

中性子照射されたFe-Cr-Ni系合金の陽電子消滅角相関測定

蔵元, 英一
九州大学応用力学研究所 : 教授

菊池, 直樹
神戸製鋼

入沢, 大逸
九州大学大学院総合理工学研究科 : 修士課程

竹中, 稔
九州大学応用力学研究所 : 文部技官

他

<https://doi.org/10.15017/4743803>

出版情報 : 應用力學研究所所報. 65, pp.339-354, 1987-12. 九州大学応用力学研究所
バージョン :
権利関係 :



中性子照射された Fe-Cr-Ni 系合金の 陽電子消滅角相関測定

蔵 元 英 一* 菊 池 直 樹**
入 沢 大 逸*** 竹 中 稔†
長谷川 雅 幸††

概 要

JMTR により 8×10^{21} n/cm² の中性子照射を受けた Fe-15%Cr-16%Ni 系合金の陽電子消滅角相関測定を行い narrow component (ポジトロニウム成分) を見出した。Fe-15%Cr-16%Ni-0.005%B¹⁰ が最も narrow component が出やすく照射後焼鈍によりなお顕著になった。B¹⁰(n, α)Li⁷ 反応により生じた Li と He がポジトロニウム形成を促進していると考えられる。Narrow component の幅が 2.5 mrad 前後であり熱化されていない可能性がある。このことは P_s 形成機構に示唆を与えるものである。

Key words: Fe-Cr-Ni alloy, Positron annihilation angular correlation measurement, Neutron Irradiation, Positronium, Void, Narrow component of γ - γ angular correlation curve

1. は じ め に

高温重照射によって生じるボイドスエーリングは高速増殖炉や核融合炉用材料にとって重要な問題である。その発生、生長機構に関して多くの研究がこれまでになされている¹⁾。複雑な現象を解析するには各要素過程が詳細に研究されなければならない。ボイド中でポジトロンはポジトロニウム (P_s) を形成して消滅することが最近次第に明らかになってきた²⁾³⁾⁴⁾。しかし P_s が形成される条件についてはまだまだデータ不足でありこれからの課題である。本研究では高温で中性子照射された Fe-Cr-Ni 系合金について陽電子消滅角相関測定を行い、P_s 形成、すなわち narrow component の様子を詳細に調べた結果

* 九州大学教授, 応用力学研究所

** (現) 神戸製鋼

*** 九大総理工修士二年

† 文部技官, 九州大学応用力学研究所

†† 東北大金研

について報告する。

2. 実験方法

中性子照射は JMTR (材料試験炉, 原研大洗) により行われた。 8×10^{21} n/cm² のフルエンスを得るためには準備期間, 冷却期間も含めて約 5 年の月日を要した。クラッド解体された後洗條し陽電子消滅角相関測定を行った。線源は JMTR 水カラボット照射で作成した Cu⁶⁴ (約 1.5 Ci) を用いた。得られた角相関曲線は三成分解析 (三つのガウシアン曲線, 半値幅が夫々 13 mrad 前後, 7 mrad 前後, 2 mrad 前後) を行った。試料は照射温度より上の温度で各 20 分の等時焼鈍を行い角相関曲線の変化, 特に narrow component の変化を追跡した。

3. 実験結果および考察

図 1 に焼鈍された Fe-15%Cr-16%Ni 合金の陽電子消滅角相関曲線を示す。これに中性子照射 (JMTR, 8×10^{21} , 480°C) した後の測定結果を図 2 に示す。約 4 dpa の照射によって角相関曲線の半値幅がかなり大きく減少している。三成分解析の結果では narrow component はこの段階ではごく僅かであるがこの後等時焼鈍を行ってゆく過程で次第に明らかになって来る。すなわち P_s 形成が顕著になってくる。これは 480°C の高温では 4 dpa 照射によってボイドが形成されておりその中に捕獲された陽電子が P_s を形成して相手の電子と対消滅することによって narrow component を形成していることを示している。ボイドが形成されるためには原子空孔がその温度で十分な易動度を有していることが必

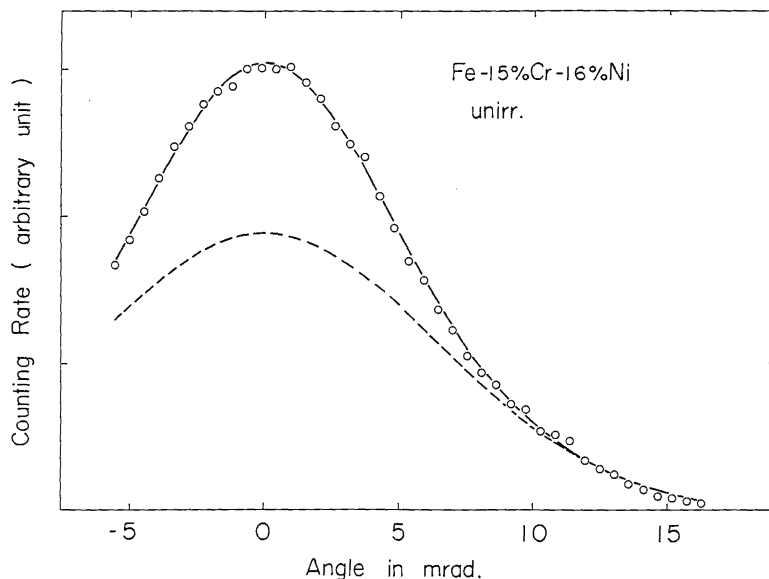


図 1 Fe-15% Cr-16% Ni 合金の陽電子消滅角相関曲線

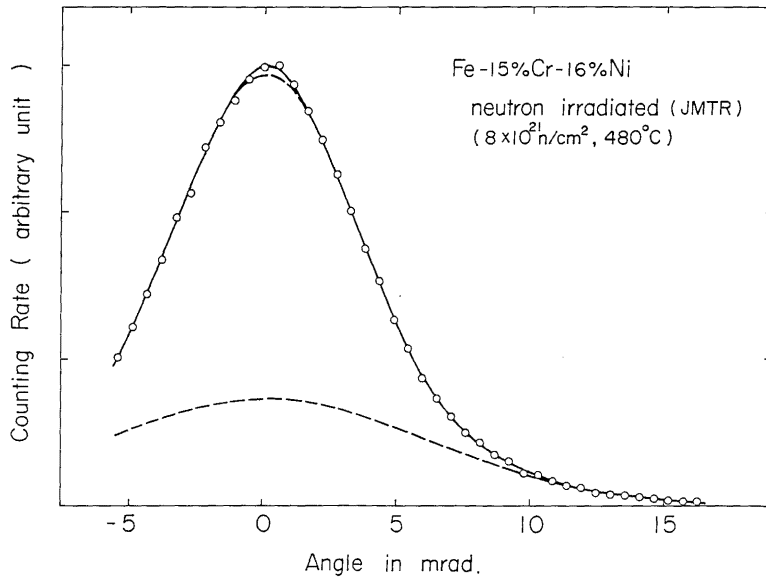


図2 中性子照射 (JMTR, $8 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$, 480°C) された Fe-15% Cr-16% Ni の陽電子消滅角相関曲線

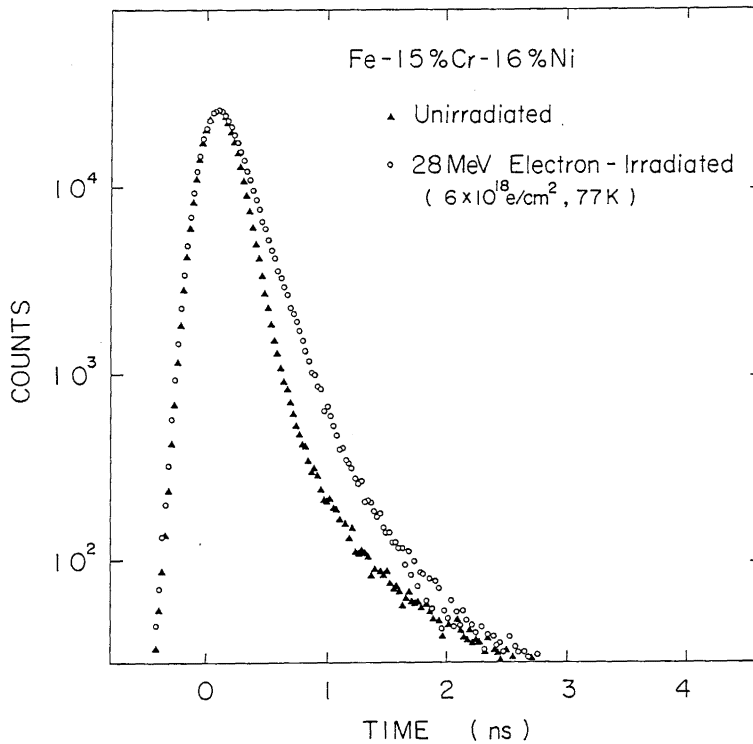


図3 LINAC 照射 (28 MeV 電子線, $6 \times 10^{18} \text{ e/cm}^2$, 77 K) された Fe-15% Cr-16% Ni の室温における陽電子消滅寿命スペクトル

須条件である。そのことを証明するために低温電子線照射（京大原子炉 LINAC, 28 MeV 電子線, $6 \times 10^{18} \text{ e/cm}^2$, 77 K）された Fe-15%Cr-16%Ni の室温における陽電子消滅寿命スペクトル及びその室温から上の等時焼鈍による回復過程の三成分解析結果を図 3, 4 に示す。この結果から分かることは原子空孔は 200°C 付近で移動開始していることであるが、それと同時に積層欠陥四面体を形成して第二成分は一旦上昇してから減少するという特異な挙動を示している。いずれにしても 480°C では十分なボイド形成が期待される。実際電顕観察を行ってみると直径約 500 Å のボイドが $1.8 \times 10^{14}/\text{cm}^3$ の密度で存在していることがわかった。スエーリング量にして 1.2% 程度である。

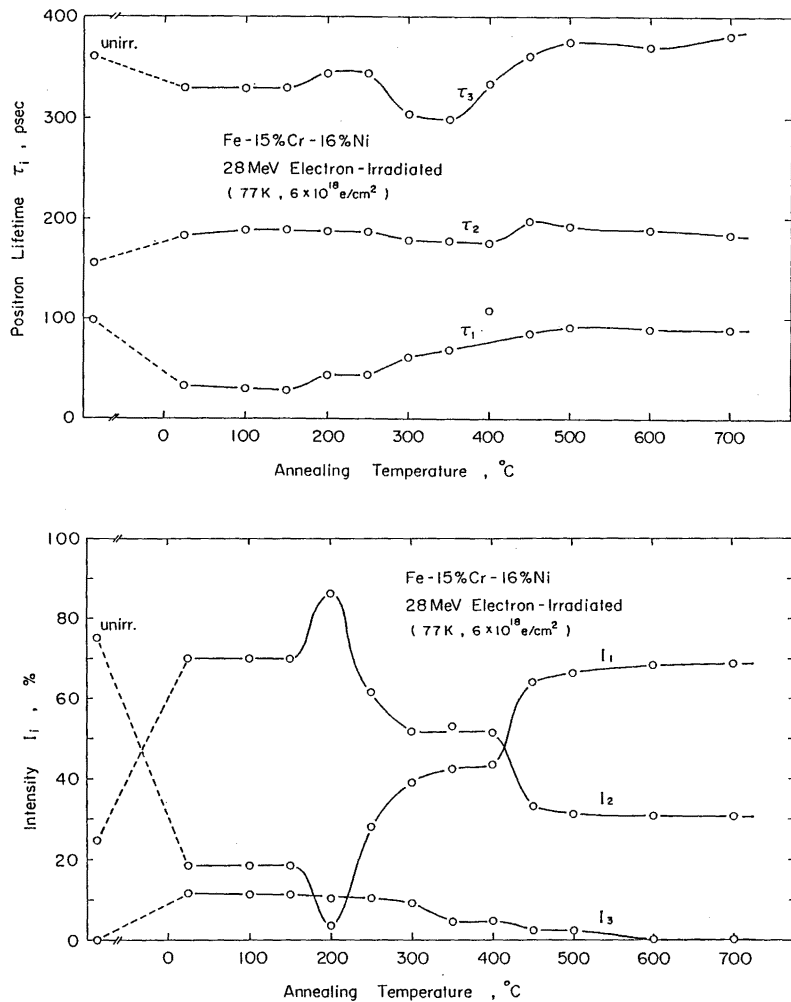


図 4 LINAC 照射 (28 MeV 電子線, $6 \times 10^{18} \text{ e/cm}^2$, 77K) された Fe-15%Cr-16%Ni の室温から上の等時焼鈍による回復過程の三成分解析結果

図 5, 6, 7 に等時焼鈍による角相関曲線の形の変化を示す, Narrow component が次第に顕著になって行くことがわかる. これは I_M (medium component) が減ってそのかわり I_N (narrow component) が増加するという過程を経ている. $I_M + I_N$ はむしろ減っており I_B (bulk component) は増えている. I_M はその半値幅からボイド中に捕獲された陽電子が P_s を形成しないで消滅したか又は P_s を形成しても pick-off 過程で他の電子と対消滅した成分である. 等時焼鈍過程で I_M が減って I_N が増えているということは P_s 形成が促進され尚かつ P_s 状態で対消滅する確率が增大していることを意味している. 変化のみをまとめて図 8, 9, 10 に示している. そこで $I_M + I_N = I_V$ として void component とし図 10 では I_N/I_V の比は等時焼鈍温度とともに増加していることを示している.

図 11 から図 19 までは Fe-15%Cr-16%Ni-0.005%B¹⁰ に対する同様の実験結果を示す. B¹⁰ は B¹⁰(n, α)Li⁷ の反応によってヘリウムを発生する. 4 dpa 照射では B¹⁰ は全部この反応によって Li⁷ 变成っている. ヘリウムの影響でボイドの核発生率が増加しこの試料中には $7.2 \times 10^{15}/\text{cm}^3$ の高密度で微細なボイド (径 50 Å) が存在している. スエーリング量になおすと 0.048% 程度である. 角相関曲線では B¹⁰ を含まない試料に比較して I_N の比率が高いことが一連の図からわかる. 等時焼鈍によって I_M は 700°C までは一定でその後減少する. I_N は 700°C までは増加しその後減る. B¹⁰ を含む試料ではボイドが非常に小さいので焼鈍によりサイズ分布の小さい方のすそに位置するものから消失していると考えるところの現象が一応説明がつく. それは小さなマイクロボイドでは P_s は形成されても一般に運動エネルギーが高く又壁との衝突頻度も高いので pick-off 過程で消滅する確率が高いと考えられる. 従って I_N よりも I_M に寄与する確率が高いので等時焼鈍によってマイクロボイドが消失すれば I_M への寄与が減り I_N が顕著

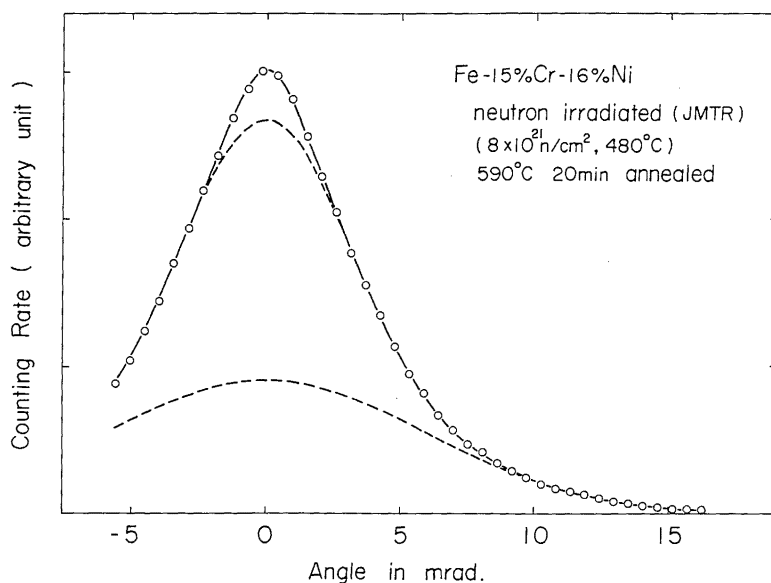


図 5 中性子照射 (JMTR, $8 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$, 480°C) された Fe-15%Cr-16%Ni を 590°C, 20 分焼鈍した後の陽電子消滅角相関曲線

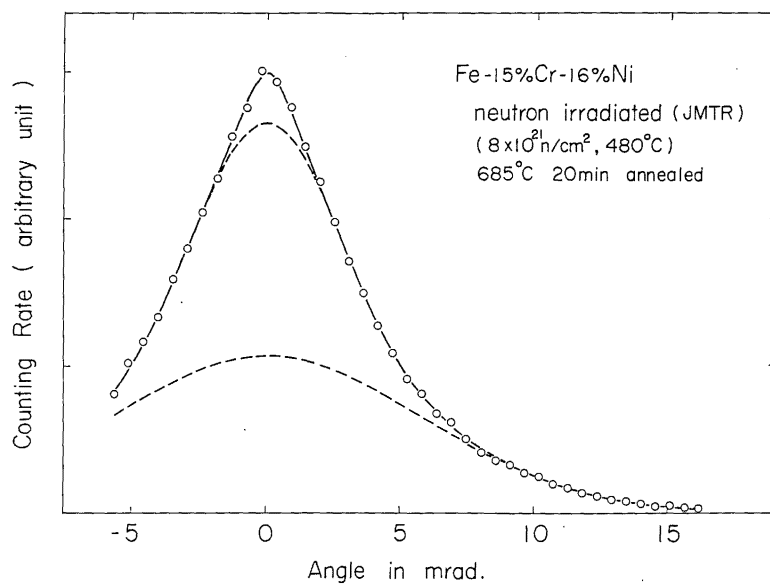


図6 中性子照射 (JMTR, $8 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$, 480°C) された Fe-15% Cr-16% Ni を 685°C , 20 分焼鈍した後の陽電子消滅角相関曲線

F6F7

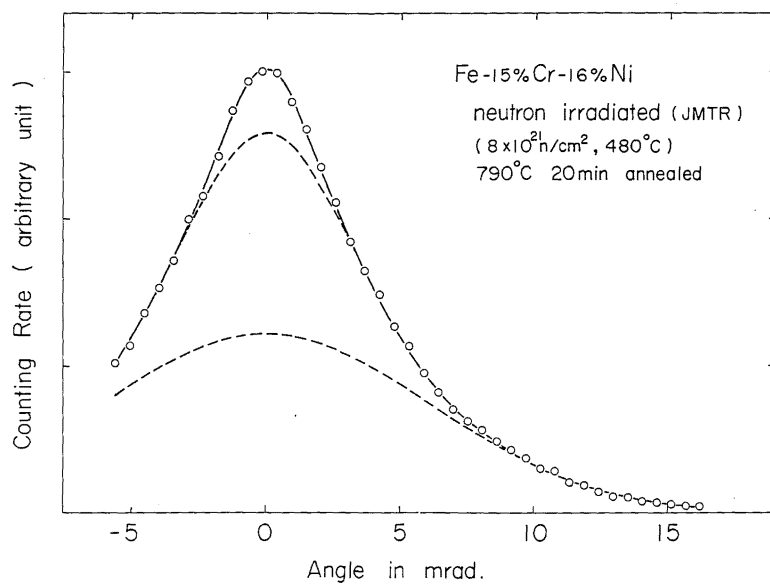


図7 中性子照射 (JMTR, $8 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$, 480°C) された Fe-15% Cr-16% Ni を 790°C , 20 分焼鈍した後の陽電子消滅角相関曲線

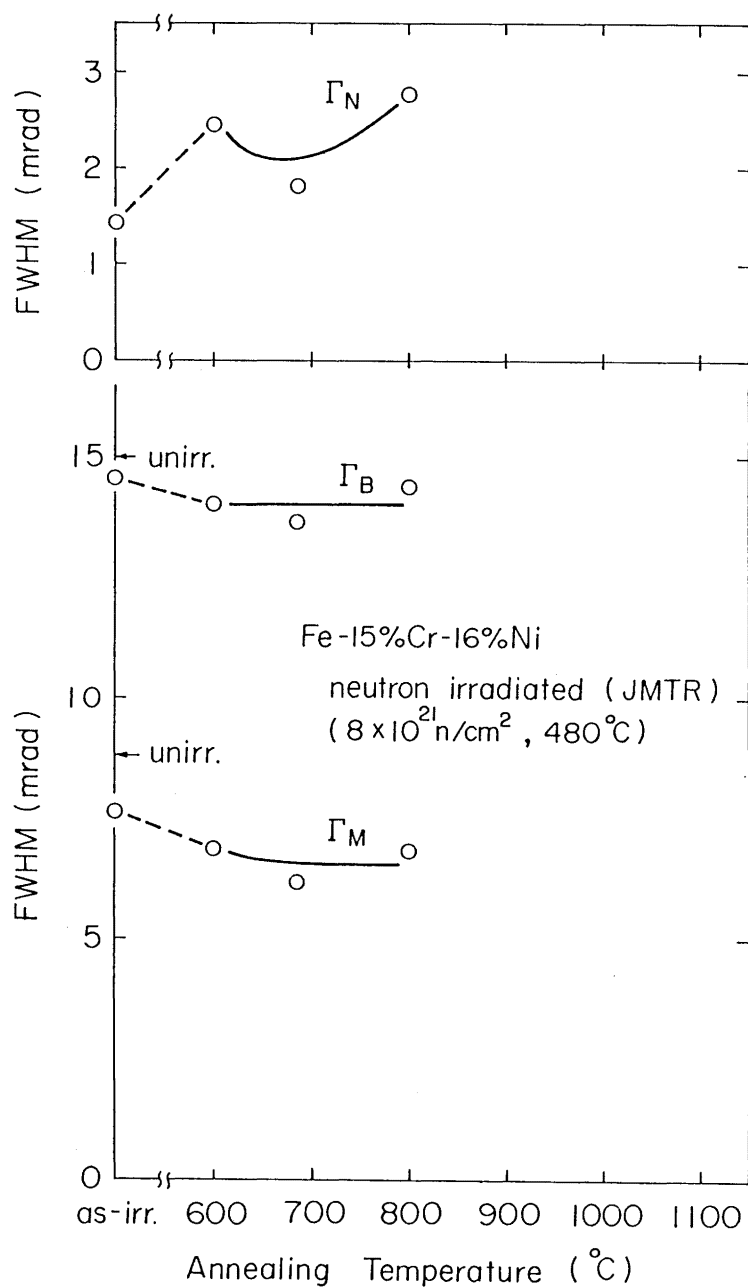


図8 中性子照射 (JMTR, 8×10^{21} n/cm², 480°C) された Fe-15% Cr-16% Ni の等時焼鈍回復過程における半値幅 (3 成分に分解された各々について) の変化

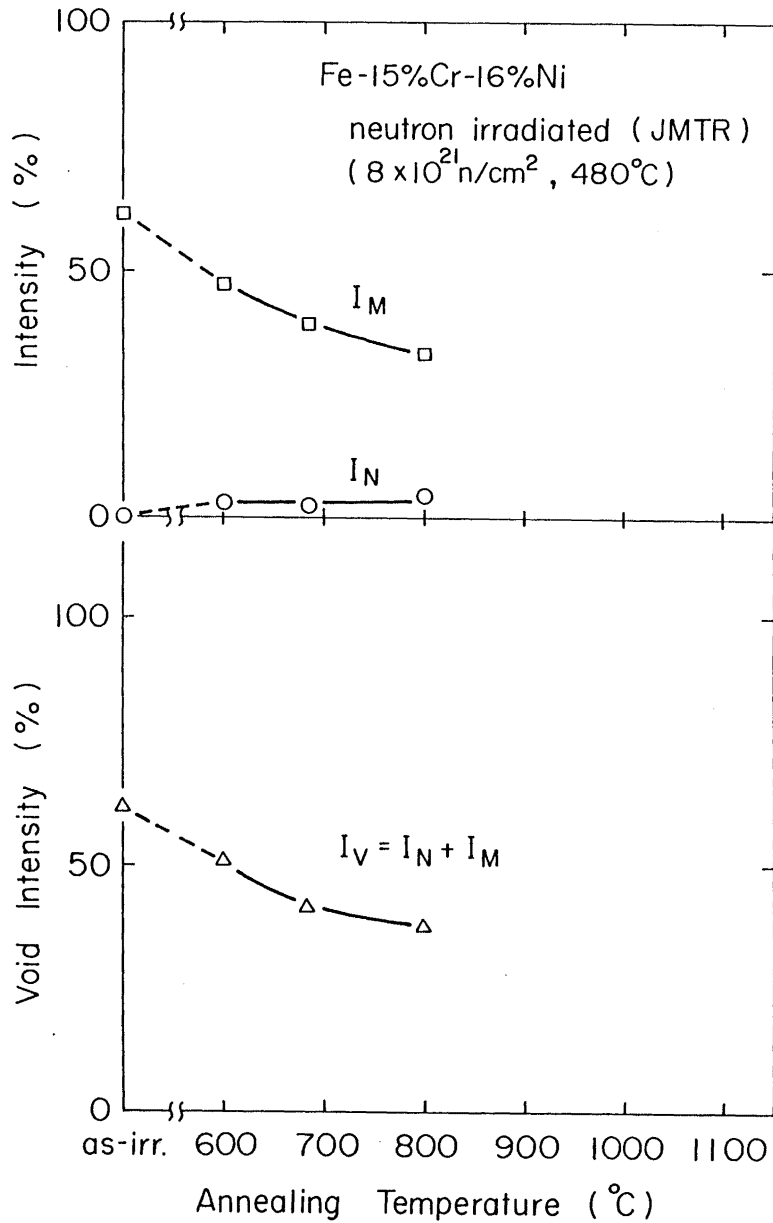


図9 中性子照射 (JMTR, $8 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$, 480°C) された Fe-15%Cr-16%Ni の等時焼鈍回復過程における強度 (3 成分のうちの narrow component, medium component について) の変化

になってくると考えられる。ボイドがある程度以上の大きさを持てば形成された P_s の pick-off 消滅も減り安定した narrow component を示すようになってくると考えられるが、 B^{10} を含まない試料と含む試料を比較して前者の方が I_N 成分が多い理由を考えなければならない。前述のように $B^{10}(n, \alpha)Li^7$ で形成された Li は高温では当然拡散してボイド表面等に偏析することが考えられる。このために P_s 形成が促進されるかあるいは pick-off が抑制されると考えれば I_N が顕著になることは説明がつく。4) の文献に示されている Al 中のボイドの場合には核反応で生成された Na がボイド表面に偏析することによって P_s 形成が促進されている。アルカリ金属, Na, Li 等には P_s に対する表面での work function (仕事関数) をより下げる働きがあることも示唆される。又一方ヘリウムの発生も考慮に値すると思われる。核反応で生成したヘリウムのかかりの部分は当然のことながらボイド中に存在すると考えられる。このヘリウムは P_s が壁に衝突する前に P_s と衝突し壁への衝突回数を減少させ pick-off 消滅を減少させることが

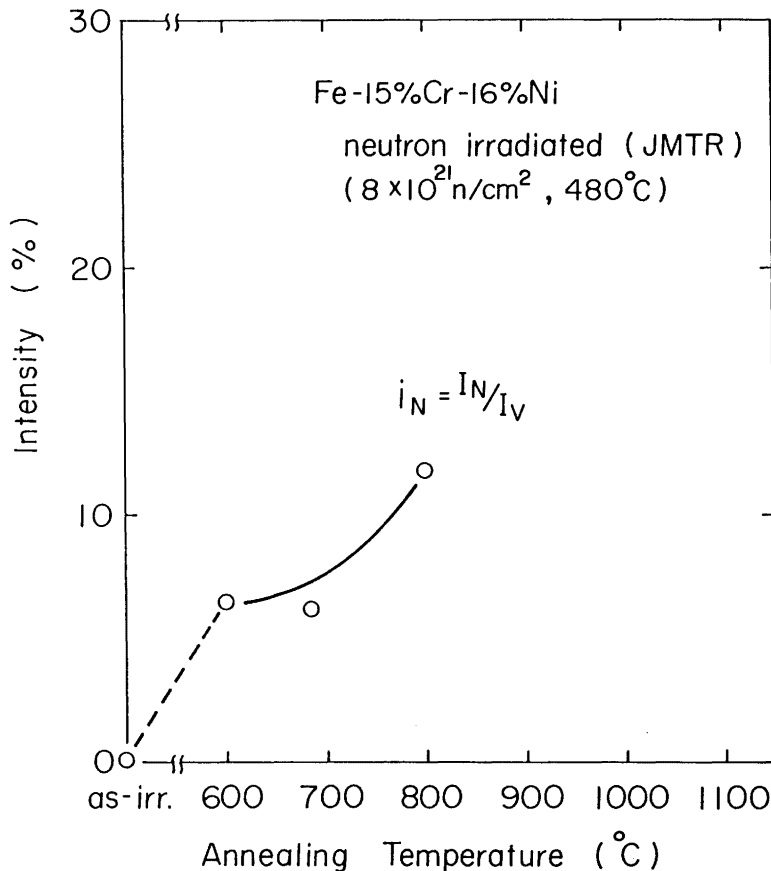


図 10 中性子照射 (JMTR, $8 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$, 480°C) された Fe-15%Cr-16%Ni の等時焼鈍回復過程における $i_N = I_N/I_V$ (I_N ; narrow component, I_V ; void component) の変化

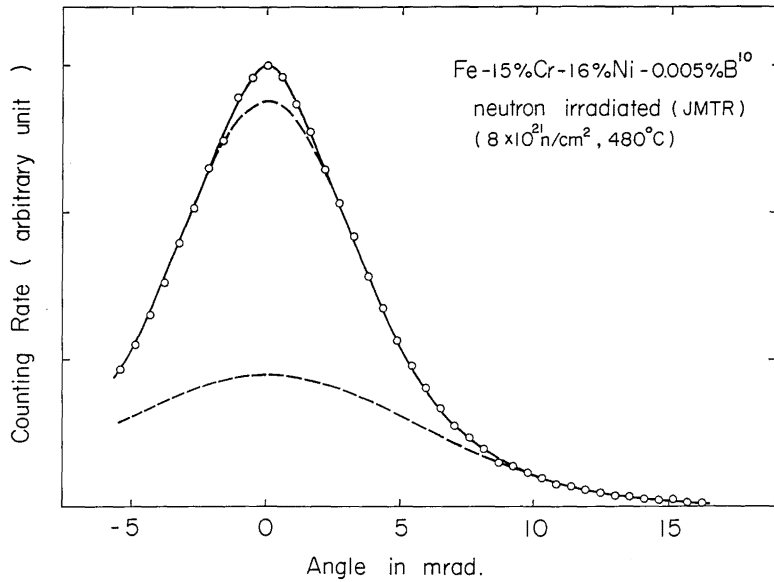


図 11 中性子照射 (JMTR, 8×10^{21} n/cm², 480°C) された Fe-15%Cr-16%Ni-0.005% B¹⁰ の陽電子消滅角相関曲線

F11F12

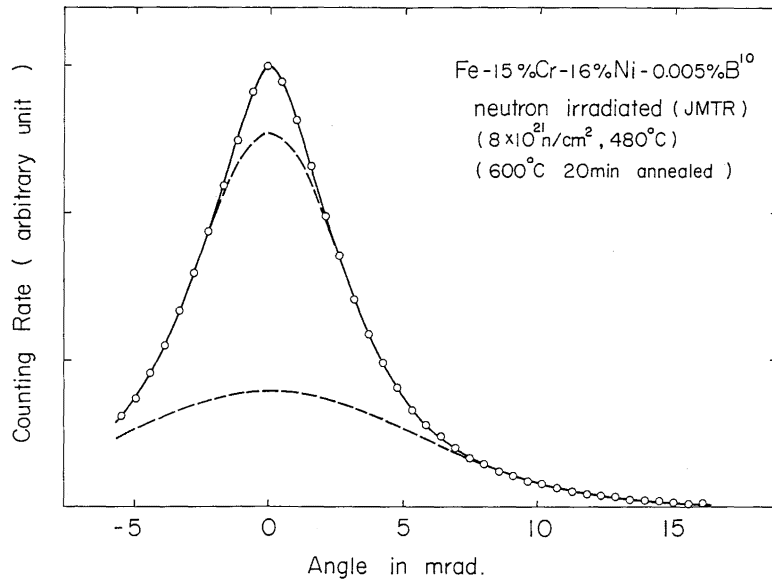


図 12 中性子照射 (JMTR, 8×10^{21} n/cm², 480°C) された Fe-15%Cr-16%Ni-0.005% B¹⁰ を 600°C, 20 分焼鈍した後の陽電子消滅角相関曲線

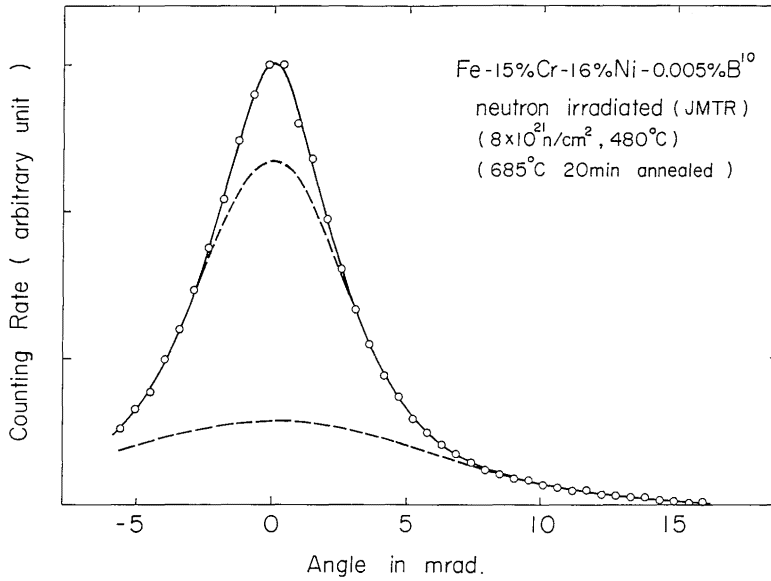


図 13 中性子照射 (JMTR, $8 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$, 480°C) された Fe-15% Cr-16% Ni-0.005% B¹⁰ を 685°C , 20 分焼鈍した後の陽電子消滅角相関曲線

F13F14

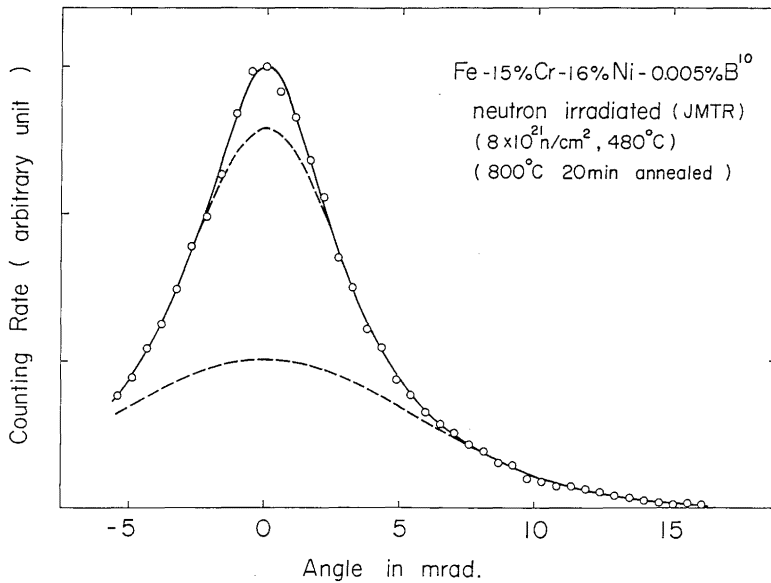


図 14 中性子照射 (JMTR, $8 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$, 480°C) された Fe-15% Cr-16% Ni-0.005% B¹⁰ を 800°C , 20 分焼鈍した後の陽電子消滅角相関曲線

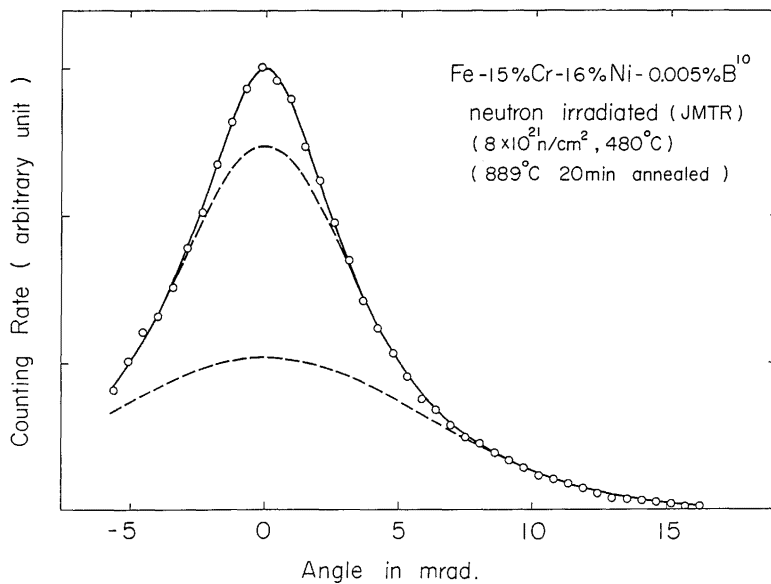


図 15 中性子照射 (JMTR, 8×10^{21} n/cm², 480°C) された Fe-15% Cr-16% Ni-0.005% B¹⁰ を 889°C, 20 分焼鈍した後の陽電子消滅角相関曲線

F15F16

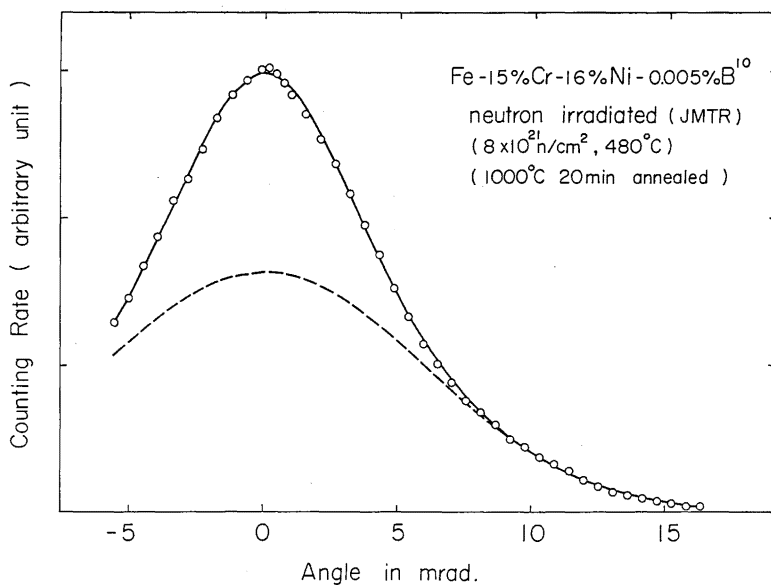


図 16 中性子照射 (JMTR, 8×10^{21} n/cm², 480°C) された Fe-15% Cr-16% Ni-0.005% B¹⁰ を 1,000°C, 20 分焼鈍した後の陽電子消滅角相関曲線

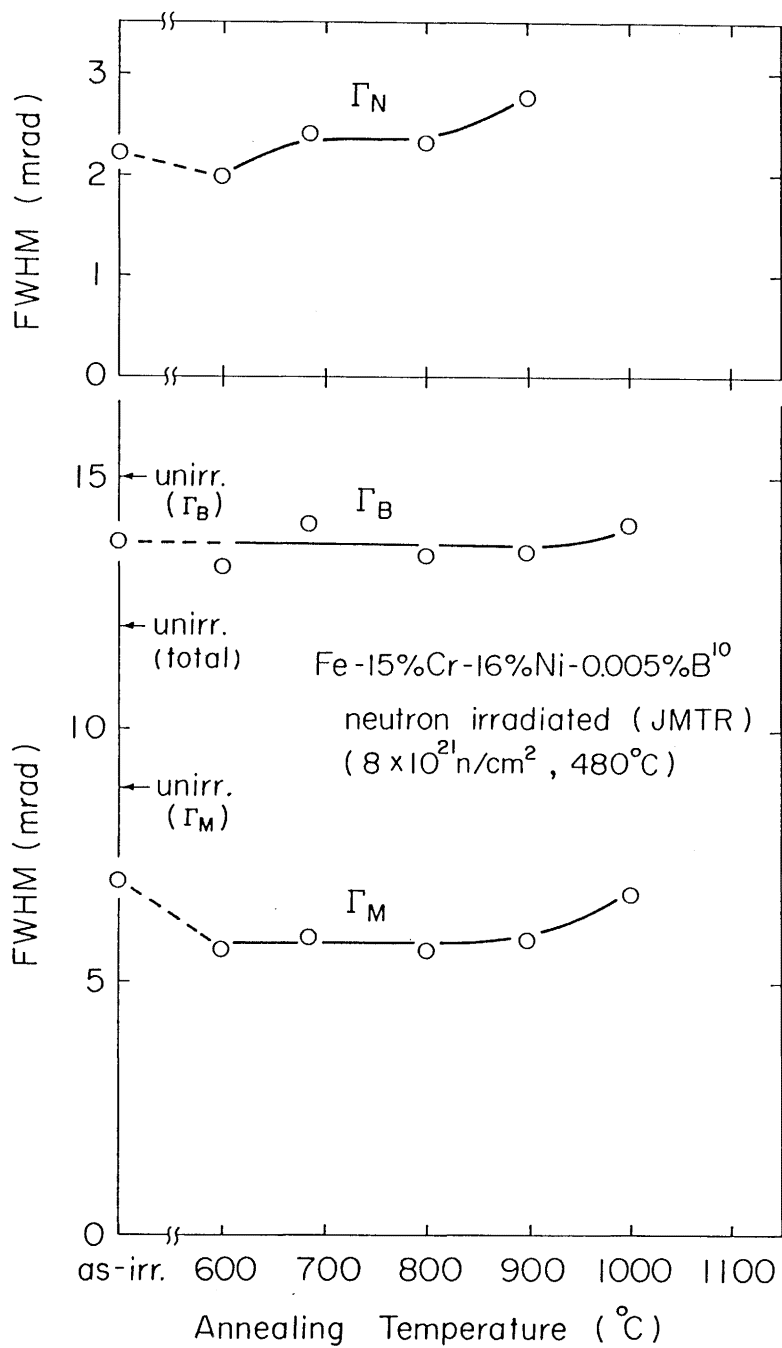


図 17 中性子照射 (JMTR, 8×10^{21} n/cm², 480°C) された Fe-15%Cr-16%Ni-0.005%B¹⁰ の等時焼鈍回復過程における半値幅 (3 成分に分解された各々について) の変化

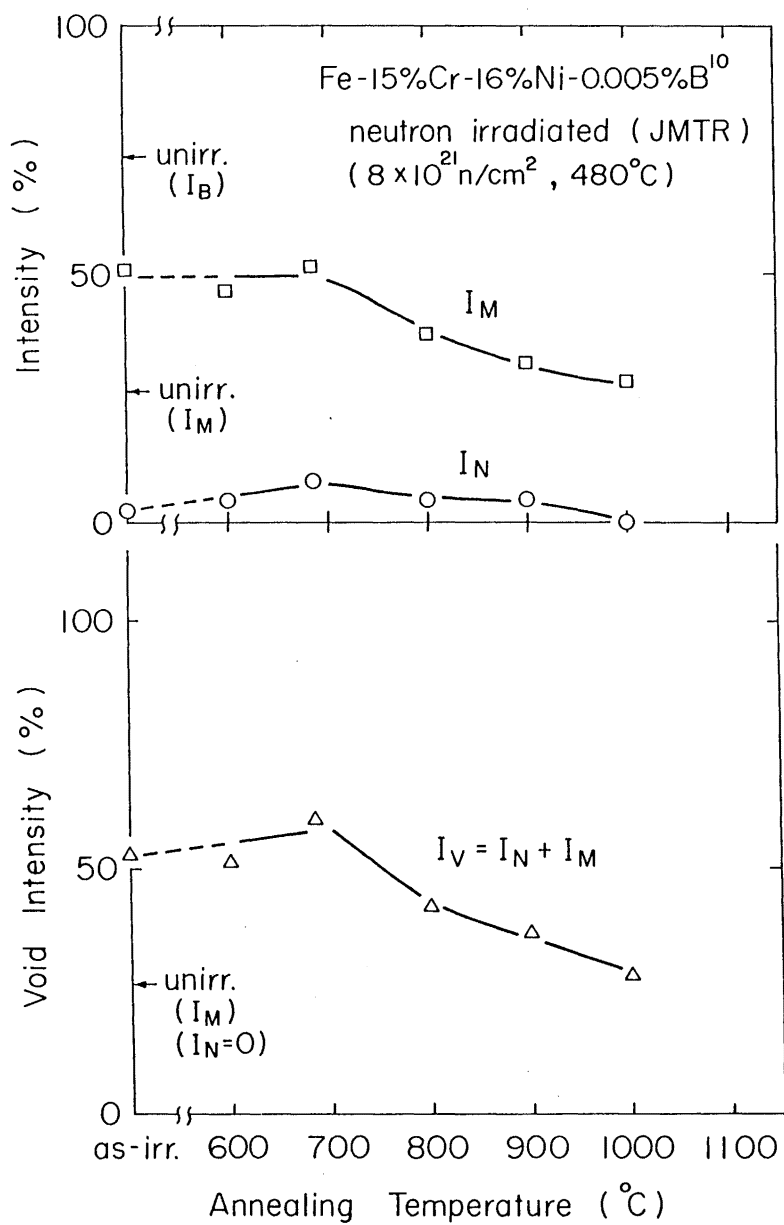


図 18 中性子照射 (JMTR, 8×10^{21} n/cm², 480°C) された Fe-15%Cr-16%Ni-0.005%B¹⁰ の等時焼鈍回復過程における強度 (3 成分のうちの narrow component, medium component について) の変化

考えられる。B¹⁰(n, α)Li⁷ の核反応によって生成するヘリウム量は 250 appm である。しかしこの他に Ni⁵⁸(n, γ)Ni⁵⁹(n, α)Fe⁵⁶ の二段反応を経て熱中性子照射によって発生するヘリウムもあり両方の試料中に約 180 appm 存在する。(He(atom/g of nickel)= $9.8 \times 10^{-19}(\phi t)^{1.68}$ 式⁵⁾を用い熱中性子束 ϕ を高速中性子の 1.5 倍とした⁶⁾。したがって B¹⁰ を含まない試料でもかなりの量のヘリウム発生が生じている。違いは B¹⁰(n, α)Li⁷ 反応から発生するヘリウムは照射のごく初期(〜1/8 dpa)に集中的に発生する(B¹⁰(n, α)Li⁷ の核反応断面積を約 4,000 barn として)のに対して Ni 二段反応から発生するヘリウムは照射と共に次第に増加して来る点である。いずれにしてもヘリウムが I_N に寄与すると考えると B¹⁰ の有無にかかわらず寄与していることになる。

さらに考慮しなければならないことは I_N 成分の幅 Γ_N が 2〜3 mrad と比較的広いことである。以前報告した Nb²⁾, V³⁾ の場合には 1 mrad 前後のものが多かった。広い原因としては P_s は形成された直後に

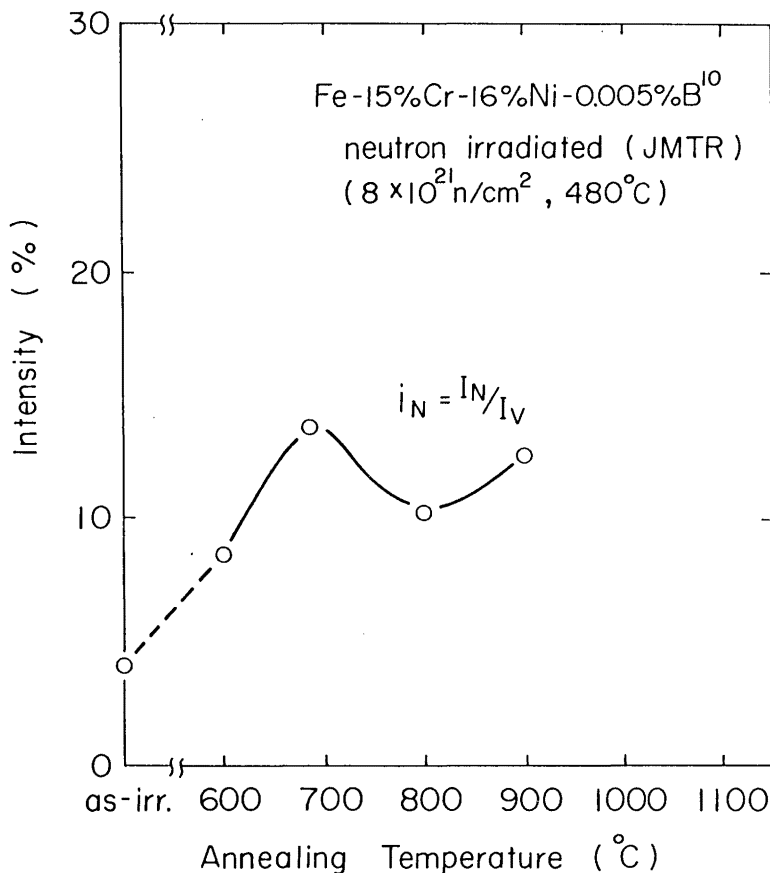


図 19 中性子照射 (JMTR, 8×10^{21} n/cm², 480°C) された Fe-15%Cr-16%Ni-0.005%B¹⁰ の等時焼鈍回復過程における $i_N = I_N / I_V$ (I_N ; narrow component, I_V ; void component) の変化

まだ運動エネルギーを持っておりそのエネルギーを壁との衝突で十分に失う前に消滅してしまったということが考えられる。これは P_s 形成の機構に係ることといわゆる P_s に対する仕事関数 ϕ_{P_s} の計算値として報告されているものはすべて負である⁷⁾。従って運動エネルギーを有していることになる。Nb, V の場合にはなぜこれが問題にならなかったのか、あるいは表面に偏析していた酸素が特別に P_s の運動エネルギーを失うことに有効であったのかについては今後検討を要する。式で表現すると

$$\phi_{P_s} = \phi_+ + \phi_- - 6.8(\text{eV}) \quad (1)$$

が P_s に対する仕事関数である。これは陽電子が P_s となって表面から脱出する場合である。 ϕ_+ , ϕ_- は夫々陽電子, 電子に対する仕事関数, 6.8 eV は陽電子, 電子の結合エネルギーである。上述の如く ϕ_{P_s} は通常負である。この他に陽電子が表面の dipole potential 特に電子の浸み出しによる負 potential にトラップされることに注目した

$$E_a = E_{B+} + \phi_- - 6.8(\text{eV}) \quad (2)$$

の式を用いて考える場合もある。ここに E_{B+} は陽電子の表面におけるトラップエネルギーである。 $\phi_- \sim 5 \text{ eV}$ の程度であることが多く $\phi_+ \sim 0 \text{ eV}$, $E_{B+} \sim 2 \text{ eV}$ 程度であることが多い。従って ϕ_{B_s} は負になるが E_a は僅かに正になる。 E_a は P_s の活性化エネルギーと呼ばれているがこの過程を経て形成された P_s は運動エネルギーを有しないことになる。この二つの過程のうちどちらが実際に起きているかについては問題を解く重要な鍵になると考えられるので今後データの蓄積および詳細な解析がますます必要である。

参 考 文 献

- 1) R. E. Gold, E. E. Bloom, F. W. Clinard Jr., D. L. Smith, R. D. Stevenson and W. G. Wolfer, Nucl. Tech./Fusion 1 (1981) 169.
- 2) E. Kuramoto, K. Kitajima and M. Hasegawa, Phys. Lett. 86A (1981) 311.
- 3) M. Hasegawa, E. Kuramoto, K. Kitajima, M. Hirabayashi, Y. Ito, T. Takeyama, H. Takahashi and S. Ohnuki, Proc. 6th Int. Conf. Positron Annihilation, Arlington, Texas, (1982) 425.
- 4) N. H. Andersen, M. Eldrup, N. Hansen, D. J. Jensen, T. Leffers, H. Lilholt, O. B. Pedersen and B. N. Singh, Proc. 5th Int. Sym. Metallurgy and Materials Science, Roskilde, Denmark, (1984) 333.
- 5) W. N. McElroy and H. Farrar IV, 'Radiation-Induced Voids in Metals', USAEC, (1972) 187.
- 6) JMTR 照射ハンドブック, 日本原子力研究所, (1983) 184.
- 7) 長谷川雅幸, '現代化学', 1982 年 3 月, 54.

(昭和 62 年 6 月 3 日 受理)