

令和 2 年 6 月 4 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K07021

研究課題名(和文) イオン照射下での格子間原子集合体の一次元運動機構の解明及びモデリング

研究課題名(英文) Mechanism and modeling of one-dimensional motion of interstitial clusters under ion irradiation

研究代表者

阿部 陽介 (Abe, Yosuke)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター・研究副主幹

研究者番号：50400403

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：原子炉構造材料では、中性子照射により弾き出された格子間原子の集合体による一次元(1D)的な高速拡散が、ミクロ組織変化に影響を与えることが知られている。本研究課題では、中性子照射下での連鎖的な弾き出し(カスケード損傷)を模擬するため、イオン照射下での電子顕微鏡その場観察実験により、高純度鉄及び鉄基合金における格子間原子集合体の1D運動挙動を調べた。その結果、残留不純物や溶質原子に加えて、カスケード損傷下で直接形成される照射欠陥が1D運動を阻害することが示唆された。また、1D運動を阻害しているトラップの入射ビームによる弾き出しが原因で、格子間原子集合体が1D運動を生じることが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

実炉環境において、カスケード損傷の影響解明は原子力材料分野における衆目一致の重要課題であるものの、その素過程は十分に理解されていなかった。本研究課題では、イオン照射下その場観察実験を用いて、実炉環境下での照射損傷過程の基礎的理解の深化にとって重要である、カスケード損傷下での格子間原子集合体の1D運動の素過程を明らかにした。本実験手法が素過程の機構解明にとって有用であることを示したことは学術的意義がある。また、この成果は、ミクロ組織変化の予測モデルの高度化に繋がることが期待され、原子炉材料の長期健全性を担保する上で重要な社会的意義を有する。

研究成果の概要(英文)：One-dimensional (1D) fast migration of self-interstitial atom (SIA) clusters formed under neutron irradiation in fission reactors is known to affect the radiation-induced microstructural evolution in structural materials. In the present study, by in-situ observation using electron microscopy in self-ion irradiated alpha-iron and its alloys, we examined a role of 1D migration of SIA clusters under cascade damage condition. The results suggest that the candidate traps for one-dimensionally migrating SIA clusters are not only impurity/solute atoms, but also directly formed defect clusters by collision cascade under ion irradiation. Also, the displacement by high-energy irradiation provides a trigger for causing 1D migration by detraping the stationary SIA clusters from the bounded traps, as demonstrated under electron irradiation.

研究分野：金属材料の照射損傷過程

キーワード：格子間原子集合体 一次元運動 イオン照射 カスケード損傷 電子顕微鏡その場観察

1. 研究開始当初の背景

原子炉構造材料においては、中性子照射により弾き出された格子間原子により形成される集合体が一次元(1D)的な高速拡散を行うことにより、照射脆化の要因となるマイクロ組織変化に大きな影響を与えることが知られている。しかしながら、連鎖的な弾き出し(カスケード損傷)を生じる中性子照射下での格子間原子集合体の1D運動メカニズムは未解明である。

これまでに、ポイドスウェリングなどの材料特性変化の理解に対して、格子間原子集合体が1D運動により結晶粒界で優先的に消滅する生成バイアス効果を考慮する必要性が明らかにされてきた。しかしながら、実際の原子炉構造材料は侵入型不純物や溶質原子を多く含有し、これらは格子間原子集合体の1D運動を阻害する(図1)。これに伴う、格子間原子集合体と他の照射欠陥との反応特性の変化がマイクロ組織変化に与える影響は未解明である。そのため、従来のマイクロ組織変化の予測モデルでは、格子間原子集合体の1D運動に起因する反応過程に対して、調整パラメータを用いる不確実性があった。実炉環境下で信頼性の高い予測をするためには、調整パラメータの低減が重要である。従って、中性子照射下での格子間原子集合体の1D運動メカニズムの解明が求められている。

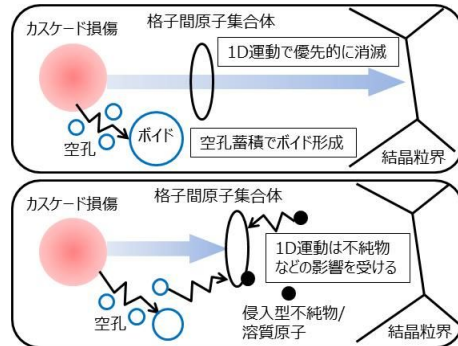


図1 格子間原子集合体の1D運動挙動
上図は生成バイアス、下図は不純物や溶質原子を多く含む実用鋼に対する模式図。

2. 研究の目的

本課題では、照射条件の制御が容易であるイオン加速器を備えた電子顕微鏡によるその場観察を行い、カスケード損傷下での格子間原子集合体の1D運動に対する不純物及び溶質原子の影響を解明する。明らかにした1D運動メカニズムをモデル化することにより、中性子照射下でのマイクロ組織変化の予測モデルを高度化する。この成果は、今後の高経年化プラントにおける照射脆化の予測精度向上に資する。

3. 研究の方法

原子炉圧力容器鋼におけるベース金属である純鉄試料を用いて、残留転位の除去や結晶粒界の粗大化を目的として水素雰囲気中で825℃・4時間の熱処理を行った後、電解研磨法により標準的な電子顕微鏡観察用の試料(3mm、厚さ0.1mmのディスク状)を作製した。実機環境の模擬のために必要なカスケード損傷の影響を調べるため、国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構高崎量子応用研究所イオン照射研究施設(TIARA)における400kVイオン注入装置を備えた電子顕微鏡を用いて、自己イオン照射下でのその場観察実験を行った。形成される格子間原子集合体の1D運動挙動(運動距離・頻度)を高感度カメラにより、時間フレーム1/30sで約1500sにわたって動画撮影した。各フレーム間の格子間原子集合体の瞬間的な移動を1D運動距離と定義した。また、測定視野内に存在する格子間原子集合体の総数に対する単位時間あたりの1D運動回数を1D運動頻度と定義した。これら1D運動挙動の不純物濃度・照射強度・照射量依存性について、多数回の計測を繰り返すことにより、カスケード損傷下での格子間原子集合体の1D運動メカニズムを検討した。また、明らかにしたメカニズムを反応速度論の枠組み内でモデル化し、数値計算による格子間原子集合体の成長挙動を実験データと比較することにより、モデルの妥当性を検証した。

4. 研究成果

高純度鉄(UHP-Fe)において、イオン照射下での格子間原子集合体の1D運動頻度は入射ビーム強度に概ね比例することが分かった(図2)。この結果は、「観察可能な格子間原子集合体は不純物等にトラップされて静止状態にあり、入射ビームによる不純物等の弾き出しが原因で1D運動が起こる」という電子照射下で明らかにされた1D運動機構が、カスケード損傷を生じるイオン照射下でも成立することを示唆している。その一方で、イオン照射下での1D運動距離は、電子照射下に比べて著しく短くなる(図3)とともに、照射時間とともにやや短くなる傾向が見られた。また、本実験条件の範囲においては、1D運動距離に明確なイオンビーム強度依存性は見られなかった。これらの結果は、電子照射下では主に残留不純物が格子間原子集合体の1D運動を阻害するのに対して、カスケード損傷下ではそれに加えて、カスケード損傷で直接形成される欠陥クラスターが1D運動の阻害に寄与している可能性を示唆している。

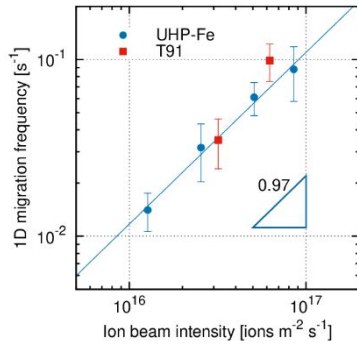


図2 イオン照射下での格子間原子集合体の1D運動頻度のビーム強度依存 (UHP-Fe:高純度鉄、T91:実用鋼)

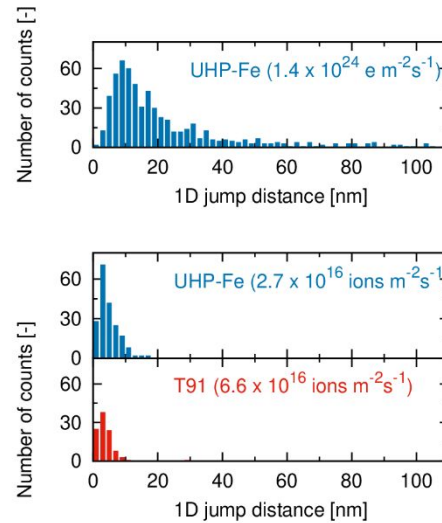


図3 格子間原子集合体の1D運動距離分布: 電子照射下(上図)、イオン照射下(下図) (UHP-Fe:高純度鉄、T91:実用鋼)

当初の予定では、侵入型不純物や溶質原子の濃度を系統的に変化させた試料を作製し、高純度鉄におけるイオン照射下での格子間原子集合体の1D運動挙動と比較する予定であった。しかしながら、高純度鉄においても、1D運動を阻害するトラップとして、残留不純物よりもカスケード損傷で直接形成される欠陥クラスターによる寄与が大きいことが明らかとなったことを受けて、侵入型不純物や溶質原子を多く含む実用鋼(T91鋼)における格子間原子集合体の1D運動挙動を調べる必要が生じた。その結果、電子照射下では高純度鉄に比べて実用鋼において1D運動頻度が低いという従来研究に対して、イオン照射下では同程度であることが分かった(図2)。また、1D運動距離は、実用鋼においては高純度鉄よりもやや短いことが分かった(図3)。これらの結果からも、1D運動の阻害に対して、カスケード損傷下で直接形成される欠陥クラスターによる寄与が大きいことが示唆された。

実験研究と並行して、格子間原子集合体の1D運動機構のモデリングについての検討を行った。従来から継続実施している超高压電子顕微鏡を用いた電子照射下その場観察実験により得られた結果とランダムウォーク理論に基づき、電子照射下において高純度鉄中の格子間原子集合体が1D運動中に残留不純物や他の格子間原子集合体にトラップされる確率の解析表現を導出し、同じ条件設定におけるモンテカルロ法による計算結果と一致することを確認した(図4)。この解析表現を反応速度論モデルに組み込むことにより、格子間原子集合体の1D運動挙動がその成長過程に与える影響を調べた。その結果、残留不純物にトラップされ静止状態にある格子間原子集合体は、電子照射によるトラップの弾き出しで1D運動を生じ、残留不純物への再トラップを免れた割合だけ薄膜表面で消滅することが示された。また、実験試料と同程度の不純物を仮定した場合に、実験による格子間原子集合体数密度の減少挙動を再現することが分かった(図5)。

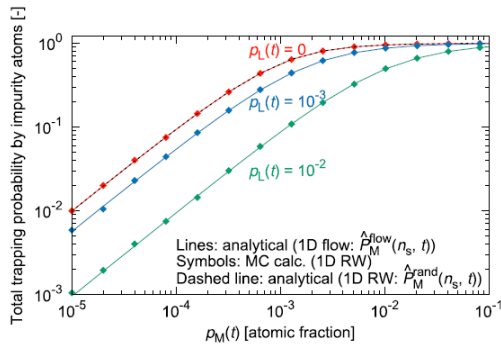


図4 1D運動を行う格子間原子集合体の薄膜内でのトラップ確率 ($\rho_M(t)$, $\rho_c(t)$:各格子点にそれぞれ不純物と他の格子間原子集合体が存在する確率)

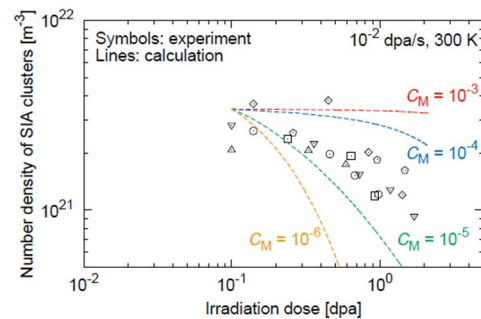


図5 電子照射下での格子間原子集合体数密度の時間発展に対する不純物濃度 C_M の影響 (化学分析による残留不純物は $C_M \sim 5 \times 10^{-5}$)

さらに、実用鋼のモデル化においては、格子間原子集合体の1D運動の阻害に寄与するトラップとして、残留不純物や欠陥クラスターの他に、合金元素の影響を考慮する必要がある。しかしながら、合金元素の影響のモデル化には至っていないことと、カスケード損傷下において1D運動を阻害するトラップとして、侵入型不純物や溶質原子よりもカスケード損傷で直接形成される欠陥クラスターによる寄与が大きいことが本研究課題により示唆されたことを考慮して、まずはカスケード損傷による格子間原子集合体の直接形成の効果を新たにモデル化することにより、中性子照射下での実用鋼におけるマイクロ組織変化の予測計算を行った。その結果、格子間原子集合体の1D運動の影響を考慮しない従来モデルでは、照射により直接形成する格子間原子集合体が照射量とともに蓄積することが原因で、その数密度が増加し続けるのに対して、格子間原子集合体の1D運動の影響を考慮した本モデルでは、数密度の増加が緩やかとなり、実験データに近づくことが示された(図5)。

本研究課題で得られた成果は、原子炉構造材料における中性子照射下でのマイクロ組織変化の素過程に関する基礎的知識の深化に貢献するものであり、今後の高経年化プラントにおける照射脆化の予測精度向上のための調整パラメータを低減したモデル構築において重要な知見となるものと考えられる。

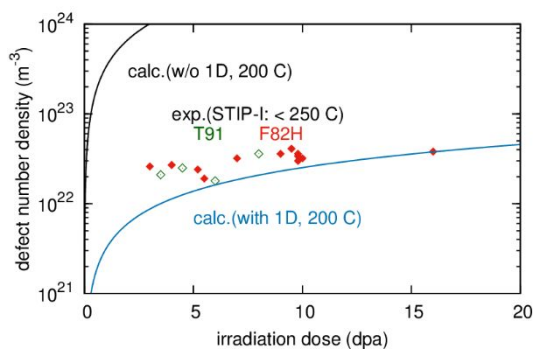


図6 中性子照射下での実用鋼中の格子間原子集合体の成長挙動に及ぼす1D運動の影響 (T91, F82H: 各種実用鋼)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Abe Y., Satoh Y., Hashimoto N., Ohnuki S.	4. 巻 100
2. 論文標題 Effects of one-dimensional migration of self-interstitial atom clusters on the decreasing behaviour of their number density in electron-irradiated α -iron	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Philosophical Magazine	6. 最初と最後の頁 110 ~ 125
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/14786435.2019.1673913	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Y. Abe and Y. Satoh
2. 発表標題 Effect of one-dimensional migration of self-interstitial atom clusters on their nucleation and growth behaviour in alpha-iron under electron irradiation
3. 学会等名 5th Nuclear Materials Conference (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 佐藤裕樹、阿部陽介
2. 発表標題 超高圧電子顕微鏡その場観察による格子間原子集合体の一次元運動機構と組織発達への影響の解明
3. 学会等名 北海道大学大学院工学研究院第7回エネルギー・マテリアル融合領域シンポジウム「未来の社会を支えるエネルギーとマテリアル」
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Abe, Y. Satoh, N. Okubo, A. Konno
2. 発表標題 Effect of one-dimensional migration of self-interstitial atom clusters on their number density in alpha-iron under electron
3. 学会等名 19th International Conference on Fusion Reactor Materials (ICFRM-19) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 阿部、大久保、山下、佐藤
2. 発表標題 格子間原子集合体の一次元運動に対する照射場影響
3. 学会等名 材料照射研究会「Irradiation 3.0 に向けて」
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 阿部、大久保、佐藤
2. 発表標題 イオン照射下での格子間原子集合体の一次元運動
3. 学会等名 金属学会春期講演大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	大久保 成彰 (Okubo Nariaki) (60391330)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター・研究副主幹 (82110)	
研究分担者	佐藤 裕樹 (Satoh Yuhki) (20211948)	広島工業大学・工学部・教授 (35403)	