

セラミックスの照射影響に関する基礎調査（その2）
報告書

平成13年3月

(財)若狭湾エネルギー研究センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4 番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :

Technical Cooperation Sections,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49,Muramatsu,Tokai-Mura,Naka-Gun,Ibaraki-Ken,319-1194
Japan

2001年3月

セラミックスの照射影響に関する基礎調査（その2）

丸山忠司*

要旨

中性子照射した炭化ホウ素 (B_4C) と SiC の組織変化挙動を解明するため、加速器を用いたイオン照射試験を行った。この試験に用いた B_4C 試料は、炭素還元法で作成した B_4C とマグネシウム還元法で作成した B_4C 焼結体である。また、SiC は CVD 法により作成した β -SiC である。これら試料はタンデム加速器を用いて、それぞれ 15MeV および 25MeV のヘリウムおよび炭素イオン照射をした。He イオン照射量は $0.43 \sim 11 \times 10^{15} \text{ion/cm}^2$ 、また C イオンは $0.8 \sim 8 \times 10^{14} \text{ion/cm}^2$ 照射温度は $413^\circ\text{C} \sim 760^\circ\text{C}$ である。照射後試料は透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いて組織観察を行った。

炭化ホウ素の TEM 観察結果では、マグネシウム還元粉を用いた B_4C には粒界の 3 重点に Fe を多く含む微結晶が存在しているのに対し、炭素還元粉 B_4C では、Fe の偏析も見られず均一な組織をしていた。He イオン照射では中性子照射試料に見られるような黒点損傷およびレンズ状バブルが観察されず、非晶質化した母相の中に Fe を含む多数の微結晶の析出と He バブルと思われるネットワーク構造が見られた。照射欠陥ならびにヘリウムの析出挙動が中性子照射の場合と大きく異なる結果になったが、これはイオン照射でははじき出し損傷速度が大きいため、 B_4C が非晶質化したためによるものと思われた。

一方、SiC については、今回の炭素イオン照射では大きな組織変化が見られず、また非晶質化も生じなかった。また 600°C でのアニール実験では、顕著な組織変化が見られず、SiC は安定な組織を保っていた。

本報告書は、(財) 若狭湾エネルギー研究センターが平成 12 年度核燃料サイクル開発機構との契約により実施した業務の成果である。

契約番号：12C1791

サイクル機構担当者：北野 彰洋（敦賀本部国際技術センター）

* (財) 若狭湾エネルギー研究センター

March 2001

Investigation of Radiati |n Effects on Ceramics (2)

Tadashi Maruyama*

Abstract

Ion irradiation experiment was carried out to elucidate behavior of microstructural change of neutron-irradiated B_4C and SiC. The materials used in this investigation are hot-pressed boron carbide pellets made of carbothermic reduction method and those of magnesiothermo reduction method. The SiC specimens used in the present investigation are the β -SiC fabricated by the CVD method. The specimens were irradiated with He and C ions having 15 MeV and 25 MeV respectively, to the fluences of 0.43 to $11 \times 10^{15}/cm^2$ and 0.8 to $8 \times 10^{14}/cm^2$ at temperatures from 413 to $760^\circ C$. After irradiation, the microstructure of specimens were analyzed by transmission electron microscopy (TEM).

The results of TEM analysis for B_4C which is made of magnesiothermo reduction method indicated that precipitates of iron rich micro crystals often existed at triple points of grain boundaries. On the other hand, B_4C made of carbothermic reduction method has relatively uniform microstructures with little or no precipitates of ion rich micro crystals. After helium ion irradiations, almost all of B_4C crystals changed into amorphous struuture. Further more, it was observed a number of iron rich micro-crystals and network structures of He bubbles dispersed in the B_4C matrix. The defect structure and helium precipitates behavior in the ion irradiated B_4C differed from those of neutron irradiated materials since there were no black spots nor lenticular bubbles as usually observed in the neutron irradiated boron carbide. This is caused by the difference in the displacement damage rates between ion irradiation and the neutron irradiation.

When TEM observation was carried out for SiC specimens irradiated with carbon ions, little or no change in microstructure occurred. There was no amorphous phase in the SiC crystals. When the ion irradiated SiC was annealed at $600^\circ C$, little or no microstructural change was observed. It was found that SiC had a stable structure against ion irradiations.

This work was performed under the contract with Japan Nuclear cycle Development Institute.

Contract Number:12C1791

JNC Liaison: Akihiro Kitano (International Cooperation and Technology Development Center, Tsuruga Head Quarter Office)

*The Wakasa Wan Energy Research Center

目 次

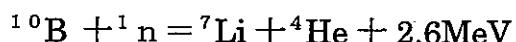
第1章 緒言	1
1.1 炭化ホウ素の中性子照射特性	1
1.2 炭化ケイ素の中性子照射特性	3
1.3 研究目的	3
第2章 実験方法	7
2.1 試料	7
2.2 イオン照射	10
2.3 透過電子顕微鏡試料の作成	19
2.4 電子顕微鏡観察	24
第3章 実験結果	25
3.1 製法による B ₄ C の微細構造の相違	25
3.2 炭素還元 B ₄ C の照射組織	41
3.3 EDS による元素分析結果	42
3.4 未照射 SiC の微細構造	66
3.5 照射による SiC の構造変化	75
3.6 アニール実験	75
第4章 考察	92
4.1 B ₄ C の微細結晶化と母相の照射効果	92
4.2 ヘリウムの挙動	92
4.3 SiC の照射効果	93
第5章 まとめ	94
参考文献	95

第1章 緒言

1.1 炭化ホウ素の中性子照射特性

炭化ホウ素 (B_4C) は高速炉制御棒材料として使用されており、中性子照射による物性変化は、制御棒の長寿命化を達成するうえでも重要な情報である。従来、 B_4C のスエリング、熱・機械的性質などは比較的多く研究されている。しかしながら、たとえば「常陽」で使用されている B_4C とフランスで使用されている B_4C の照射挙動のデータを見ると、スエリング、ヘリウム放出、照射による割れ特性などに差があることが言わされている。とくに照射による B_4C ペレットのスエリングならびに粉体化挙動は、長寿命制御棒設計の上で重要な情報となるが、文献調査によても、スエリングならびに粉体化と材料の製法、微細組織との関係を定量的に明らかにした報告はない。そのため、 B_4C のスエリングおよび粉体化と材料の組織の関係を明らかにすることが重要となる。

炭化ホウ素 (B_4C) は高融点 (2350°C)、軽量、大きい中性子吸収断面、高温での化学的安定性などの優れた性質を持ち、原子炉の中性子吸収体として多用されている。しかし、以下に示す ^{10}B (n, α) 7Li 反応が生じる。



この反応は多量のヘリウムを生成し、中性子照射の進行とともに吸収体中にヘリウムガスの蓄積が増加することになる。その結果、高密度焼結体のペレットの形で用いられている炭化ホウ素はスエリングを生じ、さらにヘリウムガスの一部はペレットから外部に放出される。すなわち、スエリングやヘリウムの放出は中性子吸収体の寿命を決定する大きな要素になっている。また、ヘリウムの生成は炭化ホウ素結晶の微細化や熱伝導率の低下などに大きくかかわると言われているが、照射による組織微細構造化の観点からは不明な点がまだ多く残されている。

① He 生成とスエリング

Stoto の研究[3]によると、He 気泡の進展メカニズムは照射初期に He 原子が

粒界に選択的に補足され、低燃焼度における初期マイクロクラック発生の原因となる (Intra-granular micro-cracking)。1500°C以下では、スエリングは $150 \times 10^{26} \text{cap/m}^3$ までは燃焼度に比例して増加し、 B_4C の理論密度比が 96%で照射量が $100 \times 10^{26} \text{cap/m}^3$ のとき、スエリング率は 10~20%であり、スエリング率は温度に依存しないと報告されている (図 1-1 参照)。また、照射温度が 1500°C 以上の場合は、空孔の拡散が容易になり、結晶粒に横断的なマイクロクラックが生じ、ペレットに可塑性が生じて応力が解放されると報告されている。

一方、Maruyama らの研究[2]では、1140°C で燃焼度約 $130 \times 10^{26} \text{cap/m}^3$ の条件で B_4C ペレットには顕著な微細化が見られ、 $80 \times 10^{26} \text{cap/m}^3$ で He 放出量の急激な増大とクラックの発生が促進されると報告されている。照射温度 1000°C以下で燃焼度 $80 \times 10^{26} \text{cap/m}^3$ 以下の場合は、スエリング率は 3.5%/ $100 \times 10^{26} \text{cap/m}^3$ であり (図 1-2)、スエリング率は照射温度の上昇により下がる傾向が認められる。また、He 保持量の多いペレットの場合はスエリングが大きいことが確認され、照射が継続されてマイクロクラックが進展し He 放出が促進されるとスエリング率が下がる。

②熱伝導度

照射前の B_4C ペレットの熱伝導は、室温で約 $30 \text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ で、温度の上昇に伴い減少する。これは B_4C の熱伝導が典型的なフォノンによる伝導であることを示している。照射を行うと、熱伝導度は低下し、燃焼度が約 $30 \times 10^{26} \text{cap/m}^3$ で $2 \sim 3 \text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ となる (図 1-3)。また熱伝導度の結果は Maruyama [2] と Froment[4]の両者でほぼ一致している。この熱伝導度の低下は、中性子照射により結晶粒界にマイクロクラックなどの開口部が生じることと、材料自体の原子配列の乱れにより、強いフォノン散乱が生じるものと推定されている。

③Li の生成

Stoto の報告[3]では、核変換により生じる Li は B_4C 結晶格子を大きく変化させないことから、スエリングやマイクロクラックの原因にならないとされる。Li の照射中の移動度は高く、 B_4C ペレットから拡散するので、照射を継続すると Li は減少する場合があるが、高速炉条件の高密度ペレットではその減少量は

小さく、PWR条件で運転している低密度ペレットではより重要な特性となることが指摘されている。

1.2 炭化ケイ素の中性子照射特性

炭化珪素（SiC）は従来より原子炉照射温度をオフラインで計測するときの温度モニターとして使用されている。しかしながら中性子照射した SiC の実際の照射温度と欠陥回復開始温度については、研究者によっては一致するという報告と一致しないという報告もあり、照射温度モニターとしての有用性の評価が定まっていないのが現状である。高速炉開発における炉心材料の照射データを正確に評価するためにも信頼性の高い温度モニターが必要とされているが、現在 SiC に代わる簡便で信頼性の高い照射温度モニターが得られていない。そのため、本研究では加速器を用いたイオン照射により SiC 中に格子欠陥を導入し、生成する欠陥の状態と回復メカニズムを明らかにすることにより、SiC の照射温度モニターとしての有用性の基礎的検討を行うことを目的とする。特に非晶質化のプロセスや回復についての情報を明らかにすることが重要である。

1.3 研究目的

本研究では、照射条件の制御の容易なイオン照射を用いて、照射環境下の炭化ホウ素（B₄C）と炭化ケイ素（SiC）の微細構造変化を明らかにする。特に、製法による B₄C 微細構造の相違と高エネルギー照射による構造変化を明らかにすることにより、微細化と熱伝導度に及ぼす影響を考察するための基礎資料を得る。

また、SiC は原子炉照射条件の温度モニターとして使用されてるが、SiC の欠陥と回復挙動については十分な研究がなされていない。そのため、本研究ではイオン照射により SiC 中に格子欠陥を導入し、生成する欠陥の状態と回復メカニズムを検討し、SiC の照射温度モニターとしての有用性の基礎的知見を得る。

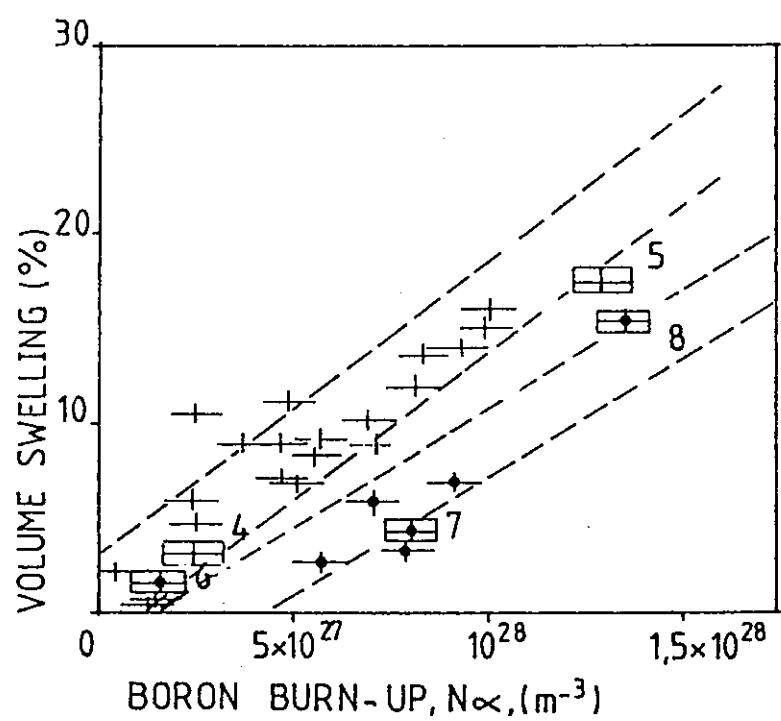


図1-1 B_4C のスエリングに関するフランスのデータ

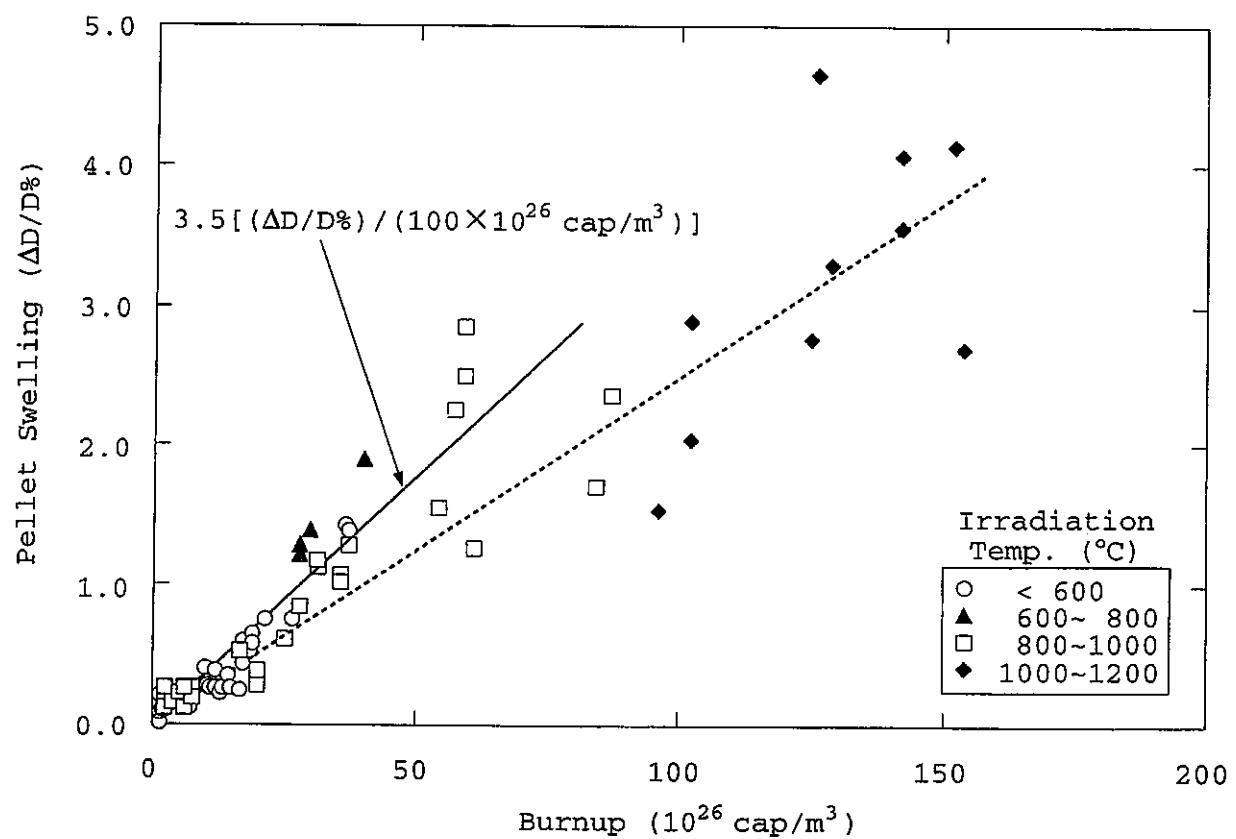


図1-2 B_4C のスエリングに関する日本のデータ

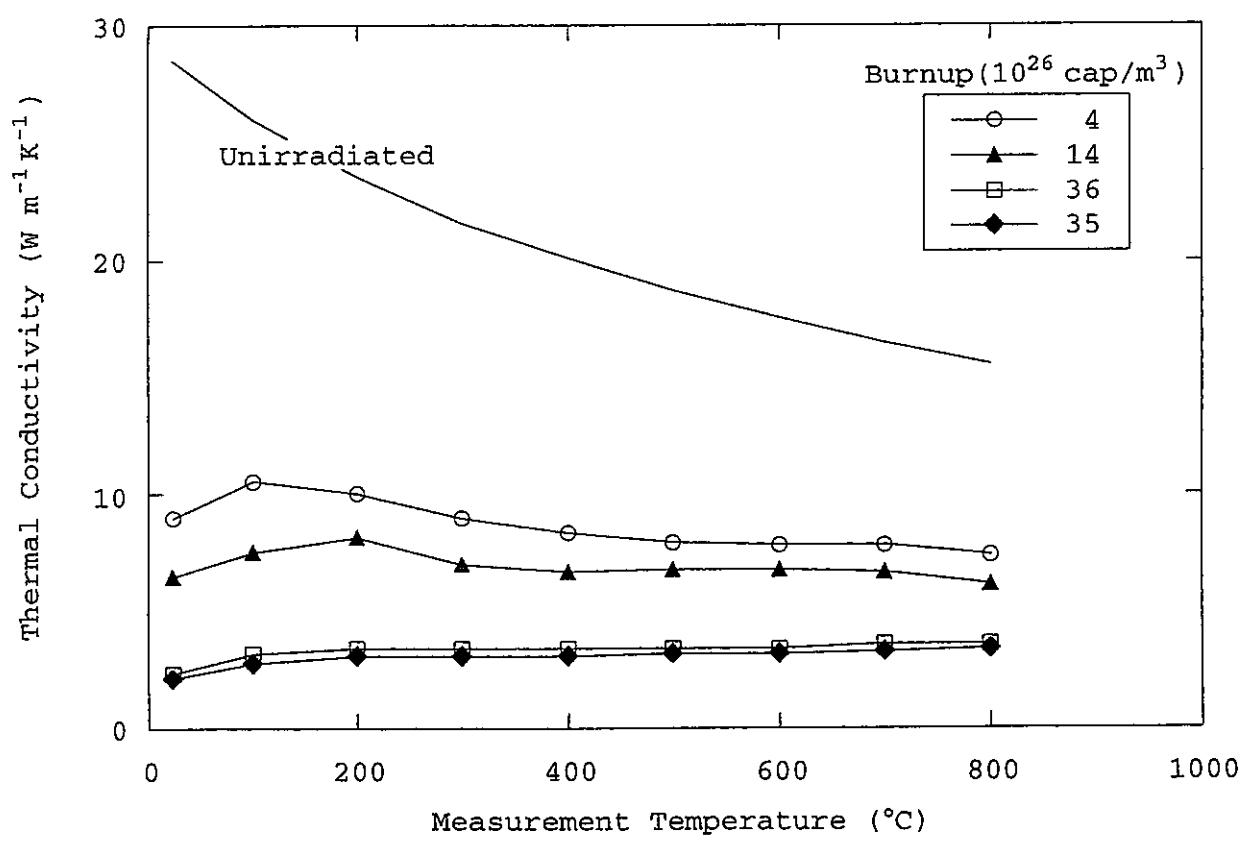


図1-3 中性子照射した B_4C の熱伝導度

第2章 実験方法

2.1 試料

(1) B_4C および SiC 試料

B_4C 試料は、電気化学工業株式会社により炭素還元法で作られた B_4C 粉末を原料として製造された焼結体と、フランス COGEMA 社によりマグネシウム還元法で製造された B_4C 粉末によるペレットから採取したものの 2 種類を用いて行った。前者は「もんじゅ」あるいは「常陽」実機で使用されている制御棒用中性子吸収材と同等品である。

SiC は CVD 法で作成された β -SiC で、東洋炭素（株）で製造されたものである。常陽で温度モニターとして使用されている SiC は CVD 法で作成された β -SiC であるため、本実験でも同様の CVD 法で作成された β -SiC を使用した。これら B_4C および SiC 試料の寸法、 ^{10}B 濃縮度、密度などの明細を表 2.1 に示す。また、Mg 還元と炭素還元 B_4C 粉末の元素分析結果を表 2.2 と 2.3 に示す。

表 2.1 B_4C および SiC 試料の明細

試料明細		寸法(mm)	^{10}B 濃縮度 (wt%)	密度 (g/cm ³)	焼結密度 (%)
B_4C	電気化学 Mg 還元品	12.2φx1	90	2.39	96.9
B_4C	「もんじゅ」仕様標準品	12.65φx1	40	2.35	95.0
B_4C	COGEMA Mg 還元品	12.2φx1	47.8	2.40	97.3
B_4C	「もんじゅ」仕様標準品	15 x 15 x 1	40	2.34	94.7
B_4C	「もんじゅ」仕様標準品	15 x 15 x 1	40	2.36	95.5
SiC	SVD-SiC 東洋炭素	15 x 15 x 1	---	3.12*	

*文献値

表2.2 マグネシウム還元法B₄Cの元素分析

項目	COGEMA社		DKK		
	粉末	¹⁰ B ₄ C焼結体	¹⁰ B ₄ C粉末	¹⁰ B ₄ C粉末	¹⁰ B ₄ C焼結体
¹⁰ B濃縮度 (atomic.%)	47.8	47.8	18.4	90.2	90.2
全B (WT. %)	70.8	77.0	77.9	76.7	76.9
全C (WT. %)	22.4	21.1	21.6	22.4	22.2
B/C比	3.60	4.16	4.01	4.07	4.12
全O (WT. %)	6.20*	—	0.28	0.31	—
全N (WT. %)	1.07	—	0.13	0.23	—
不純物					
B ₂ O ₃ (WT. %)	2.57	0.01	—	—	0.01
Mg (WT. %)	0.67	0.01	—	< 0.01	< 0.01
Fe (WT. %)	0.07	0.02	0.02	0.03	< 0.01
Ti (WT. %)	< 0.01	< 0.01	< 0.01	< 0.01	< 0.01
Cl (ppm)	< 25	< 25	< 25	< 25	< 25
F (ppm)	< 5	< 5	< 5	< 5	< 5
Co (ppm)	7	2	4	< 2	< 2
Cu (ppm)	36	< 4	< 4	< 4	< 4
Mn (ppm)	180	83	2	4	2
Na (ppm)	8	< 2	< 2	< 2	< 2
平均粒径 (μm)	0.99	—	—	4.42	—
比表面積 (m^2/g)	14.71	—	2.65	2.95	—

- COGEMA社粉は、DKK粉よりもMg、Mn酸素量が多い。また焼結体中のMn量が多い。
- COGEMA社粉の分析値：全B+全C+全O+全N ≥ 100 となるのは、酸素の分析精度が関係しているものと思われる。

表2.3 炭素還元法B₄Cの元素分析

項 目	ロットNo.	C 2
	*規 格 値	検 査 値
¹⁰ B濃縮度 (WT%)	39.0 ^{+2.0} ₀	40.2
全B (WT%)	77.9±1.0	77.4
全B+全C (WT%)	≥99.0	99.2
B/C比	4.0±0.2	4.03
B ₂ O ₃ (WT%)	≤0.10	0.01
F e (WT%)	≤0.80	0.06
T i (WT%)	≤0.10	<0.01
C 1 (ppm)	C 1+F	<25
F (ppm)	≤100	<5
C o (ppm)	≤50	6
C u (ppm)	≤1000	4
M n (ppm)	≤100	2
N a (ppm)	≤100	2

* 「もんじゅ」調整棒用B₄Cペレット規格値

2.2 イオン照射

イオン照射は若狭湾エネルギー研究センターのタンデム加速器ならびにイオン注入コースシステム装置を用いて行った。以下に本実験で用いたタンデム加速器ならびにイオン注入装置システムの主な仕様について説明する。

タンデム加速器：

若狭湾エネルギー研究センターのタンデム加速器は、シェンケル型で

- ①多目的加速器システムの本体加速器であるシンクロトロンへの入射器
 - ②低、中エネルギー加速器として単独で研究に使用するための装置
- という二つの目的を持っている。

ターミナル電圧は 5MV であり、最高エネルギーは H^+ で 10MeV、 He^{2+} で 15MeV のほか C^{n+} 、 N^+ などの各種重イオンの加速が可能である。パルスと連続の両方のイオンビームを得ることができる。

加速粒子のエネルギーは表 2-4 に示す範囲で任意に選択することができる。ここで、炭素はターミナル電圧 5MV 時、荷電変換確立がもっとも大きな C^{4+} の値を示している。従って、シンクロトロン入射に際しては、タンデム加速器出口で再度荷電変換を行い、 C^{6+} に変換することになる。荷電変換はアルゴンガスを用いるガストリップ方式で行っているが、炭素ビームを加速する場合、タンデム加速器出口に設置する荷電変換器には、カーボンフォイルを用いるフオイルストリッパー方式による荷電変換器を設置している。

(3) ビーム輸送

① 照射室 1、2 への輸送

タンデムから照射室 1 と 2 へ輸送するビーム仕様は表 2-5 に示す。多目的加速器システムの照射室 2 では H^+ 、 He^{2+} 、 C^{3-6+} の約 3 から 25 MeV 程度のエネルギーのイオンビーム照射が可能である。

表 2-4 タンデム加速器の加速粒子とエネルギーおよびビーム電流

イオン	エネルギー	ビーム電流
水素	1~10 MeV	DC : 100 μ A (最大) パルス : 1~15 mA
ヘリウム	1.5~15 MeV	DC : 50 μ A (最大)
炭素	2.5~25 MeV	DC : 50 μ A (最大) パルス : 0.1~0.3 mA

表 2-5 照射室 1 と 2 へ輸送されるビームエネルギーと電流値

イオン種	ビームエネルギー(MeV)		最大ビーム電流(DC : μ A)	
	照射室 1	照射室 2	照射室 1	照射室 2
H ⁺	約 3 ~ 3.4	約 3 ~ 10	5	100
He ²⁺	約 3 ~ 5	約 3 ~ 15	1	50
C ^{3~6+}	約 3 ~ ~6.8	約 3 ~ 25	2.5	50

以上、タンデム加速器を用いて行った照射試験の主要な条件は以下のとおりで、イオン照射試料一覧を表 2-6 に示す。また、TRIM によるイオン照射の計算結果を図 2.3~2.8 まで示す。

- ・イオン種 : He²⁺または C⁴⁺
- ・エネルギー : 15MeV He⁺、25MeV C⁴⁺
- ・照射温度 : 413°C~760°C
- ・目標照射量 : 4.3×10^{14} ~ 1.13×10^{15} ion/cm²

表 2-6 イオン照射試料一覧

照射試料		イオン	エネルギー E(MeV)	電流値 (μA)	時間 (s)	照射量 $10^{15}(\text{ion}/\text{cm}^2)$	照射温度 (°C)
番号	試料明細						
#3-1	B4C 「もんじゅ」標準品	He ²⁺	15	2.2	1000	3.54	472
#3-2	B4C COGEMA Mg 還元品	He ²⁺	15	2.2	1000	3.54	479
#3-3	B4C 電気化学 Mg 還元品	He ²⁺	15	0.27	1000	0.43	442
#3-4	B4C 「もんじゅ」標準品	He ²⁺	15	0.27	1000	0.43	444
#3-5	B4C COGEMA Mg 還元品	He ²⁺	15	0.27	1000	0.43	413
#5-1	B4C 「もんじゅ」標準品	He ²⁺	15	0.27	1000	0.43	453
#5-2	B4C 「もんじゅ」標準品	He ²⁺	15	3.5	2000	11.3	760
#1-4	SiC 単結晶	He ²⁺	15	0.27	1000	0.43	471
#7-1	B4C 「もんじゅ」標準品	He ²⁺	5.2	中止	---	---	---
#7-2	B4C 「もんじゅ」標準品	He ²⁺	5.2	2.8	500	2.25	553
#7-3	B4C 「もんじゅ」標準品	He ²⁺	5.2	2.8	500	2.25	548
#7-4	SiC CVD-SiC 東洋炭素	He ²⁺	5.2	2.8	500	2.25	570
#7-5	SiC CVD-SiC 東洋炭素	He ²⁺	5.2	2.9	500	2.25	558
#7-2	B4C 「もんじゅ」標準品	C ⁴⁺	25	1.2	500	0.48	556
#7-4	SiC CVD-SiC 東洋炭素	C ⁴⁺	25	1.2	500	0.48	561
#9-1	SiC CVD-SiC 東洋炭素	C ⁴⁺	25	0.5	2000	0.8	525
#9-2	SiC CVD-SiC 東洋炭素	C ⁴⁺	25	1.5	600	0.72	536
#9-3	SiC CVD-SiC 東洋炭素	C ⁴⁺	25	0.4	250	0.08	480
#9-4	SiC CVD-SiC 東洋炭素	C ⁴⁺	25	中止	---	---	---

p conc. (p, 10 MeV → B₄C)

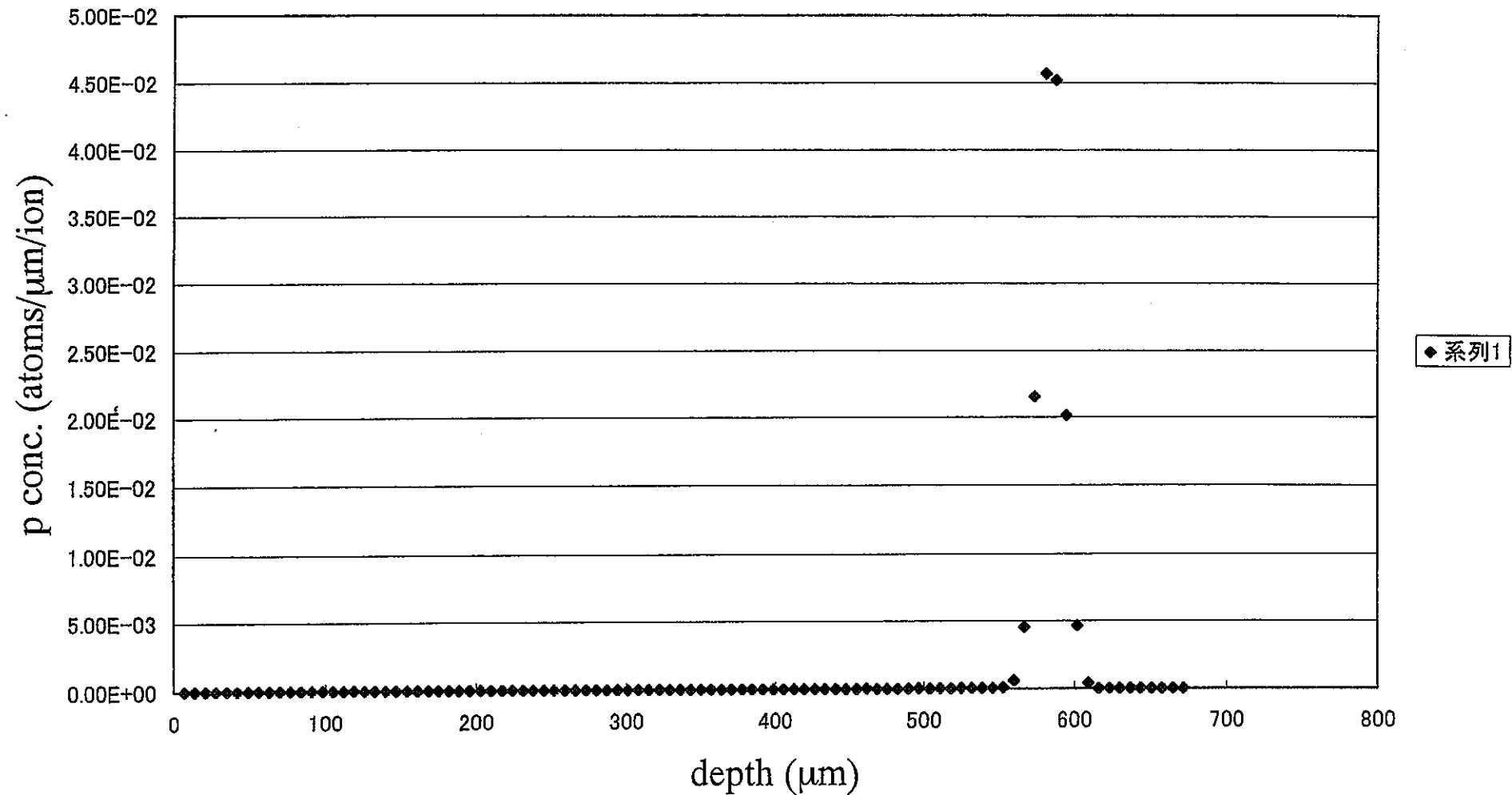


図 2-1 TRIM コード計算による照射イオンの進入深さ : 10MeV、p → B₄C

He conc. (He, 5.2 MeV, #5000 → B₄C)

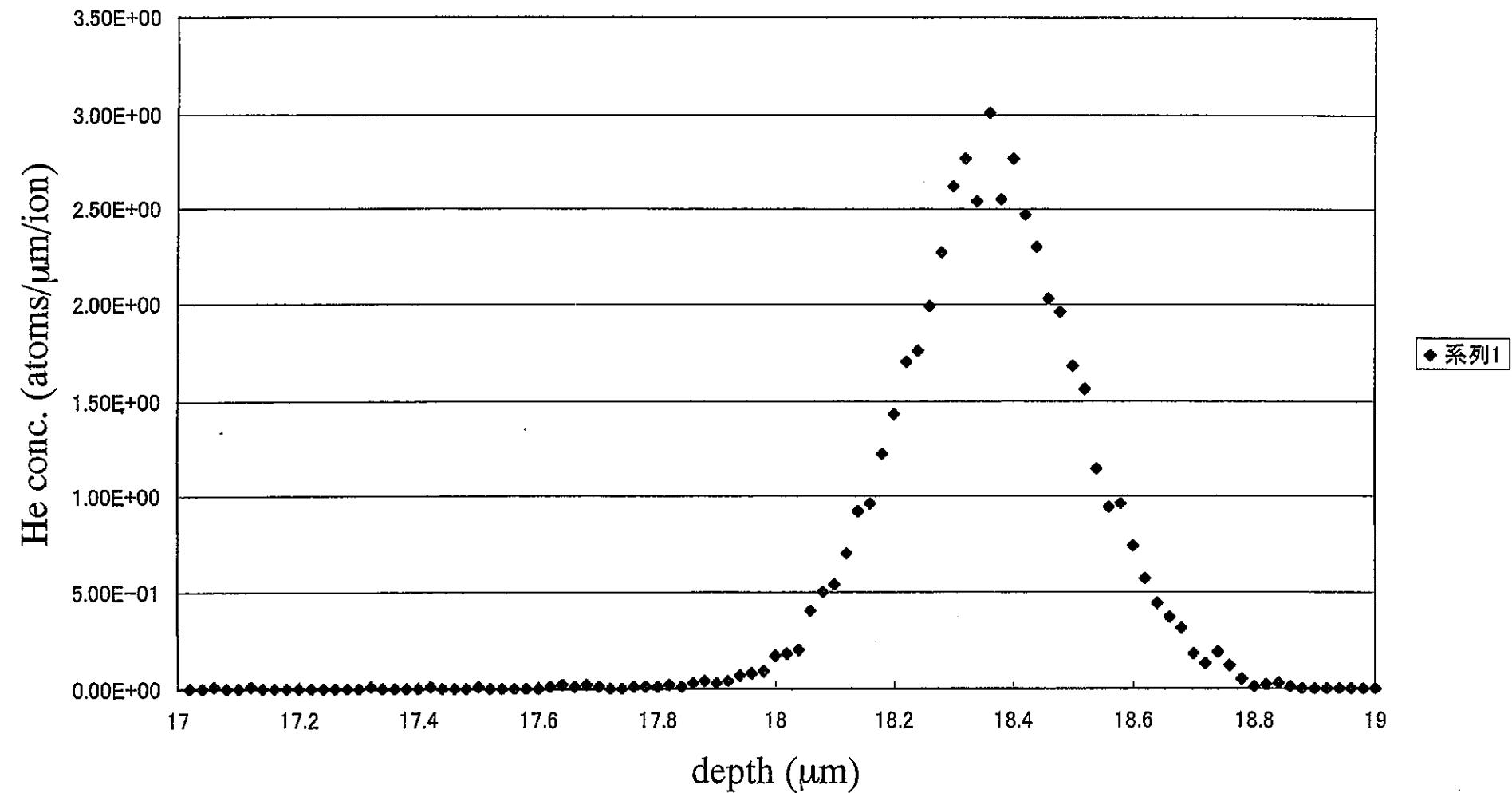


図 2-2 TRIM コード計算による照射イオンの進入深さ : 5.2MeV、He → B₄C

He conc. (He, 15 MeV → B₄C)

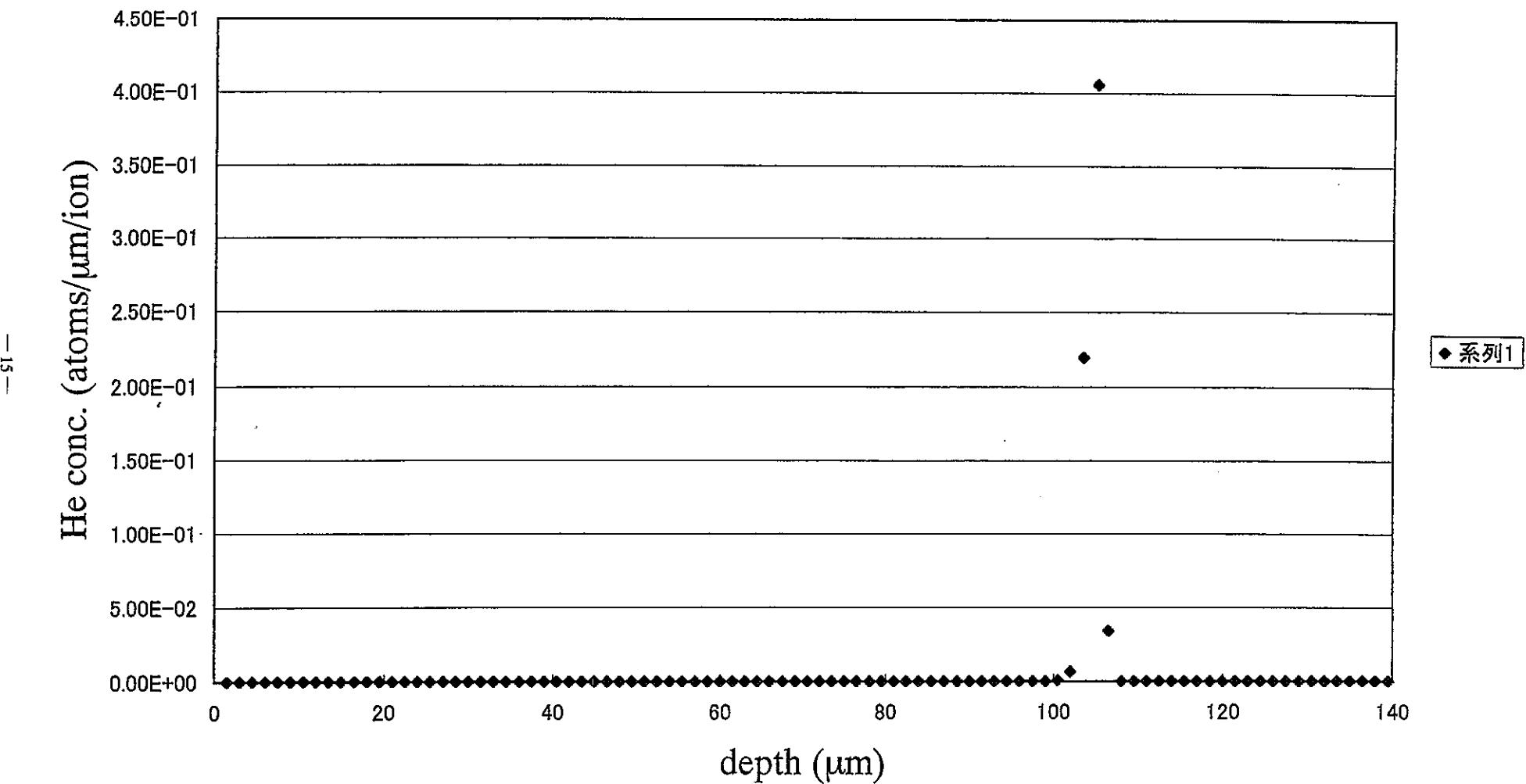


図 2-3 TRIM コード計算による照射イオンの進入深さ : 15MeV、He → B₄C

C conc. (C, 25 MeV → SiC)

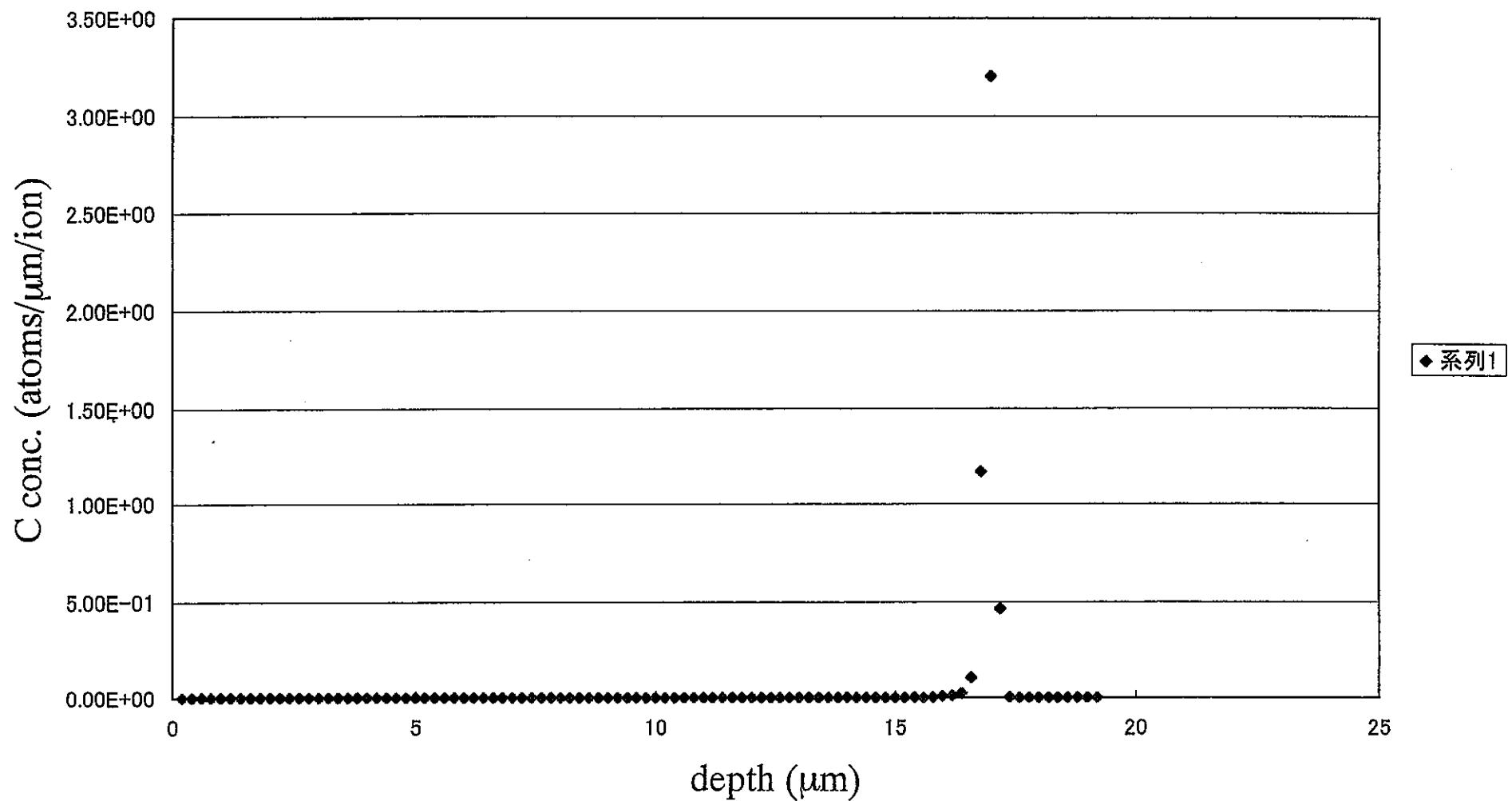


図 2-4 TRIM コード計算による照射イオンの進入深さ : 25MeV、C → SiC

C conc. (C, 25 MeV, #5000 → B₄C)

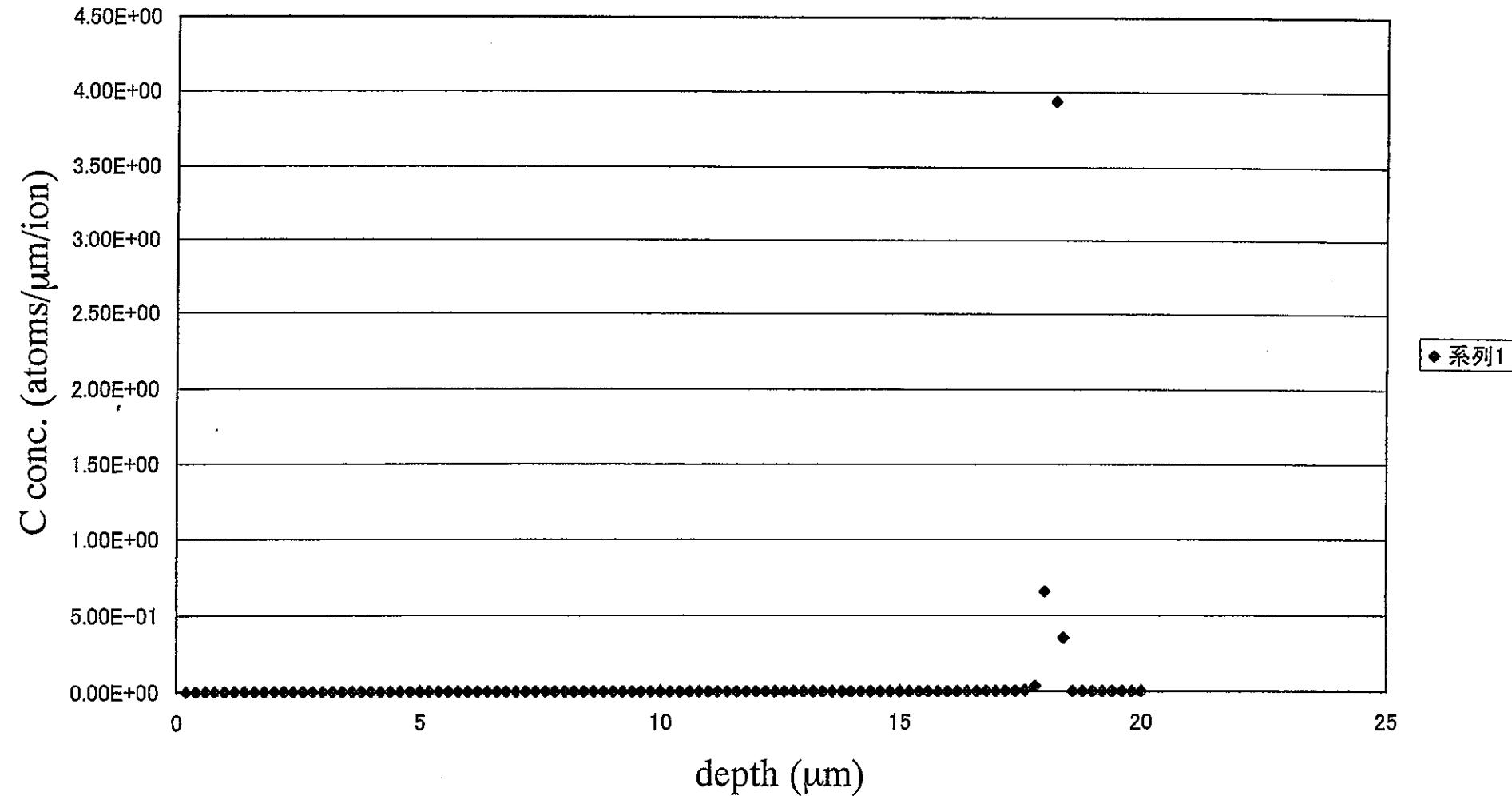


図 2-5 TRIM コード計算による照射イオンの進入深さ : 25MeV、C → B₄C

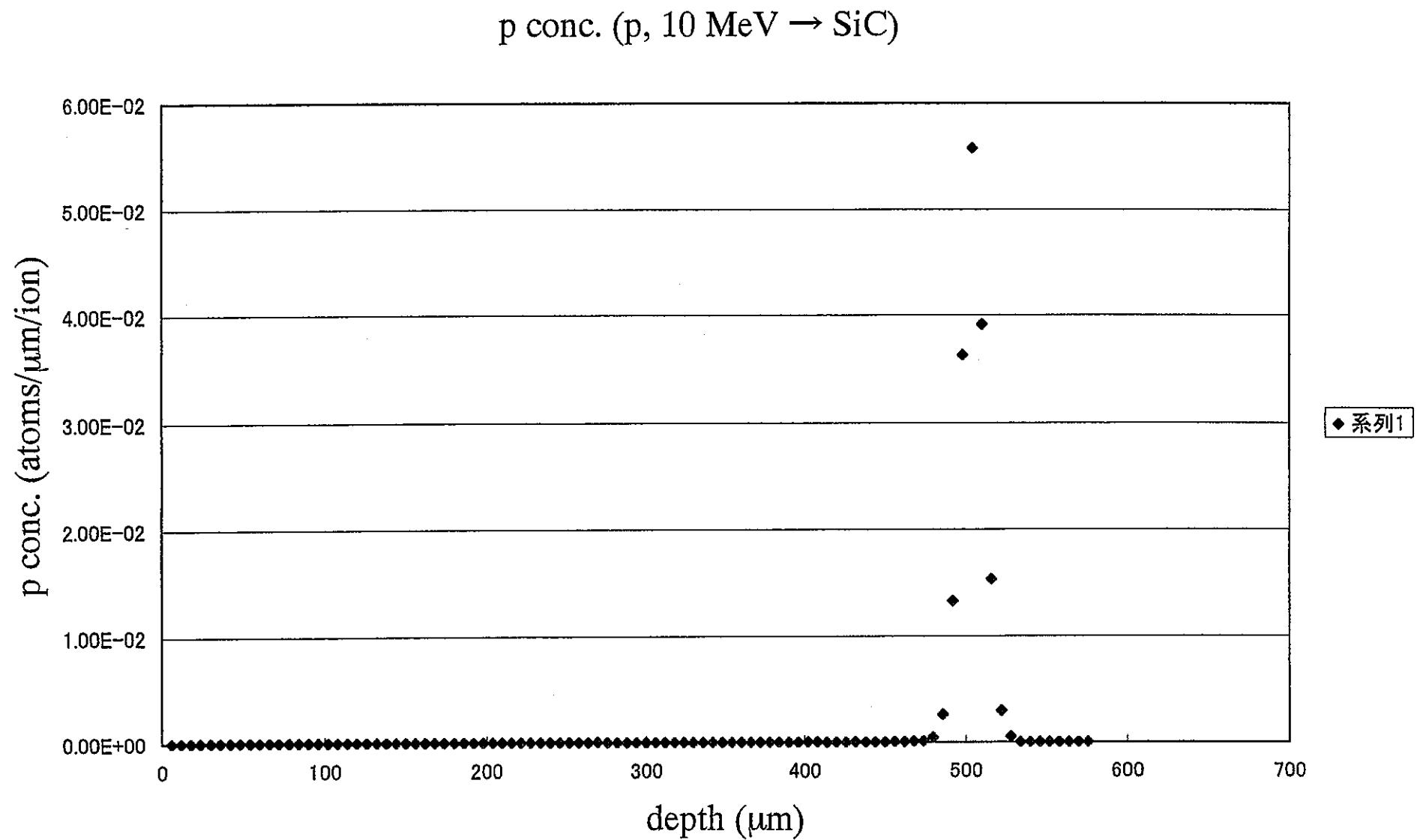


図 2-6 TRIM コード計算による照射イオンの進入深さ : 10MeV、p → SiC

2.3 透過型電子顕微鏡試料の作成

(1) クロスカット法

電子顕微鏡による断面観察を行うため、クロスカット法により試料を薄膜化した。クロスカット法の概要を図 2-7 に示す。

a) 試料の洗浄

照射済みの試料と接着用炭化ホウ素 2枚をそれぞれ 2x7 mm 角に切り出す。その後、エタノール、アセトンで超音波洗浄を行い、続いて真空乾燥を行い、試料に付着している溶剤を完全に取り除く。

b) 試料の接着

2枚の試料に Petro-Epoxy-154 (熱硬化性樹脂) を薄く塗り、接着面が照射した面となるように張り合わせる。ミニ万力でわずかに加圧し、100°Cのホットプレートで、約 2 時間加圧および加熱し接着する。

c) 切断

接着した試料をアルコール溶解性ワックスで木片に固定し、接着面に対して垂直に約 0.5mm の厚さで切り出す。

d) 機械研磨

切断した試料を研磨用ガラス片にアルコール溶解性ワックスで固定し、荒削りを行う。最終的な試料の厚さは約 100 μm とする。

e) ディンプル加工

GATAN 社製精密ディンブルライナーを用い、試料中心をさらに研削する最終的な厚さは約 40 ~ 50 μm とする。

f) 補強リングの接着

試料厚さが非常に薄く、壊れやすいため、外径 3mm、内径 1.5mm のステンレス製補強リングを観察面が中央にくるようにして接着する。接着完了後、リングの周りのバリを取り除く。

g) イオンシニング

GATAN 社製のイオンシニング装置により、試料表面を Ar イオンでスパッタリングする。アノード電圧は 4kV、Ar イオン放電電 0.5 mA とし（両面で計

1.0 mA)、Ar イオンビーム入射角度は $14^\circ \sim 11^\circ$ で、界面に穴があくまでスパッタリングを行う。

(2) 集束イオンビーム (FIB) 法

集束イオンビーム (Focused Ion Beam) 装置は、電界放出型の液体金属 Ga を用い、静電レンズで微小イオンビームプローブを形成し、スパッタリング現象を利用した微細加工装置である。FIB 法による TEM 試料作製は、試料の任意の部分を SEM あるいは SIM で観察しながら加工するので、高精度かつ短時間で薄膜化できる。図 2-8 はその概略である。具体的な内容を以下に示す。

試料を装置にセットし、エッジを SEM 観察したのちに、加工領域を選定する。粗加工として、薄膜化する部分が、約 $3\sim 4 \mu\text{m}$ の厚さになるよう、保護膜を中心にその両サイドをイオンビームで削り取る。なるべく深く削り取っておくと、後々の加工がしやすくなる。

中加工として、薄膜化する部分を $1\sim 1.5 \mu\text{m}$ の厚さになるまで両サイドをイオンビームで削り取る。選定の間もイオンビームにより観察部分がスパッタされるので、選定はなるべく低倍率の弱いビームでかつ速やかに行う。

試料の上部に直接ビームがあたることによる損傷を防ぐため、選定した加工領域に保護膜を付与する。タンクステンのガスを装置のチャンバー内に導入し、選定した領域にイオンビームを照射してタンクステンを堆積させる

傾斜加工として、強度が強いビームは平行性が悪く先細りであるため加工断面は深さ方向に徐々に厚くなっている。そこで試料を $3\sim 5$ 度傾けて加工断面両側のスソを削る。

仕上げ加工として、薄膜化する部分が $0.1 \mu\text{m}$ 程度の厚さになるまで両サイドをイオンビームで削り取る。

その後、観察領域の洗浄を行った。Ga イオンによってスパッタリングされた物質は観察領域に再付着する。それを取り除くため低いアーチャーで両サイドにイオンビームをあて洗浄する。

FIB 加工法による試料の概観の時間的変化を図 2-9 に示す。

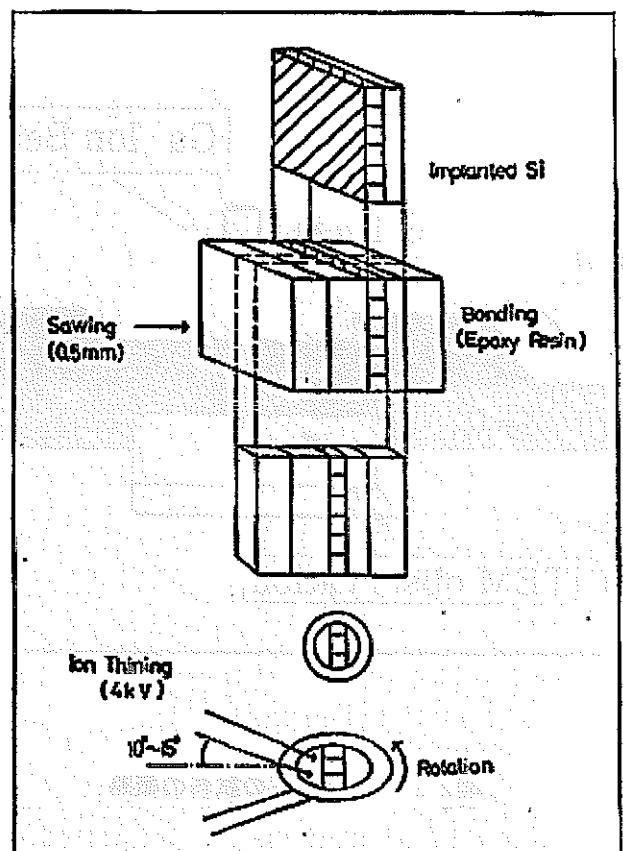


図2-7 クロスカット法の概略

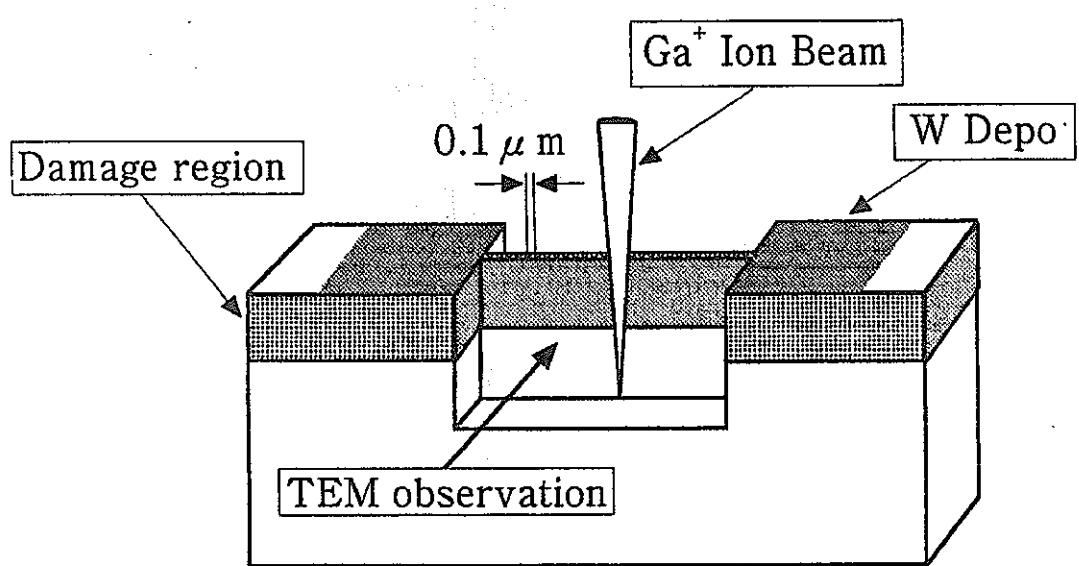
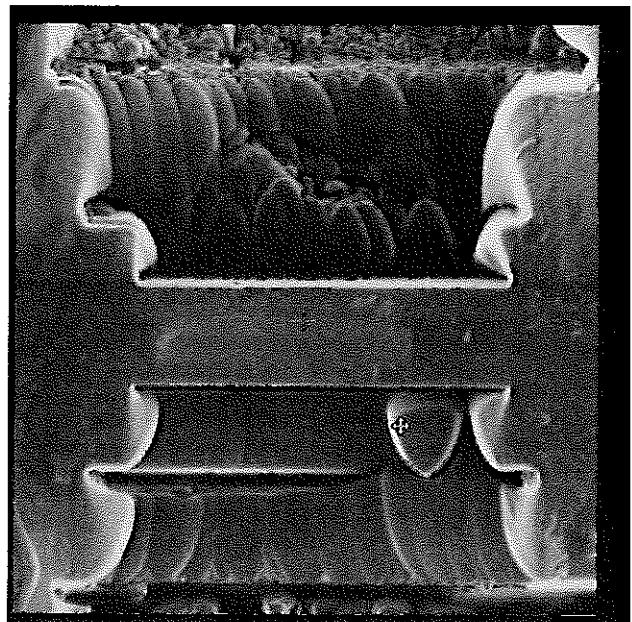


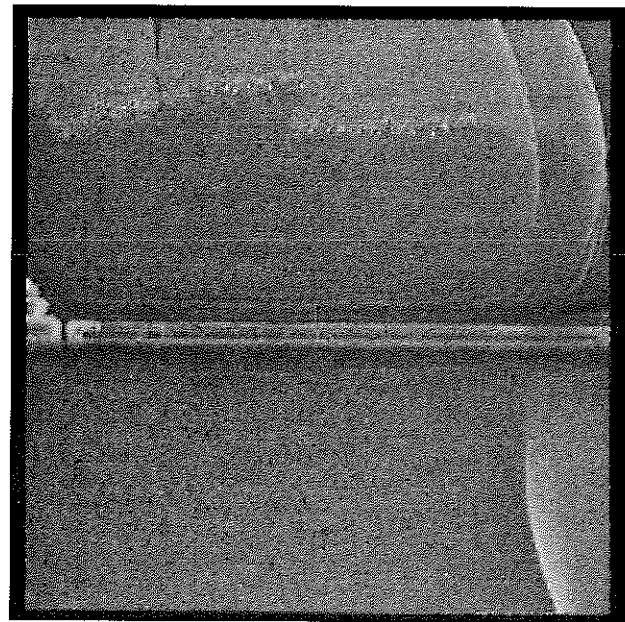
図2-8 FIB化交互の試料の概略



a)



b)



c)

図2-9 FIB試料の作成経過

a) 開始前

b) 中間加工後

c) 最終試料

2.4 電子顕微鏡観察

観察は JEOL 製 JEM-2000FX、JEM3000F 電子顕微鏡を用いて行った。加速電圧はそれぞれ 200 kV と 300 kV であり、通常観察のほかに特徴のある組織については 10nm 程度と推定されるビーム径でエネルギー分散分光法（EDS）による元素分析をおこない、不純物の分布状態を調べた。

SiC 試料の観察は JEM-13000 (1.3MV) で行い、室温における格子像観察に基づいたフーリエ変換による画像解析を行った。これによって実質的には数十 nm 直径の領域からの局所的電子回折が得られることとなる。一部の試料については、電子線照射ならびに照射部分の追加アニールを 600°Cまで行った。

第3章 実験結果

3-1 製法による B_4C の微細構造の相違

3-1-1 マグネシウム還元 B_4C の内部組織

図3-1から図3-4にマグネシウム還元法で作製した炭化ホウ素の組織の代表例を示す。この試料の場合、結晶粒は粗粒と微粒から成っていた（図3-2）。また、同図にも見られるように、粒内には直線状の組織が観察され、高倍率観察では転位あるいは積層欠陥であることが確認された。これは焼結時の加圧変形と高温での回復の結果と判断される。図3-3は三重点にしばしば観察される約100nmの粒を示す。この粒にEDS分析を行うとFeが高濃度で検出された。Feは不純物として B_4C に含まれるが、その固溶量は小さいため、焼結中に粒界三重点に偏在すると推定される。

3-1-2 炭素還元 B_4C の内部組織

図3-5から図3-8に炭素還元法で作製した炭化ホウ素の組織の代表例を示す。炭素還元 B_4C では、図3-7に示すごとく、比較的大きい結晶粒と小さい結晶粒の混粒からなった。しかし、マグネシウム還元材で見られた転位等の結晶欠陥は比較的少なく、より均一な結晶組織であった。比較的小さな粒のみに欠陥が存在することから、焼結作成時に小さな粒が粗大化する際に、欠陥が消失するものと判断された。したがって、炭素還元 B_4C はマグネシウム還元に比べ、より再結晶化が進行しているものと判断された。また、粒界三重点への微結晶の明確な偏在は認められない。EDS分析によっても不純物を多く含む粒は検出できず、全体のFe濃度の不均一性も認められなかった。

3-1-3 照射によるマグネシウム還元法 B_4C の構造変化

図3-9から図3-14に、413°Cで15MeVのHeイオンを $0.43 \times 10^{15}/cm^2$ 照射したMg還元 B_4C の低倍率と高倍率の明視野像を示す。Heイオンの飛程は表面から約 $100\mu m$ である。代表的領域である、図3-10の電子線回折パターンは強

いハローリングと微細多結晶のリングパターンを示していた。明視野像からも非晶質領域と微結晶の存在が明らかである。図 3-11 に示すごとく、多結晶のリングパターンからの暗視野像からは、20-50nm 程度の微細結晶が母相の非晶質中にほぼ均一に形成していることが示された。これらはこの照射条件での典型的な組織変化であり、別の領域でも観察された（図 3-13）。また、場所によっては微結晶のサイズは 100nm に達する場合があった（図 3-14）。

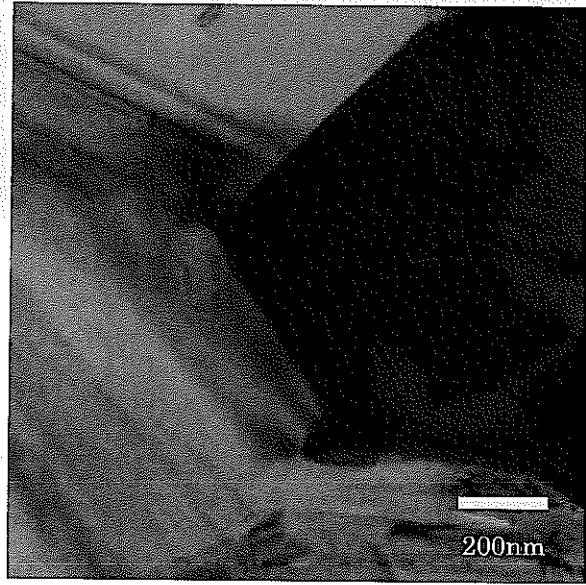


図3-1 マグネシウム還元B₄Cの微細組織

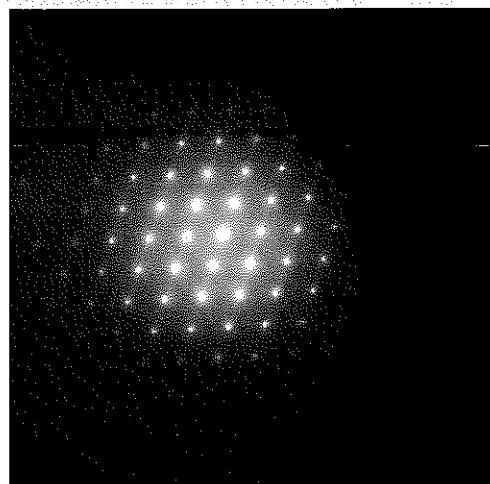
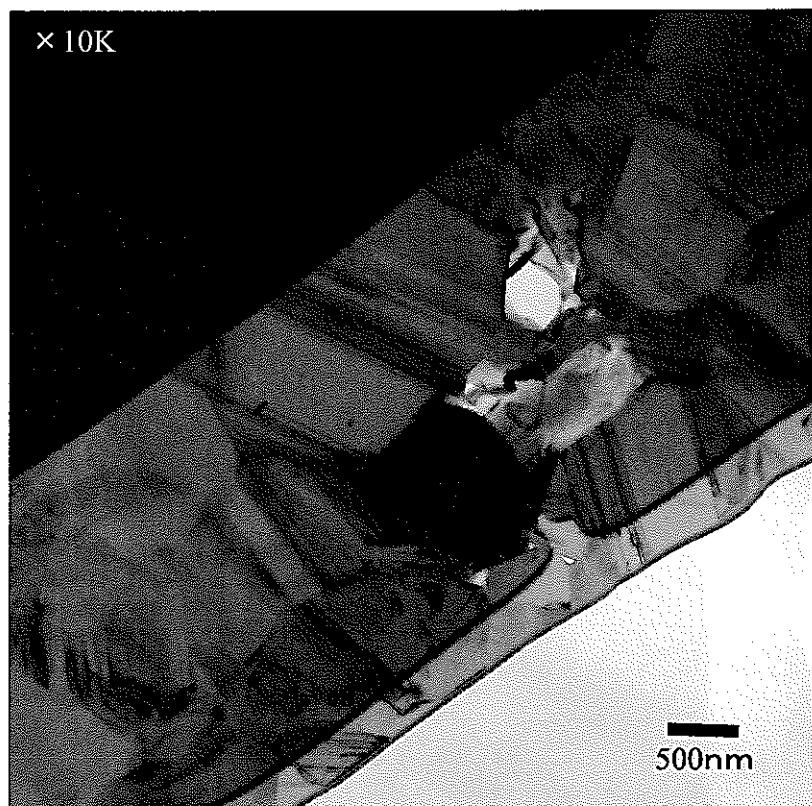
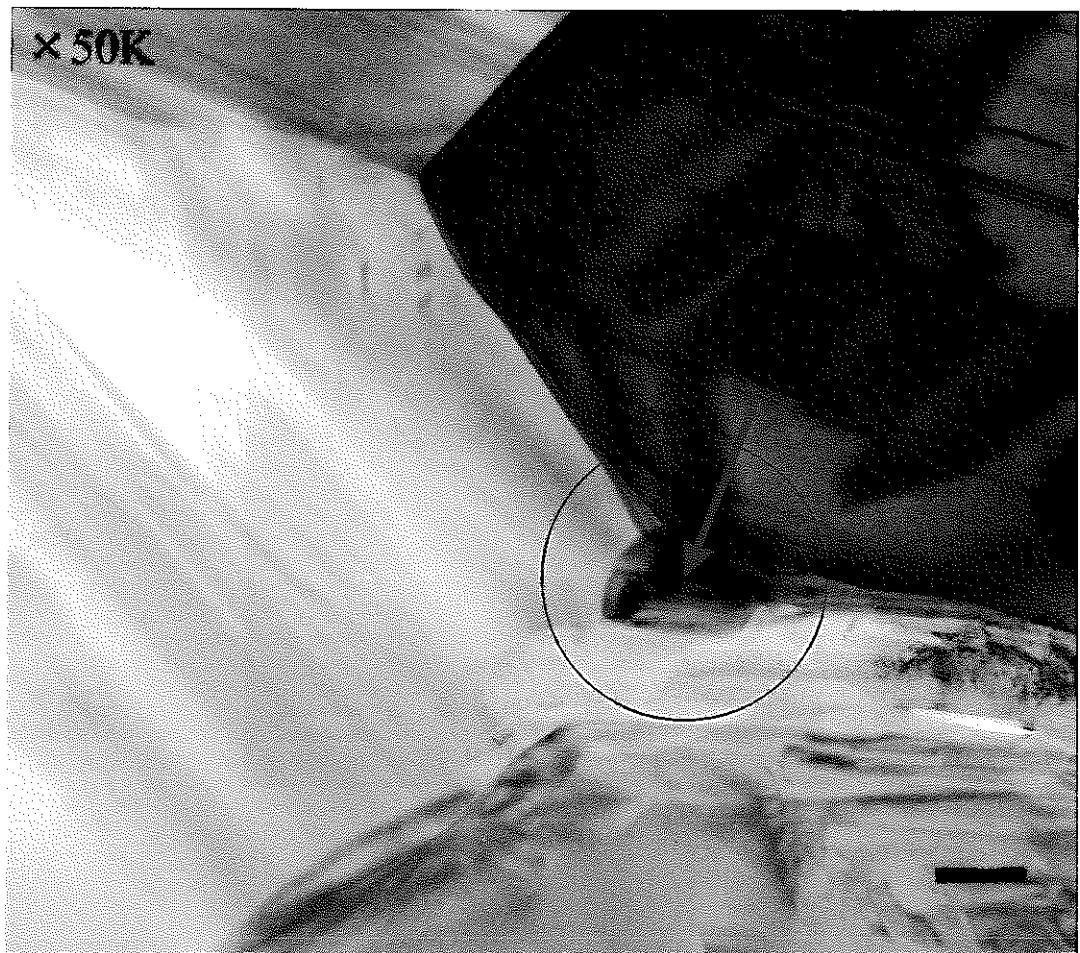


図3-2 マグネシウム還元 B_4C の微細組織



Fe-rich部

図3-3 マグネシウム還元 B_4C に見られる粒界3重点でのFe-rich部



図3-4 炭素還元法B₄C焼結体の組織写真



図3-5 「もんじゅ」仕様標準B₄C（炭素還元粉）の微細組織

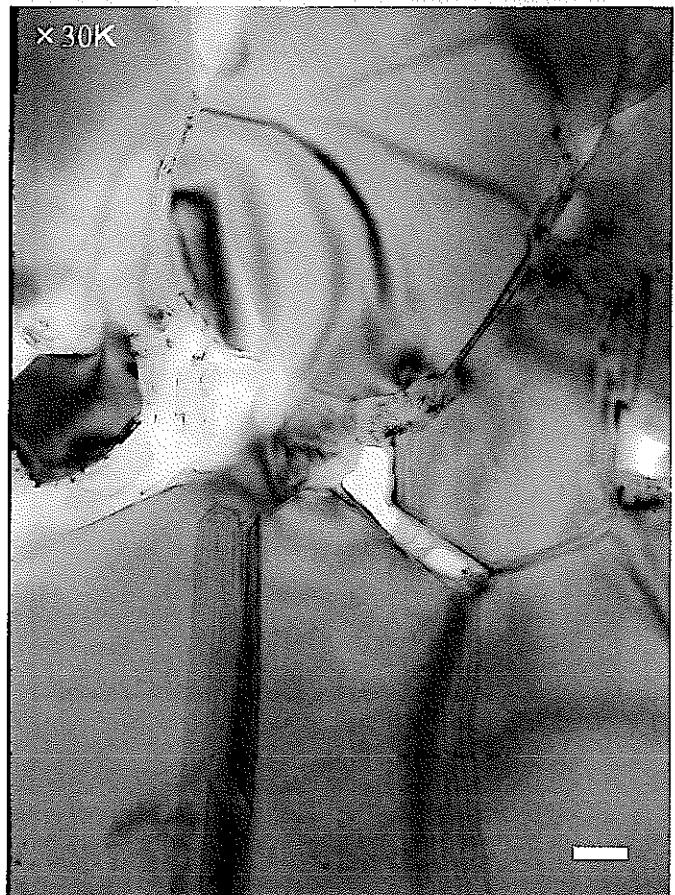


図3-6 「もんじゅ」仕様標準 B_4C （炭素還元粉）の微細組織



図3-7 「もんじゅ」仕様標準B₄C（炭素還元粉）の微細組織



図3-8 「もんじゅ」仕様標準B₄C（炭素還元粉）の微細組織

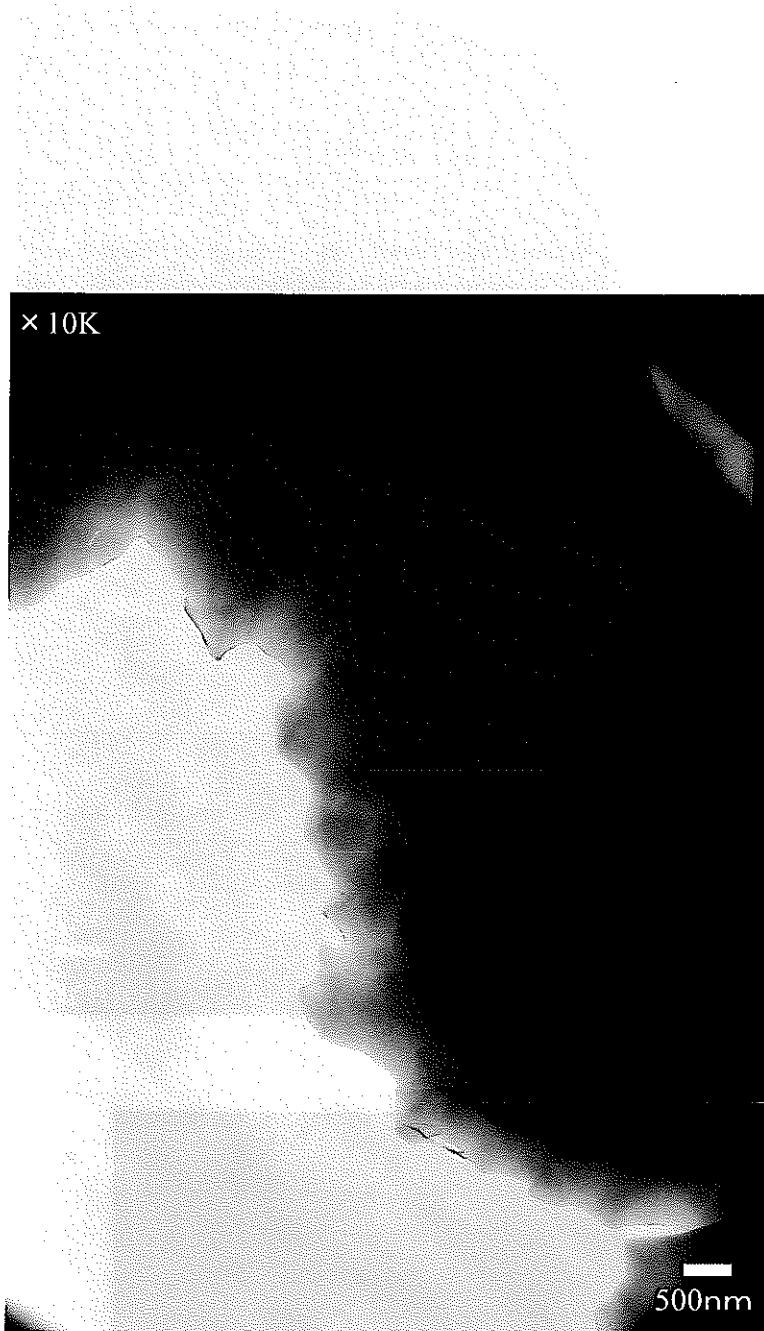


図3-9 Heイオン照射 B_4C （試料3-5、Mg還元粉）の組織
照射条件：Heイオン15MeV、
照射量 $0.43 \times 10^{15}/cm^2$ 、照射温度413°C

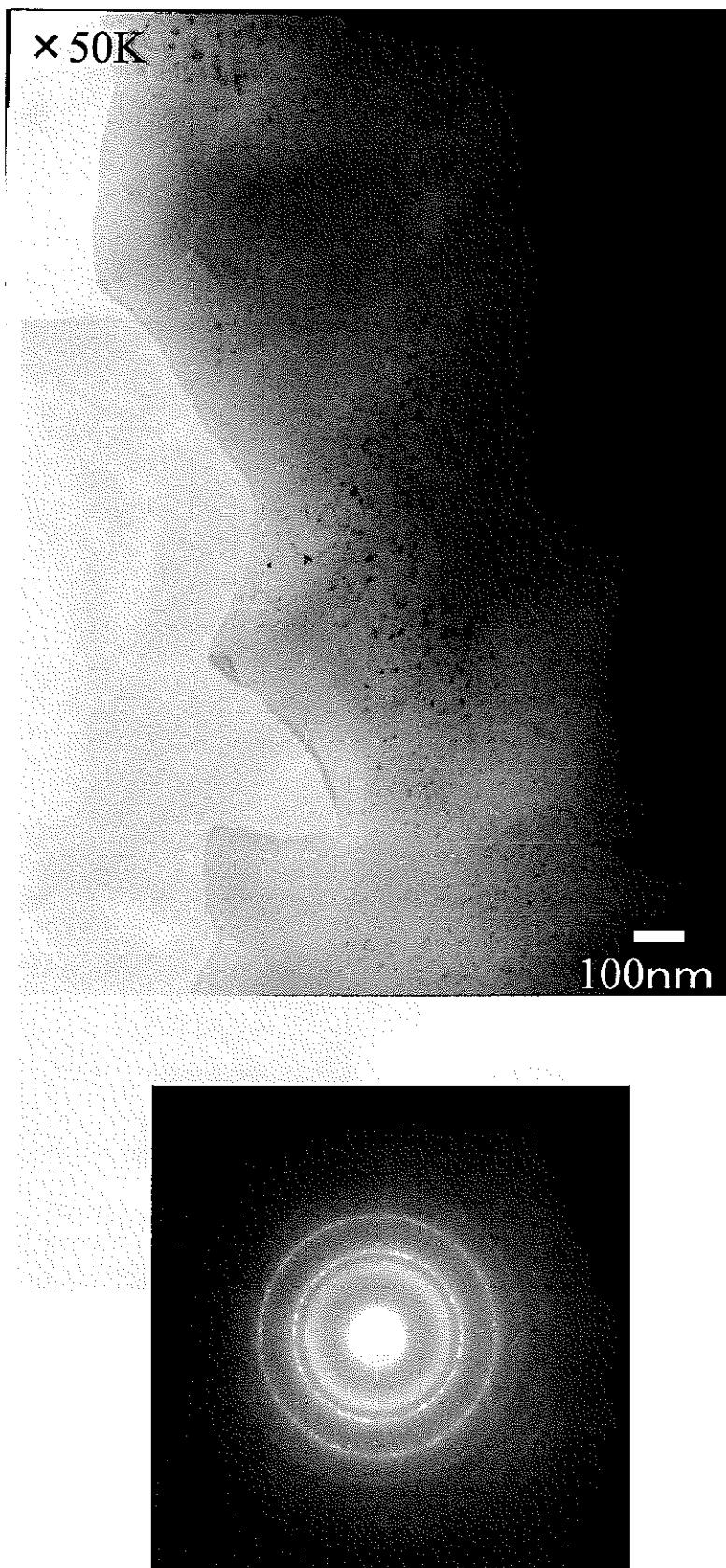


図3-10 Heイオン照射B₄C（試料3-5、Mg還元粉）の組織
照射条件：Heイオン15MeV、
照射量0.43×10¹⁵/cm²、照射温度413°C

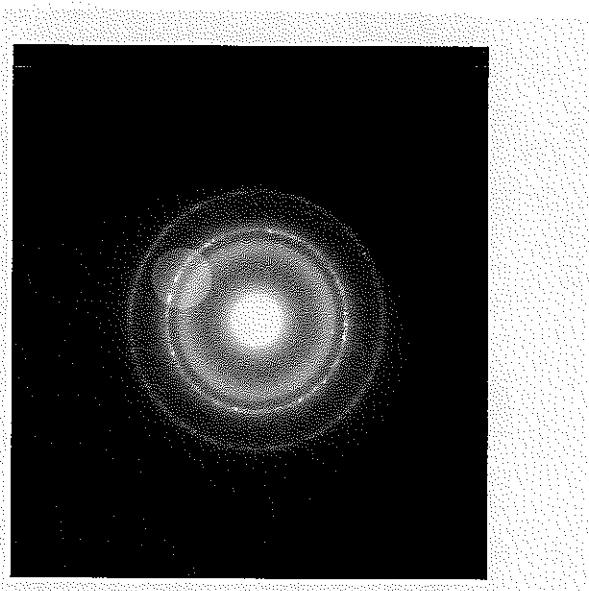


図3-11 Heイオン照射 B_4C （試料3-5、Mg還元粉）の組織照射条件：Heイオン15MeV、照射量 $0.43 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ 、照射温度413°C

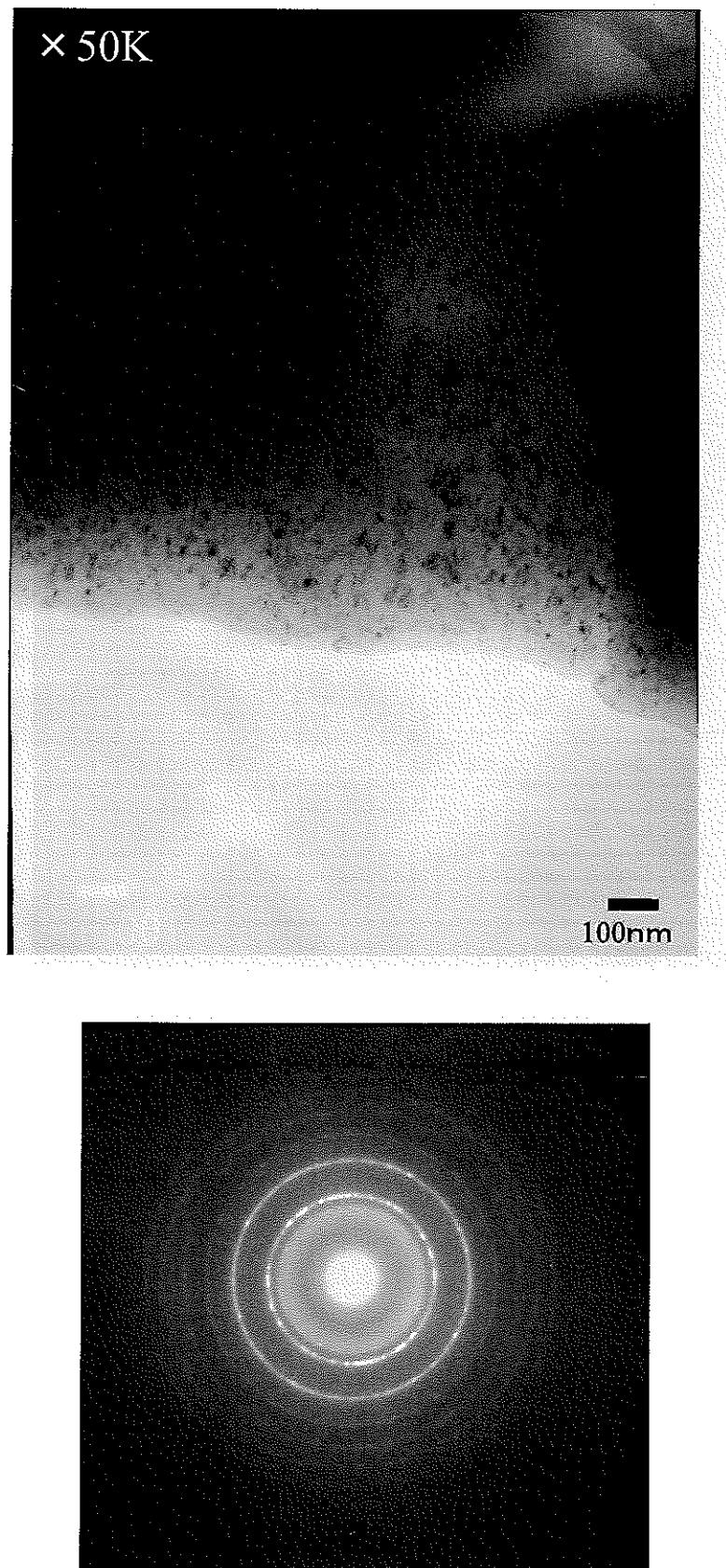


図3-12 Heイオン照射B₄C（試料3-5、Mg還元粉）の組織
照射条件：Heイオン15MeV、
照射量 $0.43 \times 10^{15} / \text{cm}^2$ 、照射温度413°C

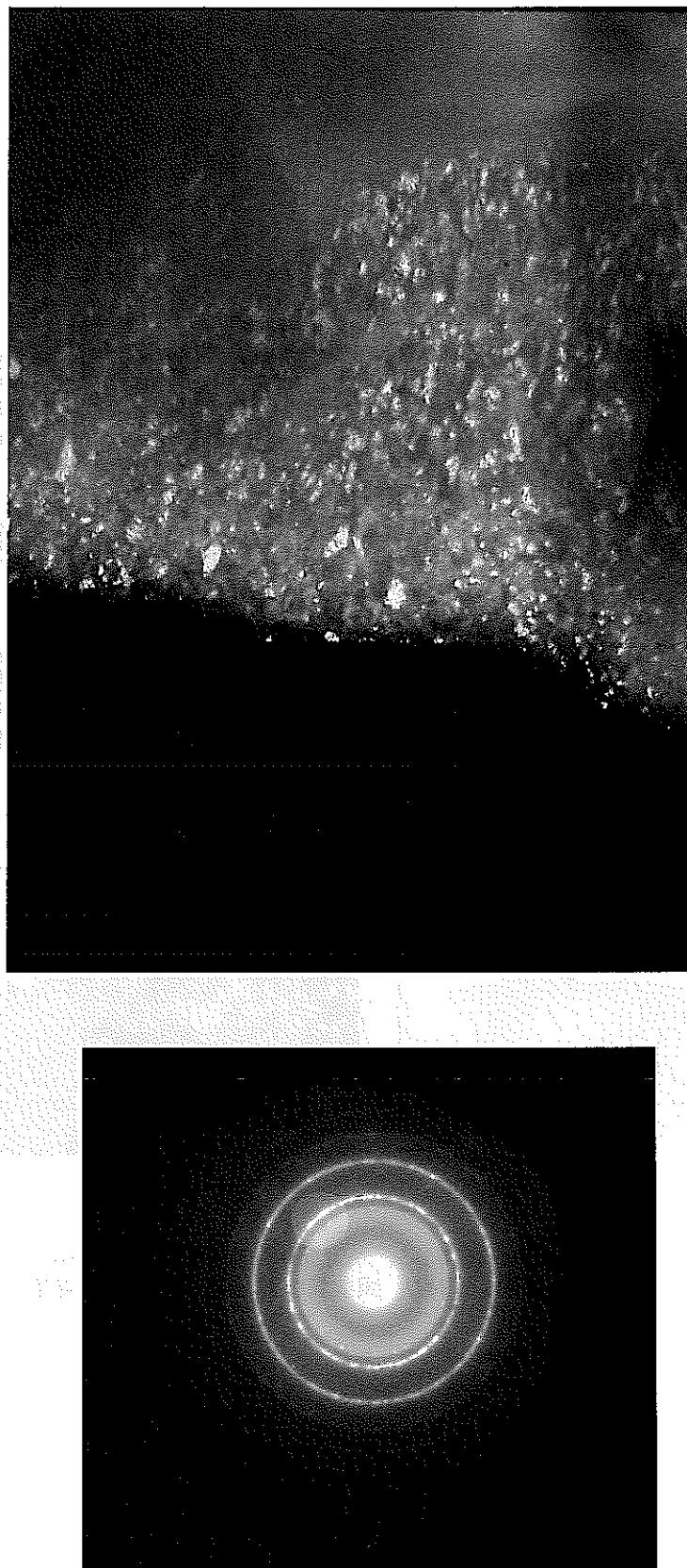


図3-13 Heイオン照射 B_4C （試料3-5、Mg還元粉）の組織（暗視野像）
照射条件：Heイオン15MeV、照射量 $0.43 \times 10^{15} / \text{cm}^2$ 、照射温度413°C

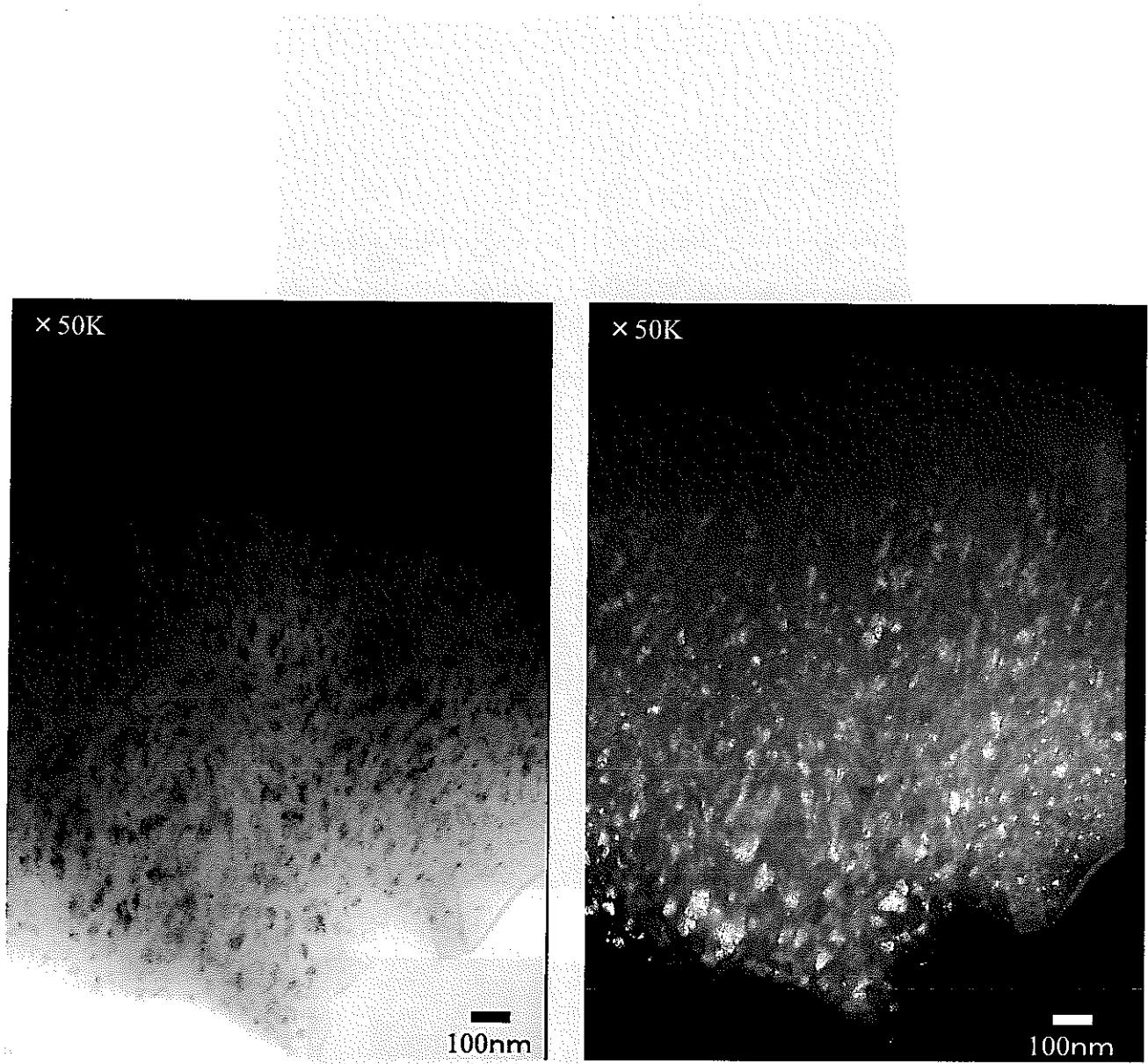


図3-14 Heイオン照射B₄C(試料3-5、Mg還元粉)の組織(暗視野像)
照射条件: Heイオン15MeV、照射量0.43×10¹⁵/cm²、照射温度413°C

3-2 炭素還元 B_4C の照射組織

3-2-1 低温度・低照射量の組織

図 3-15 から図 3-21 に 444°C で 15MeV の He を $0.43 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ 照射した炭素還元 B_4C の代表的な明視野像と暗視野像を示す。He イオンの飛程は約 $100 \mu\text{m}$ である。明視野像と暗視野像から、微細組織が母相に分散していた。図 3-21 の高倍率像ではこの組織は明確であり、微細結晶の径は $5\sim30\text{nm}$ 程度であり、これはマグネシウム還元材に比べてサイズは小さい。また、電子線回折パターンは単結晶のパターンと多結晶のリングパターンと非晶質を示すハローリングからなる。したがって、単結晶の母相の中に、微結晶と非晶質化領域が分散していることがわかった。

3-2-2 高温・高照

図 3-21 から図 3-31 に 760°C で 15MeV の He を $11.3 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ 照射した炭素還元 B_4C の代表的な明視野像と電子線回折パターンを示す。この場合は、回折パターンに単結晶のパターンはほとんど存在せず、多結晶のリングとハローリングのみであった。この照射条件では、照射損傷部は非晶質化と微細結晶化が、低温・低照射条件よりも進行し低ると判断された。また、図 3-30 の明視野像と図 3-31 の暗視野像に示すごとく、微結晶のコントラストはより明確であった。このことから、この微細結晶化は照射により促進されると考えられる。

このほかに、低温・低照射でもみられたが、低損傷部には母相が結晶で微細結晶が析出している部分がある。これにより微細結晶は損傷部全体に存在することが分かる。ただし、低損傷部では存在する粒としない粒があることが確認された。

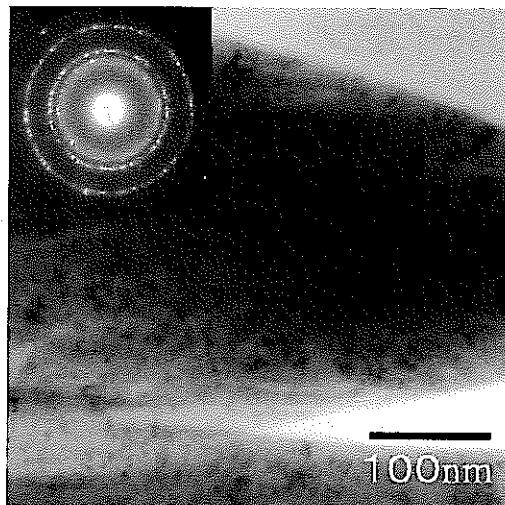
さらに高倍率の観察では、白いネットワーク構造が観察できた。このネットワークのサイズは約 $20\sim50\text{nm}$ であった。この構造の成因は明確ではないが、ヘリウムの飛程付近であること、微結晶の外周に存在する傾向があることより、He バブルの連結によるものと推定した。

図 3-32 から図 3-35 は高温・高照射量の炭素還元材の高分解能電子顕微鏡像

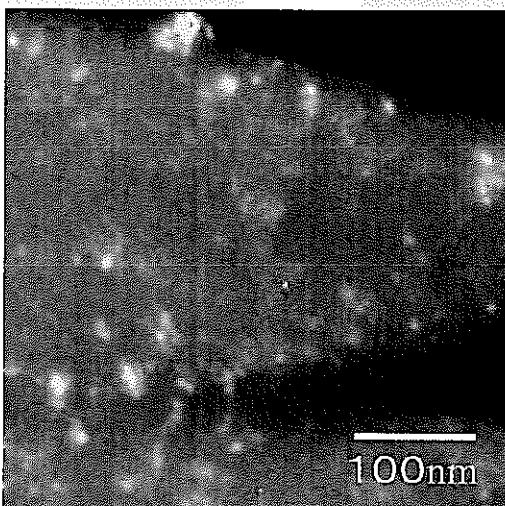
である。広範囲の電子線回折パターンによると、この領域は非晶質と Fe-rich の微結晶が混在していた。A 領域の高倍率の拡大像とその領域からのフーリエ変換像を図 3-33 に示す。両者を総合すると、この領域の原子配列はより非晶質に近い事がわかる。B 領域と C 領域（図 3-34 と図 3-35）では、結晶の弱い配向が認められることより、Fe-rich の析出を含んだ領域に対応していると判断された。

3-3 EDS による元素分析結果

高温・高照射した炭素還元材について EDS 分析を行った結果、大きな変化のあった不純物は Fe だけであった。粒界を基点としてマイナス方向を微細結晶のない粒の方向、プラス方向を微細結晶のある粒の方向として、濃度分布を測定した（図 3-36 と図 3-37）。結果として、微細析出の存在する領域には Fe 濃度が大きいことが判明した。



a)明視野像



b)暗視野像

図3-15 Heイオン照射B₄C（試料3-4、炭素還元粉）の組織照射条件：Heイオン15MeV、
照射量 $0.43 \times 10^{15} / \text{cm}^2$ 、照射温度444°C

照射3-4試料

B4C:もんじゅ仕様標準品(炭素還元)

照射条件 Heイオン

エネルギー: 15MeV

照射量: 0.43×10^{15} ion/cm²

照射温度: 444°C

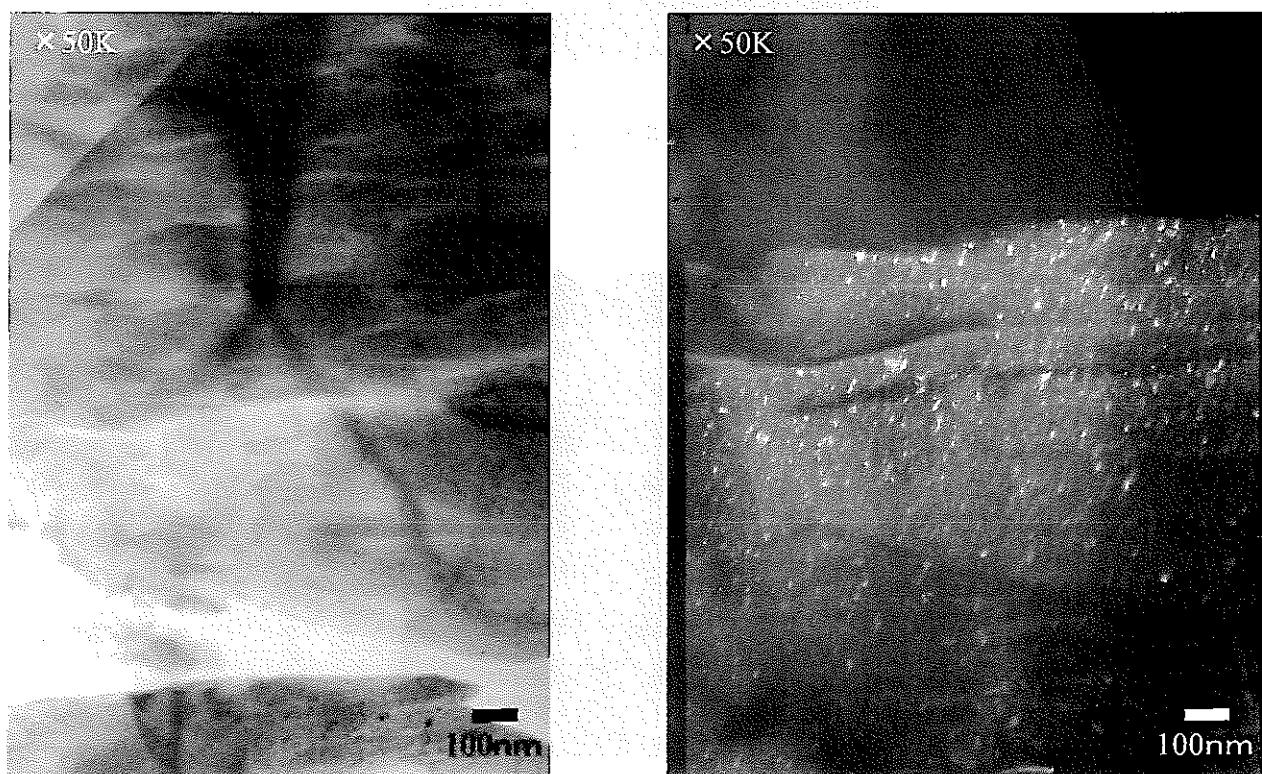


図3-16 Heイオン照射B₄C(試料3-4、炭素還元粉)の組織
照射条件: Heイオン15MeV,
照射量 0.43×10^{15} /cm²、照射温度444°C

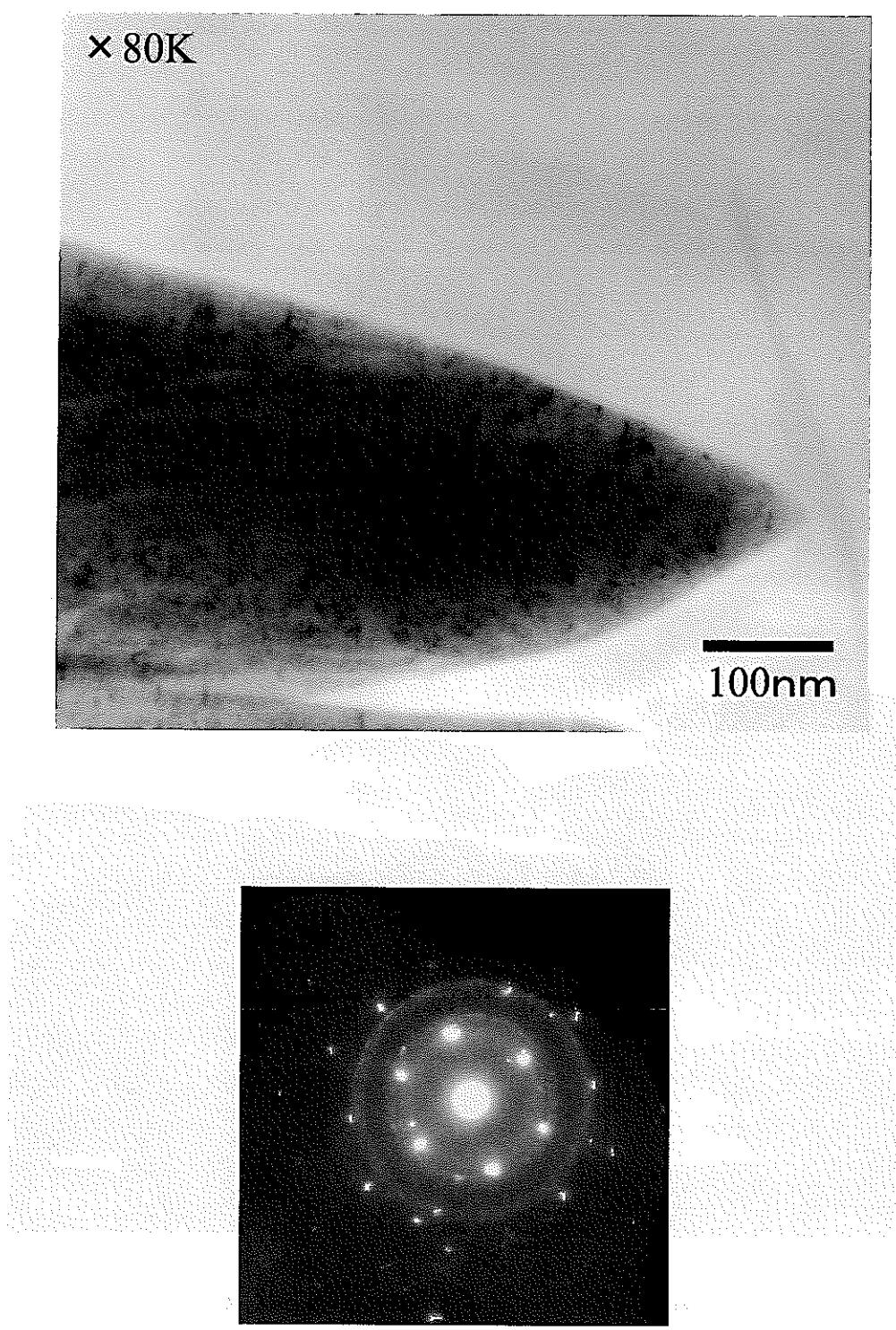


図3-17 Heイオン照射 B_4C （試料3-4、炭素還元粉）の組織照射条件：Heイオン15MeV、照射量 $0.43 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ 、照射温度444°C



図3-18 Heイオン照射 B_4C （試料3-4、炭素還元粉）の組織
照射条件：Heイオン15MeV、
照射量 $0.43 \times 10^{15}/cm^2$ 、照射温度 $444^\circ C$

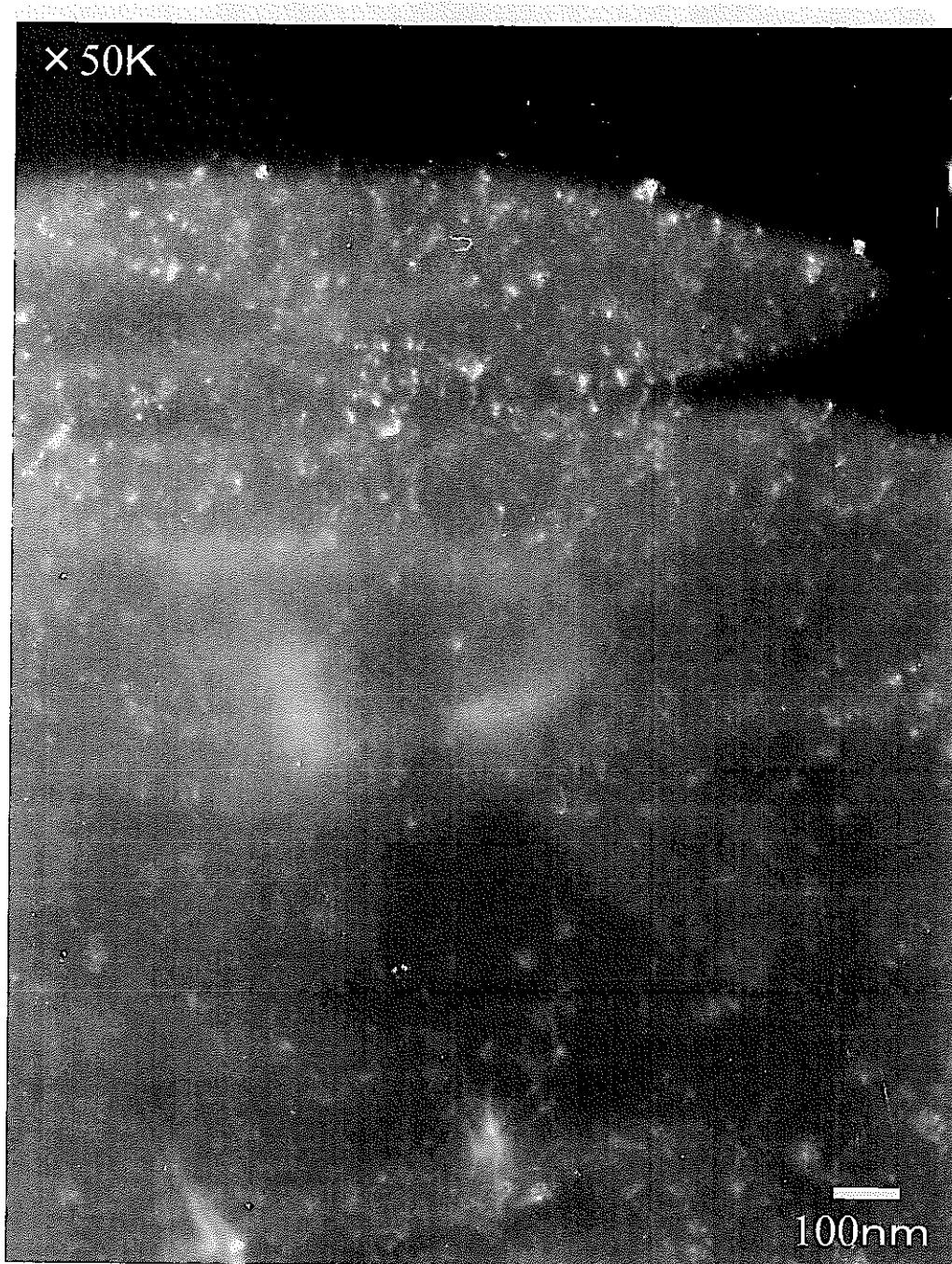


図3-19 Heイオン照射B₄C（試料3-4、炭素還元粉）の組織
照射条件：Heイオン15MeV、
照射量0.43x10¹⁵/cm²、照射温度444°C



図3-20 Heイオン照射B₄C（試料3-4、炭素還元粉）の組織
照射条件：Heイオン15MeV,
照射量0.43x10¹⁵/cm²、照射温度444°C



図3-21 Heイオン照射B₄C（試料3-4、炭素還元粉）の組織照射条件：Heイオン15MeV、
照射量 $0.43 \times 10^{15} / \text{cm}^2$ 、照射温度444°C

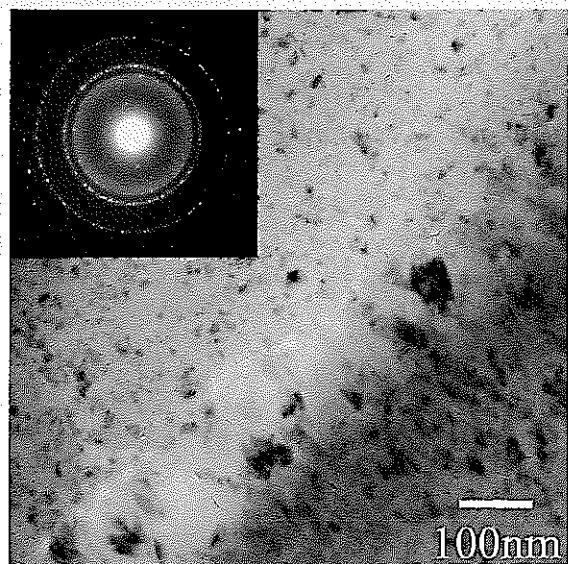


図3-22 高温 Heイオン照射 B_4C （試料5-2、炭素還元粉）の組織
照射条件：Heイオン15MeV、
照射量 $11.3 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ 、照射温度760°C

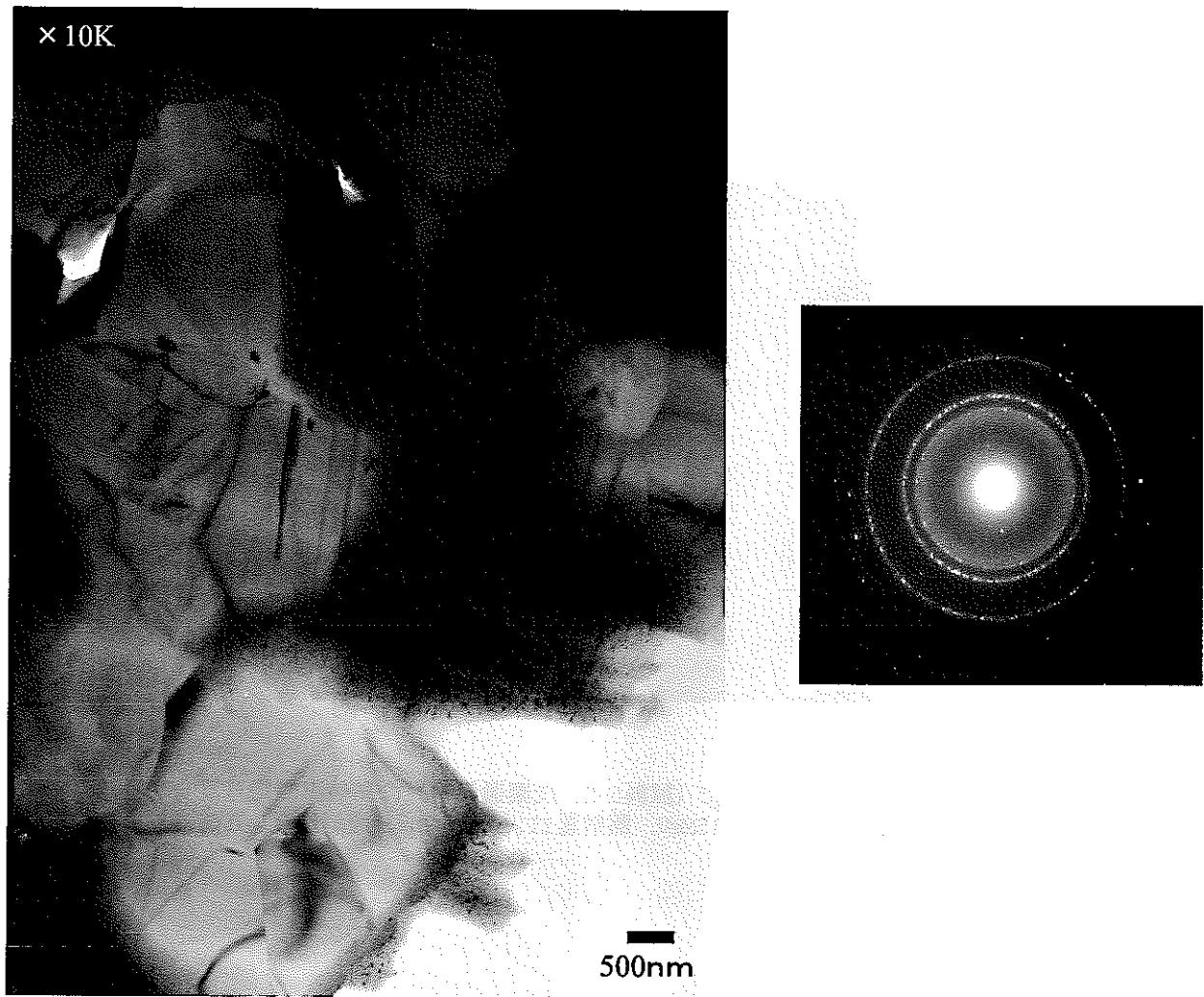


図3-23 高温 Heイオン照射B₄C（試料5-2、炭素還元粉）の組織照射条件：Heイオン15MeV、
照射量 $11.3 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ 、照射温度760°C

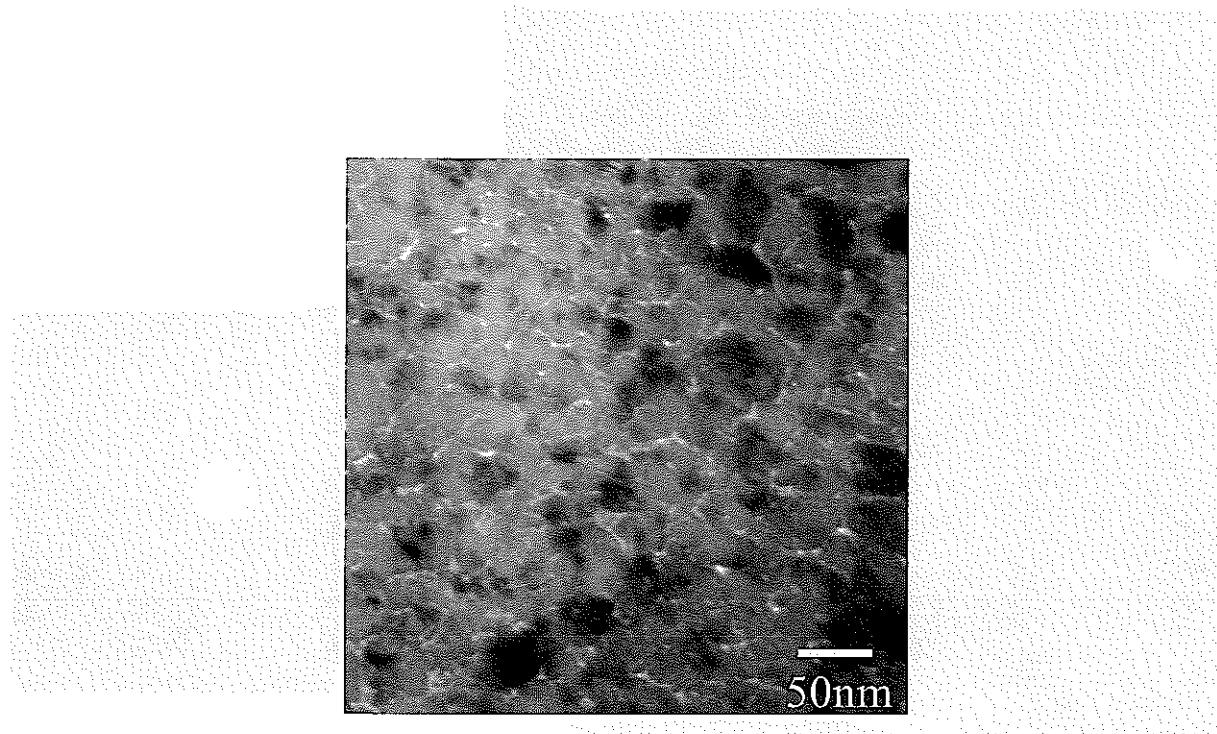


図3-24 高温 Heイオン照射B₄C（試料5-2、炭素還元粉）の高倍率組織写真
照射条件：Heイオン15MeV、照射量 $11.3 \times 10^{15} / \text{cm}^2$ 、照射温度760°C



図3-25 高温 Heイオン照射B₄C (試料5-2、炭素還元粉、低損傷部) の組織照射
条件 : Heイオン15MeV、照射量 $11.3 \times 10^{15} / \text{cm}^2$ 、照射温度760°C



図3-26 高温 Heイオン照射 B_4C （試料5-2、炭素還元粉）の組織照射
条件：Heイオン15MeV、照射量 $11.3 \times 10^{15}/cm^2$ 、照射温度760°C

×10K



図3-27 高温 Heイオン照射 B_4C （試料5-2、炭素還元粉）の組織照射
条件：Heイオン15MeV、照射量 $11.3 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ 、照射温度760°C



明視野



暗視野

図3-28 高温 Heイオン照射B₄C（試料5-2、炭素還元粉）の組織照射
条件：Heイオン15MeV、照射量11.3×10¹⁵/cm²、照射温度760°C

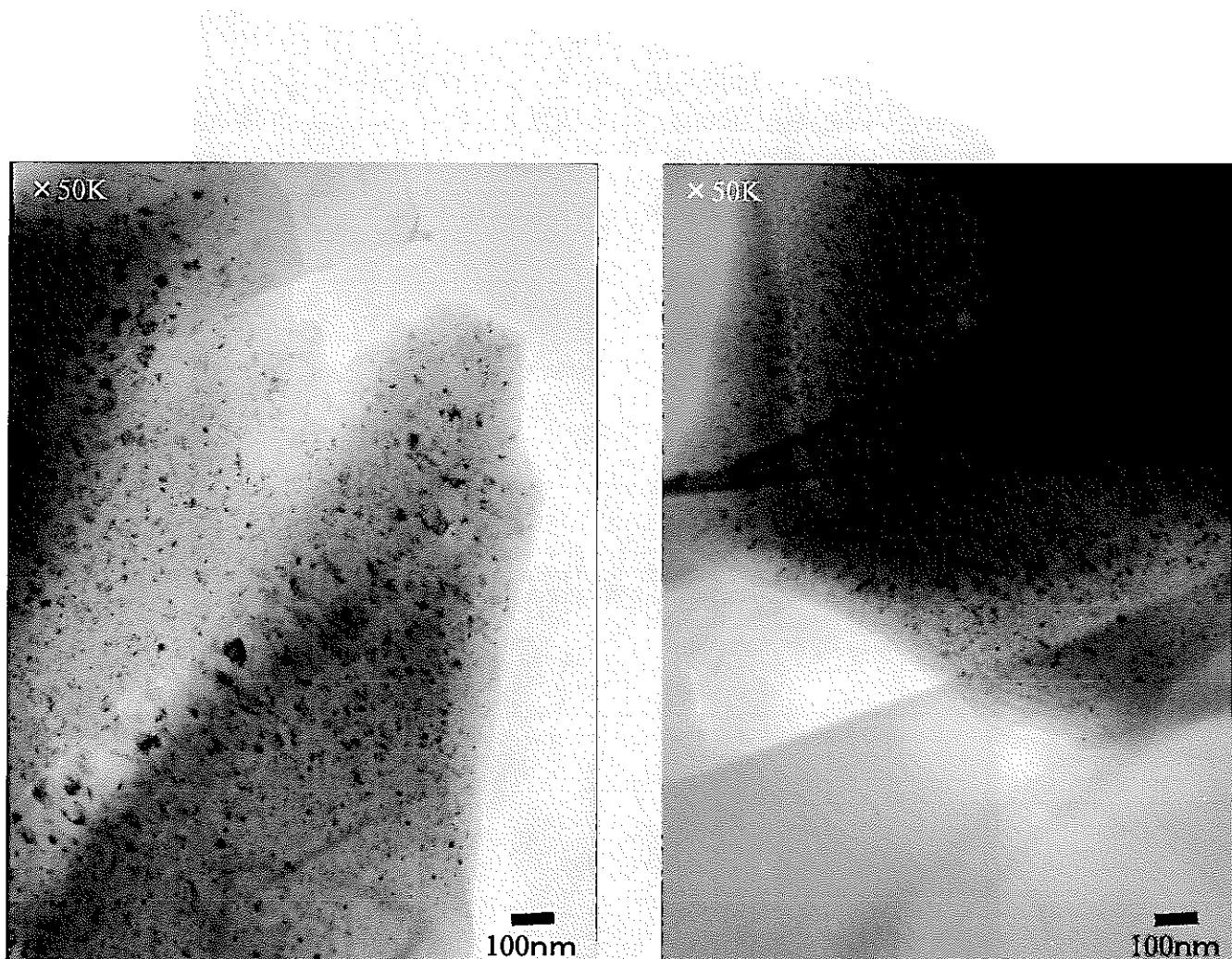


図3-29 高温 Heイオン照射B₄C（試料5-2、炭素還元粉）の組織照射
条件：Heイオン15MeV、照射量11.3×10¹⁵/cm²、照射温度760°C

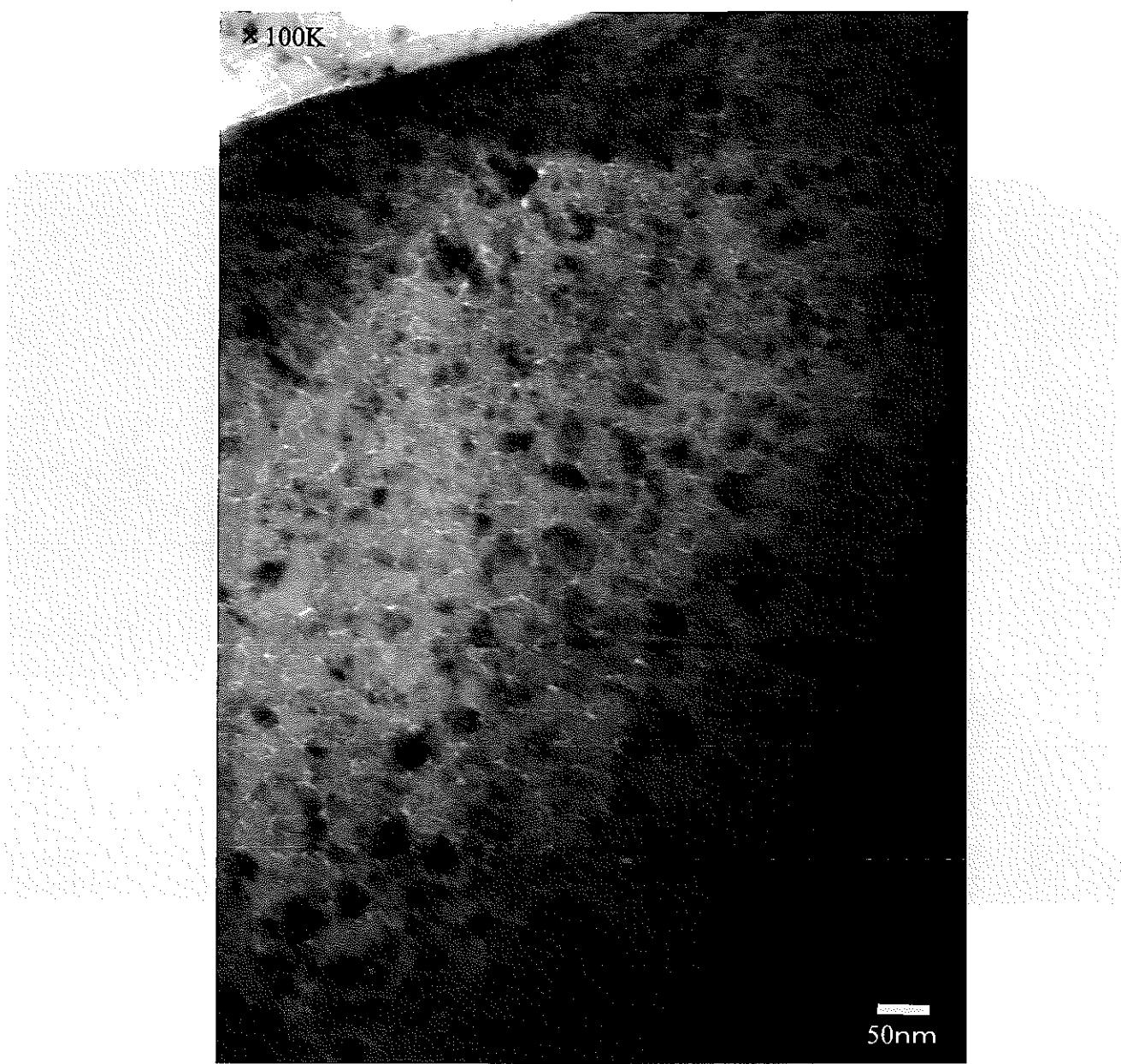


図3-30 高温 Heイオン照射B₄C（試料5-2、炭素還元粉）の組織照射
条件：Heイオン15MeV、照射量 $11.3 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ 、照射温度760°C

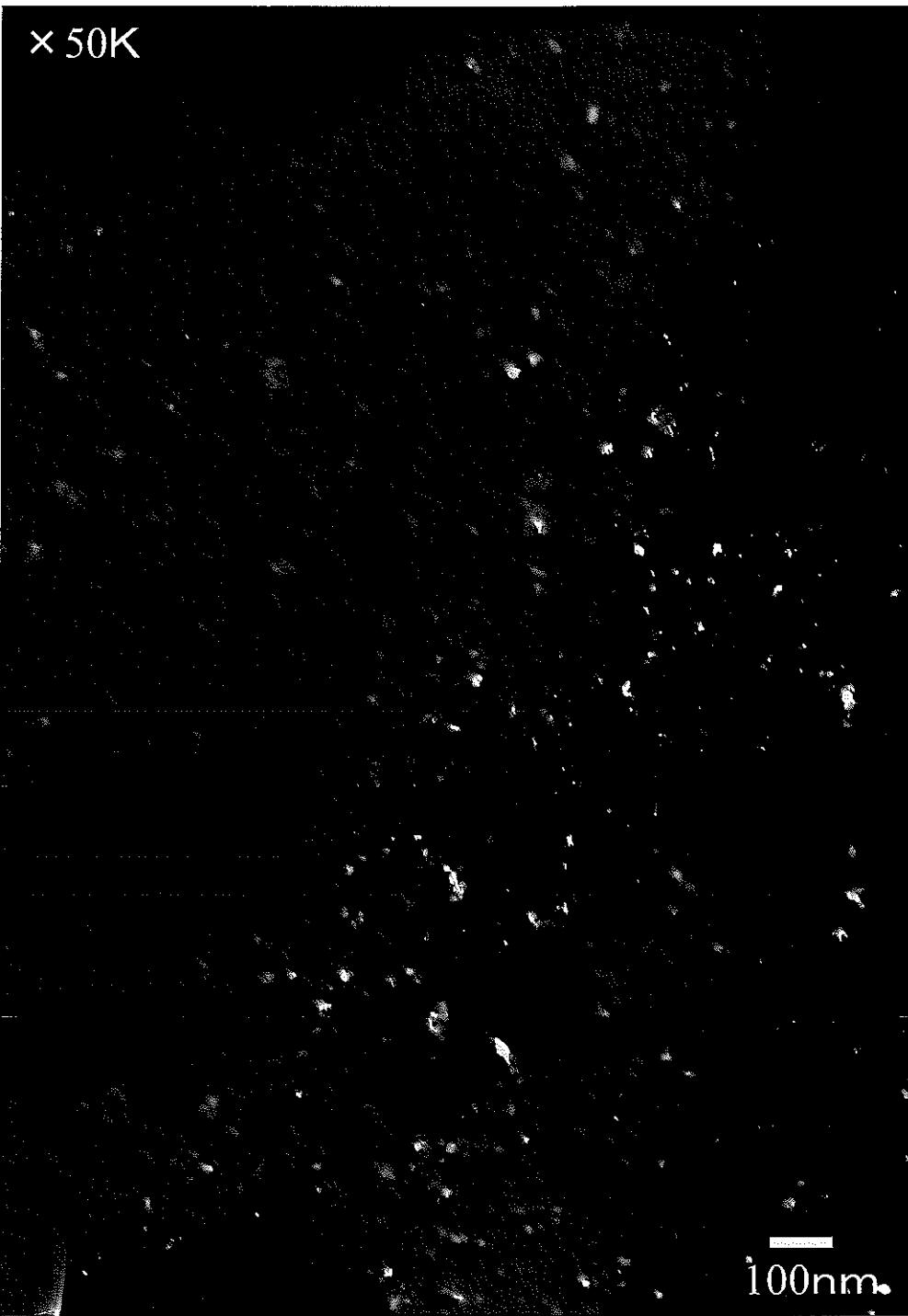


図3-31 高温 Heイオン照射 B_4C （試料5-2、炭素還元粉）の組織
条件：Heイオン15MeV、照射量 $11.3 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ 、照射温度760°C

× 500K

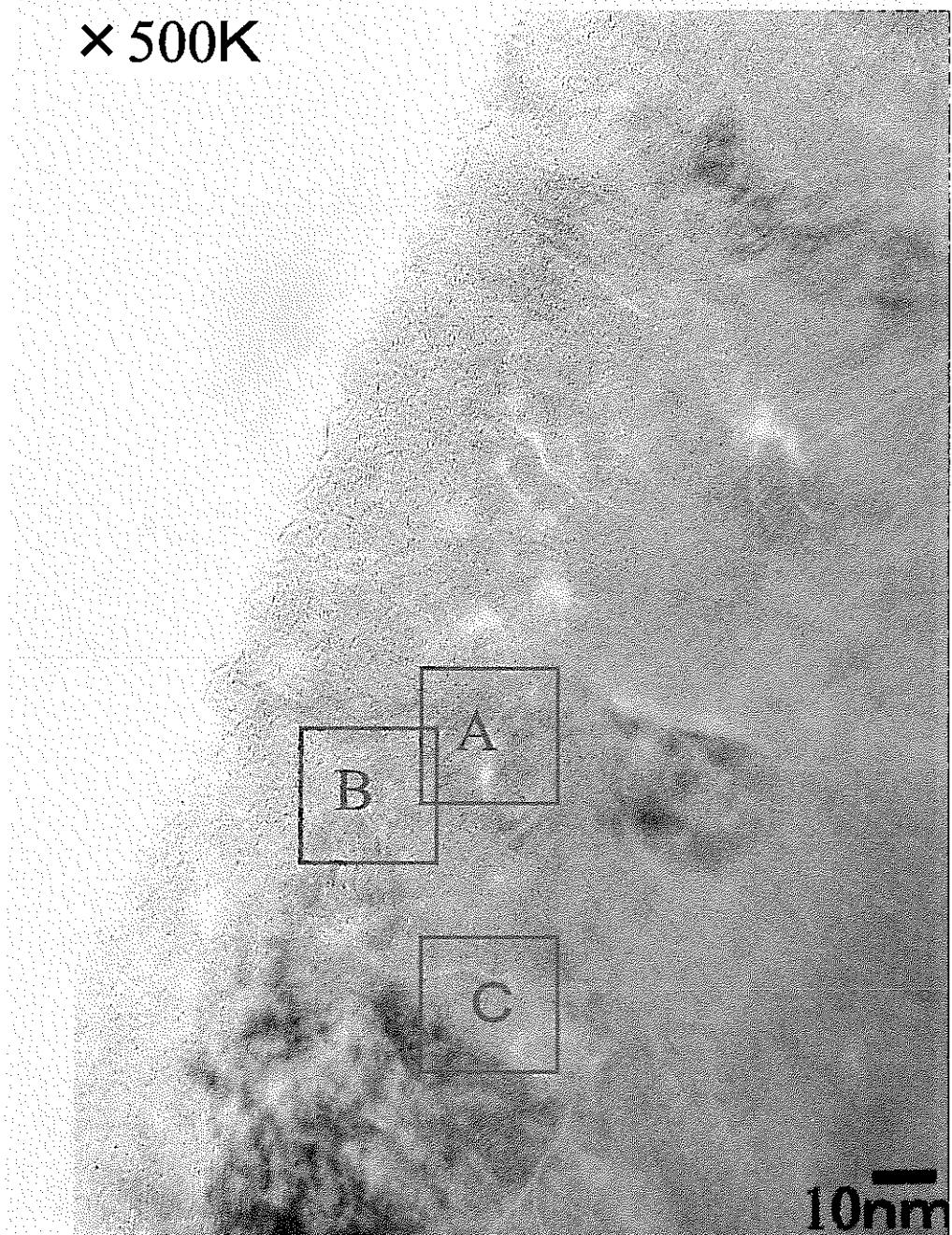
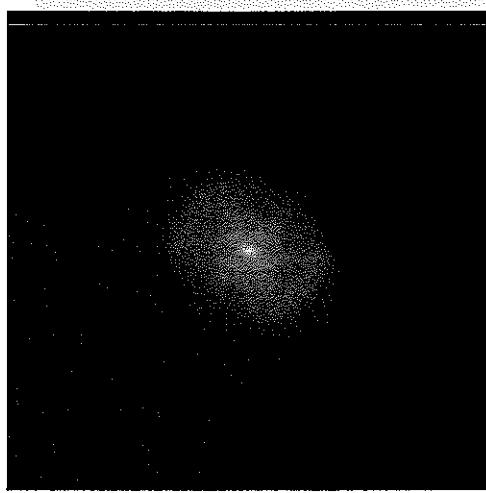
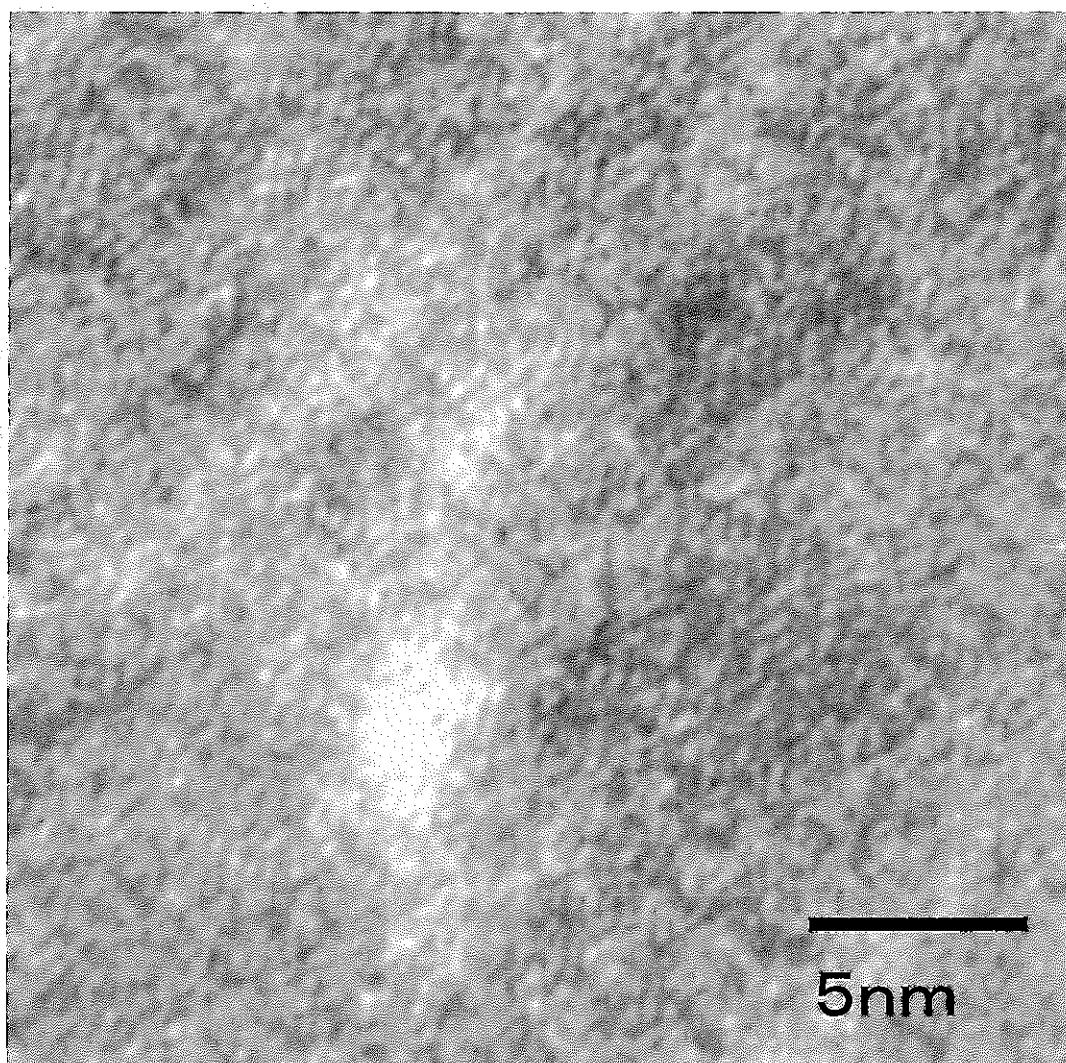
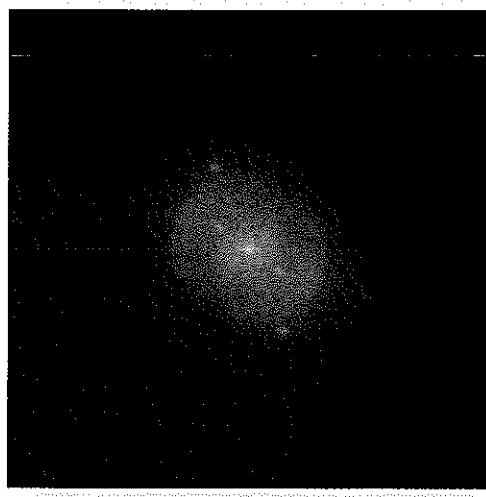
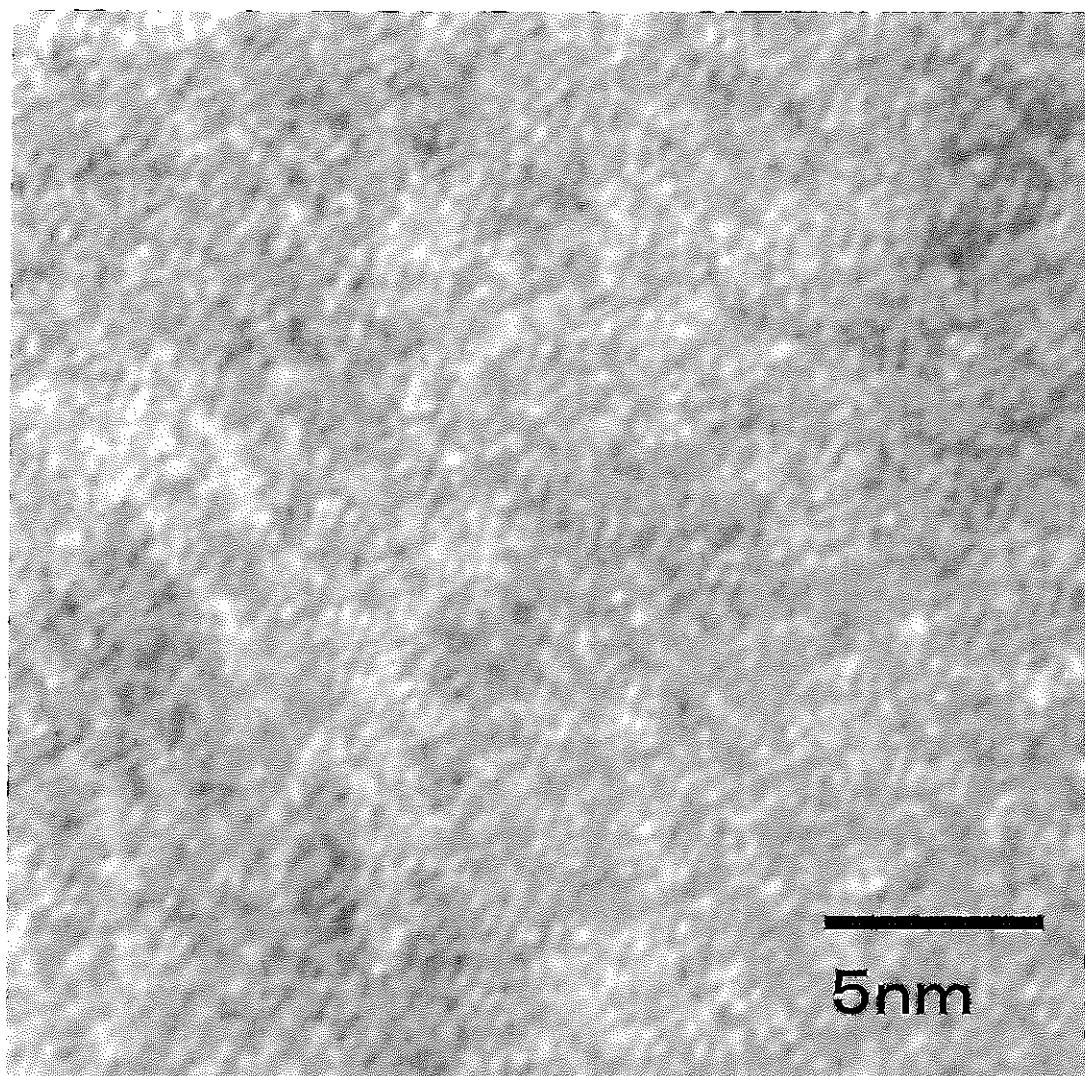


図3-32 高温 Heイオン照射 B_4C （試料5-2、炭素還元粉）の高分解能写真
照射条件：Heイオン15MeV、照射量 $11.3 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ 、照射温度760°C



A

図3-33 高温 Heイオン照射 B_4C （試料5-2、炭素還元粉）の高分解能写真
照射条件：Heイオン15MeV、照射量 $11.3 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ 、照射温度760°C



B

図3-34 高温 Heイオン照射B₄C（試料5-2、炭素還元粉）の高分解能写真
照射条件：Heイオン15MeV、照射量11.3×10¹⁵/cm²、照射温度760°C

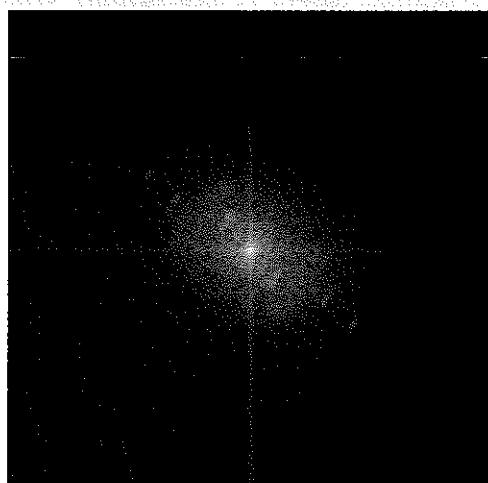
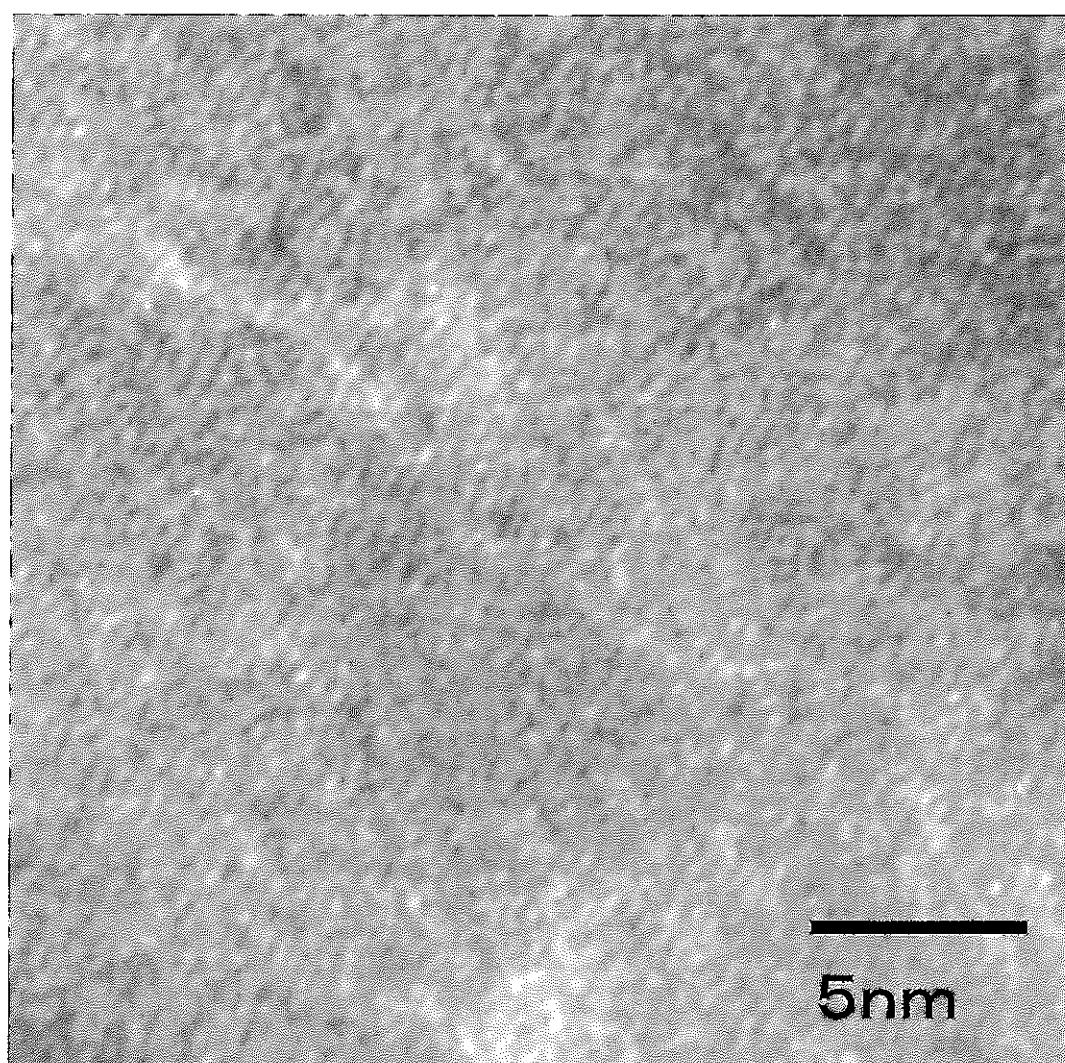


図3-35 高温 Heイオン照射 B_4C （試料5-2、炭素還元粉）の組織
照射条件：Heイオン15MeV、照射量 $11.3 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ 、照射温度760°C

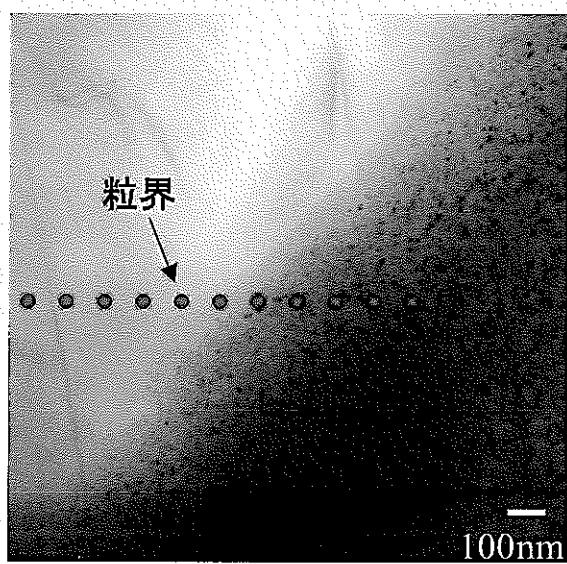


図3-36 高温 Heイオン照射 B_4C （試料5-2、炭素還元粉）のEDS分析個所
照射条件：Heイオン15MeV、照射量 $11.3 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ 、照射温度760°C

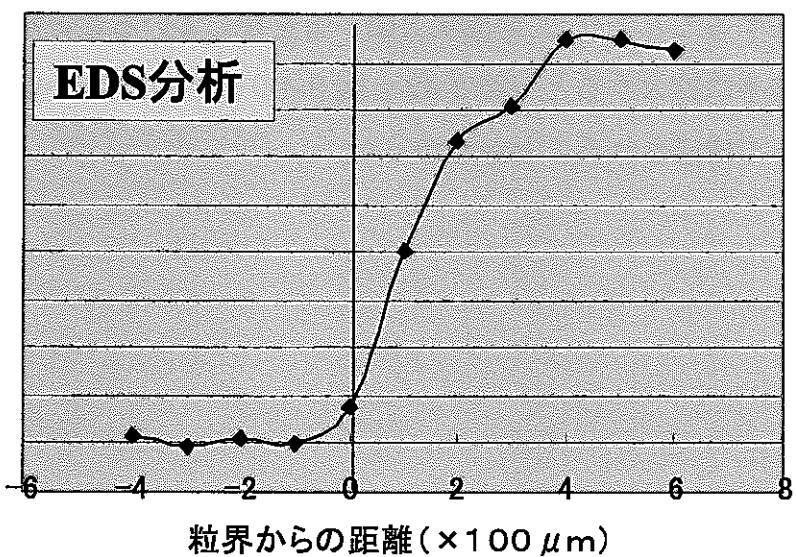
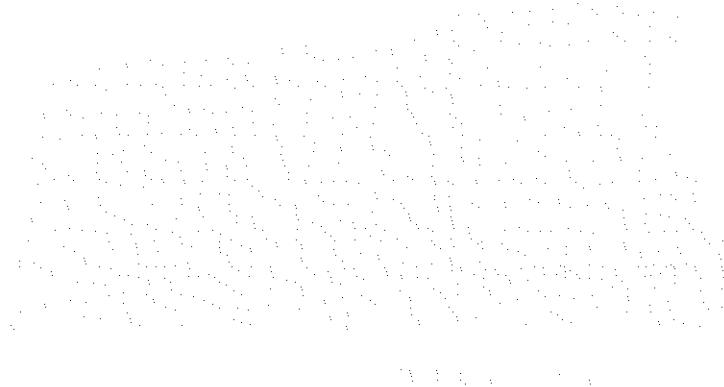


図3-37 Heイオン照射 B_4C （試料5-2、炭素還元粉）における、
微結晶粒界からのFe濃度分布。照射条件：Heイオン15MeV、
照射量 $11.3 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ 、照射温度760°C

3-4 未照射 SiC の微細構造

図 3-38 から図 3-45 に典型的な SiC の明視野像と暗視野像を示す。照射前の SiC は約 20nm 以下の幅で面状欠陥が存在した。また、ストリークからの暗視野像からは、このストリークが面欠陥から生じていることを示している。電子線回折パターンとの角度を対応させた場合、この面状欠陥の直角方向に強いストリークが存在することより、この面状欠陥が歪を有していることを示している。さらに高倍率に拡大すると（図 3-42 と図 3-43）、この内部は多数のマイクロツインによって構成されたことがわかった。



未照射SiC

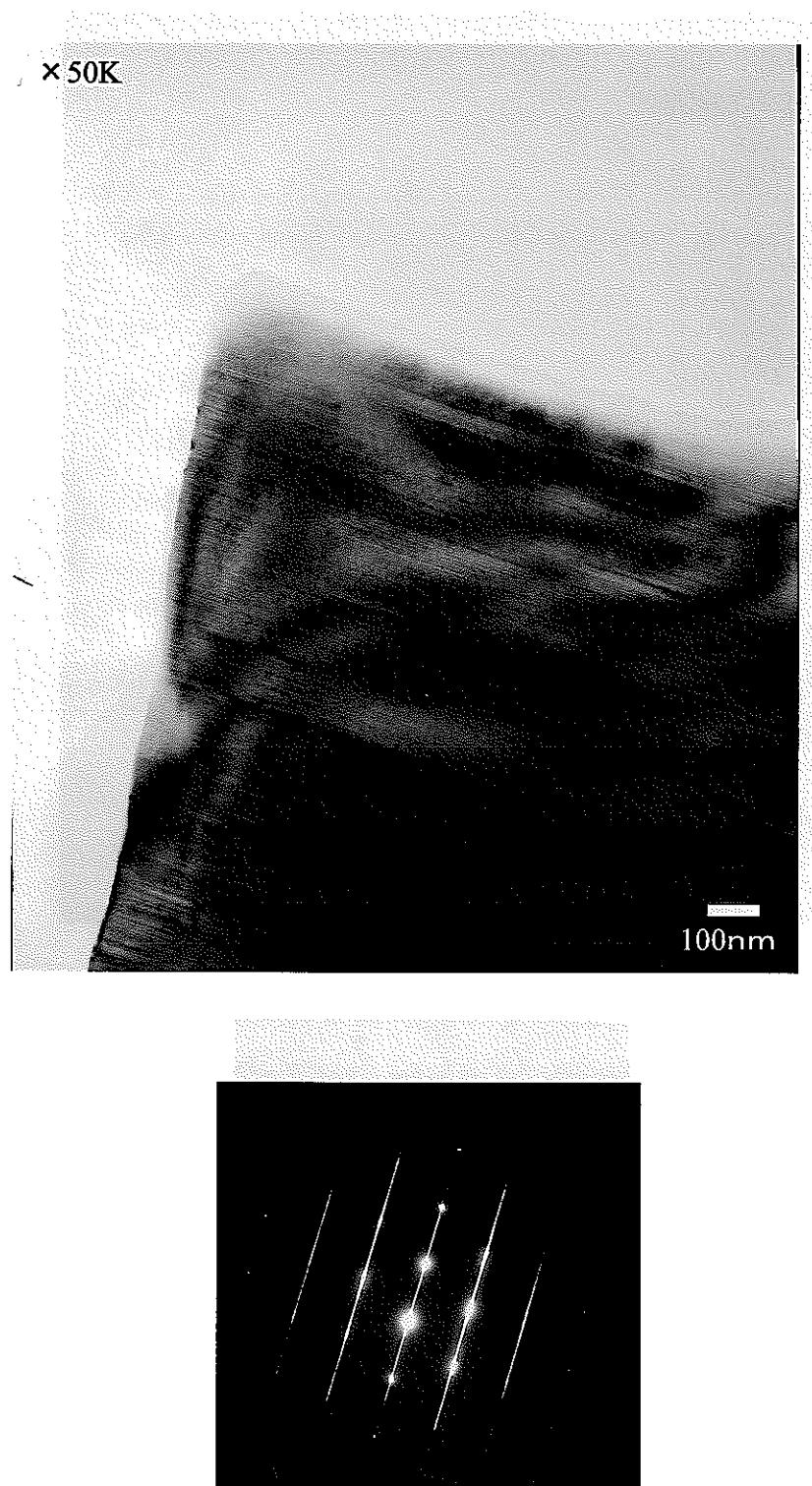


図3-38 未照射SiCの組織写真

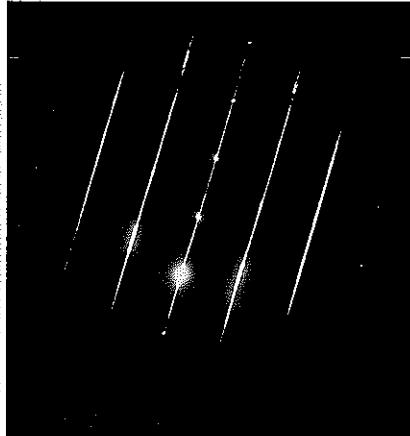


図3-39 未照射SiCの組織写真



図3-40 未照射SiCの組織写真

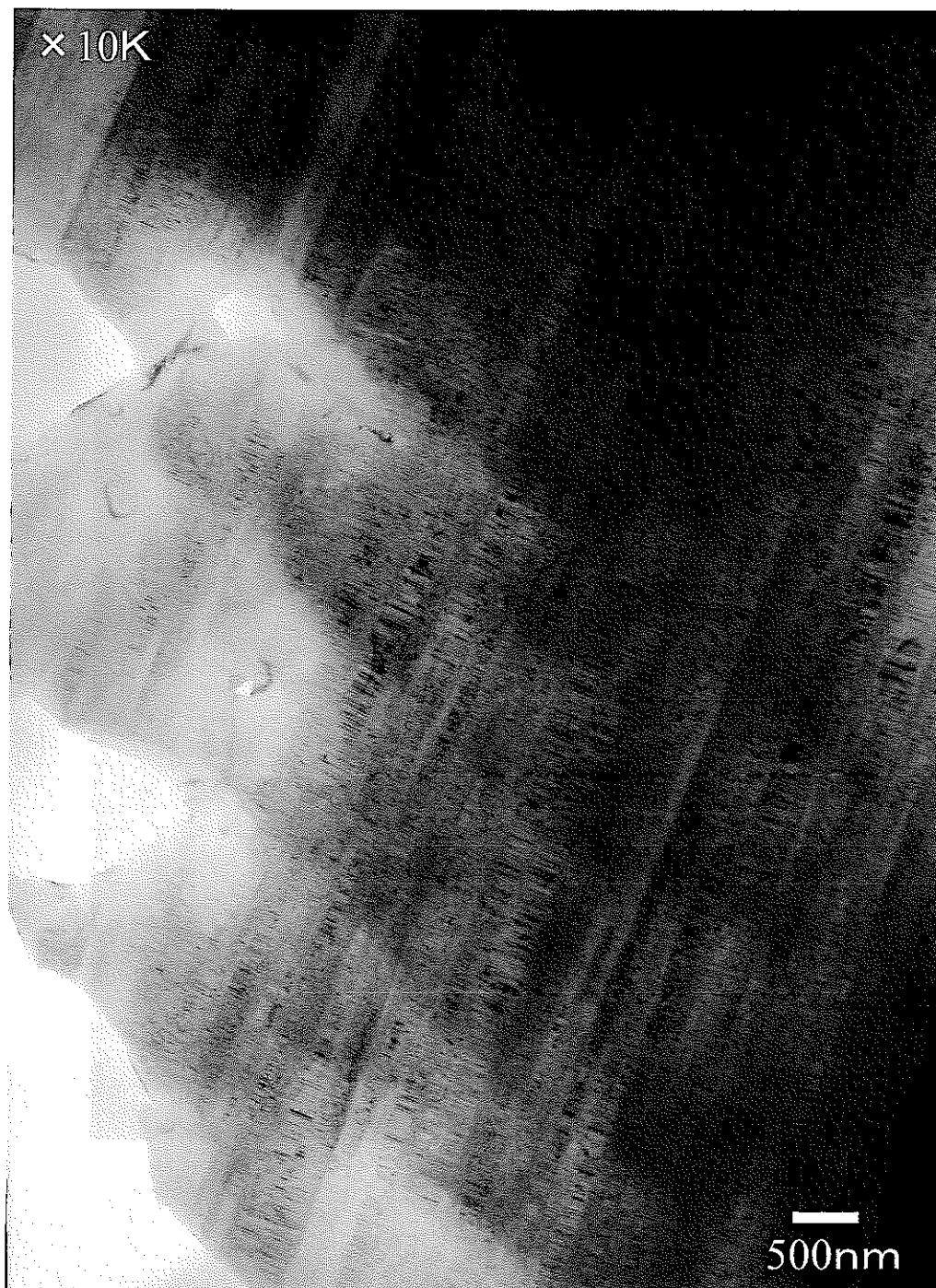


図3-41 未照射SiCの組織写真

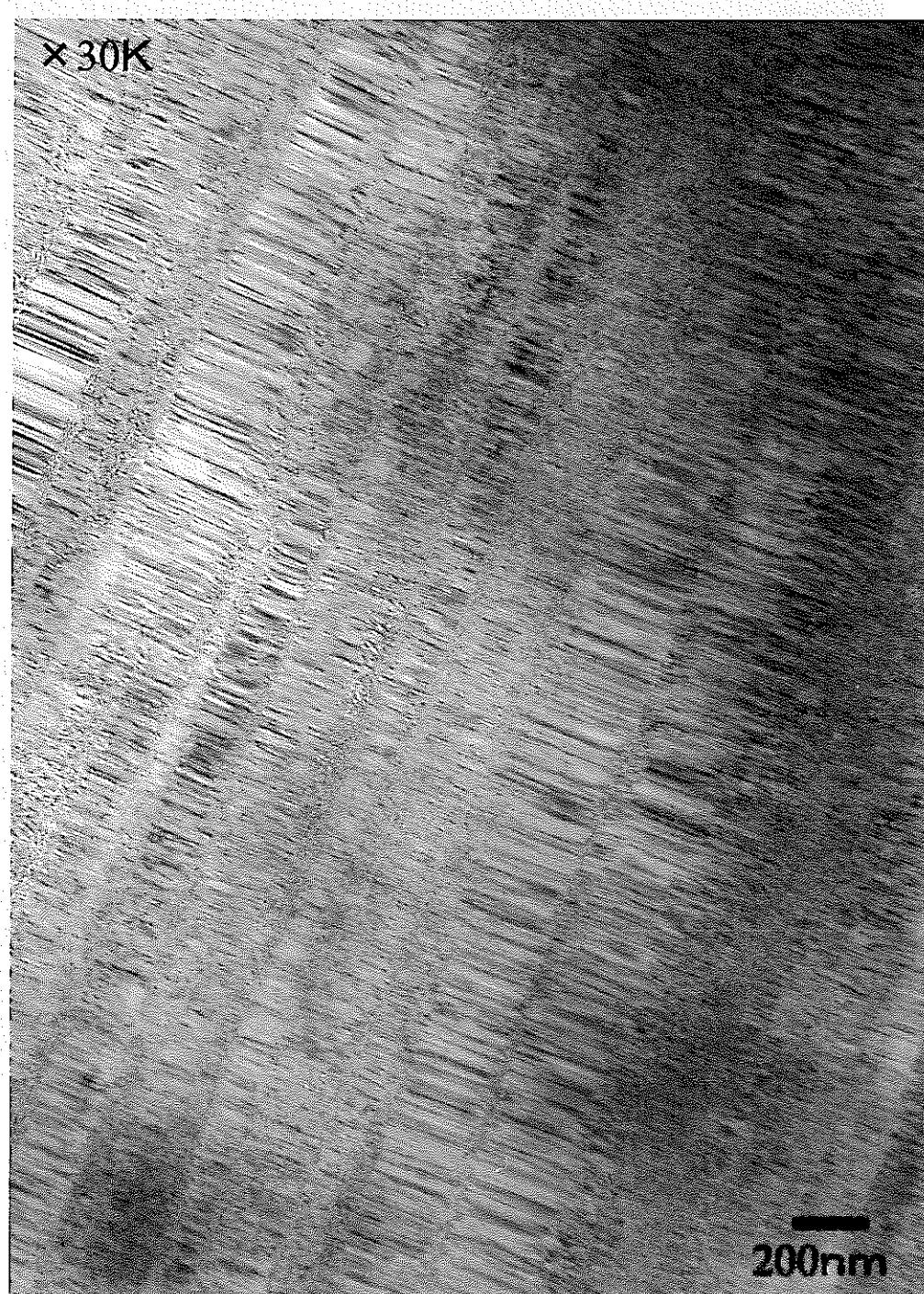


図3-42 未照射SiCの組織写真

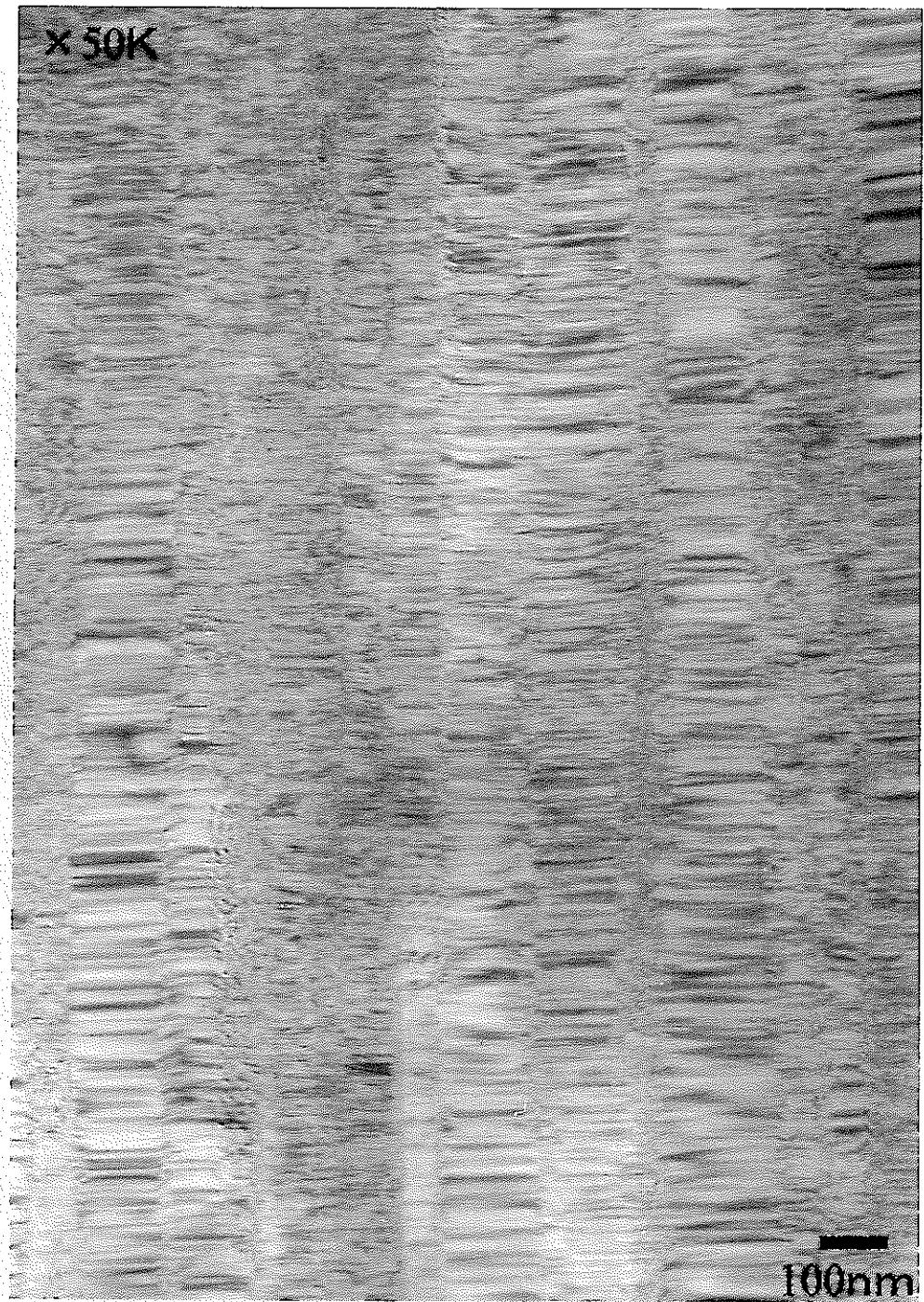


図3-43 未照射SiCの組織写真

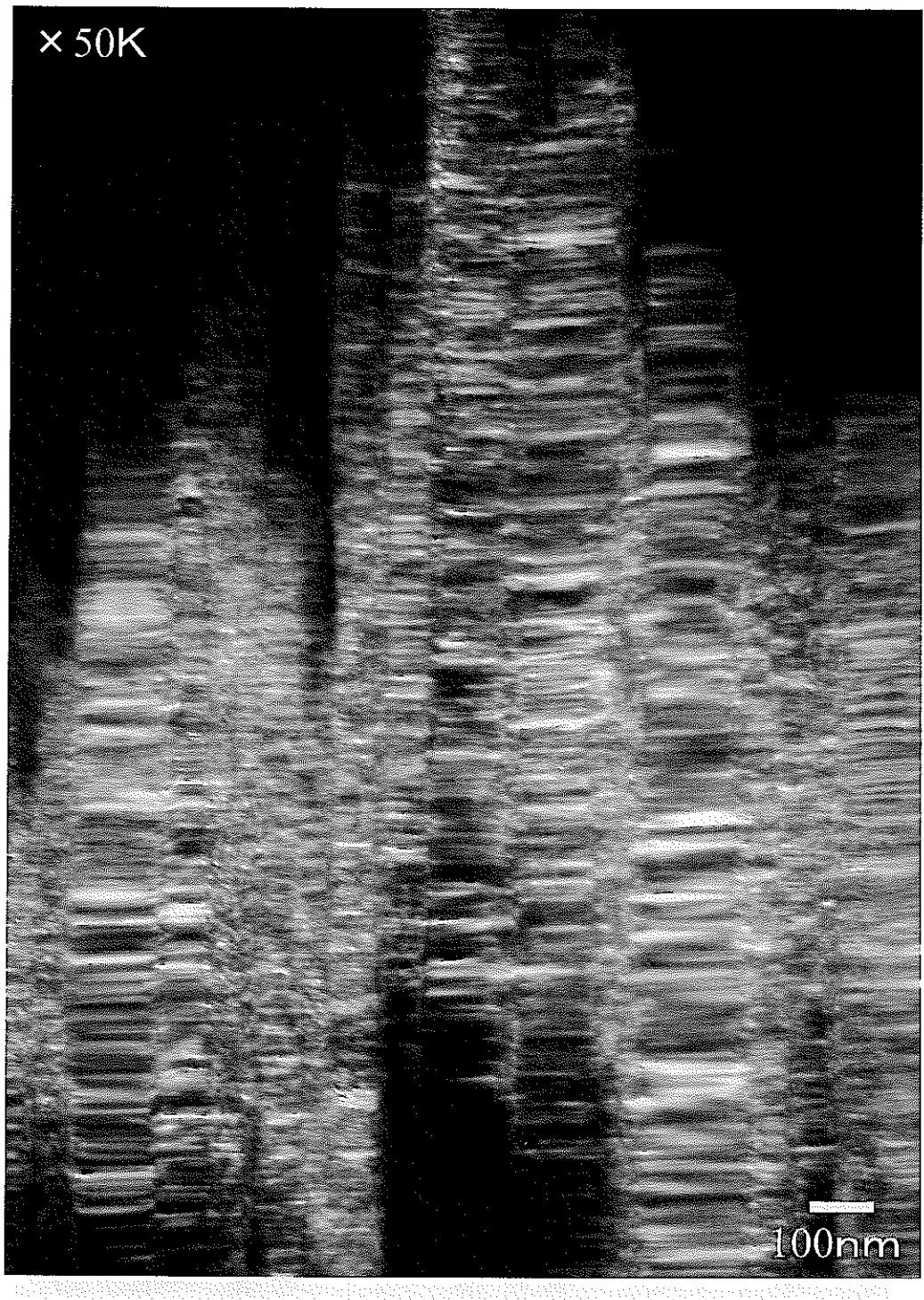


図3-44 未照射SiCの組織写真（暗視野像）

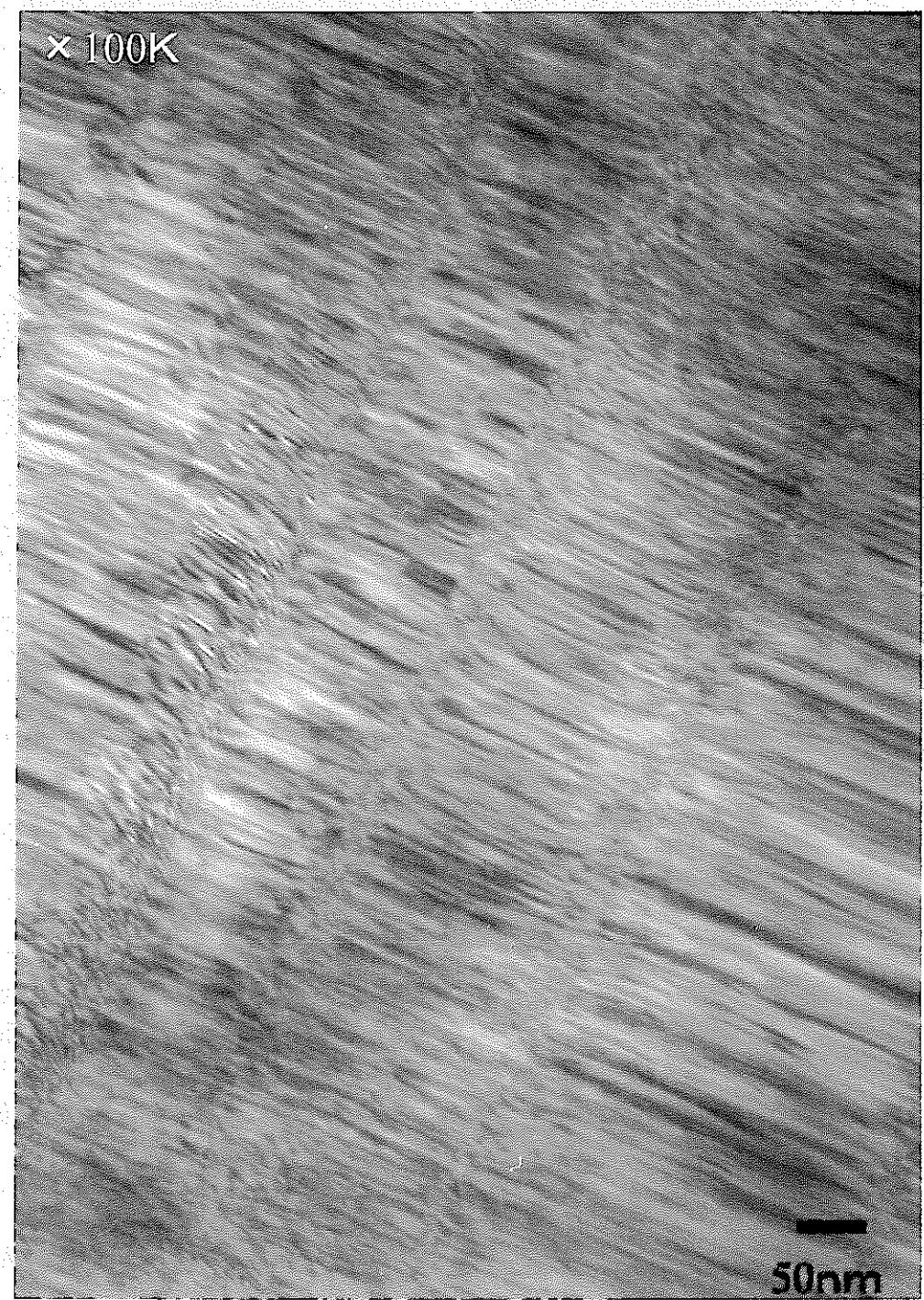


図3-45 未照射SiCの組織写真

3-5 照射による SiC の構造変化

図 3-46 から図 3-50 に 25MeV の炭素イオンを $0.8 \times 10^{14}/\text{cm}^2$ 照射した SiC の代表的な明視野像と電子線回折パターンを示す。面欠陥のコントラストは照射によってややブロードになる傾向があった。図 3-47 のように、電子線回折パターンには照射前のような強いストリークは現れず、一部にオーダースポットらしいスポットが現れた。この結果は、面欠陥に存在した局部的歪が照射によってやや緩和したものと推定される。しかしながら、 B_4C のようにこの条件では非晶質化にいたっていないことがわかる。

この照射誘起非晶質化過程は明確ではなかったのは照射量が少なかったものと判断し、参考までに室温での電子線照射を実施した。図 3-51 から図 3-56 がその結果である。特に高倍率の格子像からは 10-20 分程度の電子線照射で格子が乱れて非晶質化している部分があることが認められる。ただし、照射量は $1\text{dpa}/10\text{min}$ 程度である。この結果から、SiC は B_4C に比べて、照射誘起非晶質化が起りづらいことが判明した。

3-6 アニール実験

イオン照射した SiC の組織観察から、アニール実験を行った。その実験手順を図 3-57 に示す。この実験に用いた試料は 25MeV の炭素イオンを $0.8 \times 10^{14}/\text{cm}^2$ 照射したものである。この照射条件では明瞭な照射欠陥が認められていなかつたため、さらに追加の電子線照射も行って組織観察を行った。電子線の照射は 30min であり、したがってはじき出し損傷量としては少なくとも 3dpa 以上と見積もられる。アニールは TEM の高温ステージを用いて 600°C で行った。

図 3-58 から図 3-61 には、イオン照射した SiC に追加電子線照射した後、600°C でアニールを行った場合の組織を示す。拡大領域の A と B とともに、基本的には面状欠陥のコントラストが広がっているように判断されるが、ここでも大きな組織変化は認められていない。

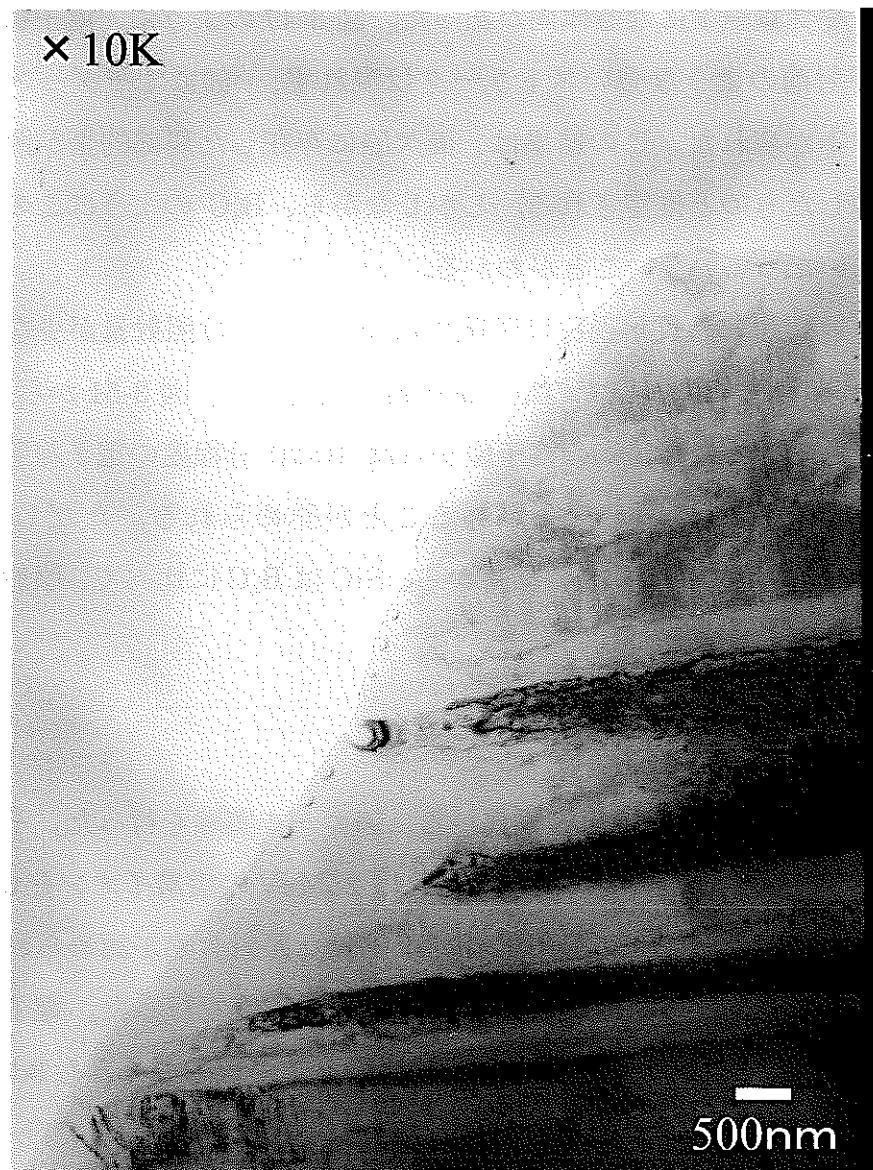


図3-46 Cイオン照射SiC(試料9-3)の組織写真。
照射条件: Cイオン25MeV、照射量 $0.8 \times 10^{14}/\text{cm}^2$ 、照射温度480°C

× 30K

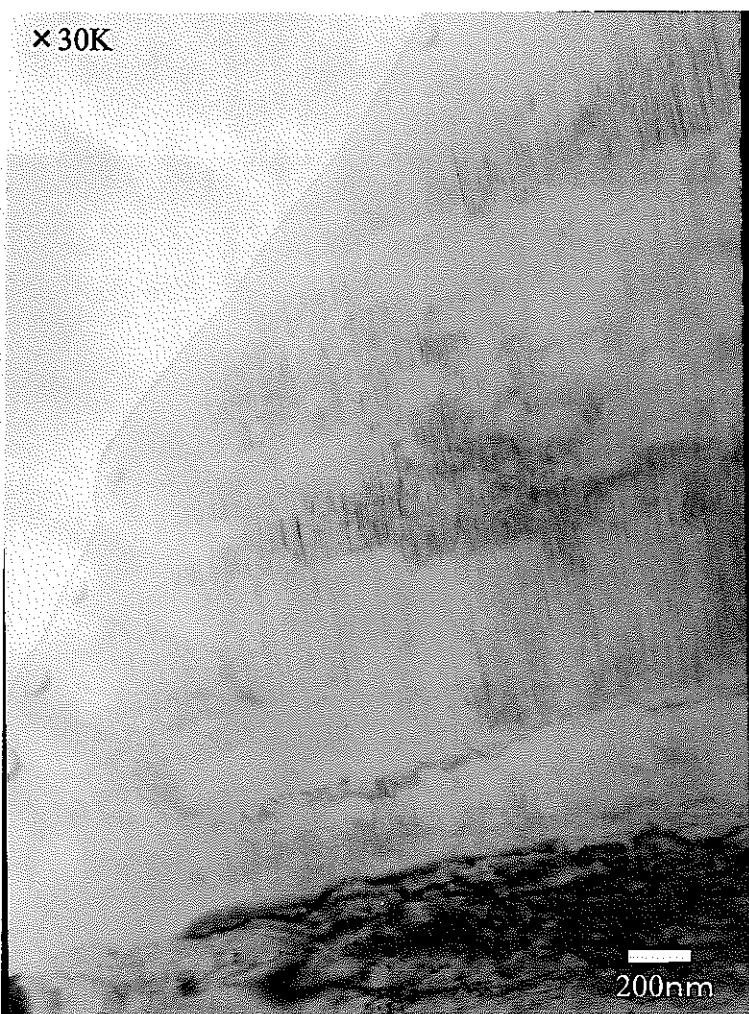


図3-47 Cイオン照射SiC（試料9-3）の組織写真。
照射条件：Cイオン25MeV、照射量 $0.8 \times 10^{14}/\text{cm}^2$ 、照射温度480°C

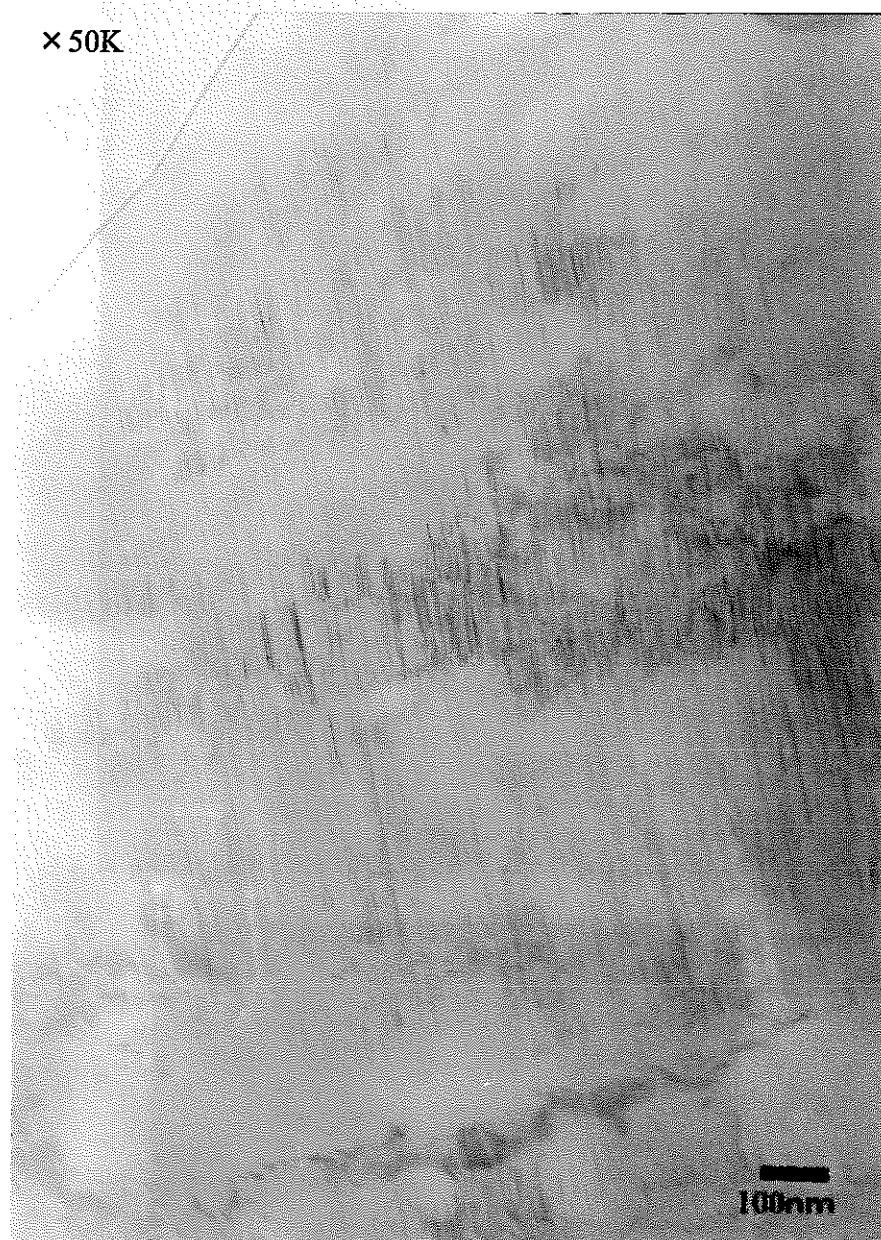


図3-48 Cイオン照射SiC（試料9-3）の組織写真。
照射条件：Cイオン25MeV、照射量 $0.8 \times 10^{14}/\text{cm}^2$ 、照射温度480°C



図3-49 Cイオン照射SiC（試料9-3）の組織写真。
照射条件：Cイオン25MeV、照射量 $0.8 \times 10^{14} / \text{cm}^2$ 、照射温度480度

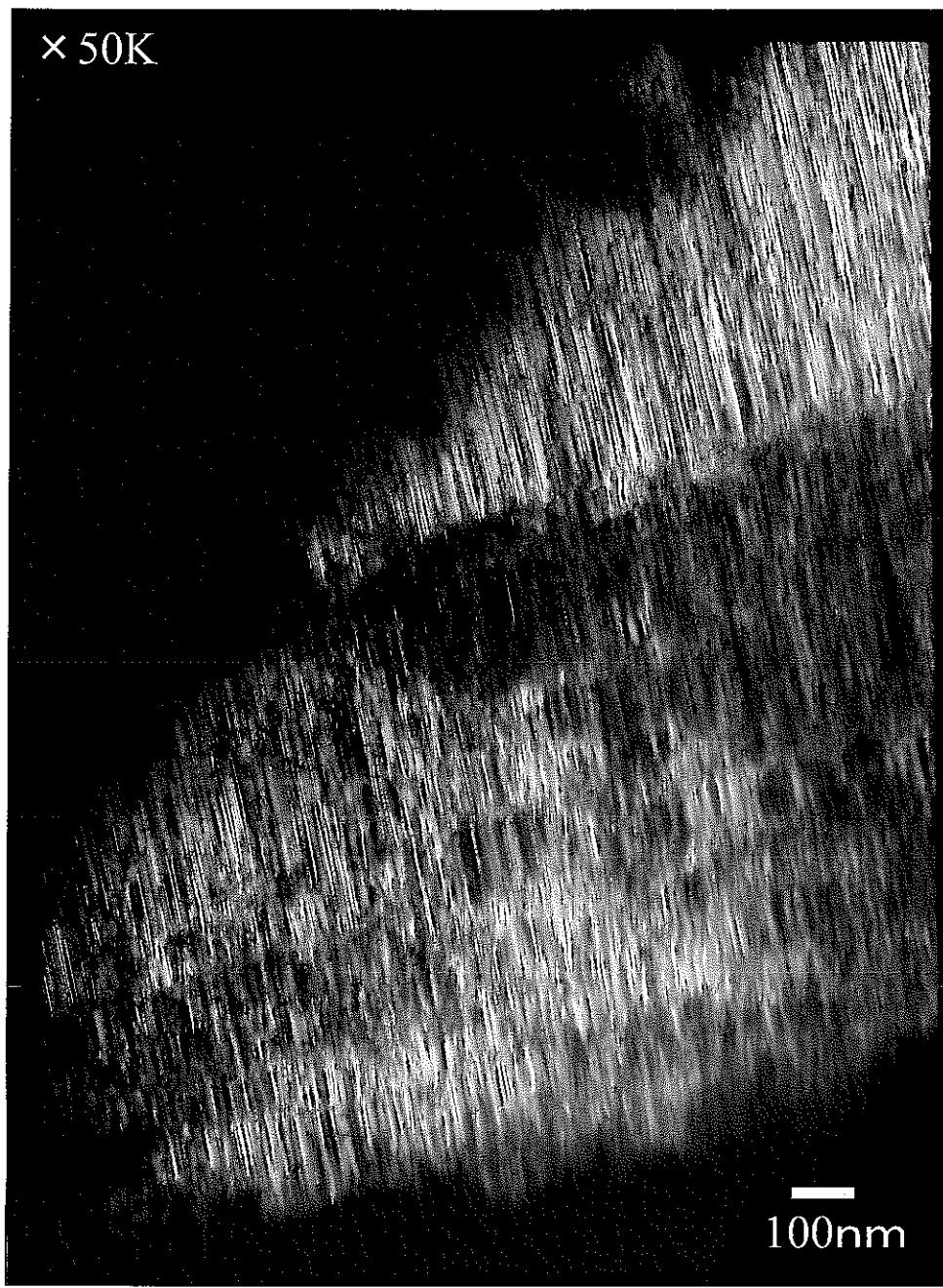


図3-50 Cイオン照射SiC(試料9-3)の組織写真(暗視野像)。
照射条件: Cイオン25MeV、照射量 $0.8 \times 10^{14}/\text{cm}^2$ 、照射温度480°C

×400K

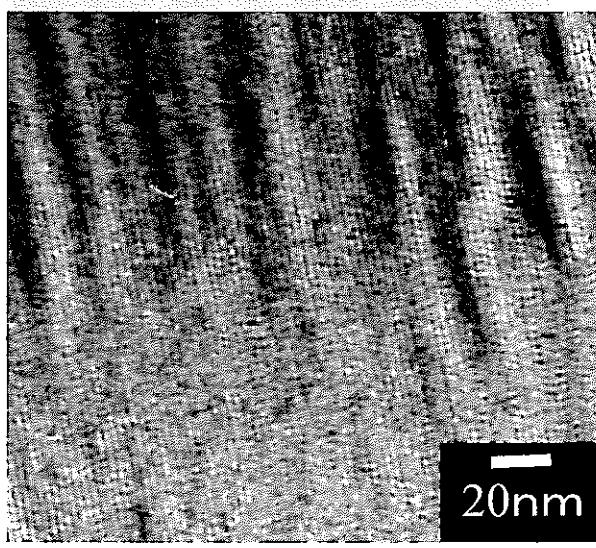
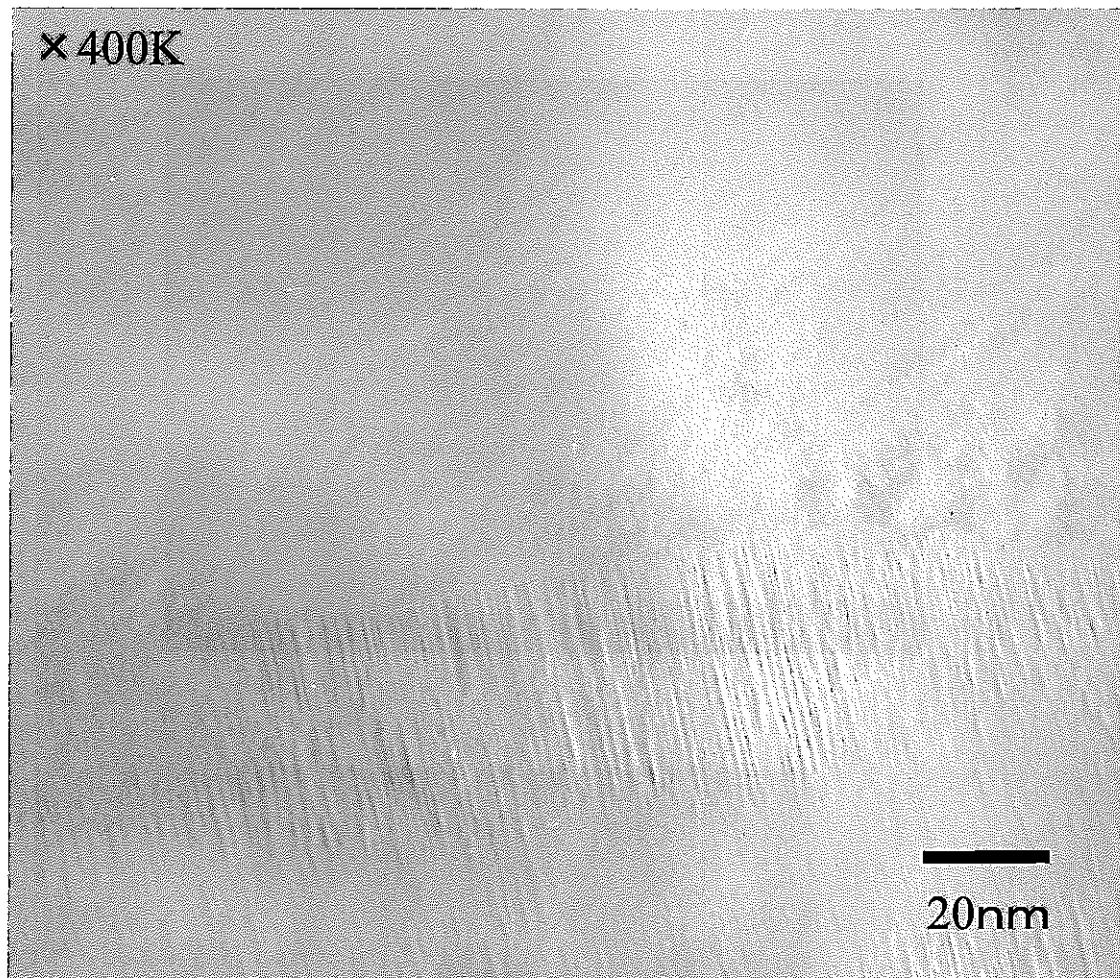
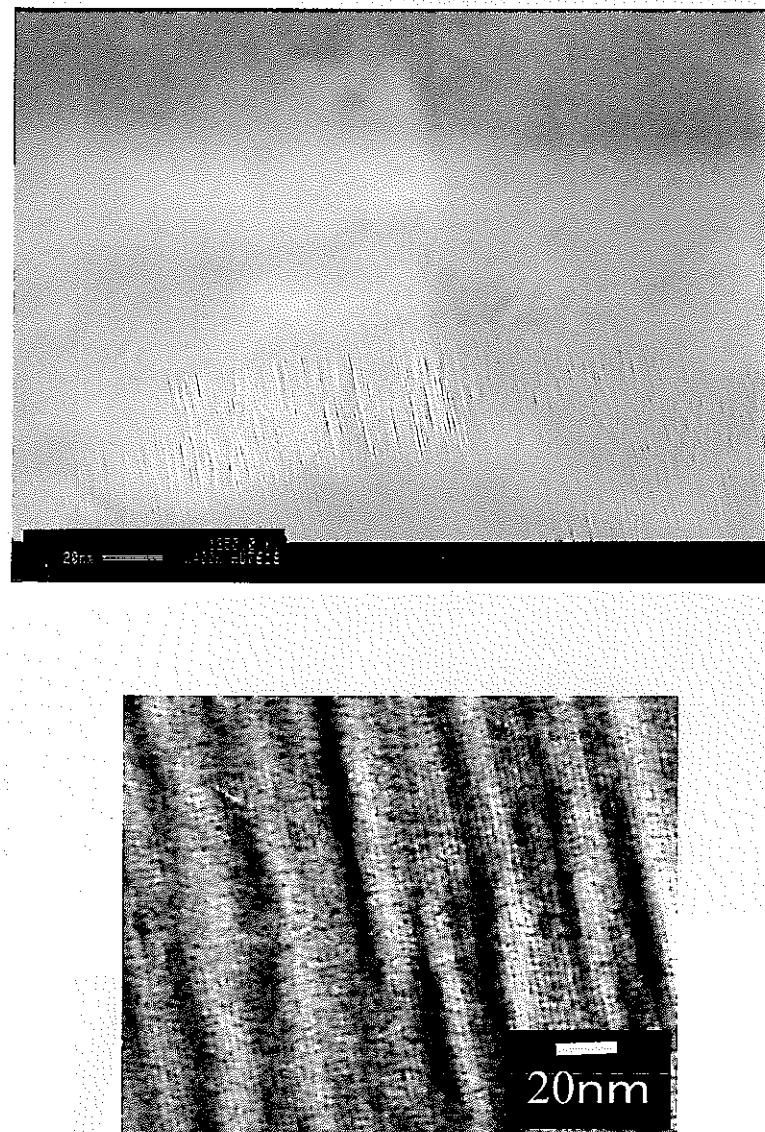
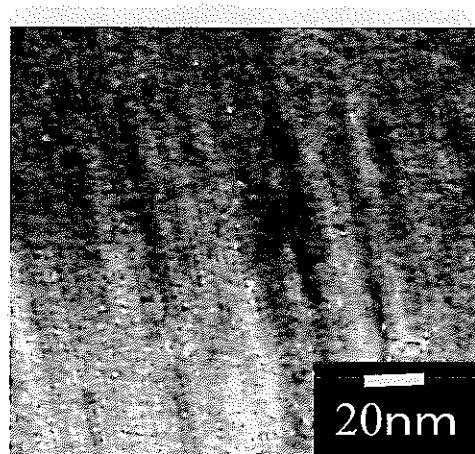
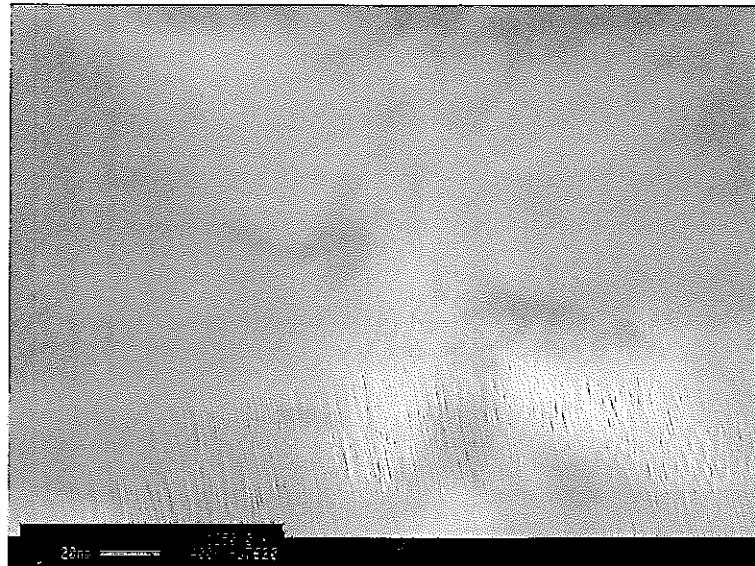


図3-51 Cイオン照射SiC(試料9-3)に電子線照射したときの組織写真。
電子線照射時間: 0 min



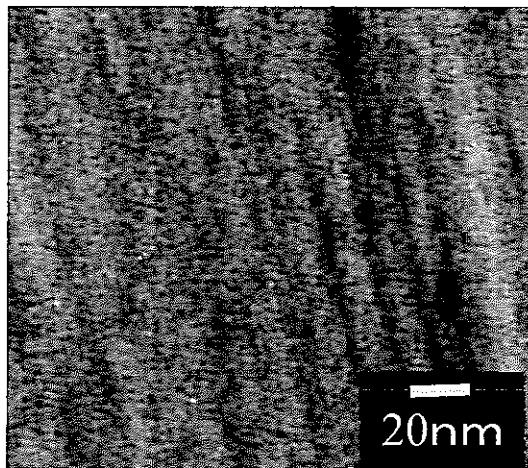
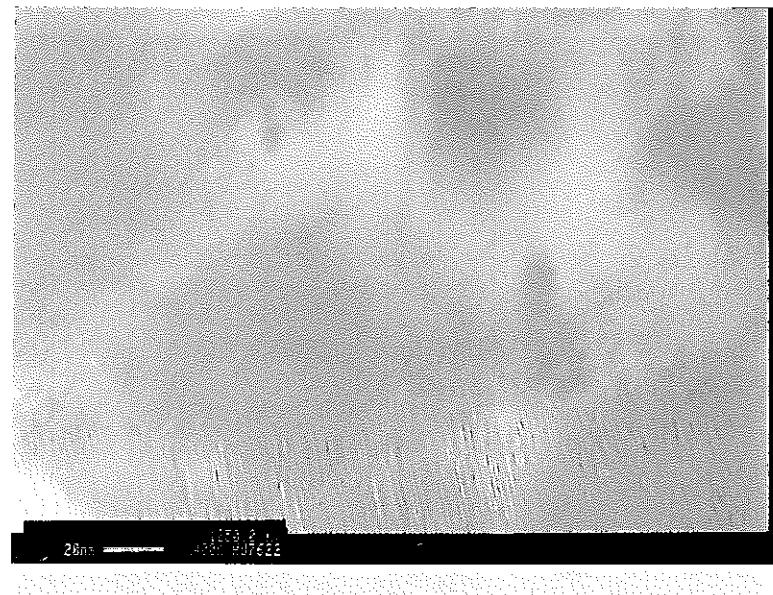
電子線照射実験(3min40s)

図3-52 Cイオン照射SiC（試料9-3）に電子線照射したときの組織写真。
電子線照射時間：3 min 40 s



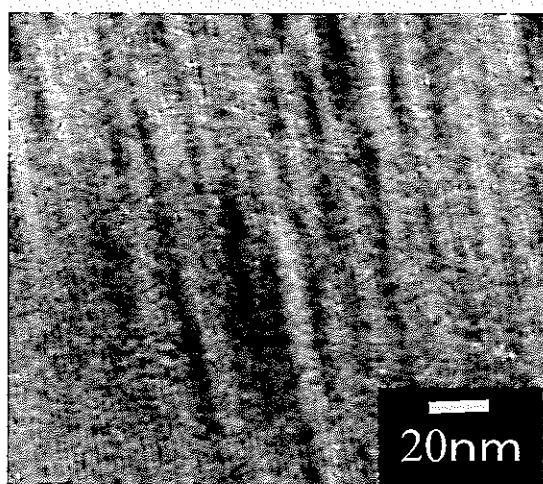
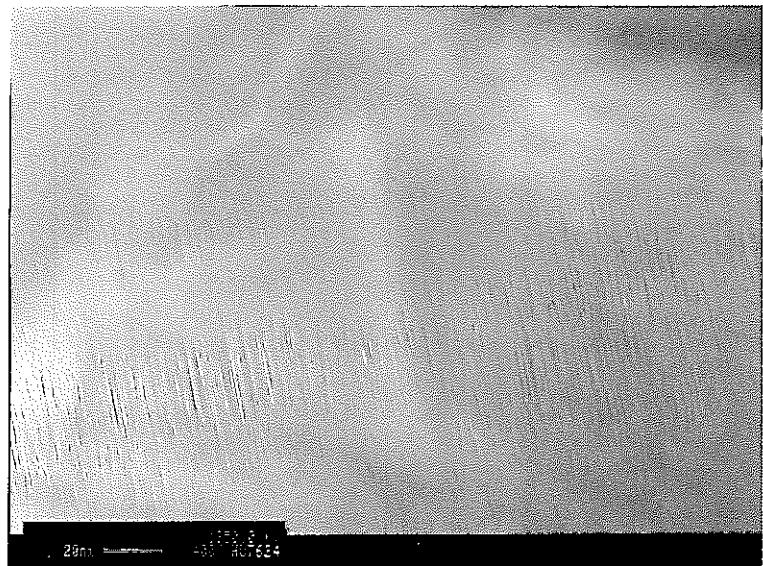
電子線照射実験(8min)

図3-53 Cイオン照射SiC（試料9-3）に電子線照射したときの組織写真。
電子線照射時間：8 min



電子線照射実験(15min)

図3-54 Cイオン照射SiC（試料9-3）に電子線照射したときの組織写真。
電子線照射時間：15 min



電子線照射実験(30min)

図3-55 Cイオン照射SiC(試料9-3)に電子線照射したときの組織写真。
電子線照射時間：30 min

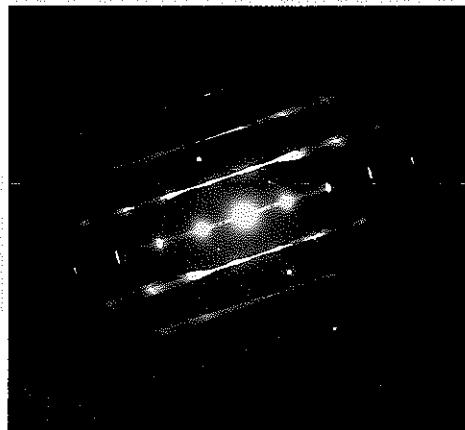
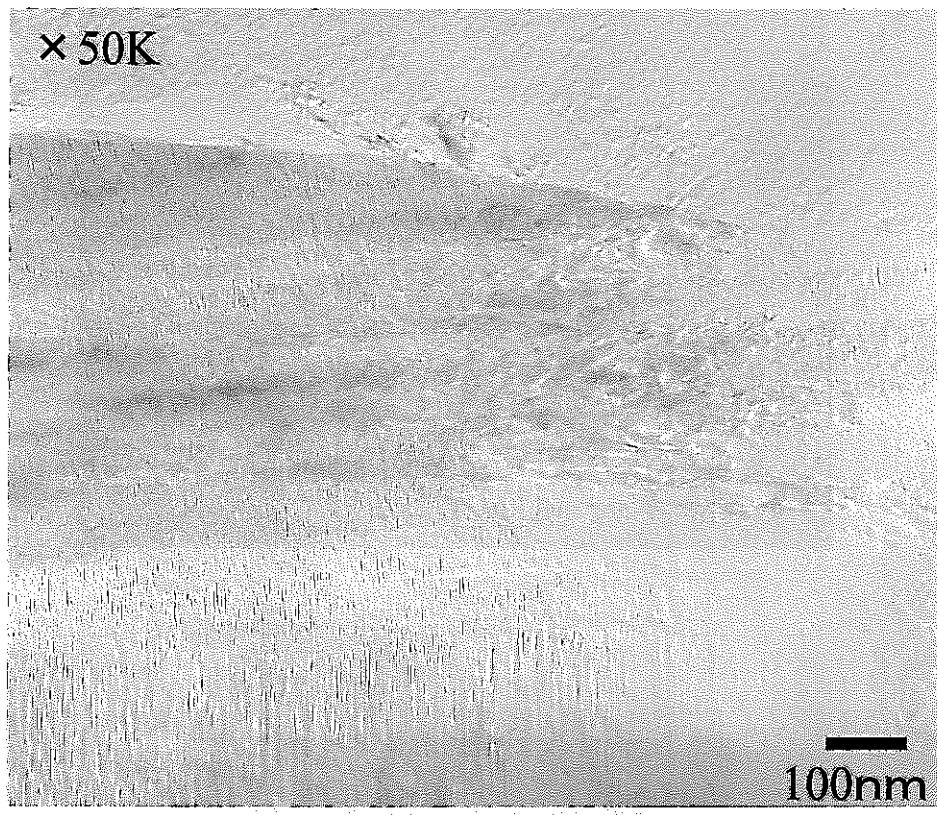


図3-56 Cイオン照射SiC(試料9-3)に電子線照射したときの組織写真。
電子線照射時間：30 min

SiCアニール実験

実験試料：照射9-3SiC

照射条件 イオン:C4+

エネルギー:25MeV

照射量: 0.8×10^{14} (ion/cm²)

実験手順

照射9-3SiC試料

電子線照射(30min)

アニール(600°C)

図3-57 イオン照射SiCのアニール実験手順

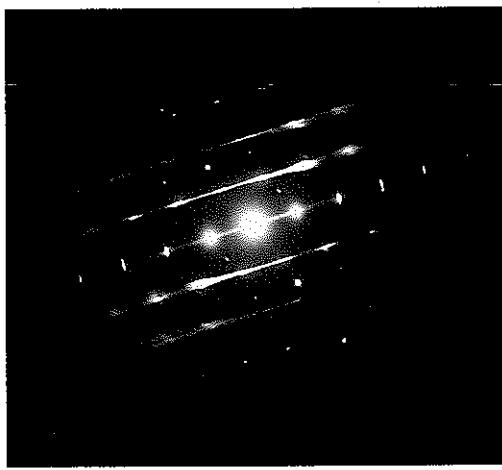
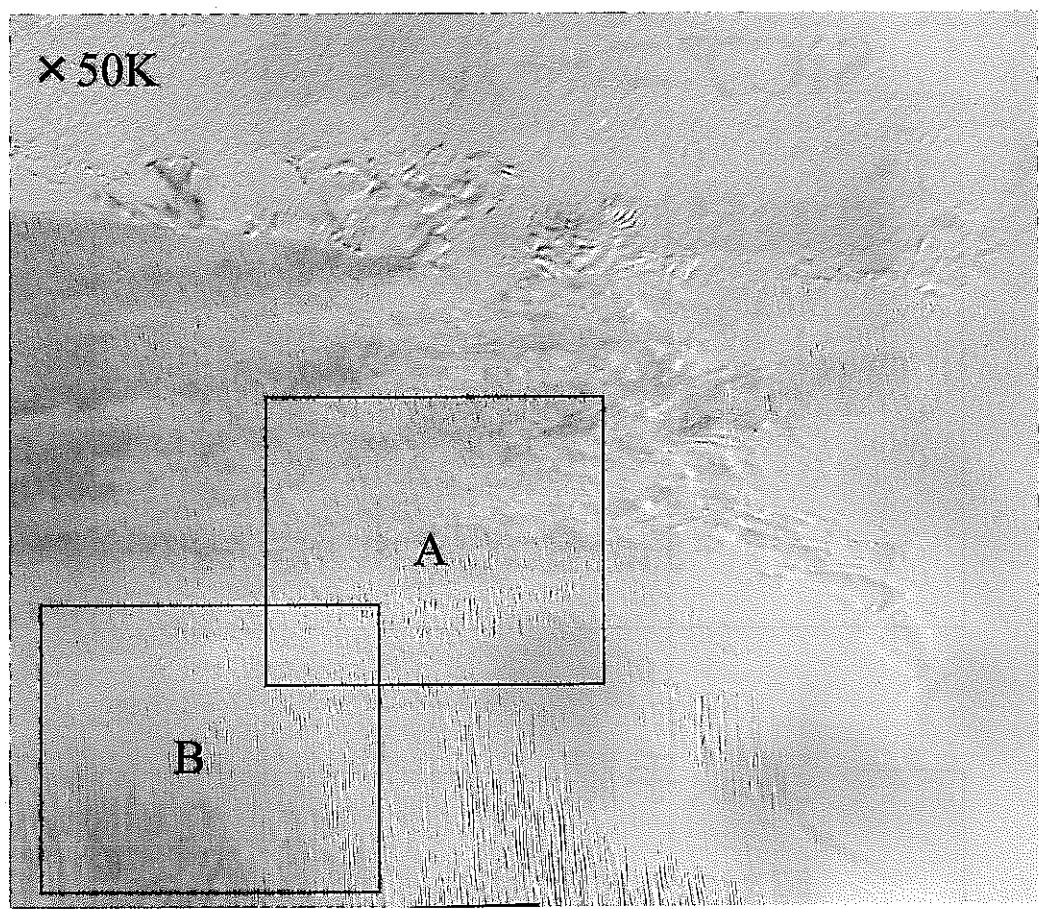
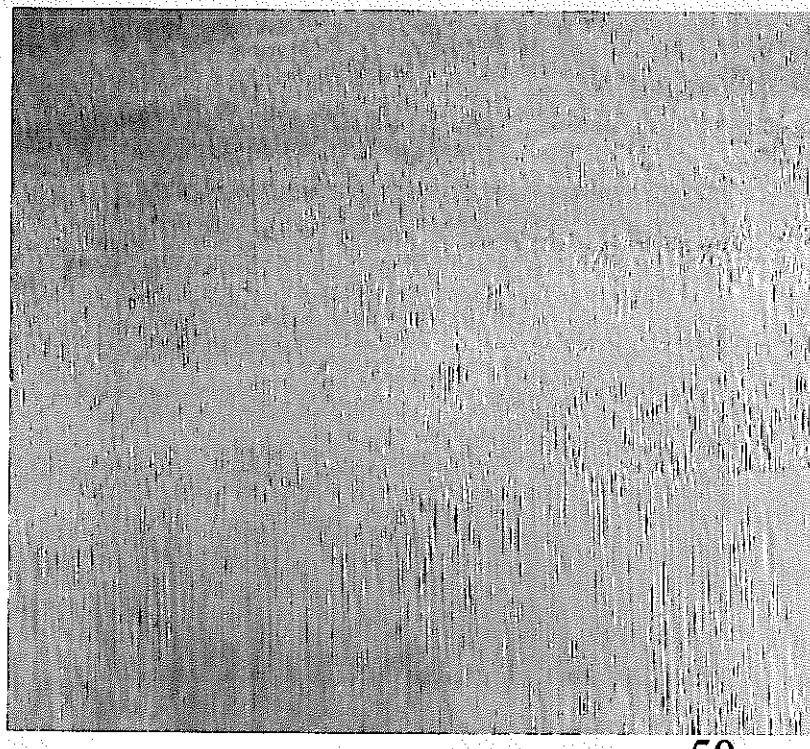


図3-58 イオン照射SiCに追加電子線照射し、600°Cでアニールしたときの組織写真



拡大図 A



拡大図 B

図3-59 イオン照射SiCに電子線照射し、600°Cでアニールしたときの組織写真

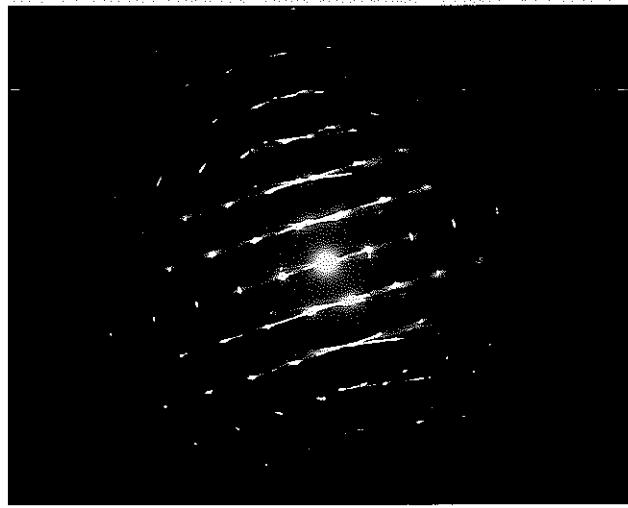
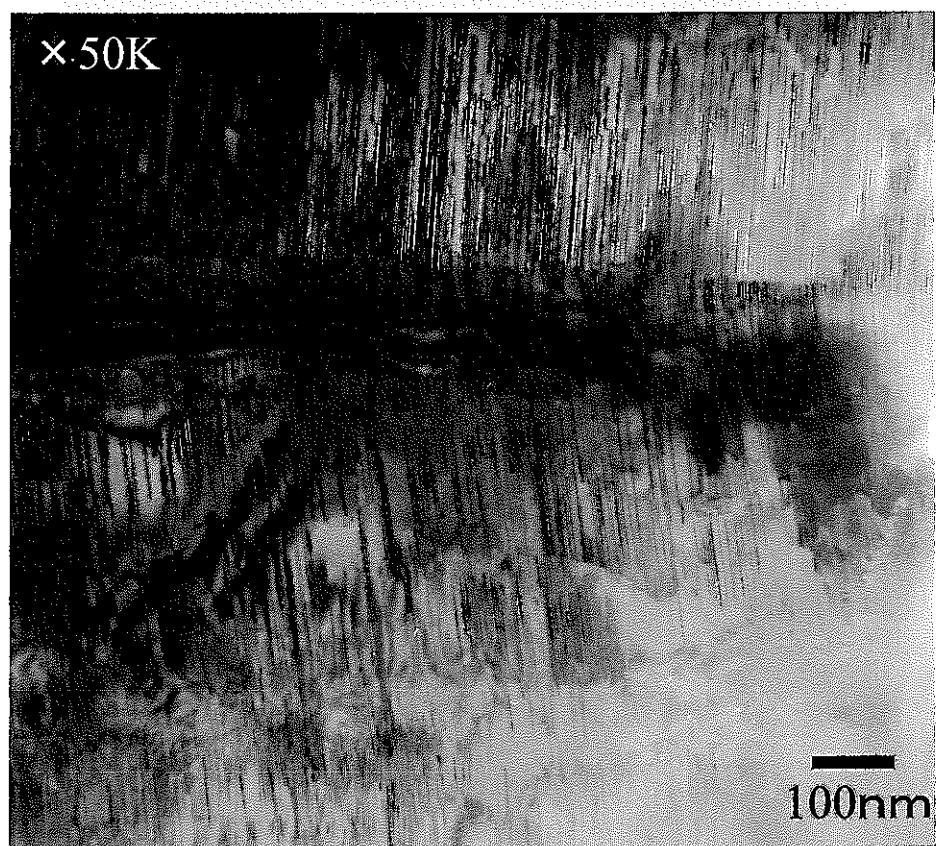


図3-60 イオン照射SiCに追加電子線照射し、600°Cでアニールしたときの組織写真



図3-61 イオン照射SiCに追加電子線照射し、600°Cでアニールしたときの組織写真

第4章 考察

4-1 B_4C の微細結晶化と母相の照射効果

4-1-1 B_4C の微細結晶化挙動

照射した B_4C に現れる微細結晶は Fe-rich であることから、不純物の Fe が関連した微結晶形成と推定される。その析出挙動は、低照射・低温と高照射・高温を比較した場合、後者の方が微細結晶が明確であることから、照射量の増加とともにこの微結晶化現象は進行するものと考えられる。また、同一の試料中でも、低照射量の部分にはこの微細結晶が存在する粒としない粒があった。

前述の通り、低照射量の領域では、微細結晶は粒によってばらつきは見られるものの、ほぼ損傷部全体に存在する。しかし、大きく異なる点は、低照射量では母相が非晶質化していないことである。このことは、母相が照射により非晶質化する前に、Fe-rich の微細結晶の析出が開始していることを示している。

4-2 ヘリウムの挙動

中性子照射した炭化ホウ素のヘリウム生成挙動はこれまでに多くの研究が行われている。Maruyama 等の研究 [2] では、生成されたヘリウムは炭化ホウ素中に蓄積し、ある一定の照射量を超えるとヘリウムが原因でクラックが発生し、やがてヘリウムの脱離が始まる。この過程がボロン炭化物の粉体化の原因と報告されている。また、中性子照射した炭化ホウ素の微細構造観察の報告では、結晶格子の底面にヘリウムが集積し、バブル状の連結が生じてやがてクラックに発展するものと推測されている。

今回のイオン照射の結果からはヘリウムのバブルは明確には観察されなかったが、ヘリウムのバブル関連すると思われるネットワーク構造が確認された。この構造と Fe-rich 析出は重なっていないと判断されたため、このネットワークは、Fe-rich 析出が成長していく過程でヘリウムがマトリックスに排出される過程で生じるものと推察される。中性子照射の場合の結果のように方向性を持った構造にならない理由として、ヘリウムの濃度が局部的に高くなり、バブルが形成

される照射量では、母相がすでに非晶質化していることが原因と推定される。なお、この照射誘起非晶質化の上限の温度は、通常は損傷速度に敏感であり、イオン照射 (10^{-2} から 10^{-3} dpa/s) の場合は高くなり、中性子照射 (10^{-7} から 10^{-9} dpa/s) の場合は低くなることが予想される。今後、この非晶質化の損傷速度依存性も重要な因子であろう。

4-3 SiC の照射効果

本研究の範囲では SiC は B4C に比べて非晶質化しづらいことが示された。一般に SiC は低温では比較的容易に非晶質化する報告もあるため、今後も詳細を検討する必要がある。特に、今回の試料は 3C タイプの結晶構造であったが、従来中性子照射などでよく調べられている SiC は別の多形の 6H タイプのものであり、そのような結晶構造の場合は照射による非晶質化では別の挙動となる可能性もある。

今回のイオン照射では、中性子照射した試料で見られていたようないわゆる黒点損傷のような小さな照射欠陥が観察されなかった。これはイオン照射量が低いものについて観察をおこなったことによるものと思われ、今後さらに照射量の高い試料について観察をおこなう必要がある。また、アニール実験のところでは、電子線を追加照射（約 3dpa）したが、それでも明瞭な欠陥構造が現れてこなかった。照射領域の温度的な安定性は限定された範囲の結果しか得られなかつたが、実験の範囲では大きな変化はなく、今回の試験では SiC の照射組織は安定であった。

第5章 まとめ

炭化ホウ素について:

1) 製法に依存する不純物の分布

マグネシウム還元材と炭素還元材では不純物の存在に違いがあった。すなわち、炭素還元材には不純物 Fe の不均一性がなかったのに対して、マグネシウム還元材には三重点に Fe の偏析が 100nm 程度の粒として存在していた。粒径には違いがなかったことから、この不純物の分布の相違は両材料の照射効果に影響すると推定された。

2) 照射による構造変化

本研究の 2 つの照射条件において、損傷領域で照射誘起非晶質化が生じた。また照射損傷領域では Fe-rich の微結晶が析出し、照射量と温度の増加とともに成長する傾向を示した。さらに、高温・高照射量ではヘリウムのバブルの連結と見られるネットワーク構造が確認された。

3) 粉体化への影響

これまでボロン炭化物の照射による粉体化はヘリウムバブルの形成が主原因と推定されている。本研究の場合、ヘリウムのネットワーク構造が現れ、この形態は中性子照射の場合と大きく異なるが、この原因は母相が非晶質化することによると推定した。したがって、粉体化とヘリウムの挙動は関係があるものと判断される。

炭化ケイ素について :

1) 本研究の範囲では SiC は B₄C に比べて非晶質化しにくい事がわかった。照射領域の温度的な安定性は限定された範囲の結果しか得られなかつたが、実験の範囲では大きな変化はなく、照射組織は安定であった。

参考文献

1. 丸山忠司：セラミックスの照射影響に関する基礎調査報告書 (2000)
2. Maruyama , Onose , Kaito , Horiuchi : J Nucl Sci Technol
VOL.34,NO10,p89-96 (1997)
3. Stoto.T , Housseau.N , Zuppiroli.L :J Appl Phys,VOL.68,NO7,p3198-
3206 (1990)
- 4 Froment. K , Gosset. D , Gue'ry.M , Kryger. B , Verdeau. C :Euro
Ceram2,vol3,p2487-2491 (1991)
5. C. Goodman 原子力工学 (1959)
6. 鈴木修一：北大工, 材料工学科卒業論文 (1999)
7. 塩谷悦子：北大工, 材料工学科卒業論文 (2000)
8. J.Aihara , K.Hojou , S.Furuno , M.Ichihara , K.Hayashi : Nuclear
Instruments and Methods in Physics Research B 166-167(2000)379-384