

**(論文内容の要旨)**

本論文は、核融合炉用構造材料として期待されている立方晶炭化珪素 ( $\beta$ -SiC) の照射下マイクロ構造変化 (格子間原子・空孔集合体の成長挙動) について、その機構論に基づいたモデル化研究をまとめたものであり、以下の 8 つの章から構成される。

第 1 章「序論」では、研究の背景、目的および意義について述べている。まず、次世代の環境調和型エネルギー源として核融合炉が有望であることを指摘し、続いて、核融合炉用構造材料としては、低放射化特性、高温強度特性、耐腐食性の観点から、SiC/SiC 複合材料 ( $\beta$ -SiC を主構成要素とするセラミクス系複合材料) が有力視されていることを述べている。そして、核融合炉の設計・維持・保全のためには、炉寿命評価の基準となる照射下材料特性変化 (劣化) を明らかにしておくことが必要であるが、核融合炉が存在しない現時点では、種々の代替照射場 (核分裂炉、イオン加速器、高エネルギー電子線照射等) によって得られた材料照射データを使って、核融合実環境下の材料特性変化を予測する必要があることを指摘している。この際、照射による特性劣化は、照射による材料マイクロ構造変化に起因するものであることから、核融合実環境下での材料特性変化を精度よく予測するためには、まず、マイクロ構造変化を予測できなければならないこと述べている。そして、代替照射場において取得されてきた  $\beta$ -SiC の照射下マイクロ構造変化に関するこれまでの研究結果を紹介するとともに、照射による材料マイクロ構造変化をもたらす欠陥集合体の核生成・成長の機構論が必ずしも明らかになっていないことを指摘している。こうした核融合炉材料の照射下挙動予測に関する問題点を踏まえ、本章の最後では、本研究の目的が「 $\beta$ -SiC を照射することによって形成される欠陥集合体の生成・成長を機構論に基づいてモデル化する」ことにあることを述べている。

第 2 章では、「照射下材料挙動予測の方法論」について述べている。材料というものは本質的に多くの要素を含んだ複雑な系であり、そのような系で生じる照射損傷過程の時間的・空間的なマルチスケール性について説明している。また、そのようなマルチスケールな現象をどのように捉え、どのようにモデル化すべきかについての方法論を、さまざまな材料に対して行われてきたこれまでの手法をもとに解説している。そこでは、取扱い対象である現象の時間・空間スケールと、それを模擬する解析手法が対象とする時間・空間スケールの適合性を十分に理解しておくことの必要性を述べている。そして、本論文で問題としている欠陥集合体の核生成・成長機構の解明に関しては、第一原理的な量子計算に基づいて作成された原子間ポテンシャルを使った分子動力学解析、および、それだけでは対応できない時間・空間領域においてキネティックモンテカルロ法や反応速度論解析法を使うことの有効性やこれらを組合せる必要性を述べている。

第 3 章「点欠陥の移動エネルギー」では、欠陥集合体成長のキネティックスの解明に必要な点欠陥 (格子間原子、空孔、アンチサイト欠陥) の移動エネルギーについて議論しており、従来とは異なる新たな緩和手法を導入したことにより、欠陥エネルギー評価に不可欠な欠陥の最安定構造の予測が容易になった。得られた SiC 中の点欠陥の移動エネルギーは、核融合炉・原子炉材料分野において一般的とされてきた金属の場合と比べて随分高く、SiC における点欠陥集合体の形成に関する実験事実を矛盾なく説明するものである。また、本研究で用いた原子間ポテンシャルの有効性も示唆するものである。

第 4 章「格子間原子集合体の形成・結合エネルギー」および第 5 章「空孔集合体の形成・結合エネルギー」では、点欠陥集合体の形成エネルギー、および、熱的安定性の指標となる点欠陥結合エネルギーについて、その集合体サイズ依存性および欠陥組成依存

性を評価し、議論している。格子間原子集合体の最安定構造は、そのサイズや欠陥組成に関係なく、近接する原子どうしの距離が平衡ボンド長を保持すること、空孔集合体の最安定構造は、そのサイズおよび欠陥組成が同じならば、ダングリグボンド数が小さくなるように配置することを見出した。しかし、空孔組成が  $V^{Si} : V^C = 1:1$  から極端にはずれるような場合は、自発的に集合体周辺にアンチサイト欠陥を作り出して安定化することも見出した。また、空孔集合体の結合エネルギーは、サイズだけでなく組成にも強く依存しており、集合体中の空孔組成比が  $V^{Si} : V^C = 1:1$  に近い集合体ほど、熱的に安定であることも明らかにした。

第 6 章「照射下における欠陥集合体の核生成・成長」では、前章までに得られた欠陥エネルギー論をもとに、照射下における空孔集合体（ボイド）の核生成・成長挙動をキネティックラティスマンテカルロ計算より評価した。ボイドは、マトリクス内の可動空孔の濃度比 ( $C_V^{Si}/C_V^C$ ) に関係なく、ボイド内の空孔組成比 ( $V^{Si}/V^C$ ) を常に 1 にするように、すなわち、化学量論組成を保持しながら成長する。したがって、たとえマトリクス内の可動空孔の全濃度が一定であっても ( $C_V^{Si} + C_V^C = \text{一定}$ )、ボイドの成長速度は、濃度比 ( $C_V^{Si}/C_V^C$ ) に強く依存することを明らかにした。これは、 $\beta$ -SiC 中のボイドの熱的安定性が空孔組成に大きく支配されているからである。また、本計算結果では、1300 K 程度の比較的高温でもボイドが安定に成長しており、その成長速度は温度上昇と共に増加する（空孔拡散がボイド成長を律速している）ことや、計算より得られたボイドが最密面に囲まれた構造を有していることなど、実験結果と定性的に一致している。さらに、およそ 2200 K までは、温度上昇にともなってボイド形成の潜伏期間が短くなるのに対し、この温度を越えたところでは、極端に長くなった。これは、 $\beta$ -SiC 中のボイドの熱的崩壊温度（回復のステージ V）が 2200 K 程度であることを示している。

第 7 章「欠陥捕獲効率に起因した格子間原子集合体成長の化学量論的制約効果」では、格子間原子集合体の成長に対する化学量論的制約効果を明らかにするために、電荷を有する欠陥どうしの電気的なクーロン相互作用に着目し、その効果を探り込んだ欠陥集合体の点欠陥捕獲率の定式化を行った。同様のコンセプトによる欠陥捕獲率評価はすでに存在するが、ここでは、微小サイズ（直径：約 2nm 以下）の格子間原子集合体成長を対象にし、定式化した欠陥捕獲効率を用いて格子間原子集合体成長の反応速度論解析を行った。ただし、物理的に未解決な SiC 中の欠陥の電気的相互作用の強さは、パラメータとした。解析によって得られた格子間原子集合体の数密度やサイズを、別途行った電子線照射および透過型電子顕微鏡によって測定された実験結果と比較した。解析において、電気的相互作用の強さを大きくすると、格子間原子集合体の数密度やサイズなどの解析結果は実験結果に近づいていく傾向を示した。これは、格子間原子集合体の成長においても、化学量論的制約効果が重要であることを示している。

第 8 章は本論分の「総括」である。本研究は、まず、これまで不明確であった  $\beta$ -SiC の欠陥エネルギーを原子レベルで検討し、それらを使った欠陥集合体成長の機構論に基づき、照射下にある  $\beta$ -SiC の欠陥集合体の成長キネティクスを評価した。その結果、実験結果を矛盾なく解釈することに成功した。これは、いまだ明らかになっていない物理現象の要因をよりマイクロなレベルに求め、各種解析手法を上手に組み合わせることによって、現象の機構論に基づいた理解を得ようとする、いわゆるマルチスケールモデリングの典型的な取り組みであり、まれな成功例である。本章の最後には、今後の照射材料モデリングの展望が述べられており、格子欠陥論の発展での貢献はもとより、原子炉・核融合炉工学の発展への大きな貢献となることを示している。

氏 名

渡辺淑之

(論文審査結果の要旨)

本論文は、核融合炉用構造材料として期待されている立方晶炭化珪素 ( $\beta$ -SiC) の照射下マイクロ構造変化 (格子間原子・空孔集合体の核生成・成長挙動) について、その機構論に基づいたモデル化研究をまとめたものである。以前から、核融合材料設計や寿命評価などに必要な照射下材料マイクロ構造変化の予測に使われる反応速度論解析では、欠陥集合体の臨界核の定義に関してアприオリな仮定をおく必要があった。ここでは、そのような仮定から生じるあいまいさを排除するための研究が実施されており、結晶格子欠陥研究での意義も大である。

限定的な情報しか存在しなかった  $\beta$ -SiC における欠陥エネルギー論、特に、照射下材料マイクロ構造変化のモデル化に必要な欠陥集合体の形成エネルギーを系統的に明らかにし、新たな構造緩和手法の開発により、欠陥集合体のエネルギー評価に不可欠な集合体最安定構造の取得を容易にしている。また、緩和計算によって得られた欠陥集合体の最安定構造は、原子間結合ボンド長やダングリングボンド数によって十分に解釈可能であることを示している。このようにして取得された欠陥エネルギーの絶対値は、SiC 中の欠陥集合体形成に関する実験的事実、すなわち、SiC 中の欠陥集合体の形成が、一般の金属中のそれよりも比較的高温でなければ形成されないことなどを矛盾なく説明できる。

本研究の成果である欠陥エネルギー論をもとに、照射下における空孔集合体 (ポイド) の核生成・成長のキネティクス評価を行い、ポイドの潜伏期間や成長速度に関して、マトリクス内空孔の濃度比 ( $C_V^{Si}/C_V^C$ ) 依存性や、ポイド内の空孔組成比 ( $n_V^{Si}/n_V^C$ ) 依存性に関する重要な知見を獲得している。すなわち、SiC 中のポイドは、その熱的安定性に起因して、常にポイド内の空孔組成比 ( $n_V^{Si}/n_V^C$ ) を 1 に維持しながら成長するので、その結果、ポイドの成長速度は、周囲の (マトリクス内) 空孔濃度比に依存することになる。核融合炉用金属材料内でしばしば観察されるヘリウムバブルの場合は、周囲の欠陥濃度比に強く影響されながらバブル内の欠陥組成比が決定されるが、こうした成長様式とは全く異なっている。こうした新たな成長様式の提示は、上述の反応速度論解析における臨界核の定義からあいまいさを排除し、より精度の高い照射下材料挙動予測を可能にするものである。また、このような定性的議論に留まらず、ポイド生成の温度が 1300 K 以上から 2200K 以下であるなど、定量的にも実験事実と矛盾しない結果を得ており、本研究分野の今後の進展をおおいに期待させる。さらに、格子間原子集合体の形成・成長に関しても、集合体内の欠陥組成が重要であるとの知見を得ている。

本論文は、これまで不明確であった  $\beta$ -SiC の欠陥エネルギー論を原子レベルで明らかにし、照射下の欠陥集合体の成長挙動を機構論に基づき評価している。その結果、実験結果を矛盾なく解釈することに成功している。これは、未解明の物理現象の要因をよりミクロなレベルに求め、各種解析手法を上手に組み合わせることによって、現象の機構論に基づいた理解を得ようとする、いわゆるマルチスケールモデリングの実証例である。

以上要するに、本論文で得られた新たな知見は、結晶格子欠陥論への貢献はもとより、将来の基盤エネルギー源である核融合炉の材料設計や寿命評価に不可欠な照射下材料挙動予測技術の開発研究に少なからずの影響を与え、エネルギー科学の進展に対する十分な貢献が期待される。よって、本論文は博士 (エネルギー科学) の学位論文として価値あるものと認める。また、平成 20 年 12 月 18 日に実施した論文内容とそれに関連した試問の結果合格と認めた。