RTNS-Ⅱによる研究成果 — 主として日本側の研究を中心として —

河村 和孝

(東海大学開発技術研究所)

住田 健二

(大阪大学工学部)

(1990年6月21日受理)

Research Summery of the RTNS-Ⅱ Project — Japanese Contribution to the Japan-US Collaboration —

Kazutaka Kawamura and Kenji Sumita

(Received June 21, 1990)

Abstract

Although the 14 MeV-neutron irradiation have been terminated with the end of March, 1987, some japanese scientists participated in Japan-US collaboration on RTNS-Ⅱ utilization have still worked on various post-irradiation tests for irradiated specimens. The present paper describes the results obtained for the period from 1982 to 1989. Much emphases are on the microstructure evolution and the mechanical property change for various structural materials and on the degradation of electronic performance parameters for various diagnostic devlces by 14 MeV neutron irradiation, in addiition to the neutronics and the in-situ tritium recovery.

Keywords :

RTNS-Ⅱ utilization, post-irradiation test, microstructure evolution, mechanical property change, degradation of electronic performance, dilatometer, positron annihilation, hardness level, neutronics, in-situ tritium recovery,

まえがき

1982年1月より実質的に始まったRTNS-Ⅱ (Rotating Target Neutron Source - Ⅱ) 日米共同利用は1987年3月をもって終了したが、その間延べ31名に及ぶ日本の大学の研究者が短期(3ヶ月)もしくは長期(約1年)滞米し、アメリカ・カルフォルニア州ローレンス・リバモア国立研究所にあるRTNS-Ⅱサイトでの日米共同の照射実験並びに日本より持ち込んだ各種の試験機を用いての照射後試験に従事してきた。

Institute of Research and Development, Tokai University, Hiratsuka 259-12.
Faculty of Engineering, Osaka University, Suita 565.

その間照射済試料の一部は東北大学金属材料研究所のご協力により同所付属材料試験炉利用施設に搬入、現在まで同所の諸設備を用い試験を継続しており、とくにミクロ組織等については今後も新しい知見が得られることが期待できる。しかしながら研究に一区切りを入れ成果を広く紹介することも必要であると考え、かつその時期に達しているとの判断から、こゝにその主だった成果をまとめて紹介することにした。

RTNS-Ⅱは世界では現存する最強の核融合中性子源で2台の装置があり、それぞれ 5×10^{13} n/sec·cm² の14 MeV中性子を出すものの、照射空間が小さいこともあって、例えば金属材料の機械的性質の照射効果を調べるに当たっては通常の大きさの試験片は使えず、微小試験片を使う必要があった。そのため通常寸法の試験片と微小試験片とをきちんと対応づける微小試験片技術の確立が必要で、本報告では触れないが、RTNS-Ⅱ共同利用に当たっては、前もって多くの研究分野でこれに類した準備にかなりの努力が傾けられた。同様なことは低温照射技術についても云え、RTNS-Ⅱ共同利用の後半ではわが国独自の考案・製作になるクライオ・トランスファ装置が登場することになるが、この件についても別の機会に述べることにする。

尚本報では中性子照射又は照射という言葉が多く使われるが、特にことわらない限り、RTNS-Ⅱによる核融合中性子、即ち14 MeV中性子照射を意味する。

1. 金属および合金の照射効果

核融合炉材料として期待される理想像と現存する材料との間には余りにも大きなギャップがあり過ぎる。そのギャップを一步一步縮めるには基礎的な面での知識の集積が必要である。

1.1 ミクロ組織

1.1.2 純金属

透過電子顕微鏡(Transmission Electron Microscopy, TEM)用の試料はディスク状をしており、その大きさは径3 mm、厚さ50 μmである¹⁾。このような極芸ディスクを用いた理由は、カスケード-カスケード間相互作用の間接的効果として重要な役割を果たすと思われる点欠陥(格子間原子(Interstitial Atom: I))は容易に表面から逃れ去るため、Iの拡散による影響を除けるという利点、言い換えると一旦生成した空格子点集合体(Vacancy Cluster: V集合体)が、カスケード域から放出されたIによって消滅する頻度を最小にし、一次損傷の原型に近い組織を示してくれる利点²⁾、を利用したかったためである。

TEM観察では生成した欠陥を凍結して観察し易くするのに、低温照射、低温観察という手法がよく用いられる。そのためまえがきの項で一寸ふれたように低温照射した試料を液体チッ素又は液体ヘリウムで冷したまゝ、TEMへ移すためのクライオ・トランスファ装置が開発され、実用に供された^{1,3,4,5,6)}。この装置を用いて20 K以下、 10^{20} n/m²⁶⁾の照射後24~130 KでTEM観測される欠陥はAu^{1,3,5,6)}、Cu^{1,3,5,6)}、Ag^{1,3,6)}、Ni^{1,5,6)}とV⁶⁾ではI型で、はじき出し損傷カスケード中のV型コア中ではまだV集合体が形成されていない。従ってTEMで見える欠陥は、上述の金属の場合V型欠陥はサブミクロの大きさに凍結されて見えず、カスケードから放出されたI-原子がTEMで見えるI集合体をつくっている。勿論V集合体

が見えてくるのはV欠陥が熱的に動き得る温度以上になってからのことであるが、この温度より低い温度のところでも、照射量を増大させるとTEMで見えるV集合体になる。例えばAuの場合 $20\text{ K } 6 \times 10^{20} \text{ n/m}^2$ がこの線量に相当し、CuとNiでは更にかなり高い線量のところになる。このようにV欠陥が熱的に動き得るよりはるかに低い温度において、高照射量下でV集合体が見えてきたのは、生成されたカスケードコアから放出されたカスケード・エネルギーが結晶中を伝播し、予め生じていたカスケード中のサブミクロのV欠陥をV集合体にまで成長させたためで、いわゆるカスケードの重り合いによって容易に現れてきたものと考えることができる。他方Al^(1,3,7,8)の場合 $20\text{ K } 1.8 \times 10^{21} \text{ n/m}^2$ 照射後 150 K のTEM観察では何も欠陥が見つからず、 323 K に等時焼きなましても欠陥は現れなかった。同じようなことはFe^(1,3,7,8)、Si⁽¹⁾とMoについても云える。ところが中性子照射済Alを長時間にわたり 150 K でTEM観察し続けると欠陥が見えてくる。即ちこのことは、しきい値以下の 100 keV の電子線照射により、欠陥生成が誘起されたことを意味している。この際誘起された欠陥の91%がI型で、更に電子線照射したものを 273 K において等時焼きなますとV集合体が現れてくる。従って低温照射したAl中には単一の或いはTEMで見えないサブミクロのI型及びV型欠陥が存在し、それが電子線照射によって誘起拡散を起し前者は 150 K 前後で、後者は 273 K 前後でそれぞれの集合体を形成したものと考えることができる⁶⁾。Si⁽¹⁾の場合は大体Alの場合と同じであるが、Fe^(1,3,7)の場合TEMによる電子照射をしても欠陥は現れなかった。そこでFeの場合陽電子消滅(Positron Annihilation: PA)法によりTEMで見えない欠陥を同定しようと試みた。それによると常温 $2.45 \times 10^{20} \text{ n/m}^2$ 照射を、残留抵抗値 $3,500^{9,10,11)}$ 、結晶粒 1 mm の純鉄に行うと図1に示すように焼きなまし

温度の関数として陽電子の短寿命 τ_1 、長寿命 τ_2 、 τ_2 の強度 I_2 が求まり、 τ_2 即ち欠陥による陽電子の寿命が 300 ps より長いことより微小ボイド(3次元のV集合体で約10個のVを含むもの)の存在が確められている。尚 τ_1 はマトリックス中での陽電子の消滅寿命に相当し、図中の点線は陽電子のトラップサイトとして微小ボイドしかないとして計算で求めた τ_1 である。実線と点線の「ズレ」は τ_1 、 τ_2 以外に陽電子消滅のトラップとして何か別のトラップサイトがあることを示唆している。これは微小格子間原子集合体あるいは小さな転位ループ(I-loop)であると考えられる。 τ_2 が 200°C より高温で大きくなるのは微小ボイド径が大きくなるためで、このボイドは 300°C 付近で消えてしまう。PA法によるその他の研究としてNi⁽¹²⁾、Mo⁽⁹⁾の例が報告されている。純金属ではないがCu₃Au^(5,6)の

Fig. 1. Isochronal annealing data of positron lifetime parameters obtained for pure iron irradiated by fusion neutrons (RTNS-II, R. T., $2.45 \times 10^{20} \text{ n/m}^2$)^(10,11).

規則並びに不規則合金について $20 \text{ K} (5 - 9) \times 10^{20} \text{ n/m}^2$ 照射, $19 \text{ K} \sim 39 \text{ K}$ で観察した結果は大部分が I 集合体であった。

TEM 観察は上述の低温照射の他に, 常温並びに高温照射を各種金属に適用した場合の結果についても数多く報告されている。

以上種々な金属に対する 14 MeV 中性子低温照射により出現したマイクロ組織を, TEM 観察した結果について述べて来たが, とくに注目に値するのは 14 MeV という高エネルギー粒子によるカスケード衝突で生ずる欠陥の統一的な解釈を反跳エネルギースペクトルを用いて行っているものがある, かなりの成果を得ているので以下簡単に触れておきたい¹³⁾。一例として Cu ¹⁴⁾ をとりあげるが, Au や Ag の場合と違って Cu の場合サブカスケードがそれ程密に分布していないので, サブカスケードを生み出した初めの 1 つの衝突ヘグループ分けすることは中々むづかしい。そこで初めの衝突を引き起す一次はじき出し原子 (Primary Knock-on Atom : PKA) が有するエネルギー, E_{PKA} , を考えることにするが, このエネルギーの可成りの部分は電子励起など非弾性衝突に使われて, 損傷組織を作るのに必要な損傷エネルギー, E_D , は, 表 1 に示すようになりに小さい。サブ

カスケードから生成する積層欠陥四

Table 1. Relation between E_{PKA} and E_D ¹⁴⁾

面体 (Stacking Fault Tetrahedron

: SFT) は Cu の場合 V 型欠陥であ

る。SFT はサブカスケードのエネ

ルギー, E_{SC} , を越えると安定な STF になると仮定すれば, SFT をつくるに必要なサブカスケードの数, N_{SC} , はフレンケル対を作るのに用いられる Kinchin-Pease のモデルに従って,

$$N_{\text{SC}}(E_{\text{PKA}}) = E_D(E_{\text{PKA}}) / 2E_{\text{SC}} \quad (1)$$

と書ける。

次に実験に用いた中性子線量と TEM 観察された SFT の数密度が下記の式から求めた SFT の数密度に合うように E_{SC} を決定する。

$$\text{線量} \times \int_{E_{\text{SC}}}^{E_{\text{max}}} N_{\text{SC}}(E_{\text{PKA}}) \frac{d\sigma'}{dE} dE_{\text{PKA}} = \text{SFT の数密度} \quad (2)$$

ここで σ' は断面積であって $\frac{d\sigma'}{dE}$ は Logan と Russel¹⁵⁾ が 14 MeV 中性子の Cu PKA スペクトルに対して, 理論的に計算した値を使用する。多くの試行錯誤の結果 Cu の場合 E_{SC} の値として 10 keV の値を得た。この値は 1000 keV の PKA エネルギーでは表 1 及び 1 式より 20 ケの SFT をつくることに相当し, 200 keV の PKA では 5~6 ケの SFT を生ずることを意味している。従ってカスケードの数密度は

$$\text{線量} \times \int_{E_{sc}}^{E_{max}} \frac{d\sigma'}{dE} dE_{PKA} = \text{カスケードの数密度} \quad (3)$$

となる。カスケードの数密度を求めるためのグループ化は、近づいているV集合体は1つのPKAから生じ、グループの全数はカスケードのそれに合わせ、平均として1つのグループに5, 6のSFTが入るようにした。そしてグループ中の欠陥集合体の数の多い方からPKAエネルギースペクトルに当てはめを行って得られた図が、Cuの場合図2, Au, Agの場合それぞれ図3と図4である。更にこれらの図からグループ、

Fig. 2. Primary recoil energy spectrum in copper for the irradiation with 14 MeV neutrons, and the fitting of observed numbers of subcascade defects in defect group¹⁴⁾.

Fig. 3. Primary recoil energy spectrum in gold for the irradiation with 14 MeV neutrons, and the fitting of observed numbers of subcascade defects in defect groups¹³⁾.

Fig. 4. Primary recoil energy spectrum in silver for the irradiation with 14 MeV neutrons, and the fitting of observed numbers of subcascade defects in defect groups¹³⁾.

即ちカスケードの大きさが算出できるので、カスケード領域へ注入された1原子当たりのエネルギーを、 E_{PKA} 即ち E_D の関数として表わすことが出来る。表2はCuについて求められたもので、低い E_{PKA} 、即ち低い E_D 程原子1個に与えられるエネルギーは大きいことがわかる。全く同じ取り扱いを Cu_3Au について行った報告もある¹⁶⁾。

Table 2. Relation between deposited energy and cascade zone size¹⁴⁾

E_{PKA}	E_D	Zone size	E_D/atom
100keV	64keV	16nm	0.35eV/atom
200keV	118keV	25nm	0.17eV/atom
400keV	208keV	40nm	0.07eV/atom
600keV	283keV	53nm	0.04eV/atom
800keV	347keV	65nm	0.03eV/atom

5ケ年間系統的に蓄積された照射済試料により更に進んだ照射後実験と解析が現在も進捗しつつあり、より全体的かつ詳細な結果が得られつつある^{17,18)}。特にRTNS-II利用年

度の後半から企画遂行されて来た原研の材料試験炉(Japan Material Testing Reactor: JMTR)による制御核分裂中性子照射の結果が出つつあって、これとRTNS-IIの結果との定量的比較から真の意味での核分裂・核融合中性子照射相関が求まりつつある^{19,20)}。

1. 1. 2 実用合金

改良型オーステナイト系ステンレス鋼であるJPCA²¹⁾(Japanese Prime Candidate Alloy: Fe-15.80 Ni-15.27 Cr-2.66 Mo-1.88 Mn-0.53 Si-0.24 Ti-0.055 C-0.024 P-0.0032 B)の200-450℃ 5.4×10^{22} n/m²の照射したもののTEM観察と高純度モデル合金(Fe-15 Cr-16 Niにそれぞれ0.25 Ti, 0.25 Ti, 0.06 C, 0.5 Siを加えた4種の合金)に同上照射条件で照射したもののTEM観察との比較、SUS 316を90℃, 290℃, $1.89 \times 10^{21} \sim 4.11 \times 10^{22}$ n/m²照射後TEM観察した結果、欠陥集合体(転位ループ)が線量(はじき出し数(displacement damage per atom)で表示: dpa)の1/2乗に比例することを確認した研究²²⁾などがある。

PA法によるマイクロ組織の研究ではFe-10Cr合金⁹⁾, Fe-10Cr-0.07C⁹⁾の報告がある.

その他V金属及びV合金^{23,24,25)}についても系統的な研究が行われている.

1. 2 機械的性質

1. 2. 1 純金属

単結晶高純度鉄²⁶⁾は水素気流下浮遊帯域精製精法により精製後, 冷間加工して鉄線に仕上げ, それに通常の歪焼きなまし法を適用して作成した. 純度は残留抵抗値で4000, 引退軸方位は図5に示す方向で, ゲージ間の距離5mmの微小試験片に歪速度 $1.7 \times 10^{-4}/s$

(290 K)を負荷し実験した. 照射は常温又は333 Kのところで, 線量は主として $2.7 \times 10^{21} \text{ n/m}^2$ であった. 290 Kにおける降伏強さ(0.2%耐力)の増加 $\Delta\sigma$ を照射量に対してプロットしたのが図6である. 引き面は(101)で中性子の照射線量には無関係であった. $\Delta\sigma$ の増加は $3.6 \times 10^{19} \text{ n/m}^2$ のところで急激に起っており, $2.7 \times 10^{21} \text{ n/m}^2$ まで照射量を増加させても $\Delta\sigma$ のその後の増加は僅かであった. 応力下で転位が熱活性運動する際重要な因子となるのが熱活性化面積 A^* で

$$A^* = v^*/b = (-1/b)(\partial U(\sigma)/\partial \sigma) \quad (4)$$

で与えられる. ここで v^* は活性化体積, $U(\sigma)$ は転位運動の活性化エネルギー, b はバーガース・ベクトル,

Fig. 5. Tensile axis orientation of iron (circle) and molybdenum (triangle) single crystals²⁶⁾.

Fig. 6. Fluence dependence of yield stress and activation area for 14 MeV neutron irradiated iron. The result of Diehl et al. is based on the deformation at 298 K²⁶⁾.

σ は降伏応力である。 A^* は具体的には転位が障壁を乗り越えて描く面積と考えられるが、実験上では、歪速度が10倍も大きくできる可変の歪速度試験により評価することができる。単結晶高純度鉄の場合図6にも見られるように照射線量による $\Delta\sigma$ の変化と A^*/b^2 の変化は非常によく対応している。その結果 $\Delta\sigma$ の増加は中性子照射線量を増加させることにより生じた種々のイントリンシックな欠陥と熱的に活性化されたらせん転位が相互に影響を及ぼし合った結果であると説明されている。多結晶の高純度鉄では、図6に引用されているもの、或いは他の報告^{9,27)}にも見られるように、 $\Delta\sigma$ の増加に潜伏期が見られる。この潜伏期は恐らく照射量の低い $2 \times 10^{21} \text{ n/m}^2$ では結晶粒界が、動き得る欠陥の吸収場所(シンク)として働いているものと考えることができる。降伏応力下の変形部分のマイクロ組織と中性子照射線量との関係は表3²⁸⁾に見られる通りで、ループの他に623～

723 Kでの照射では僅かなが

らボイドの生成が認められる。

尚同表中には比較のため核分

裂中性子による照射結果も併

せ記載してある。

鉄²⁹⁾以外の研究としては、
多結晶の高純度アルミニウム²⁹⁾、
チタン²⁹⁾、バナジウム^{27,29,30)}、
ニッケル^{29,30,31)}、銅^{27,29)}、ジ
ルコニウム²⁹⁾、ニオブ²⁹⁾、
モリブデン²⁹⁾、銀²⁹⁾、金^{29,30)}
単結晶高純度モリブデン²⁶⁾な
どがある。

1. 2. 2 実用合金^{29,32)}

フェライト鋼³²⁾は照射下におけるスエリングがオーステナイト鋼に比べて小さいことから核融合材料として注目を集めている。試験に供した鋼種は表4に示す通りで、Fe-(9～11%)Cr-(1～2%)Moが基本組成で、相としてはマルテンサイト単相

Table 3. Defect clusters and increase in the yield strength²⁸⁾

irradiation			defect cluster size, number density (nm, $\times 10^{18}/\text{m}^3$)		increase in yield strength (MPa)	
facility	temp. (K)	dose (n/m ²)	loop	void	meas.	calc.
JMTR	473	10^{23}	n, ob. *	n, id. *	85	0
JMTR	573	10^{24}	40, 180	n, ob.	80	66
JOYO	673	10^{24}	8, 8, 90	27, 5	43	45
JOYO	673	10^{25}	63, 140	76, 17	100	113
JOYO	673	10^{26}	v, lg., few *	32, 36	45	37
JOYO	773	10^{25}	few	few	34	0
JOYO	773	10^{26}	3, 2, 280	8, 3, 210	35	22
JOYO	873	10^{25}	few	few	5	0
RTNS-II	473	1.0×10^{22}	n, ob.	n, ob.	30	0
RTNS-II	563	4.8×10^{22}	33, 22	n, ob.	67	21
RTNS-II	623	4.0×10^{22}	2, 2, 29	few	15	6
RTNS-II	723	9.0×10^{21}	1, 9, 290	few	10	8, 8
RTNS-II	823	2.9×10^{21}	2, 5, 110	n, ob.	5	5, 7

*n, ob. : not observed, n, id. : not identified, v, lg. : very large

Table 4. Chemical Composition of Specimens Used (wt. %)³²⁾

Mark	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	V	Nb	Fe
JFMS	0.050	0.67	0.58	0.009	0.006	0.94	9.85	2.31	0.12	0.06	bal.
J-1	0.068	0.017	0.50	0.002	0.002	—	9.24	1.76	0.16	0.05	bal.
45	0.05	0.16	0.55	0.015	0.012	—	9.27	1.82	0.11	0.055	bal.
29	0.054	0.17	0.63	0.010	0.005	—	9.17	0.96	0.15	0.05	bal.
C-8	0.045	0.41	0.51	0.007	0.002	—	9.10	1.08	0.20	0.25	bal.
C-9	0.20	0.35	0.70	0.005	0.007	0.56	11.40	1.01	0.30	—	bal.
C-12	0.06	0.34	0.51	0.022	0.004	0.14	9.48	2.1	—	—	bal.

(Mark 29 : Martensite, Others : Martensite + Ferrite)

又はマルテンサイトとフェライトとの2相鋼である。照射は20Kより823 Kの範囲で行っている。ゲージ間距離5 mmの微小試験片を 1.3×10^{-4} /sの歪速度で常温において引張り、常温照射の線量と降伏応力の増加を調べたものが図7³³⁾である。マルテンサイト相を示す29以外のフェライト+マルテンサイト2相鋼では照射硬化の強い照射量依存性を示しており、降伏応力の増加はほぼ照射量の1/2乗に比例している。この事は照射による降伏応力の増加が照射欠陥集合体の分散硬化による事を物語っている^{34,35,36,37,38,39,40)}。また増加が直線的であることから、この程度の低い照射量ではカスケードの重り合いもほとんどない事を示している。照射温度を変化させたとき、降伏強さが照射量によってどのように変わるかを示したのが図8であって、未照射の試験片に比べて比較的

低い温度並びに常温照射では照射硬化が、高温照射では照射軟化が起っていることがわかる。硬化から軟化に移る温度は鋼種によって違うようである。照射硬化の原因については透過電子顕微鏡でも見えるか、見えない位の小さな空格子点欠陥の生成によるものとされているが、照射軟化の原因については多くの考え方はあるものの、そのうちどれがもっとも良いのかについては現在わかっていない。2相ステンレス鋼のJFMS (Japanese Ferrite /Martensitic Stainless Steel : Fe-10Cr-2Mo-0.21V-0.06Nb-0.94Ni)を20 Kで低温照射し、それを4.2 K, 77Kおよび300 Kで照射後引張試験を行った結果を図9³³⁾に示す。図にはその他のフェライト鋼の結果も併せて記したが、JFMS以外の鋼種では20K照射300 K引張試験の結果がないので、止むを得ず300 K照射300 K引張試験結果を補正(20K照射300 K試験の照射硬

Fig. 7. Fluence dependence of yield strength increase under 300 K irradiation³³⁾.

Fig. 8. Irradiation temperature dependence of yield strength³³⁾.

化は 300 K 照射 300 K 試験の照射硬化の半分という実験事実に基づく補正)をしたものを括弧でくくって示してある。300 K における降伏応力の大部分は 300 K で欠陥が消失しない いわゆる非熱的成分の寄与によるものと仮定すれば、300 K 以下の温度での降伏応力の熱的成分の寄与は、300 K での降伏応力との差を見ればよい事になる。20 K 照射したものを 77 K と 4.2 K の低温で降伏応力を調べたものでは、熱的成分が大きく寄与していることがわかる。更にこの図からフェライト相の体積分率が高い JFMS や C-12 では熱的成分が大きく、フェライト相が少いかまたはほとんどない 29 や 45 の鋼種では熱的成分が少いことがわかる。一方熱的成分の多い JFMS や C-12 は低温照射下で大きな伸びと、大きな断面収縮率、並びに破壊破面もディンプル状と靱性に富んでいるのに反し、29 や 45 では靱性もなく、断面収縮率もほとんどゼロで、破壊破面も

劈開状と脆性が著しいことを示している。これらの差は Ni によるとされているが、いずれにせよ JFMS 及び C-12 が低温照射下ですぐれた性質を示すのは、降伏応力に寄与する熱的成分が多いことに関係しているものと思われる³³⁾。JFMS と純鉄との比較を図 10 に示す。両者の間で照射による強度変化挙動が著しく異なっていることが示されており、純鉄の 20 K 照射で見られる照射軟化から照射硬化 (50 K 以下での) への変化は JFMS では認められない。フェ

Fig. 9. Test temperature dependence of Yield stress for 20 K irradiated steels³³⁾.

Fig. 10. Temperature dependence of yield stress comparing high-purity iron and the dual-phased steel, JFMS, irradiated at 20 and 300 K³³⁾.

ライト鋼以外ではオーステナイト系ステンレス鋼の SUS 304, SUS 306²⁹⁾ などの照射硬化についての報告もある。

1. 2. 3 その他の合金²⁹⁾

合金として Al-Si, Al-Mg-Li⁴¹⁾, V-C, V-Ti, V-Fe, V-Co, V-B, Ni-Si, TZM⁴²⁾, 非晶質合金として Pd₈₀Si₂₀, Fe₈₀B₂₀, Fe₇₈Si₁₀B₁₂, Zr₇₀Mo₃₀, Zr_xCu_{100-x} などを取り上げ, 常温で 5×10^{22} n/m² を微小試験片に照射後, 引張応力の照射量依存性を調べた結果, 1・2・1 並びに 1・2・2 で述べた結果とも併せ考えると照射硬化については次の 3 つのグループに分けられることを確めている。

- 1) 照射硬化をほとんど起さないもの: Al, Al-Mg-Li と非晶質合金
- 2) 僅かに照射硬化を起すもの: V, Mo, TZM, フェライト鋼, Cu 合金
- 3) 大きな照射硬化を起すもの: Fe, Ni, Au, Cu, SUS 316

2. 機能材料の照射効果

2. 1 核融合炉診断系機能素子⁴³⁾

照射試験を行った機能素子としては光ファイバー, 光電子素子, 電子素子並びに放射線検出素子などである。

2. 1. 1 光ファイバー^{44,45,46)}

光ファイバーは電磁場の影響を受けないことから, 特に核融合炉周辺の伝達システム系に用いられる可能性が大きい。試験方法は常温照射下において誘起される伝達損失を, OH 基の含有率の高い Step Index (SI) 型の純粋石英コア光ファイバーには 0.85 μm の波長の光, OH 基の含有率の低い SI 型純粋石英コア光ファイバー及び Single Mode (SM) 型の純粋石英コア並びに Ge をドープしたコア光ファイバーには 1.3 μm の波長を用いて測定した。照射線束 $(1-2) \times 10^{14}$ n/m²·s で照射した場合の結果を図 11 に示す。図に見られるように結果は 3 つのグループに分けられる。すなわち A グループは照射量に比例する大きな損失と少い回復, B グループは照射中は照射量に比例する損失を生じるが照射を止めるとほとんどが回復し, C グループは損失が飽和し, 照射後は B グループと同じようにはほとんど損失が回復するものと分けられる。表 5 にはこれらの結果を定量的に数値でまとめたものであって, 誘起された損失は照射後 24 時間経過して残っている損失から計算されたものである。この量は云いかえると未回復の量であって, これ丈の未回復量は照射のたびに蓄積されるものと考えられる。耐放射線性の観点から光ファイバーを見ると, OH 基濃度の高い純粋石英コアの光ファイバーが回復も早く, しかも誘起伝達損失も少くすれた耐放射線性を有する光ファイバーであるという事ができる。

2. 1. 2 光電子素子^{43,45,47,48)}

光電子素子として発光ダイオード (Light Emitting Diode: LED), PIN シリコンフォトダイオード及び光電子増倍管を取りあげた。損傷の結果を他の素子の結果とともに図 12 に示すが, 光電子素子の量子

Fig. 11. Fusion neutron response of optical fibers⁴⁴⁾.

効率は照射量の増加につれて低下する。

半導体でできているLED並びにPIN

シリコンフォトダイオードは特に放射

線に対して敏感で、 10^{15} n/m²という

低い照射量でも劣化する。PINシリ

コンフォトダイオードの場合光パルス

入力に対する応答時間の悪化もおこる。

光電子増倍管では^{48,49)}、表6に示す構

成のものを照射し図13に示す結果を得

た。図には相対的利得の変化を与えて

おいたが、中性子線量が 1×10^{17} n/m²まではどの電子増倍管にも変化が見られないが、 $\sim 5 \times 10^{18}$ n/m²

あたりからそれぞれの増倍管に差が現れてくる。いずれにしてもどの増倍管も $\sim 10^{18}$ n/m²で利得の劣化

が現れ、 $\sim (5-7) \times 10^{18}$ n/m²ではUVガラスは褐色に、溶融並びに人工石英は薄紫色に着色し、光

の伝達度は悪化する。またどの増倍管にも印加電圧と光電流増倍度との関係に照射による変化が現れている

ことから、ガラス以外の光電子増倍管の材質にも照射による劣化がおこっていることがわかった。その一つ

の具体例としては照射による暗電流の増加があげられる。これら劣化したものの機能回復にはかなりの長い

時間を要するものと思われ、今後の問題である。

Table 5. Fusion neutron damage in optical fibers⁴⁴⁾

Fiber type	Core type	Group	Wavelength [μ m]	Induced loss rate [dB/km $\cdot$ (n/cm ²)]
Step-index	Pure silica [high (OH)]	C(B)	0.85	$\sim 1 \sim 7 \times 10^{-14}$
Step-index	Pure silica [low (OH)]	C(B)	1.3	$\sim 1 \sim 5 \times 10^{-14}$
Single-mode	Pure silica	B	1.3	$\sim 1 \sim 7 \times 10^{-14}$
Single-mode	Ge-doped	A	1.3	$\sim 3 \sim 7 \times 10^{-13}$

Fig. 12. Relative efficiency vs. fusion neutron fluence for various optical components and detectors⁴³⁾.Table 6. Construction of irradiated photomultiplier tubes⁴⁹⁾

Type	Model No.	Material			Dynode structure (Number of stages)
		Photocathode	Dynode	Window	
Head-On	R375	Multialkali	Sb-Cs	Synthetic Silica	Box-and-grid (10)
	R759	Cs-Te	Sb-Cs	Fused silica	Linear focused (10)
	R760	Bialkali	Sb-Cs	Fused silica	Linear focused (10)
	R1463	Multialkali	Sb-Cs	UV	Linear focused (10)
	R2027	Multialkali	Sb-Cs	Fused silica	Linear focused (10)
	R2558	Na ₂ K	Sb-Na-K	Fused silica	Linear focused (10)
Side-On	R106	Sb-Cs	Sb-Cs	Fused silica	Circular cage (9)
	R166	Cs-Te	Cs-Te, Sb-Cs	Fused silica	Circular cage (9)
	R955	Multialkali	Multialkali	Fused silica	Circular cage (9)

Fig. 13. Relative gain vs. 14-MeV neutron fluence for various photomultiplier tubes⁴⁹⁾.

2. 1. 3 電子素子^{43,50,51)}

半導体素子の問題となる照射効果と耐用線量* (Hardness Level) を表7にまとめている. 各モデル素子について10個以上の多数の素子の照射を行い, 照射後1日以内の相対的な劣化量を測定した.

Table 7. Fusion neutron irradiation effects and hardness levels of electronic components^{50,51)}

Type	Typical irradiation effects	Hardness levels (n/m ²)
Medium-frequency bipolar transistor	Decrease in current gain (h_{FE}) and increase in leakage current (I_{CBO})	$2 \times 10^{15} \sim 5 \times 10^{15}$
High-frequency bipolar transistor		$1 \times 10^{16} \sim 5 \times 10^{16}$
JFET (Si)	Decrease in transconductance and drain saturation current	$1 \times 10^{17} \sim 7 \times 10^{17}$
MOSFET	increase in gate current and shift of pinch-off voltage	
SCR	Increase in forward blocking voltage	$1 \times 10^{16} \sim 3 \times 10^{16}$
UJT	Increase in valley point and decrease in peak point voltage	$1 \times 10^{16} \sim 3 \times 10^{16}$
Switching diode	Degradation of reverse recovery time	$1 \times 10^{19} \sim 2 \times 10^{19}$
Tunnel diode	Increase in valley point current	$5 \times 10^{18} \sim 1 \times 10^{19}$
Zener diode	Shift to Zener voltage	$1 \times 10^{19} \sim 2 \times 10^{19}$
LED	Decrease in light emission efficiency	$1 \times 10^{15} \sim 5 \times 10^{15}$
Si PIN photodiode	Decrease in quantum efficiency and increase in leakage current	$1 \times 10^{15} \sim 3 \times 10^{16}$
Si avalanche photodiode	Decrease in quantum efficiency and increase in leakage current	$1 \times 10^{15} \sim 4 \times 10^{15}$
Operational amplifier	Degradation of gain-band width product and slew rate and increase in input offset voltage	$5 \times 10^{14} \sim 2 \times 10^{15}$
Voltage comparator	Increase in input offset voltage	$1 \times 10^{15} \sim 5 \times 10^{15}$
TTL gate	Fall in high-level output voltage and rise in low-level output voltage	$7 \times 10^{17} \sim 2 \times 10^{18}$
ECL gate		$5 \times 10^{18} \sim 1 \times 10^{19}$
CMOS gate	Shift of threshold voltage and degradation of output rise and fall time	$1 \times 10^{17} \sim 3 \times 10^{17}$
Dynamic RAM	Single event upset	

トランジスタの照射効果としての電流利得の減少は⁵²⁾, はじき出し損傷により導入された再結合センターの増加によるため, 高周波トランジスタの方が低周波トランジスタに比べて照射効果を受け難いのは, ベース領域を通過するキャリアの通過時間が短いため, キャリアの生き残る確率が大きいためである. なお npn, pnp 型の差はほとんど見られなかった. 接合型 FET (Junction Field Effect Transistor : JFET) の場合は, 利得は少数キャリアの寿命の低下より, むしろはじき出し損傷により導入された欠陥の多数キャリアに対する散乱効果に強く影響される. MOS (Metal Oxide Semiconductor) 型 FET の場合も JFET と基本的には同じであるが, MOSFET は接合中に SiO₂ 層があり, これに放射線誘起電荷がトラップされると容易に電気的特性が変化するので, はじき出し損傷よりもイオン化の効果をより強く受けることになる. この意味から特に MOS 構造素子の場合, イオン照射または γ 線照射の方が, 中性子照射よりも照射効果が大きく現われる⁵²⁾.

ダイオード⁵²⁾ は一般に照射後, 逆方向電流が増加し, 順方向電圧が減少する. 照射効果としてはスイッチングダイオードでは逆方向回復時間の劣化, トンネルダイオードでは谷部電流の増加, ツェナーダイオード

*主要な性能が 10 %劣化する線量

ではツェナー電位のシフトなどが起る. $2 \sim 3\%$ 電圧・電流特性が変化する照射量はスイッチングダイオードで $\sim (1-2) \times 10^{19} \text{ n/m}^2$, トンネルダイオードで $\sim 5 \times 10^{18} \text{ n/m}^2$, ツェナーダイオードで $\sim 1 \times 10^{19} \text{ n/m}^2$ であった.

演算増幅器, 電圧比較器, トランジスタートランジスタ論理 (Transistor-Transistor Logic: TTL) ゲート, エミッター結合論理 (Emitter Coupled Logic: ECL) ゲート並びに相補型 MOS (Complementary MOS: CMOS) などを照射し, 電圧伝達特性を照射前後において, 1 mV の精度で測定した. 演算増幅器は回路中に多くのバイポーラトランジスタを含んでいるので, 10^{15} n/m^2 以下の線量で利得の劣化が起る. 利得・帯域幅積が 10% 劣化する耐用線量は, $\sim 5 \times 10^{14} - 2 \times 10^{15} \text{ n/m}^2$ である. 電圧比較器の耐用線量は入力オフセット電圧が 1 mV シフトする線量とすると, $\sim (1-5) \times 10^{15} \text{ n/m}^2$ になる. TTL ゲートは照射後高レベル出力電圧が減少し, 低レベル出力電圧が増加する. 論理スイング電圧が 10% 変化する線量を耐用線量とすると, TTL の耐用線量は $\sim 7 \times 10^{17} - 2 \times 10^{18} \text{ n/m}^2$ である. ECL ゲートは定性的には TTL ゲートと同様で, 耐用線量は $5 \times 10^{18} - 1 \times 10^{19} \text{ n/m}^2$ で, TTL ゲートより耐放射線性に優れている. 理由は ECL ゲートは TTL ゲートより, より小さい論理スイングと利得を有しているため, デバイス中でのバイポーラトランジスタによる電流利得劣化に左右される度合いが少ないためである. 尚 TTL ゲート並びに ECL ゲートのスイッチング特性の劣化は特に認められなかった. CMOS の照射効果は TTL 並びに ECL ゲートのそれと異なり, 高レベル又は低レベル出力電圧は変化しないものの, しきい値電圧は大きく影響を受ける. その理由は CMOS ゲートを流れる電流は僅かで, チャネル抵抗の変化は出力電圧に殆ど影響を与えないからである. しきい値電圧のシフトは SiO_2 絶縁層中にトラップされた電荷によるもので, しきい値が 10% シフトする耐用線量は CMOS で $\sim (1-3) \times 10^{17} \text{ n/m}^2$ であった. なお出力の立ち上り時間および立ち下り時間等のスイッチング特性は明らかに $5 \times 10^{17} \text{ n/m}^2$ 以上で劣化した.

2. 1. 4 放射線検出素子^{43,51,53)}

検出素子としては, シリコン表面障壁検出素子 (Silicon Surface Barrier Detector, SSD), ZnS や CsI のような無機シンチレータ, プラスチックシンチレーター (BC-412) 及び液体シンチレーター (U N 1993) などを取り上げた. 尚 SSD の空乏層の厚さは約 $200 \mu\text{m}$ で, CsI 及びプラスチックシンチレーターの厚さは 1 mm と 3 mm であった. 得られた結果を図 14 に示すが, 出力信号が 10% 減少する照射量は SSD の場合 $2 \times 10^{15} \text{ n/m}^2$ (電流パルスモード) と $5 \times 10^{16} \text{ n/m}^2$ (電荷パルスモード) であり, ZnS, CsI, プラスチックシンチレーター, 液体シンチレーターの場合 $5 \times 10^{18} - 1 \times 10^{19} \text{ n/m}^2$ の範囲であった.

2. 2 超電導材料⁵⁴⁾

超電導材は欠陥が回復しにくい低温で使われるので, 問題はかなり多いと思われる. こゝで選んだ材料は in-situ 法でつくった Nb_3Sn 材 (安定材付) と非晶質 MoSi 材であって, 前者はすぐれた歪特性を有し, 後者は耐放射線性があると云われ, それぞれ特徴を備えた将来有望な材料である. 照射線量は液体ヘリウム

Fig. 14. Relative efficiency vs 14 MeV neutron fluence for various radiation detectors⁴³⁾.

温度で $1 \times 10^{22} \text{ n/m}^2$ というこの分野では従来の 1 桁大きい値まで到達した。試験方法は 8 T および 12 T の磁場下極低温で臨界電流値, J_c , の変化を追跡した。図 15 には Nb_3Sn の結果を示したが, $1 \times 10^{22} \text{ n/m}^2$ 12 T で J_c は 5% 劣化した。他方 Brookhaven National Laboratory (BNL) でつくられたモノフィラメント Nb_3Sn は $1 \times 10^{22} \text{ n/m}^2$ でも劣化はなく, 非晶質 MoSi は $1.0 \times 10^{22} \text{ n/m}^2$ でもほとんど変化が見られなかった。

3. セラミックス及びその他材料の照射効果

一般に金属に比べてセラミックスの照射損傷はその原子成分が多いことにより, 複雑であると云われている。

ここではセラミックスとして酸化物, 炭化物をとりあげ, その他材料として有機高分子を考える。

3.1 酸化物⁵⁵⁾

酸化物の照射効果を調べる方法として数多くのものがあるが, 照射下で体積変化を調べる方法は体積膨脹がフレンケル対の生成数に比例するという大きな特長を利用している。これに反し, 金属など

Fig. 15. Change in J_c for Nb_3Sn against neutron fluence⁵⁴⁾.

でよく用いられている電気抵抗の変化をセラミックスに用いた場合、一般に照射量に比例しないと云われている。体積変化を調べるに当って図16の膨脹計を試作した⁵⁶⁾。この装置は安定性にすぐれ、かつ精度の高いキャパシタンス型の膨脹計である。図中AとBは1つのステンレス鋼より切り出したスプリングブロックで装置の心臓部を形成し、これが試験片の膨脹を感知し動くようになっている。この膨脹計には2つの試験片がセットされ、一方のみ照射して膨脹させ他の参照試験片との差を2つの電極間に生じたキャパシタンスの差として知るものである。この装置の精度は長さ 0.81×10^{-6} に対しトランスデューサーの変化分は 1.0×10^{-3} pF であった。試験片としては単結晶 MgAlO_4 と c 軸に平行又は垂直に切り出した単結晶 Al_2O_3 を用いた。3週間照射での結果を図17に示す⁵⁷⁾。 Al_2O_3 の場合 c 軸に平行なものが a 軸に平行なものに比べて長さの変化は大きい、いわゆる膨脹に異方性のあることがわかった。 MgAlO_4 の場合膨脹は Al_2O_3 の場合に比べて約 $1/5$ と小さいことも明らかになった。14 MeV 中性子照射で生じる1次ノックオンO, Al, Mg 原子はそれぞれ 78, 40, 30 keV のエネルギーを有し、これら原子の電子励起エネルギー E_c 10, 8, 6 keV 以下になって、初めてカスケード衝突を開始する。ところがこの程度のエネルギーではカスケード衝突がおこる範囲は狭いので、カスケードが重なり合うことはまずないと考えられる。これが 8×10^{17} n/m² の照射量の範囲では膨脹と照射量が直線関係を示す主な理由になっている。

3. 2 炭化物

SiCは低Z化合物であり、耐熱および耐熱衝撃性が優れているため核融合炉第一壁材として注目されている。SiCファイバーは先駆物質であるポリカーボシランのファイバーを非酸化性雰囲気下で1000℃及び1300℃に加熱処理してつくったもので、前者は非晶質、後者は平均粒子径15 μmのβ-SiCである。 4×10^{21} n/m² の照射量では、これらのファイバーの引張強度、ヤング率には変化がなく⁵⁸⁾、また密度やX線回折法により求めた動径分布関数⁵⁹⁾にも差が見られなかった。またTiC⁶⁰⁾については、低温照射済試験片の電気抵抗測定、磁化率測定、格子常数の測定等の結果をTiC_{1-x}の非化学量論と云う因子で系統化しようとの試

Fig. 16. A schematic view of the transducer, which consists of essentially two blocks: the basal block (L) and the spring block (M) fixed with screws to the former. Two specimens, one (S) to be irradiated and the other (D) for reference are separated by 2 cm and are fixed between these two blocks with springs, A and B, provided in machining process. Each of electrodes F_1 and F_2 fixed to the basal block form capacitors with an electrode G, which is a part of the movable block^{55,56)}.

みも見られる。更にこれらの試料のマイクロ組織を電子顕微鏡で調べた報告もある⁶¹⁾。

3.3 その他材料

核融合炉超電導マグネット用の絶縁材として優れた耐放射線性を有するポリイミド^{29),62)} (通称 KAPTON) についての伸び, 破断応力並びに1%フロー応力の線量依存性を図18に γ 線照射の結果とも併せて示しておいた。ポリマー複合材料としては同じく核融合炉超電導マグネット用として用いられる可能性のある表8の10種のものが試験され⁶³⁾, 絶縁性はいずれの場合も $5 \times 10^{21} \text{ n/m}^2$ まで劣化がおこらなかったと報告されている。圧縮強さについてもNo.3と4以外 $5 \times 10^{21} \text{ n/m}^2$ まで劣化が起らないし, とくにNo.5, 7, 8と9は優れた耐放射線性を示していた。

Fig. 17. Fractional length change ($\Delta L/L$) of Al_2O_3 , parallel to the c-axis and to the a-axis, and MgAl_2O_4 induced by 14 MeV neutrons. Measurements were made in situ at 50 C^{55,57)}.

Fig. 18. Mechanical property change by 14 MeV neutron and γ -ray in KAPTON polyimide film^{29,62)}.

Table 8. Structure of composites⁶³⁾

No.	Composites forms	Component materials (Weight content in %)	
		Reinforcements	Matrix resins
1	Epoxy pre-impregnated -mica paper tape	Muscovite mica paper (54) E glass cloth (10)	Phenol novolac epoxy (36)
2	Epoxy pre-impregnated -glass cloth tape	E glass cloth (53)	Phenol novolac epoxy (47)
3	Epoxy pre-impregnated -polyamide paper sheet	Polyamide paper (45) E glass paper (10)	Phenol novolac epoxy (45)
4	Epoxy pre-coated -polyimide film tape	Polyimide film (85)	Phenol novolac epoxy (15)
5	Epoxy coated and spread -glass cloth tape	E glass cloth (48)	Phenol novolac epoxy (42) Bisphenol epoxy (10)
6	Epoxy-glass cloth laminate	E glass cloth (68) Silica powder (5)	Bisphenol epoxy (27)
7	Epoxy-glass cloth laminate	E glass cloth (70)	Cycloaliphatic epoxy (30)
8	ISOX resin-glass cloth laminate	E glass cloth (60)	ISOX resin (40)
9	Unsaturated polyester- glass cloth laminate	E glass cloth (46)	Unsaturated polyester (54)
10	Unsaturated polyester- impregnated polyester felt	Polyester felt (50)	Unsaturated polyester (50)

4. 誘導放射能⁶⁴⁾

誘導放射能の測定は低放射化材料開発にとって最も重要な研究課題であるため、各種の実用に供されと思われる合金に核融合中性子を $(1-3) \times 10^{21} \text{ n/m}^2$ 程度照射後、数日から数十日にわたり主として γ 線スペクトルを測定し核種を同定するとともに、それらの放射能強度を求めた。図 19 は JPCA 2 (Fe-15.80 Ni-15.27 Cr-2.66 Mo-1.88 Mn-0.53 Si-0.24 Ti-0.048 C), 図 20 はフェライト系ステンレス鋼である FERR (Ferritic Steel: Fe-9.85 Cr-2.31 Mo-0.94 Ni-0.67 Si-0.58 Mn-0.12 V-0.06 Nb) 図 21 は核融合用低放射化 Al 合金として名大・プラズマ研(現核融合科学研究所)で開発された Al 基合金 (Al-4.1% Mg-1.7% Li) についての誘導放射能を試料から 1 m 離れたところで測定した結果である。

JPCA 2 の場合主な放射能は $^{58}_{28}\text{Ni} (n, p) ^{58}_{27}\text{Co}$ の $^{58}_{27}\text{Co}$ のもので、その半減期は 70.8 日であった。長寿命側で問題となる $^{54}_{25}\text{Mn}$ は $^{54}_{26}\text{Fe} (n, p) ^{54}_{25}\text{Mn}$, $^{55}_{25}\text{Mn} (n, 2n) ^{54}_{25}\text{Mn}$, その他 $^{57}_{27}\text{Co}$ は $^{58}_{28}\text{Ni} (n, np) ^{57}_{27}\text{Co}$ より生じたものと思われる⁶⁵⁾。FERR の主な放射能は $^{54}_{26}\text{Fe} (n, p) ^{54}_{25}\text{Mn}$, $^{55}_{25}\text{Mn} (n, 2n) ^{54}_{25}\text{Mn}$ の $^{54}_{25}\text{Mn}$ によるもので、その半減期は 312 日である。表 9 は測定された各種金属の 14 MeV 中性子に対する(反応)断面積であるが、この表から判断すれば、 $^{54}_{25}\text{Mn}$ の生成に関しては $^{54}_{26}\text{Fe}$ よりも $^{55}_{25}\text{Mn}$ による寄与の方が大きいことがわかる。アルミニウム合金の場合、放射能のもっとも強いのは $^{27}_{13}\text{Al} (n, \alpha) ^{24}_{11}\text{Na}$ に

Fig. 19. Induced Activity of a modified Austenitic Stainless Steel^[64].

Fig. 20. Induced Activity of a Ferritic Steel^[64].

Fig. 21. Induced Activity of an Al Alloy⁶⁴⁾.

よるもので, $^{29}_{11}\text{Na}$ の半減期は 15 時間であるところから, この合金では 10 日も経てば, 放射能はほとんどなくなってしまう. しかしこの際長寿命の核種 $^{26}_{13}\text{Al}$ (1.8 MeV γ , 半減期 7×10^5 yr) が生成することを懸念する向きもあるが, Al-6063 合金 (0.2 - 0.6 Si, 0.45 - 0.9 Mg, ≤ 0.35 Fe ≤ 0.1 Cu, Mn, Cr, Zn, Ti) で試験した結果では, $(2 - 15) \times 10^{20}$ n/m² 照射した場合 $^{26}_{13}\text{Al}$ の生成量は 29 μCi となり, この値を用いて $^{27}_{13}\text{Al}(n, 2n)^{26}_{13}\text{Al}$ の断面積を求めると 11 ~ 40 mb となる^{66, 67)}. 断面積がこのようにある範囲を有する理由は, 14 MeV 中性子のエネルギーが僅かに変ると, 図 22 に示すように断面積の値が大きく変化するためである^{67, 68)}.

以上の他, 実用合金として各種の Al 合金 (Al-2017, Al-7075)⁶⁵⁾, ステンレス鋼 (304, 316)⁶⁵⁾ 及び高マンガン鋼 (Fe-18.4 Mn-5.37 Cr-0.24 Ni-0.13 V-0.45 Si)⁶⁵⁾, TZM (Mo-0.48 Ti-0.10 Zr)⁶⁹⁾ などについての測定例なども示されている.

なおこゝで得られた誘導放射能の実験値と, 日本原子力研究所で開発した計算機コード THIDA^{65, 66)} による計算値との比較も行われている.

5. 増殖材からのトリチウムの回収

14 MeV 中性子照射により増殖材中に生成するトリチウムの化学形態は, トリチウム回収行程を考える際に重要であるばかりでなく, 化学形態に及ぼす照射線量, 組成, 照射温度, スイープガス組成などの影響を知ることにより増殖材中の損傷欠陥の挙動などを推量できるので基礎的な立場からも重要な因子である.

Table 9. Cross Section of Various Metals for 14MeV Neutron⁶⁴⁾

ELEMENT	REACTION	PRODUCT	CROSS SECTION
Al	$^{27}\text{Al}(n, \alpha)$	^{24}Na	0.120 ± 0.010
Ti	$^{46}\text{Ti}(n, p)$, $^{47}\text{Ti}(n, np)$	^{46}Sc	$2.50 \pm 0.24\text{E-}2$
	$^{47}\text{Ti}(n, p)$, $^{48}\text{Ti}(n, np)$	^{47}Sc	$3.03 \pm 0.39\text{E-}2$
	$^{48}\text{Ti}(n, p)$, $^{49}\text{Ti}(n, np)$	^{48}Sc	$4.77 \pm 0.69\text{E-}2$
Cr	$^{52}\text{Cr}(n, 2n)$	^{51}Cr	0.352 ± 0.031
Mn	$^{55}\text{Mn}(n, 2n)$	^{54}Mn	0.708 ± 0.132
Fe	$^{54}\text{Fe}(n, p)$	^{54}Mn	$1.75 \pm 0.10\text{E-}2$
	$^{54}\text{Fe}(n, \alpha)$	^{51}Cr	$5.33 \pm 0.51\text{E-}3$
Co	$^{59}\text{Co}(n, p)$	^{59}Fe	$4.19 \pm 0.29\text{E-}2$
	$^{59}\text{Co}(n, 2n)$	^{58}Co	0.693 ± 0.048
	$^{59}\text{Co}(n, 3n)$	^{57}Co	$6.5 \pm 1.4\text{E-}3$
Ni	$^{58}\text{Ni}(n, p)$	^{58}Co	0.214 ± 0.012
	$^{58}\text{Ni}(n, np)$	^{57}Co	0.410 ± 0.033
	$^{58}\text{Ni}(n, 2n)$	^{57}Ni	2.46 ± 0.19
	$^{60}\text{Ni}(n, p)$, $^{61}\text{Ni}(n, np)$	^{60}Co	$3.13 \pm 0.20\text{E-}2$
	$^{62}\text{Ni}(n, \alpha)$	^{59}Fe	$7.48 \pm 0.50\text{E-}4$
Cu	$^{63}\text{Cu}(n, \alpha)$	^{60}Co	$2.87 \pm 0.24\text{E-}2$
Zr	$^{90}\text{Zr}(n, 2n)$	^{89}Zr	0.436 ± 0.029
	$^{96}\text{Zr}(n, 2n)$	^{95}Zr	$4.14 \pm 0.45\text{E-}2$
Nb	$^{93}\text{Nb}(n, 2n)$	^{92}mNb	0.480 ± 0.033
Mo	$^{92}\text{Mo}(n, 2n)$	^{91}mMo	$2.27 \pm 0.25\text{E-}2$
	$^{92}\text{Mo}(n, p)$	^{92}mNb	$1.11 \pm 0.10\text{E-}2$
	$^{92}\text{Mo}(n, n\alpha)$	^{88}Zr	$1.95 \pm 0.35\text{E-}5$
	$^{95}\text{Mo}(n, p)$	^{95}mNb	$1.75 \pm 0.23\text{E-}3$
	$^{95}\text{Mo}(n, p)$	^{95}Nb	$5.35 \pm 0.60\text{E-}3$
	$^{98}\text{Mo}(n, \alpha)$	^{95}Zr	$1.57 \pm 0.17\text{E-}3$
	$^{100}\text{Mo}(n, 2n)$	^{99}Mo	0.152 ± 0.012
Rh	$^{103}\text{Rh}(n, 2n)$	^{102}mRh	0.681 ± 0.105
	$^{103}\text{Rh}(n, 2n)$	^{102}Rh	0.629 ± 0.071
	$^{103}\text{Rh}(n, p)$	^{103}Ru	2.12 ± 0.21
Pd	$^{102}\text{Pd}(n, p)$	^{102}mRh	$4.38 \pm 0.45\text{E-}4$
	$^{102}\text{Pd}(n, p)$	^{102}Rh	$3.45 \pm 0.63\text{E-}4$
	$^{102}\text{Pd}(n, np)$	^{101}mRh	$1.32 \pm 0.09\text{E-}2$
	$^{104}\text{Pd}(n, 2n)$	^{103}Pd	0.195 ± 0.019
	$^{105}\text{Pd}(n, p)$, $^{106}\text{Pd}(n, np)$	^{105}Rh	$1.00 \pm 0.12\text{E-}2$
	$^{106}\text{Pd}(n, \alpha)$	^{103}Ru	$1.55 \pm 0.10\text{E-}3$
Os	$^{186}\text{Os}(n, 2n)$	^{185}Os	3.00 ± 0.20
	$^{192}\text{Os}(n, 2n)$	^{191}Os	0.758 ± 0.078
Ir	$^{191}\text{Ir}(n, p)$	^{191}Os	$8.53 \pm 3.52\text{E-}4$
	$^{191}\text{Ir}(n, 2n)$	^{190}Ir	0.601 ± 0.075
	$^{193}\text{Ir}(n, 2n)$	^{192}Ir	1.10 ± 0.15

Fig. 22. Comparison of the experimental and evaluated data for the $^{27}\text{Al}(n, 2n)^{26}\text{Al}$ reaction cross section around 14 MeV⁶⁸⁾.5. 1 生成するトリチウムの化学種^{70,71,72,73)}

増殖材の対象としたリチウム化合物は Li , Li-Pb , Li_2O , LiF , LiBr , LiCl , LiI , LiF-PbF_2 , LiF-BeF_2 である. これらを石英アンプル中に封入, 常温で $4 \times 10^{19} - 4 \times 10^{21} \text{ n/m}^2$ 照射した. 照射後アンプルを開け, 凝縮成分(主としてTHO他にTF, T_2O など)は液体チッ素で冷した一段目のコールド・トラップで捕集する. 非凝縮成分(主としてHT, 他に T_2 など)の一部はラジオガスクロマトグラフで分析し, 化合物別の量を定量するとともに残りの大部分の非凝縮成分は加熱酸化銅ベットで酸化後第2のコールド・トラップで捕集する. この装置の概要は図23に示してある. リチウム化合物中に存在する T^+ , T^- および T° は重水に溶解後, 発生するガスは

によりラジオガスクロマトグラフで DT, HT と T_2 を定量し, T^- と T^+ の量を知ることができる。一方溶液中に残ったもの又はコールド・トラップで回収されたものは DTO であるため, これから T^+ 量を知ることができる。図 24^{71,74)} は各組成の

Pb-Li 合金を照射した場合, 生ずる T^- を照射量に対してプロットしたものであるが, T^- の生成率には照射量は関係せず, 合金の組成に依存することがわかった。図 25 は Li_2O についての結果であって, 図中には熱中性子照射の結果についても参考までに記載してある。この図からもわかるように, Li_2O では照射量の増加とともに T^- は増大し, T^+ は減少している。この傾向はトリチウムの化学形に照射量即ち照射欠陥が関与していることを示唆している。図 26 は LiF についてのもので, 低照射量域では照射量の増加とともに T^- は増大し, T^+ は減少するが, 高照射量域ではこの傾向が反対になる。そして傾向が逆になる辺りから欠陥の重なり合いによる効果が顕著になったものと説明されている⁷¹⁾。リチウムハロゲン化物として上記の他に $LiCl$ ^{71,73)}, $LiBr$ ^{71,73)}, LiI ^{71,73)} などの中での生成トリチウムの化学形と照射量との関係が明らかにされている。

Fig. 23. Experimental apparatus for the recovery of tritium from irradiated lithium compounds^{70,71,72,73)}.

Fig. 24. T fraction of tritium formed in Li-Pb alloys against 14 MeV neutron fluence^{71,74)}.

Fig. 25. Chemical state distribution of tritium formed in Li_2O as a function of neutron fluence. Open marks are of the present study for 14 MeV neutrons. Semi-open marks are taken from the literature for the lowest fluence. Full marks are for thermal neutrons^{71,72)}.

5.2 トリチウムの回収^{70,71,72,73,74,75,76,77,78)}

照射済リチウム化合物からの生成トリチウムの回収の際の重要な因子としてトリチウム化合物中のトリチウムの拡散係数が考えられる．図27には Li_2O 焼結ブロックを14 MeV中性子で照射後，等温加熱下でのトリチウムの放出曲線から求めた Li_2O 焼結ブロック中のトリチウムの拡散係数で，加熱温度の関数として示してある．尚図中には参考までに1) 以外の熱中性子照射により得られた拡散係数も載せてある．Li-Pb合金^{71,74)}や各種リチウム塩中のトリチウムの拡散係数については表10^{71,74)}と表11^{71,73)}の通りであって，前者につ

Fig. 27. Diffusion coefficient of tritium in Li_2O .
1) $\blacktriangle$: sintered block [present study],
2) $\triangle$: single crystal, 3) $\circ$: powder,
4) $\bullet$: sintered pellet, and 5) $\square$:
solidified melt^{71,72)}.

Fig. 26. Chemical state distribution of tritium formed in LiF present study for 14 MeV neutrons. Full marks are taken from the literatures^{71,73)}.

Table 10. Diffusion coefficient of each tritium species in Li-Pb alloys^{71,74)}

Alloy, mole% Li	Diffusion coefficient in cm^2/sec^a for T^- and T^0_{trap}	for T^0_{free}
80	$2.3 \times 10^{-2} \exp(-82.4/RT)$	
60	$2.7 \times 10^{-3} \exp(-61.6/RT)$	
40	$4.4 \times 10^{-3} \exp(-60.0/RT)$	$5.0 \times 10^{-3} \exp(-35.7/RT)^b$
17	$6.7 \times 10^{-4} \exp(-69.4/RT)$	
10	$9.3 \times 10^{-3} \exp(-66.9/RT)$	

a) Activation energy is given in kJ/mol.

b) This also holds for tritium in the 40 mole% Li alloy melted partially.

Table 11. Diffusion coefficient of tritium (T^+) in lithium salts^{71,73)}

Lithium salts (mole % LiF)	Diffusion coefficient in cm^2/sec^a
LiF	$2.3 \times 10^0 \exp(-157.1/RT)$
LiCl	$1.1 \times 10^{-1} \exp(-94.0/RT)$
LiBr	$5.4 \times 10^{-2} \exp(-84.5/RT)$
LiI	$1.7 \times 10^{-2} \exp(-56.9/RT)$
LiF- BeF_2 (67)	$6.1 \times 10^{-1} \exp(-111.4/RT)$
LiF- BeF_2 (50)	$2.9 \times 10^1 \exp(-128.5/RT)$
LiF- BeF_2 (33)	$5.0 \times 10^{-2} \exp(-88.4/RT)$
LiF- PbF_2 (50)	$8.9 \times 10^{-1} \exp(-117.1/RT)$
LiF- PbF_2 (37)	$8.3 \times 10^{-1} \exp(-98.1/RT)$

^aActivation energy is given in kJ/mol.

いては T^- と T^0 のうちトラップされた T^0_{trap} の合わさったものとトラップされない T^0_{free} のものについて
いての式を与え, 後者については量の多い T^+ についての拡散係数の式を与えてある.

Li_2O に中性子照射しながら, その場 (in-situ) でトリチウムを回収する実験も行われている^{75,76,77,78)}.
その際スイープガスとして用いる He 中に 1% の H_2 ガスを添加すると, トリチウムの放出が加速されるのと
同時に, 非凝縮性 (ガス状: G) の HT 又は T_2 の成分が表 12 に示されているように著しく多くなる^{75,76,78)}.
しかし照射後かなり時間が経ってから He ガス中に 1% H_2 ガスを添加すると, その効果は薄れる. 従って H_2
を加えるのは照射中遅くとも照射
直後までが有効のようである⁷⁵⁾.

溶融リチウム合金 ($\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$)

並びにリチウム溶融塩 (Li_2BeF_4)

に中性子照射し, in-situ でト
リチウムを回収する研究も行われ
ており, この際スイープガスを浴
中に吹き出させる方法がもっとも
よいことと指摘している^{75,77)}.

以上の他低放射化材料として注
目を集めた $\text{Al}-4.2\text{Mg}-1.0\text{Li}$
合金中のトリチウムの拡散係数の
値も測定されている^{79,80)}.

Table 12. Chemical form of released tritium from Li_2O under neutron irradiation⁷⁵⁾

Run No.	TEMP.	SWEEP GAS	W	G	H_2 ADDITION TIME AFTER IRRADIATION
103	600°C	He-1% H_2	5.6%	94.4%	
104	400°C	He-1% H_2	20.6%	79.3%	
107	600°C	He*	66.6%	33.4%	
114	400°C	He*	83.3%	16.7%	
116	400°C	He	67.3% (46.2%)**	32.7% (25.0%)**	0 min LATER
111	400°C	He	82.1% (47.2%)**	17.9% (13.1%)**	12 min LATER
108	400°C	He	92.6% (37.9%)**	7.4% (1.6%)**	79 min LATER

* Sometimes added H_2 during irradiation period

** Values on tritium species recovered by He-1% H_2 sweep gas after irradiation

まとめ

RTNS-II 日米共同利用の特徴は, 構造材料照射の面ばかりでなく, 核融合開発に必要な機能材料照射,
ニュートロニクス, トリチウム生成など巾広い分野にわたって行われたことであって, 逆にそのために限
られた紙面で研究成果のすべてを記述することは, とてもできなかった. しかし幸なことに引用文献の項を
見ればおわかりのように, 毎年 "Annual Research Report of Japanese Contributions for Japan-US
Collaboration on RTNS-II Utilization" を出版し, 主として当該年度内に行われた研究成果をまと
めて来ている. 詳しくお知りになりたい方は是非それらを参照して頂き度い.

RTNS-II の照射は終わったものの, 只今現在まだかなりの照射済試験片が残っており照射後試験を待って
いる. 今後更にそれらの試験片についての解析が進むと思われるが, 特にマイクロ組織のグループは現在が研
究成果まとめのピーク時に当たるとも云っている. 従って本当の意味での研究成果の総括には更に数年を要
するかも知れない.

終りに臨み, RTNS-II 日米共同利用を進めるに当たって, いろいろご援助, ご協力を頂いた文部省, ア

メリカ・エネルギー省, 名古屋大学プラズマ研究所(現文部省・核融合科学研究所), 東北大学金属材料研究所・付属材料試験炉利用施設, 風戸研究奨励会, アメリカ・リバモア国立研究所及びそれぞれの機関のご関係の方々, 並びに本共同研究をご分担頂いた日本の大学の研究者及びアメリカの国立研究所の研究者の方々に厚く御礼を申し上げる次第である。

参 考 文 献

- 1) Y. Shimomura, M.W. Guinan and M. Kiritani; *1985 Annual Research Report of Japanese Contributions for Japan-US Collaboration on RTNS-II Utilization* (Japan-US Fusion Cooperation Program; 1986 March (以下1985 Ann. Rept. と略記) p63.
- 2) M. Kiritani; *1987 Ann. Rept.* p1.
- 3) Y. Shimomura, M.W. Guinan and M. Kiritani; *1984 Ann. Rept.* p20.
- 4) Y. Shimomura, M.W. Guinan and M. Kiritani; *1985 Ann. Rept.* p100.
- 5) Y. Shimomura, M.W. Guinan and M. Kiritani; *1986 Ann. Rept.* p93.
- 6) Y. Shimomura, H. Fukushima, M.W. Guinan, P.A. Hahn and M. Kiritani; *1989 Ann. Rept.* p39.
- 7) T. Yoshiie, Y. Satoh, H. Taoka, S. Kojima and M. Kiritani; *1987 Ann. Rept.* p19.
- 8) H. Fukushima, Y. Shimomura, M.W. Guinan and M. Kiritani; *Phil. Magaz A*, **60** (1989) 415.
- 9) E. Kuramoto, Y. Aono and M. Tanaka; *1985 Ann. Rept.* p165.
- 10) E. Kuramoto and M. Tanaka; *Proc. of the Japan Acad.* **65B** (1989) 116.
- 11) E. Kuramoto and M. Tanaka; *1989 Ann. Rept.* p129.
- 12) T. Yoshiie, M. Hasegawa, S. Kojima, K. Satoh, Y. Saitoh, S. Yamaguchi and M. Kiritani; *1989 Ann. Rept.* p134.
- 13) M. Kiritani, T. Yoshiie, S. Kojima and Y. Satoh; *1988 Ann. Rept.* p1.
- 14) Y. Satoh, T. Yoshiie and M. Kiritani; *1988 Ann. Rept.* p48.
- 15) C.M. Logan and E.W. Russell; *Radiation Damage at the Rotating Target Neutron Source (RTNS-I) Facility at Lawrence Livermore Laboratory UCRL-52093*. (Univ. of California (1976) March) pp1-67.
- 16) M. Kiritani; *1989 Ann. Rept.* p18.
- 17) M. Kiritani, T. Yoshiie, S. Kojima and Y. Satoh; *Rad. Eff. and Defects in Solids* **113** (1990) 75.
- 18) M. Kiritani, J. Nucl. Mater. (1990) in press.
- 19) M. Kiritani, T. Endoh, K. Hamada, T. Koshiie, A. Okada, S. Kojima, Y. Satoh and H. Kayano; J. Nucl. Mater. (1990) in press.
- 20) M. Kiritani, T. Yoshida, S. Kojima, Y. Satoh and K Hamada; J. Nucl. Mater. (1990) in press.
- 21) T. Muroga and N. Yoshida; *1987 Ann. Rept.* p77.
- 22) N. Yoshida, H.L. Heinisch, T. Muroga, K. Araki and M. Kiritani; *1989 Ann. Rept.* p112.
- 23) H. Takahashi, S. Ohnuki and N. Yoshida; *1989 Ann. Rept.* p122.
- 24) H. Kawanishi and S. Ishino; *1988 Ann. Rept.* p61.
- 25) H. Kawanishi; *1986 Ann. Rept.* p9.
- 26) Y. Aono, E. Kuramoto and N. Yoshida; *1987 Ann. Rept.* p87.
- 27) H. Matsui; *1984 Ann. Rept.* p55.
- 28) A. Okada, T. Yasujima; T. Yoshiie, I. Ishida and M. Kiritani; *1989 Ann. Rept.* p145.
- 29) K. Abe; *1984 Ann. Rept.* p76.
- 30) A. Okada, K. Kanao, T. Yoshiie, S. Kojima and M. Kiritani; *1988 Ann. Rept.* p34.
- 31) A. Okada, K. Kanao, Y. Satoh, S. Kojima, T. Yoshiie and M. Kiritani; *1987 Ann. Rept.* p55.
- 32) A. Kohyama; *1985 Ann. Rept.* p139.
- 33) A. Kohyama, K. Hamada, K. Asakura and H. Matsui; *1988 Ann. Rept.* p72.
- 34) A. Kohyama, K. Asakura, K. Kohno, Y. Komamura and K. Suzuki; *J. Nucl. Mater.* **133&134** (1984) 628.
- 35) A. Kohyama, K. Asakura and N. Igata; *J Nucl. Mater.* **141-143** (1986) 921.
- 36) A. Kohyama, K. Asakura and N. Igata; *Influence of Radiation on Materials Properties* STP 956 (American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1987) p111.

- 37) A. Kohyama, K. Hamada, H. Matsui and K. Shimizu; *J. Nucl. Mater.* **155-157** (1988) 896.
- 38) A. Kohyama, K. Hamada, H. Matsui and K. Abe; *J. Nucl. Mater.* **155-157** (1988) 1354.
- 39) A. Kohyama, K. Hamada, K. Asakura and H. Matsui, *Effect of Radiation on Materials* STP 1046 (American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1990) p404.
- 40) A. Kohyama; K. Hamada and H. Matsui, *J. Nucl. Mater.* (1990) in press.
- 41) K. Abe, I. Yoshizawa, K. Kamada and H. Kayano; *J. Nucl. Mater.* **141-143** (1986) 915.
- 42) K. Abe, F. Nagase and S. Morozumi; *J. Nucl. Mater.* (1990) in press.
- 43) T. Iida and K. Sumita; *82 Ann. Rept.* p1.
- 44) T. Iida, S. Ie, K. Sumita and D.W. Heikkinen; *1986 Ann. Rept.* p53.
- 45) T. Iida, K. Sumita and C.M. Logan; *J. Nucl. Sci. Tech.* **20** (1983) 964.
- 46) T. Iida, S. Ie, K. Sumita, D.W. Heikkinen and D.W. Short; *J. Nucl. Sci. Tech.* **24** (1987) 1073.
- 47) T. Iida, S. Ie, K. Sumita, T. Matsubara, D.W. Heikkinen and D.W. Short; *IEEE Trans. Nucl. Sci.* NS-35 [1] (1988) 898.
- 48) T. Iida, J. Datemichi, K. Sumita, D.W. Heikkinen and D.W. Short; *J. Nucl. Sci. Tech.* **24** (1987) 759.
- 49) T. Iida, J. Datemichi, K. Sumita, D.W. Heikkinen and D.W. Short; *1987 Ann. Rept.* p101.
- 50) T. Iida, T. Maekawa, K. Sumita, C.M. Logan and D.W. Heikkinen; *J. Nucl. Sci. Tech.* **21** (1984) 634.
- 51) T. Iida, M. Kosuga, S. Ie and K. Sumita; *Proc. on US-Japan Workshop on Irradiation Effects on Plasma Diagnostic Equipment IPPJ-779* (1986) p20.
- 52) T. Iida, T. Maekawa, K. Sumita, C.M. Logan and D.W. Heikkinen; *1983 Ann. Rept.* p77.
- 53) T. Iida, M. Kosuga, K. Sumita and D.W. Heikkinen; *J. Nucl. Sci. Tech.* (1990) in press.
- 54) T. Okada and C. Ichihara; *1983 Ann. Rept.* p27.
- 55) K. Tanimura and N. Itoh; *1986 Ann. Rept.* p23.
- 56) K. Tanimura, N. Itoh, K. Arima, H. Imaiike and D.W. Heikkinen; *Rev. Sci. Instrum.* (1987) 1284.
- 57) K. Tanimura, N. Itoh and F.W. Clinard; *J. Nucl. Mater.* **150** (1987) 182.
- 58) K. Okamura, T. Matsuzawa, M. Satoh, K. Sumita and T. Iida; *1984 Ann. Rept.* p106.
- 59) K. Okamura, T. Matsuzawa, M. Satoh, K. Sumita and T. Iida; *1983 Ann. Rept.* p153.
- 60) H. Matsui, M.W. Guinan, T. Iida and M. Iseki; *1987 Ann. Rept.* p120.
- 61) C. Kinoshita; *1989 Ann. Rept.* p155.
- 62) K. Abe, C.M. Logan, K. Saneyoshi and F.W. Clinard; *Irradiation Effects in Kapton Polyimide Film from 14 MeV Neutrons and Cobalt-60 Gamma Rays* STP 956 (American Society for Testing and Materials, Philadelphia, 1988) p669.
- 63) T. Iida and K. Sumita; *1982 Ann. Rept.* p13.
- 64) K. Saneyoshi and K. Abe; *1984 Ann. Rept.* p90.
- 65) Y. Ogawa and T. Iida; *1982 Ann. Rept.* p21.
- 66) Y. Ogawa, T. Iida, K. Sumita and C. Ichihara; *1983 Ann. Rept.* p103.
- 67) S. Iwasaki, Y.R. Dumais and K. Sugiyama; *1986 Ann. Rept.* p1.
- 68) S. Iwasaki, J.R. Dumais and K. Sugiyama; *Nuclear Data for Science and Technology* (Saikon Pub. Ltd., Tokyo, 1988) p295.
- 69) S. Iwasaki, T. Sugano, K. Sugiyama and K. Abe; *1985 Ann. Rept.* p1.
- 70) H. Moriyama and K. Kawamura; *1986 Ann. Rept.* p156.
- 71) H. Moriyama and K. Kawamura; *1987 Ann. Rept.* p146.
- 72) H. Moriyama, J. Oishi, T. Terai and K. Kawamura; *Fusion Eng. and Design.* **8** (1989) 311.
- 73) H. Moriyama, J. Oishi and K. Kawamura; *J. Nucl. Mater.* **161** (1989) 197.
- 74) H. Moriyama, J. Oishi and K. Kawamura; *J. Nucl. Mater.* **158** (1988) 137.
- 75) T. Terai; *1986 Ann. Rept.* p61.
- 76) T. Terai; *1989 Ann. Rept.* p166.
- 77) T. Terai; *J. Nucl. Sci. Tech.* (1990) in press.
- 78) T. Terai; *Advances in Ceramics* (American Ceramic Soc; Columbus, Ohio 1990) in press.
- 79) M. Sugisaki; *1986 Ann. Rept.* p35.
- 80) M. Sugisaki, H. Furuya, T. Ichigi, N. Koori, I. Kumabe and K. Kawamura; *J. Nucl. Mater.* **158** (1988) 202.