

JAERI-Research

JP0150356

2001-028



耐熱セラミックス複合材料の照射試験

– 第1次予備照射試験 (97M-13A) 照射後試験中間報告 –

2001年3月

馬場 信一・鈴木 世志夫*・高橋 常夫・石原 正博・林 君夫
斎藤 保・相沢 静男・斎藤 隆・関野 甫

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越し下さい。なお、このほかに財團法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布を行っております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 〒319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2001
編集兼発行 日本原子力研究所

耐熱セラミックス複合材料の照射試験 － 第1次予備照射試験(97M-13A)の照射後試験中間報告－

日本原子力研究所大洗研究所核熱利用研究部

馬場 信一・鈴木 世志夫*・高橋 常夫・石原 正博・林 君夫
斎藤 保⁺¹・相沢 静男⁺²・斎藤 隆⁺²・関野 甫⁺³

(2001年2月22日受理)

高温工学試験研究炉(HTTR)を用いた高温工学に関する先端的基礎研究の課題の1つである「耐熱セラミックス複合材料の照射損傷機構の研究」のため、材料試験炉(JMTR)を用いて一連の予備照射試験を進めている。本報告は、このうちの最初のキャプセル(97M-13A)において、温度 573-843K、高速中性子照射量 $1.2-1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$)の照射を行った試料について、これまでに行った照射後試験の結果をまとめたものである。照射後試験では、(1)寸法変化、(2)熱膨張率、(3)X線パラメータ、(4) γ 線スペクトルについて測定した。炭素系及びSiC系複合材料の測定結果は、既存の文献データと同様の傾向を示した。SiC繊維強化及びSiC粒子分散強化複合材料については、モノリシック材料と同様に、温度モニター効果が観察された。すなわち、熱膨張率曲線は、第1回目の昇温時(昇温速度 10 K/min)には照射温度 + 100 °C付近から熱膨張率曲線の急速な低下を示したが、2回目の測定においては未照射材とほぼ同様の温度依存性を示した。

大洗研究所：〒311-1394 茨城県東茨城郡大洗町成田町新堀 3607

+1 東海研究所エネルギーシステム研究部

+2 材料試験炉部

+3 東海研究所ホット試験室

* 原子力エンジニアリング(株)

An Irradiation Test of Heat-resistant Ceramic Composite Materials
- Interim Report on Post-irradiation Examinations of the First
Preliminary Irradiation Test: 97M-13A -

Shin-ichi BABA, Yoshio SUZUKI*, Tsuneo TAKAHASHI, Masahiro ISHIHARA,
Kimio HAYASHI, Tamotsu SAITO⁺¹, Shizuo SOZAWA⁺², Takashi SAITO⁺²
and Hajime SEKINO⁺³

Department of Advanced Nuclear Heat Technology
Oarai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Oarai-machi, Higashibaraki-gun, Ibaraki-ken

(Received February 22, 2001)

The Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) has been carrying out the research on radiation damage mechanism of heat-resistant ceramic composite materials, as one of the subjects of the innovative basic research on high temperature engineering using the High Temperature Engineering Test Reactor (HTTR). A series of preliminary irradiation tests is being made using the Japan Materials Testing Reactor (JMTR). The present report describes results of post-irradiation examinations (PIE) so far on specimens irradiated in the first capsule, designated 97M-13A, to fast neutron fluences of $1.2\text{--}1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$ ($E > 1 \text{ MeV}$) at temperatures of 573, 673 and 843K. In the PIE, measurements were made on (1)dimensional changes, (2)thermal expansions, (3)X-ray parameters and (4) γ -ray spectra. The results for the carbon /carbon and SiC/SiC composites were similar to those in existing literatures. The temperature monitor effect was observed both for SiC fiber- and particle-reinforced SiC composites as in the case of monolithic SiC. Namely, the curve of the coefficient of thermal expansion (CTE) of these specimens showed a rapid drop above a temperature around the irradiation temperature + 100 K in the first ramp (ramp rate: 10 K/min), while in the second ramp the CTE curves were almost the same as those of un-irradiated SiC specimens.

+1 Department of Nuclear Energy System, Tokai Research Establishment

+2 Department of JMTR

+3 Department of Hot Laboratories, Tokai Research Establishment

* Nuclear Engineering, Co. Ltd.

Keywords: Ceramics, Composite, Irradiation, Post-irradiation Examination, Radiation Damage, Dimensional Change, Thermal Expansion, Lattice Parameter, Graphitization, Temperature Monitor, Gamma-ray Spectrum

This is a blank page.

目次

概要	1
1. 緒言	3
2. 照射供試料及び照射条件	6
2.1 照射供試料	6
2.2 照射条件	8
3. 照射誘起寸法変化	24
3.1 試料及び測定方法	24
3.2 結果及び検討	24
4. 熱膨張率	39
4.1 測定方法	39
4.2 等方性／準等方性黒鉛及びC/C複合材料の測定結果及び検討	40
4.3 モノリシック SiC 及び SiC/SiC 複合材料の測定結果及び検討	43
5. X線パラメータ	93
5.1 測定方法	93
5.2 結果及び検討	95
6. γ 線スペクトル	100
6.1 測定方法	100
6.2 結果及び検討	101
7. 結言	107
謝辞	109
参考文献	109

Contents

Executive Summary -----	1
1. Introduction -----	3
2. Irradiated Samples and Irradiation Conditions -----	6
2.1 Irradiated Samples -----	6
2.2 Irradiation Conditions -----	8
3. Irradiation-induced Dimensional Change -----	24
3.1 Samples and Measuring Method -----	24
3.2 Results and Discussion -----	24
4. Thermal Expansion -----	39
4.1 Measuring Method -----	39
4.2 Results and Discussion on Isotropic/Near-isotropic Graphites and C/C Composites -----	40
4.3 Results and Discussion on Monolithic SiC and SiC/SiC Composites -----	43
5. X-ray Parameters -----	93
5.1 Measuring Method -----	93
5.2 Results and Discussion -----	95
6. γ -ray Spectra -----	100
6.1 Measuring Method -----	100
6.2 Results and Discussions -----	101
7. Summary -----	107
Acknowledgements -----	109
References -----	109

List of Tables

- Table 2.1 Irradiation samples for 97M-13A capsule.
- Table 2.2 Irradiation temperatures for 97M-13A samples.
- Table 3.1a Irradiation-induced dimensional change of C/C composites and graphites at 573K (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$).
- Table 3.1b Irradiation-induced dimensional change of C/C composites and graphites at 673K (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$).
- Table 3.1c Irradiation-induced dimensional change of C/C composites and graphites at 843K (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$).
- Table 3.1d Irradiation-induced dimensional change of SiC/SiC composites and monolithic SiC at 573K (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$).
- Table 3.1e Irradiation-induced dimensional change of SiC/SiC composites and monolithic SiC at 673K (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$).
- Table 3.1f Irradiation-induced dimensional change of SiC/SiC composites and monolithic SiC at 843K (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$).
- Table 5.1 Irradiation-induced change in X-ray parameters of isotropic graphite (IG-110).
- Table 5.2 Irradiation-induced change in X-ray parameters of highly-oriented pyrolytic graphite (HOPG).

List of Figures

- Fig.2.1 Structure of 97M-13A capsule.
- Fig.2.2 Gamma heat and fluence monitor arrangement in 97M-13A capsule.
- Fig.2.3a Shapes and dimension of sample holders A and B in 97M-13A capsule.
- Fig.2.3b Shapes and dimension of sample holder C and D in 97M-13A capsule.
- Fig.2.4 History trend of irradiated temperatures for 97M-13A capsule.
- Fig.2.5 Axial distribution of fast neutron fluence in 97M-13A capsule.
- Fig.2.6 Axial distribution of fast neutron flux in 97M-13A capsule.
- Fig.2.7 Axial distribution of thermal neutron fluence in 97M-13A capsule.
- Fig.2.8 Axial distribution of thermal neutron flux in 97M-13A capsule.
- Fig.2.9 Radial distribution of thermal neutron flux in 97M-13A capsule (high temperature region).
- Fig.2.10 Radial distribution of thermal neutron flux in 97M-13A capsule (middle and

low temperature region).

- Fig.2.11 Radial distribution of thermal neutron flux in 97M-13A capsule (Cd shielding region).
- Fig.3.1 Irradiation-induced dimensional change of near isotropic and isotropic graphite at 300C, 400C and 570C (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$).
- Fig.3.2 Irradiation-induced volume change of near isotropic and graphite (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$).
- Fig.3.3 Irradiation-induced dimensional change of 2-D C/C composites at 300, 400 and 570C (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$).
- Fig.3.4 Irradiation-induced dimensional change for C/C composites (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$).
- Fig.3.5 Irradiation-induced dimensional change of SiC fiber/particle reinforced SiC composites and monolithic SiC (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$).
- Fig.3.6 Linear expansion of various SiC samples as a function of irradiation temperature.
- Fig.3.7 Irradiation-induced volume change of SiC fiber/particle reinforced SiC composites and monolithic SiC. (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$)
- Fig.4.1 Principle of thermomechanical analysis.
- Fig.4.2a Temperature dependence of the coefficient of thermal expansion for blank test with a standard specimen of alumina bar (uncorrected line).
- Fig.4.2b Temperature dependence of the coefficient of thermal expansion for blank test with a standard specimen of alumina bar (corrected line).
- Fig.4.3 Error estimation in thermal expansion measurement.
- Fig.4.4 Temperature ramp rate dependence of coefficient of thermal expansion (CTE) and thermal expansion for isotropic graphite (IG-110).
- Fig.4.5 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for isotropic graphite (IG-110) irradiated at 573K.
- Fig.4.6 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for isotropic graphite (IG-110) irradiated at 673K.
- Fig.4.7 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for isotropic graphite (IG-110) irradiated at 843K.
- Fig.4.8 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for near-isotropic graphite (Gilso-carbon) irradiated at 573K.
- Fig.4.9 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for near-isotropic graphite (Gilso-carbon) irradiated at 673K.

- Fig.4.10 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for near-isotropic graphite (Gilso-carbon) irradiated at 843K.
- Fig.4.11 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for near-isotropic graphite (Gilso-carbon) irradiated at 573K.
- Fig.4.12 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for near-isotropic graphite (Gilso-carbon) irradiated at 673K.
- Fig.4.13 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for near-isotropic graphite (Gilso-carbon) irradiated at 843K.
- Fig.4.14 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CCM-190C) irradiated at 573K.
- Fig.4.15 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CCM-190C) irradiated at 673K.
- Fig.4.16 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CCM-190C) irradiated at 843K.
- Fig.4.17 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CCM-190G) irradiated at 573K.
- Fig.4.18 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CCM-190G) irradiated at 673K.
- Fig.4.19 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CCM-190G) irradiated at 843K.
- Fig.4.20 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CX-270C) irradiated at 573K.
- Fig.4.21 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CX-270C) irradiated at 673K.
- Fig.4.22 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CX-270C) irradiated at 843K.
- Fig.4.23 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CX-270G) irradiated at 573K.
- Fig.4.24 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CX-270G) irradiated at 673K.
- Fig.4.25 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CX-270G) irradiated at 843K.
- Fig.4.26 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (PCC-2S) irradiated at 573K.

- Fig.4.27 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (PCC-2S) irradiated at 673K.
- Fig.4.28 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (PCC-2S) irradiated at 843K.
- Fig.4.29 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (PCC-2S) irradiated at 573K.
- Fig.4.30 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (PCC-2S) irradiated at 673K.
- Fig.4.31 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (PCC-2S) irradiated at 843K.
- Fig.4.32 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for monolithic SiC (Hexaloy) irradiated at 573K.
- Fig.4.33 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for monolithic SiC (Hexaloy) irradiated at 673K.
- Fig.4.34 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for monolithic SiC (Hexaloy) irradiated at 843K.
- Fig.4.35 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for SiC particle 5% dispersive SiC composite irradiated at 573K.
- Fig.4.36 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for SiC particle 5% dispersive SiC composite irradiated at 673K.
- Fig.4.37 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for SiC particle 5% dispersive SiC composite irradiated at 843K.
- Fig.4.38 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for SiC particle 10% dispersive SiC composite irradiated at 573K.
- Fig.4.39 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for SiC particle 10% dispersive SiC composite irradiated at 673K.
- Fig.4.40 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for SiC particle 10% dispersive SiC composite irradiated at 843K.
- Fig.4.41 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D SiC/SiC composite (HiNicaloceram) irradiated at 573K.
- Fig.4.42 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D SiC/SiC composite (HiNicaloceram) irradiated at 673K.
- Fig.4.43 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D SiC/SiC composite (HiNicaloceram) irradiated at 843K.

- Fig.4.44 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D SiC/SiC composite (HiNicaloceram) irradiated at 573K.
- Fig.4.45 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D SiC/SiC composite (HiNicaloceram) irradiated at 673K.
- Fig.4.46 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D SiC/SiC composite (HiNicaloceram) irradiated at 843K.
- Fig.4.47 Illustration of 1-dimensional, 2-dimensional and 3-dimensional fiber woven types.
- Fig.5.1 Evaluation for lattice strain by Eq.(5-5).
- Fig.6.1 γ -ray energy vs detecting efficiency for Ge detector.
- Fig.6.2a γ -ray spectrum of before heating SiC/SiC composite(HINicaloceram)
- Fig.6.2b γ -ray spectrum of after heating SiC/SiC composite(HINicaloceram)
- Fig.6.3 Specific activities of irradiated SiC/SiC and C/C composites specimen.

This is a blank page.

概要

原研では、高温工学試験研究炉(HTTR)を用いた高温工学に関する先端的基礎研究の課題の1つである「耐熱セラミックス複合材料の照射損傷機構の研究」のため、材料試験炉(JMTR)を用いた予備照射試験を進めている。この予備照射試験では3本のキャップセルを使って、主に照射温度をパラメータにした試験を実施してきた。本報告は、このうちの最初のキャップセル(97M-13A)に装荷した試料について、これまでに行った照射後試験の結果をまとめたものである。

本キャップセルの照射試料には耐熱セラミックス複合材料の中から、①炭素繊維強化炭素複合材料(C/C)6種類、②炭化ケイ素繊維強化材料(SiC/SiC)1種類及び炭化ケイ素粒子分散強化材料(SiC_p/SiC)2種類の複合材料(SiC系複合材料と総称する)、ならびに、③それらの基本構成素材である炭素繊維、SiC繊維及びSiC粒子を装荷した。更に、これまでに照射実績のある参照材として微粒等方性黒鉛IG-110、準等方性黒鉛Gilso-carbon、高配向性熱分解黒鉛(HOPG)及びモノリシック(monolithic)α-SiCを照射効果の比較あるいは指標とするために装荷した。C/C複合材料は、原子力関連分野、例えば核融合炉では第一壁としてのプラズマ対向材料の候補材、高温ガス炉では将来の高度化を目標に開発中の制御棒用構造部材としての使用が検討されている。一方、SiC系複合材料は、核融合炉用低放射化材として研究開発が進められている。

照射試験はJMTRの反射体領域M-7孔において1サイクル、約600時間行った。照射量は高速中性子で $1.2\text{--}1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$ (E>1MeV)、熱中性子で $6.5 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$ (E<0.625eV)、照射温度は573K、673K及び843Kの3領域、照射中の温度変動率は0.5%以下であった。照射後試験は、寸法変化、X線パラメータ(格子定数、結晶子径、黒鉛化度、格子歪み)、熱膨張係数(CTE)及びγ線スペクトルの測定を行った。このうち、寸法変化とX線パラメータの測定は、ホットラボのセル内において行ったが、CTEとγ線スペクトルの測定は大洗研究所内のRI利用開発棟の実験施設において実施した。

(1) 照射誘起寸法変化

2次元織り炭素繊維強化複合材料の長さ／径方向の照射誘起寸法変化率は繊維配列方向との有意な相関は見られなかったが、長さ方向に膨張／収縮した供試料は径方向では逆に収縮／膨張を示す傾向が見られた。また、熱処理温度の差異による長さ方向の寸法変化率は、照射温度573Kにおける3273K熱処理した供試料のみ膨張傾向を示した。一方、2次元織りSiC/SiC複合材料の照射誘起寸法変化率は、径方向に収縮し長さ方向には膨張を示したが、照射温度843Kの場合のみ長さ方向にも収縮した。SiC粒子分散強化複合材料の場合には、径方向及び長さ方向に無関係で一様に膨張した。その変化率は照射温度の増加につれて減少した。

(2) 照射誘起熱膨張率

炭素繊維強化複合材料では、熱膨張率測定方向が強化繊維配列に平行/垂直方向の供試料の場合における相違点は、平行方向の CTE が事実上ゼロであるのに対して、垂直方向では $6 \sim 9 \times 10^{-6} K^{-1}$ であった。最終熱処理温度が 2273K/3273K 供試料の相違点は CTE が前者で $6 \sim 7 \times 10^{-6} K^{-1}$ 、後者で $8 \sim 9 \times 10^{-6} K^{-1}$ と、わずかな差があることのみである。照射による熱膨張率及び CTE に対する効果は今回の照射条件においては、ほとんど認められなかった。

一方、SiC 系複合材料の熱膨張率及び CTE に及ぼす照射効果については、照射温度依存性が顕著に現れた。すなわち、SiC 繊維強化 / SiC 粒子分散強化の何れの複合材料についても、照射温度 + 100K 付近から熱膨張率曲線の屈曲が始まり、2 回目の測定においては未照射材とほぼ同様の温度依存性を示す、いわゆる温度モニター効果が観察された。

(3) 照射誘起 X 線パラメータ

微粒等方性高密度黒鉛及び高配向性熱分解黒鉛の 2 種類について、X 線回折による測定を行い、格子定数、結晶子径、黒鉛化度及び格子歪みを解析・評価した。それらの結果は、これまでに得られた結果と同様の傾向を示すことが分かった。

すなわち、格子定数は六方晶黒鉛の c 軸方向に増加し、a 軸方向に収縮した。結晶子径は HOPG の場合、573 ~ 843K の照射温度条件において大きく減少し、照射温度の増加とともに変化率は低下する傾向を示した。黒鉛化度は IG-110 で照射温度 573K の場合、約 10% の減少を示したが、HOPG では 1.6 ~ 7% の減少幅であった。格子歪みは、照射温度の増加とともに低下する傾向を示した。

(4) γ 線スペクトル

供試料取扱上の安全基準の目安を設定するため、 γ 線核種及び放射能量を測定した。また、同一供試料について 1673K 加熱前後の γ 線スペクトルの相違から、加熱による消失元素の評価を行った。その結果、最も大きな比放射能を有するのは SiC 系の HiNicaloceram で、逆に最も低い比放射能を有するのは炭素系の CX-270G であった。加熱前後の消失核種は、Gilso-carbon 以外は全ての供試料において 1 ~ 6 種類の放出元素であることが確認された。

1. 緒言

原研（核熱利用研究部高温照射研究室）では、高温工学試験研究炉(HTTR)を用いた高温工学に関する先端的基礎研究の課題の1つである「耐熱セラミックス複合材料の照射損傷機構の研究」のため、材料試験炉(JMTR)を用いた予備照射試験（第1次照射試験、キャプセル名：97M-13A）を進めている。本報告は、同キャプセルに装荷した試料について、寸法変化、X線パラメータ、熱膨張率及び γ 線スペクトル測定等の照射後試験(Post-irradiation Examination: PIE)の結果をまとめたものである。

予備照射試験の全体計画は、第1次予備照射試験では573、673、843K(実績値)、第2次予備照射試験では973、1073、1173K、最終段階の第3次予備照射試験では1273、1373、1473Kの各々3温度領域での照射試験を行う。第1次及び第2次照射試験の照射は現時点(2001年2月)で終了しているが、第3次照射試験については2001年4月以降にJMTR照射を予定している。

本キャプセルの照射試料には耐熱セラミックス複合材料の中から、①炭素繊維強化炭素複合材料(C/C)6種類、②炭化ケイ素繊維強化材料(SiC/SiC)1種類及び炭化ケイ素粒子分散強化材料(SiC_x/SiC)2種類の複合材料(SiC系複合材料と総称する)、ならびに、③それらの基本構成素材である炭素繊維、SiC繊維及びSiC粒子を装荷した。更に、これまでに照射実績のある参考材として微粒等方性黒鉛IG-110、準等方性黒鉛Gilso-carbon、高配向性熱分解黒鉛HOPG及びモノリシック(monolithic) α -SiCを照射効果の比較あるいは指標とするために装荷した。C/C複合材料は、原子力関連分野、例えば核融合炉では第一壁としてのプラズマ対向材料の候補材、高温ガス炉では将来の高度化を目標に開発中の制御棒用構造部材としての使用が検討されている。一方、SiC系複合材料は、核融合炉用低放射化材として研究開発が進められている。

(1) 照射誘起寸法変化

黒鉛材料の照射誘起寸法変化については、1960年代から70年代にかけて多くの試験データ及び解析結果が報告されている¹⁾。それらの結果によると、寸法収縮率はおおよそ1123K付近で最も小さくなり、照射温度がそれより高くても低くても大きくなる¹⁾。これらの照射誘起寸法収縮の傾向は微粒等方性黒鉛IG-110以外の鉛柄でも同様である。このように寸法収縮率が照射温度によって大きく変化を受けることは、支配的となる照射欠陥の種類が照射温度によって顕著に異なることを示唆している。IG-110のような原子炉用黒鉛材料の巨視的な照射誘起寸法変化率に影響を及ぼす因子は、材料の微結晶の大きさ、分布状況及びその周囲の気孔、格子定数、バインダーの種類などである。C/C複合材料の場合、基本的には黒鉛材料の特徴から類推することに大きな誤差は生じないと考えられるが、炭素繊維の配向性、充填密度、マトリックスとの相互作用の問題などについて注意深い検討を加えなければならない。

一方、SiC の照射誘起寸法変化率は α -SiC、 β -SiC あるいは熱分解 SiC 等、何れの結晶型を問わず、膨張傾向を示す。この寸法変化率は照射温度が低いほど上昇(大きな膨張率)し、照射温度の増加とともに低下していき、1273K 付近で寸法変化率はほとんどゼロとなる。

しかし最も重要な現象は、SiC が照射温度モニター効果を示すことである。この現象は、照射損傷の焼鈍回復効果によるものであり、SiC 結晶の格子定数変化と巨視的寸法変化が対応することから、巨視的寸法変化を照射温度のモニターとして利用することができる。実際には、SiC 試験片長さについて照射後の等温焼鈍曲線の変曲点が照射温度を明瞭に示すと同時に、電気抵抗の等温焼鈍曲線においても照射温度を示す変曲点が出現することが報告されている²⁾⁻⁶⁾。

(2) 照射誘起熱膨張係数変化

多結晶黒鉛材料の照射誘起熱膨張係数の変化は、多くの場合、照射初期には増加する傾向を示すが、その後は除々に低下していく。この理由は照射による c 軸方向の格子が伸びることにより緩和の原因である層面に平行なマイクロクラック(Mrozowski cracks)⁷⁾が閉じるためである、と言われている。熱膨張率の変化は寸法変化と密接に関連している。照射量の増加に伴う微結晶の寸法変化が進行し、そのため周囲に応力場が形成され、マイクロクラックが発生して応力を緩和するというモデルが確立されている¹⁷⁾。この結果、照射寸法収縮率は熱膨張係数の大きい材料ほど小さいことが明らかにされている¹⁾。C/C 複合材料の場合、炭素繊維軸方向への熱膨張率は小さく、従って繊維に沿った方向の C/C 複合材料の熱膨張率も小さい。一般的に、複合材料のマトリックス組織が繊維軸に平行に配向する傾向があるので、繊維軸に垂直な方向では熱膨張率は大きい。また、C/C 複合材料の製造工程における高密度化処理温度は炭素化／黒鉛化によっても異なるため、熱膨張率は大きく変化する。

一方、SiC 複合材料の熱膨張率変化は寸法変化と同様に、照射によつていくらか大きくなるが、照射温度以上の熱処理により照射前の特性に回復する。1273K 以下の照射温度領域においては、SiC の照射欠陥のほとんどがフレンケル対(Frenkel pair、格子間原子と原子空孔の対)であり、温度の上昇とともにフレンケル対の生成速度よりも消滅速度が増大してくるため飽和膨張率も低くなる。1273K 以上の高温照射領域では、フレンケル対の易動度が増してクラスター(Cluster)生成が容易になる。このクラスターリングによりマクロ的にも膨張量は照射量とともに増加するようになる。このように C/C 複合材料と SiC 複合材料の熱膨張率の変化ではかなり挙動が異なる。

(3) X 線パラメータの測定

X 線パラメータの測定は等方性黒鉛(IG-110)と高配向性熱分解黒鉛(HOPG)の 2 種類について実施した。黒鉛材料の性質が銘柄によって異なる理由は、微細構造の差が大きな原因である。微細構造の特性を表す 3 つの要素としては、①結晶構造の完全さ、すなわち黒鉛化度、②各結晶子の並び方、すなわち結晶配向性、及び③黒鉛素材容積の 20%程度を占める気孔の形状あるいは分布の差である。今回の照射後試験では黒鉛結晶の a 軸及び c 軸の格子定数と結晶子径及び c 軸方

向の格子歪みについても測定を行った。

(4)不純物放射能の測定

材料自身の不純物等についての情報を得ると共に、試料取扱上の必要性からセミホット的な測定環境かもしくは完全に隔離したセル内部での測定環境において実験すべきかの判断材料とするため、個々の C/C 複合材料と SiC 複合材料についての γ 線スペクトル分析及びグロス放射能測定を行った。

2. 照射供試料及び照射条件

2.1 照射供試料

(1)炭素繊維強化炭素複合材料

(a)PAN系高強度炭素繊維炭素化熱処理材(日本カーボン(株)製、CCM-190C)

本供試材は強化繊維として PAN(ポリアクリロニトリル)系高強度炭素繊維(フィラメントヤーン、引張強さ: 3500MPa、ヤング率: 240GPa)の織布を用いて積層成形したので、マトリックス前駆体としては樹脂系(1次)とピッチ系(2次)で形成。繊維充填率(Vf)は約 50~55%である。高密度化の最終熱処理温度は 2273K で炭素化した製品である。

(b)PAN系高強度炭素繊維黒鉛化熱処理材(日本カーボン(株)製、CCM-190G)

本供試材は上記(a)CCM-190C とほぼ同様の製品であるが、高密度化の工程で炭素化処理した後、さらに黒鉛化のため最終熱処理温度を 3273K で行っている。従って、黒鉛化により引張強度、固有抵抗などは半分以下に低下しているが、熱伝導率は逆に 8 倍に上昇している。

(c)ピッチ系含浸炭素化熱処理材(東洋炭素(株)製、CX-270C)

本供試材は樹脂含浸クロス積層した前駆体を熱成形、ピッチ含浸・焼成したもので、これを 2273K で炭素化熱処理している。ピッチ含浸・焼成を数回繰り返した後、熱処理し所定寸法に機械加工したものである。

(d)ピッチ系含浸黒鉛化熱処理材(東洋炭素(株)製、CX-270G)

本供試材は上記(c)CX-270C とほぼ同様の製品であるが、(b)と同様に最終熱処理温度を 3273K で行って、黒鉛化したものである。

(e)ピッチ系フェルト積層含浸黒鉛化熱処理材(日立化成(株)製、PCC-2S)

本供試料は原料炭素繊維としてピッチ系フェルトを使用し、化学処理、乾燥を行った後、含浸焼成を繰り返し行い、3273K で黒鉛化させて、精製、仕上げ加工を施して完成させたものである。

(f)石油 Pitch 系炭素繊維積層プレス成形材(呉羽化学工業(株)製、Kureca-K_500)

本製品に使用している炭素繊維は石油ピッチ系であり、前駆体にカーボンペーパー積層、樹脂及びカーボン粉末の混合体をプレス成形したものである。これを真空中 2673K で最終熱処理し、ハロゲン処理している。

(2)SiC系複合材料

(a)5%SiC粒子分散強化 SiC基複合材(日立化成(株)製、特注品)

本供試材は(3)(d)の Hexaloy モノリシック SiC をベースに、平均粒径 25μm の SiC 粒子(Green Silicon Carbide, GC #400)を強化用粗粒子として 5%添加したものを乾式混合し、ラバープレス成形、生加工した後、不活性雰囲気中 2423K で無加圧焼結した製品である。ベースの平均粒径 1μm 以下の微細粒子に 25μm の粗粒子を分散強化した複合材料となっている。

(b)10%SiC粒子分散強化 SiC基複合材(日立化成(株)製、特注品)

本供試材は上記(a)と同様であるが、強化粒子の添加率を 10%にしたものである。

(c) SiC 繊維強化 SiC 基複合材(日本カーボン(株)製、Hi_Nicaloceram[®])

Hi_Nicaloceram[®]は HiNicalon 繊維を強化繊維とした複合材料であり、同繊維の特徴はポリカルボシラン(polycarbosilane: PCS)を溶融紡糸して連続繊維としたものを電子線照射により不融化繊維とした点にある。これを焼成して酸素成分の少ない(0.5wt.%O₂)Si-C 系繊維が出来上がる。この繊維を 500 本束ねて HiNicalon_yarn とし 8 枚繩子織りして PCS 系バインダーによりプリプレグ積層したものを変性 PCS 溶液(Ti 含有)中で含浸し、473 ~ 573K 空気中にてプレス硬化し更に 1273K の窒素雰囲気で焼成する。この含浸、硬化、焼成を数回繰り返すことにより緻密化させて、製品としての Hi_Nicaloceram[®] が完成する。

(3) 参照材料

(a) 高純度微粒等方性高密度黒鉛(東洋炭素(株)製、IG-110)

通常の等方性黒鉛の製造は、石油コークスにコールタールピッチを混合したものを原料として、これを粉碎篩い分け、焼成した後黒鉛化の工程で完成する。本供試材はこれをさらに高純度化したものであり、黒鉛製造の後にハロゲン処理による高純度化工程を経て、灰分 10ppm 以下の製品としたものである。HTTR の炉心及び炉心支持構造材に使用する検査基準⁸⁾としては、灰分 100ppm 以下、ホウ素 1ppm 以下、放射化性不純物として Si, Fe, Al, Ni, V, Ca, Li について、それぞれ目安値が設定されている。

(b) 準等方性黒鉛(米国 UCAR 社製、Gilso-carbon)

この Gilso-carbon 黒鉛の原料コークスは、米国ユタ州に産する天然ビチューメンの一種である gilsonite pitch から作られているもので、85 ~ 86% の炭素含有量をもっている⁹⁾。このコークスはニードルコークスとともに易黒鉛化性炭素に属する。本供試材は準等方性黒鉛で米国 UCAR 社が Mold 法により製造したものである。

(c) 高配向性熱分解黒鉛(米国 Advanced Ceramics, Co. 製、HOPG)

本供試材 HOPG は、熱分解炭素を応力存在下で熱処理することにより得られる。用いられる熱分解炭素は 2273K 以上に加熱された黒鉛基材上に、メタン、プロパン、ベンゼンなどの炭化水素ガスの気相熱分解物を沈積させて得る。このままの結晶では黒鉛類似の炭素六方網面が不規則に積層した乱層構造と呼ばれるもので、高い配向性はない。これを 3273K 以下で c 軸方向に 30 ~ 50MPa 程度の圧縮応力を負荷させながらの熱処理を行うことにより高い配向性を有する HOPG が完成する。

(d) 無加圧焼結 SiC(日立化成(株)製、Hexaloy, モノリシック α-SiC)

本供試材は、サブミクロン(1μm 以下)の α-SiC 微粉末に焼結助剤のホウ素(炭化ホウ素)とカーボンを配合し、成形用有機バインダーを添加してスプレードライヤーで造粒する。この造粒粉を金型プレスあるいは静水

圧プレスで成形し、得られた成形体を必要に応じて機械加工する。この成形体を不活性雰囲気中で 2273K 以上の高温で焼結し、得られた焼結体を必要に応じて研磨あるいはラップ等の機械加工を行い、製品としたものである。1473K 以上の高温下における高い曲げ強度、強酸溶液に対する耐腐食性は、他のファインセラミックス(反応焼結 SiC、WC、アルミナ等)と比較しても長期間の使用に耐える特徴を有している。従って、メカニカルシール、軸受、バルブなどの対摩耗部品や高温腐食環境下における実用化が進んでいる。

2.2 照射条件

(1) キャプセル構造

本キャプセルは 3 温度領域に区分された熱媒体内部に、4 本の試料ホルダーが直列挿入された構造となっている(Fig.2.1)。573K を目標の照射温度とする熱媒体部分を L(低温)領域、同様に 673K を M(中温)領域、823K を H(高温)領域と略称する。なお、L 領域の上部には、熱中性子を低減した照射領域するためにカドミウム製遮蔽容器に挿入した超伝導試料(Bi-2212)を配置した。L 領域及び M 領域の熱媒体材料にはアルミニウム(A1050)を、H 領域の熱媒体には銅(C1020)を用いた。熱媒体を収納する内筒及び外筒には高純度ヘリウムガスを大気圧封入した。温度制御は真空温度制御方式であるが、 γ 発熱率を考慮するとともに、各熱媒体外周部に巻き付けた 3 本のヒーターにより行った。炉心縦方向の γ 発熱率は最大値(5.5 W/g)が H 領域となるように配置した(Fig.2.2)。各領域の試料温度はインコネル合金被覆熱電対(K 型)7 本により測定した。また、高速中性子照射量は鉄(Fe)製モニター、熱中性子照射量はコバルト(Ti-Co)合金のモニター(計 7 力所に挿入)により測定した。

(2) 試料配置

3 温度領域に配置した熱媒体内部にはホルダー A, B, C 及び D の 4 本を直列に挿入した(Fig.2.3)。ホルダー A には、耐熱セラミックス複合材料の基本構成素材となる繊維及び粒子を高純度石英ガラス製アンプル内にヘリウムガス封入した。ホルダー B には主として炭素系複合セラミックスを、ホルダー C には SiC 系複合セラミックスを、ホルダー D には等方性黒鉛(IG-110)、高配向性熱分解黒鉛(HOPG)等の参照材料を挿入した。これらのホルダー A, B, C, D は、L, M 及び H 領域に共通の配置となるようにした。詳細は Table 2.1 に示す。

(3) 照射記録

照射は JMTR 第 125 サイクル、平成 10 年 11 月 17 日から 12 月 12 日まで照射孔 M-7 において積算で 591 時間行った。11 月 18 日の原子炉出力 50MW 到達直後に昇温し、L 領域試料温度(熱電対 TC03)が 573K(300 °C)、H 領域試料温度(TC05)が 823K(550 °C)、M 領域試料温度(TC07)が 673K(400 °C)の連続運転に入った。しかし、L 及び H 領域の試料平均温度が所定の目標温度より低かったことから、

約8時間の運転後、L領域の制御温度を583K(310°C)、H領域の制御温度を843K(570°C)に変更し、それ以降はこの状態を維持して運転継続した。照射実績及び照射温度履歴を、各々Table 2.2とFig.2.4に示す。

中性子照射量の評価はフルエンスモニター(F/M)により行い、高速中性子束 $8.5 \times 10^{17} \text{m}^{-2}\text{s}^{-1}$ (E>1MeV)、高速中性子照射量はキャップセル中心軸方向ピーク値で $1.8 \times 10^{24} \text{m}^{-2}$ (E>1MeV)と評価された。

F/M位置及びキャップセル中心における高速中性子照射量と高速中性子束の軸方向分布を各々Fig.2.5及びFig.2.6に示す。

F/M位置における熱中性子照射量及び熱中性子束の軸方向分布を各々Fig.2.7及びFig.2.8に示す。SRACコードによるキャップセル径方向の熱中性子束相対分布の計算結果を、H領域(Fig.2.9)、M領域及びL領域(Fig.2.10)、カドミウム遮蔽領域(Fig.2.11)について示す。なお、F/M No.268についてはキャップセル解体作業中に容器破損のためモニター取り出しが出来なかった。

中性子スペクトルの計算は、材料試験炉部計画課によって行われた。1次元輸送計算コードANISNを用いて、JMTR炉心は平板モデルとして取り扱われた。熱中性子スペクトルの計算は、SRACコードを用いてキャップセルを円筒モデルとして取り扱うことによって行われた。

Table 2.1 Irradiation samples for 97M-13A capsule.

照射後試験項目	微細組織・構造	寸法／熱膨張係数
1. 単繊維・粒子素材	試料識別 試料形状/寸法(mm)	試料形状/寸法(mm)
SiC微粒子(A社)	A-(1) $\phi 5 \times 35 \sim 45L$ (3温度域に1本毎)	
炭素繊維(B社)	A-(2) $\phi 5 \times 35 \sim 45L$ (3温度域に1本毎)	
炭素繊維(C社)	A-(3) $\phi 5 \times 35 \sim 45L$ (3温度域に1本毎)	
炭素繊維(C社)	A-(4) $\phi 5 \times 35 \sim 45L$ (3温度域に1本毎)	
炭素繊維(D社)	A-(5) $\phi 5 \times 50 \sim 55L$ (3温度域に1本毎)	なし
SiC繊維(B社)	B-(1) $\phi 5 \times 35 \sim 45L$ (3温度域に1本毎)	
SiC繊維(B社)	B-(2) $\phi 5 \times 35 \sim 45L$ (3温度域に1本毎)	なし
	小計7本×3 = 21本 A-(1~5), B-(1, 2)はアン' M形状	
2. コンポジット材		
2-1. 炭素系		
PCC-2S-P(A社)	C-(1) $\phi 10 \times 2.0t$ (3温度域に2個毎)	C-(2) $\phi 5 \times 20L$ (3温度域に2個毎)
CCM-190C(B社)	D-(1) $\phi 10 \times 2.3t$ (3温度域に2個毎)	D-(3) $\phi 5 \times 18.5L$ (3温度域に2個毎)
CCM-90G(B社)	D-(2) $\phi 10 \times 2.7t$ (3温度域に2個毎)	D-(4) $\phi 5 \times 19.5L$ (3温度域に2個毎)
PCC-2S-V(A社)	E-(1) $\phi 9.6 \times 2.0t$ (3温度域に2個毎)	E-(2) $\phi 4.7 \times 20L$ (3温度域に2個毎)
クレカ Kシート(E社)	F-(1) $\phi 10 \times 3.2t$ (3温度域に2個毎)	なし
CX-2720(F社)	G-(1) $\phi 10 \times 3.8t$ (3温度域に2個毎)	G-(3) $\phi 5 \times 16L$ (3温度域に2個毎)
CX-270(F社)	G-(2) $\phi 10 \times 4.2t$ (3温度域に2個毎)	G-(4) $\phi 5 \times 17L$ (3温度域に2個毎)
	(C~G各2個を1ホルダーに挿入する) 小計(3ホルダー, 72個)	(C~G各1個を1ホルダーに挿入する) 小計(6ホルダー, 30個)
2-2. SiC系		
Hi-Nicaloceram(B社)	H-(1) $\phi 10 \times 5.5t$ (3温度域に2個毎)	H-(3) $\phi 4.5 \times 20L$ (3温度域に2個毎)
Hi-Nicaloceram(B社)	H-(2) $\phi 9.6 \times 5.5t$ (3温度域に2個毎)	H-(4) $\phi 4.7 \times 20L$ (3温度域に2個毎) ⊥
Hitachi-X1(A社)	I-(1) $\phi 10 \times 6.0t$ (3温度域に2個毎)	I-(3) $\phi 4.5 \times 19L$ (3温度域に2個毎)
Hitachi-X2(A社)	I-(2) $\phi 10 \times 6.2t$ (3温度域に2個毎)	I-(4) $\phi 4.5 \times 18.5L$ (3温度域に2個毎)
X1はSiC粒子分散型 X2はSiC粒子分散型	(H, I各2個を1ホルダーに挿入する) 小計(3ホルダー, 4個)	(H~I各2個を1ホルダーに挿入する) 小計(6ホルダー, 18個)
3. 参照材		
α -SiC(ヘキサゴン)(A社)	K-(1) $\phi 10 \times 6.5t$ (3温度域に2個毎)	K-(2) $\phi 4.5 \times 18L$ (3温度域に2個毎)
IG-110(F社)	L-(1) $\phi 10 \times 4.5t$ (3温度域に2個毎)	L-(2) $\phi 4.5 \times 17L$ (3温度域に2個毎)
IM-P(キルツナイト)(BAEL社)	M-(1) $\phi 10 \times 5.0t$ (3温度域に2個毎)	M-(3) $\phi 4.5 \times 16L$ (3温度域に2個毎)
IM-V(キルツナイト)(BAEL社)	M-(2) $\phi 9.6 \times 5.0t$ (3温度域に2個毎)	M-(4) $\phi 4.7 \times 16L$ (3温度域に2個毎) ⊥
HOPG (POCO社)	N-(1) $5 \times 5 \times 2$ (3温度域に2個毎)	なし
	(K~N各2個を1ホルダーに挿入する) 小計(3ホルダー, 8個)	(K~M各2個を1ホルダーに挿入する) 小計(6ホルダー, 18個)

Table 2.2 Irradiation temperatures for 97M-13A samples.

JMTR 125 サイクル

測定項目名	タ格	単位	照射条件	95%信頼区間	最小値	最大値
原子炉熱出力	PT01	MW		49.6±0.5	48.9	50.7
97M-13A No. 1 熱電対温度	TC01	°C		202±6	194	210
97M-13A No. 2 熱電対温度	TC02	°C		264±6	260	281
97M-13A No. 3 熱電対温度	TC03	°C	310	310±1	300	312
97M-13A No. 4 熱電対温度	TC04	°C		506±9	501	526
97M-13A No. 5 熱電対温度	TC05	°C	570	569±3	564	578
97M-13A No. 6 熱電対温度	TC06	°C		394±5	386	402
97M-13A No. 7 熱電対温度	TC07	°C	400	400±4	396	407

備考: このデータは 1998/11/16 09:00 から 12/12 19:30 の
期間について、次の条件を満足するデータについて処理
したものである。
 ・原子炉熱出力 48 MW 以上
 ・#88-1 ヒータ温度制御状態 自動
 ・97M-13A No. 5 熱電対温度 570±10 °C

$$\left. \begin{array}{l} \text{全データ数=1270} \\ \text{欠足データ数=0} \\ \text{条件満足データ数=1147} \end{array} \right\}$$

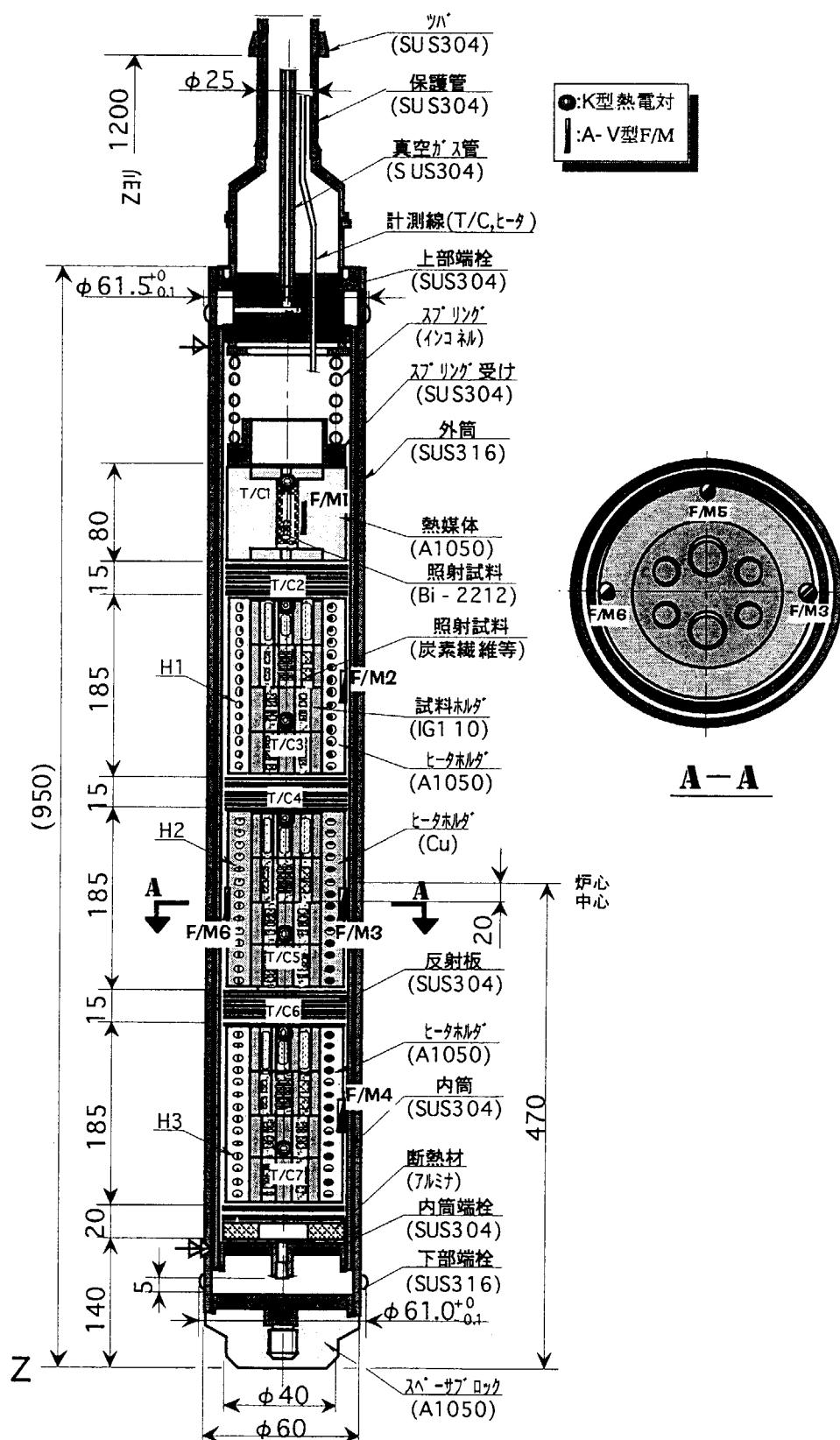


Fig.2.1 Structure of 97M-13A capsule.

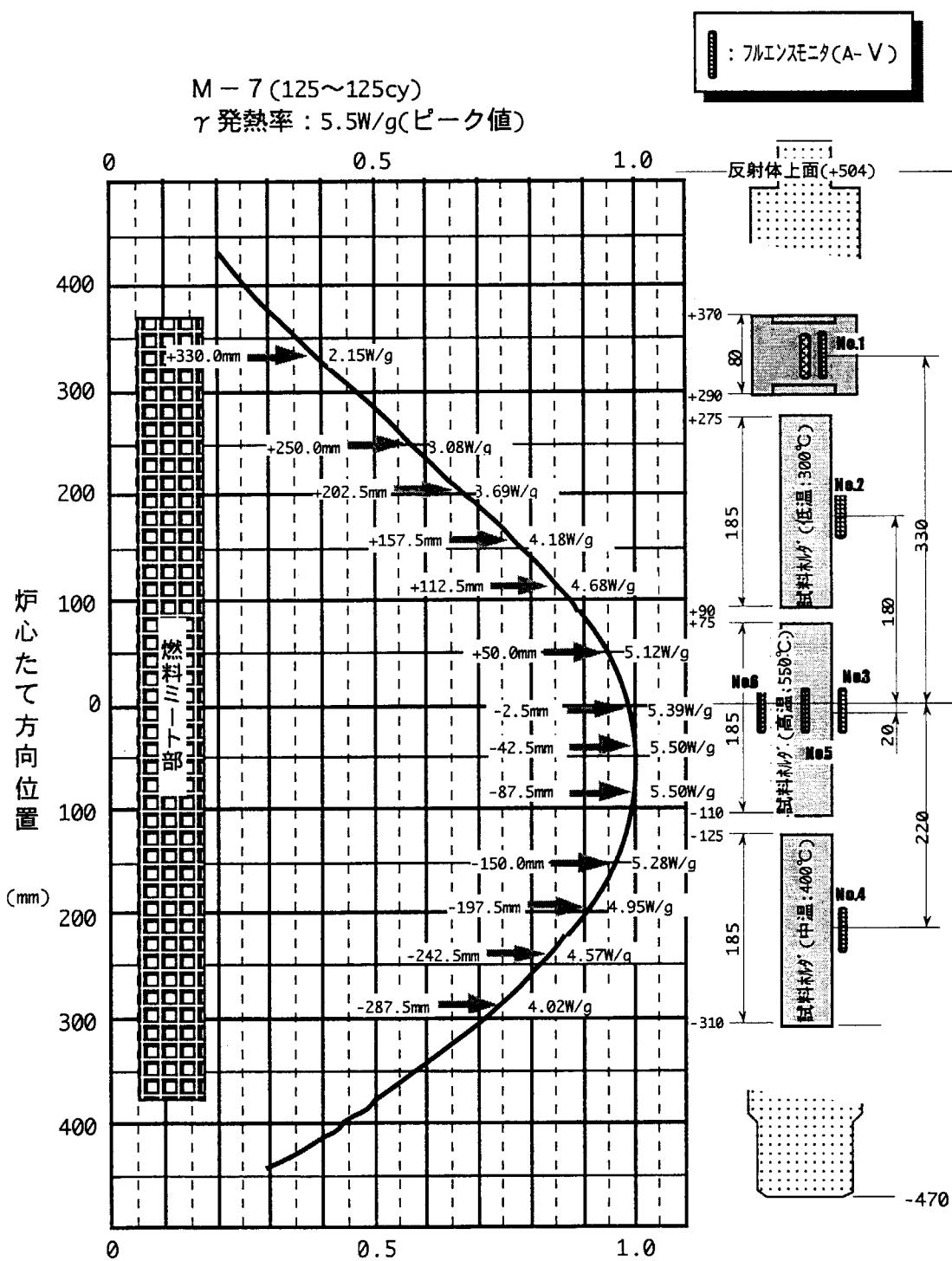
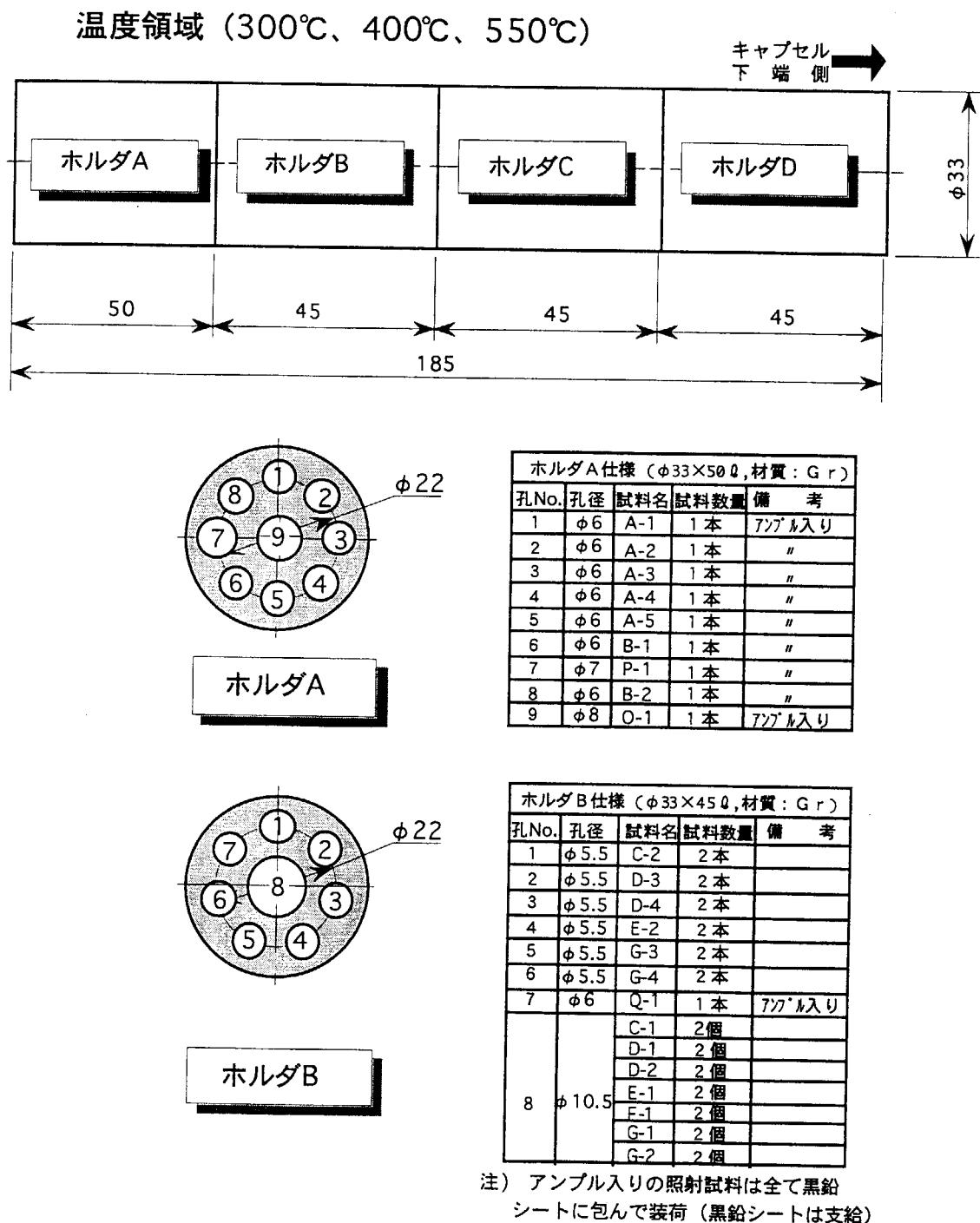


Fig.2.2 Gamma heat and fluence monitor arrangement in 97M-13A capsule.



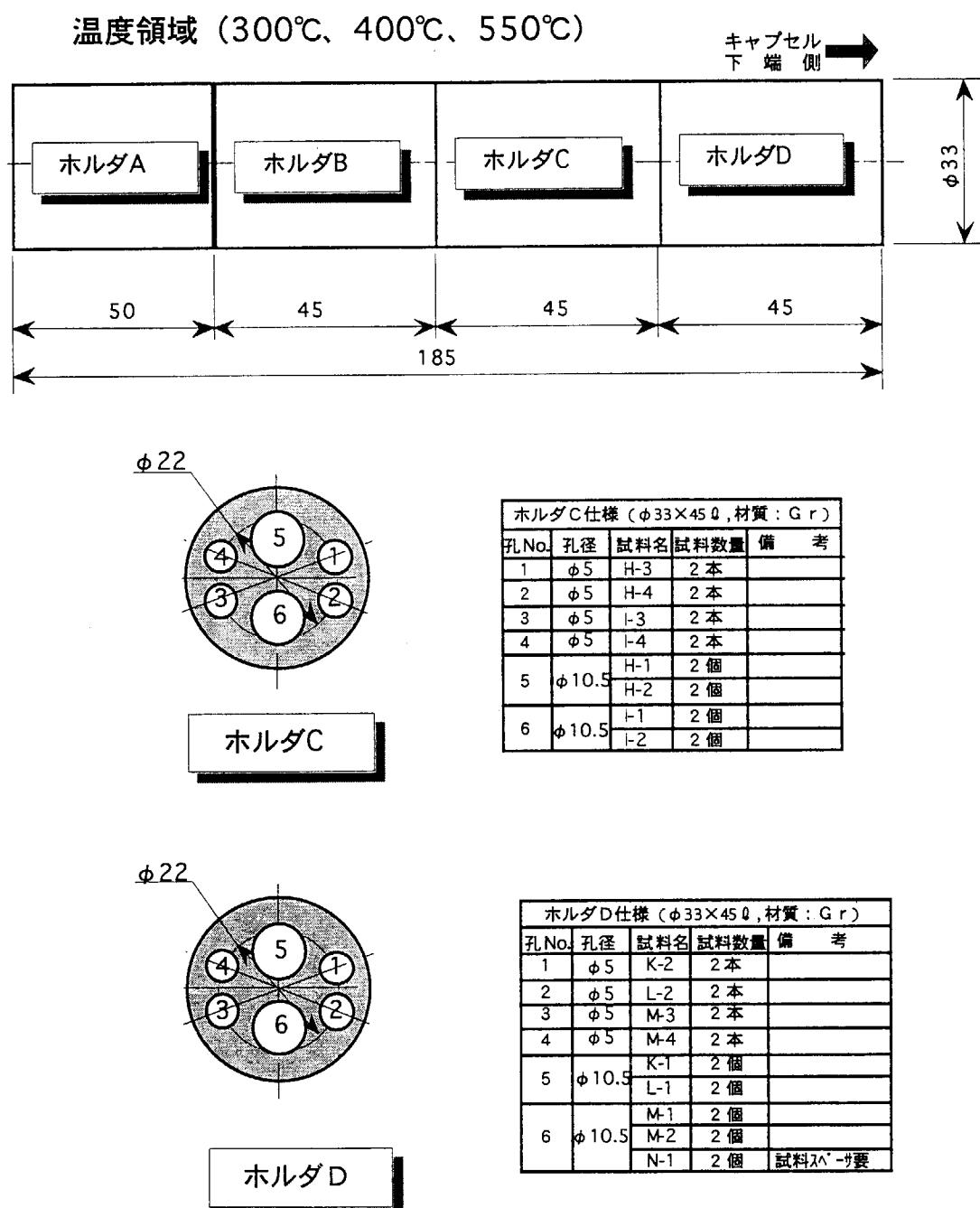
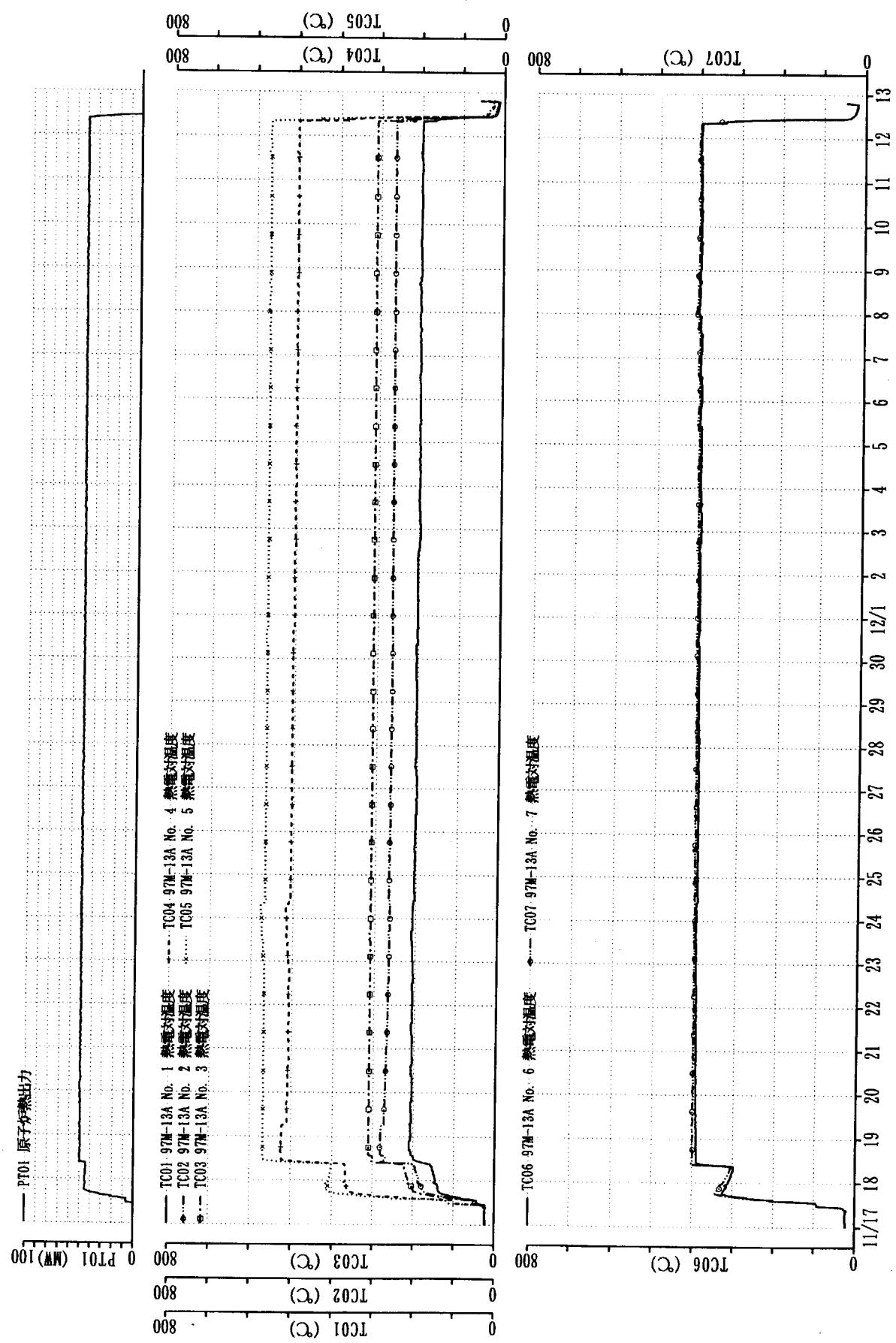


Fig.2.3b Shapes and dimension of sample holder C and D in 97M-13A capsule.



JWTR 125 #199(1998年)

Fig.2.4 History trend of irradiated temperatures for 97M-13A capsule.

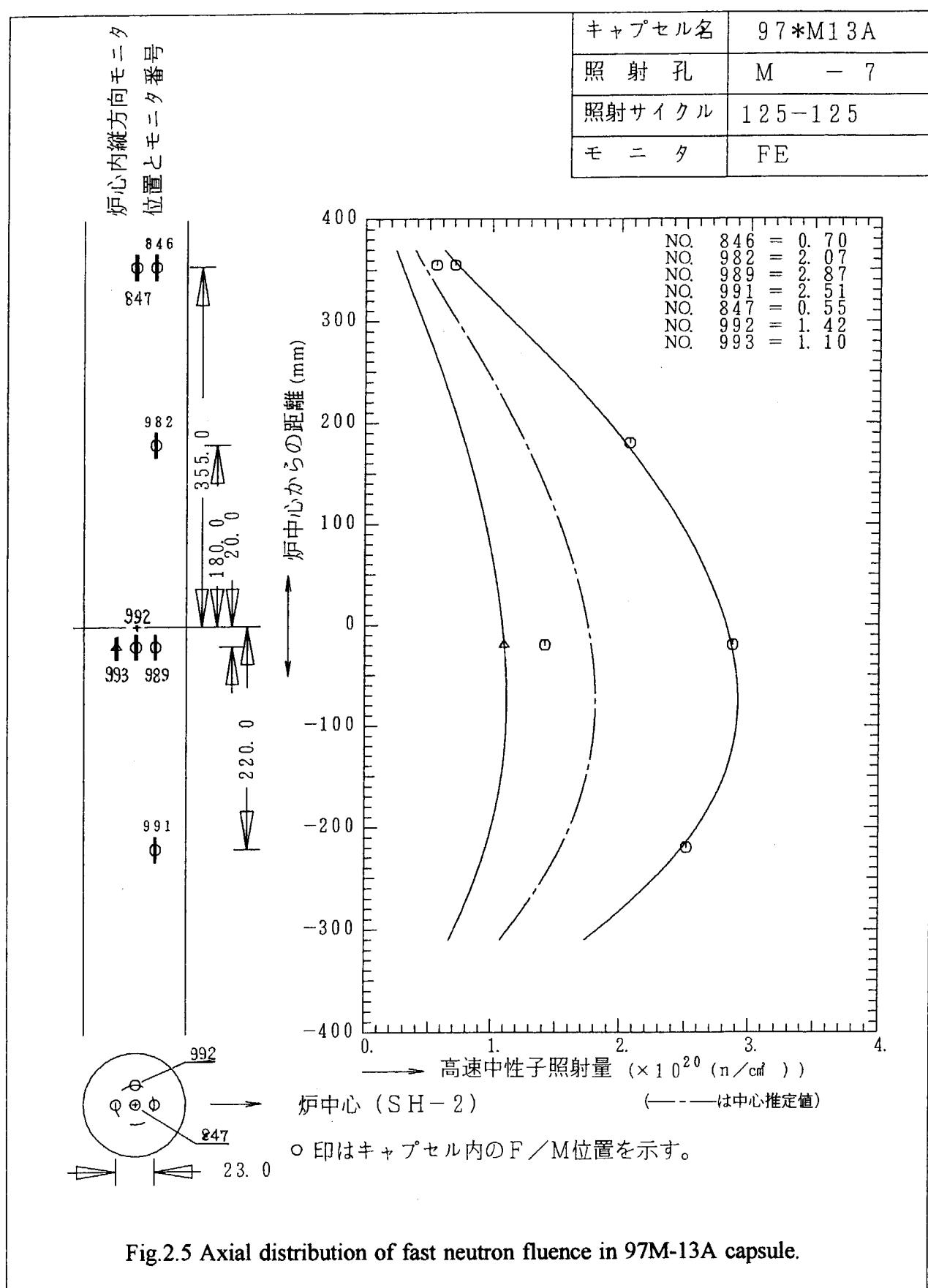


Fig.2.5 Axial distribution of fast neutron fluence in 97M-13A capsule.

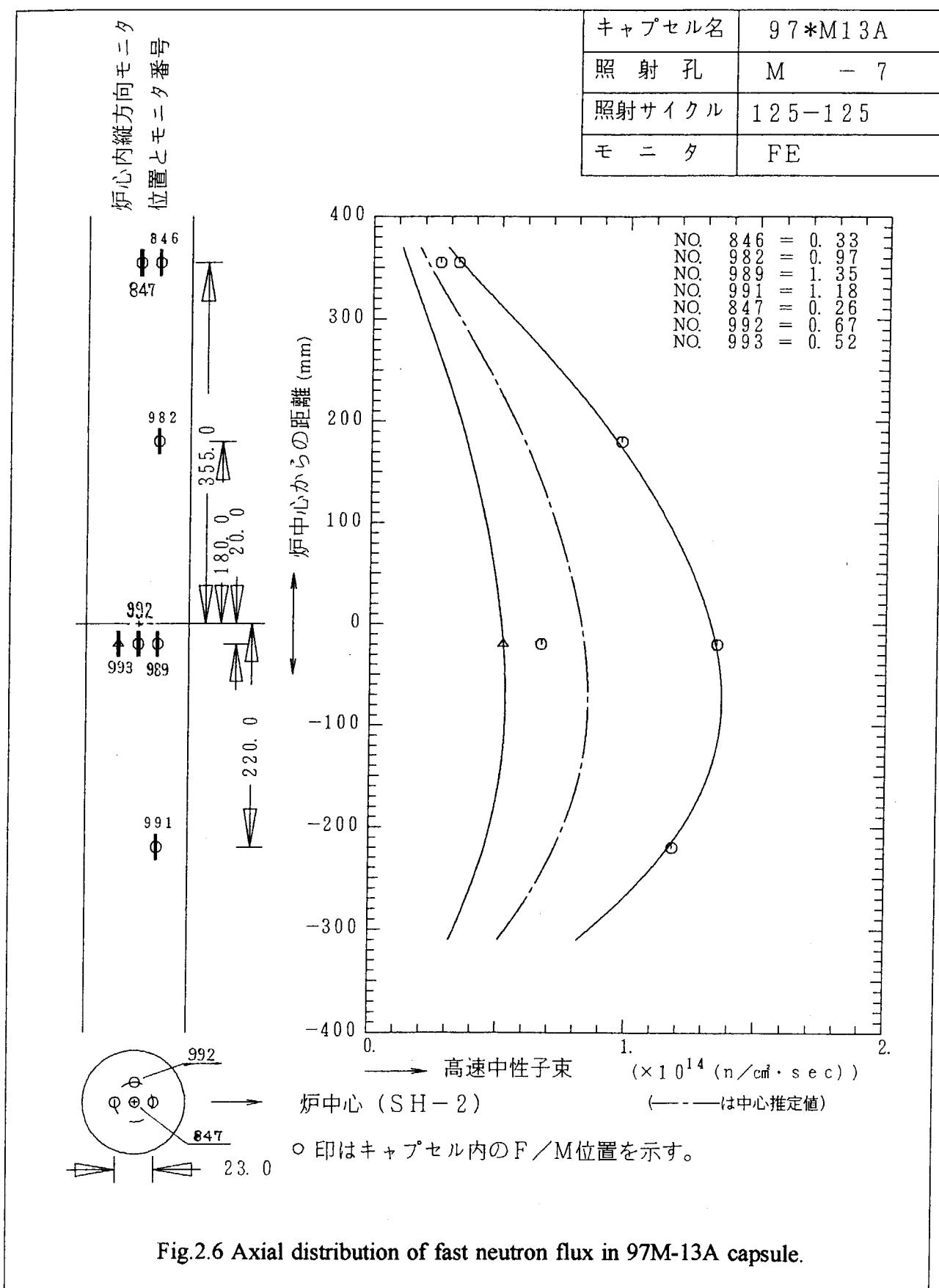


Fig.2.6 Axial distribution of fast neutron flux in 97M-13A capsule.

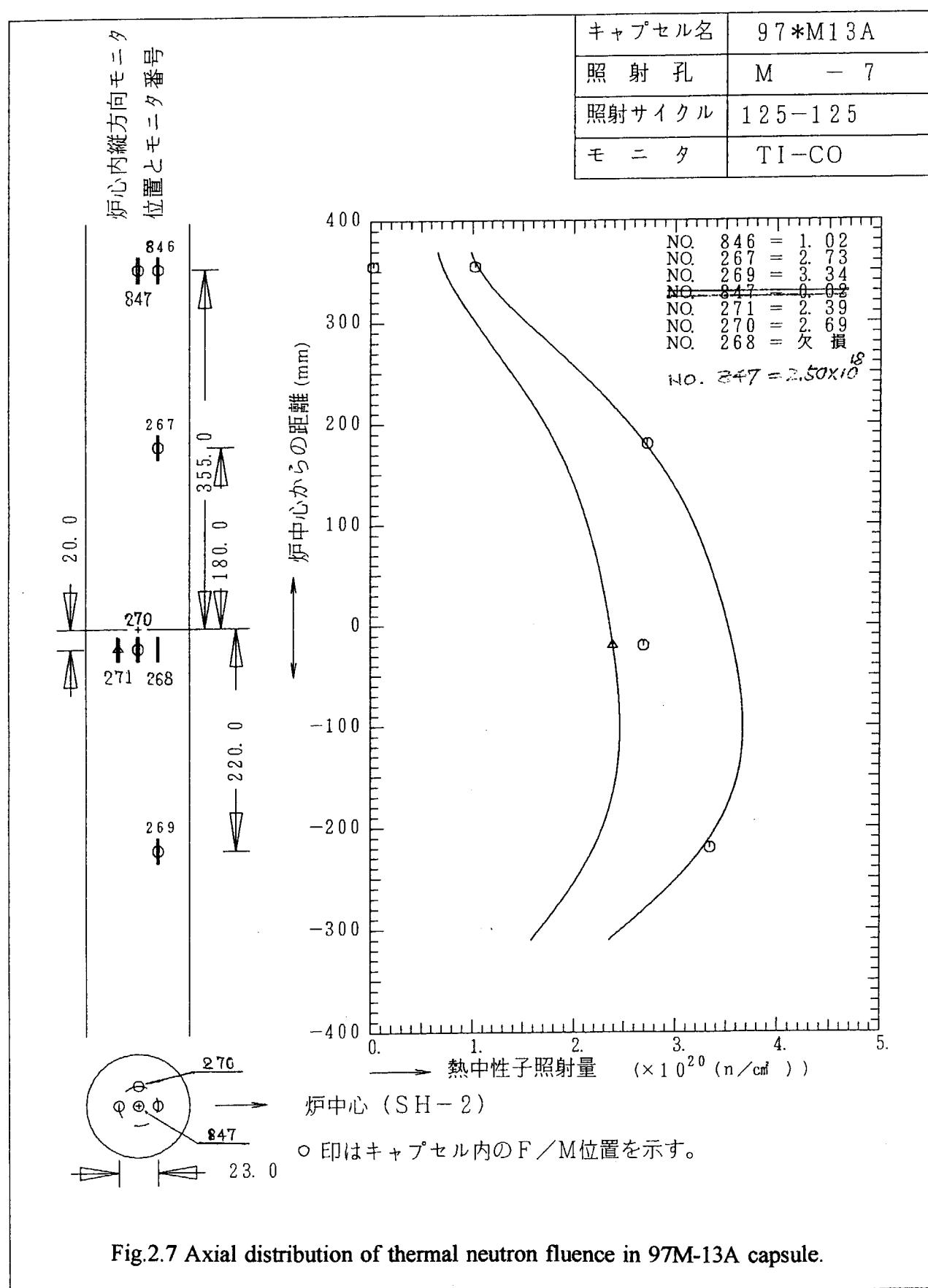


Fig.2.7 Axial distribution of thermal neutron fluence in 97M-13A capsule.

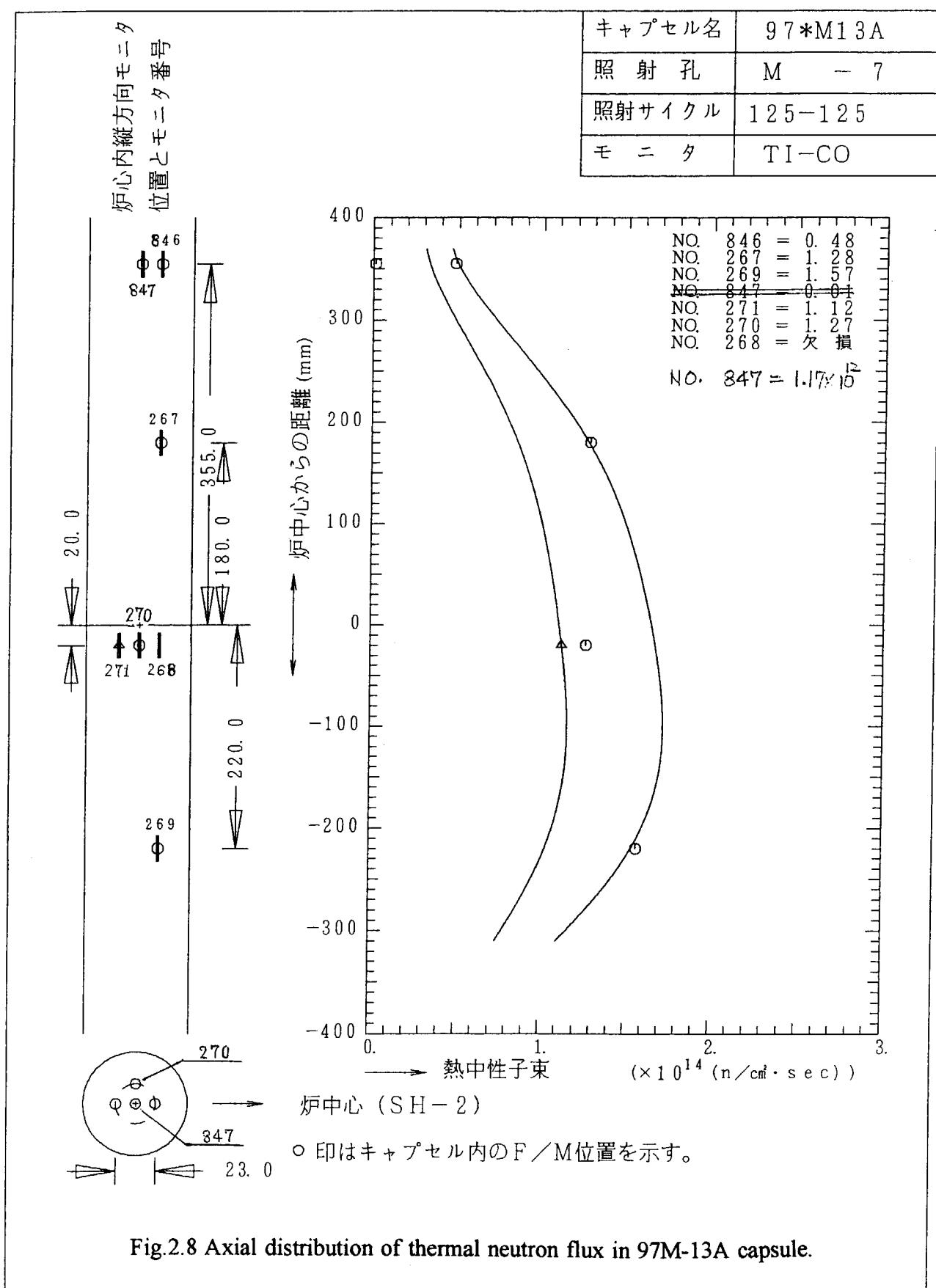


Fig.2.8 Axial distribution of thermal neutron flux in 97M-13A capsule.

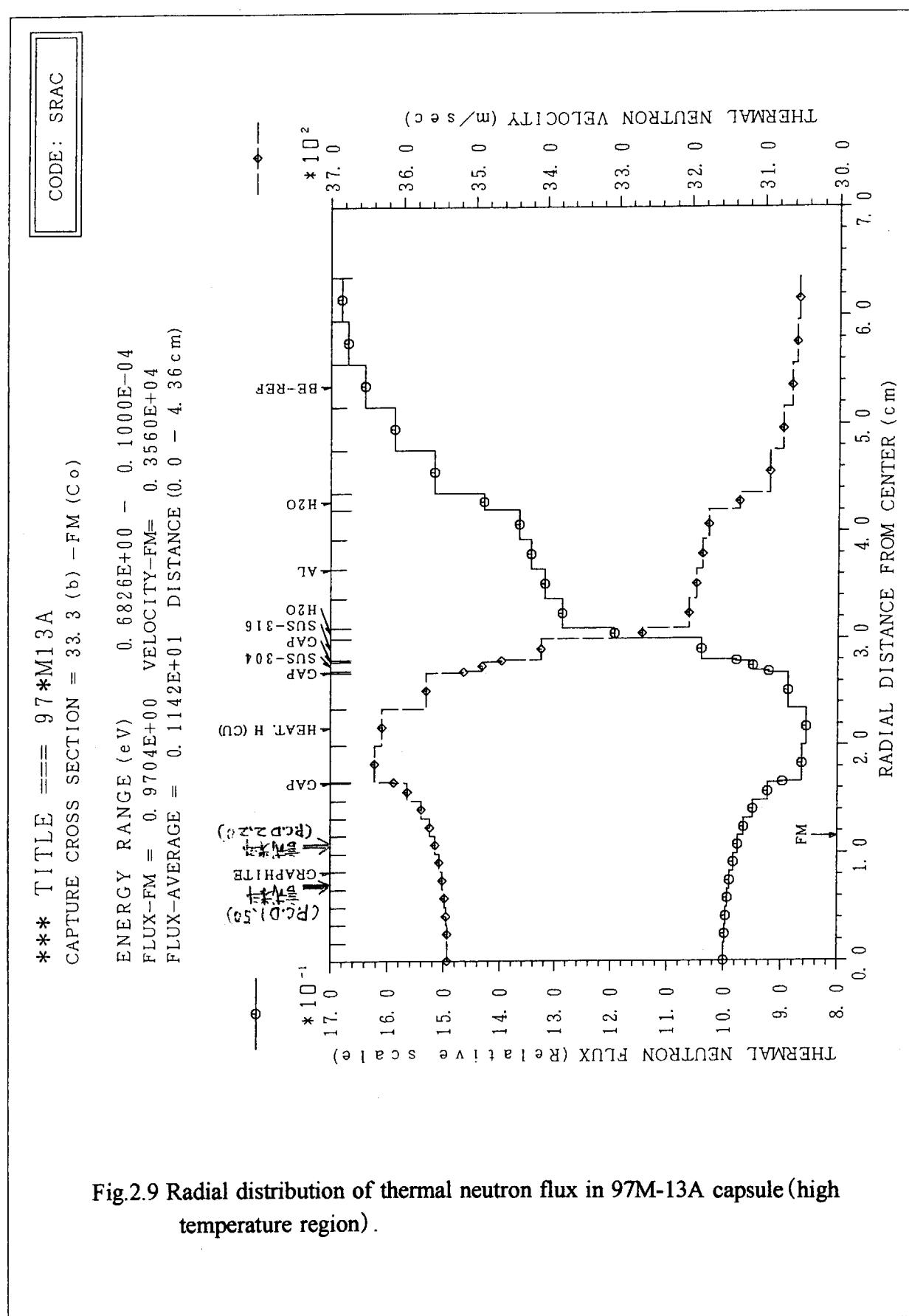


Fig.2.9 Radial distribution of thermal neutron flux in 97M-13A capsule (high temperature region).

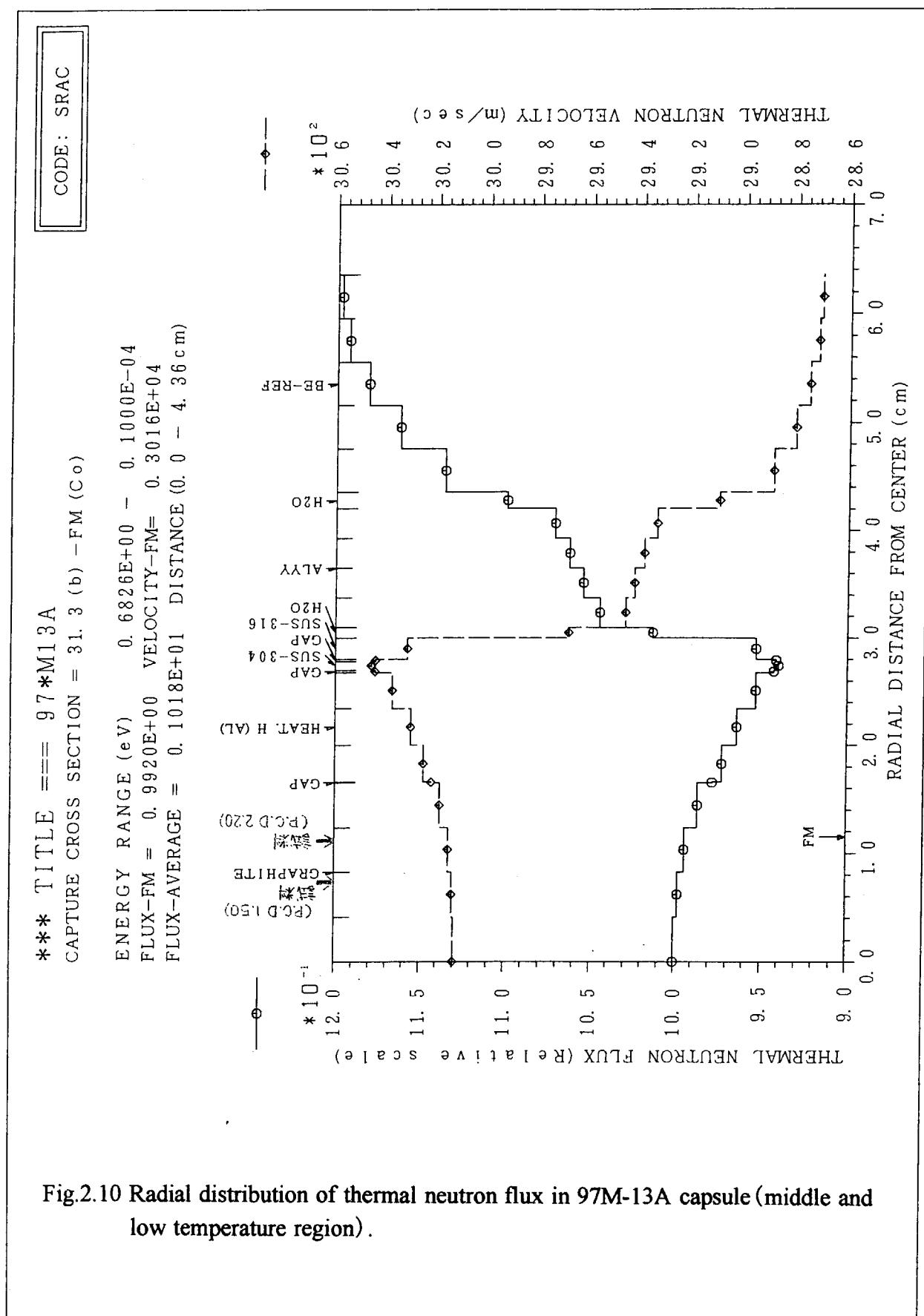


Fig.2.10 Radial distribution of thermal neutron flux in 97M-13A capsule (middle and low temperature region).

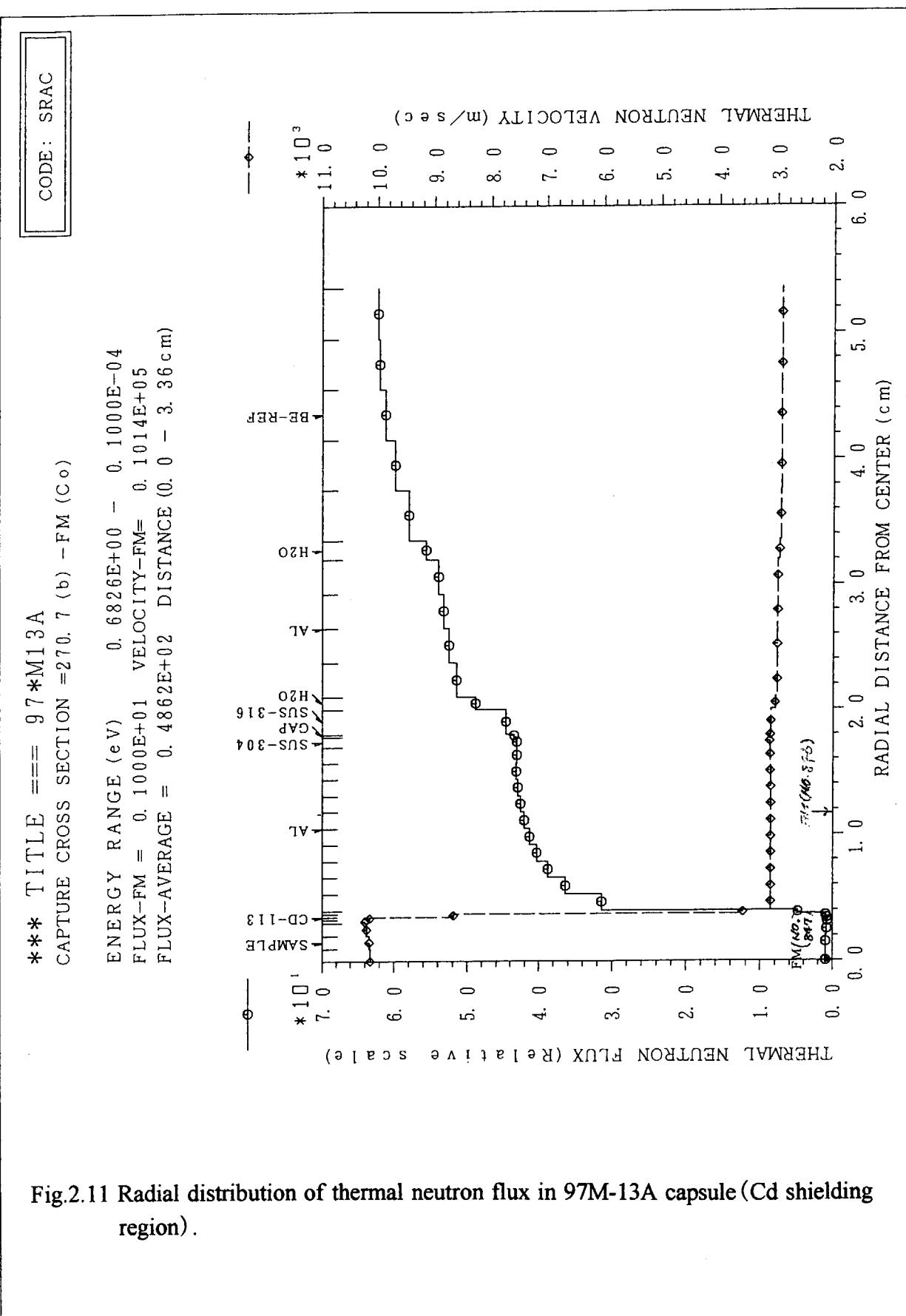


Fig.2.11 Radial distribution of thermal neutron flux in 97M-13A capsule (Cd shielding region).

3. 照射誘起寸法変化

3.1 試料及び測定方法

照射誘起寸法変化を測定する試料は、熱膨張率測定用に装荷した円柱状試料を用いた。試料寸法は銘柄毎に寸法を変えて区別し易いようにした。炭素系複合材料試料は直径 5mm、長さ 16 ~ 20mm、SiC 系複合材料試料は直径 4.5 ~ 4.7mm、長さ 18.5 ~ 20mm、参照材料試料は直径 4.5 ~ 4.7mm、長さ 16 ~ 18mm の寸法として分別し易くした。異方性のある 2 次元複合材料試料の場合には、纖維の配織に関し平行方向と垂直方向の 2 種類を製作したが、外見上から識別が容易な試料については同一寸法とした。

照射前の寸法測定は、原則としてマイクロメータを用いたが直径方向の測定個所は中心部分 1 カ所とした。照射後の寸法測定は、JMTR ホットラボのコンクリートセル内に設置した非接触レーザー寸法測定器(LS-5000, キーエンス(株)社製)を用いた。本器は 670nm の赤色半導体レーザー光源を利用したもので、測定精度 $\pm 2\mu\text{m}$ 以下、測定範囲は 0 ~ 40mm である。測定に先立ち、試料寸法に近い基準寸法用試料を製作し、これを用いて補正した。寸法測定用に特別に製作した V 型台座に試料を設置し、遠隔操作により連続 10 回測定した平均値を照射後寸法値として採用した。

3.2 結果及び検討

炭素系複合材、SiC 系複合材及び参考材の各試料の照射前後の寸法変化測定結果を銘柄別、照射温度領域別に Table 3.1 に示す。

(1) 参照材料

参考材料試料について、等方性及び準等方性黒鉛試料の照射温度領域別に試料長さ方向と径方向別に寸法変化率を Fig.3.1 に示す。準等方性黒鉛試料である Gilso-carbon は、長さ方向が結晶配向方向に平行と垂直の 2 種類の試料を装荷・照射した。両試料間に顕著な差異はなかった。一方、843K 照射試料の径方向の寸法変化率は、結晶配向方向に平行な試料に対して垂直方向では平均で約 2 倍の膨張率を示した。また、673K 照射試料の場合、長さ方向の寸法変化率は、他の照射温度(573, 843K)の試料に比べて約 2 倍の寸法収縮率であった。更に、同試料の体積変化率を調べた結果、Fig.3.2 に示すように結晶配向方向や照射温度に関係なく全て膨張傾向であった。一方、等方性黒鉛試料の径方向寸法変化率は、照射温度に比例して膨張率が増加していく傾向であったが、長さ方向は概ね収縮方向の変化を示した。また、同試料の体積変化率は 573K 照射の場合には収縮したが、他の照射温度では僅かな増加率を示すに留まった。

(2) 炭素系複合材料

2 次元織り炭素系複合材料の径方向と長さ方向の寸法変化率を Fig.3.3 に示す。これらの試料は全て炭素纖維配列方向に平行と垂直の 2 種類を装荷・照射したものであるが、長さ/径方向の寸法変化率と纖維配列方向との有意な相関は見られ

なかつた。しかし、長さ方向に膨張／収縮した試料は径方向には逆に収縮／膨張を示す傾向であった。熱処理温度の差異による長さ方向の照射誘起寸法変化率を Fig.3.4 に示す。3273K 热処理した試料の場合、C/C 複合材料のマトリックス領域はほぼ完全に黒鉛化が終了していると見られるが、炭素纖維の黒鉛化は不十分な領域が多いと言われている。一方、2273K 热処理ではマトリックス領域ではやや黒鉛化が進行するものの不十分な領域が多く、乱層構造の炭素質の多い領域と炭素纖維とが共存する結晶構造となっている。2273K 热処理温度の測定結果は概ね収縮傾向であったが、3273K 热処理温度の試料では、照射温度 573K の場合のみやや膨張傾向を示したが、他の照射条件に特徴的な変化はなかった。

(3) SiC 系複合材料

2 次元織り SiC 纖維強化複合材料と SiC 粒子強化複合材料試料及びモノリシック SiC 試料の照射誘起寸法変化率を Fig.3.5 に示す。SiC 纖維強化複合材料試料の場合、径方向寸法変化率は収縮傾向を示したが、長さ方向は 843K 照射温度条件の試料以外は膨張傾向であった。一方、SiC 粒子強化複合材料試料及び SiC 試料モノリシックは長さ／径方向ともに膨張したが、その変化率は照射温度の増加と反比例しており、約 1273K 付近でほぼゼロとなつた。

Fig.3.6 に示すように、Price の報告した結果⁴⁾と本試験データはほぼ良い一致を示すことが分かった。すなわち、巨視的な寸法変化率のデータと SiC の格子定数変化率のデータに相関性のある証明となっている。さらに、Fig.3.6 に示すデータから明らかのように SiC の照射誘起寸法変化率の特徴としては、 α 型と β 型結晶の差異、熱分解 SiC、単結晶 SiC などとも共通する要因であることが理解出来る。異方性の強い 2 次元織り SiC 纖維強化複合材料以外の材料、すなわち、均一組成 SiC 材料の場合には、同一の評価基準が適用できると考えられる。

次に、体積変化率について整理した結果を Fig.3.7 に示す。一見して明瞭なように、SiC 纖維強化複合材料試料は、573K ~ 843K の照射温度条件の全てにおいて収縮傾向であるのに対して、SiC 粒子強化複合材料及びモノリシック SiC 試料は約 2 % の膨張率を示した。このような照射誘起寸法変化率の特徴からも明瞭なように、材料の均質性は設計・評価基準を検討する際の誤差要因を小さくすることに寄与すると考えられる。

Table 3.1a Irradiation-induced dimensional change of C/C composites and graphites at 573K (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$)

炭素複合材料の径、長さ、体積の照射誘起寸法変化率

材料名 銘柄 試料記号 測定方向 照射温度 照 射量 (m ²)	炭素複合材 CX-270G G3-1 繊維配列 (°C) 照射前直 径(中心 (mm) 照射前体積 (mm ³)	炭素複合材 CX-270 G4-1 積層方向 300 4.970 16.000 311.651	炭素複合材 CCM-190C D3-1 繊維配列 300 4.980 17.020 331.519	炭素複合材 CCM-190G D3-21 積層方向 300 4.960 17.090 327.159	炭素複合材 PCC-2S C2-1 繊維配列 300 5.030 18.590 369.606	炭素複合材 PCC-2S C2-2 繊維配列 300 5.000 18.560 364.425	炭素複合材 PCC-2S E2-1 積層方向 300 4.980 19.577 380.409	炭素複合材 PCC-2S E2-2 積層方向 300 5.010 19.460 383.626	炭素複合材 PCC-2S E2-1 積層方向 300 4.991 20.059 392.441	炭素複合材 PCC-2S E2-2 積層方向 300 4.983 20.039 390.94	炭素複合材 PCC-2S E2-2 積層方向 300 4.687 20.067 346.228
照射後直徑(左) 変化率 (%)	4.957 -0.257 0.680	4.980 -0.257 5.001	4.939 -0.420 4.983	4.986 -0.877 4.996	5.026 -0.512 5.013	4.990 -0.404 5.010	5.005 -0.481 4.989	5.022 -0.281 4.997	5.004 -0.415 4.955	5.005 -0.253 4.991	4.690 0.209
照射後直徑(中心 変化率 (%)	4.983 0.427 4.988	4.983 0.265 4.972	4.933 0.325 4.979	4.983 -0.551 4.940	5.013 -0.253 5.012	4.983 -0.416 5.014	4.995 -0.126 4.995	5.013 -0.243 5.014	5.015 -0.243 5.001	4.995 -0.089 4.988	4.678 -0.250
照射後直徑(右) 変化率 (%)	4.977 0.163 15.983	4.977 0.040 16.051	4.977 -0.028 16.969	4.977 -0.395 17.087	5.012 -0.242 5.012	4.993 -0.301 4.994	5.012 -0.301 5.012	5.012 -0.301 5.012	5.015 -0.363 5.015	5.015 -0.19 5.015	4.678 -0.166
照射後長さ 変化率 (%)	15.983 -0.109 313.954	16.051 0.194 311.492	16.969 -0.303 331.176	17.087 -0.018 327.159	18.590 -0.054 363.172	18.594 0.183 367.548	19.577 0.238 386.763	19.536 0.391 382.252	20.045 -0.070 393.625	20.036 -0.017 393.391	20.057 -0.050 346.803
照射後体積 変化率 (%)	313.954 0.739 0.226	311.492 0.739 0.226	331.176 -0.103 327.159	363.172 -0.925 327.159	367.548 -1.741 363.172	386.763 0.857 382.252	382.252 -0.358 386.763	393.625 -0.358 393.391	393.391 0.302 346.803	346.803 0.664 346.469	346.469 0.166 0.016

等方性及び準等方性黒鉛材料の径、長さ、体積の照射誘起寸法変化率

材料名 銘柄 試料記号 測定方向 照射温度 照 射量 (m ²)	等方性黒鉛 Gilsomite M3-1 結晶粒方向 300 4.500 15.952 253.706	等方性黒鉛 Gilsomite M4-1 結晶粒方向 300 4.467 16.054 251.597	等方性黒鉛 Gilsomite M4-2 結晶粒垂直 300 4.686 16.060 278.277	等方性黒鉛 Gilsomite L2-1 非特定 300 4.512 16.060 276.819	等方性黒鉛 Gilsomite L2-2 非特定 300 4.512 16.963 271.226	等方性黒鉛 Gilsomite IG-110 L2-1 非特定 300 4.482 16.975 267.820
照射後直徑(左) 変化率 (%)	4.512 0.258 0.160	4.472 0.166 0.093	4.704 0.139 0.062	4.689 0.056 0.060	4.506 -0.132 -0.064	4.478 -0.098 -0.159
照射後直徑(中心 変化率 (%)	4.500 0.287 0.159	4.467 0.045 0.037	4.471 0.049 0.012	4.699 0.237 0.012	4.513 0.022 -0.003	4.472 -0.218 -0.015
照射後長さ 変化率 (%)	15.952 0.000 254.900	16.054 0.000 252.059	16.060 0.012 278.776	16.062 0.051 277.462	16.957 0.035 270.817	16.973 0.015 266.334
照射後体積 変化率 (%)	313.954 0.739 0.226	311.492 0.739 0.226	331.176 -0.103 327.159	363.172 -0.925 327.159	367.548 -1.741 363.172	386.763 0.857 382.252

Table 3.1b Irradiation-induced dimensional change of C/C composites and graphites
at 673K (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$)

寸法変化(中温域)/data_sheet

材料名 銘柄	炭素複合材		炭素複合材		炭素複合材		炭素複合材		炭素複合材		炭素複合材	
	CX-270G	CX-270	CX-270	G3-12	G4-2	D3-2	D3-22	D4-2	D4-22	C2-3	C2-4	PCC-2S
試料記号	G3-2			繊維配列	積層方向	繊維配列	積層方向	繊維配列	積層方向	繊維配列	積層方向	E2-4
測定方向												積層方向
照射温度	(°C)	400		400		400		400		400		400
照射量	(m^{-2})											
照射前直徑(中心)	(mm)	4.950	5.000	5.020	4.990	5.000	4.990	5.020	5.000	4.996	5.016	4.675
変化率	(%)	-0.211	-0.475	-1.360	-0.938	-0.261	-0.568	-0.329	0.932	0.704	-0.270	0.326
照射後直徑(中心)	(mm)	4.974	4.974	4.925	4.979	4.987	4.967	4.995	5.021	5.023	5.004	4.677
変化率	(%)	0.493	-0.525	-1.889	-0.221	-0.261	-0.461	-0.497	0.411	0.531	-0.232	-0.164
照射後直徑(右)	(mm)	4.983	4.983	4.947	4.990	4.972	5.030	4.991	5.012	5.033	5.011	4.717
変化率	(%)	0.659	-0.330	-1.457	0.004	-0.559	0.799	-0.576	0.232	0.739	-0.098	0.889
照射後長さ	(mm)	15.983	16.026	17.181	16.969	18.512	18.563	19.550	19.598	20.005	20.024	20.025
変化率	(%)	-0.106	0.288	0.943	-0.475	-0.473	-0.148	-0.156	0.297	-0.180	-0.003	-0.060
照射後体積	(mm^3)	309.518	311.887	329.461	329.209	360.867	362.476	383.325	388.863	397.347	394.100	348.045
変化率	(%)	0.523	-0.599	-2.198	-1.268	-1.189	-0.297	-1.086	1.354	1.138	-0.402	1.138

等方性及び準等方性黒鉛材料の径、長さ、体積の照射誘起寸法変化率

材料名 銘柄	準等方性黒鉛		等方性黒鉛		等方性黒鉛		等方性黒鉛		等方性黒鉛		等方性黒鉛	
	M3-3	M3-4	M4-3	M4-4	L2-3	L2-4	IG-110	IG-110	IG-110	IG-110	IG-110	IG-110
試料記号												
測定方向		結晶粒方向	結晶粒方向	結晶粒垂直	結晶粒垂直	非特定						
照射温度	(°C)	400	400	400	400	400						
照射量	(m^{-2})											
照射前直徑(中心)	(mm)	4.505	4.493	4.703	4.688	4.513	4.512					
照射後直徑(中心)	(mm)	16.066	16.053	16.033	16.031	16.935	17.008					
変化率	(%)	0.100	0.103	0.105	0.156	-0.020	0.036	0.118				
照射後直徑(右)	(mm)	4.509	4.498	4.708	4.695	4.512	4.513					
変化率	(%)	0.093	0.180	0.142	0.262	0.028	0.113					
照射後長さ	(mm)	16.040	16.036	16.022	16.015	16.923	16.982					
変化率	(%)	-0.165	-0.165	-0.069	-0.103	-0.074	-0.097					
照射後体積	(mm^3)	256.087	255.259	279.068	277.374	270.778	272.156					
変化率	(%)	0.043	0.291	0.197	0.240	-0.044	0.078					

Table 3.1c Irradiation-induced dimensional change of C/C composites and graphites at 843K (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$)

寸法変化(高溫域)/data-sheet

炭素複合材料の径、長さ、体積の照射誘起寸法変化率

材料名 銘柄	炭素複合材 CX-270G	炭素複合材 CX-270									
試料記号	G3-3	G3-3	G4-3	G4-13	D3-3	D3-23	D4-23	C2-5	C2-6	PCC-2S	PCC-2S
測定方向	繊維配列	積層方向	繊維配列	積層方向	繊維配列	積層方向	繊維配列	積層方向	繊維配列	E2-5	E2-6
照射温度(°C)	570	570	570	570	570	570	570	570	570	570	570
照射量(m^{-2})											
照射前直徑(中心)(mm)	5.000	4.990	4.990	5.010	5.070	4.970	4.940	4.985	4.987	4.684	4.667
照射前長さ(mm)	16.010	16.010	16.010	17.190	18.510	19.520	19.560	20.056	20.045	20.066	20.049
照射前体積(mm^3)	314.356	313.099	336.176	364.898	373.691	378.689	374.898	391.439	391.539	345.768	342.972
照射後直徑(左)(mm)	4.984	4.973	4.961	5.019	4.986	4.947	4.977	5.006	5.009	4.692	4.685
變化率(%)	-0.321	-0.325	-0.325	-0.575	0.178	-1.659	-0.453	0.747	0.427	0.442	0.171
照射後直徑(中心)(mm)	4.992	4.977	4.937	5.008	4.987	4.950	4.992	4.997	4.998	4.687	4.671
變化率(%)	-0.156	-0.264	-0.264	-1.068	-0.042	-1.647	-0.403	1.057	0.236	0.226	0.078
照射後直徑(右)(mm)	5.019	4.973	4.922	5.003	4.983	4.946	4.991	4.995	4.995	4.692	4.689
變化率(%)	0.381	-0.340	-0.340	-1.357	-0.149	-1.722	-0.477	1.041	0.194	0.180	0.469
照射後長さ(mm)	15.994	16.021	17.172	18.395	18.520	19.496	19.534	20.030	20.041	20.055	20.038
變化率(%)	-0.100	0.069	-0.105	-0.621	0.054	-0.126	-0.133	-0.130	-0.020	-0.057	-0.055
照射後体積(mm^3)	313.844	311.376	329.141	362.601	361.465	374.860	381.533	393.170	393.608	346.510	344.942
變化率(%)	-0.160	-0.550	-0.293	-0.629	-3.272	-3.272	-1.011	1.770	0.442	0.528	0.215
											0.570

等方性及び準等方性黒鉛材料の径、長さ、体積の照射誘起寸法変化率

材料名 銘柄	準等方性黒鉛 Gilsomite										
試料記号	M3-5	M3-6	M4-5	M4-6	L2-5	L2-6	IG-110	IG-110	IG-110	IG-110	IG-110
測定方向	結晶粒方向	結晶粒方向	結晶粒垂直	結晶粒垂直	結晶粒垂直	非特定					
照射温度(°C)	570	570	570	570	570	570	570	570	570	570	570
照射量(m^{-2})											
照射前直徑(中心)(mm)	4.490	4.484	4.711	4.665	4.519	4.492					
照射前長さ(mm)	16.060	16.064	15.993	16.077	16.969	16.955					
照射前体積(mm^3)	254.289	253.673	278.770	274.788	272.164	268.700					
照射後直徑(左)(mm)	4.493	4.493	4.722	4.660	4.526	4.492					
變化率(%)	0.059	0.204	0.720	-0.116	0.151	-0.002					
照射後直徑(中心)(mm)	4.499	4.495	4.716	4.694	4.518	4.497					
變化率(%)	0.199	0.235	0.112	0.621	-0.019	0.104					
照射後長さ(mm)	16.056	16.062	15.987	16.077	16.959	16.945					
變化率(%)	-0.025	-0.016	-0.038	0.000	-0.059	-0.062					
照射後体積(mm^3)	255.048	254.606	279.419	275.488	272.311	268.805					
變化率(%)	0.298	0.367	0.233	0.255	0.054	0.039					

Table 3.1d Irradiation-induced dimensional change of SiC/SiC composites and monolithic SiC at 573K (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$)

SiC/SiC複合材料の寸法変化率									
材料名	SiC複合材料								
試験機 試料記号	Hinicalo. H3-1	Hinicalo. H4-1	Hinicalo. H4-2	Hinicalo. H3-1	Hinicalo. H4-2	Hinicalo. H3-2	Hinicalo. H4-1	Hinicalo. H4-2	Hinicalo. H3-1
測定方向	繊維配列	繊維配列	積層方向						
照射温度 (°C)	300	300	300	300	300	300	300	300	300
照射量 (m^{-2})									
照射前直徑(中心) (mm)	4.571	4.494	4.740	4.733	4.573	4.573	4.572	4.573	4.542
照射前長さ (mm)	19.557	19.179	19.998	20.030	18.859	18.865	19.246	19.250	18.069
照射前体積 (mm^3)	320.933	304.216	352.885	352.406	309.750	309.848	315.968	316.172	292.797
照射後直徑(左) (mm)	4.536	4.417	4.723	4.720	4.603	4.606	4.603	4.603	4.573
変化率 (%)	-0.771	-1.723	-0.369	-0.281	0.648	0.730	0.653	0.724	0.676
照射後直徑(中心) (mm)	4.520	4.472	4.726	4.724	4.604	4.604	4.604	4.604	4.572
変化率 (%)	-1.107	-0.480	-0.293	-0.191	0.685	0.670	0.696	0.686	0.656
照射後直徑(右) (mm)	4.486	4.491	4.698	4.723	4.606	4.605	4.604	4.604	4.578
変化率 (%)	-1.866	-0.056	-0.889	-0.201	0.728	0.693	0.717	0.680	0.856
照射後長さ (mm)	19.553	19.195	20.054	20.084	18.984	18.978	19.371	19.371	18.182
変化率 (%)	-0.023	0.083	0.278	0.270	0.663	0.599	0.647	0.626	0.625
照射後体積 (mm^3)	312.907	299.916	350.217	351.774	316.101	316.071	322.418	322.410	298.762
変化率 (%)	-2.501	-1.413	-0.756	-0.180	2.050	2.008	2.060	1.992	2.182
平均線膨張率									
SiC, 5% & 10% 0.641 %									

Table 3.1e Irradiation-induced dimensional change of SiC/SiC composites and monolithic SiC at 673K (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$)

SiC/SiC複合材料の径、長さ、体積の照射誘起寸法変化率									
材料名	SiC複合材料	SiC複合材料	SiC複合材料	SiC複合材料	SiC複合材料	SiC複合材料	SiC複合材料	SiC複合材料	SiC單一材料
試料名	Himicalo.	Himicalo.	Himicalo.	SiCp5%-SiC	SiCp5%-SiC	SiCp10%-SiC	SiCp10%-SiC	hexaloy	hexaloy
試料記号	H3-3	H3-4	H4-3	I3-3	I3-4	I4-3	I4-4	K2-3	K2-4
測定方向	繊維配列	繊維配列	積層方向	積層方向	非特定	非特定	非特定	非特定	非特定
照射温度	(°C)	400	400	400	400	400	400	400	400
照射量	(m^{-2})								
照射前直徑(中心)	(mm)	4.507	4.485	4.731	4.573	4.572	4.573	4.542	4.541
照射前長さ	(mm)	19.497	19.427	20.033	20.072	18.861	18.852	19.244	18.059
照射前体積	(mm^3)	311.052	306.917	352.161	353.892	309.753	309.499	316.090	292.538
照射後直徑(左)	(mm)	4.437	4.463	4.704	4.723	4.601	4.602	4.589	4.570
変化率	(%)	-1.561	-0.491	-0.580	-0.311	0.619	0.650	0.586	0.638
照射後直徑(中心)	(mm)	4.477	4.469	4.713	4.725	4.600	4.600	4.599	4.571
変化率	(%)	-0.671	-0.347	-0.372	-0.275	0.597	0.607	0.580	0.567
照射後直徑(右)	(mm)	4.472	4.409	4.717	4.722	4.602	4.599	4.602	4.595
変化率	(%)	-0.771	-1.689	-0.288	-0.335	0.628	0.598	0.624	0.572
照射後長さ	(mm)	19.553	19.427	20.031	20.072	18.960	18.973	19.346	18.142
変化率	(%)	0.287	-0.003	-0.012	0.000	0.525	0.642	0.525	0.512
照射後体積	(mm^3)	305.736	301.773	349.214	351.723	315.249	315.350	321.467	297.615
変化率	(%)	-1.709	-1.676	-0.837	-0.613	1.764	1.880	1.701	1.723
平均線膨張率									
	SiC, 5%&10%							0.534	

Table 3.1f Irradiation-induced dimensional change of SiC/SiC composites and monolithic SiC at 843K (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$)

寸法変化(高溫域)/data-sheet

SiC/SiC複合材料の径、長さ、体積の照射誘起寸法変化率

材料名	SiC複合材料 Hinicalo.	SiC複合材料 Hinicalo.	SiC複合材料 Hinicalo.	SiC複合材料 SiC _p 5% - SiC SiC _p 10% - SiC SiC _p 10% - SiC SiC單一材料 hexalloy	SiC複合材料 SiC _p 5% - SiC SiC _p 10% - SiC SiC _p 10% - SiC SiC單一材料 hexalloy
試料名	H3-5	H3-6	H4-5	I3-5	I4-5
測定方向	繊維配列	繊維配列	積層方向	積層方向	非特定
照射温度 (°C)	570	570	570	570	570
照射量 (m ⁻²)					
照射前直徑(中心) (mm)	4.494	4.515	4.748	4.704	4.573
照射前長さ (mm)	19.409	19.413	19.848	19.976	18.851
照射前体積 (mm ³)	307.864	310.812	351.421	347.163	310.298
照射後直徑(左) (mm)	4.391	4.403	4.719	4.655	4.595
変化率 (%)	-2.300	-2.483	-0.601	-1.032	0.410
照射後直徑(中心) (mm)	4.340	4.447	4.701	4.666	4.593
変化率 (%)	-3.419	-1.500	-0.981	-0.802	0.368
照射後直徑(右) (mm)	4.455	4.466	4.685	4.656	4.594
変化率 (%)	-0.868	-1.077	-1.320	-0.817	0.395
照射後長さ (mm)	19.307	19.282	19.839	19.972	19.023
変化率 (%)	-0.526	-0.675	-0.048	-0.023	0.824
照射後体積 (mm ³)	292.946	298.387	344.488	340.976	315.296
変化率 (%)	-4.846	-3.400	-1.973	-1.782	1.614

平均線膨張率
SiC, 5% & 10% 0.567
0.397

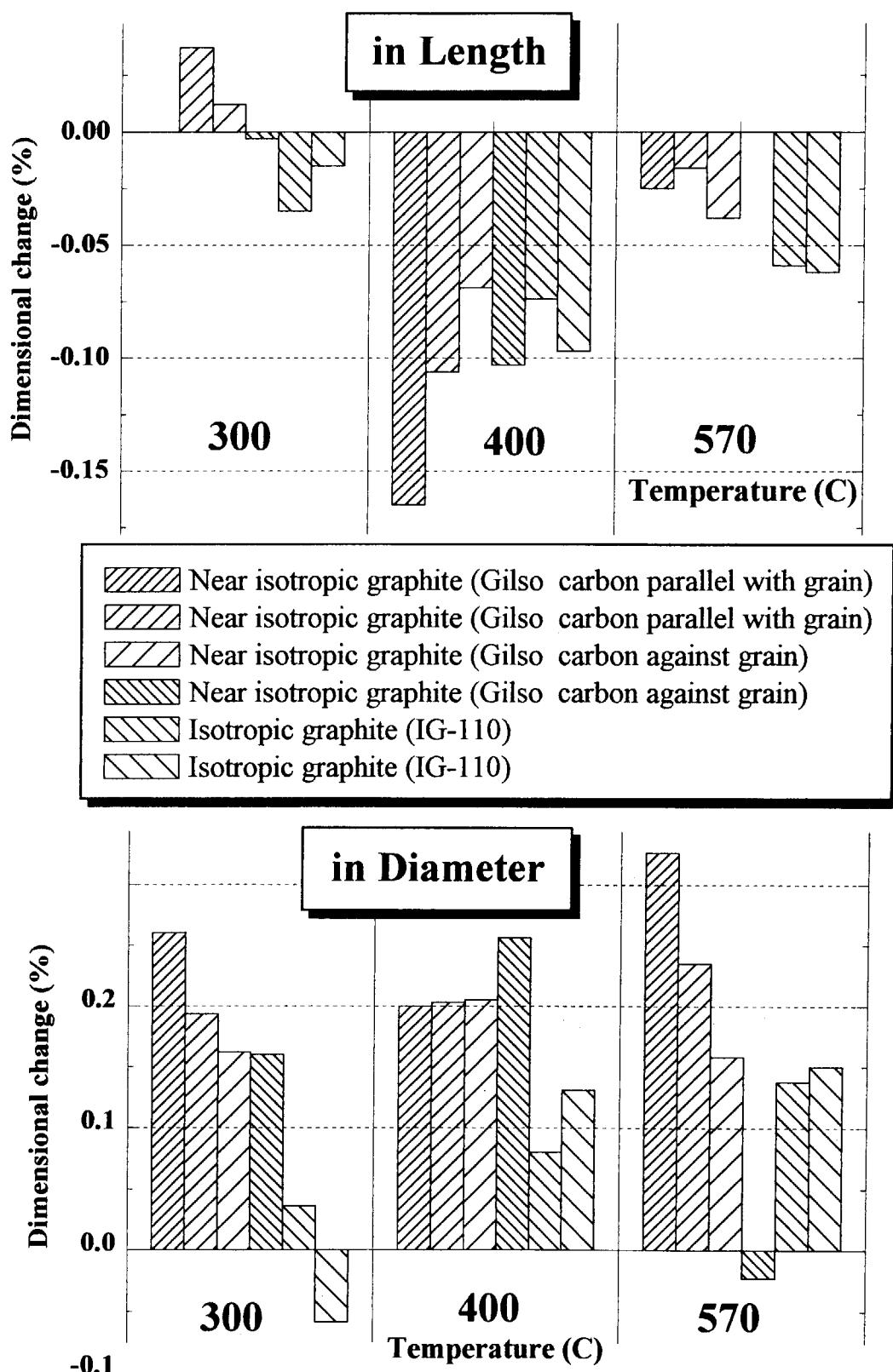
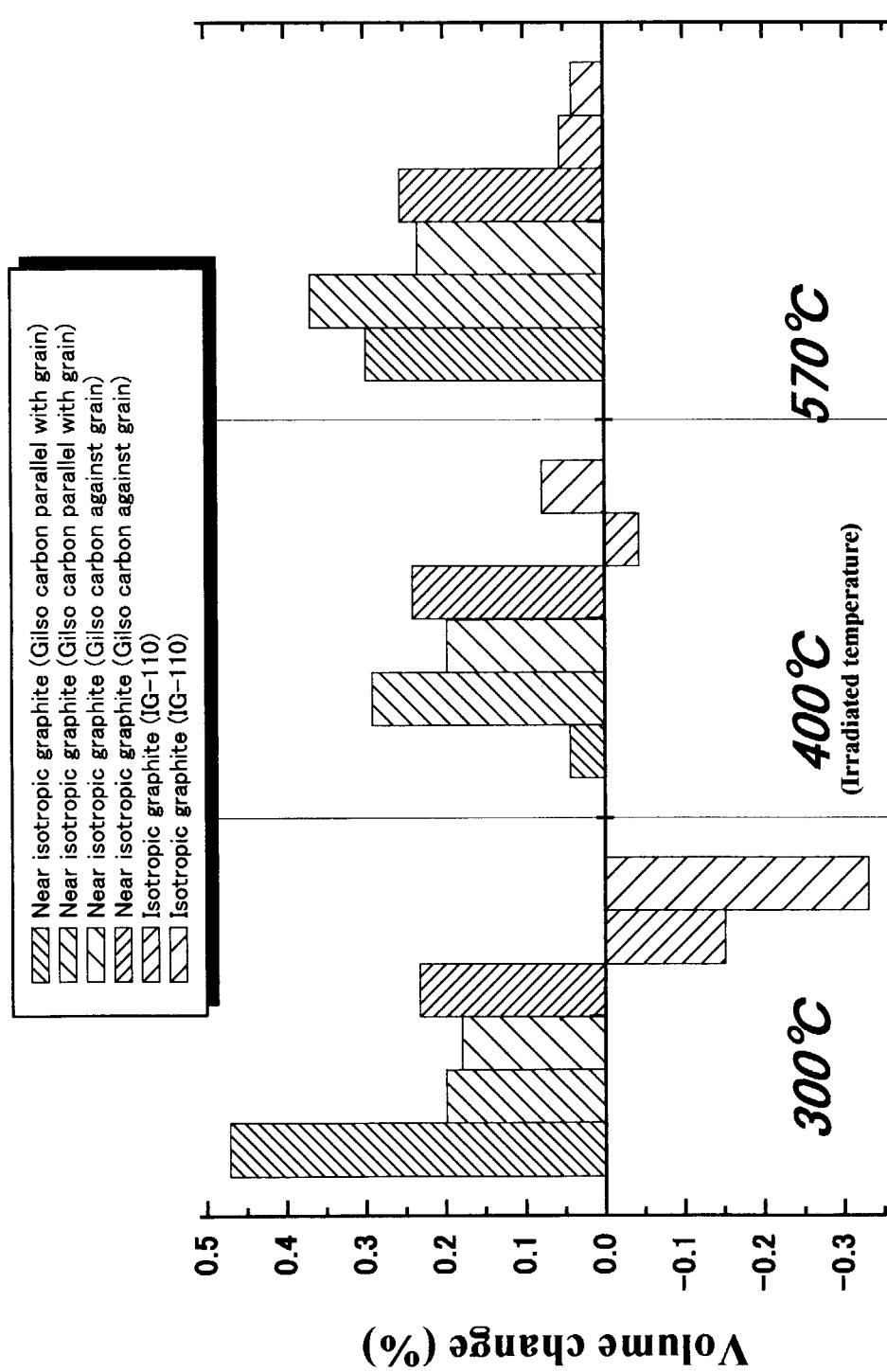


Fig. 3.1 Irradiation-induced dimensional change of near isotropic and isotropic graphite at 300C, 400C and 570C (fast neutron fluence : $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$)



**Fig. 3.2 Irradiation-induced volume change of near isotropic graphite
(fast neutron fluence : $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$)**

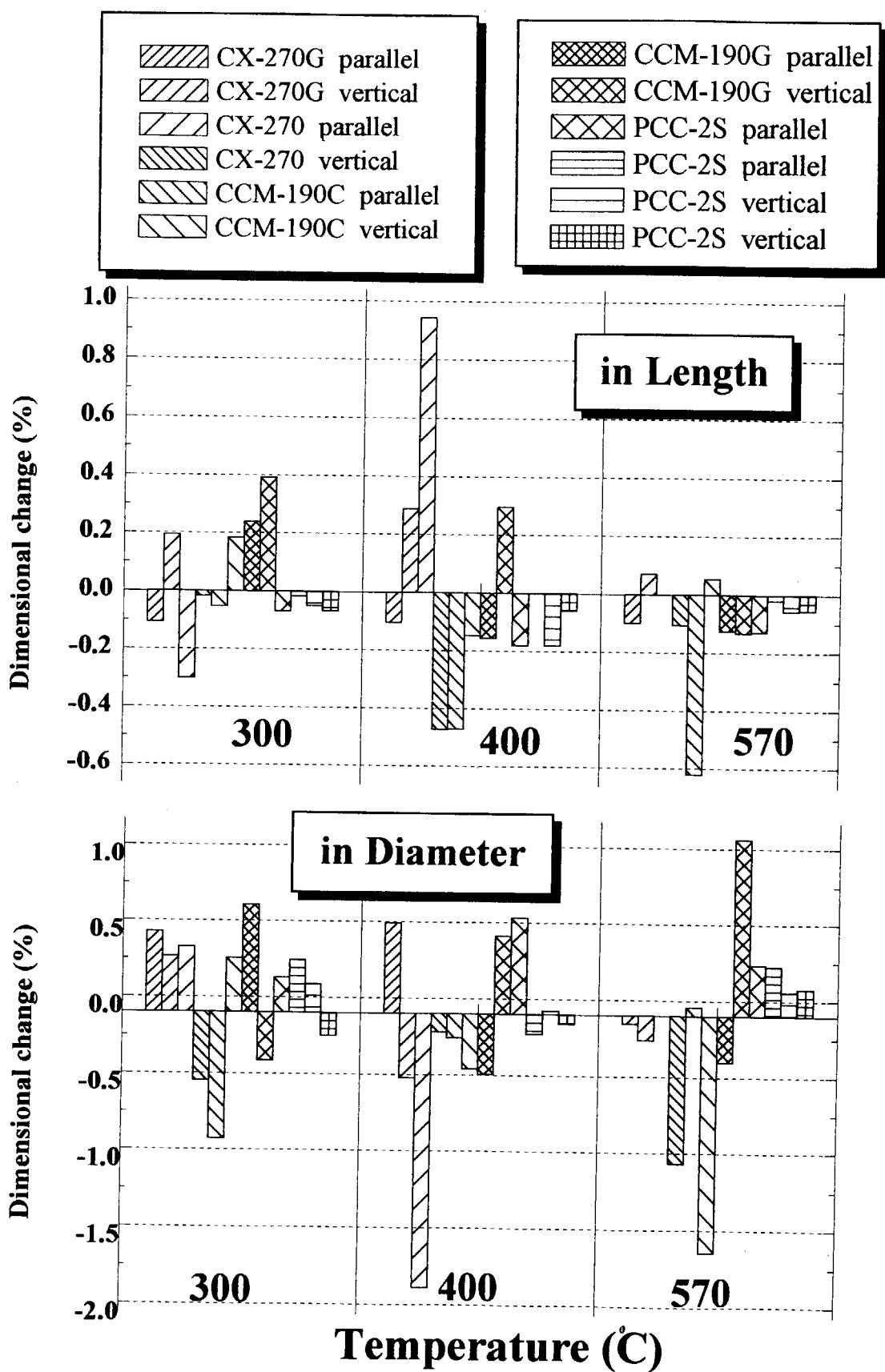


Fig.3.3 Irradiation-induced dimensional change of 2-D C/C composites at 300, 400 and 570°C (fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$).

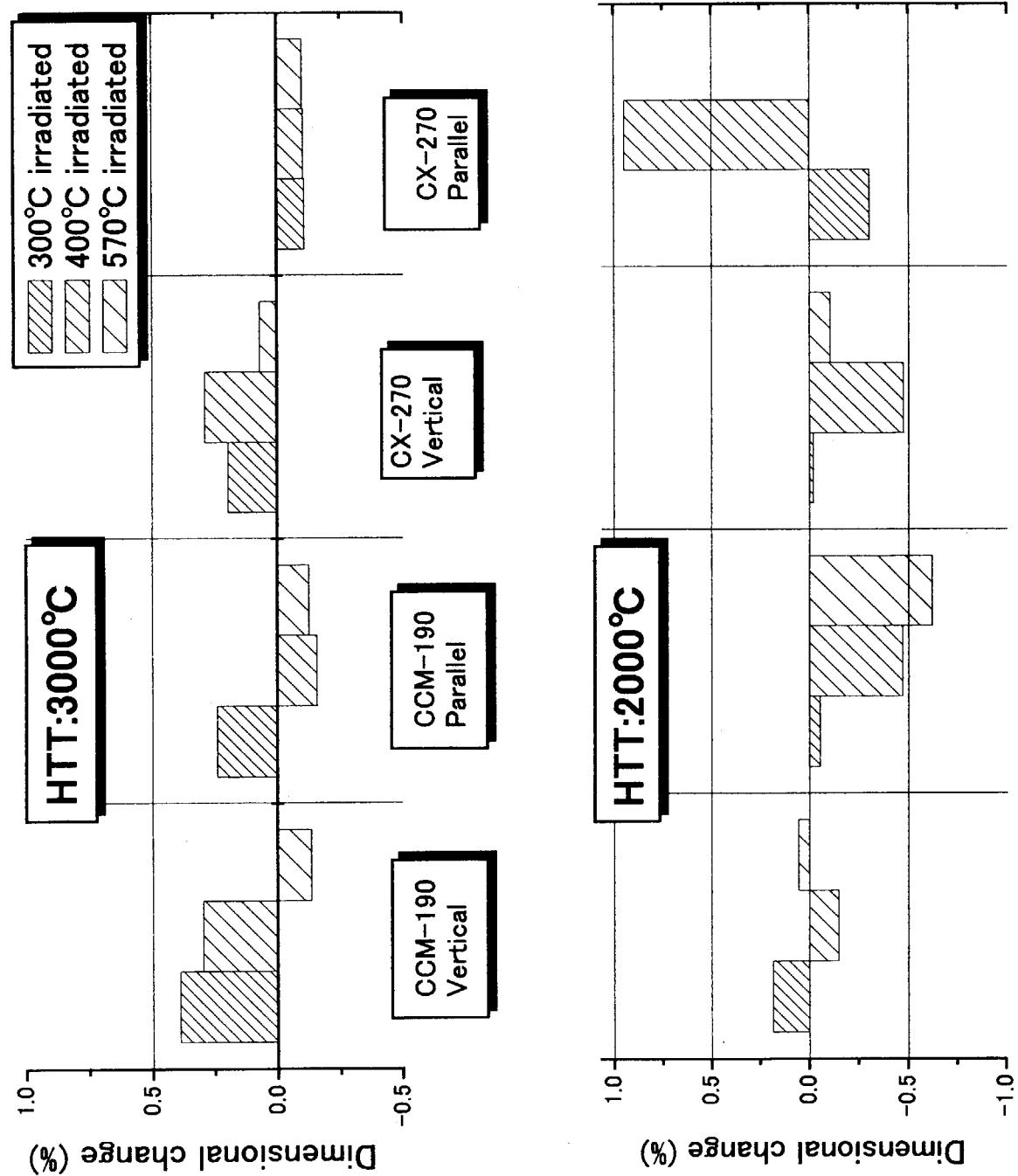


Fig.3.4 Irradiation-induced dimensional change for C/C composites
(fast neutron fluence: $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$).

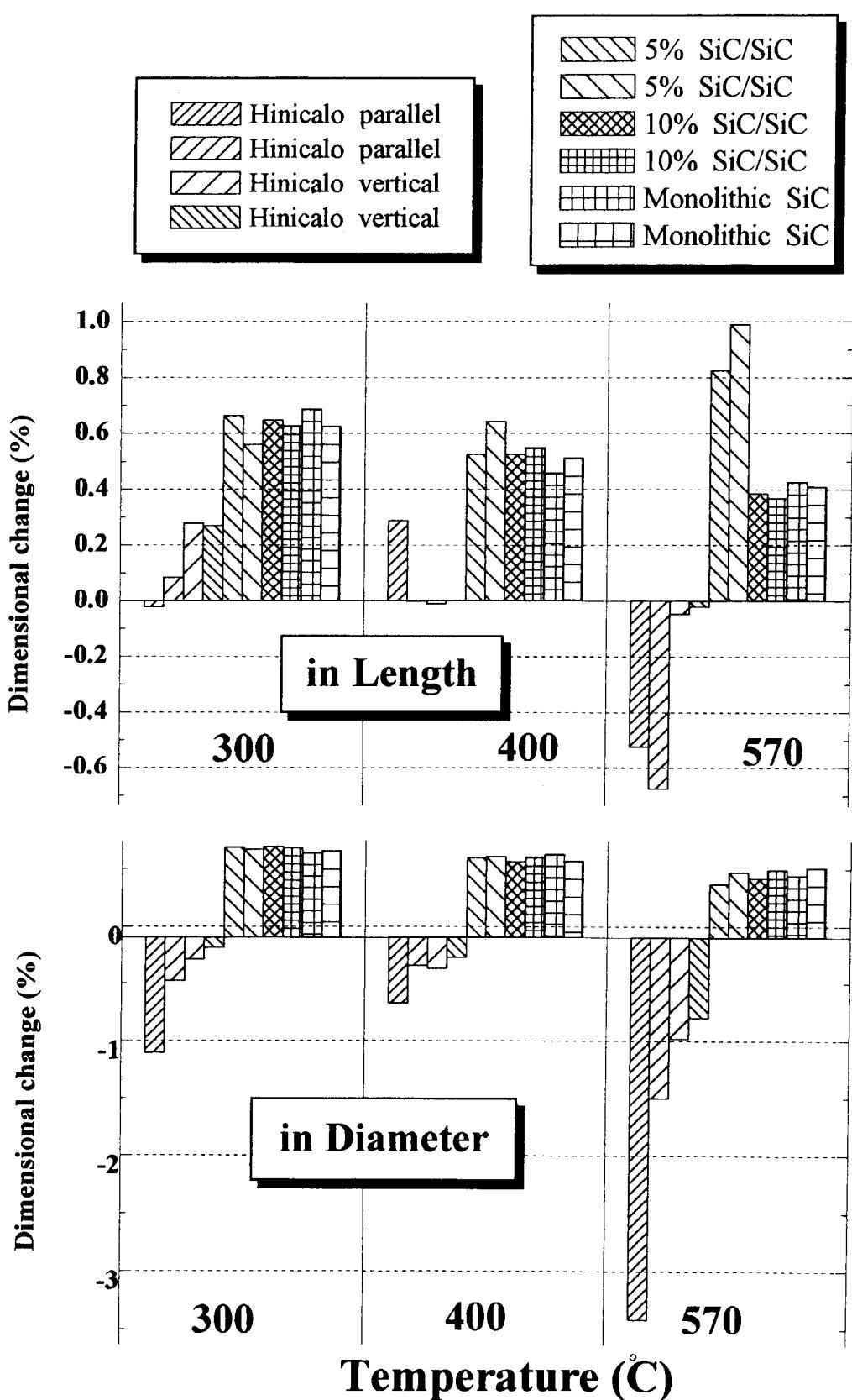


Fig. 3.5 Irradiation-induced dimensional change of SiC fiber/particle reinforced SiC composites and monolithic SiC (fast neutron fluence : $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$)

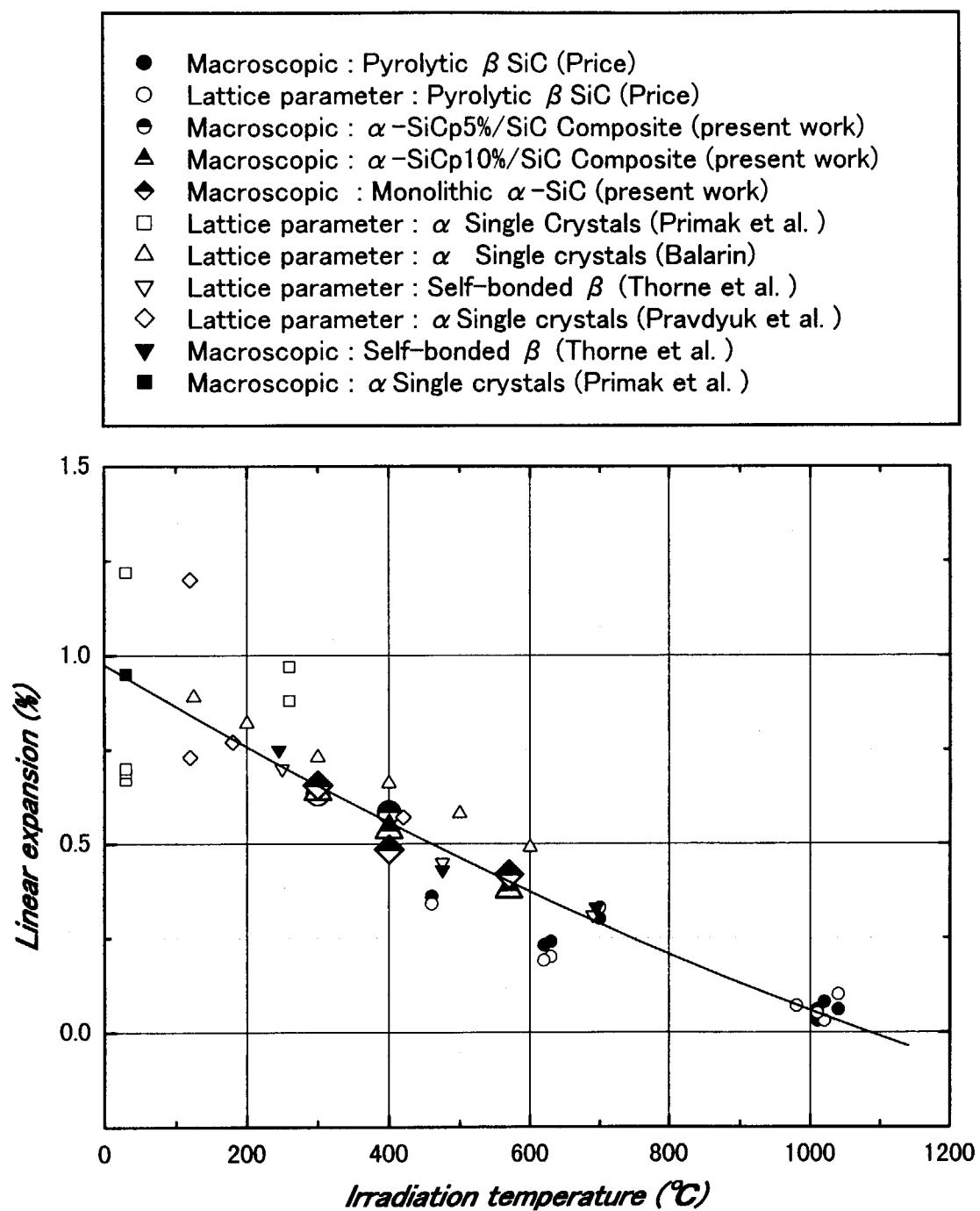


Fig.3.6 Linear expansion of various SiC samples as a function of irradiation temperature.

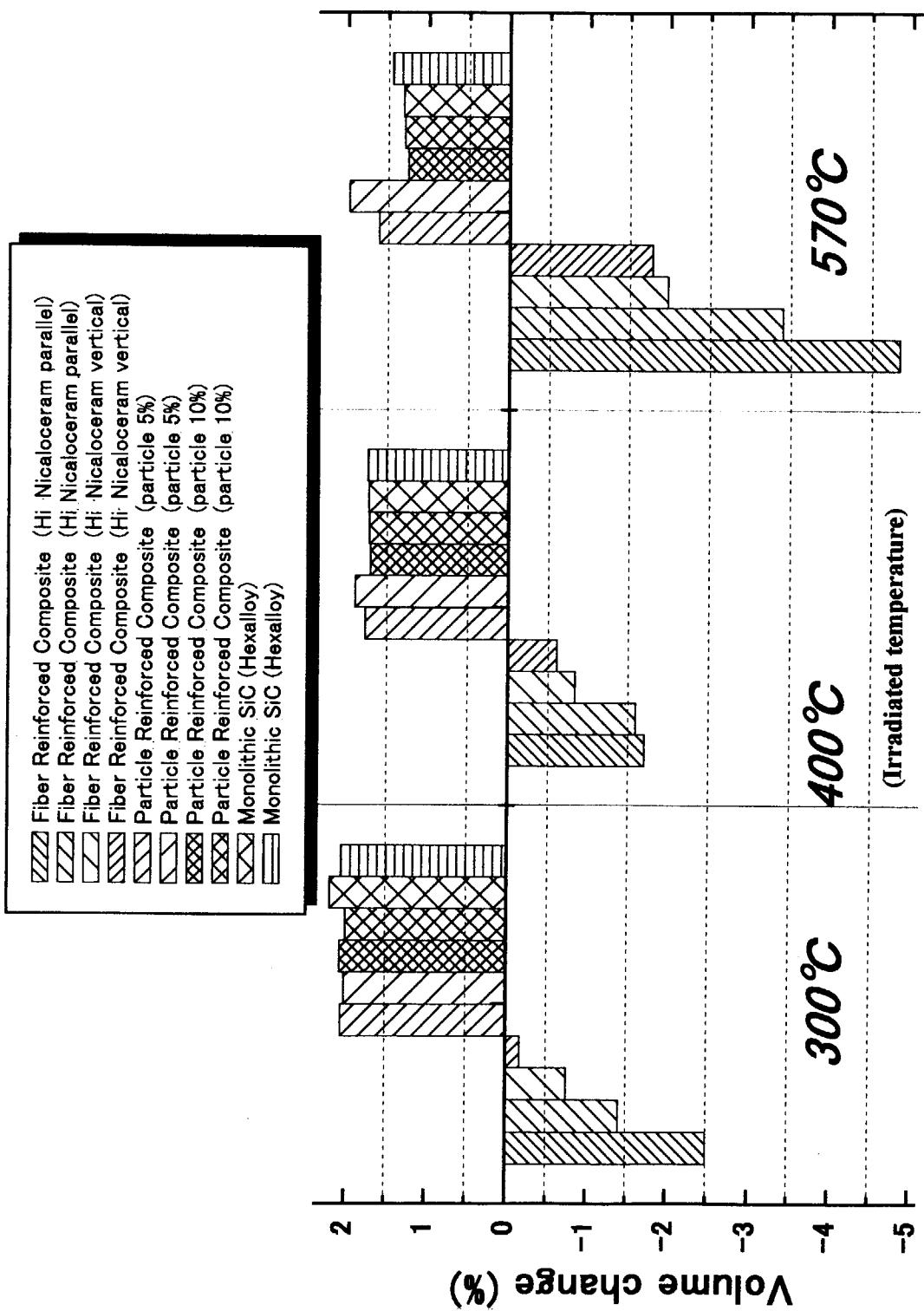


Fig. 3.7 Irradiation-induced volume change of SiC fiber/particle reinforced SiC composites and monolithic SiC
 (fast neutron fluence : $1.8 \times 10^{24} \text{ m}^{-2}$)

4. 熱膨張率

4.1 測定方法

(1) 試験片

熱膨張係数(CTE)測定用の試料は、C/C 複合材料が 5 種類、SiC 複合材料が 3 種類、参考材としてはモノリシック α -SiC(hexaloy[®])、等方性及び準等方性黒鉛(IG-110, Gilso carbon)である。試験片寸法は装置の制約から直径 4.5~5.0mm、長さ 16~20mm の範囲とし銘柄、積層方向毎に変えた。これは照射後試験の際、試験片判別を誤認なく判別可能とするためである。試験片温度を正確に測定するため、C/C 複合材料の試験片中心部に直径 1.5mm × 長さ 8mm の熱電対插入孔を設けた。

(2) 装置

CTE 測定は熱機械分析法(Thermomechanical Analysis, TMA)を用いて、大洗研究所の RI 利用開発棟のホット実験室(放射化学第 1 実験室)において行った。用いた装置は市販品の熱機械分析装置(理学電機製 TMA8310-高温型圧縮荷重方式)である。

測定の原理を Fig.4.1 に示す。本装置ではプログラム温度制御装置により任意の加熱・冷却・保持が 100 パターン設定でき、最高 1773K まで 0.016 ~ 100 K/min の範囲で昇温・降温ができる。パソコンにより任意の時間間隔で温度・熱膨張データを自動的に取り込む方式となっている。相対測定用の基準材はアルミナ(α -Al₂O₃)を使用した。

同一寸法のアルミナ基準材 2 本を用いて行ったプランク試験結果を Fig.4.2 に示す。なお、Fig.4.2a は測定データをそのままプロットしたもので、それを基準材のデータファイルから参照補正したものが Fig.4.2b である。Fig.4.2a から、相対的な長さの測定精度(precision)は 0.1% 以下であり、相対測定による精度としては十分であることがわかる。

(3) 热膨張係数の定義

測定しようとする物体の温度が T_1 から T_2 ($T_2 > T_1$) に変化したとき、軸方向長さが L_1 から L_2 に変わったとすると、 T_1 ~ T_2 間における平均の線熱膨張 e は

$$e = \{(L_2 - L_1)/L_1\} \quad (4-1)$$

で示される¹⁰⁾。また、両温度間の平均線熱膨張係数 $\bar{\alpha}_L$ は

$$\bar{\alpha}_L = e/(T_2 - T_1) = (L_2 - L_1)/\{L_1(T_2 - T_1)\} \quad (4-2)$$

で定義される。温度 T_1 と T_2 との差 ΔT が無限小の極限値をとると、温度 T_1 における $\bar{\alpha}_L$ は

$$\bar{\alpha}_{L(T_1)} = \lim_{\Delta T \rightarrow 0} (L_2 - L_1) / \{L_1(T_2 - T_1)\} = \lim_{\Delta T \rightarrow 0} (1/L_1) \cdot (\Delta L / \Delta T) \quad (4-3)$$

となる。体積変化についても長さの変化と同様にして平均体積熱膨張係数 $\bar{\alpha}_v$ は

$$\bar{\alpha}_v = (V_2 - V_1) / \{V_1(T_2 - T_1)\} \quad (4-4)$$

と定義できる。なお、等方性物質では次式の関係が近似的に成立する。

$$\bar{\alpha}_v \simeq 3\bar{\alpha}_L \{(1 + \bar{\alpha}_L)(T_2 - T_1)\} \quad (4-5a)$$

$$\alpha_v \simeq 3\alpha_L \quad (4-5b)$$

(4) 測定誤差

熱膨張の測定誤差は、(4)式に示した試料長さ L 、変位長さ ΔL 、温度差 ΔT の測定値にそれぞれの誤差が含まれるとして考えることができる¹¹⁾。すなわち、熱膨張率 α の測定誤差($d\alpha/\alpha$)は

$$d\alpha/\alpha = \{(dL/L)^2 + (d\Delta L/\Delta L)^2 + (d\Delta T/\Delta T)^2\}^{1/2} \quad (4-6)$$

で与えられる。試料長さの測定誤差は、通常のマイクロメータを使用した場合には $1\mu\text{m}$ 、変位量を測定する差動変圧器では $0.1\mu\text{m}$ 、また、熱電対による温度測定誤差は 1K 程度と想定される。この場合の誤差評価条件を Fig.4.3 に示す。同図より試料長さ 20mm 、温度差 200K 、熱膨張係数が 10^{-7}K^{-1} から 10^{-5}K^{-1} まで変化したときの測定誤差は 25% から 0.56% まで大きく変動することがわかる。また、同図下部に示すように熱膨張係数が $1 \times 10^{-6}(\text{K}^{-1})$ の材料の試料長が 10mm から 1m まで変化したときの測定誤差は、 5% から 0.5% まで変動することがわかる。すなわち、試料の熱膨張係数が大きく、試料長が長いほど測定誤差は小さくなると言える。

(5) 昇温速度の影響

本試験に用いた試料寸法での最適な測定条件を定めるため、参考材(IG-110)を用いて $5, 10, 15$ 及び $30\text{ K}/\text{min}$ の 4 種類の昇温速度により CTE 測定を行った。その結果、Fig.4.4 に示すように、 $15\text{ K}/\text{min}$ より遅い昇温速度では有意な差は認められなかった。このため、標準的な昇温速度として推奨されている $10\text{ K}/\text{min}$ を測定条件とした。測定の最高温度はヒーター劣化を考慮して、装置の最高性能限度である 1723K よりも 100K 低い 1673K とした。また、試験片の高温酸化を防止するため、測定中は流動ヘリウムガス雰囲気($90\text{ ml}/\text{min}$)とした。

4.2 等方性／準等方性黒鉛及び C/C 複合材料の測定結果及び検討

(1) 等方性／準等方性黒鉛の測定結果

微粒等方性黒鉛(IG-110)の 573、673 及び 843K 照射後 CTE 及び熱膨張率の温度依存性を Fig.4.5 ~ 4.7 に示す。測定は同一照射条件の同一銘柄試料 2 本について、照射後の第 1 回測定と同一条件で第 2 回目測定を実施した。これは照射効果の回復挙動と同時に測定の再現性を確認するためである。この測定方法は原則として、他の照射済み試料全てに適用した。本試料の特徴としては、顕著な照射効果は見られなかったが、843K 照射試料の場合、1123K を越えた測定領域において、熱膨張率が未照射材よりもやや低下する傾向が示された。なお、2 回目測定値はほとんど全ての試料において未照射材と同程度の CTE に回復した。

結晶粒に沿った方向から採取した準等方性黒鉛(Gilso-carbon)試料の照射後 CTE 及び熱膨張率の温度依存性を Fig.4.8 ~ 4.10 に示す。本試料の場合、573 及び 843K 照射試料が未照射材の CTE よりも約 20% 低下したもの、673K 照射試料では照射による低下は見られなかった。結晶粒に垂直方向から採取した準等方性黒鉛(Gilso-carbon)試料の照射後 CTE 及び熱膨張率の温度依存性を Fig.4.11 ~ 4.13 に示す。573K 照射試料の場合(Fig.4.11)第一回目測定のうちの一本は通常負荷すべき 0.098N(10gf) の荷重が無負荷であったため、適正値に達しない測定結果となつた。本試料の場合は最初に述べた IG-110 試料と同様、843K 照射試料のみ 1123K を越えた測定領域から熱膨張率が未照射材よりもやや低下する傾向が示された。その他の照射条件の試料では顕著な変化は現れなかった。

(2) C/C 複合材料の測定結果

まず、2273K 热処理温度の CCM-190C 試料の炭素繊維配列に平行方向(parallel)と垂直方向(vertical)の試料 2 種類について、CTE 及び熱膨張率の温度依存性を各 1 本ずつ測定した結果を Fig.4.14 ~ 4.16 に示す。ここでも 573K 及び 843K 照射の垂直方向試料は照射効果が明瞭に現れているが、673K 照射試料の場合、むしろ逆転した測定結果となっている。一方、平行方向試料の場合、垂直方向に比較して熱膨張率が極めて小さく、 $10^{-6} \sim 10^{-7} K^{-1}$ では測定誤差が 2.5 ~ 25% に達することを考慮する必要がある。従って、10% 程度異なる測定値を評価するにはやや信頼性に欠けると推定される。

3273K 热処理温度の CCM-190G 試料の炭素繊維配列に平行方向(parallel)と垂直方向(vertical)の試料 2 種類について、CTE 及び熱膨張率の温度依存性を各 1 本ずつ測定した結果を Fig.4.17 ~ 4.19 に示す。573K 照射で垂直方向試料の場合、照射前の CTE に比較して約 10% 低下していたが 673K 照射試料では逆転した結果となっていた。さらに、843K 照射試料は照射前後の測定値に大きな差異は見られなかった。

2273K 热処理温度の CX-270C 試料の炭素繊維配列に平行方向(parallel)と垂直方向(vertical)の試料 2 種類について、CTE 及び熱膨張率の温度依存性を各 1 本ずつ測定した結果を Fig.4.20 ~ 4.22 に示す。573K 及び 843K 照射で垂直方向試料の場合、CCM-190C と同様、照射効果が明瞭に現れているが、673K 照射試料の場合、1023K 付近から屈曲し逆転した結果となっていた。なお、本銘柄の平行方向 843K 照射試料は破損したため測定不能であった。

3273K 热処理温度の CX-270G 試料の炭素繊維配列に平行方向(parallel)と垂直方向(vertical)の試料 2 種類について、CTE 及び热膨張率の温度依存性を各 1 本ずつ測定した結果を Fig.4.23 ~ 4.25 に示す。573K 照射で垂直及び平行方向試料の場合、照射前の CTE に比較して約 10% 低下していたが 673K 照射試料では大きな差異は示さなかった。一方、843K 照射試料では同様に照射 1 回目の測定値の 1073K 付近に屈曲点が現れた。また、本試料の热膨張率の小さな平行方向試料については、2 回目測定に引き続いて 3 回目測定を実施し再現性を確認したが、Fig.4.25 に示すとおり照射回復効果のあることが分かった。

2 次元フェルト C/C 複合材料 PCC-2S 試料の CVD 積層面に垂直(vertical)方向について、CTE 及び热膨張率の温度依存性を各 2 試料ずつ測定した結果を Fig.4.26 ~ 4.28 に、同じく積層面に平行(parallel)方向については Fig.4.29 ~ 4.31 に示す。本銘柄の垂直方向 573K 照射試料は、Fig.4.26 に示したように 1073K 付近に屈曲点が現れ 1373K 付近で終了する温度依存曲線を示した。これは未照射の垂直方向試料の場合と同様の現象であった。その後、同照射試料の 2 回目測定においては未照射試料と同様の測定値に戻る、照射損傷回復過程が示された。垂直方向 400 °C 照射試料は、Fig.4.27 に示すように 573K 照射試料とは異なり 1273K 付近から CTE が増加に転じる傾向を示した。さらに、1073K 付近の屈曲点は 2 回目測定でも回復しなかった。843K 照射試料でも同様に屈曲点が現れたが、2 回目以降 4 回目まで測定した結果の再現性がなかった。一方、積層面に平行方向の 573K 照射試料については、Fig.4.29 に示すように急速加熱一定温度保持(等温焼鈍)の昇温方法による照射損傷の活性化エネルギーを求める試験法を実施したため、照射効果の明確な測定結果は得られなかった。また、平行方向の 673K 及び 843K 照射試料は未照射試料と同様の屈曲点が現れたが、2 回目以降の測定結果には再現性がなかった。

(3) 検討

多結晶黒鉛材料の热膨張は結晶子自体の热膨張が主な原因であるが、結晶子の配向性やその周囲と内部の気孔容積、形状、分布によって大きく影響を受け、巨視的な热膨張係数は黒鉛結晶の c 軸方向の値よりもかなり小さい。黒鉛材料の热膨張については、Nelson & Riley¹²⁾ を始めとした数多くの研究者¹³⁻¹⁶⁾の報告がある。ここでは黒鉛材料の热膨張係数に及ぼす中性子照射効果を理解するために、結晶の異方性を考慮することが必要であるとともに、種々の形状、分布を持った気孔が多数存在している場合の热膨張係数を扱うには、気孔緩和モデルを考慮する必要があることを注記する。

すなわち、Price ら¹⁷⁾は結晶子が不規則に並んでいる材料(等方材)ほど結晶子相互の干渉による力が強く、黒鉛化処理温度からの冷却により生じるクラックの数が多いと考えて、緩和量の差をマイクロクラックの数の差のみで説明した。一方、斎藤ら¹⁸⁾は緩和量を決定する要因はクラックの数だけではなく「クラックの強さ」すなわちクラックが伸縮する際の抵抗力を考慮する必要のあることを提唱した。

4.3 モノリシック SiC 及び SiC/SiC 複合材料の測定結果及び検討

(1) 結果

モノリシック α -SiC(Hexaloy)照射試料の CTE 及び熱膨張率の温度依存性を各 2 試料ずつ 2 回測定した結果を Fig.4.32 ~ 4.34 に示す。第 1 回目の測定では照射温度 573K、673K 及び 843K 何れの条件においても、照射温度 + 100K 付近から屈曲が始り、測定終了温度の 1673K まで熱膨張平衡状態を示した。その後、同照射試料の 2 回目測定においては未照射試料と同様の測定値に戻る、照射損傷回復過程が示された。

前記のモノリシック α -SiC を基材として、これに中心粒径 30 μm の SiC 強化粒子を 5% 添加した SiCp/SiC 複合材の CTE 及び熱膨張率の温度依存性を各 2 試料ずつ 2 回測定した結果を Fig.4.35 ~ 4.37 に示す。同様に SiC 強化粒子 10% 添加した SiCp/SiC 複合材の測定結果を Fig.4.38 ~ 4.40 に示す。これらの温度依存性曲線は前記のモノリシック α -SiC と同様の傾向を示しており、第 2 回目測定で 573K ~ 843K の全照射温度条件においてほぼ完全な照射損傷回復過程が示された。

SiC 繊維(HiNicalon)を強化材に用いてポリカルボシラン(PCS: Polycarbosilane)含浸焼成・緻密化処理した 2 次元 SiC_p/SiC 複合材(HiNicaloceram)の SiC 繊維配向に平行方向の試料について、照射後 CTE 及び熱膨張率の温度依存性を 2 試料ずつ各 2 回測定した結果を Fig.4.41 ~ 4.43 に示す。また、SiC 繊維配向に垂直方向の試料についても Fig.4.44 ~ 4.46 に示す。本銘柄の 573K 照射試料 2 本のうち 1 本については、照射損傷の活性化エネルギーを求めるための急速加熱一定温度維持の昇温方法による試験を実施したため、ステップ状の測定曲線となっている。本試料の平行方向試料の場合、モノリシック α -SiC 及び SiC_p/SiC 複合材と同様に明瞭な熱膨張率の屈曲点が現出したが、相違点は屈曲後の熱膨張が平衡維持するのではなく収縮方向に進展し、1500K 付近で反転することである。一方、垂直方向試料の場合も同様に屈曲点は出現し、1300K 付近まで収縮進展するが、その後反転し再び収縮する(Fig.4.44)。843K 照射垂直方向試料は、収縮せず平衡維持し 1400K 付近から膨張に転ずるもの 1600K 以降は再び収縮する、という複雑な挙動を示す(Fig.4.46)。2 回目測定の結果、照射損傷回復傾向は全ての SiC 照射試料に見られるが、843K 照射試料では回復挙動が醉歩のごとく推移し、完全には未照射試料と同様の温度依存性曲線には戻らない(Fig.4.46)。

(2) 検討

セラミックス複合材料の場合、フィラーとしての纖維は 10 μm 前後の直径をもつ 1 次元材料であるが、これをどのように集合させるのかと言ったマクロ組織の制御は、複合材料の機能発現の上で非常に重要な問題である。Fig.4.47 に示すように、たとえば一方向に揃えた(1D)ファイバーを用いれば、複合材料はその方向には高い強度を持つが、その方向に延びた気孔が生じ易く層間剥離を起こしやすい。平織(2D)の場合は交差点でファイバーが屈曲するため強度低下の原因となる。3 次元織り(3D)の場合は、纖維束に囲まれた隙間(ポケット)が出来て

気孔が生じやすいなどの問題がある。いずれにせよ、セラミックス複合材料の場合には、結晶の異方性及び気孔緩和モデルの考慮に加えて、繊維強化方法の違い、積層方向などが熱膨張係数に大きく影響を与えていていることに注意すべきである。

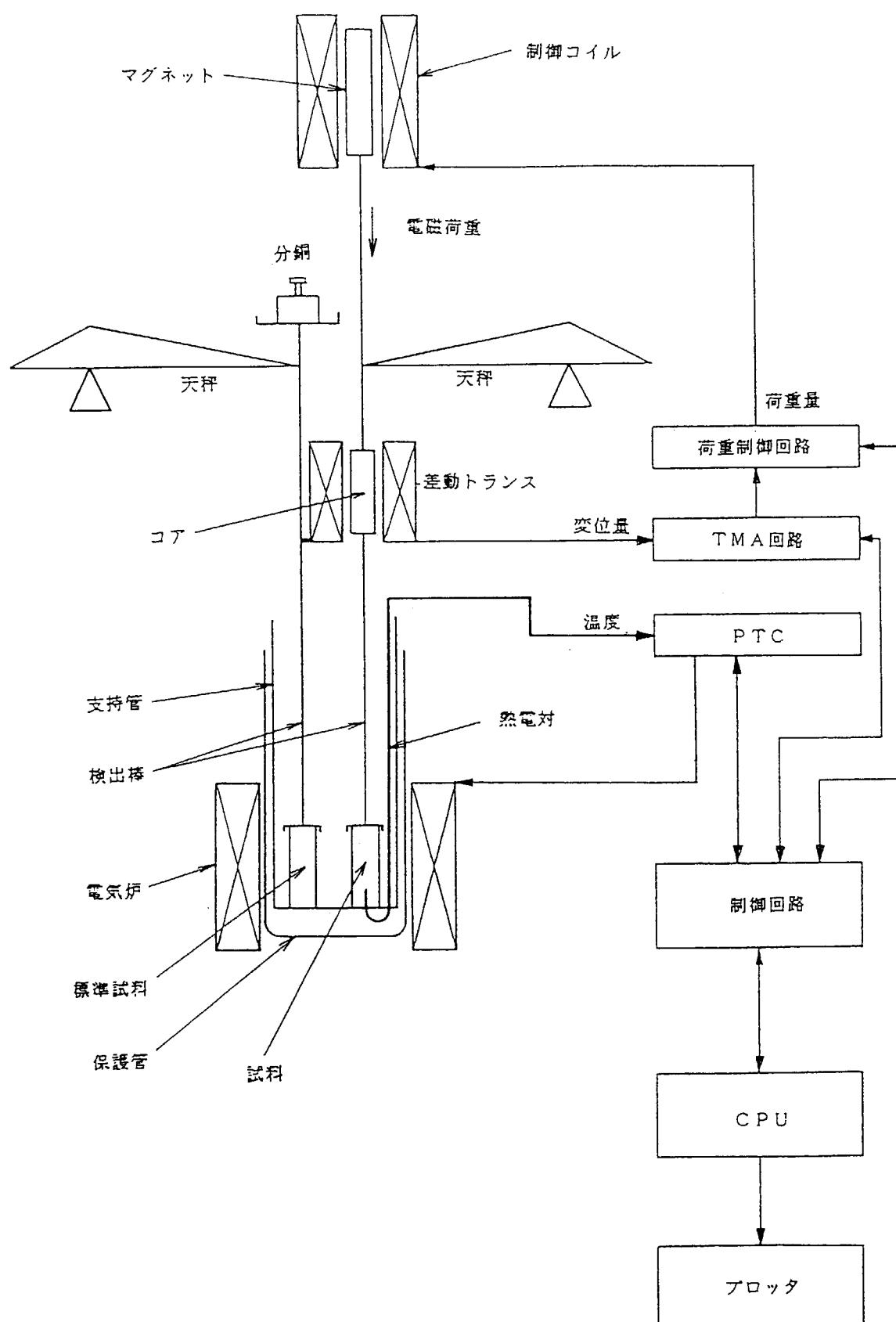


Fig.4.1 Principle of thermomechanical analysis.

Model : TMA8310 Atmosphere : Flow Helium Directory : ...¥97M-13A未照射試験
 Sample : Alumina-A Rate : 10.0°C/min Meas File : Alumina-A
 Length : 19.998 mm Sampling : 2.0 sec Record : 1998/11/26 12:23:09
 Reference : Alumina Operator : baba Print Out : 1998/12/15 16:35:05
 Length : 20.001 mm TMA-Load : -10.0 g
 Comments1 : Blank Test
 Comments2 : 97M-13A Unirradiated
 +00
 +00

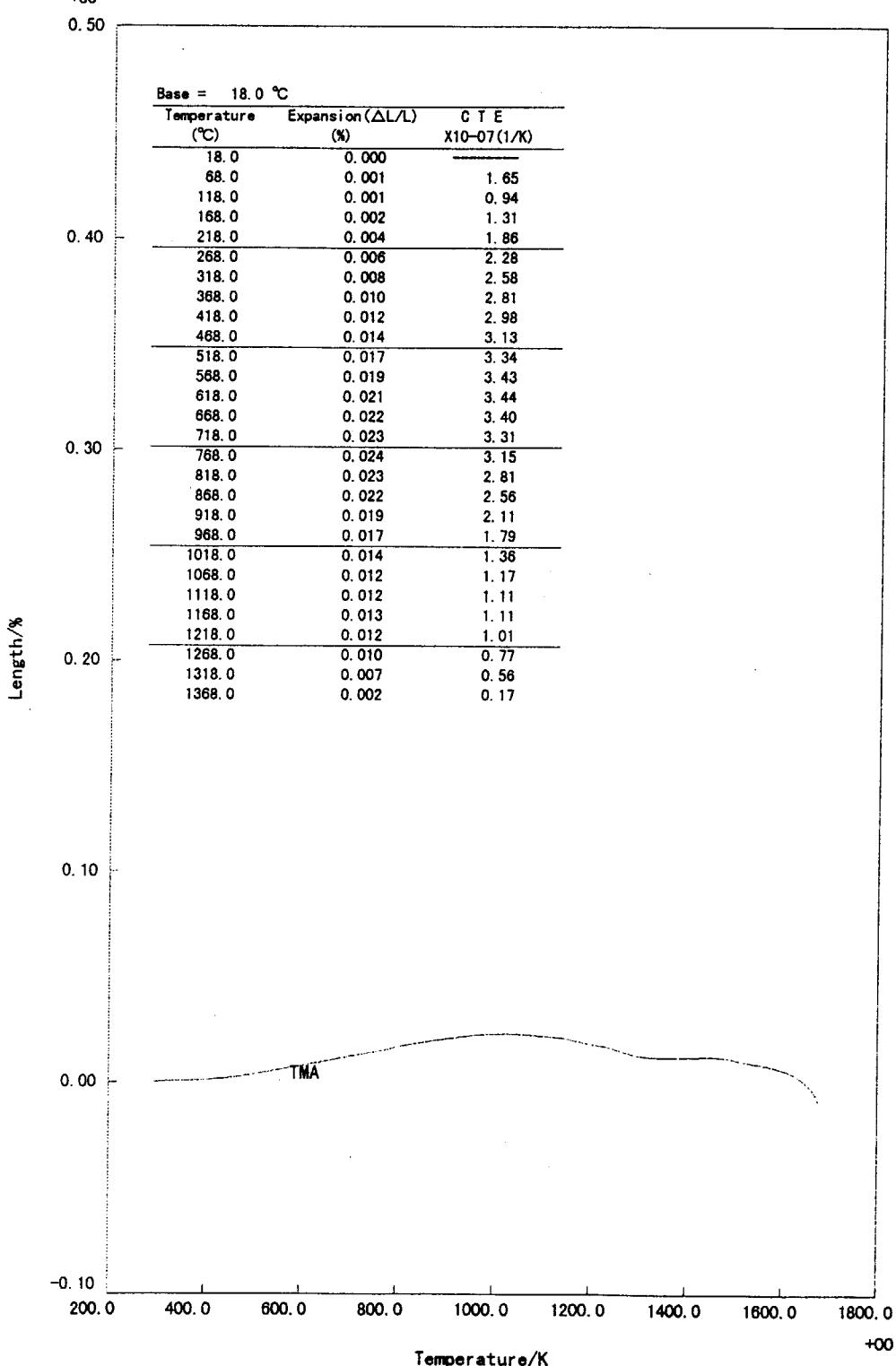


Fig.4.2a Temperature dependence of the coefficient of thermal expansion for blank test with a standard specimen of alumina bar (uncorrected line).

Model : TMA8310 Atmosphere : Flow Helium Directory : ...¥97M-13A未照射試験
 Sample : Alumina-A Rate : 10.0°C/min Meas File : Alumina-A
 Length : 19.998 mm Sampling : 2.0 sec Record : 1998/11/26 12:23:09
 Reference : Alumina Operator : baba Print Out : 1998/11/26 17:04:57
 Length : 20.001 mm TMA-Load : -10.0 g
 Comments1 : Blank Test
 Comments2 : 97M-13A Unirradiated
 +00

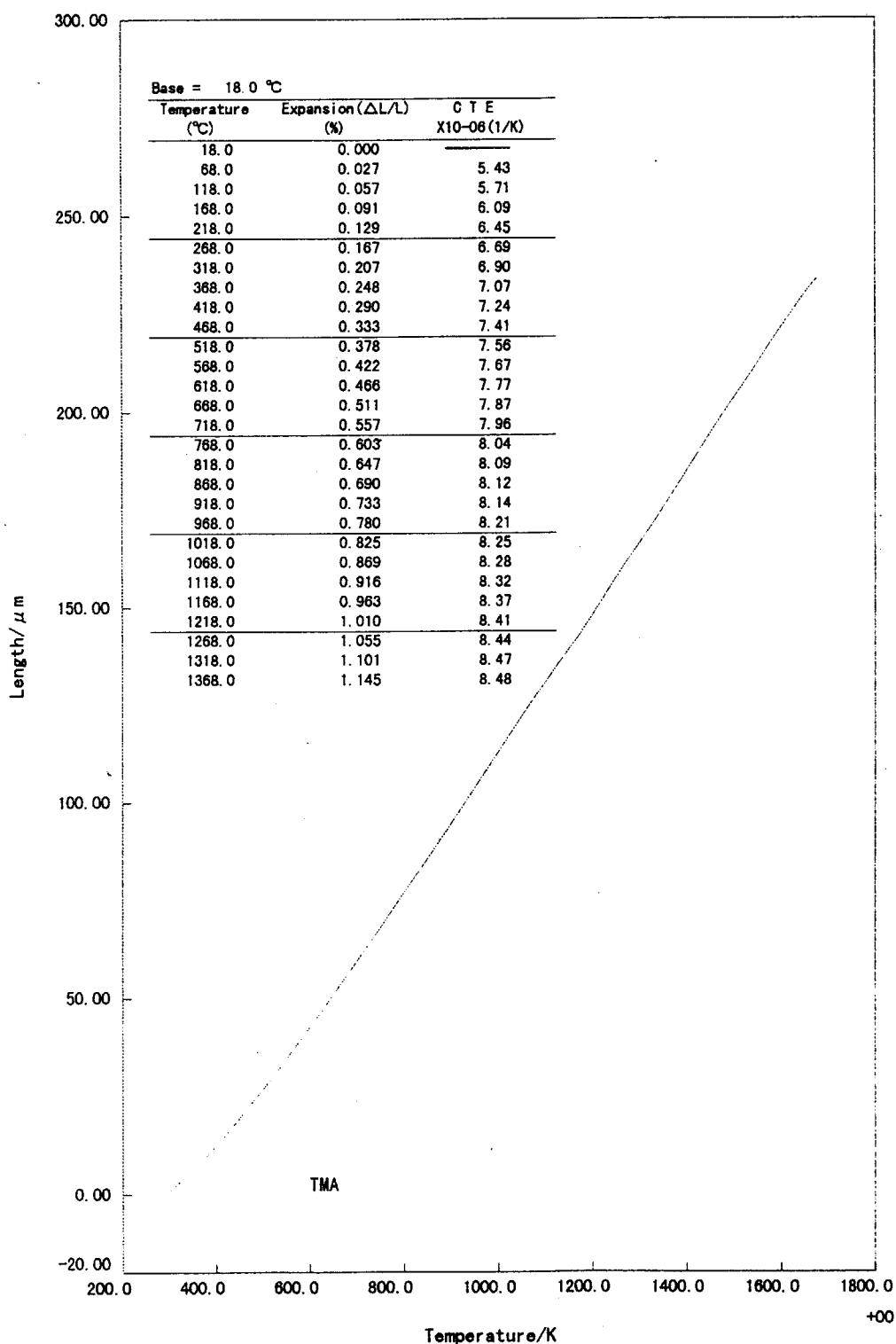


Fig.4.2b Temperature dependence of the coefficient of thermal expansion for blank test with a standard specimen of alumina bar (corrected line).

$$d\alpha/\alpha = \{ (dL/L)^2 + (d\Delta L/\Delta L)^2 + (d\Delta T/\Delta T)^2 \}^{1/2}$$

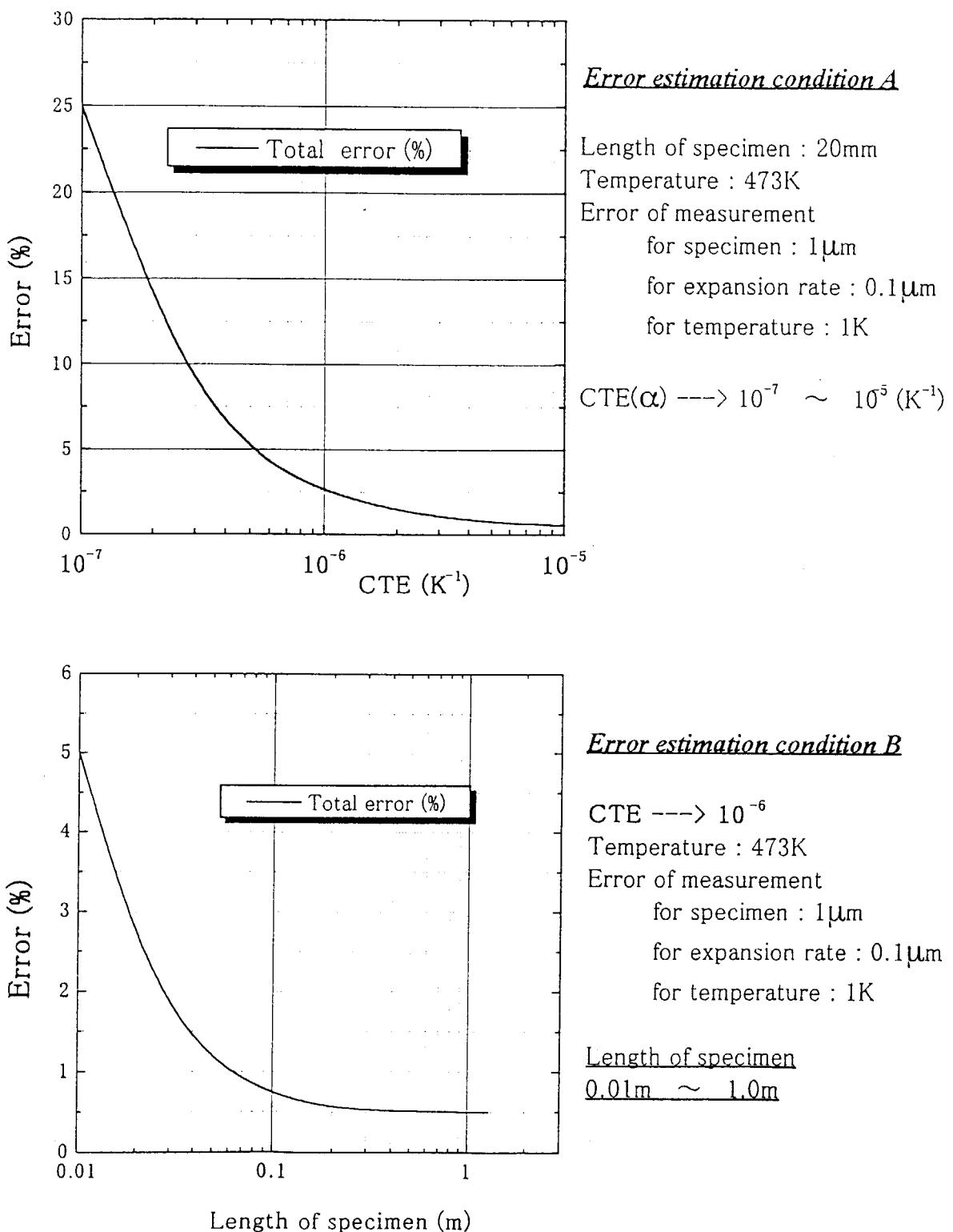


Fig.4.3 Error estimation in thermal expansion measurement.

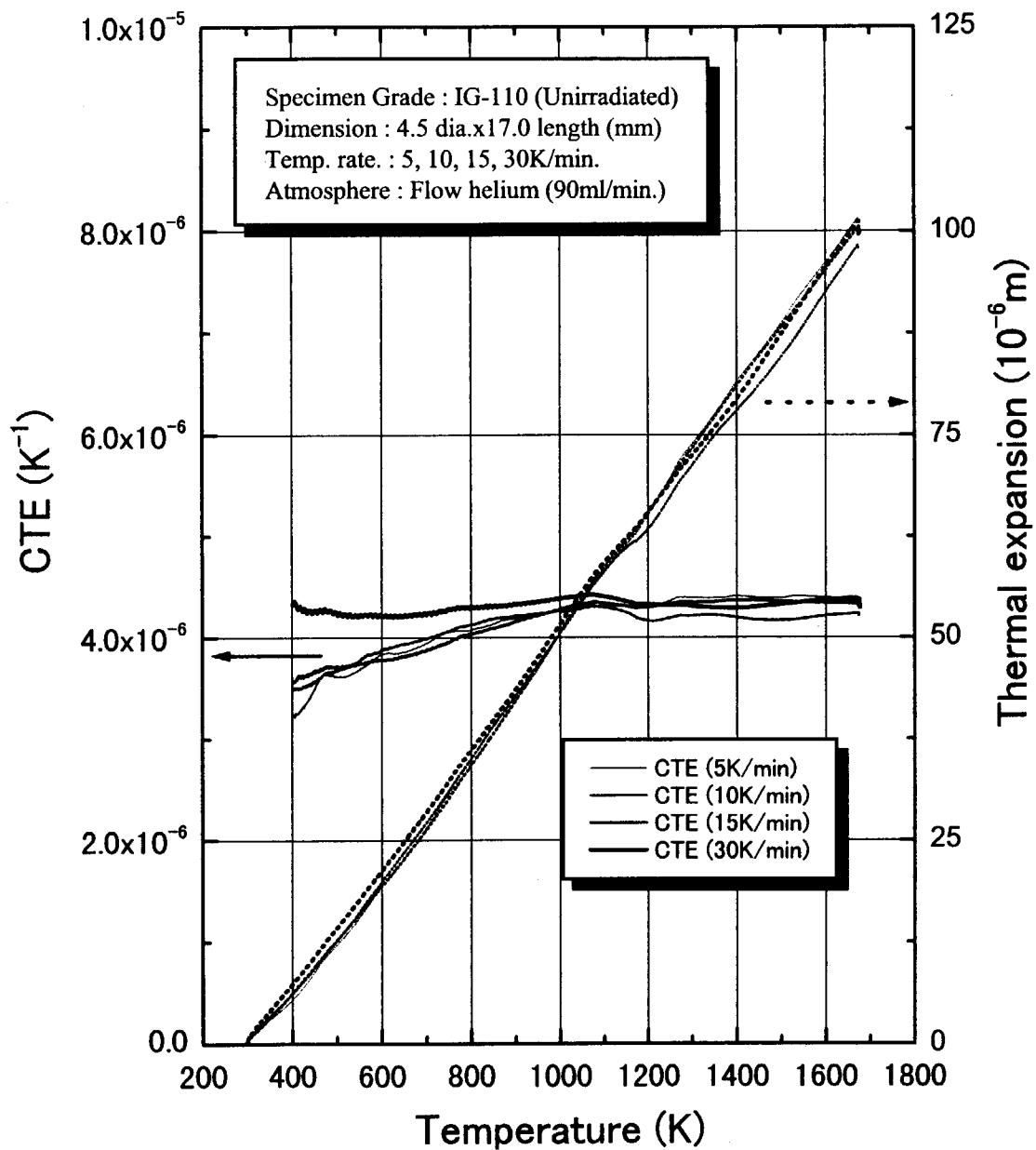


Fig. 4.4 Temperature ramp rate dependence of coefficient of thermal expansion(CTE) and thermal expansion for isotropic graphite(IG-110)

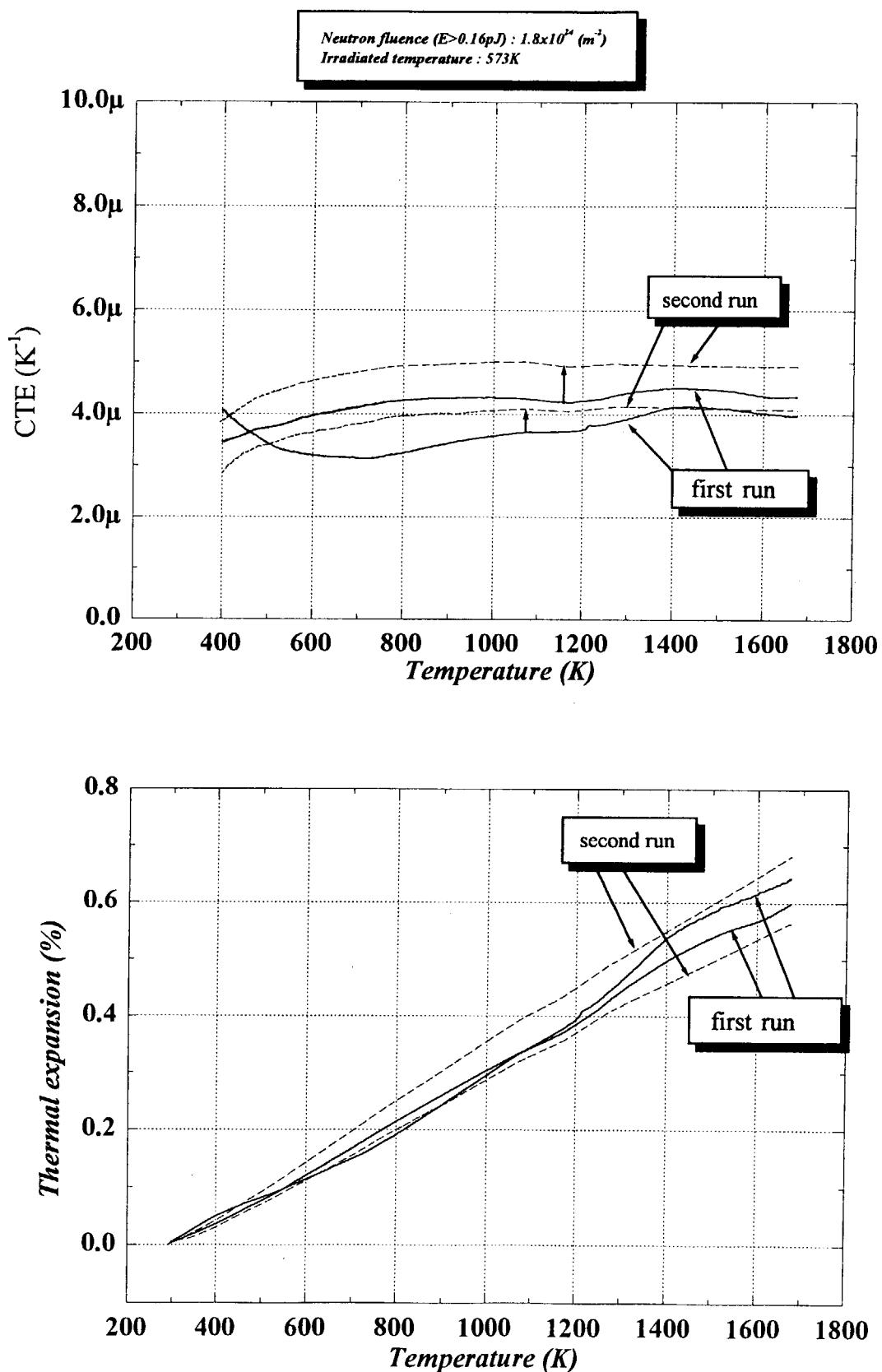


Fig.4.5 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for isotropic graphite (IG-110) irradiated at 573K.

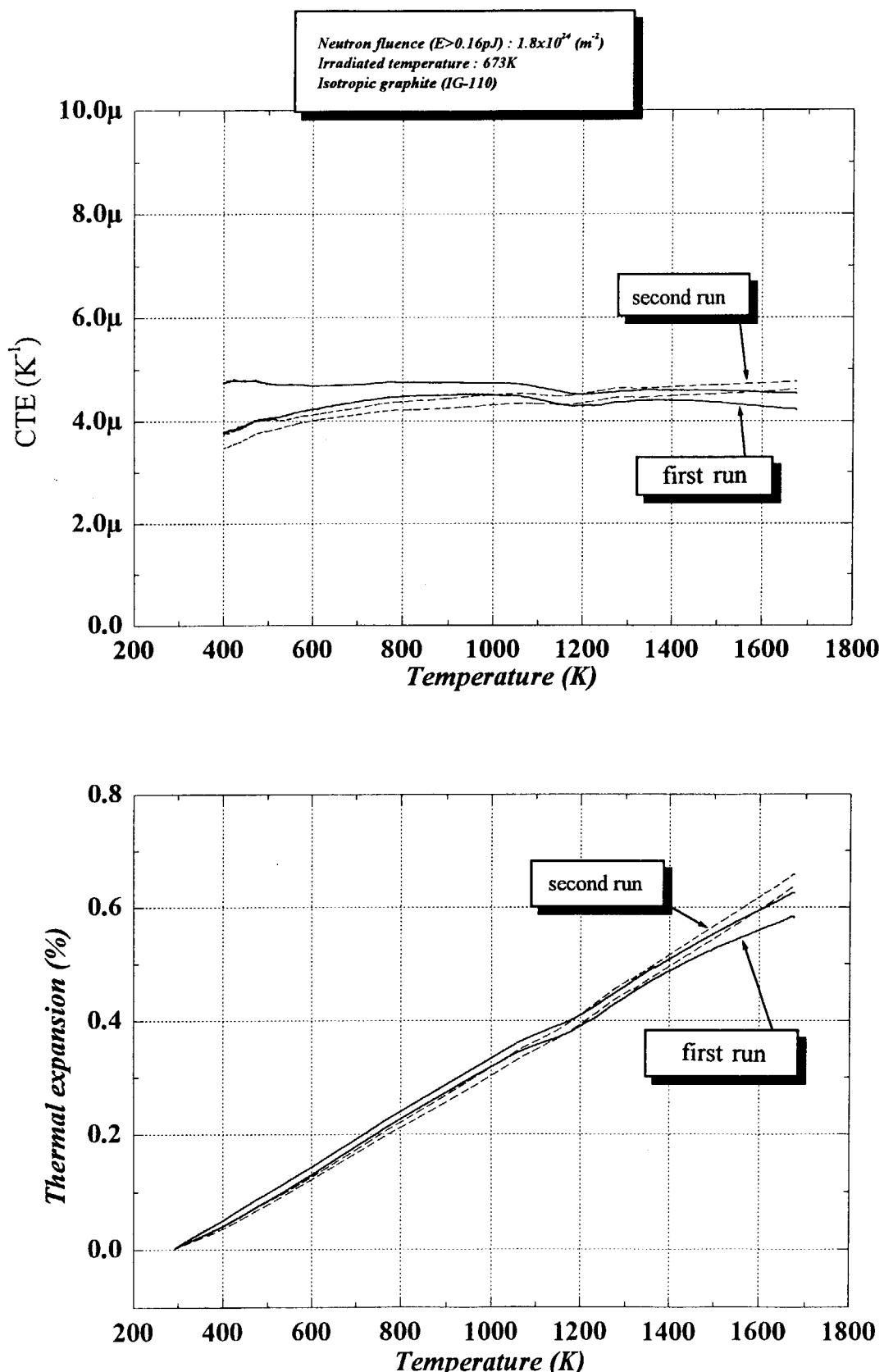


Fig.4.6 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for isotropic graphite (IG-110) irradiated at 673K.

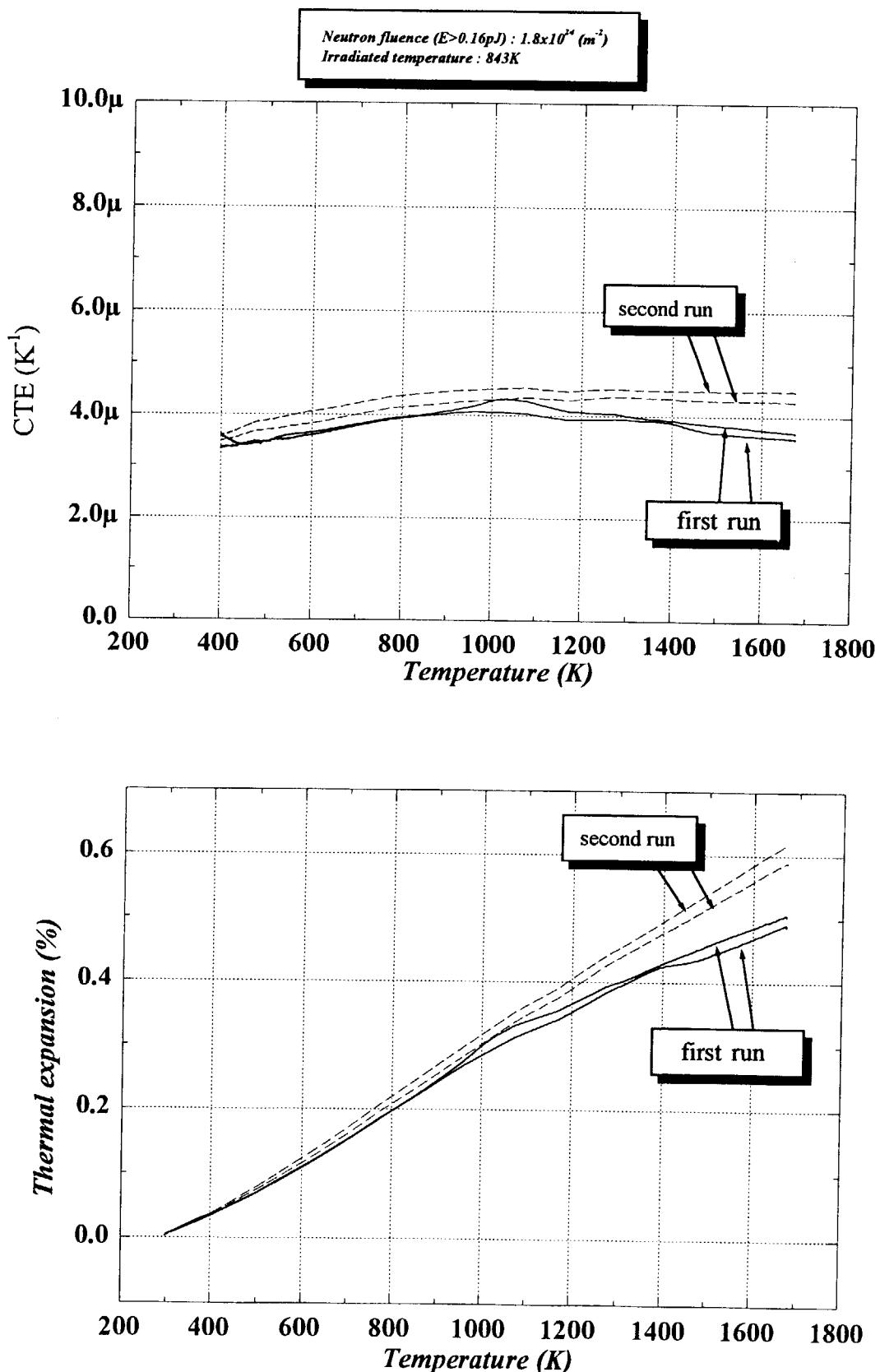


Fig.4.7 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for isotropic graphite (IG-110) irradiated at 843K.

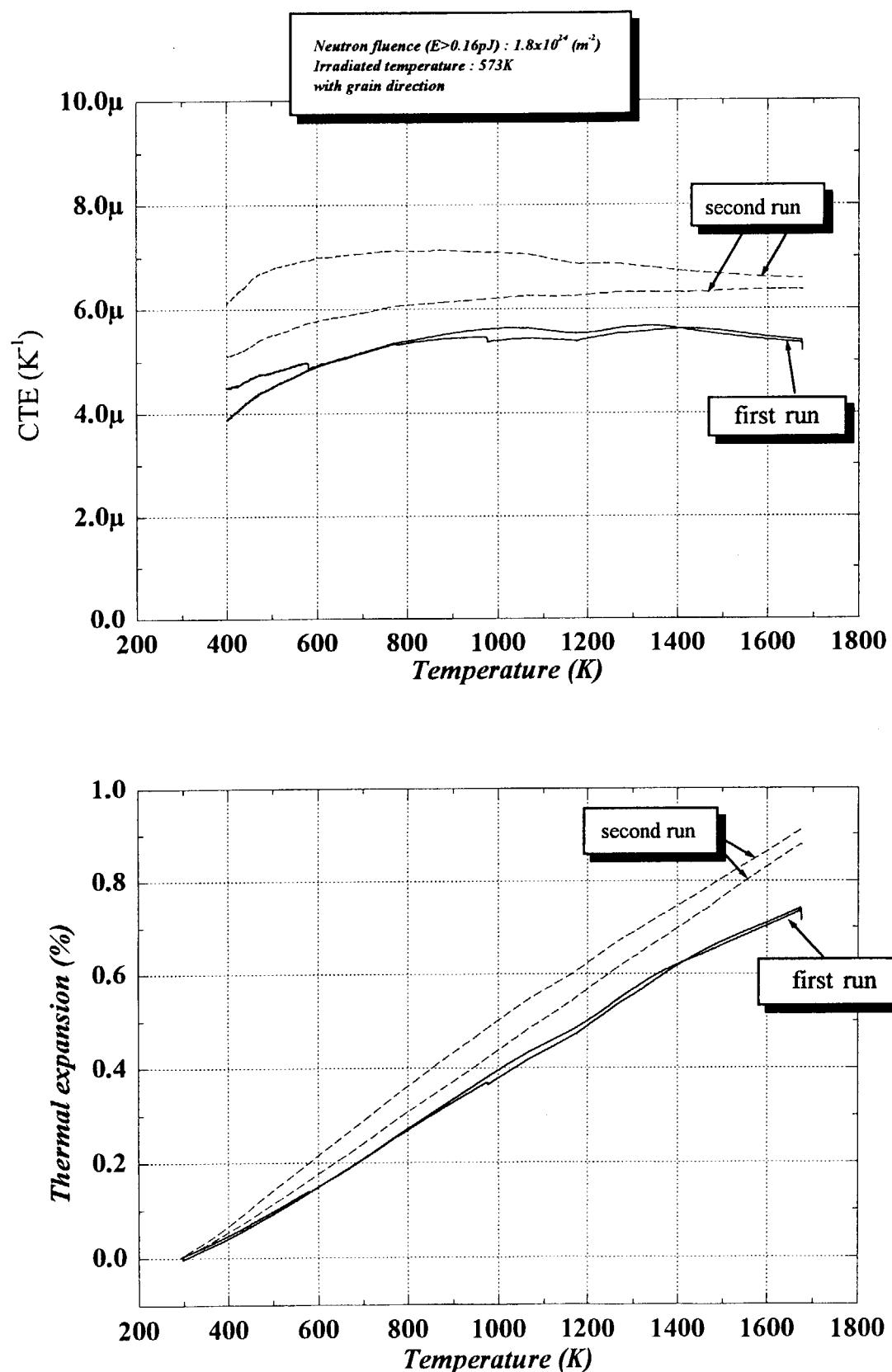


Fig.4.8 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for near-isotropic graphite (Gilso-carbon) irradiated at 573K.

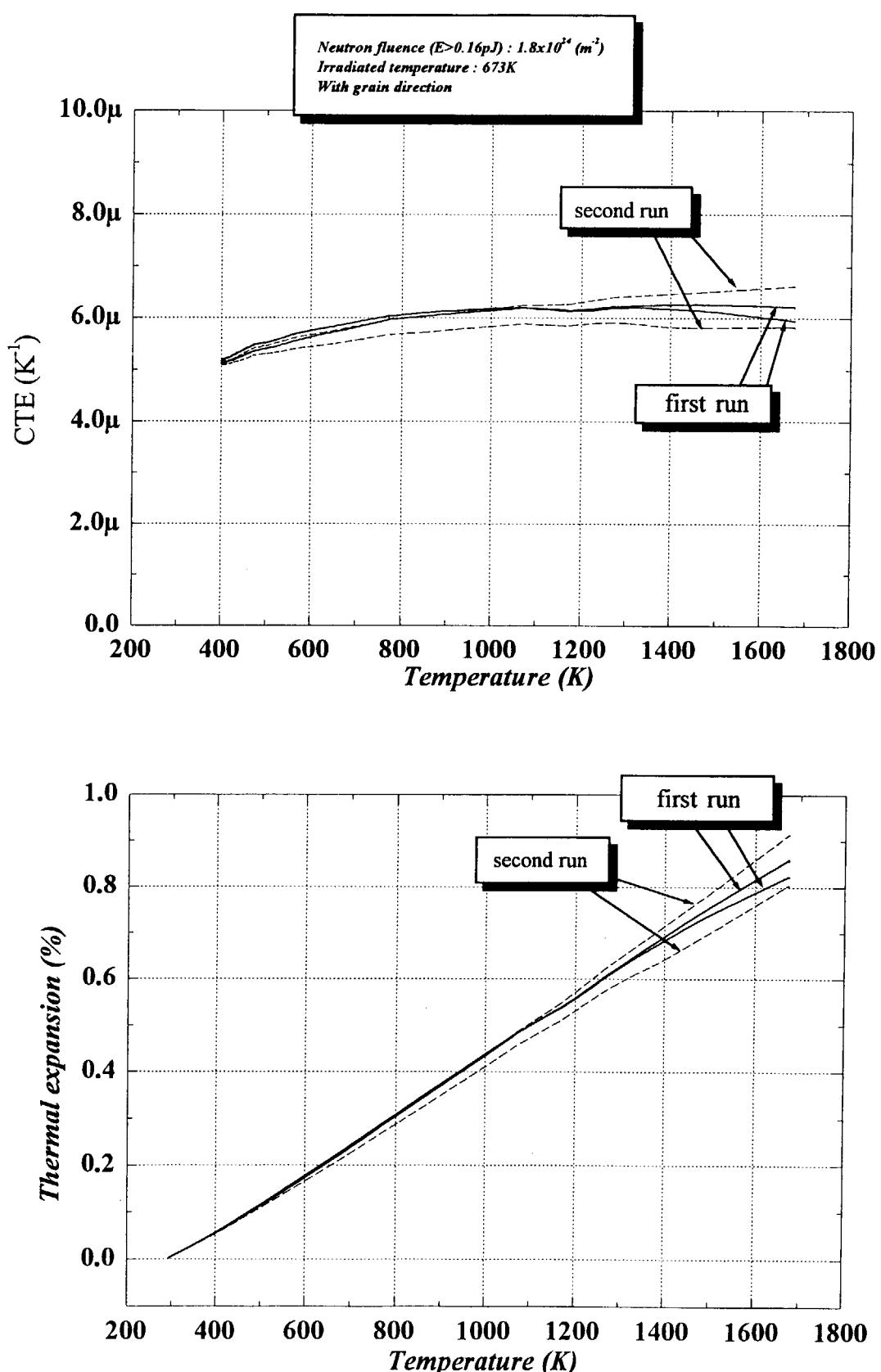


Fig.4.9 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for near-isotropic graphite (Gilso-carbon) irradiated at 673K.

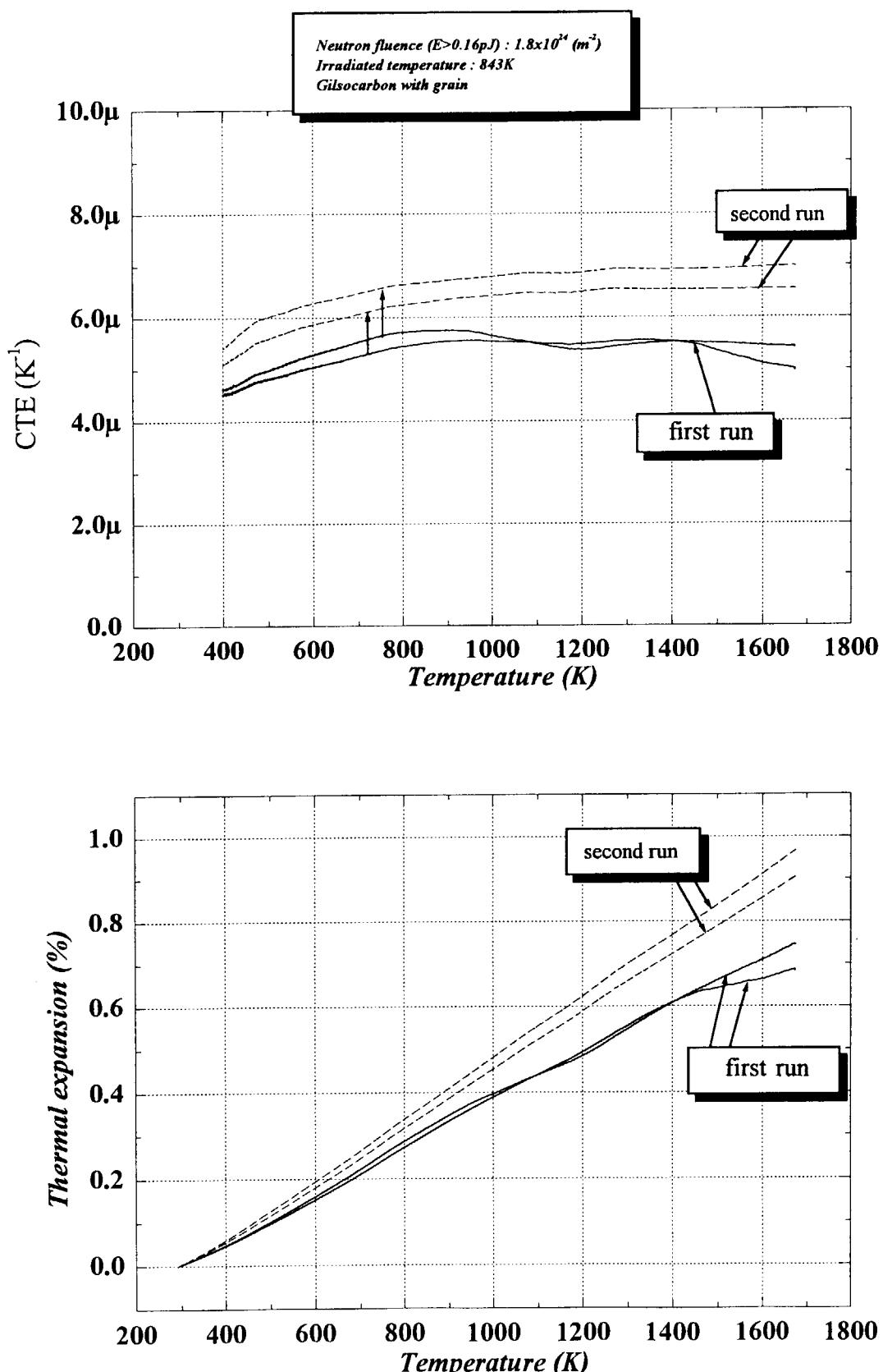


Fig.4.10 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for near-isotropic graphite (Gilso-carbon) irradiated at 843K.

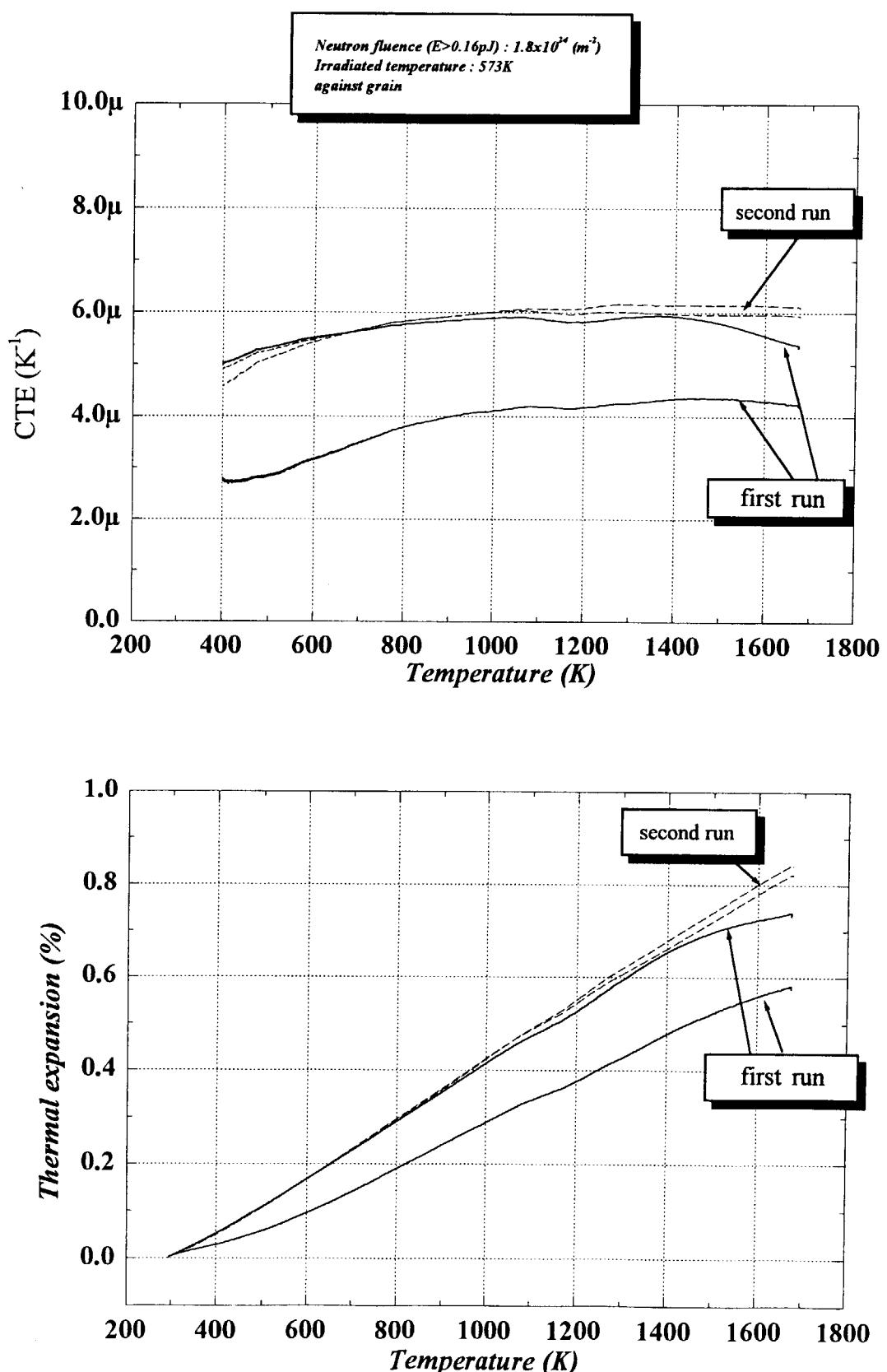


Fig.4.11 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for near-isotropic graphite (Gilso-carbon) irradiated at 573K.

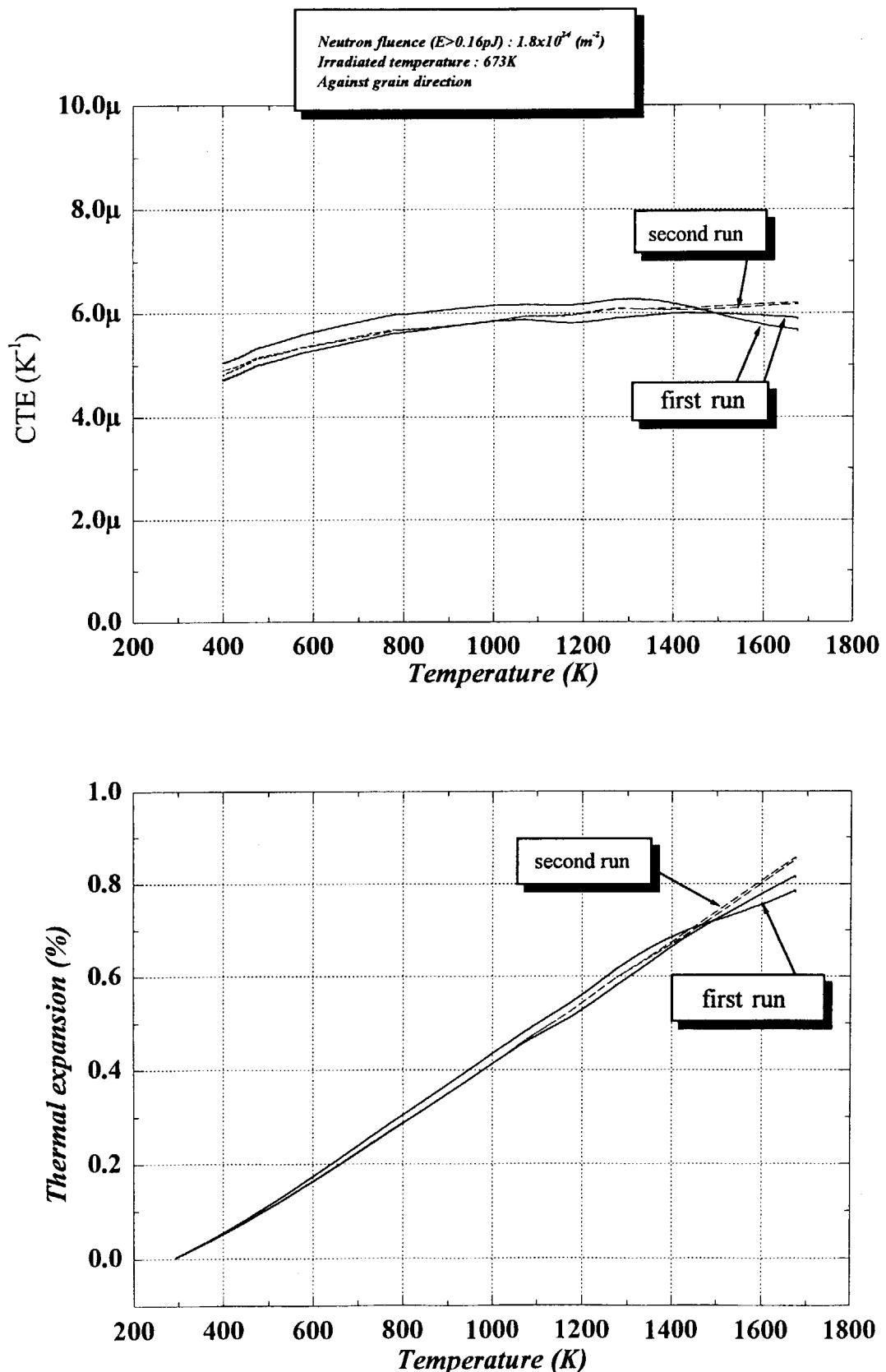


Fig.4.12 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for near-isotropic graphite (Gilso-carbon) irradiated at 673K.

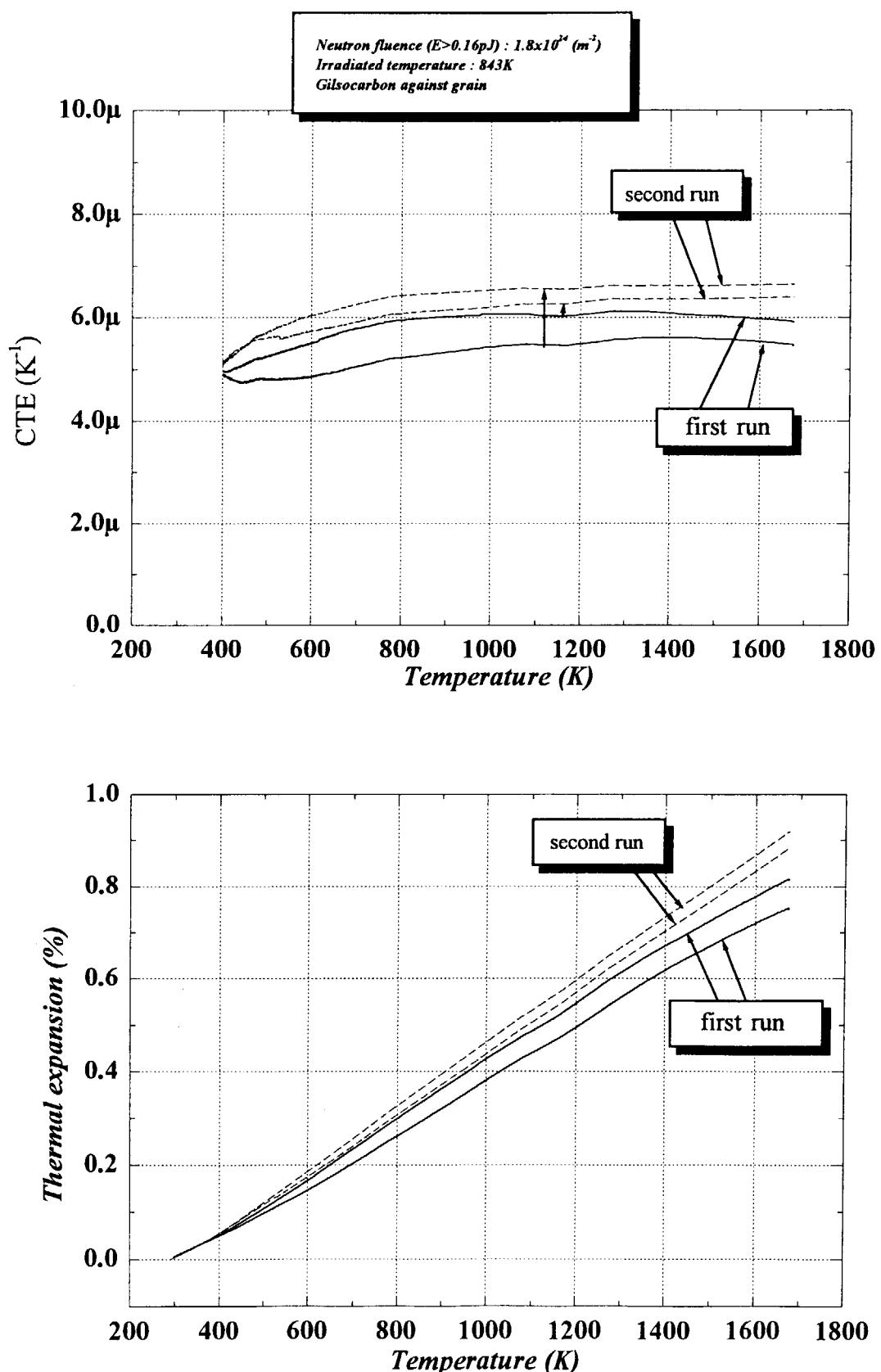


Fig.4.13 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for near-isotropic graphite (Gilso-carbon) irradiated at 843K.

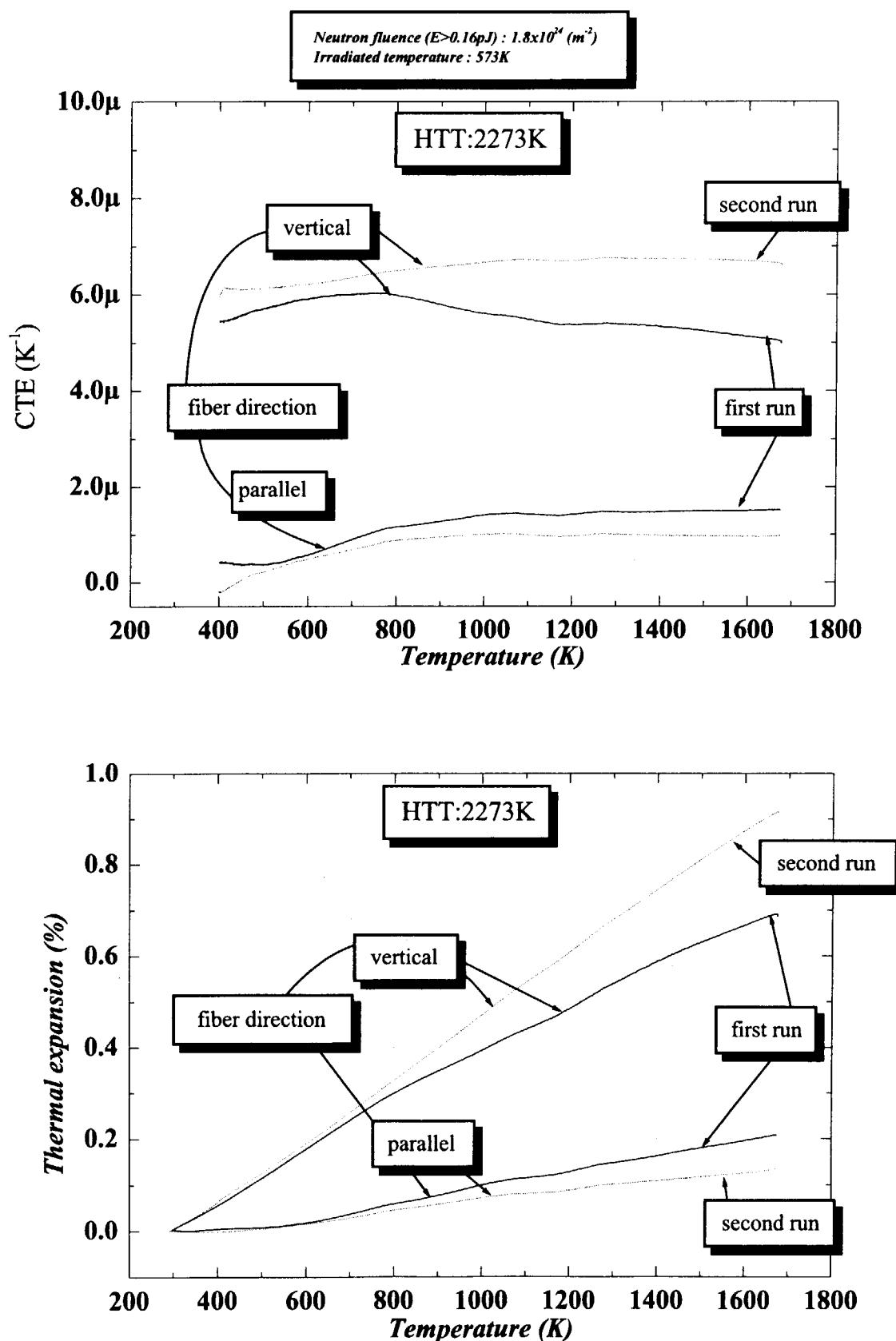


Fig. 4.14 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CCM-190C) irradiated at 573K.

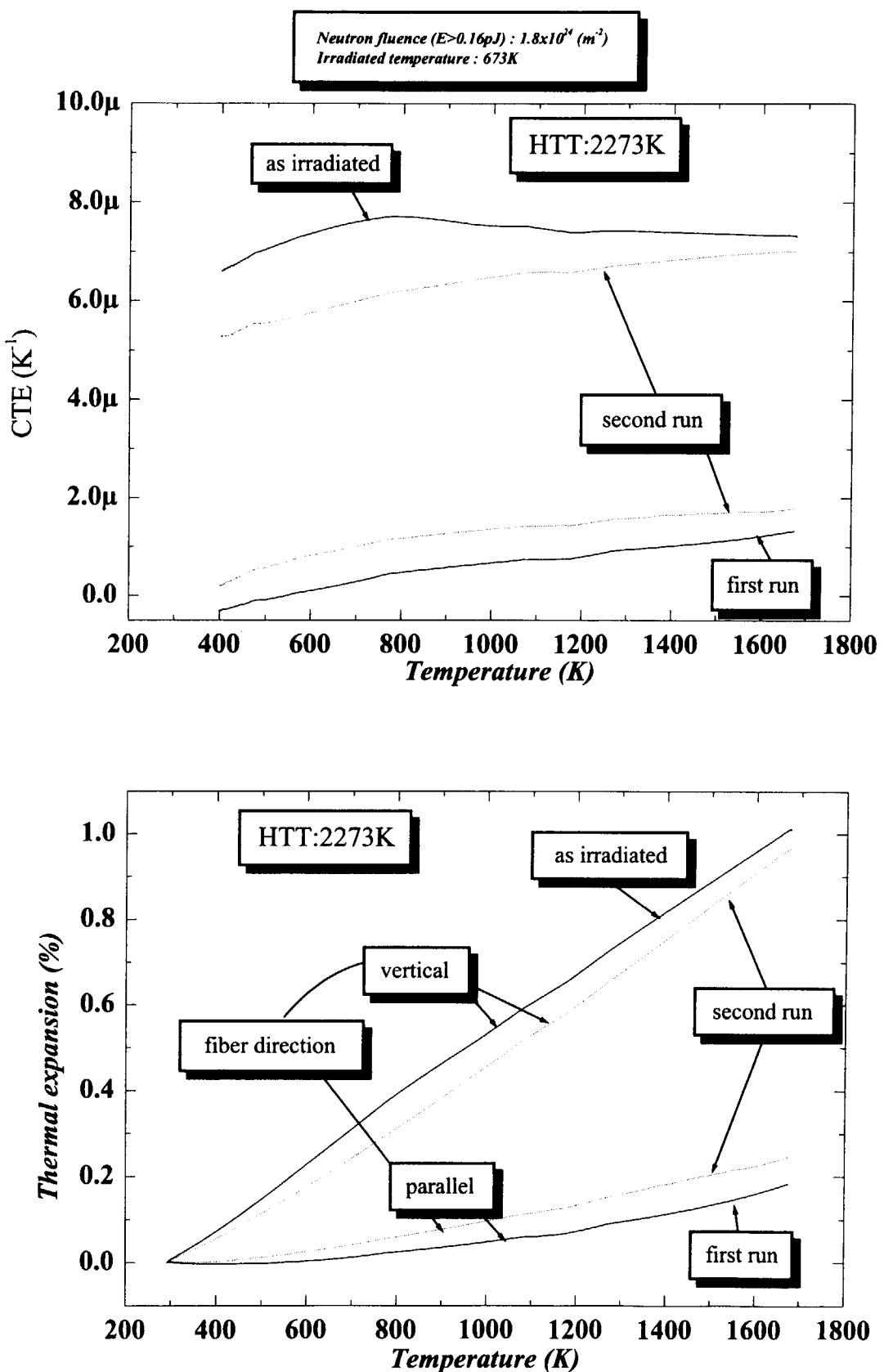


Fig. 4.15 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CCM-190C) irradiated at 673K.

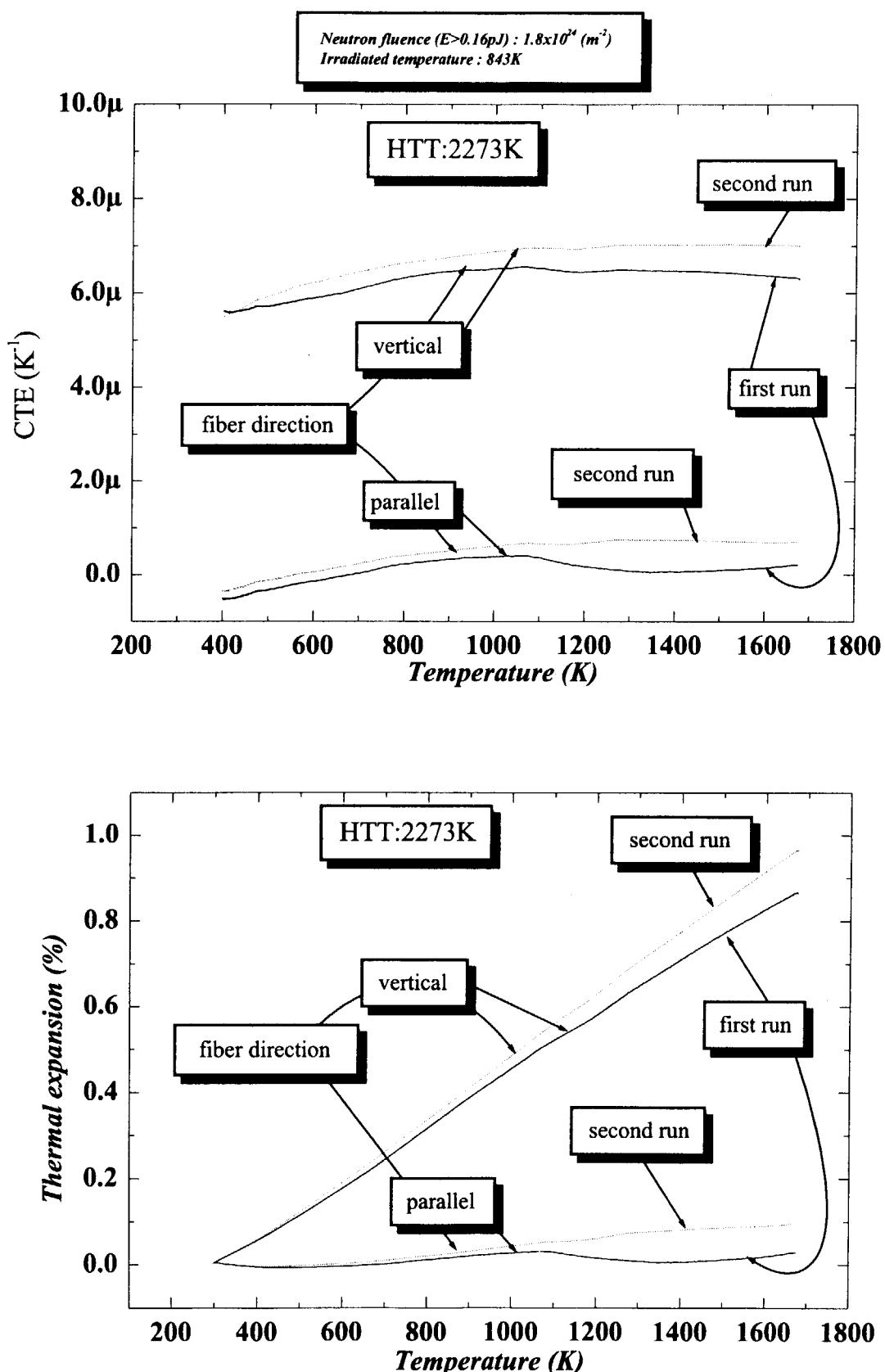


Fig. 4.16 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CCM-190C) irradiated at 843K.

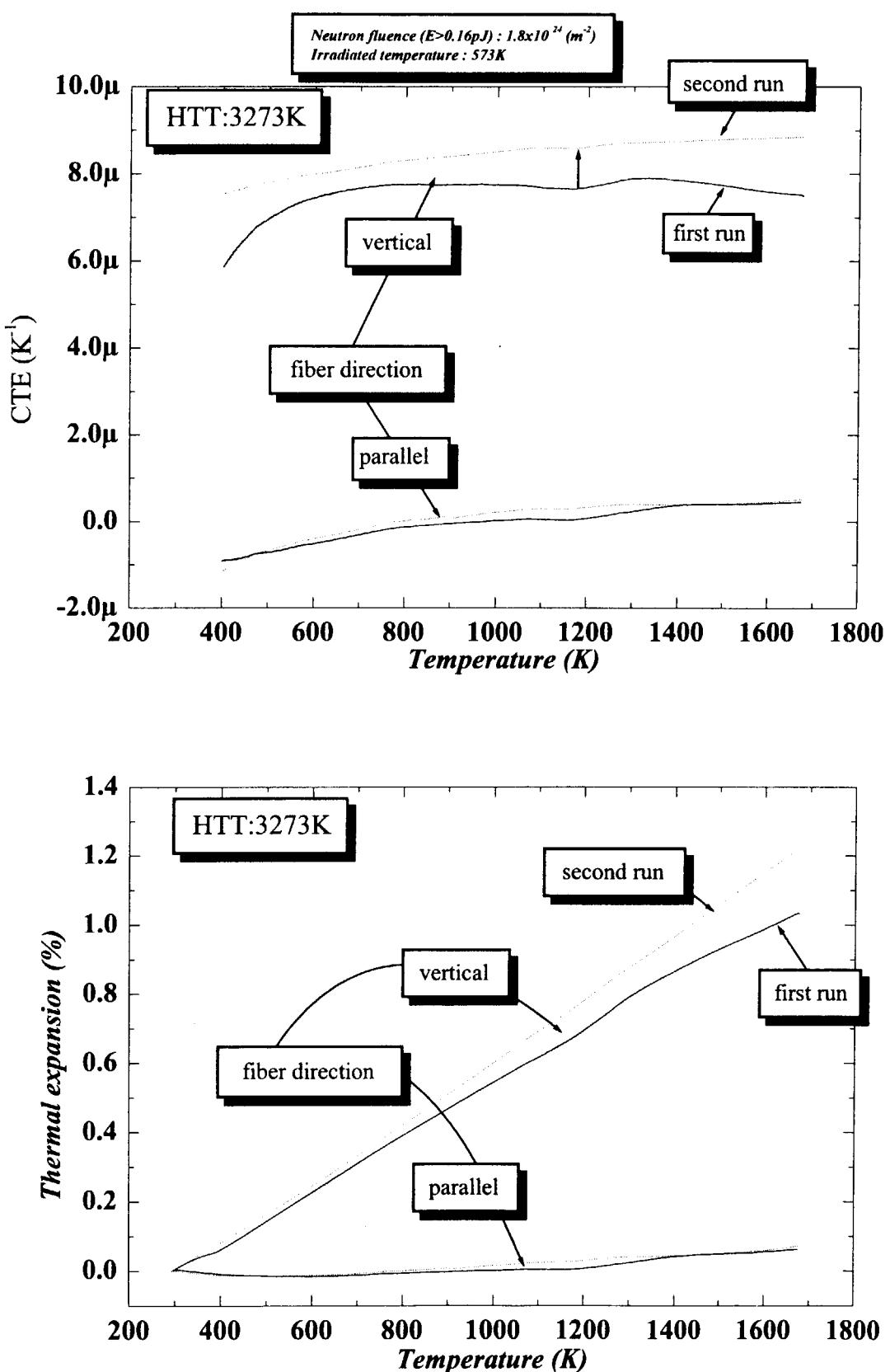


Fig. 4.17 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CCM-190G) irradiated at 573K.

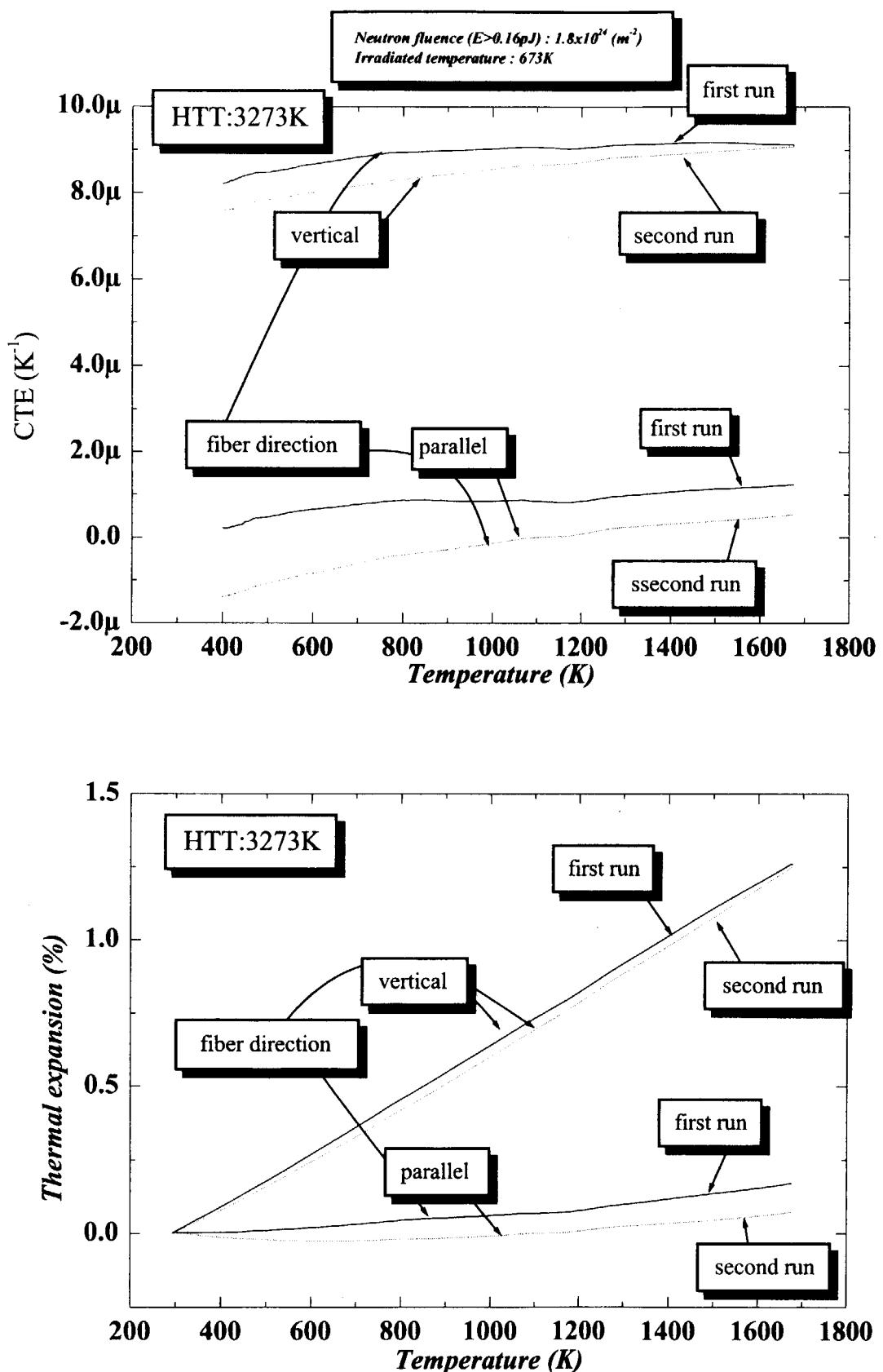


Fig. 4.18 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CCM-190G) irradiated at 673K.

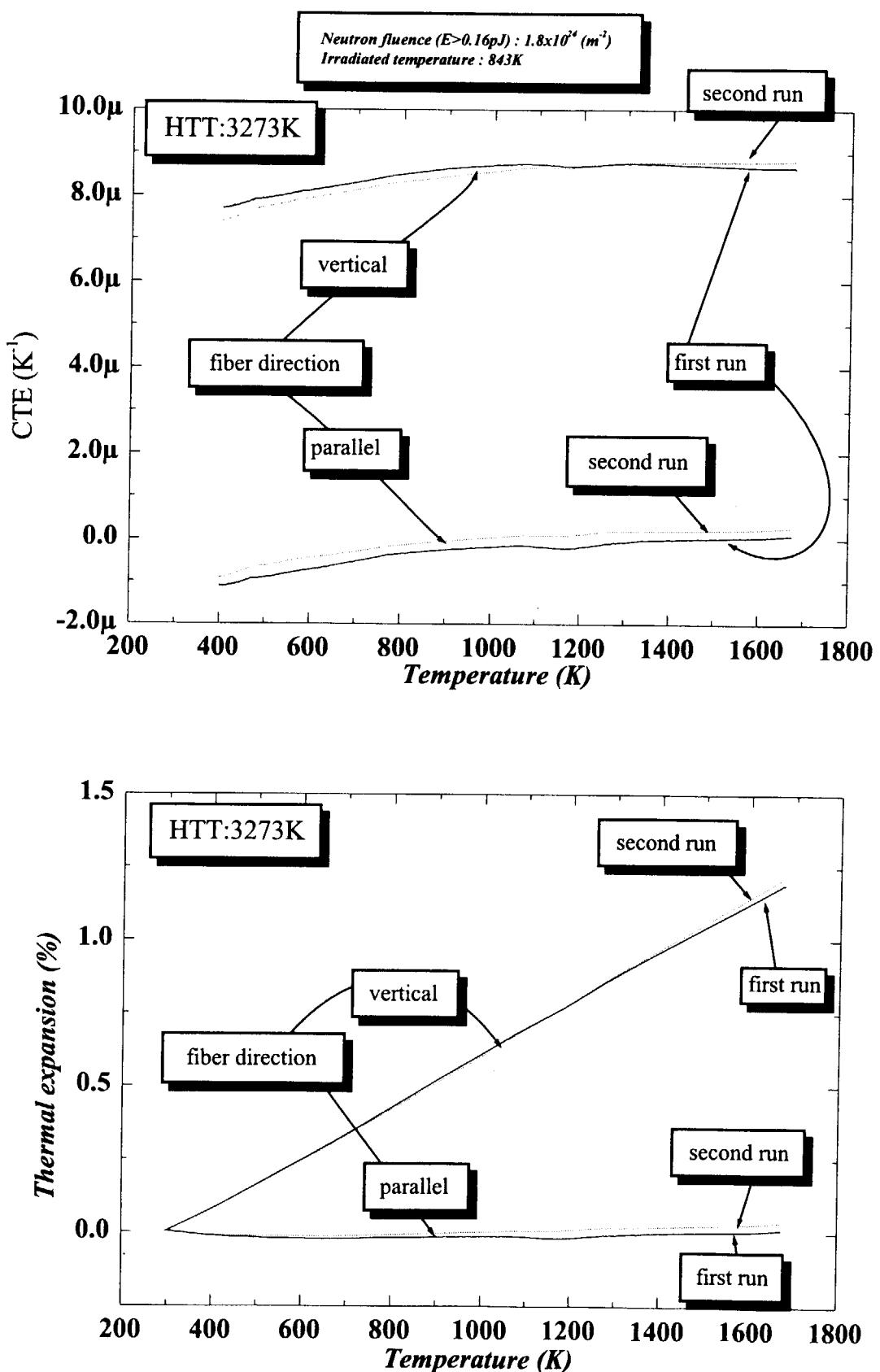


Fig. 4.19 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CCM-190G) irradiated at 843K.

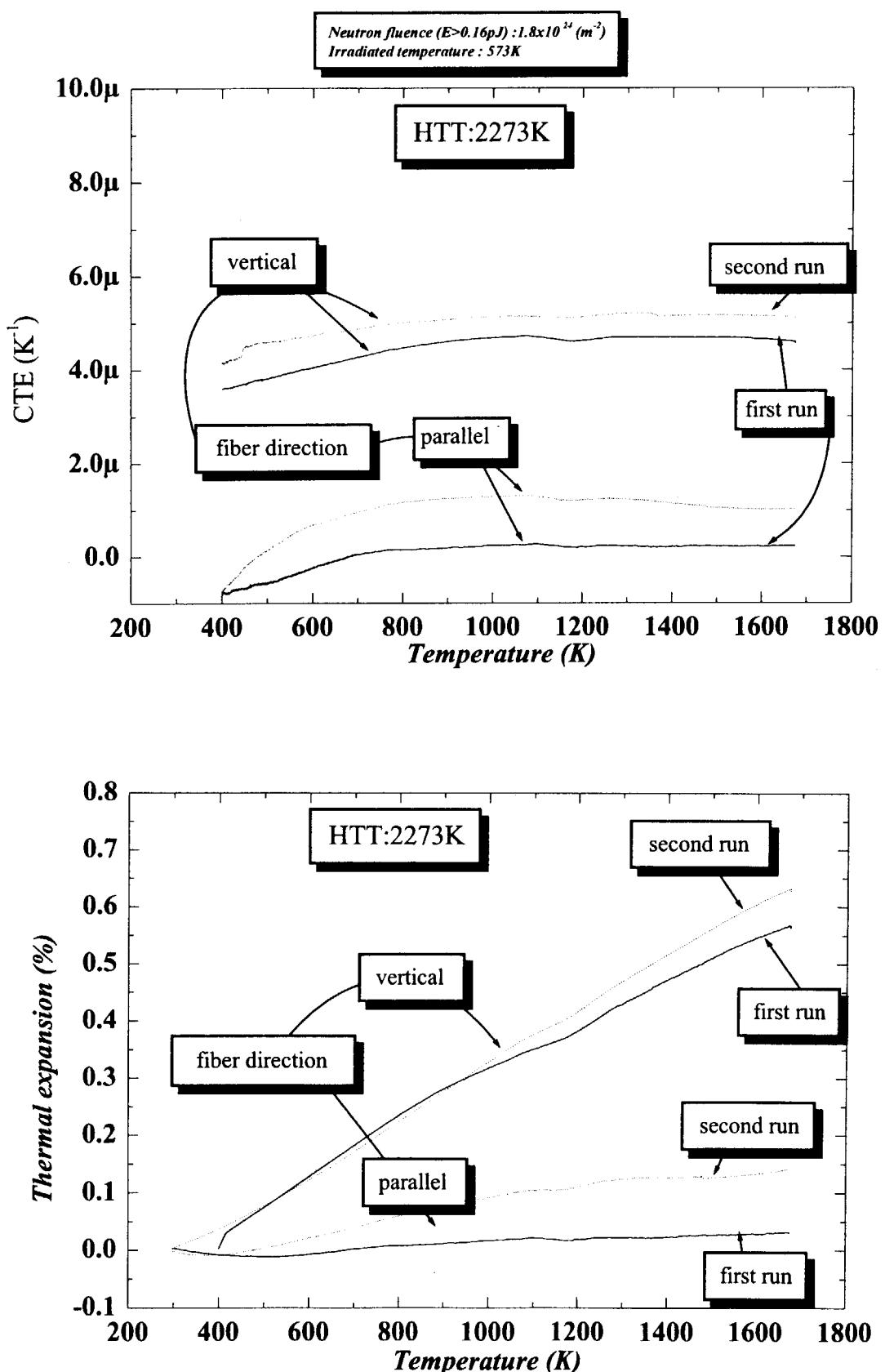


Fig. 4.20 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CX-270C) irradiated at 573K.

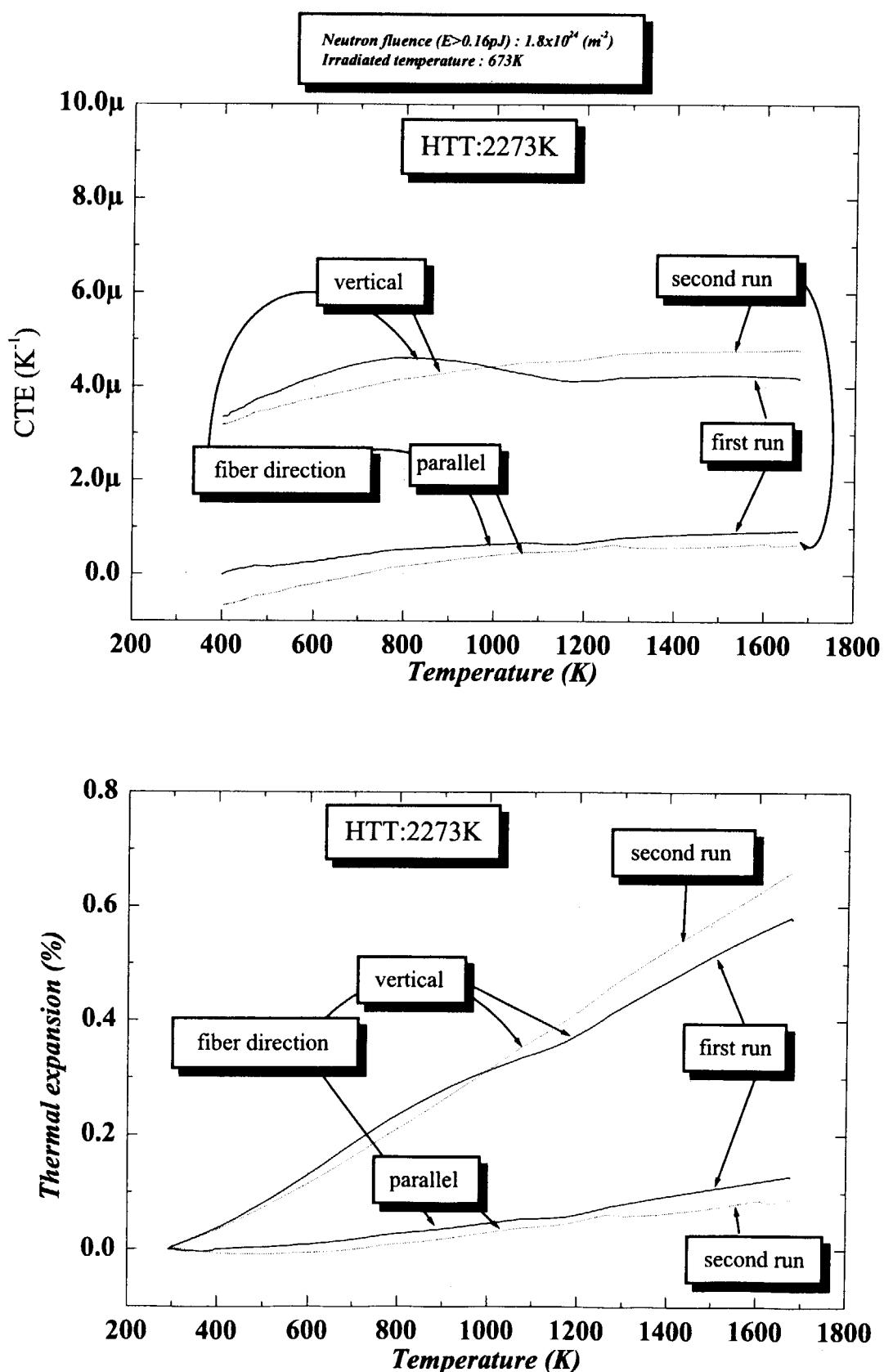


Fig. 4.21 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CX-270C) irradiated at 673K

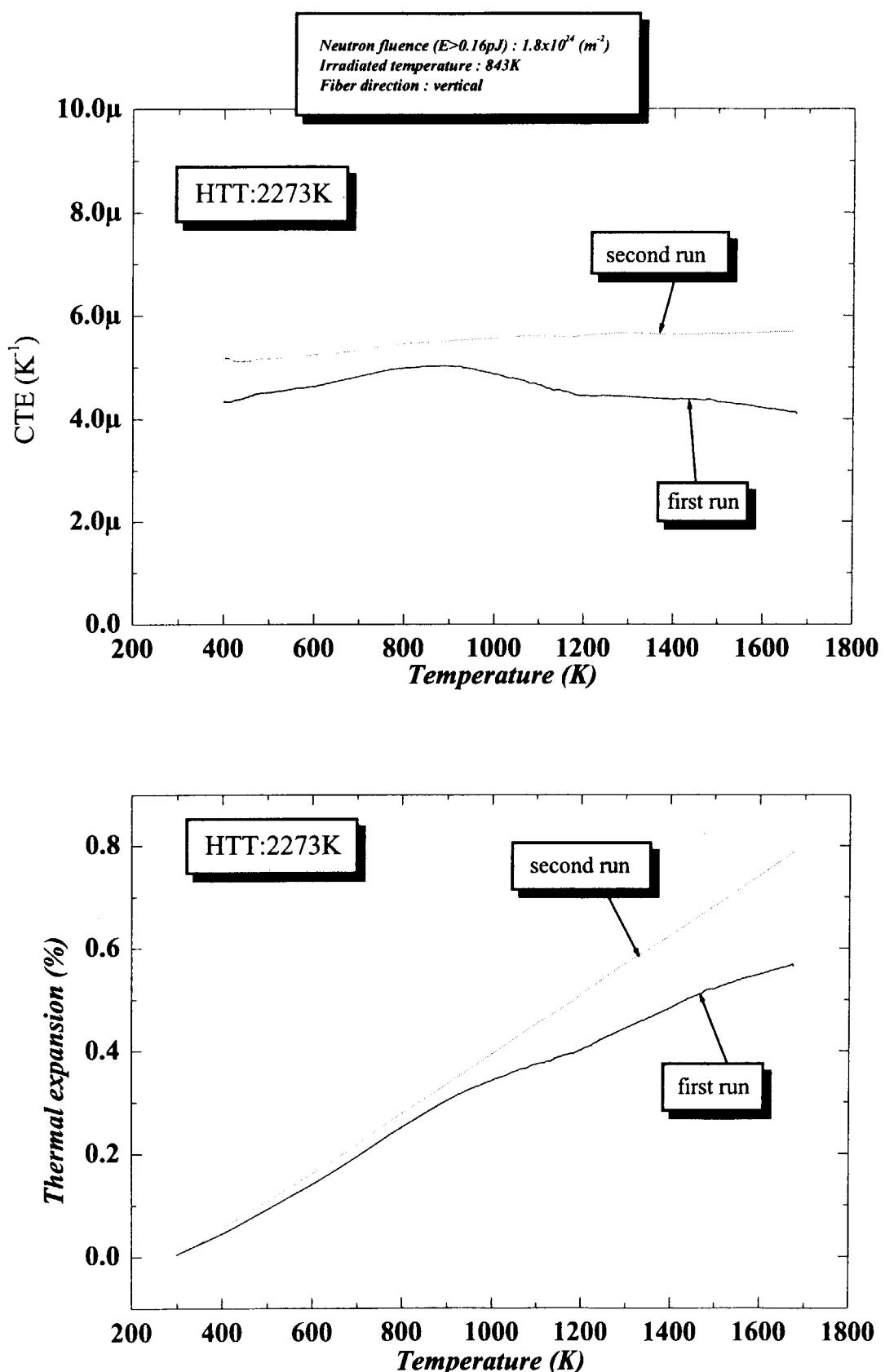


Fig. 4.22 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CX-270C) irradiated at 843K.

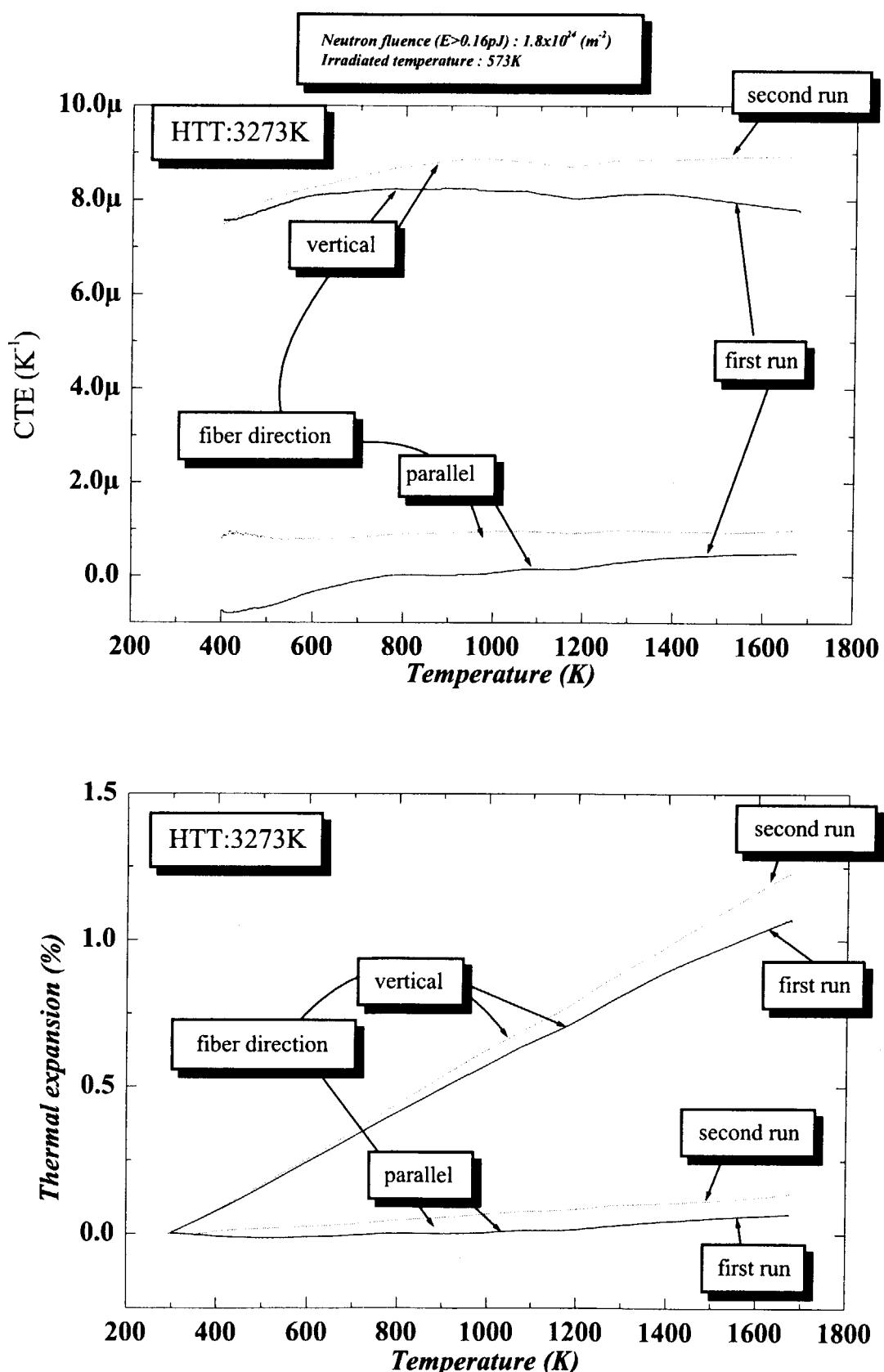


Fig. 4.23 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CX-270G) irradiated at 573K.

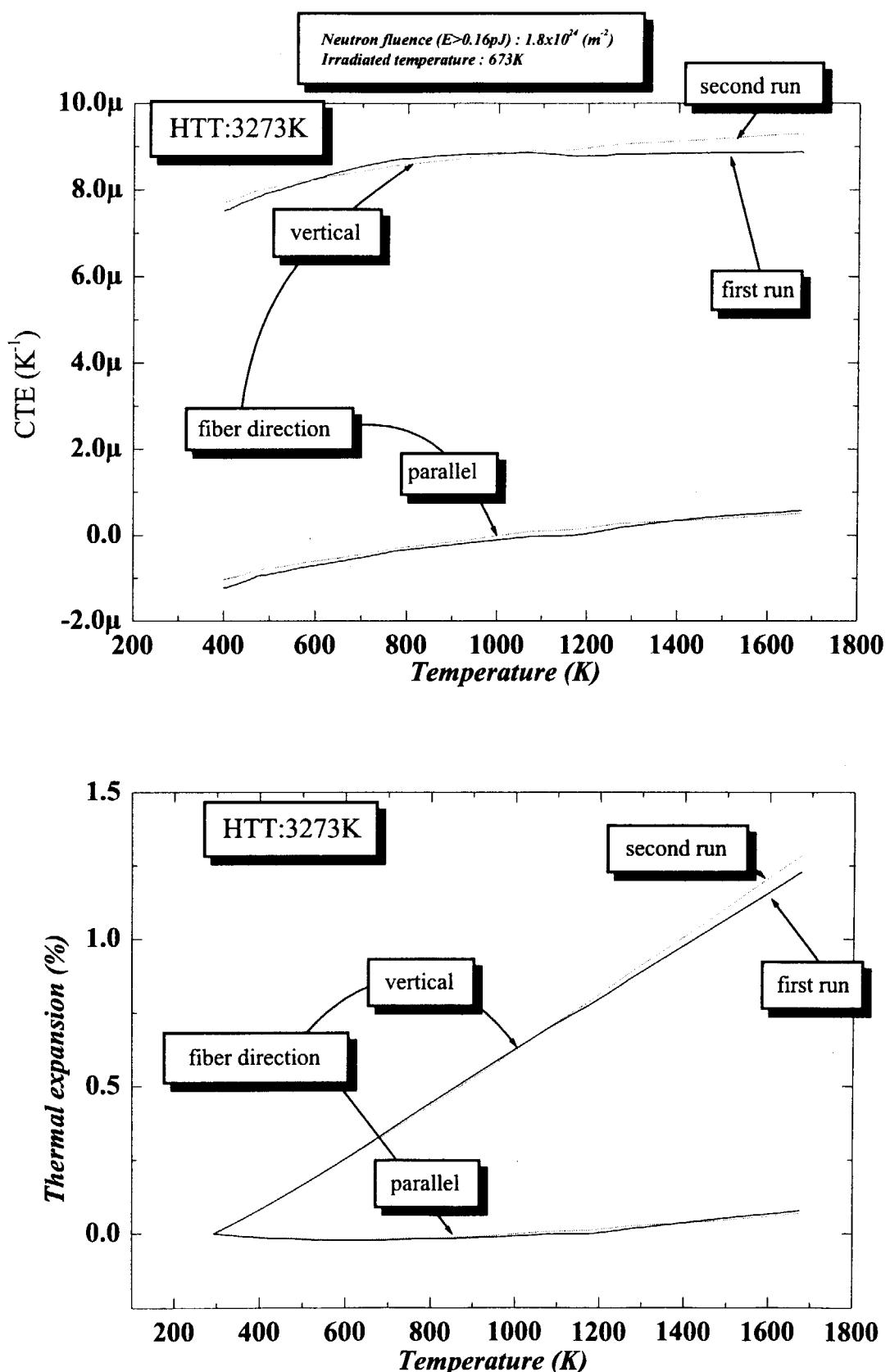


Fig. 4.24 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CX-270G) irradiated at 673K.

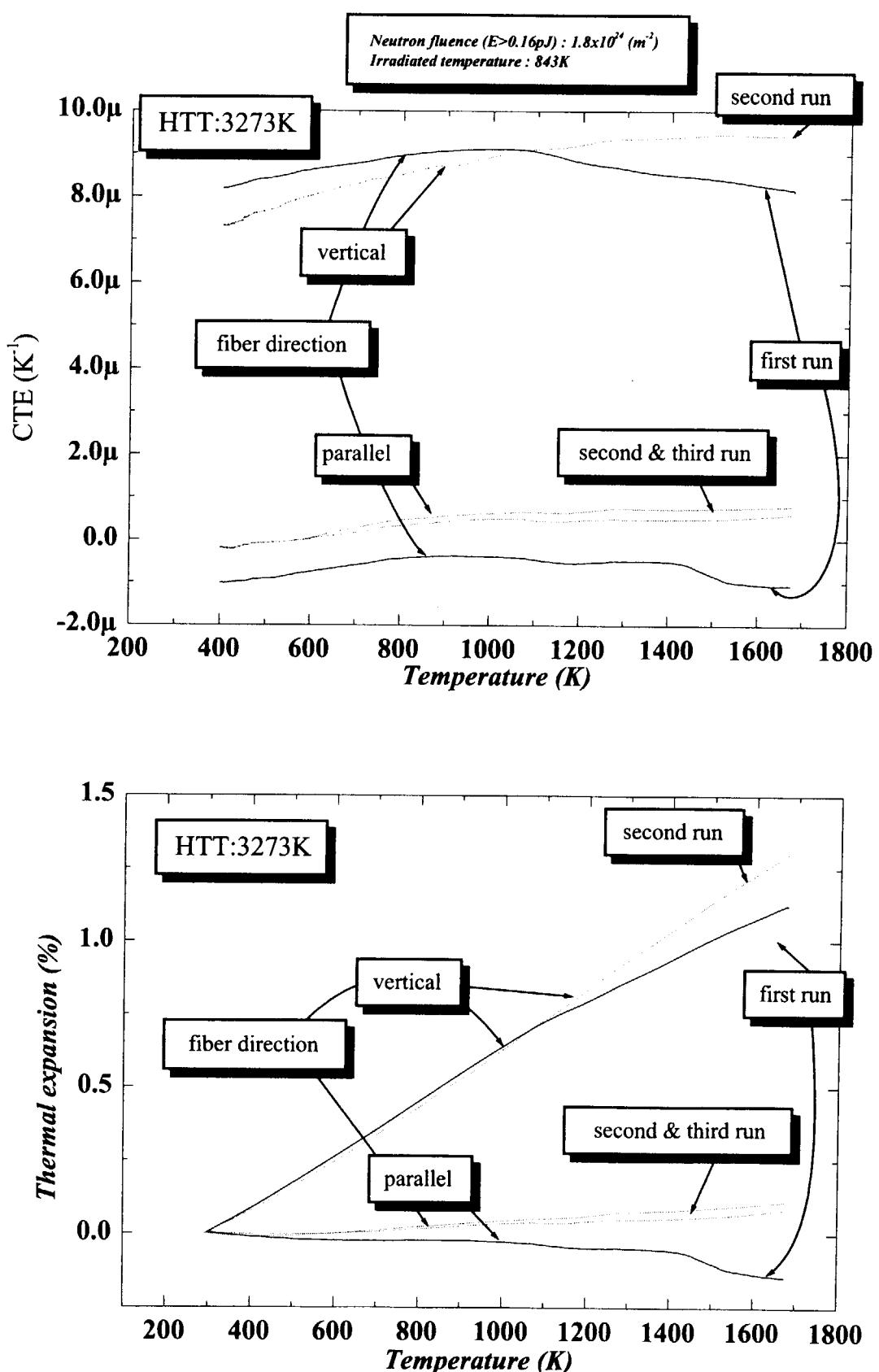


Fig. 4.25 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (CX-270G) irradiated at 843K.

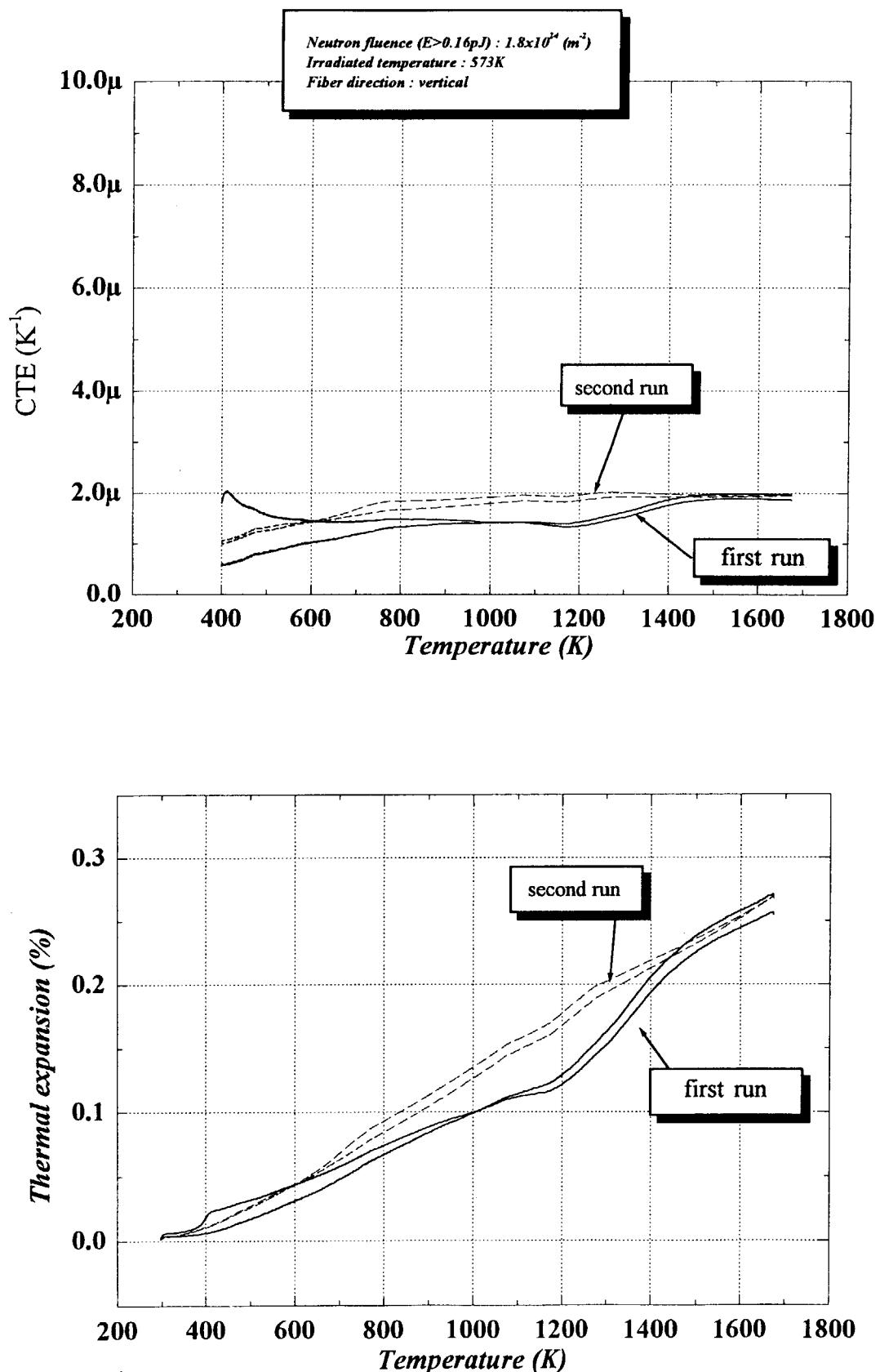


Fig.4.26 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (PCC-2S) irradiated at 573K.

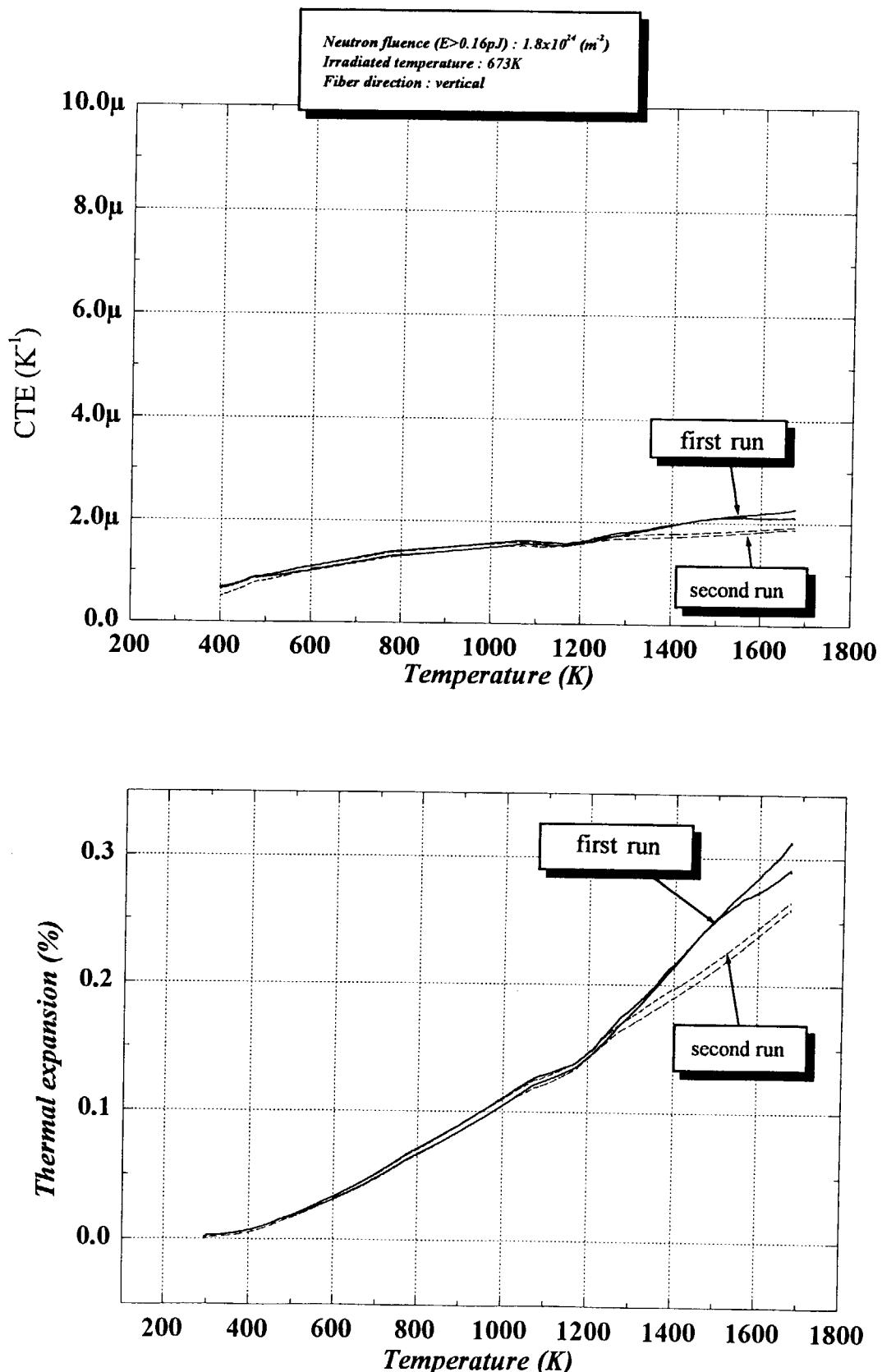


Fig.4.27 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (PCC-2S) irradiated at 673K.

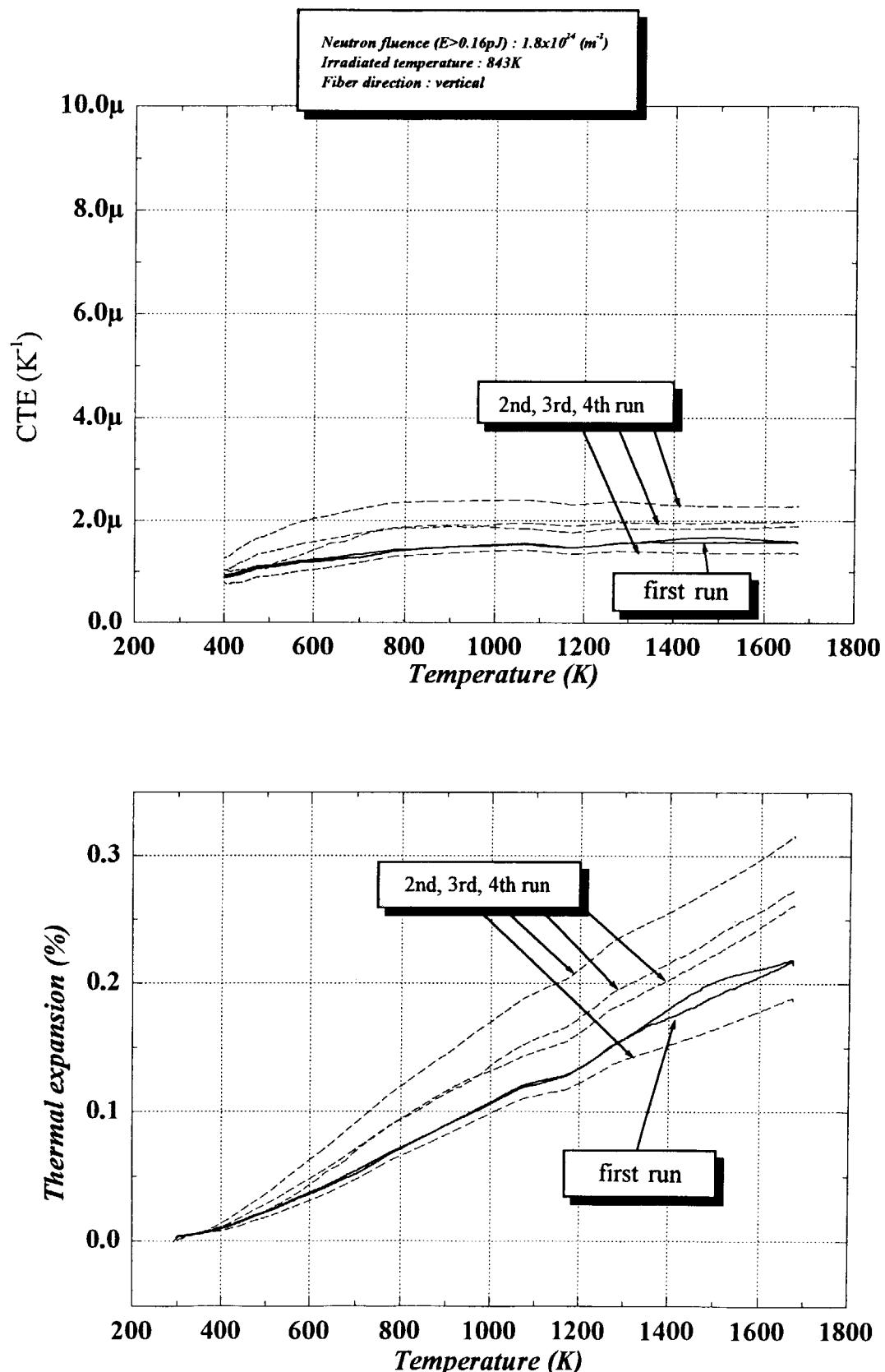


Fig.4.28 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (PCC-2S) irradiated at 843K.

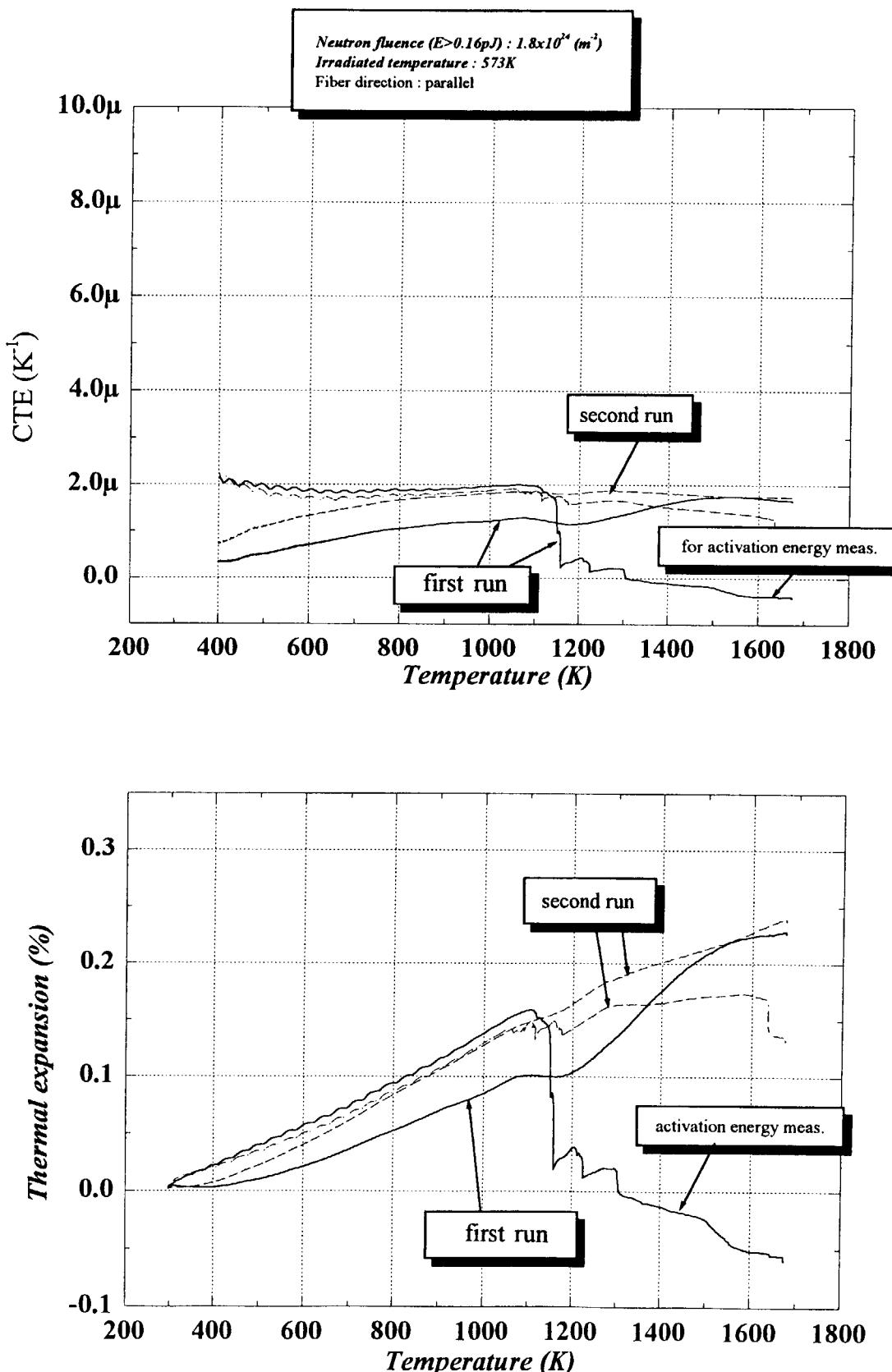


Fig.4.29 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (PCC-2S) irradiated at 573K.

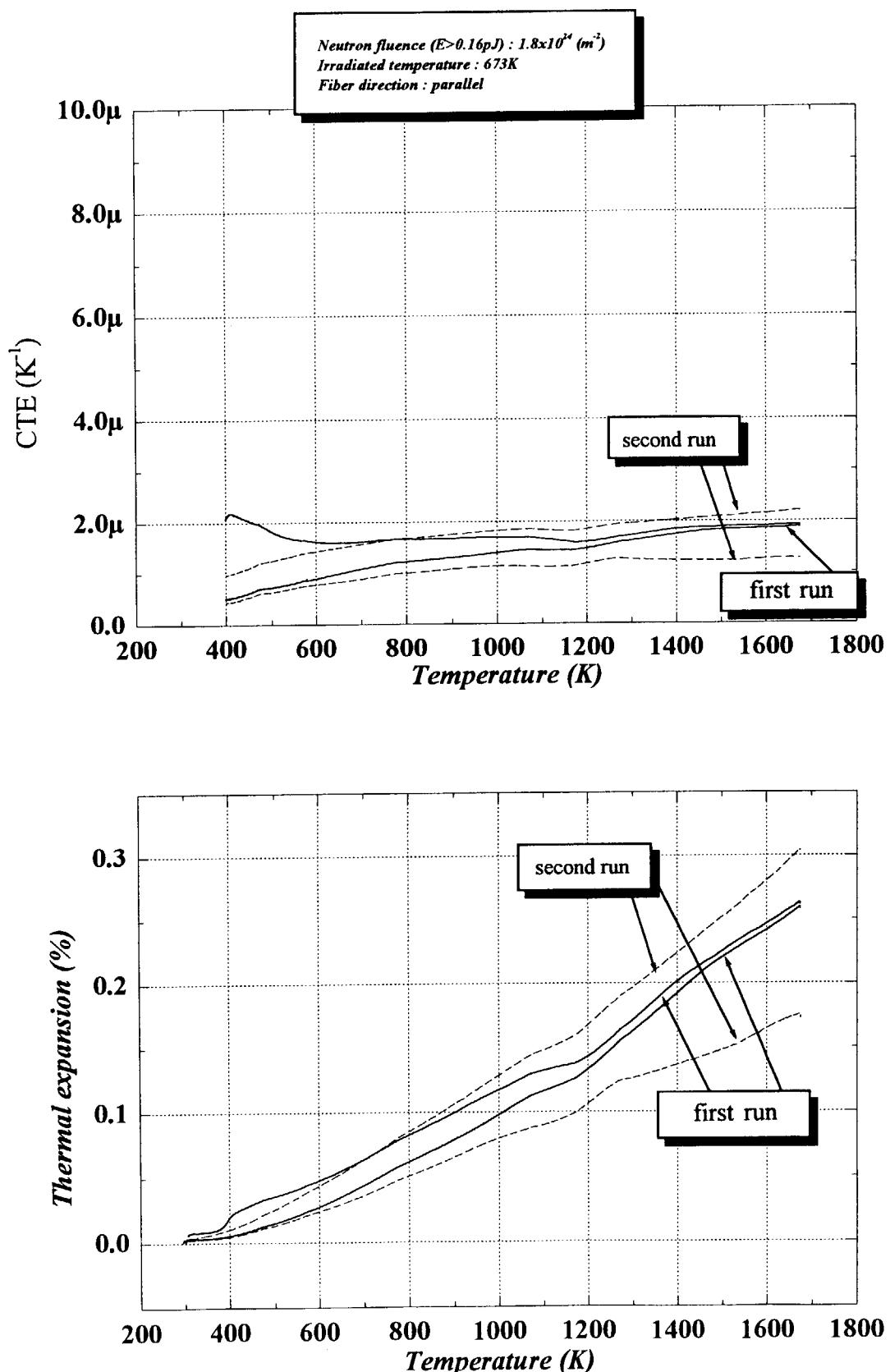


Fig.4.30 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (PCC-2S) irradiated at 673K.

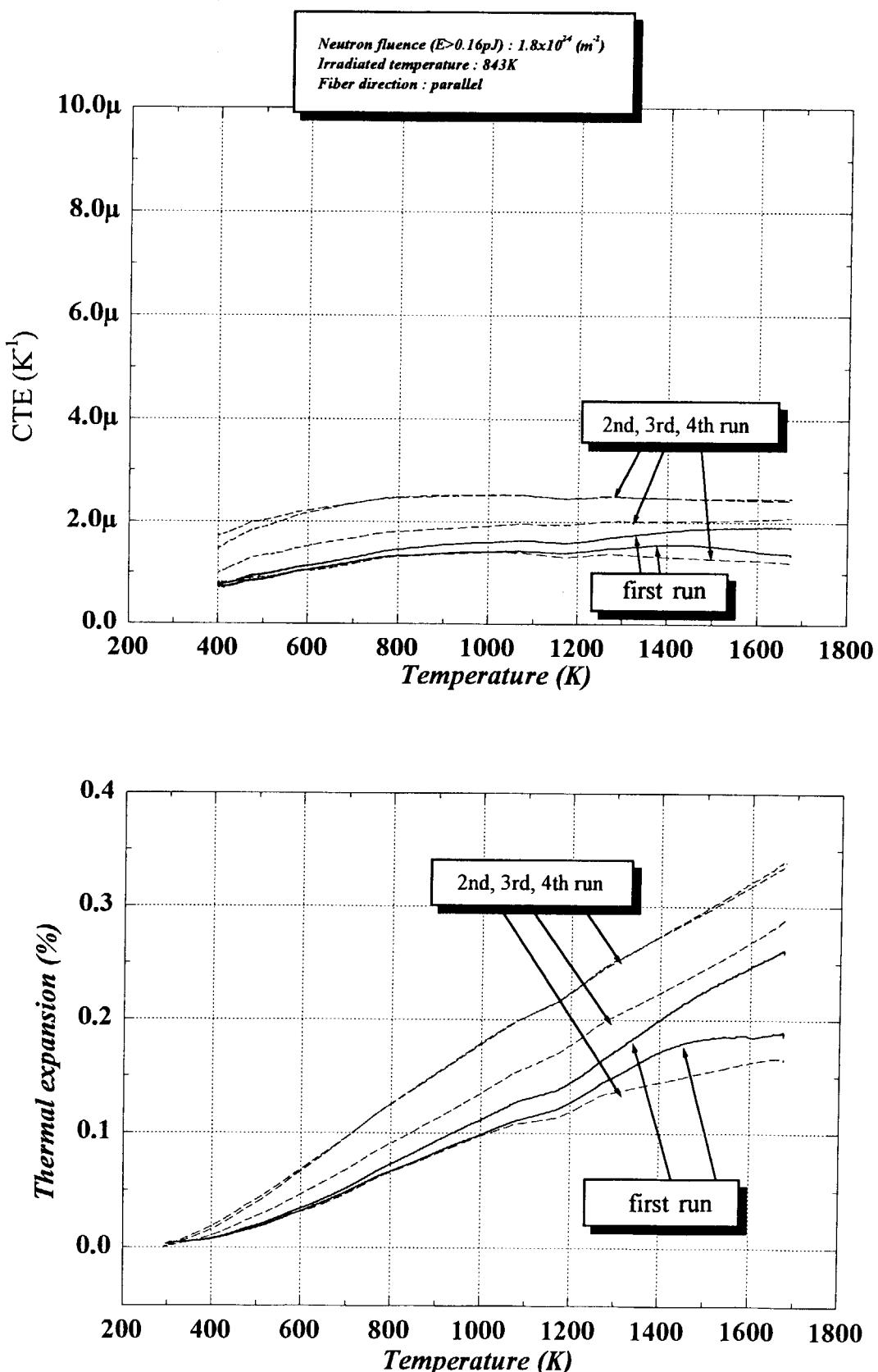


Fig.4.31 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D C/C composite (PCC-2S) irradiated at 843K.

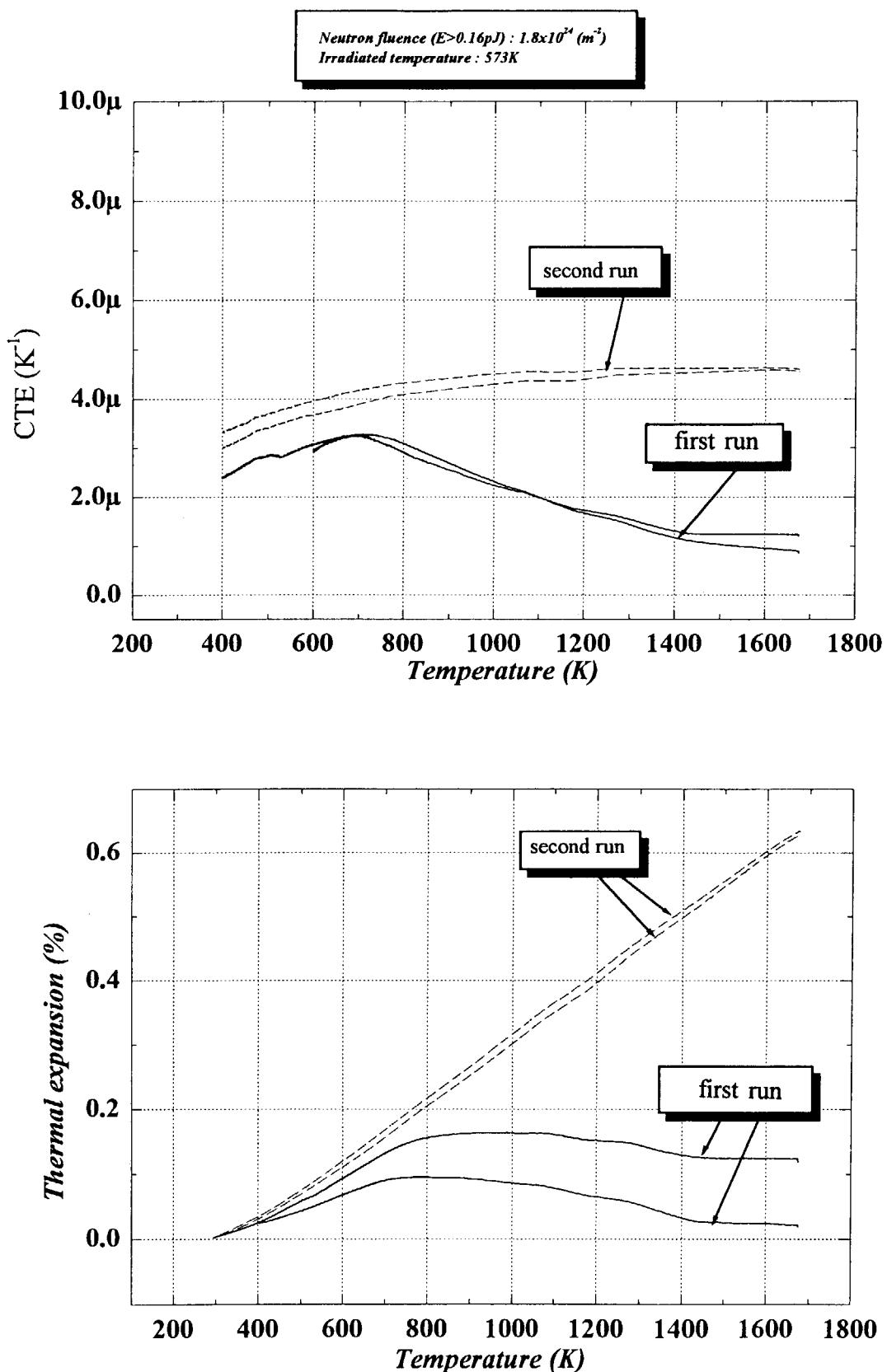


Fig.4.32 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for monolithic SiC (Hexaloy) irradiated at 573K.

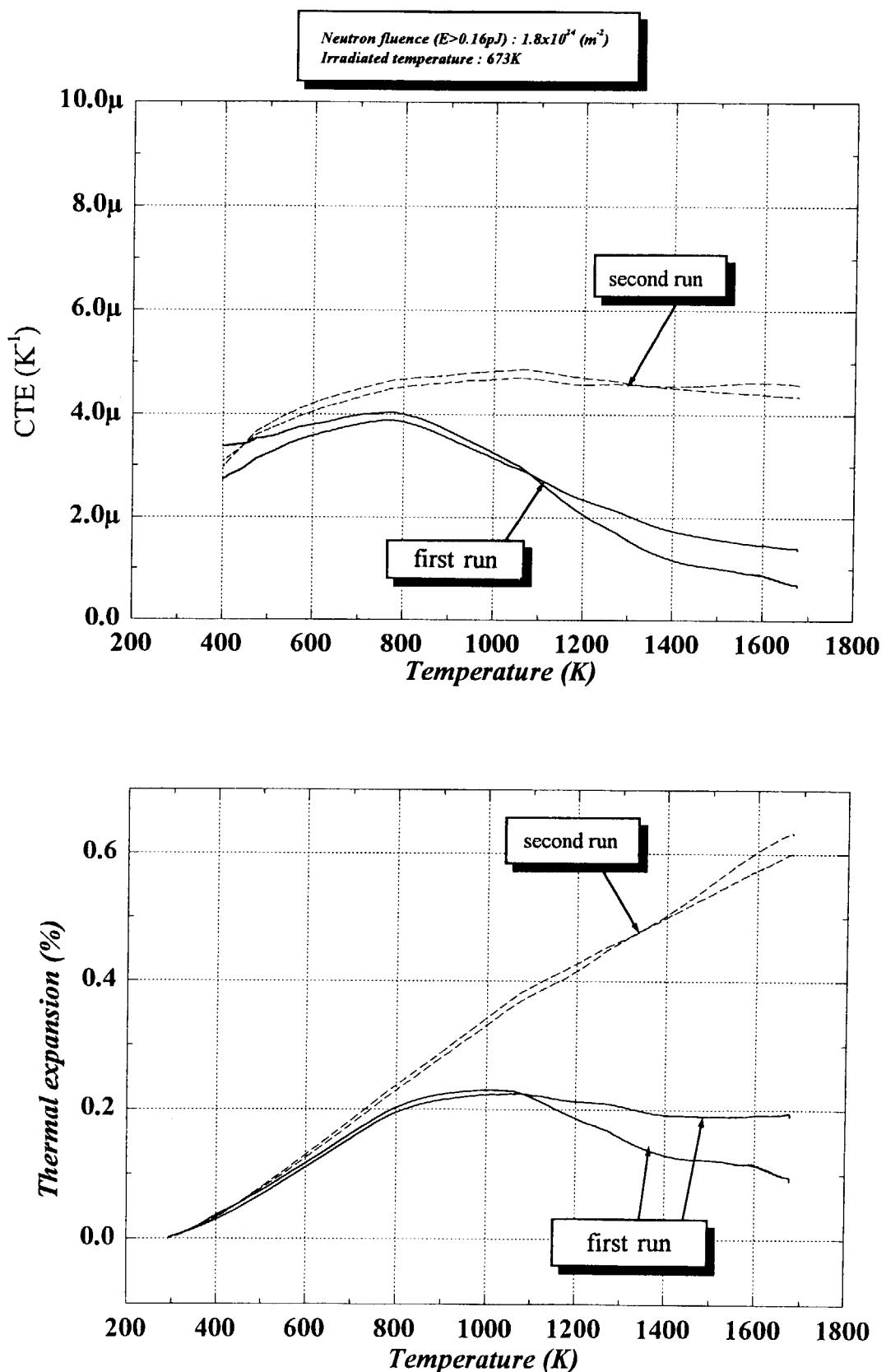


Fig.4.33 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for monolithic SiC (Hexaloy) irradiated at 673K.

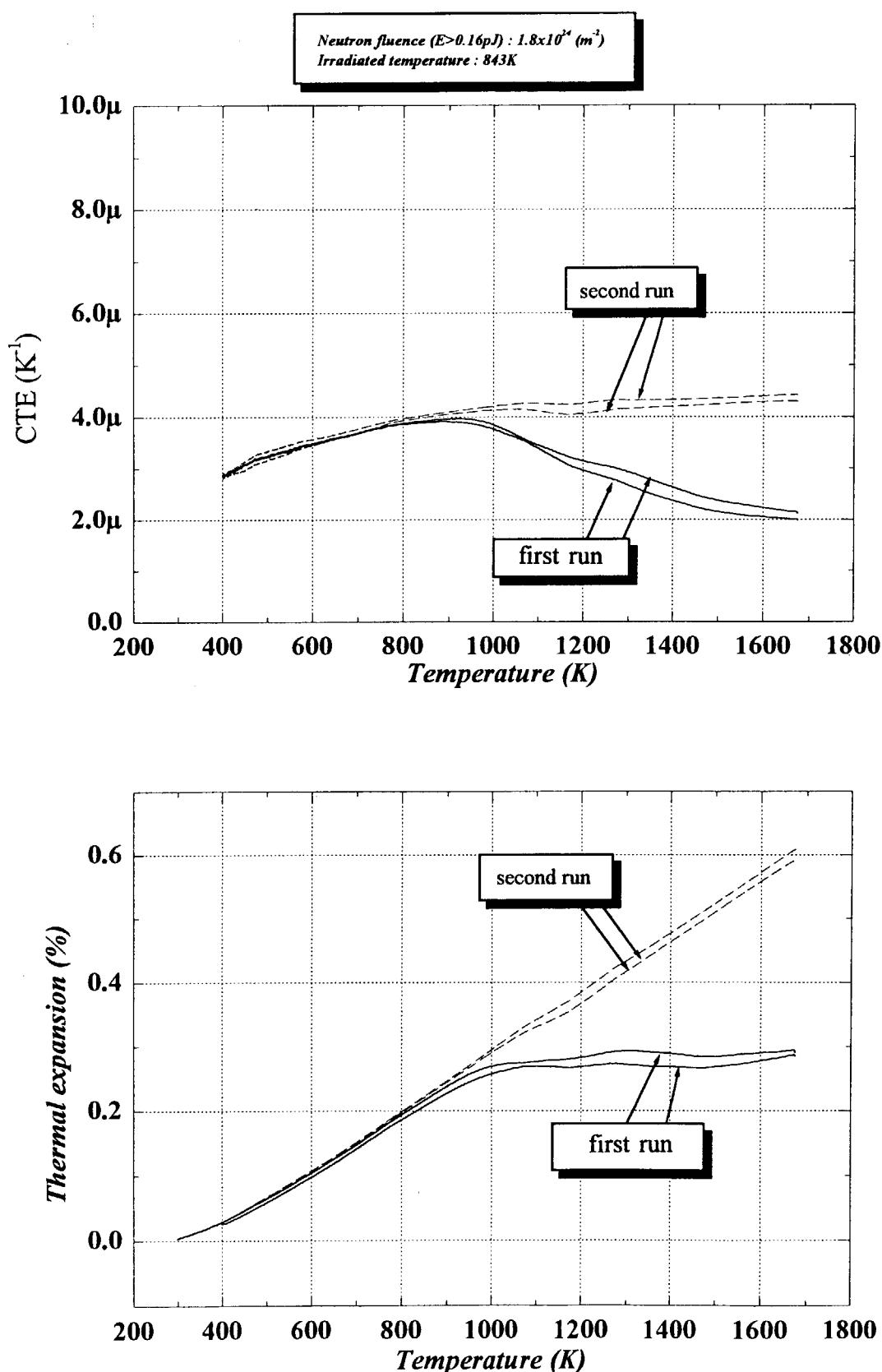


Fig.4.34 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for monolithic SiC (Hexaloy) irradiated at 843K.

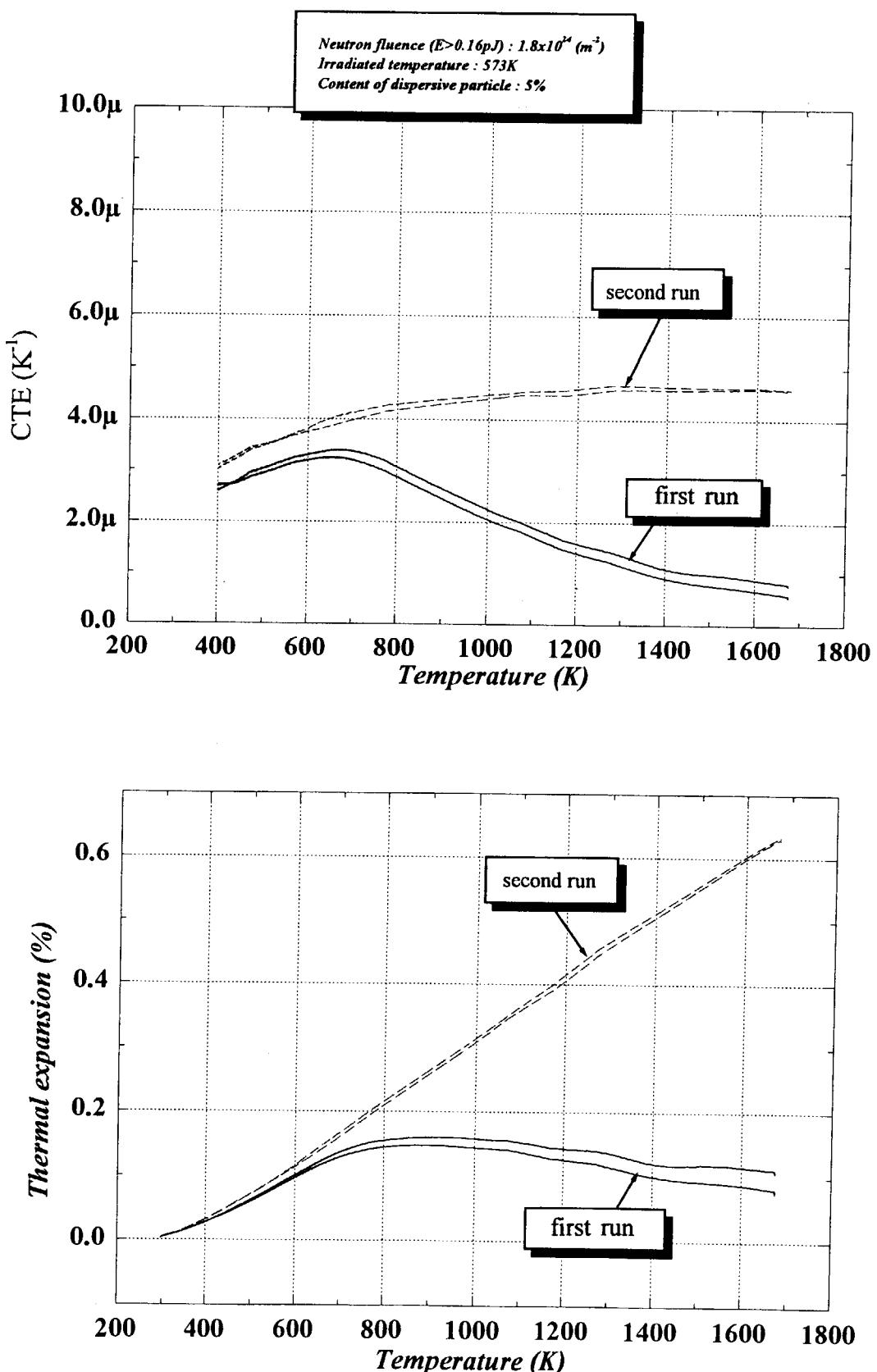


Fig.4.35 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for SiC particle 5% dispersive SiC composite irradiated at 573K.

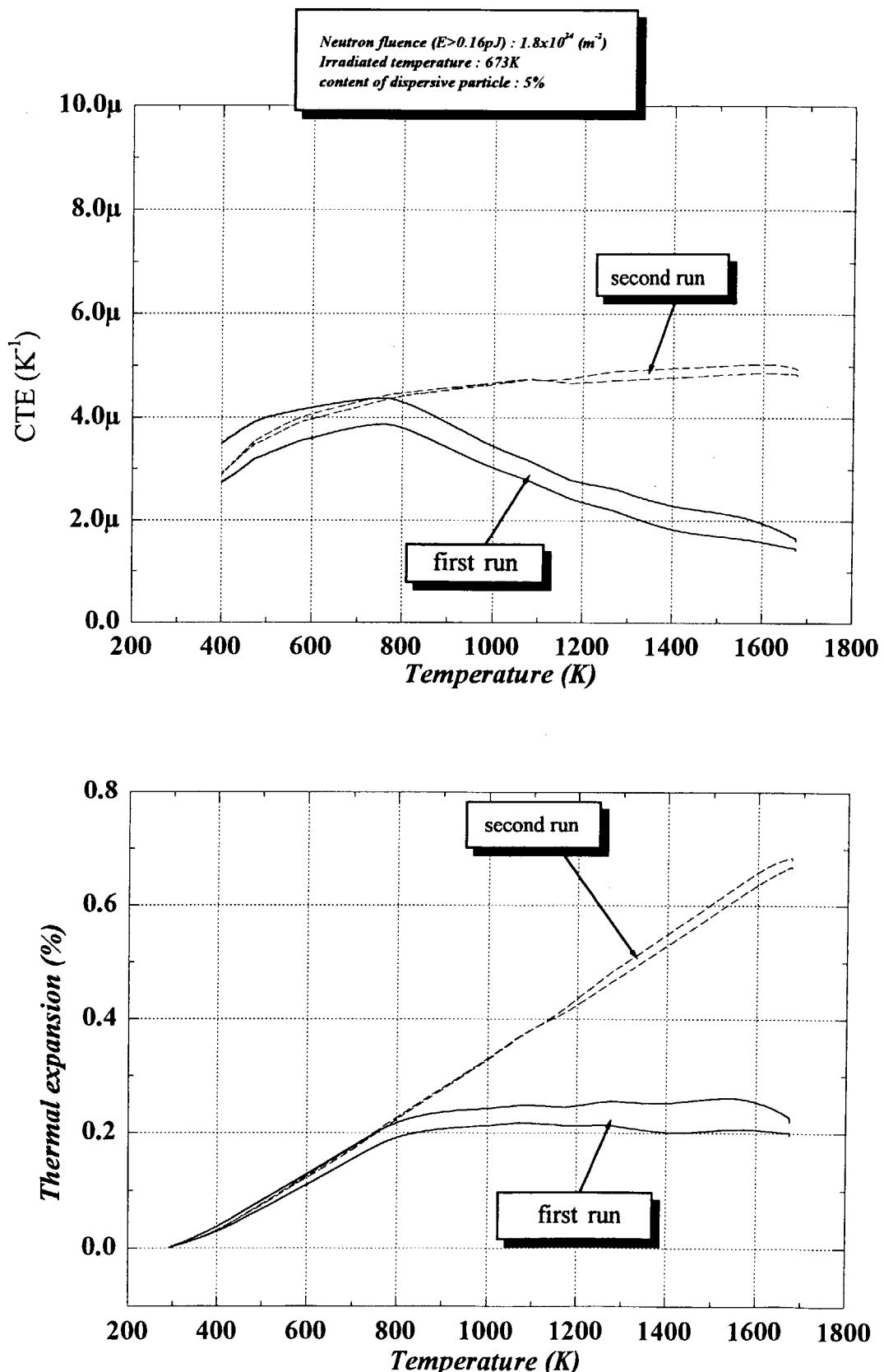


Fig.4.36 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for SiC particle 5% dispersive SiC composite irradiated at 673K.

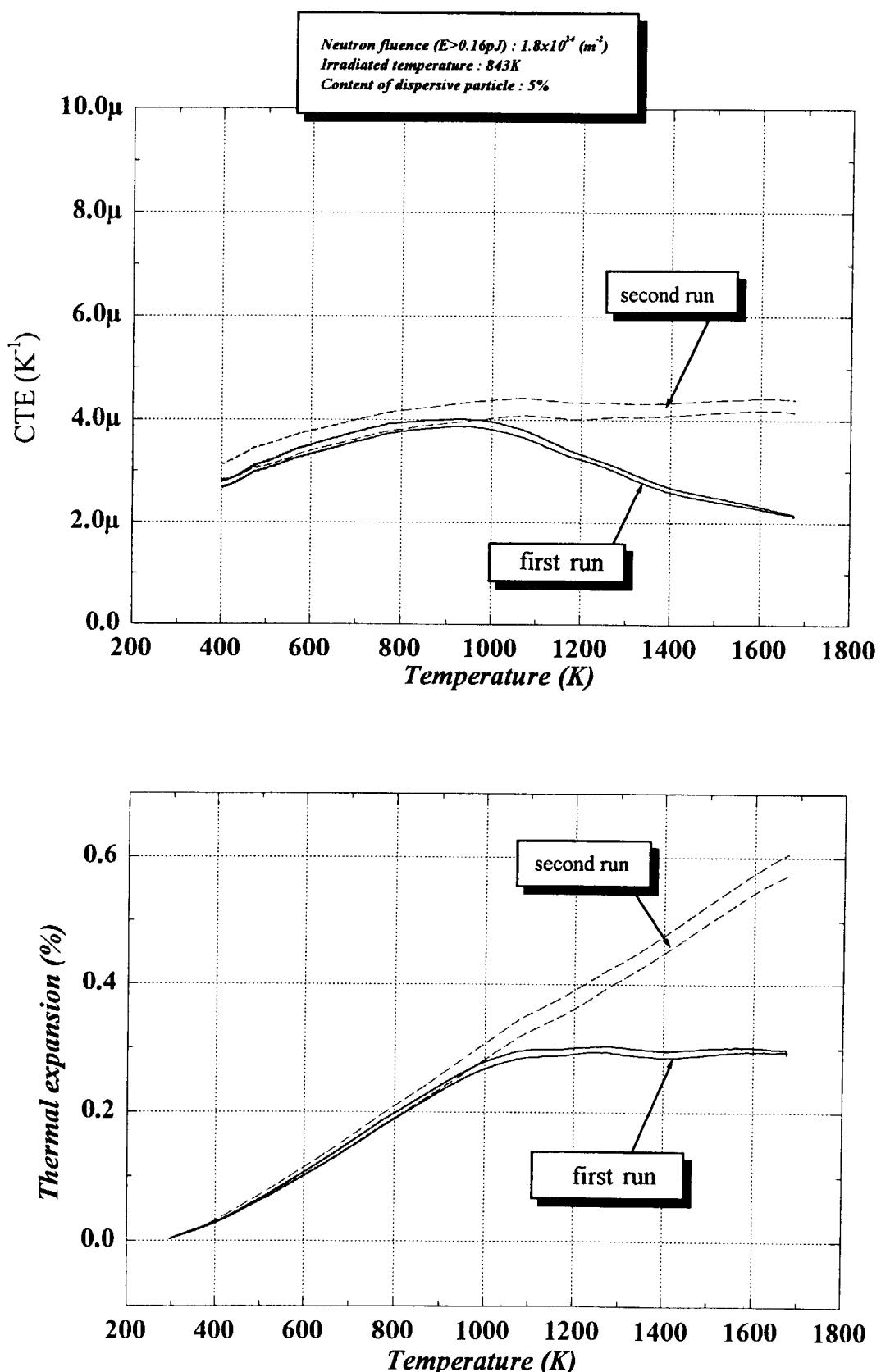


Fig.4.37 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for SiC particle 5% dispersive SiC composite irradiated at 843K.

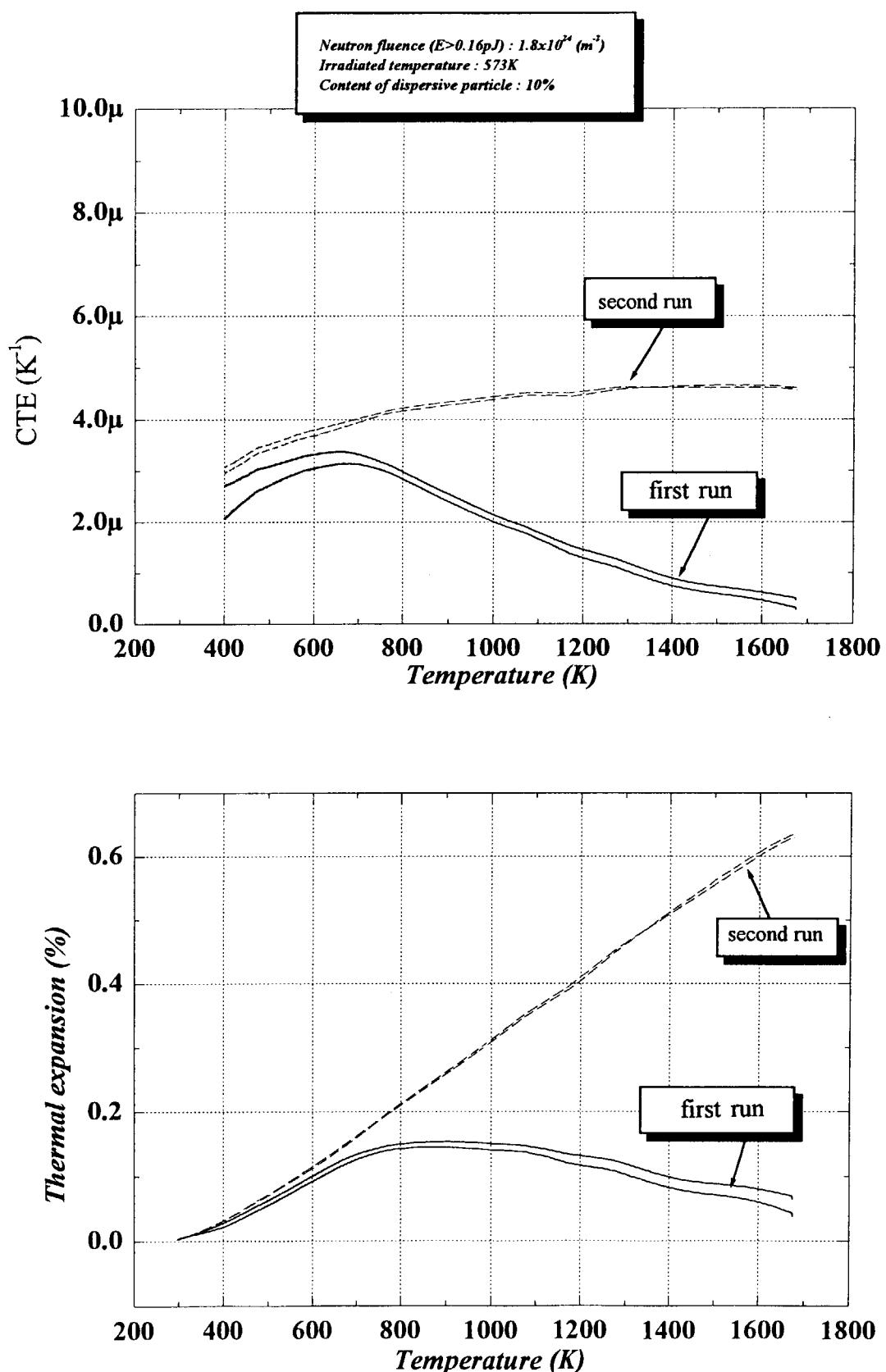


Fig.4.38 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for SiC particle 10% dispersive SiC composite irradiated at 573K.

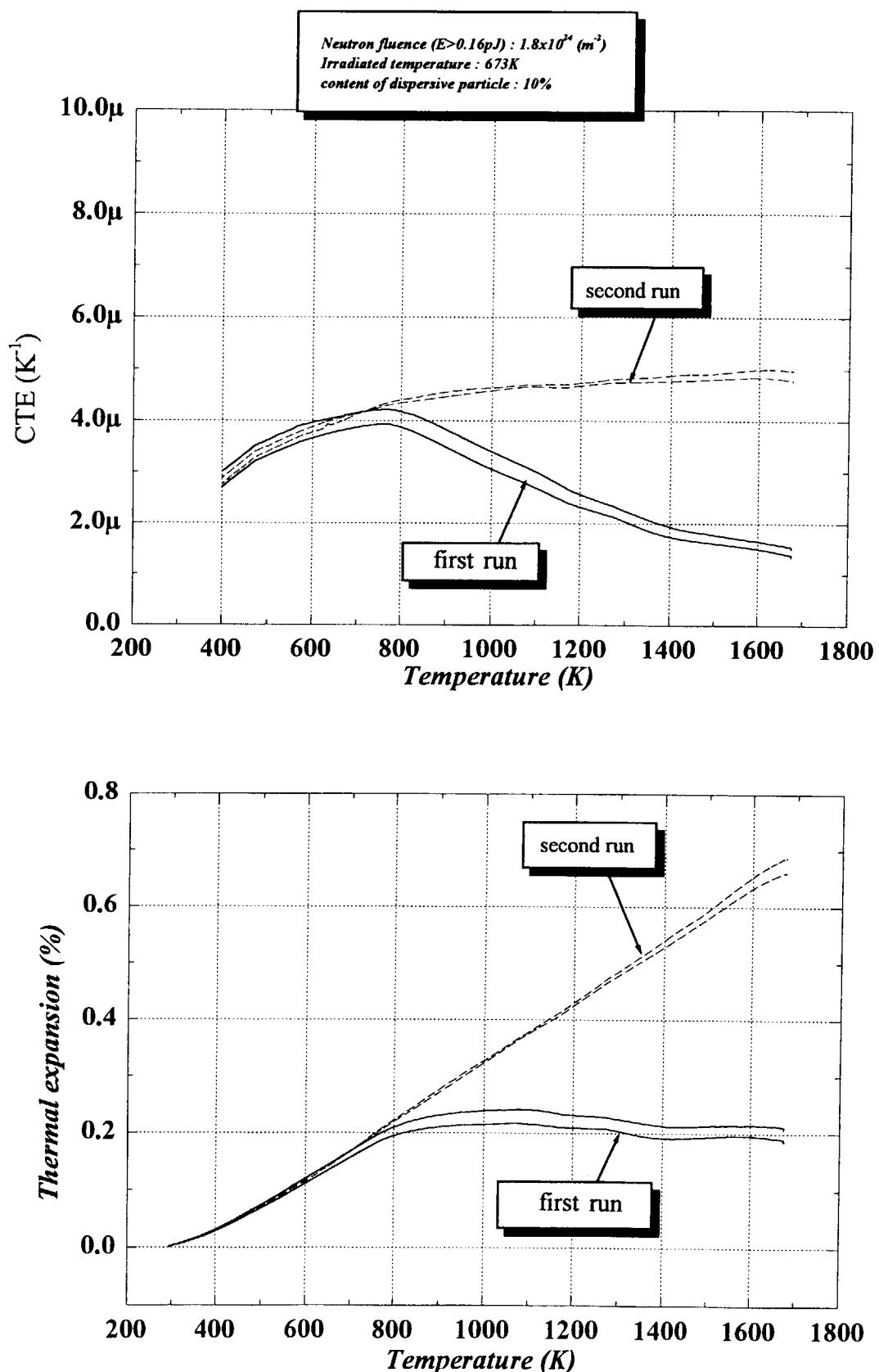


Fig.4.39 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for SiC particle 10% dispersive SiC composite irradiated at 673K.

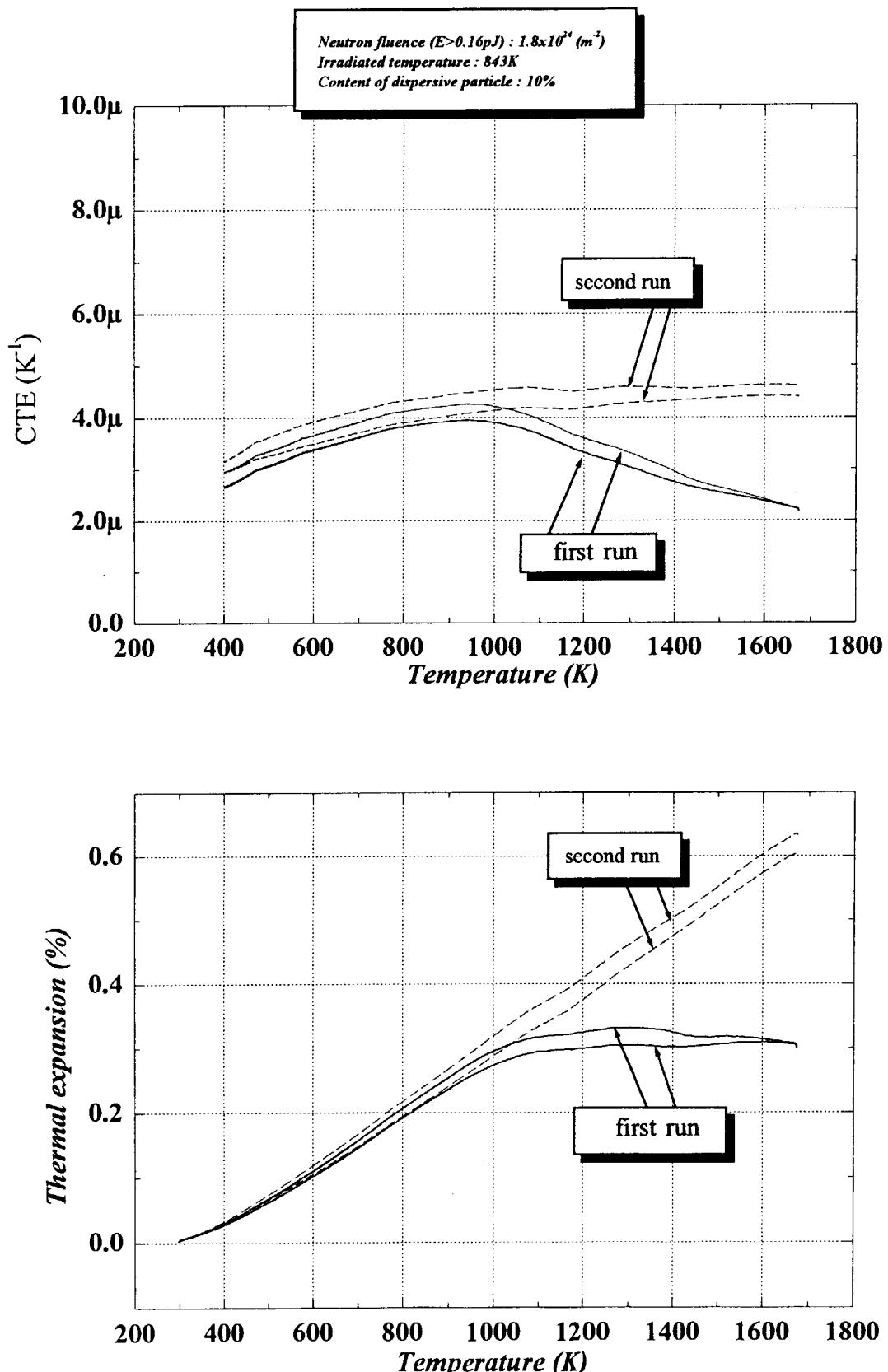


Fig.4.40 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for SiC particle 10% dispersive SiC composite irradiated at 843K.

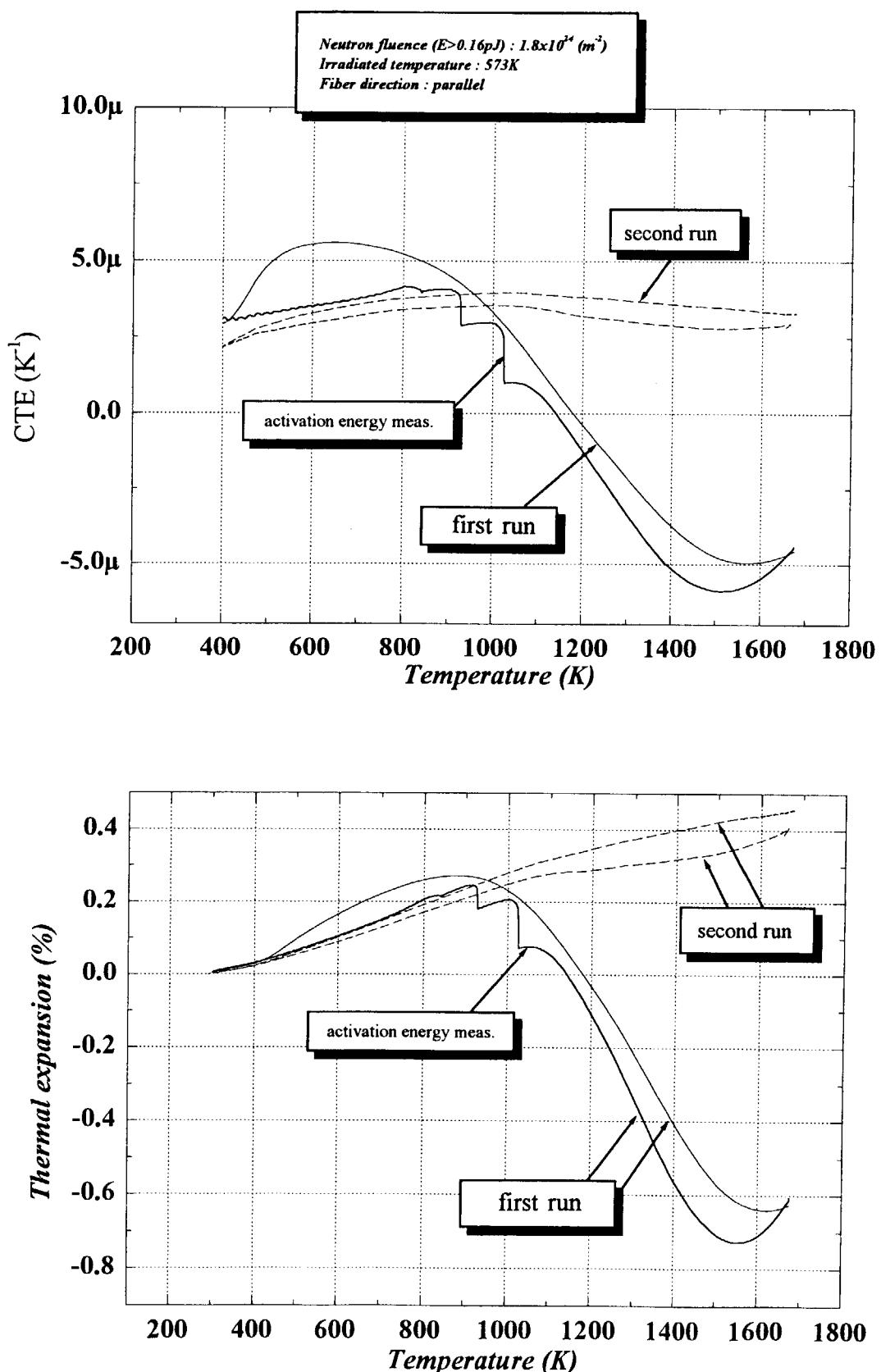


Fig.4.41 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D SiC/SiC composite (HiNicaloceram) irradiated at 573K.

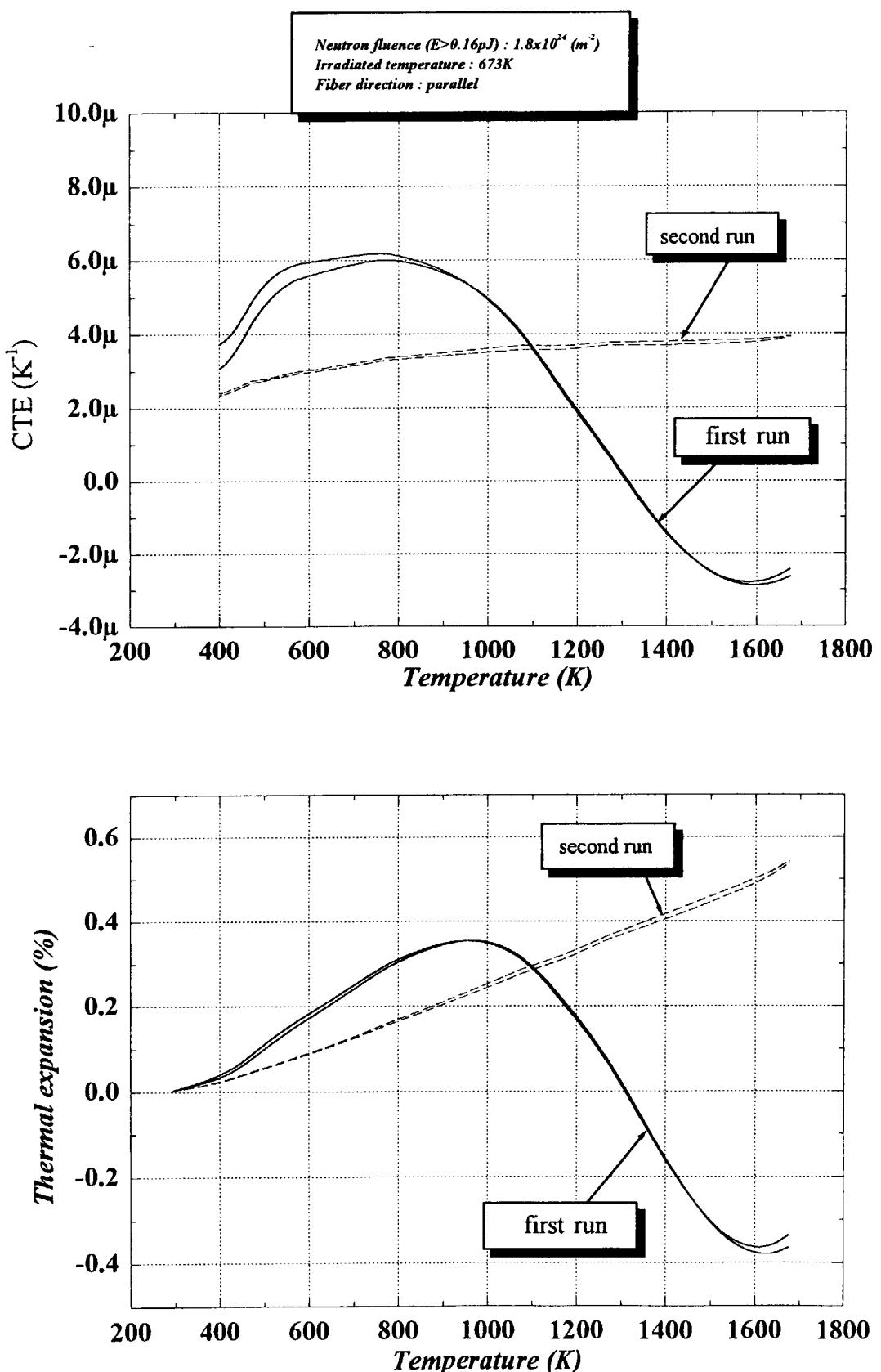


Fig.4.42 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D SiC/SiC composite (HiNicaloceram) irradiated at 673K.

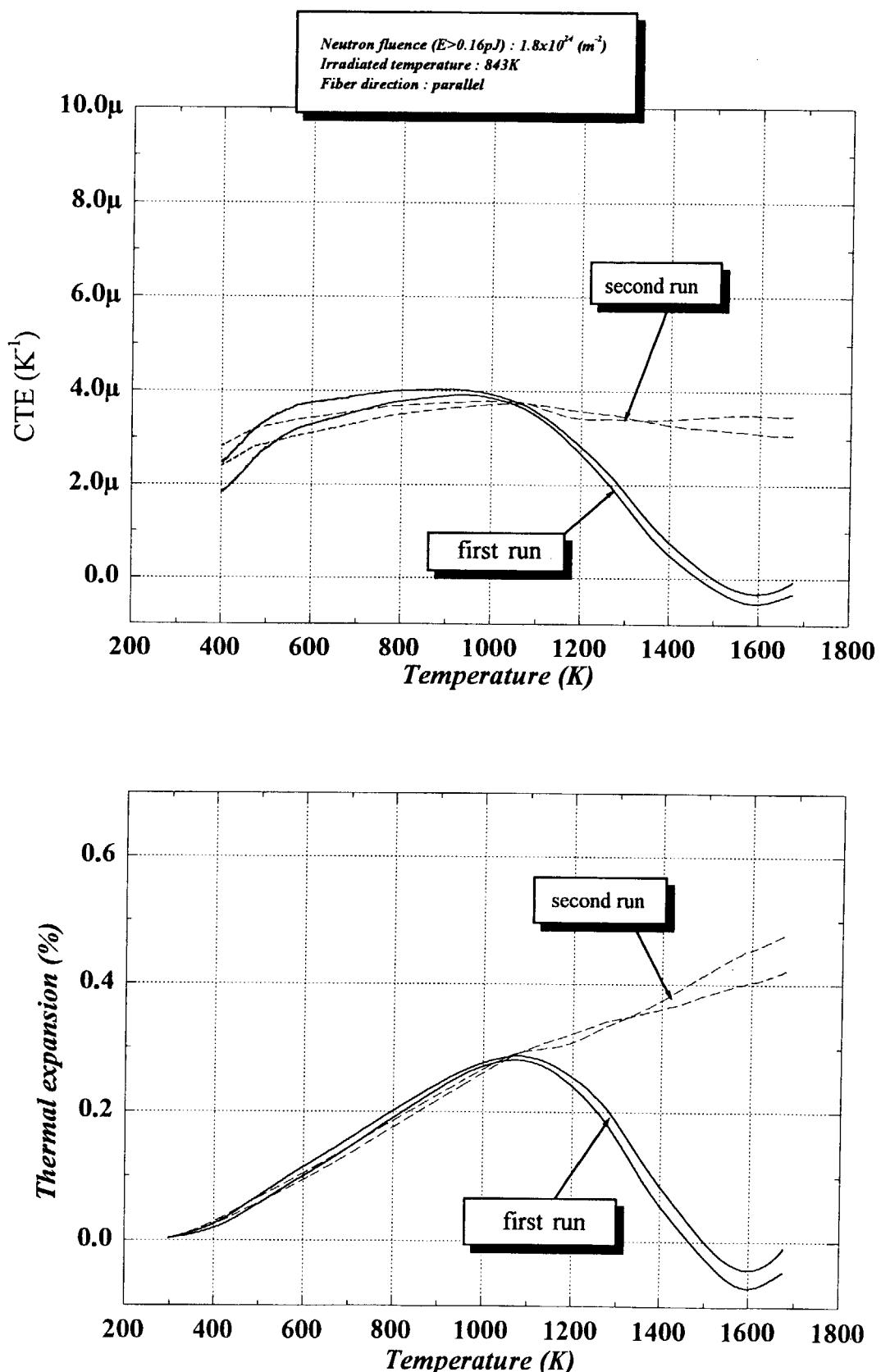


Fig.4.43 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D SiC/SiC composite (HiNicaloceram) irradiated at 843K.

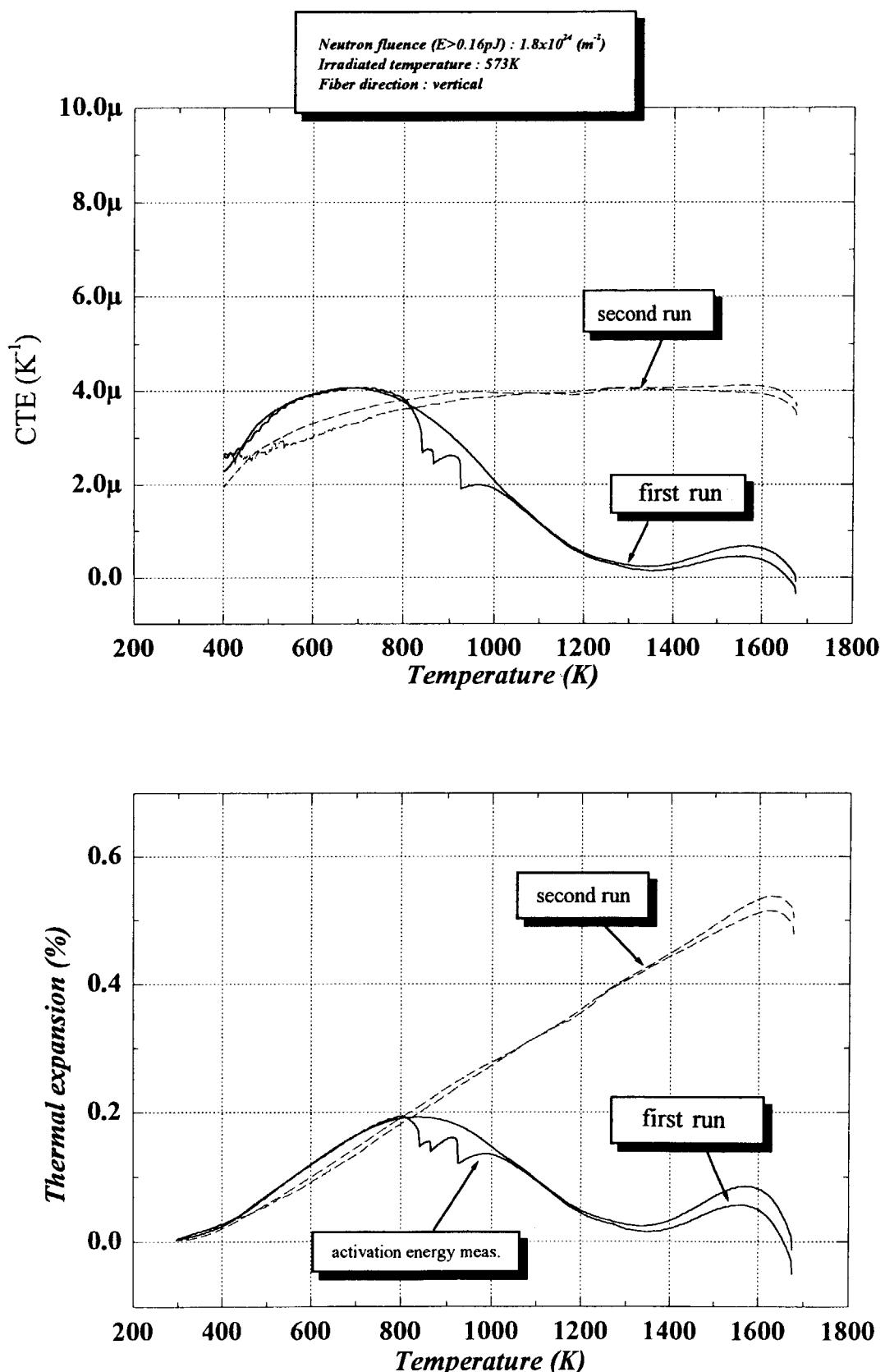


Fig.4.44 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D SiC/SiC composite (HiNicaloceram) irradiated at 573K.

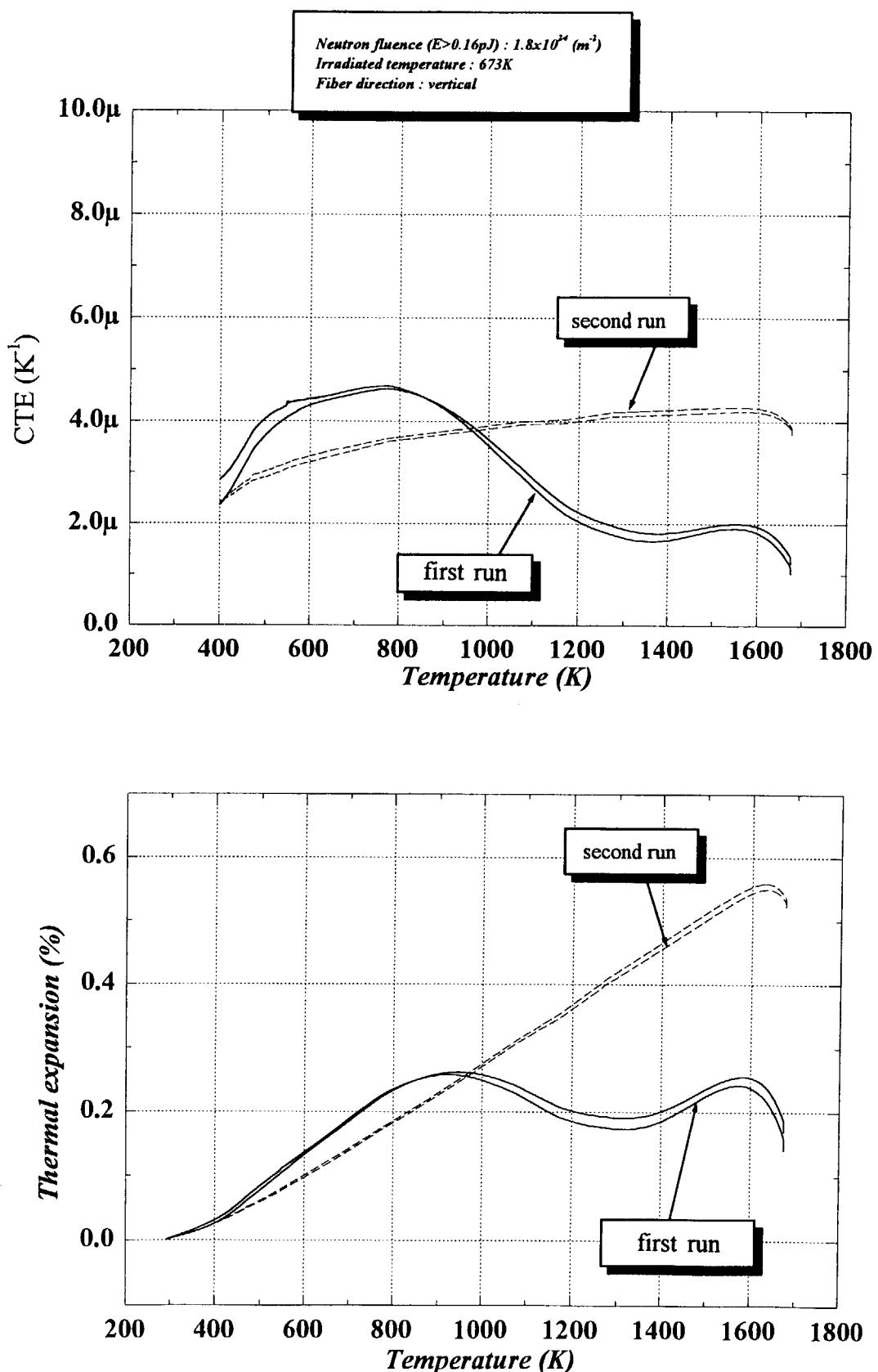


Fig.4.45 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D SiC/SiC composite (HiNicaloceram) irradiated at 673K.

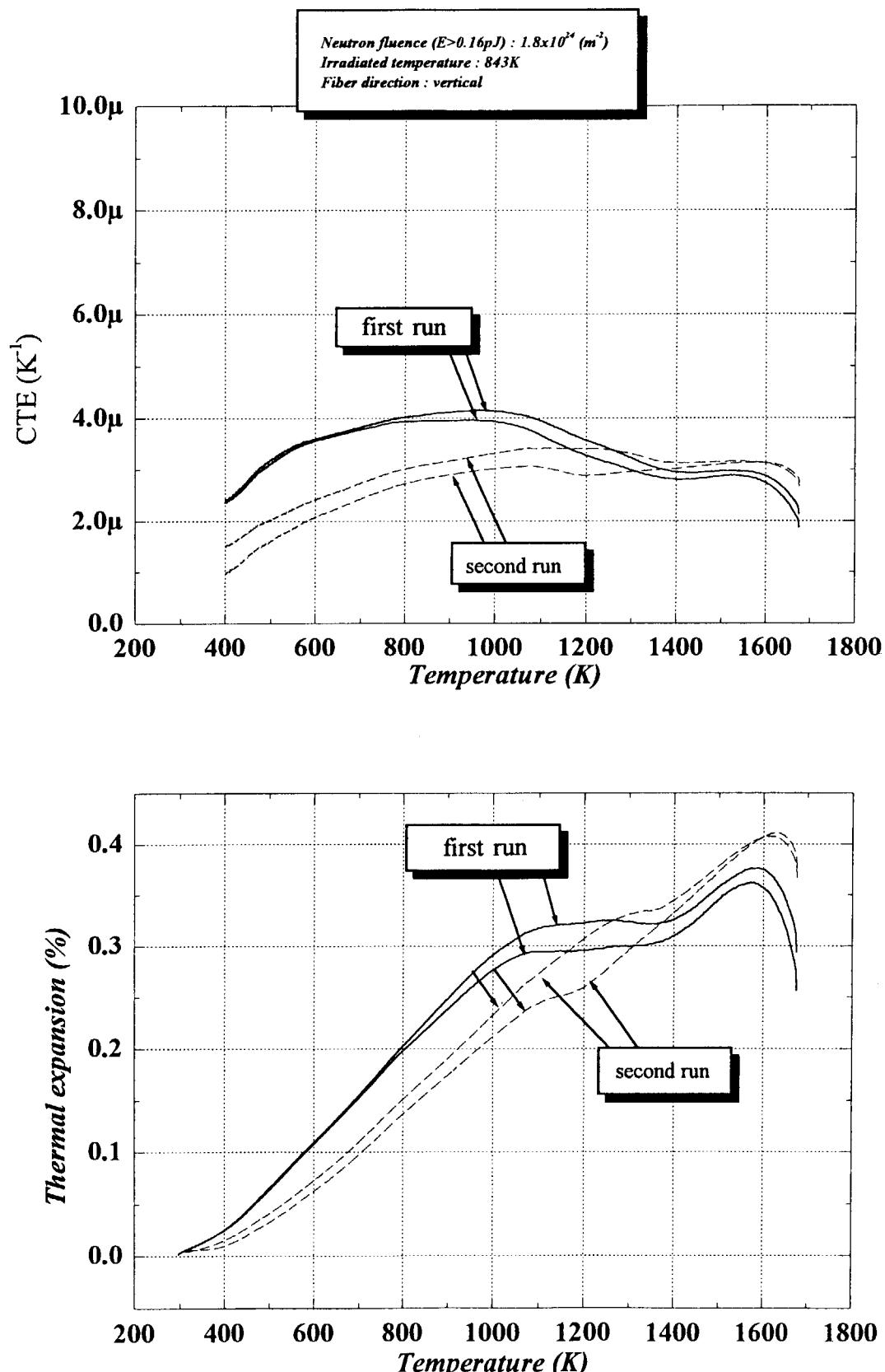


Fig.4.46 Neutron irradiation effects on coefficient of thermal expansion for 2-D SiC/SiC composite (HiNicaloceram) irradiated at 843K.

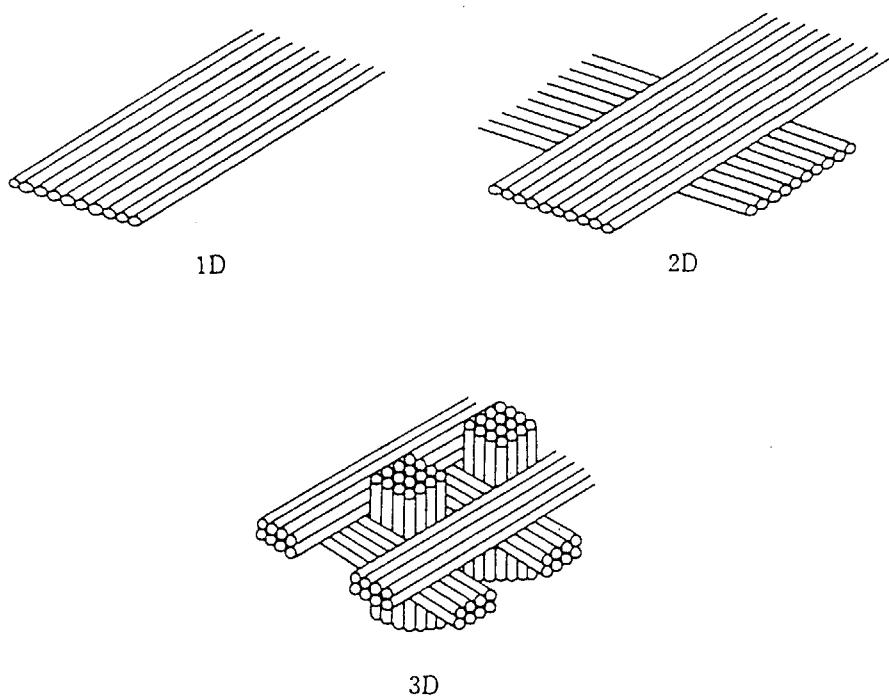


Fig.4.47 Illustration of 1-dimensional, 2-dimensional and 3-dimensional fiber woven types.

5. X線パラメータ

5.1 測定方法

(1)供試材

供試材としては、微粒等方性黒鉛(IG-110)及び高配向性熱分解黒鉛(HOPG)の2種類とした。

(2)装置及びデータ解析ソフト

測定に使用した装置（東海研究所ホットラボに設置）を以下に示す。

X線回折装置：理学電機 RAD-2C 改造型(遮蔽体付)広角X線回折装置

X線管球：Cu ターゲット 2 kW 封入管(40kV-50mA)

ゴニオメータ：W合金遮蔽体付 半径185mm 標準型(集中法)

スキャン可能範囲： $2\theta = -3^\circ \sim +150^\circ$ (仕様精度 $2\theta / \pm 0.05^\circ$)

モノクロメータ：湾曲型グラファイト結晶

標準使用スリット：DS； 1° 、SS； 1° 、RS；0.15mm、RSM；0.6mm

検出器：サイドウインド比例計数管

検出器遮蔽体：タンゲステン合金(遮蔽能力 185GBq)

解析に使用したソフトを以下に示す。

ピークサーチ処理：Rigaku-RAD システム／RINT-2000 シリーズ

$K_{\alpha_1} / K_{\alpha_2}$ ピーク分離：Rigaku-RAD システム／RINT-2000 シリーズ

定性分析(同定)：Rigaku-RAD システム／RINT-2000 シリーズ

データ解析用コンピュータ：HP/Apollo シリーズ(HP-712/60CPU)

(3)試験方法

照射済供試料の測定に先立ち、Si 標準試料(Si 粉末)を測定し、文献値($DS1^\circ$ 系統誤差補正值)に基づいて測角精度の確認を行った。また、粉末状 Si 標準試料を測定した X 線回折図形から $K_{\alpha_1} / K_{\alpha_2}$ ピーク分離処理を行い K_{α_2} 除去値を求めた。供試料は測定時に X 線入射方向に対して試料面が垂直に保持されるため、エポキシ樹脂埋め込みホルダーの中心にプラスティックコンパウンドで固定し、これをゴニオメータの試料ホルダーに設置した。

(3-1)格子定数

IG-110 の c 軸方向格子定数は(002),(004)及び(006)について、a 軸方向格子定数は(100)及び(110)について各々測定した。HOPG は供試材の切り出し方向の制約から c 軸方向の(002),(004),(006)及び(008)について測定した。

算出方法は学振法¹⁹⁾を参考にして次の手順により実施した。573K 照射の IG-110 供試料の hkl:(002)を例にして記述する。

① 2θ の実測値代入 → 照射黒鉛試料： 26.294° (002) $C_{\text{meas}}(2\theta)$

→ Si 標準試料： 28.423° (111) $S_{\text{meas}}(2\theta)$

②補正值 $C_{\text{cor}}(2\theta)$ の計算

$$C_{\text{cor}}(2\theta) = \text{Si 標準試料(文献値)} - S_{\text{meas}}(2\theta) + C_{\text{meas}}(2\theta) = 26.3129$$

28.442	28.423	26.294
--------	--------	--------

③格子定数の計算

$$d = \frac{\text{波長 } \lambda (\text{Cu : } 0.1540562)}{2 \sin \{(C_{\text{cor}}(2\theta)/2)(\pi/180)\}} = 3.3842, \quad 2 \times d = 0.67684 \quad (5-1)$$

(3-2)結晶子径

結晶子径についても同様に、573K 照射の IG-110 供試料の $hkl:(002)$ を例にして記述する。半価幅はピーク高さの $1/2$ 位置における幅を測定した。

①半価幅の測定値代入→照射黒鉛試料 : 0.407° (B)

→ Si 標準試料 : 0.076° (b)

②真の半価幅(β)の計算

β の算出は b/B に対する β/B としての数値を示す図から求めること(学振法)とされているが、これを次に示す4次の近似式にして、より計算し易くした。

$$\beta/B = 0.9981 - 0.06815 \times (b/B) - 2.59 \times (b/B)^2 + 2.62 \times (b/B)^3 - 0.958 \times (b/B)^4$$

③結晶子径(L_{hkl})の計算

形状因子 K の値は材料の種類によって異なるが、学振法¹⁹⁾では試料を人造黒鉛に限定した場合 $K=1$ と定めている。

$$(L_{hkl}) = K \cdot \lambda / \beta \cos \theta \quad (5-2)$$

但し、 $K : 1$ (定数)

$\lambda : 0.1540562$ (Cu の波長(nm))

$\theta : \{C_{\text{cor}}(2\theta)/2\}/(\pi/180)$

この結果、 $L_{c(002)}$ は 24.451 nm となった。

(3-3)黒鉛化度

六方晶黒鉛の格子定数は、炭素網平面に平行な方向(a 軸)と垂直な方向(c 軸)の値で代表され、室温で $a_0 = 0.24614$ nm、 $c_0 = 0.6707$ nm となる。また、層面の重なり方に規則性のないものが「乱層構造炭素」であり、その層間距離は 0.344 nm 程度とされ黒鉛構造の値($c_0/2$)より大きい。焼成温度の増加により層間距離が収縮し、乱層構造から黒鉛構造に移行していく現象を「黒鉛化」という。黒鉛化の程度を表す指針は、X線回折強度をフーリエ級数に近似する方法(Houska and Waren²⁰⁾)の他に、層間距離($c_0/2$)の測定値からも得ることができる。本報告では回折強度から求める Maire & Mering²¹⁾ の算出方法を適用した黒鉛化度(g)について、同様に 573K 照射の IG-110 供試料の $hkl:(002)$ を例にして記述する。

彼らの算出方法では、黒鉛化を網平面の表面に付着した炭素原子や不純物原子がなくなった状態と考え、次式が提案された。

$$c_0/2 = 3.44(1-g)^2 + \{(3.44+3.354)/2\}\{2g(1-g)\} + 3.354g^2 \quad (5-3)$$

ここで、 $c_0/2$: 層間距離

$(1-g)^2$: 網平面の表と裏の両面ともに不完全な状態の確率

$\{2g(1-g)\}$: 網平面の表と裏の片面のみ黒鉛化した状態の確率

g^2 : 網平面の表と裏の両面が完全に黒鉛化した状態の確率

整理すると、

$$g = (3.44 - c_0/2)/0.086 \quad (5-4)$$

従って、層間距離 $c_0/2$ が完全に黒鉛化した場合の数値である 3.354 の時、黒鉛化度 g は、1 となる。

(3-4) 格子歪み

格子歪みは実在する層間距離と回折実験データによる平均的な値とのずれを表すパラメータであり、第1の意味を「層面の不整」すなわち、面の歪みあるいはたわみと考える。第2の意味は「層間距離の変動」である。本報告では特に後者についての既存のモデルを使い検討した。すなわち、Ergun²²⁾の提案した c 軸方向の格子歪み δ_c の分布を正規分布型で表した次式を用いた。

$$\beta \cos \theta / \lambda = K/Lc + 8 \pi (c_0/2) \delta_c^2 (\sin \theta / \lambda)^2 \quad (5-5)$$

β : 回折図形の半価幅

λ : X線の波長

θ : 回折角

K : 形状因子($=1$)

Lc : c 軸方向の結晶子の大きさ

c_0 : c 軸方向の格子定数

δ_c と Lc は $(\sin \theta / \lambda)^2$ に対する $\beta \cos \theta / \lambda$ プロットの直線性から求めることができる。すなわち、Fig.5.1 に示すように 573K 照射の IG-110 供試料の場合、直線の近似式から x 勾配 : $4 \pi (c_0) \delta_c^2$ 、 y 切片 : $1/Lc$ であるから $\delta_c=0.0187$ 、 $Lc=285.7$ を得る。

5.2 結果及び検討

格子定数、結晶子径、黒鉛化度、格子歪みについて得られた結果を、Table 5.1 及び 5.2 に示す。

(1) 格子定数

Table 5.1 及び 5.2 に示したように IG-110 及び HOPG の両供試材とともに 573K 照射試料では、未照射材と比較して c 軸方向に 0.15 ~ 0.19% 増加しているが、673K

及び 843K 照射試料では一様の変化とはなってない。すなわち、HOPG は 673K の場合にも 573K と同程度の増加率を示したが、IG-110 では 673K び 843K 何れの場合も変化率は小さく測定誤差の範囲に留まっていた。一方、a 軸方向の格子定数については IG-110 のみ測定したが、c 軸方向の変化率とは逆に今回実施した全ての照射温度で 0.08 ~ 0.20% の減少率を示した。すなわち、微粒等方性黒鉛材料の格子定数は 573K 照射条件では c 軸方向に増加し、a 軸方向には減少することが分かった。照射温度 673K 以上の試験条件では、格子定数の変化率は低下ないしはほとんど変化しないことが示された。

(2)結晶子径

573K 照射した IG-110 は、未照射材と比較して a 軸及び c 軸方向の変化率はともに減少したが、673K 及び 843K 照射条件における c 軸方向の変化率は格子面によって増加あるいは減少の両態様を示した。一方、a 軸方向の結晶子径の変化率は照射温度の上昇とともに低下していく傾向を示した。HOPG の結晶子径の変化率は全ての照射温度条件で、未照射材と比較して大きく減少しており、概ね照射温度の上昇とともに変化率は小さくなる傾向を示した。

(3)黒鉛化度

573K 照射した IG-110 の場合、未照射材に比較して 7 ~ 10% の減少率であったが、673K 及び 843K 照射条件の場合には変化率は小さく測定誤差の範囲であった。一方、HOPG の場合は(002)、(004)回折線から求めた黒鉛化度の変化率は増加と減少の両態様を示しており不安定な測定結果であったが、(006)及び(008)回折線から求めた黒鉛化度の変化率は 1.6 ~ 6.7% の減少を示した。

(4) 格子歪み

IG-110 供試料の場合、未照射試料と比較した変化率は温度の上昇とともに低下していく傾向が認められた。すなわち、573K 照射条件では 13% の減少であったが 673K 及び 843K ではそれぞれ 5.8% 及び 0.6% に減少することが示された。未照射 HOPG 供試料の場合、格子歪み算出のための近似式の X 係数が負値を示したため、変化率として算出することが出来なかつたので、各照射温度条件間の相対的な比較を試みた。その結果、(002)及び(004)回折線から得た格子歪みは、温度の上昇とともに低下する傾向を示した。

Table 5.1 Irradiation-induced change in X-ray parameters of isotropic graphite (IG-110)
97M-13A/PIE_data(XRD-1)

	IG-110 未照射	IG-110 300°C	変化率(%) $(x-x_0)/x_0$	IG-110 400°C	変化率(%) $(x-x_0)/x_0$	IG-110 570°C	変化率(%) $(x-x_0)/x_0$
c軸 格子定数(Å)							
002	6.7554	6.7684	0.192	6.751	-0.064	6.752	-0.048
004	6.7441	6.7567	0.187	6.745	0.010	6.744	0.001
006	6.7484	6.7582	0.145	6.747	-0.016	6.749	0.016
008	-	-	-	-	-	-	-
c軸 結晶子径(Å)							
002	257.0	244.5	-4.861	270.068	5.085	265.020	3.120
004	179.5	160.2	-10.760	179.536	-0.002	182.986	1.920
006	109.2	107.4	-1.643	73.878	-32.352	78.317	-28.287
008	-	-	-	-	-	-	-
a軸 格子定数(Å)							
100	2.4634	2.4585	-0.199	2.460	-0.158	2.460	-0.129
110	2.4637	2.4604	-0.134	2.462	-0.087	2.462	-0.077
a軸 結晶子径(Å)							
100	308.4	291.5	-5.499	286.255	-7.194	302.615	-1.890
110	433.0	369.1	-14.775	399.210	-7.813	399.182	-7.820
黒鉛化度(g)							
002	0.7267	0.6489	-10.706	0.749	3.110	0.743	2.284
004	0.7898	0.7167	-9.256	0.786	-0.532	0.790	-0.013
006	0.7649	0.7081	-7.426	0.771	0.837	0.759	-0.797
008	-	-	-	-	-	-	-
格子歪(δ_c)							
002、004	0.0173	0.0196	13.295	0.018	5.780	0.017	0.578
002～006	0.0189	0.0187	-1.058	0.026	38.095	0.025	32.275
Nelson&Riley							
C ₀	6.7439	6.7538	0.147	6.745	0.012	6.746	0.028

Table 5.2 Irradiation-induced change in X-ray parameters of Highly-oriented
Pyrolytic Graphite (HOPG)
97M-13A/PIE_data(XRD-2)

	HOPG unirrad.	HOPG 300°C	変化率(%) $(x-x_0)/x_0$	HOPG 400°C	変化率(%) $(x-x_0)/x_0$	HOPG 570°C	変化率(%) $(x-x_0)/x_0$
c軸 格子定数(Å)							
002	6.70591	6.6856	-0.303	6.715	0.130	6.656	-0.742
004	6.70855	6.7120	0.051	6.719	0.160	6.701	-0.120
006	6.70938	6.7196	0.153	6.716	0.098	6.715	0.077
008	6.70887	6.7204	0.171	6.712	0.040	6.719	0.153
c軸 結晶子径(Å)							
002	613.8	193.7	-68.439	324.058	-47.201	408.879	-33.381
004	1106.3	106.1	-90.407	158.867	-85.640	202.403	-81.704
006	1659.4	70.9	-95.727	47.616	-97.130	163.361	-90.155
008	1460.3	52.7	-96.392	33.891	-97.679	145.953	-90.006
a軸 格子定数(Å)							
100	-	-	-	-	-	-	-
110	-	-	-	-	-	-	-
a軸 結晶子径(Å)							
100	-	-	-	-	-	-	-
110	-	-	-	-	-	-	-
黒鉛化度(g)							
002	1.0122	1.1301	11.648	0.962	-4.989	1.301	28.562
004	0.9968	0.9770	-1.986	0.935	-6.250	1.044	4.685
006	0.9920	0.9323	-6.018	0.954	-3.861	0.962	-3.034
008	0.9949	0.9282	-6.704	0.979	-1.578	0.935	-5.981
格子歪(δ_c)							
002、004	0	0.0276	-	0.024		0.021	-
002~006	0	0.0243	-	0.035		0.015	-
002~008	0	0.0219	-	0.032		0.012	-
Nelson&Riley							
C ₀	6.7096	6.7248	0.227	6.715	0.076	6.725	0.230

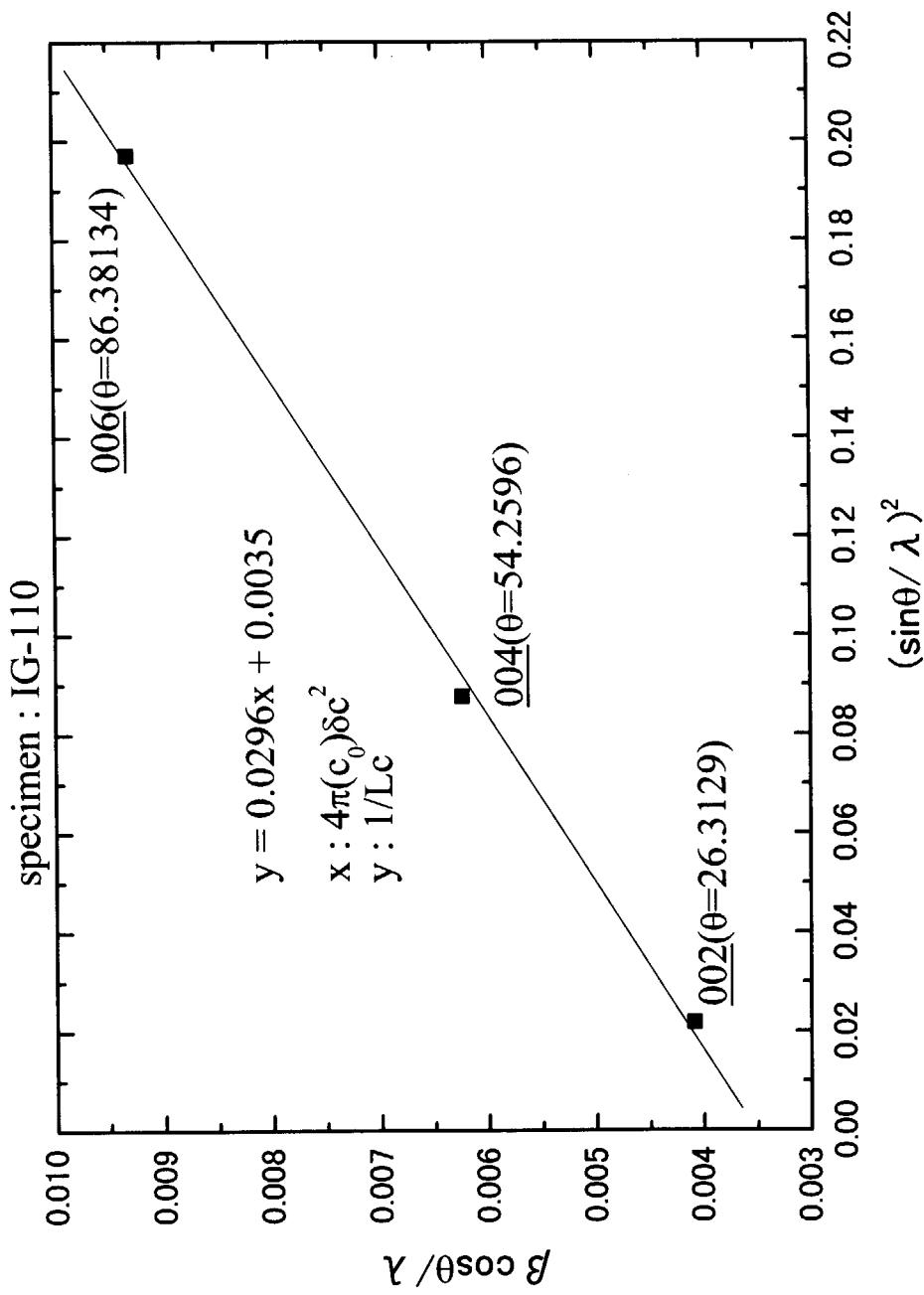


Fig. 5.1 Evaluation for lattice strain by Eq.(5-5)

6. γ 線スペクトル

6.1 測定方法

装置 - 高純度 N 型 Ge 検出器 (γ -X ピュア Ge 同軸型半導体)

大洗研究所 RI 利用開発棟 (精密測定室) に設置

結晶タイプ : N 型 Ge

検出器サイズ : 直径 53.4mm × 長さ 63.4mm

モデル : GMX-20190-P-PLUS, CFG-PH-1(セイコーアンドジー社)

相対効率 : $\geq 18\%$ ($3'' \phi \times 3'' \phi$ NaI に対して)

分解能 : $\leq 1.9\text{keV FWHM}$ at 1.33MeV

$\leq 1100\text{eV FWHM}$ at 5.9keV

ピーク / コンプトン比 : 46 at 1.33MeV

クライオスタッフ : 水平ストリームライン型

エンドキャップ : $2.75'' \phi \times 9''$

波高分析器 - シリーズ 35 PLUS(CANBERRA)

高圧電源 - Model 459 3000V(Bias)

前置増幅器 - Model 672、時定数 $6.0\mu\text{sec}$

(1) γ 線エネルギー対測定効率の決定

真の放射能値を決定するため γ 線エネルギーに対する測定効率の関係について、低エネルギーから高エネルギーの標準線源を用いて所定の測定距離における測定効率を求めた。用いた標準線源は Am-241(59.5keV), Ba-133(81,303,356keV), Cs-137(662keV), Co-60(1173,1333keV) 及び Na-22(1275keV) である。Fig.6.1 に本測定に使用した γ 線検出器の効率 ϵ (%) と γ 線エネルギー E (keV)との関係を各測定距離別に示した。これを計算し易いように距離別の近似式として次に示す。

距離	近似式	相関係数(R)
2cm	$\epsilon_2 = 216.44 E^{-0.7358}$	0.9985
3cm	$\epsilon_3 = 107.58 E^{-0.6853}$	0.991
4cm	$\epsilon_4 = 74.72 E^{-0.6767}$	0.9946
11cm	$\epsilon_{11} = 13.055 E^{-0.6279}$	0.9766
13cm	$\epsilon_{13} = 6.7249 E^{-0.5524}$	0.9537
18cm	$\epsilon_{18} = 6.5572 E^{-0.6584}$	0.9903
19cm	$\epsilon_{19} = 4.1189 E^{-0.6008}$	0.9707

(2) 測定

照射供試料は鉛厚さ 5cm の放射線測定用遮蔽箱(木村化工機(株)製)の内部で測定した。測定時間はライブタイム一定(1800 秒)にして測定した。これは入射放射線を ADC(Analog Digital Convertor)で処理する間の不感時間を補償するため

の回路が付加されたもので、全経過時間をその分延長して、True Timeとしてデータ収集時間が別途記録される。従って、試料毎にデータ収集時間は 1800 秒 + α となるが、この増加時間分をほぼ一定に揃えるため測定距離を 2cm ~ 19cm まで適当に変えて測定した。最も放射能強度の大きい SiC/SiC 複合材料試料 (Hi_Nicaloceram)の場合には 19cm としたが、最も放射能強度の小さい C/C 複合材料試料 (CX-270)の場合には 2cm とした。

(3) γ 線スペクトルの評価

γ 線スペクトル測定結果から測定時点における放射能量を次のようにして評価した。
 ①個々のピーク面積を求める、
 ②測定距離毎に γ 線エネルギーに対応した測定効率を、換算式(近似式)を使用して求める、
 ③全ての γ 線エネルギーに対応した検出効率を使って正味のピーク面積の総和を求める。この総和を測定時点における放射能量とした。放射能評価とは別に、室温から 1673K までの熱膨張率測定時の加熱による放出核種の有無を調べるために、加熱前後の γ 線スペクトルを供照射試料毎に測定した。SiC/SiC(HiNicaloceram)複合材料の γ 線スペクトル測定結果を Fig.6.2a 及び Fig.6.2b に示す。

6.2 結果及び検討

Fig.6.3 に示すように、最も強い比放射能は SiC/SiC(HiNicaloceram)複合材料で 3.2×10^7 (Bq/g)であったが、逆に最も弱い比放射能は C/C(CX-270G)複合材料で 6.6×10^4 (Bq/g)で、これは前者の約 1/500 に相当する。表面線率量は前者が 500 μ Sv/h、後者が 4 μ Sv/h であった。供試料中不純物の化学分析結果から代表的な 5 元素について比較すると、次のようになった。

Elements	SiC/SiC(Hi Nicaloceram)	C/C(CX-270G)	Ratio
Al	<20	0.37	54.1
Ti	<10	<0.09	110
V	<2	<0.07	28.6
Fe	24	0.19	126
Ni	12	<0.1	120
(mass ppm)			

すなわち、Ti、Fe、Ni などの放射能強度に大きく寄与する重金属元素の質量比が、何れも 100 倍以上含有していることからも、上に述べた比較結果は当然であるといえる。従って、放射能を低減化するためにはこうした重金属元素を除去することが求められる。

次に、1673K 加熱前後の核種の変化について調べた結果、Gilso-carbon のみ全く変化なかったが、それ以外の供試料は 1 種類以上の消失核種のあることが分かった。加熱後の消失核種を以下に列挙する。

SiC/SiC(Hi_Nicaloceram) – Ag-110m

Monolithic_SiC — Sn-113, Eu-152

C/C(CX-270C) — Sb-124, Ag-110m, Sc-46

C/C(CX-270G) — Ag-110m, Zn-65, Sb-124, Ta-182, Hf-180, Zr-95

C/C(CCM-190C) — Ag-110m, Ta-182, Nb-95

C/C(CCM-190G) — Ag-110m, Sb-124

C/C(PCC-2S) — Sb-124, Zn-65

Isotropic Graphite(IG-110) — Ag-110m, Zn-65, Sb-124

これらの加熱後消失核種のうち 1673K 以下の融点をもつ元素は、Sn-505K、Ag-1234K、Sb-904K、Zn-692K、Eu-1095K、Sc-1673K である。また、1673K 以下の沸点は Zn の 1181K のみである。Ta, Nb, Hf, Zr 以外の元素は加熱溶融して試料受け台に流れ落ちた結果、見かけ上は供試料から消失したものと考えられる。1673K 以上の融点をもつ元素の消失原因は、微量のために生じた測定誤差と考えられる。

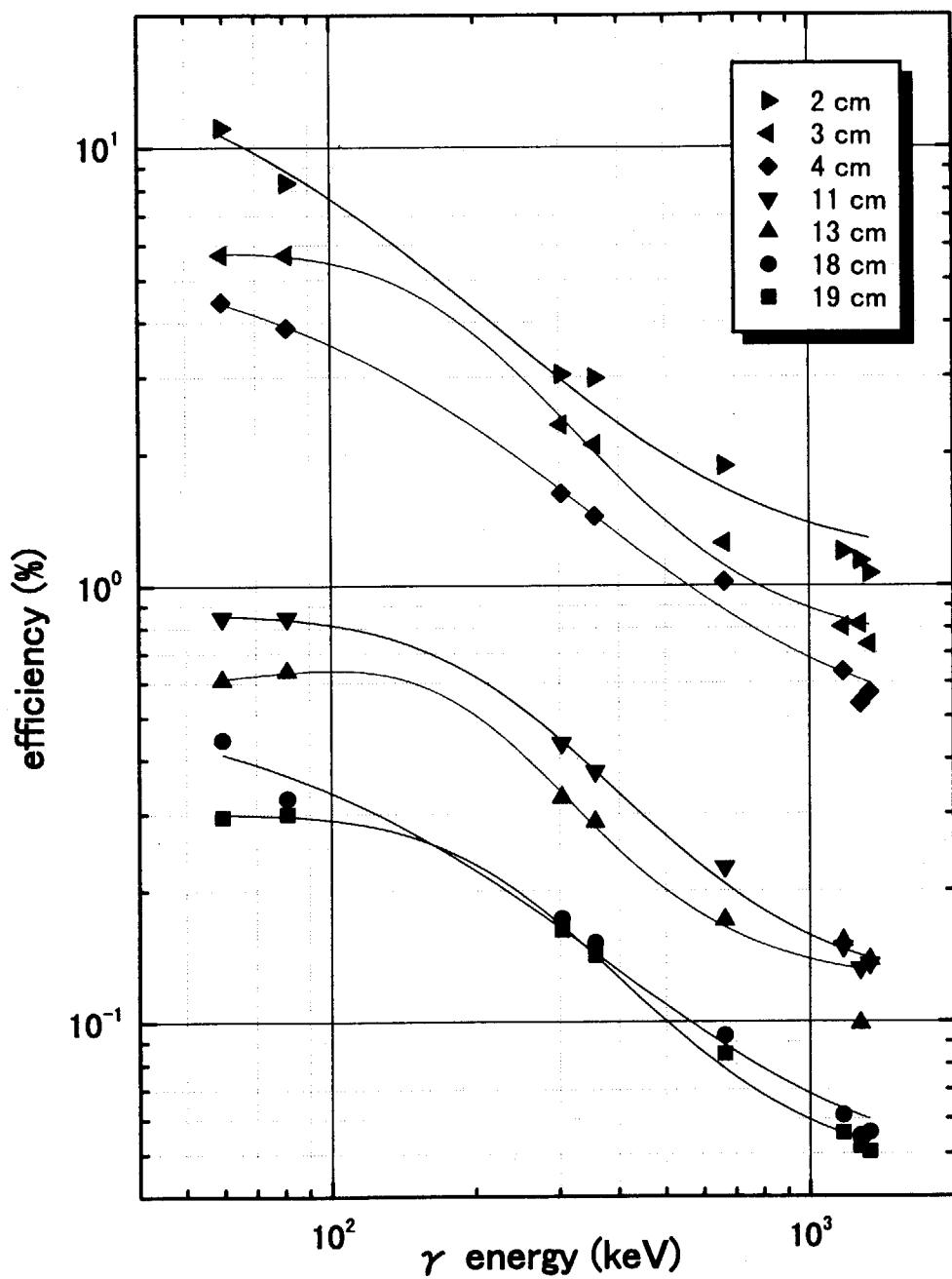


Fig. 6.1 γ -ray energy vs detecting efficiency for Ge detector

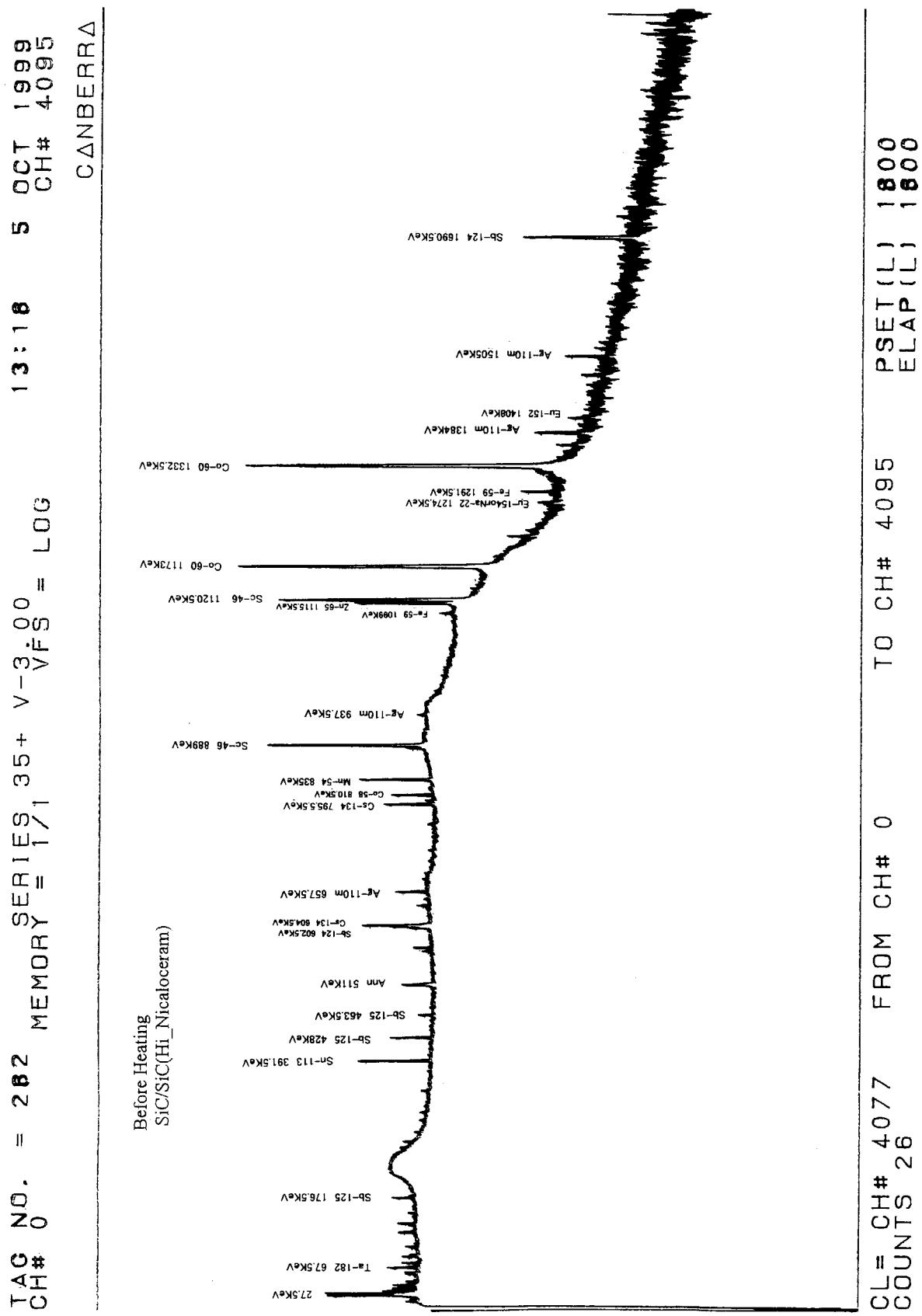
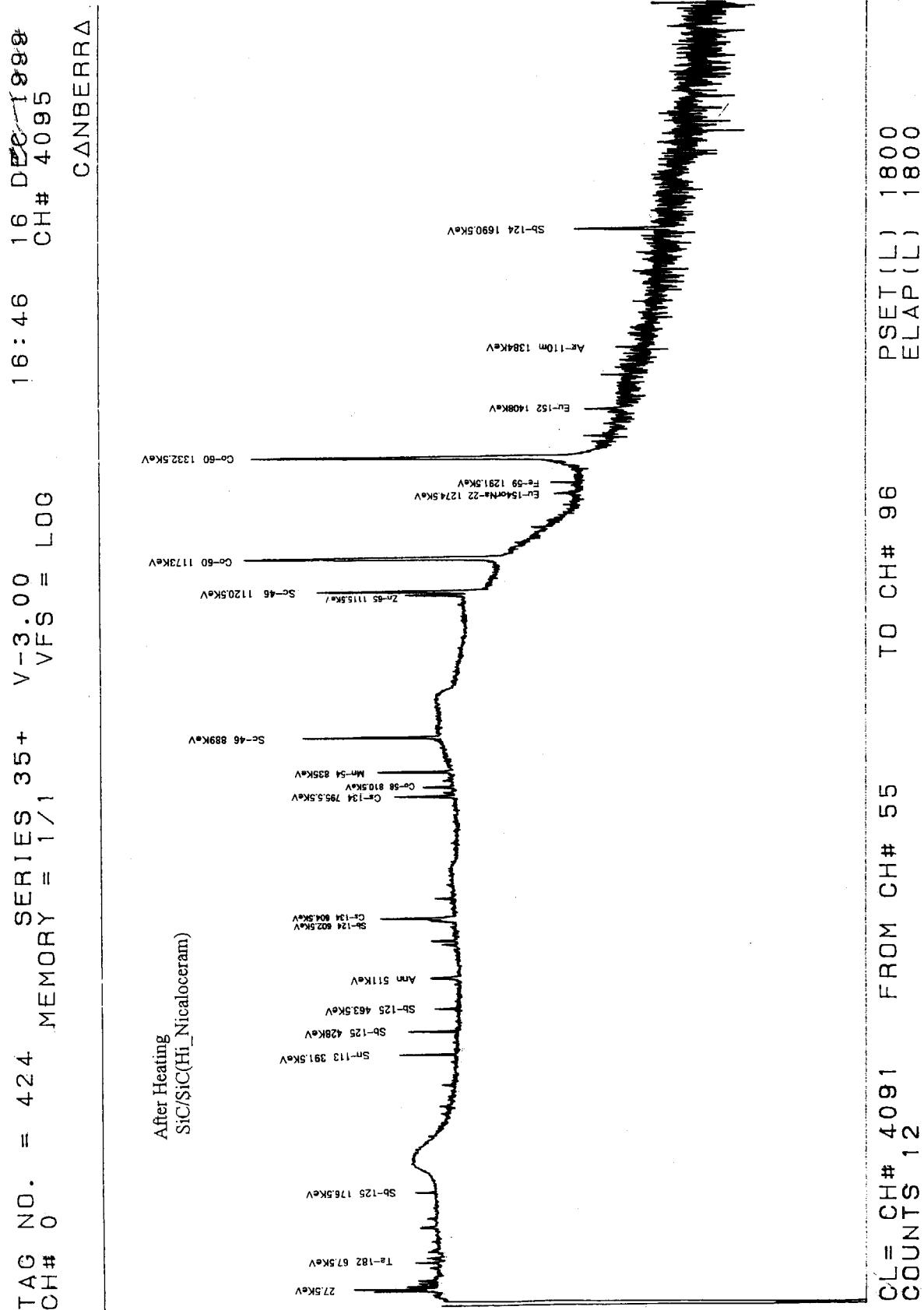


Fig.6.2a γ -ray spectrum of before heating SiC/SiC composite(HiNiCaloceram).

Fig.6.2b γ -ray spectrum of after heating SiC/SiC composite(HiNicaloceram).

Specimen_Name	Specific_Activity (Bq/g)
SiC-Hexaloy	5.849E+06
SiC-10%SiC	1.318E+06
SiC-HiNicaloceram	3.200E+07
Graphite_IG-110	2.028E+05
Graphite_Gilso-Carbon	2.375E+07
C/C Composite_PCC-2S	4.491E+05
C/C Composite_CX-270C	9.960E+04
C/C Composite_CX-270G	6.588E+04
C/C Composite_CCM-190C	1.239E+06
C/C Composite_CCM-190G	9.980E+06

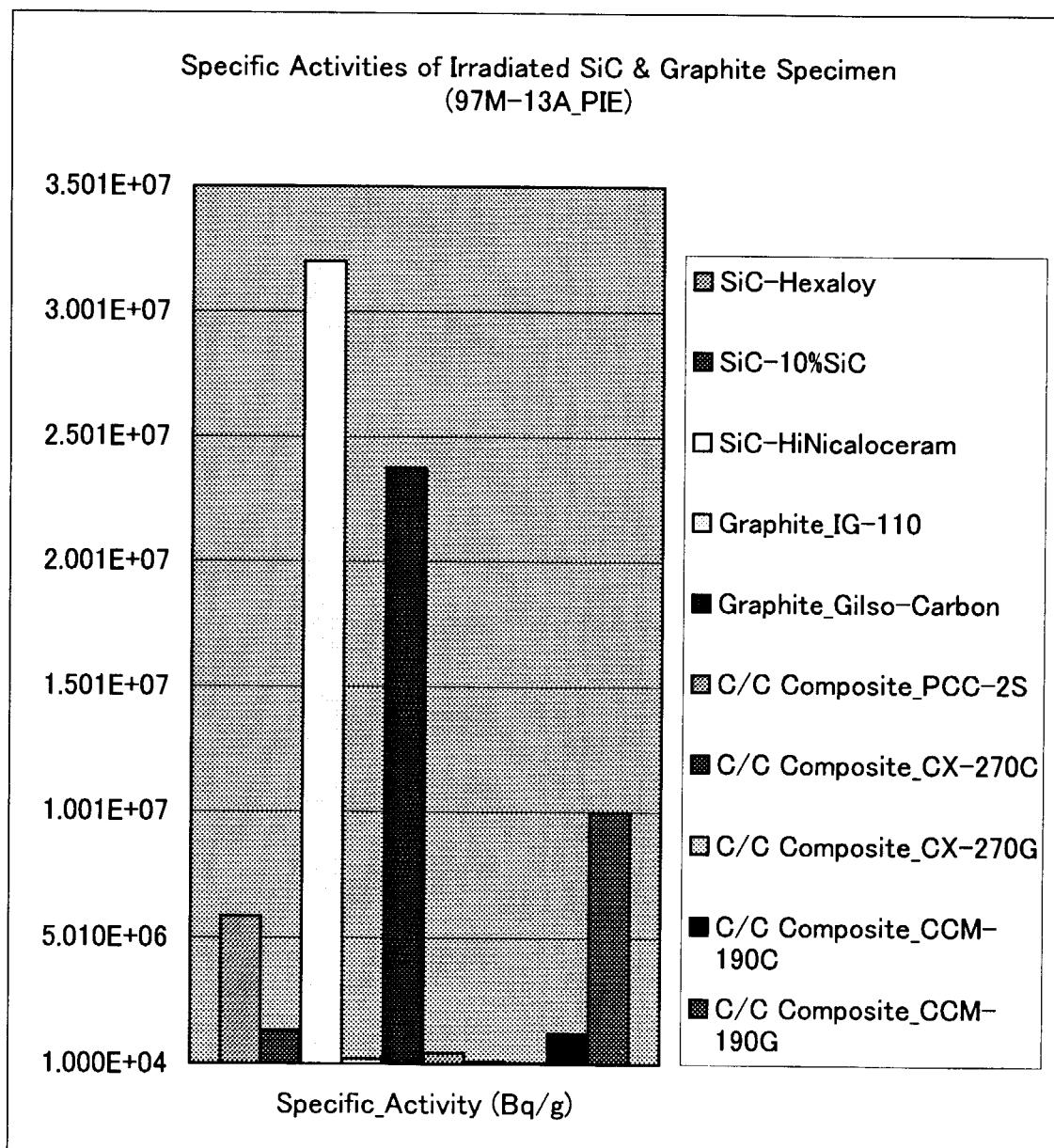


Fig.6.3 Specific activities of irradiated SiC/SiC and C/C composites specimen.

7. 結言

(1) 供試料及び照射条件

炭素繊維強化複合材料 6 種類、SiC/SiC 系複合材料 3 種類及び微粒等方性黒鉛等の参考材 4 種類について、573K、673K 及び 843K の各温度領域において高速中性子($E > 1\text{MeV}$)軸方向ピーク値 $1.8 \times 10^{24}(\text{m}^{-2})$ の照射条件で試験を実施した。

(2) 照射誘起寸法変化

(a) 炭素繊維強化複合材料

2 次元織り炭素繊維強化複合材料の長さ／径方向の照射誘起寸法変化率は繊維配列方向との特徴ある関連性は見られなかったが、長さ方向に膨張／収縮した供試料は径方向では逆に収縮／膨張を示す傾向が見られた。また、熱処理温度の差異による長さ方向の寸法変化率は、照射温度 573K における 3273K 热処理した供試料のみ膨張傾向を示した。

(b) SiC 系複合材料

2 次元織り SiC/SiC 複合材料の照射誘起寸法変化率は、径方向に収縮し長さ方向には膨張を示したが、照射温度 843K の場合のみ長さ方向にも収縮した。SiC 粒子分散強化複合材料の場合には、径方向及び長さ方向に無関係で一様に膨張した。その変化率は照射温度の増加に対して減少した。

(3) 照射誘起熱膨張率

(a) 炭素繊維強化複合材料

熱膨張率測定方向が強化繊維配列に平行／垂直方向の供試料の場合における相違点は、平行方向の熱膨張係数(CTE)が事実上ゼロであるのに対して、垂直方向では $6 \sim 9 \times 10^{-6}\text{K}^{-1}$ であった。最終熱処理温度が 2273K/3273K 供試料の相違点は CTE が前者で $6 \sim 7 \times 10^{-6}\text{K}^{-1}$ 、後者で $8 \sim 9 \times 10^{-6}\text{K}^{-1}$ と、わずかの差があることのみであった。照射による熱膨張率及び CTE に対する効果は今回の照射条件においてはほとんど認められなかった。

(b) SiC 系複合材料

SiC 系複合材料の熱膨張率及び CTE に及ぼす照射効果としては、照射温度依存性が顕著に現れた。すなわち、SiC 繊維強化／SiC 粒子分散強化の何れの複合材料についても、照射温度 + 100K 付近から熱膨張率曲線の屈曲が始まり、2 回目の測定においては未照射材とほぼ同様の温度依存性を示す、いわゆる温度モニター効果が観察された。

(4) 照射誘起 X 線パラメーター

微粒等方性高密度黒鉛及び高配向性熱分解黒鉛の 2 種類について、X 線回折による測定を行い、格子定数、結晶子径、黒鉛化度及び格子歪みを解析・評価した。その結果、これまでに得られた結果と同様の傾向を示すことが分かった。すなわち、格子定数は六方晶黒鉛の c 軸方向に増加し a 軸方向に収縮した。結晶子

径は HOPG の場合、573 ~ 843K の照射温度条件において大きく減少しており、照射温度の増加とともに変化率は低下していく傾向を示した。黒鉛化度は IG-110 で照射温度 573K の場合、約 10%の減少を示したが、HOPG では 1.6 ~ 7%の減少幅であった。格子歪みは照射温度の増加とともに低下していく傾向を示した。

(5) γ 線スペクトル

供試料取扱上の放射線安全基準の目安を設定するため、 γ 線核種及び放射能量を測定した。また、同一供試料について 1673K 加熱前及び後の γ 線スペクトルの相違から加熱による消失元素の評価を行った。その結果、最も大きな比放射能を有しているのは SiC 系の HiNicaloceram で、逆に最も低い比放射能は炭素系の CX-270G であった。加熱前後の消失核種は、Gilso-carbon を除き全ての供試料において 1 ~ 6 種類の放出元素が確認された。

謝 辞

本研究にあたり、企画室(研究評価推進室、東海駐在)の荒井長利氏には、本照射試験計画を立案されたほか、適宜適切な助言を頂いたことに感謝申しあげます。中性子照射量評価では計画課の武田卓士課長ほか同課の皆様、キャプセル製作では東海研究所技術部工作課の菊池泰二氏、照射後試験では解体・試料搬出においてホットラボ課の岩松重美氏、照射後試験全般においてご協力を頂いたホットラボ課星屋泰二課長ほか同課の皆様に感謝申し上げます。熱膨張率及び γ 線スペクトル測定にあたって、大洗研究所 RI 利用開発棟のホット実験室の使用及び器材の貸与について多大の御援助及び御協力を頂いたアイソトープ開発室の黒沢清行室長、本木良蔵氏及び立川登氏に感謝申し上げます。また、本報告書の刊行にあたって、星屋泰二ホットラボ課長に閲読のうえ、貴重なコメントを頂いたことに感謝申しあげます。

参考文献

- 1) 松尾：炭素, 150, 290-302 (1991).
- 2) Price R.J. : Nucl. Tech. 16, 536-542 (1972).
- 3) Primak W., Fuchs L.H. and Day P.P. : Phys. Rev. 103, No.5, 1184-1192 (1956).
- 4) Price R.J. : J. Nucl. Mater., 33, 17-22 (1969).
- 5) Bramman J.I., Fraser A.S. and Martin W.H. : U.K.A.E.A., Dounreay Experimental Reactor Establishment, Thurso, Caithness, Scotland, TRG-1911, 458-472 (1969).
- 6) Price R.J. : J. Nucl. Mater., 48, 47-57 (1973).
- 7) Mrozowski S. : "Proc. of 1st & 2nd Conf. on Carbon", The Waverly Press, Baltimore, Maryland, U.S.A, 31-45 (1956).
- 8) 豊田純二, 伊与久達夫, 石原正博, 多喜川昇, 塩沢周策 : JAERI-M 91-102 (1991).
- 9) 稲垣道夫, 玉井洋三, 中重治 : 炭素, 75, 118-125 (1973).
- 10) 日本機械学会編 : "熱物性値測定法", 養賢堂, 146-147 (1991).
- 11) 前園明一 : 金属, 68, No.7, 593 (1998).
- 12) Nelson J.B. and Riley D.P. : Proc. Phys. Soc., 57, 477 (1945).
- 13) Matsuyama E. : Tanso, 7, 12 (1958).
- 14) Steward E.G. and Cook B.P. : Nature, 185, 78 (1960).
- 15) Walker P.L., McKinstry H.A. and Wright C.C. : Ind. Eng. Chem., 45, 1711 (1953).
- 16) Baskin Y. and Mayer L. : Phys. Rev., 100, 544 (1955).
- 17) Price R.J. and Bokros J.C. : J. Appl. Phys., 36, 1897 (1965).
- 18) 斎藤保, 今井久 : 炭素, 127, 178 (1986).
- 19) 日本学術振興会第 117 委員会 : 炭素, 36, 25-34 (1963).
- 20) Houska C.R. and Warren B.E. : J. Appl. Phys. 25, 1503 (1954).
- 21) Maire J. and Mering J. : "Chemistry and Physics of Carbon", Edited by Walker Jr.P.L., Marcel Dekker, New York, .6, 125-190 (1970).
- 22) Ergum S., Phys. Rev. : B1, 3371 (1970).

This is a blank page.

国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N·m
功率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	A·s
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	l, L
ト	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バーソル	b
バール	bar
ガル	Gal
キュリ	Ci
レンントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

$$1 \text{ Å} = 0.1 \text{ nm} = 10^{-10} \text{ m}$$

$$1 \text{ b} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-28} \text{ m}^2$$

$$1 \text{ bar} = 0.1 \text{ MPa} = 10^5 \text{ Pa}$$

$$1 \text{ Gal} = 1 \text{ cm/s}^2 = 10^{-2} \text{ m/s}^2$$

$$1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$$

$$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}$$

$$1 \text{ rad} = 1 \text{ cGy} = 10^{-2} \text{ Gy}$$

$$1 \text{ rem} = 1 \text{ cSv} = 10^{-2} \text{ Sv}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1～5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N(=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa}\cdot\text{s}(N\cdot\text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P(ボアズ)}(\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St(ストークス)}(\text{cm}^2/\text{s})$$

圧	MPa(=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 ⁻⁴	1.35951 × 10 ⁻³	1.31579 × 10 ⁻³	1	1.93368 × 10 ⁻²
	6.89476 × 10 ⁻³	7.03070 × 10 ⁻²	6.80460 × 10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft · lbf	eV	1 cal = 4.18605 J(計量法)
	1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻⁷	0.238889	9.47813 × 10 ⁻⁴	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸	= 4.184 J(熱化学)
	9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹	= 4.1855 J(15 °C)
	3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ⁵	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵	= 4.1868 J(国際蒸気表)
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹	仕事率 1 PS(仮馬力)
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹	= 75 kgf·m/s
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸	= 735.499 W
	1.60218 × 10 ⁻¹⁹	1.63377 × 10 ⁻²⁰	4.45050 × 10 ⁻²⁶	3.82743 × 10 ⁻²⁰	1.51857 × 10 ⁻²²	1.18171 × 10 ⁻¹⁹	1	

放射能	Bq	Ci	吸収線量	Gy	rad
	1	2.70270 × 10 ⁻¹¹		100	
	3.7 × 10 ¹⁰	1		0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

(86年12月26日現在)

耐熱セラミックス複合材料の照射試験 — 第1次予備照射試験 (97M-13A) 照射後試験中間報告 —