

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 6 月 24 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25289351

研究課題名(和文) 組合せ照射概念に基づく照射欠陥発達挙動の研究

研究課題名(英文) A study on radiation damage behavior using combination of irradiation experiences

研究代表者

関村 直人 (Sekimura, Naoto)

東京大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：10183055

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：金属などの結晶材料に放射線が入射すると照射欠陥が形成される。照射欠陥の発達挙動は照射環境や材料の違いにとっても敏感であり、その性質を知るには膨大な照射試験が必要とされてきた。本研究は、面心立方金属の材料の代表例としてステンレス鋼や金、体心立方金属の代表例として鉄基希薄合金を取り上げ、複数のイオン照射を組み合わせた照射実験と組織観察により、制御された欠陥構造を導入したり、通常の照射試験では可視化できない潜在的な欠陥を観察したり、照射欠陥の発達挙動を微分的に測定したりすることに成功した。また研究を通して、全国大学共同利用設備の震災復興に貢献した。

研究成果の概要(英文)：Evolution of irradiation defects is sensitive to the difference of materials and environment, so that it has been required to perform a large number of irradiation tests to evaluate structural integrity of nuclear materials. The objective of this study was to design efficient irradiation experiences by the combination of different type of irradiation experiences. The followings were our major goals, which were successfully achieved in gold, stainless steels, and iron-based alloys; 1) Controlling the structure of irradiation defects; 2) Visualization of invisible defects and short-lifetime defects; 3) Continuous observation of a irradiation defect in same field-of-view. This study contributed to resume the utilization of the High Fluence Irradiation Facility of the University of Tokyo severely suffered by the earthquake in 2011.

研究分野：原子力学

キーワード：照射損傷 イオン照射 原子力材料

## 1. 研究開始当初の背景

金属などの結晶材料が中性子などの放射線に照射されることによって形成される格子欠陥（照射欠陥）の発達挙動は、照射条件や材料の違いによって大きく変化することが知られており、原子炉材料の健全性評価や放射線を利用した材料改質のためには膨大な照射試験が必要とされてきた。

照射欠陥の発達は核形成過程と成長過程に大別されるが、特に核形成の過程は複雑でありモデル化が難しい。

## 2. 研究の目的

「組合せ照射」の手法を用いて効率的に照射欠陥の発達挙動を評価する手法を開発することを着想とした。組合せ照射とは、ある条件で予照射された試料を別の条件で追照射することである。

本研究では、この手法を駆使して、(1) 制御された欠陥構造の導入；(2) 潜在する欠陥の同定；(3) 欠陥発達挙動の微分的な測定、の三つを可能にすることを目的とした。

## 3. 研究の方法

茨城県東海村にある東京大学重照射損傷研究設備（HIT）を中核として照射実験と分析を展開した。HITはユーザ数の最も多い全国大学共同利用設備の一つであったが、東北地方太平洋沖地震によって全ての加速器と付帯する設備の多くが損傷し、復興予算でタンデム加速器1台のリプレイスのみが行われた状況であった。

まず、予照射のための設備として、HITでリプレイス前に使用されていた照射チャンバ及びビームラインを有効活用しつつ、バルク状の試料を精緻に制御された環境（温度及びビーム量）で照射できるシステムを構築した。これにより、 $\sim 500$  程度までの範囲で $\pm 1$  程度の変動で温度調整を可能にすると共に、4 mm ピッチでビームプロファイルを取得することができるようになった。

次に、追照射の実験環境として、HITで新たに構築されていたイオン加速器連結電子顕微鏡を使用するための技術開発を行った。この装置を使って精緻な照射実験を設計するためには視野の周辺で均一なビームを得る必要があった。そこでビームラインと電子顕微鏡の位置関係をミリメートル単位で調整するためのアジャスタを設計した。加えて、潜在的な欠陥の検出や微分的な発達挙動の分析を実施するためには、照射中の試料の反りや振動を抑制する必要があった。そこで、

試料のリフトアウト形状や取付け方法を系統的に変化させて電子顕微鏡内での加熱実験や照射実験を繰り返すことにより、適切なセッティング方法を発見した。

上記の技術開発成果を活用し、面心立方構造の材料としてステンレス鋼と金、体心立方構造の材料として希薄鉄基合金を対象とし、組合せ照射による照射欠陥挙動の観察を行った。

## 4. 研究成果

### 4.1 制御された欠陥の導入

炉内構造物などに使用されるステンレス鋼は、照射環境や高速中性子の照射量などに応じて形成される照射欠陥の種類が大きく異なることが知られている。代表的なものは、ブラックドットと呼ばれる数ナノメートルの欠陥集合体、フランクグループと呼ばれる格子間原子型積層欠陥転位ループ、完全転位ループ、空孔の三次元的な集合体であるポイド、そしてニッケルやシリコンの析出物である。そこで照射温度および照射量を系統的に変化させた照射実験を行うことにより、特定の欠陥を選択的に成長させる照射条件を導いた。

原子炉圧力容器などに使用される低合金鋼では、原子炉運転温度では空孔型の照射欠陥の発達は殆ど観察されず、格子間原子型の転位ループや析出物が主たる照射欠陥として知られている。そこで、過去にHITで実施された低温イオン照射実験の結果を再解析し、格子間原子型および空孔型の照射欠陥が移動できる温度域や、それに対する溶質原子の影響を評価することにより、体心立方構造をもつ鉄基合金においても制御された欠陥導入を実現するための基盤を整えた。例えば図1は、鉄にマンガンを添加することにより、空孔型欠陥の移動を大きく阻害できることを示すものである。

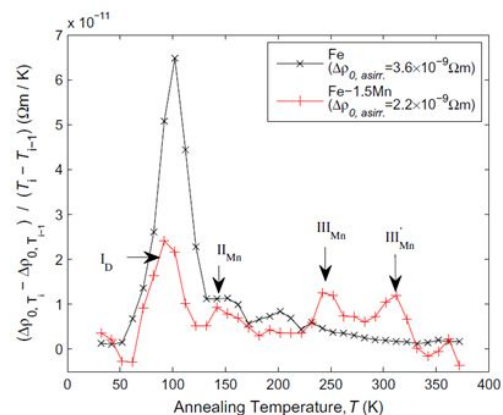


図1 Fe-Mn合金の低温照射後の電気抵抗率の変化（雑誌論文2からの引用）

## 4.2 潜在する欠陥の同定

面心立方構造を有する金属のモデル合金として金を用いて、その場観察実験を行った。2 MeV の Fe イオンを様々な温度で Au 薄膜へ照射したところ、直径 10 ナノメートル程度の欠陥集合体が形成されては消滅する過程が観察された。図 2 に示す通り、欠陥集合体の形成は徐々に大きくなるのではなく、CCD カメラにおける測定 1 フレーム (40 ms) の間に突然発現し、その後しばらくはサイズに有意な変化が見られないという特徴がある。欠陥集合体の形成効率はいオン束の 15% 程度であり、本実験の範囲では温度依存性は見られなかった。1 フレームにひとつの欠陥集合体が発現することもあるが、図 2 のように複数の欠陥集合体が比較的近い位置に同時に現れることもある。これらの特徴から、加速器結合型電子顕微鏡内で観察される欠陥集合体は、カスケード損傷によって高密度に形成された空孔型欠陥が短距離の熱拡散によって集合し、可視化されたものだと考えられる。

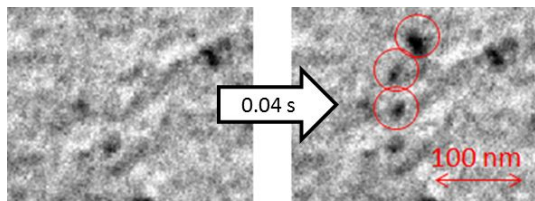


図 2 照射下での Au の欠陥集合体形成挙動

Au 中の空孔型欠陥集合体は不安定であり、比較的短い時定数で消滅する。欠陥集合体の寿命は照射温度が高いほど短くなった。欠陥サイズの減少は断続的に発生する傾向がある。その特徴的な例を図 3 に示す。図 3(a) では赤い円の中に欠陥集合体は見られない。0.04 秒後の図 3(b) では直径 20 nm 程度の集合体が形成されている。この欠陥集合体のサイズは図 3(c) までの 1.36 秒間にわたって、ほとんど変化していないが、次のフレームである図 3(d) では欠陥集合体の直径は半分以上まで減少している。このように、照射下における欠陥集合体は数回の急激なサイズの減少を経て消失することが多い。この挙動から、欠陥集合体の消滅には、熱拡散している講師間原子型集合体との対消滅といった集合体同士の相互作用が大きく寄与しており、単空孔の放出や格子間原子の吸収といった点欠陥の拡散の影響は比較的小さいと考えられる。

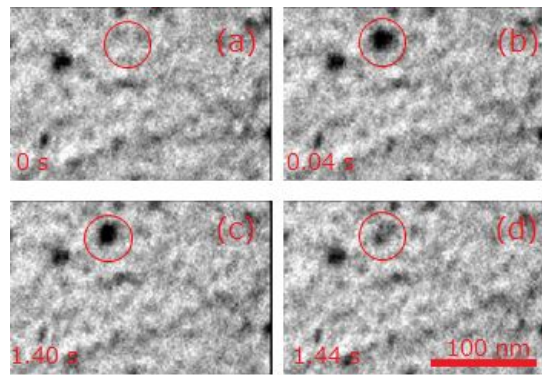


図 3 照射下での Au の欠陥集合体消滅挙動

体心立方構造を有する金属として、鉄基合金を用いても同様の実験を行なった。エネルギーを変えながら Fe イオンと O イオンを照射したが、欠陥集合体の形成挙動を観察することはできなかった。鉄の自己イオン照射や軽イオン照射では、カスケード損傷による空孔型欠陥の密度が低くなることから、可視化できるほどの空孔型欠陥の集合が生じなかったと考えられる。

## 4.3 欠陥状態変化の微分的な測定

290 °C で約 0.8 dpa まで予照射されたステンレス鋼から集束イオンビーム加工装置によるリフトアウト法により観察試料を作製し、これを加速器結合型電子顕微鏡内で追照射することにより、欠陥状態変化の微分的な測定を行った。試料には予照射によって平均直径 4 nm のブラックドットを  $5 \times 10^{22} / \text{m}^3$  ほど導入している。これらのブラックドットを 2 MeV Fe イオンを 400 °C で照射することにより発達させると、多くのブラックドットが縮小して消失したが、一部は成長して直径 15 nm ほどのフランクループへと変化した。成長挙動にはステンレス鋼中の添加元素の依存性があることも明らかになった。

次に、450 °C で 12 時間熱時効することにより ~100 nm 程度の析出物を形成させた Fe-Cu 合金を加速器結合型電子顕微鏡内で追照射することにより、析出物の成長あるいは分解の微分的観察を試みた。2 MeV Fe イオンを 40 mdpa のはじき出し損傷を与えるまで照射したが、図 4 に示すとおり、析出物の大きさには全く影響を与えなかった。このことは、銅析出物が照射下でも安定であるという従来の知見を裏付けている。

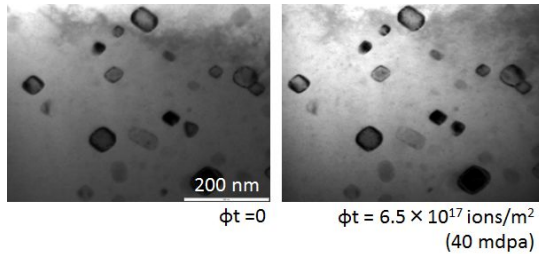


図 4 Fe-Cu 合金中の Cu 析出物の安定性

#### 4.4 まとめ

東京大学重照射損傷設備(HIT)を利用し、希薄鉄基合金、ステンレス鋼、金といった金属材料を対象として、制御された欠陥構造の導入、潜在する欠陥の同定、欠陥挙動の微分的な測定といった組合せ照射手法を確立した。

また、これらの研究を通じて、東北地方太平洋沖地震によって壊滅的な被害を受けた全国大学共同利用施設をリスタートするために必要なプラクティスを確立し、共同利用本格再開への展開を可能にした。

#### 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 9 件)

- 1) K. Murakami, N. Sekimura, et. al., Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B. *In Press*. DOI: 10.1016/j.nimb.2016.05.022
- 2) K. Murakami, N. Sekimura, et. al., Phil. Mag. 95 (2015) 1680-1695
- 3) K. Murakami, N. Sekimura, et. al., J. Nucl. Sci. Tech. 53 (2016) 1061-1066

〔学会発表〕(計 11 件)

- 1) K. Murakami, et. al., The 19th meeting of the International Group on Radiation Damage Mechanisms in Pressure Vessel Steels, April 2016, Asheville, NC, USA.
- 2) D. Y. Chen, *et. al.*, The 19th meeting of the International Group on Radiation Damage Mechanisms in Pressure Vessel Steels, April 2016, Asheville, NC, USA.
- 3) 陳東鉞, 他, 日本原子力学会 2016 年春の年会, 2015 年 3 月, 仙台市
- 4) 村上健太, 他, 日本金属学会 2016 年春期講演大会, 2016 年 3 月, 葛飾区
- 5) D. Y. Chen, *et. al.*, Swift Heavy Ion in Mater 2015, May 2015, Darmstadt, Germany,
- 6) 陳東鉞, 他, 日本原子力学会 2015 年春

の年会, 2015 年 3 月, 日立市

- 7) 陳東鉞, 他, 日本金属学会 2015 年春期講演大会, 2015 年 3 月, 目黒区
- 8) K. Murakami, et. al., The 18th meeting of the International Group on Radiation Damage Mechanisms in Pressure Vessel Steels, November 2014, Miyazaki, Japan
- 9) K. Murakami, et. al., The 17th meeting of the International Group on Radiation Damage Mechanisms in Pressure Vessel Steels, May 2013, Embiez Island, France

〔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〕

[http://www.safety.n.t.u-tokyo.ac.jp/prof\\_sekimura/index.html](http://www.safety.n.t.u-tokyo.ac.jp/prof_sekimura/index.html)

#### 6. 研究組織

(1) 研究代表者

関村直人 (Naoto Sekimura)

(東京大学 大学院工学系研究科 教授)

研究者番号: 10183055

(3) 連携研究者

村上健太 (Kenta Murakami)

(東京大学 大学院工学系研究科 助教)

研究者番号: 50635000