

## 解 説 (I)

# PKA スペクトルと中性子照射損傷パラメータ

(日本原子力研究所) 有賀 武夫

### 1. はじめに

原子炉等で使われる材料を放射線で照射したときの照射量の単位として原子当りのはじき出し数 dpa (displacements per atom の略) は、現在かなり一般的に使用されている。材料の照射損傷の研究では、中性子のほかに加速イオンや電子線などの粒子線の照射実験が行われるので、異なる放射線で照射した材料の照射効果を比較する場合に dpa という単位が優れていると考えられていることを示している。広く使用されていること自体は結構なことと考えられるが、必ずしも手放しで喜んで歓迎されることばかりではない。不用意に使用されて返って「単位」としての整合性が失われて行く可能性が無いとは言えないことや、dpa が照射量の「単位」として適当とは言えないという考え方を別にしても、照射量が dpa で表わされたからと言って照射損傷研究の問題がすべて解決する訳ではないからである。

中性子照射の場合 dpa 評価の基礎となるのは、すべての型の核反応断面積とそれぞれの核反応による第一次反跳原子 PKA (Primary Knock-on Atom) のエネルギー・スペクトルである。PKA スペクトル WG では、JENDL に基づいて PKA スペクトル、はじきだし断面積 (dpa 断面積) および Kerma factor (Kinetic energy release in matter) の計算・評価を行い標準データファイルを作成する作業を進めている。WG の作業内容とこれらの中性子損傷パラメータの概要については飯島氏が本誌 No. 37(1990) に紹介している。

ここでは、PKA スペクトルが与えられたとき、はじき出し断面積の計算の基礎になっている LSS 理論<sup>1)</sup> に言及しながら、はじき出し断面積の評価およびその利用に関する課題や留意点について述べるとともに、PKA スペクトルが材料の照射損傷解析研究の中で担う役割に関して、この分野における最近の考えの一端を私見を交えながら紹介する。

### 2. 中性子照射効果と損傷パラメータ評価の背景・意義

中性子照射した材料の照射効果を整理するとき、IAEA の専門家によって原子当りのはじき出し数 dpa の計算に関する推奨案<sup>2)</sup> が提案されるまでは、0.1 MeV または 1 MeV 以上の中性子フルエンスが照射量の単位として一般的に利用されていた。しかしこれより前の 1967年に、723 K 以上の高い温度で  $3 \sim 5 \times 10^{26} / \text{m}^2$  まで中性子照射した高速増殖炉の燃料被覆管材料の 316 ステンレス鋼中に原子空孔が集合してできたボイドが発見される<sup>3)</sup> という事件が起きる。このような高温照射では照射で造られた格子欠陥は回復し易く、原子空

孔がボイドとして析出することは予想外のことであった。このボイドによる材料の膨張（スエリング）が燃料集合体の健全性に重大な問題を引き起こすことが認識されると、ボイドスエリングの機構を解明すると同時に耐スエリング性に優れた材料を開発することを目指した研究が世界的に行われるようになった。さらに、1970年代後半以降、DT 核融合反応を用いたトカマク炉のプラズマ物理の進展に伴いトカマク炉の設計研究が進むと、炉の第一壁構造の中性子照射損傷に耐える材料の開発が、核融合炉の成立のためのもう一つの主要で困難な関門であるとの認識が一般的になり、耐照射性に優れた材料の開発を目的とした照射損傷研究が重要視されるようになった。現在、照射損傷の研究では高速実験炉や材料試験炉を用いた中性子照射実験ばかりでなく、短時間に大きなはじきだし数密度を引き起こすことのできる加速イオンビームの照射実験や、単純なはじきだし原子を高い密度で造りながら損傷組織の変化をその場観察できる超高圧電子顕微鏡を用いた照射実験が盛んに行われている。

これまでの研究で照射損傷の概略は次のように理解されている。中性子（一般には照射粒子）と結晶材料を構成する格子原子の原子核が衝突したとき、格子原子の受ける反跳エネルギーが高いと原子は格子位置からはじき出され、格子中に原子空孔と格子間原子から成る点欠陥の対が生成される。この一対は照射によって造られる格子欠陥の最も単純な欠陥であってフレンケル欠陥と呼ばれる。安定に存在できるフレンケル欠陥を少なくとも一対生成するのに必要な最小の反跳エネルギーをはじき出しエネルギー  $E_a$  と呼び、数種類の純金属について  $E_a$  の値は実験的に測定されている。PKA のエネルギーが  $E_a$  に比べて充分高いと、格子原子相互間で二次、三次、… のはじき出しの連鎖（カスケード）を生じさせる。その様子を Fig. 1<sup>4)</sup> に示すが、中心部に格子原子が欠乏する領域とそれを取り囲む格子間原子数の多い領域とから成る高密度な欠陥生成が起こる。このような連鎖的な原子の弾き出しで生成したままのカスケード損傷は極めて不安定であり  $10^{-12}$  s オーダの短時間内に非熱活性的過程で多くの欠陥は再結合して消滅するが、カスケードの中心部から離れた格子間原子及び中心部に残留する空孔の集合体など、かなりの格子欠陥が生き残る<sup>4)</sup>。

融点を  $T_m$  として  $T_m/3$  以上の照射温度では残留した欠陥のうち熱活性的過程で移動可能な点欠陥はさらに再結合して消滅すると同時に、同じ型の欠陥すなわち格子間原子同士は合体して転位ループを形成するとともに、空孔は三次元的に集合してボイドを形成する。

また数 MeV 以上の高エネルギー中性子との核変換反応で生成するヘリウムは、はじき出して造られる欠陥と複雑に相互作用し dpa 当りに適度な割合で生成すると、著しくボイド形成を促進しスエリングを助長したり、高温では結晶粒界に集まってヘリウム気泡を形成し材料を脆化させる。一方、照射で造られた格子間原子はかなり低い温度でも十分に移動可能であり、荷重のかかっている材料の応力場では、転位ループの非等方な生成と成長が起こる。その結果結晶格子中に新たな結晶面が造られたり、転位線の非等方な運動が促進

され、照射下で応力場の存在する材料の寸法変形（照射誘起クリープ）が生じる。熱的クリープ変形が問題にならない低い温度で、照射誘起クリープ変形が大きくなる。

ポイドによるスエリングや照射クリープなどの寸法変化および照射脆化などの照射効果は、高速炉の構造材料や燃料被覆管材料、核融合炉の第一壁構造材料の使用寿命を決める要因である。核融合炉では、最高 14 MeV の高いエネルギー中性子との核反応で水素やヘリウムなどのガス原子が多量に生成すると同時に、PKA のエネルギーが数百 keV と高くなるのでカスケード損傷が顕著になる。14 MeV 中性子で低い照射量まで照射した金属試料中の損傷組織の観察によって、高エネルギーの PKA は、複数の小さなサブカスケードに分割されたカスケードを形成することが確認されている<sup>5)</sup>。しかし、実用的な高い照射量まで核融合炉中性子を照射できる照射施設は現在のところ存在しないので、核融合炉中性子照射によるカスケード損傷と高い濃度のヘリウム原子が、スエリングや照射クリープなど材料の照射効果にどのような影響をもたらすかについては、未だよく分かってはいない。核融合炉で使われる耐照射性に優れた材料の開発研究は、高速実験炉での使用経験が豊富な主に 316 ステンレス鋼やこれの改良鋼を対象として、高速実験炉などの核分裂炉中性子の照射実験の枠内で行われてきた。特に、核融合炉中性子の照射で多量に生じるヘリウムの生成を模擬することを目的として、 $^{60}\text{Ni}(n, \gamma)^{60}\text{Ni}(n, \alpha)^{56}\text{Fe}$  の二段階の核反応でヘリウムを生成する核反応断面積が熱中性子に対して大きいことを利用して、熱中性子束レベルが高い熱中性子炉の中性子束や、dpa 当りのヘリウム生成率が核融合炉中性子の照射と同等になるように中性子スペクトルを調整した原子炉中性子束を用いた照射実験が行われてきた。

このような核分裂炉中性子の照射実験データから、材料を核融合動力炉の中性子で実用的な照射量まで照射したときの、材料特性の変化を損傷機構の理解に基づいて精度よく予測することが要求されている。加速イオンや超高压電顕を用いた電子線照射実験は損傷機構の解明に大きく役だってきたが、異なる粒子線束で照射したときの照射効果を、 $n/m^2$  や  $e^-/m^2$  などの粒子線フルエンスを照射量の単位として整理することは、照射効果を比較し損傷機構の理解を深める上で実用的ではない。あるエネルギーの PKA が幾つのはじきだし原子を造るかという評価方法に基づいてそれぞれの照射による原子当りの平均のはじきだし（回）数を照射量の単位とすることは極めて自然な考えと言える。このことはこれまでの照射損傷研究の結果今だから言えることである。しかし、核融合炉中性子による照射効果を予測する場合に、照射量を dpa で表わすだけではもちろん十分とは言えず、原子のはじきだしで生成される欠陥の濃度と構造、例えば移動可能な点欠陥とクラスター化した欠陥の比などを、照射した中性子のエネルギースペクトルの関数として整理し、核分裂中性子の照射でこれまで得られた照射効果に関する実験データを定量的に解釈できる損傷効果のモデルを構築することが重要であると考えられるようになってきた。このためには、任

意のエネルギースペクトルの中性子で照射した材料中の PKA スペクトルが評価できるようになっていることが必要である。

### 3. はじき出し断面積, 残留欠陥生成断面積の評価

高いエネルギーの PKA が造り出すはじき出しのカスケード損傷は, Fig. 1 に示した描像について二体間衝突近似の計算を MARLOWE コード<sup>6)</sup> などで実行すれば, 1 個の PKA 当り何個の格子原子がはじき出されるかを求めることができる。しかし, 中性子照射した場合の PKA は普通広いエネルギー範囲に分布するので, 与えられた中性子スペクトルで照射した材料中のはじき出し損傷率を MARLOWE コードのようなカスケード損傷計算によって求めることは現実的ではない。

現在, 金属の放射線照射によるはじき出し原子数の評価で標準的に使われている方法は, Lindhard<sup>1)</sup> らによって行われた仕事 (LSS 理論) に基づいている。LSS 理論では, E なるエネルギーをもった原子が, 同種原子から成る固体中の標的原子と衝突を繰り返しながら停止するまで運動する間に, 電子雲で遮蔽された原子核のクーロンポテンシャルを介した標的原子との弾性衝突によって, 固体中の原子に与える運動エネルギーを評価する。このとき, 原子の励起やイオン化などの非弾性散乱によるエネルギー損失も考慮に入れる。後での議論のためにはじき出し原子数計算の基礎となっている理論の概要を以下に述べる。

#### 3.1 LSS 理論の適用とはじき出し損傷関数

同種原子からなる固体中をエネルギー E の原子 (PKA に相当) が dR の距離運動する間に, 固体中にひき起こされる物理的変化量を  $\Psi(E)$  とすると, 『衝突前の  $\Psi$  は衝突によってひき起こされた  $\Psi$  と衝突しないで残っている  $\Psi(E)$  の和に等しい』という衡り合いの式

$$\Psi(E) = NdR \int d\sigma_{n..} \{ \Psi(E - T_n - \sum_i T_{.i}) + \Psi(T_n - U) + \sum_i \Psi_{.}(T_{.i} - U_i) \} + (1 - NdR \int d\sigma_{n..}) \Psi(E),$$

から,  $\Psi(E)$  について

$$\int d\sigma_{n..} \{ \Psi(E - T_n - \sum_i T_{.i}) - \Psi(E) + \Psi(T_n - U) + \sum_i \Psi_{.}(T_{.i} - U_i) \} = 0 \quad (1)$$

という照射損傷の基礎式が導かれる。ここで,  $\sum_i$  は i についての和, N は原子数密度,  $d\sigma_{n..}$  は標的原子に  $T_n$  なる運動エネルギーとともに i 番目の電子に  $T_{.i}$  なるエネルギーを与える衝突とイオン化の断面積である。衝突の結果, 着目している粒子のエネルギーは  $(E - T_n - \sum_i T_{.i})$  に減少して物理的変化に  $\Psi(E - T_n - \sum_i T_{.i})$  の寄与をする。同時に, 標的原子はエネルギー U の結合を切って  $T_n - U$  のエネルギーで運動し,  $\Psi(T_n - U)$  の寄与をする。一方,  $T_{.i}$  のエネルギーを得た電子は  $U_i$  なるイオン化エネルギーを差し引いた  $T_{.i} - U_i$  で運動するが, これによる寄与は原子の運動による寄与とは異なるので別の記

号  $\Psi_n$  を用いて、 $\sum_i \Psi_{n,i}(T_{n,i}-U_i)$  で表してある。 $(1-NdR \int d\sigma_{n,i})$  は衝突しないで  $E$  で運動する確率である。(1) 式は運動する粒子による物理的変化量  $\Psi(E)$  について線型 (加法的) であって、例えば近接したカスケード間の相互作用や反跳を受けて運動している原子相互間の衝突のような非線型効果、収束置換衝突などの結晶性の効果、近接欠陥の再結合による消滅効果などは考慮していない。

(1) 式にさらに、

- (A) 電子は原子との衝突で反跳原子を造らない、
- (B)  $\Psi(T_n-U) = \Psi(T_n)$  として、原子間の結合は無視する、
- (C) 1 回の衝突で電子に与えるエネルギーは小さく  $T_{n,i} \ll E - T_n$  である、
- (D) 遮蔽クーロンポテンシャルを介した核的衝突と電子との衝突は分離して取り扱える、
- (E) 1 回の衝突では  $T_n \ll E$  である、

などの近似を導入する。すなわち、 $\Psi_n$  の項を無視するほか、

$$\Psi(E - T_n - \sum_i T_{n,i}) = \Psi(E - T_n) - (d\Psi/dE)_{E-T_n} \cdot \sum_i T_{n,i}, \quad (2)$$

さらに、

$$d\sigma_{n,i} = d\sigma_n + d\sigma_e, \quad d\sigma_n \cdot \sum_i T_{n,i} = 0, \quad (3)$$

$$\int (d\Psi/dE)_{E-T_n} \cdot d\sigma \cdot \sum_i T_{n,i} = \Psi'(E) \int d\sigma \cdot \sum_i T_{n,i} = \Psi'(E) S_e, \quad (4)$$

の関係を用いて、近似式

$$\Psi'(E) S_e(E) = \int d\sigma_n \{ \Psi(E - T_n) - \Psi(E) + \Psi(T_n) \} \quad (5)$$

が得られる。ここで、 $d\sigma_n$  は核的衝突断面積、 $d\sigma_e$  は、 $T_{n,i}$  に対応する原子と電子の衝突断面積であり、 $S_e(E) = \int d\sigma \cdot \sum_i T_{n,i}$  は電子的阻止断面積である。Lindhard らは、Thomas-Fermi の原子モデルに基づいて  $d\sigma_n$ 、 $S_e(E)$  を衝突する原子と標的原子の質量 ( $A_1, A_2$ )、原子番号 ( $Z_1, Z_2$ )、標的物質の原子数密度 ( $N$ )、などで普遍的に表わされる換算エネルギー  $\varepsilon$  と換算距離  $\rho$  を使って表し、(5) 式の解を数値計算によって求めた。すなわち、 $a_0$  (Bohr半径  $= h^2 / (4\pi^2 m e^2)$ )、 $Z^{2/3} = Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3}$  によって、遮蔽半径  $a$  を  $a = 0.8853 a_0 Z^{-1/3}$  と表わせれば、無次元化された換算エネルギー  $\varepsilon$  と換算距離  $\rho$  は、

$$\varepsilon = E \cdot a A_2 / [Z_1 Z_2 e^2 (A_1 + A_2)], \quad \rho = R N A_2 \cdot 4\pi a^2 A_1 / (A_1 + A_2)^2 \quad (6)$$

で表わされる。計算に使われた  $d\sigma_n$  について  $S_n(E) = \int d\sigma_n T_n$ 、及び  $S_e(E)$  を  $\varepsilon$  と  $\rho$  の関係として Fig. 2<sup>1)</sup> に示す。ここで、 $(d\varepsilon/d\rho)_n$ 、 $(d\varepsilon/d\rho)_e$  は  $\varepsilon$  と  $\rho$  で表した核的阻止断面積、電子的阻止断面積である。

(5) 式の解はエネルギー  $E$  の原子が固体中を運動して停止するまでの間に核的衝突によって固体中の原子に与える運動エネルギーを表す。 $\varepsilon$  を使って表した (5) 式の解  $\nu(\varepsilon)$  を Fig. 3<sup>1)</sup> に示す。この解は Fig. 2 の  $S_e(E)$  が、原子の速度 ( $\varepsilon^{1/2}$ ) に比例するエネルギー領域について求めたものである。Bohr 速度を  $V_0 (= 2.18 \times 10^{10} \text{ m/s})$  とすると、原子の速

度  $V$  が  $V < V_1 \sim V_0 Z_1^{2/3}$  の領域では  $(d\varepsilon/d\rho) = k\varepsilon^{1/2}$  が成立する。ここで  $k$  は原子番号  $Z_1, Z_2$ , 質量  $A_1, A_2$  などによって表される比例定数であり,  $0.1 \sim 0.2$  の間の値をとり, 同種原子の場合,

$$k = 0.133 Z_1^{2/3} A_1^{-1/2} \quad (7)$$

と表される。 $V_1$  は原子番号  $Z_1$  の原子における電子の平均速度であり,  $V < V_1$  の条件は原子がほとんど中性原子とみなせるエネルギーの上限  $E_{lim}$  を示すもので,

$$E_{lim} = 24.8 Z_1^{4/3} A_1 \text{ (keV)} \quad (8)$$

と表される。 $E_{lim}$  の値は C(炭素)では, 3.3 MeV, Si で 23 MeV, Fe で 101.7 MeV である。 $E_{lim}$  より高いエネルギーにおける原子(イオン)の電子的阻止能は最大値を経てエネルギーの上昇とともに減少し, Bethe-Bloch の式に従う。Fig. 4 にその様子を核的阻止能と併せて模式的に示す。 $E_{lim}$  より高いエネルギー領域では,  $S_e(E)$  を  $\varepsilon$  と  $\rho$  を用いて汎用的に表すことはできない。しかし, LSS 理論の核的阻止断面積はエネルギーが高いところで Rutherford 散乱則と滑らかに繋がっている。

Fig. 3 からわかるように,  $\varepsilon$  の大きいところでは,  $\nu(\varepsilon)$  は  $k$  に反比例し,  $\varepsilon$  の小さいところでは  $\varepsilon - \nu(\varepsilon)$  が  $k$  に比例することから, Lindhard はフィッティング関数  $g(\varepsilon)$  を使って

$$\nu(\varepsilon) = \varepsilon / (1 + k \cdot g(\varepsilon)) \quad (9)$$

と表し, そのときの  $g(\varepsilon)$  の形を Fig. 5 の曲線で与えた。(9) 式で,

$$\eta(\varepsilon) = \nu(\varepsilon) / \varepsilon = 1 / (1 + k \cdot g(\varepsilon)) \quad (10)$$

とすれば,  $\eta(\varepsilon)$  はエネルギー  $\varepsilon$  の原子の, 固体中でのエネルギー損失全体に対する核的衝突によるエネルギー損失の割合を与える。Robinson<sup>7)</sup> が,  $g(\varepsilon)$  のフィッティング式を

$$g(\varepsilon) = 3.4008 \varepsilon^{1/6} + 0.40244 \varepsilon^{3/4} + \varepsilon \quad (11)$$

と与えたことにより (Fig. 6), 損傷エネルギー割合 (Damage efficiency)  $\eta(\varepsilon)$  は照射損傷計算に広く使われるようになった。軽い Be から重い U までの 7 種類の物質について, 各々の原子が反跳を受けてあるエネルギーで各物質中を運動したときの  $\eta(\varepsilon)$  を, エネルギーの関数として Robinson<sup>7)</sup> が計算した結果を Fig. 7 に示す。図から,  $\eta(\varepsilon)$  が 0.5 以下となって最初に受け取ったエネルギーの 1/2 以上を電子的なエネルギー損失として失うようになるエネルギーは, 軽い元素程低く, C では 15 keV, Al で 85 keV, Cu では 450 keV 以上であることが分かる。

剛体球散乱を仮定すると, エネルギー  $T$  の原子が造りだすはじき出し原子数は,  $E_d$  をはじき出しエネルギーとすれば,  $E_d < T < 2E_d$  のとき 1,  $T > 2E_d$  のとき  $T/2E_d$  となることが Kinchin と Pease<sup>8)</sup> によって示されている。これを使って, エネルギー  $T$  の PKA は,  $T$  を換算エネルギー  $\varepsilon$  で表すと,  $T\eta(\varepsilon)$  が電子的エネルギー損失を差し引いた核的衝突によるエネルギー損失であるから, これを剛体球散乱による原子のはじき出しに使われるエ

エネルギーとみなせば、 $T\eta(\varepsilon)/2E_d$  はエネルギー  $T$  の PKA によるはじき出し原子数を与える。しかし、Cu, Fe, Au 中の 100 keV までのいくつかの PKA について、MARLOWE コードで計算したはじき出し原子数は、 $T\eta(\varepsilon)/2E_d$  に相当する式で計算したはじき出し原子数の 0.86 倍と小さい<sup>6)</sup> こと、その他、剛体球散乱を仮定した場合のはじき出し原子数の 0.84 倍程度に小さくなることが Robinson らによって示された<sup>9)</sup>。そこで、損傷効率と呼ばれる因子  $\kappa$  を乗じ、 $\kappa T\eta(\varepsilon)/2E_d$  によってはじき出し原子数を評価するという提案が、IAEA による「黒鉛、フェライト及びオーステナイト鋼の照射損傷単位に関する専門家会議」で、Norgett, Robinson, Torrens によって提出された<sup>2)</sup>。したがってこの計算方法は、修正 Kinchin-Pease モデルまたは、NRT モデルと呼ばれている。ここでは、 $\kappa=0.8$  とすることが約束された。はじき出し損傷関数と呼ばれる  $\nu_d(\varepsilon)$  に  $\nu_d(\varepsilon)=\kappa T\eta(\varepsilon)/2E_d$  を使用することが ASTM 標準<sup>10)</sup> でも推奨されている。

### 3.2 dpa の評価と利用上の問題点

LSS 理論に基づく  $T\eta(\varepsilon)$  の評価では最大 40 % 程度の誤差が含まれ、低原子番号の物質中の高エネルギー PKA ほど誤差は大きいとされている<sup>11)</sup>。例えば、14 MeV 中性子を照射した炭素 (C) では、弾性散乱によって最高 4.23 MeV の PKA が、また (n,  $\alpha$ ) 反応で最高 5 MeV の反跳エネルギーを受けた Be 原子が生じるが、これらのエネルギーは (8) 式で表わされる LSS 理論の適用できる上限のエネルギーの  $E_{lim}$  を超えているので、NRT モデルで (10) 式によって損傷エネルギー割合を計算すると電子的損失を過大評価する結果、はじき出し原子数を少なく見積ることになる。

上で述べたように LSS 理論による固体の照射損傷の基礎式 (1) 式から出発して、最終的に損傷エネルギー割合  $\eta(\varepsilon)$  を導く過程で導入された前提条件によって、対象は単一成分系であることが要請される。多種類の元素で構成される多元系固体 (多元系) での はじき出し損傷量の評価では、厳密には構成元素の含有比  $f_i$ 、質量  $A_i$ 、原子番号  $Z_i$ 、異なる種類の原子間衝突におけるエネルギー遷移断面積  $d\sigma_{ij}(E, T)$ 、各原子のはじき出しエネルギー  $E_{di}$  を考慮しなければならない。もっとも、Fe-Cr-Ni からなるステンレス鋼のような  $A_i$ 、 $Z_i$  の大きく違わない元素で構成される多元系のはじき出し損傷量は、はじき出しエネルギーは各元素で同一であると仮定し、単体のはじき出し損傷量を成分比率で平均して求めても厳密な結果とほとんど差はない。原子番号および質量数が大きく異なる元素で構成される合金や酸化物などのセラミック物質では、成分毎のはじき出し断面積を原子比率で平均することの意味が余り明確ではない。この場合、各元素ではじき出しエネルギーが違うことや異なる原子番号と質量数をもつ原子間の衝突によるエネルギーの授受 (損失) に差のあることを考慮して、LSS 理論の基礎式に立ち返る必要がある。

### 3.2.1 多元系での損傷エネルギーの計算

多元系物質におけるはじき出し原子数の計算の問題はかなり前から扱われている<sup>12)</sup>。具体的にいくつかの二元系での原子のはじき出しについて計算したのは Andersen-Sigmund<sup>18)</sup> である。彼らは多元系での衝突密度と減速密度についての式を導き Laplace 変換を用いてこれを解いた。Thomas-Fermi 原子の衝突を近似したエネルギーのべき乗型の衝突断面積を仮定し、W-O, U-C, Cu-Au の二元系で 200 eV までの各 PKA による衝突密度、はじき出し効率などを計算し、成分比率や衝突断面積のエネルギー依存の形がこれらの結果に及ぼす影響を調べた。ただし、電子的エネルギー損失を無視しているため、近似的な適用は低いエネルギーに限られる。

電子的エネルギー損失を考慮に入れた、高エネルギー PKA による多元系でののはじき出し損傷の一般的な取り扱い、Matsutani-Ishino<sup>14)</sup>, Coulter-Parkin<sup>15, 16)</sup> らによって行われている。単体での核的衝突によるはじき出し損傷に関する LSS 理論を多元系へ拡張したこと、連立微積分方程式の解を数値計算で求めていることで、これらの仕事は互いに似ている。

電子的損失を考慮に入れた、多元系における任意の元素の PKA の損傷エネルギー関数および各元素毎のはじき出し原子数の計算するための基礎式は、先に述べた (1) 式の LSS 理論の基礎式において、 $N_i dR/d\sigma$  を  $\sum_j N_j dR/d\sigma_{n_{ij}}$  などとすれば得られる。すなわち、 $f_i (i=1, 2, \dots, n)$  を  $i$  番目の元素の原子比率、 $S_{ij}(E)$  を  $i$  番目の原子の多元系における単位原子濃度当りの電子的阻止能、 $d\sigma_{n_{ij}}$  をエネルギー  $E$  の  $i$  原子が  $j$  原子との核的衝突で  $j$  原子に運動エネルギー  $T$  を与える衝突断面積、 $M_{ij} = 4A_i A_j / (A_i + A_j)^2$ 、とすると、 $i$  番目の原子の多元系物質中における損傷エネルギー関数は  $n$  元の連立微積分方程式、
$$S_{ij}(E) \Psi_i'(E) = \sum_j f_j \int M_{ij}^{1/2} d\sigma_{n_{ij}} \{ \Psi_j(E - T_n) - \Psi_i(E) + \Psi_j(T_n) \} \quad (12)$$
 の解  $\nu_i(E)$  で与えられる。 $\sum_j$  は  $j$  についての和を表し、積分の下限は  $E_{d_j}$  である。

単体の場合の (2) 式とは異なり、(12) 式の解  $\nu_i(E)$  は  $f_i, E_{d_j}$  にも依存する形となるので、単一系での  $\nu(E)$  の様に汎用的な形で求めることができない。単体では  $T\eta(\epsilon)$  が正味の核的エネルギー損失、すなわち損傷エネルギーであるとし、 $\kappa T\eta(\epsilon)/2E_d$  によってはじき出し原子数を求めることができたが、多元系では  $T\eta(\epsilon)$  に相当する損傷エネルギーそのものが、成分と各元素のはじき出しエネルギーの関数になっている。同じ種類の元素から成る多元系でも成分が違えば、損傷エネルギー関数が異なることに注意しなければならない。また、多元系物質中における各元素の  $E_{d_j}$  は実験的に求めることが困難であるため、 $\nu_i(E)$  を正確に求められない場合が多い。

Coulter-Parkin ら<sup>16)</sup> が計算した、 $Al_2O_3$  中の Al と O、および  $Y_2O_3$  中の Y と O の損傷エネルギー割合  $\nu_i(E)/E$  の値を Table 1 と Fig. 8 に単体における値と比較して示す。重い方の元素の  $\nu_i(E) (i=Al, Y)$  は、Al の PKA については、 $E=1$  keV のとき 1.7 %、



10 MeV で 10 % ほど単体での  $\nu(E)$  に較べて小さく, Y では 1 keV で 5 %, 10 MeV で 20 % 小さくなる。一方, 軽い方の元素の  $\nu_i(E)(i=O)$  については, 単体(O中のO)での  $\nu(E)/E$  に較べて,  $Al_2O_3$  中では -9 % ( $E=10$  eV のとき) から -0.3 % ( $E=10$  keV) と小さくなるが, 10 keV 以上では 2.6% ( $E=100$  keV) から 7.3% ( $E=10$  MeV) と大きくなる。同様に,  $Y_2O_3$  中の O の場合は, -3.4% ( $E=10$  eV) から -5.2% ( $E=10$  keV) および 3.5% ( $E=100$  keV) から 30% ( $E=10$  MeV) となる。これらの計算では  $E_a=0$  として,  $E \rightarrow 0$  の極限で  $\lim(\nu_i(E))/E=1$  の境界条件を適用している。

原子番号および質量数の差の大きな構成元素の系ほど, 多元系での各元素の損傷エネルギー関数と対応する元素単体での損傷エネルギー関数との差が大きくなる。重い元素だけの単体に軽い元素が混在して行く場合, 例えば  $Al_2O_3$  中の Al の  $\nu_i(E)$  は (12) 式で示される様に, O が混在すると Al と O の衝突が介在することで Al の損傷エネルギーは, PKA エネルギーの増加とともに単調に減少する。これに対して, 軽い元素の単体に重い元素が加えられる場合は, 電子密度の増加による電子的損失の増加すなわち損傷エネルギーの減少と重い元素の反跳による損傷エネルギーの増加との釣合で単体と較べた損傷エネルギーの減少, 増加が起きる。上に示したように, 低エネルギーの PKA では単体での値より小さいが, エネルギーが高くなると数十%も大きくなる。

多元系物質で不用意に dpa を絶対的な単位として扱うことには注意する必要がある。工学的な便利さの目的で使うときは, できるだけ精度よくまた, 照射損傷の研究者の間で統一的に使うことが重要である。さらに, 単体での値の原子比率平均でははじき出し損傷量の正確な評価が難しい多元系物質の多くは酸化物などの絶縁体である。絶縁体では核的衝突によるばかりでなく, 物質中を運動する PKA 以降の粒子の電子的エネルギー損失によっても格子欠陥が生成される。文献[17] ではイオン化と関係したはじき出し断面積の評価値についても述べられている。

### 3.2.2 弾き出し出しエネルギー

上で述べた修正 Kinchin-Pease モデルに基づいてエネルギー  $T$  の PKA が造るはじき出し原子数を  $\kappa T \eta(\epsilon)/2E_a$  によって求めるとき, ここで使われるはじき出しエネルギー  $E_a$  は, 一方で工学的な意味で照射量の単位として使われる dpa と同じく, 単位としての dpa を計算するために評価した実効値ということができる。他方では, 固体中における原子のはじき出しという物理現象を記述する一つの物理量として  $E_a$  は, PKA のはじき出される結晶方位に依存し, いくつかの純金属の単結晶で方位の関数として実験的に測定されている。現在広く使われている  $E_a$  のこのような二つの側面は材料の工学的な照射損傷の研究と固体物理学的な興味での格子欠陥研究の間にある隔たりを象徴的に表している。固体物理学での放射線照射による格子欠陥生成に関する研究では, 照射で造られる点欠陥の濃度

は 1 % 未満と少ないが、照射量の工学的な単位で dpa が用いられるときは 1 dpa より大きいばかりでなく 100 dpa を超える損傷量が問題の対象になる。

照射で造られる点欠陥が移動しない液体ヘリウム温度で、純金属の単結晶試料を小刻みにエネルギーを変えた電子線で照射し、測定された試料の電気抵抗の変化と照射ビームに対する結晶学的方位すなわち最大反跳エネルギー方向とから、 $E_d$  の方位依存性および最小のはじき出しエネルギーが実験的に求められている。しかし、このような測定によって方位依存性が求められた金属は、Cu, Pt, Mo など数種類に過ぎない。測定された  $E_d$  の方位依存性は分子動力学によるシミュレーション計算の結果とよい一致を示している。方位について平均した  $E_d$  が、損傷エネルギーから dpa への換算に使われるべき ‘平均のはじき出しエネルギー’ である。この値は純金属の多結晶試料を電子線照射して測定された ‘実効的是じき出しエネルギー’ に相当する。これらのはじき出しエネルギーについて Lucasson は考察を加えて表にまとめている<sup>10)</sup>。

はじき出し原子数の標準的計算方法についての ASTM 標準<sup>10)</sup> では、Lucasson の表を基に、実効的是じき出しエネルギーの推奨値を示しているが (Table 2), それらの値は 10 または 5 eV のオーダーにまらめた値となっている。これは最も実用的な計算対象であり、多元系物質であるステンレス鋼のはじき出し損傷の計算に、実験的に評価された Fe, Cr, Ni のはじき出しエネルギーをそのまま採用することの不合理さを考慮した結果であるとともに、dpa という単位の近似的、便宜的性格を反映している。また、推奨値を示すことで dpa を誰が計算しても同じ結果が出る、という単位の統一的使用を計ろうとする姿勢がうかがえる。

酸化物などの多元系物質でははじき出し損傷の正確な評価では、元素ごとの  $E_d$  が必要なことは前述の通りであり、損傷エネルギーの評価が  $E_d$  に依存することから単体ではじき出し損傷量のように損傷エネルギーを適当な  $E_d$  で求めてから、後で正しい  $E_d$  で換算し直すということは出来ない。例えば、Y-Ba-Cu-O 系などの酸化物超伝導試料を中性子で  $\sim$  dpa まで照射したという表現は、中性子束やフルエンスが記されていないならば、この論文を読んで確認実験をすることができない。

核融合炉工学の材料として酸化物、窒化物、炭化物などのセラミック材料の使用が考えられ、これらの材料の照射損傷に関する研究が行われ出して来たが、構成元素ごとの  $E_d$  は限られた物質で測定されているにすぎない。Pells<sup>10)</sup> がまとめた電気絶縁材料として使われるセラミック材料のはじき出しエネルギーを Table 3 に示す。近い将来、多元系物質の照射損傷研究の進展によって構成元素毎のはじき出しエネルギーが多くのセラミック材料について測定されることが期待される。

### 3.3 残留欠陥生成断面積

NRT モデルで計算した dpa の値は実際に観測される格子欠陥の濃度や照射効果と直接的

に対応するものではないことは、上で述べたモデルの内容から十分察せられる。特に、PKA エネルギーが高くなってはじき出しのカスケードが顕著になると、カスケード内での点欠陥の相互消滅が増加し残留する（生き残る）欠陥の割合が小さくなるのが、最近になって具体的に明らかにされてきた。分子動力学を用いたカスケードのシミュレーション計算結果や、照射で造られた残留欠陥濃度を電気抵抗の変化で測定した実験結果に基づいて評価した残留欠陥濃度を、NRT モデルで計算した dpa 値に対する割合として、Fig. 9<sup>20)</sup> に PKA スペクトルのメディアンエネルギーの関数として示した。数十 keV 以上の PKA ではじき出された欠陥では、残留する欠陥の比率は 10 K 以下の極低温でも約 0.3 に過ぎない。この比率は照射温度の上昇とともに減少し、300 K 以上ではほぼ 0.1とされている<sup>20)</sup>。

スエリングなどの照射効果は、原子のはじき出しで造られた欠陥のうちの残留欠陥の生成速度やその振舞いに依るが、さらにその中の移動可能な点欠陥の振舞いが重要な役割を演じると考えられる。同時に形成される欠陥の集合体は、移動可能な点欠陥を吸収または放出する役割を果たし、集合体自身は成長かまたは収縮する。このとき移動可能な点欠陥と結合しやすい元素は集合体の近くに偏析し一定の濃度を超えれば母相と違う析出相を形成するなどして、材料のマイクロ組織の変化を引き起こし照射効果が現れる。

核融合炉中性子による照射効果を予測するための損傷効果のモデルを構築する場合にも、照射量を dpa で表わすだけでは照射効果を十分説明できるモデルをつくることは難しい。もっとも、異なる PKA スペクトルでの照射効果データを dpa の関数として整理して初めて、dpa だけでは説明できないことが明らかになり PKA スペクトルの違いがカスケード構造を介して照射効果に違いをもたらしていることが確認できる訳である。そこで、原子のはじきだして生成される欠陥の濃度と構造、例えば移動可能な点欠陥とクラスター化した欠陥の比などを、照射した中性子のエネルギースペクトルの関数したがって PKA スペクトルの関数として評価し、これらを用いて、核分裂中性子の照射でこれまで得られた照射効果に関する実験データを定量的に解釈できる損傷効果のモデルを構築することが重要であると考えられるようになってきた。このためには、任意のエネルギースペクトルの中性子で照射した材料中の PKA スペクトルが評価できるようになっていることが重要である。

#### 4. おわりに

PKA スペクトルや dpa 断面積のデータファイルを整備する作業には直接関係ないと思われることを述べた。PKA スペクトルは別として、dpa 断面積や dpa という照射量の単位の使用に消極的な人も少なくない。おそらく、固体中を運動する原子のエネルギー損失率の近似的な取扱いが含まれるほかに実効的なはじき出しエネルギーという物理的にはやや曖昧な量が使用されるなどのことを嫌ったり、実際に観測できる格子欠陥の濃度や照射効果と必ずしも直接的に対応する訳ではないことなどが理由であろう。近い将来、dpa に代わ

って PKA スペクトルの違いと残留欠陥生成を考慮した照射量の単位が広く使用されることが期待されるが、それまでは任意の中性子スペクトルで照射した材料の照射量の単位として dpa が統一的に使用されるべきである。

#### 参考文献

- 1) Lindhard, J., Nielsen, V., Scharff, M. and Thomsen, P. V.: Kgl. Dan. Vidensk. Selsk. Mat.-fys. Medd. 33 (no. 10) (1963).
- 2) Norgett, M. J., Robinson, M. T. and Torrens, I. M.: Nucl. Eng. Design 33, 50 (1975).
- 3) Cawthorne, C. and Fulton, E. J.: Nature 216, 575 (1967).
- 4) Seeger, A.: "The Nature of Radiation Damage in Metals" in Radiation Damage in Solids, (IAEA, 1962) vol. I, p. 101.
- 5) Merkle, K. L.: Nucl. Technol., 22, 66 (1974).
- 6) Robinson, M. T. and Torrens, I. M.: Phys. Rev. B 9, 5008 (1974).
- 7) Robinson, M. T.: "Energy Dependence of Neutron Irradiation Damage in Solids" in Proc. B.N.E.S. Nuclear Fusion Reactor, Conf., British Nuclear Energy Society, London, p. 364 (1970).
- 8) Kinchin, G. H. and Pease, R. S.: Report on Progress in Physics 18, 1 (1955).
- 9) Torrens, I. M. and Robinson, M. T.: "The Dependence of Radiation Effects on the Primary Recoil Energy" in Radiation-Induced Voids in Metals, Corbett, J. W. and Ianniello, L. C. eds., CONF-710601 (1972) p. 739.
- 10) 1992 Annual Books of ASTM Standards vol. 12.02, E521-89, E693-79 (1992).
- 11) Doran, D. G. and Graves, N. J.: HEDL-TME 76-70 (1976).
- 12) Baroody, E. M.: Phys. Rev. 112, 1571 (1958).
- 13) Andersen, N. and Sigmond, P.: Kgl. Dan. Vidensk. Selsk. Mat.-fys. Medd. 39 (no. 3) (1974).
- 14) Matsutani, Y. and Ishino, S.: J. Appl. Phys. 48, 1822 (1977).
- 15) Parkin, D. M. and Coulter, C. A.: J. Nucl. Mater. 85 & 86, 611 (1979).
- 16) Coulter, C. A. and Parkin, D. M.: J. Nucl. Mater. 88, 249 (1980).
- 17) Dell, G. F. and Goland, A. N.: J. Nucl. Mater. 102, 246 (1981).
- 18) Lucasson, P.: Conf-751006-P2, P. 42 (1975).
- 19) Pells, G. P.: J. Nucl. Mater. 155-157, 67 (1988).
- 20) Zinkle, S. J. and Singh, B. N.: J. Nucl. Mater. 199, 173 (1993).

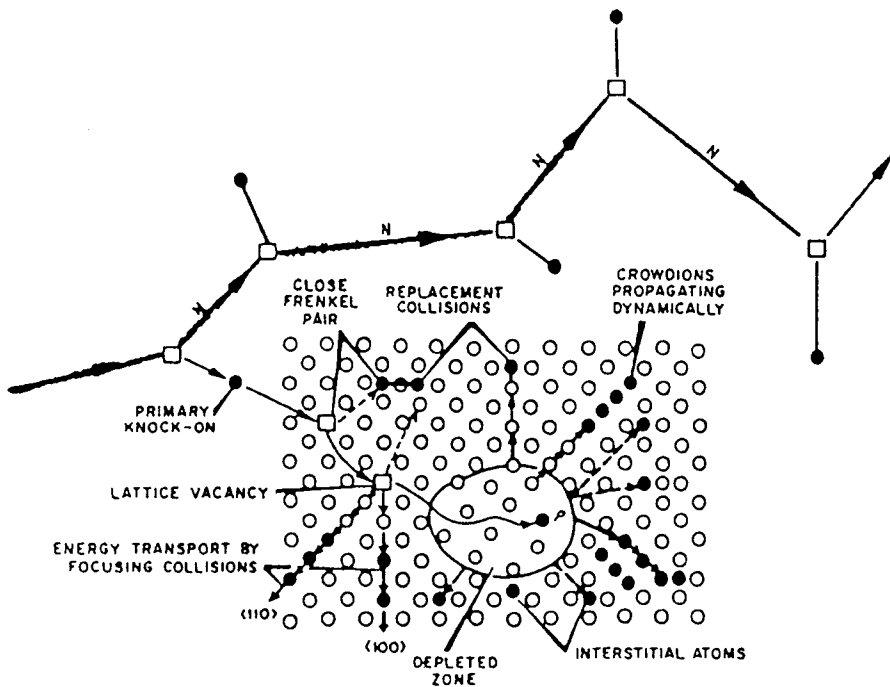


Fig. 1 Schematic representation of atomic displacement process occurring during neutron irradiation of solid metal. Interstitials are transported long distances by the collision sequences shown and leave a vacancy-rich depleted zone.

Figure adapted from Seeger<sup>1)</sup>

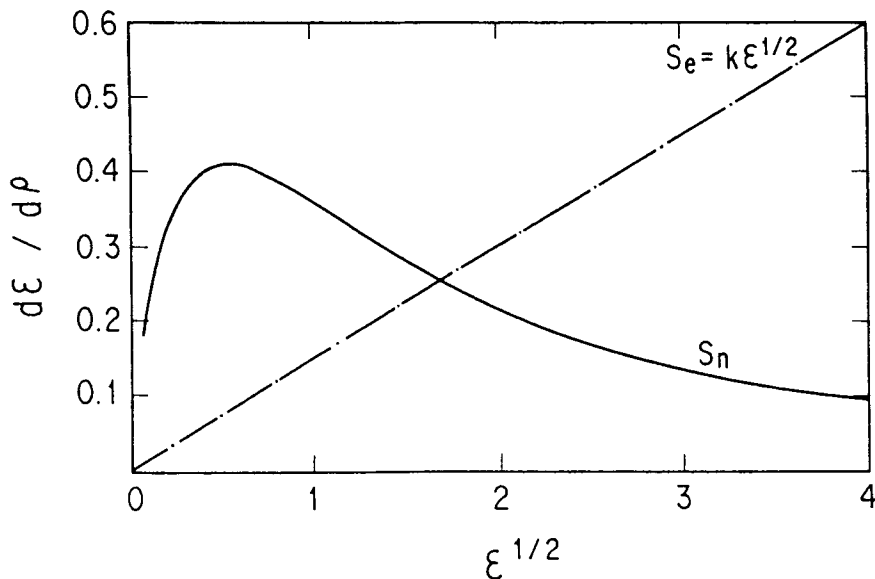


Fig. 2 Theoretical stopping cross section in  $\rho$ - $\epsilon$  variables in LSS theory.

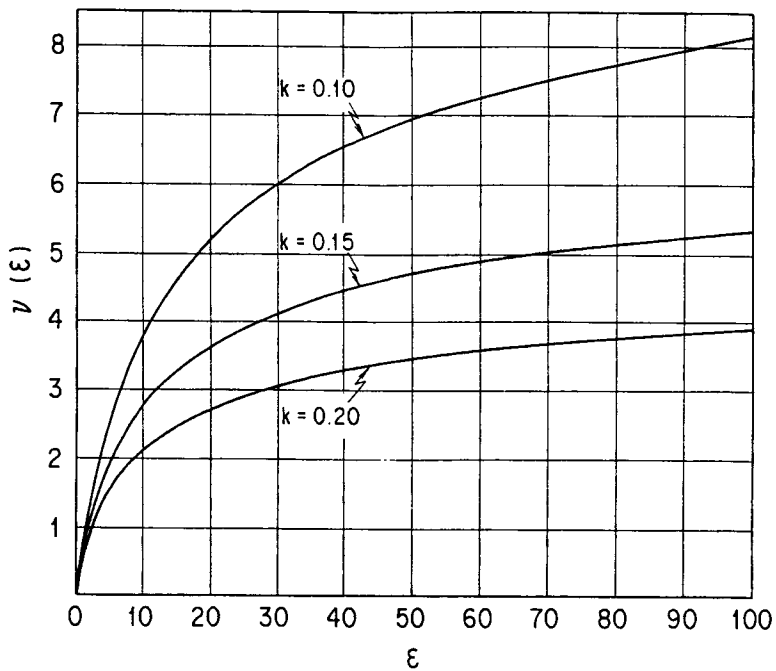


Fig. 3 Damage energy function  $v(\epsilon)$

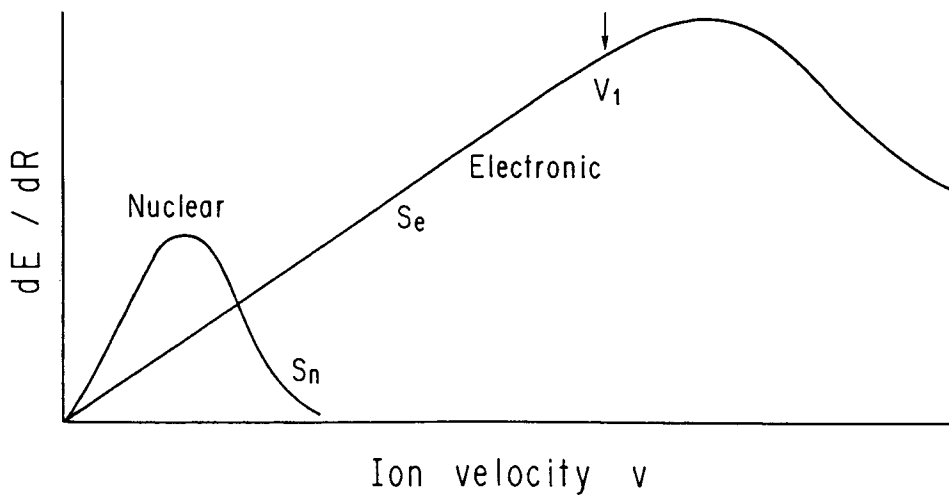


Fig. 4 Schematic behavior of nuclear and electronic contributions to stopping power.

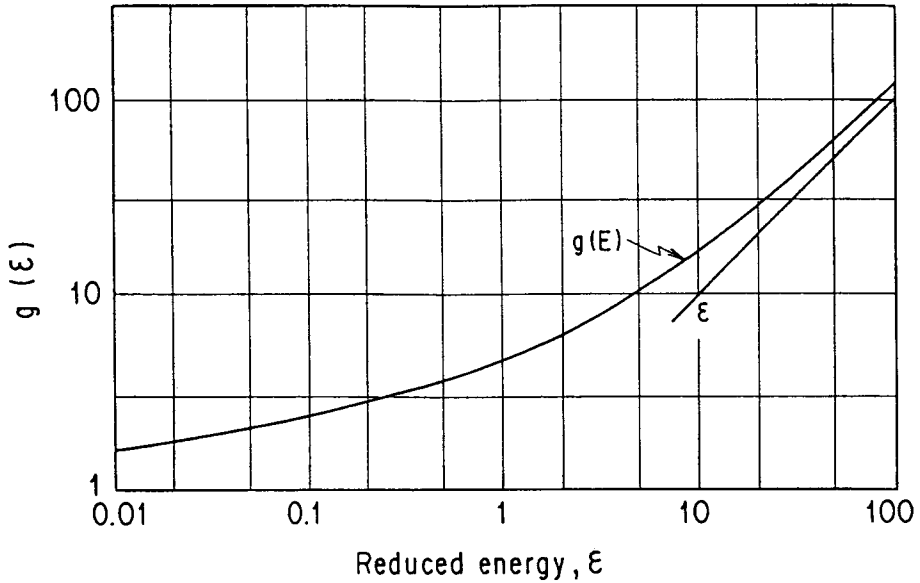


Fig. 5 Semi-empirical function  $g(\epsilon)$  in LSS theory.

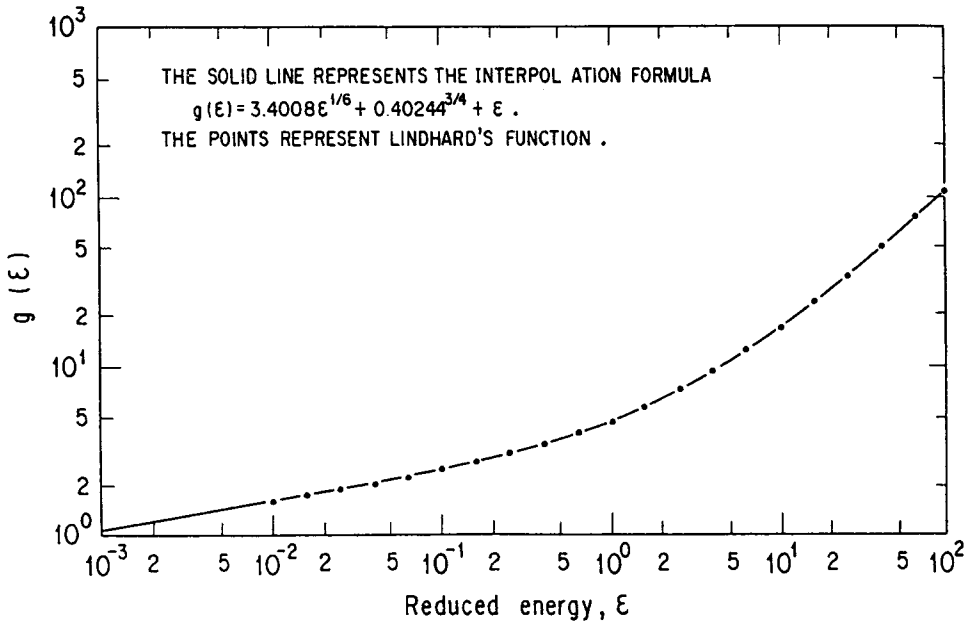


Fig. 6 Robinson's interpolation formula for Lindhard's semi-empirical function  $g(\epsilon)$ . Points represent Lindhard values.

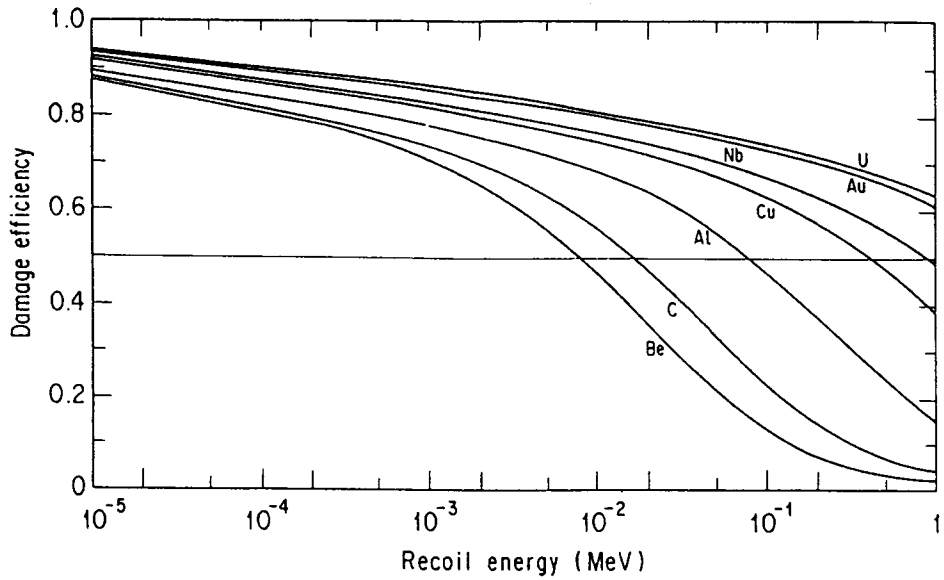


Fig. 7 The effect of ionization losses on the energy available for atomic displacements, as calculated by Robinson based on LSS theory.

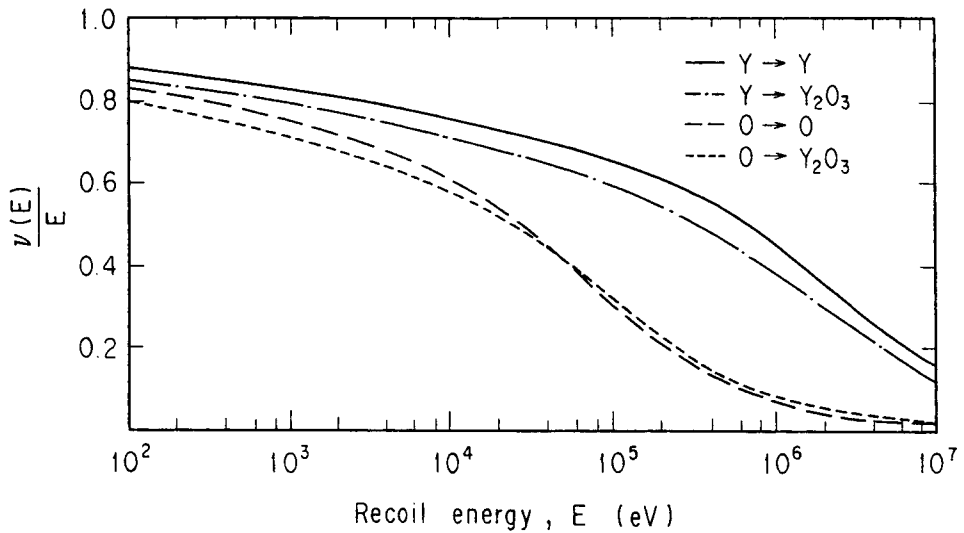


Fig. 8 Comparisons of damage efficiencies of Y, O in polyatomic  $Y_2O_3$  and in monoatomic Y and O as a function of PKA energy, calculated by Coulter and Parkin<sup>16)</sup>.



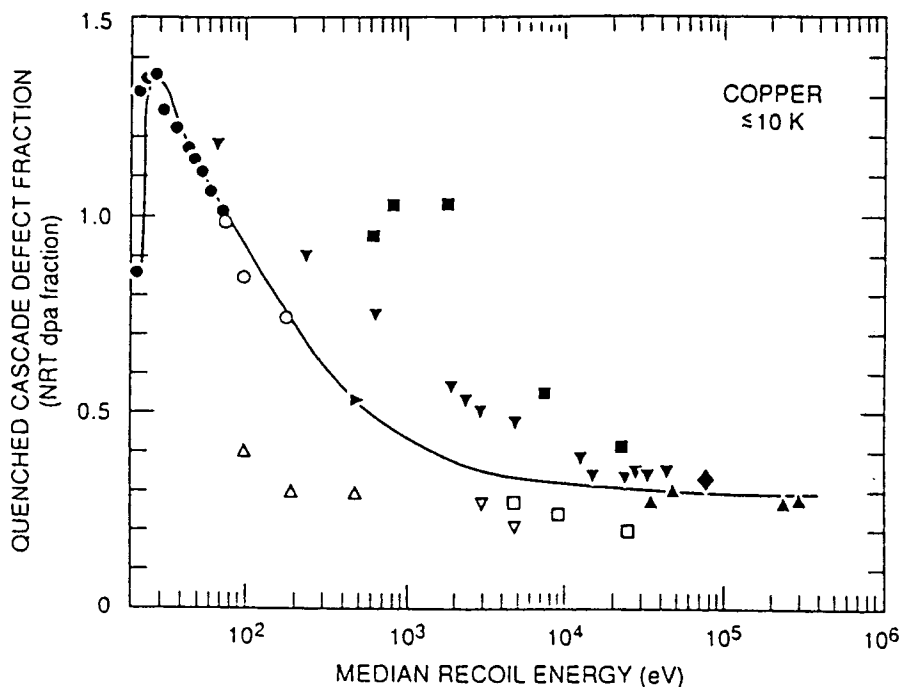


Fig. 9 Dependence of the fraction of the NRT calculated displacements that survives the cascade quench on median PKA energy in copper. The open symbols refer to MD calculations whereas the filled symbols refer to experimental measurements<sup>20)</sup>.

Table 1 Comparisons of damage efficiencies of Al, O in Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> with those in monoatomic element as a function of PKA energy, calculated by Coulter and Parkin<sup>16)</sup>.

Energy (eV)	Damage efficiency for:		Change (%)	Damage efficiency for:		Change (%)
	Al in Al	Al in Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		O in O	O in Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	
10	0.889	0.878	-1.2	0.876	0.868	-0.9
10 <sup>2</sup>	0.842	0.830	-1.4	0.824	0.817	-0.8
10 <sup>3</sup>	0.779	0.766	-1.7	0.751	0.745	-0.8
10 <sup>4</sup>	0.680	0.664	-2.4	0.615	0.613	-0.3
10 <sup>5</sup>	0.463	0.441	-4.8	0.310	0.318	+2.6
10 <sup>6</sup>	0.144	0.132	-8.3	0.0644	0.0682	+5.9
10 <sup>7</sup>	0.0218	0.0196	-10.1	0.0082	0.0088	+7.3

Table 2 Valus of effective displacement energy for use in displacement calculations recommended in ASTM Standard<sup>16)</sup>.

Metal	T <sup>min</sup> (eV)	T <sub>d</sub> (eV)
Al	16	25
Ti	19	30
V	-	40
Cr	28	40
Mn	-	40
Fe	20	40
Co	22	40
Ni	23	40
Cu	19	30
Zr	21	40
Nb	36	60
Mo	33	60
Ta	34	90
W	40	90
Pb	14	25

Table 3 Valus of displacement energy for electrically insulating ceramics tabulated by Pells<sup>19)</sup>.

Material	Element and orientation	E <sub>s</sub> (eV)		
BeO	Be	~20	} 50	
	O	76		
MgO	Mg <001>	60±3	} 60	
	<011>	60±3		
	<111>	60±3		
	O	<001>	44±3	} 53
		<011>	64±3	
		<111>	46±3	
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Al random	18±3	} 20	
	O random	76±3		
	random	90	} 65	
	<0001>	53		
	<1120>	41		
MgAl <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	Mg <001>	20	} 30	
	Mg	30		
	Al	30	} 45	
	O	59		
Al <sub>2/3</sub> O <sub>2/3</sub> N <sub>1/3</sub>		~50		
AlN		~50		
Si <sub>3</sub> N <sub>4</sub>		~50		