

核融合炉候補材ステンレス鋼(JPCA2)の重水素イオン 照射損傷と重水素捕捉機構

芦塚, 紀尋
九州大学大学院総合理工学研究科

藤原, 正
九州大学応用力学研究所 : 文部技官

栗田, 孝昭
九州大学大学院総合理工学研究科 : 修士課程

室賀, 健夫
九州大学応用力学研究所 : 助教授

他

<https://doi.org/10.15017/4743834>

出版情報 : 応用力学研究所所報. 65, pp.447-462, 1987-12. 九州大学応用力学研究所
バージョン :
権利関係 :



核融合炉候補材ステンレス鋼 (JPCA2) の 重水素イオン照射損傷と重水素捕捉機構

芦 塚 紀 尋* 藤 原 正†
栗 田 孝 昭‡ 室 賀 健 夫§
吉 田 直 亮||

概 要

0.5~5 keV の重水素イオンを照射した核融合炉候補材料 JPCA2 の損傷組織の透過電子顕微鏡観察及び昇温脱離実験を行い、照射材における重水素の挙動と重水素を捕捉する照射欠陥の実体について研究した。その結果、重水素は照射により導入された点欠陥や転位ループに捕捉されるのみならず、それ自身の集合体を形成した材料中に蓄積されることが明らかとなった。

Key words: deuterium ion irradiation, deuterium desorption, deuterium trapping, hydrogen recycling, deuterium cluster

1. 序 論

核融合炉における水素同位体の挙動はリサイクリングやインベントリーなど炉心プラズマの制御や安全性の問題に加え、第一壁表面の損耗や、照射による炉材の劣化などとも密接に関係することから活発な研究が進められている。

プラズマから漏洩した水素同位体粒子は第一壁を直撃し、一部は表面で反射されるものの多量の水素同位体が壁材内に侵入し、同時に多量の格子欠陥が作られる。壁材内での水素同位体の挙動については、主として小型イオン注入装置を用いたいわゆるシミュレーション照射による研究が行われている。Besenbacher ら¹⁾ は、あらかじめ種々の高エネルギーイオンを照射したニッケルに水素イオンを注入すると水素の吸蔵量が増加することを報告している。このことは照射によって形成された格子欠陥が水素を捕捉し、リサイクリングやインベントリーに大きな影響を与える事を直接示すもので極めて興味深い。

* 九州大学大学院総合理工学研究科 (現日立電線株式会社電線研究所)

† 文部技官, 九州大学応用力学研究所

‡ 九州大学大学院総合理工学研究科修士課程

§ 九州大学助教授, 応用力学研究所

|| 九州大学教授, 応用力学研究所

一方、Wilson ら²⁾ は 1 keV の重水素を照射した 316 ステンレス鋼からの重水素の熱放出量を測定し、少なくとも 90°C 及び 160°C 付近に放出ピークを持つ 2 つの放出過程が存在し、前者は何らかの照射欠陥からの脱離、後者は格子間水素の熱放出であると報告している。この実験では、放出量は少ないもののさらに高温側でも放出が起こることを示している。この他多くの関連する研究が行われ、注入水素同位体の挙動は照射により導入された欠陥に強く影響されることが知られるようになったが、従来広く用いられてきた昇温脱離法や水素分析法では欠陥に関する情報が得られ難く、トラップとなる欠陥の構造や量などその実体については十分解明されていないのが現状である。核融合炉における水素の挙動をその原理から理解し、水素による諸問題を解決するには、今後はトラップとなる欠陥について十分理解を深めることが肝要である。

著者ら^{3,4)} は水素イオン照射したモリグデンの損傷組織の照射量依存性、イオンエネルギー依存性や熱回復過程を透過電子顕微鏡を用いて詳細に調べ、原子空孔、格子間原子型転位ループ及び板状水素集合体が水素の捕捉に関与していることを明らかにし、電子顕微鏡法は水素についての直接的な情報を得ることは難しいものの、照射欠陥との関連を調べる上で極めて有用な実験手法であることを示した。

従って我々は、水素の挙動を知る上で有効な昇温脱離実験と照射欠陥の検出に効果的な透過電子顕微鏡観察を相補的に組み合わせることにより、従来ほとんど研究の及んでいなかった水素を捕捉する照射欠陥の実体を明らかにすることを第一の目的として本研究を行った。

2. 実験方法

2.1 試料

核融合炉第一壁候補材料として開発された改良 316 ステンレス鋼、JPCA2⁵⁾ を試料として用いた。表 1 にその化学組成を示す。

厚さ 2 mm の板材を 0.1 mm 厚に圧延の後、10×45 mm² 及び 3 mmφ の大きさに切り出し、各々、昇温脱離実験用及び電顕観察用の試料とした。電解研磨を施し表面不純物を除去した後、10⁻⁴ Pa の真空中で 1,050°C、30 分間の溶体化処理を行い、急冷した。電顕用試料はジェット研磨法で薄膜化した後、照射実験に供した。一方、昇温脱離実験用試料も溶体化処理後再度電解研磨し、表面偏析層を除去した後照射を行った。

重水素捕捉に対する転位の効果を調べるために 50%加工材とそれを 400°C で 1 時間焼鈍した試料を作製した。又、前照射の効果を調べるために室温において 200 keV のアルゴンイオンを 2.7×10¹⁹ ions/m² 照射した試料を用意した。

表 1 候補材料の化学組成 (重量%)

材 料	Fe	Cr	Ni	Mo	Mn	Si	C	Ti	そ の 他
JPCA 2	残	14	16	2.5	1.5	0.5	0.06	0.25	P : 0.025 B : 0.004 Nb : 0.1
SUS 316	残	16~18	10~14	2.0~3.0	≤2.0	≤1.0	≤0.08	—	P ≤ 0.04

2.2 重水素イオン照射及び昇温脱離実験

図1に照射に用いた装置の概略図を示す。イオンポンプ及びチタンゲッターポンプを並用し 10^{-6} Pa の高真空中に排気した後、高純度重水素ガス (99.999%) を 5×10^{-2} Pa まで導入し、小型イオンガンを用いて、0.5 keV から 5 keV の重水素イオンを室温照射した。

照射後、真空容器を再度 10^{-5} Pa 以下に排気した後、試料を直接通電によって $1,000^{\circ}\text{C}$ まで定速昇温し、放出される重水素ガス量を四重極質量分析計を用いて測定した。

2.3 損傷組織観察

あらかじめ薄膜化した試料を上述の昇温実験とほぼ同様の条件で重水素イオン照射した後、200 kV 透過電子顕微鏡を用いて損傷組織の観察を行った。一部の試料については2軸傾斜加熱試料ホルダーを用

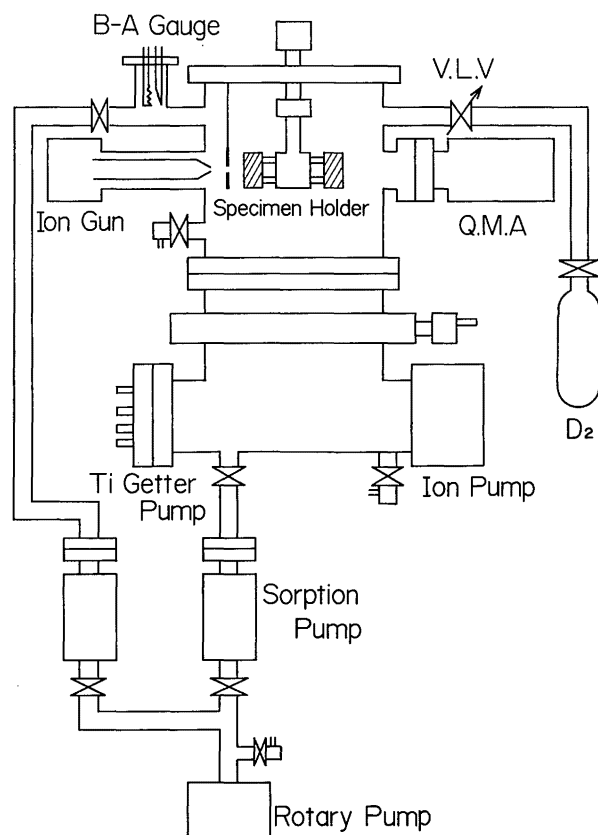


図1 重水素イオン照射装置の概略図。図は電子顕微鏡用試料の照射ホルダーを付けたもので、昇温脱離実験の場合は試料ホルダー部分を付け換える。

いて電顕内で 100°C ステップ、30 分間の等時焼鈍を行い、照射欠陥の回復過程を観察した。

又、重水素イオン照射により発生した欠陥の同定を目的として超高压電子顕微鏡（九州大学超高压電顕室 JEM-1000 型電子顕微鏡）を用いて、1 MeV の電子照射を行い、照射下での欠陥挙動を観察した。

3. 実験結果

3.1 注入重水素の昇温脱離

図 2 は 5 keV の重水素イオンを注入した試料からの重水素ガスの昇温脱離スペクトルを種々の照射量について比較したものである。脱離は段階的に起こり、結合エネルギーの異なる複数の水素捕捉機構が存在することを示している。スペクトルは図中に示したごとく、Wilson ら²⁾ によって報告された 90°C 及び 160°C 付近の大きな放出ピークの他に 220°C、300°C 及び 400°C 付近に中心を持つ少なくとも 5 つのステージに分解することができる。これらの放出ステージを低温側から各々ステージ I、II、III、IV、V と呼ぶことにする。各ステージとも温度範囲が広くお互いに重なり合っているため、個々のステージでの放出量を精度良く求めることは難しいが、過不足の無いように分解したのが図中の点線で示したピークである。これらのピークでの放出量を照射量の関数として図 3 に示した。全放出量は照射量のほぼ 1/2 乗に比例して増加するが、以下に述べる様に各ステージでの放出量は各々独特の照射量依存性を示す。

90°C 近傍に中心を持つステージ I は、低照射領域 ($<10^{21}$ ions/m²) での主要な放出ステージで、放出量は照射量にほとんど依存しない。ただし、照射量が極めて高い所 ($>10^{22}$ ions/m²) では、増加傾向を示す。

160°C 近傍に中心を持つステージ II での放出量は、照射量のほぼ 0.8 乗に比例して増加し、高照射領域ではステージ I を上回り主要な放出ステージとなる。

ステージ III は 10^{21} ions/m² 台で急激に増加するが、照射量が 10^{22} ions/m² に近付くと、飽和する傾向を示す。

300°C 近傍には照射量は少ないながらもステージ IV が見られる。

400°C 近傍に現れるステージ V での放出量は全放出量の 1/10 から 1/20 (照射量に依存) で最も小さい放出ステージであるが、他のステージとの分離が良いため、放出量をかなりの精度で評価することができる。図 3 に示すごとく、放出量は照射量にほぼ正比例して増加する。

上述の 5 つのステージの他にも量的な評価は難しいが、さらに高温でも重水素の放出が測定された。なお、1,000°C 近傍で見られる放出量の増加は非照射試料を加熱した際にも現れることから、加熱試料からの副射熱による試料周辺での吸蔵水素ガスの脱離と考えられる。

図 4 は 0.5 keV、3 keV 及び 5 keV の重水素イオンを 1×10^{21} ions/m² 照射した試料からの熱放出スペクトルを比較したものである。ステージ I での放出量はイオンエネルギーが高いほど大きくなるが、0.5 keV ではほとんど認められない。一方、これとは対照的にステージ II での放出はいづれのエネルギーでも現れ、相対的にむしろ低エネルギー側で顕著である。

各放出ステージでの脱離の活性化エネルギーを求めることを目的として、放出スペクトルの昇温速度

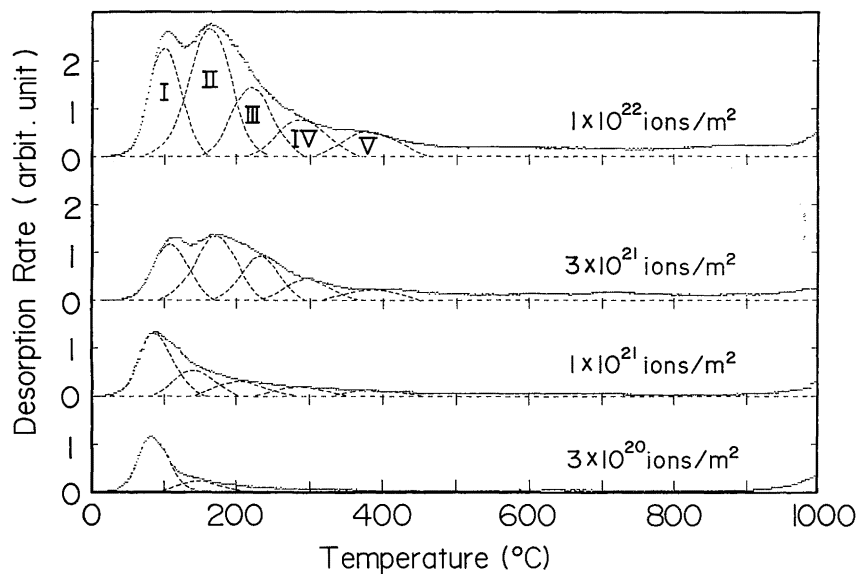


図2 昇温脱離スペクトルの照射量依存性 (イオンエネルギー = 5 keV)

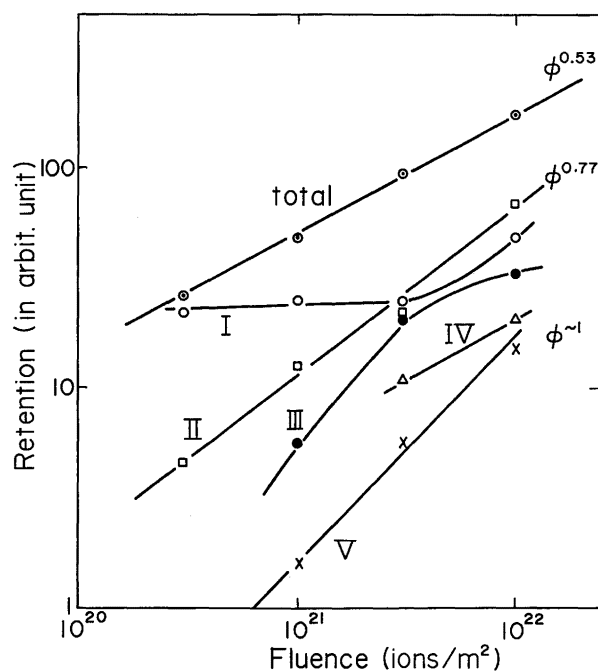


図3 各放出ステージでの放出量の照射量依存性 (イオンエネルギー = 5 keV)

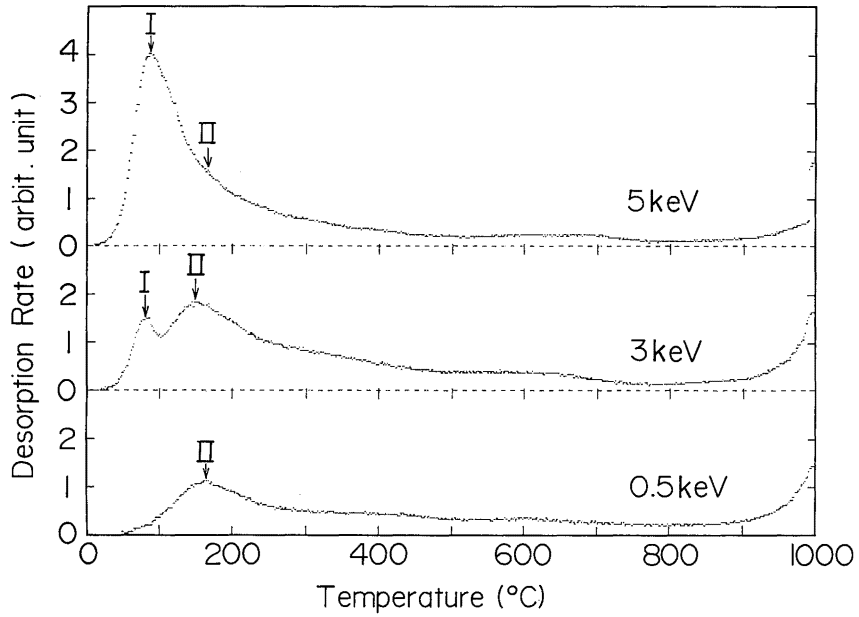


図4 昇温脱離スペクトルのイオンエネルギー依存性 (照射量 = 1×10^{21} ions/m²)

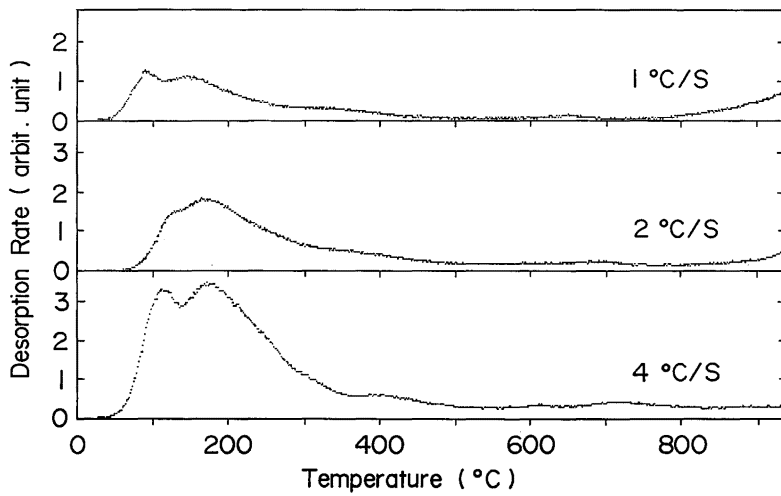


図5 昇温脱離スペクトルの昇温速度依存性 (イオンエネルギー = 5 keV, 照射量 = 3×10^{21} ions/m²)

依存性を調べた。図5は5 keV イオンを 3×10^{21} ions/m² 照射した試料について1°C/s, 2°C/s 及び4°C/s の速度で定速加熱したときの放出スペクトルを示したもので、昇温速度が上がるにつれて各ステージでのピーク温度は高温側へ移動することがわかった。ピーク温度の移動量から求められる活性化エネルギーについては次章で述べる。

本実験では通常照射後約4時間試料を室温に放置し、照射系を再度高真空中に排気した後、昇温脱離実験を行ったが、図6は照射4時間後と48時間後に行った昇温実験でのスペクトルを比較したものである。図から明らかな様に、ステージI, IIでの放出量は放置時間が増すと減少する反面、ステージIII以上の各ステージからの放出量はいずれも増加する。これらの結果はステージI及びIIの欠陥にトラップされた重水素は照射後室温において徐々にそのトラップから脱離し、より強いトラップであるステージIII以上の捕捉サイトに再トラップされて行ったことを示している。

図7は5 keV の重水素イオンを照射した50%加工材からの放出スペクトルを示したものである。溶体化処理材で顕著であったステージI及びステージIIはほとんど現れないのに対し、溶体化処理材では副次的なステージIIIに際立った放出ピークが現れる。加工後400°Cで1時間焼鈍した試料についても同様のステージが現れた。

図8に室温において200 keV のアルゴンイオンを 2.7×10^{19} ions/m² 照射した試料に5 keV の重水素イオンを照射した試料からの昇温脱離スペクトルを示した。スペクトルは加工材と極めて類似しておりステージIIIに大きな放出ピークが現れる。

3.2 損傷組織

あらかじめ電顕観察が可能な厚さ(200 nm 以下)にまで電解研磨した試料を種々の条件で照射し、発生する欠陥組織を透過型電子顕微鏡を用いて観察した。

図9は0.5, 1, 3及び5 keV の重水素イオンを 1×10^{21} ions/m² 照射した際に発生する損傷組織(明視

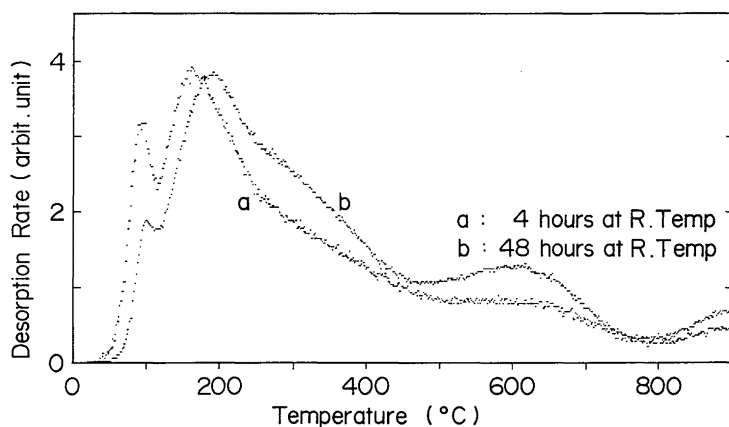


図6 昇温脱離スペクトルに及ぼす室温放置効果 (イオンエネルギー=3 keV, 照射量= 1×10^{21} ions/m²)

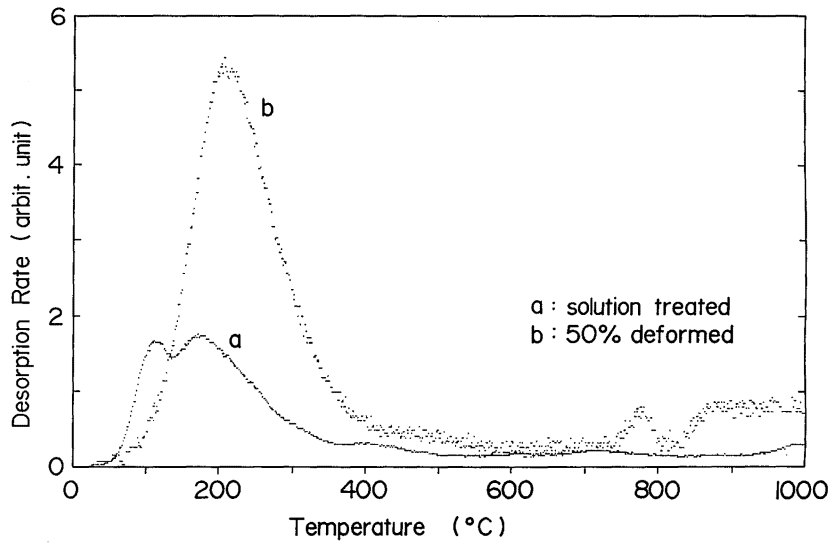


図7 50%加工材及び溶体化処理材における昇温脱離スペクトルの比較 (イオンエネルギー = 5 keV, 照射量 = 3×10^{21} ions/m²)

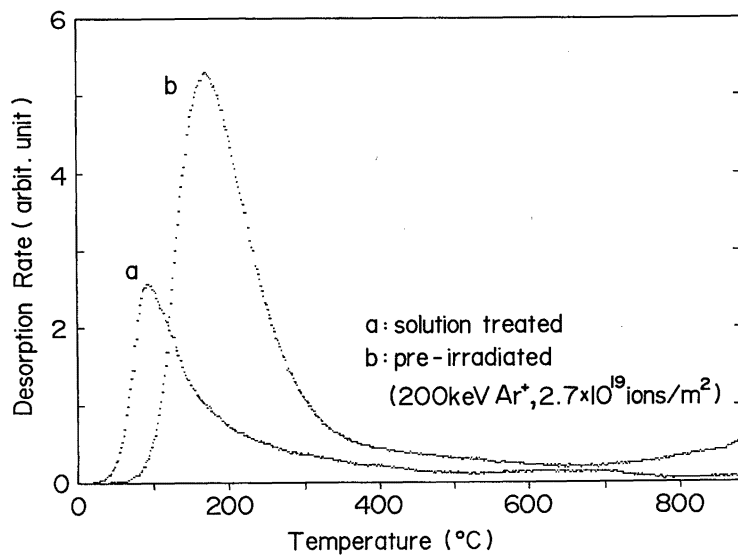


図8 200 keV アルゴンイオンを室温において前照射 (照射量 = 2.7×10^{19} ions/m²) した試料の昇温脱離スペクトル (重水素イオンエネルギー = 5 keV, 照射量 = 1×10^{21} ions/m²)

野像)を比較したものである。0.5 keV では電顕で観察できるような欠陥は極めて少ないのに対してイオンエネルギーが1 keV を越えると、写真にみられる様な黒あるいは白のはっきりしたコントラストを持った直径10~30 nm 程度の比較的大きな欠陥集合体とコントラストの弱い直径数 nm 程度の欠陥集合体が形成される。前者をA型欠陥、後者をB型欠陥と呼ぶことにする。これらの写真はいずれも動力学的条件に近い回折条件 ($s \sim 0$) で撮影した写真であるためA型欠陥ははっきりしたコントラストを示しているが、 s を増加させると急激にコントラストを失う。一方、回折ベクトルを g から $-g$ に反転することによって白黒のコントラストが逆転する。このような特徴を持ったA型欠陥は、著者ら³⁴⁾がすでに報告した水素イオン照射したモリブデン、鉄、タングステンで見られた板状の水素集合体と極めて類似している。

図9の写真(C)は、3 keV 重水素イオンで照射した試料をほぼ $[110]$ 方向から観察したものである。写真中には典型的なA型欠陥の他に $[1\bar{1}2]$ に平行な長さ10~25 nm 程度の針状の像を持った欠陥が観察される。ステレオ観察からこれらの欠陥は一般に板状であり、特に針状の像を持った欠陥は $(1\bar{1}\bar{1})$ 面に乗っているため針状に見えることがわかった。従ってこれらの大型の欠陥は見かけの形状は異なるものの、いずれも同種のものであると考えられる。

図10は5 keV で 1×10^{20} ions/m² 照射した際の損傷組織の明視野像及び暗視野像を比較したものである。明視野像にはA型及びB型の欠陥が観察されるが暗視野像には明視野像には見られない1 nm 程度の極めて微小な欠陥が高密度に形成されているのが観察される。この様な微小欠陥は室温付近で電子や中性子を照射した場合に観察される⁹⁾積層欠陥を持った転位ループや積層欠陥4面体と極めて類似している。

図11はステレオ観察から求めた欠陥集合体 (A 型欠陥及びB型欠陥) の深さ分布ヒストグラム (試料厚さ約100 nm) を TRIM コード⁷⁾ から計算した損傷分布 (DPA, 実線) 及び重水素飛程分布 (APA, 点線) と比較したものである。欠陥分布のピーク (約25 nm) は重水素飛程分布のピーク (24.2 nm) とほぼ一致するが、欠陥集合体は損傷分布や飛程分布より深部にも形成されており、この集合体を形成す

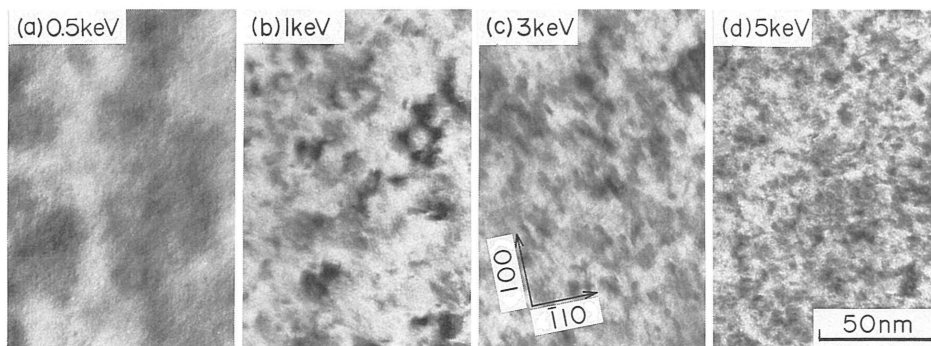


図9 種々のエネルギーの重水素イオンを照射した場合の損傷組織の透過電顕明視野像 (照射量 $= 1 \times 10^{21}$ ions/m²)

る素欠陥は照射を行った室温で十分拡散できることを示している。

これらの欠陥の構造についてさらに検討するため、超高压電子顕微鏡内で電子照射を行い照射下での挙動を調べた。図12はあらかじめ重水素イオン照射した試料を超高压電子顕微鏡を用いて300°Cで電子照射を行った時の損傷組織の変化を示す連続写真である。照射開始直後(21S)の写真には重水素イオン照射した際に発生した欠陥集合体のみが写っているが、照射量が増すにつれてこれらのA型及びB型の先在欠陥のほとんどが縮小する。それと同時にマトリクス中には高密度の格子間原子型の転位ルー

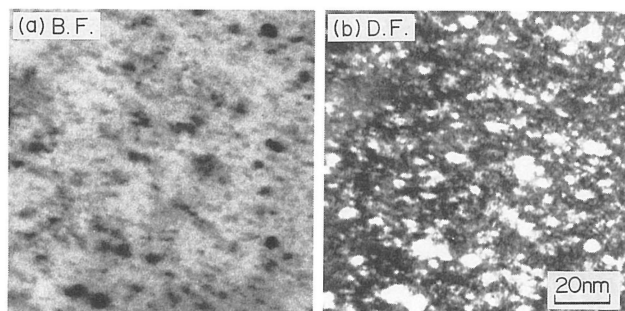


図10 5 keV で 1×10^{20} ions/m² 照射した試料の (a) 明視野像及び (b) 暗視野像

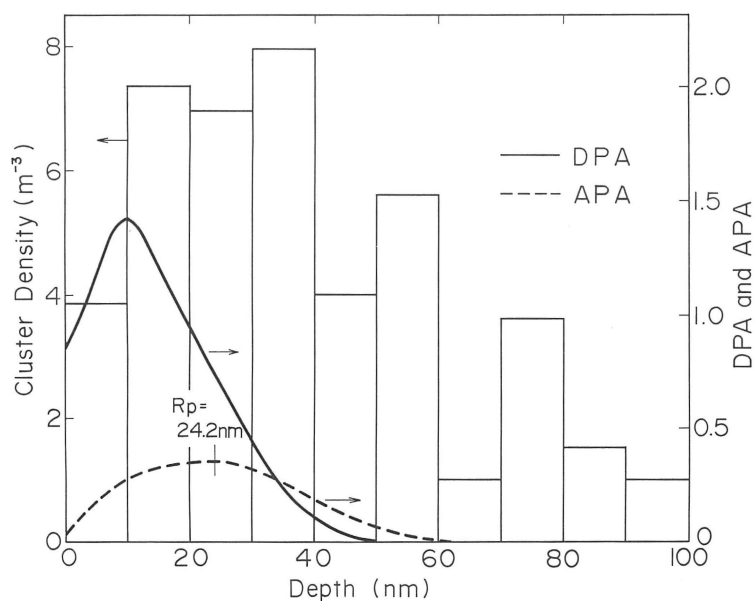


図11 3 keV 重水素イオンを 1×10^{21} ions/m² 照射した際に発生する欠陥の深さ分布と TRIMコードで求めた損傷分布 (DPA) 及び重水素飛程分布 (APA)

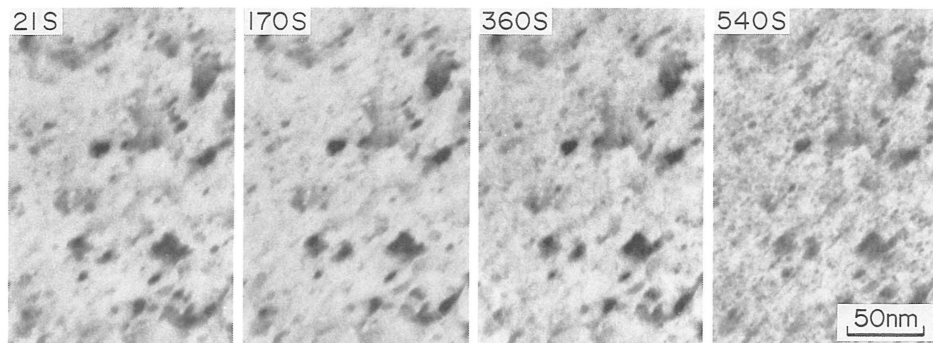


図12 5 keV 重水素イオン照射 (1×10^{20} ions/m²) で発生した欠陥の超高压電子顕微鏡照射下の挙動(電子照射条件 1 MeV, 1.5×10^{23} e⁻/m²s, 室温)

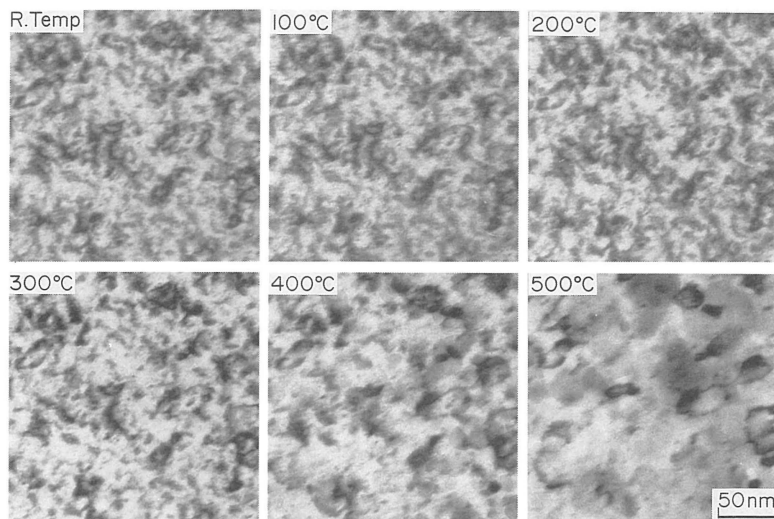


図13 3 keV 重水素イオン照射 (3×10^{20} ions/m²) で発生した欠陥の100°C ステップ30分間の等時焼鈍による回復

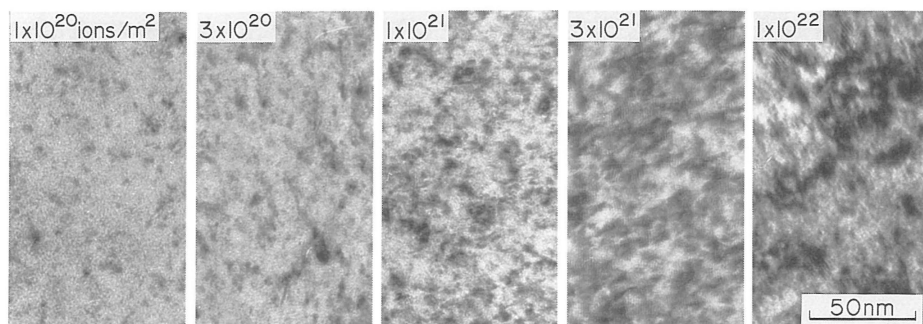


図14 5 keV 重イオン照射による損傷組織の照射量依存性

ブが成長する。この物質では電子照射を行った温度 (300°C) では、格子間原子は十分の移動度を有するが空孔の移動度は無視できるほど低いことが知られており照射下で縮小するA型、B型の欠陥は、少なくとも格子間原子の集合体ではないことは明らかである。

照射欠陥の熱的な安定性を調べることを目的として、電子顕微鏡内での加熱実験を行った。図13は3 keV 重水素イオンで照射 (3×10^{20} ions/m²) した試料を100°C ステップで30分間の焼鈍を行った時の損傷組織の変化を示したものである。室温から200°Cまでは組織に全く変化は見られないが、300°Cまで昇温すると直径数nm以下の微小な欠陥 (B型欠陥) の多くが縮小したりコントラストを失う。さらに400°Cまで昇温すると数10nm以上の集合体 (A型欠陥) にも変化が現れ、形状がなめらかになり縮小する。500°Cまで加熱するとさらに合体や消滅が進み、生き残るのは大きな集合体のみとなる。

図14は5 keV 重水素イオン照射をした場合の損傷組織の照射量依存性を示したものである。照射量が増すにつれて欠陥集合体のサイズ、密度とも増加し、試料表面層にはおびただしい欠陥の蓄積が起こる事を示している。

4. 考 察

前章に述べた様に本実験から核融合炉候補材料 JPCA2 には室温以上に少なくとも5つ以上の重水素放出ステージが存在することが明らかとなった。本章では、昇温脱離実験、電子顕微鏡観察の結果をもとに、これらの熱放出ステージに関与する捕捉サイトの実体について考察する。

4.1 ステージ I

90°C 付近に見られる放出過程をステージ I と名付けたが、同様の放出ステージは JPCA2 と近い合金組成を持つ 316 ステンレス鋼においても既に報告されている²⁾。このステージの大きな特徴はイオンによる原子はじき出し損傷率が低く、しかも欠陥が極く表面に近い領域にのみ発生する 0.5 keV のイオン照射ではほとんど現れず 1 keV 以上ではイオンエネルギーが高い程放出量が増加することである。これらの結果は、ステージ I は照射損傷によって発生した何らかの格子欠陥が関与したものであることを強く示唆している。図3によると 5 keV イオン照射の場合、ステージ I での重水素放出量は実験を行った範囲内 ($3 \times 10^{20} \sim 1 \times 10^{22}$ ions/m²) でほとんど照射量に依存しない。このことは捕捉欠陥の濃度は 3×10^{20} ions/m² の照射量で既に一定値に達していることを意味しており、欠陥を同定する上で1つの手がかりとなる。オーステナイト系ステンレス鋼における格子間原子及び原子空孔の移動の活性化エネルギーはそれぞれ 1.0 eV⁶⁾ 及び 1.4 eV⁸⁾ と報告されている。従ってこれらの1次欠陥は室温で熱移動することは不可能で、形成された欠陥はほとんど消滅することなくそのまま結晶内に蓄積され、構造的な飽和濃度 ($10^{-3} \sim 10^{-2}$ 程度) に達するものと考えられる。さらに照射を続けると、照射励起拡散により転位ループや積層欠陥 4 面体、バブルなどの微小な二次欠陥が徐々に形成することになる。図11の DPA 分布からも算出できるように、損傷領域の一次欠陥濃度は 10^{19} ions/m² の照射で十分飽和値に達することから、ステージ I で放出される重水素はこれらの一次欠陥に捕捉されたものであると考えられる。点欠陥の中でもその原子的な構造から、原子空孔が実際の捕捉サイトになっているものと推論される。

ステージ I が点欠陥からの解離によって起こっているとするなら、試料表面からの重水素の放出速度 K_D は単純に次式で表すことができる。

$$K_D = -dC_T/dt = C_T \nu_0 \exp(-E_D/kT) \quad (1)$$

ここで C_T は欠陥に捕捉された重水素濃度, E_D は解離エネルギー, ν_0 は捕捉された重水素の振動数, T 及び t はそれぞれ温度, 時間を表す。定速加熱の場合, 加熱速度を α とすると $T = at$ となり (1) 式は次式に書き直すことができる。

$$K_D = -dC_T/dT = C_T \nu_0 \exp(-E_D/kT)/\alpha \quad (2)$$

従って, 放出率が最大となる放出ピーク温度を T_P とすれば, $dC_T(T_P)/dT = 0$ の条件から

$$\ln(T_P^2/\alpha) = E_D/kT_P + \ln(E_D/\nu_0 k) \quad (3)$$

の関係が得られる。

図 15 は図 5 より求めたステージ I のピーク温度をもとに $\ln(T_P^2/\alpha)$ を $1/T_P$ に対してプロットしたものである。実験結果は良い直線関係を示し, その傾斜から解離エネルギーとして 0.8 eV が得られた。この値は 316 ステンレス鋼²⁾ や 304LN ステンレス鋼⁹⁾ で報告されている値と実験誤差内で良く一致している。又, 図 6 に見られた室温放置によって起こるステージ I での放出量の減少も十分説明できる値となっている。

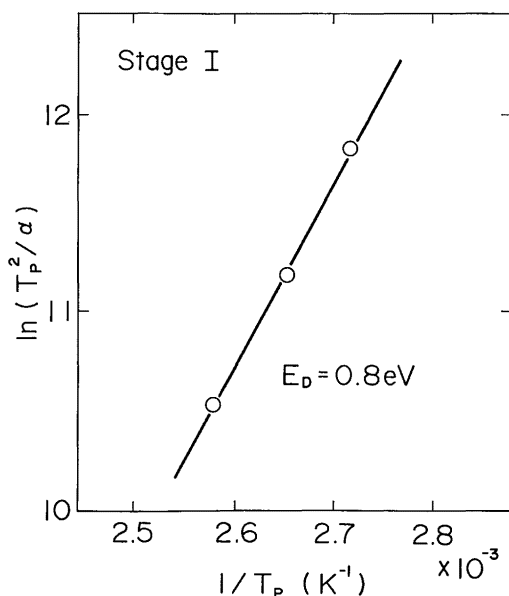


図15 ステージ I のピーク温度 (T_P) を (3) 式の関係でプロットしたもので, 直線の傾きが重水素の捕捉サイトからの脱離エネルギーを示す。

4.2 ステージII

160°C 付近にピークを持つ熱放出過程をステージIIと名付けた。このステージでの熱放出量は欠陥発生量の少ない低イオンエネルギー側でむしろ顕著なことからこのステージでは照射欠陥は関与しておらず不純物や析出物などの先在欠陥に捕捉された重水素が放出されるのではないと思われる。

図6に見られる様に室温に48時間放置することにより、ステージIIでの放出量は著しく減少する。このことはステージIIで起こる放出過程の活性化エネルギーは室温で十分起こりうるほど低いことを示すものである。

4.3 ステージIII

200°C から 220°C 付近に現れる放出過程をステージIIIと名付けた。図7に示した様にこのステージは加工材で顕著に現れることから、加工によって作られる欠陥に捕捉された重水素の熱放出過程と考えられる。加工すると一般には転位とともに原子空孔や格子間原子等の点欠陥が導入される。しかしながら、加工後 400°C で1時間の焼鈍を行い、これらの点欠陥を回復させた試料においても同様の熱放出スペクトルが得られたことから、ステージIIIは転位からの重水素の脱離放出であると考えられる。

溶体化処理材におけるステージIIIはイオンエネルギーが高い程顕著で、照射量が増えるに従って急速に増加する。このことは図10の暗視野像に見られる様な微小な転位ループや積層欠陥4面体と思われる微小欠陥の発生と対応しておりこれらの欠陥の転位部分に捕捉された重水素がこのステージで放出されるものと考えられる。

図8で示した様に 200 keV アルゴンイオンは前照射した試料においてもステージIIIに大きな放出ステージが現れる。Wilson ら²⁾ は 300 keV ヘリウムイオンを前照射した 316 ステンレス鋼においても同様の放出ステージを報告している。これらの現象は、高エネルギー粒子照射ではカスケード損傷によって発生する転位ループや積層欠陥4面体が重水素の主要な捕捉サイトであることを示している。

4.4 ステージIV

300°C 付近に現れる放出過程をステージIVと名付けた。照射直後の放出スペクトルではこのステージはそれほど顕著ではないが、図6に見られた様に室温に放置すると放出量が増加し、その存在が明瞭となる。一方、電頭による回復過程の観察ではステージIVの温度領域でB型欠陥が消滅し、B型欠陥と重水素放出との関連を示唆している。この欠陥は図12で示した様に照射下で不安定で熱的安定性も低いことから、通常の点欠陥集合体とは考えられない。構造については定かではないが、ある種の重水素集合体と考えられる。

4.5 ステージV

400°C 付近に現れる放出過程をステージVとした。放出量は多くはないが図3に見られた様に、照射量にほぼ比例して増加しており照射量の高いところで重要性を増してくる。一方、図13に見られる様にこ

のステージの温度領域でA型欠陥の縮小が起こる。これらの結果から、ステージⅤはA型欠陥の分解に伴う重水素の放出であると考えられる。

A型欠陥は前章で述べたごとく照射欠陥としては極めて特異な性質を有しており、従来から知られている欠陥集合体とは異なる新しいタイプの欠陥であると考えられる。本研究で明らかになった点を列挙すると、

- (1) {111} 面上の板状集合体
- (2) 母結晶に与える歪みは小さく、欠陥像は主として格子面のシフトによると思われる位相コントラストを示す。
- (3) 400°C以上の温度で熱的に分解し、その際重水素を放出する。
- (4) 電子線照射 (300°C) によって分解する。
- (5) 低エネルギー (0.5 keV) 重水素照射では形成されにくい。

これらの特徴から、このA型欠陥は{111}面上に析出した重水素集合体であり、損傷率の低い場合には形成されにくいことから、その発生には高密度の欠陥が深く関与していると考えられる。

既に触れたように、この種の欠陥は水素イオンを照射したモリブデンやタングステン、鉄にも観察されており、keV領域の水素同位体イオンで照射した金属や合金に形成される一般的な照射欠陥であると言える。

4.6 高温ステージ

本研究で行った昇温脱離実験では、さらに高温においても放出ピークが現れる場合もあった。しかしながらこれらのステージでの放出量は少なく、又、高温になるほど加熱試料からの副射熱による周縁部からの吸着ガスの放出も無視できなくなることから、これらのステージについてはこれ以上議論を進められない。

5. ま と め

0.5 keV から 5 keV に加速した重水素イオンを核融合炉候補材料の改良オーステナイト系ステンレス鋼 JPCA2 に室温照射し、重水素ガスの昇温脱離スペクトルの測定及び透過電子顕微鏡による照射欠陥の観察を行い、重水素の熱放出過程及びそれに関与する照射欠陥の実体を調べた。得た結果は以下の通りである。

- (1) 重水素の昇温脱離スペクトルには室温以上に少なくとも 90°C, 160°C, 220°C, 300°C 及び 400°C にピークを持つ放出ステージが存在することが明らかにされ、低温側から各々ステージⅠ, Ⅱ, Ⅲ, Ⅳ, Ⅴと名付けた。
- (2) ステージⅠ (90°C) は照射によって発生した点欠陥 (おそらく空孔) に捕捉された重水素の放出と考えられ、捕捉サイトからの脱離エネルギーは 0.8 eV と評価された。
- (3) ステージⅡ (160°C) はある種の先在欠陥に捕捉された重水素の放出と考えられる。
- (4) ステージⅢ (220°C) は転位や転位ループ、積層欠陥 4 面体の転位部分に捕捉された重水素の放出で、加工材やカスケード損傷の起こる高エネルギーイオン照射材では特に顕著である。

(5) ステージⅣ (300°C) は、微小な重水素集合体の熱分解に伴う放出と考えられる。

(6) ステージⅤ (400°C) では、{111} 面上に発達した比較的大きな重水素集合体が、分解することによって起こる。

謝 辞

北島一徳教授（鹿児島大学工学部）の有益な御助言と激励に感謝いたします。また、電子顕微鏡による加熱実験に御協力頂いた大嶋隆一郎助教授（大阪大学基礎工学部）及び超高圧電子顕微鏡照射でお世話になった九州大学超高圧電子顕微鏡室の方々に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) F. Besenbacher, J. Bottiger, T. Laursen and W. Moller, J. Nucl. Mater. **93 & 94** (1980) 617.
- 2) K. L. Wilson and M. I. Baskes, J. Nucl. Mater. **76 & 77** (1978) 291.
- 3) N. Yoshida, E. Kuramoto and K. Kitajima, Proc. Yamada Conf. **V** on Point Defects and Defect Interactions in Metals, Kyoto (1981) 869.
- 4) 吉田直亮, 荒木邦明, 藤原 正, 宮本好雄, 北島一徳, 九州大学応用力学研究所所報 第 **63** 号 (1987) 231.
- 5) 日本原子力研究所燃料工学部, JAERI-M (1984) 84-189.
- 6) N. Yoshida, H. Murakami and T. Muroga, Proc Intern. Symp. on Behavior of Lattice Imperfections in Materials, Osaka (1985) 225.
- 7) J. P. Biersack and L. G. Haggmark, Nucl. Instruments and Methods **174** (1980) 257.
- 8) E. Kuramoto, N. Tsukuda, Y. Aono, M. Takenaka, Y. Takano H. Yoshida and K. Shiraishi, J. Nucl. Mater. **133 & 134** (1985) 561.
- 9) J. Bohdanský, K. L. Wilson, A. E. Pontau, L. G. Haggmark and M. I. Baskes, J. Nucl. Mater. **93 & 94** (1980) 594.

(昭和 62 年 5 月 30 日 受理)