

原子カシステム研究開発事業(安全基盤技術研究開発)
成果報告会 (令和5年3月16日)

革新炉材料開発のための次世代
ナノスケール解析法の開発と
照射後実験研究の国際ハブの構築

研究代表者: 永井康介(東北大金研)

背景(なぜ本研究が今必要か?なぜ我々か?)

東北大金研大洗センター

- 1969年の設立当初から、原子力材料研究の共同利用施設として運営
- 中性子照射後実験が出来る、我が国でほぼ唯一の学術研究開発施設
- JOYO, JMTRの停止(廃炉)以降は、海外炉と個別に学術協定を結び、代替照射
- 世界のPIE(照射後実験)センターを目指した研究の活性化と、共同利用環境の整備

国際的な施設共用と共同研究により、限られた資源(予算・施設)で最大限の成果の創出へ

→ 国際的な照射後実験研究の拠点施設へ

本課題採択後、金研が「国際共同利用・共同研究拠点」に採択!

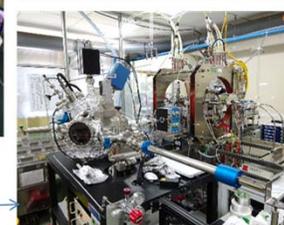


ホットラボ棟での主要核種使用量
(保有全38核種、許可291核種)

核種	一日最大使用数量	保有量
^{54}Mn	320GBq	34.7GBq
^{60}Co	400GBq	41.1GBq
^{63}Ni	50GBq	43GBq
^{95}Zr	150GBq	1.7GBq
$^{110\text{m}}\text{Ag}$	300GBq	2.46GBq
^{181}W	160GBq	2.88GBq
^{185}W	2TBq	9.86GBq
^{55}Fe	10TBq	739GBq



最先端の分析装置群とそれを使いこなす教員・スタッフ



小型高密度プラズマ照射
(C-DPS)つき昇温脱離装置(IG-TDS)

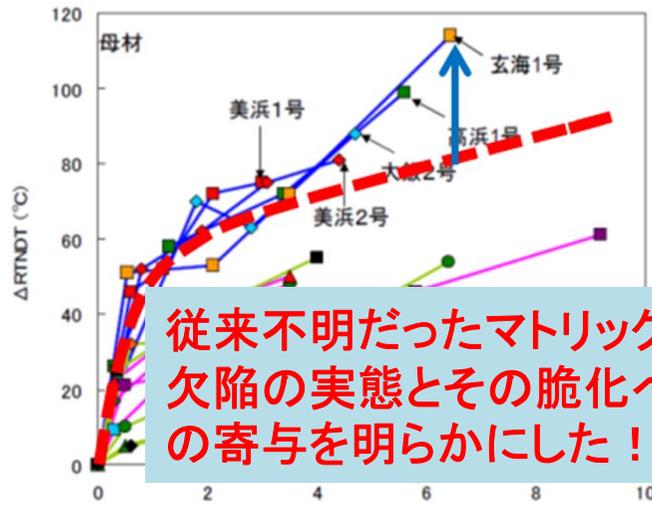
- 装置群のほとんどは、外部資金により導入・開発、他の研究期間との共同研究により開発した装置をセンターの管理区域に導入
- フランスや米国で大洗センターをモデルにした施設の設定

本研究開発の着想に至った経緯

原子カシステム:H24年~27年「原子炉容器鋼の微視的損傷機構の解明と新しい脆化予測モデルの構築」

事後評価:S

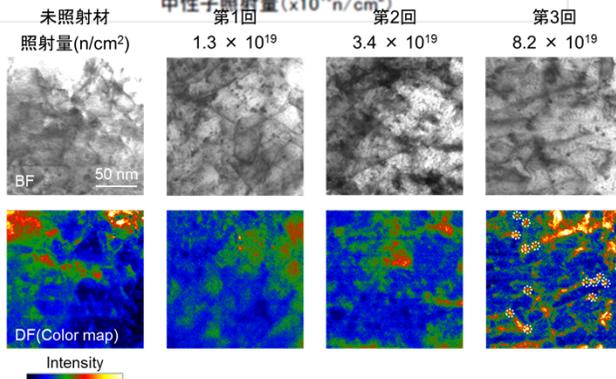
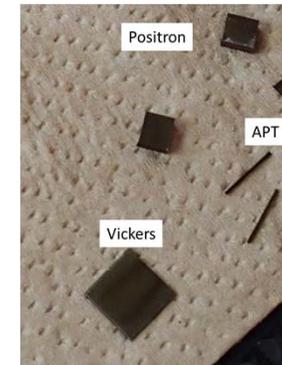
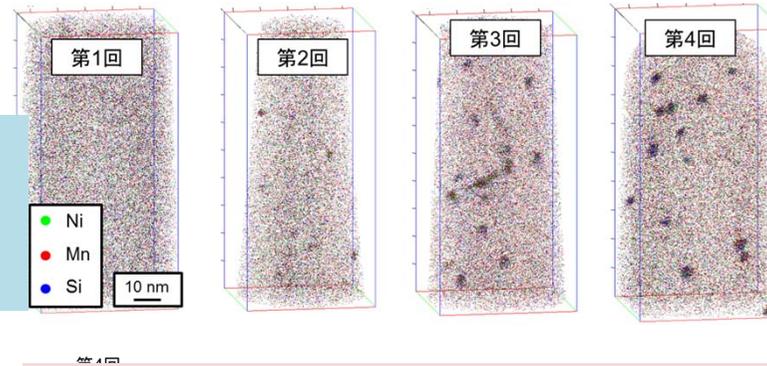
予想を超える延性脆性遷移温度の上昇



従来不明だったマトリクス欠陥の実態とその脆化への寄与を明らかにした!

3次元アトムプローブ(APT)
陽電子消滅法
透過電子顕微鏡

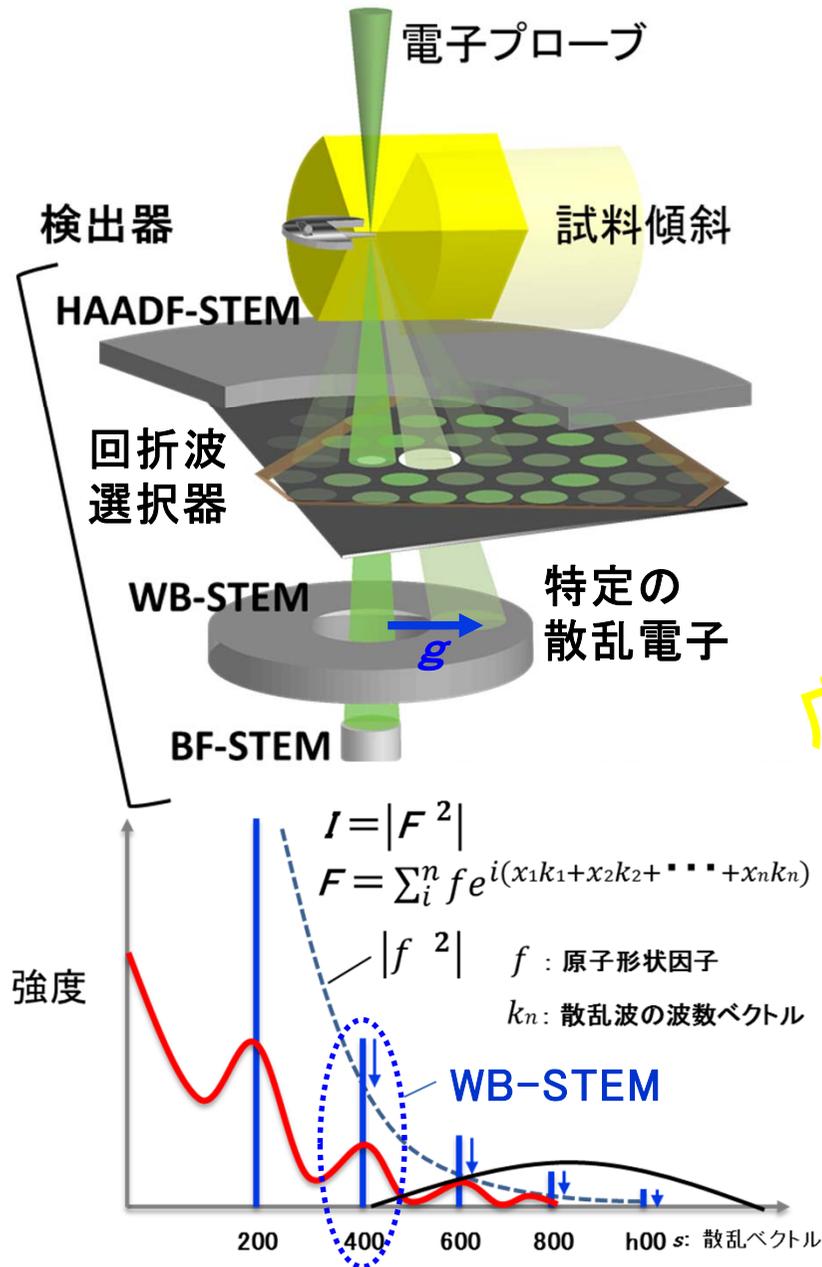
実機監視試験片
シミュレーション
機械試験



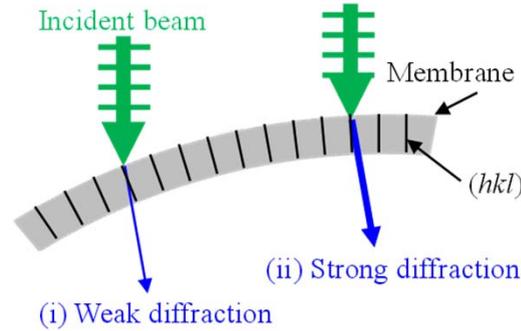
今後の研究開発の鍵は、従来法では困難だった微細な照射欠陥集合体の解析を可能にし、材料劣化のメカニズムを解明すること。

この研究開発を通じて、WB-STEM法の着想と開発

WB-STEM (ウィークビーム走査透過電子顕微鏡) 法とは

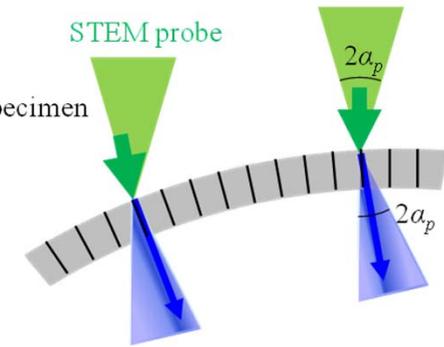


従来のTEM法



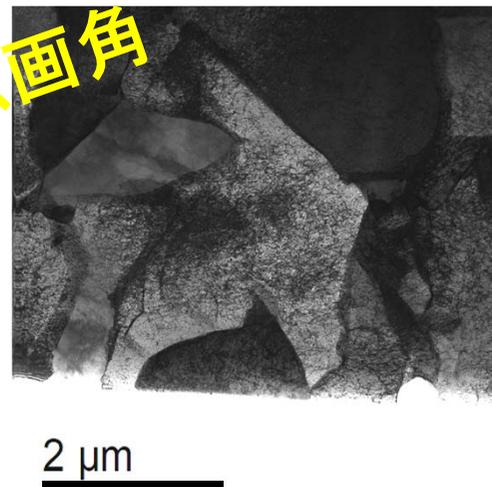
僅かなたわみで強度変化
実用材料観察が困難

WB-STEM法

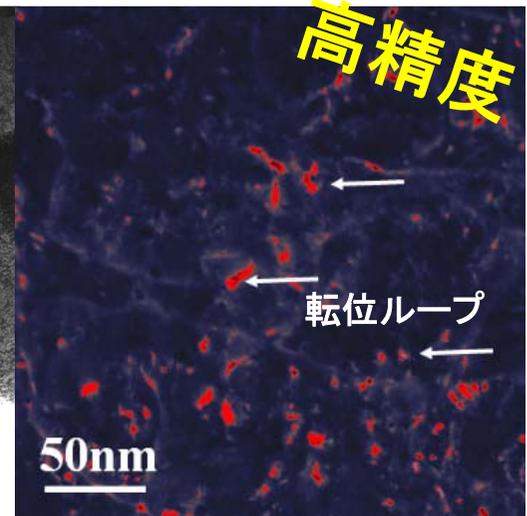


回折波選択器を通る
電子の強度が一定

広画角



高精度

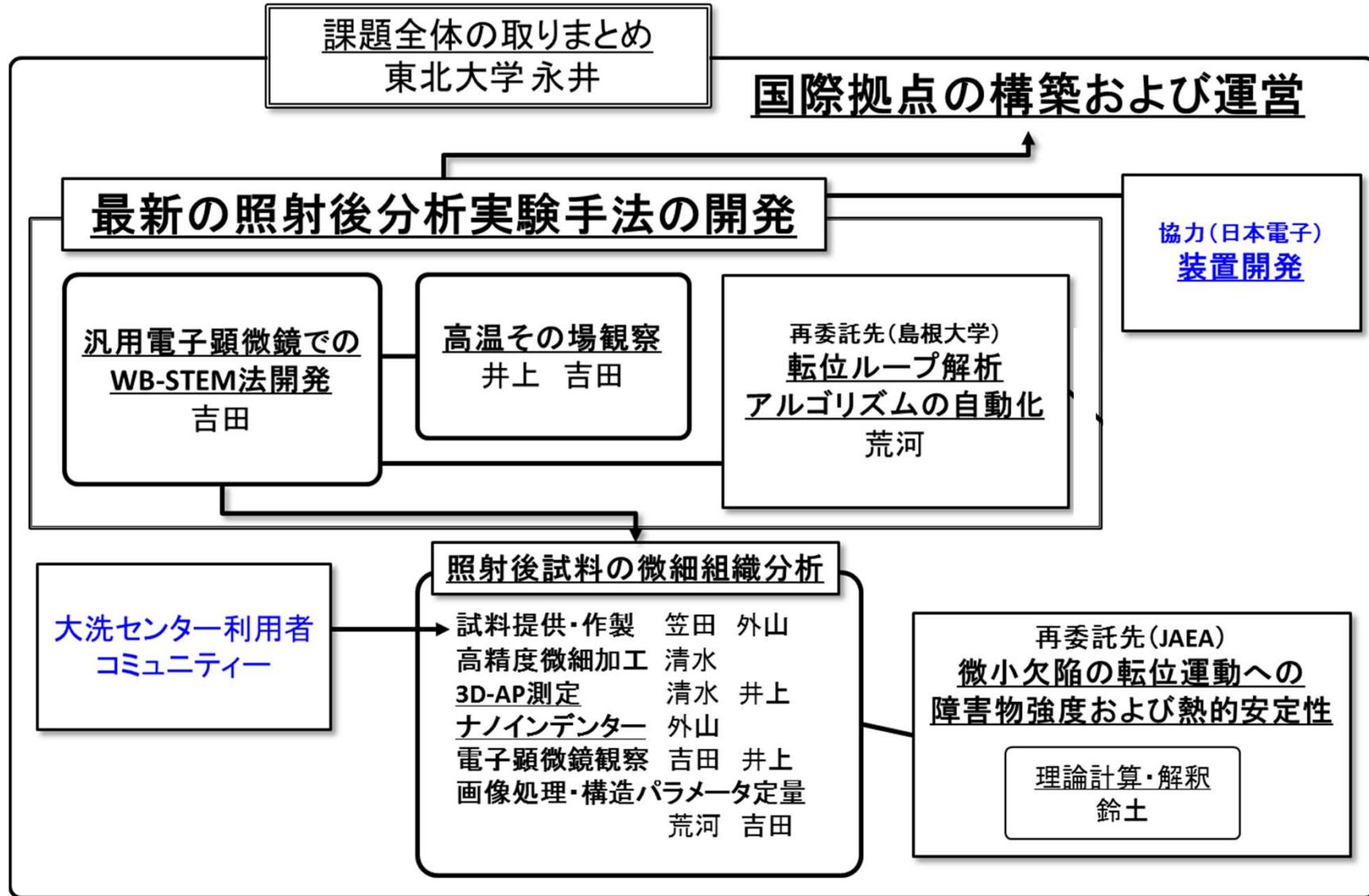


粒界炭化物や格子整合析出物、転位ループ、ナノ空隙を内包する原子力構造材料に有効な手法

本研究開発の目的

- 世界的に注目されている**WB-STEM法**:従来は高価な収差補正電子顕微鏡のみで可能 → 安価で**汎用の電子顕微鏡**で可能にして、多くの革新炉材料研究者に使えるようにする。
- 高価な顕微鏡では実質的に困難だった**高温その場観察**を可能にし、照射組織の安定性を明らかにできるようにする。
- 機械学習を活用した**顕微鏡画像の自動解析のためのソフトウェア開発**を行う。
- **微細組織から機械的特性につなげるシミュレーション**→機械的特性との関係→材料の観点から安全性の向上。
- これらの新規開発した手法に、我々のもっている手法(3次元アトムプローブ、陽電子、ナノインデントなど)を組み合わせ、**国際的なPIE研究拠点**にする

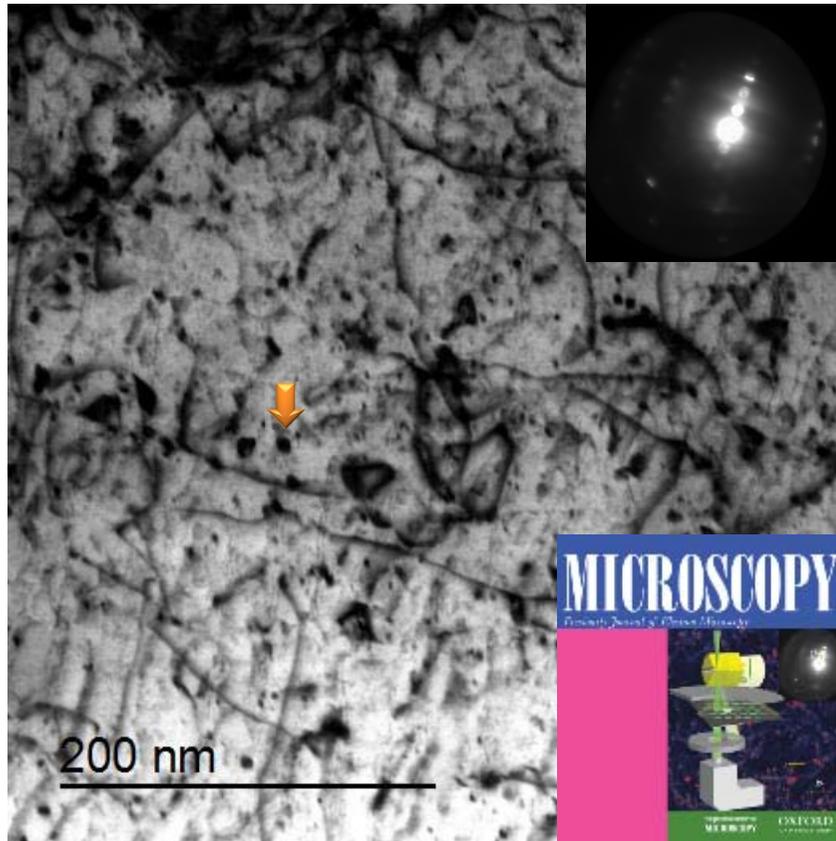
研究開発体制



「汎用電子顕微鏡による照射試料中微小欠陥の広領域高分解能観察手法の開発」

WB-STEMの特徴

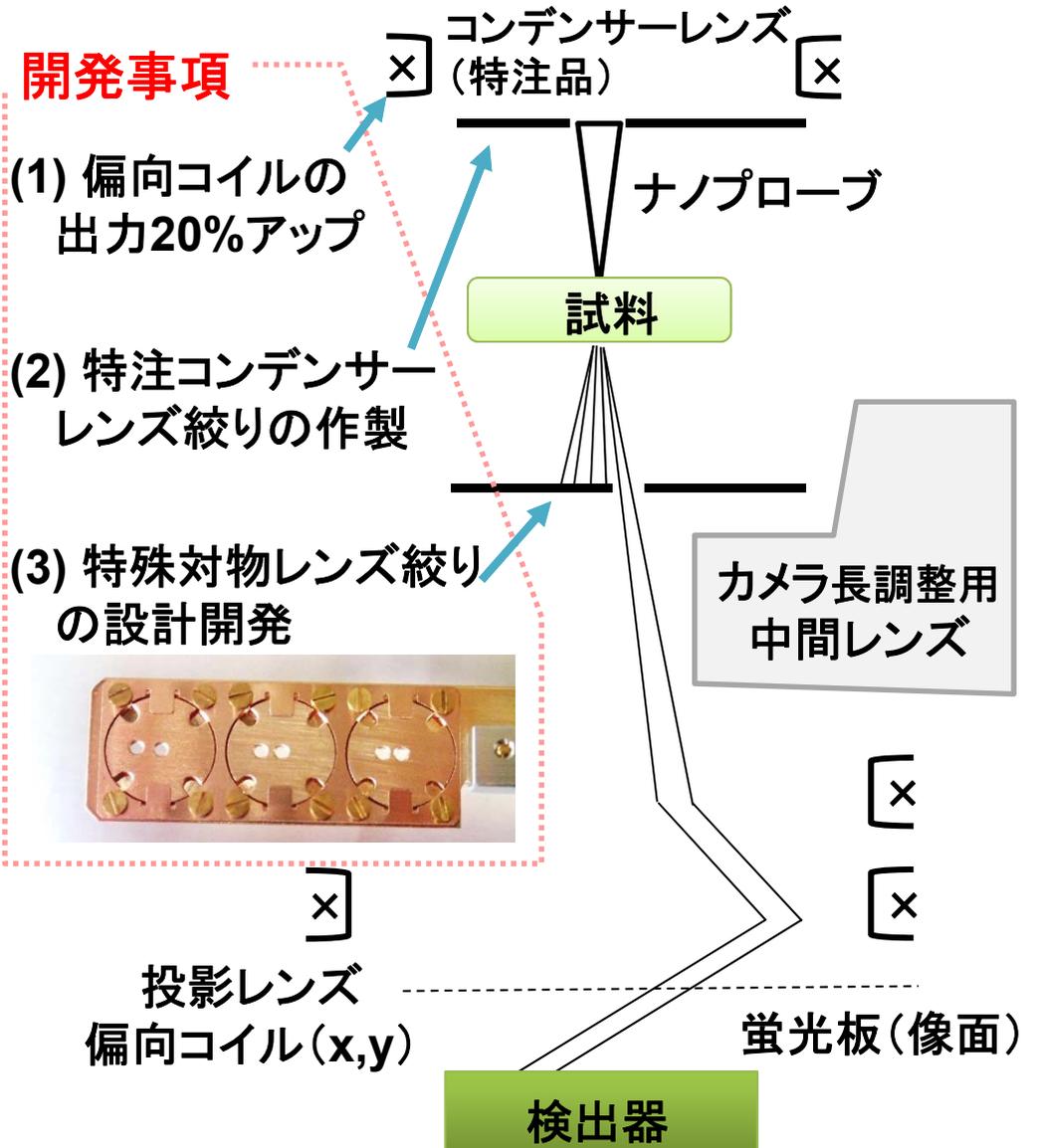
- ・広い観察領域 ($5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$)
- ・精細な欠陥イメージング ($1\text{nm}/\text{pixel}$)
- ・長いフォーカス深度 ($\text{DOF} \geq 484\text{nm}$)



K. Yoshida et al., *Microsc.* 66 (2017) 120

T. Toyama et al., *ATOMO* Σ 60 (2018) 231

収差補正TEM \Rightarrow 汎用WB-STEM(製品化)

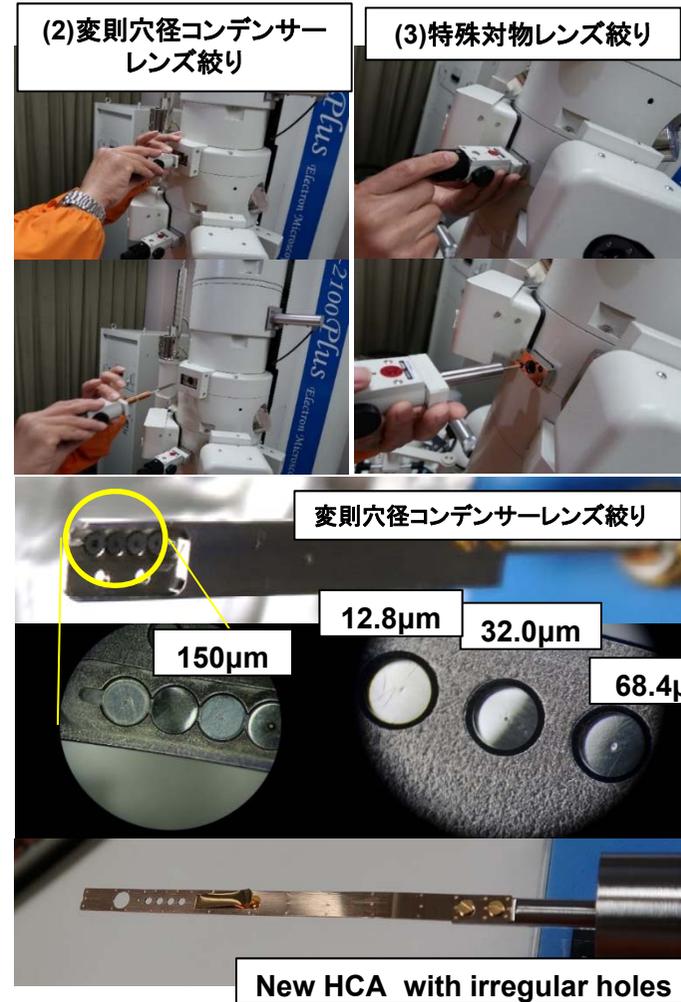


汎用電子顕微鏡用に新たなコイル制御基盤、絞りなどをインストール



(1) 偏向コイル制御基盤

New control board was installed. Applied voltages for CL deflector coils were 1.6 times increased.



(2) 変則穴径コンデンサーレンズ絞り

(3) 特殊対物レンズ絞り

変則穴径コンデンサーレンズ絞り

150µm

12.8µm

32.0µm

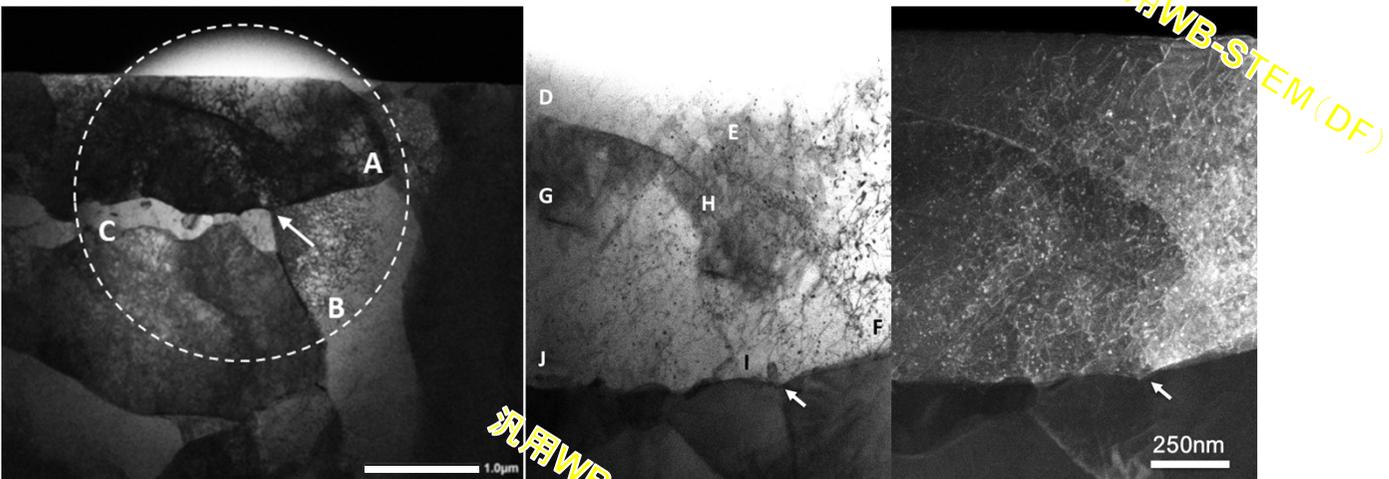
68.4µm

New HCA with irregular holes

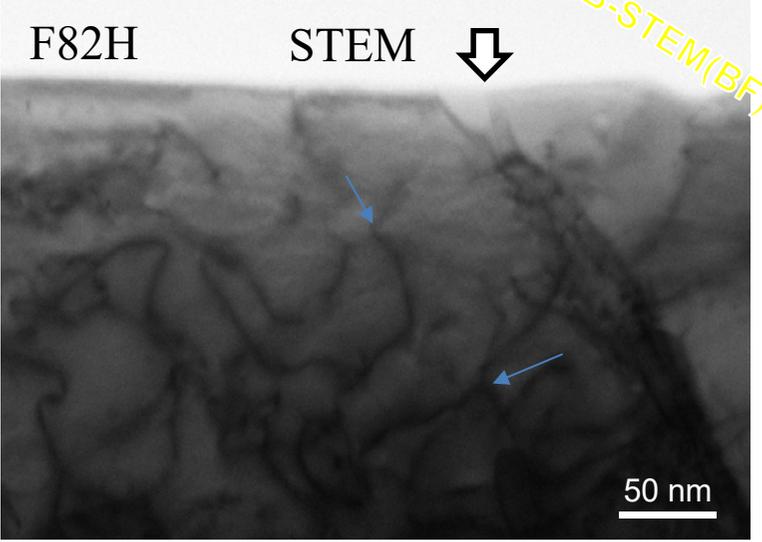
大洗センター既設の汎用電子顕微鏡でWB-STEMを実現するために、(1)従来より約1.6倍照射系非点補正電流を多く流せる電源基板の導入した。(2)特注で変則穴径コンデンサーレンズ絞りと(3)特殊対物レンズ絞りを設計し、開発した。

「汎用電子顕微鏡による照射試料中微小欠陥の 広領域高分解能観察手法の開発」の応用例

PWR炉監視試験片
の汎用WB-STEM像



F82H鋼(イオン照射材)
のWB-STEM像



開発成果の**市販化**

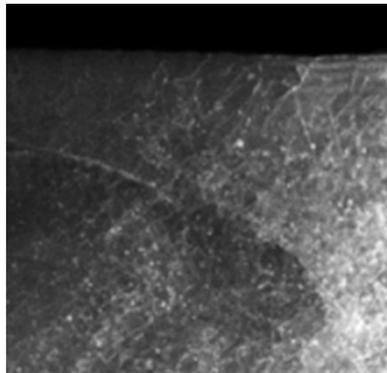
- WB-STEM
パッケージ
- EM-Z16081TSBFAP
 - EM-Z03270TCLSUP
 - EM-Z181951CLAPD
 - EM-Z181952HCOAF

導入済み機関：
九州大学・東北大学・名古屋工業大
日本核燃料開発・古川電工など
(JAEAなどからも問い合わせ多数)

精密な転位組織分析を実現するWB-STEMパッケージを市販化、国内では5件の販売実績。
海外機関からのニーズに対応するため、WB-STEM(エンベデッドシステム)も協議を開始。

膜厚や結晶方位解析ソフトウェアも開発

WB-STEM観察



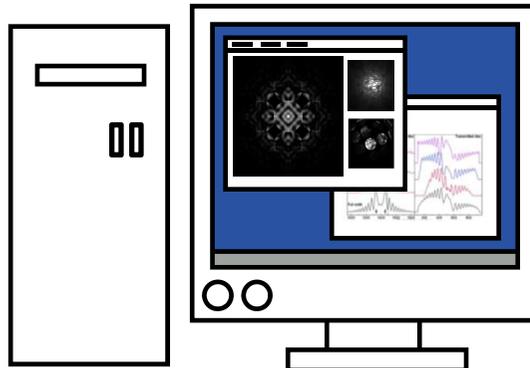
画像解析・定量

出力A:
転位ループの
サイズ分布と
数密度 etc

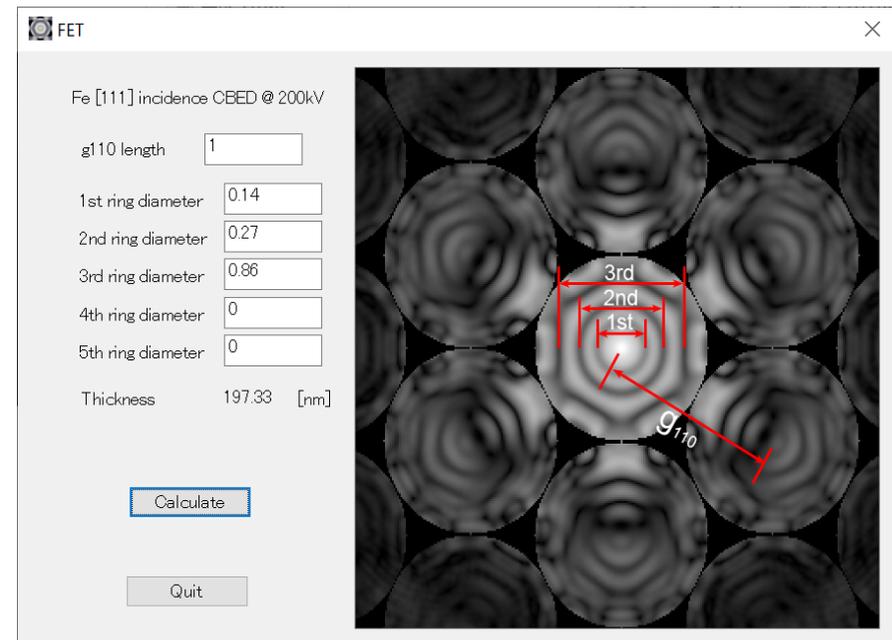
バッチ
処理

機械学習のためのデータベースの構築

収束電子線回折図形の自動解析による
局所膜厚と結晶方位の計測



出力B:
膜厚
結晶方位

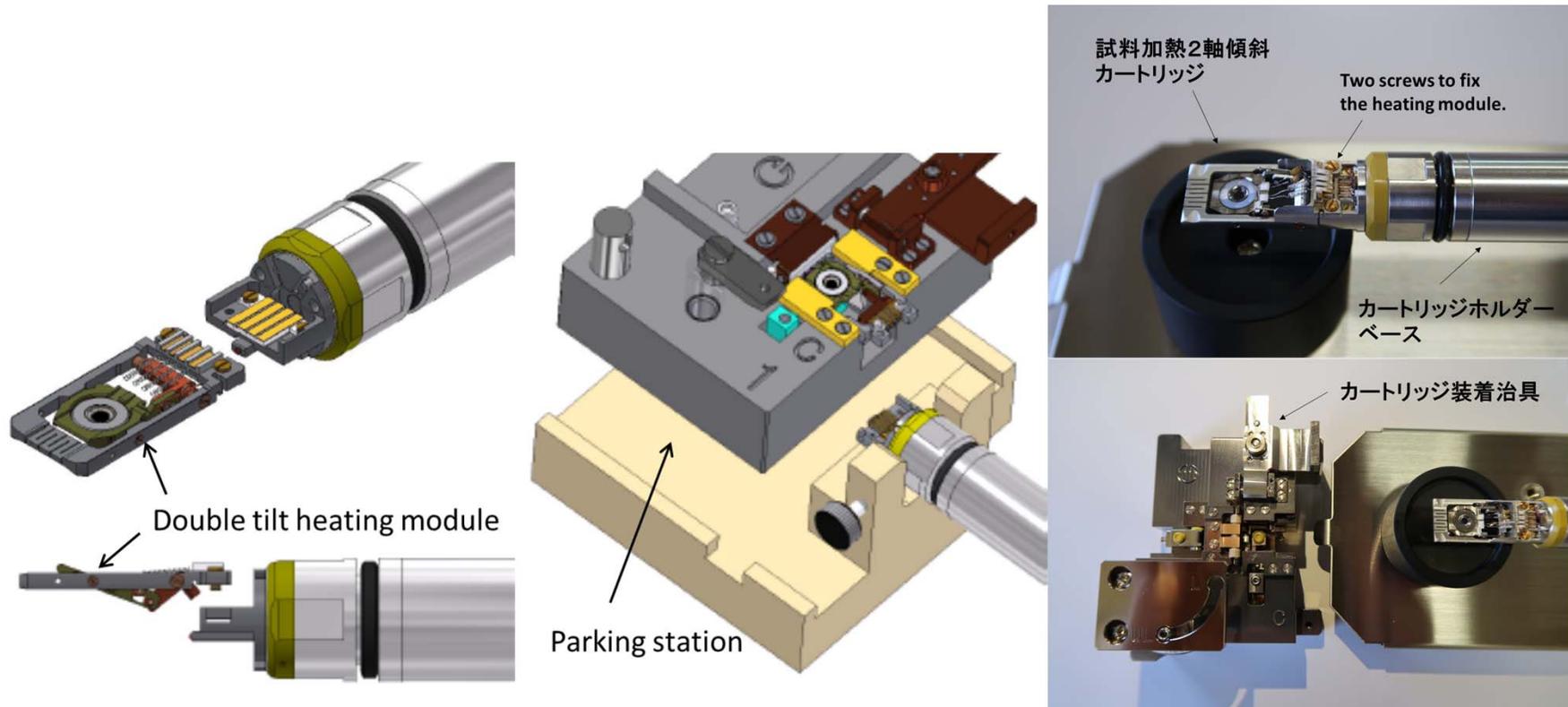


観察視野の膜厚計測ソフト: FeT
観察視野の結晶方位解析ソフト: Quint2

多量のWB-STEM画像をバッチ処理するための膜厚・結晶方位解析ソフトを開発した。
国際ハブとして利用者に公開し、微小欠陥計測の精度と利便性が飛躍的に向上した。

「放射化試料の電子顕微鏡内高温その場観察手法の開発」

500°Cの試料温度制御下で、転位観察に必要とされる試料傾斜($\pm 15^\circ$)と2Åの空間分解能を有し、かつ故障時にオンサイト修理可能な新しい試料加熱2軸傾斜ホルダーを開発。



放射化試料のための汚染防止機能を有する**着脱式試料加熱カートリッジを開発**した。2020年度より試作品を使ってF82H鋼など次世代炉材のその場観察実験が始めた。2021年には、製品版が完成し、日本電子から販売が開始している。

「放射化試料の電子顕微鏡内高温その場観察手法の開発」の成果

予備実験チャンバー作製

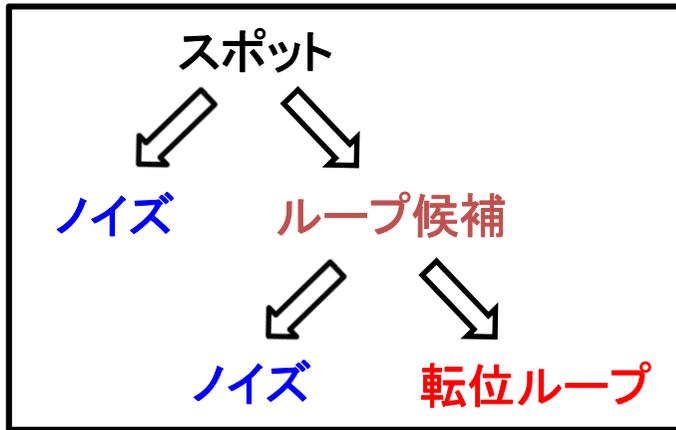
- ・電子顕微鏡内部の環境を模擬して、のぞき窓から加熱状況を確認可能な機構を有する



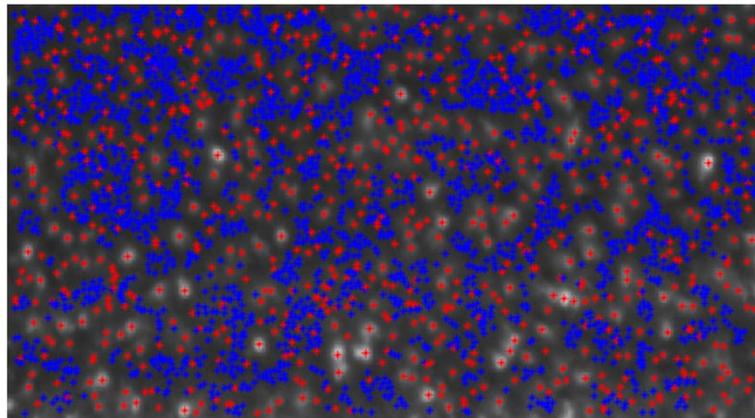
加熱ホルダーの性能評価、放射化試料の汚染対策および安全性確認に活用している。
新規(海外)研究者には、**実験チャンバーでの事前レクチャー**を施すことで、**電子顕微鏡の故障を防ぐ**効果もある。

自動解析アルゴリズムの開発(島根大学)

機械学習を用いた転位ループ分離

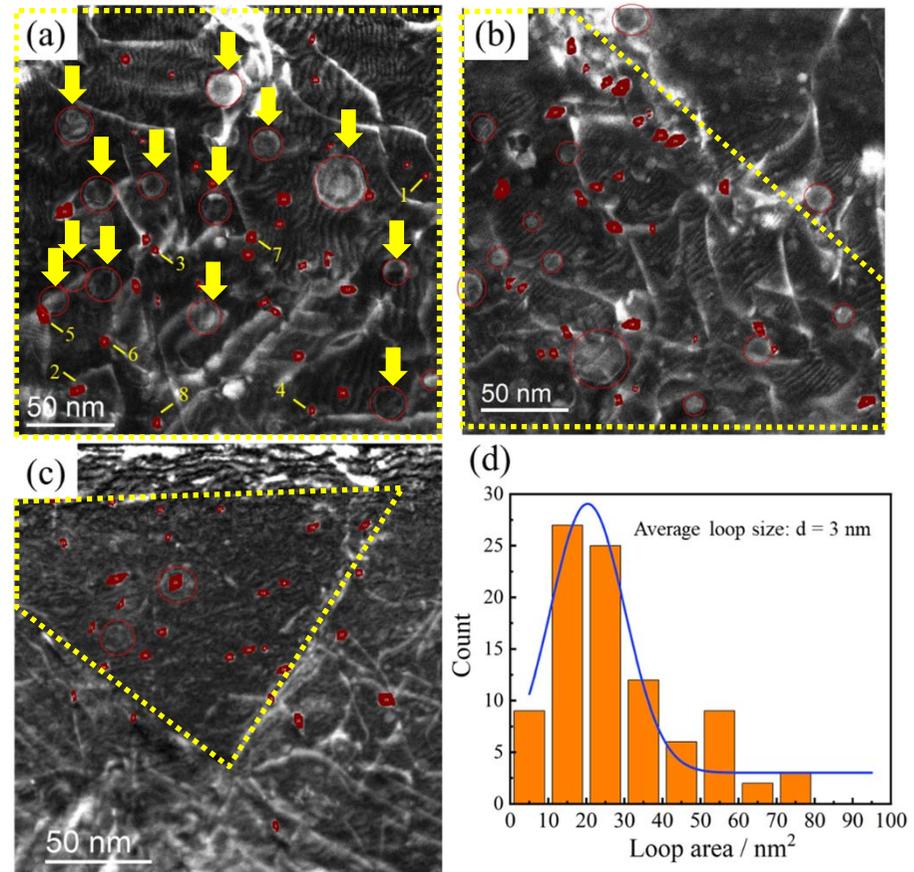


スポット分類処理



重心輝度値・輝度比を測定により
転位ループとノイズを分離する。

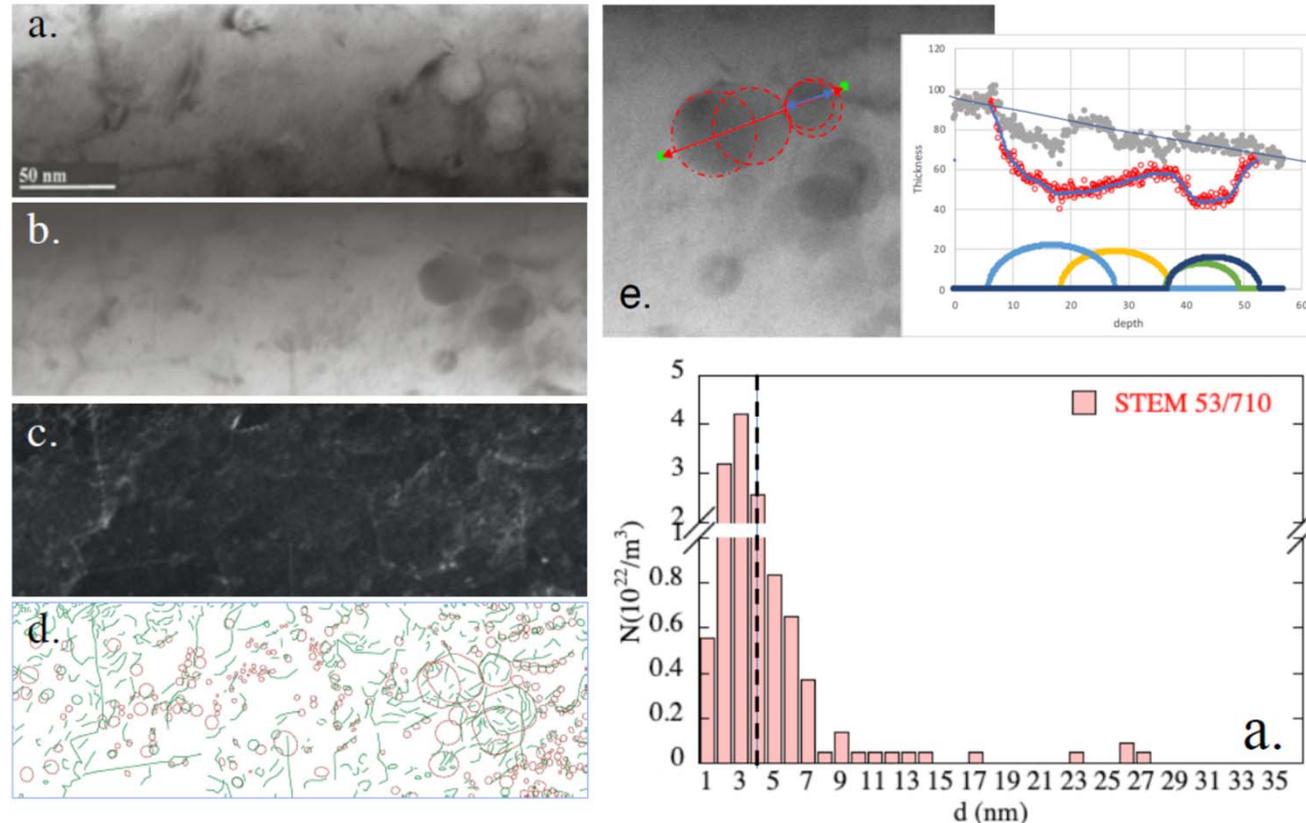
F82H鋼から測定されたWB-STEM像(a)-(c)と
転位ループサイズ分布(d)



ナノボイドなどの大きな構造(矢印)と測定領域(破線)を与えれば、**全自動で転位ループのサイズ分布と数密度を計測**することができるようになった。

照射試料の微細組織分析(分析事例) with カリフォルニア大学

F82H鋼イオン照射材(53 dpa)転位ループとナノボイドの同時計測



a) BF; b) HAADF; and, c) WB-STEM images and d) dislocations (green solid lines) and cavities (red dotted lines) schematics in F82H IEA irradiated to average 53 dpa and 710 appm He; and e) intensity profile of HAADF-STEM.

Small Nanovoids ($d < 4\text{nm}$): $d_b = 2.7\text{ nm}$, $N_b = 9.4 \times 10^{22}/\text{m}^3$

Nanovoids ($d > 4\text{nm}$): ナノボイド $d_v = 7.0\text{ nm}$, $N_v = 3.6 \times 10^{22}/\text{m}^3$, void swelling (f_v) 2.2%

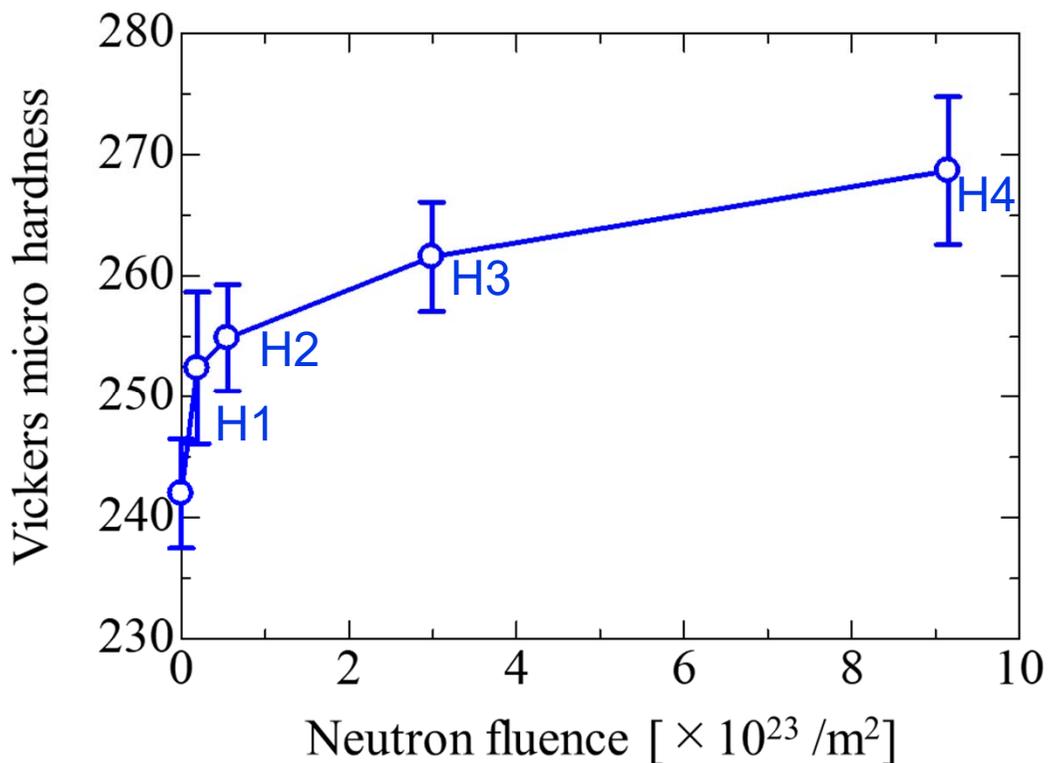
WB-STEM観察によって、従来TEM法では見えなかった小さなナノボイド(2.7nm)が高密度($9.4 \times 10^{22}/\text{m}^3$)に形成していることが初めて確認された。

500°Cの高線量照射では空孔-格子間原子の再結合の影響は小さいことが見出された。

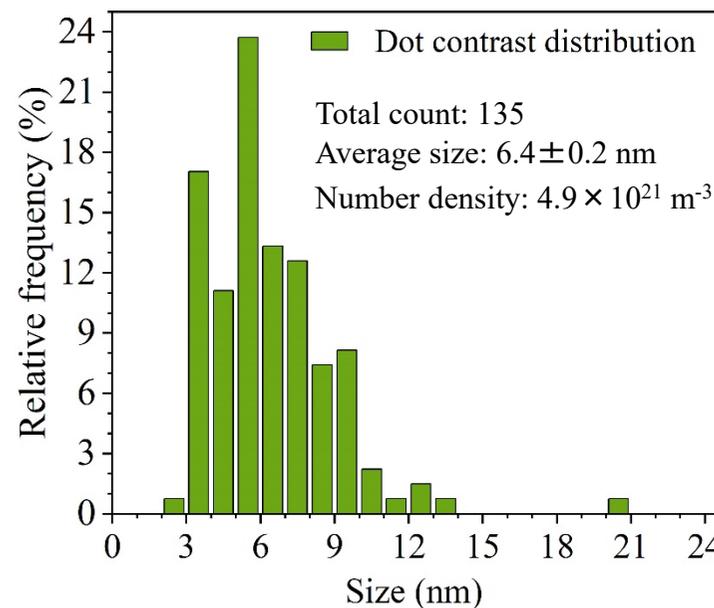
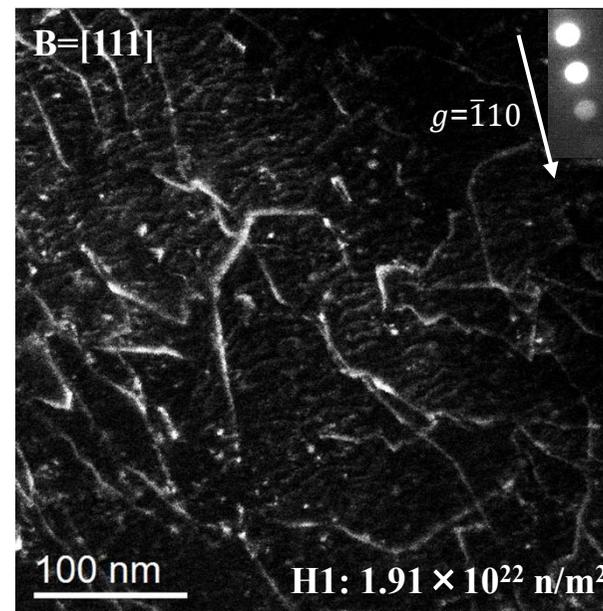
照射試料の微細組織分析(分析事例) with SCK-CEN(海外炉照射)

F82H鋼中性子照射材(0.14dpa)中の
転位ループ分布の照射量依存性

Vickers hardness test

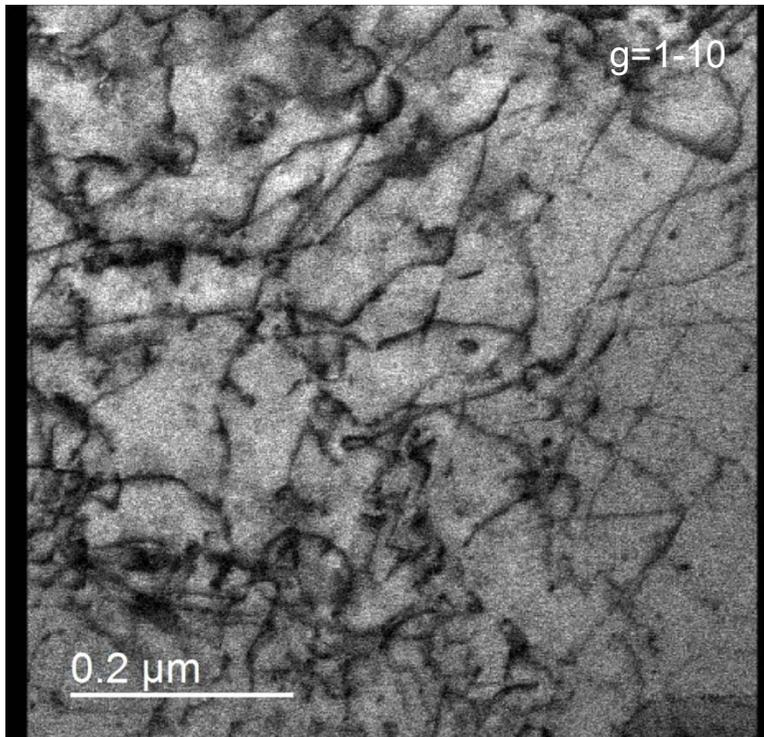


F82H鋼では中性子照射による**硬化の初期段階**で、**転位ループなどの照射欠陥集合体が形成**することが分かった。

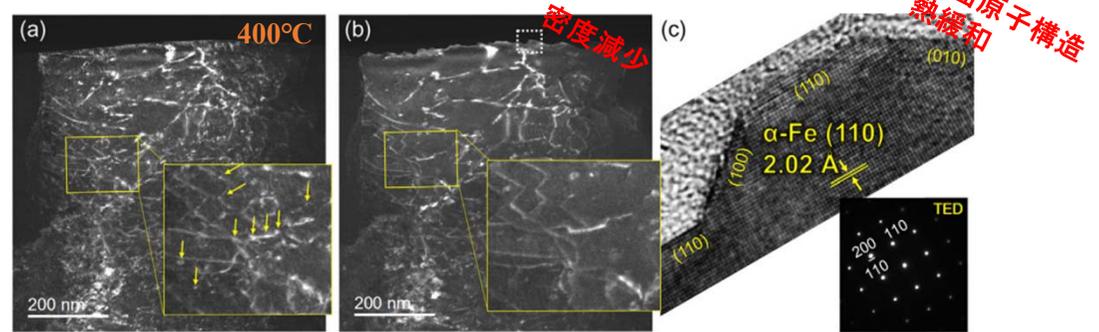


高温その場加熱試験による照射欠陥集合体の安定性評価 (その場WB-STEM試験が可能な機関は世界でも東北大学のみ)

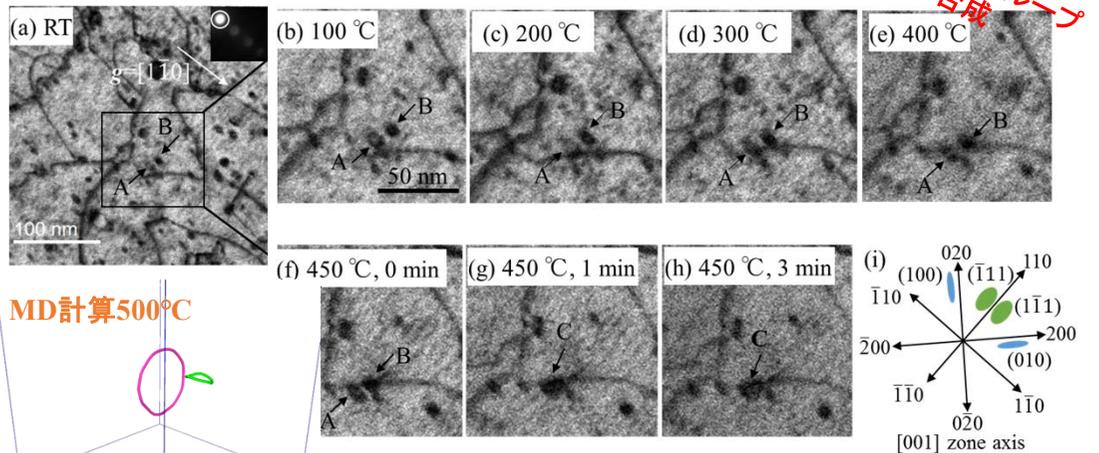
F82H鋼(0.14dpa):
530°Cでの安定性評価



照射欠陥集合体の熱緩和メカニズム



Y. Shimada et al, *Microsc.* 68 (2019) 271



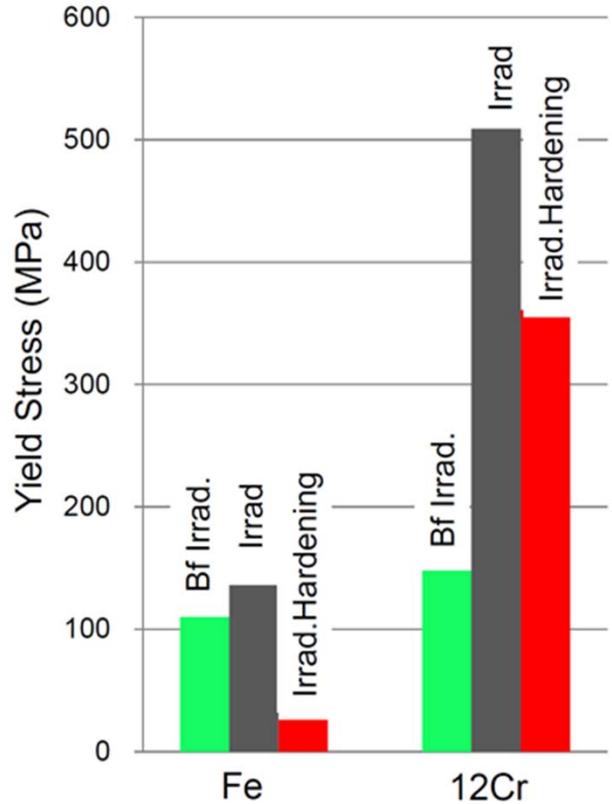
Y. Du et al., *Materialia* 12 (2020) 100778

½<111>型ループの合成や刃状転位による吸収など、動的計測のみが可視化できる照射欠陥集合体の熱緩和機構が明らかになってきた。安定性評価にはMD計算結果を活用した。

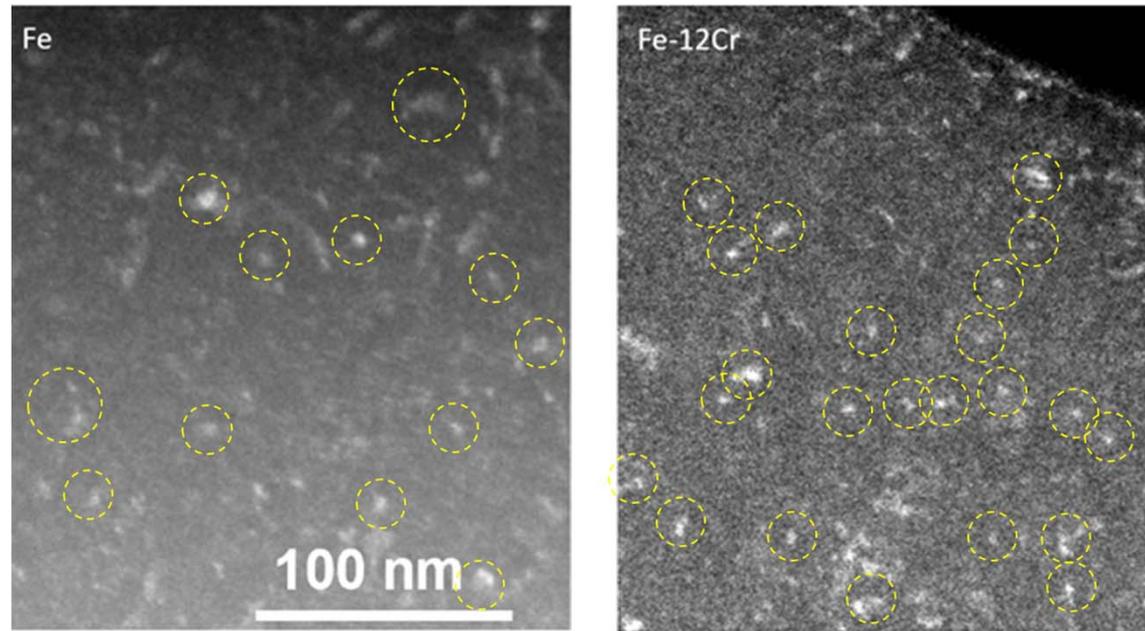
中性子照射されたFe-Cr合金の微細組織と機械的特性との関連

純FeおよびFe-12wt.%Cr合金を中性子照射(JMTR、 5×10^{24} n/m²、300 °C)し、照射硬化および微細組織を調べた。

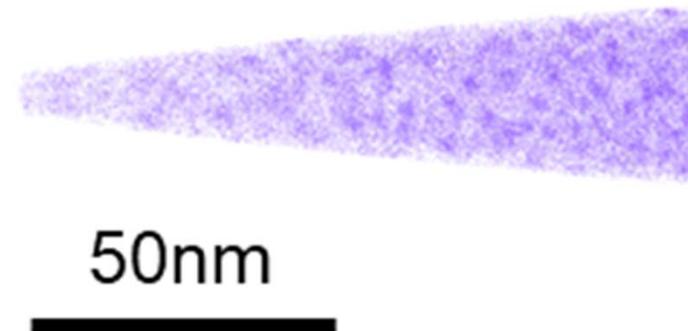
照射硬化(引張試験)



照射材中の転位ループ(WB-STEM)

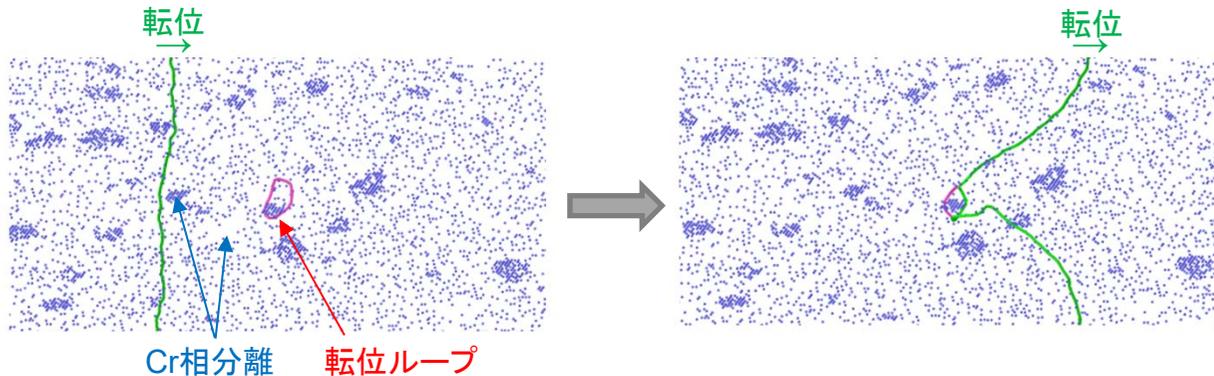


照射材中のCr分布
(3D-AP)



中性子照射されたFe-Cr合金の微細組織と機械的特性との関連

STEMとAPTによって実測された中性子照射されたFe-12Cr合金の微細組織を模擬した分子動力学シミュレーションを行い、硬化因子(Cr相分離と本研究によって初めて定量された転位ループ)による硬化量を評価した。



Orowanモデル:

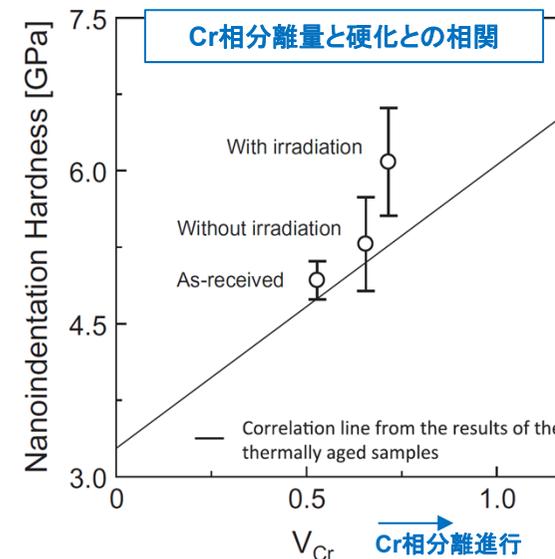
$$\Delta \sigma_y = M \alpha G b (Nd)^{1/2}$$

$\Delta \sigma_y$: 硬化量、 M : テイラー因子、 α : 硬化因子、 G : 剛性率、 b : バーガースベクトル、 N : 転位ループ数密度、 d : 転位ループ直径

降伏応力増加量

	実験値	Cr相分離による硬化量	転位ループによる硬化量	[MPa]
純Fe	25	0	45	
Fe-12Cr	350	290	33	

実験値とCr相分離による硬化量との比較から、転位ループも硬化に一定量寄与する。転位ループによる硬化量は、分子動力学シミュレーションによる評価量よりも大きいことも示唆された。その原因として、Cr以外の元素(不純物元素C, N, Oなど)の転位ループへの偏析などが考えられ、今後、検討を深めていく。



T. Takeuchi et al.,
J. Nucl. Mater.,
449 (2014) 273.

国際ハブとしてのプラットフォーム構築

国際共同利用・共同研究申請件数

2018年:4件、 2019年:10件、 2020年:8件、 2021年:21件
2022年:23件

国際会議などで成果例を宣伝し、新たな共同利用・共同研究の申請につなげたい。

本課題で開発した手法を含めて、金研大洗センターのPIE施設群＋研究人材は世界的にもユニーク。一方、我が国には当面、照射炉がない状態が続く。今後は、PIEを売りにしつつ、原子炉中性子照射も包含した国際共同研究に発展させたい。

金属材料研究所「材料科学国際共同利用・共同研究拠点」の評価において、大洗センターが名前を挙げて貢献を評価されている。

中間評価：S

期末評価：S

3. 観点毎の評価

①拠点としての適格性 (評価コメント) 材料科学分野の中核的な拠点として、関連の施設・設備が整備され、活発に共同利用・共同研究を行っており、優れた研究活動が進められている。
②拠点としての活動状況 (評価コメント) 共同利用・共同研究の採択件数は極めて優れており、若手研究者の人材育成、シンポジウムの開催及び産業界との連携等が活発に行われている。
③拠点における研究活動の成果 (評価コメント) インパクトファクターの高い学術誌へ発表された論文数等が多く、拠点活動から生み出された研究成果は極めて優れている。
④関連研究分野及び関連研究者コミュニティの発展への貢献 (評価コメント) <u>量子エネルギー材料科学国際研究センターの照射後実験施設の拠点化等</u> を行うことにより、関連研究者コミュニティの発展に貢献している。

国際共同利用・共同研究拠点名	材料科学国際共同利用・共同研究拠点
大学等名 (研究施設名)	東北大学(金属材料研究所)
評価区分 (期末評価結果)	S
評価コメント	<p>材料科学分野の中核的拠点として、<u>強磁場、材料照射施設等の大型施設の共同利用が活発に行われるとともに、国内研究者と海外研究者が共同するブリッジ型課題制度の創設やネットワークを生かした海外との連携強化を通じて、国際共著論文比率、TOP10%国際共著論文比率、国際共同研究数、海外研究者の受入れ数等が増加しており、更には大学院生の学位取得者の増加等の人材育成への貢献や産業界との連携も進展しており、当該分野における海外の代表的研究機関と遜色のない国際的な頭脳循環のハブとして機能していることは非常に高く評価できる。</u></p> <p>今後は、引き続き外国人研究者及び女性研究者の登用等のダイバーシティの更なる推進や、更なる外部資金の獲得増加に向けた努力が期待される。</p>

成果の公表状況

論文発表(英文、査読あり):27件

学会発表:67件 (内、招待講演:5件)