

原子力関連材料の電子線照射効果に関する基礎研究
(共同研究報告書)

2000年3月

九州大学応用力学研究所
核燃料サイクル開発機構

本資料は、九州大学と核燃料サイクル開発機構との共同研究の成果として、作成されたものです。

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319 - 1184 茨城県那珂郡東海村村松 4 番地 49

核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :

Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute),
九州大学 (Kyushu University)
2000

原子力関連材料の電子線照射効果に関する基礎研究 (共同研究報告書)

蔵元英一、安部博信、大沢一人、竹中稔
平野耕一郎*、長谷川信*

要 旨

本報告書は、九州大学応用力学研究所と核燃料サイクル機構が、「原子力関連材料の電子線照射効果に関する基礎研究」に関して、共同で実施した研究成果をとりまとめたものである。

本研究の目的は、原子炉中性子などの照射環境下で使用される原子力関連材料（鉄銅合金他）の特性変化の基礎過程を明らかにするために、これらの材料に対する電子線照射効果を実験的手法および計算機シミュレーションなどを通してその基礎的側面から解明していくことである。

高純度の鉄中における照射欠陥と銅原子の相互作用に関して、電気抵抗測定、陽電子消滅寿命測定などからそのマイクロ過程に関する情報が得られた。すなわち照射で導入された原子空孔、格子間原子と強い相互作用を有して等時焼鈍回復過程に大きな影響を与えることが判明した。このことは銅原子の照射促進析出に繋がるものとして重要な結果である。

また、種々の欠陥集合体に関する計算機シミュレーションをモデル結晶中で行い、その原子構造、動的挙動、転位との相互作用などに関する情報が得られた。格子間原子の微小集合体はサイズの増大とともに転位ループとしての性質をもち、移動の活性化エネルギーも低いなどの結果が得られた。また、今後の課題も明らかにした。

九州大学応用力学研究所

* 核燃料サイクル開発機構、大洗工学センター、システム技術開発部、
ビーム利用技術開発 Gr.

Fundamental Study of Electron Irradiation Effects on Nuclear Materials

Eiichi Kuramoto, Hironobu Abe, Kazuhito Ohsawa, Minoru Takenaka

Koichiro Hirano* , Makoto Hasegawa*

ABSTRACT

This report describes the result of fundamental study of Electron Irradiation Effects on Nuclear Materials, which was made under the collaboration between PNC and Kyushu University.

The objective of this study is to clarify the fundamental process of the evolution of the damage structure by the electron irradiation in the nuclear materials, such as Fe-Cu alloy and others by means of the experimental methods and computer simulation technique. Furthermore, basic properties of defect clusters which are very responsible for the establishment of damage structure has been widely investigated.

In the low temperature electron irradiated Fe-Cu alloys it was made clear that radiation induced defects strongly interact with Cu atoms, and radiation enhanced precipitation of Cu atoms occurs by means of the positron annihilation lifetime measurement and the electrical resistivity measurement.

In the computer simulation of small interstitial clusters in Fe and Ni the very high mobility of clusters was found and this result supported the production bias concept developed in the recent cascade damage simulation. The interaction between a dislocation and defects, defect clusters was also made clear in atomic level, which contributes to the understanding of the mechanism of radiation hardening.

Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University

* JNC, OEC, System Engineering Technology Division,
Beam Technology Development Group

目次

1. まえがき	1
2. 電子線照射された Fe-Cu 合金の電気抵抗測定、陽電子消滅寿命測定	3
2.1 電気抵抗測定	3
2.2 陽電子消滅寿命測定	6
2.3 陽電子寿命の計算	9
3. Cu 原子の析出による強度変化に関するシミュレーション	10
4. バイアス効果に関する計算機シミュレーション結果と考察	11
4.1 計算方法	13
4.2 転位バイアス	13
4.3 格子間原子集合体の構造と動的挙動	14
4.4 格子間原子集合体（転位ループ）の応力下における挙動	14
5. まとめ	15
引用文献	17

図・表 目 次

- 図 1 高純度 Fe 作製用の高周波加熱浮遊帯熔融精製装置の概略図
- 図 2 低温電子線照射装置（京都大学原子炉実験所電子ライナック、28 MeV、77 K）の概略図
- 図 3 低温電子線照射装置（原研高崎研ダイナミトロン、2.5 MeV、77 K）の概略図
- 図 4 2.5 MeV 電子線照射 ($1 \times 10^{18} \text{ e/cm}^2$, 77K) された Fe, Fe-60wppmCu, Fe-140wppmCu の電気抵抗測定による等時焼鈍回復過程
- 図 5 陽電子消滅寿命測定の概略図
- 図 6 試料および陽電子線源部
- 図 7 陽電子寿命測定回路図
- 図 8 種々の欠陥サイトとくに原子空孔に陽電子が捕獲される様子の概念図
- 図 9 低温陽電子消滅寿命測定装置の概略図
- 図 1 0 最小自乗法による陽電子消滅寿命スペクトルの解析過程の模式図 (convolution process)
- 図 1 1 最小自乗法による陽電子消滅寿命スペクトルの解析過程の基本式
- 図 1 2 実験で得られた寿命スペクトルと解析で得られた曲線のフィッティングの様子 of 1 例
- 図 1 3 電子線照射（京都大学原子炉実験所電子ライナック、28 MeV、77 K）された高純度 Fe の陽電子消滅寿命スペクトルの照射前との比較
- 図 1 4 28 MeV 電子線照射 ($6 \times 10^{18} \text{ e/cm}^2$, 77K) された純 Fe の陽電子消滅寿命測定による等時焼鈍回復過程
- 図 1 5 マイクロボイドの大きさ（原子空孔数）と陽電子寿命の関係の計算結果
- 図 1 6 28 MeV 電子線照射 ($6 \times 10^{18} \text{ e/cm}^2$, 77K) された Fe-200ppmCu の陽電子消滅寿命測定による等時焼鈍回復過程
- 図 1 7 陽電子寿命計算に必要な式（上からシュレーディンガー方程式、クーロンポテンシャル、相関ポテンシャル (correlation potential)、固有値を求める変分法、消滅速度、陽電子寿命である。）
- 図 1 8 純 Fe 中の原子空孔周辺の原子配置とそこに捕獲された陽電子の波動関数

- 図 1 9 Fe-Cu 中の Cu に捕獲された原子空孔周辺の原子配置とそこに捕獲された陽電子の波動関数
- 図 2 0 Fe-Cu 合金のビッカース硬度の実験結果
- 図 2 1 Fe-Cu モデル合金結晶中のらせん転位と Cu 原子の応力下での相互作用の様子
- 図 2 2 Fe-Cu モデル合金結晶中のらせん転位の芯構造と応力下でのすべり運動
- 図 2 3 Fe モデル結晶中の刃状転位と格子間原子（クラウディオ）との相互作用の等高線 ($kT=0.067\text{eV}$, $T=500^\circ\text{C}$) の計算結果
- 図 2 4 Fe モデル結晶中の刃状転位と原子空孔との相互作用の等高線 ($kT=0.067\text{eV}$, $T=500^\circ\text{C}$) の計算結果
- 図 2 5 Fe モデル結晶中の $a/2\langle 111 \rangle$ 完全転位ループ I_{19} (上面図 (左) と側面図 (右))
- 図 2 6 Fe モデル結晶中の $a/2\langle 111 \rangle$ 完全転位ループ I_{61} の六角形の6つの転位セグメント1つについてのバーガスベクトルの分布
- 図 2 7 Fe モデル結晶中の $a/2\langle 111 \rangle$ 完全転位ループに負荷する軸対象 (6回対称) 剪断応力
- 図 2 8 Fe モデル結晶中の $a/2\langle 111 \rangle$ 完全転位ループのパイエルス応力のループサイズ依存性
- 図 2 9 応力 距離関係 (force - distance curve) から転位ループの運動の活性化エネルギーを求める方法の模式図
- 図 3 0 モデル Fe 結晶中の転位ループの活性化エネルギーの値のサイズ依存性の計算結果

表 1 Fe 中における種々の合金元素のサイズ因子

表 2 Fe および Fe-Cu 中の Cu 原子に捕獲された原子空孔に捕獲された陽電子の寿命の計算結果と実験との比較

1. まえがき

我国が21世紀においても世界の先進国として科学技術の面のみならずさまざまな分野で国際貢献を果たして行くには、安定したエネルギー需給が確保されていなければならない。原子力エネルギーは将来に亘ってもさらにその重要性は増大していくと考えられる。様々の原子力材料の照射効果の研究は歴史は長いがその複雑性、多様性に対してこれまで得られている結果は必ずしも十分な理解に達したとは言えない現状である。

照射による材料の特性変化の研究には原子レベルの詳細な理解が不可欠であるとの認識は次第に強まってきている。最近の大型計算機による照射の基礎過程の計算機シミュレーションの進歩は、照射効果の研究に対して新局面を生み出している。すなわちこれまでに定性的に得られていたカスケード形成に関する描像をより具体的な形で可視化することが可能になってきた点は注目に値する。これが契機となって照射硬化などに関するこれまでの既成概念がかなり大きな影響を受けることになってきた。

とくに格子間原子の集合体がカスケード形成時にすでに形成されて周囲に放出されているとの計算結果は、照射硬化に関する様相をかなり大きく変えるだけのインパクトを有している。従来、欠陥集合体は単一体に比して移動エネルギーは増加する、すなわち動きにくくなるのは当然であるとの暗黙の理解の上に立って照射効果全体が理解されてきたが、格子間原子に関してはこのことが必ずしも正しくないとの新しい事実を認めざるを得ない状況になってきた。さらに格子間原子（クラウディオ）の集合体はその大きさの増大とともに完全転位ループへと移行し、極限において直線状刃状転位となることへの再確認を迫られる結果となったことは、点欠陥と転位という一見相容れない2種類の異種構造をもつ結晶内欠陥が連続的につながっているという新しい認識へと導くものである。このことは点欠陥の移動エネルギーと転位のパイエルズポテンシャルが全く別ものではないことを示唆するものであり、格子欠陥の学問の進歩に対して新たな局面を切り開くものである。

本研究でもこのような最近の欠陥、欠陥集合体に対する研究の進歩に対応して計算機シミュレーションを進めていき、照射効果の基礎的理解に寄与する結果を得ることを一つの目的としている。

原子レベルのミクロな側面の理解における進歩とマクロな材料特性変化を結びつける試みが非常に重要になってくるが、最近の研究から得られている原子

レベルの新しい描像は、ボイドスエリングや照射硬化などに対してもこれまでとは異なった見方を与えている。すなわちボイドスエリングにおける生成パイアス、照射硬化におけるカスケード起因転位源硬化などこれまでとは異なった考えが提案されている。これらの新しい考えに対する基礎的側面からの情報を得ることも本研究の一つの目的であり、マクロな材料特性変化の解釈、ひいては原子炉材料開発に寄与していくことを試みている。

具体的な材料としては最近広く研究されている Fe-Cu 合金の問題に対して電子線低温照射を行い、照射欠陥を凍結して導入し、その後の等時焼鈍回復実験により Cu 原子、照射欠陥からなる集合体形成に関して原子レベルの情報を得ることは非常に重要なテーマであり本研究の中でも中心的課題となる。測定手段としては電気抵抗測定、陽電子消滅寿命測定などを用いて行う。後者の陽電子消滅寿命測定は原子空孔などの欠陥に対して非常に敏感であり、近年材料研究の各方面において広く用いられるようになってきた。Cu の照射誘起析出に関する貴重な情報が得られる可能性がある。

以上、実験、計算機シミュレーションの両面から原子炉材料の開発に寄与すべく、照射欠陥、集合体の基礎過程に関する研究を進めることを目的とする。

2. 電子線照射された Fe-Cu 合金の電気抵抗測定、陽電子消滅寿命測定

2. 1 電気抵抗測定

近年、原子炉圧力容器鋼の照射脆化に関して、Cu を中心とする不純物元素が大きな影響を及ぼすことが知られてきた。Cu は鉄中の固溶限が極めて低いために通常の熱処理中でも析出物を形成する傾向が強い。照射欠陥が存在する場合にはその傾向が促進されることは十分に予想される。いずれにしても Cu 元素と照射欠陥との原子レベルでの相互作用を明らかにすることはこの方面の研究の基礎をなすものである。表 1 に種々の合金元素の Fe 中でのサイズ因子を示す。Cu は 17.52% と顕著なオーバーサイズの元素である。このことが固溶限の低いことの重要な一因である。

Cu 元素と照射欠陥との原子レベルでの相互作用を明らかにするには高純度 Fe を作製し、同じく高純度の Cu との微量合金を作製することから始めなければならない。ガス不純物 (C, O, N etc) などが微量に含まれていても相互作用の様相が一変するからである。従ってこれらのガス不純物の量を appm オーダー或いはそれ以下に下げることが必要である。とくに母材である Fe の純度を高めておくことが必要不可欠である。試料の高純度化は格子欠陥の研究全般に関わることであり、長い格子欠陥の研究の歴史の中でこのテーマは常に最重要課題であった。また今後も引き続き多くの努力が払われていくものと思われる。

Fe に関しては 1970 年代後半から国の内外でいくつかの研究グループにおいて進められ飛躍的に高純度化が進んだ。方法としては大別して帯熔融精製法と溶媒抽出法に分けられる。前者は物理的、後者は化学的方法だが、後者は特殊な方法であり粉末で得られるため比較的大きな試料が必要な場合には時間と労力が多大となるので当グループでは前者を採用した。帯熔融精製法も大別して 2 つになる。すなわち超高真空中帯熔融精製法と、高純度水素ガス中帯熔融精製法である。当グループでは後者を採用している。坩堝を使用すると坩堝の壁から不純物が混入するのでロッド状原材料を用いて浮遊式帯熔融精製法を用いてきた。加熱方式は高周波誘導加熱である。Fe のロッド状原材料としては MRC (Material Research Co.) 社製 MARZ 級純 Fe、JM (Johnson & Matthey) 社製 VP 級純 Fe、昭和電工社製アトミロン 5N などを用いてきた。使用する高

純度水素は水素純化装置（400℃加熱 Pd 薄膜透過）を用いて作製した。帯溶融精製法により金属不純物濃度を減少できるが、問題は C, O, N などのガス不純物である。格子欠陥の挙動に対する影響はこのような侵入型の不純物の方が置換型の金属不純物よりも大であることは古くからよく知られている。水素ガス中で溶融することは、水素ガスが溶融金属中に侵入してこれらのガス不純物と結合し、溶融金属外に運び去ることにより純化すると考えられている。しかしこれまでの経験から C を除去するには湿水素（純粋中を通すことにより O を微量含んだ水素）を用いる方が効率がよいことが知られている。水素と C の結合よりも O と C の結合の方が強いためと考えられる。しかし過剰 O が残存してしまうため、その後、乾水素中での帯溶融精製も必ず行うことにしている。実際には湿水素ガス中で数回帯溶融精製し、その後、乾水素中でさらに数回帯溶融精製を行って高純度鉄のロッドを作製している。こうして得られたロッドから圧延過程を経て板状にしているが、その後、高純度水素ガス中で焼鈍を行う。この際も湿水素、乾水素両方を使用している。さらに最終段階で試料中の微量水素ガスを除去するために真空中で焼鈍を行って使用試料としている。高純度の目安として残留抵抗比（磁場下(800 ガウス)）の測定を行う。すなわち室温における電気抵抗と 4.2K における電気抵抗の比を測定する。この値が 3000 を超える場合高純度 Fe という。Fe-Cu 合金を作製するには帯溶融レベリング法により帯溶融精製と同一の装置により Fe と Cu を混ぜ合わせた。用いた Cu は J M社製高純度 Cu (5N) である。圧延その他の処理は純 Fe の場合と同様であるが、Cu は Fe 中の固溶源が極めて小さいので急冷処理を施して固溶を確保している。

欠陥の導入には低温照射が最も理想的である。試料中に一様に導入するためには電子線照射が最適である。本研究においては京都大学原子炉実験所の電子ライナック（28MeV 電子）により 77 K にて照射するとともに、さらにエネルギーの低い原子力研究所高崎研究所の 2 号電子加速器（ダイナミトロン 2.5 MeV）も使用してやはり 77 K にて照射実験を行った。図 2、図 3 にそれぞれの照射装置の概略図を示す。前者の場合はややエネルギーが高いために電子 1 個から形成されるフレンケル対の数は平均 3 個である。後者の場合は 1 個であり、理想的に均一と考えられる。

図4に Fe, Fe-60wppmCu, Fe-140wppmCu の3種類の試料に 2.5 MeV 電子線照射を 77 K にて行った後、4.2 K にて電気抵抗測定を行った結果を示す。室温までの等時焼鈍による電気抵抗の回復曲線の微分曲線が示されている。3種類とも 110 K に顕著な回復ピークを示しているが、これはいわゆるステージ ID であり、格子間原子と原子空孔の長距離の相関再結合による回復と考えられている。このステージは微量の Cu 元素の添加によりあまり影響を受けていないように見える。次に純鉄の 135 K 付近に現れているステージは IE と呼ばれ、格子間原子と原子空孔の長距離の非相関再結合による回復と考えられている。このステージが微量の Cu の添加により大きく影響を受けている。すなわち 135 K から 145 K へと約 10 K ほど上昇している。この原因として格子間原子が Cu 原子に捕獲されることが考えられる。捕獲の結合エネルギーとしては 10 K の上昇からはそれほど大きいとは考えられないが、格子間原子の長距離移動に Cu 原子の存在が影響していることは確かである。一個の格子間原子が Cu 原子に捕獲されている間にもう一個の格子間原子が捕獲されると複格子間原子が生成される。この確率が無視できないことは Fe-Cu 合金のピークが純 Fe のピークより小さいことから容易に推察できる。すなわち合金では原子空孔まで到達できる単一格子間原子の数が純 Fe に比べ減少していることを示している。

純 Fe のステージ III は原子空孔の移動、消滅、集合体形成に対応しており 220-230 K 付近に存在するが、Cu を微量添加した試料では2つに分かれている。低温側にシフトしたものと高温側へシフトしたものの2つである。低温側にシフトする原因は原子空孔のシンクまでの距離が減少したことを示している。シンクは主として格子間原子の集合体と考えられるので Cu の添加によりその数が増加した、すなわち Cu 原子に捕獲された格子間原子を核に微細な格子間原子集合体が多数形成されて移動開始した原子空孔のシンクになっていると考えられる。高温側へのシフトは原子空孔自体が Cu 原子に捕獲されて移動そのものが阻害され、温度の上昇を待つて移動開始、シンクへの消滅が生じた場合に相当すると考えられる。

2. 2 陽電子消滅寿命測定

原子空孔の挙動をさらに明らかにする目的で陽電子消滅寿命測定を行った結果を以下に述べる。陽電子消滅測定は陽電子が固体中の欠陥とくに空孔タイプの欠陥に捕獲されることが知られるようになってから、格子欠陥の研究に非常に大きな役割を果たすようになり今日益々その需要が増大している⁽⁴⁻¹⁰⁾。陽電子は結晶中の電子と対消滅して2本の消滅ガンマ線を放出する。陽電子の生成時にも1本のガンマ線を放出する ^{22}Na のような陽電子線源を用いることにより陽電子の寿命測定が可能になる。この陽電子消滅寿命測定の概略図を図5に、試料、陽電子線源部および寿命測定回路をそれぞれ図6、図7に示す。また、図8に種々の欠陥とくに原子空孔に陽電子が捕獲される様子の概念図を示す。この陽電子寿命は電子密度の反映であり、原子空孔のような低電子密度サイトでは陽電子の寿命はマトリックス中と比べて飛躍的に伸びる。これが陽電子消滅寿命測定を格子欠陥研究の有力な手法とならしめた最大の要因である。原子空孔における寿命とマトリックスにおける寿命の差は物質により異なる。金属の場合は、例えば Fe の場合マトリックスが 105 psec 程度、原子空孔サイトが 175psec 程度であり、その差が 70psec もあるので測定、解析は比較的容易である。しかし Si のような半導体、グラファイトなど本来の結晶が隙間の多い構造を有している場合には、この寿命差は 20 - 30psec と小さい。金属は他の物資に比べて電子密度が高いために陽電子の寿命そのものが短い空孔型の欠陥の検出には好都合な物質といえる。しかし欠陥形態が複雑になるに従って種々の寿命のものが出現し、実験のみでは分離不可能な事態になる。このような場合に対処するために陽電子寿命の計算の技術が最近急速に進歩してきた。現在は詳細な実験、計算が平行して行われる中で陽電子消滅測定法がその役目を果たしている時代である。実験的側面でさらにもう一つ重要なことは、欠陥が非常に動きやすい場合、すなわち室温以下の低温で移動可能な場合には陽電子消滅実験を低温で行う必要があることである。試料、陽電子線源ごと液体窒素中に保持すると必ず液体窒素の寿命も混入してしまうので正しい測定は不可能になる。従って液体の表面直上の窒素ガス中に保持しなければならない。低温照射試料のように温度を一度上げてしまうと欠陥が消失してしまう場合には低温維持に一工夫必要である。低温陽電子寿命測定装置の概略図を図9に示す。

Fe の中に Cu 原子が存在すると照射欠陥とくに原子空孔の挙動がどのように変化するかを陽電子消滅寿命測定法で調べてみた結果について以下に述べる。

次に低温電子線照射した高純度 Fe (残留抵抗比 (磁場下(800 ガウス)) 約 4000) と Fe-Cu 合金の陽電子消滅寿命測定による等時焼鈍回復過程の測定結果について述べる。電子線照射は京都大学原子炉実験所電子ライナック (28MeV, $4 \times 10^{18} \text{e/cm}^2$, 77K) によって行われた。その後昇温することなく陽電子消滅寿命測定装置にセットされた。寿命測定は 100K で行われた。寿命測定装置は通常の fast-slow coincidence circuit である。シンチレータには BaF₂, 光電子増倍管には浜松ホトニクス製 H3378 を用いている。寿命スペクトルの解析には寿命解析プログラム positronfit を用いて 2 成分解析を行った。分解能曲線は Gaussian 2 成分で構成し分解能決定プログラム resolution を用いて決定した。通常半値幅として 210psec 程度が得られている。測定時間は数時間であるが、この間装置全体が完全に安定していることが十分な解析精度を保持する上に最重要条件である。図 1 0, 図 1 1 に最小自乗法による寿命スペクトルの解析過程の模式図 (convolution process) および基本式をそれぞれ示す。また、図 1 2 に実験で得られた寿命スペクトルと解析で得られた曲線のフィッティングの様子の一例を示す。

図 1 3 に電子線照射された高純度 Fe の陽電子消滅寿命スペクトルを照射前と比較して示す。照射により傾斜が緩く、すなわち寿命が長くなっていることが分かる。これは照射により導入された原子空孔に陽電子が捕獲されて消滅しているためであると考えられる。次に等時焼鈍回復実験の結果を図 1 4 に示す。陽電子寿命測定はすべて 100K にて行われた。焼鈍は 20K おきに 20 分間、600K まで行われた。

この図から分かるように高純度 Fe の場合には照射直後は 175psec 程度の寿命 1 成分であるが 200K 付近から 2 成分に分かれる。この 1 成分が原子空孔における陽電子の消滅寿命であることは明らかである。飽和条件 (全陽電子が欠陥サイトに捕獲される) になっていることは原子空孔濃度が 50appm 程度あるいはそれ以上であることを示している。空孔サイトにおける陽電子の寿命計算については下に述べる。200K 付近から 2 成分に分かれるのはこの温度で原子空孔の移動集合が活発になったためと考えられる。空孔集合体の形態が 3 次元の

マイクロボイドであることが長寿命成分を与える理由である。すなわち自由体積が大きくなると陽電子と電子の消滅確率は減少して長寿命を示すことになる。これは体心立方金属の特徴であり、面心立方金属の場合には、積層欠陥四面体のようにつぶれた構造をとることが多く、必ずしも集合体形成が長寿命成分の出現に対応しない。Fe についてマイクロボイドの大きさ（原子空孔数）と陽電子寿命の関係の計算結果を図 15 に示す。焼鈍温度の上昇とともにマイクロボイドのサイズの増大が見られ 400psec を超える値に達する。これは図 15 の計算結果と比較すると空孔 20 個以上からなるマイクロボイドに対応する。結局、純 Fe の場合には過飽和に導入された原子空孔がマイクロボイドという形態で析出し系全体のエネルギーを減少させる過程が等時焼鈍回復過程において実現している。昇温とともにサイズが増大するのは、小さなものから順に不安定になり熱分解して大きなものに付加していくためである。

これに対して Fe-Cu 合金の場合には図 16 に示すように陽電子消滅寿命測定による等時焼鈍回復過程がかなり異なる様子を示す。低温領域において単一原子空孔の寿命が見られているのは純 Fe の場合と同じであるが、原子空孔が移動開始しマイクロボイドを形成する温度が純 Fe の場合よりも高温側にシフトしているのが分かる。これは原子空孔が Cu 原子に捕獲されるためと考えられる。これは上に述べた電気抵抗測定の結果とも一致している。Cu 原子は表 1 から分かるように Fe マトリックスに対して 17.52% oversize であり⁽¹¹⁾、原子空孔との結合エネルギーも 0.14eV と推定されている⁽¹²⁾。等時焼鈍回復過程でさらに重要なことは、マイクロボイドの成長が純 Fe のように順調には続かず、高温側で寿命が減少していくことである。この結果は次のように解釈できる。すなわち低温で照射された Fe-Cu 合金中では原子空孔と Cu 原子の両方が過飽和な状態で存在しているため、昇温とともに両方が析出する過程 (co-precipitation process) が起こると考えられる。ここで問題になるのは、Cu 原子は自分自身では移動できないことである。すなわち原子空孔と位置交換することによってのみ移動可能になる。しかしながら実験結果はマイクロボイドの形成を犠牲にしても Cu 原子の析出を優先していることを如実に物語っているのである。その方が系全体のエネルギーの減少には有効であることが真の理由である。高温側での寿命の減少は原子空孔はマイクロボイド形成をせずに Cu 原子の移動を補助することに使用されたことを示している。すなわち原子空孔は Cu 原子の微

細な析出とともに離散的に存在しているものと考えられる。この辺の事情を明らかにするために寿命計算を行う必要がある。

2. 3 陽電子寿命の計算

陽電子は電子と対消滅して2本のガンマ線に変化する。対消滅の確率は陽電子密度と電子密度の積に比例する。この消滅速度の逆数が陽電子の寿命を与える。したがって陽電子寿命の計算は陽電子の存在確率、すなわち波動関数を求めることによって達成される。

はじめに欠陥を含むモデル結晶を十分に緩和して欠陥周辺の原子配置を決定する。この原子配置に対して、陽電子の波動関数をシュレーディンガー方程式を変分法の原理の下で数値的に解くことによって求める。この際、陽電子の感じるポテンシャルが問題であるが、クーロンポテンシャルと相関ポテンシャルからなる。陽電子は試料中で常に一個であるから交換ポテンシャルは存在しない。相関ポテンシャルの表現が問題であるが、局所密度汎関数法 (local density approximation: LDA) に基づく表現 (Boronsky & Nieminen) を用いる^(4,13)。必要な式をまとめて図17に示す。上からシュレーディンガー方程式、クーロンポテンシャル、相関ポテンシャル (correlation potential)、固有値を求める変分法、消滅速度、陽電子寿命である^(14,15)。

第一のステップである格子緩和では N-body potential を用いている。Fe の場合 Finnis-Sinclair potential を用いて十分大きなモデル結晶中で静的方法で計算した⁽¹⁶⁾。Fe-Cu 合金の場合には Fe-Cu 対の N-body potential を作製しなければならない。これには Fe-Fe potential と Cu-Cu potential⁽¹⁷⁾ を組み合わせて作製した。その際、Cu の Fe 中でのエネルギー、すなわち heat of solution (0.19 eV)⁽¹⁸⁾、Cu の Fe 中でのサイズ、すなわちサイズ因子 (17.5%)、さらに原子空孔との結合エネルギー (0.14 eV) などを fit させることによって作製した⁽¹⁹⁾。

原子空孔に捕獲された陽電子の波動関数を純 Fe の場合と Fe-Cu の場合について図18、図19に示す。原子空孔周辺の原子配置はどちらの場合も内側に落ち込んでいる。Fe-Cu の場合は Cu 原子に捕獲された空孔における陽電子の波動関数である。それぞれに対応する陽電子寿命は表2に示すように 176 psec、168 psec であり、対応する実験値、175 psec、160 psec に近い値である。

3. Cu 原子の析出による強度変化に関するシミュレーション

Fe 中で Cu 原子は *oversize* であるため運動転位に対して障害物になることが考えられる。単一 Cu 原子のみならず Cu 原子の集合体はさらに大きな抵抗力をもつことが予想される。Fe-Cu 合金の降伏強度測定の結果は明らかに合金化による降伏強度の増加、すなわち合金硬化を示している。このことはひいては Cu 原子の照射促進析出による鋼の脆化現象へとつながるものである。図 20 に Fe-Cu 合金のピッカース硬度の実験の一例を示す。Cu 原子の濃度の上昇とともに硬度が増大する傾向が明らかに見られる。

このことをモデル結晶中で再現することを試みた。Fe のような体心立方金属ではらせん転位の運動が変形を律速していることはこれまでの研究で明らかにされている⁽²⁰⁾。図 21 に示すようなモデル Fe 結晶を作製し中心にらせん転位を導入する。この場合らせん転位は弾性論の解により導入された。転位の中心付近に Cu 原子を、運動するらせん転位と相互作用するように配置する。Fe 原子と Cu 原子の間の相互作用は上述のポテンシャルにより与える。らせん転位にすべり運動させるためにモデル結晶に剪断応力を負荷する。実際にはモデル結晶にその応力に相当する剪断歪みを与え、モデル結晶の外側の面の原子はその位置に固定し、モデル結晶全体を十分に緩和する。すなわち固定境界条件を採用した。緩和の方法は静的な方法 (Newton-Raphson 法) で行われた。剪断応力がある値 (剛性率の 0.015) を越すとらせん転位は運動を開始するのが観察された。Cu 原子と相互作用する様子を詳しく調べるのが目的である。

図 21、22 に Fe-Cu モデル合金結晶中のらせん転位と Cu 原子の応力下での相互作用の様子を示す。図 22 からわかるようにらせん転位の構造を Vitek 表示で示すことにする。すなわち $\langle 111 \rangle$ 原子列に平行ならせん転位線の周囲の原子の変位はやはり $\langle 111 \rangle$ 方向で紙面に垂直方向である。したがって隣接する 2 本の $\langle 111 \rangle$ 原子列間の変位の大きさ (完全結晶からのずれ) を矢印にして 2 本の原子列の間に表示する。原子列をむすぶ長さが $b/3$ である。矢が向かっている方の原子列が相対的に手前にずれているという約束になっている。したがって転位芯を囲む任意の閉じた経路に沿って矢印の長さを積分すれば必ず b になるように表示されている。転位芯に最も近い経路は転位芯を囲む正三角形で

あり3本の矢印（隣接原子列を結ぶ長さをもつ）からなっており合計して b である。逆に転位芯を囲まないどんな経路にそって矢印を積分してもその合計はゼロである。

らせん転位芯の安定位置は三角形の一つ置きに存在し剪断応力下で移動開始し Cu 原子と衝突する。この時、相互作用により転位芯は複雑な形態をとることになる。図 2 1 には直線状らせん転位線が上方に移動していく際に Cu 原子と衝突する過程の鳥瞰図を示しているが、結論的には Cu 原子との接触によりその部分の転位線は他の部分と比べて前進が妨げられている。転位芯の現在位置は上述の矢印の囲む範囲の最小の三角形の位置から容易に判定できる。Cu 原子が2個の場合にも転位芯の前進が阻止される傾向はさらに増加する。すなわちらせん転位の運動に対して障害物として働くことが分かる。この障害物作用の基本的な原因は、Cu 原子が Fe マトリックスに対して oversize であるためらせん転位芯の3本の $\langle 111 \rangle$ 原子列の一本に入ると前後の Fe 原子を正規の位置よりも外側にシフトさせる。このことは3本の $\langle 111 \rangle$ 原子列の相対変位を決定している3本の矢印の長さのバランスを変化することになる。したがってらせん転位芯の現在位置の変更につながるのである。このような描像はモデル結晶におけるシミュレーションから始めて明らかになるものであり、従来の弾性論に基づく相互作用の枠内からは得られないものがある。今後さらに有限温度における分子動力的計算へと発展していく必要がある重要な課題である。

4. バイアス効果に関する計算機シミュレーション結果と考察

実際に原子炉等の構造材料が使用されるのは高温重照射環境下である。この際、照射で導入されたフレンケル対、すなわち原子空孔と格子間原子はともに十分高い移動度を有し、もし高い再結合率を持つならば材料の特性変化は合金元素の置換を除きそれほど大きなものではないと考えられる。しかしながら現実はこの状態とはほど遠く原子空孔と格子間原子の再結合率は低く、再結合を免れた原子空孔と格子間原子はそれぞれの集合体を形成する。これが照射による材料の特性変化の最大の要因である。しかしここで問題になるのはそれぞれ

の集合体は核発生、成長という過程をへてその数密度、大きさを獲得することである。そのためには一つの集合体に到達する原子空孔と格子間原子の数が異ならなければ核発生、成長は不可能である。すなわちバイアス因子が有意義な値を持つことが照射効果すべての根幹である⁽²¹⁻³³⁾。

この第一の原因を創り出すのは格子間原子の集合体、すなわち転位ループあるいは転位線であると従来考えられてきた。この理由として、1) 格子間原子は平面状に集合しそのサイズの増大とともに転位線へと変化し、上昇運動を行うことにより完全結晶にもどることが可能である。このことは格子間原子を試料外に放出したことと等価である。2) 一般に金属では格子間原子は原子空孔よりも大きな形成エネルギーを有し平面状集合により完全結晶へ戻すことによる利得は原子空孔の場合より大きい。3) 格子間原子の方が原子空孔よりも緩和体積が大きいために転位ループあるいは転位線との相互作用が大きい。これらの理由により格子間原子が平面状に集合体を形成すること、さらに成長を重ねて転位ネットワークへと成長することがバイアスの根幹であるという考えが生まれ、転位バイアス (dislocation bias) と名付けられた⁽³⁶⁾。その結果としての余剰空孔の集合体としてポイドが形成され、ポイドスエリングという現象となって観測されるというのが伝統的解釈であった。原子空孔は格子間原子のように平面状に並んでどこまでも成長することが不可能である点が格子間原子の場合と決定的に異なる。この理由は平面状集合体として空孔ループあるいは積層欠陥四面体などを形成すると周囲に転位線が存在することになり格子間原子との相互作用が強くなることにある。

このような伝統的転位バイアスの考えは今日でももちろん正しく多くの照射効果の基礎になっていることは疑う余地がない。しかし近年さらに異なる考えが台頭してきたことは事実である。それは中性子照射のようにPKAエネルギーの大きな場合には、フレンケル対が数百個集団的に発生するいわゆるカスケード形成が生じるが、最近の大型高速計算機によるシミュレーションの結果、格子間原子はかなりの割合がこれまで考えられていたように単一格子間原子状ではなくすでに集合体として形成され、しかもその集合体が高い移動度を有しているという驚くべき結果である。さらにこの結果から微小格子間原子が移動してシンクに消失する結果、余剰空孔が残され新しい機構のバイアス因子が発生することである。これは生成バイアス (production bias) と呼ばれている^(34,35)。今日では中性子照射下では上記の2つのバイアス因子が働いていると考えられ

ているが詳しい解析は今後に残された課題である。

このようなバイアス効果に関してその原子的側面を明らかにするために計算機シミュレーションを行った。第一に転位バイアスに関して Fe 中の刃状転位と照射欠陥の相互作用を、また格子間原子集合体の挙動をサイズの関数としてモデル Fe 結晶中で行った。

4. 1 計算方法

十分に大きな Fe モデル結晶を作製し、その中で刃状転位と格子間原子、原子空孔などとの相互作用、格子間原子集合体の構造、動的挙動などを詳細に調べる。これらは転位バイアス、生成バイアスなどの基礎過程を明らかにすることを目的にしている。計算方法は上述の陽電子消滅寿命計算のときに用いた多体ポテンシャルを用い静的な緩和により行われた⁽³⁶⁾。

4. 2 転位バイアス

Fe モデル結晶中に直線状刃状転位を弾性論の解により導入し、その周囲の各格子位置に格子間原子また原子空孔を置き結晶全体を緩和して相互作用エネルギーマップを求めた。すなわち点欠陥の形成エネルギーの位置依存性を求めた。これから転位との相互作用の強い範囲を各欠陥に対して見積もることができる。このことは転位バイアスを評価する際に非常に重要である。図 2 3 に刃状転位と格子間原子（クラウディオン）との相互作用に関する計算結果を示す。クラウディオンの軸方向は転位のバーガスベクトルの方向に平行である。すなわち図 2 3 の横方向である。図 2 3 から分かるように刃状転位の膨張サイド（図で下の方）に相互作用の大きな領域が広がっている。捕獲範囲（capture range）の目安として相互作用エネルギーが $kT (=0.067 \text{ eV}, T = 500^\circ\text{C})$ になる範囲を示す。つぎに図 2 4 に刃状転位と原子空孔に対する同様の計算結果を示す。相互作用エネルギーが格子間原子に比べて非常に弱く捕獲範囲は遥かに小さいことが分かる。このことは転位線に対する吸収能は格子間原子の方が原子空孔よりもずっと大きいことを示しており、転位バイアスの基本過程を支持している。

4. 3 格子間原子集合体の構造と動的挙動

次ぎに格子間原子の集合体をモデル Fe 結晶の中に作製しその構造、動的挙動を調べる。これらは生成バイアスの基礎過程につながるものである。格子間原子の集合体の中で移動可能なものは $\langle 111 \rangle$ クラウディオンの束である。転位ループとみるならば $a/2\langle 111 \rangle$ 完全転位ループである。円に近い形のもは六角形をしたものである。その一例を図 2 5 に示す。六角形の 6 つの各辺（転位セグメント）は $\{110\}$ 面にのっているが、そのうちの一つのセグメントについてバーガスベクトルの分布を調べ図 2 6 に示す。すなわちすべり面上下の $\{110\}$ 面内の対応する原子の相対変位をバーガスベクトル方向 $\langle 111 \rangle$ にプロットしたものである。比較のために直線状刃状転位と I61 の場合を並べてある。前者に比べて後者は曲線のなめらかさが失われている。この原因は個々のクラウディオンの位置が辺の長さ方向に直線状から外れているためである。ループサイズの増大とともに直線状にならび直線状刃状転位に近づいてゆく。バーガスベクトルの分布を調べた意義は転位の中心位置の決定にある。これは以下に述べる応力下の挙動を調べる際に不可欠である。

4. 4 格子間原子集合体（転位ループ）の応力下における挙動

微小な格子間原子集合体（転位ループ）が応力下で容易に移動することが生成バイアス（production bias）の基盤である。したがって、この際の必要応力、エネルギーなどに関する情報を得ることは不可避の課題である。上述のように六角形の転位ループの各辺は刃状転位とみなせるので直線状刃状転位の場合と同様に剪断応力下ですべり運動が可能である。しかし問題は 6 つの転位セグメントが異なるすべり面（ $\{110\}$ 面）に乗っていることである。従って均一なすべり運動を実現するためには図 2 7 に示すように軸対象（6 回対称）に剪断応力を負荷する必要がある。剪断応力を徐々に増加し、転位ループの中心位置が $b/4$ に達する応力を求めて図 2 8 に示す。この応力は転位ループの運動が不安定になるところ、すなわちパイエルス応力に対応する値である。図から分かるようにループサイズの増大とともにこの応力は減少し、直線状刃状転位のパイエルス応力に等しくなる。この結果を説明する要因はいくつか考えられる。その一つは転位芯の歪みの広がりである。ループサイズの増大とともに若干広が

りが大きくなっている。この様子はパイエルス応力の減少を説明できる。

つぎに転位ループの運動の活性化エネルギーを求めることを試みる。そのためにいわゆる force - distance curve を求め、それを積分することから活性化エネルギーを求める方法をとる。この過程を模式的に図 29 に示す。この場合、転位ループがその形を保ったままパーガスベクトル方向 $\langle 111 \rangle$ に移動する際のエネルギーを求めている。実際は有限温度で形の変化を伴いながら熱活性化される可能性がある。したがってここで求めた値は最大値にあたりと考えられる。有限温度の様子は調べるには分子動力学法によらなければならない。直線状転位の場合のキック対形成に対応する過程が転位ループの場合にも存在する可能性は高い。図 30 に活性化エネルギーの値の転位ループのサイズ依存性を示す。単一格子間原子（ダンベル）の移動のエネルギー 0.3 eV から一旦減少してゆるやかに増加していくことが分かる。この増加が転位ループの周囲長の増加に帰するところが大きい。注目すべきは転位ループの活性化エネルギーが 0.2eV 以下と非常に小さい値を示すことである。このことは高温照射環境下ではカスケード形成時に放出された微小格子間原子集合体（転位ループ）は容易に一次元運動を行い転位などのシンクに吸収されることを支持している。すなわち生成バイアス（production bias）の成立要件を保證するものである。

5. まとめ

以上、照射導入欠陥の基本特性、すなわち格子間原子、原子空孔などの挙動を電気抵抗測定、陽電子消滅寿命測定などの実験、陽電子寿命計算などを通して明らかにしてきた。とくに Fe 中の欠陥と Cu 原子の相互作用は圧力容器鋼の脆化現象の基本的要因であり、その原子論的描像を明らかにすることは不可避の課題である。これに答えるべく実験、計算を通して研究を進めてきた。電気抵抗測定からは格子間原子と Cu 原子の相互作用が明らかになり、陽電子消滅寿命測定からは原子空孔と Cu 原子の相互作用に関する情報が得られた。すなわち照射促進析出の基礎要因となることが明らかになった。この研究の基礎を支えたのは Fe-Cu 間のポテンシャルの開発であり、それをもとに陽電子寿命計算、運動転位と Cu 原子の相互作用のシミュレーションなどを行った。運動転位に対する障害物としての働きが原子レベルで明らかになった。

また刃状転位と点欠陥の相互作用から転位バイアスに関する基本情報が得られた。すなわち Fe 中の刃状転位と格子間原子の相互作用は、刃状転位と原子空孔の相互作用よりも遥かに強いことを示した。このことは刃状転位の格子間原子に対する選択吸収性を示すものであり、転位バイアスの基本概念を支持するものである。

さらに Fe 中の格子間原子集合体 (<111>クラウディオンの束、転位ループ)の動的挙動を明らかにするための計算機シミュレーションを行い、生成バイアス (production bias) の成立要件について研究を行った。転位ループを移動させるに必要な応力、転位ループのパイエルス応力はループサイズの増大とともに減少し直線状刃状転位の値に漸近する。活性化エネルギーを求めてみると非常に小さい値であることが判明した。このことは高温照射環境下では容易に一次元運動が可能であることを支持しており生成バイアスの成立要因を満たすと考えられる。

このような Fe, Fe-Cu を中心とする原子力関連材料の基礎をなす物質中での欠陥の原子レベルでの挙動の研究を通して基礎的情報を引き出し、高温照射環境下で使用される現実の材料中の挙動の研究に寄与することが可能になってきた。ミクロな原子レベルから現実のマクロレベルまでの一連の解釈には非常に困難な部分も多い。とくに材料の強度、脆化現象には素過程である転位の運動の蓄積としての複雑な過程が存在しており、今後も相当量の研究が実験、計算両面において必要とされる。

引用文献

- (1) M. Doyama and R. J. Cotterill: Proc. 5th Int. Conf. on Positron Annihilation, ed. by R. R. Hasiguti and K. Fujiwara, (Lake Yamanaka, Jpn. Inst. Met., Sendai, 1979) 89.
- (2) Y. Shirai, K. Matsumoto, G. Kawaguchi and M. Yamaguchi: Mat. Sci. Forum, 105-110 (1992), 1225.
- (3) E. Kuramoto, S. Nagano, K. Nishi, K. Makii, Y. Aono and M. Takenaka: Mat. Sci. Forum, 105-110 (1992), 1125.
- (4) M. J. Puska and R. M. Nieminen: J. Phys. F, 13 (1983), 333.
- (5) F. Hori, M. Takenaka and E. Kuramoto: Scripta Metall. et Mater., 29 (1994), 243.
- (6) F. Hori, Y. Aixin, Y. Aono, M. Takenaka and E. Kuramoto: Mat. Sci. Forum, 175-178 (1995), 379.
- (7) T. Kawaguchi, F. Hori, Y. Kamimura, M. Takenaka, H. Abe and E. Kuramoto: Mat. Sci. Forum, 175-178 (1995), 419.
- (8) Y. Kamimura, T. Tsutsumi and E. Kuramoto: Phys. Rev. B52 (1995) 879.
- (9) E. Kuramoto, H. Abe, M. Takenaka, F. Hori, Y. Kamimura, M. Kimura and K. Ueno: J. Nucl. Mat., 239 (1996) 54.
- (10) P. Hautojarvi, J. Johansson, T. Judin, P. Moser, M. Puska, A. Vehanen and J. Yli-Kaupila: Proc. 5th Int. Conf. on Positron Annihilation, Lake Yamanaka, (1979), 737.
- (11) H. W. King, J. Mat. Sci.: 1 (1966), 79.
- (12) A. Moslang, H. Graf, G. Balzev, E. Recknagel, A. Weidinger, Th. Wichert and R. I. Grynszpan: Phys. Rev. B, 27 (1983), 2674.
- (13) E. Boronski and R. M. Nieminen: Phys. Rev. B, 346 (1986), 3820.
- (14) F. Herman and S. Skillman: Atomic Structure Calculations, (Prentice Hall Eaglewood Cliffs, N.J. 1963).
- (15) G. E. Kimball and G. H. Shortley: Phys. Rev., 45 (1934), 815.
- (16) M. W. Finnis and J. E. Sinclair: Phil. Mag. A, 50 (1984), 45 (erratum: Phil. Mag. A, 53 (1986), 161).
- (17) G. I. Ackland, G. Tichy, V. Vitek and M. W. Finnis: Phil. Mag. A, 56 (1987), 735.

- (18) M. I. Baskes: *Phys. Rev. B*, 46 (1992), 2727.
- (19) F. Hori, Y. Kamimura, T. Tsutsumi and E. Kuramoto: *J. Nucl. Mat.*, 228 (1996) 215.
- (20) E. Kuramoto, F. Hori and T. Tsutsumi: *Strength of Materials*, (1994) 175.
- (21) C. Cawthorne and E. J. Fulton, *Nature*, 216 (1967) 575.
- (22) 蔵元英一、金属学会会報、第 23 卷 (1984) 10.
- (23) L. K. Mansur and W. A. Coghlan, *J. Nucl. Mat.*, 119 (1983) 1.
- (24) W. G. Wolfer, *J. Nucl. Mat.*, 122 & 123 (1984) 367.
- (25) F. A. Garner, *J. Nucl. Mat.*, 133 & 134 (1985) 113.
- (26) R. Bullough, B. L. Eyre and K. Krishan, *Proc. Roy. Soc. London A346* (1975) 81.
- (27) P. T. Heald, *Phil. Mag.* 35 (1975) 551.
- (28) E. Kuramoto, *J. Nucl. Mat.* 179-181 (1991) 1019.
- (29) E. Kuramoto, *J. Nucl. Mat.* 191-194 (1992) 1279.
- (30) E. Kuramoto and T. Tustusmi, *J. Nucl. Mat.* 212-215 (1994) 175.
- (31) W. G. Wolfer, *J. Phys. F: Metal Physics*, 12 (1982) 425.
- (32) J. J. Sniegowski and W. G. Wolfer, *Proc. Top. Conf. Ferritic Alloys for Use in Nuclear Energy Technologies*, Snowbird, Utah, ed. J. W. Davies and D. J. Michel (1983) 579.
- (33) D. S. Gelles and L. E. Thomas, *Proc. Top. Conf. Ferritic Alloys for Use in Nuclear Energy Technologies*, Michel (1983).
- (34) C. H. Woo and B. N. Singh, *Phil. Mag.* A65 (1992) 889.
- (35) T. Diaz de la Rubia and M. W. Guinan, *Phys. Rev. Lett.* 66 (1991) 2766.
- (36) E. Kuramoto, *J. Nucl. Mat.*, 276 (2000) 143.

表1 Fe 中における種々の合金元素のサイズ因子

Atomic size factor
 $= (1/\Omega)(d\Omega/dc)$
 $= (3/a)(da/dc)$

Ω : atomic volume
 c : solute concentration
 a : lattice parameter

鉄中の各種固溶元素の原子寸法因子。 Kingによる。	
Alloy	Size factor(%)
Fe - Au	44.16
- Sb	36.40
- Mo	27.51
- Cu	17.53
- V	10.51
- Mn	4.81
- Ni	4.65
- Cr	4.36
- Co	1.54
- Si	-7.88

表2 Fe および Fe-Cu 中の Cu 原子に捕獲された原子空孔に捕獲された陽電子の寿命の計算結果と実験との比較

positron lifetime (psec)		
Fe	vacancy (unrelaxed)	187
Fe	relaxed vacancy	176
Fe	experiment	175
Fe-Cu	relaxed vacancy	168
Fe-Cu	experiment	~ 160

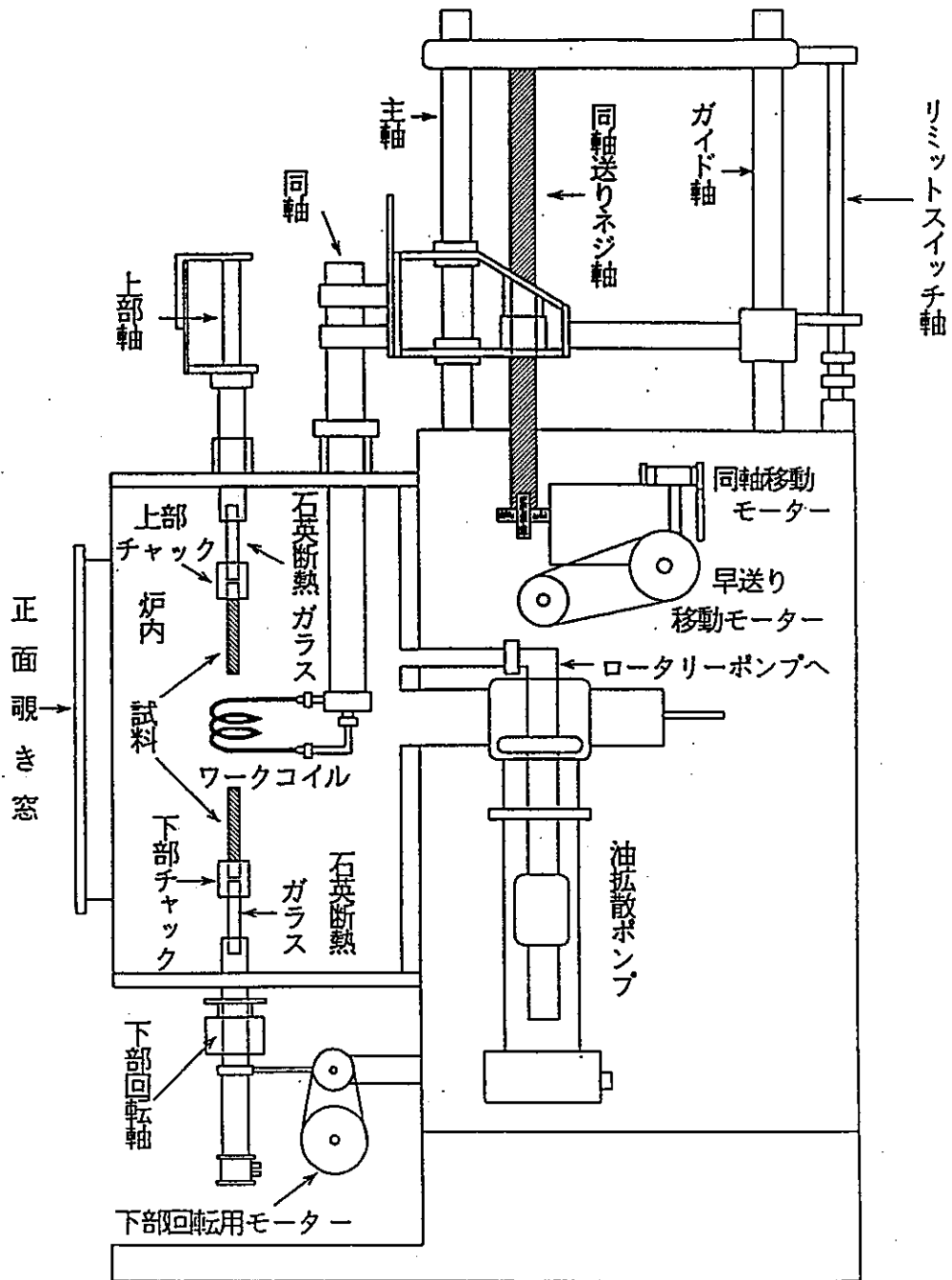


図1 高純度 Fe 作製用の高周波加熱浮遊帯溶融精製装置の概略図

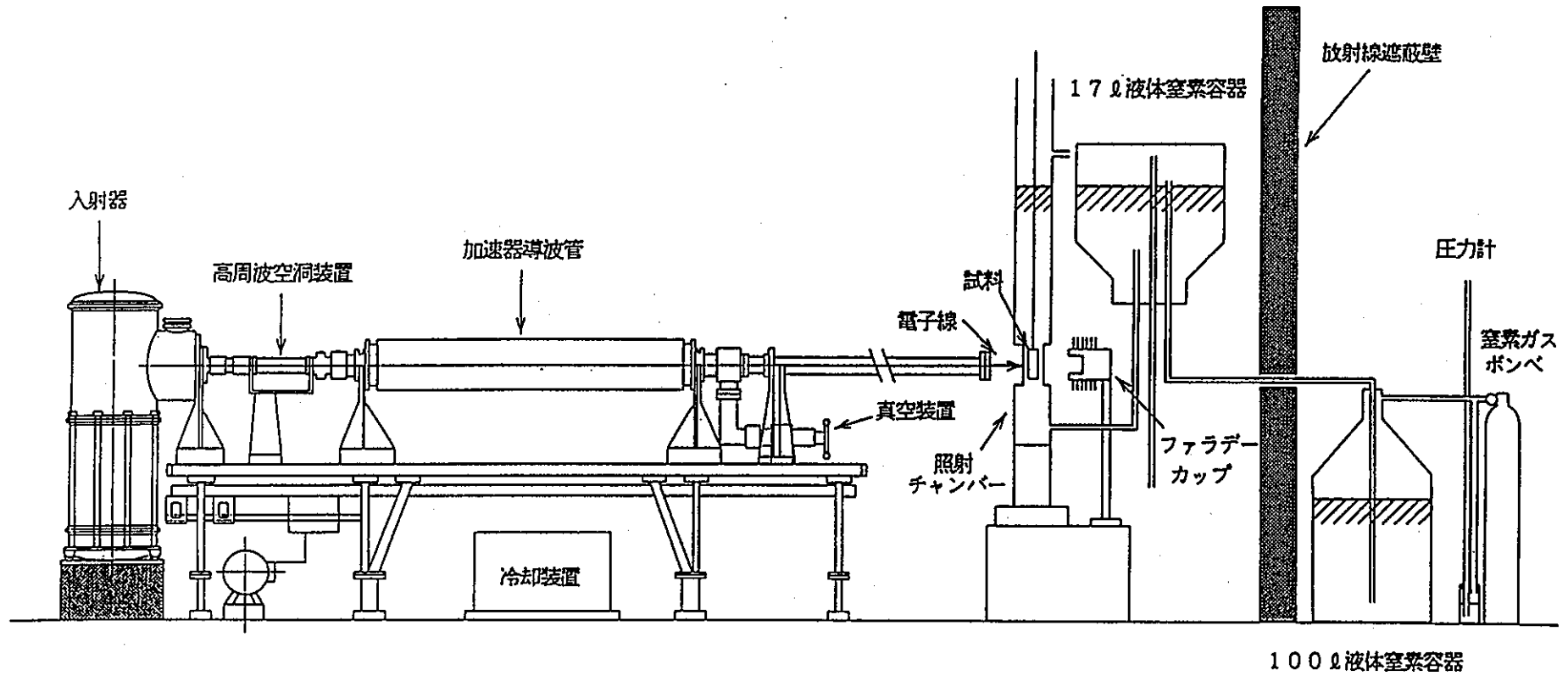


図2 低温電子線照射装置（京都大学原子炉実験所電子ライナック、28 MeV、77 K）の概略図

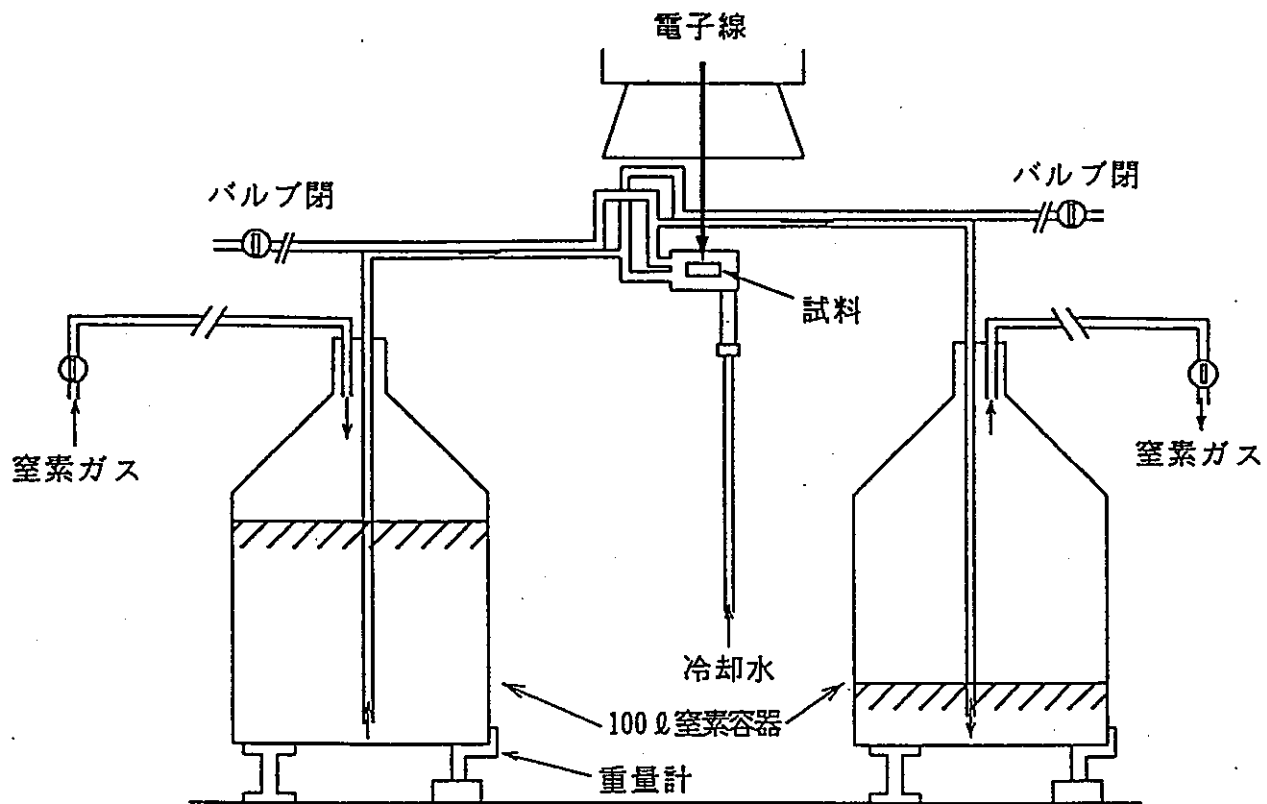


図3 低温電子線照射装置（原研高崎研ダイナミトロン、2.5 MeV、77 K）の概略図

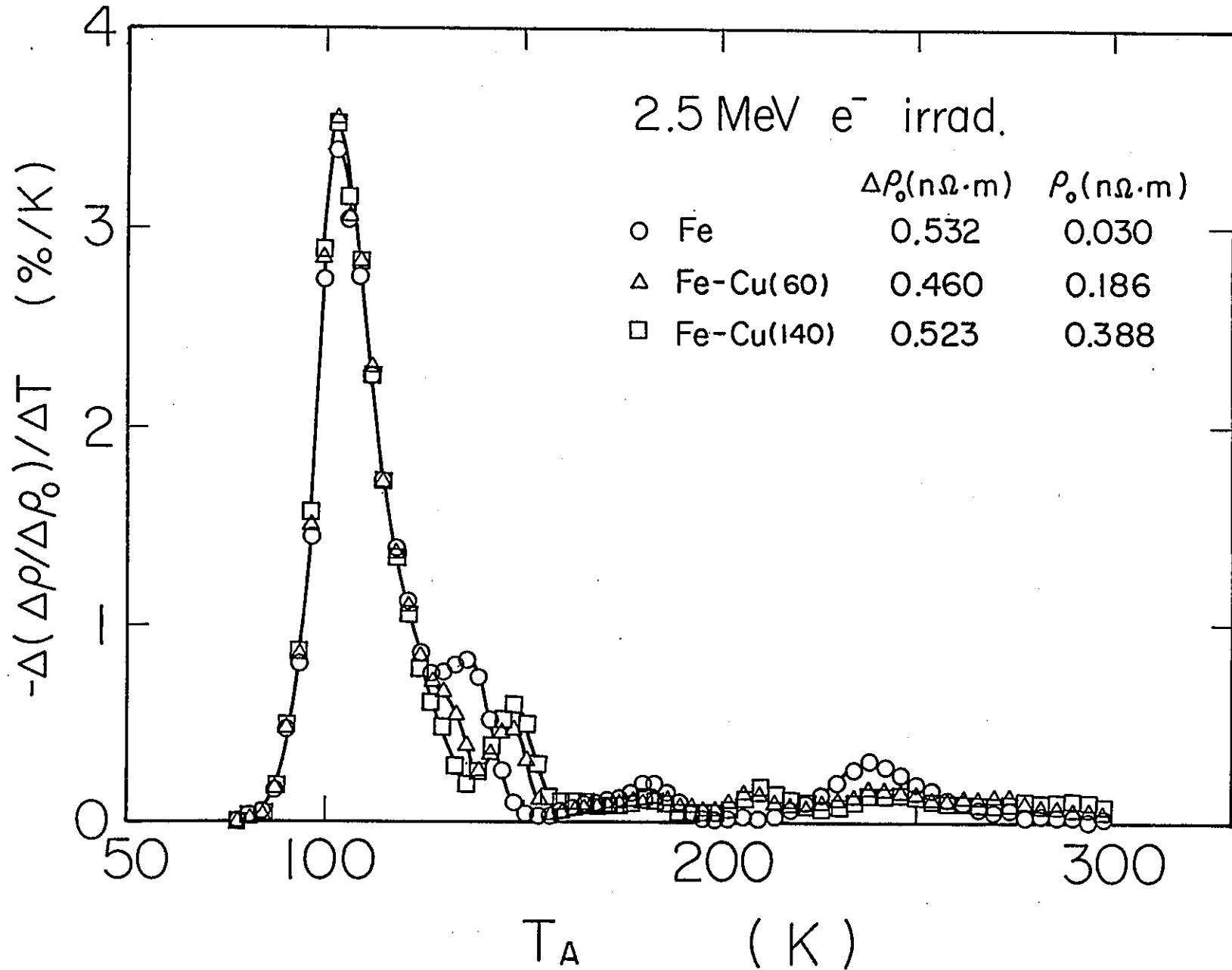


図4 2.5 MeV 電子線照射 ($1 \times 10^{18} \text{ e/cm}^2$, 77K) された Fe, Fe-60wppmCu, Fe-140wppmCu の電気抵抗測定による等時焼鈍回復過程

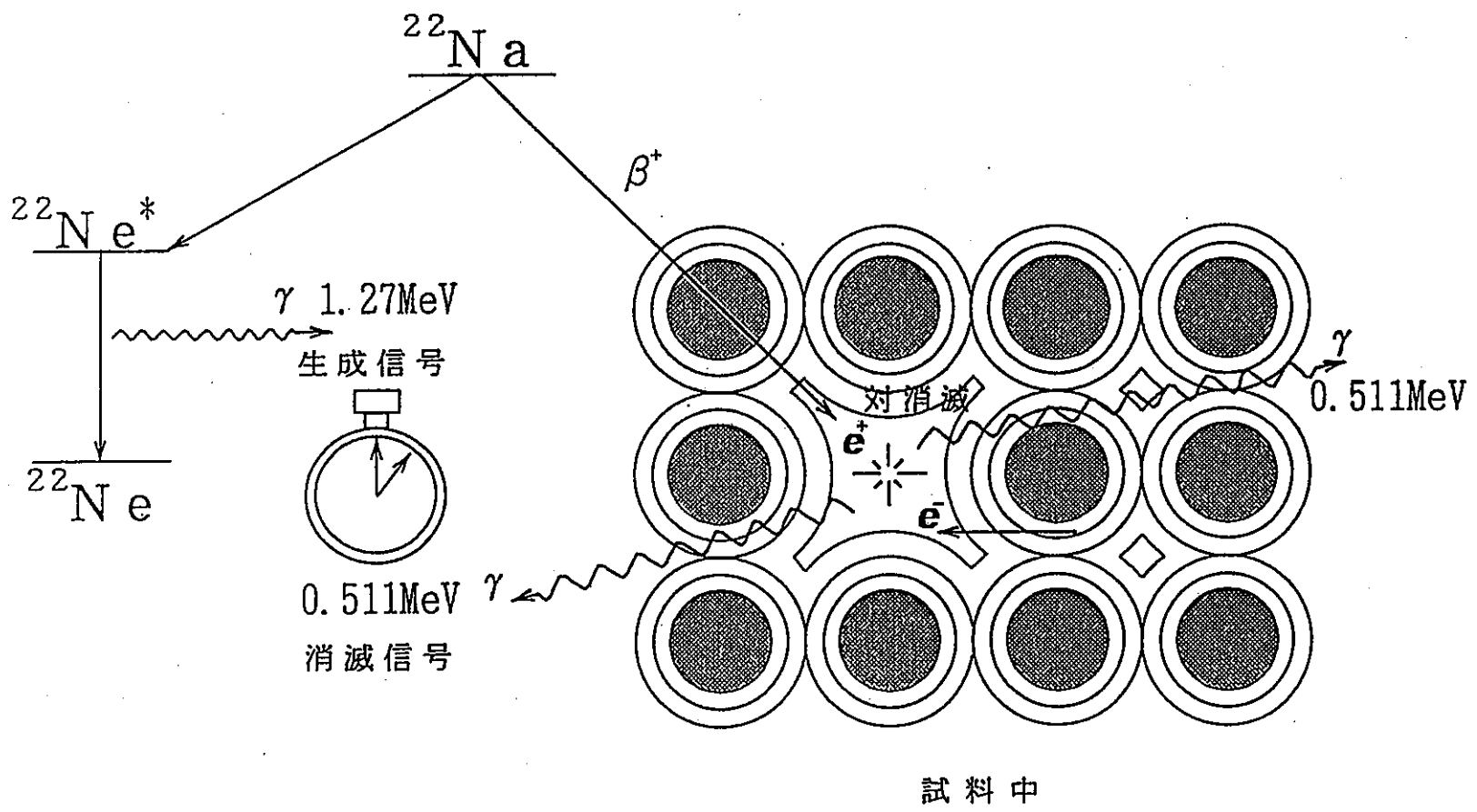


図5 陽電子消滅寿命測定概略図

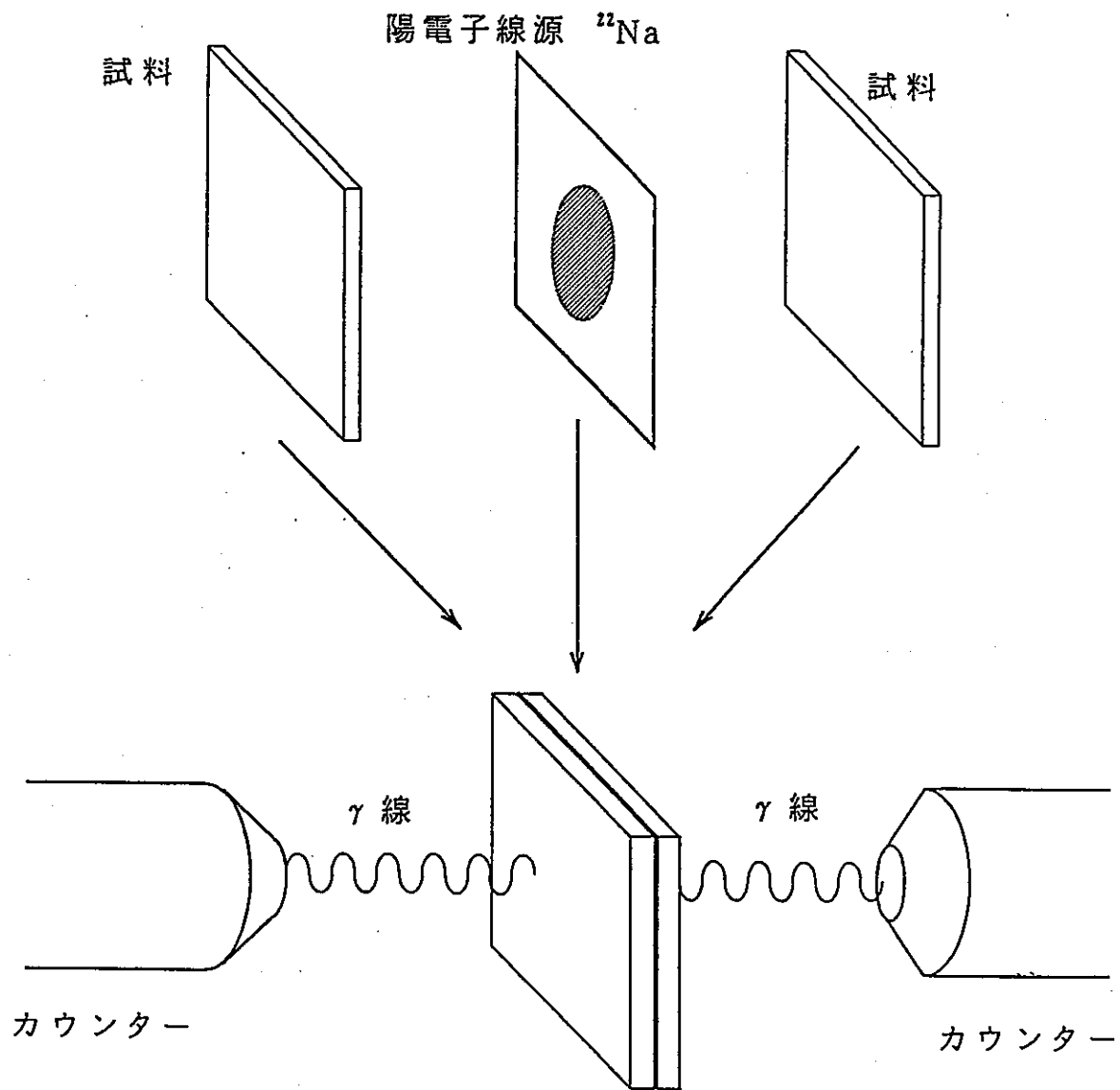


図6 試料および陽電子線源部

POSITRON LIFETIME MEASUREMENT

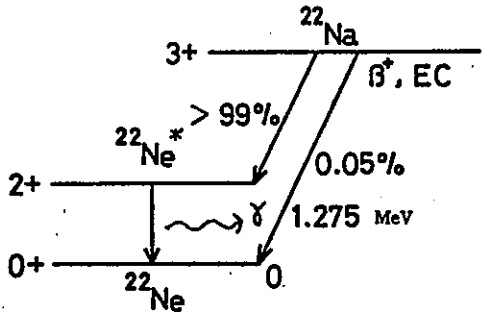
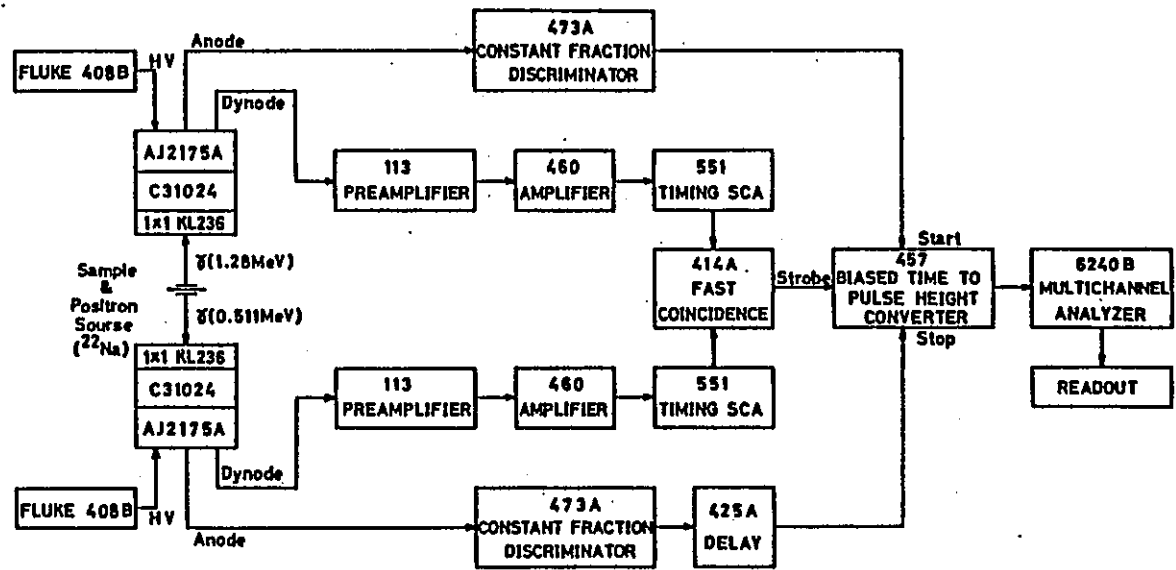


Fig. Decay scheme of Na^{22} (positron source)



Positron Lifetime Measurements System

Fig. Schematic diagram of the electronic circuit for positron annihilation lifetime measurement.

図7 陽電子寿命測定回路図

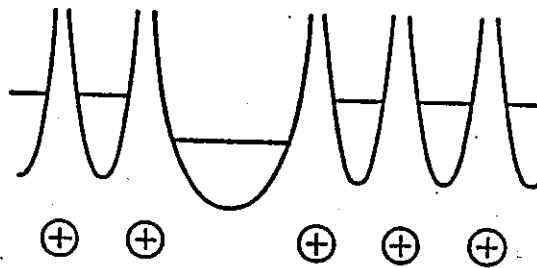
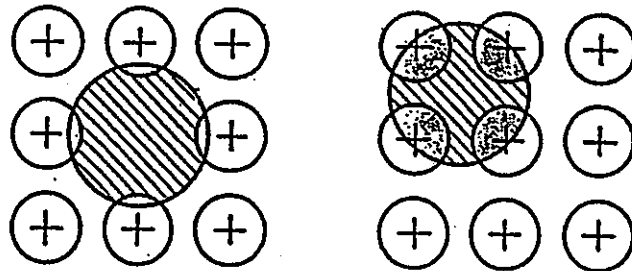
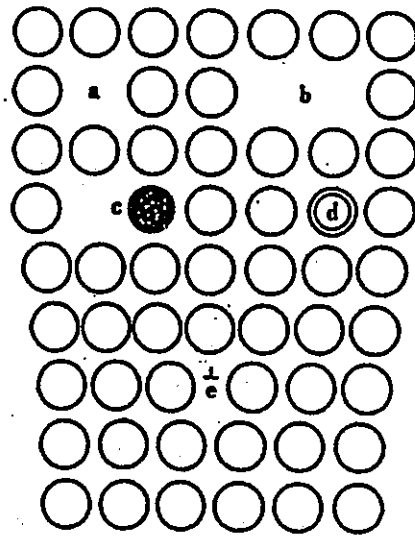


図8 種々の欠陥サイトとくに原子空孔に陽電子が捕獲される様子の概念図

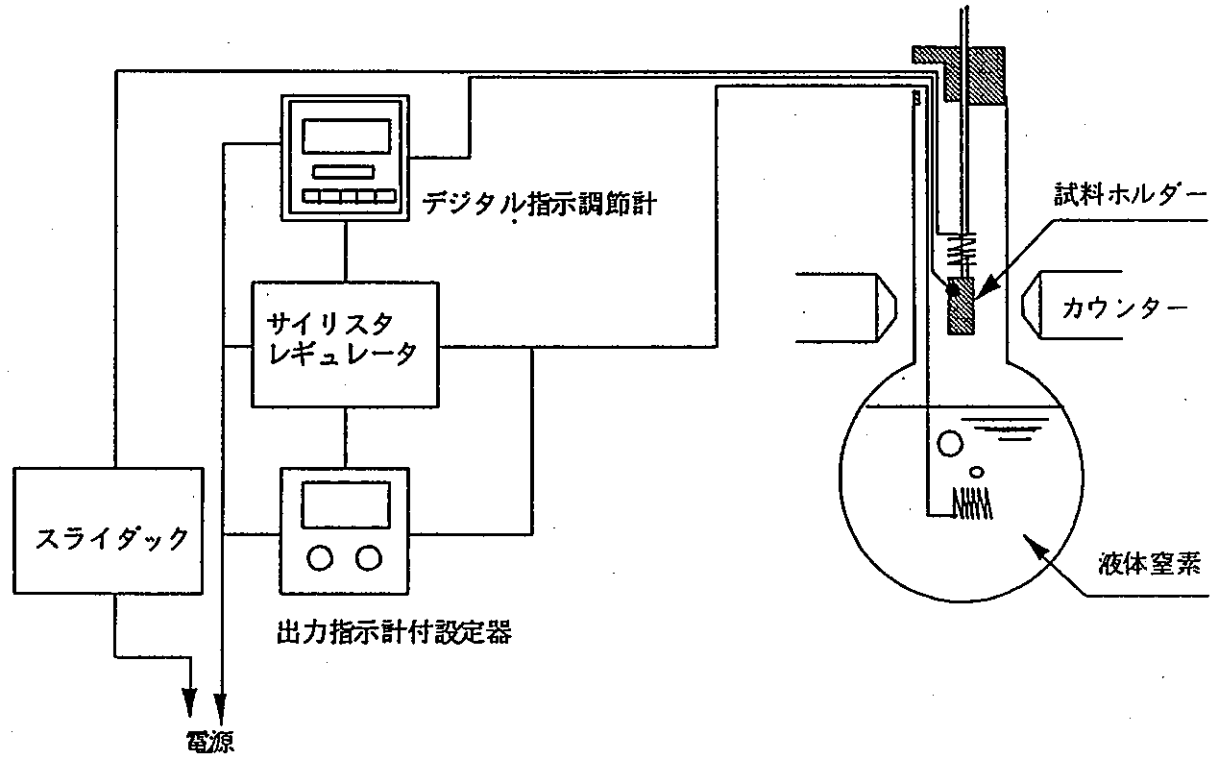


図9 低温陽電子消滅寿命測定装置の概略図

Positron Lifetime Fitting

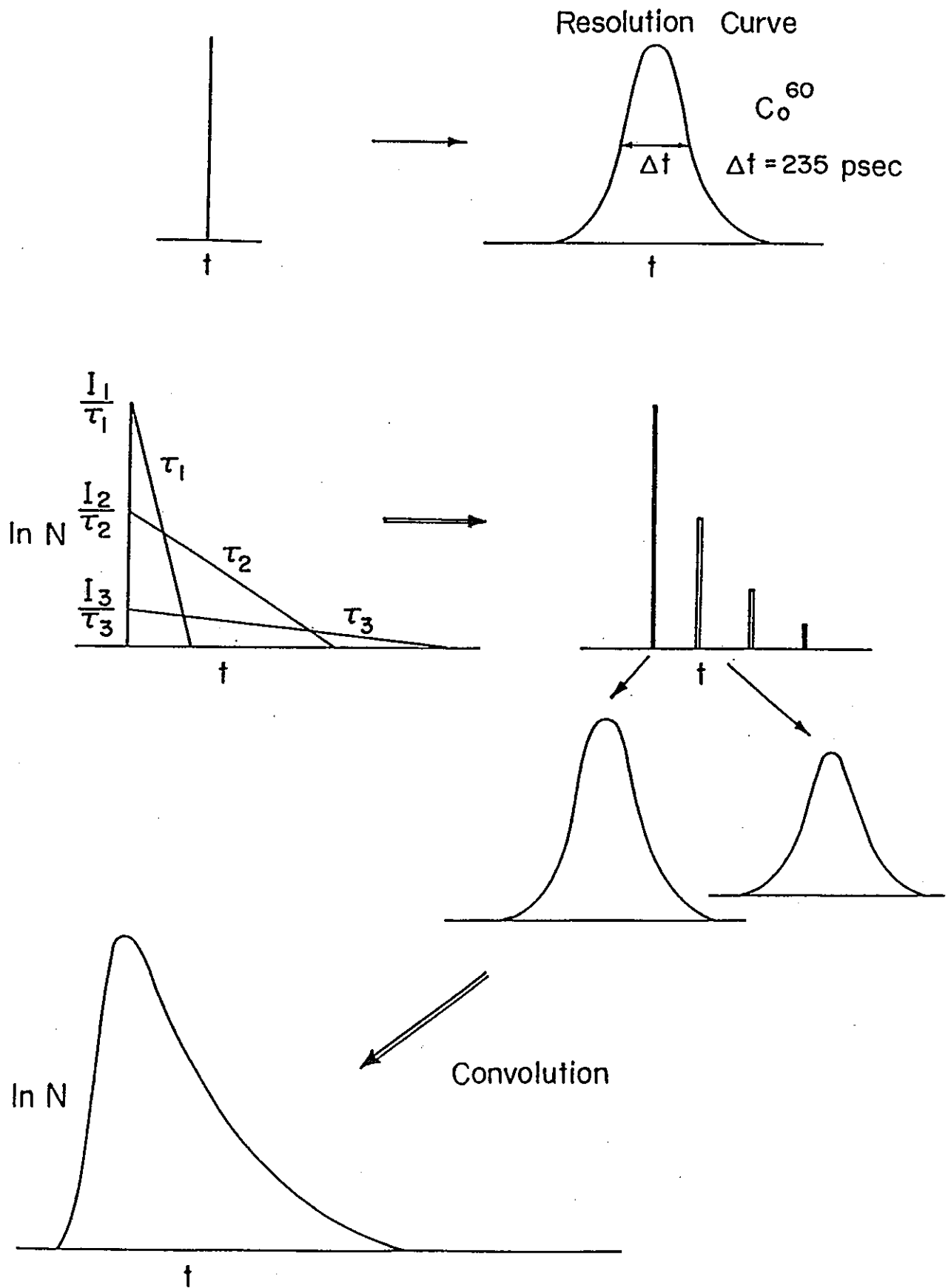


図 10 最小自乗法による陽電子消滅寿命スペクトルの解析過程の模式図 (convolution process)

χ^2 - fitting

$$\chi^2 = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{1}{E_i} \left| E_i - \int_{t_0}^{\infty} G(t_i - t') \sum_{j=1}^3 \frac{I_j}{\tau_j} e^{-\frac{t'-t_0}{\tau_j}} dt' \right|^2$$

$$\left[\begin{array}{l} G(t) = A e^{-\frac{t^2}{2\sigma^2}} \quad \left(A = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \right) : \text{Resolution function} \\ E_i : \text{Number of counts at channel } i \\ \quad \quad \quad (\text{Measured lifetime spectrum}) \\ N : \text{Total number of channel} \end{array} \right]$$

図 1 1 最小自乗法による陽電子消滅寿命スペクトルの解析過程の基本式

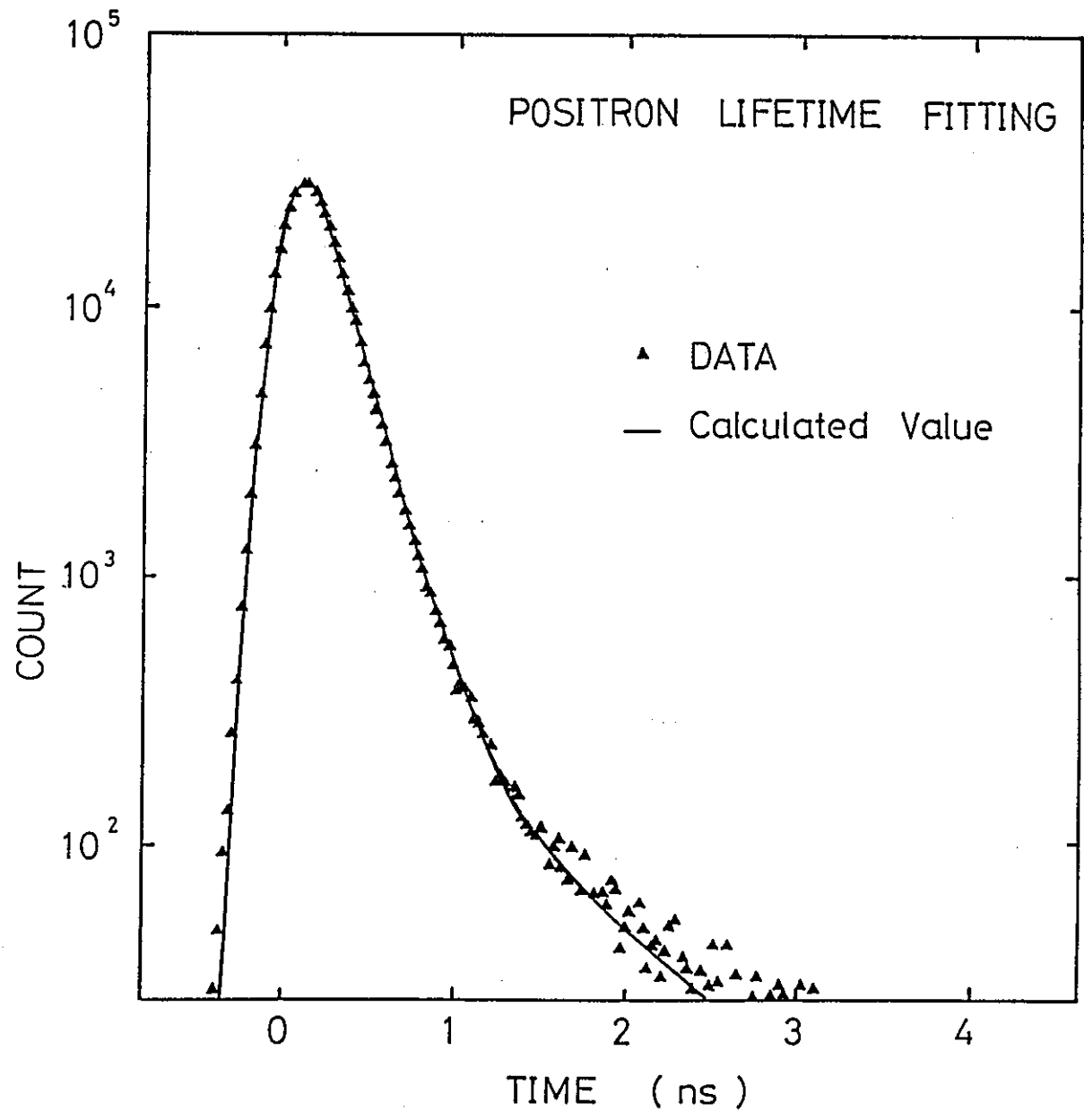


図12 実験で得られた寿命スペクトルと解析で得られた曲線のフィッティングの様子の一例

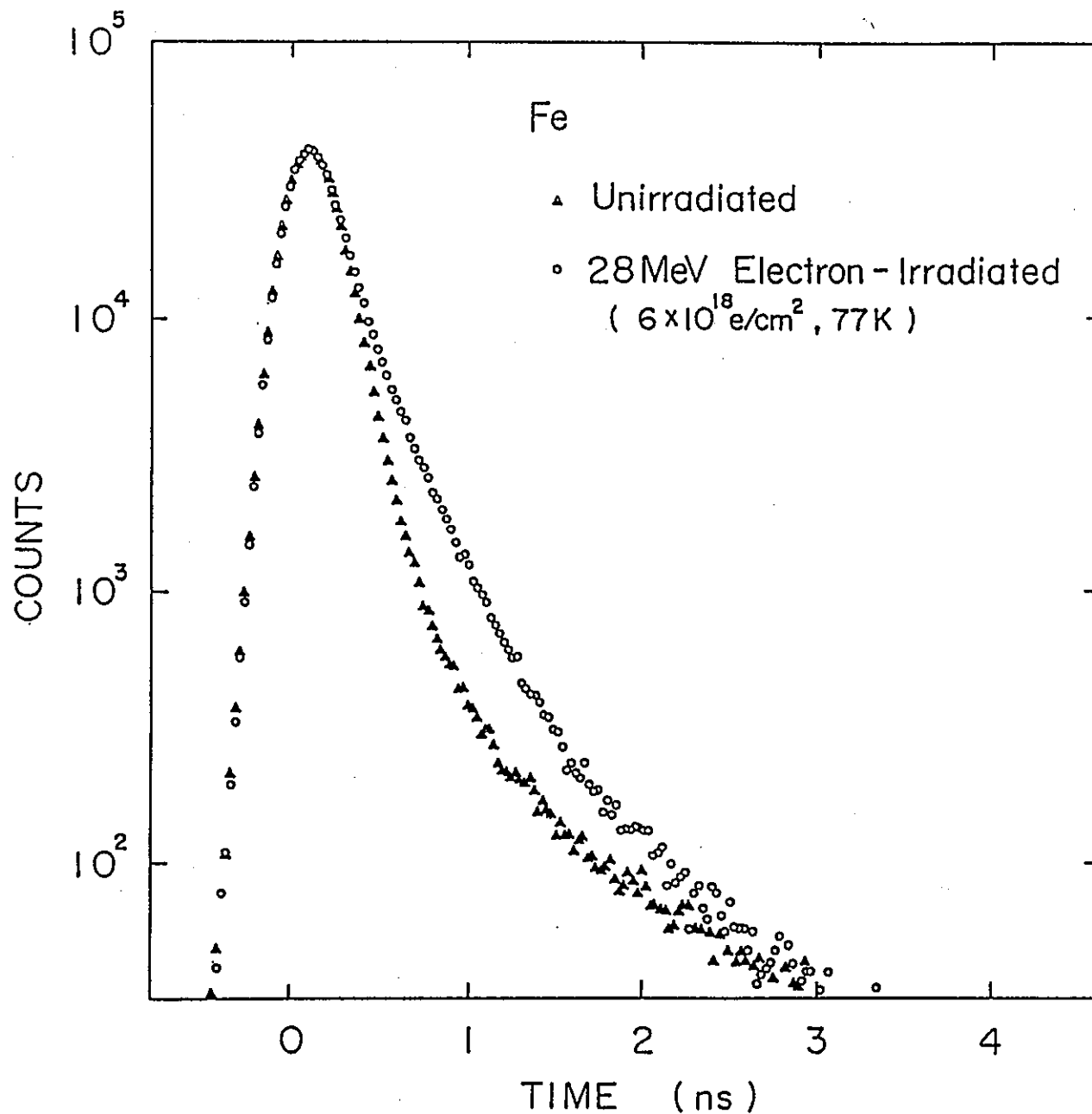


図13 電子線照射(京都大学原子炉実験所電子ライナック、28 MeV、77 K)された高純度 Fe の陽電子消滅寿命スペクトルの照射前との比較

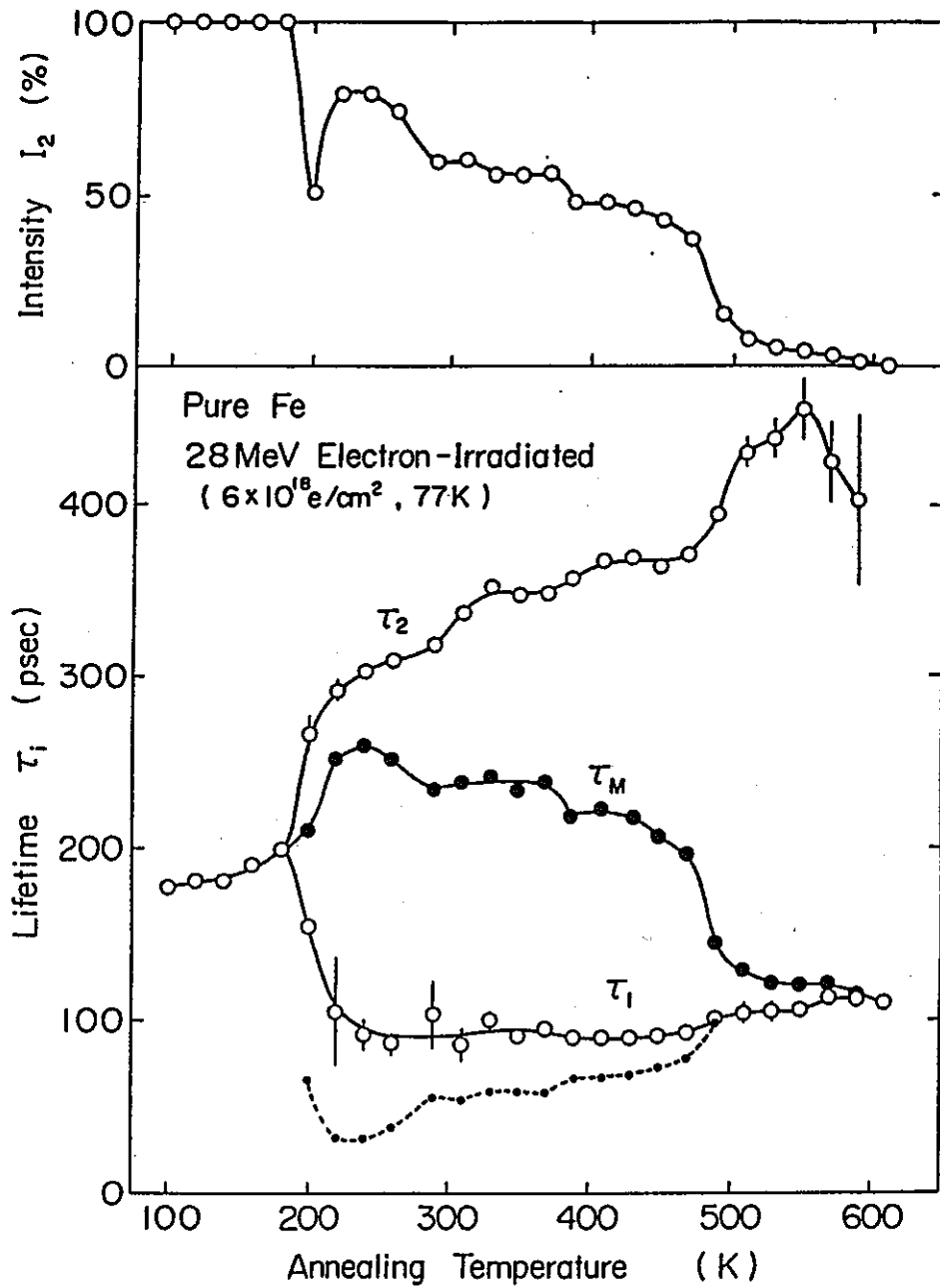


図 1 4 28 MeV 電子線照射 ($6 \times 10^{18} \text{ e/cm}^2$, 77K) された純 Fe の陽電子消滅寿命測定による等時焼鈍回復過程

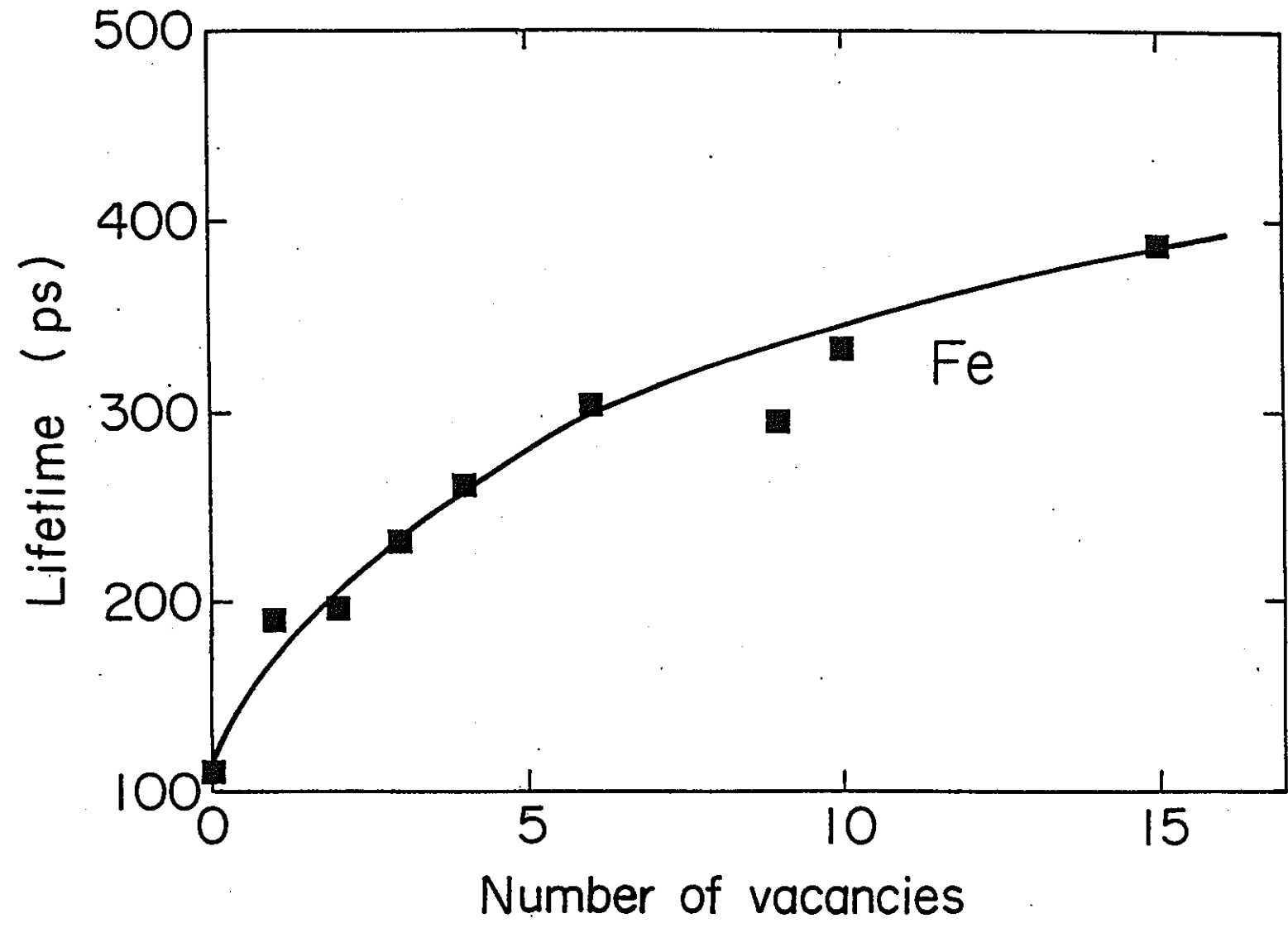


図15 マイクロポイドの大きさ（原子空孔数）と陽電子寿命の関係の計算結果

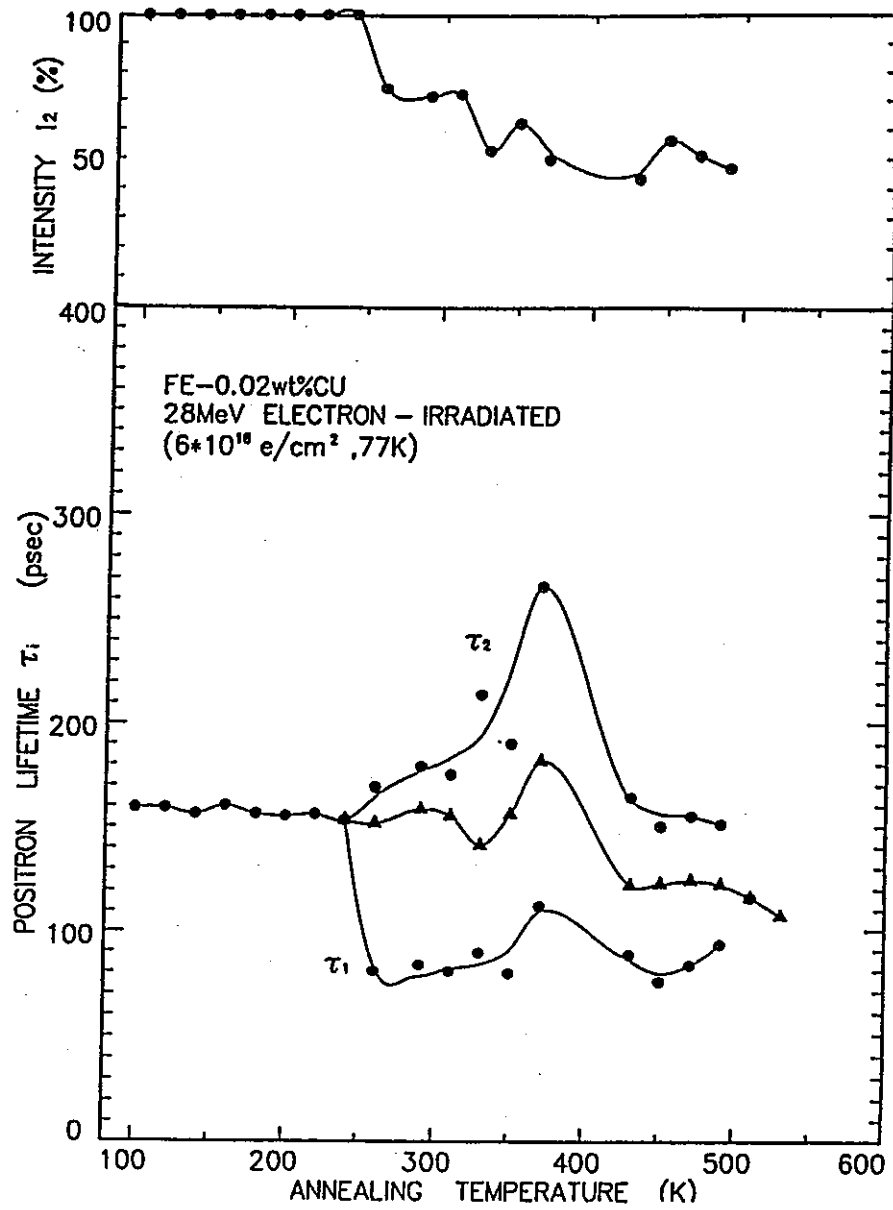


図16 28 MeV 電子線照射 (6×10^{18} e/cm², 77K) された Fe-200ppmCu の陽電子消滅寿命測定による等時焼鈍回復過程

$$[-\nabla^2 + V(r)]\phi_+(r) = E_+ \phi_+(r)$$

$$V(r) = V_c(r) + V_{corr}[n_-(r)]$$

$$V_c(r) = \sum_i \left[\frac{2Z}{r_i} - \frac{2}{r_i} \int_0^{r_i} \rho(t) dt - 2 \int_{r_i}^{\infty} \frac{\rho(t)}{t} dt \right]$$

$$V_{corr}(r_s) = \begin{cases} -\frac{1.56}{\sqrt{r_s}} + (0.051 \ln r_s - 0.081) \ln r_s + 1.14, & r_s \leq 0.302 \\ -0.92305 - \frac{0.05459}{r_s^2}, & 0.302 \leq r_s \leq 8.0 \\ -\frac{13.15111}{(r_s + 2.5)^2} + \frac{2.8655}{r_s + 2.5} - 0.6298, & 0.56 \leq r_s \leq 8.0 \\ -179856.2768 n^2 + 186.4207 n - 0.524, & 8.0 \leq r_s < \infty \end{cases}$$

$$r_s = \left[\frac{3}{4\pi n_-(r)} \right]^{1/3}$$

$$\epsilon^{(n)} = \frac{\sum_i \left[-\frac{1}{h^2} \phi_+^{(n)}(r_i) \left(\sum_k \phi_+^{(n)}(r_k) - 6 \phi_+^{(n)}(r_i) \right) + V(r_i) |\phi_+^{(n)}(r_i)|^2 \right]}{\sum_i |\phi_+^{(n)}(r_i)|^2}$$

$$\phi_+^{(n+1)}(r_i) = \frac{\sum_k \phi_+^{(n)}(r_k)}{6 + h^2 (V(r_i) - \epsilon^{(n)})}$$

$$n_+(r) = |\phi_+(r)|^2$$

$$\lambda = \pi r_0^2 c \int dr n_+(r) [n_v(r) \Gamma_v(n_v(r)) + n_c(r) \Gamma_c + n_d(r) \Gamma_d]$$

$$\Gamma_v(n_v) = \left[1 + \frac{r_{s,v}^2 + 10}{6} \right],$$

$$r_{s,v} = \left[\frac{3}{4\pi n_v} \right]^{1/3}$$

$$r = \frac{1}{\lambda}$$

図17 陽電子寿命計算に必要な式（上からシュレーディンガー方程式、クーロンポテンシャル、相関ポテンシャル (correlation potential)、固有値を求める変分法、消滅速度、陽電子寿命である。）

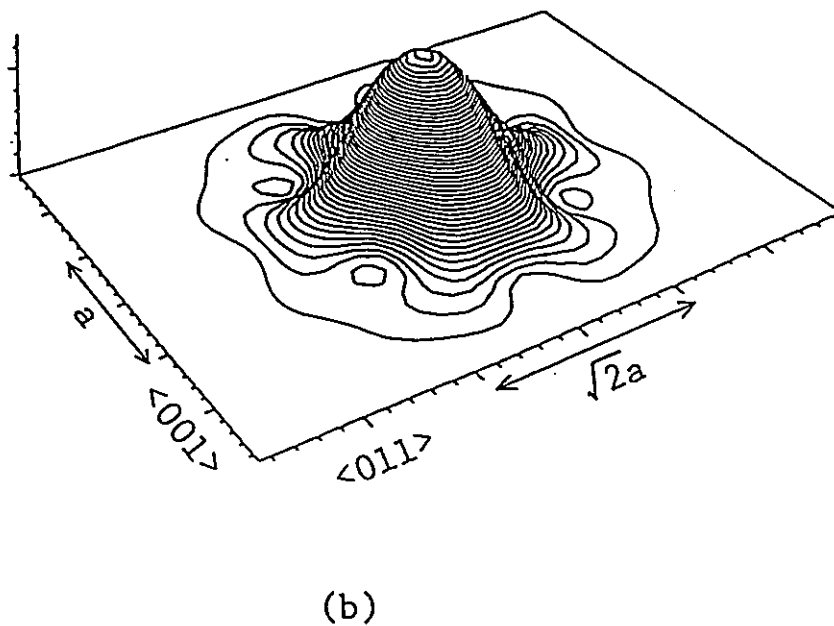
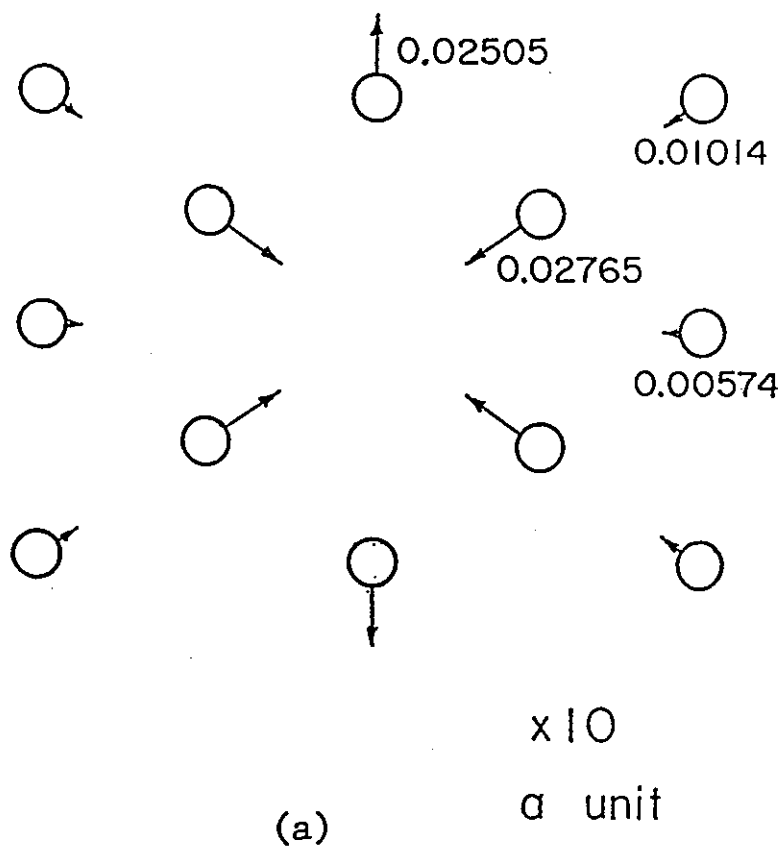


図 1 8 純 Fe 中の原子空孔周辺の原子配置とそこに捕獲された陽電子の波動関数

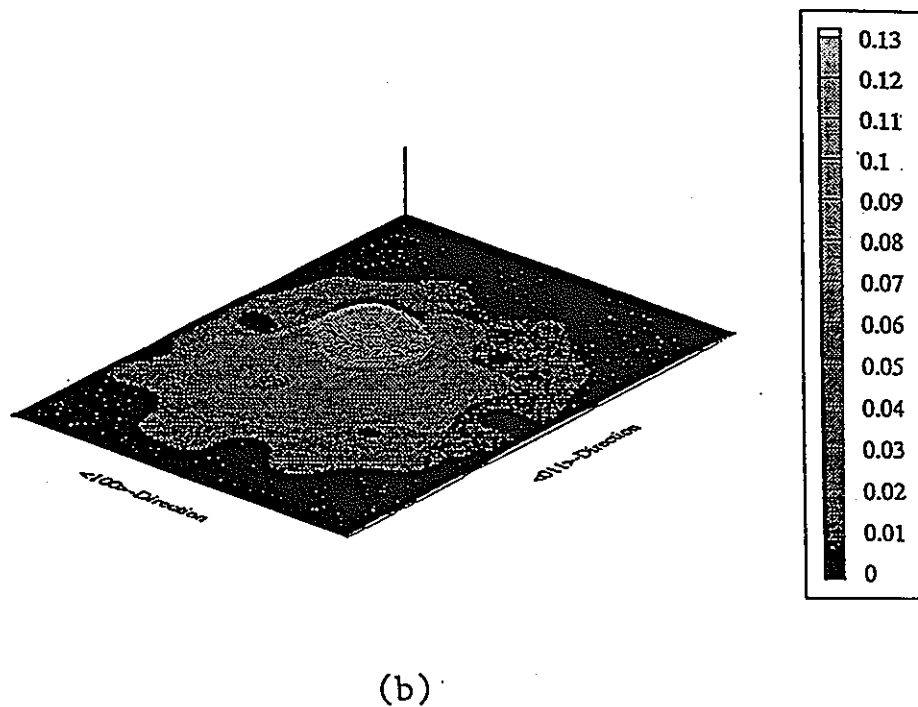
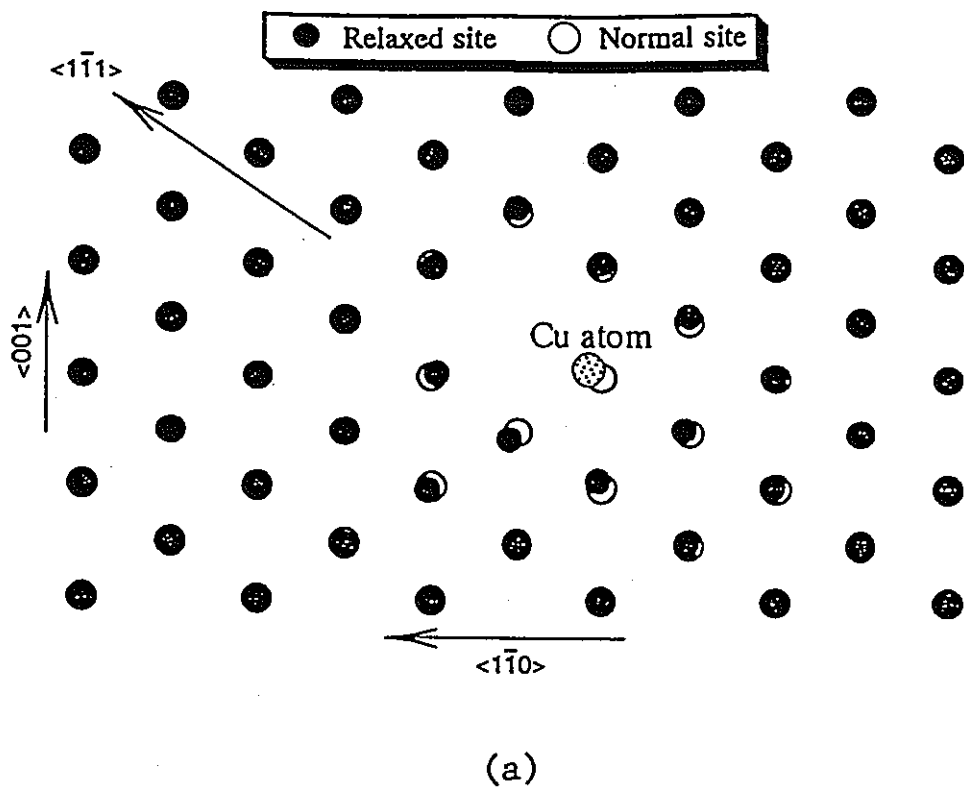


図 1 9 Fe-Cu 中の Cu に捕獲された原子空孔周辺の原子配置とそこに捕獲された陽電子の波動関数

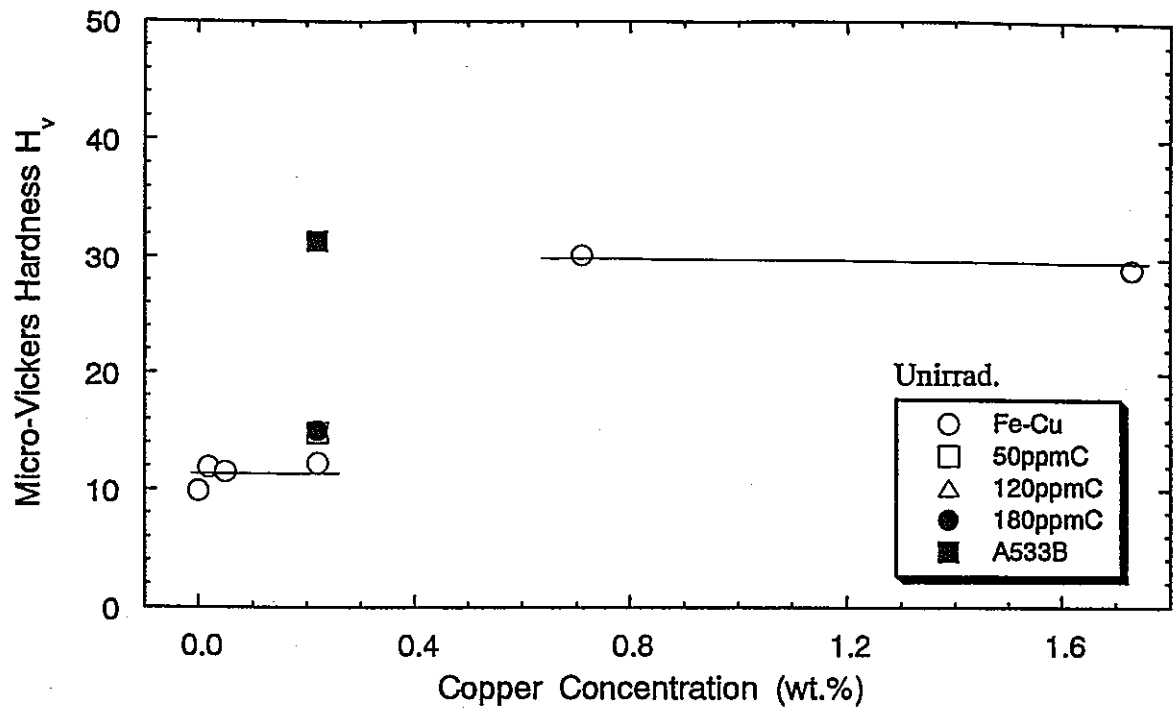


図 2 0 Fe-Cu 合金のビッカース硬度の実験結果

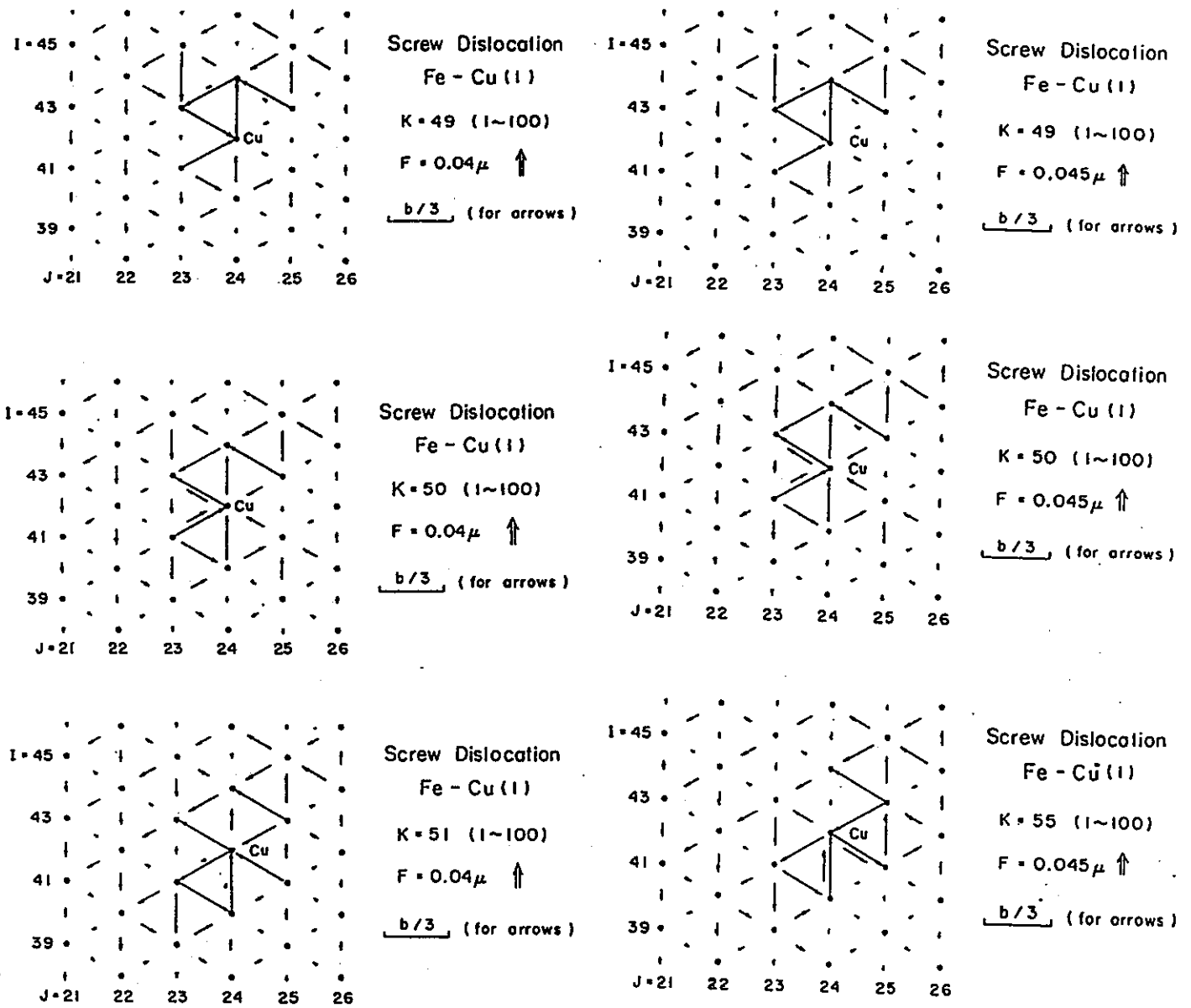


Fig. 4 Core structure of a screw dislocation interacting with a Cu atom, represented by Vitek's differential displacement method (0.04μ , $K = 49,50,51$)

Fig. 5 Core structure of a screw dislocation interacting with a Cu atom, represented by Vitek's differential displacement method (0.045μ , $K = 49,50,55$)

図 2 2 Fe-Cu モデル合金結晶中のらせん転位の芯構造と応力下でのすべり運動

Fe

Interaction between an Edge Dislocation and a Crowdion (type A)

(Contour of -0.067 eV (500°C))

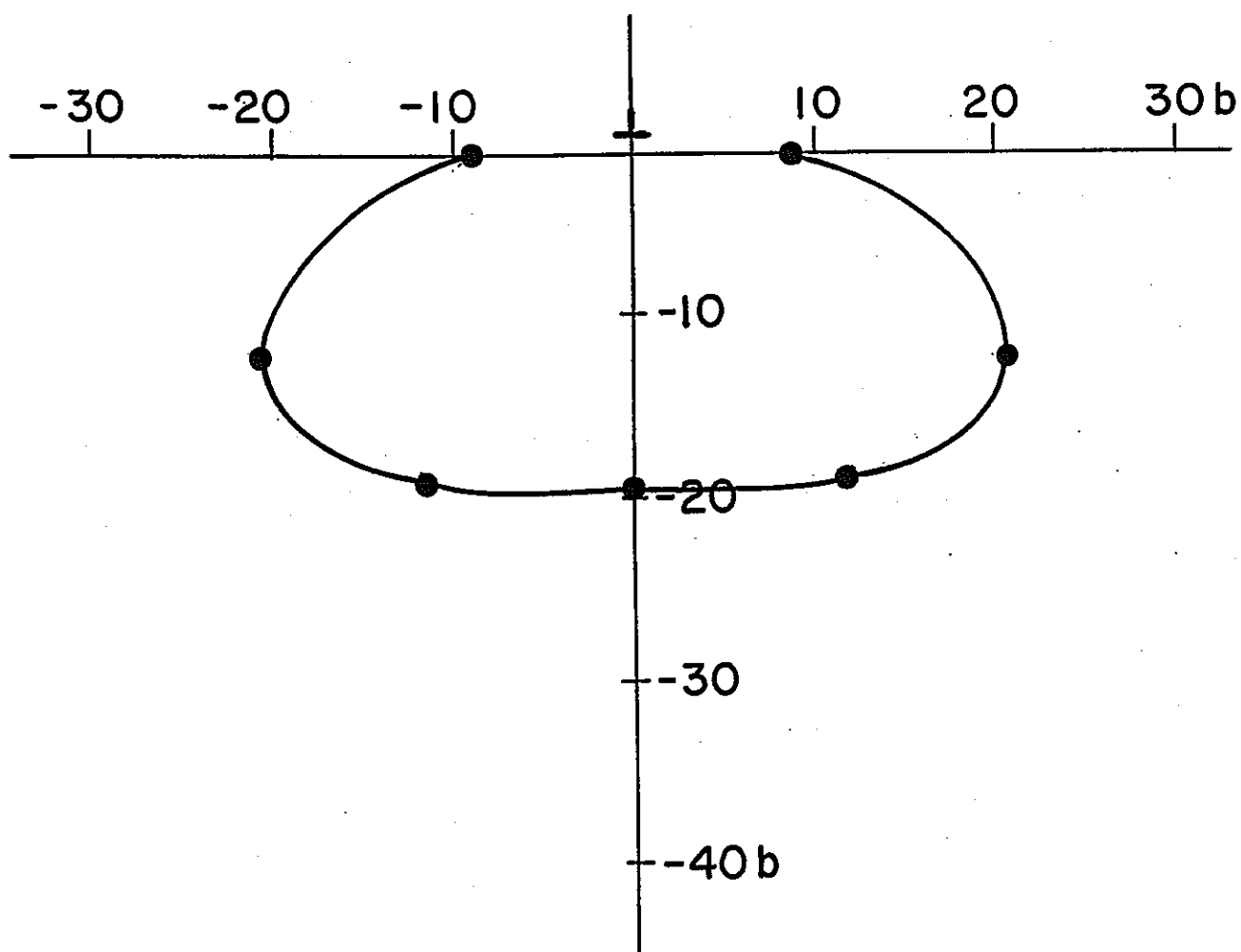


図 2 3 Fe モデル結晶中の刃状転位と格子間原子 (クラウディオ) との相互作用の等高線 ($kT=0.067\text{eV}$, $T=500^\circ\text{C}$) の計算結果

Fe

Interaction between an Edge Dislocation and a Vacancy

(Contour of -0.067 eV (500°C))

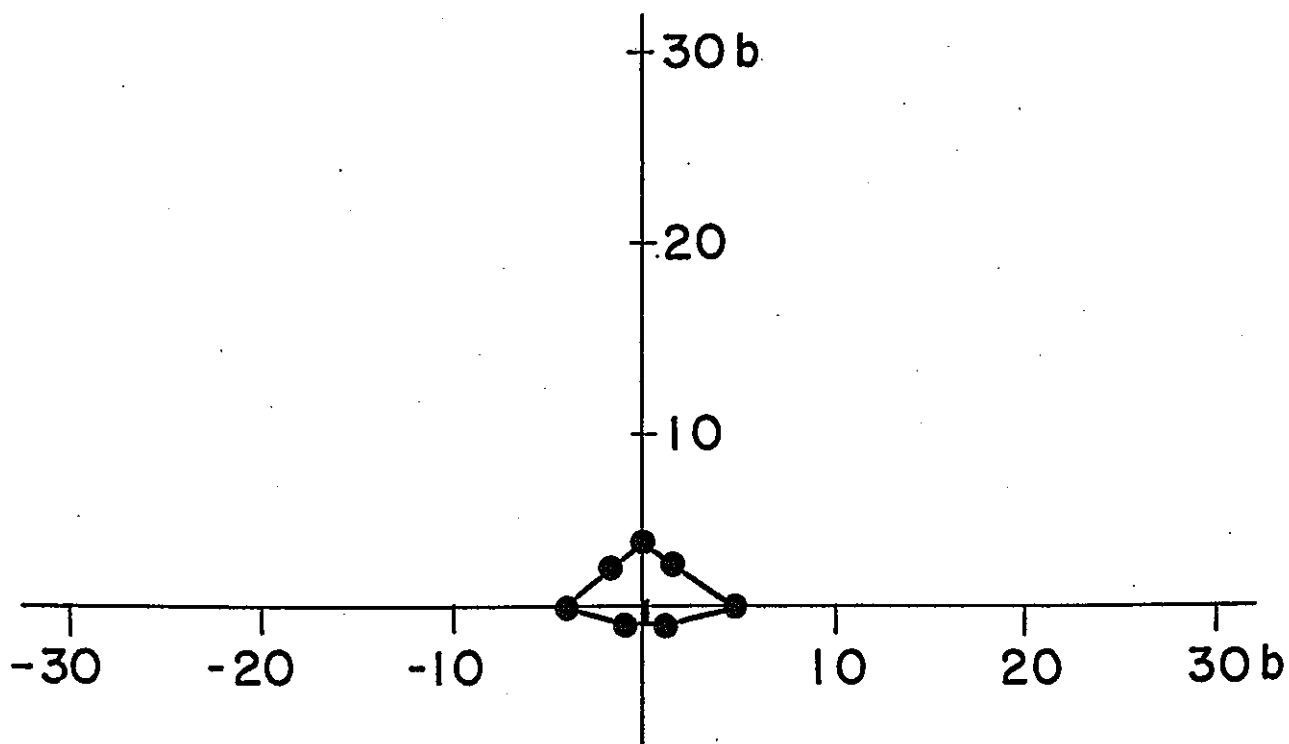


図 2 4 Fe モデル結晶中の刃状転位と原子空孔との相互作用の等高線 ($kT=0.067\text{eV}$, $T=500^\circ\text{C}$) の計算結果

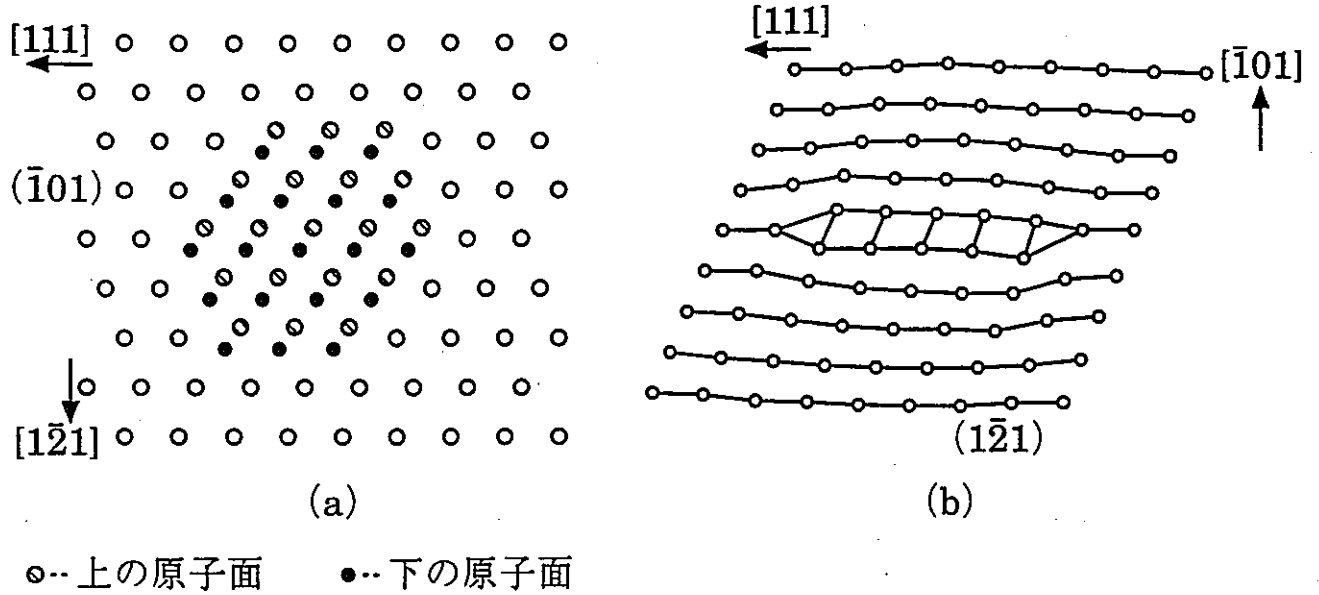


図25 Fe モデル結晶中の $a/2\langle 111 \rangle$ 完全転位ループ I_{19} (上面図 (左) と側面図 (右))

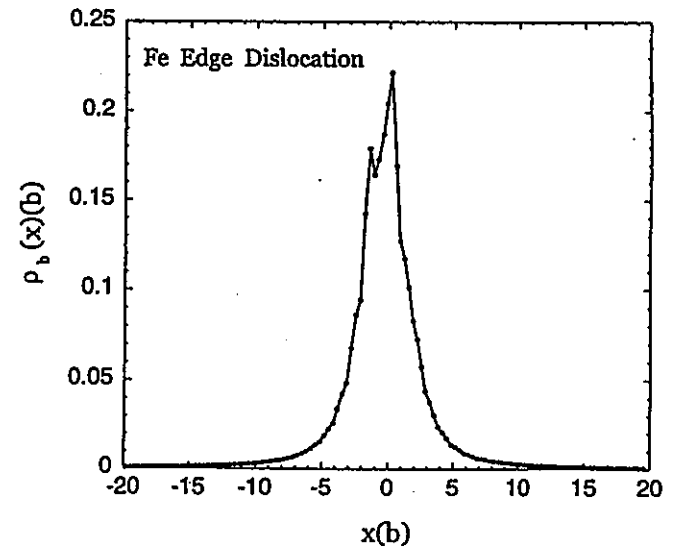
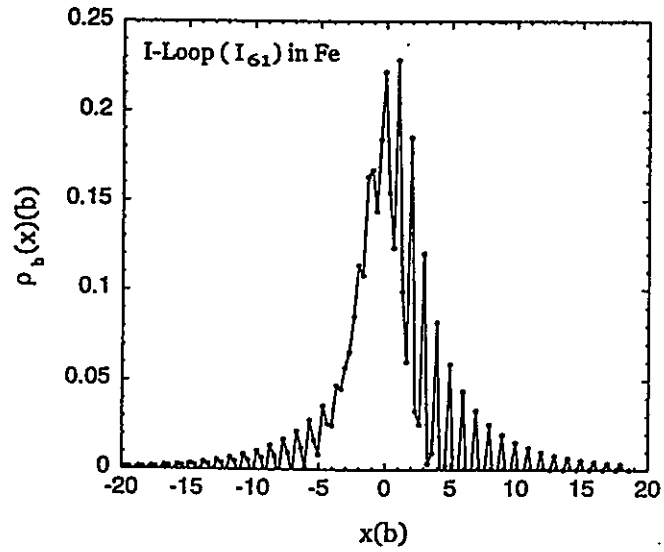
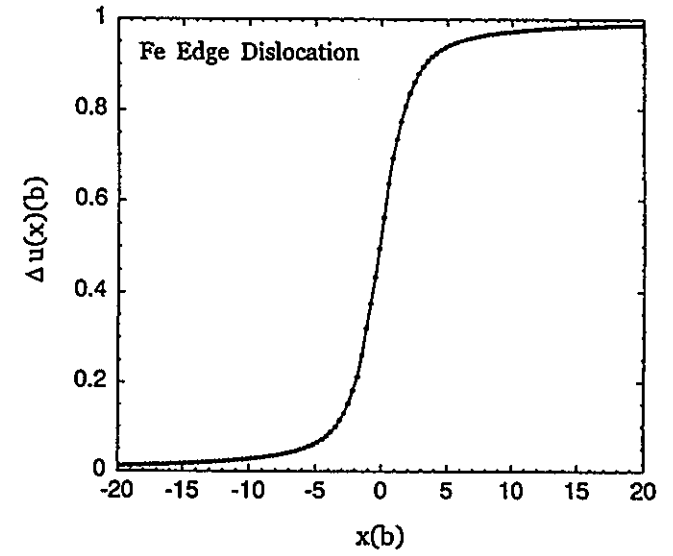
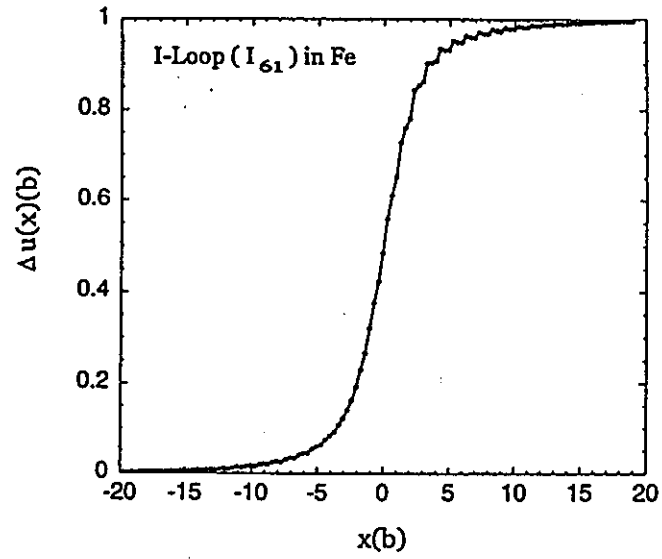


図26 Feモデル結晶中の $a/2\langle 111 \rangle$ 完全転位ループ I_{61} の6角形の6つの転位セグメント1つについてのバーガースベクトルの分布

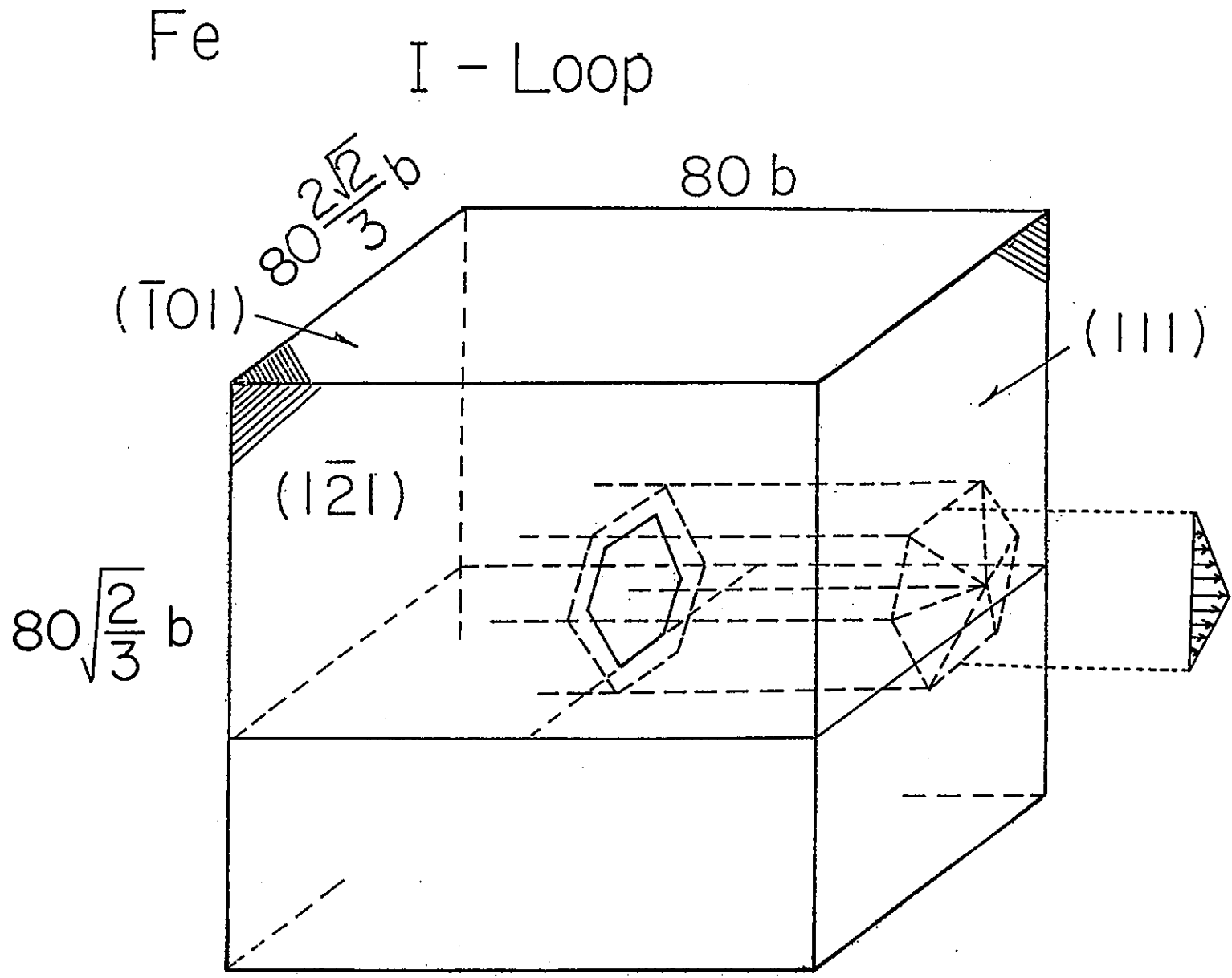


図27 Feモデル結晶中の $a/2\langle 111 \rangle$ 完全転位ループに負荷する軸対象 (6 回対称) 剪断応力

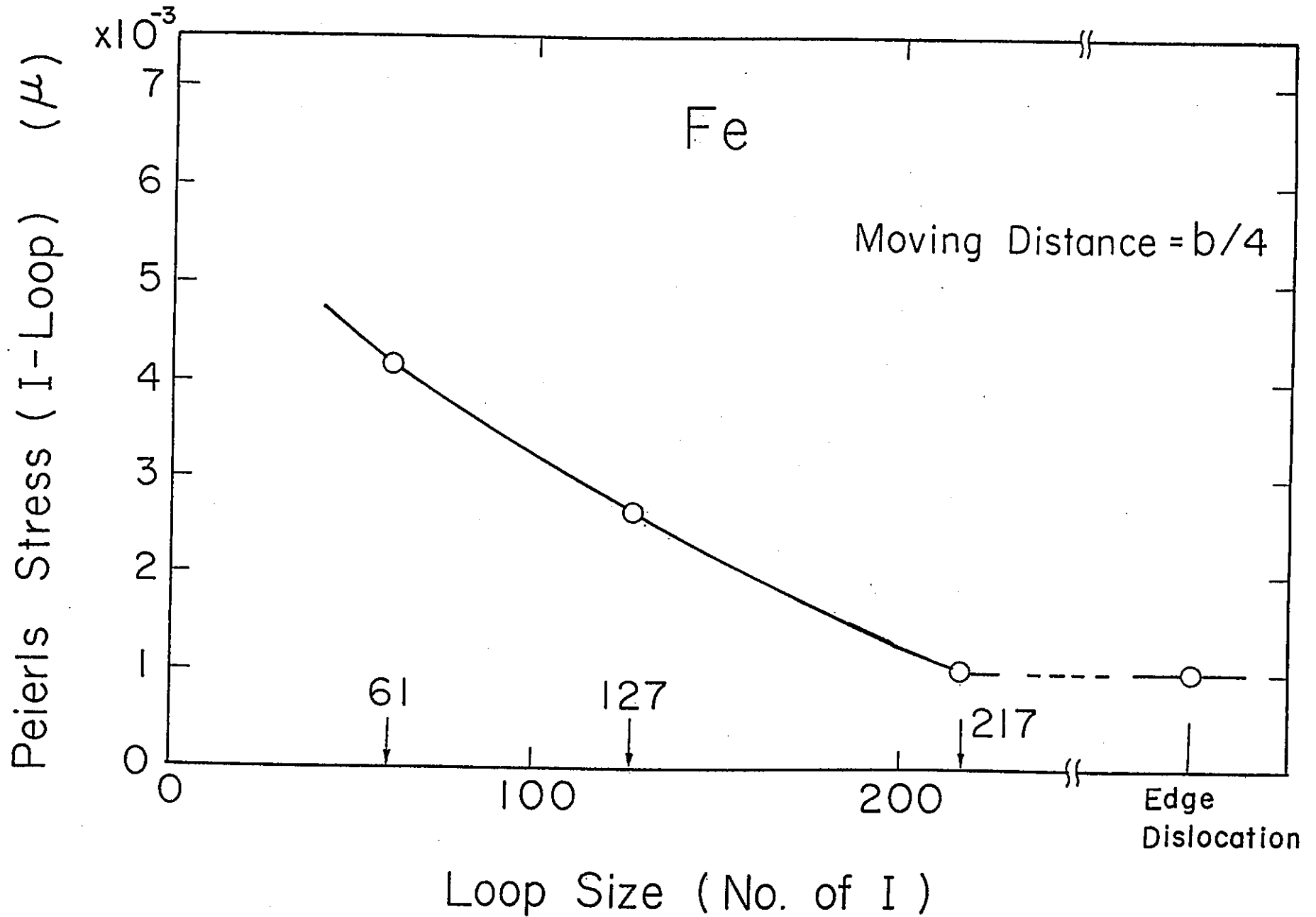


図28 Fe モデル結晶中の $a/2\langle 111 \rangle$ 完全転位ループのパイエルス応力のループサイズ依存性

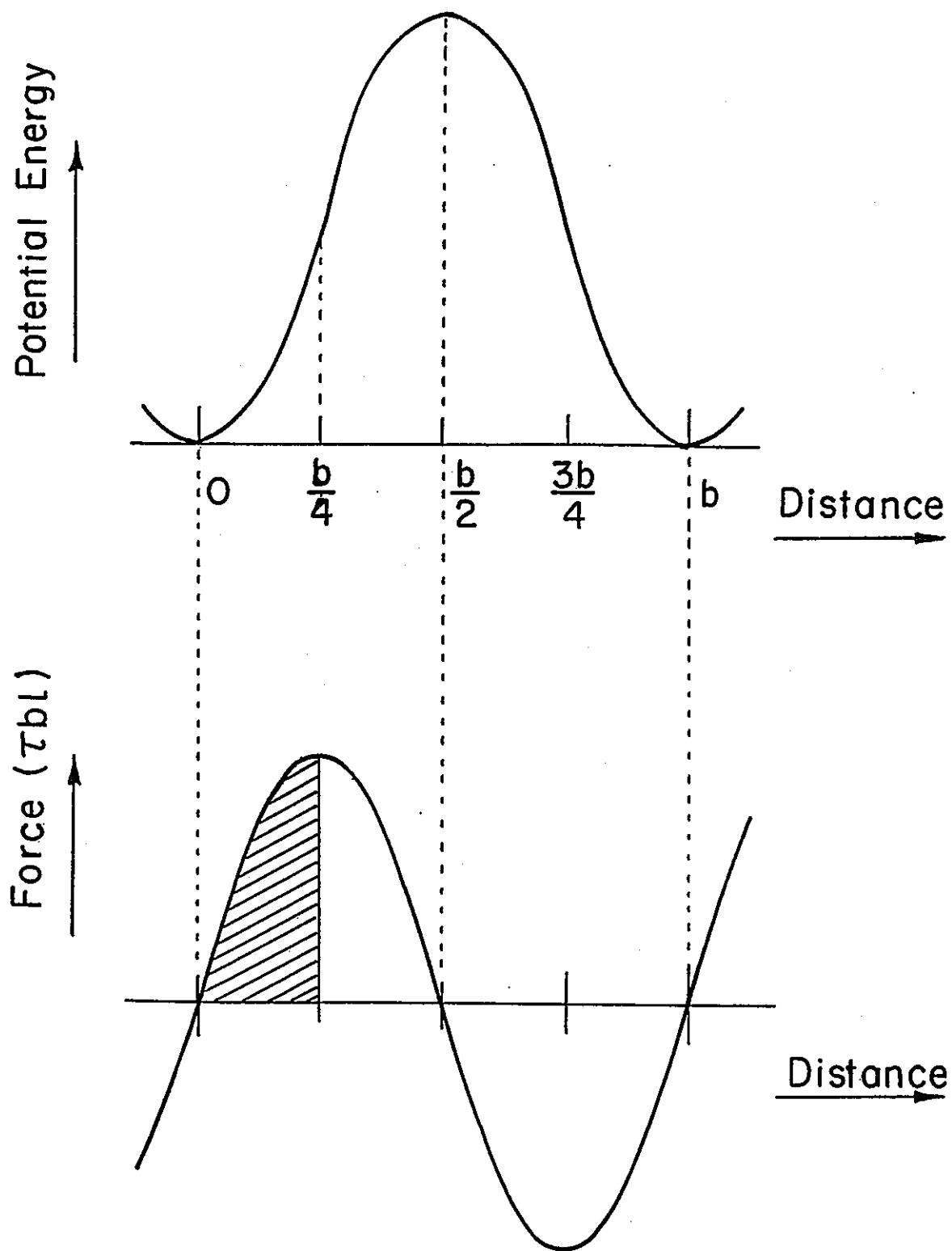


図 2 9 応力-距離関係 (force - distance curve) から転位ループの運動の活性化エネルギーを求める方法の模式図

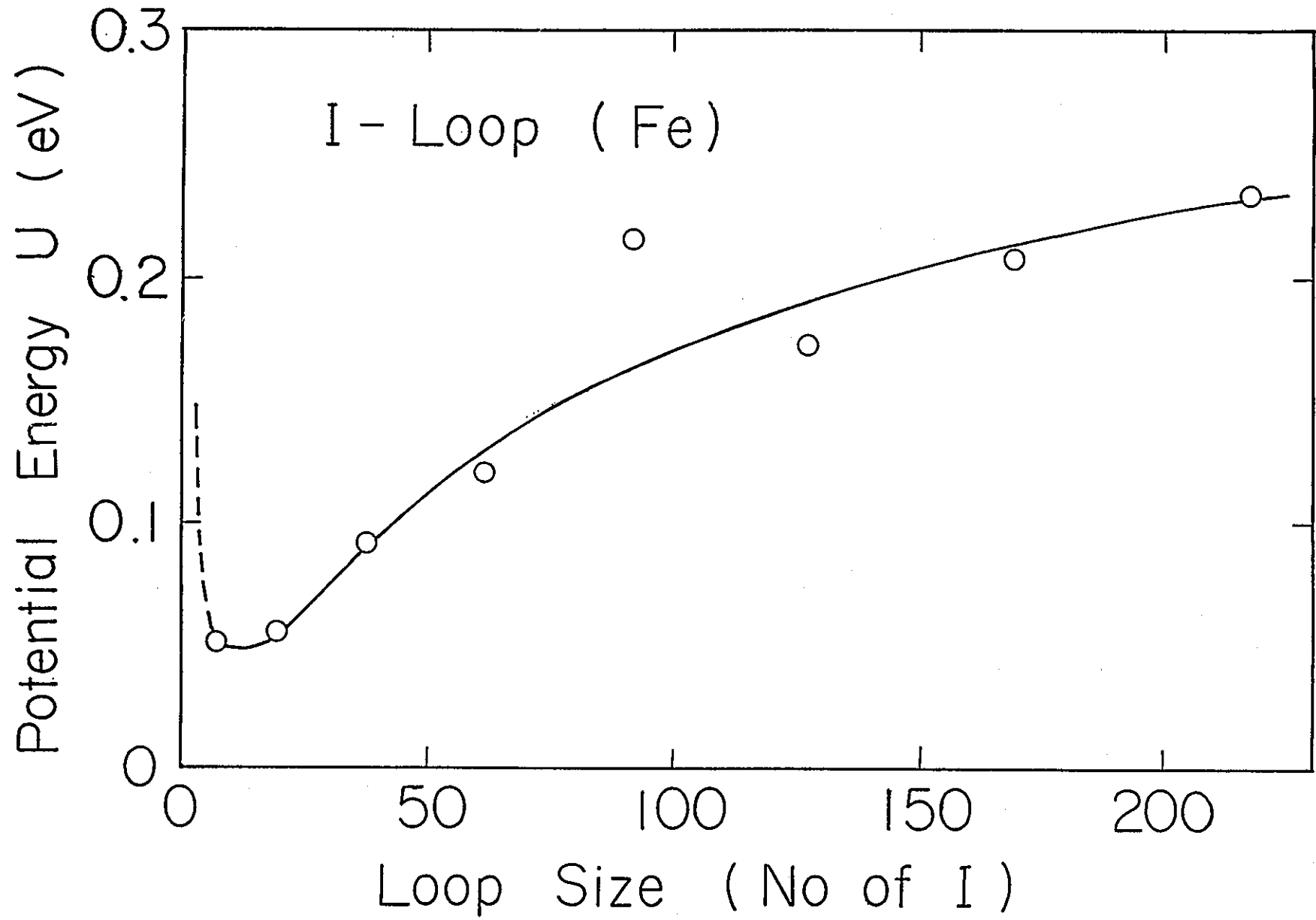


図30 モデル Fe 結晶中の転位ループの活性化エネルギーの値のサイズ依存性の計算結果