

イオン照射した原子炉容器鋼中のマトリックス損傷の性質

Characterization of matrix damage in ion-irradiated reactor vessel steel

藤井 克彦 (Katsuhiko Fujii)* 福谷 耕司 (Koji Fukuya)*

要約 原子炉容器の照射脆化機構のうちマトリックス損傷については、実用の原子炉容器鋼において透過型電子顕微鏡 (TEM) による直接観察例が報告されておらず、どのようなものが生成するかはよく分かっていなかった。そこで、新たなTEM試料作製法を考案し、イオン照射による模擬照射材を用いて、実用鋼中に発生するマトリックス損傷をTEMで直接観察することを試みた。模擬照射材は、A533B鋼板材に3 MeVのNi²⁺イオンを温度290℃で損傷量1 dpaまで照射して作製した。試料の加工および観察は、集束イオンビーム加工を応用した方法でTEM観察試料を作製し、ウイーク・ビーム法と呼ばれるTEM観察法でマトリックス損傷を観察してその性質を調べた。その結果、マトリックス損傷として極めて微小な転位ループが形成していることを実用鋼で初めて明らかにした。また、観察された転位ループのバーガス・ベクトルは $b = a\langle 100 \rangle$ であり、平均直径および数密度は $d = 2.5 \text{ nm}$ および $1 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ である。しかし、転位ループの性状、格子間型もしくは空孔型かについては、観察された転位ループが極めて微細であったために、直接的な方法で決定することはできなかった。このため、間接的ではあるが、照射後焼鈍によりその性状を調べた。400℃で30分間の焼鈍を行った後も、多くの転位ループは安定して存在した。この結果は、観察された転位ループが格子間型転位ループであることを示唆している。

キーワード A533B鋼, 照射脆化, マトリックス損傷, ウイーク・ビーム透過型電子顕微鏡観察, イオン照射, 転位ループ

Abstract Exact nature of the matrix damage, that is one of radiation-induced nano-scale microstructural features causing radiation embrittlement of reactor vessel, in irradiated commercial steels has not been clarified yet by direct characterization using transmission electron microscopy (TEM). We designed a new preparation method of TEM observation samples and applied it to the direct TEM observation of the matrix damage in the commercial steel samples irradiated by ions. The simulation irradiation was carried out by 3 MeV Ni²⁺ ion to a dose of 1 dpa at 290 °C. Thin foil specimens for TEM observation were prepared using the modified focused ion beam method. A weak-beam TEM study was carried out for the observation of matrix damage in the samples. Results of this first detailed observation of the matrix damage in the irradiated commercial steel show that it is consisted of small dislocation loops. The observed and analyzed dislocation loops have Burgers vectors $b = a\langle 100 \rangle$, and a mean image size and the number density are 2.5 nm and about $1 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$, respectively. In this experiment, all of the observed dislocation loops were too small to determine the vacancy or interstitial nature of the dislocation loops directly. Although it is an indirect method, post-irradiation annealing was used to infer the loop nature. Most of dislocation loops were stable after the annealing at 400 °C for 30 min. This result suggests that their nature is interstitial.

Keywords A533B steels, radiation embrittlement, matrix damage, weak-beam transmission electron microscopy, ion irradiation, dislocation loops

1. 緒言

軽水型発電炉の原子炉容器鋼の照射脆化は重要な高経年化事象の一つである。照射脆化はナノメートル (nm) ・スケールの極めて微細な材料変化、例えば銅リッチ析出物やマトリックス損傷の形成やリン等の

不純物の粒界への偏析に起因すると考えられている^(1,2)。このうちマトリックス損傷は結晶粒内の硬化が原因となる硬化型脆化と呼ばれる脆化の機構を説明するために提唱されたもので、銅含有量の低い鋼では硬化の主要因となり、銅含有量の高い鋼では銅リッチ析出物による硬化寄与が飽和する高い照射量で硬化

* (株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所

の主要因となるのが、これまでの材料特性変化を調べた研究から提案されている^(3,4)。その実体としては、銅リッチ析出物以外の各種の点欠陥集合体が想定され、空孔集合体、マイクロ・ポイド、転位ループなどが考えられている。この損傷を直接、透過型電子顕微鏡 (transmission electron microscope, TEM) などで確認した例はほとんどないが、観察が比較的容易な純鉄では TEM により微小な転位ループが直接観察されている⁽⁵⁻¹⁰⁾。これは、TEM 組織観察法のうち、ウィーク・ビーム観察法を用いることで、1-2 nm といった極めて微細な転位ループの観察のみならずその大きさの評価が可能なのである^(11,12)。しかし、原子炉容器鋼といった実用フェライト鋼中の微小な点欠陥集合体を TEM により直接観察することは、その強い磁性や組織の複雑さ、酸化されやすさに起因する TEM 試料作製の困難さのために十分な成功を収めていなかった。このため、現状では実用鋼で生成するマトリックス損傷がミクロ組織的にどのようなものかはよく分かっていない。

本研究では、まず集束イオンビーム (focused ion beam, FIB) 加工を応用した新たな TEM 試料作製法を考案し、実用鋼で nm スケールのミクロ組織を TEM で直接観察する方法を確立した。FIB 加工は、ガリウム・イオンによるスパッタリングで試料を加工するため、通常の電解研磨による TEM 試料作製に比べて試料が酸化され難いとともに電解液からの銅などの再付着といった試料汚染もない。また、電解研磨では実用鋼のような多量で種々の析出物を含むとともに組織が複雑な試料を TEM 観察が可能で均一な薄膜を得ることは難しいが、FIB 加工では加工可能な領域が小さいといった欠点はあるが比較的容易に均一な薄膜を得ることができる。また、FIB 加工では特定の領域を選択して薄膜に加工できるため、イオン照射など損傷組織が導入される領域が限定される照射に対しては損傷領域を断面に薄膜に加工することや特定の深さを薄膜に加工することが精度よく可能である。しかし、FIB 加工に際しては加工に使用するガリウム・イオンがスパッタリングと同時に試料の極表面に FIB 損傷と呼ばれる損傷を残す。その深さは通常 10 nm 程度と評価されているが、そのミクロ組織は基本的には照射で形成する微細な損傷組織と同一である。このため、nm スケールのミクロ組織を TEM で観察するためには、FIB 損傷を除去する必要がある。今回考案した TEM 試料作製法では、FIB 加工により薄膜 TEM 試料を作製した後に、ミリ秒 (msec) オーダーの

電解研磨で FIB 損傷を除去する方法を適用した。電解液やその温度、研磨時間の最適化を図ることで、僅かに試料表面は酸化されるが、完全に FIB 損傷を除去して照射により形成した nm スケールのミクロ組織のみを TEM で観察する方法を確立した。

さらに、本研究では、イオン照射による模擬照射材を用いて、実用の A533B 鋼中に生成するマトリックス損傷を TEM で直接観察してその性質を調べた。今回の模擬照射では、生成するマトリックス損傷を把握することを第一の目的に、非常に高照射量の 1 dpa (実機の最大照射量の 10 倍程度) まで 3 MeV の Ni^{2+} イオンを温度 290 で照射して、微小な点欠陥集合体を TEM で観察可能な大きさ (直径 1 nm 以上) まで成長させた。また、実用の A533B 鋼としては、銅リッチ析出物が生成しないと考えられている銅のしきい濃度より低い銅含有量の実用鋼板材を使用し、マトリックス損傷の観察に対する析出物の影響を低減した。さらに、マトリックス損傷の直接観察には、1-2 nm といった極めて微細な組織を観察できるウィーク・ビーム法と呼ばれる TEM 観察法を用いた。

2. 実験方法

供試材には実用の A533B 鋼板材を用いた。化学組成を表 1 に示す。35 × 9 × 0.2 mm の短冊形状試料を切り出し、表面をエメリー研磨紙で #1200 まで研磨した後、1/4 μm ダイヤモンドによるバフ研磨で鏡面とした。研磨に伴い生じる表面加工層は、5% のフッ化水素酸による化学研磨で除去した。

表1 供試材(A533B鋼材)の化学組織(wt%)

| C | Si | Mn | P | S | Ni | Cr | Mo | Cu | Fe |
|------|------|------|-------|-------|------|------|------|------|---------|
| 0.18 | 0.23 | 1.39 | 0.007 | 0.008 | 0.57 | 0.03 | 0.46 | 0.03 | Balance |

イオン照射には、米国 Materials Diagnostics 社のタンデム加速器によるイオン注入ラインを使用した。イオンには、3 MeV Ni^{2+} イオンを用いた。照射温度は 290 ± 3 であり、照射中の試料温度は試料にスポット溶接した熱電対で測定した。注入イオンのイオンビームのフラックスとフルエンスは、それぞれ 1.6×10^{11} ions/cm²/s と 1.6×10^{15} ions/cm² とした。はじき出しエネルギーを $E_d = 40$ eV とし、SRIM2000⁽¹³⁾ から計算される損傷速度および損傷量は、表面から 300 nm の深さでそれぞれ 1.0×10^{-4} dpa/s

と1.0 dpa である。また、300 nm 深さ位置での注入されたNi イオンの量は0.002 wt% である。この量は母材のNi 濃度である0.57 wt% に比べて非常に小さく、導入されたNi に直接起因するミクロ組織の変化は無視できると考えられる。

TEM 観察用の薄膜試料作製には、FIB 加工装置 (HITACHI FIB-2000A) を用いた。作製方法の詳細は以下の通りである。照射した試料から $2 \times 1 \times 0.2$ mm の試験片を切り出した後、照射面の背面から研磨して約0.02 mm の厚さまで薄くした。これは、試料の磁場を低減してTEM 観察を容易にするためである。この後、TEM 用のV 型グリッドに試料を固定し、FIB 加工を行った。FIB 加工には加速電圧30 kV のGa イオンを用いた。損傷領域の観察のために、2 種類の方向で薄膜を加工した。一つは断面方向への加工であり、もう一つは特定深さでの加工である。断面加工の試料は損傷領域全体に渡る点欠陥集合体の形成状態の観察に使用した。本研究では、表面に対して 20° の角度に薄膜を作製した。これにより、実深さの約3 倍に観察される損傷領域は伸張される。特定深さを薄膜化した試料は点欠陥の分析に使用した。なお、今回は300 nm 深さを分析対象とした。FIB 加工では、ビームが集束角をもつので、薄膜は表面側が薄く深くなるほど厚い、いわゆるくさび形に加工される。このため、FIB 加工の最終仕上げ削りにおいて試料を $\pm 1^\circ$ 傾けて加工し、膜厚が一定になるように薄膜を作製した。

FIB 加工では、試料表面の近傍に加工に伴う損傷層が形成される。SRIM2000 による評価では、30 kV の

Ga イオンを用いた加工の場合、その損傷領域は最大で20 nm である。点欠陥集合体を観察するためにはこのFIB 損傷を取り除く必要がある。本研究では、フラッシュ電解研磨によりFIB 損傷を除去した。詳細は以下の通りである。ピーカー法と呼ばれるフラッシュ電解研磨法を用いた。電解液には2% 過塩素酸メタノールを用いた。溶液温度は -60 以下とし、電圧は20 V とした。なお、試料と電極との距離は50 mm とした。図1 に、FIB 加工で作製した未照射試料をTEM 観察した組織を示す。図1 (a), (b) はFIB 加工のみで作製した薄膜のTEM 像であり、図1 (c), (d) はFIB 加工の後にフラッシュ電解研磨を0.01 秒実施して作製した薄膜のTEM 像である。試料は未照射材であるため、損傷組織は観察されないはずである。しかし、図1 (a) に示した明視野像では転位等の組織に加えてFIB 損傷により形成した転位ループ等の点欠陥集合体による微細な黒い点が多数観察される。また、図1 (b) に示したウイーク・ビーム暗視野像においても多数の点欠陥集合体が白い輝点として観察される。これに対して、図1 (c), (d) では転位のみが観察され、FIB 加工により導入された損傷組織は観察されない。さらに、集束ビーム電子線回折 (convergent-beam electron diffraction, CDEB) を用いて測定した薄膜試料の厚さの変化は、0.01 s のフラッシュ電解研磨で100–120 nm 減少した。この量は、FIB 損傷領域を取り除くのに十分な量である。

TEM 観察には、加速電圧が300 keV の電界放射型TEM (HITACHI HF-3000) を用いた。マトリックス損傷の観察は結晶軸が $[011]$ と $[001]$ に近い結晶粒を

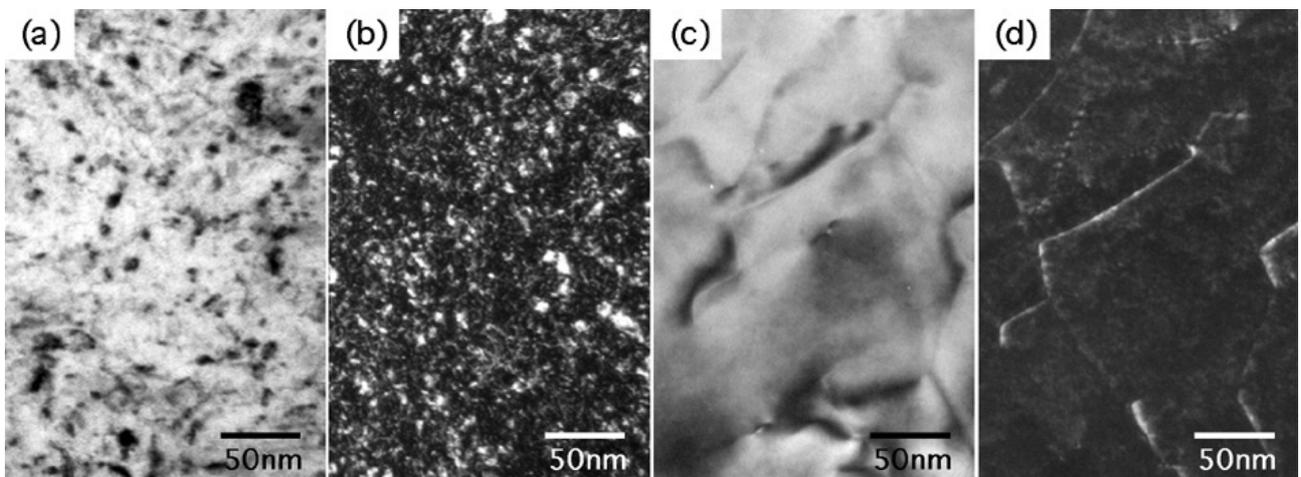


図1 FIB加工のみで作製した薄膜のTEM像：(a)明視野像、(b)ウイーク・ビーム暗視野像、およびFIB加工の後フラッシュ電解研磨して作製した薄膜のTEM像：(c)明視野像、(d)ウイーク・ビーム暗視野像

対象にウイーク・ビーム法を用いて行った。ウイーク・ビーム条件で観察される欠陥組織のコントラストは、その結像条件に依存する。例えば、励起誤差 s_g を変えて像を観察することで、1-2 nm 程度の極めて微小な転位ループを観察することができ、そのサイズ分布も得ることができる⁽¹¹⁾。本研究では、マトリックス損傷の同定とそのバーガス・ベクトルの決定は、結晶軸 [011] に対しては散乱ベクトル $g=01\bar{1}$ と $g=21\bar{1}$ 、 $g=200$ 、 $g=2\bar{1}1$ 、結晶軸 [001] に対しては $g=\bar{1}10$ と $g=020$ 、 $g=110$ 、 $g=200$ を用いて撮影したウイーク・ビーム暗視野像を解析して行った。また、その大きさについては、100 個以上の欠陥集合体のサイズを測定して評価した。また、数密度の評価に必要な観察領域の試料厚さは CDEB 法を用いて測定した。さらに、欠陥の性状、すなわち空孔型もしくは格子間型の欠陥集合体であるかは照射後焼鈍試験により調べた。

3. 結果および考察

イオン照射した領域を断面方向から観察した TEM 明視野像を図 2 に示す。表面近傍の薄膜の一部はフラッシュ電解研磨により失われているが、最表面を示すマーカーとしてまた表面を保護することを目的に FIB 加工前に蒸着させたタングステンの位置から

照射面の位置を決定することができた。深さ方向の尺度は傾斜加工により伸張されているため、図には伸張されたスケールも示した。転位や炭化物等の析出物が薄膜全体に渡り観察された。一方、深さ 1 μm までには 10 nm 以下の微細な黒い点が観察された。図 2 (b), (c), (d) には、図 2 (a) に示した各深さを拡大した図を示した。0.3-0.5 μm の深さの図 2 (b) では、微細な黒い点が観察された。また、0.8-1.0 μm の深さを示した図 2 (c) では、微細な黒い点が観察される領域と観察されない領域の境界が観察された。また、1.2-1.5 μm の深さを示した図 2 (d) では、微細な黒い点は観察されない。SRIM2000 による損傷計算の結果では、イオン照射により導入される損傷が最大となる深さは約 0.8 μm であり、導入される最大の深さは約 1.0 μm である。微細な黒い点が観察される深さは、損傷計算とよく一致した。この結果から観察された黒い点は照射により導入された欠陥集合体であると考えられる。

図 3 に、300 nm 深さの領域の代表的なウイーク・ビーム像を示す。微細な白い輝点が観察された。通常、ウイーク・ビーム像では微細な転位ループは白い輝点として観察される。マトリックス損傷として微細な (2-6 nm) 転位ループが形成していることが確認された。転位ループは全体に渡りほぼ均一に形成して

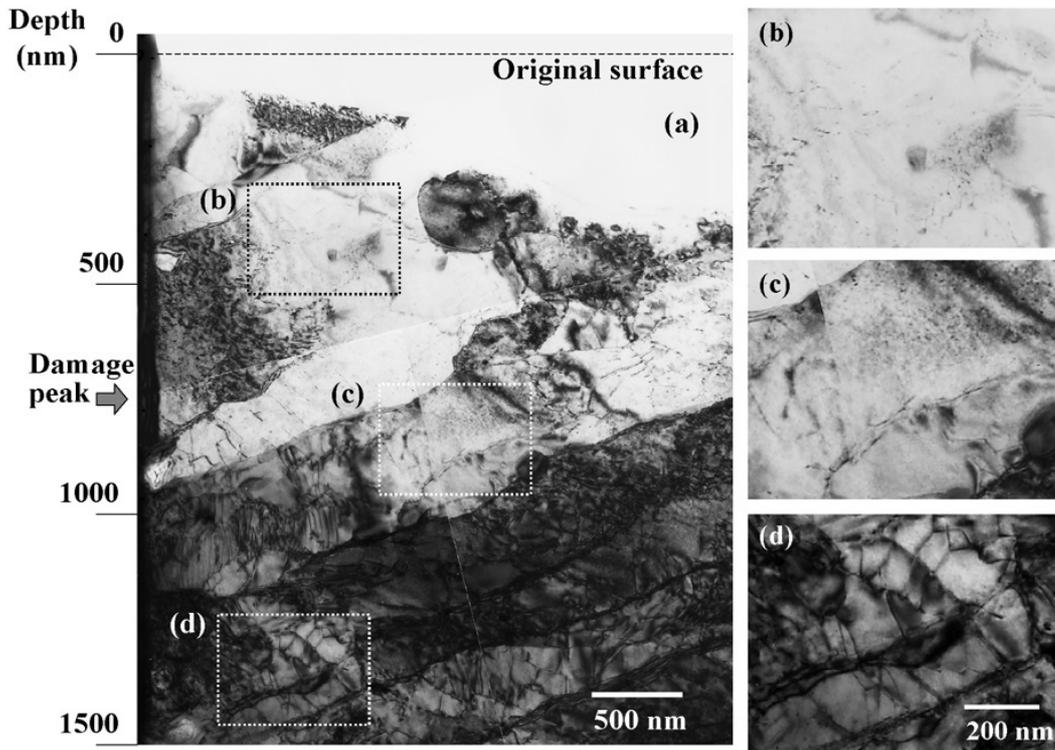


図2 断面加工した試料の微細組織の明視野像(a)および各深さを拡大した明視野像(b)(c)(d)

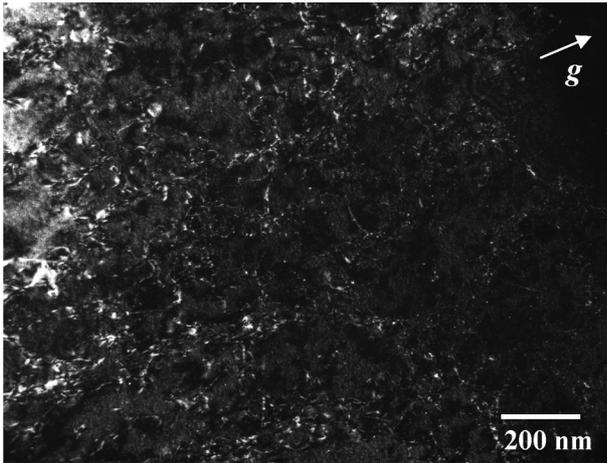


図3 300 nm深さの領域の代表的なウイーク・ビーム暗視野像 撮影条件：電子線の入射方向 $B = [001]$ ウイーク・ビーム観察に用いた散乱ベクトル $g = \bar{1}10$ 白い線状の転位線とともに転位ループを示す白い輝点が観察される。

いる様子が観察された．比較的大きな転位ループは結晶粒界近傍に多く観察される傾向が僅かに認められたが，Hoelzerら⁽⁹⁾純鉄で報告しているような転位線の片側に選択的に転位ループが形成するといった不均一な形成は認められなかった．

図4に，300 nm深さの領域で同一の視野を散乱ベクトルを変えて撮影した代表的なウイーク・ビーム像を示す．転位ループはそのバーガス・ベクトルによりコントラストの現れ方が変化する⁽¹⁵⁾．図5に，転位ループのバーガス・ベクトルの解析に用いた像の一例を示す．図5 (a)の観察条件では，バーガス・ベクトル $b = a\langle 100 \rangle$ の転位ループのうち $2/3$ がコントラスト条件 $|g \cdot b| = 1$ を満足し，白い輝点として観察される．一方，図5 (b)の観察条件では，これら2つの転位ループはコントラスト条件が $|g \cdot b| = 0$ となり，コントラストが消失する．これに対して，バーガス・

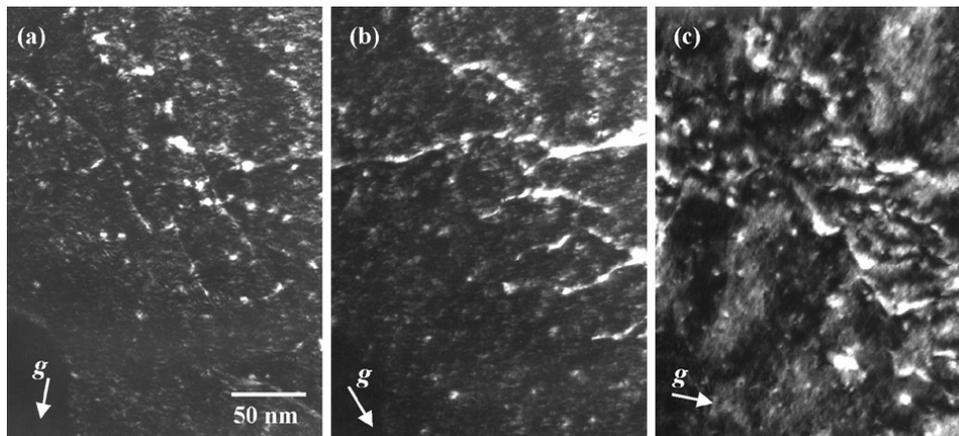


図4 同一視野を回折条件を変えて観察したウイーク・ビーム像 撮影条件： $B = [011]$ (a) $g = 200$, (b) $g = 21\bar{1}$, (c) $g = 01\bar{1}$.

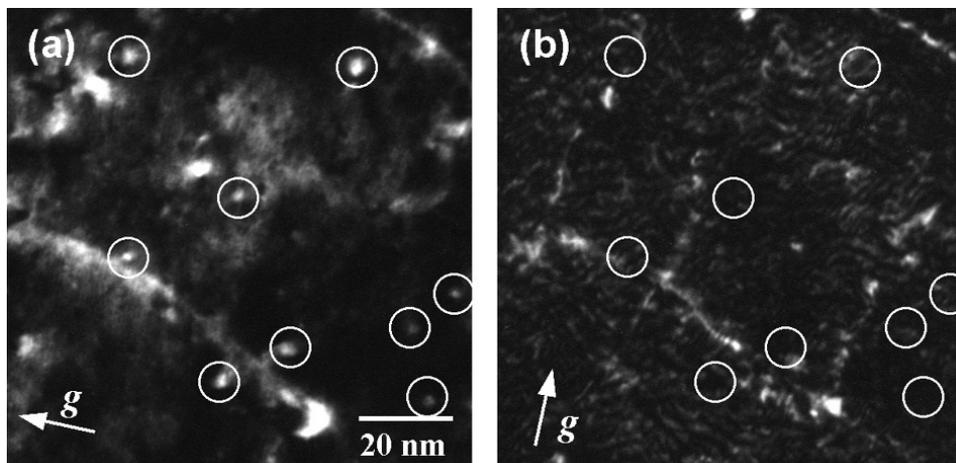


図5 ウイーク・ビーム法による転位ループのコントラスト実験の例 撮影条件： $B = [011]$ (a) $g = 01\bar{1}$ (b) $g = 200$

ベクトル $b = a/2 \langle 111 \rangle$ の転位ループの場合には、図 5 (a) の観察条件では $2/4$ がコントラスト条件 $|g \cdot b| = 1$ を満足するが、図 5 (b) の観察条件ではすべての転位ループはコントラストを消失する。図 5 (a) 中で代表的な $|g \cdot b| > 1$ のコントラストを示す白い輝点を白い円で囲んだ。図 5 (b) では、すべての位置で白い輝点のコントラストは認められない。この結果は、これらの転位ループはバーガス・ベクトルが $b = a \langle 100 \rangle$ であることを意味する。今回の観察では、すべての輝点のうち比較明確であり大きなもの約 50% についてバーガス・ベクトルを解析することができた。詳細な解析の結果、明確に認識される転位ループはすべて $b = a \langle 100 \rangle$ であった。転位ループのサイズ分布を図 6 に示す。平均直径は $d = 2.5$ nm であった。また、数密度は $1 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ であった。損傷として残存するフレンケル対の割合を求めるとともに残存する空孔もしくは格子間原子の濃度の最大値を求めするために、転位ループとして残っている点欠陥の量を求めた。点欠陥濃度は転位ループのサイズ分布と数密度から $7 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$ と計算される。この濃度は照射により導入される点欠陥の総量に比べ非常に小さく、その割合はおよそ 2×10^{-5} である。このことは、空孔と格子間原子の再結合過程が照射誘起点欠陥の支配的な回復過程であることを示唆する。

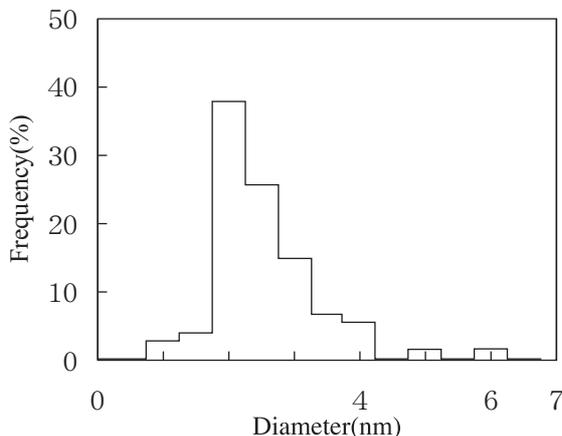


図6 290 、1 dpa照射により形成した転位ループのサイズ分布

今回のイオン照射した A533B 鋼の観察では、観察された転位ループのバーガス・ベクトルは $b = a \langle 100 \rangle$ であった。この結果は、照射された鉄で観察される多くの転位ループのバーガス・ベクトルが $b = a \langle 100 \rangle$ であるとの報告^(5,7-12,16) に一致するが、生成エネルギーの大小から考えればバーガス・ベクトルが $a/2 \langle 111 \rangle$ の転位ループの形成が期待される⁽¹⁷⁾。

bcc 金属におけるバーガス・ベクトルが $a \langle 100 \rangle$ と $a/2 \langle 111 \rangle$ の転位ループの形成機構としては、Eyre and Bullough⁽¹⁸⁾ により照射初期に形成する $a/2 \langle 110 \rangle$ の転位ループのせん断相互作用に基づくモデルが提案されている。照射されたモリブデンやタングステンの TEM 観察により、 $\{110\}$ 面上に格子間型と空孔型の転位ループが形成する Eyre-Bullough のモデルと一致した直接的な証拠が示されているが、この場合、すべての転位ループはバーガス・ベクトルが $a/2 \langle 111 \rangle$ の転位ループにせん断されることになる^(19,20)。純金属のように単純系ではない実用フェライト鋼のような場合には、従来考えられてきた生成エネルギーだけでは形成する転位ループのバーガス・ベクトルを説明できないことが示唆される。最近、Marian and Wirth⁽²¹⁾ により、分子動力学シミュレーションに基づく $a \langle 100 \rangle$ の転位ループの形成・成長機構が提案された。このモデルによれば、 $a \langle 100 \rangle$ の転位ループは同程度の大きさの移動可能な $a/2 \langle 111 \rangle$ のクラスターが直接反応して形成する。金属・合金中のクラウディオ型格子間原子集合体の一次元高速移動過程は損傷組織の発達過程に重要な影響をもたらすと考えられはじめており、シミュレーションのみならず実験的にもその運動過程が確認されつつある。しかしながら、 $b = a \langle 100 \rangle$ の転位ループが形成機構については今後さらに検討が必要である。

形成する転位ループが空孔型か格子間型であるかは、照射脆化への寄与を評価する場合に重要な情報である。今回の実験では、観察された転位ループのすべては小さすぎてコントラスト変化による方法やステレオ法といった転位ループの性状を直接的に評価する方法⁽²²⁾ は適用できなかった。このため、間接的ではあるが、転位ループの熱的安定性からその性状を調べた。図 7 に、400 °C で 30 分間照射後焼鈍した試料の 300 nm 深さの領域で撮影した代表的なウィーク・ビーム像を示す。転位ループを示す白い輝点が観察された。図 8 に、同一の視野を散乱ベクトルを変えて撮影した代表的なウィーク・ビーム像を示す。転位ループのバーガス・ベクトルが $b = a \langle 100 \rangle$ の場合には、図 8 (a) の条件では転位ループの $1/3$ が $|g \cdot b| = 2$ のコントラストで観察される。一方、図 8 (b) の条件ではこの転位ループは $|g \cdot b| = 0$ となりコントラストを消失する。転位ループのバーガス・ベクトルが $b = a/2 \langle 111 \rangle$ の場合には、図 8 (a) と (b) の条件でもにすべての転位ループは $|g \cdot b| = 1$ のコントラスト条件となり観察されることになる。図 8 (a) には、

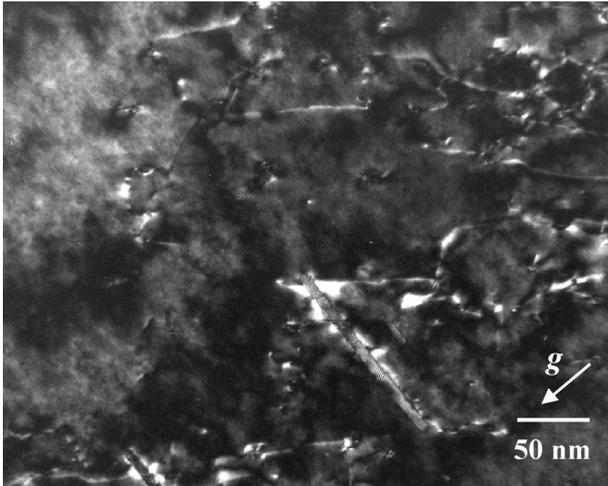


図7 400 で30分間照射後焼鈍した試料のウーク・ビーム像 撮影条件： $B=[011]$ $g=01\bar{1}$.

代表的な $|g \cdot b| > 0$ タイプのコントラストを示す転位ループをマークした．しかし，これらの転位ループは図8 (b) ではコントラストを消失している．このことは，これらの転位ループが $b = a\langle 100 \rangle$ のバーガス・ベクトルであることを示す．さらに詳細なコントラスト分析の結果，観察されたすべての転位ループは $b = a\langle 100 \rangle$ のバーガス・ベクトルであることが分かった．転位ループのバーガス・ベクトルは400 の焼鈍でも変化しないことが確認された．図9には，転位ループのサイズ分布を示す．平均直径は $d = 2.2$ nmであった．サイズ分布には焼鈍による顕著な変化は認められなかった．しかし，直径が $d \approx 3.5$ nmの比較的大きな転位ループは焼鈍後には観察されな

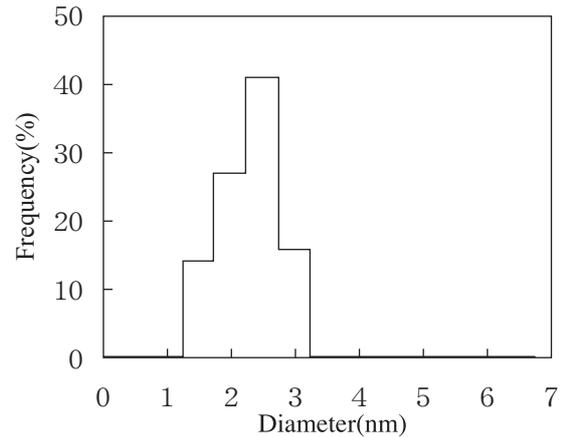


図9 照射後焼鈍した試料の転位ループのサイズ分布

かった．一方，転位ループの数密度は約 $7 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ であった．数密度は焼鈍前に比べて幾分減少した．もし，照射により形成した転位ループのすべてもしくは大部分が空孔型であれば，小さいものは焼鈍により空孔を放出して消滅もしくは小さくなり，大きいものはその空孔を吸収して成長するはずである⁽²³⁾．転位ループの成長が観察されていないことから，この可能性は否定される．もう一つの可能性は，照射により形成した転位ループが同程度の空孔型と格子間型からなる場合である．この場合，空孔型転位ループは焼鈍により消滅し，放出される空孔は格子間型転位ループもしくは他の点欠陥シンクに吸収される．すなわち，焼鈍後には格子間型転位ループが生き残ることになる．この可能性も低いと考えられる．焼鈍後に観察された転位ループに含まれる点欠陥の総

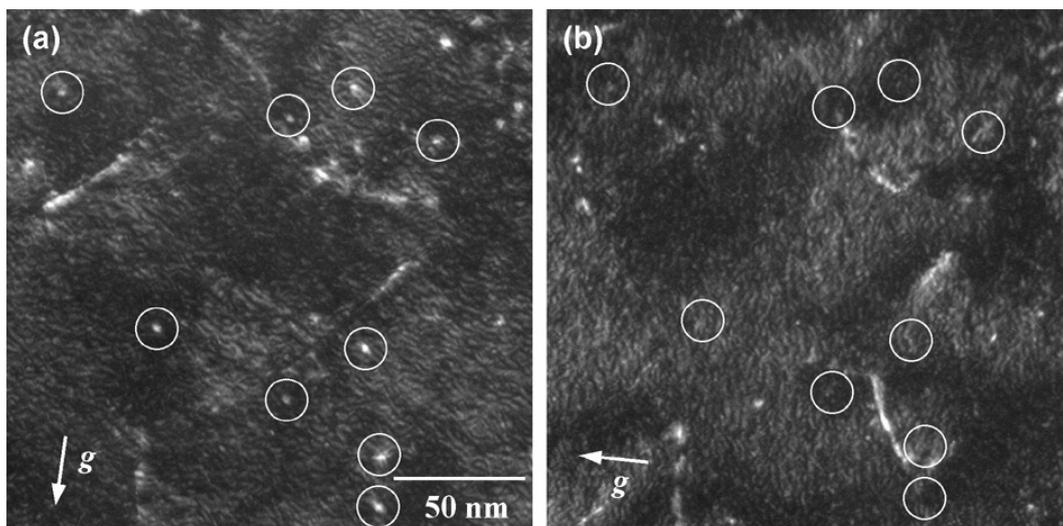


図8 照射後焼鈍した試料のウーク・ビーム法による転位ループのコントラスト実験の例 撮影条件： $B=[001]$ (a) $g=020$ (b) $g=200$

数とその濃度は、転位ループのサイズ分布と数密度からそれぞれ $4 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$ と 1×10^{-5} と計算される。焼鈍後も観察される転位ループを形成して残っている点欠陥の濃度は、照射後に比べて僅かしか減少していない。この僅かな現象は、焼鈍による熱空孔の吸収に起因すると考えられる。さらに、多くの転位ループは 400 °C でも安定に存在している。これらの結果は、間接的ではあるが、ほぼすべての転位ループが格子間型であることを示唆する。Hoelzerら⁽⁹⁾やNicolら⁽¹⁰⁾によっても、温度 280 °C で損傷量 0.06 dpa まで中性子照射された純鉄に近い材料でパーガス・ベクトルが $b = a\langle 100 \rangle$ の格子間型転位ループがマトリックス損傷として報告されている。また、550 °C で電子線照射された軟鋼でも $b = a\langle 100 \rangle$ の格子間型転位ループが観察されている⁽¹⁶⁾。このように、 $b = a\langle 100 \rangle$ の格子間型転位ループが形成する観察は多く存在し、本研究の A533B 原子炉容器鋼におけるマトリックス損傷の観察結果と一致する。

4. 結論

照射により A533B 原子炉容器鋼材に形成するマトリックス損傷の性質を明らかにするために、FIB 加工と電解研磨を組み合わせた TEM 試料作製法を開発し、実用鋼をイオン照射した模擬照射材から上記方法で薄膜 TEM 試料を作製し、TEM を用いたウイーク・ビーム観察で実用鋼中に形成するマトリックス損傷を初めて直接観察しその性質を調べた。その結果、以下のような知見を得ることができた。

1. Ni イオンを温度 290 °C で損傷量 1 dpa まで照射した A533B 原子炉容器鋼材に形成するマトリックス損傷は、微細な (2-6 nm) 転位ループである。
2. 観察・評価された転位ループのパーガス・ベクトルは $b = a\langle 100 \rangle$ である。
3. 転位ループの平均直径は $d = 2.5 \text{ nm}$ であり、数密度は $1 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ である。
4. 400 °C で 30 分間の照射後焼鈍の後も $b = a\langle 100 \rangle$ の転位ループが観察された。その平均直径は $d = 2.2 \text{ nm}$ であり、数密度は $7 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$ である。
5. 転位ループの性状 (格子間型または空孔型) は、転位ループが非常に微細であったために直接的な方法で決定できなかった。しかし、400 °C で 30 分間の焼鈍を行った後も多くの転位ループは安定して存在したことから、格子間型の転位ル

ープが形成していると考えられる。

謝辞

本論文を作成するにあたり議論を深めてくださった本研究所海外技術顧問のオックスフォード大学 Brain Eyre 教授に感謝します。また、微細な照射欠陥の TEM 観察と評価においてご指導いただいたオックスフォード大学 John Titchmarsh 教授と Mike Jenkins 博士に感謝します。

文献

- (1) S.B. Fisher, J.E. Harbottle, N. Aldridge, *Phil. Trans. Roy. Soc.*, A315 (1985) 301.
- (2) G.R. Odette, G.E. Lucas, *Rad. Eff. & Defects in Solids*, 144(1998)189.
- (3) T.J. Williams, D. Ellis, D.I. Swan, J. McGuire, S.P. Walley, C.A. English, J.H. Venables, P.H.N. de la cour Ray, *Proc. 2nd Int. Symp. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors*, ANS (1986) 323.
- (4) T.J. Williams, P.R. Burch, C.A. English, P.H.N. de la cour Ray, *Proc. 3rd Int. Symp. on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems - Water Reactors*, ASME (1988) 121.
- (5) B.C. Masters, *Phil. Mag.*, 11 (1965) 881.
- (6) B.L. Eyre, A.F. Bartlett, *Phil. Mag.*, 12(1965)261.
- (7) M.L. Jenkins, C.A. English, B.L. Eyre, *Phil. Mag.*, A38 (1978) 97.
- (8) I.M. Robertson, M.L. Jenkins, C.A. English, *J. Nucl. Mat.*, 108/109 (1982) 209.
- (9) D.T. Hoelzer, F. Ebrahimi, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc. (Materials Research Society)*, 373 (1995) 57.
- (10) A.C. Nicol, M.L. Jenkins, M.A. Kirk, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, 650 (2001) R1.3.1.
- (11) M.L. Jenkins, M.A. Kirk, H. Fukushima, *J. Electron Microsc.*, 48 (1999) 323.
- (12) M.A. Kirk, M.L. Jenkins, H. Fukushima, *J. Nucl. Mat.*, 276 (2000) 50.
- (13) J.F. Ziegler, J.P. Biersak and U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Solids* (Pergamon Press, New York, 1985).
- (14) P.M. Kelly, A. Jostens, R.G. Blake, J.G. Napier,

- Phys. Status Solidi a, 31 (1975) 771.
- (15) B.L. Eyre, D.M. Maher, R.C. Perrin, J. Phys. F: Metal Phys., 7 (1977) 1371.
 - (16) E.A. Little, B.L. Eyre, Metal Science Journ., 7 (1973) 100.
 - (17) J.M. Harder, D.J. Bacon, Phil. Mag. A, 58 (1988) 165.
 - (18) B.L. Eyre, R. Bullough, Phil. Mag., A12 (1965) 31.
 - (19) F. Housemann, Phil. Mag., 25 (1972) 561.
 - (20) C.A. English, B.L. Eyre, S.M. Holmes, J. Phys. F: Met. Phys., 10 (1980) 1065.
 - (21) J. Marian, B.D. Wirth, Phys. Rev. Let., 88 (2002) 255507.
 - (22) M. Ruhle, M. Wilkens, U. Essman, Phys. Stat. Solidi, 11 (1965) 819.
 - (23) B.L. Eyre, D.M. Maher, Phil. Mag., 24 (1971) 767.