Radiation effect in copper alloys for heat sink of high heat flux components of a fusion reactor

核融合炉高熱流束機器ヒートシンク銅合金の照射効果

Shiori ISHINO

Department of Nuclear Engineering, Tokai University, 1117, Kitakaname, Hiratsuka-shi, Kanagawa-ken, 259-1292 Japan

TEL: 81-463-58-1211 (Ex.4153) FAX: 81-463-50-2017 E-mail: ishino@keyaki.cc.u-tokai.ac.jp

(Received 25, November 1999 Accepted 4, April 2000)

High strength high conductivity copper alloys will be used for heat sink materials of a high heat flux component of a fusion reactor. High energy neutron irradiation on these materials will cause atomic displacements and nuclear transmutation, which will lead to degradation of thermal conductivity and mechanical properties of the materials. These effects will be briefly reviewed with special emphasis on synergistic effects of displacements and transmutation. It should be kept in mind that even pure copper will be transformed into Cu-Ni-Zn alloy by fusion neutron irradiations. This effect on the thermal conductivity and mechanical properties cannot be ignored for long term use of copper alloys in neutron irradiation environment.

We have been utilizing Cu-Ni-Zn alloys to simulate the effect of nuclear transmutation. Displacement damage with fusion neutrons has been simulated by ion irradiation with 2.4MeV copper self ions. Results of these experiments will be summarized.

Keywords : Copper, copper alloy, Nuclear transmutation, Thermal conductivity, Hardness change, Neutron irradiation, Ion irradiation,

I. INTRODUCTION

ダイバータ、リミターなどの核融合炉のプラズマ対向高熱流束機器のヒートシンク材料は、高い熱伝導度と高い熱流束によって生じる熱応力に耐える強度が要求されることからいわゆる高力高伝導銅合金の使用が考えられている。例えば国際熱核融合炉(ITER)では第一壁およびリミターのヒートシンク材としてはアルミナ粒子分散型銅合金(以下Dispersion Strengthened Copper alloyの略称としてDS-Cuと表す)、ダイバータ用にはCu-Cr-Zr合金のような析出強化型銅合金(以下Precipitation hardened Copper alloyの略称としてPH-Cuと表す)の使用が提案されている。^{1, 2}

ところで、これらの機器はプラズマに近い位置にあることから当然核融合中性子の照射を受ける。その結果として原子のはじき出しと共に核変換が起こる。核変換としては従来(n, α)および(n, p)反応の結果生じるヘリウムおよび水素の効果がいろいろと調べられてきたが、ヒートシンク用銅合金ではいわゆる金属核変換生成物(Metallic transmutants)が熱伝導度劣化の観点から重

要である。DS-CuにしてもPH-Cuにしても、高伝導性を得るためにはマトリックスの固溶元素が少ないことが必要であるが、この条件は純銅でさえも中性子照射によってCu-Ni-Zn合金に変わってしまう³ことから達成されなくなり、使用条件はフルエンスと共に狭まって行く。ヒートシンク材の使用限界を明らかにするためにも、中性子照射による熱伝導度低下と強度変化を知る必要がある。

この変化の原因は上述のようにはじき出しと核変換であるが、その相乗効果が重要である。しかしIFMIF(International Fusion Materials Irradiation Facility)のような核融合炉材料照射用強力中性子源が存在しない現状では、⁴原子炉中性子照射やイオン照射に頼らざるを得ない。本論文では今までに行われた原子炉照射実験と我々の結果を含めいくつかのイオン照射実験の結果についてまとめる。

II. CALCULATION OF TRANSMUTATION

純銅が中性子照射環境に曝された場合の核変換反応の主なものにはFig.1に示すようなものがある。

Greenwood らはREAC コードを用いて核融合炉 STARFIRE (概念設計) の第一壁条件で銅の核変換生成物を計算した。³ その後さらに原子炉 FFTF (炉心中央)、HFIR (炉心周辺照射領域 PTP: Peripheral Test Position) についても計算が行われており、dpa に対して Ni および Zn の生成量を Fig.2 に示す。⁵ Co も微量生成するが、この図では無視されている。

III. REVIEW OF IRRADIATION DATA

A. Mechanical properties

ITER におけるヒートシンク銅合金の使用条件は、温度 150-250℃、照射量 10dpa 以下、損傷速度 3.3×10^{-7} dpa/s という値が示されている。⁶ これは最適条件というよりは現状の銅合金の設計ウインドウとしてはこの程度に留める必要があるという意味であろう。照射による機械的性質の変化についても SM-2, DR-3, HFR(Petten) などの原子炉、電子線あるいはイオン加速器などによって調べられているが、照射温度はほとんど 350℃ 以下で、照射量もほとんど 1dpa 以下である。

ヒートシンク銅合金の照射に関連した問題点としては、スエリング、照射クリープ、低温照射脆化等が挙げられる。⁷ 一方、非照射でも軟化温度は PH-Cu で 300℃ 程度、DS-Cu でも 400℃ 程度であり、低温照射脆化を考えると、使用温度範囲は PH-Cu で 180-280℃ 程度、DS-Cu でも 180-350℃ 程度と考えられる。⁷

FIG.1. Nuclear transmutation reactions with regard to copper in a neutron environment.

FIG.2. Accumulation of transmutation products in copper in various neutron irradiation environments as a function of dpa.⁵

Fabritsiev らは DS-Cu および PH-Cu について SM-2 炉で ~100℃ から 300℃ の範囲で約 5dpa までの照射による引張特性の変化を調べている。⁸ その結果 150℃ 以下では延性低下が顕著であり、その傾向はすでに 0.001dpa で認められ、0.1dpa では飽和を示す。

Fabritsiev らはさらに、高強度の CuNiBe, CuCrNiSi 合金を CuCrZr 合金と比較しつつ SM-2 炉を用い 150℃ および 300℃ で 0.2dpa まで照射し、引張特性の変化を調べている。⁹ その結果 CuNiBe および CuCrNiSi 合金では脆化および破壊応力の著しい低下が見られる。⁹ 非照射の破壊靱性を 22℃ と 250℃ で調べた結果では DS-Cu (GlidCop Al-15, Al-25) および CuNiBe 合金では 250℃ における破壊靱性の低下が著しいのに、CuCrZr 合金では低下はさほど大きくはない。¹⁰ CuCrZr 合金および GlidCop Al-25 を DR-3 炉で 200℃ および 350℃ で 0.3dpa まで照射した場合、200℃ では降伏応力の増加が著しく、かつ加工軟化を示すが、350℃ では軟化し、かつ加工硬化を示す。¹¹ 破壊靱性は GlidCop Al-25 では照射により著しく低下するが、CuCrZr 合金では 200℃ までの照射では低下はさほど大きくない。¹¹ この傾向は照射量を 2dpa 位まで上げた最近のデータでもあまり変わらない。¹²

B. Thermal conductivity

銅および銅合金のように電気伝導度の大きな金属合金では、熱伝導度はほとんど電子熱伝導度によってきまり、電気抵抗, ρ , と熱伝導度, κ , の間には Wiedemann-Franz の法則:

$$\kappa \cdot \rho = LT,$$

が成り立つと考えて良い。ここで L はローレンツ数である。このため、熱伝導度の測定はほとんど電気抵抗測定によって行われている。

Fabritsiev らは純銅および DS-Cu について SM-2 炉で照射を行い、電気抵抗の変化を測定している。¹³ 核変換

FIG.3. Change in electrical resistivity in pure copper and some DS-Cu alloys as a function of thermal neutron fluence. Note that radiation damage component saturates in early stage of irradiation.¹³

は熱中性子により起こると考え、熱中性子フルエンスに対して電気抵抗変化を示したのがFig.3である。NiおよびZnの電気抵抗寄与の線形加算性を仮定すると、全電気抵抗変化、 $\Delta \rho_{total}$ は、はじき出し損傷および核変換原子の寄与の和として

$$\Delta \rho_{total} = \Delta \rho_d + \Delta \rho_r$$

と書くことができ、さらに核変換の寄与はNiおよびZnの寄与の和として

$$\Delta \rho_r = \Delta \rho_{Ni} + \Delta \rho_{Zn}$$

と書けることになる。NiおよびZnの濃度は熱中性子フルエンスに比例するとし、またFig.3からはじき出し損傷部分は0.1dpa程度で飽和すると考えられるので（飽和値 $\sim 1.2n\Omega \cdot m$ ）

$$\Delta \rho_{total} = \Delta \rho_d + \Delta \rho_r = 1.2n\Omega \cdot m + K \phi_{th} t.$$

ここで $K = 3.5n\Omega \cdot m / 10^{25} n/m^2$, ϕ_{th} は熱中性子フラックス、 t は照射時間である。

ところで、Fig.4は照射温度の関数として (a) 純銅およ

FIG.4. Change in electrical resistivity in (a) pure copper and (b) DS-Cu alloys as a function of irradiation temperature. Note that the total electrical resistivity change becomes less than that for transmutants in solid solution above 250-300 °C.¹³

び (b) DS-Cu の電気抵抗変化を示しているが、重要なことは、高温照射で欠陥のアニールが起こることは当然としても、純銅で250-300°Cで、DS-Cuでは300-400°Cで電気抵抗変化が核変換生成物単独の寄与を下回ることである。このことは核変換生成元素が固溶体として存在するのではなくることを意味しており、はじき出しによる照射欠陥と核変換原子の相互作用があることを示している。相互作用の内、電気抵抗を減少させることに寄与する機構としては、

1) 核変換生成元素の欠陥クラスター、転位、粒界などへの拡散、

2) 欠陥シンクへの照射誘起偏析

などが考えられる。一方、電気抵抗を増加させる機構としては

1) 欠陥との複合欠陥の形成（電気抵抗を減少させる場合も考えられる）、

2) 析出物、分散粒子のカスケード等による反跳固溶化 (Ballistic resolution) および再析出（減少の場合もあり）

等が考えられる。

これらの相互作用については次項の組織変化および我々の実験結果に関連した検討の中でさらに議論する。

C. Microstructural evolution

中性子照射によるミクロ組織変化については、主としてボイドスエリングの観点から比較的高温重照射の条件でFFTFやHFIRなどの原子炉を用いて研究が行われてきた。¹⁴⁻¹⁶ また、核変換生成物の影響を調べる目的で銅にNiやZnを合金化させた試料を用い、原子炉で生成するNiやZnと併せてNi/dpaおよびZn/dpa比を系統的に変化させる試みもなされている。¹⁶ これによって、He/dpaも変化することが検討されている。¹⁷ さらにイオン加速器を用いて、Cu自己イオンのみならずNiイオンを用いて核変換生成元素とはじき出し損傷の導入を同時に行う試みもなされるようになった。¹⁸

これまでの結果を要約すると、まずNiの効果としては、

- 1) 格子間原子型転位ループの核形成を促進し、高密度の転位を保つためボイドスエリングを助長する。
- 2) 点欠陥のシンクである粒界やボイド表面に偏析を起こす。

一方、Znについては、

- 1) 格子間原子型転位ループの形成に対する影響は少ないと考えられる。
- 2) 粒界のZn濃度が低下する。これは照射下で粒界に流入する空格子点と逆方向にZnが移動することを意味する。空格子点はZnと選択的に結合することによりその易動度が低下し、低温度領域のスエリングが抑制され、スエリングピークが高温側にシフトする。

IV. EXPERIMENTAL INVESTIGATIONS AT TOKAI UNIVERSITY

A. Introduction

本章では標題に関して東海大学で行われている研究の概要を述べる。その主要な部分は1999年10月、米国で開かれた第9回核融合炉材料国際会議(ICFRM-9)において報告された。¹⁹

第1章に述べたように核融合炉では発生するエネルギーの大半が中性子の運動エネルギーとして放出されるので、核融合炉材料、とりわけプラズマに近いいわゆる炉心材料は中性子照射効果に対する検討は避けて通れない。炉心プラズマに近い高熱流束機器のヒートシンク材料としての銅合金も中性子照射によるはじき出し損傷とともに、同時に発生する核変換生成物の効果を調べる必要があるが、核融合炉材料照射用強力中性子源が存在しない今日、この相乗効果を調べることは極めて困難である。そのための模擬手段として、核変換生成元素を予め含ませた合金を用いて、実験条件を制御できるイオン照射を利用して、はじき出し/核変換相乗効果を調べるのが我々の研究の目的である。

B. Experimental

1. Specimen

上述のようにSTARFIREの第一壁条件(3.6MW/m²)では、5年間の使用で純銅はCu-5.4%Ni-2.4%Zn-0.3%Co合金に変化する。これはヒートシンク材としては極端な条件であるが、核変換効果を強調して調べるため、この値を参考にして、Table 1のような核変換模擬合金を融製した。Coは微量であるとして無視することとした。

合金はアルゴン雰囲気中で水冷銅坩堝を用い二重アーク融解により融製した。亜鉛の添加には高純度

Cu-40%Zn母合金を用いたが、溶湯温度を可能な限り低く保つても目標通りの亜鉛量を添加することは極めて難しかった。合金は成形後、中間焼鈍なしに冷間圧延により厚さ0.1mmの板とし、両端および中間部から分析用試料を採取した。また、この板から電気抵抗測定用および硬さ測定用試料を切り出し、電気抵抗測定試料については真空中、硬さ測定用試料についてはアルゴン気流中で800℃1時間の焼鈍を行い、最終的には電解研磨仕上げとした。

2. Hardness measurement

マイクロ硬さ測定用の試料は10mm x 10mm 又は 4mm x 13mm (各厚さ0.1mm)に成形したものを用いた。マイクロ硬さ測定は島津製作所のナノインデントー(島津DUH-201型)およびERIONICS ENT-1100s型動的マイクロ硬さ試験機を用いた。

DUH-201型の場合、ビッカース硬さHvは

$$H_v = 189.10 \times P / L_2$$

によって求めた。ここでPは荷重(mN)、L₂(μm)は圧痕の対角線長さである。一方、ERIONICS ENT-1100s型の場合は、荷重Pと圧子侵入深さdの関係が求められるが、A、BをP、dによらない材料定数として

$$P/d = A + B, \quad A(\text{GPa}) = 0.287 H_v$$

の関係から硬さが求められる。²⁰ 両測定機から得られたH_vの値はよく一致することが確かめられた。

TABLE 1. Chemical composition of the specimen(wt.%).

Specimen	Ni	Zn	Cu	ρ	Hv
Pure Cu	0	0	99.99	○	○
Cu-3Ni	3.03	0	Bal.*	○	-
Cu-6Ni	6.00	0	Bal.	○	○
Cu-3Zn	0	Tr*a)	Bal.	○	-
Cu-6Ni-3Zn	NA*	Tr*a)	NA	○	-
Cu-0.8Zn	0	0.8	Bal.	-	○
Cu-2.4Ni-3.6Zn	2.4	3.6	Bal.	-	○
Cu-4.5Ni-2.9Zn	4.5	2.9	Bal.	-	○

*Bal.=Balance, Tr.= Trace, NA=Not analysed, a) Dezincified

3. Electrical resistivity measurement

熱伝導度を求めるための電気抵抗測定は通常の4端子法によった。試料は測定精度を上げるため、幾何学形状因子 ($1/wt$) を大きくするよう矩形波形状に切り出した。ここで、電圧端子間実効距離 l は 73.0mm、幅 w は 1mm、厚さ t は 0.1mm である。但し、相対測定精度は高いものの、形状測定誤差に起因する絶対精度は 5 % 程度に留まる。測定機としては定電流電源として Keithley Model 224、デジタルマルチメータとして Keithley Model 2001 を用いた。浮遊起電力を打ち消すため、各測定ごとに電流極性を反転させて測定を行った。

核変換模擬合金試料の電気抵抗を 25 - 500℃ の温度範囲で測定した。この結果から Wiedemann-Franz の法則に基づいて熱伝導度に変換した。なお、イオン照射用には絶縁基板上に銅を 200-600nm 蒸着した試料を作成したが、照射結果については今後報告する予定である。

4. Ion irradiation

イオン照射は九州大学応用力学研究所の 1MV タンデトロロン加速器を用いた。^{21,22} 適当なマスキングを用い硬さ測定用試料に室温で 2.4MeV Cu^{2+} イオンを、0.05, 0.5, 5, 45 dpa 照射した。ここで dpa は損傷ピークの値で表した。Figure 5 には TRIM コードで計算された銅中の 2.4MeV Cu^{2+} イオンの損傷分布を示す。

C. Experimental results

1. Electrical resistivity due to solid transmutants

Figure 6 に純銅、Cu-3Ni, Cu-6Ni, Cu-6Ni-3Zn(公称組成)合金の電気抵抗の温度依存性を示す。25℃の純銅の電気抵抗は文献値のそれとよく一致している。²³ 分析結果によれば Ni はほぼ目標通りの組成となっているが、電気抵抗の Ni 濃度依存性を Fig.7 に示す。Ni の電気抵抗寄与率は僅かに温度依存性を示すが、25℃の値を文献値と比較して Table 2 に示す。^{24,25} Ni とは対照的に Zn の電気抵抗寄与率は求めることができなかった。Zn を添加した 2 種の合金の測定では、Zn が検出されなかった公称 Cu-3Zn 合金の値は純銅とほとんど変わらなかったが、一方、trace 程度の Zn しか検出されなかった公称 Cu-6Ni-3Zn では Cu-6Ni 合金よりも高い電気抵抗を示し、Zn の電気抵抗寄与率の文献値から逆算すると、約 2.6% の Zn が含まれていることに相当することが判った。分析は x 線マイクロアナライザーによって行っているのが、表面組成を測っていることになるが、電気抵抗はバルクを測っているのが、後述の脱亜鉛現象があると表面とバルクで濃度が異なっている可能性もある。

2. Temperature dependence of thermal conductivity

熱および電気伝導度の大きな金属・合金では、上述のように Wiedemann-Franz の法則が成り立つので、Fig. 6 から電子熱伝導度を求めた。その結果を Fig.8 に示す。

FIG.5. Damage distribution for 2.4MeV Cu^{2+} ions into copper calculated by the TRIM code.

FIG.6. Temperature dependence of electrical resistivity for pure copper and Cu-3%Ni, Cu-6%Ni, Cu-6%Ni-3%Zn alloys between 25 and 500°C.

TABLE 2. Electrical resistivity contribution of nickel and zinc in dilute copper alloy

Author	Ho et al.(1983) ($\text{n}\Omega\text{ m/wt.}\%$)	Zinkle (1994) ($\text{n}\Omega\text{ m/at}\%$)	Present ($\text{n}\Omega\text{ m/at}\%$)
Ni	12.2	11.2	9.7 ± 1.0
Zn	2.7	3.0	—

FIG.7. Nickel concentration dependence of resistivity at different temperatures.

FIG.8. Thermal conductivity of pure copper, Cu-3%Ni, and Cu-6%Ni-3%Zn(nominal) alloys calculated from FIG.6.

TABLE 3. Summary of hardness data before and after ion irradiation for copper and several copper alloys.

dpa	Pure Cu	Cu-6Ni	Cu-0.8Zn
0	49.2	56.1	70.0
0.05	122.2	100.4	152.2
0.5	141.7	144.8	168.8
5	142.5	150.0	181.0

dpa	Cu2.4Ni3.6Zn	Cu4.5Ni2.9Zn	Cu6Ni3Zn
0	109.1	90.7	54.1
0.05	142.9	136.6	137.1
0.5	166.6	174.3	166.1
5	191.8	199.4	156.4

FIG.9. The change in hardness as a function of dpa and Zn concentration. Dpa values are represented by those at the damage peak for 2.4MeV Cu ion irradiation.

図から明らかなように核変換生成物特にNiによって熱伝導度の低下が起こることが判る。

3. Microhardness measurements

Table 3 にイオン照射前後の室温におけるマイクロビッカース硬さをまとめて示した。ここで公称組成 Cu-6Ni-3Zn合金ではCu-6Ni合金とほぼ同様の硬さを示したが、イオン照射の損傷領域は表面から約 $1\mu\text{m}$ であることと脱亜鉛現象の可能性を考えると、電気抵抗測定と硬さ測定の食い違いが理解できる。

照射前の硬さはNi量にはほとんど依存しないのに対し、Zn量の依存性は明瞭である。Figure 9には硬さ変化をZn量およびdpaの関数として図示した。この図から照射硬化は0.5dpaまでにほとんど飽和すること、Znは硬化の照射量依存性を高フルエンス側にシフトさせることが分かる。

D. Discussion

1. Issues associated with ion irradiation

イオン照射については1) 損傷分布が不均一であること、2) 飛程が短いこと、3) 損傷速度が中性子照射に比べて大きすぎること 等多数の問題点が指摘されてきているが、ここで簡単にこれら問題点に触れておく。

1) についてはFig.5に示すように2.4MeV Cu^{2+} イオンでは損傷ピークはさほど鋭いものではなく、飛程平均のdpaはピークdpaの70%程度であるから、飛程までの範囲で大きめに一定と考えることは著しく合理性を損なう

ことにはならない。

2) 飛程が短く機械的強度の評価が可能かについて問題提起がされるが、本実験では低荷重の試験機を用いており、圧痕深さは飛程の1/5程度に留まっている。このような条件が満足されている場合には、硬さの値は圧痕深さの5倍程度、すなわちほぼ飛程までの深さの平均硬さを与えていると考えられる。^{26,27} このことは、我々のグループのFe-Cu合金のイオン照射実験でも確かめられている。²⁸

3) 損傷速度は中性子照射に比べて数桁大きく、問題点は残るが、一方でイオン照射は他の照射条件を変えずに損傷速度を2～3桁の範囲で変えることができるので将来の検討課題と考える。

2. Synergistic effect of displacement and nuclear transmutation

III章で述べたように、Fabritsievらによれば、約150℃以下では欠陥は0.1dpaのオーダーで飽和し、欠陥の回復はほとんど起こらず、電気抵抗の照射欠陥寄与分と核変換生成物の寄与が加算的であることが示された。この加算性は、約250℃以上の欠陥回復温度領域では成り立たなくなることが示されている。このことは、少なくとも高温では偏析など、欠陥と核変換生成元素との相互作用が存在することを示している。我々の結果はこのことをさらに補強するデータを提供しているものと考えられる。

非照射試料の硬さはNi量にはほとんど依存しないがZn量には明瞭に依存している。Table 4はCu, Ni, Znの原子半径を示すが、NiはCuとあまり変わらない原子半径をもち、Cu-Ni二元系が全率固溶であることに現れているように固溶硬化はあまり大きくないことが予想される。一方、ZnはCuよりもかなり大きな原子半径をもつ原子で、空格子点と大きな相互作用をもつことが期待され、粒界からの欠乏現象¹⁵や、空格子点易動度の低下による照射硬化の高フルエンス側へのシフトなどを合理的に説明することができる。また、Znはいわゆる鈴木効果(化学的相互作用)によって拡張転位と強く相互作用することが知られており、²⁹ これにより非照射試料の硬さのZn濃度依存性が説明される。

さらに、Fig.9に示されているように、純銅およびCu-Ni合金は照射とともに硬さは早い立ち上がりを示し、～0.5dpaではほとんど飽和する。NiはUndersizedの原子なので、混合亜鉛型格子間原子を作る可能性があり、その拡散で生じるNiクラスターが格子間原子型転位ループの核になることが考えられる。¹⁵ また、純銅の場合、カスケードコラプスによって容易に空格子点クラスター

ができるので、フレンケル欠陥対の再結合が妨げられ、これが格子間原子型ループ形成を助長することが考えられる。¹⁸

核変換生成物の効果はITER程度のフルエンスでは無視できるとする考えもあったが、上述の検討から考えて、かなり少ないフルエンスから考慮しなくてはならないと考える。EldrupとSinghはOFHC-CuをDR-3炉で100℃で0.3dpaまで照射し電気抵抗変化を測定しているが、電気伝導度低下は約12%で、電気抵抗増加にして2nΩmに相当する。³⁰ この場合の熱中性子フルエンスは $4.2 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$ なので、II B節に述べたFabritsievらのKの値($K = 3.5 \text{ n} \Omega \cdot \text{m} / 10^{25} \text{ n} / \text{m}^2$)を用いると、核変換生成物の寄与は～1.5nΩmとなり、僅か0.3dpaという低照射量でもその影響は無視できないことは明らかである。これらはすべて原子炉中性子照射等の結果であり、今後、中性子スペクトル、フルエンス、照射温度、損傷速度等の重要なパラメータにつき包括的な研究を行う必要がある。

3. Some remarks on dezincification

亜鉛を含む銅合金の融解中に亜鉛が飛散し、成分調整が困難なこと、熱処理時に亜鉛が揮発する可能性があることを述べたが、特に後者の影響を評価するための予備的検討を行った。亜鉛の蒸気圧は極めて高く400℃で0.1torr、200℃でも10⁻⁶torrなので検討の必要があろう。極端な条件としてCu-40%Zn合金を用い、種々の温度で種々の時間保持した後の重量変化測定では、～500℃以上で亜鉛蒸発に起因すると思われる重量損失が認められた。この現象のプラズマに対する影響については今後さらに検討を進める予定である。

4. Effect on thermal stress parameter

ヒートシンク材が拘束されている条件で熱負荷がかかった場合、発生する熱応力、 σ_{th} 、は、熱伝導度を κ 、ヤング率をE、線膨張係数を α 、熱流束をq、試料厚さをtとして

$$\sigma_{th} = E \alpha q t / \kappa,$$

と表される。高熱流束機器材料の評価指標としてよく用いられる熱応力パラメータ、M、は σ_y を降伏応力、 ν をポアソン比として

$$M = \sigma_y \kappa (1 - \nu) / \alpha E,$$

と表せるが、この2式を用いて、熱流束に伴う熱応力によって材料が降伏しない限界の熱流束 q_{max} は

$$q_{max} = M / (1 - \nu) t.$$

で与えられる。これらの式からヒートシンク材としては熱伝導度と降伏応力のような力学特性が如何に重要かが了解されよう。Figure 10に核変換生成物により劣化した熱伝導度が熱応力パラメータを如何に低下させるかを示す。

TABLE 4. Atomic radii for Cu, Ni, Zn.

Element	Cu	Ni	Zn
Atomic radii(nm)	0.128	0.125	0.137

FIG.10. Thermal stress parameter as a function of temperature calculated from thermal conductivity(FIG.8) and published yield stress.

V. CONCLUSIONS

- (1) 核融合炉高熱流束機器ヒートシンク材としての銅合金の照射効果について既往の知見を調査し、まとめた。
- (2) ヒートシンク材としては、酸化物分散強化型あるいは析出強化型の高力高伝導銅合金が用いられるが、これらは基本特性として約 300°C 以上で軟化するので、それ以下の温度領域でしか使用できない。
- (3) 300°C 以下での中性子照射環境下での問題は、いわゆる低温照射脆化と熱伝導度劣化、さらに条件によっては照射下クリープ、ボイドスエリングが問題となる。
- (4) 低温照射脆化は約 150°C 以下で発生する場合顕著となることから、いわゆる設計ウインドウはほぼ 150 ~ 300°C の範囲に限られる。
- (5) 熱伝導度低下の機構として、はじき出し損傷および核変換生成元素（主として Ni および Zn）の効果が考えられる。これらの効果は必ずしも加算的ではなく、相乗効果が重要となることを示す複数の証拠がある。
- (6) はじき出し/核変換相乗効果を調べることを目的とした筆者の研究室の実験的研究のこれまでの成果をまとめた。
- (7) 純銅における核変換を模擬した Cu-Ni-Zn 合金を融製し、これら試料の非照射の電気抵抗はほぼ濃度、組成について加算的と考えられる。
- (8) Cu-Ni-Zn 合金の非照射のマクロ硬さは明瞭な Zn 濃度依存性を示すが、Ni 濃度依存性はあまり顕著で

はない。

(9) 室温で 2.4MeV Cu²⁺ イオン照射を行うと、硬さ変化は中性子照射の場合と同様に ~0.5dpa までほとんど飽和する。しかし、照射による硬さ変化は Zn 添加とともに遅滞し、高フルエンス側にシフトする。

(10) 以上を総合すると、Ni 原子は混合亜鉛型格子間原子を形成し、高い易動度で拡散して格子間原子型転位ループの核形成を促進するとともに、粒界、ボイド等に照射誘起偏析を引き起こす。これに対し、Zn は非照射状態でも鈴木効果により拡張転位に集まり硬化をもたらす。照射下では、原子半径が大きいため、空格子点と対を作り、空格子点拡散を遅滞化し、粒界からは欠乏する。

ACKNOWLEDGEMENTS

九州大学応用力学研究所吉田直亮教授にはイオン加速器の利用を可能にして戴き、また、銅合金の照射損傷に関し討論を戴いたことに感謝する。同研究所の渡辺英雄助教授、森下和功博士（現京都大学エネルギー理工学研究所助教授）、吉田研究室の大学院生の皆さんには実験遂行上大変お世話になった。試料の融製、加工、調製、分析等に関しては、東京大学工学部システム量子工学科荒井良夫氏に全面的にお世話になった。

東海大学大学院生久留井敦士（現東大大学院）、森田憲二（現（財）発電技検）、古沢裕主、市川正一、稲葉太郎、長谷川忠之、学部学生石山 実（現（株）京浜コーポレーション）の諸君には電気抵抗測定、イオン照射と硬さ測定などに参加して戴いた。ここに記して謝意を表する。

REFERENCES

- ¹ J. W. Davies and G. M. Kalinin, J. Nucl. Mater. 258-263(1998) 323.
- ² G. M. Kalinin and R. Matera, J. Nucl. Mater. 258-263(1998) 345.
- ³ F. A. Garner, J. R. Greenwood and F. M. Mann, Fusion Reactor Materials Semiannual Progress Report, DOE/ER-0313-13(1992) 42.
- ⁴ T. Kondo, J. Nucl. Mater. 258-263(1998) 47.
- ⁵ T. Muroga, S. Onuki, F. A. Garner and S. J. Zinkle, J. Nucl. Mater. 258-263(1998) 130.
- ⁶ J. L. Boutard, J. Nucl. Mater. 174(1990) 240.
- ⁷ S. A. Fabritsiev, S. J. Zinkle, B. N. Singh, J. Nucl. Mater. 233-237(1996) 127.
- ⁸ S. A. Fabritsiev, A. S. Pokrovsky, S. J. Zinkle, D. J. Edwards, J. Nucl. Mater. 233-237 (1996) 513.
- ⁹ S. A. Fabritsiev, A. S. Pokrovsky, D. J. Edwards, S. J. Zinkle, J. Nucl. Mater. 258-263(1998) 1015.
- ¹⁰ D. J. Alexander, S. J. Zinkle, A. F. Rowcliffe, J. Nucl.

- Mater. 271-272(1999) 429.
- ¹¹ S. Tatinen, M. Pyykkonen, P. Karjalainen-Roikonen, B. N. Singh, P. Toft, J. Nucl. Mater. 258-263(1998) 1010.
 - ¹² S. A. Fabritsiev, A. S. Pokrovsky, D. J. Edwards, S. J. Zinkle, A. F. Rowcliffe, presented at ICFRM-9, Oct. 1999, J. Nucl. Mater. to be published.
 - ¹³ S. A. Fabritsiev, A. S. Pokrovsky, S. J. Zinkle, A. F. Rowcliffe, D. J. Edwards, F. A. Garner, V. A. Sandakov, B. N. Singh, V. R. Barabash, J. Nucl. Mater. 233-237 (1996)526.
 - ¹⁴ T. Muroga, N. Yoshida, J. Nucl. Mater. 212-215(1994) 266.
 - ¹⁵ D. J. Edwards, F. A. Garner, L. R. Greenwood, J. Nucl. Mater. 212-215(1994) 404.
 - ¹⁶ T. Muroga, H. Watanabe, N. Yoshida, J. Nucl. Mater. 258-263(1998) 955.
 - ¹⁷ L. R. Greenwood, B. M. Oliver, F. A. Garner, T. Muroga, J. Nucl. Mater. 258-263(1998) 985.
 - ¹⁸ T. Muroga, T. Matue, H. Watanabe, N. Yoshida, in *Effects of Radiation on Materials*, 18th Int. Symp. ASTM STP 1325, R. K. Nanstad, M. L. Hamilton, F. A. Garner, A. S. Kumar Eds. (ASTM, W. Conshohocken, PA, 1999) 991.
 - ¹⁹ S. Ishino, A. Kurui, S. Ichikawa, T. Inaba, T. Hasegawa, reported at ICFRM-9, Colorado Springs, Oct. 1999, to be published in J. Nucl. Mater.
 - ²⁰ H. Iwakiri, H. Wakimoto, H. Watanabe and N. Yoshida, J. Nucl. Mater. 258-263 (1998) 873.
 - ²¹ S. Ishino, A. Kurui, H. Furusawa, K. Morita, N. Yoshida, Annual Progress Report of the Collaborative Research for FY 1997, No.1, March 1998 (Inst. Appl. Mechanics, Kyushu Univ.) pp.125-127.
 - ²² S. Ishino, A. Kurui, H. Furusawa, K. Morita, S. Ichikawa, T. Inaba, T. Hasegawa, N. Yoshida, K. Morishita, Annual Progress Report of the Collaborative Research for FY 1998, No.2, March 1999 (Inst. Appl. Mechanics, Kyushu Univ.) pp.133-136.
 - ²³ See for example, Science Year Book, ed. by National Astronomical Observatory, 68th Edition (Maruzen, Tokyo, 1995) p.527 (in Japanese).
 - ²⁴ C. Y. Ho, M. W. Ackerman, K. Y. Wu, T. N. Havill, R. H. Bogaard, R. A. Matura, S. G. Oh, H. M. James, J. Phys. Chem. Ref. Data, 12(2)(1983) 183.
 - ²⁵ S. J. Zinkle and S. A. Fabritsiev, Copper Alloys for High Heat Flux Applications, Atomic and Plasma Materials Interaction Data for Fusion (Supplement to Nuclear Fusion) 5(1994) 163.
 - ²⁶ T. Suzuki and T. Ohmura, Jap. J. Tribology, 40(3) (1995); H. Iwakiri, H. Watanabe and N. Yoshida, Rep. Res. Inst. Appl. Mech. Kyushu Univ. 82(1997) 197.
 - ²⁷ H. Iwakiri, H. Wakimoto, H. Watanabe and N. Yoshida, J. Nucl. Mater. 258-263 (1998) 873.
 - ²⁸ K. Morita, Master of Engineering thesis, Tokai University (1999), to be published.
 - ²⁹ H. Suzuki, Sci Rept. Res. Inst. Tohoku Univ. A4(1952) 455.
 - ³⁰ M. Eldrup and B. N. Singh, J. Nucl. Mater. 258-263 (1998) 1022.

石野 稔 (いしの しおり) : 工学博士
 東海大学工学部原子力工学科教授
 専攻分野 : 原子炉・核融合材料、
 特に照射損傷、格子欠陥、
 所属学会 : 日本原子力学会、
 日本金属学会、日本物理学会、
 プラズマ・核融合学会、
 ASTM, MRS.