付番号	所属	代表者氏名	課 題	試料	照射炉	備考
M41-30	京都大	木村 晃彦	先進原子カシステム用ナノ酸化物粒子分散強化鋼における照射効果	Fe-(14~19Cr)ODS	JOYO, BR2	
M41-31	核融合研	長坂 琢也	核融合炉用低放射化材料被覆部材・異種接合材の照射効果	V-4Cr-4Ti-Er ₂ O ₃ , 9Cr-2W, SUS316	BR2,JRR-3	
M41-32	物材機構	鈴木 達	中性子照射による配向性AINの機械特性変化に関する研究	配向性AIN(Y2O3助剤)	BR2	
M41-33	東北大金研	四竈 樹男	原子炉構造材料の照射硬化機構に対する損傷速度効果の解明	A533B, Fe-9Cr-2W	BR2	
M41-34	原子力機構	塚田 隆	三次元アトムプローブによるBWR実機材等のナノ組織変化に関する研究	SUS316	照射済み	
M41-35	近畿大	渥美 寿雄	核融合炉用炭素材料の中性子照射効果	黒鉛、CFC	BR2, JOYO	
M41-36	東北大金研	小無 健司	水素化物中性子吸収剤の開発	Hf-1H	照射済み	
M41-37	京都大	香山 晃	次世代原子力エネルギー用 SiC/SiC複合材料及び SiCの中性子照射効果	SiC, C	BR2, JOYO	
M41-38	東北大金研	佐藤 裕樹	超臨界圧軽水冷却原子炉の材料開発	SUS, Ni基合金	照射済み	
M41-39	愛媛大	仲井 清真	超微細結晶粒・ナノ粒子分散組織を有する高融点合金の微細組織変化および相変態に及ぼす中性子照射効果	W-1.5TiC, V-1.6Yt- 8.5W-0.4TiC	BR2	
M41-40	東京理大	春山 修身	Pd-P基およびZr基バルク金属ガラスの構造緩和に及ぼす中性子損傷効果	55Zr-30Cu-15Ni- 10Al, 40Pd-40Ni- 20P,	BR2	新規
M41-41	京都大	香山 晃	低放射化鉄鋼材料の疲労挙動に及ぼす中性子照射の影響	Fe-8Cr-2W-V, Ta	BR2	
M41-42	東北大金研	栗下 裕明	耐照射特性,低温靱性および高温強度に優れた高融点遷移金属の開発	W-1.5TiC, V-1.6Yt- 8.5W-0.8TiC	BR2	
M41-43	東北大金研	井上 耕治	陽電子消滅,電子スピン共鳴,光吸収法によるシリコン および ガラスの低温電子線照射欠陥の研究	SiO ₂ , Si	照射済み	
M41-44	島根大	和久 芳春	MGC材料の高レベル耐放射性基礎評価	Al ₂ O ₃ /YAG, Al ₂ O ₃ /GAP(GdAl ₂ O ₃)	BR2	新規

20年度申請書採択(アクチノイド)

受付番号	所 属	代表者氏名	課 題	備 考
F41-1	九州大	出光 一哉	緩衝材中のアクチノイド元素の移動に関する研究	
F41-2	原子力機構	神戸 振作	アクチノイド化合物のNMRによる研究	
F41-3	高エネ研	三浦 太一	未知中性粒子の探索実験	
F41-4	東工大	鈴木 達也	固体抽出剤によるクロマトグラフィーを用いたランタノイドとアクチノイドの分離	
F41-5	岩手大	吉澤 正人	超ウラン化合物の超音波による研究	
F41-6	東京大	阿部 弘亭	原子炉燃料及び構造材の照射効果に関する研究	
F41-7	大阪大	摂待 力生	常磁性体 $NpCd_{11}$ の巨大磁気抵抗効果の研究	新規
F41-8	金沢大	鷲山 幸信	α 線放出核種の内用放射療法への適応	
F41-9	東北大金研	佐藤 伊佐務	アクチノイド及びランタノイドの水溶液化学	
F41-10	原子力機構	芳賀 芳範	強相関アクチノイド化合物の物理と化学の研究	
F41-11	東北大金研	山村 朝雄	核燃料リサイクルへの超臨界水利用技術の応用に関する研究	
F41-12	東北大金研	山村 朝雄	ウラン電池に使用するウラン錯体(III価、V価)と隔膜に関する研究	

F41-13	東北大金研	四竈 樹男	ウラン金属など液体活性金属中での材料腐食に関する研究	
F41-14	東北大金研	小無 健司	不定比プルトニウム酸化物の酸素欠陥に関する微視的電子状態の研究	新規
F41-15	東北大金研	李 徳新	ウラン化合物磁性記憶材料の探索と物性研究	
F41-16	東北大金研	本間 佳哉	メスバウアー分光による強相関物質の研究	
F41-17	原子力機構	中村 彰夫	アクチノイド(Th,U,Np)無機化合物の創成と物性研究	
F41-18	原子力機構	田中 健哉	マイナーアクチノイド含有酸化物燃料照射挙動の微視的視点からの評価	

本報告書収録の学術雑誌等発表論文は本ファイルに登録していません。なお、このうち東北大学在籍の研究者の論文で、かつ、出版社等から著作権の許諾が得られた論文は、個別に **TOUR** に登録しております。