

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 6月 6日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2008～2011

課題番号：20560771

研究課題名（和文）空孔をプローブとした金属中の自己格子間原子およびそのクラスターの移動に関する研究

研究課題名（英文）A Study on Migration of Self Interstitial Atom and its Clusters Using Vacancies as a Probe

研究代表者

岩井 岳夫 (IWAI TAKEO)

東京大学・大学院工学系研究科・助教

研究者番号：30272529

研究成果の概要（和文）：原子力材料の照射損傷機構の基礎となるはじき出し損傷初期過程に関する知見を得ることを目的として、低温でのイオン照射と陽電子ビームおよび電気抵抗測定を組み合わせた研究を実施した。はじき出し損傷効率や点欠陥およびそのクラスターの移動ステージなど、欠陥初期過程における重要な現象についての知見を得た。

研究成果の概要（英文）：In order to obtain a fundamental knowledge on the initial processes of displacement damage which cause radiation damage in nuclear materials, an experiment using ion irradiation at low temperature, positron beam and resistivity measurement was carried out. Displacement damage efficiencies were experimentally derived and migration stage of point defects and their clusters were clarified.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2009年度	900,000	270,000	1,170,000
2010年度	700,000	210,000	910,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：原子力材料、陽電子消滅法、鉄、dpa、カスケード損傷

## 1. 研究開始当初の背景

核分裂・核融合を問わず、原子力システムに用いられる材料の共通の課題は、核反応に伴って発生する中性子などの高エネルギー粒子による照射損傷である。照射損傷の起源は、材料中に入射してきた高エネルギー粒子が材料の構成原子を格子位置から弾き飛ばして生成した点欠陥であり、この点欠陥が熱的に移動・集合したり、移動に伴って合金元素や不純物原子の移動を促進したりすることによって二次欠陥を生成し、材料のマクロな性質を変化させるようなマイクロ組織変化

を引き起こす。よって点欠陥の生成の初期過程および移動に関する情報は、ミクロからマクロへと連鎖していく照射損傷を理解する上で非常に重要である。

点欠陥、すなわち空孔と格子間原子の移動に関する研究は古くから行われてきたが、陽電子消滅法である程度直接計測が可能な空孔に比べて、格子間原子の移動に関する実験的研究は限られているのが現状である。格子間原子の移動は古典的には等方的な拡散によると考えられてきたが、最近の計算機シミュレーションでは格子間原子クラスターが

非常に大きい移動度を持ち、直線的に移動する「1D-motion」が提唱され、この移動モードが照射損傷にどのような影響を与えるかが注目されている。実験的には、電子顕微鏡で格子間原子型転位ループの直線的な移動が観察され、クラスターの移動については実験的に検証されたと言えるが、電子顕微鏡の観察限界より小さいクラスター（カスケードから直接生成するものを含む）の移動に関する実験的データは少ない。

## 2. 研究の目的

点欠陥生成の初期過程については、古くからはじき出しの連鎖現象が起こることが指摘され、入射粒子が材料構成原子（一次はじき出し原子: Primary Knock-on Atom, PKA）に大きいエネルギー(keV~MeV)を与えたときには、局所的に高密度の点欠陥が生成する「衝突カスケード」を生成すると考えられてきた。計算機技術と分子動力学法の発達により、はじき出し過程→冷却過程（空孔と格子間原子が再結合する過程）に至るシーケンシャルな過程が描かれ、カスケード冷却後の空孔・格子間原子の配置が計算機上で調べられるようになった。その後の照射損傷組織の発達を特徴付ける重要な情報としては、

I 空孔・格子間原子のカスケード内クラスタリング

II 自由点欠陥生成効率

III クラスターの移動

が挙げられる。これらに関する分子動力学法などの計算機シミュレーションによる評価は盛んになされているが、これらの計算結果を裏付けるような十分な実験研究がなされてきたとは言えない。本研究では、空孔型欠陥にきわめて敏感な測定手法である陽電子消滅法および電気抵抗測定法を用いて、カスケード損傷構造を直接的に評価できる実験データを導出し、計算機シミュレーションの妥当性を検証する。

## 3. 研究の方法

対象は純鉄および少量の元素を添加した鉄合金を用いた。鉄系を選択した理由は、1) 軽水炉圧力容器鋼材や核融合炉第一壁構造材料としてのフェライト系ステンレス鋼の基礎材として実用上重要 2) カスケード損傷構造の計算例が数多く存在し、比較検討しやすい 3) 3次元的に体積を持った空孔型欠陥（ナノボイド）を形成し、その大きさと陽電子寿命との相関が確立されている 4) イオン照射材で陽電子ビーム測定の実績があるである。5) 過去に電気抵抗法でも実験結果があり、信頼できる物理定数が存在する、点

イオン照射は東京大学重照射研究設備

(HIT)のバンデグラフ加速器を用い、H<sup>+</sup>イオンとC<sup>+</sup>イオンを発生させて試料に照射した。照射時の試料温度は12Kに設定し、照射中および照射後に起こる熱的な欠陥の移動を抑制する条件とした。陽電子消滅測定には厚さ0.1mmの板材を用いたが、電気抵抗測定には欠陥導入領域が照射表面からイオン飛程近傍に限られることから、試料の膜厚を薄くすることによって欠陥導入領域の割合を増やし、相対的な抵抗変化が大きく取れるような手法を開発した。

この薄膜作製には、レーザアブレーション現象を利用したパルスレーザ蒸着法を用いた。レーザアブレーションとは、固体材料(ターゲット)に強いレーザ光を照射したとき、ターゲットを構成する元素が様々な形態(原子、分子、クラスタなど)で爆発的に放出されて、ターゲット表面がエッジングされる現象の総称である。このとき、ターゲット前面の空間には高密度のプラズマが生成される。この現象を利用して薄膜を生成する手法がパルスレーザ蒸着であり、この手法により薄膜試料の作製に成功した。

## 4. 研究成果

低温でのイオン照射と、その場で実施可能な陽電子ビーム測定および電気抵抗測定によって、照射欠陥生成過程における基礎パラメータであるはじき出し損傷効率を実験的に評価した。図1は電気抵抗変化の照射量依存性を示す。照射初期の段階では電気抵抗は照射量に対して比例し、その比例定数からはじき出し損傷効率を導出することが可能である。また、図2は陽電子ビームの測定結果から計算した欠陥濃度の照射量依存性であり、これも照射初期の傾きからはじき出し損傷効率が計算できる。既存の主な計算機シミュレーションの知見からこの照射条件におけるはじき出し損傷効率の値と併せて表1にその結果を示す。電気抵抗法は確立された手法であり、陽電子ビームによる方法に比べてこちらの方が信頼度は高く、計算機と近い値となっており、計算機シミュレーションの知見に対する裏付けが得られたのは大きな成果である。また、陽電子ビームによる導出値は他の半分近い値となったが、その原因はこのようなカスケードを含む系では空孔の空間的分布が一樣でないため、一樣な場合に比べて陽電子の捕獲確率が減少するためと推測している。

点欠陥および点欠陥クラスターの移動に関する知見を得るため、照射後焼鈍実験を実施した。図3は鉄および鉄-銅合金における陽電子ビームドップラー法で測定したSパラメータの焼鈍温度依存性を示したものである。12Kから100Kに至るまでSパラメータに変化はなく、格子間原子との再結合による空

表1 各手法によって導出された鉄でののはじき出し損傷効率

手法	1 MeV H <sup>+</sup>	2.8 MeV C <sup>+</sup>
計算値	0.52	0.42
電気抵抗	0.46	0.35
陽電子 ビーム	0.27	0.17

孔濃度の減少は検出できなかった。純鉄においては電子線照射の場合よりもかなり低い温度から空孔の移動が発現しており、これはカスケード中に近接した状態で空孔が存在していることを示唆している。また、銅を添加することにより空孔の移動と集合が強く抑制されることがわかった。

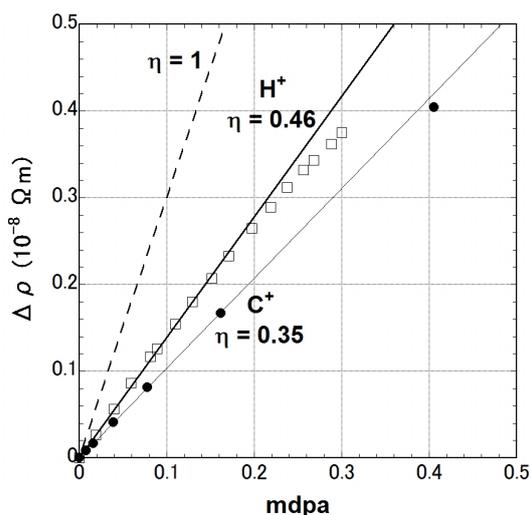


図1 電気抵抗率の照射量依存性

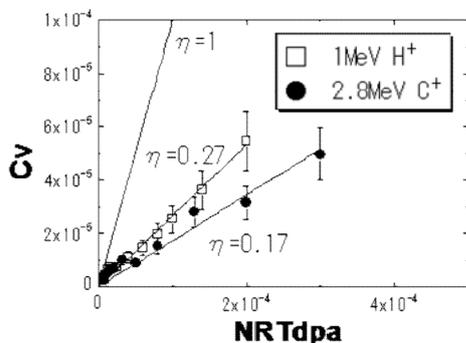


図2 陽電子ビームで測定した欠陥濃度の照射量依存性

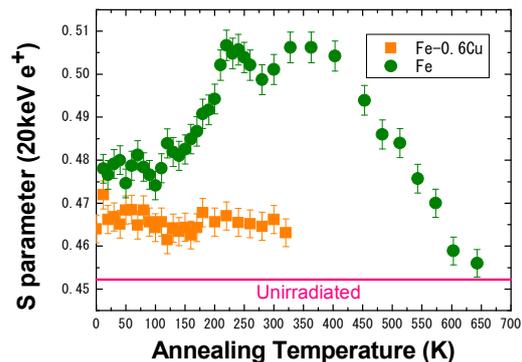


図3 20keVの陽電子ビームで測定したSパラメータの焼鈍温度依存性

2.8 MeV C<sup>+</sup>イオン照射材における回復段階を、電子線照射材や中性子照射材と比較しながら同定するために、電気抵抗率変化の温度微分を計算したものを図4に示す。

電子線照射材では、107Kに最も大きな回復段階があり、Stage I<sub>D</sub>と呼称している。この回復段階は、相関再結合（格子間原子が自由に移動して、対になる空孔で消滅する過程）と同定されている。高速中性子照射材でも、ほぼ同じ位置に回復段階が発現している。本研究では100Kに最も大きな回復段階が発現しており、これをStage I<sub>D</sub>とみなす。

電子線照射材では、Stage I<sub>D</sub>と重畳する形で、Stage I<sub>E</sub>（格子間原子の自由な拡散によるシンクでの回復に相当する）が120K付近に発現している。高速中性子照射材では、電子線照射材ほど明瞭に観測されていないが、120K付近にStage I<sub>D</sub>の肩の形で、Stage I<sub>E</sub>が観測されている。本研究では、10K毎の計測となったため、この肩を明瞭に測定する事ができなかったが、この温度領域における回復量は、中性子照射材と同じ程度である。

C<sup>+</sup>照射材では、150Kに次の回復段階が発現する。この回復段階をStage IIと呼称する。同様の回復段階は、中性子照射材で同じ温度に発現しており、電子線照射材では160Kに発現している。これらは、格子間原子対（di-interstitial）の自由な拡散と考えられる。

C<sup>+</sup>照射材では、次に、180K付近のなだらかな回復段階が発現する。この回復段階をStage III<sub>A</sub>と呼称する。高速中性子照射材でも、同じ温度域に回復段階が発現しているが、電子線照射材では観測されない。Stage III<sub>A</sub>の温度域では図3のように空孔型欠陥の成長が起きているので、これはカスケード中の近接した空孔の移動によると考えられる。

またC<sup>+</sup>照射材では、230Kに次の回復段階が現れる。この回復段階をStage III<sub>B</sub>と呼称する。前述の通り、電子線照射材、高速中性子照射材ともに、Stage III<sub>B</sub>が観察されてお

り、単空孔の自由な移動と考えられる。

このように、はじき出し損傷効率や点欠陥およびそのクラスターの移動など、欠陥初期過程における重要な現象についての知見を本研究により得ることができた。これらの成果は、今後計算機ベースで照射効果のモデル化が進展して行く中で、貴重な実験的な検証結果として価値は高いと考えられる。

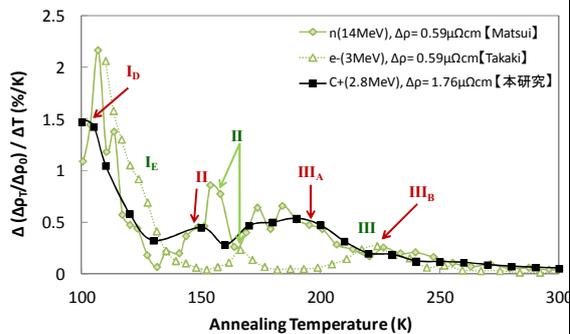


図4 C+イオン照射された純鉄の電気抵抗率の回復曲線。電子線照射と中性子照射の回復曲線も併せて表示。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計6件)

① T. Iwai, K. Murakami, T. Iwata and Y. Katano, “Defect Formation in Iron by MeV Ion Beam Investigated with a Positron Beam and Electrical Resistivity Measurement”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms (Special Issue: ICACS 25), 掲載決定, 査読有。

② T. Iwai, “A Positron Beam Doppler Broadening Analysis of Formation and Recovery of Defects Produced by Ion Irradiation in Fe-C-Cu Alloys”, Radiation Effects and Defects in Solids, 168 (2013) 308-315, DOI: 10.1080/10420150.2012.752365, 査読有。

③ T. Iwai and H. Tsuchida, “In-situ positron beam Doppler broadening measurement of ion-irradiated metals—current status and potential”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 285 (2012) 18-23, DOI: 10.1016/j.nimb.2012.05.005, 査読有。

④ H. Tsuchida, T. Iwai, S. Kasai, H. Tanaka, N. Oshima, R. Suzuki, T. Yoshiie and A. Itoh,

“Vacancy evolution in Ni during irradiation at high temperatures studied by in situ positron annihilation spectroscopy in comparison with simulation profiles”, Journal of Physics: Conference Series 262 (2011) 012060, 査読有。

DOI: 10.1088/1742-6596/262/1/012060

⑤ A. Kinomura, R. Suzuki, T. Ohdaira, N. Oshima, K. Ito, Y. Kobayashi and T. Iwai, “Defect profiles in ion-irradiated metal samples by slow positron beams in comparison with simulation profiles”, Journal of Physics: Conference Series 262 (2011) 012029, 査読有。

DOI: 10.1088/1742-6596/262/1/012029

⑥ T. Iwai, K. Murakami, Y. Katano, T. Iwata, T. Onitsuka and H. Abe, “A positron beam study on vacancy formation in iron by ion beam irradiation at low temperature”, Journal of Physics: Conference Series 225 (2010) 012023, 査読有。

DOI: 10.1088/1742-6596/225/1/012023

[学会発表] (計17件)

① T. Iwai, K. Murakami, T. Iwata and Y. Katano, “Defect Formation in Iron by MeV Ion Beam Investigated with a Positron Beam and Electrical Resistivity Measurement”, 25th International Conference on Atomic Collisions in Solids, 2012年10月、京都大学。

② K. Murakami, T. Iwai, H. Abe, Y. Katano, T. Iwata, T. Onitsuka, “Analysis of defects migration in RPV model alloys using low temperature ion irradiation”, NuMat 2012: The Nuclear Materials Conference, 2012年10月、大阪国際交流センター。

③ 村上健太, 関村直人, 岩井岳夫, 片野良夫, 岩田忠夫, 阿部弘亨, 「原子炉圧力容器鋼モデル合金の欠陥回復挙動に与える溶質原子の相乗効果」、日本原子力学会2011年秋の大会、2011年9月、北九州国際会議場。

④ T. Iwai, K. Murakami, Y. Katano, T. Iwata, T. Onitsuka, H. Abe, N. Sekimura, “Defect production in iron at low temperature by ion beam irradiation evaluated with positron beam”, Nuclear Materials 2010, 2010年10月5日, ドイツ・カールスルーエ。

⑤ K. Murakami, T. Iwai, H. Abe, Y. Katano, T. Iwata, T. Onitsuka and N. Sekimura, “Recovery of ion irradiation-induced defects in reactor pressure vessel model alloys”, Nuclear Materials 2010, 2010年10月5日, ドイツ・カールスルーエ。

⑥ 村上健太, 関村直人, 岩井岳夫, 片野吉

男, 岩田忠夫, 阿部弘亨, 鬼塚貴志, 「原子炉圧力容器モデル合金の低温イオン照射による欠陥の回復挙動」, 日本原子力学会 2010 年秋の大会, 2010 年 9 月 16 日, 北海道大学.

⑦ Takeo Iwai, Kenta Murakami, Yoshio Katano, Tadao Iwata, Takashi Onitsuka, Naoto Sekimura and Hiroaki Abe, “Ion-beam induced defect production in iron at low temperature investigated with positron beam Doppler broadening”, 12th International Workshop on Slow Positron Beam Techniques, 2010 年 8 月 4 日, オーストラリア・マグネティック島.

⑧ 岩井岳夫, 村上健太, 片野吉男, 岩田忠夫, 関村直人, 鬼塚貴志, 阿部弘亨, 「陽電子ビームによる極低温下イオン照射欠陥蓄積過程の評価」, 日本原子力学会 2010 年春の年会, 2010 年 3 月 27 日, 茨城大学水戸キャンパス.

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

岩井 岳夫 (IWAI TAKEO)  
東京大学・大学院工学系研究科・助教  
研究者番号: 30272529

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

阿部 弘亨 (ABE HIROAKI)  
東北大学・金属材料研究所・教授  
研究者番号: 40343925  
土田 秀次 (TSUCHIDA HIDETSUGU)  
京都大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号: 50304150  
鬼塚 貴志 (ONITSUKA TAKASHI)  
日本原子力研究開発機構・研究員  
研究者番号: 90422336