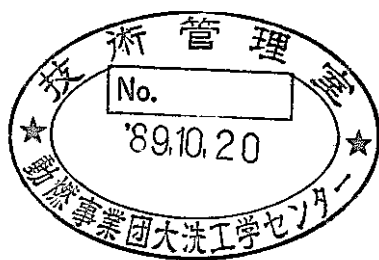


温度モニター評価方法の開発(Ⅲ)



1989年6月

技術資料コード	
開示区分	レポートNo.
T	J. 9607 89-001
この資料は 図書室保存資料です 閲覧には技術資料閲覧票が必要です	
動力炉・核燃料開発事業団大洗工学センター技術管理室	

東京工業大学

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒311-13 茨城県東茨城郡大洗町成田町4002

動力炉・核燃料開発事業団 大洗工学センター

システム開発推進部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technology Management Section, O-arai Engineering Center, Power Reactor
and Nuclear Fuel Development Corporation 4002, Narita O-arai-machi Higashi-
Ibaraki-gun, Ibaraki, 311-14, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation)

温度モニター評価方法の開発 (Ⅲ) *

井関孝善**, 丸山忠司**, 矢野豊彦**

要 旨

本実験の目的は、(a)中性子を重照射した試料の回復挙動、(b)中性子場及び(c)出力低下時の温度履歴の回復挙動への影響を明確にし、SiC温度モニターの測定精度の向上を計ることである。

はじめに各種温度モニターについて概説し、特にSiC温度モニターについては詳しく文献調査をして問題点を明らかにした。

次いで、 $1.5 \times 10^{20} \text{n/cm}^2 \sim 1.7 \times 10^{23} \text{n/cm}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$)の中性子照射をした18本のSiC温度モニターの回復曲線を、①マイクロメーターを用いた長さ測定法、②X線回折法により格子定数を求める方法、③ステップ加熱型熱膨張計による方法の3種の方法で測定した。それぞれの方法の利点及び欠点と、試料に要求される特性を明らかにし、特に③による方法が有効であることを提示した。

測定データに基づき、次のことを明らかにした。

- ① 長さ測定法によれば、 $1.7 \times 10^{23} \text{n/cm}^2$ の重照射試料についても回復曲線の測定が可能である。
- ② 炉の出力低下を段階的に行った場合、回復曲線にそれを反映したステップが見られる。
- ③ 中性子場の影響は、少なくとも組織的には変化を与えるが、回復挙動の大勢に与える影響は少ない。補正式の評価については十分な照射試料がなかったため行なえなかった。
- ④ 等時アニールによる長さ及び格子定数の減少は必ずしも温度上昇に対し直線的ではなく、測定点の選び方が照射温度の推定に影響を与えられられる。

本研究の結果、上記(a)(b)(c)について、従来に比べより詳細なデータを得ることができた。また、新しい温度モニター測定法を提案した。これらのことは、SiC温度モニターを利用していく上で有用と思われる。

*本報告書は東京工業大学が、動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果をまとめたものである。

契約番号：6303006

事業団担当部課室および担当者：燃料材料開発部 照射材料試験室（小野瀬庄二）

**東京工業大学原子炉工学研究所

Development of Evaluation Method for SiC
Temperature Monitor(III)*

T. Iseki**, T. Maruyama**, T. Yano**

Abstract

The purpose of this study is to improve the accuracy of SiC temperature monitors by clarifying the effects of (a) heavy neutron irradiation, (b) flux and fluence of neutron, and (c) variation of temperature during shut-down sequence on recovery behavior of SiC monitors.

Several types of uninstrumented in-core temperature monitors were reviewed. Especially, from the literature survey of the SiC temperature monitor, some problems which should be solved were presented.

Recovery curves of eighteen SiC temperature monitors irradiated in the fast breeder reactors, JOYO, Rapsodie and Phenix to fast neutron fluences from 1.5×10^{20} to $1.7 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$) were measured by means of the following three methods; (1) Macroscopic length measurement using a micrometer, (2) Lattice parameter measurement by X-ray diffraction and (3) Macroscopic length measurement at high temperature by a step-heating dilatometry. Merit and demerit, and requirements for specimen of the three methods were pointed out. The method of step-heating dilatometry was recommended as more convenient and suitable method to obtain annealing curves than the others.

The following results were obtained from the recovery curve measurement. (1) For heavily irradiated specimens up to $1.7 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$, recovery

* This work has been performed under contracts between Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation and Tokyo Institute of Technology

PNC Liaison: Shoji Onose, Materials Monitoring Section,
Fuels and Materials Division

** Research Laboratory for Nuclear Reactors, Tokyo Institute of Technology

curve is obtainable by means of the macroscopic length measurement. (2) Macroscopic length or lattice parameter change shows a step-like decrease with increase in annealing temperature for the specimens which were finally irradiated in the slowly shut-downed reactor cycle. (3) Different neutron-spectrum irradiation affects on the microstructure development, but slightly on recovery behavior of SiC temperature monitor. Relation between annealing intersection temperature and irradiation temperature was not assessed because insufficient specimens were available. (4) Macroscopic length or lattice parameter did not always decrease constantly with increasing annealing temperature. This fact seems to influence the determination of annealing intersection temperature to estimate irradiation temperature.

The improved informations about the problems (a), (b), (c), mentioned above, were obtained through this study. And new simple method to measure change in length during annealing was presented. The results of this study are effective to use SiC as a temperature monitor in wide ranges of flux and fluence of neutron irradiation and reactor operation condition.

目 次

	ページ
1. はじめに	1
2. 各種温度モニターに関するこれまでの研究と本研究の目的	2
2.1 温度モニターに対する要求	2
2.2 各種温度モニター	3
2.3 SiC 温度モニター	5
2.4 本研究の目的	9
3. 実験方法	13
3.1 長さ測定法による回復曲線の測定	13
3.2 X線回折法による回復曲線の測定	14
3.3 ステップ加熱型熱膨張計による回復線の測定	15
3.4 透過型電子顕微鏡による微構造観察	16
4. 測定結果及び考察	21
4.1 各測定法による回復曲線の測定	21
4.2 重照射試料の測定結果	23
4.3 中性子場の異なる試料の測定結果	32
4.4 照射履歴の異なる試料の測定結果	50
4.5 微構造観察結果	55
5. 総合評価	64
5.1 各測定法の比較	64
5.2 重照射試料に対する温度モニターの有効性	64
5.3 中性子場の影響	64
5.4 回復曲線の形状	65
5.5 微構造変化とスエリング	66
6. まとめ	72
参 考 文 献	73
付表：試料測定データ	75

1. はじめに

原子炉内非計装照射温度モニターとしてのSiC温度モニターは、Pravdyuk et al, (1962)によって提唱され、その後比較的多くの研究が行われ、Bramman et al, (1971)によりその有効性が指摘され、多用されるようになった。その後、Palentine(1976, 1980)によって見直しが行われて大きな進歩があった。しかし、その後の研究は少なく、いくつかの問題点が解決されずに残されている。それらは、①重照射域での適用の可能性の確認であり、更に②中性子場（スペクトル及び中性子束密度）の違いによる影響、及び③非定常運転（出力の下降スケジュール）の影響の明確化である。一方、実用的な立場にたてば、④一層簡易な測定法が望まれている。このような現状を踏まえ、今までに実施した温度モニター評価方法の開発（I）、（II）では、主に上記④に関して研究が行われ、マイクロメーターによる比較的容易な温度モニター評価法の可能性を示すことができた。本研究では、温度モニターに関する研究をレビューしたあと、上記の4つを課題として測定を行ない、SiC温度モニターの適用の可能性を明確にすることを目的とした。

2. 各種温度モニターに関するこれまでの研究

2.1 温度モニターに対する要求

非計装型炉内照射温度モニターに対する一般的な要求事項は以下に示される (C, C, Price et al, (1973))。

- (1) 照射されていた温度を反映したある特定の物性値が照射後まで維持され、なんらかの方法で検出されること。
- (2) この物性は温度に主に依存し、中性子場や γ 線照射の影響は小さいこと。
- (3) この物性は、炉外において容易に測定できること、また検出体が放射化する場合は、遠隔操作によりこれが測定できること。
- (4) 精度が十分であるかまたは補正が容易であること。
- (5) 検出体は炉心の燃料要素集合体中に配置できる程度に小さくなくてはならず、それぞれの位置の温度を示すこと。

さらに、次のような点が実用上問題となる (Bramman et al, (1971))。

- (6) 使用できる温度範囲が適切であること。
- (7) 運転中のどの時点での温度示すかが明らかであること。

もちろん、これらの要求のすべてを満たす方法はいまだ存在しないが、いくつか考えられているモニターの特性を明確にすることで、要求に応じて使い分ける必要があると思われる。

現在までに考案されている各種温度モニターを前記(7)に従って分類すると次のようになる。なお、原子炉の定常的な運転を考えるとこれらの指示値はほぼ同一になると思われる。

A. 最高温度モニター

- 融点を利用したモニター (Melt wires)
- 熱膨張を利用したモニター (Bimetal, Ejection thermometer, TEDなど)
- 蒸気圧を利用したモニター

B. 終点温度モニター

- スエリングの回復過程を利用したモニター (SiC温度モニター)
- 拡散放出を利用したモニター (^{85}Kr モニター)

C. 平均温度モニター

- 硬度変化を利用したモニター (Templugsなど)
- 折出物の結晶成長を利用したモニター

ここで注意すべき点は、SiC 温度モニター及び⁸⁶Krモニターが中性子照射により引き起された変化を直接用いているのに対し、ほかはいずれも中性子照射とは独立した温度（及び時間）による物理的变化を用いていることである。この場合、これらの物性やその容器等に対する照射効果がある場合は、なんらかの方法でその影響を検定する必要がある。

2.2 各種温度モニター (Bramman et al, (1971), Branchard et al, (1972), C, Price et al, (1973))

2.2.1 最高温度モニター

(1) 融点を利用したモニター

金属や合金で種々の融点を持つものを組み合わせたもので、その溶融の有無を見て最高温度を得るもの。構造上の大きな問題点は容器と検出用金属の両立性であり、使用できる金属の種類に限られる。広い温度範囲を高い精度で測定することは1つのモニターの容積を考えると相反することになる。代表的なものは4 cmの長さで（図2-1）測定温度範囲は199～327℃である。精度は±10～20℃である。溶融の有無はラジオグラフィによって確かめるが、表面酸化膜のため溶融しても原形を保つことがあるため、モニターの作製には注意を要する。

中性子照射によるモニター金属の融点の変化は、少なくとも高速炉で照射する限りではあまり問題はないと思われるが、熱中性子炉においては核変換による影響を考えなければいけない。この金属の体積はきわめて小さいので、融点以下でのクリープ変形は起こりにくく、溶融の有無を調べるための形状の変化に与える影響は小さいと考えられる。

(2) 熱膨張を利用したモニター

(バイメタルサーモメーター)

熱膨張係数の大きな金属を筒として、その内側に熱膨張係数の小さな金属の棒を入れ、一端をピンで固定したもの。内側の棒の先端に、外側の筒の高さにクランプを止めておき、高温になったとき、クリップが外側の筒に押し上げられて止まるようにしてある（図2-2）。測定温度範囲が広く、比較的高い精度（～±10℃）が期待できる。ただし、実際に炉内で使用した報告は無いようだ。最も大きな課題は、実用的な大きさにしたとき（小型化して時）、必然的に精度が低下するということである。モニター自身のクリープ変形やスエリングなど考慮すべき点も多い。

(押し出し型サーモメーター)

金属容器の中に高温で溶融し、その熱膨張係数が容器より大きな物質を充填しておき、先端に微小な穴（キャピラリー）をあけたもので、高温になった場合、内容物が押し出される現象を利用する。押し出し量は照射前後で重さをはかることにより求める。キャピラ

リーから出る液滴の単位が、温度精度を決めるが、一部再吸引 (sucked back) することもあり、内容物の充填のしかたとともに問題である。

(密封型サーモメーター) (Franklin et al, (1971))

金属容器中に熱膨張の大きい溶融する物質を密封し、熱膨張差により、外側のカプセルが塑性変化して押し広げられる構造としたもの (図 2-3)。照射前後でカプセルの体積を測定 (または密度を測定) あらかじめ照射温度より低温で検定することにより、 $\pm 2.5 \sim 10^\circ\text{C}$ の精度で測定することができる。問題は容器自体の照射スエリングの影響であるが、これは別除に容器だけの密度を測定することで補正できる。このモニターの測定温度範囲は広く、また精度が高い。EBR-II での実験に用いられている。

(3) 蒸気圧を利用したモニター

蒸気圧が温度に依存し、照射にはほとんど依存しないことを利用する。2分割されたサンプル中の下段に入れた物質が蒸発し、一方にだけ通じる弁を通して上段に移動し、その温度の平衡蒸気圧となる。温度が低下すると蒸気が下段に逆流することなしに固化し、下段の物質が減少する。温度は下段の物質の重量変化から求める (図 2-4)。EBR-II で実験されている。温度精度は $\pm 10^\circ\text{C}$ ぐらいと思われる。

2.2.2 終点温度モニター

(1) スエリングの回復過程を利用したモニター (SiC 温度モニター) 2.3 項に示す。

(2) 拡散放出を利用したモニター (^{85}Kr の拡散放出を利用したモニター) (Branchard et al, (1972))

イオン打ち込みあるいは加熱加圧で固体中に侵入させた ^{85}Kr が、ある温度に比較的長時間保持されると拡散によりその温度で放出されるものは固体外に抜けてしまうことを利用する。従って再加熱しながら放出される ^{85}Kr の量を放射線計測器で検出し、放出曲線を求めると、照射時の温度以上で温度に比例して放出量が増加することから、照射温度を求めることができる。 ^{85}Kr 固体中の欠陥にトラップされていると考えられている。Rapsodie 炉及び DFR での試験に用いられている。測定温度の上限が比較的 low ($\sim 650^\circ\text{C}$)、また精度は $\pm 30^\circ\text{C}$ 位である。

この方法の利点は、燃料要素の被覆管の温度を求める場合である。被覆管は核分裂片の照射を受け、必然的に ^{85}Kr を含有する。照射後被覆管を切断し、加熱放出曲線を求めることで照射温度を決めることができる。これを利用し、ステンレス鋼でウランをサンドイッチにしたクラッド材が温度モニターとして検討されているがウランが核燃料物質であるため、取り扱い上規制が多いと思われる。

2.2.3 平均温度 (温度と時間の両効果) モニター

拡散現象を利用したもので、温度と時間の相乗効果を示す。

(1) 硬度変化を利用したモニター

(テンブラグ)

急冷硬化させた金属をある温度時間保持したとき、その硬度が変化することを利用する。時間がわかっている場合は、あらかじめ求めた図よりその時間中その温度に保たれたとした時の温度（平均または等価温度）が求められる、温度がある規則で変化した場合は、シミュレーションによりその変化を時間の経過に対して求めることも試みられている。数分～数千時間の使用に対応するが、測定できる温度範囲が狭く(450～650℃)精度は±25～±15℃で特に低温での誤差が大きくなる。テンブラグは容積が小さいことが利点である。

(ジルコニウム表面の硬度変化を利用したモニター)

ジルコニウム表面から内部に酸素が拡散固溶しその硬度が高くなるのをマイクロヌープ硬度計で測定し硬化層の厚さを求め、あらかじめ求めた温度－時間－硬化層の厚さの関係から温度を推定する。1000～10000時間の温度持続のとき、測定可能な温度範囲は450～700℃と報告されている。精度は不明である。酸素源としてはZrO₂が利用される。

(2) 析出物の結晶成長を利用したモニター

NimonicPE16内のNi(Al, Ti)結晶相が、ある温度にある時間保持されたとき、再現性よく成長することを利用するもので、その大きさを測定し、あらかじめ求めた温度/時間/大きさの検定線より温度を求める。求め方はテンブラグの場合と同様である。照射の結晶成長速度に及ぼす影響は小さいようである。モニターの組成、組織が異なると検定線が異なる。測定できる温度範囲が比較的狭く(600～750℃)、精度もそれほど高くない(±25℃)。放射化が高いので取り扱いが難しいが、試料サイズがきわめて小さくてよいことが利点である。

(3) アルミニウムの拡散層の深さを利用したモニター

アルミニウムがジルコニウム中に拡散し、ZrAl₂化合物を形成することを利用する。この化合物の厚さを求め、その厚さと時間の関係から照射温度を決める。

2.3 SiC温度モニター

SiCを高速中性子で照射すると $1 \sim 3 \times 10^{24} \text{ n/m}^2$ 程度でスエリングは飽和し、それ以上の照射量では、スエリング量が主に照射温度の関数となり図2-5に示すような値をとる。照射後1時間程度の等時アニーリングを温度を上昇させながら順次行い、格子定数あるいは試料体積(または長さ)を測定し、等時アニーリング温度に対してプロットするとそれらの値はほぼ照射温度を境に、それ以下では変化がなく、それ以上では温度の上昇に伴いほぼ直線的に減少する(スエリングが回復)する(図2-6)。この変曲点の値から照射温度を推定するもので、約200～1000℃の広い範囲で照射温度を求めることができる。精度±10～±50℃と報告されている。SiC温度モニターは、小さく(2mmφ×10mm)、特別の前処理等が不

用であり、照射後の放射化量も低いので取り扱いが簡便であり、多用されている。照射効果を用いているので、他の温度モニターに比べ検定が楽である。求めた温度は終点温度を示す。照射欠陥は数時間でアニールされてしまうので炉の停止時の温度履歴の影響を受ける。以下にSiC温度モニターの開発の経過を簡単にレビューする。

Pravdyuk et al, (1962)は, Primal et al, (1956), Primak(1960)によって報告されていた, SiC 及びダイヤモンドが中性子照射によりスエリングを起こし, それが, 照射後熱処理により回復する現象に注目して, 炉内照射温度モニターとしての検討を初めて行った。 α 型 SiC およびダイヤモンドをRFT炉内で $10^{19} \sim 10^{20} \text{ n/cm}^2$ ($E > 75 \text{ eV}$)程度照射したのについて, 等時アニール後, X線回折により格子定数の変化を求め, 照射温度付近よりスエリングが連続的に回復することを見出した。変曲点が照射温度に対応し, その精度は, $\pm 10^\circ\text{C}$ としている。また, SiC にくらべダイヤモンドの方が回復量が大きく, 変曲点が明瞭であると報告した。さらに, スエリングが飽和する以前の照射量では, スエリング量が中性子照射量を示す可能性についても論じている。

Thorne et al, (1967) は, β -SiCを高速炉(DMTR)で $250 \sim 700^\circ\text{C}$, $1.8 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ 照射して, 長さおよび格子定数を測定した。長さおよび格子定数の照射による増加量及び等時アニールによる回復量は実験精度内で一致した。スエリングはいずれの温度でも約 $2 \sim 5 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ で飽和し, その値は, 照射温度が上昇するにつれて減少した。また, スエリングは約 1350°C , 3時間のアニールでほぼ回復することを示した。さらに, 等時回復曲線の変曲点は, 照射温度と $\pm 10^\circ\text{C}$ で対応することを示した。

Martin et al, (1967) はDFRにおいて反応焼結 β -SiCと黒鉛を $1.5 \sim 2.5 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ の高速中性子で照射し, 等時アニールと長さ測定により回復曲線を得た。熱電対温度との比較は行っていないが, $400 \sim 800^\circ\text{C}$ での測定値を示した。また, 炉の出力を約11時間かけてゆっくり低下した試料の回復曲線に2つのステップが見られたことを示した。

Price (1969)は, 熱分解多結晶 β -SiCをETRで $2 \sim 4.2 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ ($E < 0.18 \text{ MeV}$), $460 \sim 1040^\circ\text{C}$ で照射した。スエリング量は 460°C で0.35%, 1040°C で0.05%であり, これは格子定数変化及び長さ測定で一致することを示した。また, X線回折線の中は中性子照射により広がり, これは結晶内で転位が形成され, 内部に不均一なひずみが蓄積されているためであると報告した。アニールによる回復については触れていない。

Blackstone et al, (1971)は, HFIRでさらに高温 ($\sim 1200^\circ\text{C}$) でThorne et al, (1967)と同じ反応焼結 β -SiC及び熱分解多結晶 β -SiCを $\sim 6 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ (D. N. V)まで照射して, 900°C 以上ではスエリングが飽和しないことを示した。アニールによる回復については触れていない。

DFRにおいて試験あるいは使用されている各種炉内温度モニターをレビューした論文の中, Bramman et al, (1971)は, SiC 温度モニターが, 測定範囲が広いこと, 小さいこと, 誘導放

射能が少ないことなどを理由に最も有力な温度モニターであると結論している。この論文において、DFRで照射されたSiCについて長さ測定により求めて回復曲線の変曲点の温度と、熱電対の値がよく対応することを示している。また、X線回折による格子定数量から求めると、照射温度推定の精度が向上し、それは700°Cで±15°C、1000°Cで±25°Cとしている。測定範囲は300~1150°C。また、高照射量(>10²²n/cm²)ではアモルファス化が起こり、X線回折の適用は限られるが、長さ測定法によれば、その領域でも可能であると記している。

Price (1972)は、ホットプレス法で得られたα-SiC焼結体をETRで550°C及び800°Cで4.8×10²¹n/cm²(E>0.18MeV)照射し、等時アニールにより長さ変化及び電気抵抗変化と比較した結果、交点の温度は、照射温度と実験精度内で一致することを示した。誤差は525°Cで±20°Cであり、772°Cで±30°Cであることを報告した。

Price (1973)は、熱分解β-SiCの薄片を625~1500°Cで1.2×10²²n/cm²(E>0.18MeV)までETRで照射し、900°C以上では、スエリングは照射量の増加に従い増加し、特に1250°Cで顕著なことを示した。TEM 観察によりこの試料にはボイドが形成され、ボイドスエリングが発生していることを明らかにした。等時アニールによる回復過程を調べ、1000°C以上の照射では、従来報告されているように照射温度付近から回復がみられたが、1250°C以上では、回復は照射温度より数100°C以上高温にならないと始まらないことを報告した。

Suzuki et al, (1973)は、反応焼結β-SiC粉末をJRR-2及びJMTRで1.5×10¹⁷~5×10¹⁹n/cm²(E>0.18MeV)照射し、等時アニール及び高温X線回折により格子定数の変化を調べ、変曲点から照射温度を推定した。また、電気抵抗の変化も同様の変曲点を示すことを報告した。

その後、Palentine (1976)は、長さ測定法によるSiC温度モニターの精度を向上させるための測定法と、熱電対による実測温度との相関を確かめるための系統的な実験を行った。この報告では、反応焼結β-SiCをPLUTO炉で450~750°Cにて、~4×10²⁰n/cm²(⁵⁴Feモニター)の中性子を照射した。照射後、2時間の等時アニールを行い、長さ変化を求め最小二乗法により照射温度前後の値を直線近似してそれらの交点を求めた。交点温度(y(°C))と照射温度(X(°C))の関係は、次式により最もよくあらわされることを示した。

$$y = -3885.0 + 19.724x - 0.02882x^2 + 0.1442 \times 10^{-4}x^3$$

これによると3本の測定による95%の信頼性の範囲は450°Cにおいて±8°C、659°Cにおいて±35°Cであった。

同じようにしてすでに発表されたデータを再検討することで、Bramman et al, (1971)のデータからは、

$$T_{SiC} (\text{変曲点温度}) = 1.21 T_{Irrad} (\text{照射温度}) - 83 \quad (^\circ\text{C})$$

Price(1972)のデータからは、

$$T_{SiC} = 0.89 T_{Irrad} + 79 \quad (^\circ\text{C})$$

が得られ、アニールにより求めた交点温度と照射温度にずれがあると解釈した方がよいこと

を記している。

また、照射前後の長さの変化から直接照射温度を推定することを試みており、DIDOで $9 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ 、及びDFRで $3 \sim 5 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ についてのデータをPLUTOのものと同時にプロットし、 y ($y = 1000 \Delta l / l$) と照射温度 x ($^{\circ}\text{C}$) が

$$y = 27.3 - 9.565 \times 10^{-2} x^2 + 1.295 \times 10^{-4} x^3 - 6.166 \times 10^{-8} x^3$$

であらわされることを示した。これによる精度は 450°C で $\pm 10^{\circ}\text{C}$ 、 693°C で $\pm 30^{\circ}\text{C}$ であった。ただしこの式は SiC のスエリングが飽和していることが条件で、かつ重照射では使用できないとしている。

最後に熱中性子炉と高速炉の照射では補正曲線が異なる可能性を示している。

Palentine (1980) は前報の結果をうけ、高速炉 (DFR) で $450 \sim 660^{\circ}\text{C}$ で照射した SiC について等時アニール及び長さ測定法により、照射温度と交点温度の相関を調べた。その結果照射温度 (T_{Irrad}) と SiC 温度モニターの回復曲線から求めた交点温度 (T_{SiC}) の関係は次の式であらわされることを示した。

$$T_{\text{Irrad}} = 1.0312 T_{\text{SiC}} - 44.71 \quad (^{\circ}\text{C})$$

精度は $\pm 45^{\circ}\text{C}$ (1本) $\sim \pm 27^{\circ}\text{C}$ (3本) である。

同一試料についての X 線回折より求めた関係は Sharpe (1980) によって検討され、

$$T_{\text{Irrad}} = 0.988 T_{\text{SiC}} - 13.2 \quad (^{\circ}\text{C})$$

が示されている。精度は $\pm 35^{\circ}\text{C}$ (1本) $\sim \pm 25^{\circ}\text{C}$ (3本) である。

Palentine は上記報告中で、スエリング量から直接求める関係式は、

$$T_{\text{Irrad}} = 1071.86 - 130.97 (1000 \Delta l / l) \quad (^{\circ}\text{C})$$

であらわされることも示した。精度は $\pm 29^{\circ}\text{C}$ (1本) $\sim \pm 19^{\circ}\text{C}$ (3本) である。

Suzuki et al. (1987) は、常陽及び Phenix, Rapsodie 高速炉で照射した β -SiC 温度モニターの等時アニールを行ない、 $1 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.18 \text{ MeV}$) の重照射域まで長さ測定法により回復曲線の測定が可能であることを示した。

以上を振り返ると、SiC は炉内照射温度モニターとして精力的に研究されてきており、また、他に代えがたい利点を有することから、現在最も多用されていると予想される。しかしながら、次のような点が現在においても未解決あるいは未検討の課題として残されている。これらの点を解明していくことが、SiC 温度モニターをより有効に使用するために必要であると思われる。

- (1) 中性子場 (スペクトル及びフラックス) の違いによる差異の有無の確認
- (2) 熱電対温度と SiC 温度の相関性の確認とその精度
- (3) 炉の出力低下速度の効果はどのくらい影響を与えるか
- (4) 使用可能な照射量域及び照射温度域の明確化
- (5) より簡便な測定法の開発

2.4 本研究の目的

2.3項に指摘した問題点を考慮して、本研究の目的を（A）中性子を重照射した場合、（B）中性子場の影響、（C）炉の出力低下速度、の回復挙動への影響を明確にして、SiC温度モニターの測定精度の向上を計ることにおいた。また、より簡便な測定方法の開発についても、新たな方法を提起して検討を加えた。

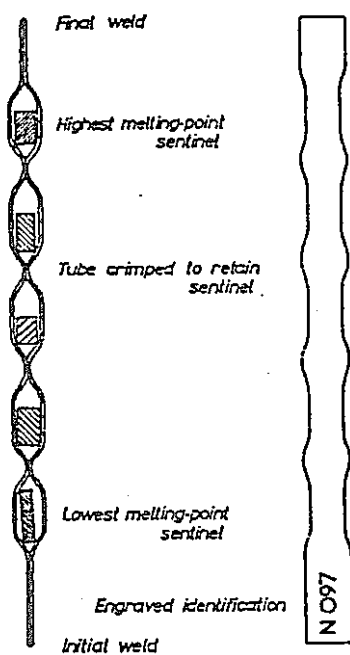


図 2-1 融点を利用したモニターの様式図
(Bramman et al, (1971))

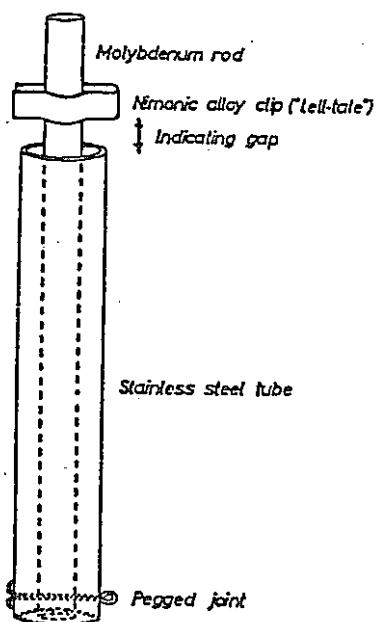


図 2-2 バイメタルサーモメーターの様式図
(Bramman et al, (1971))

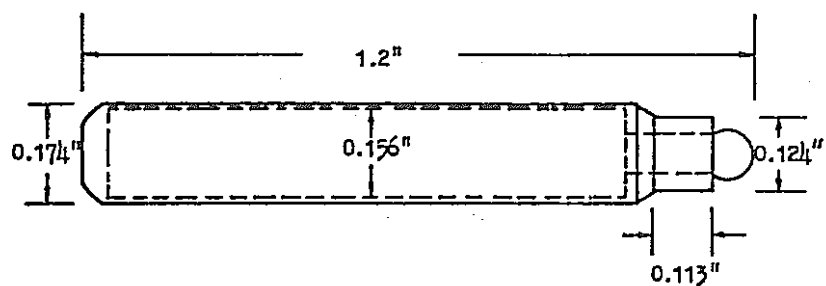


図 2-3 密封型サーモメーターの模式図
(C. Price et al. (1973))

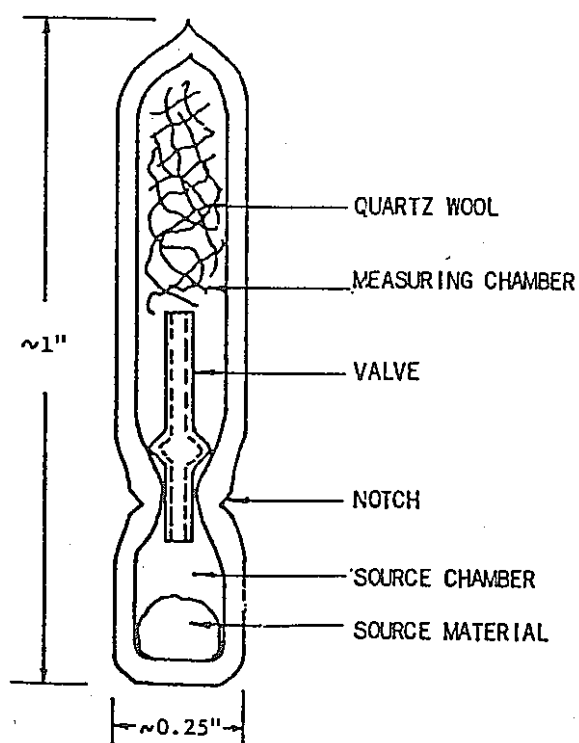


図 2-4 蒸気圧を利用したモニターの模式図
(C. Price et al. (1973))

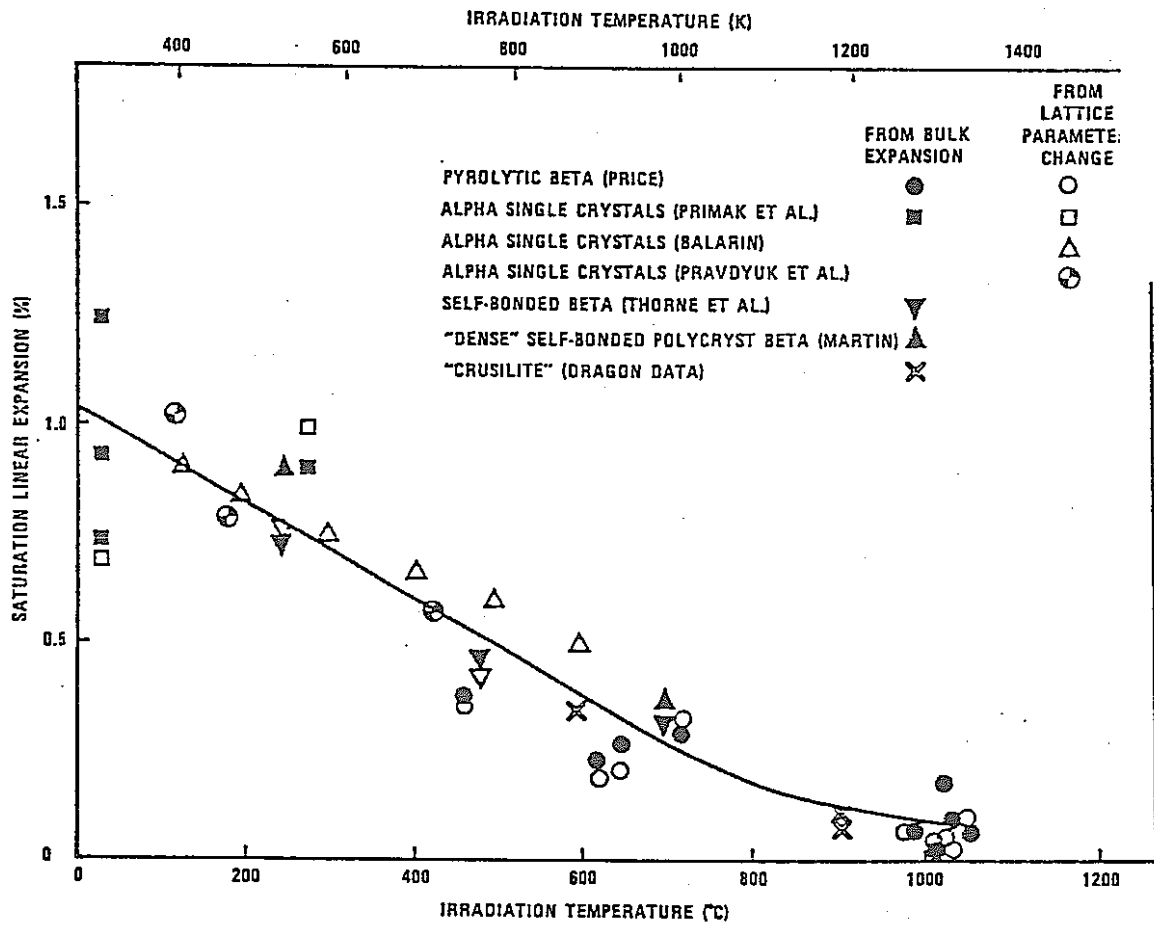


図2-5 SiCの照射温度とスエリング量の関係
(R. J. Price (1977))

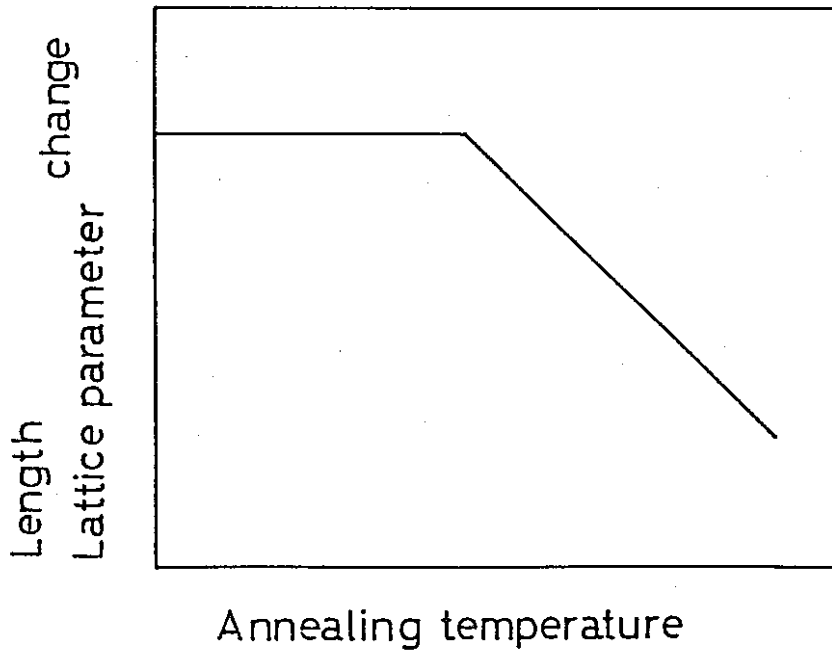


図2-6 SiC温度モニターの等時アニールによる長さ及び格子定数変化の模式図

3. 実験方法

2.4項で示した目的を達成するために、① 10^{23} n/cm²以上の重照射試料、及び②それ以下の照射量の試料、③出力低下時の熱履歴の異なる試料について、回復曲線の測定を行った。また各種測定法を相互に比較検討し、より簡便な測定法を開発するために(a)等時アニールによる長さ測定、(b)X線回折による格子定数の測定、および(c)ステップ加熱型熱膨張計による長さ測定の3種の測定法を併用して、上記3種の試料の回復曲線の測定を行った。

表4-1に用いた試料について、委託者から示された照射条件等を示す。照射量は特に記さない限り $E > 0.1$ MeVの高速中性子についてのフルエンスを示す。

3.1 長さ測定法による回復曲線の測定

(1) 長さ測定法

前報(温度モニター評価方法の開発(Ⅱ))に示した方法と基本的には同様である。試料(2mmφ×10mm)をVブロックにおいてポイント型マイクロメーター(三豊CPM30-25DM)をVブロックを用いて測定した。Vブロックは市販のX-Yステージ上に固定しており、マイクロメーター固定スタンドと同一の基板の上に設置されている。これを図3-1に示す。検出感度は1μmである。マイクロメーターの先端は $R=0.3$ mmの半球面になっている。

あらかじめ、比較的長い標準試料で、マイクロメーター軸と試料の長手方向をできるだけ正確に平行になるように微調整した。25mmの試料長の試料では、この方法で±1μmの精度で再現性よく長さを測定することが可能であった。長さの測定は一定の温度(±2℃)保った室内に試料及びマイクロメーターを30分以上おいてから測定した。供試された温度モニター試料は(3)で示すような前処理をしても十分な平行度が得られなかったため、Vブロック及びマイクロメーターは定位置に固定し、一連の測定で常に試料の同位置を測定するようにした。

(2) 試料の等時アニール

長さ測定用試料及びX線回折用試料は、赤外線加熱炉を用い100~1000℃において、約1Paの真空中で各1時間アニールを行なった。均一な加熱をするために、試料の外套管にはステンレス製のメッシュをまき、また、棒状試料とX線回折用ホルダーに充填した粉末試料を図3-2に示すように白金板ではさんで同時にアニールした。温度は試料と同位置にセットした熱電対により検出し、1℃/secで昇温し各温度で±1℃以内にコントロールした。

(3) 試料及びその微細組織と測定前処理

温度モニター用SiC焼結体は、東芝セラミックスにおいて形成された。形状及び照射履歴は表4-1に示す。

供試された温度モニターの破面のSEM写真を図3-3に示す。試料は反応焼結法により作成された β -SiC焼結体であるが、遊離Siを蒸発除去してあるため、かさ密度は73% (3mm ϕ ×10mm) 及び78% (2mm ϕ ×15mm) 程度の多孔質焼結体であった。かさ密度の測定はアルキメデス法により測定した粒径が5~10 μ mの粒子と1~2 μ mの粒子からなる。いずれも比較的等方的な形状をしていた。

図3-4に試料端面の形状を示した。形成過程(押し出し成形)で形成されたと思われるかなりおおきな凹み(長さ~数100 μ m)の認められる試料もあった。また、いずれも長手方向に対して端面が垂直ではない(大きいものでは10mm長さの試料で~500 μ mの差がある。これは、照射中に試料が湾曲したことによると思われる。)ので、長さ測定用及び熱膨張測定用試料は両端を精密ダイヤモンドカッター(Buehler Isomet)で切断した。

図3-5に試料の切断方法を模式的に示す。この切断を行うことで、端面の場所の差による長さの変化は、 $\pm 5 \mu$ mに減少した。さらに、前述した試料固定台を使用し、できるだけ同一の場所を測定することにより精度 $\pm 0.5 \mu$ mを得ることができた。

図3-6に、一連の長さ測定後の試料端面のSEM写真を示す。やや黒く見えるところがポイントマイクロメーターの先端が接触していたと思われる点で、ほぼ100 μ mの円内において測定されており、測定精度は問題なかったと考えられる。

3.2 X線回折法による回復曲線の測定

(1) 試料

X線回折用試料は図3-5に示すように長さ測定用と同一試料から切り出した。切片をB₄C乳鉢であまり細かくなり過ぎないように粉碎し、内部標準として200メッシュアンダーの高純度Siを重量比でほぼ等量混合した。等時アニールとX線測定の繰り返しによるハンドリングの不便さを除くためと、なるべく同一の測定条件を維持するために、石英ガラス製のX線回折ホルダーに上記の混合試料をつめた状態でアニールとX線測定を実施し、一連の測定において詰め替えは行わなかった。

等時アニールは、この試料ホルダーに、同じサイズの石英ガラス製のスライドガラスを上に乗せ、飛散防止し、3.1(2)に示したように、長さ測定用の試料と同時に行った。

図3-7に、温度モニターを粉碎して得た粉末のSEM写真を示す。粒径が5~10 μ mと1~2 μ mのいずれも比較的等方的な形状をした粒子であった。図3-3と比べると、個々の粒子単位によく分離していることがわかる。

(2) 格子定数の精密測定

格子定数の精密測定は、次のようにして行った。内部標準にSi ($a = 0.543088\text{nm}$) を混合した粉末を、Philips社製PW-1700型全自動X線回折計にセットし、以下の測定条件にてSiの(422)(511)(440)(531)(620)(533)回折線及び β -SiCの(400)(331)(420)(422)(333)回折線を測定した。Siを標準として回折角の補正をし、 β -SiCの各回折線の値から最小二乗法により格子定数を求めた。定数精度は $\pm 0.000005\text{nm}$ であった。 α_1 線と α_2 線のピークの重なりは算術的に除去し、 α_1 線のピークの値を用いた。測定は $25^\circ\text{C} \pm 2^\circ\text{C}$ で行なった。

X線回折測定条件

X線管球	Cu	
管電圧	40 k V	
管電流	30 m A	
Scan range	87~139°	2 θ
Step 巾	0.01°	2 θ
Time per step	2 sec	

3.3 ステップ加熱型熱膨張計による回復曲線の測定

測定の迅速化と自動化をはかるために、新たに熱膨張計を用いたSiCの回復曲線の測定を検討した。

中性子照射がSiCの熱膨張に影響を与えないとすると、中性子照射したSiCと未照射SiCを示差型の熱膨張計を用いて昇温しながら長さ変化を測定することにより、回復量を直接求めることが原理的には可能である。この試みはBrammand et al, (1971), Suzuki et al, (1973) によって行われたが、連続的な昇温による方法では、変曲点がずれて観察されてしまうため、温度モニター測定用とするには改善が必要とされていた。

今回、ステップ加熱法を用いることにより、格子数や長さ測定による方法と同様の回復曲線の測定が可能であることを明らかにしたのでそれについて記す。

(1) 試料

図3-5に示した長さ測定用と同様に、あらかじめ両端面を切断し、なるべく平行度を出した棒状試料を用いた。試料の形状は $(1\sim 3)\text{mm}\phi \times (6\sim 14)\text{mm}$ である。なお、参照用試料としては、温度モニター用に作成された未照射のSiCを用いた。

(2) 測定方法

測定試料及び参照試料の温度分布をなるべく少なくするために、特に均熱帯をひろくし

た理学電気製 TMA8515型示差式熱膨張計を用いた。検出棒及び試料保護管はいずれも石英ガラスできている。また、検出部の温度は30℃に保った。

昇温はプログラムにより、100～1000℃まで50～100℃間隔で昇温し、照射温度以下と思われる温度では30分保持し、それ以上では60分保持した。各温度での温度変動は±1℃に制御した。温度分布を少なくするために、測定は毎分100mlのArガスを流しながら行なった。

図3-8に、あらかじめ同じ長さの未照射試料を用いて測定した装置のベースラインの変動を示す。繰り返しによる誤差は温度が高いほど大きく800℃では±0.25μm程度であった。ベースラインとしては、これらの平均値を使用した。

なお、実際の測定では、照射試料と未照射試料の長さを測定し、熱膨張計により検出された収縮量と比較して、その差が1μm以内であることを確認した。

3.4 透過型電子顕微鏡による微構造観察

(1) 試料

棒状試料より厚さ約100μmの円板状試片をダイヤモンドカッターで切り出し、厚さ約30μmまでダイヤモンドペーストで研磨した。その後、Arガスを用いた原子ビームスパッター装置（Ion tech社製）で、加速電圧約4kVで研磨し、電顕用試料とした。

(2) 電子顕微鏡観察

電子顕微鏡観察は、日立製作所製E-9000型電子顕微鏡（加速減圧300kV）で行なった。観察は特に記さない限り<110>方向から電子線を入射して得た明視野像である。

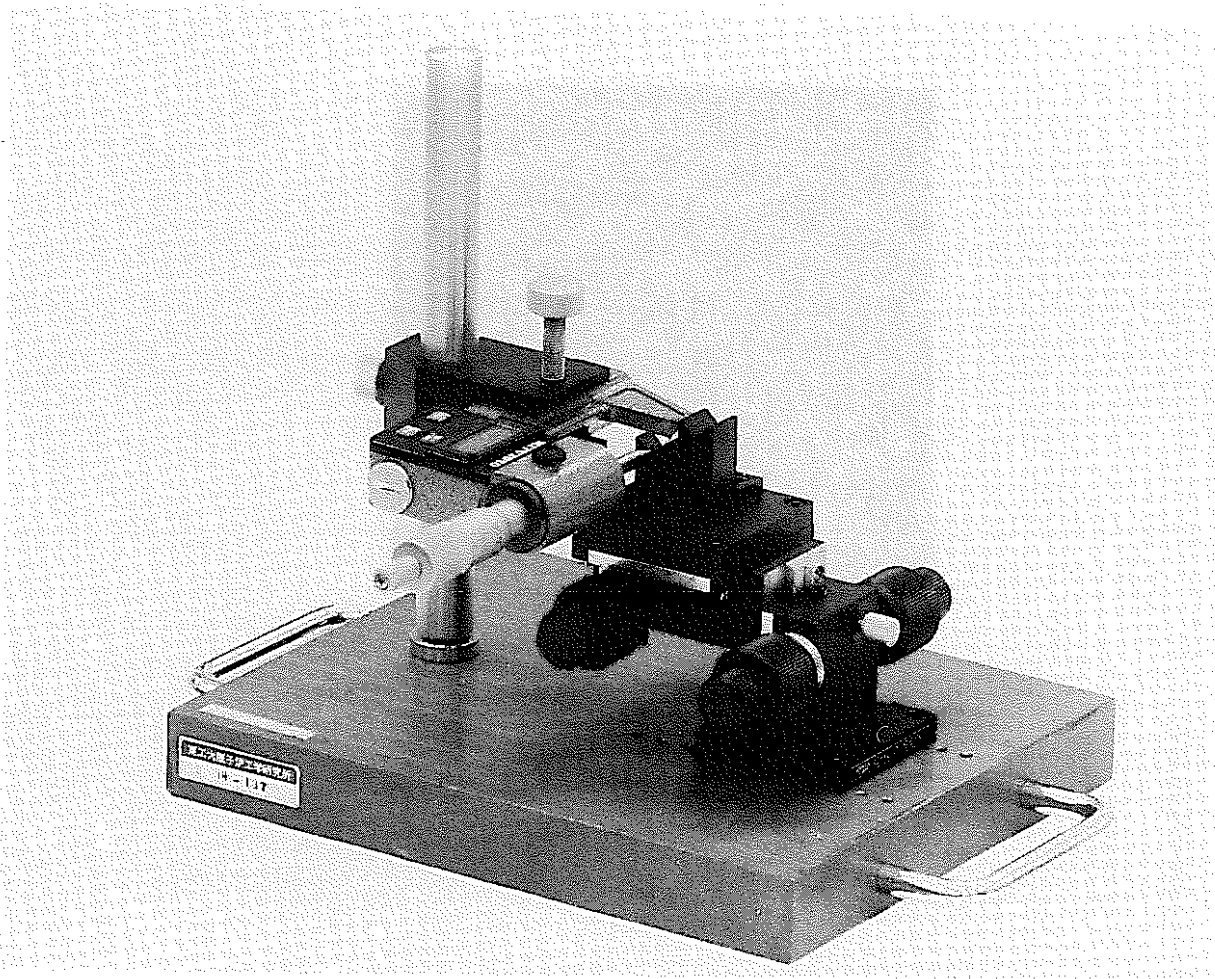


図3-1 マイクロメーター及び試料支持Vブロック

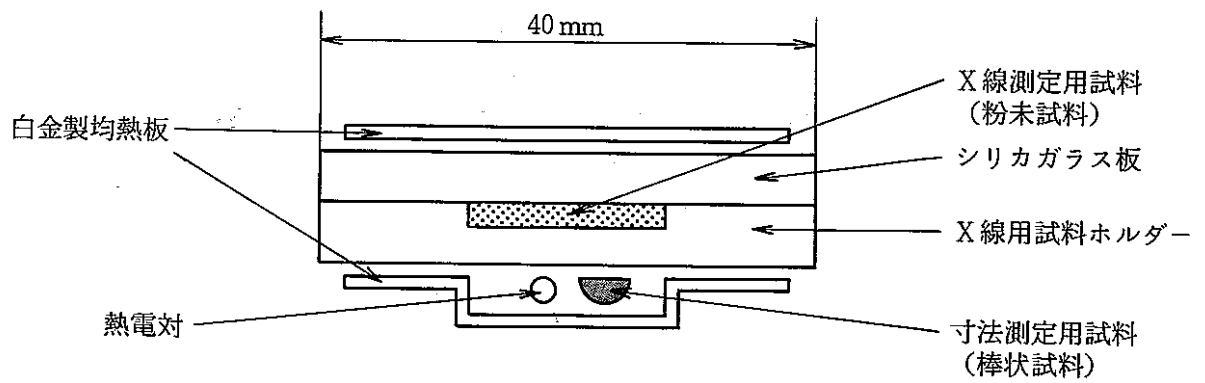


図3-2 等時アニール用試料ホルダーの模式図

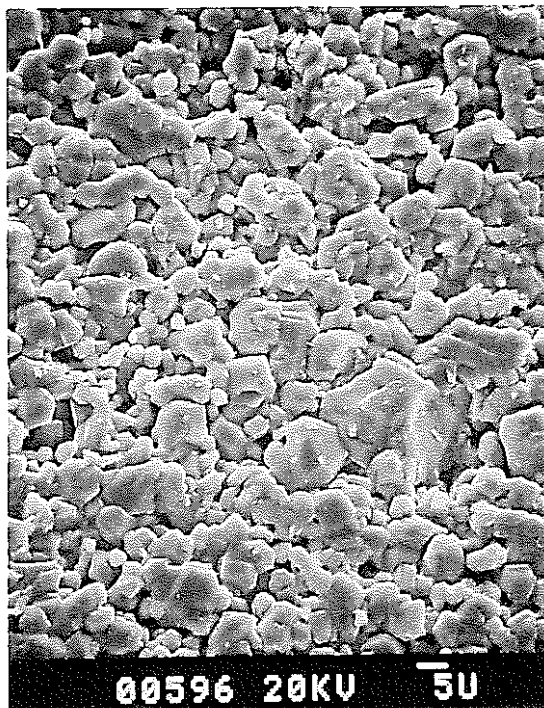


図3-3 温度モニター試料の破面のSEM写真

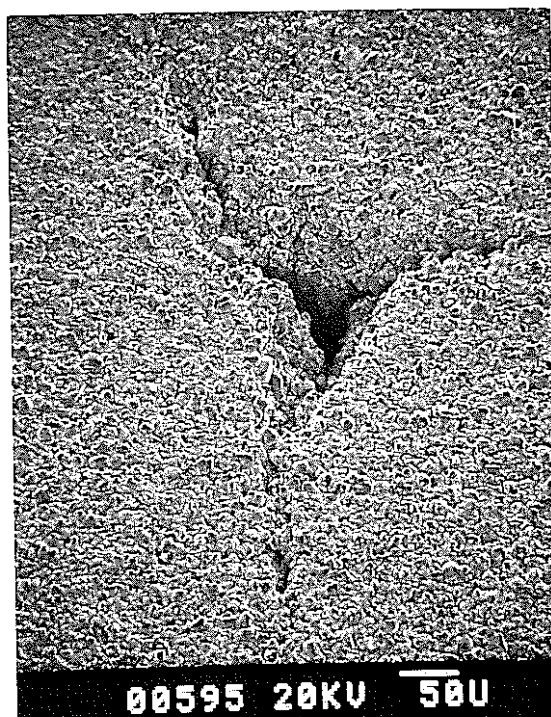
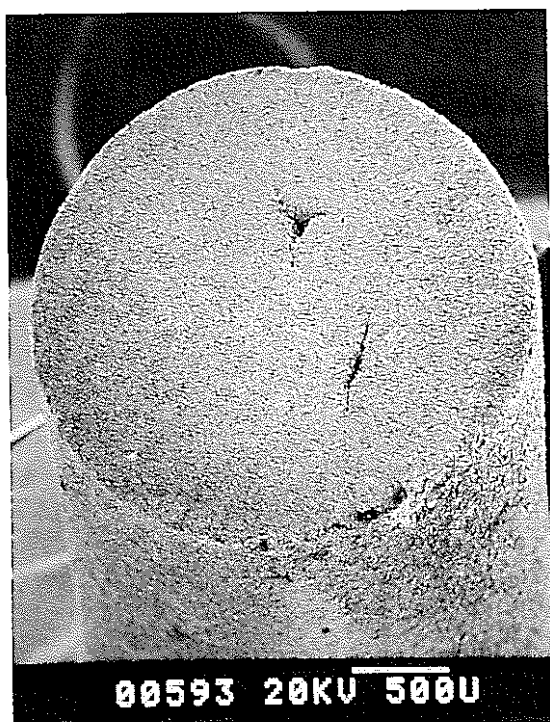


図3-4 温度モニター試料の端面のSEM写真

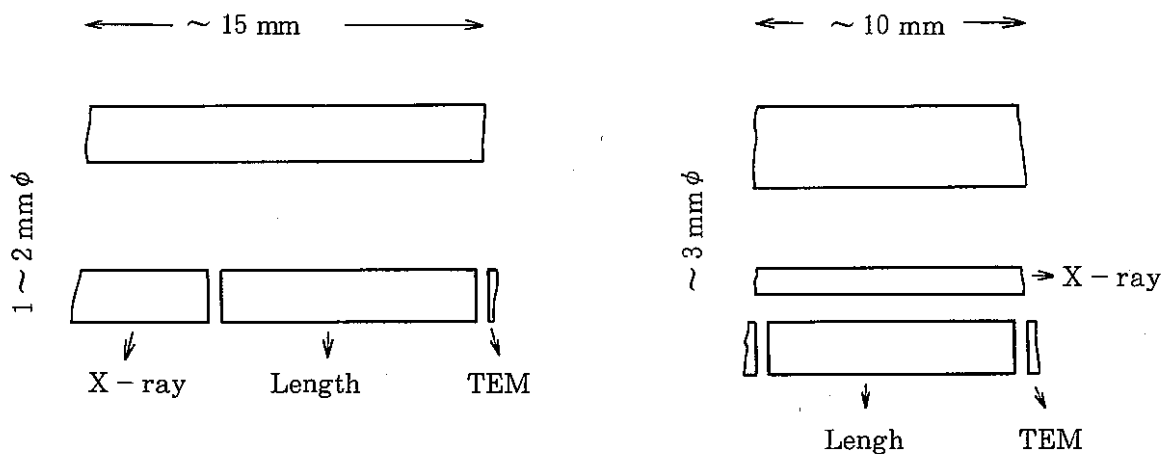


図3-5 測定用試料の切断方法

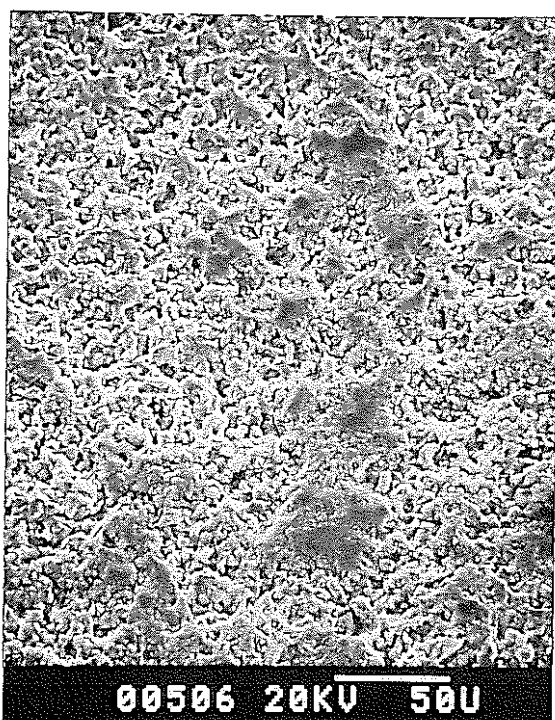


図3-6 回復曲線測定後の温度モニター端面のSEM写真

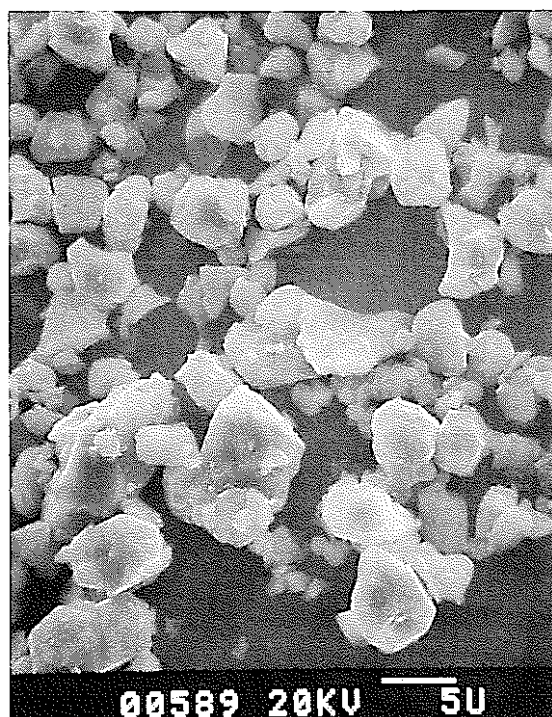


図3-7 温度モニターを粉砕した粉末のSEM写真

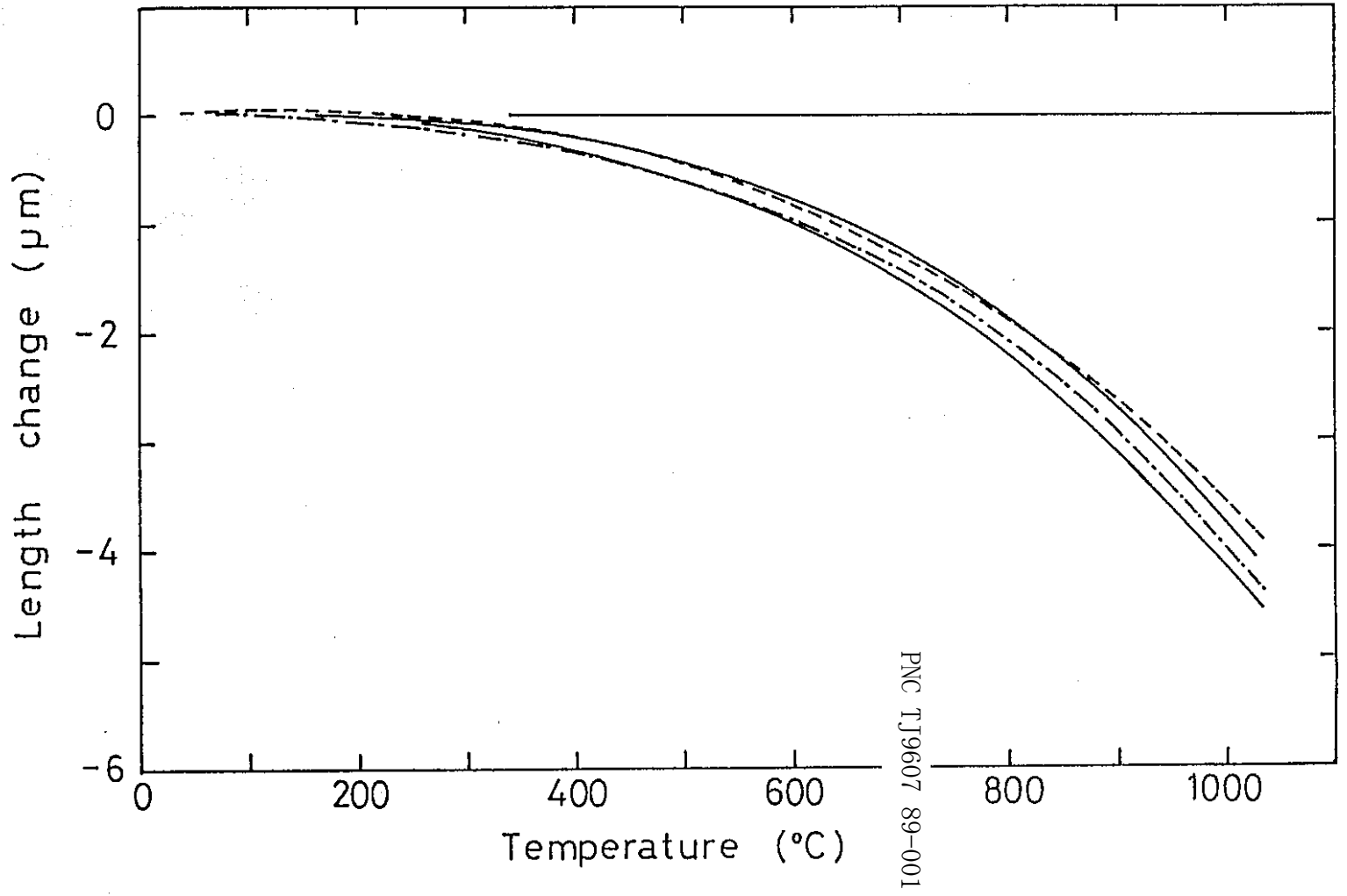


図3-8 ステップ加熱型熱膨張計のベースラインの測定
(4回の繰り返し測定値)

4. 測定結果及び考察

今回の研究では、回復曲線の測定法として、(1)長さ測定法による測定、(2)X線回折により格子定数変化を求める方法、及び(3)ステップ加熱型熱膨張計による方法を併用して行なった。初めに、4.1でそれぞれの方法による測定の利点及び欠点、さらにそれぞれの方法に要求される試料形状について述べ、ついで各課題別に測定結果について検討する。

4.2～4.4には、温度モニタの履歴（使用条件）が測定値に与える影響を検討したが、ここでは各測定法において得られた結果が5.1に示すようにほぼ同等の信頼性を持つものとして、測定法の差異は本文中には記さなかった。図及び付表には、測定に用いた試料のサイズ及びそれぞれの測定法を明記した。

4.1 各測定法による回復曲線の測定

(1) 長さ測定法

マイクロメーターの測定感度が最小 $1\mu\text{m}$ であることが、この方法の欠点である。たとえば、 10mm の試料では、回復量が比較的大きい 500°C の照射試料で 1000°C までに約 0.2% の収縮があり、それは $20\mu\text{m}$ に相当する。 $1\mu\text{m}$ は%にすると 0.01% であり、測定を狭い温度間隔で行なった場合は測定値が階段状になることになる。これは、交点温度の推定に約 $\pm 15^\circ\text{C}$ の誤差を与える。照射温度が約 700°C に上昇すると、回復量は約 $1/2$ になり、さらに難しくなる。今回は、便宜上約10回の測定を繰り返して、値の分布から $0.2\mu\text{m}$ 単位で推定した。マイクロメーターの先端を当てる力によっても値が変化するので、再現性よく行なうには、同一の人が行ない熟練を要する。また、測定温度の変化が 10°C あると、 10mm の試料で約 $0.5\mu\text{m}$ 変化するので注意を要する。

一方、試料形状も長さ測定用として作製していないので、端面が長手方向に対して垂直ではなく、また端面の形状も図3-4に示したように平滑性を欠き、粒径が $10\mu\text{m}$ 程度であることを考えると $< 1\mu\text{m}$ の測定を行なうことは本来無理がある。しかしながら、現状でも3.1に示したような特別の注意を払うことで測定が可能であった。長さ測定法をより精度よく行なうためには、次のようなモニター形状が望まれる。

- ① 長さ 10mm 以上、できれば 15mm 以上。
- ② 直径は取扱上 2mm 程度（変形、破損しないため）、角棒でもよい。
- ③ 端面は長手方向に対して垂直で、端面精度は $R_{\text{max}} < 0.3\mu\text{m}$ 、できれば鏡面研磨。
- ④ 高密度焼結体であること（端面を平滑に保つため）。

この方法の特徴を次に示す。

- ① 必要とする機器がマイクロメーターと電気炉だけである。
- ② 重照射域まで測定可能である。
- ③ 事前に長さ測定を行なうか、長さ精度を $\pm 1 \mu\text{m}$ に揃えておけば、スエリング量から直接照射温度の推定が可能である (Palentine(1976, 1980))。

この方法で室温から1000°Cまで 100°C間隔で1時間の等時アニールと測定を繰り返すことにより1本のモニターの測定に要する時間は、急熱急冷可能な電気炉を使用して約30時間であった。ただし、数が増えた場合、同時にアニールすることにより、相対的に1本のモニターの測定に要する時間は短縮される。

(2) X線回折により格子定数を求める方法

X線回折による格子定数の測定では、比較的容易に $<10^{-5}$ の精度が得られ、これは長さ測定法に比べて約1桁よい。試料量も等時アニール測定を繰り返すを行なう場合は約0.3 gで可能であり、形状の制限がない。しかし実験室で行なう場合は、粉碎や内部標準の混合、測定時の取扱に注意を要する。また、X線測定は、今回の条件では1回の格子定数測定あたり約3時間を要した。さらに、X線回折ピークが照射により不明瞭になる領域では使用できない。

次のことが試料に要求される。

- ① β -SiCの単一相である。
- ② 粉碎しやすい。この点で現状の多孔質焼結体は適している。
- ③ 回折ピークが明瞭であること。
- ④ 精度を向上させるためには、格子定数の内部標準を用いる必要がある。

(1)と同じ条件で、1本のモニターの測定に要する時間は約50時間であった。試料が増えた場合も1本あたりの測定時間はそれほど短縮されない。格子定数を単一の回折ピークから求める方法または、X線回折の早い走査速度によれば、精度はやや落ちるが測定時間はかなり短縮される。しかし、粉碎したり回折ホルダーに詰める作業及び測定と等時アニールの繰り返し等の作業は依然人手に頼らざるをえない。

(3) ステップ加熱型熱膨張計による方法

この方法は新たに提案するものである。この方法の特徴を次に示す。

- ① 試料を固体のまま測定できる。
- ② 連続的に測定できる。すなわち、装置にセットするだけで一連の測定が可能であり、従来行なっていた等時アニールとX線あるいは長さ測定の繰り返しの煩雑な操作が不要となる。
- ③ 検出感度は $<0.1 \mu\text{m}$ であるのでX線回折と同等の精度を有する。
- ④ 測定時間が大幅に短縮できる。
- ⑤ 人手を要する操作はさらに短く、したがって被爆減少に大きく寄与する。

- ⑥ 原理的には長さ測定法なので、重照射域においても測定可能である。
- ⑦ データ処理を含めて自動化が容易である。

この方法に用いる試料に要求される性質を次に示す。

- ① 試料は高密度である必要はないが、SiCの単一相であること。
- ② 直径2mm程度、長さ10mm以上、できれば15mm。長い方が相対的に精度が向上する。
- ③ 長手方向に対し端面がなるべく垂直であること。照射により変形した場合は3.1に示したような加工をする必要がある。これは測定中の試料のずれによる変動をおこさないために必要である。平行度の目安は、マイクロメーターで長さ測定をした時に、試料端面の全面がマイクロメーターにあたる程度。

この方法で最も問題になるのは、熱膨張計内の温度分布によるベースラインのずれであるが、装置に注意を払うことで、 $\sim 1000^{\circ}\text{C}$ までのベースラインの変動を $\pm 0.25\mu\text{m}$ に押さえることができる。

この方法による1本のモニターの測定時間は、各温度における保持時間を1時間として、約12時間である。このうち、実際に人手によるのは最初の試料セットだけである。

(1)及び(2)で求めた測定値から、交点温度を求める時は、等時アニール前の値を0として、照射温度まで基本的には変動がないものとして直線をひき、これと減少している値の系列から、適当な温度範囲において直線をひき、前者との交点を求めた。なお、(3)の熱膨張計による測定では、若干のベースラインの変動の可能性があるので、必ずしも変化率=0の直線とはせず、最適値を選んで直線をひいた。図中には使用したデータの値を実線で示した。また、回復過程がステップ上になるものはその部分を破線で、減少率の変動した部分は一点鎖線で示した。交点温度は、ステップの見られない試料では変化率=0の実線と斜めの実線の交点、ステップのある試料では、破線と斜めの実線の交点とした。また、推定照射温度は、委託者により示された照射温度である。

4.2 重照射試料の測定結果

$1 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ 以上の照射量に対する測定結果について述べる。A1SM122~124はこの範囲に含まれるが、4.3項で述べる。測定値を図4-1~4-6、付表1~6に示す。

この測定範囲で、いずれの試料もある温度以上で測定値の減少が認められ、その変化は、ほぼ直線に近似できた。ただし、原因は不明であるが、ZD4M081 (図4-6) 試料の測定値は、試料長が短いこともあり、バラツキがあり、交点温度を特定しにくかった。A1C1A41(図4-2)には、 750°C 付近を境に、回復曲線に屈曲が見られたので、交点温度はそれ以下の温度の測定点を通る直線をひいて求めた。いずれの試料も交点温度は推定照射温度に近かった。ここでは示さなかったが、A1SM122~124試料については等時アニールによりある温度以上で長さ減少が認められた。

これらの測定結果より、長さ測定法によれば、 $\sim 1.7 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$ という重照射域においても、照射温度の推定が可能であると予想される。しかしながら、回復曲線から求めた交点温度と実際の照射温度の対応をより正確に求めるには、Palentine(1980)が行なったように、照射温度が正確に判明している試料について実験を行なう必要があり、今回の試料からは特定できなかった。また、使用した試料は、常陽, Phenix, Rapsodieの照射によるが、それらによる基本的回復過程への影響は本実験の範囲においては認められなかった。

表4-1 測定試料の照射履歴, 測定法, 測定結果

試料番号	入手時の 形状 (mm)	照射量 (n/cm ²) (E>0.1MeV)	照射温度 (°C) ¹⁾	炉内装 荷位置	装荷位置 ²⁾ (mm)	集合体番号	サイクル	測定法 ³⁾	交点温度 (°C)
71A0991	1 φ × 15	2.1 × 10 ²¹	530	7F7	636-740	SMIR-4	1	3	515
71A1011	1 φ × 15	2.4 × 10 ²¹	530	7F7	844-948	"	1	3	515
80A0731	1 φ × 15	4.1 × 10 ²¹	600	5D3	919-1023	SMIR-2	3	3	615
ZD4M081	3 φ × 9	1.7 × 10 ²³	475	-	-	Phenix P-4	-	1	460
ZD2HF6	2 φ × 15	1.0 × 10 ²³	430	-	-	Phenix	-	1	417
XC271S	2 φ × 15	4.8 × 10 ²²	620	-	-	Rapsodie PNC-5	-	1	605
983632	3 φ × 9	2.3 × 10 ²²	575	2E2	461*	PFA010(A1M)	5~7	3	580
A1SM121	3 φ × 9	2.7 × 10 ²¹	370	3C2	-738	PFB020(B2M)	3~10	1	455
A1SM122	3 φ × 9	4.3 × 10 ²²	370	3C2	-252	"	"	1	440
A1SM123	3 φ × 9	6.8 × 10 ²²	370	3C2	+34	"	"	3	465
A1SM124	3 φ × 9	2.6 × 10 ²²	370	3C2	+298	"	"	1, 2	510, 500
A1SM125	3 φ × 9	1.3 × 10 ²¹	370	3C2	+708	"	"	1	510
A1SM126	3 φ × 9	1.5 × 10 ²⁰	370	3C2	+1108	"	"	1	510
A1C2C11	3 φ × 9	1.5 × 10 ²⁰	570	3C2	+1077	"	"	3	617
A1C1A41	2 φ × 15	3.5 × 10 ²²	370	3C2	-290	"	"	3	445
A1C6A41	2 φ × 15	3.0 × 10 ²²	550	3C2	+275	"	"	1	580
20G29S	2 φ × 15	3.0 × 10 ²⁰	470	9A1	-	TTJT00	53/1~54/3	2	470
20G30S	2 φ × 15	3.0 × 10 ²⁰	470	9A1	-	"	"	1, 2	485, 475

1) 設計値

2) 炉心中心からの距離

* ピン下端からの距離

3) 1 マイクロメーター長さ測定

2 X線格子定数測定

3 ステップ加熱型熱膨張計

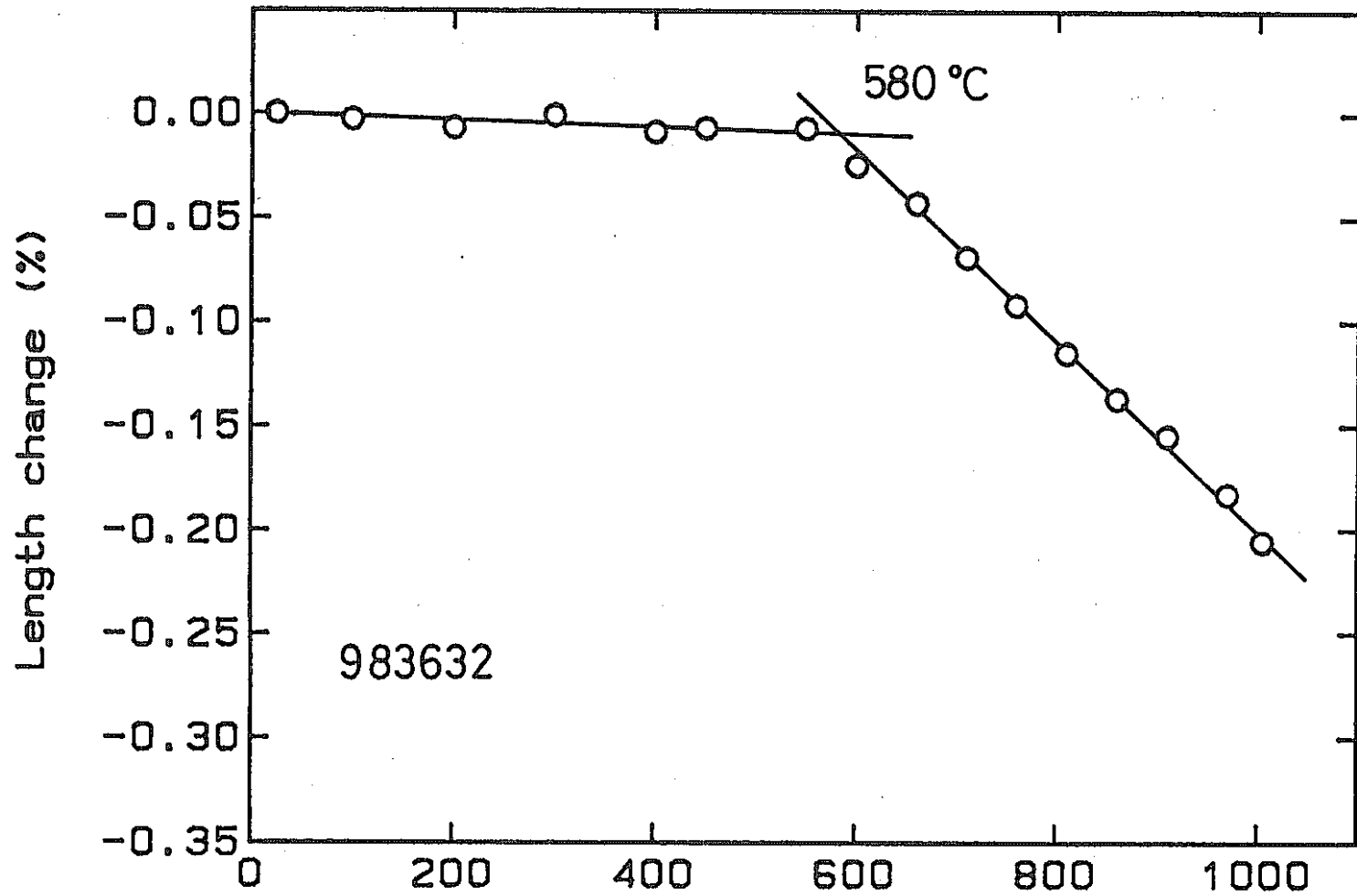


図4-1 試料 983632 の回復曲線 ($2.3 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$)

測定方法：ステップ加熱型熱膨張計

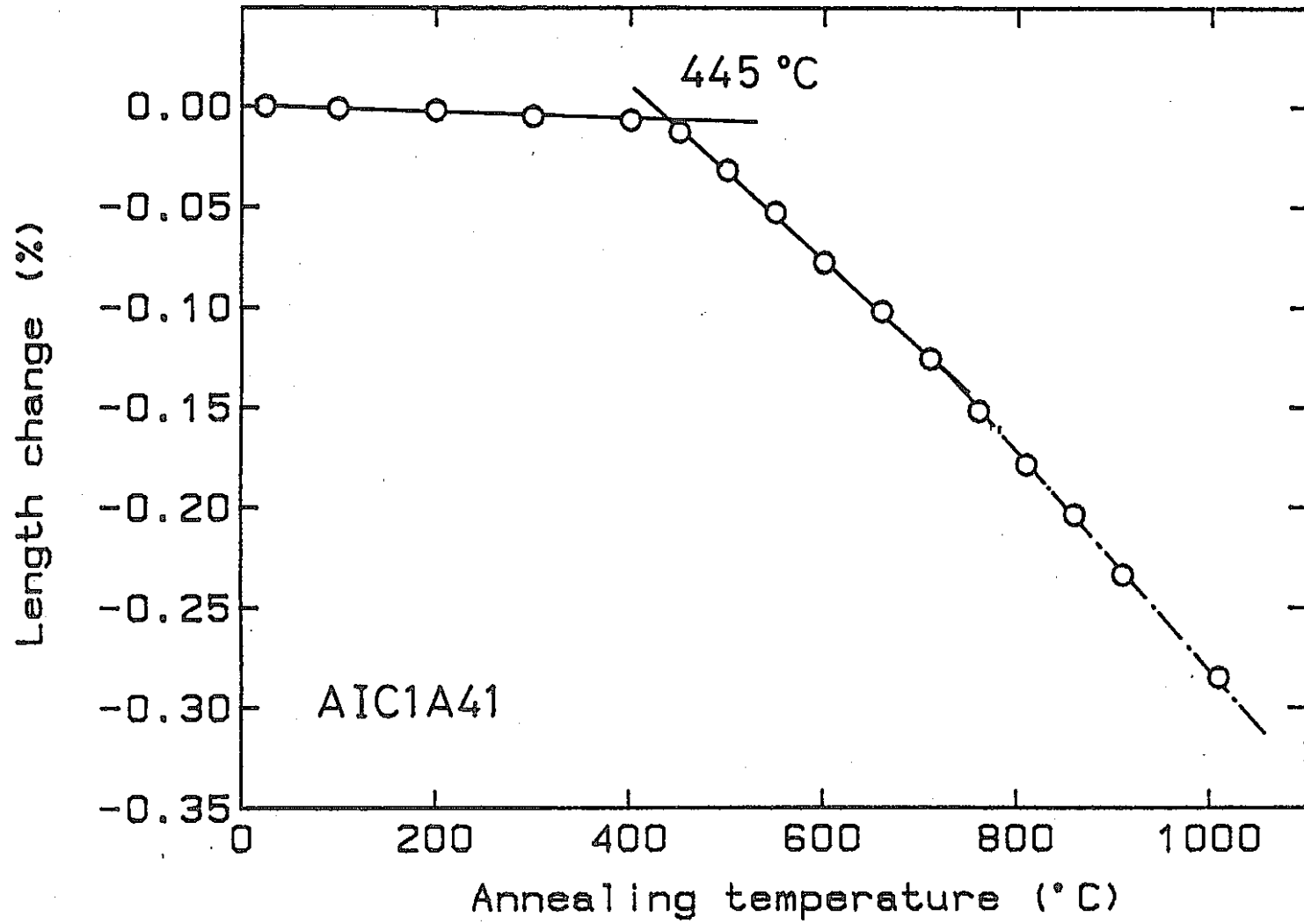


図4-2 試料 A1C1A41 の回復曲線 ($3.5 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$)
 測定方法：ステップ加熱型熱膨張計

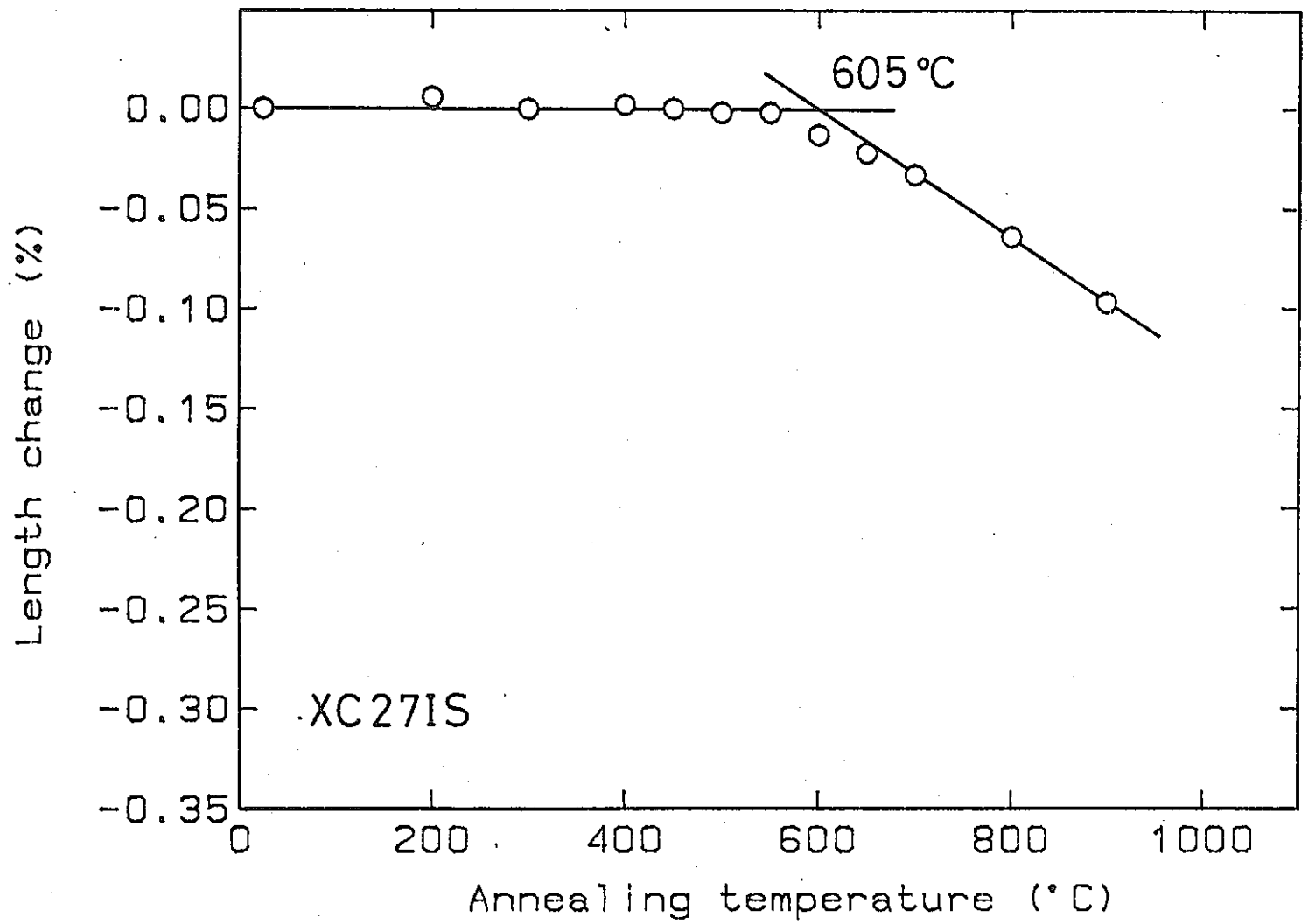


図4-3 試料XC271Sの回復曲線 ($4.8 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$)
測定方法：マイクロメーター長さ測定

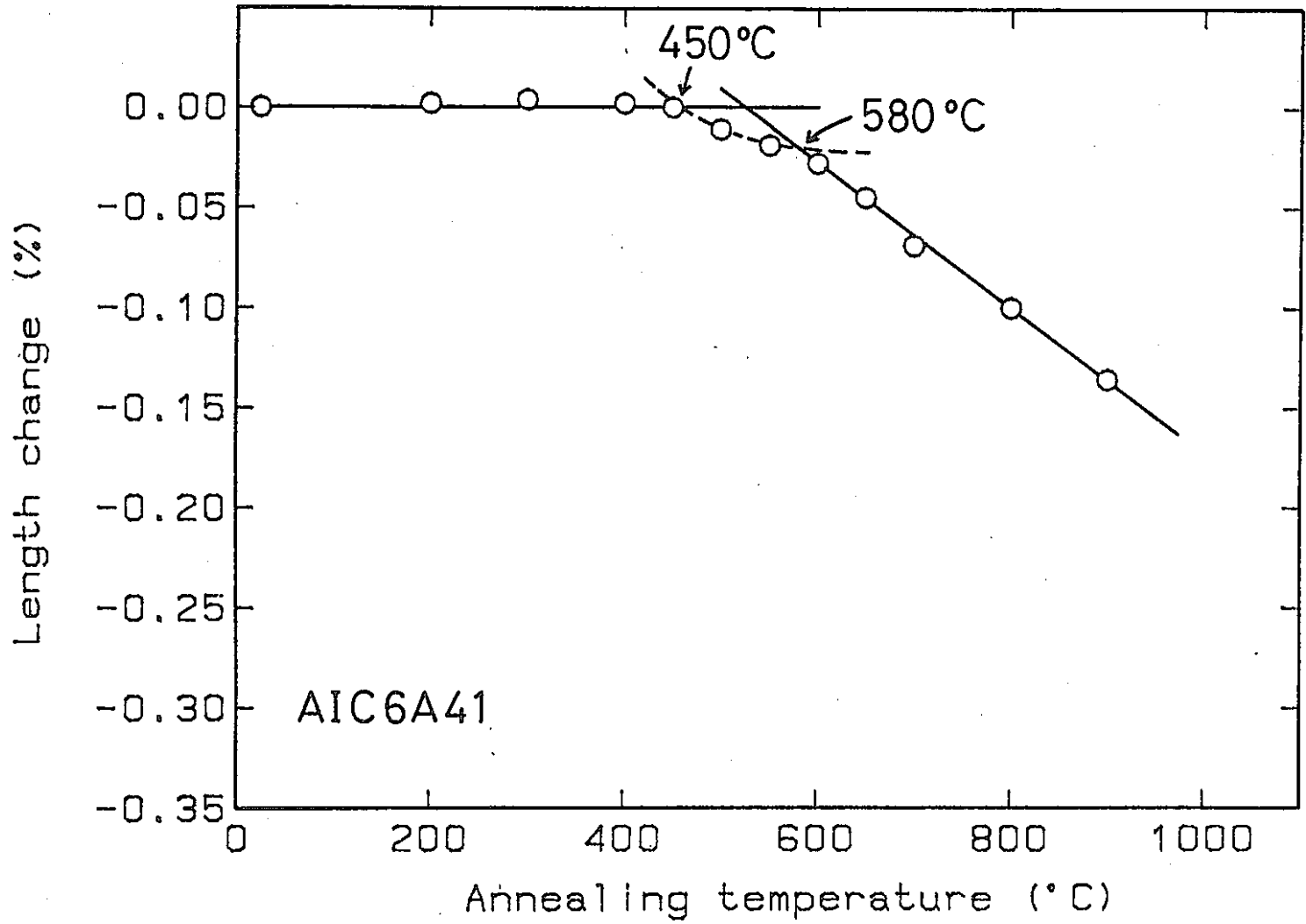


図4-4 試料AIC6A41の回復曲線 ($3.0 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$)

測定方法：マイクロメーター長さ測定

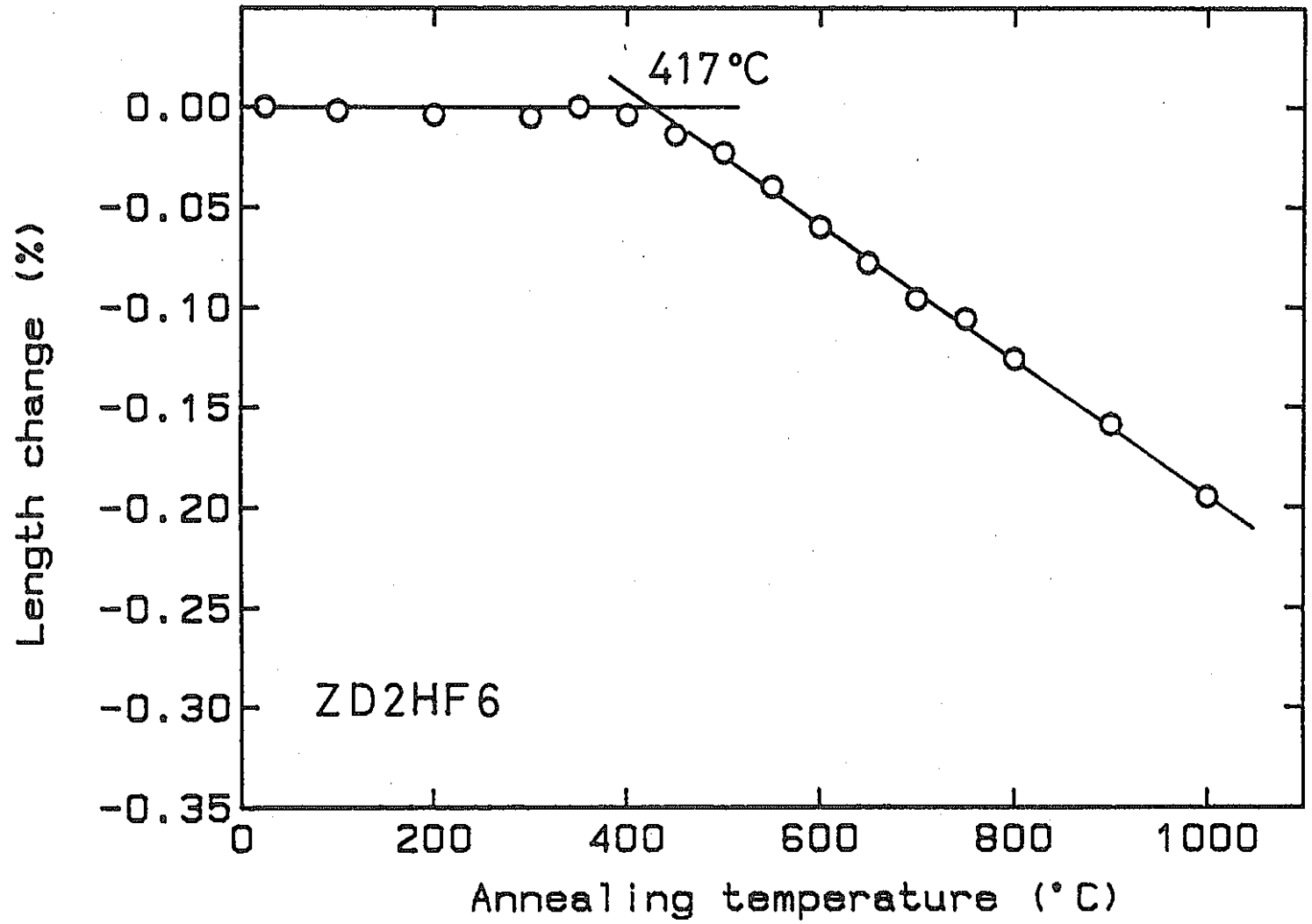


図4-5 試料ZD2HF6の回復曲線 ($1.0 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$)
測定方法：マイクロメーター長さ測定

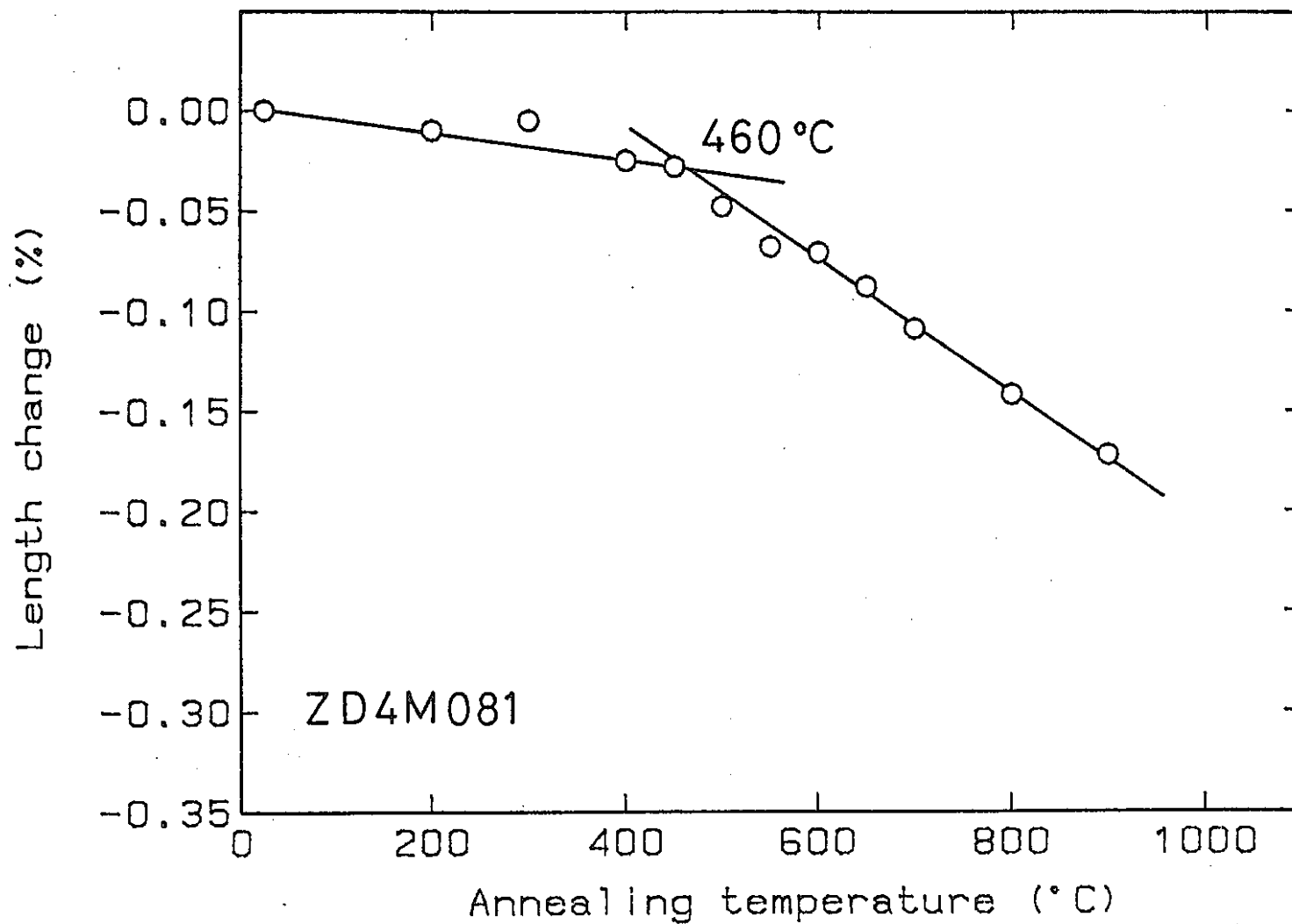


図4-6 試料ZD4M081の回復曲線 ($1.7 \times 10^{23} \text{n/cm}^2$)

測定方法：マイクロメーター長さ測定

4.3 中性子場の異なる試料の測定結果

(1) 燃料集合体領域の試料

図4-7～図4-13および付表7～13に(3C2)で同時に照射され(B2M)軸方向の装荷位置の異なるモニターについての測定結果を示す。(3C2)は燃料集合体領域であり、軸方向装荷位置は-738～+1108mm(炉心中心からの位置)に及ぶ一連の試料である。図4-7から図4-13の順にNa入口側から出口側に並んでいる。

A1SM121(図4-7)の交点温度は約455°Cであった。また800°Cを境に長さの減少率に変化があるように観察される。A1SM122(図4-8)の交点温度は約440°Cであった。長さ減少はほぼ直線に近似できそうである。A1SM123(図4-9)は、ほぼ炉心中心に位置し、この系列の中で最も照射量の高いものであるが、回復曲線は複雑な様子を示した。350°Cまでは変化なく、400～450°Cにかけてやや減少し、500～650°Cでは直線的に減少した。これは、後述するように、炉のShut down 効果が現われているのかもしれない。交点温度は約465°Cであった。さらに700°C前後で直線の不連続が見られた。当初、これは熱膨張計で測定しているため、測定中になんらかの外的要因で試料位置がずれたためと考えていたが、次に示すA1SM124にもほぼ同じ現象が現われていることから、測定上の問題ではなく試料本来の原因によることも考えられる。A1SM124はX線(図4-10)および長さ測定(図4-11)の両方法で測定した。両者の結果は、測定精度内で完全に一致し、A1SM123と同様に400°C付近からの小さい減少と500°C付近からの直線的な減少、及び600～700°Cを境にしたシフトが観察された。交点温度は500～510°Cでステップの値は400～425°Cを示した。A1SM125(図4-12)およびA1SM126(図4-13)にも回復過程にステップがあると考えた方がよく、いずれも交点温度は510°Cでステップの値は425°Cを示した。

図4-14に装荷位置と交点温度の関係を示した。同図には、委託者より示された照射推定温度も示した。中心付近で約50°C照射温度が上昇しているのが観察される。

図4-15(付表14)および図4-2、4-4にA1SMと同時に(3C2)で照射されたAIC試料の回復曲線を示す。A1C1A41(図4-2)は交点温度445°C、A1C6A41(図4-4)は交点温度580°C、A1C2C11(図4-15)は617°Cを与えた。図4-16にこれらの値と推定照射温度を示す。推定温度と交点温度はよく対応していると考えられた。A1C6A41(図4-4)は、2段の回復を示すように見られるが、ほかは単純な回復を示した。

図4-17(付表15)にSMIR-2(5D3)により照射された80A0731試料の回復曲線を示す。全回復量が10 μ mと小さいこともあり、はっきりしたことはいえないが、450°C付近からやや減少し、615°C以上でそれがはっきりしてきた。また850°C付近を境に回復曲線の傾きに変化が認められた。

(2) 反射体領域の試料

図4-18(付表16)および図4-19(付表17)にSMIR-4(7F7)で照射された温度モニ

ターの回復曲線を示す。両者とも交点温度515°Cが得られた。また、回復曲線には800°C付近で傾きの変化が見られた。

図4-20(付表18)及び図4-21(付表19)に長さ測定及びX線回折で求めた20G30Sの回復曲線を示す。この試料と次に示す20G29Sは、以前に供試された試料で、MK-Iの外側ブランケット領域(9A1)で照射されたものである。図4-20及び図4-21を比べると、両者は実験精度内で完全に一致していることがわかる。回復曲線にはステップが認められ、交点温度は475~485°Cを示した。また、両者とも約800°Cを境に減少率の変化が認められた。

図4-22(付表20)に図4-20と同条件で照射したモニター(20G29S)の回復曲線を示す。両者はほとんど同じ回復を示した。なお、この試料は等時アニール途中で電気炉の故障のため600~950°Cのデータはとれなかった。

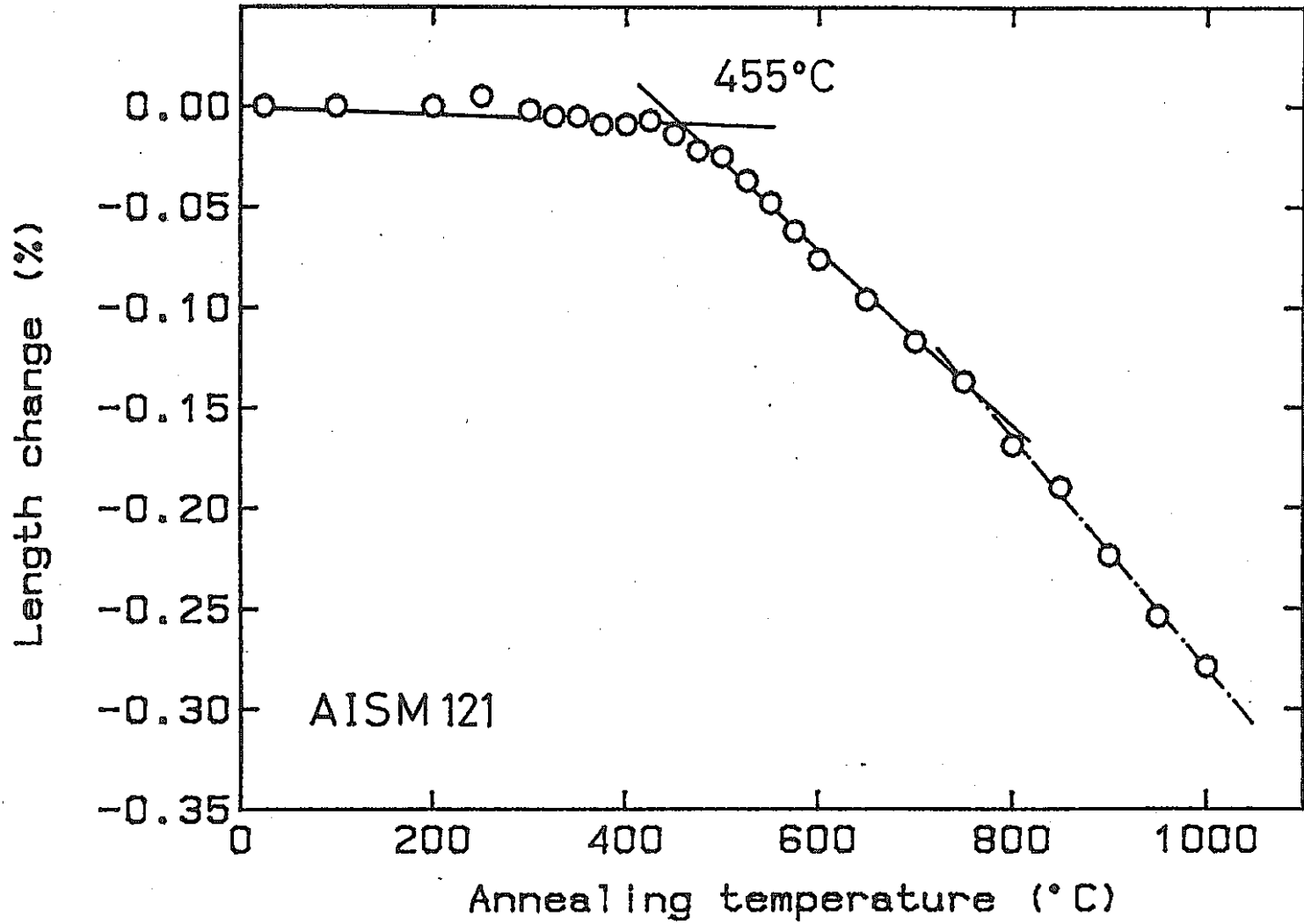
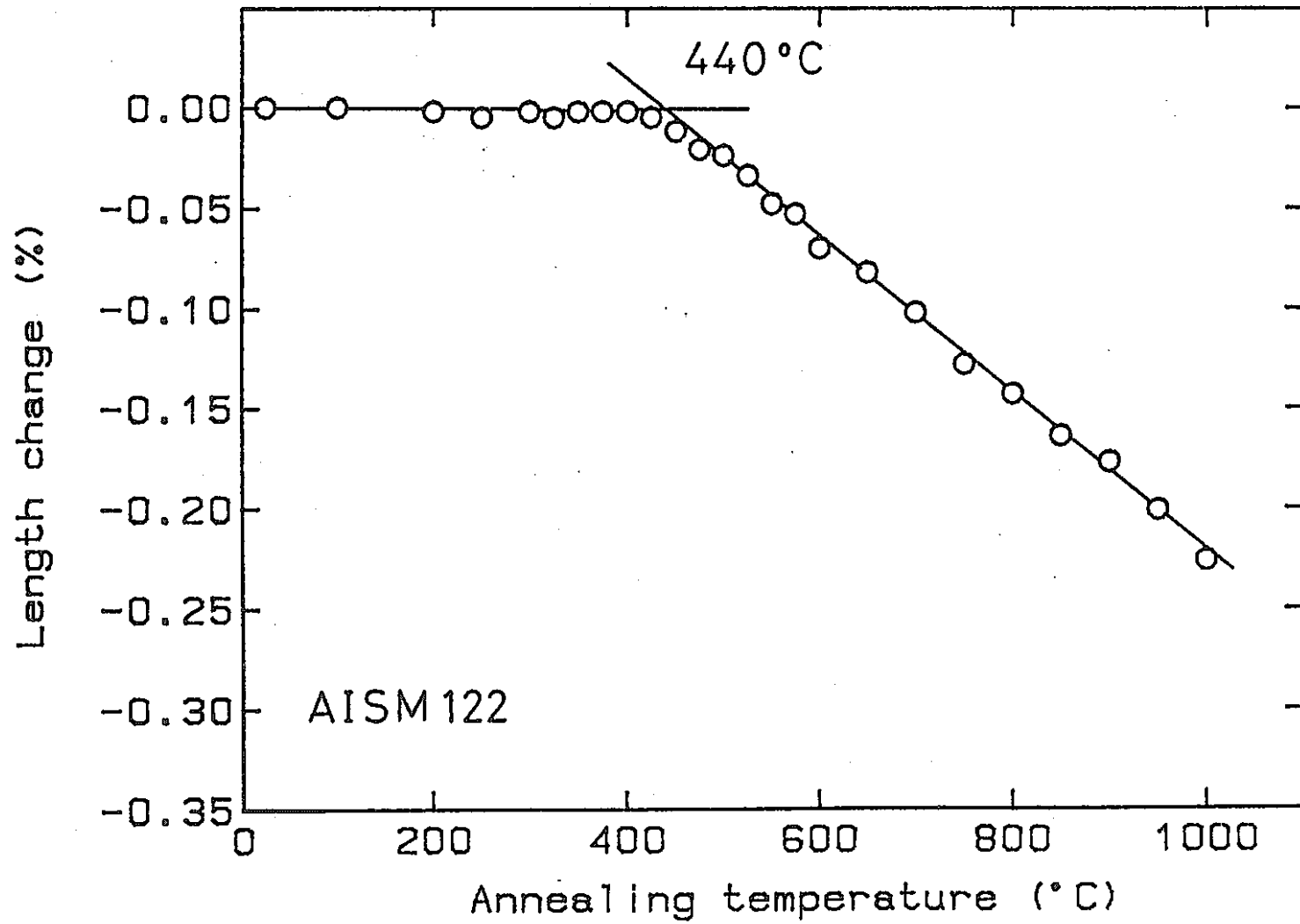


図4-7 試料AISM 121の回復曲線 ($2.7 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$)
測定方法: マイクロメーター長さ測定

図4-8 試料AISM 122の回復曲線 (4.3×10^{22} n/cm²)

測定方法：マイクロメーター長さ測定

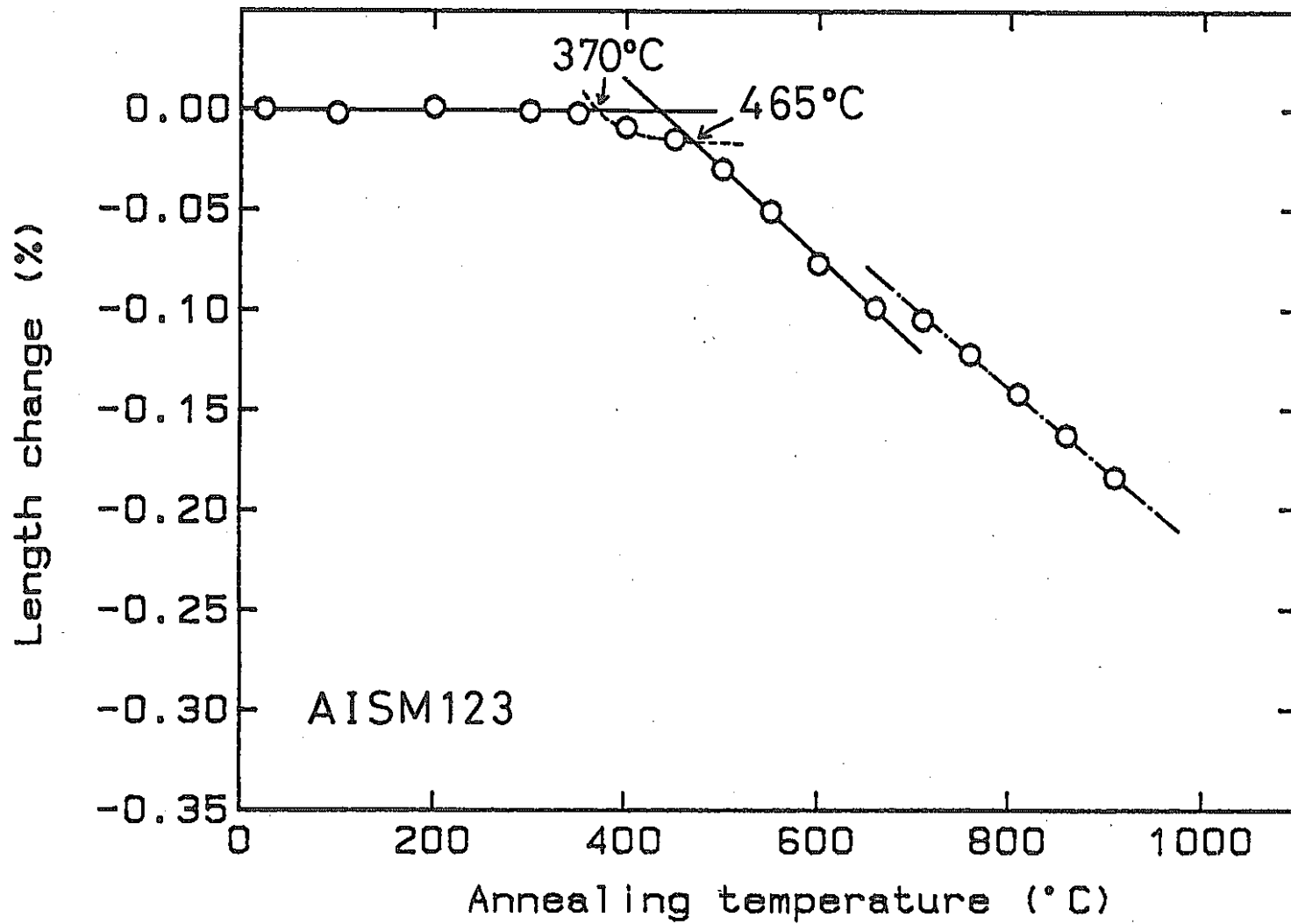


図4-9 試料AISM 123の回復曲線 ($6.8 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$)
測定方法：ステップ加熱型熱膨張計

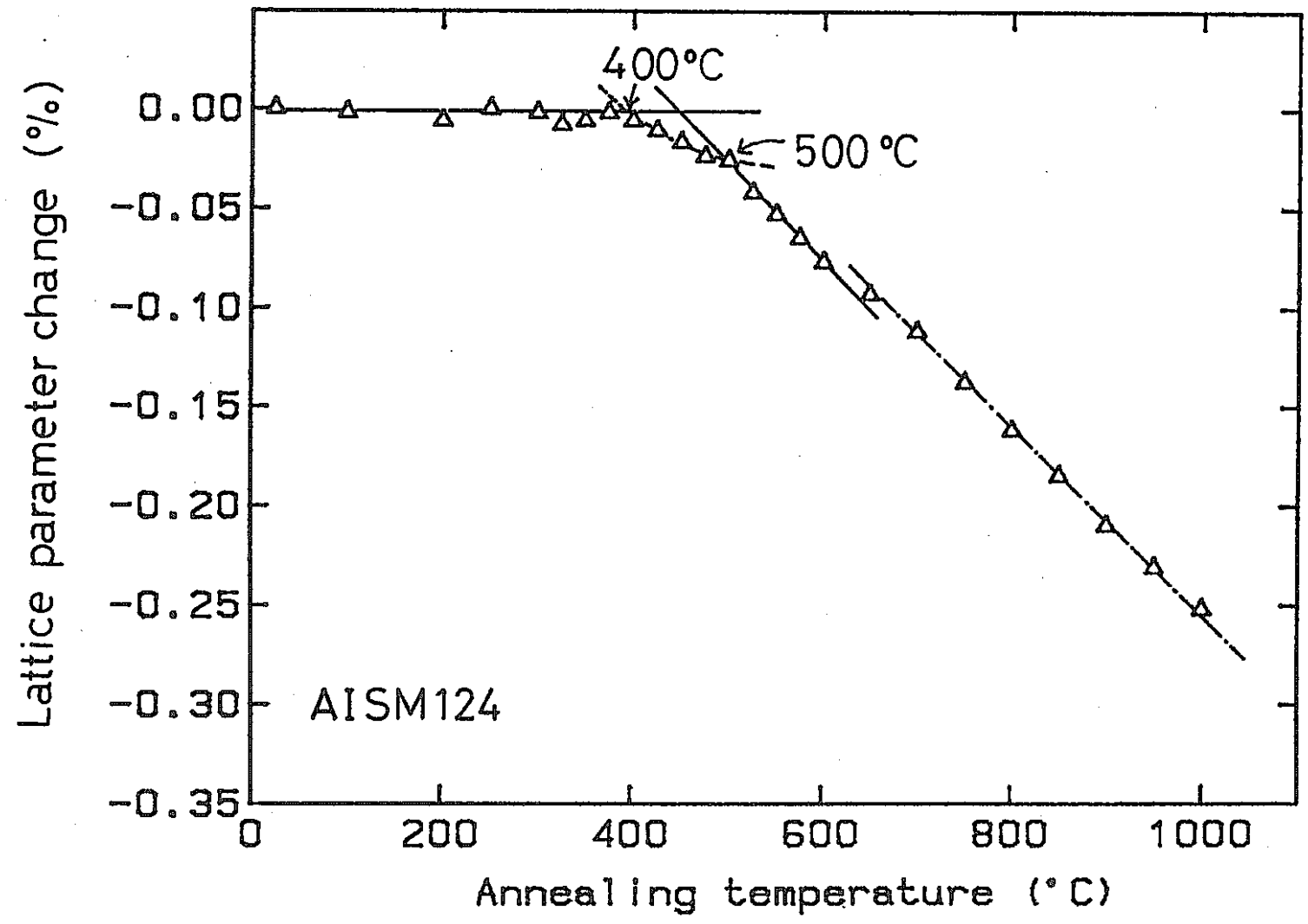


図4-10 試料AISM 124の回復曲線 ($2.6 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$)
測定方法: X線格子定数測定

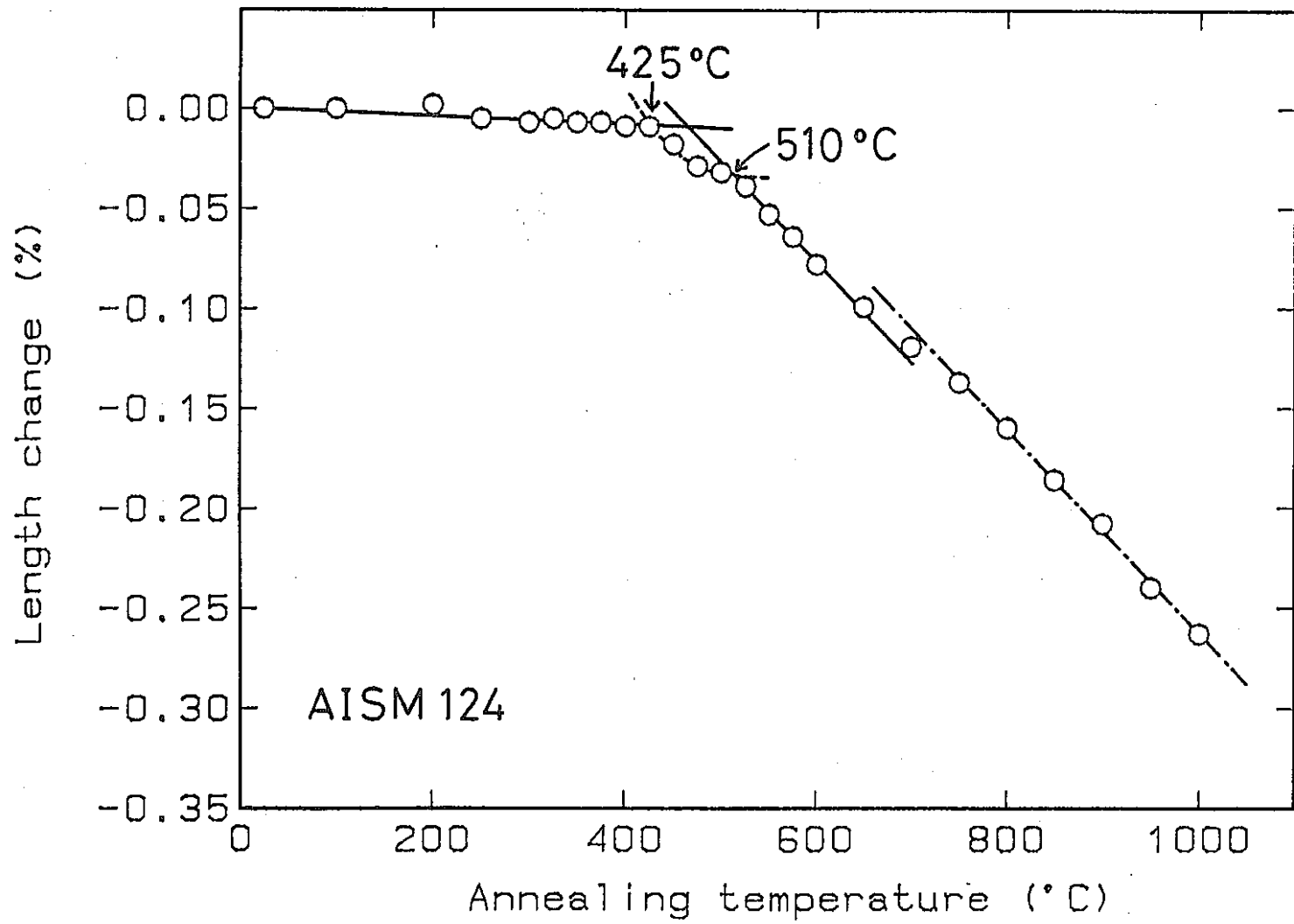


図4-11 試料AISM 124の回復曲線 ($2.6 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$)

測定方法：マイクロメーター長さ測定

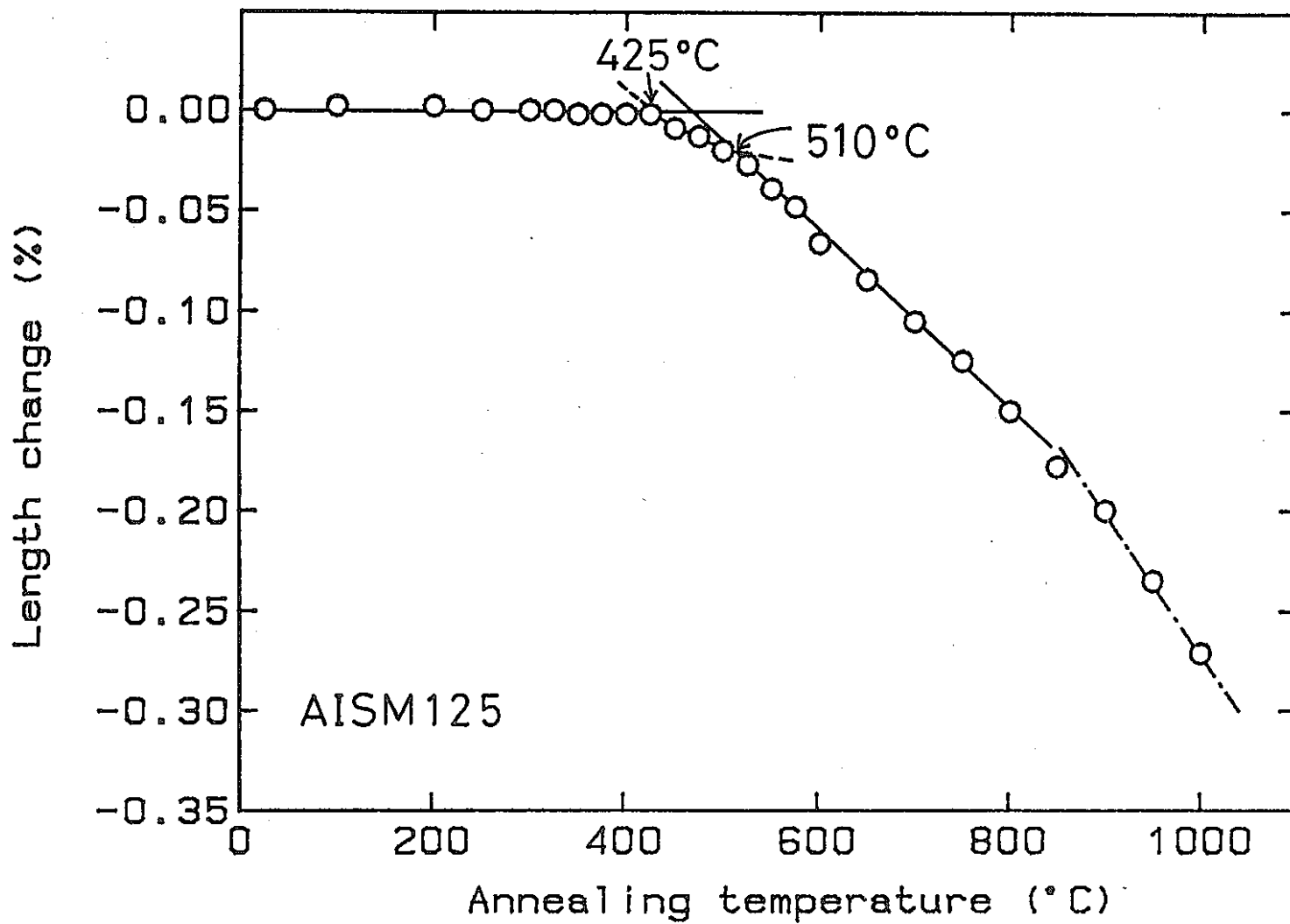


図4-12 試料AISM 125の回復曲線 ($1.3 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$)
測定方法：マイクロメーター長さ測定

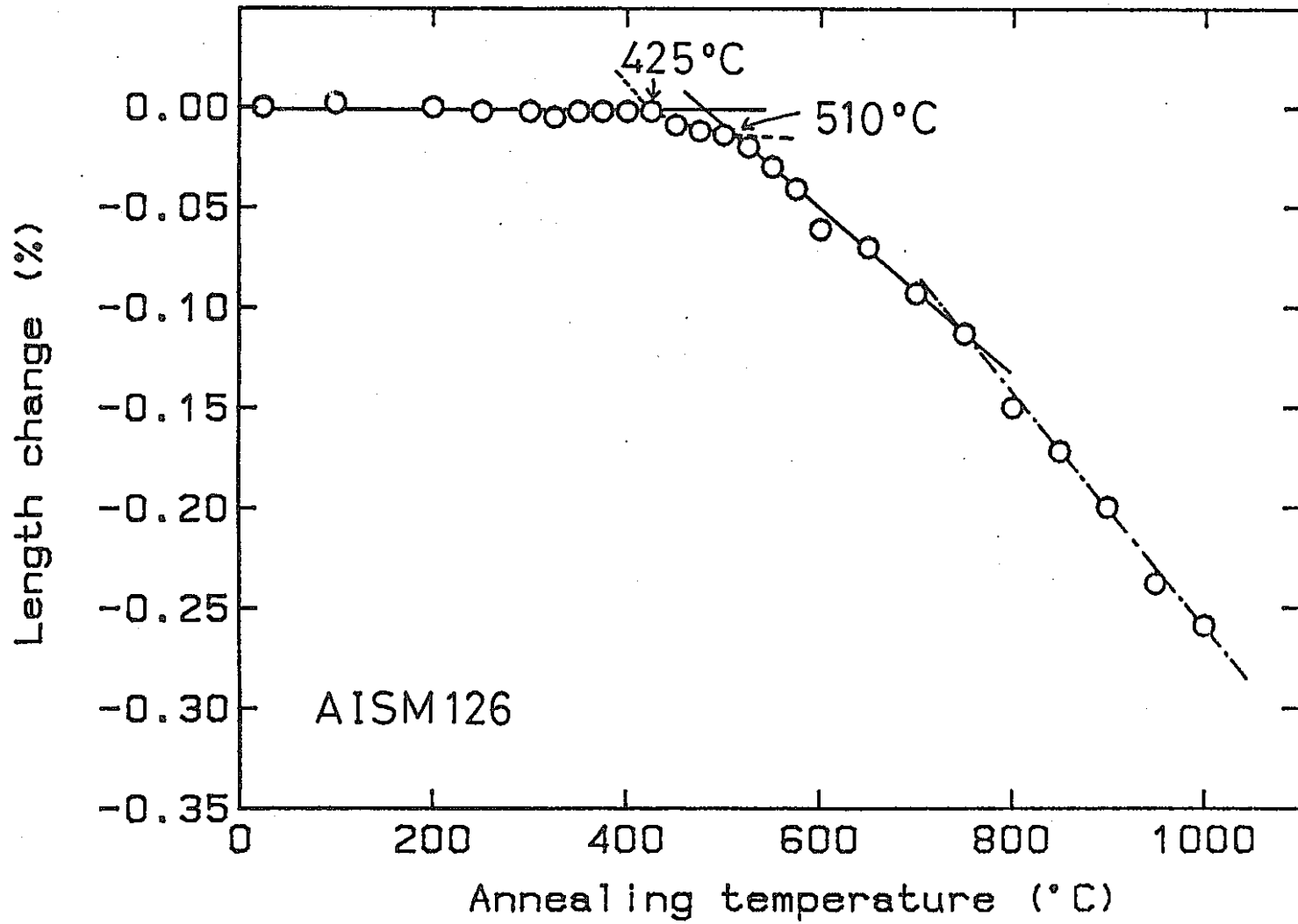


図4-13 試料AISM 126の回復曲線 ($1.5 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$)

測定方法：マイクロメーター長さ測定

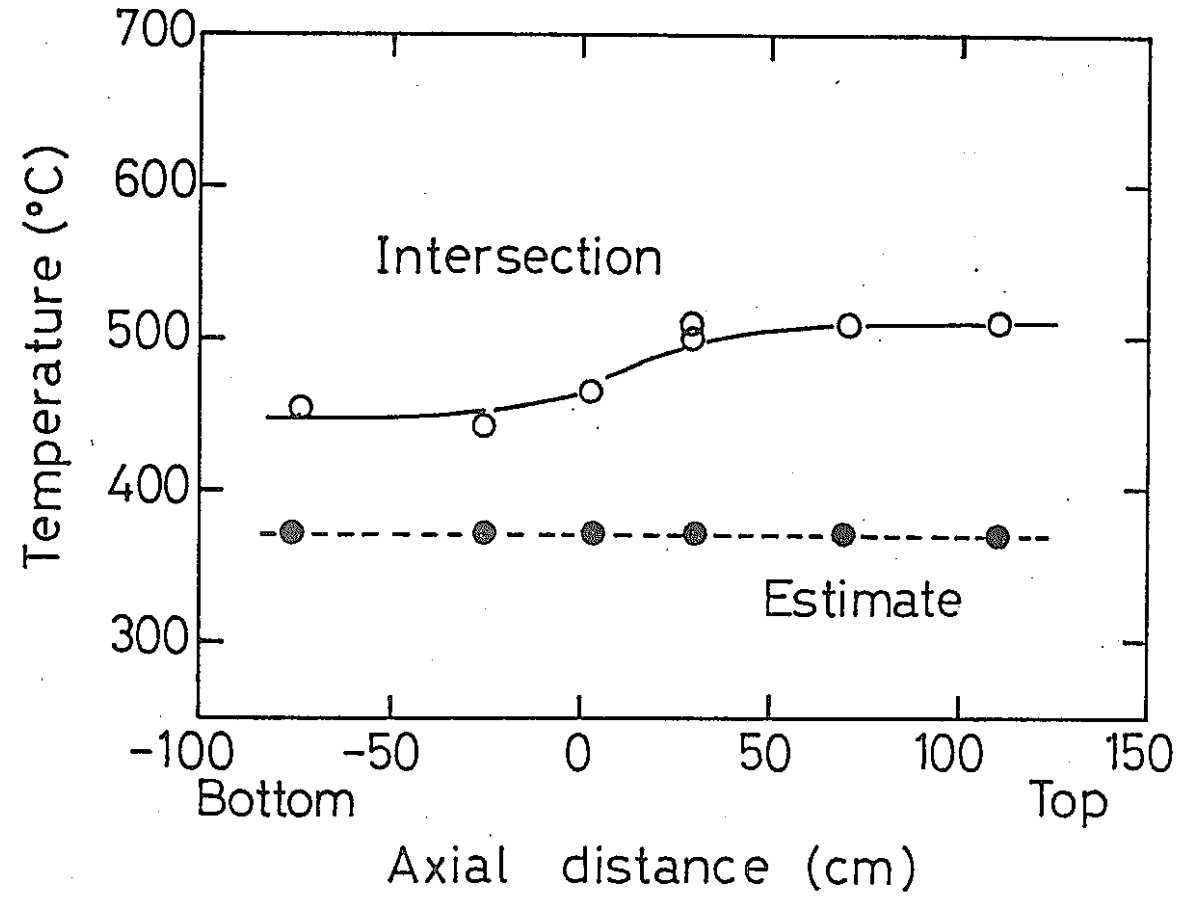


図4-14 AISM系列試料の軸方向装荷位置と交点温度
及び推定照射温度の関係

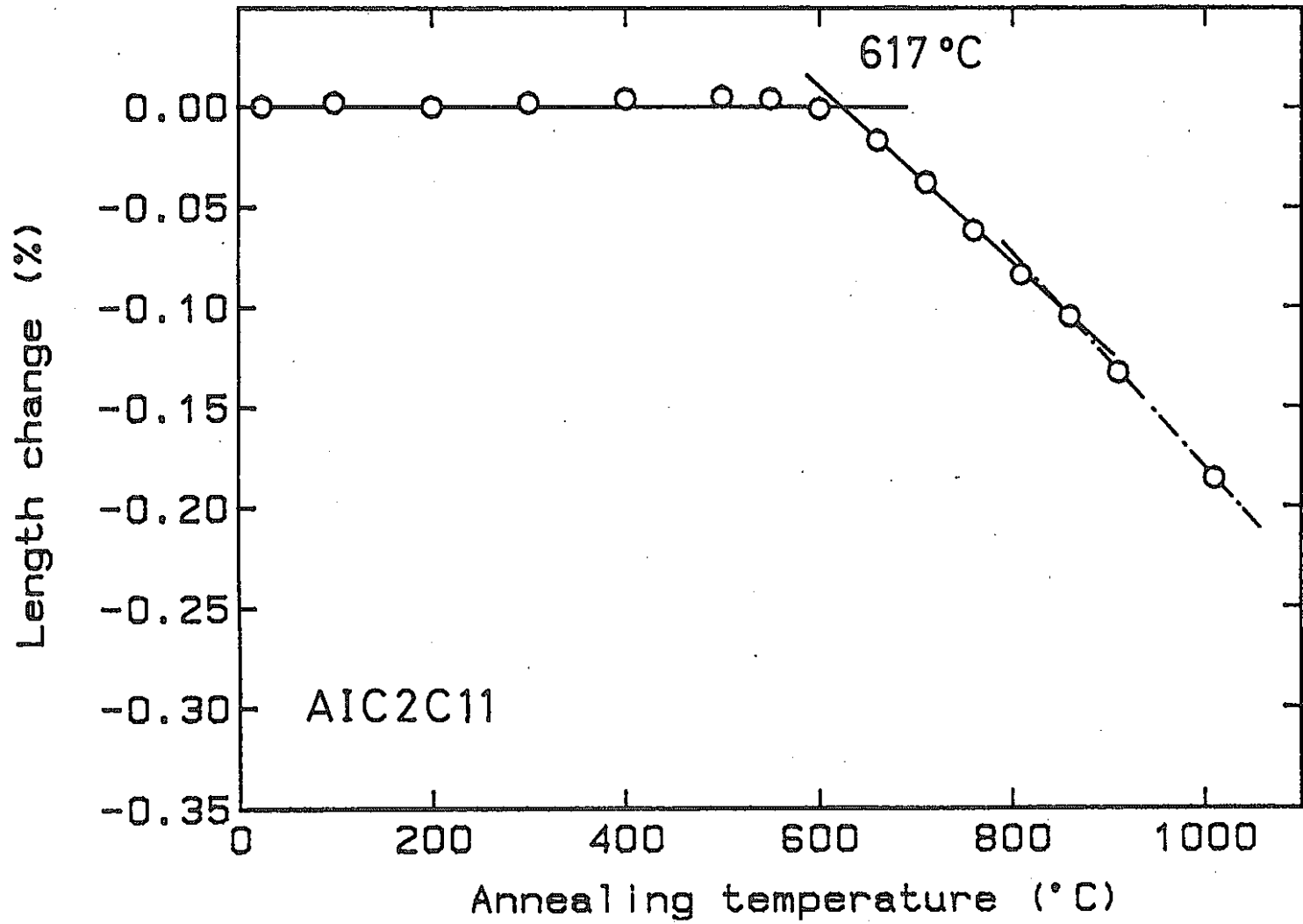


図4-15 試料A1SM C11の回復曲線 ($1.5 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$)

測定方法：ステップ加熱型熱膨張計

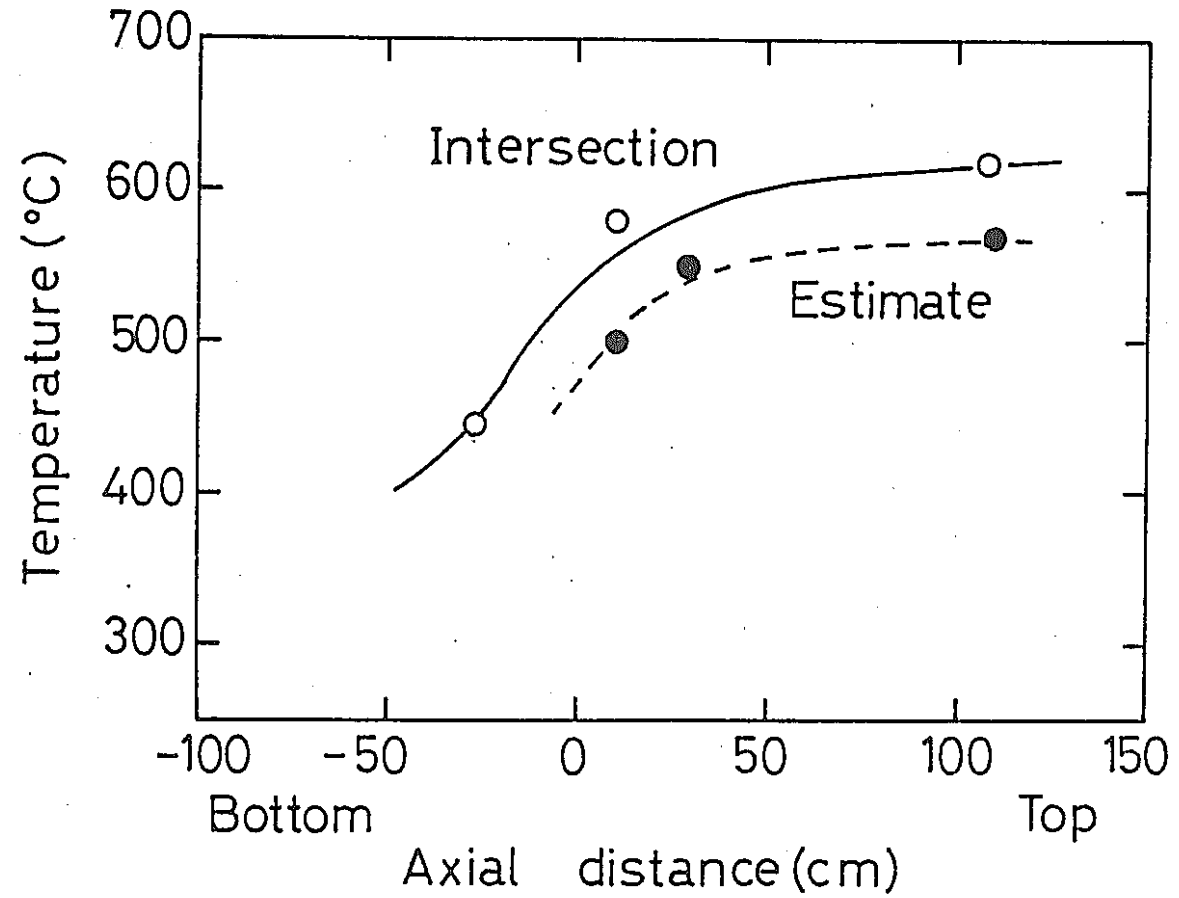


図4-16 A1C系列試料の軸方向装荷位置と交点温度及び推定照射温度の関係

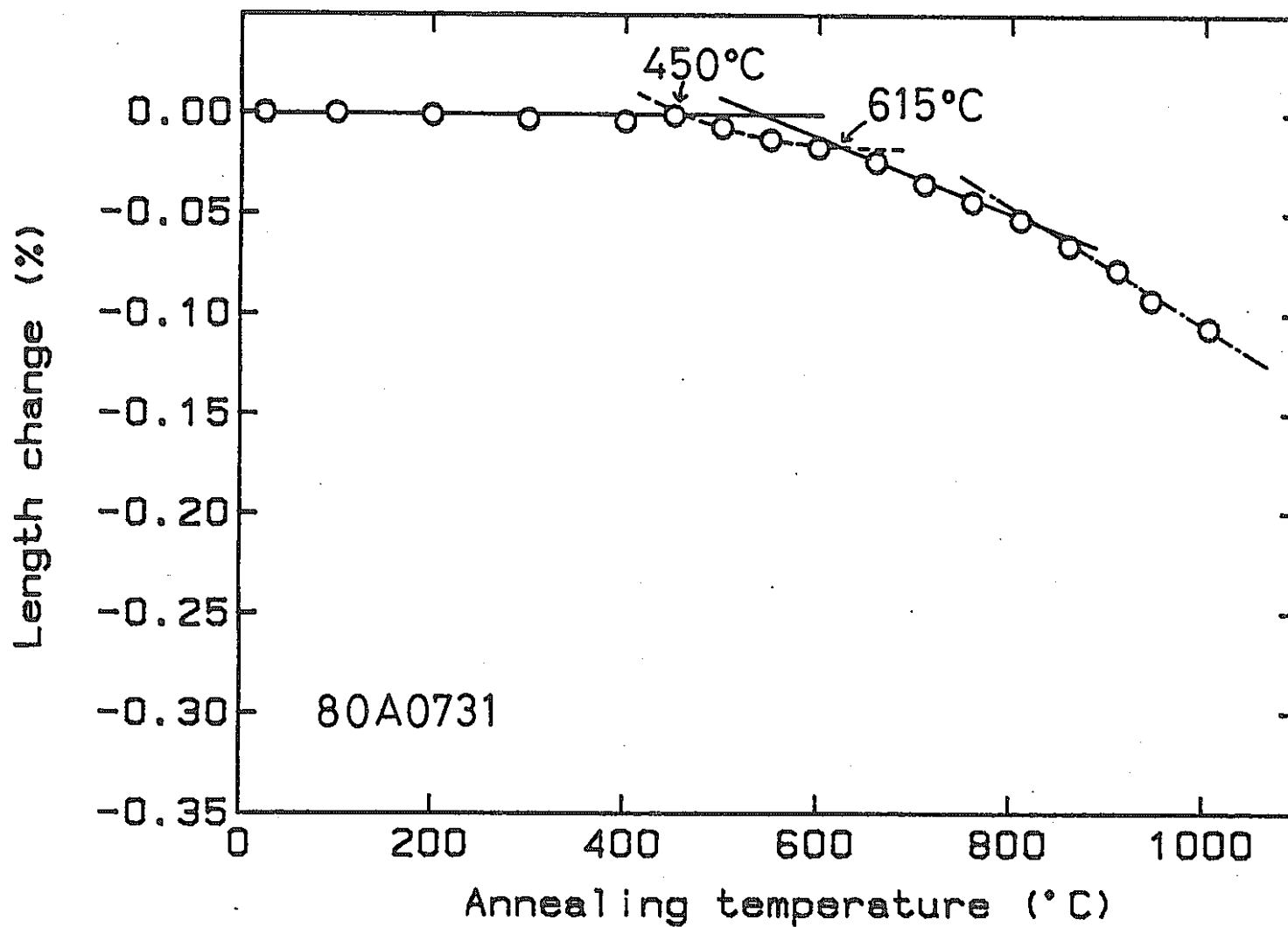


図4-17 試料80 A 0731の回復曲線 ($4.1 \times 10^{21}n/cm^2$)

測定方法：ステップ加熱型熱膨張計

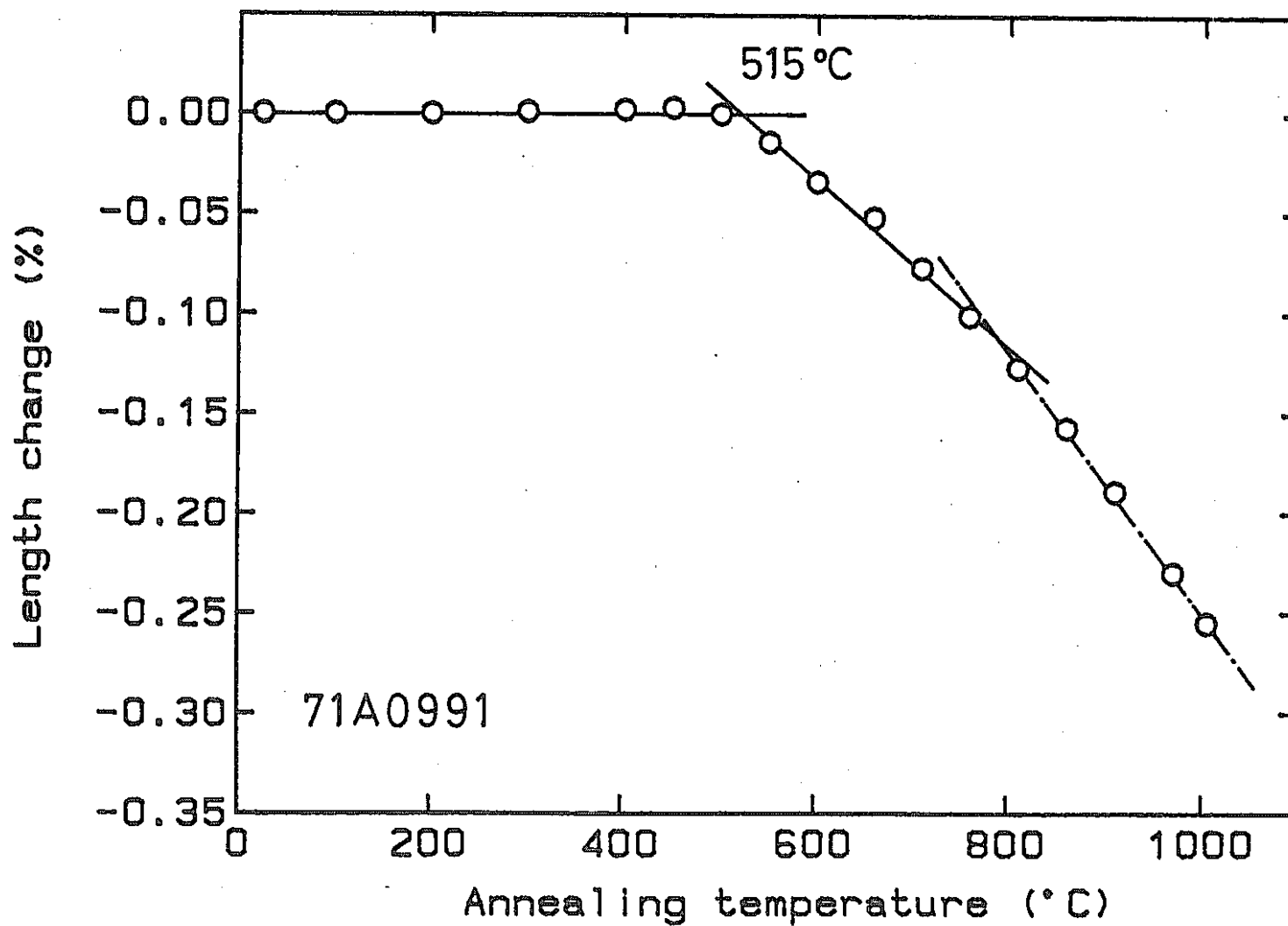


図4-18 試料71 A 0991の回復曲線 ($2.1 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$)

測定方法：ステップ加熱型熱膨張計

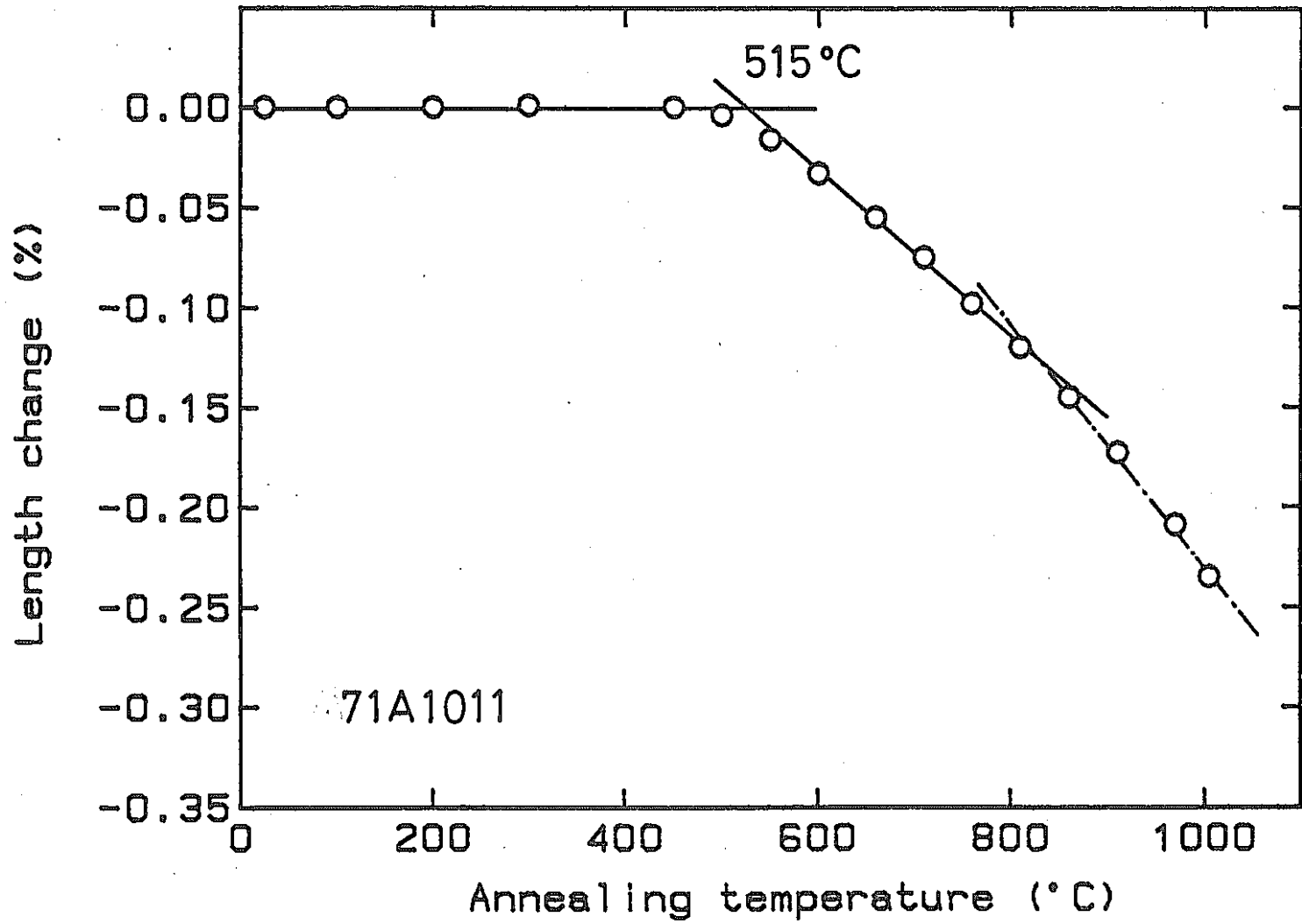


図4-19 試料71A1011の回復曲線 ($2.4 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$)

測定方法：ステップ加熱型熱膨張計

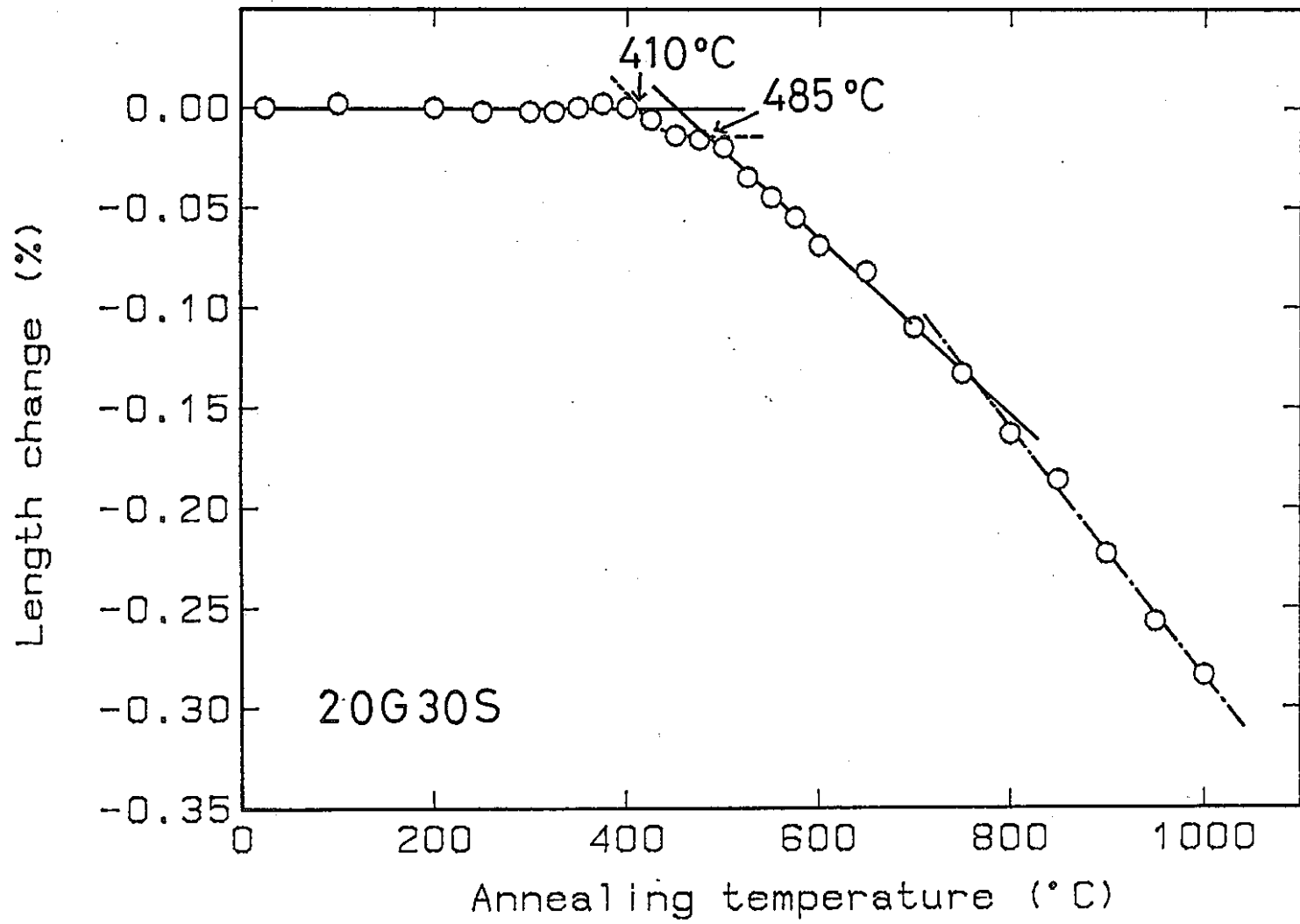


図4-20 試料20G30Sの回復曲線 ($3.0 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$)
 測定方法：マイクロメーター長さ測定

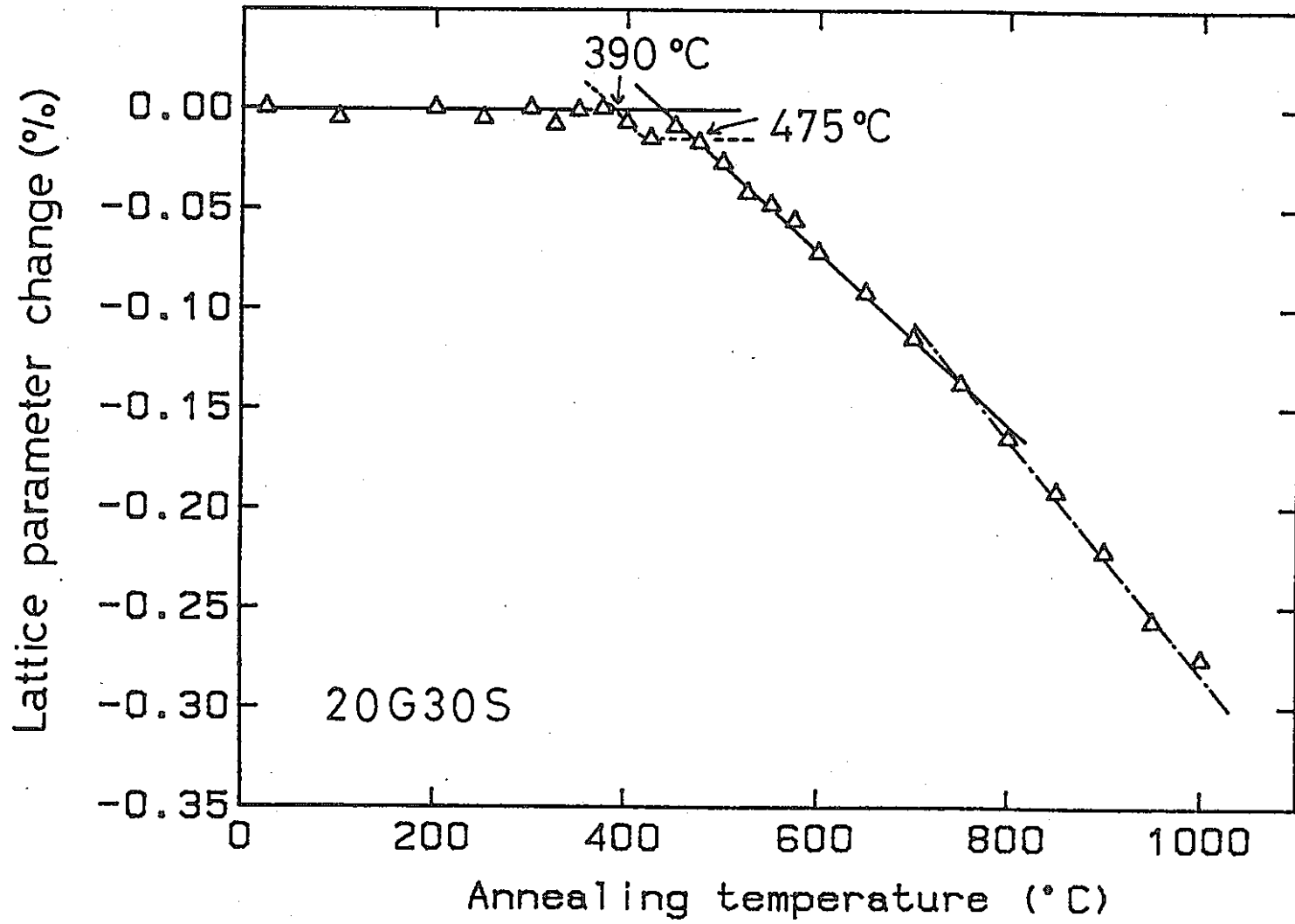


図4-21 試料20G30Sの回復曲線 ($3.0 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$)
測定方法：X線格子定数測定

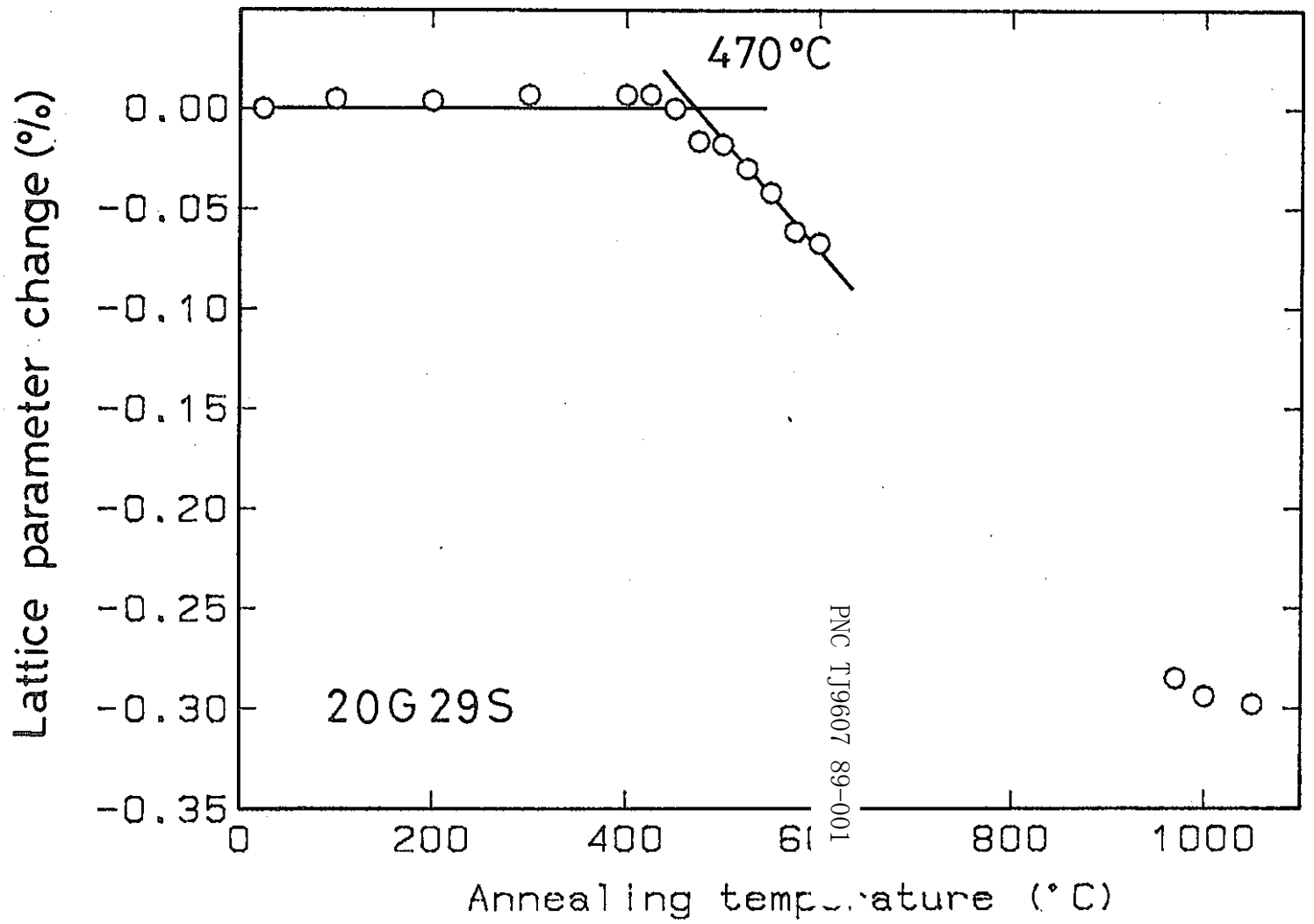


図4-22 試料 20G29S の回復曲線 ($3.0 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$)

測定方法：X線格子定数測定

4.4 照射履歴の異なる試料の測定結果

SiC 温度モニターは、Bramman et al, (1971)によって指摘されているように、照射の終期の温度を反映する。したがって炉のshut down効果が現われる可能性があり、実際Martin et al, (1967)によれば、ゆっくり出力を低下した場合に、温度モニターの回復過程がステップ状になることが示されている。また、以前の我々の研究でもそれが認められる試料が存在した。

本実験で使用した試料は、表4-1に示すように、SMIR-4 (第1サイクル), SMIR-2 (第3サイクル), PFA010 (第5~8サイクル), PFBO20 (第3~10サイクル), TTJT00 (MK-I, 53-1~54-3サイクル) およびRapsodie PNC-5, Phenix P-4である。ここでは照射履歴が比較的良好にわかっている常陽MK-IIの試料について比較する。

図4-23~26に委託者より示された第1, 第3, 第8, 第10サイクルのプラント運転状況を示す。炉容器出口Na温度に注目してみると、定常運転状態の500°Cから第1サイクル終了時では430°C付近で約8日間、第10サイクルでは440°C付近で約1日のステップをおいて約250°Cに低下している。これに比べ、第3サイクル及び第8サイクルでは500°Cから直接250°Cに降下しているのがわかる。

第1サイクルで終了した2本の試料71A0991(図4-18)と71A1011(図4-19)には、shut down効果は見られなかった。

第10サイクルで終了した試料、AISM系列およびA1C系列の試料では、回復曲線にステップの見られる試料と見られない試料があった。AISM系列(図4-7~13)では、装荷位置が燃料領域より上部の試料(AISM123~126, 図4-9~13)において、連続的な長さ減少が始まる点に比べ85~100°C低いところにステップが見られた。これは、サイクル終了時のNa出口温度の段差的60°Cに対応すると考えられる。この間の照射量は、燃料領域において、50 Mwt運転であるので、24時間、速中性子束密度が100Mwt運転時の1/2と仮定すると、 $1.8 \times 10^{15} \text{ n/cm}^2\text{s} \times 3600 \times 24 = 1.6 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ 程度と見積もられる。これはほぼスエリングが飽和する照射量である(Thorne et al, (1967))。また反射体最上部では、これより約2桁少ないと予想される(図5-2~4)。ステップにおける減少率は0.01~0.02%であり、照射量の多いものほど大きい傾向が認められた。

A1C系列の試料では(図4-2, 4-4, 4-15), 燃料領域のA1C6A41にのみステップが認められた。

一方、出口Na温度が500°Cから250°Cに低下している第3及び第8サイクルで終了している80A0731(図4-17), 983632(図4-1)では、前者には明瞭ではないがステップが認められるようであり、後者には認められなかった。この原因については不明である。

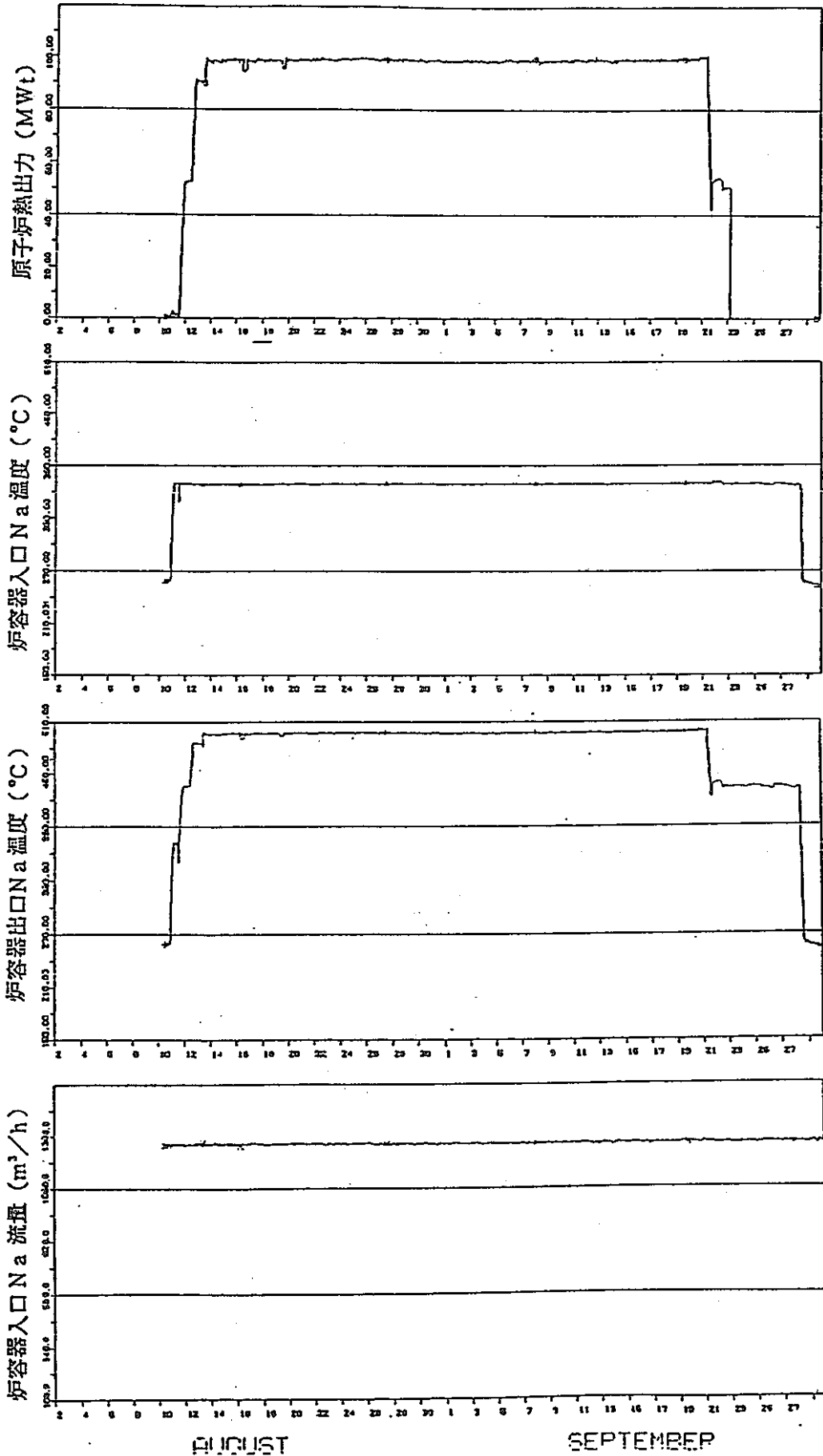


図4-23 第1サイクルのプラント運転状況

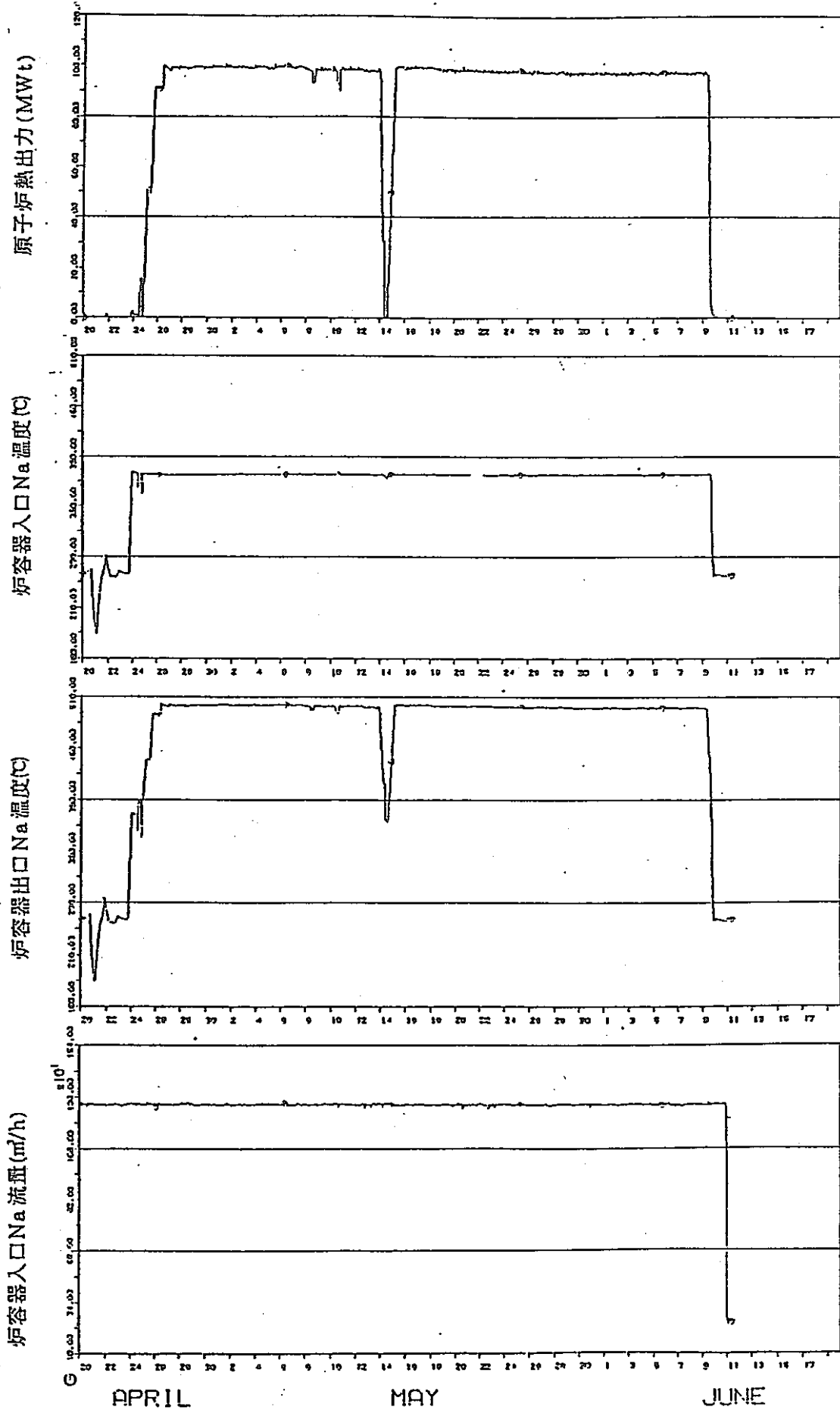


図4-24 第3サイクルのプラント運転状況

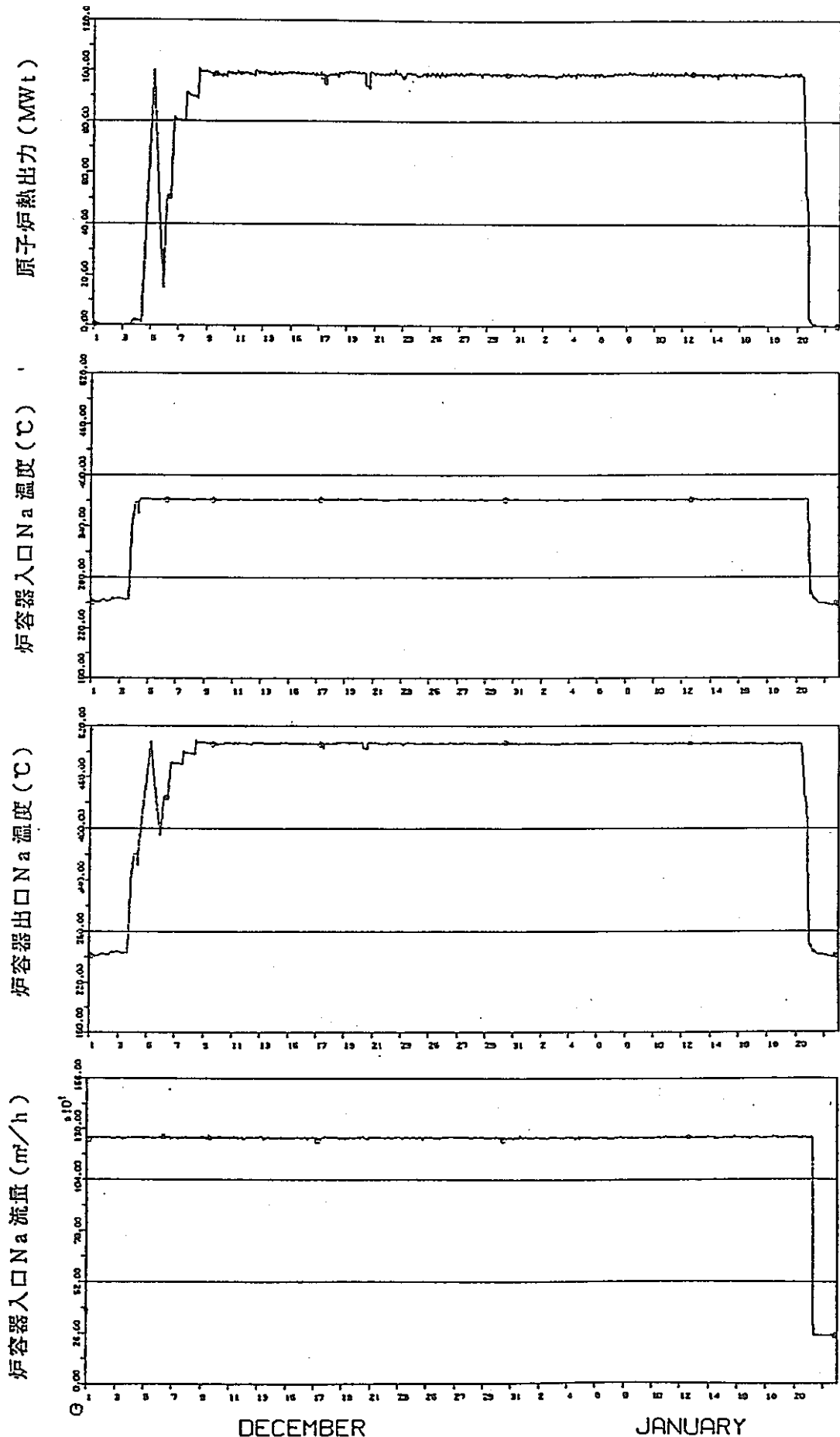


図4-25 第8サイクルのプラント運転状況

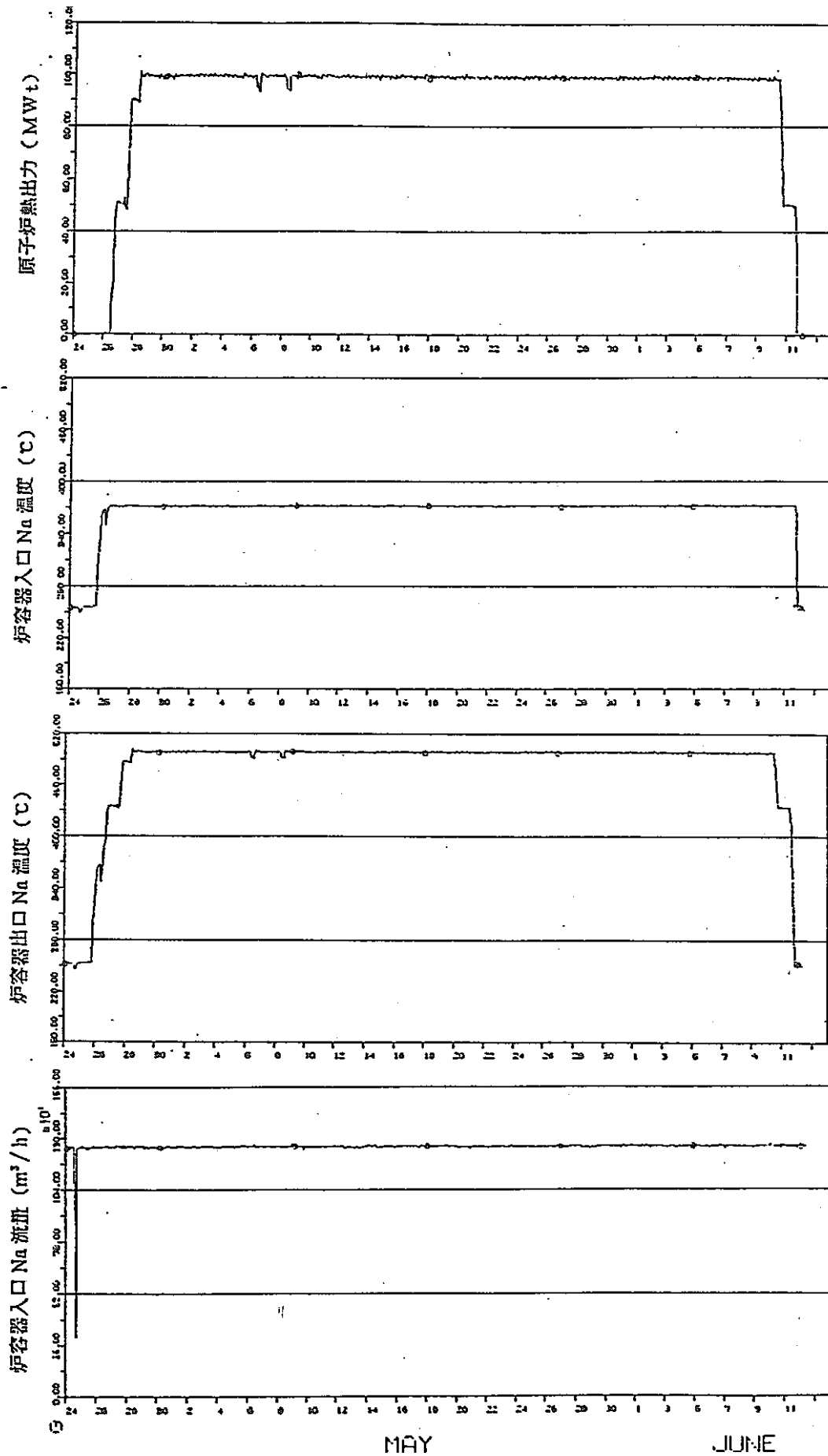


図 4-26 第 10 サイクルのプラント運転状況

4.5 微構造観察結果

時間の都合上、今回給与された試料については観察できなかったが、ほぼ近似した条件で照射されたと思われる試料についての観察結果を示す。表4-2にここで用いた試料の照射条件等を示す。比較のため、一部JMTRで照射した α -SiC焼結体についても示した。

(1) 高速炉照射した試料に見られる欠陥とそのアニールによる変化

すでに報告してたので、(Yano et al, (1988)) 詳しくはそれを参照していただきたい。ここでは、最近の研究成果について主に述べる。

図4-27~28にZD2HF6試料のTEM写真を示す。照射量は $1.0 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$ である。図4-27は $\langle 110 \rangle$ 方向から電子線を入射して得た(a)明視野像、及び(b)暗視野像である。この方向から観察すると $\{111\}$ 面状の欠陥を横から見ていることとなり、直線状のコントラストが得られる。その長さは10~30nmである。図4-28は同じ試料の端に近いところに存在する欠陥を同方位で高分解能観察したものである。矢印で示したところに1層の余分な原子層が挿入されているのが観察される。また、写真上下方向の点(点1つがSiC₄4面体に対応する)の並び方を見ると、余分な1層が挿入された面の上下で2つの点がその上下とは異なる積層をしているのがわかる。 β -SiCの原子配列を考えたシミュレーションから、この欠陥のモデルとしてバーガースベクトル $1/3 \langle 111 \rangle \{111\}$ を持つ格子間原子型フランクループとして解釈できることを確かめた。これは、Price(1973)に予想され、Clinard et al, (1986)により記述されているものを裏づける結果となった。

図4-29にはXC32SIS($4.6 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$)試料の観察結果を示す。図4-28に比べ、積層欠陥を伴う転移ループの大きさはやや小さくなったが、同様に比較的多数観察された。

図4-27~29に観察された欠陥は、1000°Cまでのアニールによってはその大きさ及び数密度ともに変化しなかったが、1400°Cのアニールにより数密度は減少し、大きさは大きくなるのが観察された(図4-30)。

図4-31にZD1M65($1 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$) 図4-32に64T061($4.3 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$)の高分解能写真を示す。かなり詳細な観察をしたが、これらの試料には図4-28に見られるような原子配列の乱れは観察されなかった。またそれらの等時アニール後の変化も認められなかった。

(2) JMTR照射試料のTEM観察

中性子場の違いによる影響を調べるため、JMTRで照射した α -SiCの試料についての観察結果を示す。

図4-33に、RB(Reaction-bonded)-SiC($8.4 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$, $E > 1 \text{ MeV}$)の写真を示す。 α -SiCのため、結晶系は異なるが、図4-28に対応する結晶面を示している。6Hポリタイプタイプの6層周期が観察されるが、所々に矢印(図4-28)で示したようなレンズ状の格子の乱れが観察された。これは照射により形成されたものと思われ、その大きさ(~2 nm)

は従来black dots defectsと呼ばれているものと同じぐらいであるが、それに対応するかどうかは現在のところ不明である。これも最密結晶面である六方晶系の(0001)面に余分な原子層がはさまれたフランクループと考えられる。同様な欠陥がP L S (Pressureless - sintered)-SiC, RB(Reaction - bonded)-SiCにも観察された。また、これらは、1400℃程度のアニールによっても消滅しなかった。

表4-2 電子顕微鏡観察に用いた試料の照射履歴

試料番号	照射量(n/m) (E>0.1MeV)	照射温度 (°C)	照射炉
ZD2HF6	1.0×10^{23}	430	Phenix
XC32S1S	4.8×10^{22}	—	Rapsodie
ZD1M65	1.0×10^{22}	472	Phenix
64T061	4.3×10^{21}	370~420	JOYO
RB-SiC	8.4×10^{20} *		JMTR

* (E>0.1MeV)

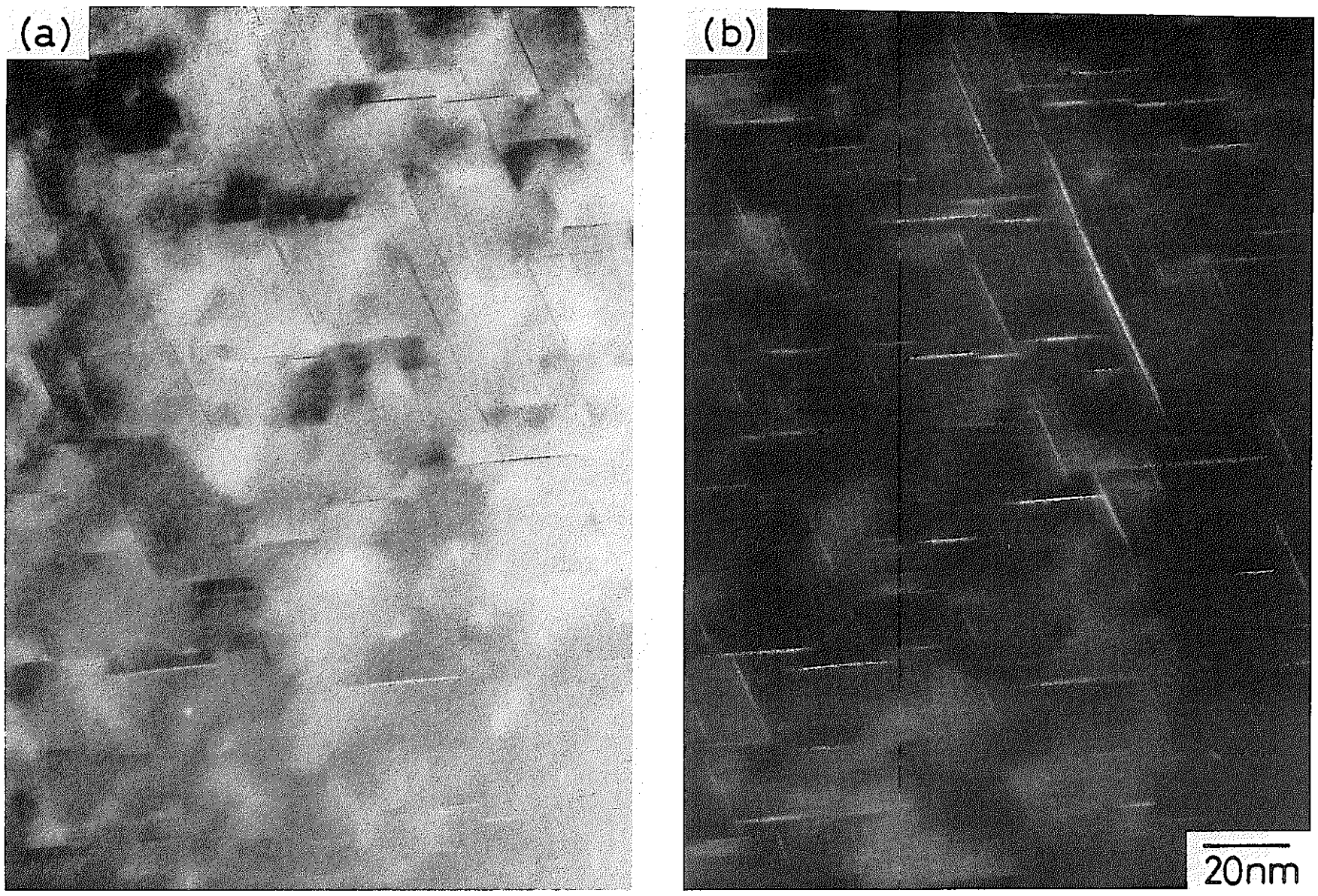


図4-27 試料ZD2HF6のTEM写真 ($1.0 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$)
(a) 明視野像 (b) 暗視野像

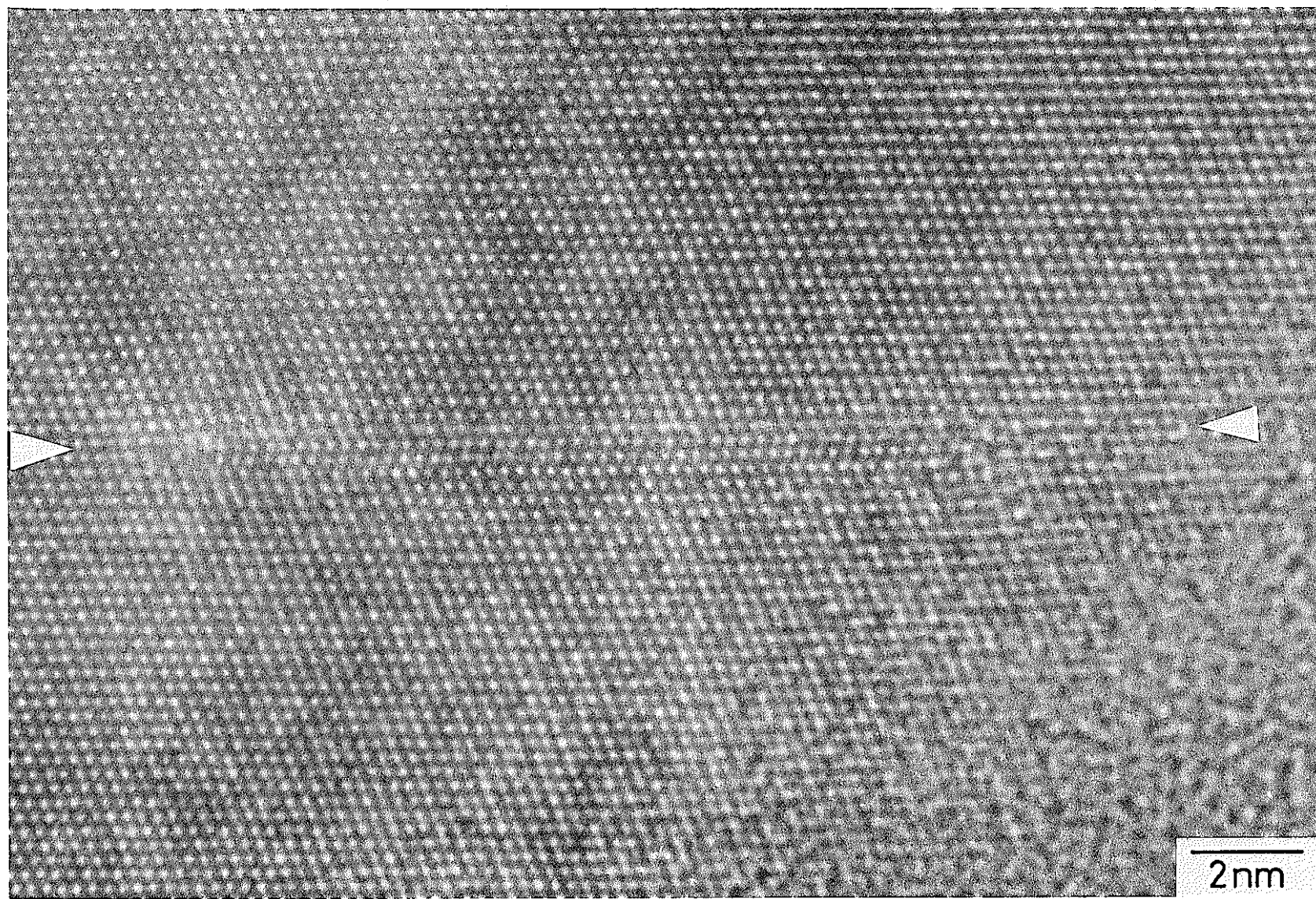


図4-28 試料ZD2HF6の高分解能TEM写真 (1.0×10^{23} n/cm²)

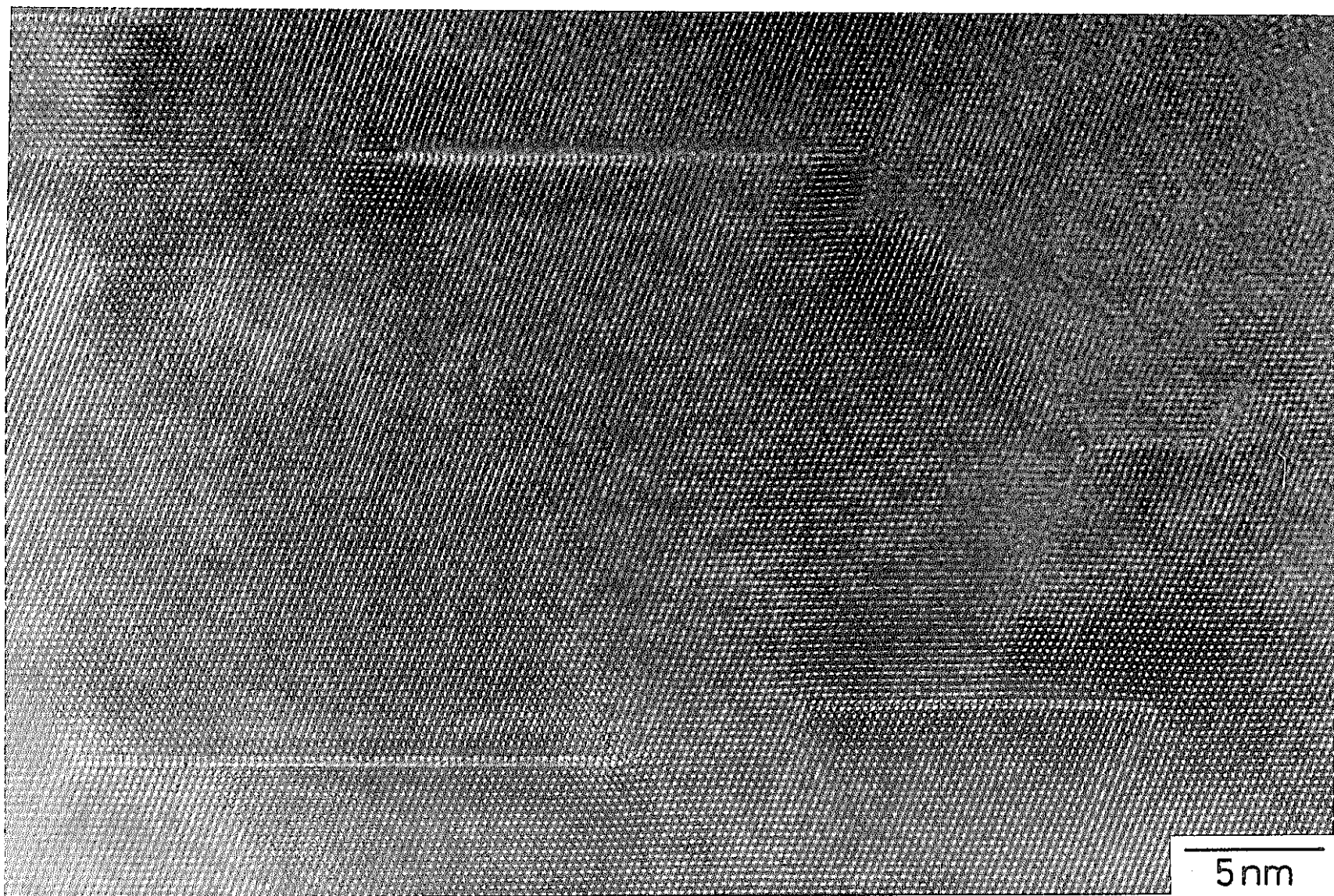


図4-29 試料XC 32 SICの高分解能TEM写真 ($4.8 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$)

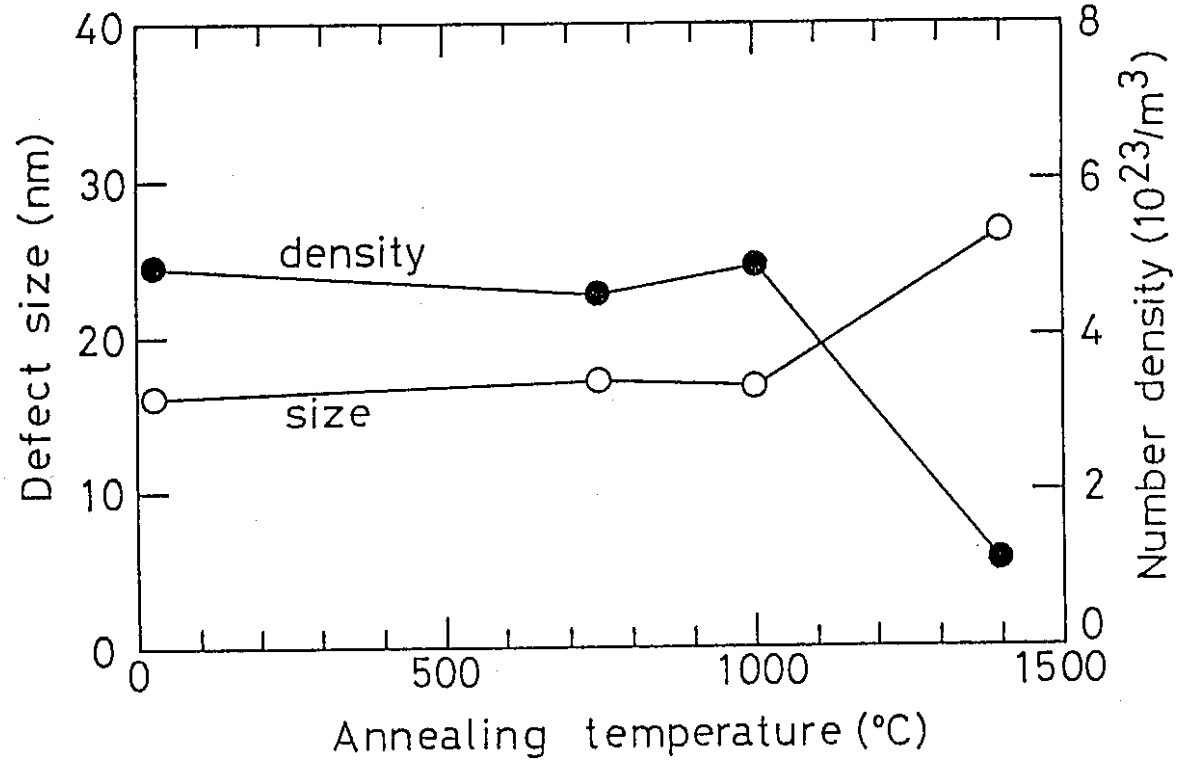


図4-30 試料ZD2HF6に観察された欠陥の大きさ
及び数密度のアニールによる変化

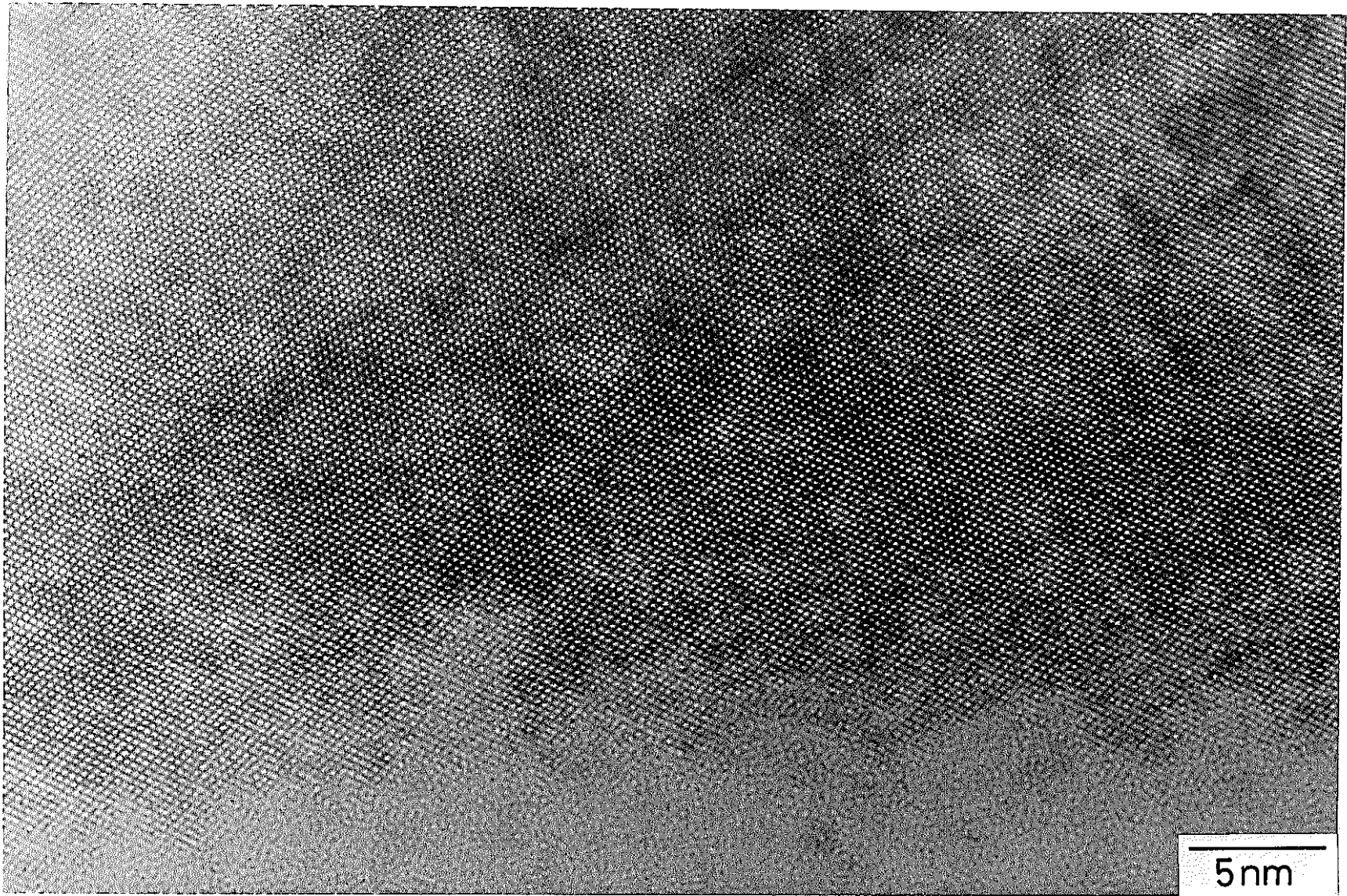


図4-31 試料ZD1M65の高分解能TEM写真 (1.0×10^{22} n/cm²)

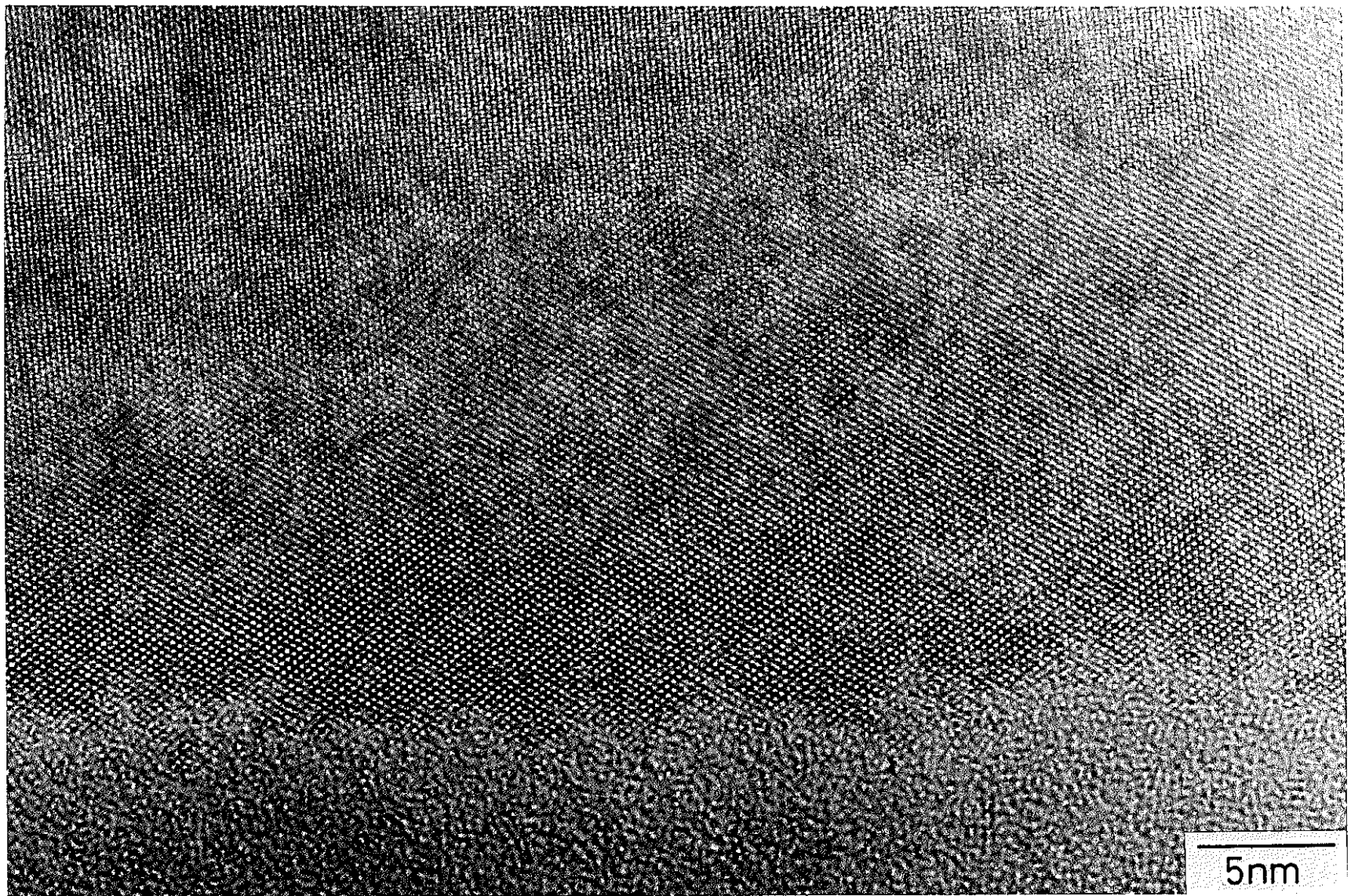


図4-32 試料64 T 061の高分解能TEM写真 ($4.3 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$)

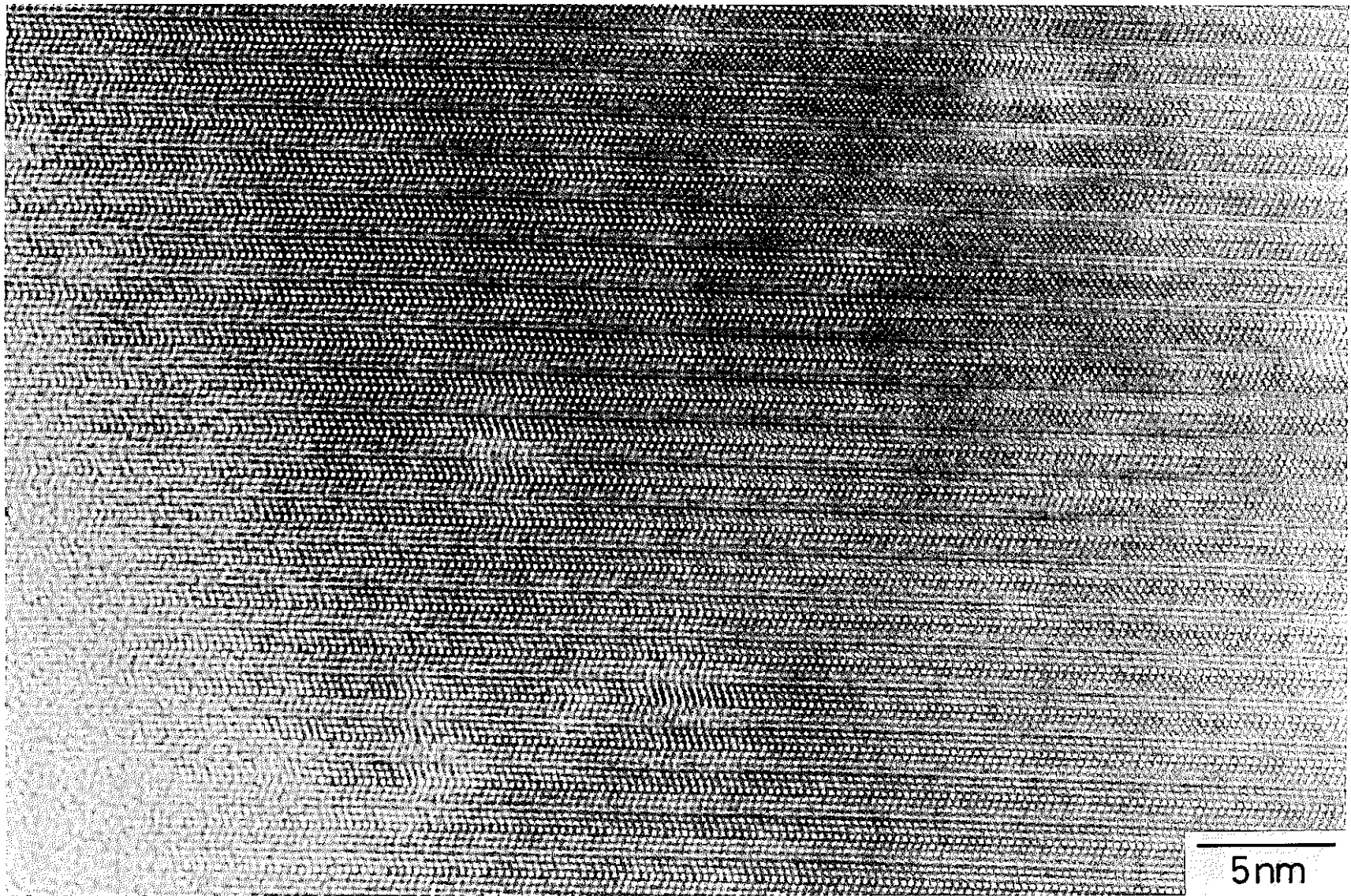


図4-33 RB-SiC試料の高分解能TEM写真 ($8.4 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$)

5. 総合評価

5.1 各測定法の比較

10^{22} n/cm² ($E > 0.1$ MeV) 以下の中性子照射量の試料に対する測定においては、現状の試料を用いる限り、精度の点でX線による方法がマイクロメーターによる長さ測定法に比べ優れているといえる。しかしながら、4.1(1)に指摘したように試料形状を調整することで、マイクロメーターによる長さ測定法もほぼX線回折による方法と同等の精度を有するようになると考えられ、X線回折に比べ操作性がよく、比較的短時間ですむので、有望な方法と考えられる。

一方、ステップ加熱型膨張計による方法は、精度の点でX線回折法に匹敵し、また操作性でいずれの方法に比べ容易で短時間ですむことから、最も有望な温度モニターの測定方法と考えられる。また、現在使用している試料をそのまま用いることができることも利点である。

10^{22} n/cm² 以上の照射量の試料に対する測定は、5.2に示すようにX線回折法の適用が難しくなるので、マイクロメーターによる長さ測定あるいは熱膨張計によるのが有効と考えられる。

5.2 重照射試料に対する温度モニターの有効性

図5-1に重照射域の試料のX線回折図形を示す。 1.5×10^{22} n/cm²程度では、回折ピークはブロードニングが認められるものの、ピークの形状は保たれており、格子定数の算出は可能であった。しかし、 4.8×10^{22} n/cm²以上では、さらにブロードニングが顕著となり、それにともない α_1 と α_2 のピークの分離はなくなり、ピーク強度も著しく低下するので、ピーク位置の算出が難しくなった。さらに、概略のピーク位置は未照射材の値に近く、格子定数が長さのスエリングに対応していないことが予想された。X線回折ピークのブロードニング現象は、4.5に示したSiC結晶内に形成された欠陥の形成に関係していると考えられる。したがって、この照射域ではX線回折法による回復曲線の測定が不可能となる。このことは、Bramman et al, (1971)によっても指摘されている。

長さ測定法によれば、熱膨張計による方法も含めて、これらの重照射域においても回復曲線の測定が可能であり、現在のところ、最も有望な測定法と考えられる。

5.3 中性子場の影響

高速炉と熱中性子炉においてSiC温度モニターの回復曲線の示す交点温度と実際の温度の

間の関係が異なることがPalentine(1976, 1980)によって報告されている。このことは、同一の高速炉でも、照射された位置が異なると、補正式を変化しなければならない可能性があることを示す。

4.3で示した各種温度モニターの照射場としては、炉心燃料領域とその周囲の反射体領域に区分けされる。常陽MK-IIの試料についていえば、0～5列目の炉心中央から±270mmが前者にあたり、それ以外は後者にあたる。図5-2～4に「常陽」の中性子分布を示す。燃料領域と反射体領域の中性子分布は、当然、全中性子束密度は3桁程度異なるが、もっとも大きな差は熱中性子束密度が燃料領域では約6桁低いことである。「常陽」試料で燃料領域で照射されたものは、AlSM122～124(図4-8～11)及びAlC1A41(図4-2), AlC1A4(図4-4)であり、このことから速中性子照射量が 10^{22} n/cm²以上のものが燃料領域での照射に相当すると考えられた。

図5-5に温度モニター評価方法の開発(I), (II)で測定された結果を含め、回復曲線から求めた交点温度と委託者から示された照射推定温度の相関を示す。このうち 10^{22} n/cm²以上の照射量については、燃料領域で照射されたものと仮定して黒丸で示した。それより照射量の低いものは白丸で示した。図中に(1)で示した実線はPalentine(1980)による高速炉照射の補正式の値であり、(2)で示した破線はPalentine(1976)による熱中性子炉に対するものである。推定照射温度の精度が不明であるので、詳しく検討することはできないが、燃料領域とその他のものに明確な差異は見られなかった。

このことを詳細に検討するためには、照射温度が正確にわかっている試料を多数測定することが必要である。

なお、回復挙動そのものには、両者の間で顕著な差は見られなかった。

5.4 回復曲線の形状

(1) 照射履歴の影響

図5-6にSiC温度モニターの中性子照射履歴とそれをアニールした時の長さあるいは格子定数の変化のようすを概念的に示した。照射によりスエリングは飽和しているとす。また、スエリング量は、図2-5に示したように、照射温度の上昇に伴い減少する。温度 T_1 で照射された試料のスエリングは S_1 で T_2 ($< T_1$) では S_2 とする。 $S_2 > S_1$ となる(図5-6(a))。 T_1 で照射された試料を等時アニールすると(b)に示すような回復曲線を示す。同じく T_2 で照射された試料を等時アニールすると(c)に示すような回復曲線を示す。従って T_1 で照射後、冷却過程の T_2 である時間保持(照射)された試料の回復曲線は(d)に示すようになると考えられる。すなわち、回復曲線にステップが形成される。ステップの大きさは、 T_1 と T_2 の温度差が大きければ大きく、 T_2 に保持されている時間が長い方が大きいと予想される。ただし、スエリングが飽和する量以上の照射量ではステッ

プの大きさはそれ以上変化しなくなると考えられる。実際には、 S_1 と S_2 の中間の値になるだろう。

今回測定したデータの範囲では、運転の終了時に段階的に出力を低下したサイクルで照射が終了した試料のうち、第1サイクルで照射したものには回復曲線に影響は見られなかった。一方、第10サイクルで照射終了したものの一部には、回復曲線に小さいけれどもステップ状の減少が見られ、その値から、shut down 効果が現われていると考えられた。これらは、主に照射量の多い燃料領域及びその上部 (3C2) にあったものが多く、温度変化を反映していると考えられた (図4-14参照)。前記した第1サイクルの試料の回復曲線にステップが見られなかったのは、照射位置が (7F7) と反射体領域であることから、実際の温度変化は小さかったためと考えられる。

(2) 回復曲線のその他の変動

今回、比較的多数の測定を行なったので、その回復曲線の形状に見出されたことを記す。

かなり多数の試料について、約 800°C を境に減少率にわずかではあるが変化が認められた。すなわち、800°C 以上で減少率がやや大きくなった。照射量との相関は認められなかった。このことから、交点温度を求める場合の直線のひき方が問題となり、使用する温度範囲を広くした場合は、800°C 以下のデータを用いた場合に比べ、交点温度が高温側にシフトすることが考えられる。今回は、変曲点が見られる場合は、それ以下の温度のデータを用いて交点温度を求めた。これは、今後温度モニターの検定を行なっていく上で注意を要する点であると考えられる。

また、一部の試料 (A1SM123~124) には、600~700°C にかけて、曲線が高温側にシフトしたように見られる現象があった。3種の測定法についていずれも観察されたことから、測定誤差が重なったとも考えられるが、なんらかの本質的な変化があるのかもしれない。今後の研究課題である。今回は、この変化が生じるより低温側のデータを用いて交点温度を求めた。

このような点から、等時アニールによるSiCのスエリングの回復は、一概に直線的に回復すると考えるのは根拠もなく、むしろ困難であり、いくつかの回復過程が重複していると予想された。SiC 温度モニターを利用していく上で、本質的な欠陥の生成、回復過程を明確にしていくことが重要である。

5.5 微構造変化とスエリング

4.5で示したように、 β -SiCについては約 $5 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$ 以上の重照射域で格子間原子型転位ループが確認された。しかしながら、この欠陥はスエリングがほぼ回復する1400°Cの等時アニール後においても存在することや、照射量の少ない試料には観察されないことから考

えて、SiC のスエリングに直接寄与している割合は少ないと考えられた。スエリングには、より小さい点欠陥やそれらが数個集まった程度のクラスター (Balona et al. (1970)) が寄与していると考えられるが、このことを確認するにはさらに検討を要する。

また、JMTRで照射した α -SiC については、より低照射域において、すでに格子間原子型転位ループの原型らしいものが観察されていることから、中性子場 (スペクトル) の影響が少なからず存在すると予想される。しかし、 β -SiC に観察されたものと同様に、スエリングに与える影響は少ないと考えられた。

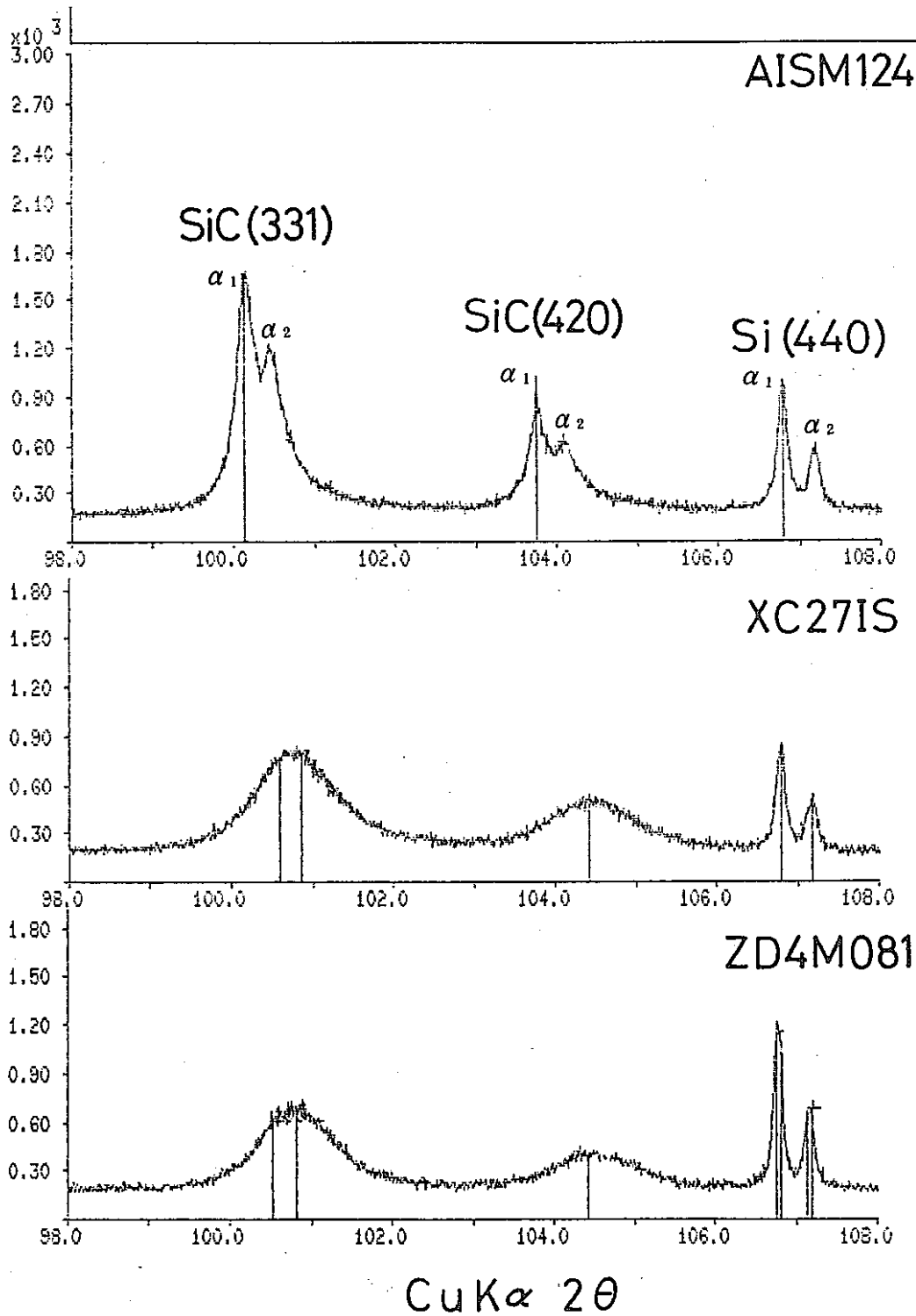


図 5 - 1 照射試料の X 線回折図形

A1C1A124 (1.5×10^{22} n/cm²)

XC27IS (4.8×10^{22} n/cm²)

ZD4M081 (1.7×10^{23} n/cm²)

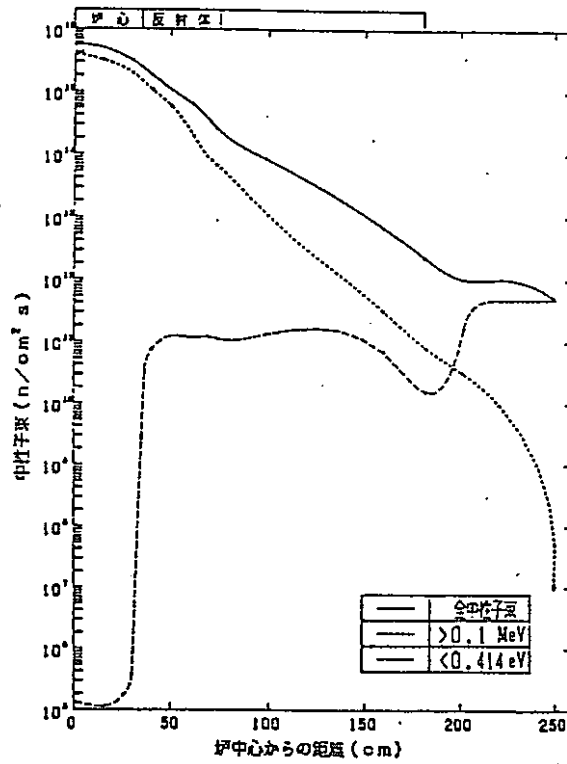
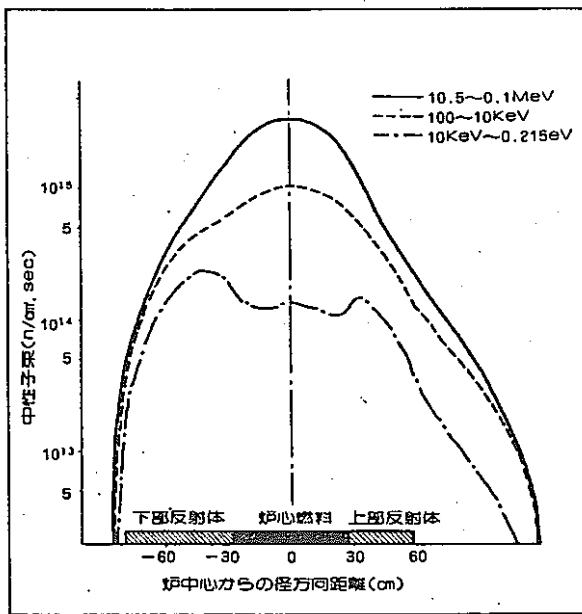
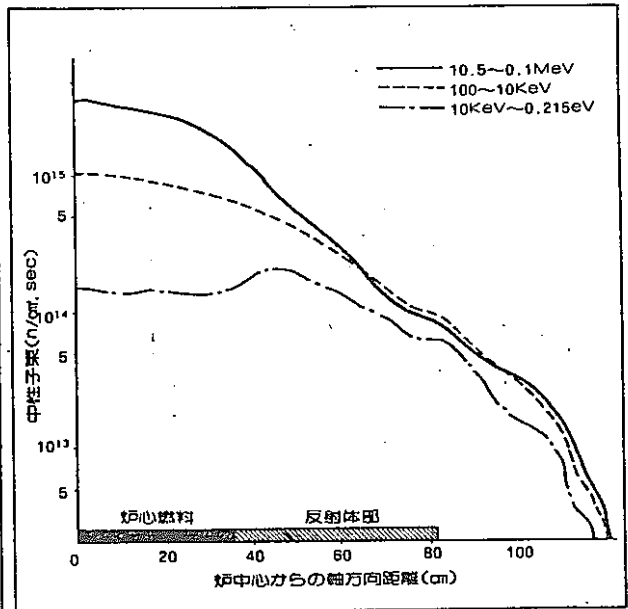


図 5-2 常陽MK-IIの平衡炉心径方向中性子束密度



MK-II平衡炉心軸方向中性子束分布(炉中心)



MK-II平衡炉心径方向中性子束分布(炉中心)

図 5-3 常陽MK-IIの平衡炉心
軸方向中性子束密度

図 5-4 常陽MK-IIの平衡炉心
径方向中性子束密度

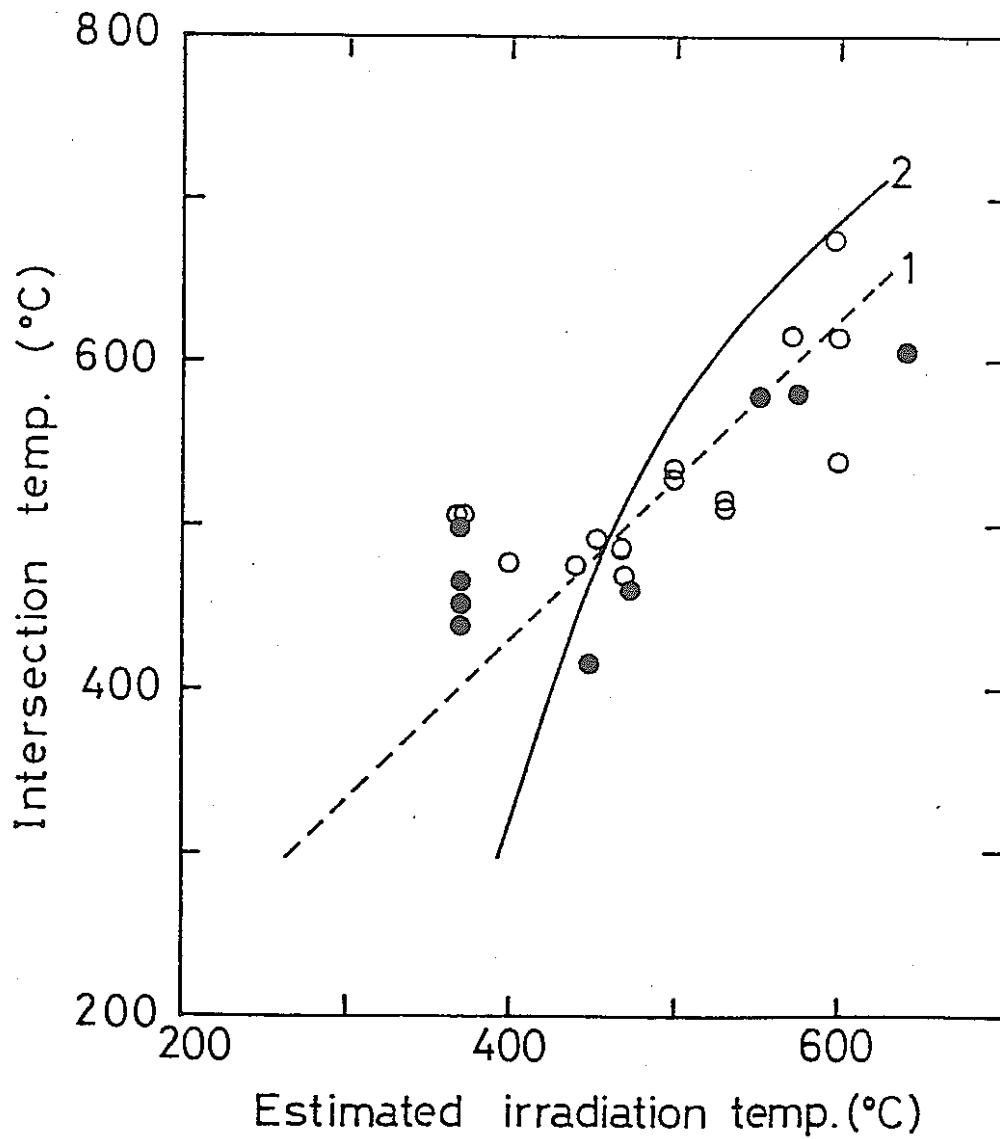


図5-5 推定照射温度と交点温度の関係
 黒丸は $> 10^{22} \text{ n/cm}^2$ 、白丸は $< 10^{22} \text{ n/cm}^2$ の試料
 1は高速炉、2は熱中性子炉に対する Palentine (1976, 1980)
 の補正值

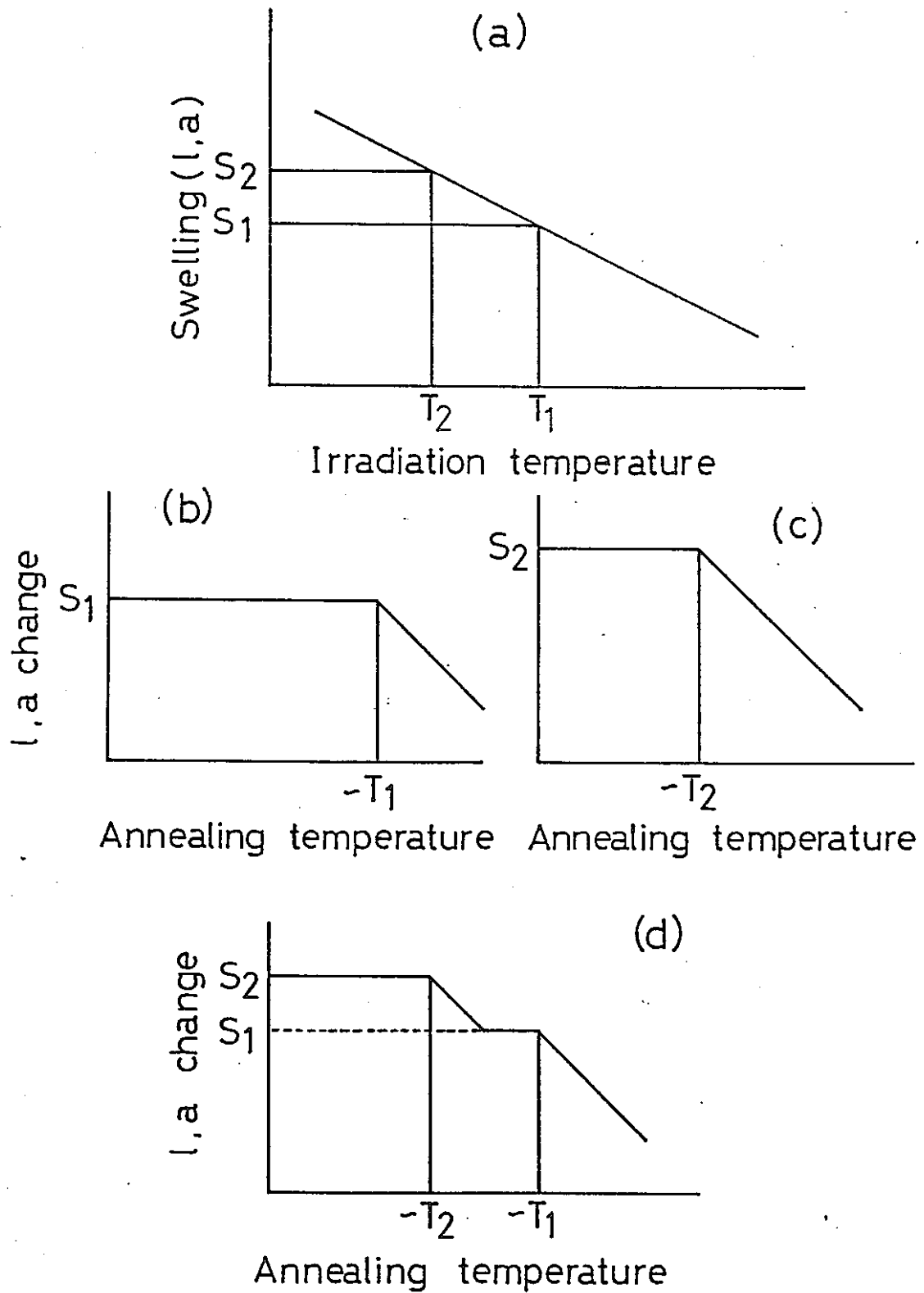


図 5-6 照射履歴と回復曲線の形状の概念図 (1 は長さ, a は格子定数)

6. ま と め

はじめに各種温度モニターについて概説し、特にSiC 温度モニターについては詳しく文献調査をして問題点を明らかにした。

次いで、 $1.5 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2 \sim 1.7 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$ ($E > 0.1 \text{ MeV}$) の中性子照射をした18本のSiC温度モニターの回復曲線を、①マイクロメーターを用いた長さ測定法、②X線回折により格子定数を求める方法、③ステップ加熱型熱膨張計による方法の3種の方法で測定した。それぞれの方法の利点及び欠点と、試料に要求される特性を明らかにし、特に③による方法が有効であることを提示した。

測定データに基づき次のことを明らかにした。

- ① 長さ測定法によれば、 $1.7 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$ の重照射試料についても回復曲線の測定が可能である。
- ② 炉の出力低下を段階的に行なった場合、回復曲線にそれを反映したステップが見られる。
- ③ 中性子場の影響は、少なくとも組織的には変化を与えるが、回復挙動の大勢に与える影響は少ない。補正式の評価については十分な照射試料がなかったため行なえなかった。
- ④ 等時アニールによる長さ及び格子定数の減少は必ずしも温度上昇に対し直線的ではなく、測定点の選び方が照射温度の推定に影響を与えられられる。

参 考 文 献

- (1) W. Primak, L.H. Fuchs and P.P. Day, "Radiation damage in diamond and silicon carbide", Phys. Rev., 103, (1956) 1184.
- (2) W. Primak, "Anisotropy of the radiation-induced expansions of silicon carbide", 'Silicon carbide' ed. J.R. O'Connor and J. Smiltens, Pergamon Press, Oxford (1960) 385.
- (3) N.F. Pravdyuk, V.A. Nikolaenko, V.I. Karpuchin and V.N. Kuznetsov, "Investigation of diamond and silicon carbide as indicators of irradiation conditions", 'Property of reactor materials and the effect of radiation damage proceedings' ed. D.J. Littler, Butterworths, London, (1962) 57.
- (4) R.P. Thorne, V.C. Edward and B. Hope, "Radiation induced changes in porous cubic silicon carbide", Proc. Brit. Ceram. Soc., 7, (1967) 449.
- (5) W.H. Martin and A.M. Price, "Determination of dose and temperature in graphite irradiation experiments in Dounreay fast reactor", J. Nucl. Energy, 21, (1967) 359.
- (6) R.J. Price, "Effects of fast-neutron irradiation on pyrolytic silicon carbide", J. Nucl. Mater., 33, (1969) 17.
- (7) L.A.S. Balona and J.H.N. Loubser, "Esr in irradiated silicon carbide", J. Phys. C: Solid St. Phys., 3, (1970) 2344.
- (8) J.I. Bramman, A.S. Fraser and W.H. Martin, "Temperature monitors for uninstrumented irradiation experiment", J. Nucl. Energy, 25, (1971) 223.
- (9) R. Blackstone and E.H. Voice, "The expansion of silicon carbide by neutron irradiation at high temperature", J. Nucl. Mater., 39, (1971) 319.
- (10) D.M. Franklin and W.E. Ruther, "A reactor in-core temperature monitor", Trans. Am. Nucl. Soc., 14, (1971) 632.
- (11) R.J. Price, "Annealing behavior of neutron-irradiated silicon carbide temperature monitors", Nucl. Technol., 16, (1972) 536.
- (12) P. Branchard, B. Gayet and R. Peray, "La determination a posteriori des temperatures par effet de memoire", Bull. d'Informations Scientifiques par et Techniques, No.175, (1972) 45.
- (13) R.J. Price, "Neutron irradiation-induced voids in β -silicon carbide",

- J. Nucl. Mater., 48, (1973) 47.
- (14) C.C. Price, D.G. Franklin and A. Gopalakrishnan, "In-core monitoring in the experimental breeder reactor-II", Am. Nucl. Soc. Topical Meeting on Irradiation Experimentation in Fast Reactors", Jackson lake lodge, (1973) 401.
- (15) H. Suzuki, T. Iseki and M. Ito, "Annealing behavior of neutron irradiated β -SiC", J. Nucl. Mater., 48, (1973) 247.
- (16) J.E. Palentine, "The development of silicon carbide as a routine irradiation temperature monitor and its calibration in a thermal reactor", J. Nucl. Mater., 61, (1976) 243.
- (17) R.J. Price, "Properties of silicon carbide for nuclear fuel particle coatings", Nucl. Technol., 35, (1977) 320.
- (18) J.E. Palentine, "The calibration of fast reactor irradiated silicon carbide temperature monitors using a length measurement technique", J. Nucl. Mater., 92, (1980) 43.
- (19) R.M. Sharpe, "The calibration of silicon carbide temperature monitor monitors in a fast reactor", 'Proc. BNES Conf. Post-irradiation examination', Grange-over-Sands, British Nucl. Soc., London, (1980) 71.
- (20) 井関孝善, 丸山忠司, "温度モニター評価方法の開発(I)" PNC SJ261 85-01 (1985).
- (21) 井関孝善, 丸山忠司, 矢野豊彦, "温度モニター評価方法の開発(II)" PNC SJ9607 86-01 (1986).
- (22) F.W. Clinard, Jr. and L.W. Hobbs, "Physics of Radiation Effects in Crystals", (Elsevier, 1986)
- (23) T. Suzuki, T. Maruyama, T. Iseki, T. Mori and M. Ito, "Recovery behavior in neutron irradiated β -SiC", J. Nucl. Mater., 149, (1987) 334.
- (24) T. Yano, T. Suzuki, T. Maruyama and T. Iseki, "Microstructure and annealing behavior of heavily neutron-irradiated β -SiC", J. Nucl. Mater., 155-157, (1988) 311.

付 表

付表 1	9 8 3 6 3 2	試料の測定データ
2	A 1 C 1 A 4 1	試料の測定データ
3	X C 2 7 I S	試料の測定データ
4	A 1 C 6 A 4 1	試料の測定データ
5	Z D 2 H F 6	試料の測定データ
6	Z D 4 M 0 8 1	試料の測定データ
7	A 1 S M 1 2 1	試料の測定データ
8	A 1 S M 1 2 2	試料の測定データ
9	A 1 S M 1 2 3	試料の測定データ
10	A 1 S M 1 2 4	試料の測定データ
11	A 1 S M 1 2 4	試料の測定データ
12	A 1 S M 1 2 5	試料の測定データ
13	A 1 S M 1 2 6	試料の測定データ
14	A 1 C 2 C 1 1	試料の測定データ
15	8 0 A 0 7 3 1	試料の測定データ
16	7 1 A 0 9 9 1	試料の測定データ
17	7 1 A 1 0 1 1	試料の測定データ
18	2 0 G 3 0 S	試料の測定データ
19	2 0 G 3 0 S	試料の測定データ
20	2 0 G 2 9 S	試料の測定データ

付表1 温度モニター測定データ

試料：983632

照射量 (E > 0.1MeV) : $2.3 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$

測定方法：熱膨張計

照射推定温度：~575°C

交点温度：580°C

試料サイズ：長さ6.858mm, 直径約3mm

アニール温度 (°C)	寸法変化 (μm)	変化率 (%)
25	0.00	0.000
100	-0.19	-0.003
200	-0.47	-0.007
300	-0.09	-0.001
400	-0.64	-0.009
450	-0.45	-0.007
550	-0.51	-0.007
600	-1.73	-0.025
660	-2.96	-0.043
710	-4.76	-0.069
760	-6.28	-0.092
810	-7.89	-0.115
860	-9.37	-0.137
910	-10.66	-0.155
970	-12.57	-0.183
1005	-14.10	-0.206

*500°C以上のアニール温度で60分保持

それ以下では30分保持

付表2 温度モニター測定データ

試料：A1C1A41

照射量 (E > 0.1MeV) : $4.2 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$

測定方法：熱膨張計

照射推定温度：550°C

交点温度：445°C

試料サイズ：長さ8.737mm, 直径約2mm

アニール温度 (°C)	寸法変化 (μm)	変化率 (%)
25	0.00	0.000
100	-0.12	-0.001
200	-0.18	-0.002
300	-0.48	-0.005
400	-0.58	-0.007
450	-1.16	-0.013
500	-2.80	-0.032
550	-4.62	-0.053
600	-6.82	-0.078
660	-8.91	-0.102
710	-11.03	-0.126
760	-13.31	-0.152
810	-15.61	-0.179
860	-17.85	-0.204
910	-20.41	-0.234
1010	-24.92	-0.285

*500°C以上のアニール温度で60分保持

それ以下では30分保持

付表3 温度モニター測定データ

試料：XC27IS

照射量 (E > 0.1MeV) : $4.8 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$

測定方法：マイクロメータ測定

照射推定温度：620°C

交点温度：605°C

試料サイズ：長さ 9 mm, 直径約 2 mm

アニール温度 (°C)	寸 法 (mm)	変 化 率 (%)
25	9.0880	0.000
200	9.0885	0.006
300	9.0880	0.000
400	9.0882	0.002
450	9.0880	0.000
500	9.0878	-0.002
550	9.0878	-0.002
600	9.0868	-0.013
650	9.0860	-0.122
700	9.0850	-0.033
800	9.0822	-0.064
900	9.0796	-0.097

*各アニール温度で60分保持

付表4 温度モニター測定データ

試料：A1C6A41

照射量 (E > 0.1MeV) : $6.9 \times 10^{22} \text{n/cm}^2$

測定方法：マイクロメータ測定

照射推定温度：500°C

交点温度：580°C

試料サイズ：長さ9mm, 直径約2mm

アニール温度 (°C)	寸 法 (mm)	変 化 率 (%)
25	9.2368	0.000
200	9.2370	0.002
300	9.2372	0.004
400	9.2370	0.002
450	9.2368	0.000
500	9.2358	-0.011
550	9.2350	-0.019
600	9.2342	-0.028
650	9.2326	-0.045
700	9.2304	-0.069
800	9.2276	-0.100
900	9.2242	-0.136

*各アニール温度で60分保持

付表5 温度モニター測定データ

試料：ZD2HF6

照射量 (E > 0.1MeV) : $1.0 \times 10^{23} \text{ n/cm}^2$

測定方法：マイクロメータ測定

照射推定温度：~430°C

交点温度：417°C

試料サイズ：長さ11mm, 直径約2mm

アニール温度 (°C)	寸 法 (mm)	変 化 率 (%)
25	11.0896	0.000
100	11.0894	-0.002
200	11.0892	-0.004
300	11.0890	-0.005
350	11.0896	0.000
400	11.0892	-0.004
450	11.0880	-0.004
500	11.0870	-0.023
550	11.0852	-0.040
600	11.0830	-0.060
650	11.0810	-0.078
700	11.0790	-0.096
750	11.0778	-0.106
800	11.0756	-0.126
900	11.0720	-0.159
1000	11.0680	-0.195

*各アニール温度で60分保持

付表6 温度モニター測定データ

試料：ZD4M081

照射量 (E>0.1MeV) : $1.7 \times 10^{23} \text{n/cm}^2$

測定方法：マイクロメータ測定

照射推定温度：475°C

交点温度：460°C

試料サイズ：長さ8mm, 直径約3mm

アニール温度 (°C)	寸 法 (mm)	変 化 率 (%)
25	7.9128	0.000
200	7.9120	-0.010
300	7.9124	-0.005
400	7.9108	-0.025
450	7.9106	-0.028
500	7.9090	-0.048
550	7.9074	-0.068
600	7.9072	-0.071
650	7.9058	-0.088
700	7.9042	-0.109
800	7.9016	-0.142
900	7.8992	-0.172

*各アニール温度で60分保持

付表7 温度モニター測定データ

試料 : A1SM121

照射量 (E > 0.1MeV) : $1.5 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$

測定方法 : マイクロメータ測定

照射推定温度 : 370°C

交点温度 : 455°C

試料サイズ : 長さ 9 mm, 直径約 3 mm

アニール温度 (°C)	寸 法 (mm)	変 化 率 (%)
25	8.7392	0.000
100	8.7392	0.000
200	8.7392	0.000
250	8.7396	0.005
300	8.7390	-0.002
325	8.7388	-0.005
350	8.7388	-0.005
375	8.7384	-0.009
400	8.7384	-0.009
425	8.7386	-0.007
450	8.7380	-0.014
475	8.7373	-0.022
500	8.7370	-0.025
525	8.7360	-0.037
550	8.7350	-0.048
575	8.7338	-0.062
600	8.7326	-0.076
650	8.7308	-0.096
700	8.7290	-0.117
750	8.7272	-0.137
800	8.7244	-0.169
850	8.7226	-0.190
900	8.7196	-0.224
950	8.7170	-0.254
1000	8.7148	-0.279

*アニール時間 : 1時間

付表8 温度モニター測定データ

試料：A1SM122

照射量 (E>0.1MeV) : $2.5 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$

測定方法：マイクロメータ測定

照射推定温度：370°C

交点温度：440°C

試料サイズ：長さ8mm, 直径約3mm

アニール温度 (°C)	寸 法 (mm)	変 化 率 (%)
25	8.2680	0.000
100	8.2680	0.000
200	8.2678	-0.002
250	8.2676	-0.005
300	8.2678	-0.002
325	8.2676	-0.005
350	8.2678	-0.002
375	8.2678	-0.002
400	8.2678	-0.002
425	8.2676	-0.005
450	8.2670	-0.012
475	8.2663	-0.021
500	8.2660	-0.024
525	8.2652	-0.034
550	8.2640	-0.048
575	8.2636	-0.053
600	8.2622	-0.070
650	8.2612	-0.082
700	8.2596	-0.102
750	8.2574	-0.128
800	8.2562	-0.143
850	8.2544	-0.164
900	8.2534	-0.177
950	8.2514	-0.201
1000	8.2496	-0.226

*アニール時間：1時間

付表9 温度モニター測定データ

試料：A1SM123

照射量 (E > 0.1MeV) : $3.5 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$

測定方法：熱膨張計

照射推定温度：370°C

交点温度：465°C

試料サイズ：長さ8.345mm, 直径約3mm

アニール温度 (°C)	寸法変化 (μm)	変化率 (%)
25	0.00	0.000
100	-0.20	-0.002
200	0.11	0.001
300	-0.08	-0.001
350	-0.19	-0.002
400	-0.76	-0.009
450	-1.23	-0.015
500	-2.54	-0.030
550	-4.23	-0.051
600	-6.39	-0.077
660	-8.30	-0.099
710	-8.77	-0.105
760	-10.19	-0.122
810	-11.83	-0.142
860	-13.61	-0.163
910	-15.39	-0.184

*各アニール温度で60分保持

付表10 温度モニター測定データ

試料 : A1SM124

照射量 ($E > 0.1\text{MeV}$) : $1.5 \times 10^{22} \text{n/cm}^2$

測定方法 : X線格子定数測定

照射推定温度 : 370°C 交点温度 : 500°C

アニール温度 ($^\circ\text{C}$)	格子定数 (\AA)	変化率 (%)
25	4.38177	0.000
100	4.38167	-0.002
200	4.38151	-0.006
250	4.38177	0.000
300	4.38167	-0.002
325	4.38142	-0.008
350	4.38149	-0.006
375	4.38169	-0.002
400	4.38152	-0.006
425	4.38129	-0.011
450	4.38102	-0.017
475	4.38074	-0.024
500	4.38054	-0.026
525	4.37993	-0.042
550	4.37946	-0.053
575	4.37892	-0.065
600	4.37839	-0.077
650	4.37769	-0.093
700	4.37686	-0.112
750	4.37569	-0.138
800	4.37468	-0.162
850	4.37366	-0.185
900	4.37256	-0.210
950	4.37167	-0.231
1000	4.37071	-0.252

*アニール時間 : 1時間

付表11 温度モニター測定データ

試料 : A1SM124

照射量 (E > 0.1MeV) : $1.5 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$

測定方法 : マイクロメータ測定

照射推定温度 : 370°C

交点温度 : 510°C

試料サイズ : 長さ 9 mm, 直径約 3 mm

アニール温度 (°C)	寸 法 (mm)	変 化 率 (%)
25	8.7298	0.000
100	8.7298	0.000
200	8.7300	0.002
250	8.7294	-0.005
300	8.7292	-0.007
325	8.7294	-0.005
350	8.7292	-0.007
375	8.7292	-0.007
400	8.7290	-0.009
425	8.7290	-0.009
450	8.7282	-0.018
475	8.7278	-0.023
500	8.7270	-0.032
525	8.7264	-0.039
550	8.7252	-0.053
575	8.7242	-0.064
600	8.7230	-0.078
650	8.7212	-0.099
700	8.7194	-0.119
750	8.7178	-0.137
800	8.7158	-0.160
850	8.7136	-0.186
900	8.7116	-0.208
950	8.7088	-0.240
1000	8.7068	-0.263

*アニール時間 : 1時間

付表12 温度モニター測定データ

試料：A1SM125

照射量 (E > 0.1MeV) : $9.0 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$

測定方法：マイクロメータ測定

照射推定温度：370°C

交点温度：510°C

試料サイズ：長さ 9 mm, 直径約 3 mm

アニール温度 (°C)	寸法 (mm)	変化率 (%)
25	8.7830	0.000
100	8.7832	0.002
200	8.7832	0.002
250	8.7830	0.000
300	8.7830	0.000
325	8.7830	0.000
350	8.7828	-0.002
375	8.7828	-0.002
400	8.7828	-0.002
425	8.7828	-0.002
450	8.7822	-0.009
475	8.7820	-0.013
500	8.7814	-0.018
525	8.7806	-0.027
550	8.7796	-0.039
575	8.7788	-0.048
600	8.7772	-0.066
650	8.7756	-0.084
700	8.7738	-0.105
750	8.7720	-0.125
800	8.7698	-0.150
850	8.7674	-0.178
900	8.7654	-0.200
950	8.7624	-0.235
1000	8.7592	-0.271

*アニール時間：1時間

付表13 温度モニター測定データ

試料：A1SM126

照射量 (E > 0.1MeV) : $1.5 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$

測定方法：マイクロメータ測定

照射推定温度：370°C

交点温度：510°C

試料サイズ：長さ9mm, 直径約3mm

アニール温度 (°C)	寸 法 (mm)	変 化 率 (%)
25	8.8128	0.000
100	8.8130	0.002
200	8.8128	0.000
250	8.8126	-0.002
300	8.8126	-0.002
325	8.8124	-0.005
350	8.8126	-0.002
375	8.8126	-0.002
400	8.8126	-0.002
425	8.8126	-0.002
450	8.8120	-0.009
475	8.8117	-0.012
500	8.8116	-0.014
525	8.8110	-0.020
550	8.8102	-0.030
575	8.8092	-0.041
600	8.8074	-0.061
650	8.8066	-0.070
700	8.8046	-0.093
750	8.8028	-0.113
800	8.7996	-0.150
850	8.7976	-0.172
900	8.7952	-0.200
950	8.7918	-0.238
1000	8.7900	-0.259

*アニール時間：1時間

付表14 温度モニター測定データ

試料：A1C2C11

照射量 (E > 0.1MeV) : $1.5 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$

測定方法：熱膨張計

照射推定温度：570°C

交点温度：617°C

試料サイズ：長さ8.387mm, 直径約3mm

アニール温度 (°C)	寸法変化 (μm)	変化率 (%)
25	0.00	0.000
100	0.18	0.002
200	-0.01	-0.000
300	0.18	0.002
400	0.30	0.004
500	0.39	0.005
550	0.30	0.004
600	-0.07	-0.001
660	-1.39	-0.017
710	-3.17	-0.038
760	-5.21	-0.062
810	-7.05	-0.084
860	-8.84	-0.105
910	-11.14	-0.133
1010	-15.58	-0.186

*各アニール温度で30分保持

付表15 温度モニター測定データ

試料：80A0731

照射量 (E > 0.1MeV) : $4.1 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$

測定方法：熱膨張計

照射推定温度：600°C

交点温度：615°C

試料サイズ：長さ9.770mm, 直径約1mm

アニール温度 (°C)	寸法変化 (μm)	変化率 (%)
25	0.00	0.000
100	-0.01	-0.000
200	-0.14	-0.001
300	-0.26	-0.003
400	-0.42	-0.004
450	-0.08	-0.001
500	-0.73	-0.007
550	-1.27	-0.013
600	-1.69	-0.017
660	-2.37	-0.024
710	-3.41	-0.035
760	-4.33	-0.044
810	-5.21	-0.053
860	-6.40	-0.066
910	-7.64	-0.078
945	-9.10	-0.098
1005	-10.41	-0.107

*450°C以上のアニール温度で60分保持

それ以下では30分保持

付表16 温度モニター測定データ

試料：71A0991

照射量 (E > 0.1MeV) : $2.1 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$

測定方法：熱膨張計

照射推定温度：~530°C

交点温度：515°C

試料サイズ：長さ13.723mm, 直径約1mm

アニール温度 (°C)	寸法変化 (μm)	変化率 (%)
25	0.00	0.000
100	0.02	0.000
200	0.01	0.000
300	0.13	0.001
400	0.34	0.002
450	0.46	0.003
500	0.01	0.000
550	-1.91	-0.014
600	-4.71	-0.034
660	-7.20	-0.052
710	-10.60	-0.077
760	-13.88	-0.101
810	-17.39	-0.127
860	-21.55	-0.157
910	-25.98	-0.189
970	-31.63	-0.230
1005	-35.01	-0.255

*500°C以上のアニール温度で60分保持

それ以下では30分保持

付表17 温度モニター測定データ

試料：71A1011

照射量 (E > 0.1MeV) : $2.4 \times 10^{21} \text{n/cm}^2$

測定方法：熱膨張計

照射推定温度：~530°C

交点温度：515°C

試料サイズ：長さ13.233mm, 直径約1mm

アニール温度 (°C)	寸法変化 (μm)	変化率 (%)
25	0.00	0.000
100	0.01	0.000
200	0.03	0.000
300	0.10	0.001
400	-0.02	-0.000
450	-0.02	-0.000
500	-0.56	-0.004
550	-2.18	-0.016
600	-4.38	-0.033
660	-7.33	-0.055
710	-9.93	-0.075
760	-12.98	-0.098
810	-15.87	-0.120
860	-19.21	-0.145
910	-22.90	-0.173
970	-27.67	-0.209
1005	-31.15	-0.235

*各アニール温度で30分保持

付表18 温度モニター測定データ

試料：20G30S

照射量 (E > 0.1MeV) : $3.0 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$

測定方法：マイクロメータ測定

照射推定温度：470°C

交点温度：485°C

試料サイズ：長さ10mm, 直径約2mm

アニール温度 (°C)	寸 法 (mm)	変 化 率 (%)
25	10.2046	0.000
100	10.2048	0.002
200	10.2046	0.000
250	10.2044	-0.002
300	10.2044	-0.002
325	10.2044	-0.002
350	10.2046	0.000
375	10.2048	0.002
400	10.2046	0.000
425	10.2040	-0.006
450	10.2032	-0.014
475	10.2030	-0.016
500	10.2026	-0.020
525	10.2010	-0.035
550	10.2000	-0.045
575	10.1990	-0.055
600	10.1976	-0.069
650	10.1962	-0.082
700	10.1934	-0.110
750	10.1910	-0.133
800	10.1880	-0.163
850	10.1856	-0.186
900	10.1818	-0.223
950	10.1784	-0.257
1000	10.1756	-0.284

*アニール時間：1時間

付表19 温度モニター測定データ

試料：20G30S

照射量 (E > 0.1MeV) : $3.0 \times 10^{20} \text{n/cm}^2$

測定方法：X線格子定数測定

照射推定温度：470°C

交点温度：475°C

アニール温度 (°C)	格子定数 (Å)	変化率 (%)
25	4.38006	0.000
100	4.37985	-0.005
200	4.38005	0.000
250	4.37984	-0.005
300	4.38006	0.000
325	4.37972	-0.008
350	4.38003	-0.001
375	4.38007	0.000
400	4.37975	-0.007
425	4.37940	-0.015
450	4.37965	-0.009
475	4.37932	-0.017
500	4.37886	-0.027
525	4.37820	-0.042
550	4.37793	-0.049
575	4.37761	-0.056
600	4.37692	-0.072
650	4.37602	-0.092
700	4.37502	-0.115
750	4.37403	-0.138
800	4.37284	-0.165
850	4.37163	-0.192
900	4.37035	-0.222
950	4.36881	-0.257
1000	4.36795	-0.276

*アニール時間：1時間

付表20 温度モニター測定データ

試料：20G29S

照射量 (E > 0.1MeV) : $3.0 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$

測定方法：X線格子定数測定

照射推定温度：470°C

交点温度：440°C

アニール温度 (°C)	格子定数 (Å)	変化率 (%)
25	4.38022	0.000
100	4.38044	0.005
200	4.38040	0.004
300	4.38053	0.007
400	4.38054	0.007
425	4.38054	0.007
450	4.38022	0.000
475	4.37950	-0.016
500	4.37944	-0.018
525	4.37891	-0.030
550	4.37838	-0.042
575	4.37753	-0.061
600	4.37726	-0.068
—	—	—
—	—	—
—	—	—
1000	4.36736	-0.294

*アニール時間：1時間