

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 24 年 6 月 8 日現在

機関番号：15201

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560686

研究課題名（和文）金属中の微小欠陥の構造と動的挙動

研究課題名（英文）Structure and dynamic behavior of small defects in metals

研究代表者

荒河 一渡（ARAKAWA KAZUTO）

島根大学・総合理工学部・准教授

研究者番号：30294367

研究成果の概要（和文）：

原子炉および核融合炉材料の正確な寿命予測および新規開発のためには、照射による劣化過程をそれぞれの要素に立ち返って理解する必要がある。本課題では、透過型電子顕微鏡（TEM）その場観察法を用いて、高エネルギー粒子照射によって金属中に形成される微小欠陥の動的挙動に関する新たな知見を得ることを目的とし、(1) 転位ループの一次元移動過程、(2) 転位ループの衝突過程、および(3) 点欠陥の移動の活性化エネルギー、に関する研究を行った。

研究成果の概要（英文）：

For the precise prediction of the life time of materials for nuclear-fission and fusion systems and the development of new materials for them, it is necessary to understand elementary processes of degradation of materials upon irradiation. In the present study, in order to obtain new knowledges on dynamic behaviors of small defects in metals produced upon energetic particle irradiation, by using in-situ transmission electron microscopy (TEM), we examined (1) one-dimensional migration process of dislocation loops, (2) collision process of dislocation loops, and (3) migration activation energy of self-interstitial atoms.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2010年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：工学・材料工学

キーワード：格子欠陥、転位、点欠陥、電子顕微鏡、照射損傷

1. 研究開始当初の背景

原子炉および核融合炉材料の正確な寿命予測のためには、照射による劣化過程をそれぞれの要素に立ち返って理解する必要がある。そのような基礎的理解は、長期的な視点からは、より高性能かつ高寿命の炉材料の開

発にもフィードバックされ得るものである。劣化過程の究明のための研究は50年以上に渡って長く行われてきたにも関わらず、現状では、炉材料として重要視されているフェライト鋼のベースである体心立方構造(BCC)鉄中の自己格子間原子の原子構造および構

造と強く結びつく移動過程すら解明されているとは言い難い状況にある。

2. 研究の目的

本研究では、透過型電子顕微鏡 (TEM) その場観察法によって、高エネルギー粒子照射によって金属中に形成される微小欠陥の微細構造および動的挙動に関する新たな知見を得ることを目的とした。ここでは、(1) 転位ループの一次元移動過程、(2) 転位ループの衝突過程、および(3) 自己格子間原子の移動の活性化エネルギー、に関する研究を行った。

3. 研究の方法

(1) 転位ループの一次元移動過程

研究代表者によるこれまでの研究によって、BCC 鉄中の格子間原子の集合体である転位ループは、無応力においても熱エネルギーによってそのバーガースベクトルの方向へ一次元のすべり拡散を行い得ることが明らかにされている (Arakawa et al., Science, 318 (2007) 956.)。ここでは、完全転位ループの本来の移動の活性化エネルギー E を評価することを具体的な課題とした。

特に低温では、転位ループは試料中に分散した静的な溶質原子や不純物原子にトラップされ、極めて稀にしか移動を示さない。例えば、純度 99.998% の BCC 鉄では、熱的なデトラップが起こり得る温度 (100 K 程度) では、一旦デトラップされた転位ループの動きは極めて速く、TEM に備えられた TV カメラ (時間分解能 1/60 s) では、補足することが不可能であり、拡散係数の温度依存性から E を求めることは困難であった。そこで、温度に関わりなくデトラップを起し得る系を設定し、デトラップされた転位ループの移動が起こり得る最低温度を見つけることで、 E の値を評価することとした。試料として、純度 99.9999% のタングステンを選んだ。転位ループの導入は、TEM 薄膜試料に対する、超高压電子顕微鏡内での 2 MeV 電子照射によっておこなった。

(2) 転位ループの衝突過程

二つの転位ループ同士の一次元すべり拡散による衝突と合体の過程を超高压電子顕微鏡および汎用の TEM を併用して直接調べた。試料には純度 99.998% の BCC 鉄を用いた。まず超高压電子顕微鏡内での電子照射により、薄膜試料へ転位ループを導入した。この試料を汎用電子顕微鏡へ移し、加熱下での転位ループの挙動を観察・記録した。

(3) 自己格子間原子の移動の活性化エネルギー

電子顕微鏡では直接追跡することが極めて

困難な点欠陥の挙動を転位ループの形成過程から抽出することを試みた。

試料には純度 99.9999% の高純度タングステンを用いた。超高压電子顕微鏡内 2 MeV 電子照射および照射によって導入される微細組織の観察を 16~291 K の温度範囲にわたっておこなった。

4. 研究成果

(1) 転位ループの一次元移動過程

非熱的なデトラップは、高エネルギーの電子照射によって起こした。結果として、使用した TEM 内で到達し得る最低温度 16 K においても転位ループの移動が観察された。このことは、 E の値が少なくとも 0.1 eV 以下という極めて低い値であることを示す。

今後、電子照射による非熱的なデトラップの過程の詳細を調べる必要がある。

(2) 転位ループの衝突過程

転位ループの衝突過程を示す TEM 連続写真を図 1 に示す。転位反応に関する従来の描像では、異なるバーガースベクトル \mathbf{b}_A および \mathbf{b}_B を持つ二つの転位同士が衝突すれば、 $\mathbf{b}_J = \mathbf{b}_A + \mathbf{b}_B$ なるバーガースベクトル \mathbf{b}_J を持つ転位ジャンクションが形成され、そこで反応は終了するとされてきた。これに対し、ここでは、ナノメートルサイズの微小な転位ループにおいては、ジャンクションの形成後も更に反応が進行し、小さい方の転位ループの面内をジャンクションが伝播してしまうことによって、最終的には、より大きい転位ループがより小さい転位ループを吸収してしまうことが明らかにされた。また、この反応は、転位ループ複合体の弾性論に基づくエネルギー計算によっても理解された。

本研究で得られた知見は、特に、欠陥同士の相互作用が無視できない高照射量条件における、照射下微細組織発達過程を理解する上でのキーの一つになると考えられる。

(3) 自己格子間原子の移動の活性化エネルギー

実験を行ったいずれの照射温度でも転位ループと思われる微小な点欠陥集合体が形成された。比較的大きな転位ループに対しては、インサイド・アウトサイド法によって、格子間原子型であると判定できた。インサイド・アウトサイド法が適用できないような極めて小さな転位ループについては、熱処理に対する転位ループサイズの応答からやはり格子間原子型であると決定できた。形成される転位ループの飽和数密度は、照射温度に対して減少した。この減少の仕方は滑らかではなく、複数のステージから成っていた。これらのステージは、最も低温のものを除いては、不純物の存在によって現れるものである。本

実験で用いたような高純度試料においても、点欠陥集合過程において不純物が極めて重要な役割を果たすことは特筆に値する。不純物の最も低温側に現れるステージの温度域から、自己格子間原子の移動の活性化エネルギーは、0.096 eV 以下であると評価できた。この値は、最近の理論計算によって導かれている極めて小さな値と符合するものである。

本実験の拡張により、移動の活性化エネルギーに留まらない点欠陥の新たな知見を獲得できる見込みが現在得られつつある。

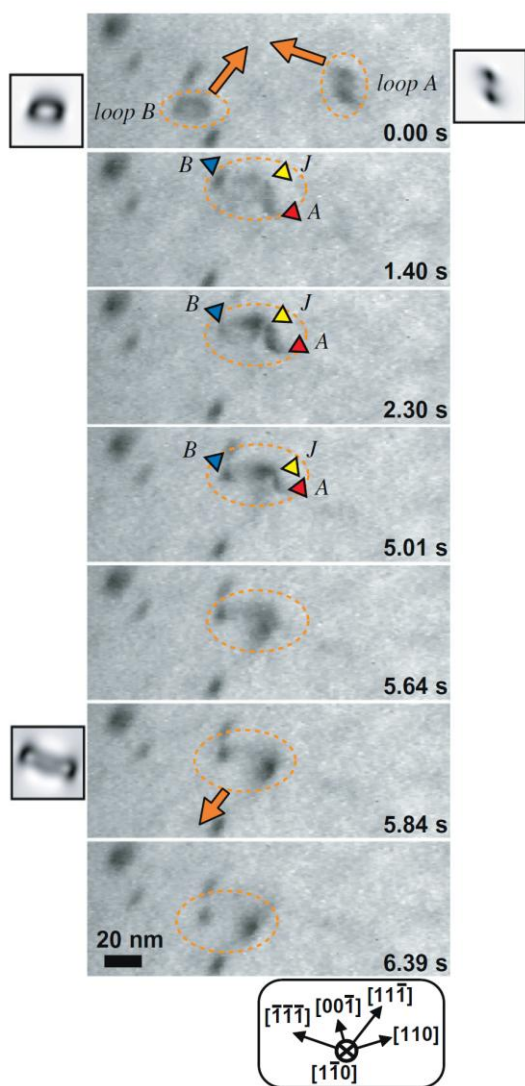


図1 純鉄における二つの転位ループの衝突過程。転位ループが衝突したことにより、転位ジャンクション[J] (1.40 s) が形成され、このジャンクションが転位ループAの端 [A] へ向かって移動し合体することによって、最終的に一つの転位ループが形成されている (5.64 s)。(K. Arakawa et al., Acta Mater. 59 (2011) 141-145.)。

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 10 件)

- (1) T. Amino, K. Arakawa, and H. Mori, "Reaction Rate between 1D migrating Self-Interstitial Atoms: An Examination by Kinetic Monte Carlo Simulation," Philosophical Magazine 91 (2011) 465-499. 査読有. DOI:10.1080/14786435.2011.575411.
- (2) T. Amino, K. Arakawa, and H. Mori, "Verification of Rate Equation for Recombination between Self-interstitial Atoms and Vacancies (in Japanese)," Journal of the Japan Institute of Metals 75 (2011) 460-464. 査読有.
- (3) 荒河一渡, "金属中の格子欠陥の TEM/HVEM による研究—高純度金属の重要性— (依頼論文)," 金属 81 (2011) 45-52. 査読無.
- (4) 荒河一渡, "回折コントラスト法による微細構造の観察 (依頼論文)," 46 (2011) 258-265. 査読無.
- (5) T. Amino, K. Arakawa, H. Mori, "Activation Energy for Long-Range Migration of Self-Interstitial Atoms in Tungsten Obtained by Direct Measurement of Radiation-Induced Point-Defect Clusters," Phil. Mag. Lett. 91 (2011) 86-96. 査読有. DOI: <http://dx.doi.org/10.1080/09500839.2010.533133>.
- (6) K. Arakawa, T. Amino, H. Mori, "Direct Observation of the Coalescence Process between Nanoscale Dislocation Loops with Different Burgers Vectors," Acta Materialia 59 (2011) 141-145. 査読有. <http://dx.doi.org/10.1016/j.actamat.2010.09.018>.
- (7) S. L. Dudarev, M. R. Gilbert, K. Arakawa, H. Mori, Z. Yao, M. L. Jenkins, "A Langevin Model for Real-time Brownian Dynamics of Interacting Nano-defects in Irradiated Metals," Phys. Rev. B (Editor's Suggestion) 81 (2010) 224107_1-224107_15. 査読有. DOI:10.1103/PhysRevB.81.224107.
- (8) 荒河一渡, 森博太郎, "ナノメートルサイズのプリズマティック転位ループの一次元拡散—TEM その場観察による研究— (依頼論文)," まてりあ 48 (2009) 11-15. 査読無.
- (9) K. Ono, M. Miyamoto, K. Arakawa, and

R. C. Birtcher, "Dynamical Response of Helium Bubble Motion to Irradiation with High-Energy Self-Ions in Aluminum at High Temperature," *Philosophical Magazine* 89 (2009) 513-524.
DOI:10.1080/14786430802629493.

- (10) K. Arakawa and H. Mori, "Energetics of Formation Process of a $\langle 001 \rangle$ Prismatic Dislocation Loop via the Collision between Two $1/2\langle 111 \rangle$ Loops in alpha-Iron," *Journal of Physics: Conference Series* 165 (2009) 012005-1-012005-4. 査読有. DOI: 10.1088/1742-6596/165/1/012005.

[学会発表] (計 19 件)

- (1) 荒河一渡、網野岳文、森博太郎, "高純度金属における自己格子間原子の移動次元," 日本金属学会春期大会, 2012. 3. 28-30, 横浜国立大学.
(2) 荒河一渡, "電子顕微鏡法による微小格子欠陥の動的挙動に関する研究," 日本金属学会春期大会 (招待講演), 2012. 3. 28-30, 横浜国立大学.
(3) 網野岳文、荒河一渡、森博太郎, "高純度タンゲステンにおける自己格子間原子の移動次元の温度依存性," 日本金属学会秋期大会, 2011. 11. 7-9, 沖縄コンベンションセンター.
(4) 荒河一渡、網野岳文、森博太郎, "高エネルギー電子照射下での高純度タンゲステン中のボイドの非一様成長," 日本金属学会秋期大会, 2011. 11. 7-9, 沖縄コンベンションセンター.
(5) K. Arakawa, "High-energy Electron Irradiation of Metals: Effects of High-Dose Rate and Properties of Single Point Defects," Workshop on Ion Implantation as a Neutron Irradiation Analogue (招待講演), 2011. 9. 26-28, Oxford University, UK.
(6) K. Arakawa, T. Amino, H. Mori, "Recent Studies on Radiation Damage in Metals using HVEM," Electron Microscopy and Multi-scale Modeling Conference 2011, 2011. 5. 22-26, Tahoe, USA.
(7) S. L. Dudarev, M. R. Gilbert, K. Arakawa, H. Mori, Z. Yao, M. L. Jenkins, and P. M. Derlet, "A Langevin Dynamics Model for Real-time Evolution of Interacting Nano-defects Observed by In-situ Electron Microscopy," Electron Microscopy and Multi-scale Modeling Conference 2011, 2011. 5. 22-26, Tahoe, USA.
(8) 網野岳文、荒河一渡、森博太郎, "低温電

子照射下における高純度タンゲステン中の転位ループ形成," 日本顕微鏡学会学術講演会, 2011. 5. 16-18, 福岡国際会議場.

- (9) S. L. Dudarev, M. R. Gilbert, K. Arakawa, H. Mori, Z. Yao, M. L. Jenkins, and P. M. Derlet, "Langevin Model for Real-Time Dynamics of Interacting Nano-Defects in Irradiated Metals (招待講演)," MRS Fall Meeting 2010, Structural Materials and Fuels for Future Fusion and Fission Technologies, November 29-December 3, 2010, Boston, USA.
(10) S. L. Dudarev, M. R. Gilbert, K. Arakawa, H. Mori, Z. Yao, M. L. Jenkins, and P. M. Derlet, "A Stochastic Algorithm for Simulating Real-Time Dynamics of Interacting Nano-Defects in Irradiated Bcc Metals (招待講演)," The 5th International Conference on Multiscale Materials Modeling, Radiation Effects, October 4-8, 2010, University of Freiburg, Freiburg, Germany.
(11) K. Arakawa, T. Amino, and H. Mori, "In Situ TEM Study of Dynamic Behaviors of Nanoscale Defects: Similarities and Differences between Experiments and Simulations (招待講演)," The 5th International Conference on Multiscale Materials Modeling, Radiation Effects, October 4-8, 2010, University of Freiburg, Freiburg, Germany.
(12) 網野岳文、荒河一渡、森博太郎, "Kinetic Monte Carlo 法による点欠陥反応方程式の妥当性の検証," 日本金属学会秋期 (第 147 回) 大会, 2010 年 9 月 25 日-27 日, 北海道大学 (北海道).
(13) 藤井克也、荒河一渡、一色実、打越雅仁、三村耕司、森博太郎, "純鉄中の格子間原子型 $\langle 100 \rangle$ 転位ループの酔歩運動の解析," 日本金属学会秋期 (第 147 回) 大会, 2010 年 9 月 25 日-27 日, 北海道大学 (北海道).
(14) 荒河一渡、網野岳文、森博太郎, "高エネルギー電子照射による高純度タンゲステン中のボイド形成," 日本金属学会秋期 (第 147 回) 大会, 2010 年 9 月 25 日-27 日, 北海道大学 (北海道).
(15) T. Amino, K. Arakawa, and H. Mori, "Evaluation of Activation Energy for Migration of self-Interstitial Atoms by HVEM," 17th International Microscopy Congress, September 19-24, 2010, Windsor Barra Convention Center,

Rio, Brazil.

- (16) 荒河一渡, “HVEM/TEM による照射損傷の要素過程の研究(招待講演),” 日本原子力学会材料部会 第9回夏期セミナー, 2010年8月18日-20日, 茨城県久慈郡大子町余暇活用センターやみぞ(茨城県).
- (17) K. Arakawa and H. Mori, “Direct In-situ Electron Microscope Observations of Dynamics of Radiation Defects in Irradiated Materials (招待講演),” CIMTEC 2010, 5th Forum on New Materials, Materials Challenges for Future Nuclear Fission and Fusion Technologies, June 13-18, 2010, Vittoria Congressi, Montecatini Terme, Italy.
- (18) 網野岳文、荒河一渡、森博太郎, “タングステンにおける自己格子間原子移動の次元性と二次欠陥の形成,” 日本顕微鏡学会第66回学術講演会, 2010年5月23日-26日, 名古屋国際会議場(愛知県).
- (19) K. Arakawa, T. Nagase, H. Mori, “Studies on Electron-Irradiation Produced lattice Defects in Metals with HVEM (招待講演),” The Twelfth Frontiers of Electron Microscopy in Materials Science, 9.27-10.2, 2009, ハウステンボス(Nagasaki).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

荒河 一渡 (ARAKAWA KAZUTO)
島根大学・総合理工学部・准教授
研究者番号: 30294367

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号: