

| Title        | 核融合炉用超電導磁石材料の中性子照射損傷に関する<br>基礎研究  |
|--------------|-----------------------------------|
| Author(s)    | 林内,賀洋                             |
| Citation     | 大阪大学, 1984, 博士論文                  |
| Version Type | VoR                               |
| URL          | https://hdl.handle.net/11094/1684 |
| rights       |                                   |
| Note         |                                   |

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

# 核融合炉用超電導磁石材料の中性子照射損傷に関する基礎研究

## 昭和59年1月

林内賀洋

次

| 第 | 1章    | 序 論                                   | 1  |
|---|-------|---------------------------------------|----|
|   | 1. 1  | 超電導磁石領域における中性子照射量                     | 1  |
|   | 1. 2  | 中性子エネルギースペクトル                         | 2  |
|   | 1. 3  | 核融合炉用超電導磁石材料の放射線損傷                    | 4  |
|   | 1.4   | 本研究の目的と意義                             | 10 |
| 参 | 考文南   | ŧ                                     | 14 |
| 第 | 2章    | 常電導体における残留抵抗の増加機構                     | 17 |
|   | 2. 1  | 緒 言                                   | 17 |
|   | 2. 2  | 2 領域モデル                               | 22 |
|   | 2. 3  | 2 領域モデルでの残留抵抗表示                       | 27 |
|   | 2. 4  | 局所アニーリング率 r                           | 32 |
|   | 2.5   | rの微視的モデル                              | 34 |
|   | 2. 6  | 負の曲率                                  | 38 |
|   | 2. 7  | 中性子エネルギースペクトル効果                       | 39 |
|   | 2. 8  | 考 察                                   | 44 |
|   | 2.9   | 結 言                                   | 47 |
| 参 | 考 文 献 | · · · · · · · · · · · · · · · · · · · | 49 |
| 第 | 3章    | 絶縁材に対する放射線損傷                          | 51 |
|   | 3. 1  | 緒 言                                   | 51 |
|   | 3. 2  | 衝撃波モデル                                | 53 |
|   | 3. 3  | 発生衝撃波の基礎方程式                           | 54 |
|   | 3. 4  | スパッター原子数比                             | 57 |
|   | 3.5   | 空孔生成エネルギーと融点                          | 62 |
|   | 3. 6  | 液体モデル                                 | 64 |
|   | 3. 7  | イオン結晶の場合                              | 68 |

|   | 3. 8 | 考    | 察     | • | •••••                                   |   |   | ••••                                    | 73  |
|---|------|------|-------|---|---|---|---|---|-----|
|   | 3. 9 | 結    | 言     |   | •••••••••••••                           | •••••                                   | ······································  | ••••                                    | 77  |
| 参 | 考 文  | 献    |       | •••••                                   | •••••                                   | •••••                                   | •••••                                   | ••••••                                  | 78  |
| 第 | 4章   | 超電導  | 事体に   | 対する核融                                   | 合炉中性                                    | 子照射効果                                   | ₹                                       | •••••                                   | 80  |
|   | 4. 1 | 緒    | 膏…    | •••••••••••••••••                       |   |   | ••••                                    | ••• ••••                                | 80  |
|   | 4. 2 | Tc劣  | 化の中   | 性子スペク                                   | クトル効果                                   | L                                       | ••••                                    | ••••••                                  | 80  |
|   | 4.3  | Jc劣  | 化の中   | 性子スペク                                   | トル効果                                    | Į                                       | • | •••••                                   | 85  |
|   | 4.4  | 結    | 言…    |   |   |   |   |   | 87  |
| 参 | 考 文  | 献    |       | ••••••••••                              | •                                       |   |   |   | 88  |
| 第 | 5 章  | 複合詞  | 超電導   | 「導体の安気                                  | 官性に対す                                   | る核融合物                                   | 沪中性子照                                   | 射効果                                     | 89  |
|   | 5. 1 | 緒    | 言…    |   |   | <i></i>                                 |   | ••••••••••••                            | 89  |
|   | 5. 2 | 安定   | 化理論   | iと力学的フ                                  | アナロジー                                   | · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·   | • | • | 90  |
|   | 5.3  | 安定   | 性に文   | する核融合                                   | 合炉中性子                                   | ·照射効果·                                  |   | ••••••                                  | 104 |
|   | 5.4  | 結    | 言     |   |   |   | • | •••••                                   | 110 |
| 参 | 考 文  | 献    |       |   |   |   |   | •••••                                   | 110 |
|   |      |      |       |   |   |   |   |   |     |
| 第 | 6章   | 総括,  | 討論    | ••••••••••••••••••••••••••••••••••••••• |   |   | •••••                                   | •••••                                   | 111 |
| 第 | 7章   | 結    | 論…    |   |   |   |   |   | 116 |
| 参 | 考 文  | 献    | ••••• |   | • | · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·   |   |   | 119 |
| 本 | 研究に  | 関連する | 5発表   | 論文                                      |   | ••••••••••••••••••••••••••••••••••••••• |   |   | 120 |
| 本 | 研究に  | 関連する | 5国際   | 会議,学会                                   | ,講演等                                    |   |   | ••••••                                  | 121 |
| 謝 |      | 辞    | ••••  |   | •••••                                   |   |   | • | 122 |

## 第1章 序 論

#### 1.1 超電導磁石領域における中性子照射量

磁場閉じ込め核融合炉を実現する為には、プラズマ容器の第1壁を始めとし て、超電導磁石(以下SCMと略す)材料の放射線損傷の問題を克服しなければ ならない。<sup>(1)</sup>これらの内で特に、SCMのコストは炉全体の25~50%に達すると 予想されており、<sup>(2)</sup>SCMの放射線損傷は炉の建設コスト、並びに運転コストの節 約を達成するための設計基準を決める重要な因子の1つとなっている。従っ て超電導磁石材料の放射線損傷に関する基礎データを得、それを炉設計の分野 へフィードバックすることが炉工学から要求される。

一般に磁場閉じ込め方式の核融合炉のしゃへい基準は主としてSCM 材料 の 放射線損傷,並びにSCMの放射線による核発熱を,許容できる範囲内に抑える という条件下で決められる。従って、例えば、許容量を厳しくすると厚いしゃ へい体が要求されこれに伴って SCM も大型になり、コストの増大をもたらすこ とになる。ゆえに最適化を考慮した炉設計において SCM 材料は、ある程度の放 射線照射を受けることは避け難い。 McCranken,等<sup>(3)</sup>の、最も初期の概念設計 によると, 第1壁での中性子束は 10<sup>15</sup> n /cm<sup>2</sup> sec で, 第1壁から SCM 領域まで の距離を 1.5 m とした場合, 第1 壁での中性子束がしゃへい体を通ってSCM額 域に達すると 10<sup>9</sup>~10<sup>10</sup> n/cm<sup>2</sup> secになることをモンテカルロ計算で予測してい る。この場合、炉の運転寿命を20~30年とするとSCMがその間に受ける全線 量は 10<sup>18</sup>~10<sup>19</sup> n/cm<sup>2</sup> に達する。一般に,超電導体がこの様な大線量照射を受 けると、その超電導特性である臨界温度、臨界電流、臨界磁場等が劣化する。 特に将来十数テスラの高磁場下での使用が有望視されている Nb<sub>3</sub>Sn 等の化合物 系超電導体は 10<sup>18</sup>n /cm<sup>2</sup>以上の高速中性子照射を受けるとその臨界特性が著しく 劣化する事が,多くの原子炉照射実験で示された。<sup>(4-24)</sup>従って,その後,炉の 径を大きくしてSCM領域の中性子負荷を下げるという考え方に基づいて、比較 的大きな炉が提案され、プラズマ中心から第1壁までの距離を数mまで広げる (25,26) ことによって SCM領域での中性子線量を約1桁下げる設計が可能となった。 しかし、炉の大型化に伴ってSCMの形状も大きくなり、建設費が莫大なものと

なるのみならず,発電コストも上る為,最近では,再びプラズマ半径1m程度 の小さな炉が設計されるようになっている。例えば、Abdouの試算<sup>(27)</sup>によると しゃへい体の厚さを1m程度にしたとき発電コストが最小になる。但しこの場 合SCM領域での中性子線量は 10<sup>19</sup>n/cm<sup>2</sup>に達すると予想される。国際協力で検 討されている実験炉 INTORでは、Nb<sub>3</sub>Snに対する最大中性子フルエンス3×10<sup>18</sup> n/cmとした場合、しゃへい体の厚さを0.8 mとすべきであるという算出を行っ ている。<sup>(28)</sup>又、JT-60の次期装置として設計が行なわれているスイミングプー ル型トカマク核融合炉(SPTR)では、最大中性子フルエンスを2×10<sup>18</sup>n/cm<sup>2</sup>  $(E_n > 0.1 \text{ MeV})$ として、しゃへい厚さを 1.4 mにしている。<sup>(28)</sup> INTOR 及び SPTRのいずれの場合も、SCM領域での高速中性子フルエンスの計算による予 想値は 10<sup>17</sup>n/cm<sup>2</sup>の程度であり, 超電導特性への影響は少ないであろうと考えら れている。しかし実際の核融合炉ではダイバータの排気孔, NBIの入射孔, 各 種計測孔等があり、(28) これらの孔から多量の核融合中性子が漏れてくること(中 性子ストリーミング)が予想される。<sup>(29)</sup>炉の構造上、しゃへいを最適化しても、 なおかつ、中性子のストリーミングが避けられない領域が存在することが予想 される。そのためSCMのある部分が、平均的なフルエンスに比べて、著しく(あ る場合は1~2桁)大量の中性子フルエンスを受けることが予想される。核融 合炉用大型超電導磁石の設計製作にあたり、これが、 Series Machine であり、 磁石全体の性能が最弱点部で左右される可能性を考慮するとSCM領域での高速 中性子照射量は,最大10<sup>19</sup>n/cm<sup>2</sup>と見積り,このフルエンスに対する材料のデー タを獲得し、耐放射線性を議論しておく必要があるものと思われる。

### 1.2 中性子エネルギースペクトル

核融合炉用 SCM材料に対する照射実験の多くは,核分裂炉を使って,10<sup>19</sup>~ 10<sup>20</sup> n/cm<sup>2</sup> 程度の線量まで照射が行なわれてきた。しかし,核分裂炉は,10~14 MeVの核融合中性子を含まないから核分裂炉中性子照射データを核融合炉用 S CM のしゃへい設計に用いる場合,どの様に補正すべきかという問題がある。 図 1.2 - 1 中の破線は、モンテカルロ法で計算された<sup>(3)</sup> SCM領域における代 表的な中性子エネルギースペクトルであって、実線は核分裂炉中性子照射スペ

- 2 -



図 1.2-1 核分裂炉照射中性子エネルギースペクトル と、核融合炉用超電導マグネット領域にお ける中性子エネルギースペクトルを比較し たもの。 横軸:中性子エネルギーE 縦軸:エネルギーE以上の中性子の割合。 実線は核分裂炉中性子照射実験における中 性子エネルギースペクトル、破線は核融合 炉用超電導マグネット領域における中性子 エネルギースペクトルのモンテカルロ計算 値。(Mc Cracken<sup>(3)</sup>等による)

クトルの1例を示したものである。これを見ればSCM領域ではスペクトルが軟化して10MeV以上の成分が少なくなり、核分裂のそれとかなり似ていることがわかる。又、MATT-1050<sup>(31)</sup>の報告書中のモンテカルロ計算の結果を見ても10~14MeVの核融合中性子の割合は数%程度と推定される。これらのデータを見る限り、核分裂中性子照射実験は、核融合炉SCM領域での中性子照射を良く模擬していると考えられる。しかし〔1.1〕で述べた計測孔等からの中性子ストリーミングを考慮すると局所的には10~14MeVの核融合中性子の成分

- 3 -

が高くなることが予想され,核分裂炉中性子照射実験データだけでは,実用的 見地から不十分であると思われる。<sup>(†)</sup> さらに深層透過問題であるところのしゃ へい設計には累積誤差が含まれ,<sup>(32)</sup>又,8~13MeVの核データの不足からしゃ へい計算の結果に,かなりの不確定性が含まれることを考慮しておかねばなら ない。

#### 1.3 核融合炉用超電導磁石材料の放射線損傷

核融合炉用 SCM 材料は主に 4 つの成分に分類できる。

(1) 超電導材

合金系 (NbTi等), 化合物系 (Nb<sub>3</sub>Sn等)

(2) 安定化材

Cu, Aℓ 等

(3) 熱的及び電気的絶縁材

無機材(MgO,SiO₂,Aℓ₂O₃等)

有機材(エポキシ,マイラ、カプトン等)

- (4) 構造材
  - SUS

これらの内で 10<sup>19</sup>~ 10<sup>20</sup> n/cm<sup>2</sup>の高速中性子照射で問題となるのは(1)~(3)である。 但し,将来材料開発によって金属より熱容量の小さい絶縁体が構造材として使 用されることも考えられるので,この場合には構造材の放射線損傷も問題とな る。(1)~(3)の照射効果の特徴を考察すると次の様になる。

(i) 超電導体の中性子照射効果

NbT i 等の合金系超電導体は,一般に,化合物系超電導体より耐放射線性が約1桁以上高いが,超電導特性が化合物系のそれに比べて劣るため(表 1.3 - 1参照)将来十数テスラ以上の高磁場下での使用は化合物系が主流になるものと考えられる。そこで,ここではNb<sub>3</sub>Sn等の化合物系を中心に考察する。

(†) 最近行なわれたLLL(米国)のRTNS-Ⅱ共同利用計画に基づく14 MeV 中性子 照射実験は、この不足を補うものとして期待され、現在、実験データの解析が進行中 である。(米国ワークショップ、岡田、G uinan 等 Oct. 1983, 6th~8th大阪大学)•

|                    | T <sub>c</sub> (K) | H <sub>c2</sub> (KG) | $J_{c}(A/cm^{2})$ |
|--------------------|--------------------|----------------------|-------------------|
| Nb-Ti              | 9.5                | 122                  | $10^4 \sim 10^5$  |
| Nb <sub>3</sub> Sn | 18                 | 245                  | $10^4 \sim 10^5$  |
| V <sub>3</sub> Ga  | 15                 | 210                  | $10^4 \sim 10^5$  |

表 1.3 - 1 合金系超電導体と化合物系超電導体の臨界 特性の比較

(注)  $T_c$ :臨界温度,  $H_{C2}$ :第2臨界磁場,  $J_c$ :臨 界電流密度,  $H_{C2}$ は4.2Kでの値

A - 15型化合物系超電導のNb<sub>3</sub>Sn, V<sub>3</sub>Si等の臨界温度Tcは普通 20K前後で, Nb Ti (Tc~9.5 K)より高いが  $10^{18}$ n/cm<sup>2</sup>の中性子照射で劣化し始め $10^{19}$ h/cm<sup>2</sup> ~  $10^{20}$ n/cm<sup>2</sup>の照射で約 80%劣化して飽和する。<sup>(4-24)</sup>(図 1.3 - 1参照) これ は多くの実験によって確認されており,又このメカニズムについてはいくつかの モデルが考えられ

- 5 -

ている。超電導の 本質をミクロな立 場から明らかにし たBCS理論<sup>(33)</sup>に よると,超電導体 の $T_c$ はフォノンを 媒介とする電子間 引力V,フェルミ 面における電子の 状態密度N(0)及び Debye温度 $\theta_D$ で 完全に決り



 図 1.3 - 1;中性子照射による化合物系超電導体の臨界 温度のT<sub>C</sub>の劣化 横軸:中性子照射量 縦軸:照射前の臨界温度 T<sub>CO</sub>で規格化した T<sub>C</sub>(Sweedler等<sup>(18)</sup>による。)

 $T_{C} = 1.14 \Theta_{D} exp(-1/N(0)V)$ 

で与えられる。(但し、Nb<sub>3</sub>Sn等の強結合超電導体では、この式は修正が必要 であるが以下の議論の本質には影響しないので簡単の為この式を用いる。)従 って照射によって導入される格子欠陥がこれらのパラメターを変化させ、 $T_c$ の 劣化を引起すものと考えられるが、通常フォノンパラメター $\theta_D$ はあまり変化し ないと考えられており、 $^{(34,35)}$ 欠陥導入による $T_c$ の劣化はN(0)やVの減少によるとする説が主である。 $^{(36-38)}$ どの様な欠陥がN(0)やVを減少さすかについての $定説はまだ得られていないが、Sweedler等<math>^{(18)}$ は、A – 15結晶構造(図 1.3 –

2参照)を持つ A<sub>3</sub> BのA 原子とB 原子の 位置が入れ変った欠陥(anti-site disorder)が主であると考えている。 しかし,高速中性子照射による損傷は、い わゆるカスケードタイプの損傷であり, A 原子とB 原子の単純な交換以外にも格 子間原子,空孔,欠陥集合体等が生じて いることが十分考えられるから,antisite欠陥の割合等について,より詳細な 検討が必要であると思われる。実際 Testardi<sup>(19)</sup> Poate<sup>(20)</sup>等は,  $\alpha$ 線照射し た Nb<sub>3</sub>Ge, Nb<sub>3</sub>SnをX線解析した結果,  $T_c$ の劣化は Nb 原子の格子点からのわず かな変位によっても生ずることを報告し



図 1.3.2; A-15型結晶構造 (A<sub>3</sub>B) 黒丸:A原子, 白丸:B原子 (西本氏による<sup>(51)</sup>

ている。微視的な観点で*Tc*劣化の機構をとらえた理論<sup>(37-40)</sup>もいくつか提唱されている。しかし、夫々独自のモデルで、多くの実験結果を統一的に説明するのは困難であり、逆に言えば、このことは*Tc*劣化の微視的メカニズムが単一過程によるものではない可能性もある。

次に臨界磁場 $H_{C_2}$ について簡単に述べる。一般に $H_{C_2}$ は $T_C$ と密接に関連し、特に絶対 0 Kでの臨界磁場 $H_{C_2}(0)$ は

 $H_{C_2}(0) \propto \gamma^{\frac{1}{2}} \rho T_C$ 

なる関係にある。<sup>(41)</sup>ここにrは低温での電子比熱の温度係数,  $\rho$ は常電導状態 にあるときの残留抵抗である。照射によってrはあまり変らないから $H_{C_2}(0)$ の 照射効果は,定性的には $\rho$ と $T_C$ の変化によるものとして理解できる。但し,こ の場合,照射によっても上式の比例性が変らず,つねに成り立つということを 暗に仮定している。所で,照射によって $T_C$ は下り, $\rho$ は増えるから $\rho T_C$ の積で 決まる $H_{C_2}(0)$ は或る照射量でピークを持つ可能性がある。実際 Coffey<sup>(42)</sup>等は Nb(第二種超電導体)の $H_{C_2}$ が,重水素照射でピークを持つことを観測し,又 Karkin<sup>(43)</sup>等もNb<sub>3</sub>Snに高速中性子を照射した場合,ピークを観測しており,上記のモデ ルの妥当性を与える。 $H_{C_2}$ は $T_C$ と同様 10<sup>19</sup>n/cm<sup>2</sup>以上の原子炉中性子照射を受 けると 80%程度劣化して飽和する。

最後に臨界電流 $J_c$ の照射効果について簡単に述べる。多くの場合, Nb<sub>3</sub>Sn 等 の高磁場下での $J_c$ は 10<sup>17</sup> n/cm<sup>2</sup>以下の低線量測で照射量と共に増加し, 10<sup>18</sup> n/cm<sup>2</sup> 以上の高線量測では照射量の増加に伴って減少する。<sup>(21, 22, 24)</sup>従ってある照射 量でピークを持つ。しかし, $H_{c_2}$ より十分小さい低磁場下での $J_c$ は, このような ピークを持たず, 照射量の増加に伴って減少するのみである。(図 1.3 – 3 参照) この様な照射効果の磁場依存性は, 定性的には次の様に理解される。<sup>(44)</sup>先ず臨 界電流密度 $J_c$ は量子磁束線に作用するピン止め力 $F_P$ に比例し次の形で与えられ る。<sup>(45)</sup>

 $F_P(H, T) = B \cdot J_C(H, T)$ ここにHは外部磁場, Bは磁束密度, Tは温度である。一方ピン止め力 $F_P$ は経験的スケーリング則<sup>(46)</sup>

 $F_P(H, T) = C(T) H_{C_2}^m (H / H_{C_2})^n (1 - H / H_{C_2})^2$ に従う。ここに C(T)はピン止め中心(格子欠陥がこの役割を演ずる)の微視的構造を反映するパラメターである。又,  $m = 1.5 \sim 2, 5$ , n = 1/2 である。

(図 1.3 - 4 参照)低線量照射  $\phi$ では、C(T)はあまり変化せず、従って $F_P$ の低線量側での変化は主に $H_{C_2}$ の変化による。このとき Brawn<sup>(22)</sup>の議論によると

$$dF_{P}/d\Phi \sim (dH_{C_{2}}/d\Phi) \Big[ C(T) H_{C_{2}}^{m-1} (H/H_{C_{2}})^{n} (1 - H/H_{C_{2}}) \{ (m-n) - (m-n+2) H/H_{C_{2}} \} \Big]$$

- 7 -

となる。低線量照射では普通 ρ の増加に伴って $H_{c_0}$ は増加するか ら $dH_{C_o}/d\phi > 0$ であり、従っ  $\tau dF_P/d\Phi$ の符号は $H/H_{C_o}$ > (m-n) / (m-n+2)のとき正.  $H/H_{C_2} < (m-n) / (m-n+2)$ のとき負となる。ゆえに(m-n)  $H_{C_{0}}/(m-n+2)$ より高い磁場で の $J_c$ は照射によって増え、これ より低い磁場での Jc は照射によ って減少する。一方、高線量照 射では、磁場に無関係に $J_c$ が 減少するがこれはピン止め中心 のかさなり合いによるピン1個 当りのピン止め力の低下や J<sub>C</sub> の劣化による係数C(T)の減少に よって引起されるものと考えら れる。なお $J_c$ の照射効果は、同 じ超電導体でも、その照射前の 加工熱処理等によって異なり、 履歴の異なる試料が或る磁場の



図 1.3-3;中性子照射による Nb<sub>3</sub>Snの臨 界電流 *I<sub>c</sub>*の劣化。 横軸:中性子照射量 縦軸:照射前の臨界電流 *I<sub>c</sub>* で規格化した *I<sub>c</sub>*(Sweedler等 <sup>(11)</sup>による)

元で同様なピーク効果を示すとは限らない。<sup>(15)</sup> J<sub>C</sub>はT<sub>C</sub>, H<sub>C2</sub>同様 10<sup>19</sup>n/cm<sup>2</sup> 以 上の照射では 80%程度劣化して飽和する。

(ii) 安定化材の照射効果

優れた臨界特性を有する超電導体も、それ自身の有する不安定性のために、 単独では大きな電流を流すことができない。例えば、電流を流している超電導 体に何らかの外乱(熱的、電磁気的、機械的、及び放射線等)が作用して局所 的に常電導部分が発生したとき、この部分の電気抵抗は非常に高く(銅の数百 倍)、従って大きなジュール発熱が起り、超電導体の温度が上昇し最悪の場合 は焼損する。そこで通常, 超電導体の囲りに銅等の伝 導度の大きい金属を被覆し ておき,大きな外乱のため 超電導電流を流せなくなっ た場合でも電流をこれへバ イパスするようにする。何 故なら銅またはアルミニウ ムは熱伝導も高く,発生し たジュール熱を速やかに拡 散できるからである。

一般に銅,アルミニウム
 等の電気伝導度の高い純金
 属は低温における中性子照
 射によって残留抵抗が増加
 する。例えば,残留抵抗が
 10<sup>-9</sup> *Q* cm<sup>2</sup> 程度の非常に純度
 の高い銅は 10<sup>19</sup> n/cm<sup>2</sup>の中性



図 1.3 - 4; V<sub>3</sub>Ga のスケーリング則 横軸:臨界磁場*H*<sub>C2</sub>で無次元化し た外部磁場 縦軸:最大ピン止め力*F<sub>pmax</sub>*で規 格したピン止め力*F<sub>p</sub>*(Couach等<sup>(50)</sup> による。)

子照射を受けると約 500倍の 5.1 × 10<sup>-7</sup>2cm まで増える。<sup>(47)</sup>これは室温での電気 抵抗と同程度であり,又,超電導体の常電導状態での電気抵抗とも同じオーダ である。照射による残留抵抗の増大は,照射によって導入される格子欠陥が伝 導電子の運動を防げることによって生ずるが,因果関係がこの様に単純なだけ に,残留抵抗に関して耐放射線の高い高伝導度金属はいまのところ得られてお らず,主として中性子のしゃへいに頼ることになるが,常温までの昇温による 焼鈍効果の可能性も若干残されている。

(iii) 絶縁材の照射効果

絶縁材は主にMgO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>等の無機絶縁材とマイラ, カプトン, エポキシ等 の有機絶縁材に分けられる。通常, 前者は耐放射線が高いが硬く脆いため成形 加工が難しいという欠点がある。一方後者は, 放射線に敏感であるが成形加工

- 9 -

が容易である。従って SCM 用としては有機系が主に使われるようである。有 機系絶縁材の放射線損傷においては,高速中性子のみならず r 線も問題となる が,これらによる照射で電気的特性はあまり変化せず,炉工学上問題となる照 射効果はその機械的性質である。<sup>(48)</sup>例えばマイラーでは,液体窒素温度で 3.3 × 10<sup>7</sup> rad の照射によって破断応力が約 20%低下する。一方,FRP,GFRP 等 のエポキシ系樹脂は,物によって 10<sup>9</sup> rad (高速中性子 3 × 10<sup>17</sup> n/cm<sup>2</sup>, r 線 8 × 10<sup>8</sup> R)の液体He温度下での照射で破断応力が 20~50%劣化するものもある が<sup>(48)</sup>エポキシーファイバーグラスラミネート等は 5 × 10<sup>9</sup> radまで耐えられる とされている。この他エポキシ系絶縁材は照射によって材料強度のばらつきが 増え,又,病労強度が低下する。<sup>(49)</sup>最後に,現在絶縁材の照射は高々 10<sup>9</sup> rad 程度までしか行なわれていないが,設計上要求される許容線量は 10<sup>10</sup> rad と言 われ<sup>(28)</sup>今後さらに 1桁多い照射データの蓄積が必要である。

#### 1.4 本研究の目的と意議

前節で核融合炉用 SCM 材料の放射線損傷を概観し,その中で個々の材料の 照射効果について述べた。これらの材料の照射効果については,現在,実験及 び理論の両方面において研究が精力的に続けられており,そのデータが蓄積さ れつつある。しかしながら,未だ十分解明されていない基礎的な問題が多く残 されている。例えば,(1)核分裂炉照射実験で得られた照射効果のデータを核融 合炉用超電導磁石のしゃへい設計に使う場合,核分裂炉照射データをどの様に 修正すべきであるかという問題,(2)核融合中性子の局所的な漏れによって 14 MeV中性子の照射を多く受ける恐れがある場所ではどのような損傷が生ずるか という問題,(3) SCM に用いられる実際の導体は超電導材,安定化材,絶縁材 等をすべて組合わせて製作されたいわゆる複合導体である。実用的見地からす れば,個々の材料の照射効果よりも,この様な複合導体の総合的な照射効果の 方が一層重要である。例えば,照射による超伝導体の臨界温度の劣化は,温度 マージンを少なくし,SCM の安定性を下げることになるが,一方,安定化材の 電気伝導度も照射によって劣化するため,照射下での安定性の議論は,超電導 材の照射効果,安定化材の照射効果,あるいはさらに絶縁材の照射効果をも考

-10-

慮して行なわなければならない。

そこで本研究は、超電導磁石材料の高速中性子照射におけるカスケード効果,並 びに核融合炉中性子のスペクトル効果の理論的解析を通して,上記の問題を解 明することを試みしゃへい設計において有用な知見を得ることを目的とする。 表 1.4 - 1は代表的な未解決の問題と,本研究が取扱う課題をまとめたもので ある。

先ず,第2章では,磁石の安定性の著しい低下の要因となる安定化材の残留抵抗の増加の問題を取り上げ,高速中性子照射損傷による欠陥生成過程を詳しく解析する。カスケード損傷による欠陥生成過程を記述する新しいモデルを提案し,従来のモデルでは説明が困難であった非線型損傷率の問題を統一的に理解することが可能になった。又カスケード効果を定量化する微視的パラメターを決定した。このモデルを基にして残留抵抗の増加に対する核融合炉中性子のスペクトル効果を調べた結果,残留抵抗の飽和速度は,中性子束に含まれる核融合中性子(10~14 MeV)の割合が増すにつれて速くなり,核融合中性子の割合が多い中性子束の照射を受ける場合では,核分裂炉照射データに対して補正が必要であること,並びに中性子ストリーミングに対するしゃへいの重要性を指摘した。

第3章では、絶縁材の放射線損傷に関する問題を取上げた。核融合炉用の絶縁 材としては、無機絶縁材料(MgO,SiO₂等)や、エポキシを中心とした有機絶 縁材料がある。これらは中性子及びr線の同時照射を受けるが、特に中性子照 射に関しては、(1)構成元素の質量が小さい(1~20程度)ため核融合炉中性子 照射による1次ノックオン原子は非常に大きなエネルギー(最大で14MeV~数 MeV)を持ち、絶縁体内部は高エネルギーのイオン照射を受ける。(2)セラミッ ク等の無機材のあるものは極低温のみならず、室温、あるいはそれ以上で使用 されている場合もあるという特徴がある。(1)においては、重照射損傷を明確に することが重要であり、(2)においてはこの他に、生成欠陥の挙動(拡散,移動, 集合体の形成等)を明らかにすることも照射効果を調べる上で重要となる。こ の場合、欠陥の生成エネルギー、移動エネルギーといった欠陥の基本的性質がわ かっていなければならない。

-11 -

表1.4-1 核融合炉用超電導磁石材料の中性子照射損傷

| 本研究が取扱う課題           | カスケード損傷効果を考慮した残留抵抗増加機構の解析及び核融合中性子の効果   | 高エネルギー放射線による<br>衝撃波損傷効果,及び欠陥<br>生成エネルギー  | 核融合炉中性子照射下での特性劣化  | 安定性に対する核融合中性子照射効果                          |
|---------------------|--|--|---|--|
| 解明すべき問題点            | <ul> <li>ウスケード効果</li> <li>核融合中性子(10~14MeV)の効果</li> <li>疲労による残留抵抗の増加との同時効果</li> <li>磁気抵抗の照射効果</li> <li>その他</li> </ul> | 。特性劣化メカニズム<br>。応力下での放射線損傷<br>。核融合中性子(10~14MeV)の効果<br>。格子欠陥に関する基礎物理量 データの不足<br>。その他 | 。耐放射線性線材の開発<br>。核融合中性子(10 ~ 14 MeV)の効果<br>。応力効果と照射効果の同時効果<br>。その他 | 。中性子照射効果を考慮した安定化議論                         |
| 炉工学上問題と<br>なる 照射効 果 | 残留抵抗の増加  | 破断応力, 疲労<br>特性等の機械的<br>性質の劣化   | 臨界温度等の超<br>電導特性の劣化  | 安定性の低下                                     |
| 材料                  | 安定化材<br>(Cu)   | 絶 縁 材<br>(MgO,A <sup>g</sup> O <sup>3</sup> )<br>エポキシ等                             | 高 磁 場 用<br>超 電 導 体<br>(Nb <sub>3</sub> Sn等)                       | 複 合 超 電 導 体<br>(Cu 安定化 Nb <sub>3</sub> Sn) |

そこで本章の前半では、絶縁体のイオン照射損傷においてイオンのエネルギ ーが非常に大きい場合、従来の2体衝突に基づくカスケード損傷以外に、原子 の集団運動励起に基づく衝撃波損傷も可能であることを、核分裂破片による損 傷例の解析を通して指摘した。又、この損傷過程はエポキシ等の軽元素材で特 に可能であることが予想され、r線照射、あるいは核分裂炉照射実験だけでは 核融合炉での照射損傷を十分模擬できないことを指摘した。

本章の後半においては、欠陥の最も基本的な性質の一つである空孔の生成エ ネルギーを取り上げ、空孔生成の液体モデルなる新しい概念を導入することに より、金属のみならず、MgO等のイオン結合性の絶縁体の空孔生成エネルギー を融点等のマクロな物性値から見積もる一般式を提案した。このモデルは、空孔 生成エネルギーが未知の、イオン結合性絶縁体の空孔生成エネルギーを、20~30 %以下の誤差内で与える有効な方法であることがわかり生成欠陥の挙動を調べ る上で有用な知見を得た。

第4章では、超電導体の核融合炉中性子照射効果を解析した。中性子照射によ る超電導材料の特性劣化を明確にすることは、炉設計精度の向上、コスト節約を 考える上で重要であるが核融合炉中性子照射効果、特に中性子エネルギースペ クトル効果を明確にした研究は少ない。そこで本章では、高磁場用化合物系超 電導体の臨界温度 $T_c$ ,臨界温度 $J_c$ の劣化のスペクトル効果を、核分裂炉照射 データを使って予測する簡単な方法を提案した。モデルスペクトルを用いた数 値計算の結果 $T_c$ , $J_c$ の劣化は中性子スペクトルに敏感で、遮蔽設計において、 中性子エネルギースペクトルの場所的不均一性、中性子ストリーミング等を考 慮することの重要性を指摘した。

第5章では、複合超電導導体の安定性に対する核融合炉中性子照射効果につい て調べた。銅安定化Nb<sub>3</sub>Snの安定条件に与える中性子照射効果、中性子スペク トル効果を解析した結果、Maddockの安定化条件を満たすように最適化された 銅の量、並びに最適化された輸送電流が、照射量、並びに中性子スペクトルによ って敏感に変わることが予測され、遮蔽設計において磁石の安定性に対する核 融合中性子照射効果を考慮することの重要性を指摘した。 第6章では2章~5章で得られた結果を総括,及び討論した。 第7章では本研究で得られた結論を列記した。

参考文献

- (1) M. A. Abdou, J. Nucl. Mat. vol.72 (1978)147
- (2) JAERI-M 6921(1977)
- (3) G. M. McCracken and S. Blow, CLM-R 120 (1972)
- (4) G. W. Cullen, R. L. Novak and J. P. McEvoy, RCA Review Sept. (1964)
- (5) G. W. Cullen and R. L. Novak, J. Appl. Phys. vol.37 (1966) 3348
- (6) R. Bett, AERE-R 7205 (1973)
- (7) A. R. Sweedler, D. G. Schweitzer and G. W. Webb, Phys. Rev. Lett. vol.33 (1974) 168
- (8) D. G. Schweitzer and D. M. Parkin, Appl. Phys. Lett. vol.24 (1974) 333
- (9) M. Soell, H. Bauer, K. Boening and R. Bett, Phys. Lett. vol.51 A (1975) 83
- (10) D. M. Parkin and A. R. Sweedler, IEEE Trans. Mag-11 (1975) 166
- (11) A. R. Sweedler et al., Int. Conf. Radiation Effects and Tritium Technology for Fusion Reactor, vol.2 (1976) 422
- (12) H. Bauer, E. J. Saur and D. G. Schweitzer, J. Low Temp. Phys. vol.19 (1975) 171
- (13) M. Soell, K Boning and H. Bauer J. Low Temp. Phys. vol.24 (1976) 631
- (14) M. Fahnle and H. Kronmuller, J. Nucl. Mat. vol.72 (1978) 249
- (15) W. Heinz and E. Seibt, MT-6 IP13 (1977)

- (16) S. Moehlecke, A. R. Sweedler and D. E. Cox, Phys. Rev. B vol. 21 (1980) 2712
- (17) M. Fähnle, IEEE Trans. Mag-17 (1981) 1707
- (18) A. R. Sweedler, D. E. Cox and S. Moehlecke, J. Nucl. Mat. vol.72 (1978) 50
- (19) L. R. Testardi et al., Phys. Rev. B vol.11 (1975) 4304
- (20) J. M. Poate et al., Phys. Rev. Lett. vol.35 (1975) 1290
- (21) M. Soell, C. A. M. van der Klein, H. Bauer and G. Vogl Conf. Supercond. Mag. Mat. (1974)
- (22) B. S. Brown, T. H. Blewitt and D. G. Wozniak J. Appl. Phys. vol.46 (1975) 5163
- (23) A. K. Ghosh et al., J. Nucl. Mat. vol.72 (1978) 70
- (24) N. Karnezos and H. Weinstock, ICEC-ICMC (1979)
- (25) Kulcinski, G. L. et al., The Conceptual Design of a Tokamak Fusion Power Reactor 'UWMAK-1', Sandiego, April (1974) and idem, Design Feature of the D-T Tokamak Power Plant 'UWMAK-2', 5-th Conf. IAEA, Tokyo, Nov. 1975, IAEA CN-33/G1-2 (1975)
- (26) Sako, K., et al., Design Study of A Tokamak Reactor, ibid, IAEA CN-33/G1
- (27) M. A. Abdou, J. Nucl. Mat. vol.72 (1978) 147
- (28) Y. Seki,「超電導材料及び絶縁材料などの照射効果」研究会報告書、エ ネルギー特別研究「核融合」1982年1月
- (29) T. Ide, Y. Seki and H. Iida, JAERI-M 6475 (1976)
- (30) T. Okada, 「超電導材料及び絶縁材料などの照射効果」研究会報告書。エ ネルギー特別研究「核融合」1982年1月
- (31) MATT-1050, A Fusion Power Plant, Aug. (1974)
- (32) Y. Seki, JAERI-M 6726 (1976)
- (33) J. Bardeen, L. N. Cooper and J. R. Schrieffer Phys. Rev. vol.108 (1957) 1175
- (34) J. Appel, Phys. Rev. B vol.13 (1976) 3203
- (35) M. Fahnle and H. Kronmuller, J. Nucl. Mat. vol.72 (1978)249
- (36) H. Wiesmann et al., Phys. Rev. B vol.17 (1978) 122

-15-

- (37) A. K. Ghosh, M. Gurvitch, H. Wiesmann and Myron Strongin Phys. Rev. B vol.18 (1978) 6116
- (38) J. Ruvalds and C. M. Soukoulis, Phys. Rev. Lett. vol.43 (1979) 1263
- (39) C. S. Pande, Solid State Comm. vol.24 (1977) 241
- (40) David Markowitz and Leo P. Kadanoff Phys. Rev. vol.131
- (41) (1963) 563
- (41) Dew-Hughes, Cryogenics, Aug. (1975) 435
- (42) H. T. Coffey, E. L. Keller, A. Patterson and S. H. Autler Phys. Rev. vol.115 (1967) 355
- (43) A. E. Karkin et al., Phys. Stat. Sol. vol.38 A (1976) 433
- (44) S. Takamura, JAERI-M (1976)
- (45) Hans Ullmaier, "Irreversible Properties of Type 2 Superconductor" Springer-Verlag, Berlin Heilberg New York 1975 edited by G. Hohler
- (46) Kramer, E. J., J. Appl. Phys. vol.44 (1973) 1360
- (47) M. Nakagawa, K. Boning, P. Rosner and G. Vogl, Phys. Rev. B vol.16 (1977) 5285
- (48) S. Takamura and T. Kato,「超電導材料及び絶縁材料などの照射効果」 研究会報告書。エネルギー特別研究「核融合」1982年1月
- (49) S. Nishijima and T. Okada, Proc. Int. Conf. Magnet Technology MT-6, (1977) 121
- (50) M. Couach, J. Doulat and E. Bonjour J. Nucl. Mat. vol.72 (1978) 114
- (51) M. Nishimoto, 修士論文

## 第2章 常電導体における残留抵抗の増加機構

#### 2.1 緒 言

高速中性子照射下で金属の残留抵抗を測定していると照射時間(従って照射 量)と共に増えてゆく。これは、高速中性子が金属原子と衝突した時、いわゆ る衝突カスケードが生じ、これによって多数の格子欠陥が生成されるからであ り、伝導電子がこれらの欠陥と衝突することによって、電気抵抗が生ずる。所 で、この残留抵抗は単に線量に比例して増大し続けるのではなく、十分照射を 行うと、しだいに増加率は小さくなり、従って残留抵抗の増加は飽和してくる。 これは照射によって作られた欠陥(Frenkel型の格子間原子と空孔が主であ る)が、さらに引続く照射によって再び、本来の安定な格子点に戻るからであ るが、もう少し詳しい定性的な議論は、Dettmann等が電子線照射の場合に導 入した再結合体積(Spontaneous Recombination Volume)を用いて行う ことが出来る。この再結合体積(以下 SRV と略す)とは次の様なものである。



図 2.1-1;格子間原子と空孔の再結合モデル。 すでに存在する格子間原子 Iの近くに新たに空 孔 V が生成されると,互いに再結合を起し消滅 する。v は再結合領域の体積。

即ち図 2.1 - 1 に示したようにすでに生成された点欠陥,例えば格子間原子 I の近傍に,引続く照射によって,新たに空孔 V が生じたとする。この時近接し た I - V pair の互いの引力的相互作用の為に,絶対零度においてさえも不安 定であると考え,直ちに再結合を起し消滅する場合,この再結合が起る I 又は V の囲りの領域の体積を「再結合体積」と名付ける。従って生成される I - V pair の濃度は再結合体積で決まる飽和濃度より大きくなれない。Dett mann 等<sup>(1)</sup> によると I 又は V の濃度 C は

 $dC/d\phi t = \sigma (1 - 2vC + (vC)^{2})$ (2 · 1 - 1)

$$\approx_{\sigma} (1 - 2vC) \tag{2.1-2}$$

なる微分方程式に従って変化する。ただしこの場合, I,V はつねに pairで消滅す るときのみ適用される。ここに。は欠陥生成の断面積であり、。は再結合体積、  $\phi$ tは照射量である〔付録2・1-1参照〕。 (2・1-2〕式はvC《1,即ち、同 一欠陥同志のvが重り合わない時に成り立つ近似式である。 (2・1-1〕又 は(2・1-2〕式を0と置くと、飽和濃度は、それぞれ、1 / v又は1 / 2v とな る。残留抵抗の増加量  $\Delta \rho$ はCに比例すると考えられるから、 $\Delta \rho$ も同様な理由 で飽和する。

さて(2・1-1)式又は(2・1-2)式は,本来電子線照射に対して適 用される式であり、単純なI-V pairの生成過程だけを表現する式であるが、 もしこれを、カスケード型の損傷である高速中性子照射の場合に用いた場合、有効 的なI-V pairの再結合体積 vが決められる。有効的な vというのは、カス ケードによる欠陥生成過程が複雑であり、様々な欠陥(欠陥クラスター等)が 生成されるので、単純なI-V pairの独立な生成過程と見なすことは出来ない のであるが、これを、I-V pairの生成過程と見たときの等価的な、再結合体 積のことを言う。所でSRVモデルでは、残留抵抗増加率、 $d \Delta \rho / d \phi t$  (これを 損傷率:Damage Rateと呼ぶこともある。)は、(2・1-1)又は、(2・ 1-2)式から明らかの様に、 $\Delta \rho$ に対して下に凸な、なめらかな2次曲線か、 あるいは直線となる。実際、Aℓ、Cu、Ag、Au等の伝導度の高い金属は、原子 炉照射によって、 $d \Delta \rho / d \phi t$ が $\Delta \rho$ のなめらかな2次的曲線になることがいく つかの実験で知られている。<sup>(2,3)</sup>所がMo、W、Ni、Co等の比較的低伝導度の金

-18-

属では、 $d \Delta \rho / d \phi t$ が欠陥濃度 10<sup>-4</sup>程度の所で大きく折れ曲る傾向を示し、 $d \Delta \rho / d \phi t$ が $\Delta \rho$ の単純な 2 次関数で表わせない。(図 2 1 - 2 参照) この様な



図 2.1 - 2;  $d \Delta \rho / d \phi t$  VS  $\Delta \rho$  の非線型性を表す模式図

横軸:残留抵抗の増加, Δρ 縦軸: Δρ を照射量 φ t で微分したもの(損 傷率) モリブデン, タングステン, ニッケル, コバシレト等。

 $d \Delta \rho / d \phi t$ の強い非線型性は SRV の概念で説明することは難かしい。所で、こ の現象は、中性子照射によってのみ起るものではなく、これ以外の照射によっ ても生ずる。例えば、A  $\ell$  の電子線照射,<sup>(4)</sup> <sup>10</sup>Bの核分裂破片によるC<sub>u</sub>,A  $\ell$  の損 傷<sup>(5)</sup>でも観測される。但し<sup>235</sup>Uの核分裂破片で照射したCuでは、この様な 非線型性は観測されなかった。<sup>(6)</sup> これらの事実から、 $d \Delta \rho / d \phi t & e \Delta \rho$  に対して プロットした場合に現われる非線型性は、照射の種類に強く存在することが判 る。これに関していくつかの定性的説明は与えられている。例えば、長距離の 置換衝突<sup>(4)</sup>や、磁気抵抗効果<sup>(3)</sup>等が提案されている。しかしいずれも定量的な 取扱いが欠けるという意味で十分なものとは言えない。

一方,SRV理論では、全く説明出来ないもう1つの現象が観測されている。

即ち, Horak 等<sup>(2)</sup>は、Feを原子炉照射し、その時に得られる $d \Delta \rho / d \phi t$ を  $\Delta \rho$ に対してプロットすると、その曲線が上に凸になることを見出した。(図 2. 1-3参照)又最近では、中川等<sup>(3)</sup>が10<sup>19</sup> n /cm<sup>2</sup>の非常に大きな線量を照射する



 図 2.1-3; d △ ρ / d ∮ t VS △ ρ の非線型性を示表す模式
 図 2 横軸:残留抵抗の増加 △ ρ 縦軸: △ ρ を照射量 ∮ t で微分したもの(損傷率)
 鉄, 白金等

ことによってFeのみならずPt等でもこの現象を確認している。Dunlop等<sup>(7)</sup> も同じ結果を得たが、同一の試料を同じ温度で、核分裂破片を用いた照射では 上に凸な曲線は得られなかった。従ってこの現象も又照射の種類に依存するも のと思われる。この $d \Delta \rho / d \phi t$ の非線型挙動に対する説明の1つとして欠陥の クラスタリング (clustering)による特性抵抗 $\rho_{\rm F}$ の減少が上げられている<sup>(37)</sup> (付録 2.1-2)即ち、欠陥が cluster を形成すると $\rho_{\rm F}$ を一定とする比例則  $\Delta \rho = \rho_{\rm F} C$ が成り立たなくなると考えるのである。格子間原子や空孔がクラスタ ーを形成すると $\rho_{\rm F}$ が変ることは理論的に示されている。<sup>(8)</sup>しかしその差は大き くなく、数%以内の差を無視するなら、クラスターの特性抵抗は、それを構成 しているそれぞれの点欠陥の特性抵抗の和で良いと言われている。<sup>(9)</sup>従って $\rho_{\rm F}$  の変化が負の曲率(即ち上に凸であること)の本質的な原因であるとは考え難い。

本章では、上に述べた従来の理論では説明できないいくつかの実験事実を、 統一的に理解すべく、カスケード損傷の簡単なモデルを導入して、実験データ の解析を行い、低温での高速中性子照射による損傷過程について新しい知見を得 ることを目的とする。又後半においては残留抵抗増加に対する中性子スペクト ルの効果について考察を行う。これらの結果は、第4章、及び第5章で応用され る。

〔付録 2.1.-1〕

(2.1-2)式は次の様な物理的な描像から直ちに導くことが出来る。いま, 格子間原子及び空孔の濃度をそれぞれC<sub>I</sub>, C<sub>V</sub>とする。照射によって生じた格 子間原子がすでに存在する空孔と再結合しない確率は

$$1 - vC_v$$

である。一方,照射によって生じた空孔がすでに存在している格子間原子と再 結合する確率は

vC<sub>I</sub>

で与えられる。前者の確率は格子間原子の数を増やすように働き、後者のそれは、すでに存在している格子間原子の数を減らす方向に働く。従って微小な照 射量 døtによるC<sub>1</sub>の変化、dC<sub>1</sub>は次式で与えられる。

 $dC_{I} = \sigma_{I} d \phi t (1 - vC_{V}) - \sigma_{V} d \phi t (vC_{I})$  (A 2.1.1-1) ここで  $\sigma_{I}, \sigma_{V} d k$ 子間原子,及び空孔の生成断面積であるが,格子間原子と空 孔はつねに対で生成されるので  $\sigma_{I} = \sigma_{V}, C_{I} = C_{V} が成り立つ。そこで$ 

 $\sigma \equiv \sigma_{I} \equiv \sigma_{V}$ ,  $C \equiv C_{I} = C_{V}$ とおくと (A 2.1.1 - 1) 式は

 $dC = \sigma d\phi t (1 - 2 vC)$ 

 $\therefore dC \neq d \phi t = \sigma (1 - 2 vC)$ 

を得る。

〔付録 2.1-2〕

 $\rho_{F}$ がCに依存するとき、 $\rho_{F}$ は又照射時間 tに依存すると考えても良い。この とき  $\Delta \rho = \rho_{F}C$ の両辺を  $\phi t$ で微分して

 $d \Delta \rho / d \phi t = C d \rho_{\rm F} / \phi t + \rho_{\rm F} d C / \phi t$ 

 $= C d \rho_{\rm F} / \phi t + \rho_{\rm F} \sigma (1 - 2 v C)$ 

 $= C d \rho_{\rm F} / d \phi t + \sigma \left( \rho_{\rm F} - 2 v \Delta \rho \right) \qquad (A 2. 1. 2 - 1)$ 

低線量側,即ち $C \sim 0$ の時は上式第1項は小さく無視でき $d \Delta \rho / d \phi t \sim \sigma (\sigma_F - 2 v \Delta \rho)$ となる。従ってこのとき $d \Delta \rho / d \phi t$ は $\Delta \rho$ の一次式となる。ところが 照射量が増すにつれてCが大きくなり(A 2.1.2 - 1)式の第1項は無視でき なくなる。ところで $\rho_F$ は,欠陥クラスターの生成によって減少すると考えているの で $d \rho_F / d \phi t < 0$ であり,従って $d \Delta \rho / d \phi t$ は高線量側,即ち $\Delta \rho$ の大きい所で  $\sigma (\rho_F - 2 v \Delta \rho)$ より小さくなり下へ折れ曲る。

#### 2.2 2領域モデル

カスケード効果を考慮した損傷方程式を導くために先ず,高速中性子照射に よって、金属中に生ずるカスケード損傷の構造について少し詳しく考えて見る。 カスケードとは、中性子が金属原子と衝突し、一次ノックオン原子を生ぜしめ た時、この原子がdisplacementのしきいエネルギーEdより十分大きなエネル ギーを持っていれば次々と原子間同志の衝突がくり返され、2次、3次・・・ の変位原子が生成されたものを言う。欠陥生成過程に対するこのカスケード効 果の役割は次の様な2つの面から見ることが出来る。先ず第一に、このような カスケードがおさまったとき、その跡に最終的に形成される欠陥の形態は一般 に単純なI-V pairだけでなく、もっと複雑な欠陥クラスターが形成される可 能性があることである。例えば、1つのカスケードによる損傷エネルギーは、 LSS 理論<sup>(10-12)</sup>を用いて計算すると、原子量20~200の金属では10<sup>4</sup>~10<sup>5</sup> eV であり、これはEd(~20 eV)に比べて約100倍大きい。従ってカスケードが進 行している間に約100個程度の原子が変位する。カスケードの領域は10<sup>-18</sup> cm<sup>2</sup>~ 10<sup>-19</sup> cm<sup>8</sup> であり、その持続時間は10<sup>-13</sup> sec であるから、この短時間の間に変位原 子の密度は10<sup>20</sup>~10<sup>21</sup> cm<sup>8</sup> に達し、これは欠陥濃度で1~10%に相当する。通常、 照射による飽和濃度は 0.1 ~ 0.5%程度であるから,カスケードの持続中の変位 原子の濃度がいかに大きいかがわかる。この為,カスケード内での個々の欠陥 生成過程は,独立なものでなく,互いに強く影響し合いながら進行するものと 思われる。この結果,カスケードが終った跡には様々な格子間原子や空孔のク ラスターが形成されるであろう。<sup>(13)</sup>最近のDiffuse X線散乱の実験では,Allに おいて約3個程度の点欠陥がクラスターを形成していることが明らかになった。 (14)

次に考えなければならないカスケードの役割は、その熱的効果である。例え ば、Aℓにおいて、E<sub>d</sub> = 16 eV<sup>(15)</sup>であり、1つのカスケード内に形成される欠陥の 数は点欠陥の数にして約200程度であるから<sup>(14)</sup>欠陥生成に費やされたエネルギ - εは3×10<sup>3</sup>eVである。所が損傷エネルギーは2×10<sup>4</sup>eV程度であるから、E<sub>D</sub>の内 の大部分は、カスケードの囲りに熱エネルギーとして拡散してしまったものと考えら れる。そこで、例えば損傷領域の近くに新たに1つのカスケードが生じたとき、この カスケードは、その熱効果によって、すでに存在する損傷領域を焼鈍するか、ある いは逆に、損傷の程度をより促進さすか2通りの場合が考えられるであろう。

以上述べた事から,高速中性子照射におけるカスケード損傷のパターンが、局所的に見て、いくつかの異なった欠陥濃度を有する領域(zone)に分類できると考えられる。特に1つのカスケード損傷領域と,損傷領域のかさなり合いによって形成される他の1つの新しい損傷領域の2種類を考えるときこれを2領域モデル(Two-Zone Model)と呼ぶことにし,カスケード損傷領域を1で表し,その囲りに形成されるもう一つの損傷領域を2で表わすことにする。(図2.2-1参照)。

さて、夫々の領域の存在率(体積率)を $\eta_1$ 、 $\eta_2$ とすると、これらは照射時間 と共に増加してゆく。今、全く損傷を受けていない未損傷領域の体積率を $\eta_0$ と し、 $\eta_0(t)$ 、 $\eta_2(t)$ がマルコフ的な時間発展の方程式(Rate equation)

- $\dot{\eta}_0 = -(\sigma_{01} + \sigma_{02}) \eta_0$  (2.2 1)  $\dot{\eta}_1 = \rho_{01} \eta_0 \rho_{12} \eta_1 + \rho_{21} \eta_2$  (2.2 2)
- $\dot{\eta}_{2} = \rho_{02}\eta_{0} + \rho_{12}\eta_{1} \rho_{21}\eta_{2} \qquad (2.2 3)$

に従って変化するものと仮定する。ここに「・」は微分 d/dt を意味する。



図 2.3-1;2領域モデルの概念を表す模式図 ;損傷領域1はカスケード領域に相当し,損傷 領域2はカスケードが損傷領域上に生じたと きにカスケードの囲りに形成される。

又、 $\sigma_{ij}$ は照射損傷によって領域 i が領域 j へ変る確率である。(i, j = 0, 1, 2)。損傷領域 1 又は 2 から未損傷領域 0 が形成されることはないであろうか  $\sigma_{10}$  及び  $\sigma_{20}$  は 0 であり、従って (2.2 - 1)式でこれによる項は消えている。  $\eta_i$ (i = 0, 1, 2)は初期条件

 $\eta_0(0) = 1$ ,  $\eta_1(0) = \eta_2(0) = 0$  (2.2-4) を満たし、又常に保存則

 $\eta_0 + \eta_1 + \eta_2 = 1$  (2.2-5) を満たす。 (2.2-5)は全体積が一定であることから明らかである。

さて,領域2が領域1に作用したカスケードによってのみ形成され,未損傷 領域から直接には生成されないとし,又,カスケード損傷領域1の生成断面積 (確率)は、領域0から作られる場合も領域2から作られる場合も大差がないも のと考える。この描像は、又次の様に表現することが出来る。即ち、先ず未損 傷領域中に1つのカスケードが生じたとする。この時、領域0の中に領域1のみ が形成される。次に照射が進み、この領域1上(又は近傍)に、再びカスケー ドが生じると、領域1がさらに生成されると同時にカスケード効果によって、 すでに存在していた領域1の一部が領域2に変る。次にさらに照射が進みこの 領域2上にカスケードが生じると、強い衝突カスケードによる欠陥の再配列の 為に領域2上に落ちたカスケード部分は領域1に戻る。このときの領域1の生 成断面積(生成確率)は、カスケードが十分強いため領域0上で生成するの ほとんど同じであると考える。そこで簡単の為

 $\sigma_1 = \sigma_{01} \approx \sigma_{21}, \sigma_2 = \sigma_{12}$  (2.2-6) とおく。上記のモデルにおいて $\sigma_{02} = 0$ であるから(2.2-1)~(2.2-3) 式は

$$\dot{\eta}_0 = -\sigma_1 \eta_0$$

$$\dot{\eta}_1 = \sigma_1 \eta_0 - \sigma_2 \eta_1 + \sigma_1 \eta_2$$

$$\dot{\eta}_2 = + \sigma_2 \eta_1 - \sigma_1 \eta_2$$

$$(2.2 - 7)$$

$$(2.2 - 8)$$

$$(2.2 - 9)$$

初期条件(2.2-4)の下で(2.2-7)~(2.2-9)を解くと

$$\eta_{0}(t) = e^{-\sigma_{1}t} \qquad (2.2 - 1 \ 0)$$
  

$$\eta_{1}(t) = (\sigma_{1} / (\sigma_{1} + \sigma_{2})) (1 - e^{-(\sigma_{1} + \sigma_{2})t}) \qquad (2.2 - 1 \ 1)$$
  

$$\eta_{2}(t) = (\sigma_{1} / (\sigma_{1} + \sigma_{2})) e^{-(\sigma_{1} + \sigma_{2})t} - e^{-\sigma_{1}t} + \sigma_{2} / (\sigma_{1} + \sigma_{2}) \qquad (2.2 - 1 \ 2)$$

となる。(付録 2.2 参照) これがカスケード効果を考慮した,損傷過程を記述 する基本式となる。これらは定常状態(*t*→∞),即ち,十分照射が行なわれ た状態で,飽和値

$$\eta_0(\infty) = 0$$
,  $\eta_1(\infty) = \sigma_1 / (\sigma_1 + \sigma_2)$ ,  $\eta_2(\infty) = \sigma_2 / (\sigma_1 + \sigma_2)$   
(2.2 - 1 3)

を持つ。ここで第1式は十分照射が行なわれることによって、未損傷領域0が なくなることを示し、第2、及び第3式は飽和後の領域1、及び2の存在率(体 積率)が、各領域の生成断面積の比で決まることを示している。図2.2-2は





#### 2.3 2領域モデルでの残留抵抗表示

η<sub>0</sub>, η<sub>1</sub>, η<sub>2</sub> が照射時間と共に変化してゆく様子は直接観測することは出来な いが,残留抵抗を観測することによって間接的に知ることが出来る。そこで2 領域モデルで残留抵抗がどのように表わされるかを考える。先ず,カスケード によって生成される欠陥は点欠陥以外に,クラスターも可能であることを考慮 して,残留抵抗 *ρ* を

 $\rho = \sum_{m} (\rho_{m}^{V} C_{m}^{V} + \rho_{m}^{I} C_{m}^{I})$ (2.3-1)
の形で書く。ここにmはクラスターの大きさ(又は数)で,例えばm=3は3個
の点欠陥がクラスターを形成していることを意味する。 $C_{m}^{V}$ はその様なクラスタ
-の内で空孔(Vacancy)型のバルクな濃度を表し, $C_{m}^{I}$ は格子間原子(Interstitial)のクラスター濃度である。 $\rho_{m}^{V}, \rho_{m}^{I}$ は夫々のクラスターの単位濃度
当りの残留抵抗を表す。(2.3-1)の和は可能なすべてのmについて行うが,
この和の中にはm=1,即ち,単一の点欠陥の項も含んでいる。mの上限,即
ち,最大のクラスター数は,例えばAlでは3程度であることが実験から推測さ
れている。<sup>(14)</sup>従ってクラスター数はあまり大きくないものと考えられる。mが
あまり大きくないとき

$$\rho_m^V \approx m \, \rho_1^V, \quad \rho_m^I \approx m \, \rho_1^I$$
(2.3-2)
が近似的に成り立つ。<sup>(9)</sup> ゆえに (2.3-1) は

 $\rho \approx \rho_1^V \sum_m m C_m^V + \rho_1^I \sum_m m C_m^I \qquad (2.3 - 3)$ 

となる。 所で V と I は常に対で生成され,又十分低温では,生成された欠 陥は,熱的な移動を起さず,従って体系の表面へ逃げて行かないから,つねに 保存則

$$\sum_{m} m C_{m}^{V} = \sum_{m} m C_{m}^{I}$$
(2.3-4)  
が成り立つ。これを(2.3-3)へ代入して

$$\rho \approx \rho_F \sum_m m C_m \tag{2.3-5}$$

ここで簡単の為 $C_m^V$ ,又は $C_m^I$ を単に $C_m$ と書き,又

$$\rho_F = \rho_1^V + \rho_1^I \tag{2.3-6}$$

とおいた。 $\rho_F$ は Frenkel対の特性抵抗,即ち単位 Frenkel対濃度当りの残留抵抗である。(2.3-5)式において  $C_m$ は, バルクな欠陥濃度であるがこれに対

して,損傷領域1,2及び未損傷領域0内の局所濃度 $c_{m1}$ , $c_{m2}$ , $c_{m0}$ を導入する。言い換ると,各領域内ではつねに定まった欠陥濃度が存在すると考えていることになる。するとバルクな濃度 $C_m$ は局所的な濃度 $c_{mi}$ (i = 0, 1, 2)を用いて $C_m = c_{m0} \eta_0 + c_{m1} \eta_1 + c_{m2} \eta_2$ (2.3-7)と書けるであろう。(2.3-7)を(2.3-5)へ代入して

$$\rho(t) = \sum_{i=0}^{2} \rho_{i} \quad \eta_{i}(t) \quad (2.3 - 8)$$

となる。ここに

$$\rho_i = \rho_F \sum_m m c_{mi} \qquad (2.3 - 9)$$

と置いた。これは「局所抵抗」,即ち各領域の単位濃度当りの残留抵抗を与える。所で,十分純度の良い試料を照射する場合は,照射前の残留抵抗 $\rho(0) = \rho_0 \eta_0(0) = \rho_0$ は照射によって導入される残留抵抗にくらべると十分小さいと考えられるから  $\rho_0 \approx 0$ として良いであろう。 従って照射による残留抵抗の増加 分  $\Delta \rho(t) = \rho(t) - \rho(0)$ はほぼ  $\rho(t)$ に等しく,

$$\Delta \rho(t) \approx \sum_{i=1}^{2} \rho_i \eta_i(t) \qquad (2.3 - 11)$$

となる。この右辺の  $\eta_i(t)$ に (2.2 - 1 1), (2.2 - 1 2)で与えられた式を 代入すると

$$\Delta \rho(t) = -((\rho_1 - \rho_2)\sigma_1 / (\sigma_1 + \sigma_2)) e^{-(\sigma_1 + \sigma_2)t} - \rho_2 e^{-\sigma_1 t} + (\rho_1 \sigma_1 + \rho_2 \sigma_2) / (\sigma_1 + \sigma_2) (2.3 - 12)$$

これが高速中性子照射下で増大する残留抵抗を記述する基本式である。この式の性質を少し調べて見る。 Damage Rate  $d \Delta \rho / d t \epsilon \Delta \rho$ に対してプロットしたとき, SRV理論では説明できない非線型性が観測されることは〔2.1〕で述べたが, これを(2.3-12)式で考えて見る。これを行なうには $d^2(d \Delta \rho / d t) / d \Delta \rho^2$ を計算すれば良い。何故ならこの符号は曲線の凹凸を与えるからである。

 $d^{2}(d \varDelta \rho / d t) / d \varDelta \rho^{2}$ 

$$= \Delta \varrho' \left( \Delta \varrho''' \Delta \varrho' - \left( \Delta \varrho'' \right)^2 \right) / \left( \Delta \varrho' \right)^4 \qquad (2.3 - 1.4)$$

であるが、この符号は分子で決まるから分子だけを計算する。

$$\Delta \rho' = \sigma_1 e^{-\sigma_1 t} ((\rho_1 - \rho_2) e^{-\sigma_2 t} + \rho_2)$$
  
$$\Delta \rho'' = \sigma_1 e^{-\sigma_1 t} (-(\rho_1 - \rho_2)(\sigma_1 + \sigma_2) e^{-\sigma_2 t} - \rho_2 \sigma_1)$$
  
$$\Delta \rho''' = \sigma_1 e^{-\sigma_1 t} ((\rho_1 - \rho_2)(\sigma_1 + \sigma_2)^2 e^{-\sigma_2 t} + \rho_2 \sigma_1^2)$$

であるから

 $\Delta \rho' \left( \Delta \rho''' \Delta \rho' - (\Delta \rho'')^2 \right)$ 

 $= (\rho_1 - \rho_2)\rho_2 \sigma_1^3 \sigma_2^2 e^{-(3\sigma_1 + \sigma_2)t} [\rho_1 e^{-\sigma_2 t} + \rho_2 (1 - e^{-\sigma_2 t})]$ となる。ここで〔・・・〕の部分は常に正であるから、この式全体の符号は( $\rho_1$ -  $\rho_2$ )の符号だけで決る。

従って、(2.3-13)は

$$\begin{array}{ccc} \rho_{1} > \rho_{2} & t & f & d^{2} (d \, \varDelta \, \rho / d \, t) / d \, \varDelta \, \rho^{2} > 0 \\ \rho_{1} < \rho_{2} & t & f & d^{2} (d \, \varDelta \, \rho / d \, t) / d \, \varDelta \, \rho^{2} < 0 \\ \rho_{1} = \rho_{2} & t & f & d^{2} (d \, \varDelta \, \rho / d \, t) / d \, \varDelta \, \rho^{2} = 0 \end{array} \right\}$$

$$(2.3 - 14)$$

となる。従って Fe, Pt 等の金属の様に d Δρ/dt を Δρ で プロットしたとき その曲線が上に凸になるのは,カスケード効果によって生成される領域 2 の残留 抵抗が領域 1 のそれと比べて大きいことを意味している。言い換えると,1 つの カスケードがすでに存在する損傷領域内に生じたとき,カスケード効果によっ てより高濃度の欠陥を含む損傷領域が形成されるということになる。

Aℓ, Cu, Ag, Au, Ni 等の金属は  $d \Delta \rho / dt$  vs  $\Delta \rho$  が下に凸な曲線である から<sup>(3)</sup> これは  $\rho_1 > \rho_2$  を暗示している。即ちカスケード効果によって領域 1内 の欠陥がいく分 annealされて領域 2 が出来上ることを示す。

さて,残留抵抗  $\Delta \rho$ の基本式 (2.3 - 1 2)は,4つのパラメーター  $\rho_1, \rho_2$ ,  $\sigma_1, \sigma_2$ を含むが、 $\Delta \rho$ の実験データからこれらを決定することが出来る。即ち (2.3 - 1 2)式より

$$\sigma_{1} = -a$$

$$\rho_{1} = \Delta \rho'(0)/(-a)$$

$$\sigma_{2} = (\Delta \rho(\infty)a^{2} + 2\Delta \rho'(0)a - \Delta \rho'(0)b)/(\Delta \rho(\infty)a + \Delta \rho'(0))$$

$$\rho_{2} = -\Delta \rho'(0) (\Delta \rho'(0) + b\Delta \rho(\infty)) / (\Delta \rho(\infty)a^{2} + 2\Delta \rho'(0)a - \Delta \rho'(0)b)$$

$$(2.3 - 15)$$

但し,





 図 2.3 - 1 a; fcc金属の損傷率の Δρ 依存性。 横軸:照射による残留抵抗の増加 Δρ 縦軸:損傷率 d Δρ/døt 上図がTwo-Zone model による計算値。 下図が中川等<sup>(3)</sup>の実験データ

-30-



 図 2.3 - 1 b; bcc 金属の損傷率の Δθ 依存性 横軸:照射による残留抵抗の増加 Δθ 縦軸:損傷率 d Δθ / d Ø t 上図が Two-Zone model による計算値。 下図が中川等<sup>(3)</sup>の実験データ。  $a = (d \Delta \rho / d \Delta \rho)_{t=\infty}, b = (d \Delta \rho / d \Delta \rho)_{t=0}$ (2.3 - 16) である。(2.3 - 15)の右辺はすべて実験データから求まる量である ので,これから  $\sigma_1, \rho_1, \sigma_2, \rho_2$ が一義的に決まる。図2.3 - 1 aの上図は、中川 等<sup>(3)</sup>のfcc金属の実験データを用いてこの4つのパラメターを決め、これから (2.3 - 12)式の 4 を計算し、それを d \Delta \rho / d ø t VS  $\Delta \rho$  で描いたもので、下 図は中川等のデータである。図2.3 - 1 bは bccの場合を示す。 d  $\Delta \rho / d \phi t$ の 非線型性のパターンが良く再現されていることがわかる。なお表 2.3 - 1 に  $\sigma_1$ 、  $\rho_1, \sigma_2, \rho_2$ の値をまとめてある。

| Metal | ρ <sub>1</sub> (μΩcm) | ρ <sub>2</sub> (μΩcm) | $\sigma_1^{(10-19 cm^2)}$ | $\sigma_2(10^{-19} \text{cm}^2)$ |
|-------|-----------------------|-----------------------|---------------------------|----------------------------------|
| A1    | 1.110                 | 0.667                 | 2.63                      | 1.58                             |
| Cu    | 0.600                 | 0.415                 | 1.50                      | 9.75                             |
| Ag    | 0.567                 | 0.398                 | 1.41                      | 5.98                             |
| Ni    | 1.687                 | 1.397                 | 1.63                      | 1.65                             |
| Pt    | 1.314                 | 4.032                 | 1.40                      | 0.305                            |
| Fe    | 5.00                  | 6.250                 | 1.50                      | 6.00                             |
| Au    | 1.50                  | 0.919                 | 0.50                      | 3.10                             |
| Мо    | 12.5                  | 5.18                  | 0.80                      | 68.6                             |
| Та    | 4.85                  | 4.43                  | 0.67                      | 15.4                             |
| Pd    | 1.75                  | 1.40                  | 1.60                      | 24.4                             |
| Sn    | 0.625                 | 0.558                 | 2.40                      | 70.7                             |
| W     | 8.63                  | 7.09                  | 0.55                      | 66.6                             |
| Zr    | 23.4                  | 19.9                  | 1.00                      | 47.2                             |
|       |                       |                       |                           |                                  |

表 2.3-1 実験データから決めた  $\rho_1$ ,  $\rho_2$ ,  $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$ の値 (式 (2.3-15)参照)

#### 2.4 局所焼鈍率 r

ℓ1 > ℓ2 なる金属では領域2が、カスケードの熱効果によって領域1を焼鈍 (Anneal)することによって形成されると考えられる。この時の焼鈍作用が弱いも のであればこれは領域1内の隣近するFrenkel対のみに働きこのとき空孔の近 くの格子間原子が熱的に励起されて動き、空孔と再結合して消滅する。そして
これ以外のクラスター欠陥は何の影響も受けないであろう。これをWeak Annealing Model と呼ぶことにする。これは (2.3 - 7) 式の  $c_{mi}$  を用いて言えば  $c_{11} > c_{12}$ ,  $c_{m1} = c_{m2}$   $(m \ge 2)$  (2.4 - 1)である。第2式は、領域1と領域2の間でクラスター濃度が変化しないことを示す。いまこのようなWeak Annealingを仮定する。すると、局所的な焼鈍率を

$$r = (c_{11} - c_{12}) / c_{11}$$
(2.4 - 2)

で定義することが出来る。一方,点欠陥の残留抵抗 △ρ に対する寄与の内で単 一の点欠陥からの寄与の割合をβとすると(2.3-9)及び(2.3-11)より

$$\beta = \Delta \rho \quad (m = 1) \not \Delta \rho$$

$$= \rho_F \sum_{i=1}^{2} c_{1i} \quad \eta_i \not \rho_F \quad \sum_{i=1}^{2} \sum_{m} m c_{mi} \quad \eta_i \qquad (2.4 - 3)$$

これは照射時間と共に変ってゆくが,特に t が小さい時,即ち十分低線量の照射に対しては図 2.2 – 2 から判る様に  $\eta_1 \gg \eta_2 \approx 0$  であるからこの時の  $\beta \in \beta_0$ とすると

$$\beta_{0} = \theta_{F} c_{11} \eta_{1} / \theta_{F} \frac{\Sigma}{m} m c_{m1} \eta_{1}$$
  
=  $c_{11} / \frac{\Sigma}{m} m c_{m1}$  (2.4 - 4)

(2.3-9), (2.4-1), (2.4-2),及び(2.4-4)より次の関係 式が得られる。

 $c_{11} = (\rho_1 / \rho_F) \beta_0 \qquad (2.4 - 5)$ 

$$c_{12} = (1 - \gamma) c_{11} \qquad (2.4 - 6)$$

$$\sum_{m \ge 2} m c_{m1} = \sum_{m \ge 2} m c_{m2} = (\rho_1 / \rho_F) (1 - \beta_0)$$
 (2.4 - 7)

$$r = (1 - \rho_2 / \rho_1) / \beta_0 \qquad (2.4 - 8)$$

所で $\beta$ は、 $\Delta \rho$ の、全欠陥からの寄与の内で隣接するFrenkel pair からの寄与 の割合を表わすが、これは照射試料を等時焼鈍(isochronal annealing)を 行った時に得られる第 I 段階(stage)の回復率にほぼ等しいものと考えられる。 何故なら第 I 段階での回復は主に隣接する Frenkel対の再結合によるものと考 えられているからである。<sup>(3)</sup> 従って低線量照射した試料の等時焼鈍による回復 曲線から  $\beta_0$ を決めることができる。すると(2.4-8)において、 $\rho_2, \rho_1$ は表 2.

-33-

3-1ですでに与えられているからrが決まる。又(2.4-5)~(2.4-7) もすべて求まる。表 2.4-1に Burger 等<sup>(18)</sup>の低線量照射データの回復率を $\beta_0$ として(2.4-5)~(2.4-8)を計算した結果を示す。ここに求められた rは、カスケード効果を定量的に取扱う量として重要である。

|                                     | Al     | Ni     | Cu     | Ag     |
|-------------------------------------|--------|--------|--------|--------|
| β <sub>0</sub> (%)                  | 45     | 37     | 34     | 28     |
| c <sub>11</sub> (at.%)              | 0.13   | 0.10   | 0.93   | 0.06   |
| c <sub>12</sub> (at.%)              | 0.0169 | 0.0540 | 0.0884 | 0.0006 |
| $\sum_{m\geq 2}^{m\cdot c} (at.\%)$ | 0.15   | 0.17   | 0.18   | 0.16   |
| ∑m·c <sub>m2</sub> (at.%)<br>m≥2    | 0.15   | 0.17   | 0.18   | 0.16   |
| γ                                   | 0.87   | 0.46   | 0.90   | 0.99   |

表 2.4-1 式 (2.4-5) ~式 (2.4-8)の計算例

## 2.5 rの微視的モデル

前節で実験データから求められたrを微視的な見地から見直してみる。Weak Annealing Modelでは、カスケードの囲りに励起される格子振動が、隣接する Frenkel対を焼鈍するものと考えられる。言い換えると、カスケードの囲りに 励起されたフォノンが欠陥と衝突することによって焼鈍が起るということにな る。このようなフォノンの平均エネルギーは

$$\hbar\omega \sim k T_1 \qquad (2.5-1)$$

であることが必要であろう。ここに $T_1$ は等時焼鈍による回復段階における第 I 段階のピーク温度で 30~50K程度である。所で、カスケードで励起されたフォノ

ンは電子-フォノン相互作用の為に,有限の寿命を持つ。例えば,電子-フォノンの相互作用時間(衝突時間)は10<sup>-14</sup> secの程度<sup>(16)</sup>であるが,フォノンー欠陥,あるいはフォノン-フォノンの衝突時間は10<sup>-13</sup> sec程度であるから励起されたフォノンのかなりのものが,欠陥と衝突する前に伝導電子によって吸収されてしまう。

今, このフォノンの寿命を で, その密度を n とする。 すると n は

$$d n_{P}^{*} / d t = - n_{P}^{*} / \tau_{P}^{*}$$
 (2.5 - 2)

に従って減少してゆくであろう。従ってこれを解いて

 $n_{p}^{*}(t) = n_{p}^{*}(0) \ e^{-t/\tau_{p}^{*}} \tag{2.5 - 3}$ 

ゆえに励起されたフォノンの生存率は  $exp - t/\tau_P^*$ である。そこでいまフォノン が単位時間に隣接する Frenkel 対を焼鈍する確率をPとすると焼鈍速度rは P  $exp - t/\tau_P^*$ に比例 するであろう。従って

$$\tau \propto \int_{-0}^{\Delta t} P \exp(-t/\tau_P^*) dt \qquad (2.5-4)$$

ここに Δt は,この様な焼鈍が有効に行なわれ得る時間で、フォノンの拡散時間
 程度を取れば良い。従って Δt ~ 10<sup>-11</sup> sec である。<sup>(17)</sup> Pを一定と仮定し
 (2.5 - 4)の積分を実行 すると

 $r \propto P \tau_P^* (1 - \exp - 4t/\tau_P^*)$  (2.5-5) この式は  $\tau_P^*$ が大きくなるにつれて r が大きくなることを示している。特に  $\tau_P^*$ →∞のとき, r は最大の値に達するであろうからこのときの r を rmaxとおくと (2.5-5) は 次の様に書ける。

 $r = r_{max} (1 - exp - \Delta t / \tau_P^*) / (\Delta t / \tau_P^*)$ (2.5-6) 所で,カスケードが十分強ければ r max は1 に近い値を取るであろう。そこで、ここでは この様な場合を考えることにし r max ~ 1 と仮定する。従って (2.5-6) は r ~ (1 - exp - \Delta t / \tau\_P^\*) / (\Delta t / \tau\_P^\*) (2.5-7)

となる。次に励起フォノンの寿命、 τ\* を考える。いま電子-フォノンの相互作 用断面積を σep とすると次の関係式が成り立つ。

$$1 / \tau_P^* = n_e^F \sigma_{ep} v_F \tag{2.5-8}$$

ここに、 $n_e^F$ はフェルミ面近くの電子の密度で、 $v_F$ はフェルミエネルギーである。

一方,温度Tにおける電子のフォノンとの衝突時間を $\tau_e(T)$ ,温度Tの熱平衡状態におけるフォノン密度を $n_b(T)$ とすると

$$1/\tau_{e}(T) = n_{p}(T) \sigma_{ep} v_{F} \qquad (2.5 - 9)$$

であるから、(2.5-8)、(2.5-9)より

$$1/\tau_P^* = (n_e^F / n_b(T)) / \tau_e(T)$$
 (2.5 - 1 0)

ここで  $\tau_e(T)$  は, 温度 Tでの電気伝導度  $\sigma(T)$  を用いて書くことが出来る。即ち  $\tau_e(T) = (m_e / n_e e^2) \sigma(T)$  (2.5 - 1 1)

ここにm<sub>e</sub>は電子の質量, n<sub>e</sub>は全伝導電子の密度, e は電子電荷である。(2.5
−11)を(2.5 − 10)へ代入して

$$1/\tau_{P}^{*} = (n_{e}^{F} n_{e} e^{2}/m_{e} n_{p}(T)) / \sigma(T)$$
(2.5 - 1 2)

ここで  $\sigma(T)$ は,又,Wiedemann-Franzの法則<sup>(19)</sup>

 $K(T) \neq \sigma(T) = (\pi^2 k^2 / 3 e^2) T \qquad (2.5 - 1 3)$ 

より,熱伝導度K(T)を用いて書くことも出来る。即ち

 $1/\tau_{p}^{*} = (\pi^{2}/3)(k^{2}n_{e}^{F}n_{e}T/mn_{p}(T)K(T)) \qquad (2.5-14)$ ここで Tとして室温の値を取る。すると n<sub>p</sub>(T)は近似的に

 $n_p(T) \sim (9 / 2) N_a T / T_D$  (2.5 - 1.5)

となる。ここに $N_a$ は原子数密度,  $T_D$ はDebye温度である。〔付録 2.5 - 1〕 一方,  $n_e^F$ は励起フォノンを吸収できるフェルミ面近くの電子密度であるから

 $n_e^F \sim n_e \ k \ T_1 \ / \ E_F$  (2.5 - 1 6)

の程度と考えられる。ここに $E_F$ はフェルミエネルギーである。(2.5-15) 及び(2.5-16)を(2.5-14)へ代入して、最終的に次式を得る。

 $1/\tau_P^* \approx (2\pi^2/27)(k^3 z^2 N_a T_1 T_D / m_e E_F K(T))$  (2.5 - 17) ここに z は原子 1 個当りの伝導電子の数である。これを (2.5 - 7)の r へ代入して

 $r \approx \{ 1 - e^{xp} (-K^*/K) \} / (K^*/K)$  (2.5-18) を得る。但し、

 $K^* = (2\pi^2/27)(K^3z^2N_aT_1T_DAt/m_eF_F)$  (2.5-19) と置いた。これは熱伝導度の次元を有する物質固有の定数である。 (2.5-18) で与えられるrはKの増加関数であってK》 $K^*$ ならばrは1に近い。 このこと は、熱伝導度の大きい、従って室温で伝導度の良い金属程、カスケードの焼鈍 効果が大きいことである。さらに重要なことはrがK/K\*の (又はK\*/Kの)普 遍関数であることである。従って、〔2.4〕節で実験データから決められたrを K/K\*でプロットすれば1つの関数上に分布するであろう。図2.5-1はこれ を描いたもので「▲」印は〔2.4〕節で実験データから求めたものであり、実線 は、理論式 (2.5-18)である。両者の良い一致は、Two-Zone Model、及 びWeak Annealing Modelの正当性を与えているものと思われる。なお、表 2. 5-1にK\*の値及びそれを計算するために用いた物性値をまとめてある。



 図 2.5-1;局所焼鈍率 r と熱伝導度 K の関係 横軸:熱伝導 K を K\*で規格化したもの 縦軸:局所焼鈍率 r
 図中の「▲」印は表 2.4-1の r,実線は 理論式(2.5-18)を表す。(K\*の値は 表 2.5-1参照)

|                           | Al                 | Ni                 | Cu                 | Ag                 |
|---------------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|
| z                         | 3                  | 2                  | 1                  | 1                  |
| $N_{a}(10^{22}/cm^{3})$   | 6.02               | 9.19               | 8.45               | 5.85               |
| (注)<br>T <sub>1</sub> (K) | 35                 | 55                 | 38                 | 28                 |
| т <sub>р</sub> (к)        | 428                | 450                | 343                | 225                |
| E <sub>F</sub> (eV)       | 11.7               | 11.8               | 7.0                | 5.5                |
| ∆t(sec)                   | ≃10 <sup>-11</sup> | ≃10 <sup>−11</sup> | ≃10 <sup>-11</sup> | ≃10 <sup>-11</sup> |
| K(W/cmK)                  | 2.45               | 0.91               | 4.05               | 4.22               |
| K*(W/cmK)                 | 0.914              | 1.016              | 0.207              | 0.0883             |

表 2.5 -1 r の計算に用いた物性値

(注) 参考文献(3)

### 2.6 負の曲率

(2.4)節及び(2.5)節で展開された議論は、 d Δ θ / d t vs Δ θ が下に凸な、 即ち正の曲率を有する金属を対象とするものであった。従ってそこで導入され たモデルで、Fe や Pt等の負の曲率を有する金属に対して同一の議論をすること は出来ない。しかし、そこで得られた結果から、負の曲率の本質について、あ る程度の事は推測できる。

〔2.5〕節で得られた最も重要な議論の1つは、熱伝導度の小さい金属程,

カスケードの熱効果による局所的な損傷領域の焼鈍率 (anneal ing percen – tage)が小さいということである。所が表 2.6 – 1 に示した様に  $F_{e_1}$  Ptの熱伝 導度は, A  $\ell$ , Cu 等に比べて非常に小さい。このことは、これらの金属において、

たとえ焼鈍作用があったとしても それは小さく,  $\rho_2 \epsilon_{\rho_1} L \delta \beta_1$ することが出来ないことが起って いるものと思われる。しかしこれ だけでは  $\rho_2 > \rho_1$ , 即ち負の曲率 が表われる十分な説明にはならな い。実際表 2.6 - 1 に見れる様に Sn, Pdでも熱伝導度が同じ程度に 小さいが, 負の曲率は観測されて いない。このことは  $\rho_2 > \rho_1$  をも たらす他の要素が存在することを 暗示している。

| Metal | K(W/cmK) |
|-------|----------|
| Al    | 2.45     |
| Ni    | 0.91     |
| Cu    | 4.05     |
| Ag    | 4.22     |
| Fe    | 0.76     |
| Pt    | 0.69     |
| Pd    | 0.67     |
| Sn    | 0.64     |
|       |          |

表 2.6-1 各金属の熱伝導度

### 2.7 中性子エネルギースペクトル効果

前節〔2.2〕~〔2.6〕において,一般の純金属の高速中性子照射による残 留抵抗増加機構について述べたが,核融合炉用超電導体に被覆される安定化用 金属は主に銅,又はアルミニウムである。そこで,この節では,銅,アルミニウ ムに限って,核融合炉中性子照射効果をもう少し詳しく論ずることにする。こ のために,〔2.3〕節で得られた残留抵抗の式(2.3-12)に対し以下の近 似を行う。

一般に損傷率  $e' \equiv d \Delta \rho / d \phi$  (但し,  $\phi = \phi_t$ ) は  $\Delta \rho$  の非線型な関数であるが 非線型性の弱い銅やアルミでは,  $\Delta \rho'(0) \ge \Delta \rho(\infty)$ から決まる  $\Delta \rho(\phi)$ の一次式  $\Delta \rho'(0) - (\Delta \rho'(0) / \Delta \rho'(\infty)) \Delta \rho(\phi)$ は,  $\Delta \rho'(\phi)$ に近い値を取る。そこで

 $d \Delta \rho / d D \approx \Delta \rho'(0) - (\Delta \rho'(0) / \Delta \rho(\infty)) \Delta \rho$  (2.7-1) としても、この形は初期損傷率  $\Delta \rho'(0)$ と飽和値  $\Delta \rho(\infty)$ を正しく与えるから  $d \Delta \rho$ / d D vs  $\Delta \rho$  の大極的な挙動を考える場合は十分良い近似と言える。このと

-39-

き, (2.7-1)式を *d* 𝒫(𝒫)について解いて

Δ

 $\Delta \rho(\phi) \approx \Delta \rho(\infty) \{ 1 - exp - (\Delta \rho'(0) \phi / \Delta \rho(\infty)) \}$ (2.7-2) が得られる。ここで、2領域モデルによれば

$$\rho'(0) / \Delta \rho(\infty) = (\sigma_1 + \sigma_2) \rho_1 \sigma_1 / (\rho_1 \sigma_1 + \rho_2 \sigma_2) \qquad (2.7 - 3)$$

$$\Delta \rho(\infty) = (\rho_1 \sigma_1 + \rho_2 \sigma_2) / (\sigma_1 + \sigma_2) \qquad (2.7 - 4)$$

として与えられるから、 $\sigma_1, \sigma_2, \rho_1, \rho_2$ が決まっておれば、(2.7 - 3),(2.7 -4)から $\Delta \rho'(0)/\Delta \rho(\infty), \Delta \rho(\infty)$ が定まり,これから(2.7 - 2)の $\Delta \rho(0)$ が0の 関数として完全に決まる。所で、 $\sigma_1, \sigma_2$ は単位中性子線量当りの各損傷領域の形 成断面積であるから中性子照射のエネルギースペクトルに依存するであろう。 そこでエネルギーEの中性子が格子原子と衝突したとき、夫々の領域を形成す る断面積を $a_1(E), a_2(E)$ とすると $\sigma_1, \sigma_2$ はこれらを用いて次の様に与えられる。

$$\sigma_{1} = \int a_{1}(E) \Sigma(E) \phi(E) dE \nearrow \int \phi(E) dE$$

$$\sigma_{2} = \int a_{2}(E) \Sigma(E) \phi(E) dE \checkmark \int \phi(E) dE$$

$$(2.7 - 5)$$

ここに S(E)は中性子の衝突断面積、  $\phi(E)$ はエネルギー Eの中性子線量である。  $a_1(E), a_2(E)$ は、損傷エネルギーD(E)が増えるにつれて大きくなると考えられる。そこで最も簡単な場合として $a_1, a_2$ がD(E)に比例すると仮定し、

但し,

$$< D(E) \Sigma(E) > = \int D(E) \Sigma(E) \phi(E) dE / \int \phi(E) dE$$
(2.7 - 8)  

$$\geq \vdots v : z, s = \delta \geq (2, 7 - 3), (2, 7 - 4) it$$

$$\Delta \rho'(0) / \Delta \rho(\infty) = \{ (\kappa_1 + \kappa_2) \rho_1 \kappa_1 / (\rho_1 \kappa_1 + \rho_2 \kappa_2) \} < D(E) \Sigma(E) > (2.7 - 9)$$

$$\Delta \rho(\infty) = (\rho_1 \kappa_1 + \rho_2 \kappa_2) / (\kappa_1 + \kappa_2)$$
 (2.7 - 1 0)

となる。 $\langle D(E) \Sigma(E) \rangle$ は中性子エネルギースペクトルによる平均であるから(2. 7-9)式は、直接中性子エネルギースペクトルに依存する。(2.7-10) 式中の $\rho_1, \rho_2$ は、2領域モデルにおける夫々の領域の単位体積当りの残留抵抗で あり、各領域内の欠陥の濃度や種類で決まる。2領域モデルとは、照射によっ て形成されるカスケードは一次ノックオン原子のエネルギー分布に従って、大 小様々なものが存在し得るが、それらが形成する損傷領域内の欠陥構造は大差 がなく、どのカスケードも高々2種類の損傷領域を形成するという考え方であった。 (〔2.2〕~〔2.5〕節で得られたいくつかの実験事実と理論の一致はこのモ デルの妥当性を支持している。)従って $\rho_1, \rho_2$ は1次ノックオン原子のエネル ギー分布にあまり左右されないであろう。このことから $\rho_1, \rho_2$ の中性子エネルギ ースペクトル依存性は弱いものと考えられる。(異なるタイプの照射、例えば、 <sup>235</sup>U核分裂破片<sup>(5)</sup>、12 MeV 重陽子<sup>(21)</sup>等の照射でも  $\Delta \rho(\infty)$ が4~5×10<sup>-7</sup> Qcm であり原子炉高速中性子照射の  $\Delta \rho(\infty) = 4.4 \times 10^{-7}$  Qcm <sup>(3)</sup>と大差がない。)そこ で $\rho_1, \rho_2$ は中性子エネルギースペクトルに依存しないと仮定する。

(2.7-9)を(2.7-2)へ代入して

 $\Delta \rho(\emptyset) \approx \Delta \rho(\infty) (1 - e x p - \kappa \langle D(E) \Sigma(E) \rangle \emptyset)$  (2.7 - 1 1)  $\zeta \zeta \downarrow \zeta$ 

 $\kappa = (\kappa_1 + \kappa_2) \rho_1 \kappa_1 / (\rho_1 \kappa_1 + \rho_2 \kappa_2)$ (2.7-12) とおいた。表 2.7-1は〔2.3〕節で得られた $\sigma_1, \sigma_2, \rho_1, \rho_2$ の値を用いて  $\kappa$ を 銅, アルミニウムの場合について計算した結果をまとめたものである。 なお照射前の抵抗値を  $\rho_0$ とすると, 全抵抗  $\rho$  は,

 $\rho = \rho_0 + \Delta \rho(\infty) (1 - exp - \kappa < D(E)\Sigma(E) > \emptyset)$  (2.7 - 13) となる。ただし、この場合、  $\Delta \rho(\infty)$ は (2.7 - 10) のかわりに

 $\Delta \rho(\infty) = \{ (\rho_1 - \rho_0) \kappa_1 + (\rho_2 - \rho_0) \} / (\kappa_1 + \kappa_2)$ 

を使う。核融合炉では、高磁場下( $\geq 8$  T)で使用されるので $\rho_0$ として照射前の残留抵抗以外に、磁気抵抗 $\rho_m$ も含める必要がある。(銅の場合、 $\rho_m(8T) \simeq 5 \times 10^{-8} Q cm$ )(2.7 – 13)式は、中性子エネルギースペクトルが $\phi(E)$ が与えられると、 $\rho \in \Phi$ の関数として与える。但し、 $\Phi$ は全線量

$$\emptyset = \int_{0}^{14} \int_{0}^{14} \Phi(E) dE \qquad (2.7 - 14)$$

である。以下にいくつかの計算例を示す。

先ず図 2.7 - 1 は< D(E) ∑(E) >を計算する為に用いたモデルスペクトルで全線 量 Øで規格化してある。即ち

-41 -

|                                     | Cu                    | Al                    |
|-------------------------------------|-----------------------|-----------------------|
| (注)<br><d(e)σ(e)> KeV/cm</d(e)σ(e)> | 4.5                   | 4.6                   |
| $\sigma_1 cm^2$                     | $1.5 \times 10^{-19}$ | 2.6 x $10^{-19}$      |
| $\sigma_2 \text{ cm}^2$             | $9.8 \times 10^{-19}$ | $1.6 \times 10^{-19}$ |
| <₁ cm <sup>3</sup> /KeV             | $3.3 \times 10^{-20}$ | 5.7 x $10^{-20}$      |
| κ <sub>2</sub> cm <sup>3</sup> /KeV | $2.2 \times 10^{-19}$ | $3.5 \times 10^{-20}$ |
| $\rho_1 \Omega cm$                  | $6.0 \times 10^{-7}$  | $1.1 \times 10^{-6}$  |
| $\rho_2 \Omega^{\rm Cm}$            | $4.2 \times 10^{-7}$  | $6.8 \times 10^{-7}$  |
| к cm <sup>3</sup> /KeV              | 4.6 x $10^{-20}$      | $6.7 \times 10^{-20}$ |

表 2.7-1 銅及びアルミニウムの損傷パラメター

(注) 核分裂炉中性子照射スペクトル(α=0%) での値

 $P(E) = \phi(E) \neq \emptyset$  (2.7 - 15)

. .

であって夫々の曲線は 10~14 MeVの核融合炉中性子の割合

$$\alpha = \int_{10}^{14} \frac{M_e V}{MeV} (E) \, dE \qquad (2.7 - 1 \ 6)$$

が異なっている。特に $\alpha = 0$ は原子炉照射スペクトルの一例であり、 $\alpha = 20$ , 60,100%は、これを元にして修正した。図 2.7 - 2は、これらの中性子エネ ルギースペクトルに対して $\rho_0 = 5 \times 10^{-8} \, \varrho$  cmの銅の $\rho(\varrho)$ を描いたものであり、  $\alpha$ の増加に伴って $\rho$ の飽和が加速されることを示している。



図 2.7-1; (2.7-8) 式を計算するために用いたモデル中性 子スペクトル。

> 横軸:中性子エネルギー(MeV) 縦軸:規格化された中性子エネルギースペクトル。 $\alpha$ は全エネルギー中性子束の中で 10 ~ 14 MeV中性子 の割合。 $\alpha = 0$ は核分裂炉中性子照射スペクトルに 相当する。

> > -43-



 $\square$  (neutrons/cm<sup>2</sup>)

図 2.7-2;銅の核融合炉中性子照射による残留抵抗の増加 横軸:全エネルギー中性子照射線量 縦軸:残留抵抗值 照射前の残留抵抗 ( $\rho_0 = \rho(0)$ ) は 5 × 10<sup>-8</sup>(*Qcm*) αは核融合中性子の割合を表す。(式(2.7-16) を参照)

2.8 者 察

- 2領域モデルについて-

〔2.2〕節で導入した2領域モデルでは、高速中性子照射によって形成され る損傷領域を、異なる欠陥濃度から成る2つの領域に分けて考えた。厳密に言 えば、一般にカスケードは、金属中にランダムに形成され、それによって形成 される損傷領域の微視的構造は統計的に分布しているであろう。しかし、通常 の. ある有限の精度内で行なわれる電気抵抗の測定において得られる結果には、 個々のカスケード詳細を反映しているのではなく、多数のカスケードの平均的 な挙動の射影を観測しているものと思われる。例えば、 δ e および ν を, 夫々測定系

-44 -

の  $\rho$ の観測における粗さ,および単一のカスケードによって作られる欠陥の数 とする。この系で  $\Delta \rho$ の変化が観測される為には,発生するカスケードの数の変 化は少なくとも  $\delta \rho / \rho_{F} \nu$ でなければならず,この数は, $\delta \rho \sim 10^{-10}$  gcm, $\rho_{F} = 10^{-5} \sim 10^{-6}$  gcm/at.%,  $\nu \sim 10^{2}$ の場合およそ  $10^{14} \sim 10^{15}$  cascades/cm<sup>3</sup>のオー ダーになる。従って観測された  $\Delta \rho$ の変化には,巨視的な数の カスケードの効果 が関与している。この結果,個々のカスケードの詳細は  $\Delta \rho$ の測定においては失 われるものと考えられる。ゆえに  $\Delta \rho$ の観測結果を説明する理論を作り上げるには, 現象に対する何らかの粗視化が必要である。著者等はこの様な粗視化の1つと して,損傷領域が,単独のカスケードによって形成されるものと、カスケード 損傷のかさなり合いによって形成されるものとを区別することを考えた。 --  $\sigma_{1}, \sigma_{2}$  について ---

〔2.3〕節で導入した  $\sigma_1$ は、中性子が単位体積率の領域 1 を形成する断面積 という物理的意味を持つ。ところでこの領域は、単一カスケードによって生成される 領域に相当するものであるから、幾何学的な形成断面積  $\Omega\Sigma$ にほぼ等しいものと 考えられる。ここに  $\Omega$ 、  $\Sigma$ は夫々、カスケード体積および中性子の格子原子と の衝突の巨視的断面積である。一般の金属では  $\Sigma = 0.2 \sim 0.4$  cm<sup>-1</sup>であり、又  $\Omega \sim 10^{-19}$  cm<sup>3</sup> (1,14)</sup>の程度であるので、 $\Omega\Sigma = 10^{-19} \sim 10^{-20}$  cm<sup>2</sup>となり表 2.3 - 1 の $\sigma_1$ と全く矛盾しない。個々の金属のおおよその値は、例えば熱スパイクモデ ルで与えることができる。このモデルでは

 $\mathcal{Q} \sim (4 \pi / 9) (3 / 2 \pi e)^{3/2} (E_D / N_a k T_m)$ 

である。図 2.8 - 1 は〔2.3〕節で得られた ₁ と 🛿 2を比較したものを表す。₁ は 🖉 より約 2 倍程度大きいが,オ – ダ的には全く等しく,又両者はほぼ比例し ている。

一方,第2のパラメータ $q_2$ の方は $q_1$ の様な簡単な幾何学的描像を与えること はできない。又,表2.3 – 1に見れる $q_2$ の値は各金属の間で  $10^{-19} \sim 10^{-18} cm^2$ のばらつきがある。ただし、ここで少し注意しておく必要があることは、bcc金属の  $q_2$ の値にはかなりの誤差が含まれるということである。何故かと言えば、 $q_2$ を与 える(2.3 – 15)式の計算において使われた $4\rho(\infty)$ 、 $d4\rho'(\infty)/d4\rho$ の実験デ ータが十分飽和した領域の値でないからである。しかし乍ら一般に $q_2$ は $q_1$ よ

-45-



 図 2.8 -1;様々な金属の a1 と a2 の相関を表す図 横軸:カスケード領域生成断面積 縦軸:損傷領域1の生成断面積 aは熱スパイクモデルで計算したカスケード体積, ンは中性子の衝突断面積。

り1~2桁大きい傾向がある。これは次の様に解釈できる。 即ち,

 $\omega = \sigma_2 / \Sigma$ 

で定義される ωを考えると、これは単一カスケードによって形成される領域2の 有効体積を与えるものと考えられるが、この ωは ωに比べてかなり大きい。こ れはカスケードのかさなり効果のために領域2の形成が領域1の形成よりもず っと効率的であることから生ずるものと思われる。 ---局所焼鈍率rについて ---

〔2.4〕節で得られたNiの局所焼鈍率rは,CuやAlのそれと比べて小さい。 これは〔2.5〕節の微視的立場に立った考察から熱(又は電気)伝導度の小さ さから生じていると理解される。ところでPd,Sn等の金属もNiと同程度の熱伝 導度を持つが,これらの金属のrが本章で述べたモデルに従うかどうかは興味 あることであるが,この解析に必要な焼戻し実験データ等の不足からrを決定 することが出来なかった。

― 負の曲率について ―

Fe, Pt等の,  $d \Delta \rho / dt$  vs  $\Delta \rho$ の曲線が上に凸になる金属においては, 局所 抵抗パラメターが  $\rho_2 > \rho_1$ を満たすという結果を得たが, この物理的な背景に ついてはなお十分な解析が必要である。

---中性子エネルギースペクトル効果について ---

(2.7)節の中性子スペクトルの議論においてなされた最も重要な仮定はP1, P2が中性子スペクトルには無関係であるということである。この仮定は言い換 るとカスケードによる局所的な領域の損傷パターンが中性子エネルギーにはあ まり依存せず一定のものであるという描像を意味する。別な言い方をすれば、中 性子エネルギーによって、カスケードの平均サイズは変るが、その内部の欠陥 の分布状態はあまり変らないということである。この仮定の下では残留抵抗増 加の飽和値は中性子スペクトルに依存しない。この仮定が正しいかどうかを実 験的に調べるには例えば極端な場合として14 MeV 中性子照射実験を行えば良 い。現在Guinan 等がRTNS – II を使ってこの実験を行っており、この実験結 果と本理論との比較が間もなく可能になるものと思われる。

#### 2.9 結 言

2領域モデルを用いて、高速中性子照射による残留抵抗の増加過程を理論的 に調べ、いくつかの新しい知見を得た。結果をまとめると次の様になる。

(1) 残留抵抗増加過程は、2領域の生成断面積 *a*<sub>1</sub>, *a*<sub>2</sub> 及び、夫々の領域の局 所抵抗 *a*<sub>1</sub>, *a*<sub>2</sub> の4 つのパラメターを含む式で記述することが出来る。

- (2)  $\rho_1 > \rho_2$  なる金属は、カスケードによる局所焼鈍効果が存在する。
- (3) 負の曲率を示す金属は局所抵抗 *θ*<sub>1</sub>, *θ*<sub>2</sub> が *θ*<sub>1</sub> < *θ*<sub>2</sub>なる条件を満たす。
- (4) Δ0の飽和速度は 10~14 MeVの核融合中性子の割合の増加に伴って速くなり、最も極端な場合としてα=0%とα=100%を比べると約3~4倍加速される。

# 〔付録 2.5 -1〕

Debyeモデルでは温度Tにおけるフォノン数 $n_b(T)$ は<sup>(20)</sup>

$$n_{p}(T) = \sum_{i=1}^{3} \sum_{q} \frac{1}{e^{\pi w_{i}(q)/kT} - 1}$$

$$= \frac{V}{(2\pi)^{3}} \sum_{i=1}^{3} \int \frac{dq}{exp(\pi w_{i}(q)/kT) - 1}$$

$$= \frac{3V}{2\pi^{2}} \int_{0}^{q} \frac{q^{2} dq}{exp(\pi sq/kT) - 1} \qquad (A \ 2.5 - 1)$$

ここにVは体系の体積, sは音速,  $q_D$ は $q_D = (6\pi^2 N_a) \frac{1}{3}$ で与えられ, Debye 温度 $T_D$ と $\hbar sq_D = kT_D$ の関係にある。

 $x = \hbar sq / kT$ と置くと(A 2.5 - 1)式は

$$n_{p}(T) = \frac{3V}{2\pi^{2}} \left(\frac{kT}{\hbar s}\right)^{3} \int_{0}^{T} \frac{T_{D}}{T} \frac{x^{2} dx}{e^{x} - 1}$$
$$= 9N_{a}(T/T_{D})^{3} \int_{0}^{T} \frac{T_{D}}{T} \frac{x^{2} dx}{e^{x} - 1}$$
(A 2.5 - 2)

ここでT》 $T_D$ のとき $x \ll 1$ であり、このとき

$$n_{p}(T) \approx 9 N_{a} (T / T_{D})^{3} \int_{0}^{T_{D} / T} x dx$$
  
= (9/2)  $N_{a} T / T_{D}$  (A 2.5 - 3)

となる。

### 参考文献

- K. Dettmann, G., Leibfrid and K. Schroeder, Phys. Stat. Sol. vol.22 (1967) 423
- (2) J. A. Horak and T. H. Blewitt, Phys. Stat. Sol. (a) vol.9 (1972) 721
- (3) M. Nakagawa, K. Boning, P. Rosner and G. Vogl, Phys. Rev. B vol.16 (1977) 5285, vol.19 (1979) 742
- (4) G. Duesing, W. Sassin, W. Schilling and H. Hemmerich Crystal Lattice Defects vol.1 (1969) 55
- (5) R. C. Birtcher, R. S. Averback and T. H. Blewitt J. Nucl. Mai. vol.75 (1978) 167
- (6) R. C. Birtcher and T. H. Blewitt, J. Nucl. Mat. vol.98 (1981) 63
- (7) A. Dunlop, N. Lorenzilli and J. C. Jousset J. Nucl. Mat. vol. 79 (1979) 412
- (8) L. C. R. Alfred, Phys. Rev. vol.152 (1966) 693
- (9) C. P. Flynn, Phys. Rev. vol.126 (1961) 533
- (10) J. Lindhard, M. Scharff and H. E. Schiott, kgl. Danske Videnskab. Selskab, Mat.-Fys. Medd. vol.33, No.14 (1963)
- (11) J. Lindhard, V. Nielsen, M. Scharff and P. V. Thomsen, kgl. Danske Videnskab, Selskab, Mat.-Fys. Medd. vol.33, No.10 (1963) Selskab, Mat.-Fys. Medd. vol.33, No.14 (1963)
- (12) J. Lindhard, V. Nielsen and M. Scharff Danske Videnskab, Selskab, Mat.-Fys. Medd. vol.36, No.10 (1968)
- (13) J. A. Brinkman, J. Appl. Phys. vol.25 (1954) 961
- (14) B. V. Guerard, D. Grasse and J. Peisl, Phys. Rev. Lett. vol.44 (1980) 262
- (15) Peter Jung, Rad. Effects, vol.35 (1978) 155
- (16) Allen N. Goland and Arthur Paskin, J. Appl. Phys. vol.35 (1964) 2188
- (17) F. Seitz, Phys. Today, June (1952) 6
- (18) G. Burger, K. Isebeck, J. Volkl, W. Schilling and H. Wenzl,

-49-

Z. Angew, Phys. vol.22 (1967) 452

(19) 永宮健夫、久保亮五「固体物理学」岩波書店

- (20) 黒沢達美「物性論」裳華房
- (21) H. G. Cooper, J. S. Koehler and J. W. Marx, Phys. Rev. vol.97 (1959) 599

# 第3章 絶縁材に対する放射線損傷

## 3.1 緒 言

序論で述べた様に核融合炉用(超電導磁石)の絶縁材料として考えられているエポキシ,MgO,Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>等の有機,及び無機材は多量の放射線照射(中性子+r線)を受ける。原子炉照射実験等から,これら絶縁材の照射効果がしだいに明らかになりつつあるがそのメカニズムを解析するには、中性子の効果とr線の効果を分離するのが望ましい。しかし原子炉照射でこれを行うのは一般に困難で中性子だけの照射効果を明確にする研究は少ないのが現状である。

中性子損傷の特徴の1つは、局所的にカスケードが生ずることであり、r線の様な電子励起による化学反応の誘起とは異り、多数の原子(分子)間の結合を局所的に破壊する。エネルギーEの中性子が絶縁体中の質量Mの原子核と弾性衝突を起したとき,相手原子核が得る運動エネルギーTの平均値Tは,重心系等方散乱の場合

 $\overline{T} = 2 M E \swarrow (M+1)^2$ 

であり最大値 $T_{max}$ は

 $T_{max} = 4 ME / (M+1)^{2}$ 

で与えられる。エポキシ(C, H, O等の元素からなる), MgO等は比較的軽 い元素から構成されており( $M = 1 \sim 20$ )従って $\overline{T}$ ,  $T_{max}$ は非常に大きい。 例えば, E = 14 MeVの最も極端な場合を考えると $M = 1 \sim 20$  に対して $T_{max}$ =  $14 \sim 3$  MeV となる。これは絶縁体が,その内部で高エネルギーイオン照射 を受けることを意味する。このような重照射によって,材料がどのような損傷 を受け,又材料の特性がどのように変るかという問題の研究は最近精力的に行 われつつあるが、特に14 MeV中性子の効果についてはまだ少ないのが現状で ある。

一般に高エネルギーイオンと物質の相互作用においては、多くの場合、衝突 カスケードによる複雑な多体反応を伴うため、2体衝突に基づく従来の理論<sup>1,2)</sup> では説明し切れない現象がいくつかある。例えば、炉壁の表面現象であるスパ

-51-

ッタリング現象において、14 MeV 中性子衝撃による金属表面からの Chunk放 出がある<sup>(3)</sup>、これは 1  $\mu$ m 程度の金属塊が、表面からスパッターされる現象であ る。この現象は、必ずしも実験的に確立されたとは言えないが、Guinan<sup>(4)</sup>は、 衝突カスケードの段階で引起される集団運動による衝撃波を仮定し、Chunk放 出の可能性を論じた。一方、絶縁体の放射線損傷においてもこれと似た現象が核 燃料 UO<sub>2</sub> の場合において知られている。熱中性子照射によって起る核反応に伴 って、固体表面から 10<sup>4</sup>個程度の UO<sub>2</sub> がクラスター状で放出され、放出跡にクレ ータが形成される現象である。これは多くの実験によって確かめられている<sup>(5~9)</sup> がそのメカニズムについては十分解明されていない。

UO2の場合,損傷はエネルギー約80MeVの核分裂破片によって生ずる。 このエネルギーは核融合炉用(超電導磁石)絶縁材中で生ずる1次ノックオン原子のTmaxにくらべ数倍~数十倍大きい。しかし,この損傷メカニズムを調べることは,核融合中性子による絶縁体の放射線損傷を明確にする上で有用な知見を与えるものと思われる。

そこで、本章の前半において、UO2の損傷メカニズムを衝撃波モデルで解析し、 核融合炉用絶縁材においてUO2の様な損傷効果が可能であるかどうかについて 考察する。

本章の後半においては,絶縁体の点欠陥生成エネルギーについて若干の考察 を行う。欠陥の基本的性質を知ることは,照射損傷によって生成された欠陥 の挙動(移動,集合体の形成,転位との相互作用等)を研究する上で,非常に 重要である。無機絶縁材として有望なMgO,NiO等はNaCl型結晶構造を有す るイオン結合性の物質であるが,その点欠陥に関する基本的性質はまだ研究途 上の段階である。そこで先ず金属の空孔生成エネルギーにおいて経験的に知 られている融点との間の比例則について,理論的基礎を与えることを試みる。 次にこのモデルをイオン結晶の場合に適用し,その空孔生成エネルギーを融 点等から見積る一般式を導く。

-52-

## 3.2 衝撃波モデル

ン化スパイク(ioni-

UO2が核反応を起したときに生ずる核分裂破片は約80 MeVの非常に大きな エネルギーを持つ。この重イオンは,静止するまでに,そのエネルギーの90% 以上を,電子励起,即ちイオン化過程によって失う。従って非常に多くのイオ ンが核分裂破片の飛跡に沿って作られる。これが中和されるには10<sup>-12</sup> sec 以 上の時間が必要と考えられるが,この間に,イオンは互いの強いクーロン反発 力の為に,飛跡の外側を強く押すことになる。Fleischer等<sup>(10)</sup>はこれをイオ

zation Spike)と呼 んだが, このスパイ クが十分強ければこ の近くの領域は瞬間 的にとになる。その結 とになる。その結 子裂破片のエネルギ ーは,熱的流体力に なメカニズムで速や かに媒質中に移され ることになる<sup>(11)</sup>。

この過程をもう少 し詳しく考える。議 論を簡単にする為, スパイク過程を3つ の段階に分けて見る。 先ず第1に核分裂破



図 3.2 - 1:核分裂破片によって引起される反応過程の 模式図。

核分裂破片は紙面に垂直に走る。

*Ri* はイオン化領域の半径,*Rc* はカスケード領域の半径。カスケード領域の末端で衝撃波が発生し伝播する。

片(以下F.F.と略す)のエネルギーの大部分はイオン化された原子の静電ポテ ンシャルエネルギーに変換される。次の段階でこのポテンシャルエネルギーは原子 の運動エネルギーになり、この原子は囲りの原子との衝突カスケードを通じてそのエ ネルギーを失う。この原子のエネルギーは小さく1KeV以下であるので、平均 自由行程が10<sup>-3</sup> cmのオーダとなるので多体衝突が頻繁に起ると考えられるが、 カスケードの最終段階での原子の平均速度がこの媒質の音速を越えていると、 カスケード前面の原子は、ハンマーとして働き、カスケード前面の媒質を圧縮す ることになる。この結果、カスケードの終りで衝撃波が発生することになる。こ の様子は図3.2-1に模式的に示してある。

### 3.3 発生衝撃波の基礎方程式

衝撃波が伝幡してゆき固体表面に達し,そこで反射されたとき,表面の一部 がはぎ取られることはよく知られている<sup>(12)</sup>(unloadingと呼ぶ)。この現象が 3. 1で述べたクラスタリングとよく似ていることは興味あることである。そこで これらの関係をもう少し定量的に調べてみる。

イオン化領域は,ほぼ, F.F.の飛跡に沿った円柱状と考えられる。F.F.の飛跡XからX+ 4Xの間でイオン化された原子の平均エネルギーは

 $\varepsilon (R_i, X) = (\Delta E / \Delta X)_e / (\pi R_i^2 \rho_0)$ 

で与えられる。ここに  $(AE / AX)_e$  は F.F.の電子的阻止能で,  $R_i$  はイオン化 領域の半径,  $\rho_o$  は UO<sub>2</sub>の数密度である。このイオン原子は, 衝突カスケード によって,そのエネルギーを失う。その平均飛程は  $\epsilon(R_i, X)$ の関数として核 的阻止能から求められる。従って巾 AX, 半径  $R_c$ の円柱領域内の原子の平均エ ネルギーは,

 $\varepsilon(R_{c}, X) = \varepsilon(R_{i}, X)R_{i}^{2}/R_{c}^{2}$ 

 $= (\varDelta E \measuredangle \Delta X)_{e} \measuredangle (\pi R_{c}^{2} \rho_{0}) \qquad (3.3-1)$ 

 $(R_c - R_i)$ はもちろんカスケード中のイオン原子の平均飛程を意味する。図 3. 3 - 1 に  $\varepsilon$  ( $R_i$ , X),  $\varepsilon$  ( $R_c$ , X)をXの関数として描いてある。この図から判 る様に  $\varepsilon$ ( $R_c$ , X)は  $X < 1 \mu m$  程度の付近で, 圧縮エネルギー C (~ 25 eV)の



図 3.3 - 1 核分裂破片によって励起された原子の平均運動エ ネルギー。

> 横軸:核分裂破片の進行方向に沿って測った長さX。 縦軸:イオン化領域における原子の平均エネルギー, 及びカスケード領域における原子の平均エネ ルギー。

> $0 < X \leq 1 \mu_m$ の範囲で  $\epsilon(R_c, X)$ が $\frac{1}{2}Mv_S^2$  (~12.5 eV)を越えていることに注意。

半分を越えることが出来る。Cは原子の質量M,及び音速 $v_s$ を使って,  $C = Mv_s^2$  で与えられるから、カスケード中のイオン原子の速度は音速を越え、イオン化スパイクによって圧縮が十分可能である。

さて発生した衝撃波は,流体力学の基本式

$$\left(\begin{array}{c} \rho \end{array}\right) = 0 \tag{3.3-2}$$

$$\left(M_{\rho} v^{2} + P\right) = 0 \qquad (3.3-3)$$

$$((1/2Mv^{2}+W)\rho v+Pv) = 0 \qquad (3.3-4)$$

に従って伝幡する<sup>(13)</sup>。 ここに v は衝撃波面の速度 G から見た,質量流速,従っ て静止系から見た速度  $u \ge v = G - u$ の関係がある。かっこ〔…〕は衝撃波面 の前後でこれらの量が保存されることを表す。W は内部エネルギー,P は圧力 であり、これらは弾性項と加熱項に分けられる。即ち

$$W = E_{comp} + E_{therm} = C (h-1)^2 / 2h + E_{therm}$$
(3.3-5)

$$P = P_{comp} + P_{therm} = C\rho_0 (h^2 - 1)/2 + r_{\rho} E_{therm}$$
(3.3-6)

ここに h は 圧縮比  $h = \rho_1 / \rho_0$  であり,記号 1,0 は 波面の前後の量であること を区別する。又 r は Grune i sen 係数で 5/6 の値を持つ。 (3.3-2)~(3.3-4) から v を 消去して,よく知られた Rankin-Hugoniot の関係を得る。

$$(P_0 + P_1)(h - 1) = 2 \rho_0 (W_1 - W_0)$$
(3.3-7)  
さらに (3.3-5) ~ (3.3-6)を (3.3-7) へ代入して

$$W_1 = C (h-1)^2 (h+11) / \{ 2h (17-5h) \}$$

$$P_{1} = C_{\rho_{0}} (h-1) (h+11) / (17-5 h)$$
(3.3-8)

又 (3.3-2), (3.3-3), (3.3-8) より

 $Mv_0^2 = C \cdot h (h-1) / (17-5h)$  (3.3-9) を得る。

最終段階におけるカスケード中の衝突原子の平均速度は、衝撃波の形成の 瞬間の衝撃波面の速度と連続的につながるべきであるから、近似的に

 $Mv_0^2(R_c, X)/2 = \epsilon (R_c, X)$ と置くことができる。従って (3.3-9) 式から,この時点での,圧縮比hが決 り,さらに (3.3-8)から $P_1$ が求まる。

-56-

図 3,3-3は h と,  $P_{comp}$  を Xの関数として描いたもので, X < 5000 Å程度の 領域で  $P_{comp}$ が unloading の起る臨界圧  $P_{criti}$  ~ 30 Kbar を越える。さて, この 衝撃波が表面をはぎ取る過程は,次の様に考えられる。先ず圧縮波が表面で反 射すると,圧力分布は進行波と反射波の合成から成る。反射波は負の向きの圧 力分布を持つから,反射が起った瞬間において固体表面層は引張り応力を受け ることになり,もしこの応力が破断応力を越えていると固体表面がはぎ取られ る。

3.4 スパッター原子数比

次に衝撃波モデルで放出される表面原子の数比を求める。このためには、衝撃波の減衰を考慮しなければならない。質量流 $u_1(R, X)$ の減衰は次式 で与 えられる<sup>(14)</sup>。



図 3.3-3:衝撃波が発生した瞬間における圧縮比 ρ<sub>1</sub>/ρ<sub>0</sub> と圧縮比 *P<sub>comp</sub>*の*X*依存性。 0 < *X* ≤ 0.6 μ m の範囲で*P<sub>comp</sub>*が破断強度*P<sub>criti</sub>*を越え ていることに注意。

-57-

$$u_{1}(R, X) = u_{1} (R_{c}, X) (R_{c}/R)^{1/2} \{ 1 - B (R_{c}, X) + B (R_{c}, X) (R/R_{c})^{1/2} \}^{-1/2}$$
(3.4-1)

ててで,

$$B(R_c, X) = 8 u_1(R_c, X) R_c / \{ 3 v_s \Delta L(R_c X) \}$$

 $\Delta L (R_c, X) \simeq (R_c - R_i) / 2$ 

一方 (R, X)における h = h(R, X)は (5.3-9)より, 次式を満たす。

 $M u_1^2 (R, X) = C \{ h (R, X) + 11 \} \{ h (R, X) - 1 \}^2 /$ 

 $(h (R, X) \{ 17 - 5 h (R, X) \} )$  (3.4-2)



- 図3.4-1:衝撃波の伝幡の様子を表す模式図。
  - **Q**:核分裂破片の発生点
  - PP': 衝撃波が伝播して表面に達したとき波面とUO2表面の交わりを表わす。
    - ♥:核分裂破片の進行方向とUO₂表面のなす角。核分裂破片は表面上の点 (0,0,0)から飛び出る。



- タの形状及び大きさが異なる。

ここに $\vec{n}$ は表面に

垂直に立てた Z軸方向の単位ベクトルである。図 3.4 - 2 a は,これより求め たクレ-ターの形状を示し,Biersack 等<sup>(5)</sup>が観測した形状と大きさにおいて, よく一致する。(図 3.4 - 2 b)



図 3.4-2 b UO<sub>2</sub>表面のクレータの電子顕微鏡写真 (Biersack等<sup>(5)</sup>による。)

さて最後にスパッタ-原子数比を求める。衝撃波の巾  $\Delta L(R,X)$ は,

 $\Delta L (R, X) = \Delta L(R_{c}, X) \{ 1 - B(R_{c}, X) + B(R_{c}, X) (R/R_{c})^{1/2} \}$ 

(3.4 - 5)

に従って変化する<sup>(13)</sup>ことを考慮して,スパッタ原子数比Sを次式から求める。  $S = N_u / N_f$  (3.4-6)

ててに

$$N_{u} = \chi \gamma_{y} - \delta n \, \delta \, U \, \text{原子数}$$
  
=  $\sum_{f} \phi_{n} \iint n_{u} (Z, \Psi) \, d\Psi \, dZ$  (3.4-7)  
 $N_{f} = 放出する F.F.$ 

$$= \sum_{f} \phi_{n} d \{ 1 - d / (2L) \}$$
(3.4-8)

ただし,  $\Sigma_{f\phi_n}$  は核分裂密度, dは試料厚さ, LはF.F.の飛程である。(3.4 –

 $7) O n_{u} d$ 

 $n_u(Z, \Psi) = \rho_0 \iint \Delta L(R(x, y), X_{(x)}) dx dy$  (3.4-9) で与えられる。図 3.4-3 中の実線は,数値計算の結果を示し,Sを試料厚さ んに対して描いてある。図中黒丸はBeisack等の実験データを示し,理論とよく 一致する。



Target Thickness d (micron)

図 3.4-3:スパッター比の試料厚さ依存性

横軸:試料厚さ

縦軸: UO2表面からスパッターされるクラスター状のウラン原 子数を放出核分裂破片の数で割ったスパッター比。

実線は理論値,黒丸はBiesack等<sup>(5)</sup>の実験データ。



Ejection angle of a fission fragment  $\psi$ 

図 3.4-4:放出ウラン原子数の核分裂破片進行方向依存性

横軸:核分裂破片の放出角♥

縦軸:スパッター原子数 $n_{u}$ 

¥=90°,即ち,核分裂破片が試料表面に平行に走った

ときにできる衝撃波が最も多くの原子をスパッターする。

又図 3,4-4 は,スパッター原子数の角度分布を示し, F.F.が試料表面に平行に 走った時が最も大きくなるが,これは,衝撃波モデルの特徴である。

以上において,UO₂の核分裂破片損傷によるクラスク放出を衝撃波モデルで 解析した。実験結果との良い一致は,モデルの妥当性を与えているものと思われる。

3.5 空孔生成エネルギーと融点

一般の融点の高い物質程,空孔 (vacancy)の生成エネルギーが大きい。特に 純金属では空孔生成エネルギーをW,その金属の融点を $T_m$ とすると,

 $W \approx 10 \ k \ T_m$ 

(3.5 - 1)

という非常に簡単な関係があることが古くから経験的に知られている<sup>(15-16)</sup>。ここに kは Boltzmann 定数である。イオン結晶では (3.5-1)の様な単純な関係はないが,  $T_m$ の大きい結晶程Wが大きいという相関は存在する。所でWが何故 (3.5-1) 式の様な単純な法則に従うのかという論争は,多くの研究者の間で行なわれて来たが,結局,Wと $T_m$ の比例係数 10 kに対する理論的基礎を与えるには致っていない。

所でWが $T_m$ に比例するという現象は,定性的には次の様に解釈されよう。 即ち, $W \ge T_m$  は共に原子間同志の結合力に依存するであろう。そして両者共, この結合力が増加するにつれて大きくなる。従って $T_m$ の高い物質程,Wも大 きくなるということになる。所がこれは,比例関係(3.5-1)に対する完全な 説明とは言えない。何故かと言うと,この説明では,比例係数が結晶構造に左 右されても良さそうであるが,経験式(3.5-1)はbcc 金属でもfcc金属で も,又他の結晶構造(例えばhcp)でも一般的に成り立つ。従って比例係数10 kは「普遍定数」であると考えられる。このことは $W \ge T_m$ の比例性が,空孔 生成の何かもっと本質的な所から生じていることを暗示していると思われる。

さて (3.5-1) 式に対する定量的な議論もいくつかなされた。 Doyama 等<sup>(6)</sup> は空孔生成エネルギーWを計算する為に、準化学的な方法を導入した。即ち、空 孔の生成と融解は共に同じような最近接のボンドの切断を必要とすると考えて  $W \propto T_m$ を導いた。 しかし比例係数は液体状態と固体状態における配位数に依 存する。一方,自己拡散の活性化エネルギーと融点の比例関係から、間接的に (3.5-1)を導くこともできる。何故ならWは活性化エネルギーに比例するか らである<sup>(16-22)</sup>。例えばBraune は<sup>(22)</sup> Lindemann の液体理論<sup>(23)</sup>を基にして,自己 拡散の活性化エネルギーと融点の関係式を導いた。比例係数は分極率と原子半 径に依存するもののいくつかの金属ではほぼ一定であり、その値は実験値に近 いものであった。従って自己拡散の活性化エネルギーと空孔生成のエネルギー の比例関係式を導くことが出来れば、間接的ではあるがWと  $T_m$ の関係を得る ことが出来るであろう。

しかし,非常に単純な関係式(3.5-1)は、2つの全く独立な現象、即ち、

-63-

空孔生成現象と融解現象の間の,何かもっと直接的な関連を暗に示しているよ うに思われる。融解の機構を格子欠陥モデルで取扱う方法<sup>(24-26)</sup>がいくつか行 なわれているから,これから直接Wと Tm の関係を導くことが考えられる。し かし、これは適切な方法とは言い難い。なぜなら融解が格子欠陥によって起る という考え方は,必ずしも一般的に妥当なモデルではないからである。一方, 自己拡散に関する実験結果を説明する為に、空孔領域の液体状モデルが提唱され た<sup>(28,29)</sup>。例えば Nachtrieb 等<sup>(28)</sup>によると,自己拡散の活性化エネルギーは,融 解熱に比例するというのであるが、この実験結果を説明するために、彼等は、 「拡散現象においては空孔が動くというよりも、むしろ空孔近傍の緩和した液 体状態の原子が動く」と考えた。そして比例係数16.5は其様な緩和原子の平 均数であるという。しかし、もしも、この緩和原子が純粋に液体状態にあると すれば,この原子は平均4 k Tm のエネルギーを持つから空孔生成エネルギー は非常に大きくなり,  $(16.5 \times 4 k T_m = 66 k T_m)$ , 経験式 (3.5 - 1)から大きく ずれる。(注.融点直下の固体の原子1個当りの平均エネルギ-は3 k Tm で あり,融解熱が原子1個当り k Tm であるから融点における液体原子1個当り の平均エネルギーは4 k Tm である。)

以上述べた様に、 $W \propto T_m$  なる関係は定性的には理解出来る。しかし、従来のモデルでは、比例係数 10 k がほとんど普遍定数に近いことを、一般的な方法で導くことは難しい。

3.6 液体モデル

この困難を克服するために、以下の如き新しいモデルを導入する。先ず今一度、 空孔生成過程と融解過程の関連を別の見地から考えてみる。本来融解とは、巨 視的な数の原子が係わる巨視的現象であるが、空孔生成過程とはやはり、いく つかの類似性が考えられる。熱的に空孔が生成されるには、結晶の表面近くの 原子が結晶表面上へ変位しなければならない。一方融解が始まると、原子は次 々と固体状態から液体状態へ遷移する。これらの2つの現象の瞬間において、 原子は一種の"並進運動"(translational motion)を経験する。この運動は、

-64 -

平衡格子点のまわりの格子振動から大きくずれた変位運動である。この変位運動を引起すには,原子間ポテンシャルを原子の変位量で展開したときの高次の項を励起しなければならないであろう。双方の現象がこの様な同一の原子間ポテンシャルの高次の項に関連している以上,WとT<sub>m</sub>の間に何らかの直接的関係が存在すると考えるのは自然である。

さて,表面近くの原子が表面上に変位し,1個の空孔が形成できる為には, この原子が十分なエネルギーを持たねばならない。ここで、この原子の変位運 動が、融解過程において固相から液相へ遷移する際の translational な運動と 類似のものであると仮定する。すると空孔生成過程は、原子をその変位中にお いて "固体状態"から "液相状態" ヘジャンプさす過程と見なすことが出来る。 但しここで注意しなければならないことは、この描象は、原子が変位中にある 時にのみ適用されるべきであり、変位後、再び安定な位置(即ち、原子間ポテ ンシャルの極小点)に落着けば原子は最早や液体状態にない。従って,空孔生 成エネルギ-W4,原子を固体状態から液体状態へ一時的にジャンプさす遷移 エネルギーに等しい。所で、すでに述べた如く、固体状態とか、液体状態という 概念は本来、巨視的な数の原子から成り立っている系に対してのみ用いられる べきものである。そこで、上記の空孔生成モデルと相似な巨視的モデルを考え る。即ち,ある十分大きなエネルギ- ε が,結晶表面上の一点に与えられ,こ のエネルギーがすべて空孔生成に使われたとすると、この領域の多くの原子は 固体状態から液体状態へ一時的にジャンプする。巨視的な数の原子に対しては この過程は表面上の一点(但し巨視的な点)の融解と見ることが出来る。いま εのエネルギ−を結晶表面に与えることによって n 個の原子を含む領域が融け たとすると、1原子当りの融解に使われたエネルギーは ε/n である。 このエ ネルギーは、熱平衡状態において、液体状態にある原子の平均エネルギーに相 当するのではなく、原子を固体状態から液体状態へジャンプさすのに必要なエ ネルギ-と考えるべきである。

さて,この n 個の原子の融解が, n 個の空孔の生成に相当すると考えて見る。 すると空孔 1 個の生成エネルギーWは,

$$W = \varepsilon / n \tag{3.6-1}$$

となる。 ε による融解領域の体積 V でこの式を書き変えると,

$$W = \varepsilon / V N_{\rm L} \tag{3.6-2}$$

ここにN<sub>L</sub>は液体状態における原子密度である。

融解体積Vは,エネルギー  $\varepsilon$ を瞬時に表面上の一点に与えたときに融点を越え る領域の最大体積として与えられるであろう。Vを求める為に,この動的な融 解過程を,熱エネルギーの拡散方程式を用いて記述してみる。この方法は,放 射線損傷の分野でSeitz<sup>(27)</sup>が導入したのと類似の方法である。(Seitzは,十分 大きなエネルギーを持った粒子の照射によって生ずる損傷領域の体積を計算す る為に,これを熱エネルギーの注入による損傷と見て熱伝導の方程式を用いた。)

さて、 $\varepsilon$ のエネルギーが与えられた所を、図 3.6-1の様に座標原点に取り、 その瞬間を時刻 t = 0 とする。その後の時刻 t、場所(x, y, z) における温 度をT(x, y, z, t) とすると、T(x, y, z, t) は初期条件

 $T(x, y, z, 0) = \delta(x) \delta(y) \delta(z) \varepsilon / C$  (3.6-3) を満たす。ここにCは高温における比熱であり,  $\delta(x)$ は Diracのデルタ関数で



図 3.6 - 1:エネルギー  $\varepsilon$ の注入による結晶表面の融解

ある。簡単の為,結晶内部でTの分布は半球対称であるとし,なおかつ最も基本的な拡散方程式

 $\partial T(x, y, z, t) / \partial t = D P^2 T(x, y, z, t)$  (3.6-4) に従うものと仮定する。ここにDは熱拡散係数である。初期条件(3.6-3)の 下で,(3.6-4)は,ガウス型の解

 $T(x, y, z, t) = 2(\varepsilon/C)(4\pi Dt)^{3/2}exp(x^2+y^2+z^2)/4Dt ]$ (3.6-5)

を持つ。従って融解領域の半径 R(t)は  $T \ge T_m$  なる領域の半径であるから(3.6 -5)より

 $R(t) = \left( 4Dt \, \ell_n \left\{ \left( 2 \, \varepsilon / C \, T_m \right) \left( 4 \, \pi \, D \, t \, \right)^{-3/2} \right\} \right)^{1/2} \tag{3.6-6}$ 

として得られる。これは図 3.6 - 2 に示したように時間と共に増えるが , 時刻 ( $4\pi e D^{-1}$ ) ( $2 \epsilon / C T_m$ )<sup>2/3</sup> (3.6 - 7)

において最大となり,その後は収縮の一途をたどる。このときの最大値は

 $(3/2\pi e)^{1/2} (2\varepsilon/CT_m)^{1/3}$  (3.6-8)



図 3.6-2:融解領域の半径 R(t)の時間の依存性 熱の拡散に伴って R(t)は時間と共に増えるが,あ る時刻で最大値を取った後,減少してゆく。これ 熱エネルギーの拡散による温度の低下から起る。 であるから,エネルギー € によって融かすことの出来る領域の体積 V は

 $V = (4\pi/3) (3/2\pi_e)^{3/2} \varepsilon/CT_m$ (3.6-9) となる。 (3.6-9)を(3.6-2)へ代入して

 $W = (3/4\pi)(2\pi e/3)^{3/2} CT_m / N_L$  (3.6-10) を得る。この式で比熱CはT\_mよりずっと高い温度の値を取るべきである。 何 故なら t = 0において,表面上の原点は,融点をはるかに越えていると考える べきであるからである。形式的には、CはT = ∞ での値を取れば良いであろう。比熱 に対するこの極限値はDebyeの理論<sup>300</sup>から容易に知れる。即ちDebye 理論によ れば高温での比熱は 3N<sub>s</sub>k で与えられる。ここにN<sub>s</sub> は固体における原子密度 である。ゆえに (3.6-10)式で C = 3N<sub>s</sub>k と置くと

 $W = 3(3/4\pi)(2\pi e/3)^{3/2}(N_s/N_L)kT_m$  (3.6-11) となる。この式は $W が N_s / N_L$ ,及び $T_m$ に比例していることを示している。 所が一般に金属では、固体と液体における数密度の差は小さい(数%以内)から、 $N_s \approx N_L$ と考えると(3.6-12)式は

 $W \approx 3 (3/4\pi) (2\pi e/3)^{3/2} k T_m \approx 9.7 k T_m$  (3.6-12) となり,経験式(3.5-1)と非常に良く一致する結果が得られる。図 3.6-3 にいくつかの金属のWの実験データと理論式(3.6-12)を,横軸 k T\_m に対して 描いてある。

### 3.7 イオン結晶の場合

イオン結晶に対して,空孔生成の液体モデルがそのまま適用できるものとす ると(3.6-12)式を使って直ちに空孔生成エネルギーの理論値が得られる。所 が表3.7-1に示した如く,ほとんどすべてのイオン結晶(アルカリハライド)の 実験値は,融点と強い相関はあるものの,(3.6-12)式から得られる理論値より も約2倍程度大きい。この事実は液体モデルにおける空孔生成の描象と,現実 の現象の間に何らかのずれが存在することを暗示していると思われる。つまり, (3.6-12)式が与えるWの値はイオン結晶の空孔生成エネルギーには対応しない ものと考えられる。


図 3.6-3:空孔生成エネルギーと融点の関係
 横軸:融点 T<sub>m</sub> にボルツマン定数を掛けたもの
 縦軸:空孔生成エネルギーW
 黒丸は実験データ,直線は理論式(3.6-12)

(3.6-12)式を直接イオン結晶に適用することによる失敗は、次の様に解釈される。 イオン結晶の場合、これが熱平衡にあるとき、結晶内に存在する欠陥は主に Schottky型のものである<sup>(31)</sup>。即ち、陽イオン空孔と陰イオン空孔の生成エネ ルギーが異なるにもかかわらず、両イオン空孔は同じ数だけ生成される。これ は、イオン結晶であるが由に、一方のイオン空孔だけが選択的に生ずることは 電荷バランスをくずす為に許されないのである<sup>(32)</sup>。例えば、陽イオン空孔を生

-69-

表 3.7 - 1

| Alkali halide | $W = 9.7 \text{ kT}_{\text{m}} \text{ (eV)}$ | Exp. (eV) * |  |  |
|---------------|--|-------------|--|--|
| NaCl          | 0.899  | 2. 18       |  |  |
| NaBr          | 0.862  | 1.72        |  |  |
| KC1           | 0. 891                                       | 2.26        |  |  |
| KBr           | 0.841  | 2.30        |  |  |
| R bCl         | 0.828  | 2.04        |  |  |
| AgCl          | 0.618  | 1.08        |  |  |
| · · · · ·     |  |             |  |  |

\*) AgClは参考文献(34), その他のアルカリハライドは参考文献(31)より抜粋。

成するには陽イオンを結晶表面へ変位しなければならないがこれによって結晶 表面は正に帯電し,結晶内部では負に帯電する。これは等価的に陰イオン空孔 の生成エネルギーを下げることになり陰イオン空孔の生成が促進される。従っ て熱平衡状態で観測される空孔生成エネルギーW'は、陽イオン空孔生成エネルギ -W+,及び,陰イオン空孔生成エネルギーW\_の和である。即ち

 $W' = W_{+} + W_{-} \tag{3.7-1}$ 

一方,液体モデルで取扱った空孔というのは,その集団的な生成過程が,融解 過程と同一視できる様なものであった。所で,いくつかのイオン結晶融解過程 においては欠陥同志間のクーロン相互作用が重要な役割を果たしていると考え られるから<sup>(33)</sup>,液体モデルをイオン結晶に適用するならば,そのモデルの 対象とする空孔は何か,互いに相互作用している空孔と考えるべきであって, 生成エネルギーが(3.7-1)で与えられる様な独立な空孔ではないであろう。

さて,それではイオン結晶において,液体モデルが対象とする空孔,即ち, その生成エネルギーが(3.6-12)式で与えられる様な空孔は何であるか? もし イオン結晶の融解機構を支配しているものが互いに相互作用している欠陥であ るとするならば,そして又,空孔の生成が融解過程と同一視することが出来る

-70 -

ならば、(3.6-12)式で与えられたWは、互いに相互作用している陽イオン空 孔と陰イオン空孔の生成エネルギーと考えて良いであろう。そこで(3.6-12) 式は陽イオン一陰イオンの複合空孔(divacancy)の生成エネルギー、即ち最隣 近する陽イオンと陰イオンを同時に取り去って中性の空孔をつくるエネルギー と仮定して見る。これを新ためて $W_+$ と書く。

$$W_{+} = 9.7 \ k T_{m}$$
 (3.7-2)

さて,独立な陽イオン空孔と陰イオン空孔を生成するには,先ずdivacancy を1つ生成し,次にこれを,夫々のイオン空孔に解離すれば良いから,divacancy を構成している陽イオン空孔と陰イオン空孔の結合エネルギーを $U_{\pm}$ と すると,イオン結晶の空孔生成エネルギー (3.7-1)は

$$W' = W_{\pm} + U_{\pm}$$
 (3.7-3)

と書ける。ここで divacancy の結合エネルギー $U_+$  は

 $U_{\pm} \sim e^2 / 4 \pi \varepsilon a \qquad (3.7-4)$ 

の程度と考えられる。ここに e は誘電率 , a は格子定数である。 (3.7-2)及び (3.7-4)を (3.7-3) へ代入すると

$$W' \sim 9.7 \ k T_m + e^2 / 4 \pi \varepsilon a$$
 (3.7-5)

| Alkali halide | υ <sub>±</sub> | W'(eV) | Exp. (eV) |
|---------------|----------------|--------|-----------|
| NaC1          | 0.917          | 1.82   | 2.18      |
| NaBr          | 0.818          | 1.68   | 1.72      |
| KCI           | 0.979          | 1.87   | 2.26      |
| KBr           | 0.919          | 1.76   | 2.30      |
| RPC1          | 0.828          | 1.70   | 2.04      |
| AgC1          | 0.420          | 1.03   | 1.08      |
|               |                |        |           |

表 3.7-2 空孔生成エネルギーの理論値と実験値

-71-

表 3.7-2 にいくつかのイオン結晶について計算した結果を示す。 計算値の方 が約10~30%小さいが,これは結合エネルギー $U_{\pm}$ の見積り(3.7-4)が粗すぎ たことによるものと考えられる。しかし,計算値と実験値との間には十分良い相関 相関が存在することが図 3.7-1から判る。



図 3.7-1 イオン結晶における空孔生成エネルギー 横軸:式(3.8-5)より計算した空孔生成エネルギー(eV) 縦軸:空孔生成エネルギーの実験値(eV) (参考文献(31)より抜粋)

## 3.8 考 察

本章前半では衝撃波モデルを用いてUO2絶縁体表面からのUO2クラスターの スパッタ-現象,及び表面クレ-タ-の形成を定量的に説明できた。これは絶 縁体の高エネルギ-イオン照射損傷において,いわゆるカスケ-ド的損傷過程 以外に,原子の集団運動の励起による多体効果による損傷過程が可能であるこ とを示すものとして重要である。高エネルギーイオン照射によって、絶縁体内 部に衝撃波が励起されるかどうかは,照射イオンのエネルギ-及び,絶縁体の 音速 v、に依存する。即ちイオンエネルギーが媒質に移った時,励起される原 子の集団運動のエネルギー密度がその媒質の圧縮エネルギー(Mv<sup>2</sup><sub>s</sub>)の半分を越 えていなければならない。UO₂の場合,照射イオンは核分裂破片でありそのエ ネルギーは80 MeVと,非常に大きい。一方,核融合炉用超電導磁石の絶縁材 料の場合,〔3.1〕節で述べた様に,内部照射イオンのエネルギ-は高々3~ 14 MeV であり,核分裂破片のエネルギーの数分の1である。従って励起される 集団運動のエネルギ−密度もUO₂の場合より小さいものと考えられる。しかし 絶縁材の構成原子の質量MはUO $_2$ よりもずっと小さく(数十分の1),又, $v_s$ も小さい。(エポキシ系で10<sup>3</sup>m/s程度),ゆえに集団運動に基づく衝撃波発生 の臨界条件を十分満たすことが可能である。従って,例えば,特に14 MeV 中 性子のストリーミングの多い所では、衝撃波発生による損傷効果を考慮する必 要があるものと思われる。絶縁材の14 MeV中性子照射実験は最近始まったばか りで,実験データは少ないが,この内例えば,Fowler等<sup>35)</sup>が最近行ったグラ スセラミックのRTNS-Ⅱ照射実験では、14 MeV中性子が、200 KeV電子線に 比べて,約10<sup>4</sup>倍損傷効果が大きい,即ち同程度の損傷効果(swelling等)を 得るのに10<sup>4</sup>分の1の線量 (*Gy*)で良いことが示されている。 又照射による非晶 質化効果についても高速中性子照射の方が,電顕照射にくらべてやはり4桁損 傷効果が大きいことも述べている。これらの現象が直接衝撃波効果と結びつく 訳ではないが、その機構を調べる場合、考慮するに値するものと思われる。 **FRP**等の有機系絶縁材は、その構成元素の軽質量性から無機材より一層、衝 撃波効果の存在が予想されるが、14 MeV中性子照射の実験は現在ほとんど行な

-73-

われていない。今後実験データの蓄積が期待される。

本章後半において金属及びイオン結晶の空孔生成エネルギーについて論じた。 熱平衡状態において空孔は結晶表面近くの原子が結晶表面上へ変位することに よって生成される。この時の原子の安定格子点から飛び出した変位運動が、 融解過程で,原子が固体状態から液体状態へジャンプするときの運動と類似の ものであるという仮定の下で,純金属の空孔生成エネルギーと融点の関係式を 導いた。(図 3.8-1 参照)この描象は,又エネルギーの揺ぎという概念から, 次の様に考えることができる。先ず結晶のエネルギーをEとし,その統計力学 的平均をくE>で書くと

 $\langle E \rangle = \Sigma E e^{-\beta E} / \Sigma e^{-\beta E}$  (3.8-1) ここに $\beta = 1 / k T$ であり和はエネルギーEのすべての微視的状態について行う。 (3.8-1)の両辺を温度Tで微分したものは(定容)比熱Cを与える。即ち

$$C = \partial \langle E \rangle / \partial T$$
  
=  $\partial \langle E \rangle / k T^2 \partial \beta$  (3.8-2)

さらに (3.8-1) は

$$\langle E \rangle = (-\partial \Sigma e^{-\beta E} / \partial \beta) / \Sigma e^{-\beta E}$$
(3.8-3)

と書けるから, (3.8-3)を(3.8-2)へ代入して

 $k T^{2}C = \Sigma E^{2}e^{-\beta E} / \Sigma e^{-\beta E} - (\Sigma E e^{-\beta E} / \Sigma e^{-\beta E})^{2}$ 

$$= \langle E^2 \rangle - \langle E \rangle^2$$
  
=  $\langle (E - \langle E \rangle)^2 \rangle$  (3.8-4)

従って,エネルギーの揺ぎの2乗平均は比熱に比例する。大きな体系であれば この揺ぎはエネルギーにくらべて十分小さい。所が $T = T_m$ では (一次の)相転 移によって,比熱Cが発散する為,エネルギーの揺ぎは非常に大きくなる。即 ち,液相の出現によって, $T = T_m$ で原子のエネルギーの揺ぎが非常に大きく なる。これは固体状態から,液体状態へジャンプする原子のエネルギーの揺ぎ が非常に大きく平均エネルギーから大きく揺いでいることを意味する。一方空 孔の生成エネルギーWは,熱平衡にある原子の平均エネルギー3kTよりもず っと大きいから,表面原子を表面上へ変位さすには,この原子に十分大きなエ

-74 -



イオン結晶



図 3.8-1 空孔の生成過程の模式図 上図は金属,下図はイオン結晶の場合。

> 熱励起によって(a)から(b)の状態へ原子が移動するとき,こ の原子は隣接する原子との間の結合を切らねばならない。 このときこの原子は液体状態を経験するというのが液体モ デルである。

> イオン結晶の場合では,先ず最近接の正負イオンの1対が 同時に液体状態を経験し,結晶表面近くでdivacancy が生 ずる。この divacancy の解離エネルギーは, divacancyの生成 エネルギーと同程度であり,その移動エネルギーよりもずっと小 さいと考えられる。従って divacancyは移動(Migration)を 起す前に,正,負の独立な空孔に分解される。

ネルギーの揺ぎを与えなければならない。空孔生成の液体モデルでは、この揺ぎが、 $T = T_m$ における原子のエネルギーの揺ぎと類似のものであると考えるのである。

絶対零度においては、原子は熱エネルギーを持たないから、空孔を生成する には、表面原子に十分なエネルギーを与えなければならない。十分なエネルギ ーを与えられると原子は結晶表面上へ変位するが、液体モデルにおいてこれに 対応する融解過程は、非平衡な融解過程でなければならない。これを、結晶表 面上に与えられた熱スパイクによって引起される融解過程として記述したが、 この描象では空孔が液体状態にある訳でもなく、又、液体そのものが多数の空 孔で構成されているというモデルでもない。ここで提案した液体モデルは、表 面原子が結晶表面上へ変位運動を行っているときのみ液体状態と対応させるの である。従って、(3.6-6)式で与えられる半径内の液体領域が空孔で構成されて いるのではない。むしろ半径 R の位置の、固相から液相へジャンプする原子 の運動を空孔生成時の表面原子の運動と関連付ける。

式 (3.6-12)は、Wと  $T_m$  の間の比例係数が何故結晶構造に依存しないか、ということに対する理論的な証明を与えている。即ち比例係数は普遍定数になっている。所がある種の金属、例えば  $G_e$ ,  $S_i$ , C等の半導体は(3.6-12)の法則に全く従わない。(これらの金属でも $N_L \approx N_s$ ,高温比熱 C = 3 kの条件は成り立っているのであるが。)これらの金属は、空孔の移動度が非常に大きく、quenchingの実験によってWの値を求めるのが難しいのであるが、一般にWは10  $kT_m$ の2~3倍大きい。これは凝集エネルギーあるいは、昇華エネルギーの程度である。このことは、空孔生成過程における原子の変位運動を、固体状態から液体状態へジャンプする時の原子の運動と結び付けるアナロジーが成り立たず、これらの半導体では液体モデルが適用できないことを示している。

イオン結晶の空孔生成エネルギーにおいて,実験値とさらに良い一致を得る ためには divacancy の結合エネルギーを,より正しく見積ることが必要である。 MgOの場合,2価イオンの結合であるので,(3.7-5)式は使えず,このかわ りに

-76-

 $W' \sim 9.7 \ kT_m + (2 e)^2 / 4 \pi \epsilon a$  (3.8-5) を用いて計算しなければならない。MgOにおいては

 $T_m = 3073K$ , a = 2.1Å,  $\varepsilon = 9.65$ であるので (3.8-5)式より $W' \sim 5.4 \text{ eV}$ となる。 一般にイオン電荷Zのイオン結晶では

 $W' \sim 9.7 \ k T_m + (Ze)^2 / 4 \pi \varepsilon a$  (3.8-6) で与えられる。

#### 3.9 結 言

(1) 核融合炉用超電導磁石の絶縁材は,中性子照射によって,内部で高エネル ギーイオン照射を受けるが,その損傷効果の一面を,基本的メカニズムにおい て,模擬していると考えられるUO2の核分裂破片照射損傷を解析した。この結 果UO2表面からのクラスター放出,及びクレータの形成は,核分裂破片とUO2 媒質の相互作用の結果生ずる微視的衝撃波(micro shock wave)によって起り 得ることが判った。超電導磁石絶縁材に使われるMgOやエポキシ樹脂でも 衝 撃波が発生し得ると予想されるが,これが実用的な問題,例えば機械的性質の 劣化にどのような影響を及ぼすかを明らかにするには,さらに解析が必要であ り,今後の課題である。

(2) 空孔生成の液体モデルでイオン結合性絶縁体の空孔生成エネルギーを与え る一般式を導出した。MgOに対して 5.4 eVという結果を得たが, divacancyの 結合エネルギーの不確かさから, 20%程度の誤差が含まれるものと思われる。

## 参考文献

- L. Lindhard, M. Scharff and H. E. Schiøtt, Mat.-Fys. Medd. Dan. Vid Selsk., vol.33 No.14 (1963)
- (2) P. Sigmund, Phys. Rev. vol.184 (1969) 383
- (3) M. Kaminsky and S. K. Das, J. Nucl. Mat. vol.53 (1974) 162
- (4) M. Guinan, J. Nucl. Mat. vol.53 (1974) 171
- (5) J. P. Biersack, D. Fink and P. Mertens, J. Nucl. Mat. vol.53 (1974) 194
- (6) V. A. Bessonov, Atomnaya Energiya, vol.37 No.1 (1974) 52
- (7) S. Ferrari and G. J. Segre, J. Nucl. Mat. vol.24 (1967) 150
- (8) G. Nilsson, J. Nucl. Mat. vol.20 (1966) 215
- (9) M. D. Rogers and J. Adam, J. Nucl. Mat. vol.61 (1962) 182, vol.16 (1965) 298
- (10) R. L. Fleischer, P. B. Price and R. L. Walker, J. Appl. Phys. vol.36 No.11 (1965) 3645
- (11) V. I. Goldanskii, E. Ya. Lanstburg and P. A. Yampolskii JETP Lett. vol.21 No.6 (1975) 166
- (12) Ya. B. Zeldovich, in: Physics of Shock Wave and High Temperature Hydrodynamic Phenomena, Academic Press (1966)
- (13) J. Serrin, in: Handbuch der Physik, ed. S. Flugge Berlin (1959) vol.8, p125
- (15) A. D. Franklin, Statistical Thermodynamics of Point Defects in Crystals, in: Point Defects in Solids, vol.1, eds., J. H. Crawford, Jr. and L. M. Slifkin (Press, New York, 1975)
- (16) M. Doyama and J. S. Koehler, Acta. Met. vol.24 (1976) 871
- (17) N. H. Nachtrieb, J. A. Weil, E. Catalano and A. W. Lawson, J. Chem. Phys. vol.20 (1952) 1189

- (18) O. D. Sherby and M. T. Simnad, Trans. ASM vol.54 (1961) 227
- (19) A. D. Le Claire, Diffusion in Body-Centered Cubic Metals (American Society for Metals, 1964).
- (20) Van Liempt, Z. Physik vol.96 (1935) 534
- (21) A. M. Brawn and M. F. Ashby, Acta. Met. vol.28 (1980) 1085
- (22) H. Braune, Z. Phisic. Chem. vol.110 (1924) 147
- (23) F. A. Lindemann, Phys. Zs vol.11 (1910) 609
- (24) T. Kurosawa, J. Phys. Soc. Jap. vol.12 (1957) 338
- (25) J. E. Lennard-Jones and F. Devonshire, Proc. Roy. Soc. A169 (1939) 317
- (26) Doris Kuhlmann-Wilsdorf, Phys. Rev. 140A (1965) 1599
- (27) F. Seitz, Phys. Today 5 (1952) 6
- (28) A. H. Nachtrieb and G. S. Handler, Acta Met. vol.2 (1954) 797
- (29) O. D. Sherby, J. L. Robbins and A. Goldberg, J. Phys. Chem. vol.34 (1973) 1025
- (30) C. Kittel, Introduction to Solid State Physics, 5th Edition
- (31) "Defects and Their Structure in Nonmetallic Solids" edited byB. Henderson and A. E. Hughes
- (32) A. J. Dekker, Solid State Physics, p160 Prentice-Hall, Inc.,70 Fifth Avenue, New York, N.Y.
- (33) T. Kurosawa, J. Phys. Soc. Japan, vol.12, No.4 (1957) 338
- (34) R. G. Breckenridge, J. Chem. Phys. Vol.16 (1943) 959
- (35) J. D. Fowler, Jr., G. F. Hurley, J. C. Kennedy and F. W. Clinard, Jr., J. Nucl. Mat. vol.103-104 (1981) 755

## 第4章 超電導体に対する核融合炉中性子照射効果

## 4.1 緒 言

第1章3節で化合物系超電導体の臨界特性が約10<sup>B</sup>  $n/cm^2$ 以上の核分裂炉中性 子照射を受けると著しく劣化することを述べた。しかし,第1章1節及び2節 で言及した如く、核融合炉超電導磁石領域では炉の複雑な構造から、中性子束、及 び中性子エネルギースペクトルは一様でなく、一般に場所的に変り、又特に各 種の孔からの中性子ストリーミングがあるので、核分裂炉照射データを、その まま核融合炉の設計に使うのは妥当でない。本章では、中性子スペクトルを考 慮した場合、核分裂炉照射データをどのように修正すれば良いかを、主に $T_c$ と $J_c$ について論ずる。

## 4.2 Tc劣化の中性子スペクトル効果

 $T_{c}$ は微視的理論<sup>(1)</sup>によると,強結合の超電導体では

 $T_{\rm C} \approx 0.25 \ \theta_{\rm D} \ \exp(-1/\lambda) \tag{4.2-1}$ 

で支えられる<sup>(1)</sup>。ここに $\theta_{D}$ は Debye 温度,  $\lambda$ は,電子-フォノン結合定数 で ある。中性子照射を受けても $\theta_{D}$ はあまり変らないと考えられるので<sup>(2)</sup>,  $T_{C}$ の 劣化は,主に $\lambda$ の低下による。所で, Nb<sub>3</sub>Sn の場合,  $\lambda$ は 0.71 であり, この とき  $\partial T_{C} / \partial \lambda = T_{C} / \lambda^{2}$ は,約36 である。照射によって $T_{C}$ が飽和値4K まで劣化したとすれば,このとき $\lambda$ は0.34 に低下するが $\partial T_{C} / \partial \lambda$ の 方は,このとき35 であって,照射前とほとんど変らない。従って, $T_{C}$ の $\lambda$ に 対する変化は $\lambda$ の一次と考えて良く,照射前の $\lambda$ を $\lambda_{0}$ ,  $T_{C}$ を $T_{C0}$ とすると

 $T_{c} \approx T_{co} + (T_{co}/\lambda_{0}^{2})(\lambda - \lambda_{0})$  (4.2-2) が 4K  $\leq T_{c} \leq 18$ K の間で成り立つ。この関係はNb<sub>3</sub>Snに限らず,他の化合物 超電導体,例えば Nb<sub>3</sub>Ge, Nb<sub>3</sub>A  $\ell$ , V<sub>3</sub>Si 等でも成り立つ。

(4.2-1)式は均質系に対する理論であって,カスケード損傷等によって,局 所的に損傷が非均質に存在するような系に対しては,適当に修正する必要があ る。ここでは,λに対する補正としてλの体積平均を考える。超電導体に対し

-80-

ても第2章で述べた,カスケード損傷の2領域モデルが適用できるものとして (4.2-2)式のλを各領域の体積平均

 $\overline{\lambda} = \lambda_0 \eta_0 + \lambda_1 \eta_1 + \lambda_2 \eta_2$  (4.3-3) で置き変える。ここに $\lambda_0$ は未損傷領域の $\lambda$ , 又 $\lambda_1$ ,  $\lambda_2$  は,損傷2領域中での  $\lambda$ である。 $\eta_0$ ,  $\eta_1$ ,  $\eta_2$  は各領域の体積率であって第2章と同じ方法で求めら れる。所で化合物超電導体は一般に熱伝導度が低く,従って第2章で導入した カスケードの焼鈍率r は小さく領域2の欠陥構造は領域1のそれと大差がな いと思われる。ゆえに $\lambda_1 \approx \lambda_2$  と考えられ,このとき (4.2-3) は

 $\overline{\lambda} \approx \lambda_0 \eta_0 + \lambda_1 (1 - \eta_0) \qquad (4.2 - 4)$ となる。これを (4.2 - 2)の  $\lambda$  へ代入して

$$T_{c} \approx T_{co} - (T_{co} / \lambda_{0}^{2})(\lambda_{0} - \lambda_{1})(1 - \eta_{0})$$
(4.2-5)  
一方 Ø→∞に対して  $\eta_{0} \rightarrow 0$ ,  $\overline{\lambda} \rightarrow \lambda_{1}$  であるから (4.2-2)より

$$T_{\rm C}(\infty) = T_{\rm C0} + (T_{\rm C0}/\lambda_0^2)(\lambda_1 - \lambda_0)$$
(4.2-6)

(4.2-5), (4.2-6)より**T**<sub>C</sub>(∅)は次の様に書ける。

$$T_{\rm C}(\Phi) = T_{\rm C}(\infty) + (T_{\rm CO} - T_{\rm C}(\infty)) \eta_0(\Phi) \qquad (4.2 - 7)$$

ここで no(𝒴)は, 第2章 (2.2-10)式,及び (2.7-7)式より

 $\eta_0(\mathbf{0}) = \exp -\sigma_1 \mathbf{0} = \exp -\kappa_1 \langle D(\mathbf{E}) \Sigma(\mathbf{E}) \rangle \mathbf{0}$  (4.2-8) で与えられる。但し,  $\kappa_1$ ,  $D(\mathbf{E})$ ,  $\Sigma(\mathbf{E})$ はすべて超電導体の値を使う。(4.2-

で与えられる。但し,  $\kappa_1$ , D(E), 2(E) は9人て超电導体の値を使う。(4.2 8)を(4.2 – 7)へ代入して最終的に

 $T_{c}(\mathbf{0}) = T_{c}(\infty) + (T_{co} - T_{c}(\infty)) \exp - \kappa \langle \mathbf{D}(\mathbf{E}) S(\mathbf{E}) \rangle \mathbf{0}$  (4.2-9) 但し簡単の為  $\kappa_{1} \epsilon \kappa$ と記した。 $T_{c}(\infty)$ は (4.2-6)式で与えられているよう に  $\lambda_{1}$  に依存する。  $\lambda_{1}$  はカスケードによって形成される損傷領域の欠陥構造に よって決まると考えられるが,残留抵抗  $\rho$  の場合と同様に,これが中性子スペ クトルに依存しないと仮定する。これは多くの化合物系超電導体が照射粒子( 中性子,重イオン,電子等)の種類,及び,そのエネルギーにあまり関係なく, 十分照射した後の飽和値が4~3 K程度の値になることから妥当な仮定である と思われる。又  $\kappa$  は特定のエネルギーの中性子の損傷形成機構から決まる定数 であって,中性子エネルギースペクトルには依存しない。(第2章(2.7-6)

式参照)。従って(4.2-9)式に含まれる未定定数 $\kappa$ , $T_{C}$ ( $\infty$ )共に中性子スペクトルに依存しない。このことは、 $T_{C}$ ( $\infty$ )及び $\kappa$ が核分裂炉照射データを用いて決定できることを意味する。 $T_{C}$ ( $\infty$ )は核分裂炉照射での飽和値そのものを用いれば良い。又 $\kappa$ の方は(4.2-9)を $\phi$ で微分して得られる次の関係

 $(\partial T_{c} / \partial \boldsymbol{\theta})_{\boldsymbol{\theta}=0} = -(T_{co} - T_{c}(\infty))\kappa \langle D(E)\boldsymbol{\Sigma}(E) \rangle$  (4.2-10) から求めることが出来る。この式の左辺は,照射データの $\boldsymbol{\theta}=0$ での $T_{c}$ の勾 配から決まり,左辺の  $\langle D(E)\boldsymbol{\Sigma}(E) \rangle$ は核分裂炉照射中性子スペクトルを使って 計算できる。従って $\kappa$ は

 $\kappa = -(T_{co} - T_{c}(\infty)) \langle D(E) S(E) \rangle / (\partial T_{c} / \partial \Phi)_{\theta=0} \qquad (4.2 - 11)$ なる式から計算される。表4.2 - 1は, Sweedler 等の原子炉照射実験データ<sup>(3)</sup>から*k*を計算したものをまとめたもので  $\langle D(E) S(E) \rangle$ は第2章の銅の場合と同様, LSS理論を使って求めた。*k*が決まると(4.2-9)式を使って $T_{c}$ の $\Phi$ 依存性及び,中性子エネルギースペクトルの影響を調べることができる。

図 4.2-1~図 4.2-4は, Nb<sub>3</sub>Sn, Nb<sub>3</sub>Ge, Nb<sub>3</sub>Aℓ, V<sub>3</sub>Si の場合について

|                                 | N b 3 S n | Nb₃Ge                   | N b 3 A l                | V <sub>3</sub> Si           |
|---------------------------------|-----------|-------------------------|--------------------------|-----------------------------|
| Tc (0) (K)                      | 18        | 2 1                     | 18                       | 17                          |
| Τ <sub>C</sub> (∞) (K)          | 3         | 4                       | 4                        | 2                           |
| $<$ D(E) $\Sigma$ (E)> (KeV/cm) | 1.7       | 1.7                     | 1.9                      | 1.6                         |
| $\kappa$ (cm <sup>3</sup> /KeV) | 2.7 x 1 0 | <sup>20</sup> 4.2 x 1 0 | <sup>-20</sup> 2.5 x 1 0 | $0^{-20}$ 5.3 x 1 $0^{-20}$ |

表 4.2-1 化合物系超電導体のK



図 4.2-1: Nb<sub>3</sub>Sn の*T*<sub>c</sub>に対する核融合炉中性子照射効果。αは核融合中性子(10~14 MeV)の割合(第2章2.7節参照)



図 4.2 – 2 Nb<sub>3</sub>Ge の  $T_{C}$  に対する核融合炉中性子照射効果

-83-



図 4.2 – 3:  $Nb_3A\ell O T_C$  に対する核融合炉中性子照射効果



図 4.2-4: V<sub>3</sub>Siの *T*<sub>c</sub>に対する核融合炉中性子照射効果 -84-

の計算結果である。ただし、銅の場合と同様のモデル中性子スペクトルを用いた。従って、図中のパラメータαは、中性子束に含まれる、10~14MeVの核融合中性子の割合を表す。いずれの超電導体の場合においても $\alpha$ が増すに従って $T_c$ の劣化が加速される。例えば、最も極端な場合として $\alpha = 0$ %と $\alpha = 100$ %を比べると $T_c$ の劣化速度が照射量で約1桁速くなる。一方、 $V_3$ Si は Nb<sub>3</sub>Sn に比べて照射効果が大きいことがわかるが、これは、 VやSi がNbやSn 等より質量が小さい為に一次ノックオン原子の平均エネルギーが大きくなり損傷効果が大きくなることから生ずるものと考えられる。

## 4.3 Jc劣化の中性子スペクトル効果

臨界電流密度 J<sub>c</sub> に対する照射効果は,第1章1.3節で述べた如く複雑で, J<sub>c</sub> はふつう低線 量側でピークを示す。 このピーク効果は外部磁場に依存するが これは1.3節でスケーリング則を用いて説明した。所で,さらに1.3節で述べ た様に Jc のピーク効果は試料作成時の加工方法,熱処理の仕方等にも依存す る。これは、一般に磁束量子線とピン止め中心(格子欠陥)の相互作用のメカ ニズムを考慮して説明される<sup>(4,5)</sup> 例えばKramer<sup>(5)</sup>によると、ピン1個、即ち欠 陥1個当りの磁束量子線に対するピン止め力は,欠陥の数が少ないとき,一定 であるが,欠陥同志が互いに影響し合う程,多くなると欠陥1個当りのピン止 め力はそれにつれて減少する。従って、照射前の試料が加工、熱処理等で欠陥 の多い状態になっていると、照射によって導入される欠陥は、ピン止め力を減 少さす。このピン止め力の減少は、結晶の秩序性の減少等に起因すると考えら  $n^{(4)}$ ているが、この秩序性の減少は 1.3 節で述べたように、 $T_{\rm C}$ の劣化の原因に もなっているから, $J_c$ の劣化と $T_c$ の劣化は相関があると考えられる。図 4.3 -1は $J_c$ がピーク効果を示さない、Parkin等<sup>(6)</sup>の実験データを、 再プロット したもので、縦軸が $T_c$ の劣化率、 横軸が $J_c$ の劣化率を表わす。図に見れる如 く、両者がほぼ直線上にのり、上記の考えの妥当性を示している。そこでピー ク効果を示さない試料のJcの劣化率は、Tcの劣化率に比例すると仮定すると J<sub>c</sub> のØ 依存性は (4.2-9) 式より



図 4.3-1: Nb<sub>3</sub>Sn の  $J_c$  の劣化と $T_c$  の劣化の関係 横軸:  $J_c$  の劣化率  $\Delta J_c = J_c(\mathcal{Q}) - J_c(0)$ 縦軸:  $T_c$ の劣化率  $\Delta T_c = T_c(\mathcal{Q}) - T_c(0)$ (Park in<sup>(6)</sup>等の実験データを再プロットした)

 $J_{c}(\boldsymbol{0}) = (J_{c}(0) - J_{c}(\infty)) \exp^{-\kappa} \langle D(E) \Sigma(E) \rangle \boldsymbol{0} + J_{c}(\infty), \qquad (4.3-1)$ と書くことができる。図 4.3-2は,  $J_{c}(0) = 1 \times 10^{5}$  (A/cm<sup>2</sup>),  $J_{c}(\infty) = 1 \times 10^{4}$  (A/cm<sup>2</sup>) として, Nb<sub>3</sub>Sn の  $J_{c}(\boldsymbol{0})$ を数値計算したものである。 $T_{c}$  同様,核融合中性子の 割合  $\alpha$  が多い中性子スペクトル照射によって  $J_{c}$  の劣化が早くなることを示して いる。



図 4.3-2: Nb<sub>3</sub>Snの Jc に対する核融合炉中性子照射効果

#### 4.4 結 言

第2章で論じた2領域モデルを超電導体にも適用し、さらに、損傷を受けた 超電導体の電子-フォノン結合定数を、夫々の領域の体積平均でおき置えること によって、中性子エネルギースペクトルを考慮した $T_c$ の照射効果を与える一般 式を得た。核分裂炉照射データがあれば、この式を用いて核融合炉中性子照射 下での $T_c$ の劣化を予想できる。Sweedler等の原子炉照射データを用いて、数 値計算した結果、中性子線量中に含まれる10~14 MeVの核融合中性子の割合  $\alpha$  が 増すに伴って $T_c$ の劣化がより低線量側で起り、 $\alpha = 0$  % と  $\alpha = 100$  % を比 べると照射量で約1桁、劣化が早く起る。 $J_c$ の中性子スペクトル効果につ いては、照射によるピーク効果のない超電導体について考えた。この場合 $J_c$ の劣化率が $T_c$ のそれと比例するという仮定の下で、 $J_c$ の照射効果が、中性子 スペクトルによってどの様に変るかを調べるには,照射によって導入される欠陥の構造,及び欠陥と磁束量子線との相互作用等について,さらに詳細な解析 が必要であり,今後の課題である。

## 参考文献

- (1) W. L. McMillan, Phys. Rev. vol.167 (1967) 331
- (2) J. Appel, Phys. Rev. B vol.13 (1976) 3203
- (3) A. R. Sweedler, D. E. Cox and S. Moehlecke, J. Nucl. Mat. vol.72 (1978) 50
- (4) W. Heinz and E. Siebt, MT-6 (1977) IP-13
- (5) E. Kramer, J. Nucl. Mat. vol.72 (1978) 5
- (6) Don. M. Parkin and A. R. Sweedler, MAG-11 No.2 (1975)

# 第5章 複合超電導導体の安定性に対する核融合炉 中性子照射効果

#### 5.1 緒 言

大電流,強磁場,及び大きな応力下で運転される核融合炉用超電導磁石は, それ自身特有の不安定性サイクル

…→磁束侵入→ジュール発熱→温度上昇→しゃへい電流減少→磁束侵入→… を有する。この不安定サイクルは,電磁気的,機械的,熱的,及び放射線等の 擾乱によって,どこからでも始まり得るが,このサイクルが短時間の間にくり 返されるとその領域の温度はしだいに上昇する。もし,温度が,臨界温度T<sub>c</sub> を越えると,その領域の超電導状態は破れ常電導相が出現する。常電導領域の 出現によってジュール発熱が起るが,これは増々常電導領域を広げることにな る。このような常電導領域の伝幡は,場合によっては,超電導磁石全体に及ぶ ことがある。この時磁石全体は短時間の間に破局的に常電導転移を起し,磁石 の破損をまねくことになる。これを防ぐために通常,超電導体を,電気抵抗の 小さい銅等で覆い,電流をこれらの金属の方へバイパスすると共に,ジュール 熱を速やかに拡散するようにする。(純度の高い銅は,液体へリウム温度で超 電導体の常電導状態における抵抗の数百分の1である。)このような目的で使 われる電気抵抗の小さい金属は,安定化材と呼ばれる。(第1章参照)安定化材 の量が多ければ多い程,その複合超電導体はより安定になるが,安定化材の量 がふえるに伴って,導体の断面積が大きくなり,実効電流密度が低下する。

最適の安定化材の量は、電流のオーバフロー、ジュール発熱による 温度上昇が起っても、再び元の安定状態へ戻るという条件下で決められる。こ のようにして決められた安定化材の量は、通常、超電導特性、及び安定化材の 電気抵抗に依存する。所が、第2章及び第4章で述べた様に、核融合炉環境下 においてこれらの物性値は中性子照射の為に著しく変る。従って中性子照射効 果を考慮した安定化の議論が必要である。本章ではMaddock<sup>(1)</sup>の安定化理論を 力学的アナロジーを使って取扱い、安定性に対する中性子照射効果を解析する。

-89-

## 5.2 安定化理論と力学的アナロジー

図 5.2-1 の如く,何らかの擾乱によって,超電導体の一部の温度が上昇し, 超電導部分に流れている電流が,その温度での臨界電流値を越えていると,電 流の一部は安定化材の方へバイパスする。この時,発生するジュール熱が安 定化材から液体へリウムへの熱伝達量よりも大きいとこの部分の温度は増々 上昇し,条件によっては臨界温度を越える場合がある。即ち,常電導領域が 出現することがある。発生した常電導領域が収縮,消滅し,再び元の超電導状態に 戻る為には,熱発生と熱除去の間で適当な釣合いが保たれなければならない。

熱エネルギーの出入りを記述する方程式は

 $\frac{d}{dt}\int CT\,dV = -\int \vec{J}\vec{n}\,dS + \int G\,dV \qquad (5.2-1)$ 

である。ここに左辺は導体中での熱エネルギーの単位時間当りの変化を表し、 Tは温度、Cは比熱である。積分は系の全体積V中で行う。一方、右辺の第一 積分は安定化材の表面Sを通じて、外から流入する熱エネルギーで、 $\vec{J}$ は熱流 束、 $\vec{n}$ は微小断面 dSの外向に垂直な単位ベクトルである。 $\vec{J}$ は熱伝導による 部分、-K grad Tと 熱伝達による部分Wの2つに分けることが出来る。即ち  $\vec{J} = -K$  grad  $T + \vec{W}$  (5.2-2)

ここに*K*は熱伝導度であり,又 $\vec{W}/\vec{n}$ である(5.2-1)式の右辺の最後の項の熱発生を表し,*G*は単位時間,単位体積中に発生するジュール熱である。(5.2-2)を(5.2-1)へ代入しガウスの定理を用いると、

 $\frac{d}{dt} \int CT \, dV = \int div \, K \, grad \, T \, dV - \int W \, dS + \int G \, dV \qquad (5.2-3)$ ここで, T, W, G等が導体の軸方向のみの分布を有する様な,一次元問題を 考える。そこで図 5.2-2の様に座標軸を取る。図 5.2-2で, An は 常電導部 分の断面積,又P は冷却長さ(ペリメター)である。すると (4.2-3) 式は

 $A_n \partial CT / \partial t = A_n \frac{\partial}{\partial x} K \frac{\partial}{\partial x} T - PW + A_n G$  (5.2-4) となる。従って定常分布を与える方程式は

$$\frac{\partial}{\partial x} K \frac{\partial}{\partial x} T - P W \neq A_n + G = 0$$
(5.2-5)

である。

境界条件が与えられると(5.2-5)式を満たす定常解が決まるが、その解が唯一



⊠ 5.2 - 1:

複合導体の基本的 構造を示す模式図。 斜線部分は外乱に よって,超電導体 の一部に生じた常 電導部分。この近 くの電流は安定化 材の方へバイパス する。



図 5.2 - 2:解析に用いる複合導体の座標系 温度の y, z方向の分布は均一分布を仮定し x方向のみの分布を考える。 図中, Pは冷却長さ, An は常電導体の断面積。

T(x)= 液体ヘリウム温度 T o

(5.2 - 6)

であることが,外乱によって生じた常電導領域が再び元の安定な超電導状態に戻 る必要条件である。物理的に要求された境界条件が常に(5.2-6)の定常解を もたらすとは限らない。これは一般に方程式(5.2-5)の構造による。 言い換 えるとWやGに左右される。従って安定化の問題は唯一の定常解(5.2-6)が 許されるためのW及びGが満たすべき条件を求めるということになる。

ヘリウム冷却による熱除去Wは,安定化材と液体ヘリウムの間の熱伝達で決 まりヘリウム温度からの差

$$\Delta T = T - T_0 \tag{5.2-7}$$

の関数として,一般に図 5.2-3の様な挙動を示す。OAは核沸騰,AB間は遷移領域,BCは膜沸騰を表す。通常の熱伝達において,コントロールされるものは温度でなく熱伝達量Wであるから,遷移領域ABは実際には存在しない。 銅と液体へリウムの間の熱伝達Wは近似的に

 $W(w/cm^{2}) \approx c_{1} (\Delta T - c_{2})_{C}^{-C_{3}\Delta T} + c_{4}\Delta T + c_{5}$ (5.2-8) なる実験式で表わすことが出来る。ここに

 $C_{1} = 6.11$   $C_{2} = 1.69 \times 10^{-2}$   $C_{3} = 3.62$   $C_{4} = 2.46 \times 10^{-2}$   $C_{5} = 1.03 \times 10^{-1}$ 

である。

熱発生 Gは,安定化材へ漏れ出た電流によるジュール熱であるが,これは3 つの部分に分けて考えなければならない。図 5.2-4 は, 超電導体の臨界電流 密度 J<sub>c</sub> の温度依存性を模式的に示したもので, 図中の As は 超電導部分の断 面積である。超電導体に I なる電流が安定に流れている状態は P 点に対応する。 外乱による不安定サイクルの開始によって,超電導体の温度が上昇してゆく過 程は

 $P \rightarrow Q \rightarrow R \rightarrow S$ 

-93-



図 5.2-3: 銅~液体ヘリウム間の熱伝達。

 $\Delta T$  は液体ヘリウムとの温度差,即ち  $\Delta T = T - 4.2$ 。 図中の曲線は近似的に $W \approx c_1 (\Delta T - C_2)_e^{-C_3 \Delta T} + c_4 \Delta T + C_5$ なる実験式で表わすことが出来る。

で表わされる。PQ間では安定化材への電流の漏れが全くなく、ジュール発熱 もない。しかし、温度がさらに上昇し状態がQR間に移ると、流している電流 Iがその温度での臨界電流を越えるので全電流の一部 $I - J_cA_s$ は安定化材の 方へ漏れ、ジュール熱が発生する。この時点では、しかし、温度が $T_c$ 以下であ るので常電導状態はまだ出現していない。この状態をCurrent Shearing State と呼ぶ。温度がさらに上昇し、状態がRS間に移行すると、温度が臨界温度 $T_c$ を越える為、遂に常電導相が現れ、電流 I はすべて安定化材の方へ流れる。

-94-



## 図 5.2 – 4:臨界電流の温度依存性

図中 $T_0$ は液体ヘリウム温度,複合導体は最初Pの 安定点にあるが外乱による温度上昇によって $P \rightarrow Q$  $\rightarrow R \rightarrow S$ の如く状態が移ってゆく。

以上の3つの状態での熱発生Gを定式化すると次の様になる。先ずPQ間で は明らかにG = 0である。次にCurrent Shearing State QRにおいて,電流 のオーバフローによる発生電圧をV,オーバフローしている領域の長さをL, 安定化材の抵抗率を $\rho$ とすると,ジュール発熱は,

$$IV = I (I - J_c A_s) \rho L / A_n$$
(5.2-9)

で与えられるからGは

$$G = IV / A_n L = I (I - J_c A_s) \rho / A_n^2$$
 (5.2-10)

となる。 R S間におけるGは (5.2–10) で $J_c = 0$  と置いて得られる。

いま簡単の為 Jc の温度依存性を T の一次式

$$J_c(T) \approx J_c^0 \ (1 - \frac{T - T_0}{T_c - T_0})$$
 (5.2-11)

で近似する。但し, $J_c^0 = J_c(T_0)$ である。ここで次の無次元化された温度と電流を導入する。

$$q = (T - T_0) / (T_c - T_0)$$
 (5.2-12)

$$i = I \nearrow A_s J_c^0 \tag{5.2-13}$$

さらに

$$G_0 = (A_s J_c^0)^2 \rho / A_n^2$$
 (5.2-14)

とおくと (5.2-10) 式は

$$G = G_0 \ i \ (q + i - 1) \tag{5.2-15}$$

従ってGをGo で規格化したものは,次の様にまとめられる。

$$G \neq G_{0} = \begin{cases} 0 & 0 \leq q \leq 1 - i \\ i (q + i - 1) & 1 - i \leq q \leq 1 \\ i^{2} & q \geq 1 \end{cases}$$
(5.2-16)

図 5.2-5 に (5.2-16) 式の関係を描いてある。

熱発生 Gと熱除去Wが,温度Tに対して上記の如く変るとき,方程式(5.2-5)の解がどのような挙動をするかを,以下において"力学系のアナロジー" を使って解析的調べることにする。先ず,次の様な無次元量を導入する。

$$\tau = \mathbf{x} \neq \mathbf{x}_{0}$$

$$\mathbf{w} = \mathbf{W} \neq \mathbf{W}_{0}$$

$$\mathbf{g} = \mathbf{G} \neq \mathbf{G}_{0}$$

$$\mathbf{m} = K(T) \neq K(T_{0})$$

$$(5.2 - 17)$$

ててに

$$x_{0} = \sqrt{K(T_{0})(T_{c} - T_{0})/G_{0}}$$

$$W_{0} = G_{0}A_{n}/P$$

$$(5.2-18)$$

これらの無次元化された量を用いて熱伝導の方程式(5.2-5)を書くと

$$\frac{d}{d\tau}m\frac{dq}{d\tau} = w - g \tag{5.2-19}$$



 図 5.2-5:ジュール発熱の温度依存性 横軸:無次元化した温度(式(5.2-12)) 縦軸:無次元化したジュール発熱 図中 *i* は輸送電流 *I* を A<sub>s</sub> J<sub>c</sub>(T<sub>0</sub>)で規格化した値。

となる。そこで今qを1つの力学系における質点の"座標", mをその"質量"  $\tau$ をこの力学系の"時間"と見ると,(5.2-19)は"力"w - gの作用下で運動する 質点の運動方程式を表わすことになる。従って元の熱伝導の方程式(5.2-5) が唯一つの定常解(5.2-6)を持つかどうかという問題は, Dw - gを受けて 運動する質点が"原点"で静止し続けるかどうかという問題,即ち

 $\boldsymbol{q}\left(\tau\right) = 0 \tag{5.2-20}$ 

なる条件に帰着されよう。熱電導の方程式(4.2-5)に与えるべき境界条件は, 運動方程式(5.2-19)では,初期条件となるが,質点がその様な初期条件の下 で,原点で静止し続ける為には,力*w* - *g* が *q* の適当な関数でなければならな い。以下,簡単の為,熱伝導度*K*は一定とする。従って(5.2-17)より質点の 質量mもqに無関係な定数となる。KがTに依存するような一般的な場合を考える時は,付録5.2-1に示したようなqに対する座標変換を行えば,同様な議論が出来る。さてmが一定の時,座標qと正準共役な運動量pは

$$p = m \ d \ q \ / \ d \ \tau \tag{5.2-21}$$

であり、この質点のハミルトニアンH(q, p)は

$$H(q, p) = p^{2} / 2m + U(q) \qquad (5.2-22)$$

である。ここにU(q)は質点のポテンシャルエネルギーで

$$U(q) = \int_{0}^{q} (g(q) - w(q)) dq \qquad (5.2-23)$$

であって, g(q), w(q)の関数形が変るとU(q)も変る。このハミルトニアンを用いて, 運動方程式 (5.2-19) は 正準方程式

 $d q / d \tau = \partial H (q, p) / \partial p , \quad d p / d \tau = -\partial H (q, p) / \partial q$ (5.2-24)

に書き変えれる<sup>(2)</sup>。これは,位相空間 (q,p)における質点の速度を与えるものであって,このときハミルトニアンH (q,p) は運動の定数であるが,この値は,初期条件,即ち元の熱伝導の式で言えば境界条件で決まる。十分大きな体系を考える限り超電導体の両端 $x = \pm x_{\infty}$ では, $T \simeq T_{0}$ , $KdT / dx \simeq 0$ であると考えられるから,質点に対する初期条件は, $\tau \simeq \pm \tau_{\infty}(= x_{\infty} / x_{0})$ なる $\tau$ に対して

q (±  $\tau_{\infty}$ )  $\simeq 0$  , p (±  $\tau_{\infty}$ )  $\simeq 0$  (5.2-25) である。ゆえにハミルトニアンは定数0に近い値を取り

$$H(q, p) \simeq 0$$
 (5.2-26)

である。等号は超電導体の両端が完全にヘリウム温度に冷却されているときに 成り立つ。 (5.2-26)によって,質点の位相空間 (q,p)における質点の軌 道が完全に決まるがこの軌道はポテンシャルU(q)の形に応じて変る。そこで,こ の様子を少し詳しく調べてみる。先ずqの定義域は $q \ge 0$ であってq = 0のと きU(0) = 0でありqが0に近い値の時,図 5.2-3 及び図 5.2-5 から判る様に q(q) = 0, $w(q) \neq 0$ であるから (5.2-23)式よりU(q)<0となる。従ってU(q)

-98-

はq = 0で1つの極大値を持つことになる。図 5.2-6 及び図 5.2-7 は,この ようなU(q)と位相空間における軌道の関係を示したものである。図 5.2-6の様 にU(q)が正の値を取れるとき,ハミルトニアンH(q, p)がいくら0に近い定 数であっても,位相空間における質点の軌道は原点の囲りを大きく回る曲線と なり,質点の運動は (5.2-20)の運動から大きくずれることになる。しかるに 図 5.2-7 の様にU(q)が常に負の値しか取らないときは,H(q, p)が0に近 い限り,即ち超電導体の両端が十分へリウム温度に冷却されている限り,質点 は位相空間の原点近くを動く。このとき $q(\tau) \simeq 0$ でありこれは $T(x) \simeq T_0$ を意 味する。ゆえに超電導体に対する安定化条件として,任意の正のqに対して

 $U(q) \leq 0$  (5.2-27) を得る。所で図 5.2-3のW及び図 5.2-5のGの形からU(q)はもう1つの極大 点を持つことが判る。(図 5.2-8参照)。 この極大値を与える $q \neq q'$ とする と、これは

$$\partial U / \partial q' = g(q) - w(q) = 0$$
 (5.2-28)  
決まる。従って (5.2-27) の安定条件は最終的に

から

$$U(q') = \int_{0}^{q'} (g - w) dq \leq 0 \qquad (5.2-29)$$

と同じである。ジュール熱g(q),及び熱除去w(q)は,一般に,超電導体の $T_c$ ,  $J_c(T_0)$ ,安定化材の $\rho$ ,流している電流I,及び導体の断面積 $A_n$ , $A_s$ 等に よってその形が変る。従って (5.2–28)を満たすq'もこれらに依存する。ゆえ に (5.2–29)の不等号の左辺もこれらの物性パラメーター及び幾何学的パラメー ターに依存し,(5.2–29)式は,これらのパラメーターが満たさねばならない条 件式となる。

例えば銅で安定化された Nb<sub>3</sub> Sn 超電導体の場合を考えると,  $T_c = 15K$ ,  $J_c(T_0) = 10^5 A/cm^2$ ,  $\rho_{Cu} = 5 \times 10^{-8} \Omega cm$ , P = 1 cm,  $A = A_n + A_s = 1 cm^2$ とした場合,最大の電流(臨界電流) $I = I_c = A_s J_c(T_0)$ を流しているときでも安定条件(3.2-29)が満たされる為には,常電導体/超電導体比

$$R_{ns} = A_n / A_s \tag{5.2-30}$$





図 5.2-6: U(q)及び位相空間(q, p)内の軌道を表す模式図(I) (U(q)が正の値を持つ場合)



図 5.2-7: U(q)及び位相空間(q, p)内の軌道を表す模式図(II) (U(q) <u>(</u>0の場合)



図 5.2 - 8: W, G及びUの関係

を約30にしなければならない。言い換えると  $R_{ns}$  = 30 に選べば,臨界電流下 においても,この複合線材は "Cryostable"である。

輸送電流をもっと低い値,例えば

0. 2  $\times$  I<sub>c</sub>

に抑える場合,即ち80%の電流マ−ジンを見込んで使用するときは,(5.2-29) を満たす *R<sub>ns</sub>* は 4 ~ 5 程度で良いことになる。

[付録 5.2-1]

Kが AT に依存するとき,質量mは,qの関数m(q)となる。そこで次の新しい変数 $q^*$ を導入する。即ち

$$m_0 q^* = \int_0^q m(q) dq \qquad (A 5.2 - 1)$$

ここに $m_0$  は正の定数である。 $m \ge 0$ ,  $q \ge 0$  であるから $q^*$  はq の正の関数と なっている。従って逆にq は $q^*$ の正の関数 $q(q^*)$ と考えられる。もしm(q)がqの一価関数ならば,力

 $F(q(q^*)) = w(q(q^*)) - g(q(q^*))$ は  $q^*$  の一価関数として一義的に決まり (4.2-19) 式は

$$m_0 \frac{d^2 q^*}{d \tau^2} = F^*(q^*) \tag{A5.2-2}$$

となる。ここに $F^*(q^*) = F(q(q^*))$ と置いた。

(A 5.2 - 2) は,一定の質量 $m_0$ の質点に対する力 $F^*(q^*)$ の下での運動方程式となる。 $m_0$  は $F^*(q^*)$ が簡単になるように選べば良い。例えば $K \propto dT$ の場合を考えると,比例係数をrとして

$$m_0 \frac{d^2 q^*}{d \tau^2} = F \left(\sqrt{q^*}\right) \tag{A5.2-4}$$

となる。

## 5.3 安定性に対する核融合炉中性子照射効果

安定化条件(5.2-29)は  $I \Leftrightarrow R_{ns}$  に対する設計基準を与える。しかし,核融 合炉中性子照射下においては, $T_c$ , $J_c$ , $\rho$  が照射効果によって変る為,安定 化された  $I \Leftrightarrow$ , $R_{ns}$  が変る。言い換えれば照射効果によって $T_c$ , $J_c$  が劣化し,  $\rho$  がふえるため"ポテンシャルUが上昇し",複合導体の安定性が低下する。この ポテンシャルを下げるために,より多くの $R_{ns}$  が必要となる。従って,例え ば,最初に設計した $R_{ns}$ が,照射効果によって,最悪の場合,安定化条件を満 たさなくなることもあり得る。このため照射効果を考慮した安定化パラメータ - の決定が重要である。

第2章において $\rho$ の中性子照射効果を,第4章においては $T_c$ と $J_c$ の中性子 照射効果を,それぞれ中性子スペクトルを考慮して論じたが,この結果を用い て安定性への照射効果を調べてみる。

先ず (5.2-29)のU(q)は, I,及び $R_{ns}$ によって変るので,これを新たに $U(I, R_{ns})$ と書く。従って,安定化条件は

$$U(I, R_{ns}) = \int_{0}^{q'} (g - w) dq \leq 0 \qquad (5.3 - 1)$$

但し, g(q), w(q), q'等はすべてI, 及び $R_{ns}$ によって変る。 (5.3-1)は 超電体がCryostable である為のI及び $R_{ns}$ が満たさなければならない条件を 与える。そこで先ず最大の電流 $I_c = A_s J_c$ の下でも (5.3-1)が成り立つ条件 を考える。これは $R_{ns}$ の下限を与える筈であるから、これを $R_{ns}^*$ と書くと $R_{ns}^*$ は

 $U(I_c, R_{ns}^*) = 0$  (5.3-2) を解いて得られる。図 5.3-1は,銅で安定化されたNb<sub>3</sub>Snの $R_{ns}^*$ を横軸 $\phi$ に対してプロットしたもので,計算に用いたパラメーターは,表 5.3-1にまとめてある。

図中の各曲線は核融合炉中性子(10~14 MeV)の割合  $\alpha$ が異なるものを表わ している。これらの曲線の特徴は、ある照射量で $R_{ns}^*$ が最大となることである。 最初 $R_{ns}^*$ が増えるのは、 $T_c$ 及び銅の伝導度 $\rho^{-1}$ の劣化による。即ち安定性が低 下し、ポテンシャルUが上昇するため、これを下げるのにより多くの安定化材


図 5.3-1:安定化された R<sub>ns</sub>のØ 依存性。 α は核融合中性子(10~14MeV)の割合

表 5.3 - 1

 $T_{c}(0) = 15$  (K)  $T_{C}(\infty) = 3 (K)$  $J_{c}(\infty) = 10^{4} (A/cm^{2})$  $J_{c}(0) = 10^{5} (A/cm^{2})$  $\rho(0) = 5 \times 10^{-8} (\Omega cm) \qquad \rho(\infty) = 5 \times 10^{-7} (\Omega cm)$  $A = 1 \text{ cm}^2$ , P = 1 cm

が必要となるのである。一方,最大値を取った後, $R_{ns}^*$ が減少するのは, $J_c$ が劣化する為,導体に流せる最大電流 $I_c$ 自身が下り,ジュール発熱が大きくな らない為である。 $R_{ns}^*$ の最大値は, $\alpha$ の全範囲で 65~75 であり  $\alpha$ の依存性は 弱い。これは恐らく, $T_c(\theta)$ , $J_c(\theta)$ , $\rho(\theta)$ を $\theta$ の同じような関数で記述し,夫々 の飽和値が中性子エネルギースペクトルに依存しないと仮定したことによるも のと思われる。一方 $R_{ns}^*$ が最大となる $\theta \approx \theta_{max}$ と書くと, $\theta_{max}$ は $\alpha$ の増加 に伴って,低線量側へずれてゆく。図 5.3-2 は,この関係を明確にするために  $\theta_{max}$ を横軸  $\alpha$  に対して描いたもので, $\theta_{max}$  が $\alpha$ の増加と共に急激に減少する ことが判る。核融合炉の超電導磁石領域では,平均的な $\alpha$ の値が5%程度と考えられ るが、この場合 $\theta_{max}$ は,約5×10<sup>18</sup>  $n/cm^2$ である。しかし, $\alpha$ の値が20%を越え ると $\theta_{max}$ はほとんど飽和値10<sup>18</sup> $n/cm^2$ 近くまで下る。この効果は,14MeV中性 子の漏れに対する遮蔽の問題を取扱う場合に考慮されるべきであろう。



図 5.3-2:  $R_{ns}^*$ の最大値を与える $\mathcal{O}$ の  $\alpha$  依存性

-106-

次に $R_{ns}$ の値が、 $R_{ns}^*$ の様な大きな値を、例えば経済的な理由の為に、取る ことが許されない場合を考える。この時は,流す電流 Iの方を, Ic よりずっと 低い値に抑えねばならない。この様な電流の上限 Imax は,臨界条件

 $U (I_{max}, R_{ns}) = 0$ (5.3 - 3)から決まる。図 5.3-3 は ,  $R_{ns}$  = 4 の場合の  $I_{max}$  を 実効電流密度 (Overall Current Density)

 $J_{max}^{OV} = I_{max} / A$ 

 $J_{max} = I_{max} / A$  (5.3-4) で、のに対して描いたものである。但し $J_{max}^{OV}(\emptyset)$ は照射前の値 $J_{maxo}^{OV} = J_{max}^{OV}(0)$ で規格化してある。図に見れる如く、 $J_{max}^{OV}$ の劣化は、 $g \sim 10^{16} n$  /cm<sup>2</sup>の程度から起り 始める。この程度の照射量では、図 5.3-4 から判る様に、 $T_c$ 、 $J_c$ はほとんど



図 5.3-3:安定化された電流密度の照射量依存性

**横軸:中性子照射量***●* 

- 縦軸:安定化されたオーバーオール電流密度  $J_{max}^{OV}$  を 照射前の値  $J_{max0}^{OV}$  で規格化したもの。
- 図中, α は核融合中性子 (10~14MeV)の割合, (第2章(2.7-16)式参照)



図 5.3-4: *T<sub>c</sub>*, *J<sub>c</sub>*, *ρ*の核融合炉中性子照射効果 横軸:中性子照射量*Φ* 縦軸:*T<sub>c</sub>*, *J<sub>c</sub>*, *ρ*<sup>-1</sup>を照射前の値で規格化したもの。

変化しないから,  $J_{max}^{OV}$ の劣化は,主に安定化銅の伝導度 $\rho^{-1}$ の劣化によるもの であると考えて良い。又,  $J_{max}^{OV}$ の劣化速度は,  $\alpha$ の増加によって加速される。例 えば,最も極端な場合,即ち $\alpha = 100$ %の場合では,  $J_{max}^{OV}(\emptyset) / J_{max}^{OV}(0) = 0.5$ となる $\theta$ は3×10<sup>IV</sup>  $n/cm^2$ であって,  $Cnce\alpha = 0$ %の場合と比べると約1/5 である。さらに, Cnce超電導体の $J_c$ 自身の劣化と比べると(図5.3-4参照) 約1/10となり,照射量で約1桁早く劣化が進行する。特に $\alpha = 100$ %の場合 を考えると,  $J_{max}^{OV}$ は,  $10^{16}n/cm^2$ 以下から劣化が顕著になり始める。 この照射 量は,中性子束を10° $n/cm^2$ ・secとすると約100日の照射時間に相当する。従 って複合超電導体が,核融合炉中性子の割合の非常に多い照射を局所的に受 ると,その部分では安定性が短期間に低下してしまうと考えられる。この様 な場所は、超電導磁石のクェンチの源となり得る可能性がある。実際の核融 合炉超電導磁石が、 $\alpha = 100$ %の(中性子ストリーミングによる) 照射を受 ける可能性は、少ないと思われるがこのような、安定性の $\alpha$ 依存性を考慮す ると核融合炉中性子の漏れに対する十分な配慮が、特に cryostabilityの観 点から見て重要である。

最後にある程度の電流マージンを取ることが許される場合の安定化された  $R_{ns}$ を求める。 (5.3-2)式は最大の電流 $I_c$ 下で安定化された $R_{ns}$ を決める が,最大電流をもう少し下げて (1-M) $I_c$ にするとき,即ち,最大電流に関 して割合Mのマージンを取るときの安定化された $R_{ns}^*$ を考える。この $R_{ns}^*$ は,



図 5.3-5: R<sup>\*</sup><sub>ns</sub> の最大値と電流マ-ジンの関係。 横軸:電流マ-ジンM 縦軸: R<sup>\*</sup><sub>ns</sub>の最大値 図中αは核融合中性子(10~14M<sub>e</sub>V)の割合。

 $U((1-M)I_{c}, R_{ns}^{*}) = 0$  (5.3-5) を解いて求まる。この $R_{ns}^{*}$ は,ある $\sigma$ でやはり最大値を持つが,この最大値は 電流マージンMに依存する。図 5.3-5 は, 横軸M(%)に対して,この $R_{ns}^{*}$ の最 大値を描いたものであって, $R_{ns}^{*}$ の最大値を低く抑えるには電流マージンMを 十分多く取らねばならない。例えば $R_{ns}^{*}$ の最大値を20以下に抑える為には,電 流マージンを60%以上に取る必要がある。なお図中の曲線はいずれの $\alpha$ に対し ても大差がないが,これは前述と同じ理由による。

#### 5.4 結 言

超電導磁石が核融合炉中性子照射環境下で使用される場合の複合超電導導体の安定 性に対する中性子照射効果を解析的に調べ,その計算結果からいくつかの重要 な知見が得られた。これを要約すると次の様になる。

- (1) 安定化された R<sub>ns</sub> 比は照射量の増加と共に著しく増大しある照射量で最大 に達する。 R<sub>ns</sub> の最大値は照射前の値の数倍に及ぶ。
- (2) R<sub>ns</sub> が最大となる照射量 Ø の値は, α の増大に伴って低線量側へずれてゆく。
- (3)  $R_{ns}$ の小さな複合線材では,安定化された電流密度の上限は, $T_c$ , $J_c$ が わずか数%しか劣化しない照射量でも,数10%劣化する。これは安定化銅の 残留抵抗 $\rho_{cu}$ の照射効果が主に影響している。
- (4) 電流マ ジンを適当に取ることによって,安定化された R<sub>ns</sub>の最大値を下
   げることができる。

### 参考文献

- (1) B. J. Maddock, G. B. James and W. T. Norris, Cryogenics, Aug. (1969) 261
- (2) 後藤憲一「力学通論」学術図書出版社

## 第6章 総括,討論

本研究は、核融合炉用超電導磁石材料の内で安定化材,熱的及び電気的絶縁 材,超電導体及び複合超電導導体の核融合炉中性子照射損傷における基礎的問 題を取上げ,その理論考察を行った。表6-1は,その結果明かになった点, 炉工学への寄与,今後の課題をまとめたもので,これに従って総括すると以下 の様になる。

-安定化材(第2章)-

安定化材の中性子照射効果による残留抵抗増加を詳しく調べることは、超電 導磁石の中性子照射下での安定化を議論する上で非常に重要である。何故なら ば、超電導磁石の安定性は安定化材の伝導度に大いに左右されるからである。 本研究は、高速中性子照射下での残留抵抗の増加機構を、損傷領域を2種類に 分ける2領域モデルによって解析し、損傷率等の実験デ-タと比較することに よって残留抵抗増加におけるカスケード効果の役割を明らかにした。又、残留 抵抗の増加に対する核融合中性子(10~14 MeV)の効果を調べるため、核融合 中性子の割合αが異なるいくつかのモデルスペクトルを導入し, 夫々の損傷領 域の生成断面積が損傷エネルギーに比例するという仮定の下で、αの違いによ る残留抵抗の増加の変化を解析した。但し、ここで導入した中性子スペクトル は,あくまでモデルスペクトルであって,実際の核融合炉超電導磁石領域で予 想される中性子スペクトルの分布を必ずしも模擬したものではない。従って, 例えばα=100%のモデルスペクトルは、ある程度のしゃへいを有する実際の の超電導磁石領域ではほとんどあり得ないスペクトルであろう。α = 100 %の モデルスペクトルを考えることの意議は、RTNS-II等における 14 MeV中性子 照射の実験結果の解析を通して、本理論の妥当性を検討する時に生ずるもので あることを記しておく。従って今後の課題の1つは、14MeV中性子照射実験の データが蓄積されれば、これらを本理論の予測結果と比較、検討した後、より 実際的な中性子スペクトルを用いて,核融合炉中性子照射下での照射効果を調 べることである。なお、今後の問題として上記の他に、炉のパルス運転に伴う機 械的疲労による残留抵抗との同時効果が重要であろうと思われる。何故なら疲

| 材料              | 本研究が明かにした点        | 炉工学への寄与  | 炉工学的見地から見た今後の課題                                  |
|-----------------|-------------------|--|--|
|                 | (1) 残留抵抗増加過程におけるカ | 安定化材の核融由姓子   | <ol> <li>RTNS-I 実験データとの比較</li> </ol>             |
| キシャキ            | スケード効果            | 文ににとって時一日の開始の一日の一日の一日の一日の一日の一日の一日の一日の一日の一日の一日の一日の一日の | (2) 機械的疲労による残留抵抗の増加と                             |
| 安地北例            | (2) 残留抵抗増加の中性子スペク | 派治必不下因う。単派   | の同時効果の解析   |
|                 | トル効果              |  |  |
|                 | (1) 衝撃波効果による損傷過程の | 絶縁材(特に有機系)   | (1) 実用材での衝撃波効果のモデル解析                             |
| ++<br>[7]<br>47 | 可能性               | の14 MeV中性子照射損  | (2) 照射損傷メカニズムの解析                                 |
| 統後              | (2) 空孔生成エネルギーと融点の | 傷の研究の重要性を指   |  |
|                 | 関係                | 摘  |  |
|                 |                   |  | <ol> <li>RTNS-II実験データとの比較</li> </ol>             |
| 化合物系            | 臨界温度及び臨界電流の照射劣化   | しゃくい役当ら必安なませず、                                       | <ol> <li>J<sub>c</sub> のピーク効果を取入れた解析</li> </ol>  |
| 超電導体            | における中性子スペクトル効果    | ◎ 1000 1000 1000 1000 1000 1000 1000 10              | <ol> <li>J<sub>c</sub> の応力効果を取入れた同時効果</li> </ol> |
|                 |                   | <b>汽</b>   | の解析  |
|                 | (1) 核融合炉中性子照射下での最 | 核融合炉中性子照射下   | (1) 安定化材の疲労効果を取入れた解析                             |
| 複合超電            | 適安定化材の量           | における超電導磁石の   | <ul><li>(2) Jc の応力効果を取入れた議論</li></ul>            |
| 導 導 体           | (2) 安定化電流低下における中性 | 安定化に関する基礎デ   | <ul><li>(3) 3次元問題としての取扱い</li></ul>               |
|                 | 子スペクトル効果          | - タの提供   |  |

表 6 - 1

労による残留抵抗の増加は、照射による効果と同程度であるからである。(\*) - 絶縁材(第3章)-

絶縁材の高エネルギーイオン照射損傷においては、従来のいわゆる2体衝突 に基ずくカスケード損傷以外に多体衝突に基ずく原子の集団励起による損傷過 程も可能であることを、UO₂核分裂破片による損傷例の解析を通して示した。 この効果は,例えば,特に軽元素から構成されている有機系の絶縁材の14MeV 中性子損傷において考慮すべきであると考えられる。表6-2はUO2の核分裂 破片損傷と有機絶縁材(Epoxy等)の 14 MeV 中性子による損傷の場合を比較し たものである。表中Mv<sup>2</sup>(Mは構成元素の質量, v<sub>s</sub>は音速)は圧縮エネルギーで, カスケードの最終段階で衝撃波を発生させるのに必要な、原子1個当りの平均 エネルギーに相当する。表から明らかな様に有機絶縁材の場合、1次ノックオ ン原子のエネルギーは最大

表 6 - 2

 $M v_s^2$ 

でも 14 MeV(即ち、中性子 が構成元素の水素をはじき 出したとき)であって,UO2 の場合の核分裂破片のエネ ルギー, 80MeVの約1/6で あるが衝撃波を発生さすの

UO2 有機系絶縁材 損傷を与え るイオンの 80 MeV  $< 1.4 \,\mathrm{MeV}$ エネルギー 音 速 v、  $\sim 10^{3} m / sec$  $\sim 5 \times 10^3 m / \text{sec}$ 

25 eV

≪ 1 eV

に必要なエネルギーは1/25以下で良い。従ってエネルギー的には、有機材の14 MeV中性子損傷において衝撃波の発生は可能であると思われる。一般に有機絶 縁材は中性子線およびr線の両者の損傷が問題となるが.吸収エネルギーの大 小から見ればむしろr線による損傷の方が大きい。しかし、中性子照射による 損傷は第2章で述べた様なカスケード損傷であり,直接原子核を変位させるた めこのような損傷を, r線による化学結合の切断等の分子的な変化のみを与え る損傷と吸収エネルギーだけで比べるのは妥当でない。特に核融合中性子照射 によって衝撃波損傷が可能であるならば、核融合中性子はア線による損傷とは 本質的に異なった損傷をもたらすことになる。従って核融合中性子の割合が多 い中性子束の照射を受ける場合は,核分裂炉の照射あるいは r線の照射実験だ けでは核融合炉での照射損傷を十分模擬できないと予想される。このことを考

-113-

<sup>(†)</sup> 片桐等による。 (ICMC. Colorado Springs, Aug. 15-19.1983, FZ-4)

慮すると、今後有機材の核融合中性子の照射効果データの蓄積が重要であろう。

第3章の後半では,空孔生成の液体モデルを提案しイオン結合性絶縁体の空 孔生成エネルギーを,その物質の融点,格子定数及び誘電率から見積る一般式 を導出した。この式を用いて核融合炉用無機絶縁材の1つであるMgOの空孔生 成エネルギーを見積ると約5.4 eVである。今後の課題としては divacancy の結 合エネルギーに対してさらに詳細な議論が必要であると思われる。 - 化合物系超電導体(第4章)-

超電導磁石のしゃへい設計の精度を上げる為には、より正確な核データはも ちろんの事、より正確な照射データも要求される。本研究は、炉の複雑な構造 から、中性子エネルギースペクトルが場所的に異なる、核融合炉超電導磁石領 域において、核分裂炉照射で得られた超電導特性劣化のデータをどの様に修正 されるべきかを調べる、簡単な手法を提案した。核融合炉中性子照射下での超電 導特性の劣化を、中性子束に含まれる 10 ~ 14 MeV の核融合中性子の割合及び、 中性子照射量をパラメターとして数値計算した結果、臨界温度、臨界電流の劣 化が中性子束に含まれる核融合中性子の割合αに敏感に依存することが明らかになっ た。特に  $\alpha = 100$  %に対する結果は今後 RTNS-II 等の実験データと比較、検討 し、モデルの妥当性等について議論する必要があるものと思われる。その他、今 後の課題としては、 $J_c$  のピーク効果を取入れて、理論の精密化を計ること、 $J_c$ の応力効果をも取入れた同時効果についての議論等が、工学的見地から必要で あると思われる。

- 複合超電導導体(第5章)-

実用超電導磁石のコイルは超電導体の囲りに安定化用銅等を被覆した複合導体である。この場合、磁石の安定化の立場からすれば、個々の材料の照射効果が、磁石の安定性にどのような影響を及ぼすかが、重要な問題の一つになる。本研究は、従来の安定化概念に中性子照射効果を考慮することにより、最適安定化材の量、安定化された電流等が核融合炉中性子照射によってどの様に変るかを明らかにした。この結果、本計算に用いた条件下では照射効果を考慮すれば、磁石の安定化には多量(Rns ≥ 10)の安定化材が必要であること、安定化された電流は照射量のみならず、それに含まれる 10~14 MeV の核融合中性子

-114-

の割合によって敏感に変ること,これらの効果は主に安定化材(銅)の残留抵 抗の増加に起因すること等が明らかになった。

今後の課題としては、安定化材の機械的疲労による残留抵抗の増加、及び*J*c の応力効果等の同時効果を取入れた議論等が実用的見地から重要であると考え られる。又、本研究の安定性の解析において、体系の温度分布は導体の軸方向 のみを考えたが、導体の半径方向の分布を考慮した場合どの程度安定化条件が ゆるめられるかが今後の問題として残されている。 本研究で得られた結論を以下に列記する。 -第2章-

(1) 高速中性子照射下での残留抵抗増加 do は, 一般式

$$\begin{aligned} \Delta \rho &= -\left[ \left( \rho_1 - \rho_2 \right) \sigma_1 \not/ \left( \sigma_1 + \sigma_2 \right) \right] e^{-\left( \sigma_1 + \sigma_2 \right) t} \\ &- \rho_2 e^{-\sigma_1 t} + \left( \rho_1 \sigma_1 + \rho_2 \sigma_2 \right) \middle/ \left( \sigma_1 + \sigma_2 \right) \end{aligned}$$

で与えられる。 t は照射時間である。

- (2) *d d e* /*d t* vs *d e* の非直線性は上記の式で統一的に説明される。
- (3) 電子-フォノン相互作用の弱い,即ち熱又は電気伝導の高い金属はカスケ -ドの局所的焼鈍効果が大きい。
- (4) カスケードの局所焼鈍率 r は微視的モデルでは,

 $r \approx \{ 1 - e^{x} p (-K^*/K) \} / (K^*/K)$ 

で表わされる。Kは室温の熱伝導度, K\* は熱伝導度の次元を有する物質パラ メターである。

- (5) Cu, Aℓ, Ag, Ni は微視的モデルによく従う。
- (6) 中性子エネルギースペクトルを考慮するとCu, Aℓの残留抵抗増加は近似 的に

 $\Delta \rho \approx \Delta \rho (\infty) (1 - e^{x}p - \kappa < D(E) \Sigma(E) > \emptyset)$ 

で表わされる。Dは損傷  $x_{\lambda \nu}$ ギー,  $< \dots >$  は中性子スペクトル平均を表 す。

- (7) モデルスペクトルを用いた残留抵抗増加の数値計算では、10~14 MeVの中 性子の割合αが100%の照射を受ける場合、α = 0%の場合と比較して、照 射量で1/3~1/4の低い線量で同量の残留抵抗増加をもたらす。
   -第3章-
- (1) UO₂ 核分裂破片 (F.F.)による表面損傷 (クラスタ放出,クレータの形成) はF.F.のイオン化スパイクに伴う衝撃波発生モデルで定量的に説明される。

- (2) エポキシ系等の軽元素絶縁材が 14 MeV中性子照射を受けた場合,衝撃波損傷 の可能性がある。
- (3) 純金属の空孔生成エネルギーと融点は比例し、その比例数は普遍定数
   3(3/4π)(2πe/3)<sup>3/2</sup> k
  - $\approx$  9.73 k

である。ここにkはボルツマン定数である。

(4) イオン結合性絶縁体の空孔生成エネルギーWは20~30%の誤差内で、

 $W \sim 9.73 \ kT_m + (z \ e)^2 / 4\pi \varepsilon a$ 

で与えられる。 $T_m$  は融点, z はイオン電荷,  $\epsilon$  は誘電率, a は格子定数である。

-第4章-

(1) 臨界温度  $T_c$ ,及び臨界電流  $J_c$ の中性子スペクトルを考慮した照射効果は  $T_c(\emptyset) = T_c(\infty) + (T_c(0) - T_c(\infty))exp - \kappa < D(E) \Sigma(E) > \emptyset$ 

 $J_{C}(\emptyset) = J_{C}(\infty) + (J_{C}(0) - J_{C}(\infty))e^{x}p - \kappa < D(E)\Sigma(E) > \emptyset$ 

で与えられる。

(2) モデルスペクトルを用いた数値計算の結果,核融合中性子の割合 $\alpha$ が100 %の照射を受ける場合, $\alpha = 0$ %の場合と比較すると,同量の $T_C$ 又は $J_C$ の 劣化を与える線量は約1/10である。

-第5章-

- (1) 複合超電導導体の中性子照射による安定性の低下は、力学的アナロジーか ら"ポテンシャル"の上昇という概念でとらえることができる。
- (2) 安定条件を満たす,銅/Nb<sub>3</sub>Sn比は照射量の増加と共に著しく増大し,ある照射量で最大に達する。
- (3) R<sub>ns</sub>が最大となる照射量は、中性子束に含まれる 10~14 MeVの核融合 中 性子の割合が増えるに伴って低線量側へずれてゆく。
- (4) R<sub>ns</sub>を一定にして電流密度を制抑する場合,安定化された最大電流密度は 照射量の増加に伴って低下する。これは主に安定化材(銅)の残留抵抗の増 加に起因している。

(5) 電流マージンMを増すと安定化された $R_{ns}$ の最大値は小さくなる。例えば 50%電流マージンを取ると安定化された $R_{ns}$ の最大値は 1/3 程度に下げるこ とができる。これは、 10 ~ 14 MeV 中性子の割合にはあまり左右されない。

以 上

#### List of Papers

- Analysis of Clustering Phenomena Based on Shock Wave Model, Journal of Nuclear Materials, vol.71, No.1 (1977) 181
- (2) New Interpretation of Proportionality Between Vacancy Formation Energy and Melting Point, Physica B+C, vol.115, No.1 (1982) 67
- (3) Neutron Irradiation Effect on NbTi and Nb<sub>3</sub>Sn and Their Application in Superconducting Magnet for Fusion Reactors, Journal of Nuclear Materials, vol.72 (1978) 177
- (4) 14 MeV-Neutron Effects on T<sub>c</sub> Degradation of A-15 Superconductors for Fusion Reactor, Proceedings of The International Cryogenic Material Conference Kobe, Japan, 11-14 May 1982 (p90-p93)
- (5) Liquid State Model of Vacancy Formation Energy in Ionic Crystals, Physica B (being submitted)
- (6) 14 MeV Neutron Irradiation Effects on Cryostability of Composite Superconductor for Fusion Reactor, Cryogenics (in press)
- (7) 核融合炉用複合超電導体の安定性に対する 14 MeV中性子照射効果。
   低温工学 vol.18 No.6 (1983) 229
- (8) Two-zone Model of Cascade Damage for Low-Temperature Neutron-Irradiated Pure Metals (to be submitted)
- (9) Dose Evaluation at Low Level with TL Dosimetry in the Linac Facility of Osake University, Radiation Protection Dosimetry (1983) (in press)

-119-

# 学会発表,講演(国内)

- (1) 二次元高速炉体系へのレスポンスマトリックス法の応用
   日本原子力学会 1976年
- (2) 衝撃波モデルによるクラスタリング現象及びクレーターの解析
   日本原子力学会 1977年
- (3) 核融合炉用超電導材料の静的及び動的中性子照射効果日本原子力学会 1979年
- (4) 超電導マグネット材料の機械力,及び放射線に対する応答低温工学会 25回(1980年)
- (5) 核融合炉照射による T<sub>c</sub>(臨界温度)の劣下計算
   低温工学会 27回(1981年)
- (6) 低温照射欠陥生成過程の統計的記述日本物理学会 36回(1981年)
- (7) 高速中性子照射の欠陥生成過程日本物理学会 36回(1981年)
  - (8) アルカリハライドにおける融解モデルと格子欠陥日本物理学会 36回(1981年)
  - (9) 超電導体用安定化材の放射線損傷第2回核融合連合講演会 (1981年)
  - (0) アルカリハライドの空孔生成エネルギー(Ⅱ)
     日本物理学会 37回(1982年)
  - (1) カスケード効果による残留抵抗の増大日本物理学会 37回(1982年)

-120-

- (12) 超電導材料の中性子照射損傷第3回若手核融合研究集会 (1982年)
- (13) 高速中性子損傷における欠陥生成モデル日本物理学会 第38年会(1983)
- 14) カスケード効果による残留抵抗の増大 Ⅱ日本物理学会 1983 年秋の分科会

### 国際会議講演

14 MeV-Neutron Effects on  $T_c$  Degradation of A-15 Superconductors for Fusion Reactor, ICEC9-ICMC, 1982, Kobe, Japan. 本論文をまとめるにあたり、岡田東一教授には懇切な御指導、御鞭達を賜り 心から感謝の意を表します。

さらに井本正介教授,関谷全教授,住田健二教授,三宅正宣教授には,本論 文のご査読を賜り厚くお礼申し上げます。

また,本研究を遂行するにあたり,理解ある御支援,有益な討論をいただい た,大阪教育大学助教授萩原武士氏に感謝の意を表します。

さらに本研究の遂行に際し、岡田研究室、大脇成裕講師には懇切な御協力、 御討論を賜りここに深く感謝いたします。又、岡田研究室の片桐一宗、西嶋茂 宏、西浦徹也、福本将彦の諸氏を始め、岡田研究室の皆様には御協力を賜わり ました。

本論文がこのように皆様の御指導,御協力の賜物である事を附記し心より深 く感謝いたします。