

研究紹介

セラミックス材料の 照射損傷評価

秋吉 優史

中性子照射による影響

Neutron Irradiation

電子的欠陥の導入
弾き出し損傷の導入
核変換

導入した欠陥の再結合
転位ループやボイド
などへの集合・成長

照射欠陥構造

点欠陥(格子間原子, 空孔)
クラスター, 転位ループ,
積層欠陥, ボイド,
バブル, 粒界クラック

微構造変化

巨視的物性変化

- ・ スエリング
- ・ 熱伝導率
- ・ 機械的強度
- ・ 絶縁性
- ・ 耐酸化性
- etc . . .

発現

セラミックスの照射損傷評価

スエリング

点欠陥, ボイド, バブル,
転位ループ, 粒界クラック
などの複合的発現

XRD

点欠陥, 転位ループ
などによる格子歪み
(異方性の検出可)

熱拡散率

フォノン伝導が主の
セラミックスでは
点欠陥, 特に空孔濃度
を選択的に反映

透過電顕観察

ある程度の空間的広がりを持つ
構造か, 規則的な周期構造と
して配列した格子を観察可能
(点欠陥は見る事が出来ない)

相補的な測定による 欠陥導入状態評価

陽電子消滅寿命

主に空孔やその集合体
の導入状態を評価可能。

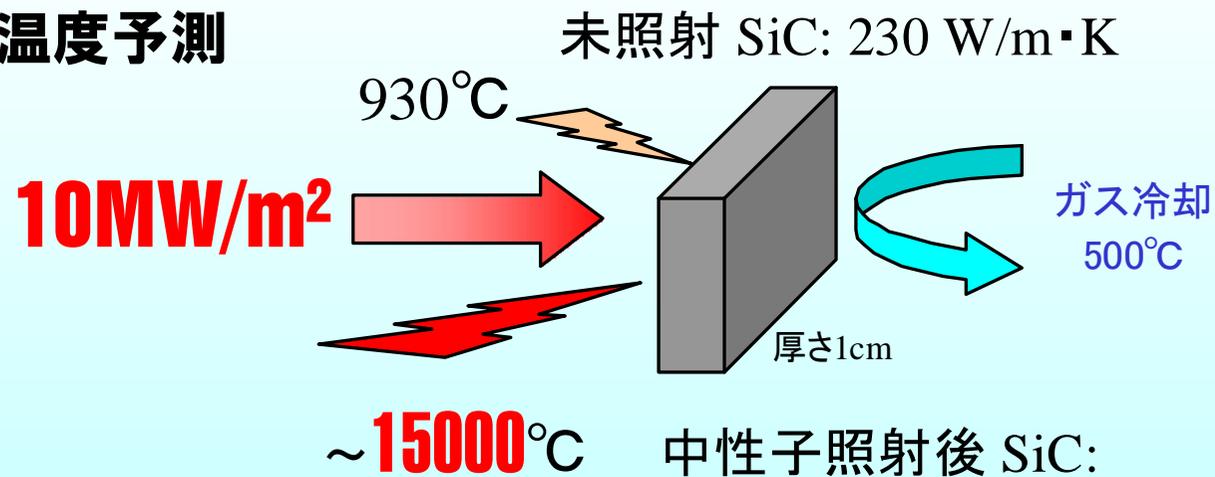
様々な照射条件 (照射量, 照射温度,
照射粒子, エネルギー) の違いによる,
照射直後(As-irradiated)の測定

照射後試料のアニール
(等時アニール, 等温アニール)
に伴う回復挙動評価

特に熱拡散率に注目

熱伝導率（熱拡散率）は核融合炉第一壁，ブランケット，ダイバーダーや高温ガス炉の燃料被覆材など原子力分野でセラミックスを用いる上で，最も重要なパラメーターの一つであるが、照射により欠陥が導入されるとフォノン-格子散乱の増加によりフォノン伝導が阻害され，著しい熱拡散率の低下が報告されている。

ダイバーター表面温度予測



到底耐えられない!

$7 \text{ W/m}\cdot\text{K}$

セラミックスの熱拡散率

- ・金属と異なり、フォノンによる熱伝導が支配的
(金属であるタングステンでも、数割程度がフォノン伝導)

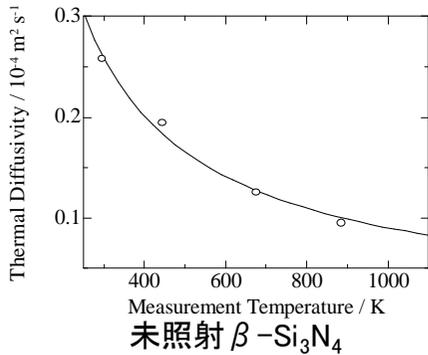
$$\text{熱拡散率 } \alpha = 1/3 \cdot \mu \cdot \lambda$$

μ : フォノンの平均速度 [m/s]

λ : フォノンの平均自由行程 [m]

材料によりほぼ一定で照射により変化しない

照射前の熱拡散率は粒径等のマクロな組織に左右されるが、照射試料ではフォノンの平均自由行程が極端に短くなるためほとんど影響しない



フォノン-フォノン散乱
温度上昇と共に k/T^n に従って低下していく

フォノン-格子散乱
照射欠陥，特に空孔の導入密度に従って増加する

様々な散乱機構(フォノン-フォノン散乱，粒界などによる散乱，照射により導入された点欠陥や転位による散乱など)に対するそれぞれの散乱の自由行程を $\lambda_a, \lambda_b, \lambda_c, \dots$ とすると，それらの機構全てが寄与する全体としてのフォノンの平均自由行程 λ は

$$1/\lambda = 1/\lambda_a + 1/\lambda_b + 1/\lambda_c + \dots \text{ と表される。}$$

照射条件の違いにより、欠陥導入密度が変化する

照射時熱拡散率評価

前提条件

1 照射量の増加に伴う熱拡散率の低下は $3 \times 10^{26} \text{ n/m}^2$ 程度で飽和して一定である

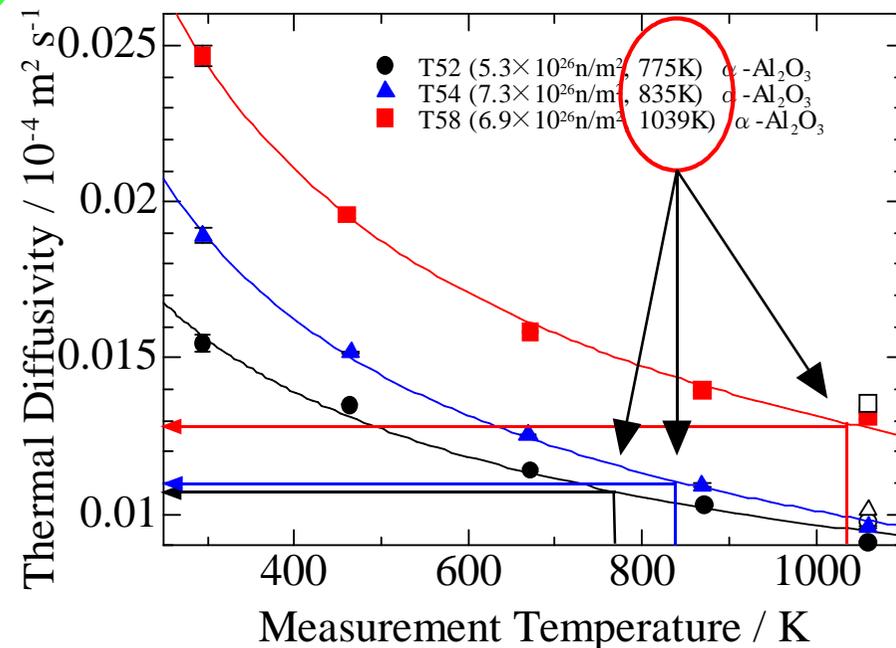
2 照射温度以下では欠陥導入密度は変化しない

3 照射直後の試料は照射中と同じ欠陥濃度を保つ

4 照射温度は一定である

- ・ 熱拡散率の測定温度依存性を測定する。
- ・ 得られた熱拡散率測定データを $\alpha = k/T^n$ 式でフィッティングを行う。
- ・ それぞれの試料に対するフィッティングパラメーター k, n を用いて照射温度 T_{irr} における熱拡散率を求める。

各試料の照射温度での照射後熱拡散率は照射時の熱拡散率に等しい



中性子照射後試料の高温での熱拡散率変化

3 照射直後の試料は照射中と同じ欠陥濃度を保つ

照射時に極短時間存在する
Transient な欠陥の影響は
本当に無いのか？

本来の目的

不可能

中性子照射時
熱拡散率測定

実際の測定

可能

イオンビーム照射時
陽電子消滅測定

中性子照射

イオンビーム照射

異なる点: バルク全体への欠陥分布 →

× 熱拡散率測定

似ている点: 局所的な欠陥導入形態 →

○ 陽電子消滅測

熱拡散率測定

陽電子消滅測定

熱拡散率測定と陽電子消滅法による測定が評価する事の出来る
欠陥構造 → 主に空孔と、その集合体で共通する部分が多い

これまでその相関はほとんど研究されていない

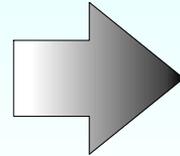
照射実験環境

照射温度は一定の温度にコントロールされている

核融合炉
ダイバーター照射欠陥量によって決まる熱伝導率と、
入射する熱流量によって左右される

欠陥密度

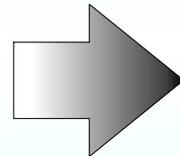
Low



High

熱伝導率

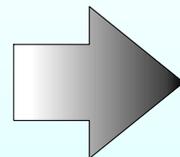
High



Low

試料温度

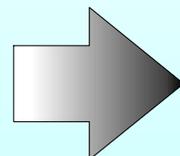
Low



High

欠陥密度

High



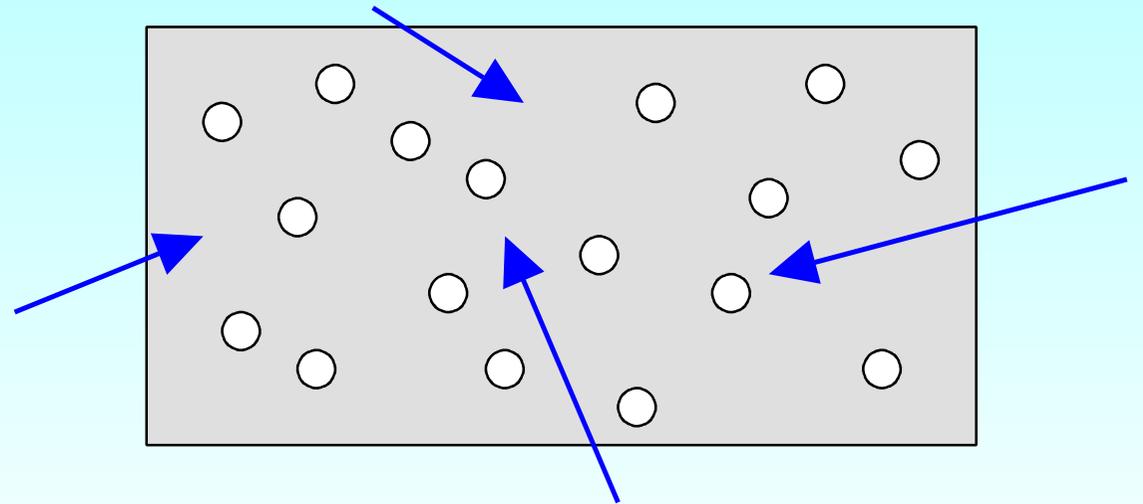
Low

Not
Fixed

様々な欠陥が温度変化に伴いどのような挙動を示すのか解析する必要がある

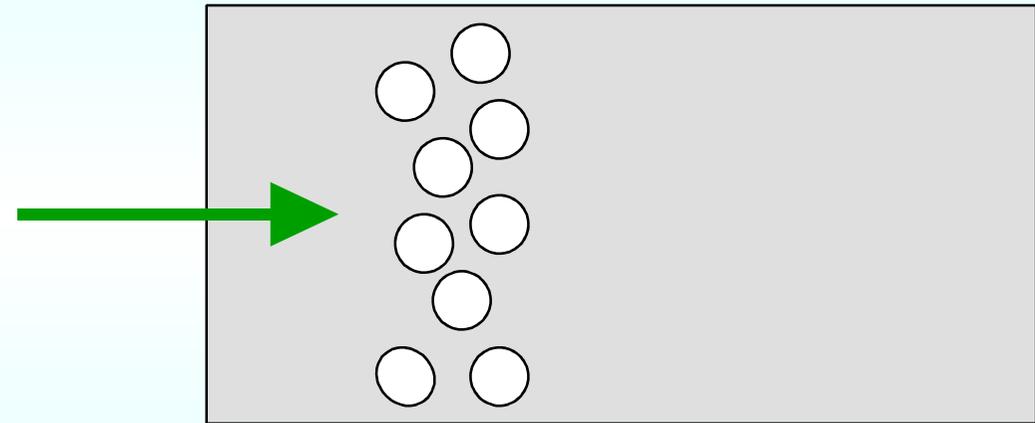
中性子照射

透過力の高い $E > 0.1\text{MeV}$ の高速中性子により試料全体に均質に欠陥が導入される。
Primary Knock-on Atom (PKA) をはじき出した後は狭い領域に欠陥が集中し、カスケードを形成する。



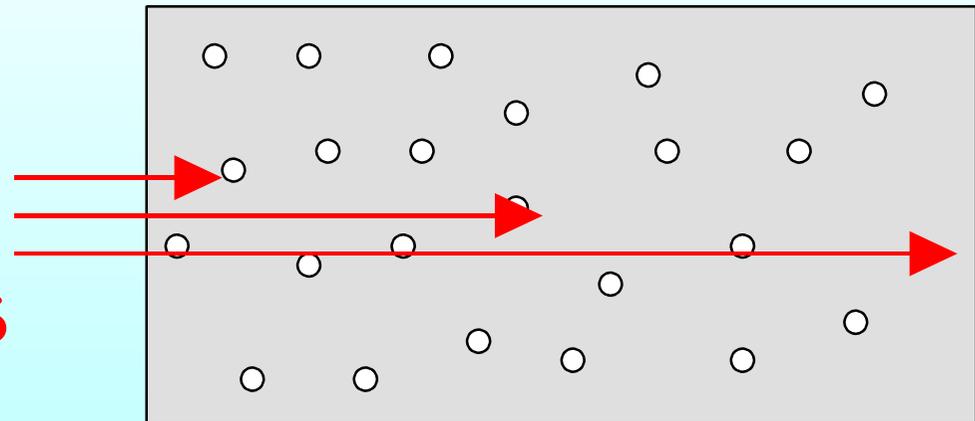
イオンビーム照射

電子励起によりエネルギーを失っていき、ブラッグピーク付近に集中的に欠陥が導入される。
PKAをはじき出した後の挙動は中性子照射と似ていて、カスケードを形成する。



電子線照射

30MeV の電子線は、セラミックス中でおおよそ 10cm 程度の飛程を持つが、平均 PKA エネルギーは 225eV にとどまるため損傷関数は 3.75個となり、フレンケル対などの点欠陥のみが導入されると考えられる。



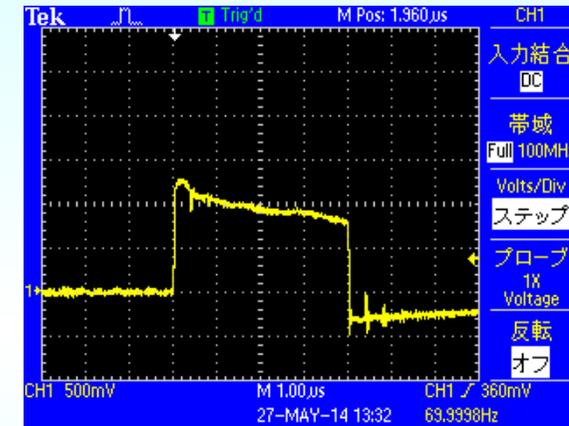
熱拡散率－陽電子寿命の相関を把握するために均一に空孔を導入できる。

電子線照射による欠陥導入

原子炉実験所 KURRI-LINAC

尖頭電流 $\sim 500\text{mA}$, パルス幅 $0.1\sim 4\mu\text{s}$,
繰り返し周波数 $\sim 100\text{Hz}$ での照射により、
平均電流 $200\mu\text{A}$ 以上の照射が可能

- ・ほぼ点欠陥のみを導入
- ・5cm程度の飛程があり均一に欠陥導入が可能
- ・照射量は $\sim 0.02\text{dpa}$ 程度(一週間で)



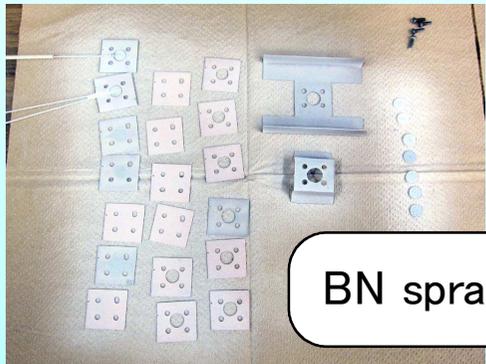
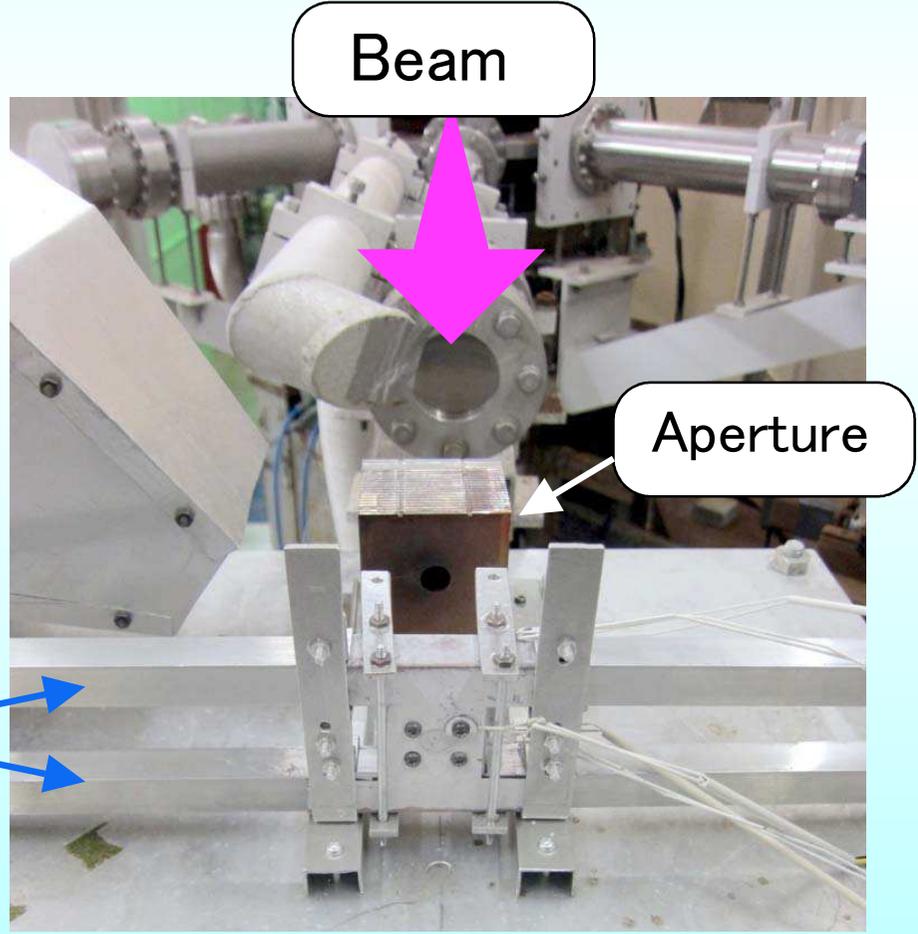
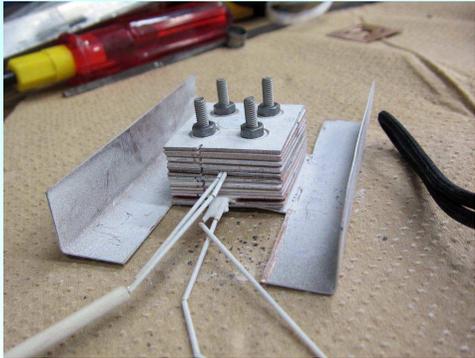
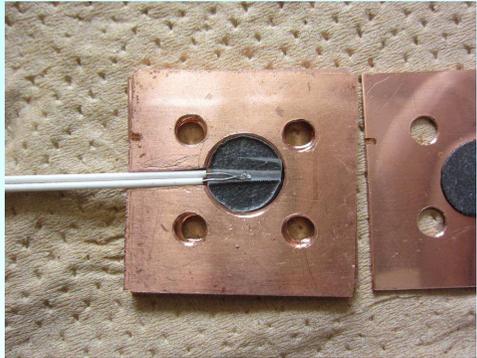
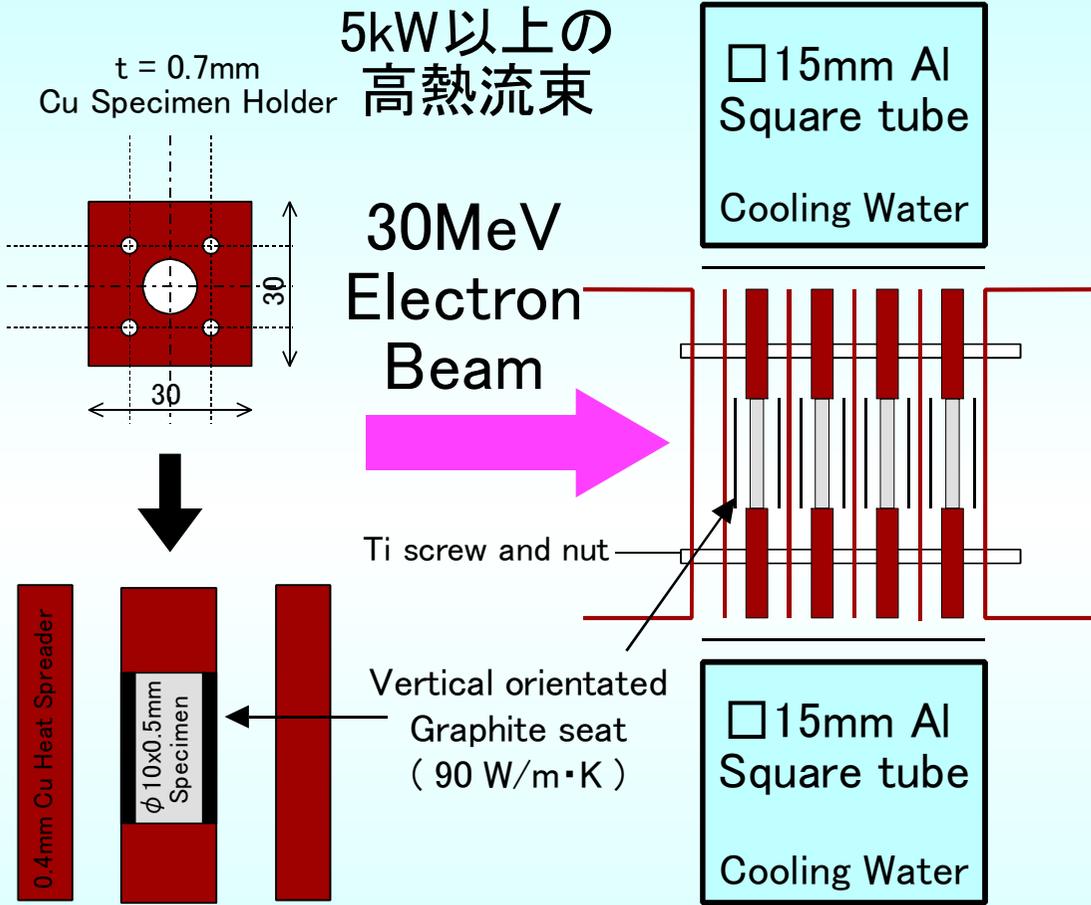
- ・30MeV運転では中性子が発生して試料が放射化する
- ・半径数cmに $\sim 7\text{kW}$ が投入されビーム加熱が激しい



- ・照射ホルダーの工夫で様々な照射温度で照射が可能

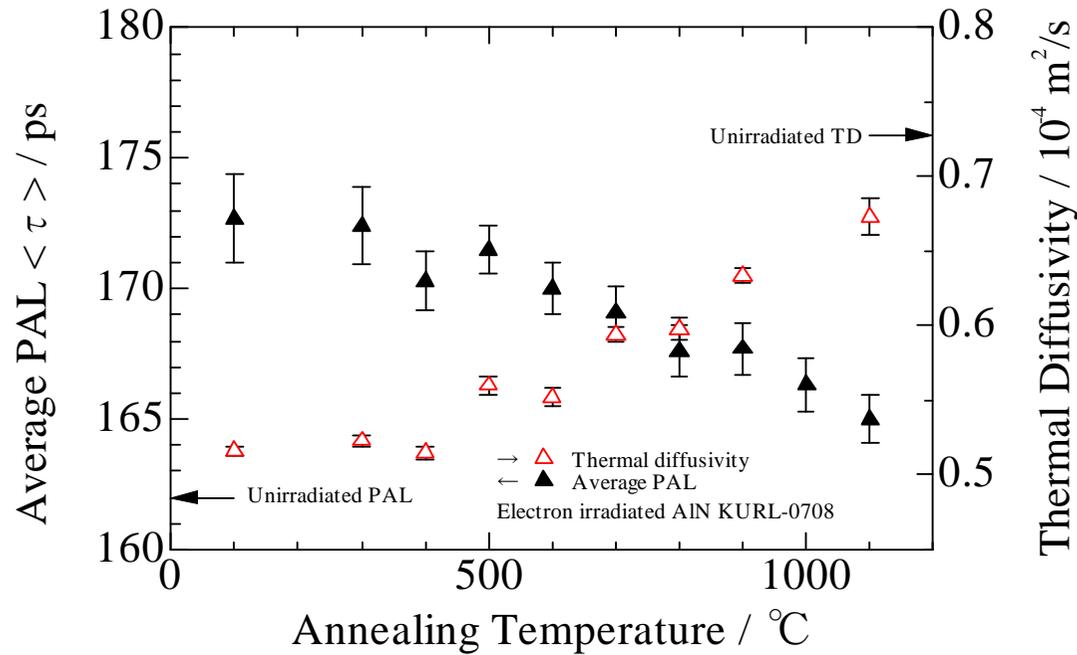


照射ホルダーの開発



AlN

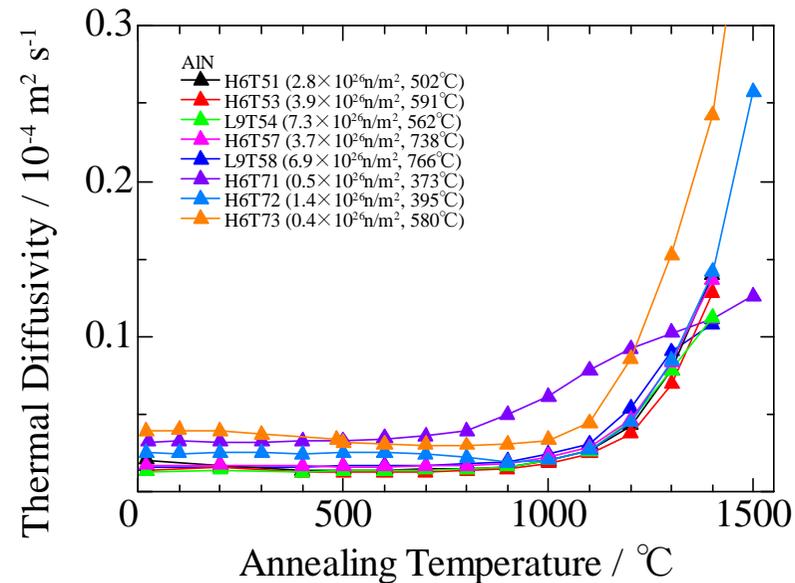
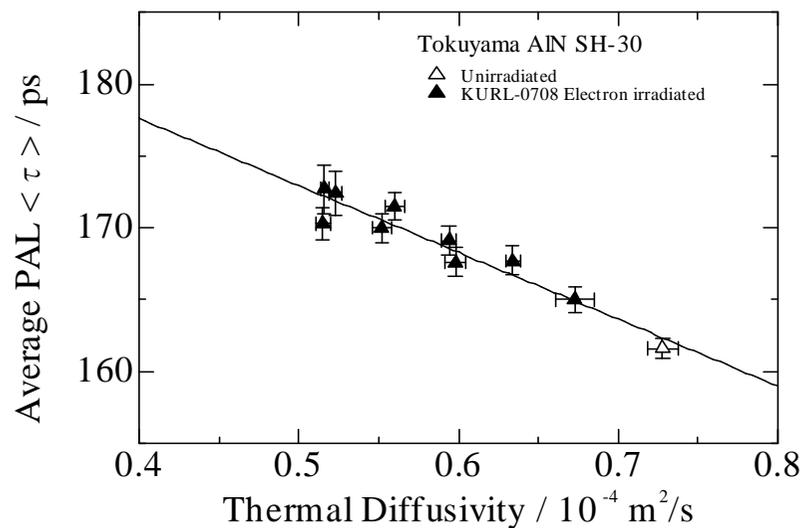
電子線照射試料における 熱拡散率/陽電子寿命の相関



PAL: 400 $^{\circ}\text{C}$ から直線的に回復し、1100 $^{\circ}\text{C}$ でほぼ未照射での値まで回復した。

熱拡散率: 400 $^{\circ}\text{C}$ から直線的に回復し、1100 $^{\circ}\text{C}$ でほぼ未照射での値まで回復した。

相関: 非常に良い直線的な相関を示した。



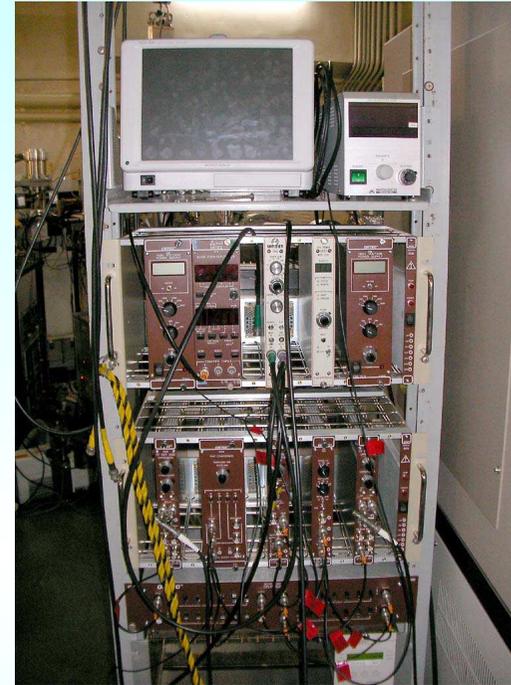
1100 $^{\circ}\text{C}$ からアニール温度の二乗に従って回復

Neutron Irradiated

主な測定装置



レーザーフラッシュ熱定数測定装置
アルバック TC-7000 H/L 特型

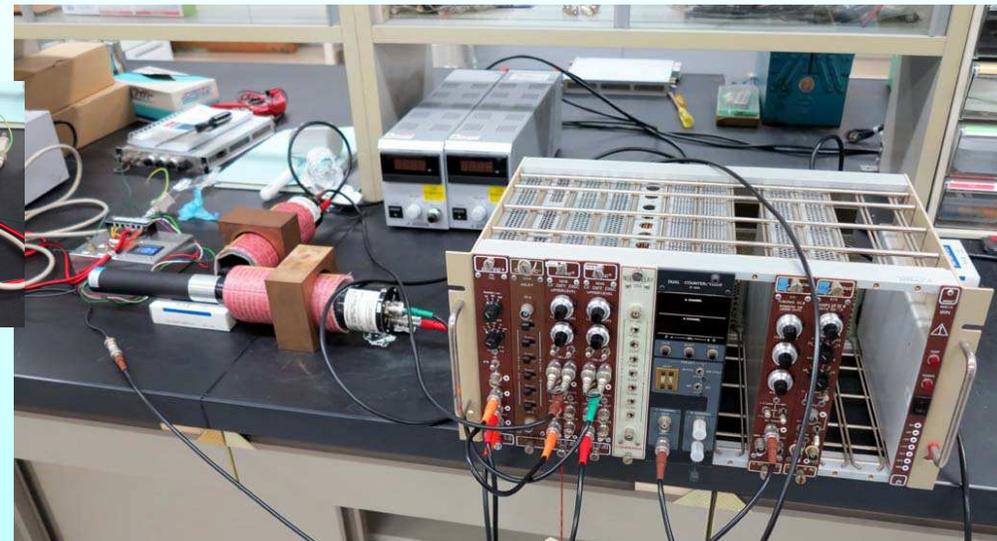


イオン照射時
陽電子寿命測定系

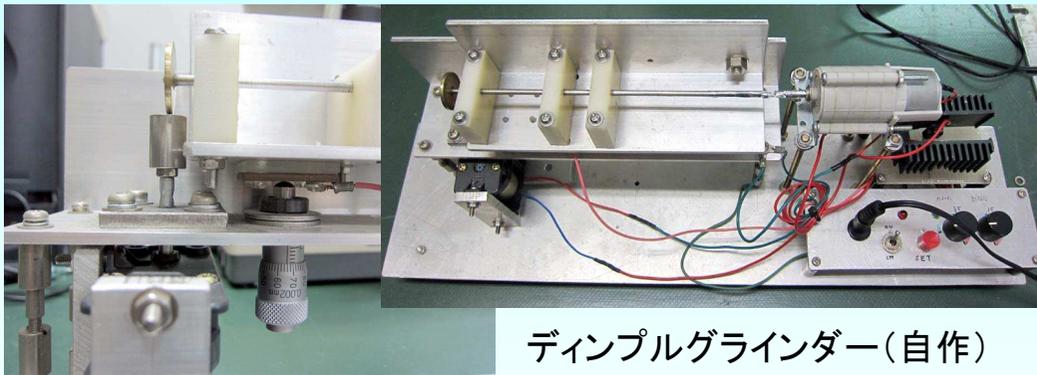


微小試験片
陽電子寿命測定系

高純度Ge半導体検出器
キャンベラ GC4019S



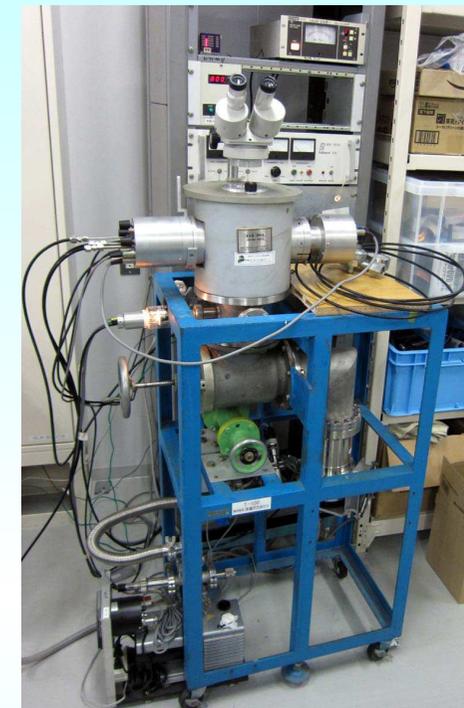
主な試料調整装置



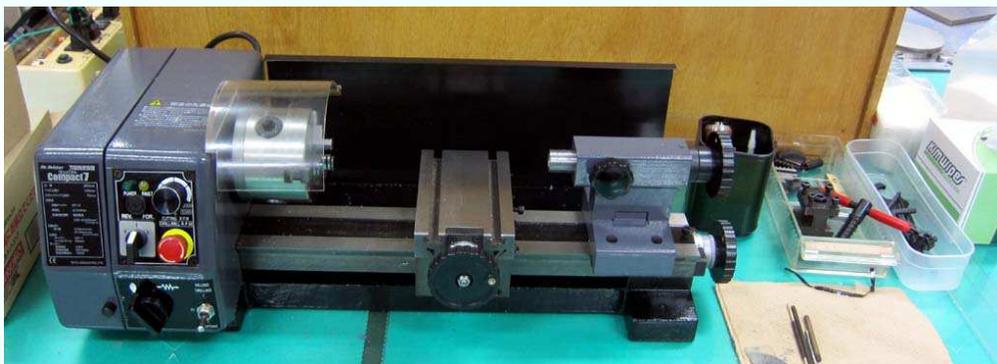
ディンプルグラインダー(自作)



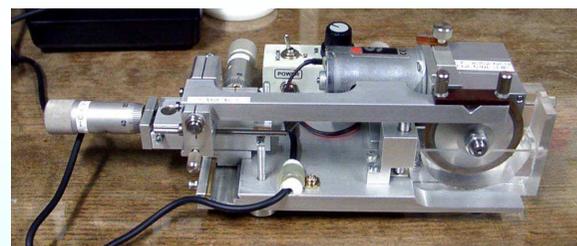
オーリー ダイヤモンドバンドソー



AtomTech イオンシニング装置



精密旋盤 コンパクト7



Technoorg Linda MicroSaw



マルトー ドクターラップ
MK-180

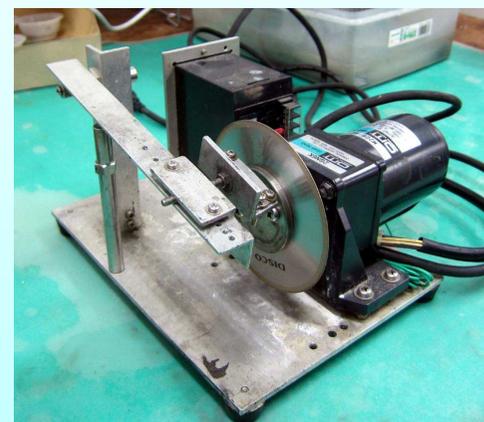


レクソン
小型ボール盤
DP2250R

Ryobi
卓上バンドソー
TBS-50



ダイヤモンドディスクカッター(自作)



Gatan 超音波ディスクカッター