

平成 30 年 6 月 21 日現在

機関番号：15201

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H04244

研究課題名(和文) 格子欠陥挙動の正確な理解に基づいた材料照射損傷の新たな抑制原理の確立

研究課題名(英文) Study of a new mechanism for the suppression of radiation damage in materials

研究代表者

荒河 一渡 (Arakawa, Kazuto)

島根大学・総合理工学研究科・准教授

研究者番号：30294367

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,900,000円

研究成果の概要(和文)：原子炉・核融合炉構造材料の照射下劣化の主要因は、中性子照射による照射誘起格子点欠陥集合体の蓄積である。点欠陥集合体の蓄積過程を理解するためには、より微小なあらゆる種類の欠陥の生成・移動・相互作用といった挙動についての基礎的な知見が必要である。

本研究では、耐照射構造材料の比較的単純なモデル金属を対象として、超高压電子顕微鏡およびイオン加速器結合型電子顕微鏡を駆使して、ナノサイズ欠陥の挙動に関する新たな知見を得た。

研究成果の概要(英文)：Primary origins of the degradation of nuclear-fission and fusion materials are accumulation of point-defect clusters upon neutron irradiation. Understanding accumulation processes of point-defect clusters requires accurate knowledge on the behaviors of various small defects such as generation, motion, and interaction.

In the present study, we have examined comparatively simple model metals using high-voltage electron microscopes and an ion-accelerator combined electron microscope, and revealed some behaviors of nanometer-sized defects.

研究分野：格子欠陥

キーワード：照射損傷 格子欠陥 電子顕微鏡 核融合炉 原子炉 転位 衝突カスケード

1. 研究開始当初の背景

原子炉・核融合炉構造材料の照射下劣化の主要因は、照射誘起格子欠陥の蓄積である。炉材料が高エネルギー粒子照射を受けると、原子サイズの二種類の点欠陥（原子空孔と自己格子間原子）が生成される。個々の点欠陥は、移動し、他の欠陥との様々な反応を起こす。同種の点欠陥同士が会合すれば点欠陥集合体（原子空孔集合体であるボイド、自己格子間原子集合体である転位ループ、等）を形成し、点欠陥集合体は同種の点欠陥や点欠陥集合体を吸収してナノ～ミクロンサイズにまで成長する。こうして点欠陥集合体が蓄積されることにより、材料は劣化してゆく。

点欠陥集合体の蓄積過程を理解するためには、より微小なあらゆる種類の欠陥の生成・移動・相互作用といった挙動についての基礎的な知見が必要である。しかし単純な純金属においてすら、そのような基礎的な知見は未だに不足している。

2. 研究の目的

本研究では、先進電子顕微鏡法を駆使し、耐照射構造材料のモデル金属・合金を対象として、各種欠陥の生成・移動・相互作用についての未解明な挙動を解明することを目的とした。ここでは、本研究により得られた代表的な成果を示す。

3. 研究の方法

(1) タングステンにおける転位ループの移動過程

プリズマティック転位ループは、金属の照射損傷および塑性変形等の過程においてしばしば形成される重要な格子欠陥である。これまでの実験研究（例えば、K. Arakawa et al., Science, 318, 956 (2007)）によって、(i) ナノサイズ以下の完全転位ループは一次元すべり拡散を行い得ること、(ii) ループは、静的な不純物原子によってトラップされ得ること、および (iii) 比較的高温での焼鈍後のような、不純物が平衡分布を取れる環境下では、動的な不純物によるコットレル雰囲気によって、静的な不純物からデトラップされたループの一次元拡散が顕著に減速されてしまうこと、等が明らかにされている。ループの一次元拡散係数の活性化エネルギーは、重要な物理量であるが、動的な不純物によるコットレル雰囲気を伴わない「裸の」ループについては実験的な評価が未だに為されていない。本研究では、高純度タングステン (W) を対象として、不純物および原子空孔の熱的移動が起こらない低温域において、ループのデトラップによる移動の頻度の温度依存性を調べた。ここで、デトラップを促進する効果を持つ高エネルギー電子照射を利用して、低温域におけるループ移動を実現した。

高純度 (011) W (99.9999 mass %) TEM 用薄膜試料に対し、超高压電子顕微鏡 H-3000 (大阪大学) 内で 2000 keV 電子照射 (照射量: 1

$\times 10^{24} \text{ e/m}^2$ 、温度: 105 K) を行い、直径数ナノメートルの $1/2\langle 111 \rangle$ 転位ループと共に空孔を導入した。この試料に対して、超高压電子顕微鏡 1000K RS (名古屋大学) 内で加速電圧 1000 keV 電子を重畳照射し (照射強度: $2 \times 10^{25} \text{ e/m}^2\text{s}$ 、温度: 17 ~ 280 K)、ループの挙動を弱ビーム暗視野法によってその場観察した。この条件では、ループは照射誘起拡散をおこなう空孔を転位線で吸収することによって、不純物原子からのデトラップが可能となり、一次元移動を示す (K. Arakawa et al. submitted.)。

(2) タングステンにおける衝突カスケード誘起欠陥の安定化因子

原子炉・核融合炉材料の劣化の主要因は、高エネルギー中性子・イオン照射によって形成される格子欠陥の蓄積である。これらの照射による初期損傷過程では、点欠陥（自己格子間原子 (SIA) と空孔）だけでなく点欠陥集合体も直接生成される（衝突カスケード）。しかし点欠陥集合体の蓄積過程への衝突カスケードの効果は未解明である。そこで我々は、核融合炉ダイバータのモデル金属である高純度 W を対象として、衝突カスケードを伴わない電子照射下および衝突カスケードを伴う自己イオン照射下での SIA 集合体（転位ループ）の形成過程の TEM その場観察法による比較実験を行ってきた。その結果、衝突カスケードは、固有の移動度が極めて高く本来は材料中に安定に存在できない転位ループを異常に安定化する効果を持つことを明らかにした (K. Arakawa et al. in preparation.)。しかし、衝突カスケードによる転位ループの異常安定化の因子は明らかにされていない。本研究ではこの安定化因子が不純物であるとのモデルを立て、このモデルの妥当性を検証した。

高純度 (99.9999 mass%: 6n) の (110) W TEM 試料に対し、大阪大学 超高压電子顕微鏡 H-3000 を用いて、加速電圧 2000 kV で電子照射を行った。また、フランス JANNuS-Orsay 施設のバンデグラフ・イオン加速器結合型電子顕微鏡 TEM TECNAI G2 20 TWIN (FEI) を用いて、加速電圧 500 kV で W^+ イオン照射を行った。照射強度は、イオン照射における損傷ピーク深さにおけるはじき出し速さと電子照射のはじき出し速さがともに $1 \times 10^{-4} \text{ displacement-per-atom/s}$ となるように設定した。また、照射温度は約 93 ~ 573 K の範囲で行った。さらに比較のために低純度 (99.95 mass%: 3n) の (110) W TEM 試料に対しても同様の実験を行った。

4. 研究成果

(1) タングステンにおける転位ループの移動過程

ループ移動頻度の温度依存性は、約 50 K 以上ではアレニウスの関係に従い、その活性化エネルギーは約 10 meV と評価された。

一方、約 50 K 以下では移動頻度は温度に対してほぼ不変となった。この結果は、ループの一次元拡散過程における量子効果に起因すると解釈される。これは、W のような重い原子から成る系でも、その固体内拡散過程において量子効果 (Proville et al., *Nature Mater.* 11, 845 (2012)) が発現し得ることを示す初めての結果であり、従来の点欠陥回復実験の再解釈を促すものでもある (K. Arakawa et al. submitted.)。

(2) タングステンにおける衝突カスケード誘起欠陥の安定化因子

転位ループ数密度の不純物濃度に対する依存性は、電子照射では顕著に見られたのに対して、自己イオン照射では見られなかった。この結果は、衝突カスケードによる転位ループの主要な安定化因子が不純物でないことを示唆している (K. Arakawa et al. in preparation.)。

衝突カスケードによる転位ループの主要な安定化因子は、中性子照射による炉材料の劣化の起源とも言える重要な問題である。今後、本研究を深化させ、安定化因子を解明する必要がある。

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 9 件)

- (1) K. Arakawa, T. Amino, H. Yasuda and H. Mori: “<110> Dislocation Junction Formation via the Coalescence between Nanoscale $1/2\langle 111 \rangle$ Prismatic Dislocation Loops in Iron”, **ISIJ International**, 57, 2065-2069 (5 pages) (2017). 査読有 . <https://doi.org/10.2355/isijinternational.ISIJINT-2017-173>
- (2) X. Yi, K. Arakawa, D. Nguyen-Manh, F. Ferroni, P. Liu, W. Han, F. Wan, and S.G. Roberts: “A Study of Helium Bubble Production in 10 keV He^+ Irradiated Tungsten”, **Fusion Engineering and Design**, 125, 454-457 (4 pages) (2017). 査読有 . <https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2017.04.126>
- (3) K. Ono, M. Miyamoto, K. Arakawa, and R.C. Birtcher: “Dynamic Behaviour of Nanometer-sized Defect Clusters Emitted from an Atomic displacement Cascade in Au at 50 K”, **Philosophical Magazine**, 97, 2196-2206 (11 pages) (2017). 査読有 . <https://doi.org/10.1080/14786435.2017.1328132>
- (4) T. Sano, T. Eimura, R. Kashiwabara, T. Matsuda, Y. Isshiki, A. Hirose, S. Tsutsumi, K. Arakawa, T. Hashimoto, K. Masaki, and

Y. Sano: “Femtosecond Laser Peening of 2024 Aluminum Alloy without a Sacrificial Overlay under Atmospheric Conditions”, **Journal of Laser Applications**, 29, 012005 (7 pages) (2017). 査読有 . <https://doi.org/10.2351/1.4967013>

- (5) T.D. Swinburne, K. Arakawa, H. Mori, H. Yasuda, M. Isshiki, K. Mimura, M. Uchikoshi, and S.L. Dudarev: “Fast, Vacancy-free Climb of Prismatic Dislocation Loops in Bcc Metals”, **Scientific Reports**, 6, 30596 (8 pages) (2016). 査読有 . [doi:10.1038/srep30596](https://doi.org/10.1038/srep30596)
 - (6) R. Alexander, M.-C. Marinica, L. Proville, F. Willaime, K. Arakawa, M.R. Gilbert, and S.L. Dudarev: “Ab initio Scaling Laws for the Formation Energy of Nanosized Interstitial Defect Clusters in Iron, Tungsten and Vanadium”, **Physical Review B**, 94, 024103 (15 pages) (2016). 査読有 . doi.org/10.1103/PhysRevB.94.024103
 - (7) T. Amino, K. Arakawa, and H. Mori: “Detection of One-Dimensional Migration of Single Self-Interstitial Atoms in Tungsten using High-Voltage Electron Microscopy”, **Scientific Reports**, 6, 26099 (10 pages) (2016) (corresponding author). 査読有 . [doi:10.1038/srep26099](https://doi.org/10.1038/srep26099)
 - (8) T. Lagrange, K. Arakawa, H. Yasuda, M. Kumar: “Preferential Void Formation at Crystallographically Ordered Grain Boundaries in Nanotwinned Copper Thin Films”, **Acta Materialia**, 96, 284-291 (2015). 査読有 . [doi:10.1016/j.actamat.2015.06.015](https://doi.org/10.1016/j.actamat.2015.06.015)
 - (9) F. Ferroni, X. Yi, K. Arakawa, S. Fitzgerald, P.D. Edmondson, and S.G. Roberts: “High Temperature Annealing of Ion Irradiated Tungsten”, **Acta Materialia**, 90, 380-393 (2015). 査読有 . [doi:10.1016/j.actamat.2015.01.067](https://doi.org/10.1016/j.actamat.2015.01.067)
- [学会発表](計 28 件)
- (1) 荒河一渡: “TEM による微小格子欠陥研究における高純度金属の重要性”, 日本鉄鋼協会 評価分析解析部会「材料中の微量元素の役割の評価」(2017/11/20, 東北大学多元物質科学研究所, 仙台) 招待講演.
 - (2) Kazuto Arakawa: “Dynamic Properties of Radiation-Produced Defects in Metals: In-situ Transmission Electron Microscopy Studies”, The 18th International Conference on Fusion Reactor Materials (ICFRM-18)

- (2017/11/5-2017/5/10, Link Station Hall Aomori, Aomori, Japan) 基調講演.
- (3) 荒河一渡: “金属における格子欠陥の高温挙動の透過型電子顕微鏡法による研究”, 日本金属学会・日本鉄鋼協会 中国四国支部 第 129 回金属物性研究会「高温材料用金属材料の展望」(2017/10/20, くびきメッセ, 松江) 招待講演.
- (4) 荒河一渡, 蔭山彰良, 廣嶋秀斗, 保田英洋, 深井有: “鉄における水素誘起キャビティの動的挙動の TEM 観察”, 日本顕微鏡学会(第 73 回)学術講演会・金属(2017/05/30-2017/06/01, 札幌コンベンションセンター, 札幌).
- (5) Kazuto Arakawa: “In-situ TEM of Dynamics of Radiation-Produced Defects in Metals”, Third International Workshop on Models and Data for Plasma-Material Interaction in Fusion Devices (MoD-PMI 2017) (2017/5/22-2017/5/24, Forschungszentrum Jülich, Jülich, Germany) 招待講演.
- (6) 荒河一渡: “鉄におけるナノ転位ループの二次元上昇運動 (climb) 拡散”, 日本鉄鋼協会 第 173 回春季講演大会(2017/3/15-2017/3/17, 首都大学東京, 東京).
- (7) 荒河一渡: “超高压電子顕微鏡による金属中の点欠陥挙動の抽出”, 共用・計測合同シンポジウム 先端計測研究と共用推進による材料イノベーション(2017/3/9-2017/3/9, 物質・材料研究機構, つくば) 招待講演.
- (8) 荒河一渡: “金属における微小格子欠陥挙動の観測”, 文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業 大阪大学微細構造解析プラットフォーム 平成 28 年度 第 2 回地域セミナー 超高压電子顕微鏡による微細構造解析と材料科学研究(2016/12/21-2016/12/21, 千里ライフサイエンスセンター, 豊中) 招待講演.
- (9) 荒河一渡: “金属における格子欠陥の動的挙動の TEM 観測”, 日本顕微鏡学会 第 59 回シンポジウム「今こそ形態学 - 顕微鏡、その始まりから最先端へ - 」(2016/11/18-2016/11/19, 帝京平成大学, 東京) 招待講演.
- (10) Kazuto Arakawa, Shigeo Arai, Cosmin Marinica, Estelle Meslin, François Willaime, Takafumi Amino, Pär Olsson, Sergei Dudarev, Yonfeng Zhang, Hidehiro Yasuda, Hirotaro Mori, Yoshifumi Oshima, Yuta Yamamoto, Nobuo Tanaka: “Direct HRTEM Observation of the Clustering Process of Self-Interstitial Atoms in Iron”, 8th International Conference on Multiscale Materials Modeling (MMM 2016), Modeling Transport and Phase Transformations Driven by Irradiation, Electrochemical and Mechanical Forces (2016/10/9-2016/10/14, Palais des Congrès, Dijon, France) 招待講演.
- (11) 荒河一渡, 蔭山彰良, 廣嶋秀斗, 保田英洋, 深井有: “鉄における水素誘起キャビティの挙動の TEM 観測”, 日本鉄鋼協会「水素脆化の基本要因と特性評価」研究会 中間報告会 シンポジウム(2016/9/21-2016/9/23, 大阪大学, 豊中).
- (12) K. Arakawa: “In-situ TEM Studies of Dynamics of Lattice Defects in Metals”, 9th Pacific Rim International Conference of Advanced Materials and Processing (PRICM 9), Materials Characterization and Evaluation (2016/8/1-2016/8/5, Kyoto International Conference Center, Kyoto, Japan) 招待講演.
- (13) 荒河一渡: “水素関連欠陥の構造と挙動の TEM 観測”, 軽金属学会 水素と力学特性研究部会 第 4 回研究会(2016/7/29-2016/7/29, 大阪大学, 豊中) 招待講演.
- (14) K. Arakawa: “TEM of Dynamics of Radiation-Produced Defects in Metals: Comparison with Simulations”, The 13th Computer Simulation of Radiation Effects in Solids (COSIRES 13) (2016/6/19-2016/6/24, Loughborough University, Loughborough, Leicestershire, UK) 招待講演.
- (15) 荒河一渡, 石田佳大, 保田英洋, 森博太郎, 荒井重勇, 田中信夫, 深井有: “銅における水素誘起キャビティの特異な構造と動的挙動の TEM 観察”, 日本顕微鏡学会(第 72 回)学術講演会, (2016/6/14-2016/6/16, 仙台国際センター, 仙台).
- (16) K. Arakawa: “Studies on Dynamic Behaviors of Lattice Defects using Transmission Electron Microscopy”, 14th International Workshop on Slow Positron beam Techniques & Applications (SLOPOS 14) (2016/5/22-2016/5/27, Matsue, Japan) 基調講演.
- (17) 荒河一渡: “金属中の照射誘起欠陥の挙

動の TEM による抽出”, 第 28 回 CCSE ワークショップ - 原子力材料における計算科学研究と原子スケールモデリングによる新展開 - (2016/3/29-2016/3/29, 東京大学柏の葉キャンパス駅前サテライト) 基調講演.

- (18) Kazuto Arakawa, Ryota Nagasawa, Cédric Baumier, Brigitte Décamps, Estelle Meslin, Francois Willaime, Hidehiro Yasuda, Hirotao Mori, Shigeo Arai, Nobuo Tanaka, Takafumi Amino, Shiori Ishino: “Structure & Dynamics of Radiation-Produced Defects in Metals: Comparison between Electron and Self-ion Irradiations”, The Fourth Workshop On TEM With In Situ Irradiation (WOTWISI-4) (2016/3/16-2016/3/18, Orsay & Gif sur Yvette) 招待講演.
- (19) 荒河一渡: “水素関連欠陥の構造と挙動の TEM 観測”, 日本鉄鋼協会 評価・解析・分析部会「鋼中水素分析」フォーラム (2016/2/3-2016/2/3, 日本鉄鋼協会会館) 招待講演.
- (20) K. Arakawa: In-Situ TEM of Dynamics of Lattice Defects, International Symposium on Advanced In Situ Electron Microscopy (2015/12/8-12/9, AIMR, Tohoku University) 招待講演.
- (21) K. Arakawa: “TEM of Irradiation Damage: Electron Irradiation (& Ion Irradiation)”, Workshop on Irradiation Effects in Nuclear Materials (2015/9/23-25, Oxford University, UK) 基調講演.
- (22) 荒河一渡, 長澤良太, Brigitte Décamps, Cédric Baumier, Erwan Oliviero, Estelle Meslin, Francois Willaime, 保田英洋, 森博太郎, 荒井重勇, 田中信夫, 網野岳文, 石野稔: “タングステンのセルフィオン照射による転位ループの異常安定化”, 日本金属学会 2015 年秋期講演大会 (2015/9/16-2015/9/18, 九州大学).
- (23) 荒河一渡: “水素関連欠陥の構造と挙動の TEM 観測”, 日本鉄鋼協会「水素脆化の基本要因と特性評価」研究会・「水素脆化の基本要因、解析と評価」シンポジウム (2015/9/17, 九州大学).
- (24) 清水小百合、小松正雄、保田英洋、森博太郎、荒河一渡: “鉄中への高エネルギー転位導入の試み”(優秀学生賞受賞), 日本金属学会中国四国支部第 55 回講演大会 (2015/8/19-20, 広島工業大学、廿日市).
- (25) 荒河一渡: “電子顕微鏡を用いた転位挙

動の直接観測”, 日本金属学会・日本鉄鋼協会 中国四国支部 第 122 回金属物性研究会「金属に含まれる転位組織と運動解析の最前線」(2015/6/27, 島根大学) 招待講演.

- (26) 荒河一渡: “水素関連欠陥の構造とダイナミクスの TEM 観測”, 日本鉄鋼協会「水素脆化の基本要因と特性評価」研究会 (2015/5/25, 上智大学) 招待講演.
- (27) 荒河一渡, 長澤良太, Brigitte Décamps, Cédric Baumier, Erwan Oliviero, Estelle Meslin, Francois Willaime, 保田英洋, 森博太郎, 荒井重勇, 田中信夫, 網野岳文, 石野稔: “タングステンのセルフィオン照射下での転位ループ形成過程の TEM その場観察”, 日本顕微鏡学会第 71 回学術講演会 (2015/5/13-5/15).
- (28) K. Arakawa: “TEM Studies on Dynamics of Small Defects in Metals: Comparison with Simulations”, MRS Spring Meeting 2015 (2015/4/6-10, San Francisco, USA) 招待講演.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

荒河一渡 (ARAKAWA, Kazuto)
島根大学・総合理工学研究科・准教授
研究者番号: 30294367

(2) 研究分担者

大島 義文 (OSHIMA, Yoshifumi)
北陸先端科学技術大学院大学・マテリアルサイエンス研究科・准教授
研究者番号: 80272699

武藤 哲也 (MUTOU, Tetsuya)
島根大学・総合理工学研究科・准教授
研究者番号: 50312244

(3) 連携研究者

田中 信夫 (TANAKA, Nobuo)
名古屋大学・エコトピア科学研究所・教授
研究者番号: 40126876

保田 英洋 (YASUDA, Hidehiro)
大阪大学・工学研究科・教授
研究者番号: 60210259