

**原子力システム研究開発事業 – 基礎研究開発分野 –**  
**若手対象型 事後評価総合所見公表用フォーマット**

<p>研究開発課題名（研究機関名）  陽電子マイクロビームによる原子力材料のマイクロ劣化解析(独立行政法人日本原子力研究開発機構)</p> <p>研究開発担当者  独立行政法人日本原子力研究開発機構 総括代表者：河裾厚男</p> <p>研究期間及び予算額：平成17年度～平成19年度（3年計画）89,062千円</p>	
項目	要 約
<p>1. 当初の目的・目標</p>	<p>原子炉構造材料や燃料被覆材料などの劣化診断技術として、世界最高レベルの陽電子マイクロビーム技術を開発することが、本研究開発課題の第一目標である。次いで、各種の熱処理後に高温高圧水中で応力腐食割れを起こしたステンレス(SUS)材や「ふげん」実機の製造方法を忠実に再現した溶接配管、及び、次世代高温ガス炉での使用が検討されているジルコニアカーバイド(ZrC)被覆模擬燃料に対して、開発した陽電子マイクロビーム技術を用いた評価試験を実施する。以下では、各事業項目についての目標と計画を記述する。</p> <p>(1)陽電子マイクロビームの開発</p> <p>①陽電子マイクロビーム収束技術の開発</p> <p>【平成17年度】走査電子顕微鏡技術を転用した陽電子マイクロビーム形成の検討課題として、既設の陽電子ビームライン（エネルギー10-20keVの陽電子ビーム発生が可能）を用いた陽電子ビーム収束実験を行う。この際、新たに真空排気装置を整備して測定試料を超高真空下に設置し、試料表面上においてビーム直径が200<math>\mu</math>m以下に収束できることを確認する。また、陽電子発生部のエミッタンスに対する陽電子ビームの縮小率を評価し、さらなる陽電子ビーム収束のための指針を得る。</p> <p>【平成18年度】陽電子マイクロビーム発生装置を用いて形成した陽電子マイクロビームを試料表面上でビーム直径10<math>\mu</math>m以下に収束する技術を開発する。</p> <p>【平成19年度】陽電子マイクロビーム発生装置において、一次レンズ、中間レンズ及び対物レンズの励磁電流を個別に制御することで、ビーム収束に対する最適条件を割出し、試料表面上で陽電子マイクロビームを5<math>\mu</math>m以下に収束する。</p> <p>②陽電子マイクロビーム二次元走査技術の開発</p> <p>【平成17年度】実機材料の評価のためには、陽電子マイクロビームの二次元走査により局部領域での微視的な劣化を検出することが必要となる。電子ビーム発生装置を用いてビーム軸調整を行い、試料表面上の約5mm<math>\times</math>5mmの領域において、形成した収束陽電子ビームの走査が可能であることを確認する。</p> <p>【平成18年度】形成した陽電子マイクロビームを二次元走査機構及び静電偏向により、試料表面上約100<math>\times</math>100<math>\mu</math>mの領域において線数10<math>\times</math>10本以上で走査する技術を開発する。</p> <p>③陽電子ビーム単色化技術の開発</p> <p>【平成18年度】陽電子マイクロビームを形成するため、陽電子マイクロビーム発生装置のNa-22小型陽電子線源（線源窓径：1mm以下）からの陽電子ビームに対する減速効率を10<sup>-4</sup>以上に維持する技術を開発する。</p>

また、高効率ガンマ線計測装置により減速材効率を測定する。

#### ④陽電子ビームパルス化及び測定回路の構築

【平成 18 年度】陽電子寿命計測、及び、放射線バックグラウンドの抑制のため、陽電子マイクロビームを陽電子ビームパルス化装置により、パルス幅 0.5 ナノ秒以下にパルス化する技術を開発する。また、陽電子寿命計測のための光電子増倍管及び陽電子寿命計測装置を用いた陽電子寿命計測装置、及び、放射線バックグラウンド計測のためのガンマ線計測機器を用いた高効率ガンマ線計測装置を構築する。

#### (2)実証試験及び材料評価

##### 【平成 19 年度】

##### ・腐食環境＋放射線下における粒界亀裂進展の前駆状態の観察

腐食割れを起こし易い溶接部位の品質、腐食割れ後の材料の劣化状態等を、腐食量、照射量と照射温度の関数として蓄積・整理し、陽電子マイクロビームを用いた実機材料劣化診断に資するべく、以下の測定等を行う。「ふげん」において実施された溶接方法を極力忠実に踏襲することで、実機の伝熱管などを模擬したステンレスの溶接試験片を作製する。塩化マグネシウムを用いて腐食試験を行い、腐食が優先的に発生する部位を特定するとともに、この周辺において陽電子マイクロビームを用いた陽電子消滅測定を行う。また、上述の溶接試験片に対して中性子照射環境を模擬したイオンビーム照射を行う。その後、塩化マグネシウムにより試験片を腐食し、粒界亀裂進展の前駆状態の腐食割れ周辺において陽電子マイクロビームを用いた陽電子消滅測定を行う。

##### ・高温・高圧水＋応力環境下における粒界亀裂進展の前駆状態の観察

熱鋭敏化度、即ち、クロム欠乏層の形成と腐食促進の関係を明確にし、現在進められている腐食割れのモデル構築に資するべく、以下の測定等を行う。SUS304 及び熱鋭敏化度を系統的に変化させた SUS316 材を用いて、高温高圧水中で応力腐食割れを誘起させる。これらの試料について、腐食割れ周辺の欠陥の生成状態や化学状態の変化を陽電子マイクロビームにより系統的に調べる。これにより、腐食割れを起こした部位の破面空間（幅：数 nm）が、単純な空隙状態にあるか酸化物で充填されているか、或いは亀裂先端近傍に原子空孔が形成されているか等、詳細な知見を得る。

##### ・早期劣化診断技術の検討と評価

上で得た腐食環境＋放射線下ならびに高温・高圧水＋応力環境下における劣化データを基に、高温・高圧水及び放射線環境下での粒界亀裂進展の前駆状態における劣化モデルを構築するとともに、この劣化モデルと陽電子マイクロビーム劣化診断結果との対応関係を明らかにする。それにより、高温・高圧水＋応力環境下における陽電子マイクロビームによる早期劣化診断技術の確立に資するための検討とともに評価を行う。

##### ・高温ガス炉燃料被覆材料の評価

直径約 1mm に整形した高温ガス炉模擬燃料（核金属を約 30  $\mu$ m 熱分解炭素-シリコンカーバイド（またはジルコニアカーバイド）-熱分解炭素によって保護したもの）に対して、高温・高速中性子照射条件を模擬したイオン照射を行う。その後、各被覆層の分離測定を行うために微粒子を半球状に研磨することにより断面試料を作製する。この断面において陽電子マイクロビームを走査することで膜内と界面における欠陥生成と膜の焼き締め（照射収縮）に関する知見を得る。得られた陽電子マイクロビームによる劣化診断情報を整理・考察することで、燃料の使用限界を明らかにする。

	<p>(3)まとめと評価 本業務のとりまとめとその評価を行う。</p>
<p>2. 研究成果</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 当初予定の成果</li> <li>・ 特筆すべき成果</li> <li>・ 副次的な成果</li> <li>・ 論文、特許等</li> </ul>	<p>(1)陽電子マイクロビームの開発</p> <p>①陽電子マイクロビーム収束技術の開発</p> <p>【平成 17 年度】走査電子顕微鏡技術を転用した陽電子マイクロビーム形成の検討課題として、既設の陽電子ビームライン（エネルギー10keVの陽電子ビーム発生が可能）を用いた陽電子ビーム収束実験を行った。新たに真空排気装置を整備して測定試料を超高真空下に設置し、試料表面上においてビーム直径が <math>100\mu\text{m}</math> 以下に収束できることを確認した。また、陽電子ビームエミッタンスを <math>2\pi\text{mm}\cdot\text{mrad}</math> と決定した。</p> <p>【平成 18 年度】陽電子マイクロビーム装置は、陽電子ビーム発生部、陽電子ビーム輸送部、偏向電磁石、陽電子マイクロビーム形成光学系、試料チャンバー等から構成されている。陽電子マイクロビームを形成するためには、陽電子ビーム発生部において多段電極に印加する電圧配分を最適化する必要がある。そこで、実機的设计に先立って数値シミュレーションを行い、陽電子マイクロビーム形成に必要な陽電子発生方法について検討した。その結果、ビーム引出電極、ウェネルト電極、ソア電極及びアノード電極から構成される多段円孔電極を用いることで、エネルギー20keV、直径1mm以下の陽電子ビームが発生可能との見通しを得た。平成17年度の結果を踏まえ、陽電子ビーム輸送のための磁界レンズとエネルギー選別のための偏向電磁石について設計した。陽電子マイクロビーム形成光学系については、機能性・性能・寸法などを勘案して走査電子顕微鏡（TOPCON-SM300）を使用することとした。このようにして、陽電子マイクロビーム装置の全体設計を行った。</p> <p>小型陽電子線源と固体ネオン減速材を用いて、低エネルギー陽電子を発生させた。陽電子ビーム発生部における円孔電極に印加する電圧を最適化し、エネルギー最大20keV、直径約1mmの陽電子ビームが発生することを確認した。磁界レンズと偏向電磁石を用いて、発生した陽電子ビームが陽電子マイクロビーム形成光学系まで問題なく輸送できることを確認した。陽電子マイクロビーム光学系のパラメータサーベを行い、ビーム収束に最適な条件を探した。ナイフエッジを用いてビーム径を計測した結果、収差補正を行わない場合でも約 <math>14\mu\text{m}</math> まで収束可能であることを確認した。このビーム径には、ナイフエッジ先端部による陽電子ビームの散乱効果があるため、実際のビーム径より過大に計測していると考えられる。</p> <p>陽電子マイクロビーム収束技術の開発では、走査電子顕微鏡技術を転用することで直径 <math>14\mu\text{m}</math> 以下の陽電子マイクロビームの形成に成功した。計測方法として確立されているナイフエッジを用いたビーム径の計測では、上記の理由により、当初の目標のビーム径である <math>10\mu\text{m}</math> が達成できたかを厳密に確認することは困難であるが、ナイフエッジを用いて計測されたビーム径は上記のとおり実際のビーム径より過大に計測されていると考えられることから、当初の目標のビーム径である <math>10\mu\text{m}</math> については、概ね達成した。</p> <p>【平成 19 年度】陽電子マイクロビーム発生装置において、固体ネオン減速材の作製条件の最適化、一次レンズ、中間レンズ及び対物レンズの励磁電流の個別制御、アパーチャ径および挿入位置の最適化など、装置全体の動作条件を追及することで、ビーム径の更なる低減を図った。そ</p>

の結果、試料表面上で陽電子マイクロビームを  $1.9\mu\text{m}$  以下に収束することに成功し、当初目標としていた  $5\mu\text{m}$  以下の空間分解能を達成した。

#### ②陽電子マイクロビーム二次元走査技術の開発

【平成 17 年度】電子ビーム発生装置を用いてビーム軸調整を行い、試料表面上の  $5\text{mm}\times 5\text{mm}$  以下の領域において、上で形成した陽電子ビームの二次元走査が可能であること、及び、空間分解能  $30\mu\text{m}$  で表面上の微細構造が識別できることを確認した。

【平成 18 年度】陽電子マイクロビームを二次元で走査するために、試料を固定して静電偏向によりビームを走査する方法とビームを固定して試料自体を走査する方法が考えられる。陽電子マイクロビームを用いた原子力材料の評価では、比較的大きな領域から微細な領域にスケールダウンする必要があると考えられる。そこで、粗動と微動の両機能を兼ね備えたステップモータを用いて、試料自体を走査することにした。微動では最小ステップが  $1\mu\text{m}$  となるように製作した。また、二次元走査機構と 4) の陽電子消滅測定回路をリンクするシーケンスプログラムを作製し、全ての測定が自動で行えるようなシステムを構築した。

形成した陽電子マイクロビームを試料の適切な位置に照準できることを確認し、校正メッシュを用いてビームの二次元走査を行った。その結果、光学顕微鏡で観察されるものと同等の陽電子消滅（ドップラー拡がり）イメージが得られることを確認した。なお、平成 17 年度の結果と比較して 4 倍以上の走査線で陽電子消滅イメージが得られることを確認した。ビーム径が  $20\mu\text{m}$  程度である場合でも、 $10\mu\text{m}$  程度の構造物が判別できることを確認した。

陽電子マイクロビーム二次元走査技術の開発では、試料表面上の  $100\times 100\mu\text{m}$  以上の領域において、走査線数  $10\times 10$  本以上にて陽電子消滅ガンマ線の二次元走査計測に成功し、当初の目標を達成した。

#### ③陽電子ビーム単色化技術の開発

【平成 18 年度】できる限り輝度の高い陽電子マイクロビームを発生するためには、強力でかつ発生面積の制限された小型陽電子線源と高効率な減速材が必要となる。そこでタングステン銅合金とチタン箔窓から構成される陽電子線源カプセルを設計・製作した。陽電子線源は真空中に設置するため、漏洩が無いことが絶対条件となる。そこで、複数の線源カプセルを製作し、その後加圧試験を行うことで漏洩の無いものを選別した。陽電子線源を極力局部的に形成することが必要であるが、逆に線源密度が高くなるため内部での自己吸収によって放出効率が減少する。また、線源形成領域を小さくすると作業時間が増え、被曝の危険が増える。このような事情から、陽電子線源径は  $1\sim 2\text{mm}$  となるようにした。 $18.5\text{MBq}/100\mu\text{l}$  の  $\text{Na}^{22}$  水溶液をマイクロシリンジにより抽出し、製作した陽電子線源カプセルに滴下・乾固した後、真空中で封止することで、線源強度  $37\text{MBq}$  及び  $55.5\text{MBq}$  の密封陽電子線源を一個ずつ製作することができた。ソレノイドコイルとヘルムホルツコイルから構成される簡易型の陽電子ビームシステムを構築し、製作した陽電子線源を装荷してビーム発生量を計測したところ、 $3\times 10^3\text{ e}^+/\text{sec}$  の陽電子ビームが発生できることが確認された。また、線源の漏洩も全く起こらないことが確認された。

現在の陽電子減速材では、希ガス固体減速材が最も高効率であると考えられる。そこで、陽電子線源窓に希ガス固体が成膜できるように、陽電子線源の冷却システムを設計・製作した。その結果、線源が  $4\text{K}$  まで冷却できることを確認し、線源窓へのネオン固体の成膜に成功した。その結果、タングステン減速材(変換効率:  $5\times 10^{-4}$ )よりも 2 倍以上の効率

(変換効率： $1 \times 10^{-3}$ )で陽電子が単色化できることを確認した。

陽電子ビーム単色化技術の開発では、直径約 1mm の小型陽電子線源の開発に成功するとともに、その表面に固体ネオンガス減速材を形成することで  $10^{-3}$  の変換効率で陽電子ビームが形成できることを確認した。以上より、当初の目標を上回る一桁高い効率の減速材の開発に成功した。

#### ④陽電子ビームパルス化及び測定回路の構築

【平成 18 年度】原子力材料の評価では、放射化に伴うバックグラウンドの低減が必要となる場合がある。また、陽電子消滅ドップラー拡がり測定に加えて、陽電子寿命測定を行う必要がある。これらの要求を満たすためには、陽電子ビームを短パルス化することが必要となる。そこで、二重円筒電極から構成されるダブルギャップ型プリバンチャー、E×B フィルター型チョッパー、空洞共振器を用いたシングルギャップ型メインバンチャー及びパルス化回路（電装系）から構成される陽電子ビームパルス化装置を設計・製作した。その結果、繰り返し周波数 40MHz、パルス幅 150 ピコ秒、及び SN 比  $10^3$  以上の短パルス陽電子ビームが発生することを確認した。

上記の陽電子ビームパルス化は低エネルギー領域・連続磁界中で行う必要があるため、形成されたパルス陽電子ビームを加速しつつ非磁界に引出さなければならない。そこで、加速管と磁界レンズを用いた陽電子ビーム引出系を設計・製作した。これを陽電子ビームパルス化装置の末端に接続して、ビーム引出実験を行ったところ直径 1mm 程度にビームを収束しつつ、非磁界中に陽電子ビームが引き出せることを確認した。

高い効率で消滅ガンマ線計測が可能となるように、大口径の高純度ゲルマニウム検出器を用いた高効率ガンマ線計測装置を構築した。その結果、約 70%の相対効率で計測が行えることを確認した。また、光電子増倍管とサンプリングレート 1GHz のデジタルオシロスコープを用いた陽電子寿命計測回路を統合することで、陽電子寿命計測装置を構築し、時間分解能 180 ピコ秒で陽電子寿命計測ができることを確認した。上述したように、これらの測定が陽電子ビームの二次元走査と同期できるようなシーケンスを構築し、陽電子消滅の空間マッピングが行えるようにした。

陽電子ビームパルス化及び測定回路の構築では、パルス幅約 150 ピコ秒及び SN 比  $10^3$  以上の短パルス陽電子ビームの発生に成功するとともに、約 70%の相対効率を持つ陽電子消滅計測回路を構築した。このことで、当初の目標を達成した。

#### (2)実証試験及び材料評価

##### 【平成 19 年度】

・腐食環境＋放射線下における粒界亀裂進展の前駆状態の観察

腐食割れを起こし易い溶接部位の品質と腐食割れ及び照射後の材料の劣化状態等を整理し、陽電子マイクロビームを用いた実機材料劣化診断に資するべく、以下の測定等を行った。

「ふげん」において実施された溶接方法を極力忠実に踏襲することで、実機の伝熱管などを模擬したステンレスの溶接試験片を作製した。塩化マグネシウムを用いて腐食試験を行い、腐食が発生する部位において陽電子マイクロビームを用いた陽電子消滅測定を行った。また、中性子照射環境を模擬したイオンビーム照射（イオン種：鉄、照射量：3dpa、照射温度：300℃）を行った後に、塩化マグネシウムにより試験片を腐食し、割れ周辺において陽電子マイクロビームを用いた陽電子消滅測定を行った。

その結果、未照射の状態では、溶接位置からやや離れた熱影響部で陽

電子消滅ガンマ線ピーク強度(S パラメータ)の減少が見られた。これは、熱影響部では、溶接時の加熱のために、空孔型欠陥が低減していることを示している。熱影響部ではクロム炭化物が析出すると考えられるが、陽電子消滅特性に与える影響は認められなかった。腐食によって、熱影響部を中心とした領域で亀裂が発生した。亀裂の近傍では陽電子消滅ガンマ線ピーク強度(S パラメータ)が増加したが、その変化は微弱であった。化学的な腐食の影響が強い環境下においては、亀裂進展に先立つ原子空孔が導入は微量であると考えられる。

溶接部、熱影響部、及び、母材の何れの部位においても、イオンビーム照射により陽電子消滅ガンマ線ピーク強度(S パラメータ)が一様に増加した。これは、照射により導入される原子空孔の密度が、部位によらないことを示している。詳細な電子運動量分布の解析から、イオンビーム照射により生成した原子空孔は、単空孔程度の大きさのものであることが判明した。照射後も腐食により亀裂は生ずるが、同一条件で腐食した未照射材と比べ、亀裂の発生は少ない。これは照射硬化による表面状態の変化であると考えられる。亀裂近辺においても照射による空孔型欠陥の影響が強くなるが、それが亀裂の進展に影響しているようには見えない。このことから、化学的な腐食による亀裂進展には原子空孔が果たす影響は強くないと考えられる。

・高温・高圧水+応力環境下における粒界亀裂進展の前駆状態の観察  
熱鋭敏化度、即ち、クロム欠乏層の形成と腐食促進の関係を明確にし、現在進められている腐食割れのモデル構築に資するべく、以下の評価を行った。

SUS304 材、及び、熱鋭敏化度を系統的に変化させた SUS316 材を用いて、高温・高圧水中で定加重を印加し応力腐食割れを誘起させた。これらの試料について、腐食割れ周辺の欠陥の生成状態や化学状態の変化を陽電子マイクロビームにより系統的に調べた。その結果、いずれの試料においても亀裂近傍で陽電子消滅ガンマ線ピーク強度(S パラメータ)が増加し、亀裂進展に先立ち空孔型欠陥が導入されていることが明らかとなった。電子運動量分布を詳細に解析したところ、この空孔型欠陥は、マイクロポイドのような空孔集合体ではなく、単一空孔のような微細な原子空孔であることが明らかになった。熱鋭敏化度が高く亀裂進展が容易である条件においては、S パラメータは明瞭に上昇した。一方、熱鋭敏化度が低く亀裂進展がない試料については、S パラメータの変化は不明瞭であった。このことは、亀裂進展に先立つ空孔型欠陥の生成が、熱鋭敏化度が高いほど、広範囲にわたっていることを示している。この知見は、熱鋭敏化度が高いほど亀裂先端部に蓄積されるひずみが小さく、容易にかつ多数の分岐を伴って亀裂が進展する事実と矛盾しない。さらに、亀裂上では、陽電子消滅ガンマ線ピーク強度(S パラメータ)が低下していることが明らかになった。これは、腐食割れを起こした部位の破面空間が、単純な空隙状態にあるというより、酸化物などの不純物で充填されている可能性が高いことを示している。このような特徴は、熱鋭敏化度の高い条件において、より明瞭であることが分った。

以上より、熱鋭敏化度が高いほど、応力腐食割れ周辺で原子空孔が生成され易いことが明らかになった。

・早期劣化診断技術の検討と評価

上で得た腐食環境+放射線下ならびに高温・高圧水+応力環境下における陽電子マイクロビーム劣化診断データを基に、高温・高圧水及び放射線環境下での粒界亀裂進展の前駆状態における劣化モデルの構築を試みた。

上の結果は、腐食環境と応力集中により亀裂を発生させた場合、亀裂が起こる前駆状態として原子空孔が導入されることを示している。近年提唱されているタイトクラックモデルでは、原子空孔の生成が予測されている。その原因として、亀裂先端での結晶の優先的な融解、表面酸化、転位移動、亀裂先端部での静水圧応力、冷間加工、結晶粒界、照射影響などが考えられている。高温・高圧水中で発生した亀裂においては、腐食環境下で発生した亀裂よりも空孔型欠陥の影響が大きい。このことから、高温・高圧水中では静水圧や印加応力による広範囲な空孔の導入が先行し、割れが進行すると考えられ、一方で腐食環境下では金属融解や表面酸化といったより局所的な反応により空孔型欠陥が導入され割れが進行すると考えられる。以上のように、空孔型欠陥の導入には環境による相違があるのではないかと考えられる。

以上より、本事業で開発に成功した陽電子マイクロビームは、亀裂未満の劣化を非破壊に観察できるという点で早期劣化診断に役立つ知見を与え、今後、さらに高強度・高信頼性をもつ次世代の原子力材料の開発に有用である。

#### ・高温ガス炉燃料被覆材料の評価

直径約 1mm に整形した高温ガス炉模擬燃料(模擬燃料核を約 30  $\mu$ m 厚の熱分解炭素およびジルコニアカーバイド(ZrC)膜によって保護したもの)に対して、陽電子マイクロビーム走査を行い、ZrC に関する基本的なデータの収集を行った。また高速中性子照射条件を模擬したプロトン照射(照射エネルギー: 20MeV、照射量:  $1.6 \times 10^{-3}$  dpa)を行った。各被覆層の分離測定を行うために、微粒子を半球状に研磨して断面試料を作製した。これらの試料において陽電子マイクロビームを走査し、ZrC 内に生成する欠陥の検出および特性評価を行った。

その結果、燃料被覆材として形成された ZrC 膜は、現状では単結晶 ZrC ほどの結晶性を有しておらず、多量の空孔型欠陥を含んでいることが明らかとなった。電子運動量分布の詳細な解析により、これらは Zr 欠損をより多く含む Zr-C 空孔の複合欠陥であることが示唆された。また、ZrC 膜の成長条件である C/Zr 比や内包されている遊離炭素量と陽電子消滅ガンマ線強度(Sパラメータ)に正の相関が見られた。これは、炭素が多いほど Zr が不足し、上記のような複合欠陥が増大することを示唆している。熱処理によって結晶性が向上することが確認されたが、原子空孔は完全には除去できないことが分かった。ZrC 膜と内部の模擬燃料核との界面では、特異な S パラメータ変化は見られず、界面に特有の欠陥の蓄積などはないと考えられる。しかしながら、ZrC 膜内の厚さ方向に関して S パラメータはなだらかに変化しており、不均一な分布をもって空孔型欠陥が存在していることが分かった。このような空孔濃度の違いが、膜の焼き締りを起こす一因であると考えられる。プロトン照射後には、陽電子消滅ガンマ線強度(Sパラメータ)が増加し、空孔型欠陥が生成することが見いだされた。しかし、照射前から材料内に存在していた空孔型欠陥の影響が消失するわけではなく、照射により生ずる欠陥は新たに材料に付加され蓄積していくものであることが分かった。照射材の断面を観測すると、照射前と同様に界面に特異な S パラメータ変化は見られず、また ZrC 層および熱分解炭素層の両方で S パラメータが同様に変化していることから、照射損傷による層間ひずみは発生しにくいものと考えられる。

#### (3)まとめと評価

世界最高レベルの収束度(最小ビーム径1.9  $\mu$ m)を持つ陽電子マイク

ロビーム装置の開発に成功した。さらに本装置を用いて、実機配管溶接試験片と熱鋭敏化ステンレスについて、応力腐食割れ及びイオン照射後に局部に発生した亀裂の状態観察が可能であることが実証できた。さらに、従来は難しかった亀裂進展に伴う空孔型欠陥の生成を確認することができた。このようにして得られた知見は、応力腐食割れメカニズムの解明において役立てられると考えられる。本事業で実施した亀裂観察は、複雑なメカニズムを持つ応力腐食割れの一部条件を観察したに過ぎない。特に、割れが生じにくいとされる低炭素ステンレス鋼の亀裂進展メカニズムの解明には多くの期待が寄せられている。陽電子消滅法は本質的に空孔を高感度に検出できる技術であるため、従来の評価法では検出できないような微小欠陥を検出できると考えられる。そのため、低炭素ステンレス鋼のように劣化が生じにくい材料であっても、その初期段階で評価が可能になると考えられ、評価期間の短縮に貢献すると考えられる。開発した陽電子マイクロビームは、一方で、微小な模擬燃料の評価にも役立つことが実証できた。即ち、被覆膜それ自身と燃料-被覆膜界面の品質評価が可能となった。このように、今後、革新的原子力システムを開発するにあたって重要となる材料の劣化解析に対して、共通基盤技術として陽電子マイクロビーム技術の開発に成功した。

世界最高レベルの収束性能をもつ陽電子マイクロビームの開発に成功することで、原子力材料の劣化過程について顕微評価が可能になった。この技術を用いて、世界で初めて SUS 材の応力腐食割れ問題や燃料被覆材の品質に関する評価を進めた結果、亀裂先端部の原子空孔の生成や ZrC 被覆膜の内包される原子空孔集合体と品質の関係について、新たな知見を得ることに成功した。

なお、期間内に得られた成果についての実施した外部発表は以下の通り

**【論文発表】**

- (1) ‘Design of a positron microbeam using magnetic lenses’, M. Maekawa, R. Yu and A. Kawasuso, Phys. Stat. Sol. (c)4(2007)4016-4019.
- (2) ‘Positron microscopic analysis of crack failure in stainless steels’, R. Yu, M. Maekawa, Y. Miwa, T. Hirade, A. Nishimura and A. Kawasuso, Phys. Stat. Sol. (c)4(2007) 3577-3580.
- (3) ‘Development and application of positron microbeam’, M. Maekawa, A. Kawasuso, T. Hirade and Y. Miwa, Trans. Matter Res. Soc. Jpn. 33(2008)287-290.
- (4) ‘Construction of a positron micro-beam in JAEA’, M. Maekawa and A. Kawasuso, Appl. Surf. Sci. in press.

**【口頭発表】**

- (1) ‘陽電子ビームの集束改善と応用研究’、于潤升、前川雅樹、河裾厚男、2006 年春季 第 53 回応用物理学関係連合講演会 平成 18 年 3 月 23 日
- (2) ‘電子レンズを用いた高空間分解能陽電子ビームの形成’、前川雅樹、于潤升、河裾厚男、第 43 回アイソトープ・放射線研究発表会

平成 18 年 7 月 8 日

(3) ‘陽電子マイクロビーム装置の開発’、前川雅樹、河裾厚男、京都大学原子炉実験所専門研究会「陽電子科学とその理工学への応用」

平成 18 年 11 月 18 日

(4) ‘陽電子マイクロビーム装置の開発と性能評価’、前川雅樹、河裾厚男、第 44 回放射線・アイソトープ研究発表会 平成 19 年 7 月 5 日

(5) ‘高空間分解陽電子マイクロビームの開発’、前川雅樹、河裾厚男、京都大学原子炉実験所専門研究会 平成 19 年 11 月 17 日

(6) ‘走査型陽電子顕微鏡の開発’、前川雅樹、河裾厚男、平出哲也、三輪幸夫、第 55 回応用物理学関係連合講演会 平成 20 年 3 月 27 日

(7) ‘走査型陽電子顕微鏡の開発と原子力材料評価への応用’、前川雅樹、河裾厚男、平出哲也、三輪幸夫、日本顕微鏡学会第 64 回学術講演会 平成 20 年 5 月 21 日

(8) ‘陽電子マイクロビームを用いた原子力材料の評価’、前川雅樹、河裾厚男、平出哲也、三輪幸夫、第 45 回放射線・アイソトープ研究発表会 平成 20 年 7 月 4 日

**【ポスター発表】**

(1) ‘Design of a positron microbeam using magnetic lenses’, M. Maekawa, R. Yu and A. Kawasuso, 14th International Conference on Positron Annihilation (ICPA14), July22-28, 2006, Hamilton, Canada.

(2) ‘Positron microscopic analysis of crack failure in stainless steels’, R. Yu, M. Maekawa, Y. Miwa, T. Hirade, A. Nishimura and A. Kawasuso, 14th International Conference on Positron Annihilation (ICPA14), July22-28, 2006, Hamilton, Canada

(3) ‘Development and application of positron microbeam’, M. Maekawa, A. Kawasuso, T. Hirade and Y. Miwa, Trans. Matter Res. Soc. Jpn. 33(2008)287-290.

(4) ‘Construction of a positron micro-beam in JAEA’, M. Maekawa and A. Kawasuso, The 11th International Workshop on Slow Positron Beam Techniques for Solids and Surfaces(SLOPOS11), France, 9-13, July, 2007.

(5) ‘Application of positron microprobe for nuclear materials’, M. Maekawa, A. Kawasuso, T. Hirade, Y. Miwa and A. Nishimura, 9th International Workshop on Positron and Positronium Chemistry (PPC9), Wuhan, China, May 11-15, 2008.

**【プレス発表】**

「世界最高レベルの収束度を持つ小型陽電子顕微鏡を開発－原子力材料のミクロな劣化診断が可能に」－平成 19 年 12 月 7 日、掲載紙 上毛新聞 (12/7)、日刊工業新聞(12/7)、日経産業新聞(12/7)、電気新聞(12/7)、朝日新聞科学欄(12/14)

<p>3. 事後評価</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 目的・目標の設定の妥当性</li> <li>・ 研究計画設定の妥当性</li> <li>・ 研究費用の妥当性</li> <li>・ 研究の進捗状況</li> <li>・ 研究交流</li> <li>・ 研究者の研究能力</li> </ul>	<p><b>【目的・目標の設定の妥当性】</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 原子炉材料の局所的な空孔型欠陥による劣化状態の評価に陽電子消滅法を適用できるようにするため、従来に比し陽電子ビームを大幅に収束させた陽電子マイクロビーム装置を開発する目的と目標の設定根拠は妥当である。一方、開発した装置の実証試験として、陽電子消滅法が空孔型欠陥を評価できるとの前提に立って、これまで評価されたことのない IGSCC を発生させた SUS 材やイオン照射した ZrC の特性評価を行うことを計画した目的・目標の設定には検討の余地があったと考えられる。</li> </ul> <p><b>【研究計画設定の妥当性、研究の進捗状況】</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 着実に段階をおって装置を開発するとともに、実際の系に応用し成果を挙げた点はすばらしく、本事業は計画通り遂行されたものと判断する。</li> </ul> <p><b>【研究交流、人材育成、研究者の研究能力、成果】</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 陽電子マイクロビーム装置を開発し、世界最高レベルの収束性能をもつ陽電子マイクロビームを達成したことは、素晴らしい成果であり、それを使って、き裂先端での空格子の増大等興味深い結果が確認できた。また、SCC と疲労亀裂とで亀裂先端での状態が異なることを見いだしたのは機構を検討する上での良い成果であると考えられる。原子力研究以外にも波及効果がありそうで期待がもてる。</li> <li>・ 得られた成果の外部発信は精力的に進められており、人材育成における成果はあったと思われる。</li> </ul>
<p>4. その他</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ 応力腐食割れに限らず、き裂先端では過度な塑性変形が生じていると推測され、塑性変形に伴う転位の相互作用により、非平衡濃度以上の原子空孔が存在することは知られている。粒界亀裂進展の結果として空孔濃度が上昇すると考えられることから、亀裂の前駆現象として、原子空孔の濃度の上昇を捉えることの妥当性を詳細に検討して欲しい。特に、診断の場合、き裂先端での局所的な塑性変形の開始と亀裂進展開始との時間的なずれに関する検討は重要である。また、亀裂伝播と亀裂発生における原子空孔の役割も区別して考察すべきであると思われる。鉄鋼材料中での原子空孔の移動度は、200℃付近において、急激に変化するため、き裂が発生あるいは進展する温度の影響を検討することも重要である。</li> </ul>

5. 総合評価	<p>・当初想定した目標以上のものが達成でき、優れた成果が挙げられている。また、現場適応性や汎用性に関する検討も行われ、今後の展開についての課題も整理されており、よくまとまっている。特に、世界最高レベルの収束度を持つ陽電子マイクロビーム装置の開発に成功した点が高く評価される。今後は、ビーム強度の向上に取り組み、本技術の適用分野やそのために必要なビームの条件について様々な観点からの検討を期待する。</p> <p>・陽電子マイクロビームの収束技術の開発は局所的な原子空孔型欠陥の分布状況を調べるために不可欠な技術であり、本研究の意義が認められる。</p> <p><input checked="" type="radio"/> A) 想定以上の成果が得られ、今後に大いに期待できる。 <input type="radio"/> B) 想定通りの成果が得られ、今後が期待できる。 <input type="radio"/> C) 想定通りの成果が一部得られなかった。 <input type="radio"/> D) 想定通りの成果が全く得られなかった。</p>
---------	--