

電子顕微鏡その場観察によるイオン照射下での格子間原子集合体の一次元運動

One-dimensional migration of self-interstitial atom clusters under ion irradiation by
in situ observation using transmission electron microscopy

阿部 陽介¹⁾ 大久保 成彰¹⁾

Yosuke ABE Nariaki OKUBO

¹⁾ 原子力機構 原子力基礎工学研究センター

（概要）

中性子照射下で生じる連鎖的な弾き出し（カスケード損傷）が、 α 鉄中の格子間原子集合体の一次元（1D）運動挙動に与える影響を明らかにする目的で、TIARA 照射施設における 400kV イオン注入装置を結合した電子顕微鏡を用いた自己イオン照射下その場観察実験を実施してきた。昨年度は、侵入型不純物（炭素や窒素）の拡散による偏析が起こり得る 360 K においても、室温の場合と比べて 1D 運動距離に顕著な差が見られないことを明らかにした。今年度は、360 K における 1D 運動挙動に対する入射イオンビームの強度依存性を調査した。その結果、室温の場合と同様に、1D 運動頻度がイオンビーム強度に比例することから、360 K においても 1D 運動の引き金は入射イオンビームによる原子の弾き出しに起因することが示唆された。

キーワード：電子顕微鏡その場観察、格子間原子集合体、カスケード損傷

1. 目的

原子炉構造材料では、中性子照射下でのカスケード損傷によって直接形成される格子間原子集合体が高速な 1D 運動を行うことで、照射脆化の要因となるマイクロ組織の発達過程に影響を与えることが知られている。しかしながら、中性子照射下での格子間原子集合体の 1D 運動挙動を調べることは困難なため、カスケード損傷下での 1D 運動機構は未解明となっていた。

我々はこれまでに、超高压電子顕微鏡を用いたその場観察実験により、カスケード損傷を生じない電子照射下では、試料内の残留不純物や溶質原子が 1D 運動を阻害することを明らかにしてきた[1-3]。さらに、原子炉環境で生じるカスケード損傷を模擬するためのイオン照射を用いた電子顕微鏡その場観察実験により、

（１）室温照射において、カスケード損傷下での α 鉄における格子間原子集合体の 1D 運動距離が、カスケード損傷を生じない電子照射下と比べて著しく短いこと、（２）溶質原子を多く含む実用鋼では、1D 運動距離がさらに短くなること、（３）1D 運動の引き金が、入射イオンビームによる原子の弾き出しに起因すること、（４）侵入型不純物（炭素や窒素）の拡散による偏析が起こり得る 360 K においても、室温の場合と比べて 1D 運動距離に顕著な差が見られないこと、などを明らかにしてきた。

本研究では、昨年度に引き続き 360 K における格子間原子集合体の 1D 運動挙動の理解を深めるため、イオン照射下での電子顕微鏡その場観察実験を継続実施し、1D 運動挙動の入射イオンビーム強度依存性を調査することを目的とした。

2. 実施方法

TIARA 照射施設における 400kV イオン注入装置を結合した電子顕微鏡を用いて、原子炉圧力容器鋼のベース金属である α 鉄に対して 250kV 自己イオン照射を行い、カスケード損傷により形成される格子間原子集合体の 1D 運動挙動を、高感度カメラを用いて 30 fps（fps: 1 秒当たりのフレーム数）で動画撮影した。照射温度は 360 K、イオン照射フラックスは 2.7 及び $6.4 \times 10^{16} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、測定時間は約 100 s とした。各イオン照射フラックスにおける格子間原子集合体の 1D 運動の距離分布および生起頻度を測定し解析した。解析視野内の任意の位置・時間で不規則に生起する格子間原子集合体の 1D 運動を自動検出する画像処理プログラムを構築することにより、測定の高速度化と高精度化を図った [4]。また、深層学習モデルを構築することにより、各動画フレームでの解析視野内の格子間原子集合体のセマンティックセグメンテーションを行い、検出された各格子間原子集合体のサイズと個数を照射時間の関数として自動測定した。

3. 結果及び考察、今後の展開等

各イオン照射フラックスにおいて、同様の不規則で間欠的な1D運動挙動が観察された。図1(a)に、各イオン照射フラックスにおいて1D運動を行った格子間原子集合体のサイズ分布を示す。高フラックス条件の方が、平均サイズが有意に大きいことが分かった。詳細なメカニズムは不明であるが、高フラックス条件の方が観察領域の試料が厚いことがサイズの違いに影響した可能性がある。これまでの知見から、1D運動を行う格子間原子集合体のサイズが大きいほど、1D運動を妨げるトラップとの反応断面積 σ が大きくなるため、1D運動距離が短くなることが予測される。実際に、図1(b)に示す各イオン照射フラックスにおける1D運動距離分布から、高フラックス条件の方が、1D運動距離が短い傾向が見られた。

また、上記の1D運動機構によれば、1D運動距離分布は、1D運動を行う格子間原子集合体のサイズで決まる反応断面積 σ と、1D運動を妨げるトラップの濃度 C の積を用いて表される幾何分布に従う[1]。この σC の値は、1D運動距離分布を片対数プロットした際のフィッティング直線の傾きから求めることができる。図1(a)のヒストグラムを片対数プロットに変換した図1(c)において、幾何分布の最小二乗フィッティングによる傾き(slope)から σC の値を求め、それを用いてトラップの濃度 C を推定した(表1)。その結果、各フラックス条件でのトラップ濃度 C に有意な差は見られなかった。このことから、試料の厚さが異なっても1D運動を阻害するトラップ濃度に差があるとは言えないことが分かった。

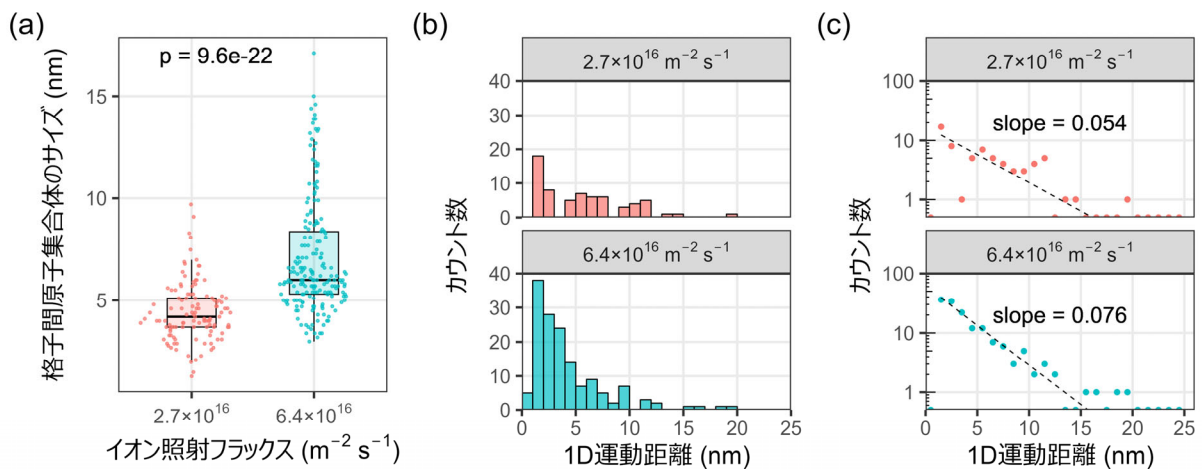


図1 360 Kにおける格子間原子集合体の1D運動挙動の比較：(a) 1D運動を行った格子間原子集合体のサイズ分布（ p 値：平均値の差のMann-WhitneyのU検定）、(b) 1D運動距離のヒストグラム、(c) 1D運動距離分布の片対数プロット。

表1 各フラックスでの格子間原子集合体サイズとトラップ濃度。bはバーガースベクトル、() 内は標準偏差。

照射フラックス ($\text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$)	集合体サイズ (nm)	反応断面積, σ (b^2)	フィッティング直線の傾き, σC (b^2)	トラップ濃度, C (appm)
2.7×10^{16}	4.4 (1.5)	60 (20)	0.054 (0.011)	1000 (400)
6.4×10^{16}	7.0 (2.8)	90 (40)	0.076 (0.005)	900 (300)

また、360 Kでの1D運動の生起頻度の照射フラックス依存性を、300 K照射の場合も含めて図2に示す。360 Kにおいても300 Kで見られる比例関係と矛盾のない結果が得られた。また、両温度における絶対値も同程度あることが分かった。このことは、侵入型不純物（炭素や窒素）が格子間原子集合体に偏析し得る360 Kにおいても、格子間原子集合体の1D運動の引き金はイオン照射による弾き出しが原因であることを示唆する。今後、詳細なメカニズムの検討を行う予定である。

4. 引用(参照)文献等

- [1] Y. Satoh, et al., Phys. Rev. B 77 (2008) 1.
- [2] Y. Satoh, Y. Abe et al., Philos. Mag. 96 (2016) 2219.
- [3] Y. Abe, Y. Satoh, N. Hashimoto, Philos. Mag. 101 (2021) 1619.
- [4] Y. Abe, Y. Satoh, N. Hashimoto, Philos. Mag. 102 (2022) 1173.

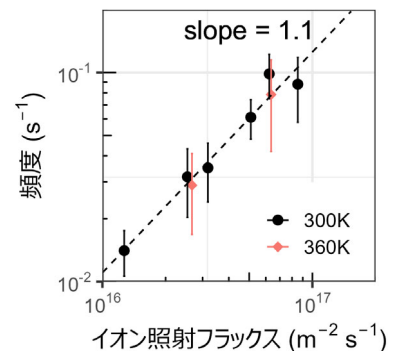


図2 1D運動の生起頻度のイオン照射フラックス依存性