

STEM/EDS 元素マップに対する 機械学習を用いたクラスタ抽出法の開発 —電子線照射した原子炉容器鋼への適用—

Development of a Method for Extraction Solute Atom Clusters
from STEM/EDS Elemental Maps Using Machine-Learning
-Application for an Electron-Irradiation RPV steel-

前田 悠希 (Yuuki Maeda) *1 藤井 克彦 (Katsuhiko Fujii) *1
瀬戸 仁史 (Hitoshi Seto) *2, 福谷 耕司 (Koji Fukuya) *1

要約 走査透過型電子顕微鏡(STEM)に付属したエネルギー分散型 X 線分光装置(EDS)を用いて得られた元素マップから溶質原子クラスタを客観的に抽出するために、教師あり機械学習法を用いたクラスタ抽出法を開発した。開発した手法を中 Cu 含有量 (0.16wt%Cu) 原子炉容器鋼の電子線照射材に適用し、アトムプローブ (APT) 測定と抽出結果を比較した。STEM/EDS と APT でクラスタの数密度はよく一致し、本手法を用いることで STEM/EDS が APT と同等に電子線照射材中のクラスタの抽出が可能であることが確認された。

キーワード 溶質原子クラスタ、原子炉容器鋼、電子線照射、STEM/EDS、機械学習

Abstract To extract solute atom clusters objectively from elemental maps obtained using a scanning transmission electron microscope (STEM) equipped with an energy-dispersed X-ray spectroscopy (EDS) instrument, a method using supervised machine learning was developed. The method was applied on STEM/EDS elemental maps of an electron-irradiated, medium-Cu-content (0.16wt%Cu) reactor pressure vessel (RPV) steel. Based on the comparison of the results of STEM/EDS and atom probe tomography (APT) measurements, the number densities of solute atom clusters were seen to be of the same order. It was confirmed that the developed method using STEM/EDS can extract number densities of solute atom clusters in the electron-irradiated RPV steel equivalent to those densities obtained by APT.

Keywords solute atom cluster, reactor pressure vessel steel, electron irradiation, STEM/EDS, machine learning

1. はじめに

軽水炉の原子炉容器の照射脆化は重要な高経年化事象の一つである。既往の研究から、照射脆化の原因是中性子照射に伴う原子炉容器鋼のミクロ組織変化に起因していることが明らかとなっている⁽¹⁾⁽²⁾。中性子照射に伴う代表的なミクロ組織変化としては転位ループや溶質原子の集合体である溶質原子クラスタの形成、粒界でのリンの偏析などが挙げられる。特に溶質原子クラスタは、体積率の平方根がシャルピー衝撃試験の参照温度の移行量と比例することが報告されており⁽³⁾、照射脆化の主要因の一つと考えられている。溶質原子クラスタの評価にはアトムプローブ (atom probe tomography, APT) 測定が用いられている⁽³⁾⁻⁽⁶⁾。現行の照射脆化予測式 JEAC4201⁽⁶⁾においても APT で取得した溶質原子クラスタのデータが用いられて

おり、APT はクラスタ評価の標準となっている。その一方で、APT 測定には質量数が同一である同位体 (例えば⁵⁸Fe, ⁵⁸Ni) を区別することができないことや、クラスタ中の Fe の存在のような特有のアーティファクトが存在することが課題として挙げられる⁽⁷⁾⁻⁽⁹⁾。より信頼性の高いクラスタ評価には APT 測定だけでなく複数の測定方法を用いて溶質原子クラスタを評価することが重要である。

近年、走査型透過電子顕微鏡 (scanning-transmission electron microscopy, STEM) に付属したエネルギー分散型 X 線分光装置 (energy-dispersed X ray spectroscopy, EDS) の著しい性能向上により、STEM/EDS 測定による溶質原子クラスタの観察が可能になっている。STEM/EDS では APT と比較して広い視野で観察できることや他の欠陥とクラスタの位置関係を検討できること、複数元素を同時に検出できるといった利点がある。そのため、STEM/EDS での溶質原子クラスタの観察は APT の結果を

* 1 (株)原子力安全システム研究所 技術システム研究所

* 2 日本核燃料開発株式会社 (現日立 GE ベレノバ)

検証するだけでなく、クラスタの形成過程を検討するうえでも有用であると考えられる。しかし、STEM/EDS 測定で得られた元素マップからクラスタを抽出する手法は確立されておらず、報告によって評価方法が異なるのが現状である⁽¹⁰⁾⁻⁽¹²⁾。本研究では、STEM/EDS 元素マップから溶質原子クラスタを定量的に評価する手法として機械学習を用いた手法を開発した。この手法を電子線照射した中程度の Cu 含有量 (0.16 wt% Cu) の原子炉容器鋼へ適用し、APT と抽出結果を比較してその適用性を確認した。

2. 実験

2.1 供試材・電子線照射

供試材は中 Cu 含有量 (0.16 wt%Cu) の原子炉容器鋼 A533B 鋼である。供試材の化学組成を表 1 に示す。照射は 5 MeV の電子線により、照射温度は $290 \pm 5^\circ\text{C}$ で行われた。照射速度は $2 \sim 3 \times 10^{-8} \text{ dpa/s}$ 、最大照射量は 0.022 dpa である。照射条件の詳細は既報のとおりである⁽¹³⁾。

2.2 ミクロ組織観察

2.2.1 STEM/EDS測定

集束イオンビーム (focused ion beam, FIB) 加工装置を用いて電子線照射材からマイクロサンプリングし、TEM 試料を作製した。このとき、TEM 試料の電子線入射方向が結晶の[011]方向に一致するように加工した。FIB で 300 nm 程度まで薄膜化したのちに、低エネルギー Ar イオンミリング加工装置 (PIPS-II, Gatan) で仕上げた。Ar イオンビームの加速電圧は試料の膜厚に応じて 1 kV, 0.3 kV, 0.1 kV と段階的に小さくした。

STEM/EDS 測定には電界放出型 TEM(JEM-F200, JEOL) に付属した EDS 検出器 (JED-2300T, JEOL) を用いた。加速電圧は 200 kV とした。STEM/EDS 元素マップの測定領域は $512 \times 512 \text{ pixel}$ とし、定量精度を高めるために $2 \times 2 \text{ pixel}$ の領域を 1 pixel として再構成することで定量マップを取得した。定量マップは $256 \times 256 \text{ pixel}$ であり、1 pixel あたりの長さは 0.27 nm である。定量評価と膜厚評価には ζ ファクター法⁽¹⁴⁾を利用し、観察領域の膜厚は 58.3 nm と評価

された。

2.2.2 APT測定

FIB 加工装置 (NB5000, HITACHI) を利用して電子線照射材からマイクロ試料を採取した。マイクロ試料を W 製のニードルに固定したのちに、試料上部から環状に Ga イオンビームを走査させることで先端曲率半径が 100 nm 程度の針状の試料に仕上げた。試料のダメージを小さくするために、仕上げ加工には低加速電圧の Ga イオンビームを用いた。APT 測定は、日本原子力研究開発機構の新型転換炉原型炉ふげんの管理区域内にある高経年化分析室の APT 装置 (LEAP3000XHR, CAMECA) を用い、レーザーパルスモードで行った。試料温度は -238°C 、パルス周波数は 200 kHz とした。得られたデータの z 方向の長さを最適化するために Evaporation Field = 30.0 V/nm と Image Compression Factor = 1.65 を用いてアトムマップを作成した。

アトムプローブは質量/元素比をもとに元素の種類を決定する。原子炉容器鋼の場合、質量数 58 の Fe と Ni が同一の質量/電荷比をもつため、質量数 58 に相当する原子の種類を特定することはできない。バルクの平均組成を調べる場合には同位体存在比から元素を配分する手法がとられるが、クラスタのような局所的な濃度変化を調べる場合には不適切である。したがって、本研究では質量数 58 の元素として取り扱った。

3. STEM/EDS元素マップからの クラスタ抽出法

STEM/EDS 元素マップから溶質原子クラスタを定量的に抽出するために教師あり機械学習法の一種である k 近傍法 (k-nearest neighbor algorithm, k-NN) を用いた抽出手法を開発した。k-NN は分類問題を解くための機械学習法であり、図 1 のように未知データが所属する集団を多次元空間上の距離が近接した k 個の点の多数決で決定する手法である⁽¹⁵⁾。本研究ではユークリッド距離を用いてデータの近接性を評価した。k-NN を用いたクラスタの抽出方法の手順を以下に示す。

表 1 供試材の化学組成 (wt%)

C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	Cu	Fe
0.17	0.29	1.45	0.011	0.017	0.55	0.11	0.50	0.16	Bal.

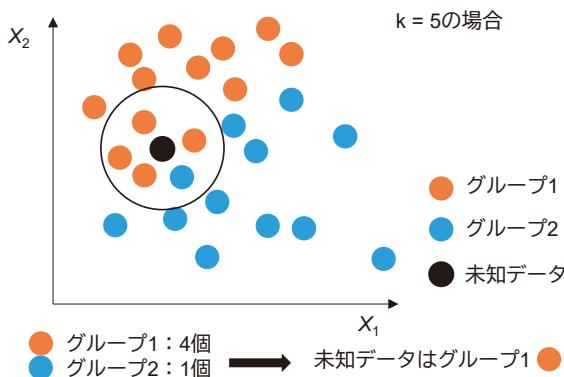


図 1 k-NN の概念図

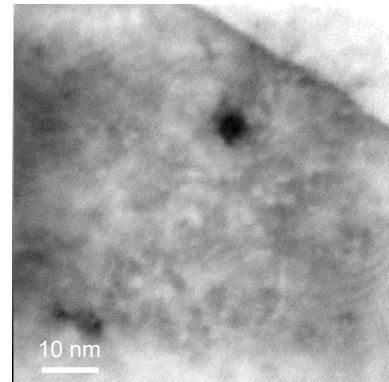


図 2 測定領域の透過電子像

- (a) 定量マップから単一のクラスタが含まれるような領域を切り抜く.
- (b) 切り抜いた領域について各ピクセルがマトリクスかクラスタのどちらに属するかを評価者が判定する.
- (c) 定量マップと標準偏差1のガウシアンフィルタを作用させた定量マップのピクセル値を説明変数、クラスタマトリクスの判定結果を目的変数とした k-NN の予測器を作成する。なお、最近傍オブジェクト数 k は交差検定によって決定する。
- (d) k-NN を用いて定量マップの領域全体についてマトリクスかクラスタかを判定し、定量マップ全体を二値化する。
- (e) 二値化した定量マップからラスタスキャンによるラベル付けを行いクラスタの候補を抽出する。クラスタの抽出の閾値として N_{\min} を設定して N_{\min} 以下のクラスタの候補を濃度揺らぎとみなす。
- (f) クラスタ面積と等価な円の直径から各々のクラスタ直径を算出する。クラスタ直径 d_{cluster} はクラスタに含まれるピクセル数 N_{pixel} から以下の式で決定される。

$$d_{\text{cluster}} = a_{\text{pixel}} \sqrt{\frac{N_{\text{pixel}}}{\pi}}. \quad (1)$$

a_{pixel} は 1 ピクセルあたりの長さである。

解析にはプログラミング言語 Python 3 と機械学習用のライブラリである Scikit-learn を用いた。

4. 結果

4.1 STEM/EDS測定

STEM/EDS 測定を実施した領域の透過電子像を図 2 に、STEM/EDS 測定で得られた定量マップおよび第 3 節で述

べた機械学習の教師データ作成に使用した 3 つの領域の位置を図 3 に示す。切り抜いた領域の大きさは 15×15 pixel である。切り抜いた各領域について Fe とクラスタの形成が明瞭である Mn, Ni, Cu の分布を基にマトリクスかクラスタかを判定した。例として領域 3 の元素マップと判定結果を図 4 に示す。判定結果を教師データとした k-NN によって元素マップを二値化し、クラスタを抽出した。なお、最近傍オブジェクト数 k は交差検定により $k=5$ とした。クラスタ抽出のピクセル数の閾値 N_{\min} は APT のクラスタ抽出の最小原子数を 20 としたときに想定される最小直径 0.99 nm と合わせて $N_{\min}=10$ と設定した。図 5 は二値化した元素マップとクラスタを抽出した結果であり、クラスタの重なりを考慮すると 55 個のクラスタが抽出された。クラスタの数密度は、 $2.0 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$ と評価された。クラスタに含まれるピクセル数 N_{pixel} の分布を図 6 に示す。式(1)から各々のクラスタの直径を計算し、平均直径は 1.5 nm と評価された。なお、1 ピクセルあたりの長さ a_{pixel} は 0.27 nm である。

4.2 APT測定

APT 測定で得られたアトムマップの一例を図 7 に示す。Cu を主とし、Mn, Ni, Si を構成元素としたクラスタの形成が認められた。クラスタを定量的に抽出するために再帰的探索アルゴリズム⁽¹⁶⁾に基づくクラスタ解析を実施した。クラスタ抽出に用いるコア元素は Mn, Ni, Cu, 58 とし、コア原子抽出に用いる閾距離は 0.5 nm とした。コア原子が 20 個以上のものをクラスタとし、クラスタの周辺原子の抽出には閾距離 0.5 nm を用いた。最後に周辺原子のうち 0.5 nm 以内にコア原子が 3 個未満のものを取り除いた。

クラスタの抽出の結果、測定体積 $2.7 \times 10^5 \text{ nm}^3$ に対して 84 個のクラスタが抽出され、クラスタの数密度は 3.1×10^{23}

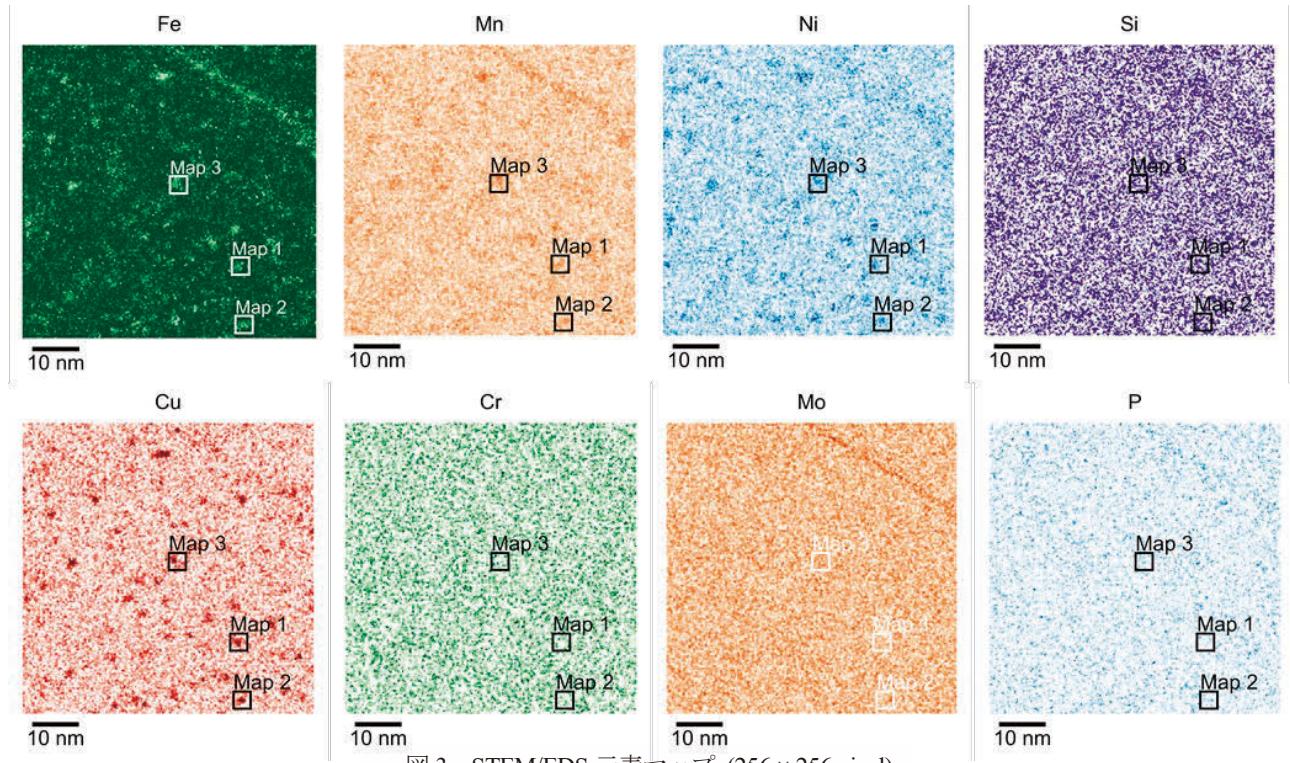
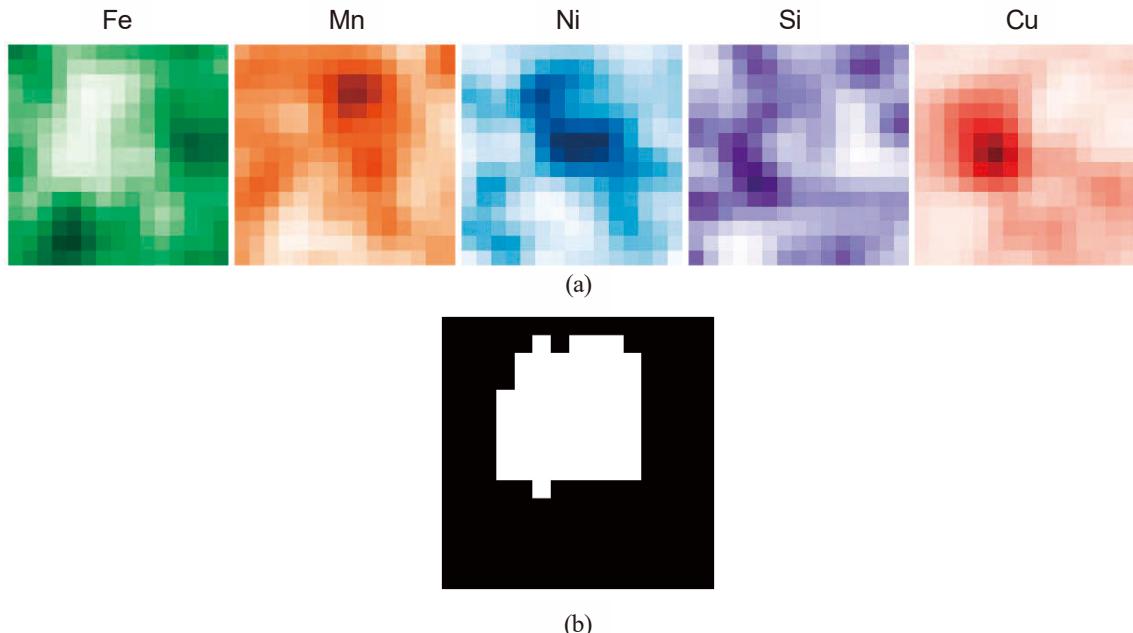


図3 STEM/EDS 元素マップ (256 × 256 pixel)

図4 (a) 切り抜いた元素マップ(15 × 15 pixel)と(b)クラスタとマトリクスに分類した元素マップの例
(元素マップはガウシアンフィルタで平滑化されている。)

m^3 であった。クラスタの直径 d_g は式(2)のとおり回転半径をもとに評価した。

$$d_g = 2 \times \sqrt{\frac{5}{3}} \times \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n \{(x_i - \bar{x})^2 + (y_i - \bar{y})^2 + (z_i - \bar{z})^2\}}{n}}. \quad (2)$$

(x_i, y_i, z_i) はクラスタ中の*i*番目の原子の位置座標, $(\bar{x}, \bar{y},$

$\bar{z})$ はクラスタの重心の座標であり, n はクラスタ中の原子の総数である。式(2)より計算したクラスタの平均直径は2.1 nmであった。クラスタ中に存在する質量数58の元素をNiとみなしたときのクラスタの平均組成は74.6Fe-6.0Mn-7.0Ni-3.5Si-8.7Cuであった。

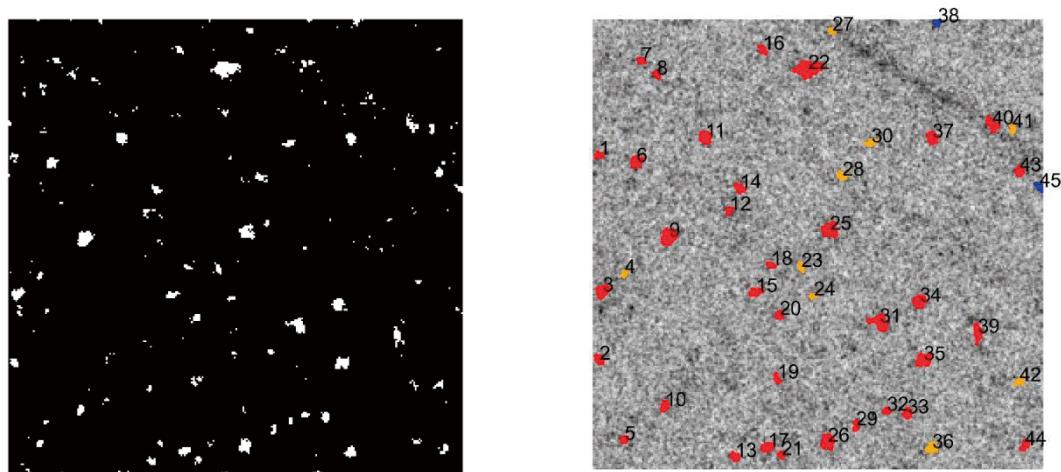


図5 (a)二値化した元素マップと(b)クラスタ抽出結果をFeの元素分布とあわせて示したマップ
橙のクラスタは複数のクラスタが重なっていると判断されたもの青のクラスタは測定領域の辺に存在するものである。

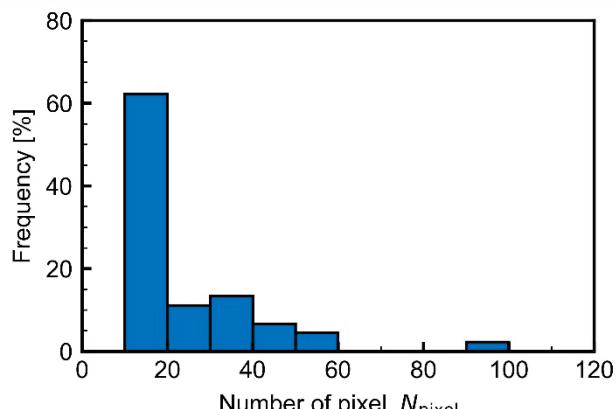


図6 STEM/EDSで抽出されたクラスタに含まれるピクセル数 N_{pixel}

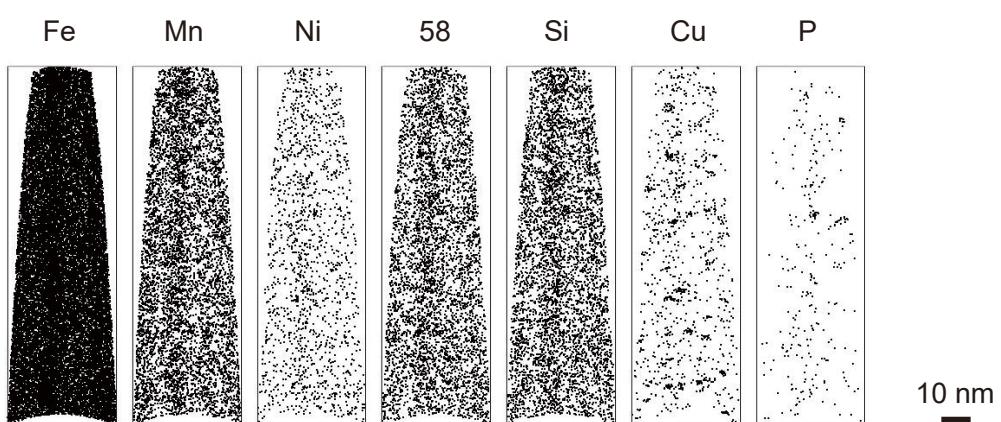


図7 厚さ6nmでスライスした電子線照射材のAPTアトムマップ

表2 STEM/EDS, APTでのクラスタ抽出結果

	試料数	測定体積 (nm ³)	抽出数	数密度(m ⁻³)	平均直径(nm)
STEM/EDS	1	2.8×10^5	55	2.0×10^{23}	1.5
APT	3	2.7×10^5	84	3.1×10^{23}	2.1

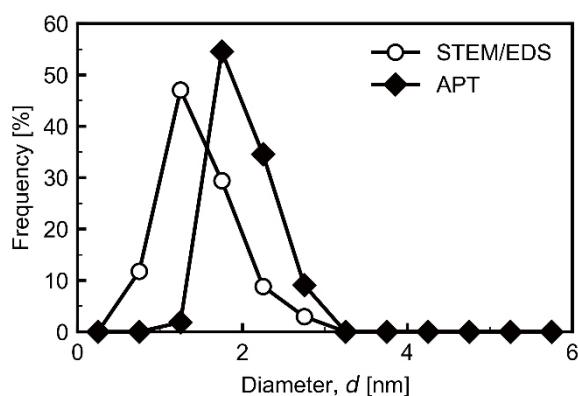


図 8 クラスタの直径分布

5. 考察

5.1 STEM/EDSとAPTの比較

表 2 に二つのクラスタ抽出手法の結果をまとめた。STEM/EDS と APT で測定体積はほぼ同一であった。APT が 3 つの試料の合計であることを考慮すると、STEM/EDS では一度に多くの体積を評価できることがわかる。クラスタの抽出数および数密度は STEM/EDS, APT でおおむね一致し、電子線照射された中 Cu 含有量の原子炉容器鋼の場合、STEM/EDS と APT で同等のクラスタを抽出できることが確認された。

図 8 にクラスタの直径分布を示す。STEM/EDS ではクラスタの直径分布が APT よりも小さい傾向が認められた。STEM/EDS では 2 次元平面上の濃度変化からクラスタを検出しておらず、母相と濃度差が小さいクラスタの端部をクラスタとして抽出することが困難であり、クラスタ直径を小さく評価していると考えられる。

STEM/EDS では 1 試料あたりの測定体積が大きいことや転位ループなどの他の欠陥とクラスタとの位置関係を調べられることが長所である。しかし、得られる情報は 2 次元の投影図であり、クラスタ直径を精度よく決めることは難しい。APT では 3 次元的な原子の配列が取得されるため、クラスタ直径の定量評価が容易である一方で評価領域が小さく、十分な数のクラスタを抽出するには多くの測定を行う必要がある。このように STEM/EDS と APT ではそれぞれ長所と短所を持ち合わせており、今後より信頼性の高いクラスタ評価には従来の APT に加えて STEM/EDS も活用していくことが望ましいと考えられる。

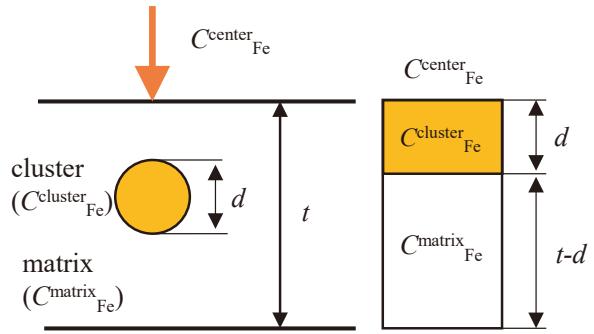


図 9 クラスタ中の Fe 濃度の推定方法

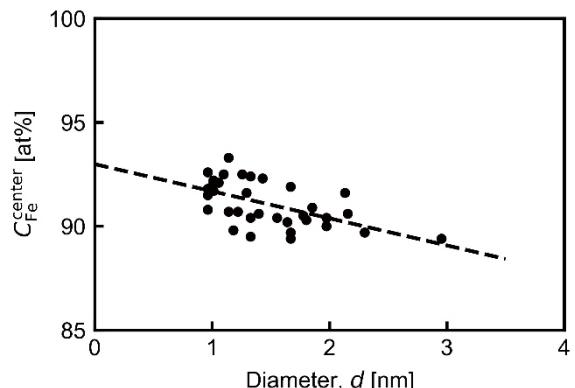


図 10 クラスタ直径とクラスタ中心の Fe 濃度

5.2 クラスタ中の元素分布についての検討

5.2.1 クラスタ中のFe濃度の推定

STEM/EDS では 3 次元的な形状をもつクラスタの組成を直接的に調べることはできない。そこで、元素マップの S/N 比が高い Fe について以下の仮定の下でクラスタ中の濃度を推定した。クラスタ中の Fe 濃度はクラスタ形成メカニズムを考察する上で重要な情報である⁽⁷⁾⁽⁸⁾⁽¹⁷⁾。

- (i) クラスタは完全な球状であり、Fe 濃度が最も低下しているピクセルがクラスタの中心に相当する。
- (ii) クラスタ中の Fe 濃度は一定である。

これらの仮定に基づくと、クラスタ中、母相の Fe 濃度をそれぞれ $C_{\text{Fe}}^{\text{cluster}}$, $C_{\text{Fe}}^{\text{matrix}}$, クラスタ中心のピクセルの Fe 濃度を $C_{\text{Fe}}^{\text{center}}$ としたときの関係は以下の式で表される。

$$C_{\text{Fe}}^{\text{center}} = \frac{(t-d)C_{\text{Fe}}^{\text{cluster}}}{t} + \frac{d}{t} C_{\text{Fe}}^{\text{matrix}}, \quad (3)$$

式(3)の概念図を図 9 に示す。ここで、 t は試料の膜厚、 d はクラスタの直径である。式(3)から、各クラスタの直径とクラスタ中心の Fe 濃度を 1 次関数で近似することでクラスタ中の Fe 濃度が推定されることがわかる。図 10 にクラスタ直径とクラスタ中心の Fe 濃度の関係を示す。近似

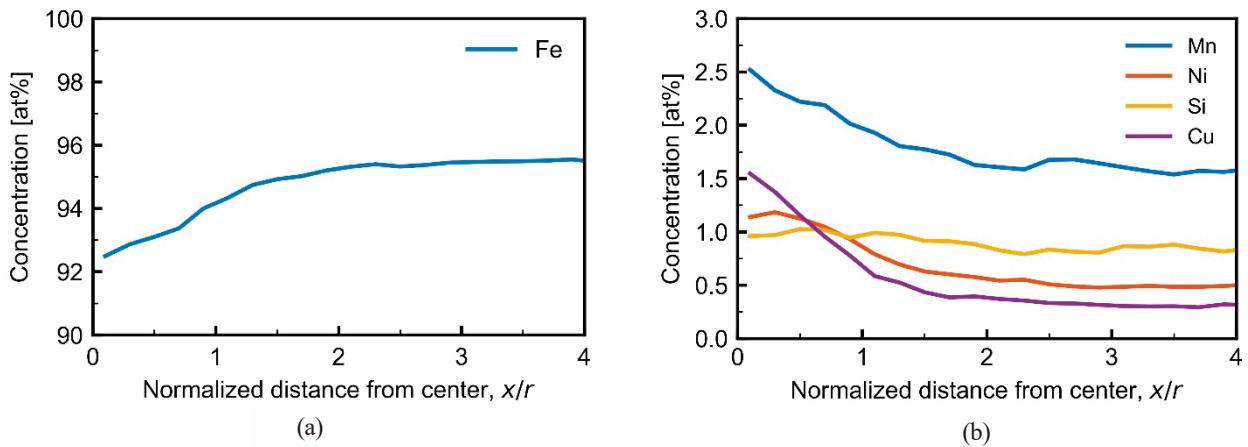


図 11 STEM/EDS で抽出されたクラスタ中心からの距離と(a)Fe 濃度, (b) Mn, Ni, Si, Cu 濃度の関係

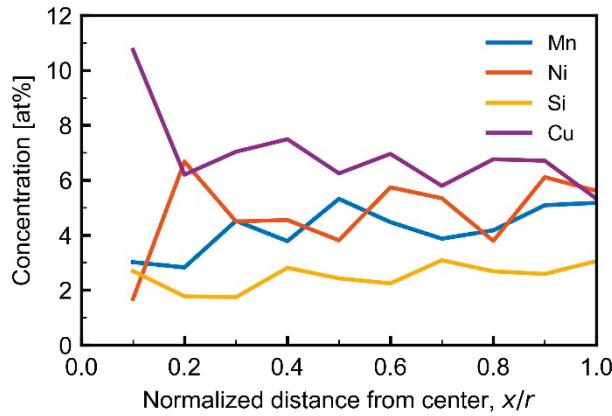


図 12 APT で抽出されたクラスタの中心からの距離と Mn, Ni, Si, Cu の濃度

直線の傾きからクラスタ中の Fe 濃度は 20 at% と推定され, STEM/EDS 測定においてもクラスタ中に Fe が含まれることを示唆する結果が得られた. 一方で, APT で評価されたクラスタ中の Fe 濃度 74.6 at% と比較すると STEM/EDS 測定で推定される Fe 濃度は小さいことがわかる. これは, 既往の研究で指摘されている通り, APT のアーティファクト⁽⁷⁾⁽⁸⁾⁽¹⁸⁾によってクラスタ中の Fe 濃度が実態よりも高く評価されている可能性を示唆するものである.

5.2 クラスタ近傍の溶質元素分布

クラスタ近傍の溶質元素の分布を調べるために, STEM/EDS と APT の測定結果についてクラスタ中心を基準とした溶質元素の分布を取得した. 図 11 は STEM/EDS 測定で抽出された 20 個のクラスタについてクラスタ半径 r で正規化した距離と各元素の濃度分布を平均化したものである. 図 12 は APT で抽出されたクラスタについて, 各元素の原子濃度をクラスタ半径 r で正規化した距離でまとめたものである. なお, STEM/EDS では $r = 0\sim 4$, APT

では $r = 0\sim 1$ の範囲の溶質元素の分布を示してある. STEM/EDS と APT の両方で Mn, Ni, Cu のクラスタ中での集積が認められた. APT ではクラスタ中の Si 濃度が 2 at% 程度と母相と比較して高い一方で STEM/EDS ではクラスタ中心付近の Si 原子の集積がほとんど認められなかった. Si の特性 X 線のエネルギー(K- α)は 1.74 keV と Mn-K(5.90 keV), Ni-K(7.47 keV), Cu(8.04 keV) と比べても低く, バックグラウンドの影響を受けやすいため STEM/EDS では濃度変化量が小さくなっていると考えられる. STEM/EDS において Mn, Ni, Si の分布の幅を定量的に評価するために, 元素分布を距離 x に関する指数関数 $C_0 \exp(-x/\tau)$ で近似した. C_0 はクラスタ中心のピクセルの定量値, τ は分布の幅に相当するパラメータである. 評価結果を表 3 に示す. Mn, Ni と比較すると Cu はクラスタの中心部の狭い範囲で強く濃縮していることがわかる. APT においても同様の傾向が認められ, クラスタ中心に Cu が強く濃縮し, その周辺に Mn, Ni, Si が集積するという従来の知見と整合するものであった⁽¹⁹⁾⁽²⁰⁾. 軽元素である Si を除けば STEM/EDS と APT で元素分布の特徴はほぼ一致しており, APT で評

表3 STEM/EDS で評価されたクラスタ近傍の各元素の分布

	C_0 [at%]	τ
Mn	2.6	1.1
Ni	1.5	2.0
Cu	0.92	0.64

価されるクラスタの構造が妥当であることが示唆された。今後は、最新の球面収差補正機能付きの透過電子顕微鏡を活用し、より高倍率でクラスタを観察することによってクラスタ近傍の詳細な溶質元素の分布を取得する予定である。

6. まとめ

STEM/EDS 元素マップから機械学習を用いてクラスタを抽出する手法を開発した。開発した手法を中 Cu 含有量 (0.16wt%) の原子炉容器鋼へ適用し、APT と結果を比較した。

- (i) STEM/EDS と APT で同程度の領域について測定した結果、二つの手法でクラスタの数密度はよく一致した。中 Cu 含有量の原子炉容器鋼の電子線照射材について、本手法を用いた場合 STEM/EDS が APT と同等のクラスタ抽出が可能であることがわかった。
- (ii) STEM/EDS で抽出されたクラスタの Fe 濃度について仮定を基に計算した。STEM/EDS ではクラスタの Fe 濃度は 20 at% であり、クラスタ中に Fe が含まれることを示唆する結果が得られた。また、APT でのクラスタの Fe 濃度 74.6 at% と比較すると、APT のアーティファクトによって Fe 濃度が過剰に評価されている可能性が示唆された。
- (iii) STEM/EDS と APT で抽出されたクラスタの元素分布を比較すると、軽元素である Si を除いて二つの手法で類似した傾向が認められた。このことから APT で評価されるクラスタの構造が妥当であることが示唆された。

参考文献

- (1) K. Fukuya, "Current understanding of radiation-induced in light water reactor structural materials", *J. Nuclear Science and Technology*, No.50(3), pp.213-254 (2013).
- (2) 福谷 耕司, 大野 勝巳, 中田 早人, "原子炉容器鋼の照射組織変化", INSS Monograph No.1, (2001).
- (3) 曽根田 直樹他, "軽水炉圧力容器鋼材の照射脆化予測法の式化に関する研究－照射脆化予測法の開発－", 電力中央研究所報告書, Q06019, (2007).
- (4) K. Murakami, "Influence of copper precipitates on clustering behavior of alloying elements observed in Japanese reactor pressure vessel surveillance materials using atom probe tomography", *J. Nuclear Materials*, Vol.542(15), 152508, (2020).
- (5) 藤井 克彦, 福谷 耕司, "アトムプローブによる PWR 原子炉容器監視試験片のミクロ組織分析", INSS. Journal, Vol.20, NT-8, (2013).
- (6) 日本電気協会, "原子炉構造材の監視試験方法", JEAC-4201-2007, (2007).
- (7) J. M. Hyde, C. A. English, "Microstructural characterization techniques for the study of reactor pressure vessel (RPV) embrittlement", N. Soneda ed., *Irradiation Embrittlement of Reactor Pressure Vessels (RPV) in Nuclear Power Plants*: Elsevier, pp. 211-294 (2015).
- (8) B.M. Jenkins et al., "On the iron content of Mn-Ni-Si-rich clusters that form in reactor pressure vessel steels during exposure to neutron irradiation", *Acta Materialia* Vol.281(1), 120384 (2024).
- (9) B.M. Jenkins et al., "The effect of position variations on the response of steels subjected to high fluence neutron irradiation", *Materialia*, Vol.11, 100717 (2020).
- (10) T. Fujita et al., "Contribution of dislocation loop to radiation-hardening of RPV steels studied by STEM.EDS with surveillance test pieces", *J. Nuclear Materials*, Vol.572, 154055, (2022).
- (11) P.D. Edmondson, C.M Parish, R.K. Nanstad, "Using complimentary microscopy methods to examine precipitates in highly-irradiated reactor pressure vessel steels", *Acta Materialia* Vol.134, pp.31-39 (2017).
- (12) M.G. Burke et al. "Quantitative characterization of

- nanoprecipitates in irradiated low alloy steels: advances in the application of FEG-STEM quantitative microanalysis to real materials”, *J. Materials Science*, Vol.41, pp.4512-4522 (2006).
- (13) 藤井 克彦他, “電子照射による低合金鋼のミクロ組織変化”, INSS Journal, Vol.10, pp.186-197, (2003).
- (14) M. Watanabe, “The quantitative analysis of thin specimens: a review of progress from the Cliff-Lorimer to the new ζ -factor methods”, *J. Microscopy*, Vol.221(2), pp.89-109 (2006).
- (15) P. Cunningham, S.J. Delany, “k-Nearest Neighbor Classifiers- A Tutorial”, *ACM Computing Surveys*, Vol.54(6) pp.1-25, (2021).
- (16) J.M. Hyde, C.A. English, “An analysis of the structure of irradiation induced Cu-enriched clusters in low and high nickel welds,” in: *Proc. Mater. Res. Soc. Symp.*, vol. 650, p. 66, (2001).
- (17) S. Shu et al., “Multi-technique characterization of the precipitates in thermally aged and neutron irradiated Fe-Cu and Fe-Cu-Mn model alloys: Atom probe tomography reconstruction implications”, *Acta Materialia* Vol.146, pp.237-252 (2018).
- (18) D. Haley et al., “Influence of field evaporation on Radial Distribution Functions in Atom Probe Tomography”, *Philosophical Magazine*, Vol.89(11), pp.925-943, (2009).
- (19) K. Lindgren et al., “Evolution of precipitation in reactor pressure vessel steel welds under neutron irradiation”, *J. Nuclear Materials*, Vol.488, pp.222-230, (2017).
- (20) N. Almirall et al., “On the use of charged particles to characterize precipitation in irradiated reactor pressure vessel steels with a wide range of compositions”, *J. Nuclear Materials*, Vol.536, 152173, (2020).