

①

学位論文要約

題目 中性子照射した面心立方金属の損傷欠陥発達過程の研究

著者 向田 一郎

# 中性子照射した面心立方金属の 損傷欠陥発達過程の研究

1998年6月

向田 一郎

## 学位論文概要

題目 中性子照射した面心立方金属の損傷欠陥発達過程の研究

氏名 向田 一郎

原子炉構造材料においては中性子照射損傷による欠陥生成により力学的特性の劣化を導く。その損傷組織発達原子レベル過程を理解することは原子炉材料の評価および耐照射性に優れた材料の開発において非常に重要である。特に核融合炉の材料開発においては、将来の商業用核融合炉の運転環境における 14MeV 核融合中性子照射ができないことから損傷欠陥の形成を平均 1.5MeV の核分裂中性子照射のデータから外挿する必要がある。現在進行している核融合炉材料開発においては既存の軽水炉・高速増殖炉・加速器等の照射設備を用いた実験から原子レベルでの損傷欠陥発達過程の理解が不可欠である。本研究においては JMTR (Japan Materials Testing Reactor: 日本原子力研究所材料試験炉) において開発された照射時の試料温度を制御して、中性子束一定で照射量に変化できる多段多分割型温度制御リグを用いた中性子照射実験を行い、その損傷組織を電子顕微鏡観察した。その結果は原子レベルの微小点欠陥集合体挙動のコンピューター・シミュレーションと比較検討して照射損傷欠陥発達過程の理解する事を目的とする。

第1章では照射損傷研究の歴史およびこれまでの研究成果を調査し従来の考え方をまとめた。また、本研究で用いた多段多分割温度制御照射リグの開発経緯と、従来報告されている温度制御照射の結果についてまとめた。第2章では損傷欠陥形成にはガス原子の効果が大きいことに注目して、試料中の残留ガスを除去した試料を作製して比較のために as-received 試料を同時に中性子照射実験を行い、また損傷組織観察の方法についてまとめた。第3章では中性子照射を行った試料の電子顕微鏡観察結果をまとめた。その結果、純銅、銅希薄合金、純ニッケルにおける原子空孔集合体・格子間原子集合体形成の過程を実験的に明らかにした。第4章においては微小点欠陥集合体の分子動力学コンピューター・シミュレーションによって実験では観察できない集合体の挙動を明らかにして集合体形成の素過程を検討した。第5章では以上の中性子照射実験とコンピューター・シミュレーションの結果から研究の総括を行った。この実験結果は中性子照射した金属中でのボイド形成に関して従来の考え方を覆すものである。最も照射量が少ない場合 ( $5.2 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$ ) においては as-received、残留ガス除去試料の両者においてボイドの数密度・サイズ共に変わりがなかった。低照射量領域ではボイドは試料中に均一に形成していた。中性子照射量の増加と共にボイドの数密度は減少し、ボイドのサイズは大きくなる。一方、格子間原子は局所的に集合して照射量の増加と共に次第に拡がっていき転位組織を形成する。格子間原子は集合体の領域に吸収されるため原子空孔がマトリックスに残ってボイドが成長する。分子動力学コンピューター・シミュレーションにおいては格子間原子集合体は  $\langle 110 \rangle$  クラウディオンの束に緩和するため低い移動エネルギーで移動する事が可能である。また格子間原子集合体の移動はわずかな歪み場の影響で運動する。この結果は格子間原子集合体が局所的に集合してコロニーを形成することを示唆する。極微小サイズの原子空孔集合体は集合体として動きやすい構造に緩和する事がコンピューター・シミュレーションにより明らかにされた。このような極微小サイズの原子空孔集合体の移動・合体により次第に大きな集合体が形成する。これらの集合体は熱的活性な準安定状態のマイクロボイドに成長する。この過程においてはガス原子の寄与なしに起こる。マイクロボイドは集合体のままで移動を繰り返し、その途中でガス原子をトラップする。多くのガス原子をトラップしたボイドは移動度が低下することにより安定なボイド構造が形成される。

## 目 次

1. 緒論	
1. 1 照射損傷研究の歴史	1
1. 2 カスケード損傷衝突過程	1
1. 3 点欠陥研究	2
1. 4 ボイドスエリング	4
1. 5 温度制御中性子照射	6
2. 実験方法	
2. 1 残留ガス除去した試料の作製	7
2. 2 JMTR (材料試験炉) 温度制御中性子照射	7
2. 3 電子顕微鏡観察	8
2. 4 点欠陥集合体動的挙動のコンピューター・シミュレーション	9
3. 実験結果	
3. 1 純銅における損傷欠陥発達過程	
3. 1. 1 純銅における損傷欠陥発達過程	10
3. 1. 2 純銅中の損傷欠陥の熱的安定性および動的挙動	11
3. 2 銅希薄合金における損傷欠陥発達過程	
3. 2. 1 銅-ニッケル合金	13
3. 2. 2 銅-アルミニウム合金	13
3. 2. 3 銅希薄合金における損傷欠陥発達過程における溶質原子の効果	13
3. 3 純ニッケルにおける損傷欠陥発達過程	14
4. 考察	
4. 1 原子空孔集合体のエネルギー計算	15
4. 2 高温における格子間原子集合体の動的挙動	15
4. 3 高温における原子空孔集合体の動的挙動	16
4. 4 中性子照射した金属での損傷欠陥発達過程	17
4. 5 ボイド形成におけるガスの効果	18
4. 6 温度変動照射におけるボイド形成	19
4. 7 銅希薄合金におけるボイド形成	20
4. 8 照射損傷欠陥形成のモデル	20
5. 結論	22
6. 参考文献	24
図表	27~125
謝辞	126

## 1. 緒論

### 1. 1 照射損傷研究の歴史

1942年のシカゴ大学での原子炉の臨界達成と前後して Wigner は原子炉材料の中性子照射損傷の重要性を予言し、第2次世界大戦の最中マンハッタン計画において米国の既存の加速器を用いた材料照射研究が始まった。一方1950年頃から照射によって導入された点欠陥を調べるのに有効な手段であるとの考え方より格子欠陥の研究が始まる。これらの研究の結果、照射損傷は高エネルギー粒子による結晶構成原子の弾き出しによる原子空孔と格子間原子の生成が起源であることが明らかにされてきた。

原子炉構造材料においては照射損傷による欠陥の生成により強度特性の低下を導くために、その形成過程を理解することは非常に重要である。中性子照射による材料のボイドスエリングは1967年に Cawthorne and Fulton [1] によってイギリスの高速炉で照射されたステンレス鋼の電子顕微鏡観察によって発見された。ボイドスエリングは材料の膨張を導き強度等機械的特性を著しく下げるために、ボイドスエリングの実験的・理論的な研究が盛んになり重要な照射効果としてしばしばいわれるようになった。

特に核融合炉の材料開発においては、現在その環境における照射ができないことから核分裂炉照射のデータから外挿する必要がある。現状での核融合炉材料開発においては既存の照射設備を用いた実験から原子レベルでの損傷欠陥発達過程の理解が不可欠である。

### 1. 2 カスケード損傷衝突過程

図1.1に本研究で用いた核分裂炉JMTR (Japan Material Testing Reactor) における中性子スペクトルを示す。このように中性子のエネルギーは広い範囲に分布しているがおもにエネルギーが 0.1MeV 以下の中性子 (熱中性子) は核変換を引き起こし、0.1MeV 以上の中性子 (速中性子) が原子の弾き出しを起こす。図1.2に銅とニッケルに対して SPECTORコードを用いて計算された中性子により弾き出される第一ノックオン原子 (Primary Knock on Atom = PKA) のエネルギー分布およびを示す[2]。PKAの平均エネルギーはこの場合数10KeVもの高エネルギー粒子であり、これが材料中に発生すると図1.3に示すように多くの原子を弾き出す[3]。この現象は $10^{-12}$  sec 程度の非常に速い現象であ

り実験的に捕らえることは困難である。近年のコンピュータの発達により分子動力学シミュレーションが行われてその詳細が明らかにされつつある[4]。その過程は、原子の弾き出しが起きるとその中心部では弾き出しエネルギーが原子に与えられる事により、溶融部が形成され格子間原子が中心部から飛び出していく (collisional phase)。やがてエネルギーが分散してカスケードが冷却されると中心部に原子空孔集合体が、周辺部には格子間原子集合体が形成される (cooling phase)。照射損傷の発達はこのカスケード損傷が材料中で頻繁におきることにより多くの原子空孔・格子間原子集合体が形成されそれらが移動・合体することにより次第に大きな欠陥へと成長することにより進行する (annealing phase)。

### 1. 3 点欠陥研究

純金属中の点欠陥 (原子空孔・格子間原子) 集合体の研究は1950年代後半から盛んに行われていて多くの知見が得られている。透過電子顕微鏡を用いての格子欠陥観察は直接に観察するための非常に有効な実験手法であるが原子レベルの分解能を持つ電子顕微鏡を用いても10個以下の点欠陥集合体の観察は困難であり、間接的な実験手法からの類推しかできなかった。この困難さは透過電子顕微鏡観察は試料を透過した電子を用いて結像するため微小点欠陥集合体の観察には周辺の完全結晶の情報が含まれるためにその検出を難しくさせる。この10個以下の点欠陥集合体の挙動は、近年コンピューター・シミュレーションにより明らかにされておりこの知見を基に照射損傷発達過程の検討を行う。

以下に中性子照射した fcc 金属の欠陥の蓄積について現在まで報告されている結果についてまとめる。これら純金属の照射損傷欠陥形成の初期過程はアカデミックな点から重要なだけでなく実用合金における照射欠陥の進行の物理的なプロセスの包括的理解に非常に重要である。本研究で取り上げた純銅・ニッケルは様々な基礎的な研究が行われている。面心立方金属の場合の点欠陥集合体についてまとめると

#### ・積層欠陥四面体

原子空孔が最密面である(111)面上に集合して形成される欠陥である。このとき原子空

孔が(111)面上に三角形状に集合しその上の原子が図1.4(a)のように変位することにより形成される欠陥である[5]。正四面体のまわりがすべて積層欠陥で囲まれている。

#### ・ボイド

原子空孔が3次元的に集合して形成される空洞である。fccの場合(111)面で囲まれた八面体になる(図1.4(b))。ボイドは必ずしも安定な原子空孔集合体ではないが、とくに(0.3 - 0.5)  $T_m$  ( $T_m$  は融点) で照射材料にはしばしば観察される。ボイドの形成は材料のスエリング(膨張)に関連して非常に重要である。詳細は1.4章にて述べる。

#### ・転位ループ

図1.5に示すように原子空孔または格子間原子が板状に集合するとfccの積層欠陥が生じる[5]。このときの転位は図のように刃状転位でバーガスベクトルは  $b = a/3\langle 111 \rangle$  である。この構造のことをフランクループという。

損傷欠陥の発達はPKAの発生によるカスケード損傷による原子空孔・格子間原子の生成から始まる。図1.6に Norgett-Robinson-Torrens (NRT) により計算された損傷レベルに対して残存している点欠陥の割合を温度に対してプロットしたものを示す。4K付近の低温でさえも correlated recombination のために30%程度の欠陥しか残らないことがわかる。温度が300K以上になるとその割合は10%まで下がる[6]。この残存点欠陥が欠陥-欠陥相互作用、欠陥-不純物相互作用、欠陥-シンク相互作用を受けながら最終的な点欠陥集合体を形成する。

図1.7(a)に銅において様々な温度で中性子照射したときの欠陥集合体の照射量依存性を示す[6]。銅においては298-363Kにおいては数密度の温度依存性はない。ステージV (~420K) 以上の温度においては飽和欠陥数密度が温度の上昇と共に減少する。これはカスケード損傷で生成された原子空孔集合体から熱的に原子空孔が放出されることによると考えられている。飽和欠陥数密度はカスケード損傷にて生成される欠陥と原子空孔の集合体からの放出のバランスによると考えられているので損傷速度と照射温度に大きく依存する。

図1.7(b)にニッケルを様々な温度で中性子照射したときの欠陥集合体の照射量依存性を示す[6]。ニッケルのステージVの温度は500K程度と銅と比較して高いために原子空孔集

合体の安定性が高く、300-473Kの範囲で欠陥数密度の温度依存性がない。銅と比較すると欠陥数密度が低いのは、室温付近での照射では生成される欠陥のサイズが小さいためにTEMによる観察が困難であることによると考えられる。

#### 1. 4 ボイドスエリング

照射した金属中のボイドスエリングの発見は1967年であり、この発見により高速増殖炉や核融合炉の実用材料の耐照射損傷研究の必要性により照射損傷の研究は基礎的な純金属の研究からより複雑な合金の研究へとこの30年間推移している。この推移の結果として、照射損傷発達過程の検討を実用合金の結果から類推せざるを得なくなってきた。しかし、照射損傷発達過程の理解は照射条件や材料により非常に複雑で十分解明されているとはいえない状況である。

図1.8にZinkle らが行った銅を182-500℃の温度範囲で核分裂中性子照射（損傷レベル：1.1～1.3 dpa、損傷速度： $2 \times 10^{-7}$  dpa/s）の結果を示す[7]。その結果、182℃では原子空孔はボイドを形成しないで積層欠陥四面体を形成する。ボイド形成の温度下限は182-220℃の間に存在し最大スエリングは300-350℃の間で0.5%であり、500℃では全くスエリングはなかったと報告している。一般的にボイドスエリングの温度依存性は図1.8のようなカーブになる。

図1.9(a)および(b)に523-573Kにおいて中性子照射した銅のボイド数密度の照射量依存性を示す[6]。銅の場合数密度が0.01～0.1dpaで飽和する。低照射量における実験結果は研究者により大きく異なっている。例えば English et al. の結果 [8] によると523K照射した結果、特にボイド密度が高い。この結果のばらつきは主に残留ガスが研究者ごとに異なることによると考えられる。このグラフには14MeV中性子照射した結果 [9] もプロットしているが、照射量依存性は核分裂中性子の場合と同じ傾向を示す。

図1.10(a)および(b)に銅とニッケルにおけるスエリングを照射量に対してプロットしたものを示す[6]。いずれも傾向は似ていて0.1 dpa 付近でスエリングが小さくなる。1dpa程度の低照射量ではネットワーク転位はできていない。図1.11に 14MeV 中性子照射したニッケルのスエリング [10] が示されているが、核分裂中性子照射した場合に比較して大きい

ことがわかる。しかしこの原因は明らかではない。

高線量中性子照射した金属中においてボイドは転位線に沿って形成していることが多く観察されている [11,12]。これらの観察結果よりボイドの形成は格子間原子がバイアス効果により優先的に転位に吸収されることにより、転位から離れた場所では原子空孔が過剰な環境が出来上がると考えられた[13,14]。しかし転位バイアス効果だけでは中性子照射した金属のボイドスエリング現象を十分に説明できないため（特に低照射量領域）、カスケード損傷形成における production bias [15] の効果などが提案されている。カスケード損傷により形成された原子空孔がマイクロボイドに集まることによりボイドは成長する。またガス原子を照射前に注入（pre-doped）した試料においては照射により形成するボイドの数密度が上昇する事が実験的に確認されている[16,17]。特に  $(n, \alpha)$  反応により発生するヘリウム原子は金属中での溶解度が低いためボイドの核形成に大きな影響を与えている[18]。ヘリウム原子をpre-dopedした試料においてボイドの数密度が上昇する実験結果は数多く報告されている[19,20]。下村らはコンピューターシミュレーションにより銅中の水素のボイド核形成に及ぼす効果を報告している[21]。銅中においては正三角形状3原子空孔（3v-60°）はDamask-Dienes-Weizer 型の3原子空孔積層欠陥四面体（3v-sft）に緩和する[22,23]。この緩和過程が原子空孔集合体の積層欠陥四面体（stacking fault tetrahedron = SFT）への成長において基本的なプロセスである。小さな原子空孔集合体に水素原子がトラップされると、水素原子は集合体がSFTに緩和することを阻止するようにはたらく。水素原子は原子空孔集合体がSFTに緩和しないようにボイドの表面を動きまわる。

我々のグループでは超高真空中（ $1 \times 10^{-6}$  Pa）で残留ガス除去（residual-gas-free）を行った純銅試料を作製した。as-received 試料とresidual-gas-free試料を同時にJMTRにおいて中性子照射（照射温度：330°C、照射量： $5.2 \times 10^{24}$  n/cm<sup>2</sup>）を行った[24]。その結果residual-gas-free試料におけるボイド数密度はas-received 試料と比較して約1/10と低いことがわかった。また同じ条件で照射を行った銅-アルミニウム合金においてはas-received 試料ではボイドが観察されるが、residual-gas-free試料ではまったくボイドが形成しないことがわかった。またFFTF/MOTAにおける重照射した銅-アルミニウム合金においてもresidual-gas-free試料ではボイドが観察されなかった[25]。しかし銅-ニッケル合金におい



ては残留ガス除去の効果が顕著でない。また実用化が期待されているオーステナイト合金 SUS316L を高速増殖炉 EBR-II において as-received 試料と residual-gas-free 試料を同時に照射を行った結果、as-received 試料ではボイドと転位ループの形成が観られたが residual-gas-free 試料においてはボイドは観察されず析出物のみが観られた[26]。

### 1. 5 温度制御中性子照射

本研究においては、中性子照射は JMTR において温度制御照射リグを用いて行われた [27-29]。従来型制御照射 (conventional control irradiation) においては試料キャプセルとリグのガスギャップの部分にヘリウム/アルゴンガスの混合ガスを流してその混合比を変化させることに試料温度の制御を行う。したがって図1.11に示すように、原子炉の出力上昇とともに $\gamma$ 加熱が大きくなり試料温度が階段状に上昇する事になる。このような制御方法では設定温度以下の温度で幾分か中性子照射を試料が受けることになる。本研究に用いた改良型制御照射 (improved control irradiation) リグにおいては原子炉の出力上昇前に試料温度を設定温度まで上昇させておいて原子炉の出力と共にヒーターのパワーを減少させることによって試料温度を制御する方式である。図1.11に両者の温度制御における試料温度の履歴を示す。図1.12に従来型制御と改良型制御における照射では明らかに損傷欠陥の組織が異なることを銅とニッケルについて桐谷ら [30, 31] により報告されている結果を示す。いずれの結果も400℃においてJMTR (a) 従来型/(b) 改良型照射を行った。ニッケルにおいては形成されるボイドの数が改良型照射では非常に少なく、銅においては改良型照射では全くボイドが形成されなかった。このように設定温度以下でのわずかな量の中性子照射が数多くのボイドの核を形成するのは照射損傷 (原子空孔・格子間原子集合体) の形成は図1.13に示すように一般的に低温側で核形成、高温側で成長するために設定温度以下でのわずかな中性子照射が数多くの核を形成し、設定温度において成長したためにこのような結果になったと考えられる[31]。したがって、従来型照射においては start up, shut down 時の中性子の効果を考慮に入れる必要があるために照射損傷の定量的取扱を困難にする。本研究においては改良型照射によって照射をおこない、さらに図1.14に示すように同じ中性子束で照射量が変化できるように開発された多段多分割型温度制御リグを用いた中性子照射を行い、照射損傷欠陥発達過程の理解する事を目的とする。

## 2. 実験方法

### 2. 1 残留ガス除去した試料の作製

試料は純銅（7N）および純ニッケル（5N）である。試料はas-received および超高真空中で熔解し残留ガス除去を行った試料 (residual-gas-free) の2種類の試料の照射を同時に行った。装置の概略図を図2.1に示す。以下に、試料の作製方法に示す。

- 1) 材料を約10g秤量し、アセトン洗浄した後アルミナボード上に乗せて超高真空中に排気する。（ $10^{-5}$  Pa 程度）
- 2) 試料部分を電気炉にて1000℃まで加熱してボート・材料・ガラス管の脱ガスを十分に行う。その後冷却すると真空度が $10^{-6}$  Pa 程度まで上昇する。
- 3) 試料部分を高周波融解炉を用いて試料を熔解する。このとき試料から大量のガスが発生する。このガスの種類を四重極質量分析計を用いて分析する。
- 4) 真空度が熔解前と同程度になったら、加熱を終了して室温まで自然冷却し試料を取り出す。
- 5) 試料の周辺のアルミナ粉末を除去した後 0.1 mm まで圧延し、直径 3 mm に打ち抜く。（as-received 試料は材料を 0.1 mm まで圧延し、直径 3 mm に打ち抜く。）
- 6) 3 mm ディスクをアルミナボートに載せて高真空中に排気した後、焼鈍を行う。条件は  
銅・銅合金 700℃・5時間  
ニッケル 900℃・5時間
- 7) 中性子照射のために試料の端に I D 番号を針により書き込み照射条件ごとにパッキングする。

以上の手順にて作製した試料を、パイレックスガラス管に真空封入した後、照射キャプセルに組み込まれるまで保存される。

### 2. 2 JMTR（材料試験炉）温度制御中性子照射

中性子照射は日本原子力研究所 Japan Materials Testing Reactor (JMTR) にて行われた。

照射リグの概略図を図2.2に示す。このリグは多段多分割温度制御照射リグと呼ばれるもので桐谷ら [28-30] により開発されたものである。上段と下段にそれぞれ5個ずつの照射試料キャプセルがセッティングできる構造になっており、それぞれのキャプセルに照射温度調整用のヒーターおよび熱電対が装着してある。本研究においては照射番号 JMTR 94M-15u において照射された試料を用いた。照射量は  $5 \times 10^{18} \sim 1 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$  の照射量、照射温度は200℃（上段）および300℃（下段）である。照射量の制御は多分割されたキャプセルをある時間経過後引き抜くことによって制御される。図2.3にJMTR 94M-15u 引上作業実績を示す。最大の照射時間は591.5時間（1サイクル）である。照射条件を表2.1にまとめた。上段と下段では炉心からの距離が異なるため中性子のフラックスが上段の方が少ないために全照射量が異なる。dose level はSPECTOR code により計算された値から算出した [2]。

### 2. 3 電子顕微鏡観察

中性子照射した試料は JMTR から東北大学金属材料研究所附属材料試験炉利用施設（大洗施設）に搬入される。一定期間の放射能冷却後、キャプセルを解体して試料を取り出す。これらの試料を、大洗施設ホットラボにて試料 ID を読みとることにより仕分けした後、電解研磨を行って透過電子顕微鏡観察用試料とする。電解研磨はテヌポールを用いたジェット研磨および仕上げ研磨の2段階の研磨を行う。

電子顕微鏡観察は大洗施設の JEOL-2000FX および広島大学工学部の JEOL-2000EX を用いて行った。加速電圧は 200kV で使用した。観察は明視野像・暗視野像法を用いた。比較的サイズの大きな欠陥集合体は明視野像で観察できるため解析はこれを用いる。サイズの小さいボイドはブラッグ条件から大きく外したボイドコントラスト明視野像を用い、積層欠陥四面体（SFT）や転位ループは弱ビーム暗視野像法を用いて写真を撮影した。点欠陥集合体のサイズは写真上の大きさを測ることにより測定する。また点欠陥集合体の数密度を決定するために試料の膜厚を決定する必要がある、ブラッグ条件における等厚干渉縞を用いて膜厚を測定し単位体積あたりの数密度を決定した。

## 2. 4. 点欠陥集合体的動的挙動のコンピューター・シミュレーション

分子動力学および分子静力学コンピューターシミュレーションは Daw, Foiles and Baskes により開発された DYNAMO ver.8.5 コードを用いて行った [32]。embedded atom method (EAM) によるポテンシャル [33] がコードの中に含まれている。本研究で用いた EAMポテンシャルは Foiles の方法 [34] により T. D. de la Rubia によりパラメータの最適化 [35] が行われたポテンシャルを用いた。今回のシミュレーションでは4000個の原子からなる結晶 ( $10a_0 \times 10a_0 \times 10a_0$ :  $a_0$ は格子定数) を用いた。結晶表面には周期的境界条件を適用している。

分子動力学コンピューター・シミュレーションはN個の原子のニュートンの運動方程式を解くことによって計算される。各原子のハミルトニアンは次式で表される。

$$H_0 = \sum_i \frac{\mathbf{p}_i^2}{2m_i} + \phi(\mathbf{q}_i) \quad (1)$$

ここで  $\mathbf{q}_i$  と  $\mathbf{p}_i$  は  $i$  番目の原子の座標と運動量を表す。ハミルトンの運動方程式は

$$\frac{d\mathbf{q}_i}{dt} = \frac{\partial H}{\partial \mathbf{p}_i} = \mathbf{p}_i/m_i \quad (2a)$$

$$\frac{d\mathbf{p}_i}{dt} = -\frac{\partial H}{\partial \mathbf{q}_i} = -\frac{\partial \phi}{\partial \mathbf{q}_i} \quad (2b)$$

のように表される。各タイムステップにおける個々の原子の位置は次のニュートンの運動方程式を数値積分することによって得られる。

$$m_i \frac{d^2 \mathbf{q}_i}{dt^2} = -\frac{\partial \phi}{\partial \mathbf{q}_i} \quad (3)$$

さらにコードでは系の圧力および温度を制御するように各原子の位置・速度の計算が行われる。

### 3. 実験結果

#### 3. 1 純銅における損傷欠陥発達過程

##### 3. 1. 1 純銅における損傷欠陥発達過程

図3.1.1に200℃照射における純銅の低倍の観察写真を示す。最も照射量が少ない場合、局所的に転位ループが集まっていることが観られる。これらの領域を拡大してみると小さな転位ループが集合して構成されていることがわかる。照射量の増加に伴って格子間原子がこの領域に移動することにより転位ループが次第に成長して転位が形成されることにより黒いコントラストの領域が次第に広がっていく様子が観察される。300℃照射においてはこのような局所的な転位ループ集合領域は観察されず、どの照射量においても単純な直線的な転位が試料中に観察された(図3.2.2)。これは格子間原子が十分な移動度を持っているため結晶粒界などのシンクへ移動して転位ループの形成が抑制されたと考えられる。

図3.1.3および3.1.4に200,300℃照射における純銅のボイド組織を示す。いずれも各照射温度において左側が照射量の最も少ない試料、右側が照射量の最も多い試料を示す。200℃照射の場合ボイドは試料中に均一に形成されており転位とも独立に形成している。照射量の増加と共にボイドのサイズが増大し数密度が減少している。300℃照射においては照射量が少ないときはボイドは転位と独立して形成しているが、照射量の増加に伴って次第に多くのボイドが転位と結合していることが観察される。また照射量の増加と共にボイドのサイズの増加および数密度の減少している傾向は200℃照射と共通している。図3.1.5にボイドの数密度およびスエリングを照射量に対してプロットした。ボイド数密度は減少するが平均サイズは大きくなるためスエリングは照射量と共に増加する。この傾向は未処理・残留ガス除去試料共に共通して観られる。特にボイド数密度は照射量の増加に伴って残留ガス除去試料の方が少なくなる。200℃、300℃照射の高照射量のボイド組織を両タイプの試料について比較したものを図3.1.6および図3.1.7に示す。また、各照射条件において観察されたボイドのサイズ分布を図3.1.8から図3.1.11に示す。表3.1に純銅におけるボイド数密度・平均サイズおよびスエリングをまとめた。

図3.1.12および3.1.13に200,300°C照射における純銅のSFT組織を暗視野像にて示す。200°C照射では照射量と共に密度の増加が観られる。また、SFTの平均サイズは約3 nmでほとんど変化していない。それに対して300°C照射した試料においては照射量と共に密度の減少が観られた。図3.1.14から図3.1.17に観察されたSFTのサイズ分布を示す。300°C照射の場合、一部のSFTが非常に大きく成長していることがわかる。また照射量の最も多い場合にはかなり成長したSFTも観察された。図3.1.18にSFTの数密度および平均サイズを照射量に対してプロットした。未処理・残留ガス除去試料での数密度・平均サイズの変化は顕著でない(図3.1.19)。表3.2に純銅におけるSFT数密度・平均サイズをまとめた。

### 3. 1. 2 純銅中の損傷欠陥の熱的安定性および動的挙動

前章のJMTR照射の結果より

- 1) ボイド数密度は200,300°C照射共に減少する。ボイドサイズは照射量と共に増加する。
- 2) SFT数密度は200°C照射では照射量と共に増加、300°C照射では照射量と共に減少する。

SFTサイズは200°C照射ではほとんど変化しない。300°C照射では一部のSFTが大きく成長する。

以上のことがわかった。通常ボイド、SFT等の原子空孔集合体は照射量と共にその数密度は増加すると考えられており従来のモデルではこの現象は説明できない。そこで我々は中性子照射により形成されたボイドが照射中に動いて他のボイドと合体すると考えた。試料は照射中は常に照射設定温度に保たれているため微小原子空孔集合体は移動可能であると思われる。このモデルを裏付けるために照射試料の焼鈍実験を行った。

焼鈍実験に用いた試料は200°C,  $5.3 \times 10^{18}$  n/cm<sup>2</sup> 照射を行った試料を用いた。焼鈍温度は250, 300, 350, 400, 500°Cで各ステップ30分間(250°Cのみ70分間)の等時焼鈍を行った。

図3.1.20に各焼鈍温度での同じ領域の暗視野像を示す。250°Cでの焼鈍ではSFTは全く変化を示さなかった。一方ボイドは焼鈍中にわずかに移動していることが観察される。

300℃焼鈍では小さなSFTが消滅している。また一つのボイドが消滅している。さらに焼鈍温度が上昇するとボイドが先に消滅する。この領域では350℃焼鈍ですべてのボイドが消滅した。これはボイドの移動により表面に原子空孔が消滅したと考えられる。図3.1.21にボイドの移動した例、図3.1.22にSFTの合体した例を示す。500℃焼鈍ではほとんどのSFTが消滅した。各温度ステップにおけるSFTのサイズ分布を図3.1.23に示す。温度の上昇に伴って小さいサイズのSFTから消滅していることがわかる。これらの結果よりボイドは250℃以上で移動すること、SFTは300℃以上で消滅することおよびSFTの熱的安定性はボイドより大きいことがわかった。

以上の実験結果より原子空孔集合体としてのボイドはサイズを変えずに移動することがわかった。このことから200℃、300℃照射した純銅中でのボイドの成長はカスケード損傷から生成された1原子空孔や2原子空孔を吸収して成長するのではなく、マイクロボイドが原子空孔集合体として移動して合体することにより成長することがわかる(図3.1.24)。このモデルで考えると照射量の増加に伴ってボイドが大きく成長することも説明できる。

### 3. 2 銅希薄合金における損傷欠陥発達過程

銅希薄合金としてオーバーサイズの溶質原子であるアルミニウムおよびアンダーサイズの溶質原子であるニッケルを添加して Cu-5at.%Al, Cu-5at.%Ni 合金を作製して中性子照射を行った。

#### 3. 2. 1 銅-ニッケル合金

図3.2.1に Cu-5at.%Ni を200℃照射したときの組織の照射量依存性を示す。損傷組織の照射量依存性は純銅によく似た振る舞いをする。すなわち低照射量においては格子間原子集合体とSFTを形成し、格子間原子集合体は次第に集まり転位を形成する。しかし Cu-5at.%Ni の場合ボイドの形成は観られない。300℃照射したときの as-received 試料および残留ガス除去試料の組織を図3.2.2に示す。両試料ともに直線的な転位の形成が観られるが、as-received 試料のみボイドが観察される。200℃、300℃における点欠陥集合体の照射量依存性を暗視野像にて図3.2.3から3.2.6に示す。

#### 3. 2. 2 銅-アルミニウム合金

図3.2.7に Cu-5at.%Al を200℃照射したときの組織の照射量依存性を示す。純銅・Cu-5at.%Ni の場合とは異なりほとんど転位の形成が観察されない。図2.6.8に300℃照射したときの as-received 試料および残留ガス除去試料の組織を示す。Cu-5at.%Al の場合今回の照射条件ではボイドの形成は観られなかった。200℃、300℃における点欠陥集合体の照射量依存性を暗視野像にて図3.2.9から3.2.12に示す。

#### 3. 2. 3 銅希薄合金における損傷欠陥発達過程における溶質原子の効果

図3.2.13に点欠陥集合体数密度の照射量依存性を純銅・Cu-5at.%Al・Cu-5at.%Ni について比較する。Cu-5at.%Ni については200℃、300℃照射の結果は純銅と同じ傾向を示す。したがって溶質原子であるニッケルは点欠陥集合体の挙動に対する効果は小さいことがわかる。それに対してCu-5at.%Alの場合にはいずれの温度の場合でも点欠陥集合体の数密度が照射量に対してほとんど変化しないことがわかる。



### 3. 3 純ニッケルにおける損傷欠陥発達過程

ニッケルにおいては200℃照射において積層欠陥四面体および転位ループが観察された。電子顕微鏡観察結果を図3.3.1から3.3.4に示す。200℃照射ではこれらの欠陥密度は照射量の増加に伴ってほぼ直線的に増加することがわかる。積層欠陥四面体および転位ループの数密度の照射量依存性を図3.3.5に示す。これらの転位ループは平均サイズが3.5から5.5 nmに照射量の増加と共に成長する。しかしSFTは照射量が増加してもサイズの変化はほとんどないことが図3.3.6および3.3.9のサイズ分布からわかる。これらの結果からニッケルの200℃照射においては格子間原子集合体は十分な移動度をもっているためカスケードで生成された集合体が転位付近に歪み場の影響により集まり、自由点欠陥が転位ループに吸収されることにより転位ループの成長がおきたと考えられる。300℃照射における転位構造は直線的な転位構造であり転位ループの形成は観られなかった。表3.3および3.4に200℃照射した純ニッケルにおける欠陥数密度および平均サイズをまとめた。

また、300℃照射ではボイドが観察された。300℃照射における損傷組織を図3.3.10から3.3.13に示す。300℃照射で形成されるボイド数密度は照射量依存性がほとんどなくサイズの増大のみが観られる。ボイドスエリングは照射量と共に増加する。ボイド数密度およびスエリングの照射量依存性を図3.3.14に示す。また、ボイドサイズ分布の照射量による変化を図3.3.15から3.3.16に示す。これらの結果より原子空孔集合体は200℃照射においては積層欠陥四面体を、300℃照射においてはボイドを形成することがわかる。以前のJMTR照射したニッケルの観察結果 [26] より400, 500℃照射においてもニッケルはボイドが観察されるが600℃では観られないことよりボイド形成の温度範囲は300~500℃程度であることがわかる。また2種類の試料の点欠陥集合体の数密度・平均サイズを比較すると顕著な差は認められずニッケルにおいては残留ガスが欠陥形成に及ぼす影響は少ないことがわかる。表3.5に純ニッケルにおけるボイド数密度・平均サイズおよびスエリングをまとめた。また残留ガス除去効果が純銅の場合のように顕著でないのはニッケルの場合核変換ガスの発生が非常に大きい(表3.6) ためにボイド形成初期過程において既に多くのガスが存在するためにボイド数密度が同程度になると考えられる。

## 4. 考察

JMTR における温度制御照射の結果、格子間原子集合体の歪み場に敏感な運動が転位構造の発達に重要な役割を果たしていることを示唆している。さらに高温においては原子空孔集合体が移動して集合することも示唆している。このことが 200, 300°C の中性子照射においてボイドの密度が減少することの原因である。分子動力学コンピューターシミュレーションにより点欠陥集合体の移動の可能性を検討することを目的とする。

### 4. 1 原子空孔集合体のエネルギー計算

緩和した微小原子空孔集合体の形成エネルギーをエネルギー最小化共役勾配法を用いて計算を行った。この計算においては原子の運動エネルギーを取り去りゼロにする。図4.1 (a)および(b)は原子空孔集合体のエネルギーを原子空孔の数に対して銅とニッケルについてプロットしたものである。銅においてはSFTがエネルギー的に最も低い構造である。小さいクラスターの時にはボイドとSFTの構造をフラクチュエイトしている。SFTへの構造緩和は3原子空孔の Damask-Dienes-Weizer type の緩和が基本的なステップとなって起きる。図4.2に3v-60 から3v-sftへ構造緩和するときのエネルギーの変化を示す。銅においては3v-60と3v-sftのエネルギーはほぼ等しくそのエネルギーのバリアはわずかに0.06eVである。ニッケルにおいては30v以下の原子空孔集合体はボイドが最も安定な構造である。これは3v-60が3v-sftに緩和するときエネルギーが0.4 eVも増加することによって起る。30v以下の構造は3v-sftタイプの構造に緩和することは決してない。3v-sft構造のエネルギーはボイドより大きい。3vより大きな原子空孔集合体の3v-sftへの構造緩和するときのエネルギーの増加は3v-60が緩和するときの0.4 eVより小さい。このような構造緩和は thermal activation によって起きる。ボイドと3v-sftの構造の間のエネルギーの差はそれほど大きくない。3v-sftへの緩和を含む結晶の形成エントロピーが大きい。したがって原子空孔集合体は準安定なエネルギーの高い構造に緩和することができる。

### 4. 2 高温における格子間原子集合体の動的挙動

図4.3(a)~(f)に格子間原子集合体の移動の様子を示す。5i 9iの二つの格子間原子集合

体を結晶中に導入した。それぞれの格子間原子集合体は  $\langle 110 \rangle$  方向に非常に低い活性化エネルギー (0.001eV) で動くような  $\langle 110 \rangle$  バンドルの構造に緩和する。図4.3において  $9i$  の集合体は  $5i$  の歪み場の影響で  $\langle 110 \rangle$  バンドル構造のまま前進・後進を繰り返す。 $5i$  集合体が  $9i$  集合体の付近に  $\langle 110 \rangle$  クラウディオンの形で移動してくる。二つの集合体が合体するために一つのクラウディオンが軸の方向を変化させる。このクラウディオンの軸の reorientation の様子が図4.2に示されているように進行する。この reorientation の活性化エネルギーは共役勾配法を用いて計算すると 0.5 eV 程度である。さらに大きな格子間原子集合体の reorientation の活性化エネルギーは 1 eV 程度である。この過程は中性子照射した金属中の転位構造の発達に極めて重要である。

#### 4. 3 高温における原子空孔集合体の動的挙動

以前の研究で報告しているように SFT やボイドはさらに大きな集合体を形成するように紐状の構造に緩和する。図4.4(a)~(d) に原子空孔集合体の連続的変化の様子を示す。最初に4000個の銅の結晶中に 10v-void を 7 個導入した。図4.5(a)~(d) に 15v-sft を導入した後の構造変化を示す。これらの二つのシミュレーションでは原子空孔集合体は動きやすい一つの集合体へと緩和する。

本研究においては SFT のアニールによる変化や原子空孔集合体の移動を高温において TEM により観察した。SFT は高温においては消滅する。TEM の観察結果では SFT は高温でのアニーリングの最中に連続的に消滅することがわかった。SFT サイズの縮小は全く観察されなかった。分子動力学コンピューターシミュレーションにおいて SFT がアニールアウトする様子が示された。一般的には SFT の積層欠陥の面上にレッジを形成して原子空孔を放出すると考えられている [5]。今回のシミュレーションにおいては SFT は紐状の原子空孔集合体に緩和することを示している。この現象は一つの最近接原子が SFT にジャンプすることによって引き起こされる。図4.6(a)~(d) に 10v-SFT が動きやすい構造に変化していく様子を示す。最近接原子が SFT 中にジャンプするために必要な活性化エネルギーを SFT のサイズに対してプロットしたものを図4.7に示す。表4.1 に様々な原子空孔集合体の移動に必要な活性化エネルギーをまとめた。一つの原子空孔が SFT から放出されるためには  $E_{b1v} + E_{m1v}$  のエネルギーが必要である。銅の場合  $E_{b1v}$

は0.2eV以上、 $E_{m1v}$ は0.62eVである。原子空孔集合体の移動に必要な活性化エネルギーは0.3eV以下である。したがって原子空孔集合体は単一原子空孔の放出をしないで集合体全体で移動する方が移動しやすい。表4.2に原子空孔集合体の移動の確率を銅とニッケルの場合について示す。

これまでに示したように原子空孔集合体は高温においてはTEMで観察できる十分大きなサイズのボイドに成長する。エントロピー $S$ が大きいのでボイドを含む結晶の $H = E - TS$ はSFTを含む結晶より小さくなる。これが300℃照射したニッケルにおいてはボイドのみが観察され、200℃照射においては多くのSFTのみが観察される原因だと考えられる。

#### 4. 4 中性子照射した金属での損傷欠陥発達過程

金属を中性子照射すると第一ノックオン原子 (Primary Knock on Atom = PKA) が発生し、変位カスケード損傷が形成される。変位カスケード損傷は非常に狭い領域に形成されるためコアの中では原子空孔同士の相互作用が原子空孔集合体の形成に重要な役割を担い、コアの周辺では格子間原子同士の相互作用が格子間原子集合体の形成に重要な役割を演じる。高温においてはカスケード損傷の cooling phase が終了した後、点欠陥集合体のクラスタリングが進行する。高温においては格子間原子集合体は一次元の $\langle 110 \rangle$  クラウディオンモーシヨンと他の $\langle 110 \rangle$  方向に変換する reorientation の組み合わせによって移動する。クラウディオンの軸の reorientation の活性化エネルギーは一次元運動のエネルギーに比べてはるかに大きい。この値は5iにおいて0.5eVである (サイズ依存性はある)。最終的に歪み場の効果によって格子間原子集合体は格子間原子集合体の集まったところに移動する。格子間原子集合体の移動した後は原子空孔集合体のみが残る。格子間原子集合体は合体して転位ループを形成する。これらの転位ループはさらに格子間原子を吸収して複雑な構造に発達する。300℃のような十分な高温においては転位は真っ直ぐなものに成長する。

$\langle 110 \rangle$  バンドルの格子間原子集合体が reorientation するために必要なエネルギーは移動エネルギーほど低くはない。格子間原子集合体が転位の付近に到達したとき、クライム運動によって消滅するのではなく転位に沿って集められる。格子間原子集合体は移動して集

合するが一つのクラスターには合体しない。これは  $\langle 110 \rangle$  クラウディオンの reorientation が困難であることによる。 $\langle 110 \rangle$  クラウディオンの reorientation が可能なほど十分であれば格子間原子集合体は転位付近にあつまり転位に吸収される。これらのクラスターは転位ループに発達して最終的に転位組織へと発達する。

原子空孔集合体は銅・ニッケルにおいてははじめは SFT 構造に緩和する。十分高温においては SFT やボイドは図4.8に示すように紐状の構造に緩和する。この図のように二つの  $10v$ -SFT が動きやすい紐状の構造に緩和して一つのクラスターに合体する。二つの  $10v$ -SFT は集合体として移動する。SFT は一つの原子が四面体の頂点にジャンプして入り込むことによって annealing out する。SFT から動きやすい紐状の構造に緩和する活性化エネルギーは一般的に高く SFT のサイズに依存する。原子空孔集合体の紐状構造の移動エネルギーは一般的に  $0.3\text{eV}$  程度である。低い活性化エネルギーを持つ原子空孔集合体の移動は歪み場に敏感だろう。移動の異方性については現在検討中である。この計算は移動の途中のサドルポイントのエネルギー計算により可能になるだろう。原子空孔集合体は転位のような歪み場の元に向かって移動する。実験的には  $300^\circ\text{C}$  程度の高温では銅・ニッケルにおいてボイドの形成が観られる。二つの動きやすい原子空孔集合体が合体したとき高温ではボイドに緩和すると考えられる。

#### 4. 5 ボイド形成におけるガスの効果

ガス原子がボイド形成に大きな影響を与えることは一般的に知られている [36, 37]。ヘリウム原子が照射した金属中でのボイド密度を顕著に増加させることはしばしば報告されている。我々は二つのタイプの試料を銅とニッケルについて JMTR において  $200, 300^\circ\text{C}$  で中性子照射実験を行った。一つは as-received 試料で、もう一つは超高真空中で熔解することにより残留ガス除去処理を行った試料である。この実験の結果  $10^{-3}$  dpa ( $1 \times 10^{18}$  n/cm<sup>2</sup>) 程度の照射量ではボイドの数密度は差がないことがわかった。この結果はボイドの核形成にガス原子の寄与が小さいことを示唆する。銅の場合、照射量が増加すると二つのタイプの試料のボイド数密度は違いが出てくる。 $10^{-1}$  dpa ( $1 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup>) 程度の照射量では残留ガス除去した試料のボイド数密度が小さくなることがわかった。これはガス原子がマイクロボイドにトラップされてボイドの移動度を減少させたために as-received 試

料ではより多くのボイドが形成されたと考えられる。ガス原子は小さなボイドが動きやすい紐状の構造に変化することを困難にすると考えられる。

ボイドに含まれている原子空孔の数はSFTと比較して非常に大きい。200℃照射の場合低照射量で350倍、高照射量で1300倍もの原子空孔がボイドに含まれている(表4.3)。200℃照射ではSFT数密度は照射量と共に増加するがサイズはほとんど変化しない。これはボイドの成長が原子空孔集合体の合体により進行していることを示唆する。もしボイドもSFTもカスケード損傷で形成された自由点欠陥の原子空孔を吸収して成長するならば、同じ速度で成長するはずである。次に200℃照射でボイド数密度が減少することについて考察する。一般的にはカスケードのコアで形成された原子空孔集合体がボイドの核になると考えられている。この場合照射量の増加に伴ってボイド数密度は増加するはずである。さらに照射量が増加するとボイドの生成と消滅の速度が釣り合うために一定密度に飽和する。しかし本実験の結果においては高照射量のときのボイド数密度の方が低照射量のときに比べて小さい。これは  $5.3 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$  のときにはボイドが形成しやすく、 $1.0 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$  のときにはボイド核の形成速度が小さくなっていると考えられる。現段階ではボイド核形成の原子レベル過程は明らかではない。本実験の結果、ボイド核形成にガスの影響はないと考えられる。ボイド核形成の一つの可能性としていくつかの原子空孔集合体が合体して、全体がSFTに緩和しないでボイド構造に緩和したと考えられる。コンピューター・シミュレーションの結果ではSFTの形成エネルギーはボイドに比べて小さい。このことよりボイドは高温における準安定構造であるということが出来る。薄膜の焼鈍実験の結果、ボイドは移動可能である。この運動はブラウン運動ではなく歪み場に敏感な動きである。またSFTは300℃で熱的に消滅することも焼鈍実験からあきらかである。純銅の300℃照射においては低照射量ではカスケード損傷のコアで生成された原子空孔によりSFTが形成されるが、照射量が増加すると転位密度の増加によって核が形成しにくくなると考えられる。

#### 4. 6 温度変動照射におけるボイド形成

最近の温度変動中性子照射実験による結果は多くの興味ある結果が報告されている[38, 39]。この実験は中性子照射中に温度を変化させる実験である。この実験の多くは初めに

中間温度での照射を行い、それから高温に上昇させる場合の照射を行っている。このような温度変動照射においては数多くのボイドが形成されることが報告されている。図4.9に Yoshida et al. [39] の報告している Fe-16Cr-17Ni-0.25Ti における温度変動照射による多量のボイド形成の例を示す。

変位カスケード損傷が形成されるとき原子空孔集合体の緩和は照射温度  $T_{\text{irrad}}$  に依存する。 $T_{\text{sft}}$  以下の温度で照射されると原子空孔集合体は S F T に緩和する。 $T_{\text{sft}}$  以上の温度で照射されたとき動きやすい紐状の構造に緩和する。200°C照射した銅においてはボイド・S F T 共に形成されている。このときボイドに集まった原子空孔の数は S F T に集まったものの350倍にも相当する。このことは微小原子空孔集合体の構造緩和は集合体の大きさに依存することを示している。大きな原子空孔集合体が S F T に緩和するとき一方で比較的小さな原子空孔集合体は動きやすい構造になる。この原子空孔集合体が集合してボイドを形成すると考えられる。原子空孔集合体の移動エネルギーは銅で 0.2 eV、ニッケルで 0.4 eV 程度である。単一原子空孔を放出するためのエネルギーは  $E_{b1v} + E_{m1v}$  であるので、微小原子空孔集合体は原子空孔の放出をしないでクラスターのままで移動すると考えられる。図4.9のような現象は低温領域で照射したときにできた原子空孔集合体が集合体として移動することによって多量のボイドが形成されたと説明できる。

#### 4. 7 銅希薄合金におけるボイド形成

以前の研究により Cu-5at%Al 合金 [26, 40] や Cu-5at%Mn 合金 [41] の場合には  $10^{22}$  n/cm<sup>2</sup> までの高照射量まで照射してもボイド形成が抑制されるが、純銅や Cu-5at%Ni 合金の場合には多くのボイドが形成されることが報告されている。一般的にボイドが形成されない場合には転位構造が発達しないことが観察されている。このことから格子間原子集合体が溶質原子にトラップされることにより移動が抑制されているためだと考えられる。

#### 4. 8 照射損傷欠陥形成のモデル

図4.10に従来の照射損傷欠陥の形成モデルと本研究におけるモデルを比較したものを示す。カスケード損傷により形成された格子間原子およびその集合体は転位ループに吸収される。従来のモデルでは小さな格子間原子集合体のみが移動可能であり比較的大きな集合

体 (3i以上) は動かないと考えられている。しかし本研究のコンピューター・シミュレーションの結果格子間原子集合体は  $\langle 110 \rangle$  クラウディオンに緩和してかなり低いエネルギーで一次元移動することがわかった。またクラウディオンの軸の reorientation の活性化エネルギーは一次元運動のエネルギーに比べてはるかに大きいため200°C照射した銅・ニッケルの転位構造は図3.1.1および3.3.1に示したようなコロニー状の転位組織になる。300°C照射の場合ではクラウディオンの軸の reorientation が可能になり図3.1.2および3.3.10に示すような直線状の転位へと発達する。

・残された原子空孔および集合体はクラスターを形成する。一般的に点欠陥集合体はカスケード損傷から形成されて生成することにより数が増加し、熱的な不安定性からの消滅および転位などのシンクに消えることにより数が減少する。従来の概念のように仮にSFTが原子空孔の放出で消滅するとする。すると放出された原子空孔はシンクに行くまでにSFT、ボイド共に同じ確率で出会う(図4.11)。その場合にはSFT、ボイド共に同じ速度で成長するはずである。しかし表4.3に示すようにボイドに含まれる原子空孔とSFTに含まれる原子空孔の比は照射量と共に大きくなる。それゆえ従来の概念では本実験結果を説明できない。

したがって本実験結果を説明するためには放出された原子空孔を吸収して成長するだけでは結果を説明できないので、図3.1.24に示したようにマイクロボイドが移動してボイドが成長すると考えることが妥当である。すなわち200°C照射のときは、SFTはカスケードから形成されたものが蓄積されるためにサイズ変化なしに数が増加する。一方ボイドはマイクロボイドが合体することにより成長するためにサイズが大きくなって数が減少する。300°C照射のときにはSFTは熱的に不安定になり出来たものがシンク(転位)に消えていく。またシンク密度(転位)が大きくなるためシンクに消える数が増えるため、SFTはサイズが大きくなって数が減少する。ボイドは200°C照射の時と同様にマイクロボイドが合体することにより成長するためにサイズが大きくなって数が減少する。



## 5. 結論

純銅と純ニッケルを $10^{-6}$  Paの超高真空中で熔解して残留ガスを除去した試料を作製して as received 試料と共に、JMTRにおいて温度制御中性子照射実験を $200^{\circ}\text{C}$ 、 $300^{\circ}\text{C}$ において行った。カスケード損傷にて形成された格子間原子集合体は歪み場の影響でグループを形成する。このグループは転位へと発達する。純銅において $200^{\circ}\text{C}$ 、 $300^{\circ}\text{C}$ 照射においてSFTおよびボイドが観察された。ボイド数密度は照射量の増加に伴って減少した。as received および残留ガス除去試料の両者において、低照射量ではボイドは試料中に均一に形成されるが、照射量が増加すると転位の付近に観察されるものが増える。 $200^{\circ}\text{C}$ 照射においてSFT数密度は照射量と共に増加する。低照射量領域では両タイプの試料中のボイド数密度は同等であるが、照射量の増加に伴ってその差は大きくなり残留ガス除去試料のボイド数密度は as received 試料に比べて低くなる。

ニッケルにおいては $200^{\circ}\text{C}$ 照射においてはSFTが、 $300^{\circ}\text{C}$ 照射においてはボイドが観察された。原子空孔集合体は $T_{\text{sft}}$ 以下の温度ではSFTを形成し温度が上昇して $T_{\text{void}}$ 以上になるとボイドのみを形成する。ガス原子は $10^{18}$  n/cm<sup>2</sup>程度の照射量においてはボイド形成に大きな影響を与えない。SFTは高温において原子空孔が集まって一次的に結合した紐状構造の原子空孔集合体を形成する。ボイドは紐状構造に変化して集合体のままで移動する。高温においてはSFTを含む結晶のエントロピーがボイドを含む結晶のそれと比べて大きいために Helmholtz 自由エネルギーがボイドを含む結晶の方が小さくなる。ガス原子がボイド形成に及ぼす影響は原子空孔集合体にトラップされることによってその移動度を減少させると考えられる。

中性子照射した銅・ニッケルの欠陥構造の発達過程を JMTR において温度制御照射した結果と分子動力学コンピューターシミュレーションの結果をリンクさせることによって考察した。面心立方金属の損傷欠陥発達過程に関して以下の結論を得た。

(1) 変位カスケード損傷が生じて第一ノックオン原子が停止する。初めに格子間原子およびその集合体が移動してグループを形成し、高温においては転位へと発達する。格子間原子およびその集合体の移動エネルギーは非常に低いのでそれらの移動はわずかな歪み場

の影響で運動する。

(2) 原子空孔集合体は照射温度が  $T_{sft}$  以下の温度では S F T を形成する。より高温で  $T_{void}$  以上の温度ではボイドになる。これらの中間温度では S F T ・ボイド共に形成される。

(3) ガス原子は  $10^{-3}$  dpa ( $1 \times 10^{18}$  n/cm<sup>2</sup>) 程度の低照射量ではボイドの形成にほとんど寄与しない。S F T は原子空孔のクラスタリングにより形成され高温において紐状構造の原子空孔集合体に緩和して、一次元的に原子空孔が結合した構造になる。この S F T の緩和は高温において S F T の最近接原子がジャンプすることによって引き起こされる。このジャンプの活性化エネルギーは S F T のサイズに依存し、サイズが大きくなるとこの値も大きくなる。緩やかに結びついたこのような原子空孔集合体は銅中では 0.2 eV という低いエネルギーで移動する。

(4) ボイドは紐状構造の原子空孔集合体が移動して集合することにより形成される。高温においてはボイドを含む結晶のエントロピーが大きいために Helmholtz 自由エネルギーが S F T を含む結晶より低いことによりボイドが形成される。ボイド形成に及ぼすガス原子の影響は、原子空孔集合体にトラップされることにより原子空孔集合体の移動度を減少させる効果があると考えられる。

## 6. 参考文献

- [1] C. Cawthorne and E. J. Fulton, *Nature* 216 (1967) 575.
- [2] 西口理恵子, 平成2年度 広島大学学位論文 (1991)
- [3] 渡邊仁志夫、下村義治, 広島大学工学部研究報告 35 (1987) 183.
- [4] T. D. de la Rubia and M. W. Guinan, *Phys. Rev. Lett.* 66 (1991) 2766.
- [5] 鈴木秀次, 転位論入門 (1967)
- [6] B. N. Singh and S. J. Zinkle, *J. Nucl. Mater.* 206 (1993) 212.
- [7] S. J. Zinkle and K. Farrell, *J. Nucl. Mater.* 168 (1989) 262.
- [8] C. A. English, B. L. Eyre and J. W. Muncie, *Phil. Mag.* A56 (1987) 453.
- [9] M. Kiritani, T. Yoshiie, S. Kojima, Y. Satoh and K. Hamada, *J. Nucl. Mater.* 174 (1990) 327.
- [10] T. Muroga, H. Watanabe, K. Araki and N. Yoahida, *J. Nucl. Mater.* 155-157 (1988) 1290.
- [11] H. R. Brager, *J. Nucl. Mater.* 141-143 (1986) 163.
- [12] B. N. Singh, A. Horsewell, D. S. Gelles and F. A. Garner, *J. Nucl. Mater.* 191-194 (1992) 1172.
- [13] A. D. Brailsford and R. Bullough, *J. Nucl. Mater.* 44 (1972) 121.
- [14] T. Leffers, B. N. Singh, A. V. Volobuyev and V. V. Gann, *Phil. Mag.* A53 (1986) 243.
- [15] B. N. Singh and A. J. E. Foreman, *Phil. Mag.* A66 (1992) 975.
- [16] L. D. Glowinski and C. Fliche, *J. Nucl. Mater.* 61 (1976) 29.
- [17] J. M. Lanore, G. L. Glowinski, A. Risbet, P. Regnier, J. L. Flament, V. L. Levy and Y. Adda, in: *Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals*, vol. 2, eds. M. T. Robinson and F. W. Young, Jr., USERDA, CONF-751006, Gatlinburg, TN (1976) p. 1169.
- [18] R. E. Stoller and G. R. Odette, *Radiation-Induced Changes in Microstructure: 13th International Symposium (Part I)*, ASTM STP 955, F. A. Garner, N. H. Packan and A. S. Kumar, Eds., American Society for Testing and Materials, Philadelphia (1987) 358.

- [19] R. E. Stoller, *J. Nucl. Mater.* 174 (1990) 289.
- [20] L. K. Mansur and W. A. Coghlan, *J. Nucl. Mater.* 119 (1983) 1.
- [21] Y. Shimomura, M. W. Guinan and T. D. de la Rubia, *J. Nucl. Mater.* 205 (1993) 374.
- [22] A. C. Damask, G. J. Dienes and V. G. Weizer, *Phys. Rev.* 113 (1959) 781.
- [23] Y. Shimomura, R. Nishiguchi, T. D. de la Rubia and M. W. Guinan, *Radiat. Eff. and Defects in Solids* 129 (1994) 81.
- [24] K. Yamakawa, I. Mukouda and Y. Shimomura, *J. Nucl. Mater.* 191-194 (1992) 374.
- [25] Y. Shimomura, I. Mukouda and F. A. Garner, *FFTF/MOTA Annual Progress Report for fusion year 1993* (1995) 249-256.
- [26] Y. Shimomura, I. Mukouda, M. Kiritani, S. Kojima and F. A. Garner, *J. Nucl. Mater.* 212-215 (1994) 352.
- [27] M. Kiritani, *J. Nucl. Mater.* 160 (1988) 135.
- [28] M. Narui, T. Sagawa, Y. Endoh, T. Uramota, T. Shikama, H. Kayano and M. Kiritani, *J. Nucl. Mater.* 212-215 (1994) 1645.
- [29] M. Narui, H. Kurishita, H. Kayano, T. Sagawa, N. Yoshida and M. Kiritani, *J. Nucl. Mater.* 212-215 (1994) 1665.
- [30] M. Kiritani, T. Endoh, K. Hamada, T. Yoshiie, A. Okada, S. Kojima, Y. Satoh and H. Kayano, *J. Nucl. Mater.* 179-181 (1991) 1104.
- [31] M. Kiritani, *J. Nucl. Mater.* 216 (1994) 220.
- [32] M. S. Daw, S. M. Foiles and M. I. Baskes, *Dynamo code version 8.5*, Sandia National Laboratory (1986).
- [33] M. S. Daw and M. I. Baskes, *Phys. Rev.* B29 (1984) 6443.
- [34] S. M. Foiles, M. I. Baskes and M. S. Daw, *Phys. Rev.* B37 (1988) 10387.
- [35] T. D. de la Rubia, unpublished work.
- [36] S. J. Zinkle, L. E. Seitzman and W. G. Wolfer, *Phil. Mag.* A55 (1987) 111.

- [37] S. J. Zinkle, W. G. Wolfer, G. L. Kulcinski and L. E. Seitzman, *Phil. Mag.* A55 (1987) 127.
- [38] M. Kititani, T. Yoshiie, M. Iseki, S. Kojima, K. Hamada, M. Horiki, Y. Kizuka, H. Inoue, T. Tada and Y. Ogasawara, *J. Nucl. Mater.* 212-215 (1994) 241.
- [39] N. Yoshida, Q. Xu, H. Watanabe, Y. Miyamoto and T. Muroga, *J. Nucl. Mater.* 212-215 (1994) 471.
- [40] I. Mukouda and Y. Shimomura, *Sci. Rep. RITU* A45 (1997) 29.
- [41] H. Watanabe and F. A. Garner, *J. Nucl. Mater.* 212-215 (1994) 370.

Figure 2.1 The irradiation condition of JETD with neutron flux of 1.0 x 10<sup>14</sup> n/cm<sup>2</sup>s. Neutron flux was constant at each temperature. Damage rate was 5.0 x 10<sup>-4</sup> and 6.5 x 10<sup>-4</sup> dpa/s at 300°C and 500°C irradiation, respectively.

Irradiation Condition	Temperature (°C)	Neutron Flux (n/cm <sup>2</sup> s)	Damage Rate (dpa/s)
300°C	300	5.3 x 10 <sup>14</sup>	5.0 x 10 <sup>-4</sup>
500°C	500	7.1 x 10 <sup>14</sup>	6.5 x 10 <sup>-4</sup>

Table 2.1 The irradiation condition of JMTR were summarized.  
 Neutron flux was constant at each temperature ( $E > 1\text{MeV}$ ).  
 Damage rate was  $5.0 \times 10^{-8}$  and  $6.5 \times 10^{-8}$  dpa/s of 200 and  
 300°C irradiation, respectively.

irrad. time(h)	40.5	188.0	591.5
200°C fluence(n/cm <sup>2</sup> )	$5.3 \times 10^{18}$	$2.5 \times 10^{19}$	$7.7 \times 10^{19}$
dose level (dpa)	$7.3 \times 10^{-3}$	$3.4 \times 10^{-2}$	$1.1 \times 10^{-1}$
300°C fluence(n/cm <sup>2</sup> )	$7.1 \times 10^{18}$	$3.3 \times 10^{19}$	$1.0 \times 10^{20}$
dose level (dpa)	$9.8 \times 10^{-3}$	$4.6 \times 10^{-2}$	$1.4 \times 10^{-1}$

Table 3.1 The number density( $N_V$ ), mean size( $d_{void}$ ) and swelling of voids for pure copper. RM means remelted specimen.

temp.	fluence( $n/cm^2$ )	$N_V$ ( $cm^{-3}$ )	$d_{void}$ (nm)	swelling(%)
200°C	5.3 x 10 <sup>18</sup>			
Cu		4.0 x 10 <sup>14</sup>	7.2	7.8 x 10 <sup>-3</sup>
Cu(RM)		2.6 x 10 <sup>14</sup>	7.1	4.9 x 10 <sup>-3</sup>
200°C	2.5 x 10 <sup>19</sup>			
Cu		3.1 x 10 <sup>14</sup>	10.1	1.7 x 10 <sup>-2</sup>
Cu(RM)		2.3 x 10 <sup>14</sup>	11.4	1.8 x 10 <sup>-2</sup>
200°C	7.7 x 10 <sup>19</sup>			
Cu		2.2 x 10 <sup>14</sup>	11.7	1.9 x 10 <sup>-2</sup>
Cu(RM)		9.7 x 10 <sup>13</sup>	11.5	7.7 x 10 <sup>-3</sup>
300°C	7.1 x 10 <sup>18</sup>			
Cu		6.8 x 10 <sup>12</sup>	47.5	3.8 x 10 <sup>-2</sup>
Cu(RM)		6.0 x 10 <sup>12</sup>	33.4	1.2 x 10 <sup>-2</sup>
300°C	3.3 x 10 <sup>19</sup>			
Cu		3.4 x 10 <sup>12</sup>	78.4	8.6 x 10 <sup>-2</sup>
Cu(RM)		2.3 x 10 <sup>12</sup>	72.2	4.6 x 10 <sup>-2</sup>
300°C	1.0 x 10 <sup>20</sup>			
Cu		1.4 x 10 <sup>12</sup>	155	2.8 x 10 <sup>-1</sup>
Cu(RM)		0.9 x 10 <sup>12</sup>	155	1.7 x 10 <sup>-1</sup>

Table 3.2 The number density( $N_s$ ) and mean size( $d_{sft}$ ) of sft for pure copper. RM means remelted specimen.

temp.	fluence( $n/cm^2$ ) specimen	$N_s$ ( $cm^{-3}$ )	$d_{sft}$ (nm)
200°C	5.3 x 10 <sup>18</sup>		
Cu		5.1 x 10 <sup>16</sup>	2.7
Cu(RM)		1.2 x 10 <sup>16</sup>	3.4
200°C	2.5 x 10 <sup>19</sup>		
Cu		4.2 x 10 <sup>16</sup>	3.1
Cu(RM)		3.0 x 10 <sup>16</sup>	4.0
200°C	7.7 x 10 <sup>19</sup>		
Cu		1.5 x 10 <sup>17</sup>	2.7
Cu(RM)		2.3 x 10 <sup>17</sup>	2.9
300°C	7.1 x 10 <sup>18</sup>		
Cu		2.0 x 10 <sup>15</sup>	5.3
Cu(RM)		1.6 x 10 <sup>15</sup>	4.8
300°C	3.3 x 10 <sup>19</sup>		
Cu		1.7 x 10 <sup>15</sup>	4.5
Cu(RM)		1.2 x 10 <sup>15</sup>	5.5
300°C	1.0 x 10 <sup>20</sup>		
Cu		1.9 x 10 <sup>14</sup>	6.5
Cu(RM)		3.8 x 10 <sup>14</sup>	6.0



Table 3.3 The number density( $N_s$ ) and mean size( $d_{sft}$ ) of sft for pure nickel. RM means remelted specimen.

temp.	fluence( $n/cm^2$ )	$N_s$ ( $cm^{-3}$ )	$d_{sft}$ (nm)
200°C	5.3 x 10 <sup>18</sup>		
Ni		1.6 x 10 <sup>15</sup>	3.4
Ni (RM)		1.2 x 10 <sup>15</sup>	3.6
200°C	2.5 x 10 <sup>19</sup>		
Ni		1.6 x 10 <sup>16</sup>	3.6
Ni (RM)		1.5 x 10 <sup>16</sup>	4.0
200°C	7.7 x 10 <sup>19</sup>		
Ni		4.7 x 10 <sup>16</sup>	3.7
Ni (RM)		5.9 x 10 <sup>16</sup>	3.1

Table 3.4 The number density( $N_1$ ) and mean size( $d_{loop}$ ) of sft for pure nickel. RM means remelted specimen.

temp.	fluence( $n/cm^2$ )	$N_s$ ( $cm^{-3}$ )	$d_{sft}$ (nm)
200°C	5.3 x 10 <sup>18</sup>		
Ni		1.6 x 10 <sup>15</sup>	3.5
Ni (RM)		1.2 x 10 <sup>15</sup>	3.9
200°C	2.5 x 10 <sup>19</sup>		
Ni		8.1 x 10 <sup>15</sup>	4.4
Ni (RM)		8.2 x 10 <sup>15</sup>	4.6
200°C	7.7 x 10 <sup>19</sup>		
Ni		2.0 x 10 <sup>16</sup>	5.5
Ni (RM)		3.4 x 10 <sup>16</sup>	5.5

Table 3.5 The number density( $N_v$ ), mean size( $d_{void}$ ) and swelling of voids for pure nickel. RM means remelted specimen.

temp.	fluence( $n/cm^2$ )	$N_v$ ( $cm^{-3}$ )	$d_{void}$ (nm)	swelling(%)
300°C	7.1 x 10 <sup>18</sup>			
Ni		1.3 x 10 <sup>14</sup>	16.7	3.8 x 10 <sup>-2</sup>
Ni(RM)		1.1 x 10 <sup>14</sup>	13.4	1.9 x 10 <sup>-2</sup>
300°C	3.3 x 10 <sup>19</sup>			
Ni		1.3 x 10 <sup>14</sup>	23.2	1.0 x 10 <sup>-1</sup>
Ni(RM)		7.4 x 10 <sup>13</sup>	23.7	5.9 x 10 <sup>-2</sup>
300°C	1.0 x 10 <sup>20</sup>			
Ni		1.6 x 10 <sup>14</sup>	29.7	2.7 x 10 <sup>-1</sup>
Ni(RM)		1.8 x 10 <sup>14</sup>	22.0	1.3 x 10 <sup>-1</sup>

Table 3.6 Comparison of transmutation product for Cu and Ni.

JMTR (fuel site) 200°C irradiation at 94M-15u  
 total fluence =  $3.38 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> ( $E > 1\text{MeV}: 7.70 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup>)

	H(appm)	He(appm)	DPA
Ni	$8.98 \times 10^0$	$7.79 \times 10^{-1}$	$1.16 \times 10^{-1}$
Cu	$1.41 \times 10^0$	$5.94 \times 10^{-2}$	$1.06 \times 10^{-1}$

JMTR (fuel site) 300°C irradiation at 94M-15u  
 total fluence =  $4.39 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup> ( $E > 1\text{MeV}: 1.00 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup>)

	H(appm)	He(appm)	DPA
Ni	$1.17 \times 10^1$	$1.01 \times 10^0$	$1.50 \times 10^{-1}$
Cu	$1.83 \times 10^0$	$7.73 \times 10^{-2}$	$1.37 \times 10^{-1}$

Table 4.1 Activation energy of various vacancy process in Cu and Ni.

Configuration (start→end)	Activation Energy (eV)	$E_f^{start}$ - $E_f^{end}$ (eV)
Cu 1v migration	0.617	
2v migration	0.3	
3v-90 migration	0.227	
relaxed 6v migration	0.106	
3v-sft→3v-90	0.384	0.108
3v-90→3v-120	0.346	0.047
3v-90→2v+1v	0.385	0.173
4v-twin-sft →twin-3v-90	0.208	0.045
6v-sft→relaxed 6v	0.649	0.248
10v-sft→relaxed 10v	0.811	0.788
15v-sft→relaxed 15v	1.154	1.077
Ni 1v migration	1.13	
relaxed 10v migration	0.42	
3v→2v+1v	0.39	0.0

Table 4.2 Comparison of the probability of vacancy evaporation versus movement of vacancy cluster as a cluster.

Metals	Temperature	Activation Energy (eV)			Ratio of vacancy evaporation versus cluster movement
		Single-vacancy evaporation	Cluster movement as a whole cluster	$E_{m^{vc}}$	
		$(E_{evap} = E_{m^{lv}} + E_{b^{lv}})$			$\frac{\exp(-E_{m^{vc}}/kT)}{\exp(-E_{evap}/kT)}$
Cu	673 K	0.62 + 0.2 eV = 0.82 eV	0.2 eV		$10^7$
Ni	673 K	1.13 + 0.4 eV = 1.5 eV	0.4 eV		$10^8$

Table 4.3 Comparison for number of vacancy which include void and SFT.

Irradiation condition	mean size of SFT (nm)	number of vacancy $V_{SFT}$	mean size of void (nm)	number of vacancy $V_{void}$	ratio of $V_{void}/V_{SFT}$
200°C 7.3 x 10 <sup>-3</sup> dpa	2.7	55v	7.2	1.8 x 10 <sup>4</sup> v	350
200°C 3.4 x 10 <sup>-2</sup> dpa	2.8	63v	10.1	4.6 x 10 <sup>4</sup> v	730
200°C 1.1 x 10 <sup>-1</sup> dpa	2.7	55v	11.7	7.1 x 10 <sup>4</sup> v	1290
300°C 9.8 x 10 <sup>-3</sup> dpa	5.3	225v	47.5	4.8 x 10 <sup>6</sup> v	2.1 x 10 <sup>4</sup>
300°C 4.6 x 10 <sup>-2</sup> dpa	5.5	242v	78.4	2.1 x 10 <sup>7</sup> v	8.7 x 10 <sup>4</sup>
300°C 1.4 x 10 <sup>-1</sup> dpa	6.5	322v	155	1.7 x 10 <sup>8</sup> v	5.3 x 10 <sup>5</sup>

JMTR での中性子エネルギー・スペクトル。

- fuel site
- ▲ Be 反射体 一層
- Be 反射体 二層
- Al 反射体 一層

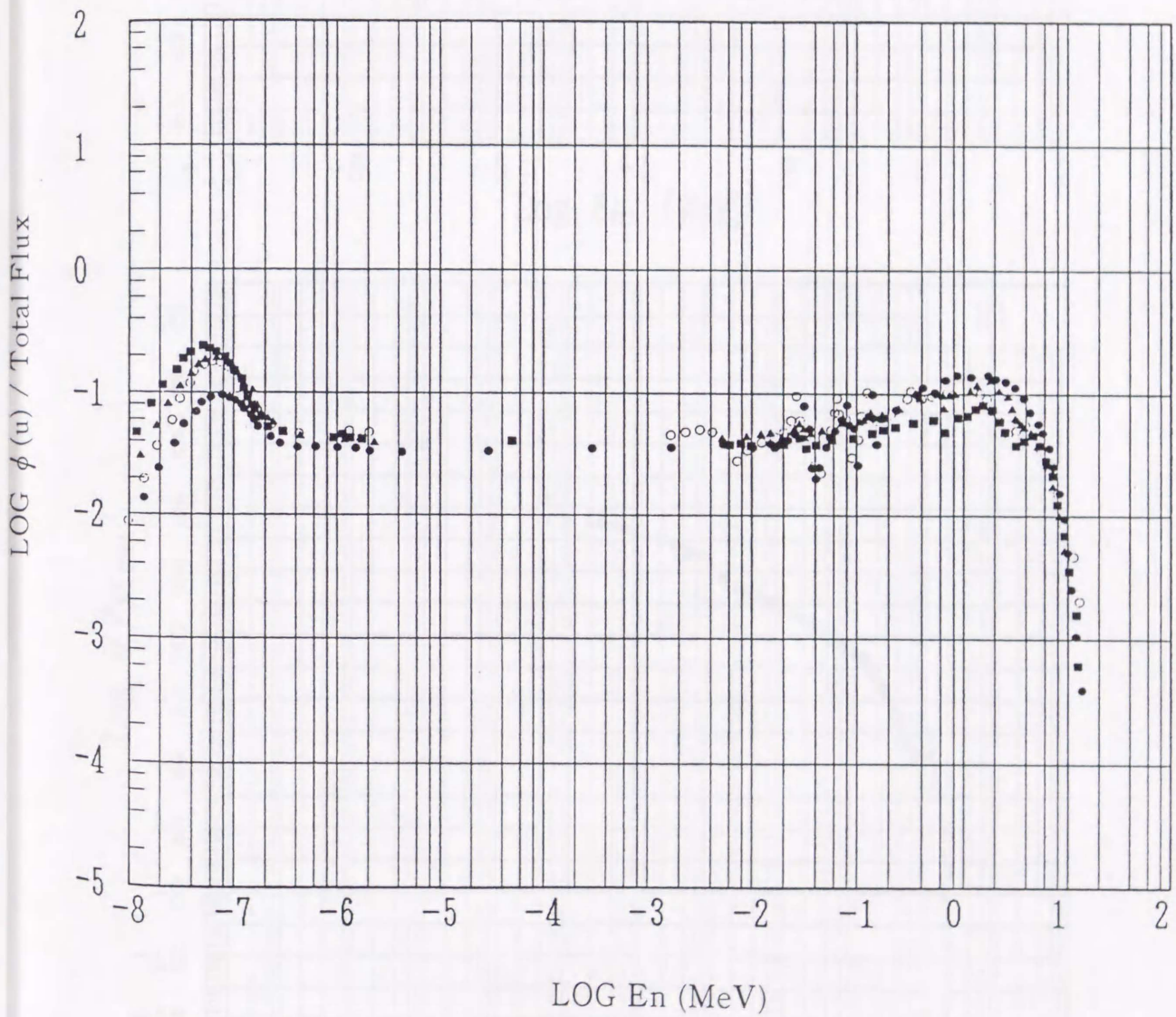


図1.1 JMTR (Japan Materials Testing Reactor) の中性子スペクトル



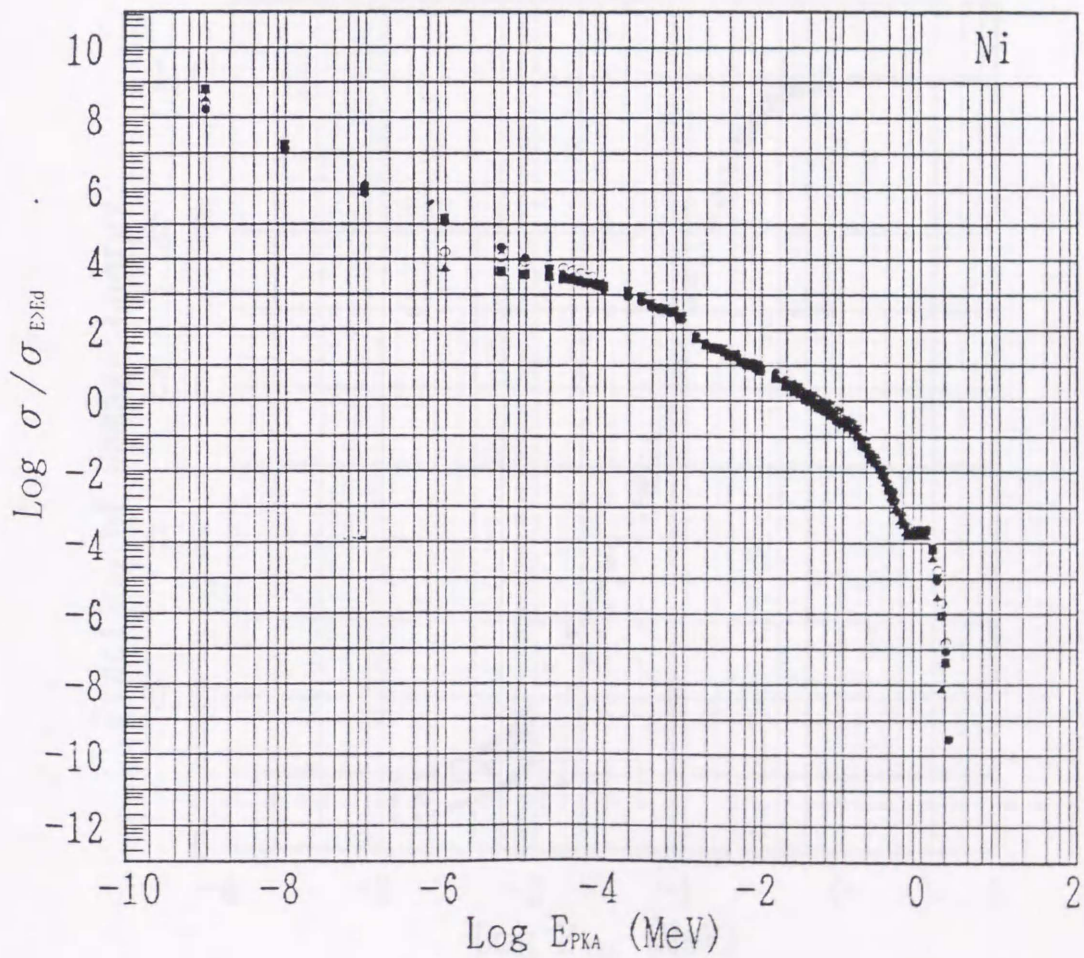
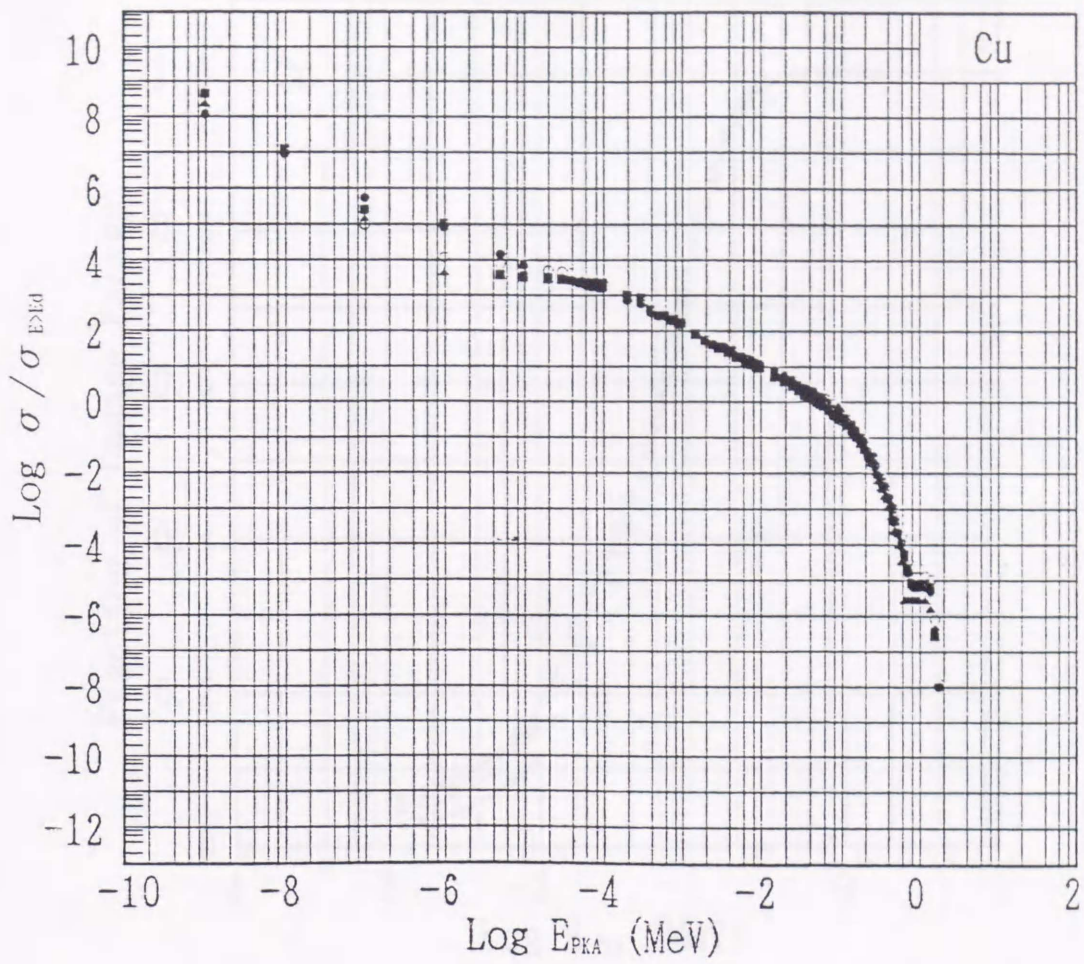


図1.2(a) JMTR中性子照射した銅・ニッケルのPKAエネルギー分布 [2]

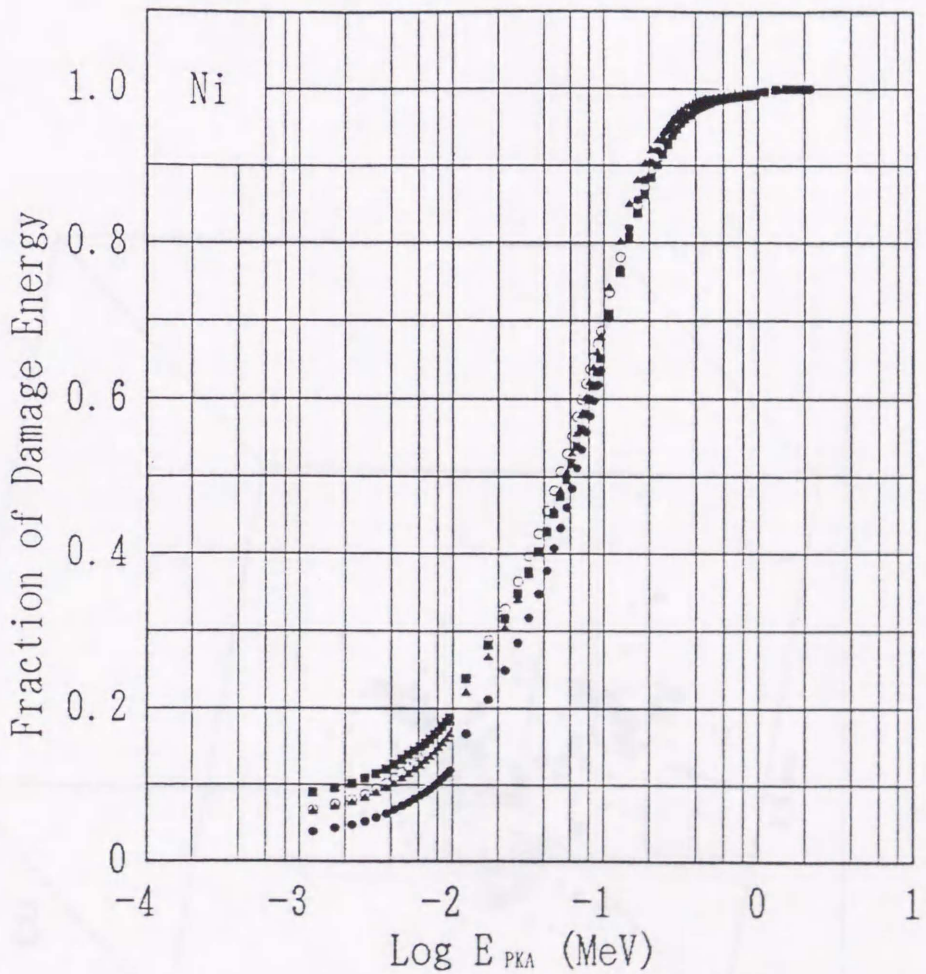
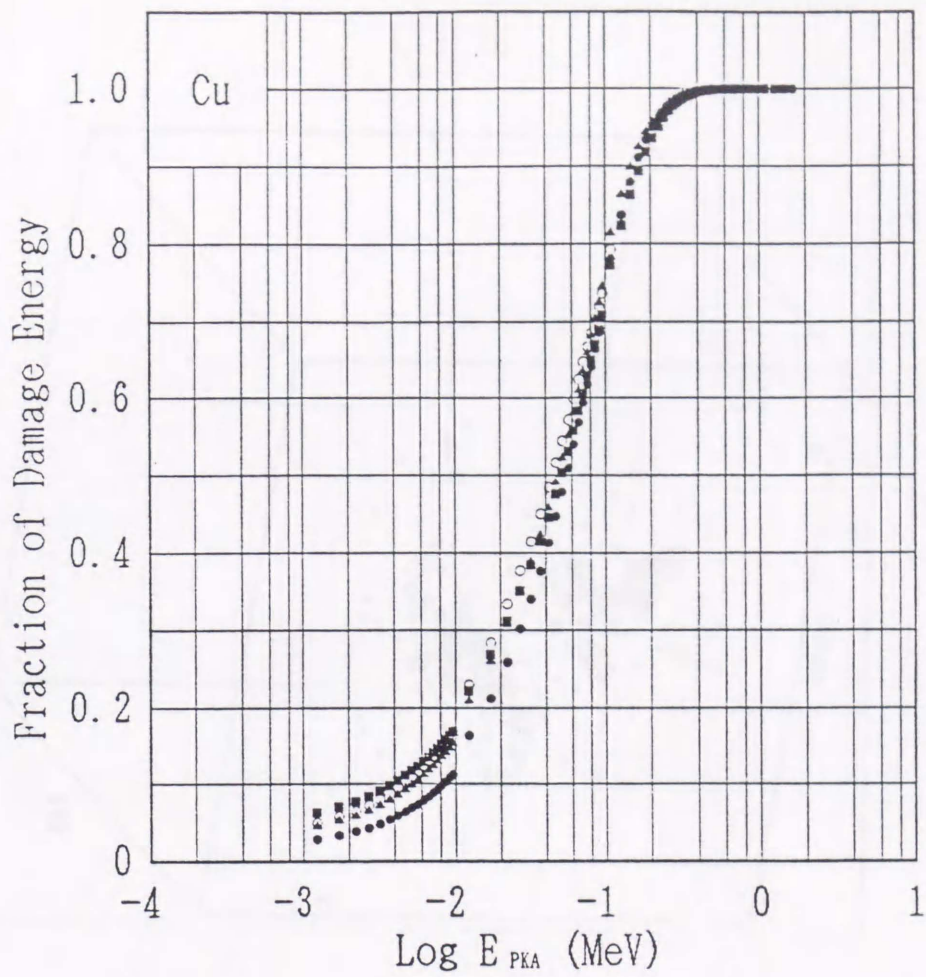


図1.2(b) JMTR中性子照射した銅・ニッケルの積分PKAエネルギー分布 [2]

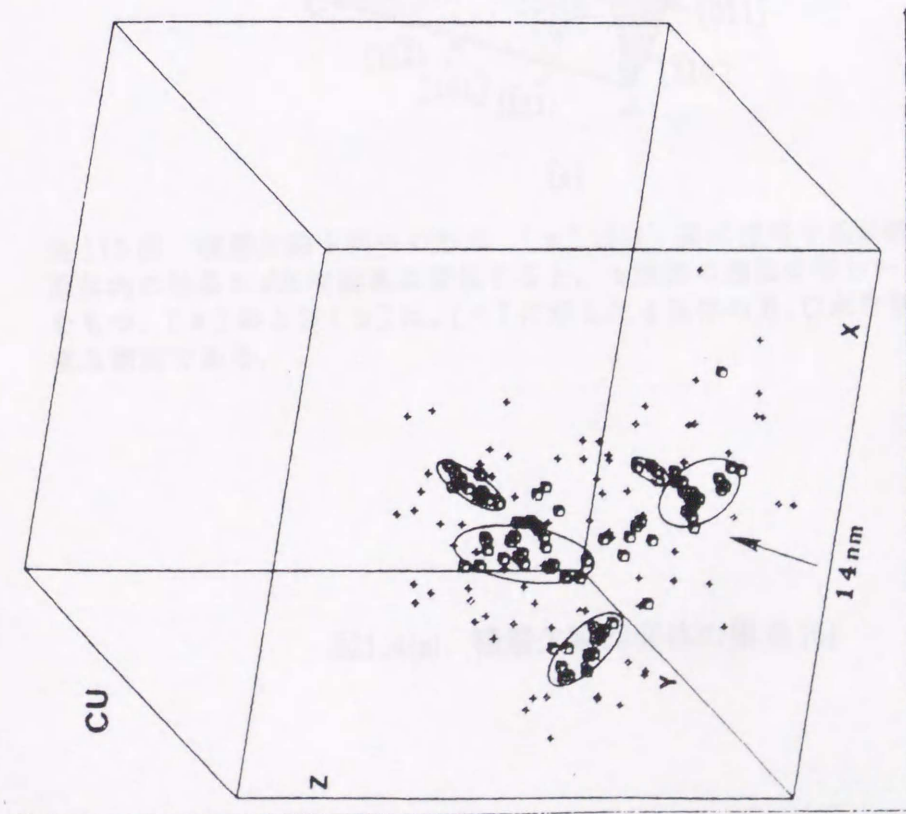


図1.3(a) Marlowe コードによる弾き出し原子の計算例 (銅  $E_{pK\Lambda} = 40 \text{ KeV}$ ) [3]

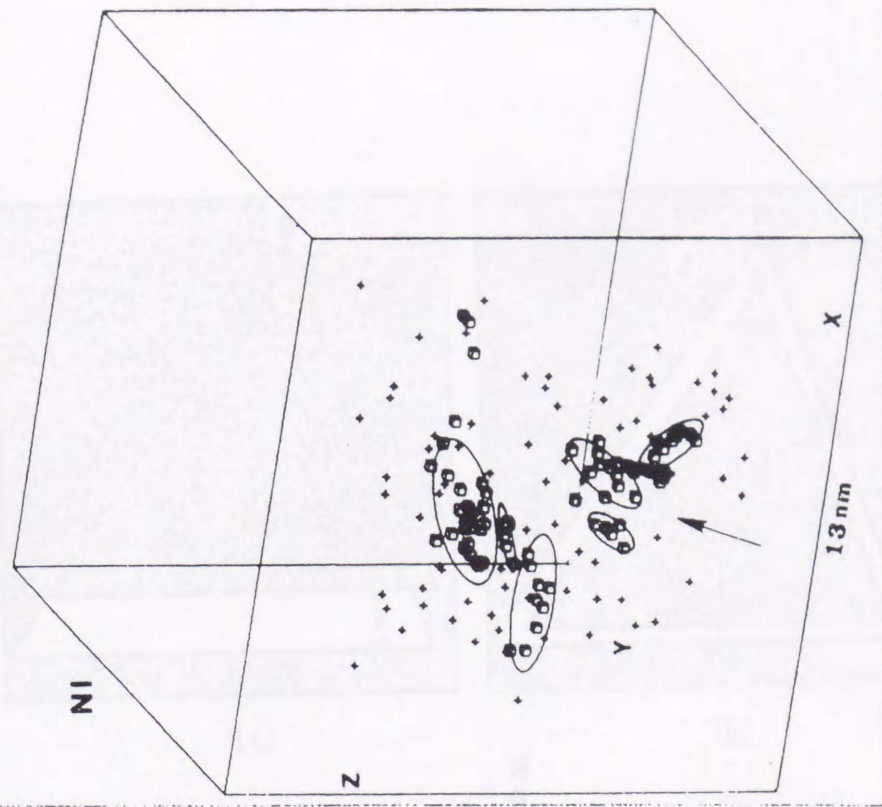
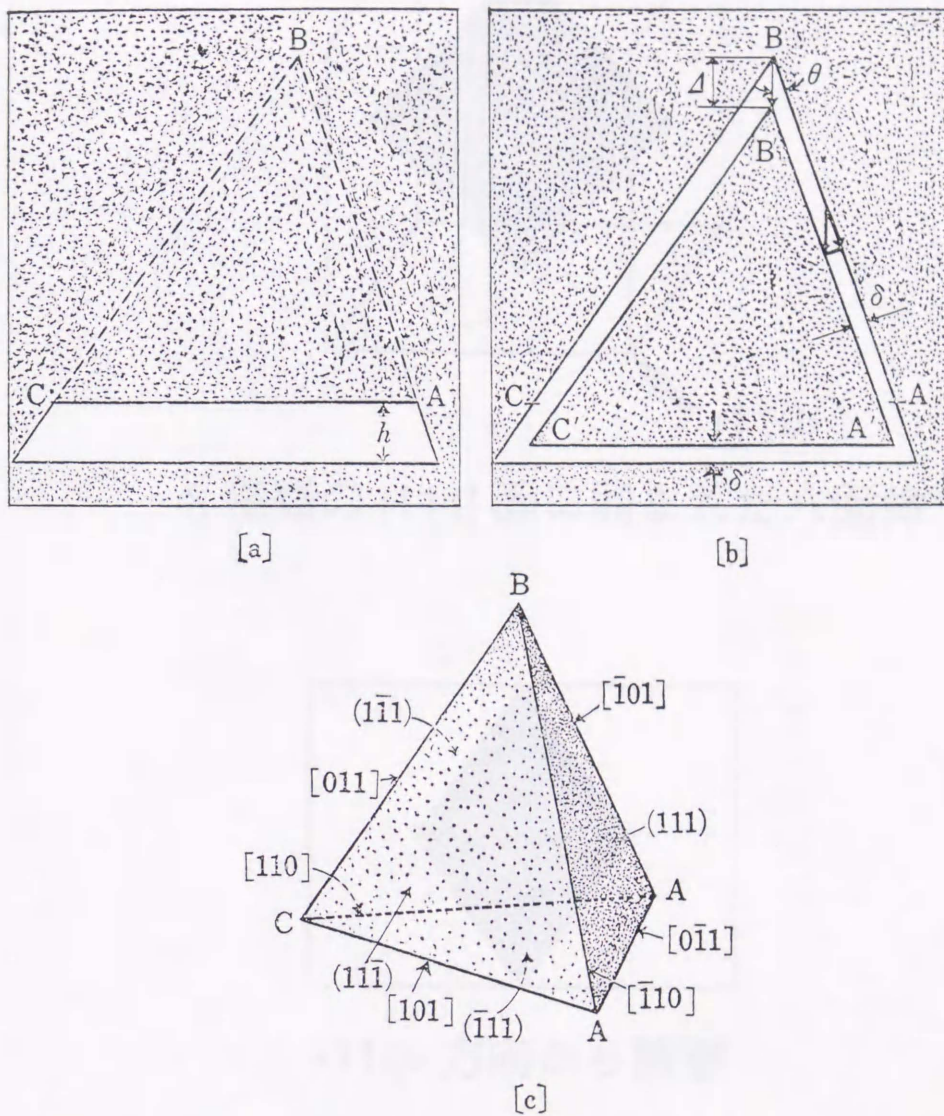
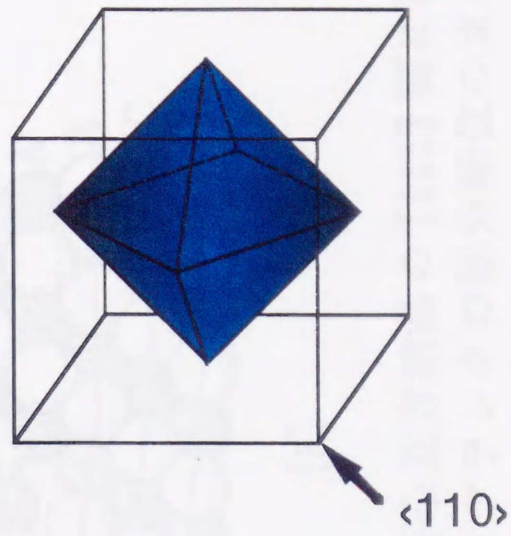


図1.3(b) Marlowe コードによる弾き出し原子の計算例 (ニッケル  $E_{pK\Lambda} = 40 \text{ KeV}$ ) [3]

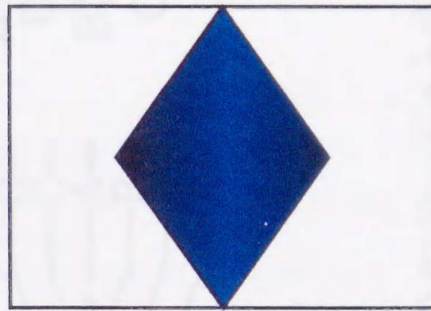


第 115 図 積層欠陥四面体の形成. [a]  $(\bar{1}11)$  面に空格子点が凝縮し, [b] 四面体内の結晶が  $\Delta$  だけ垂直に変位すると, 四面体の表面は等しい厚さの隙間  $\delta$  をもつ. [a] および [b] は, [c] に示した四面体の B, C 点を通り, 底面に垂直な断面である.

図1.4(a) 積層欠陥四面体の構造 [5]



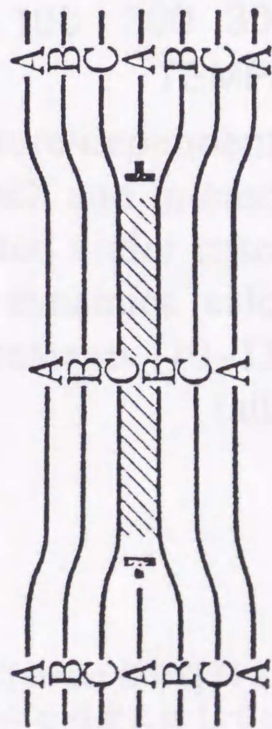
8種類の $\{111\}$ 面に囲まれた八面体



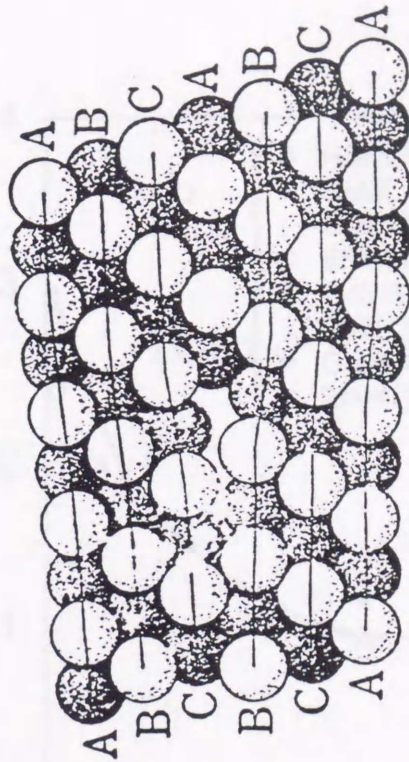
$\langle 110 \rangle$  方向から観察

ボイドによる材料の膨張  
⇒ 力学的特性の劣化

図1.4(b) ボイドの構造



[a]



[b]

第112図 フラランクの部分転位. [a] 空格子点が面心立方結晶の  $\{111\}$  面に凝縮すると積層欠陥をもった転位の輪ができる. [b] フラランクの部分転位のまわりの原子配列.

図1.5 原子空孔型フランクループの構造 [5]

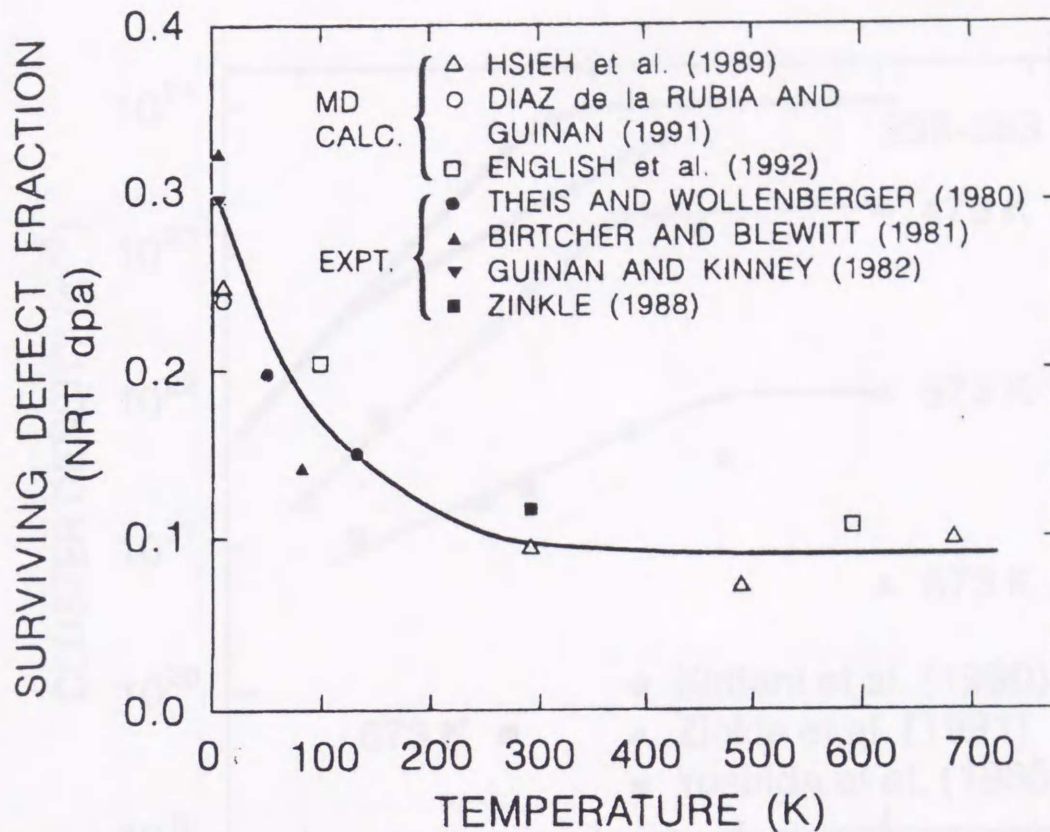


Fig. 1. Temperature-dependent fraction of defects surviving the cascade quench and in-cascade correlated recombination in copper irradiated under cascade conditions, as determined from molecular dynamics calculations [7-9] and electrical resistivity measurements [10-13]. See ref. [6] for further details.

図1.6 Norgett-Robinson-Torrens (NRT) により計算された損傷レベルに対して残存している点欠陥の割合を温度に対してプロットしたグラフ [6]

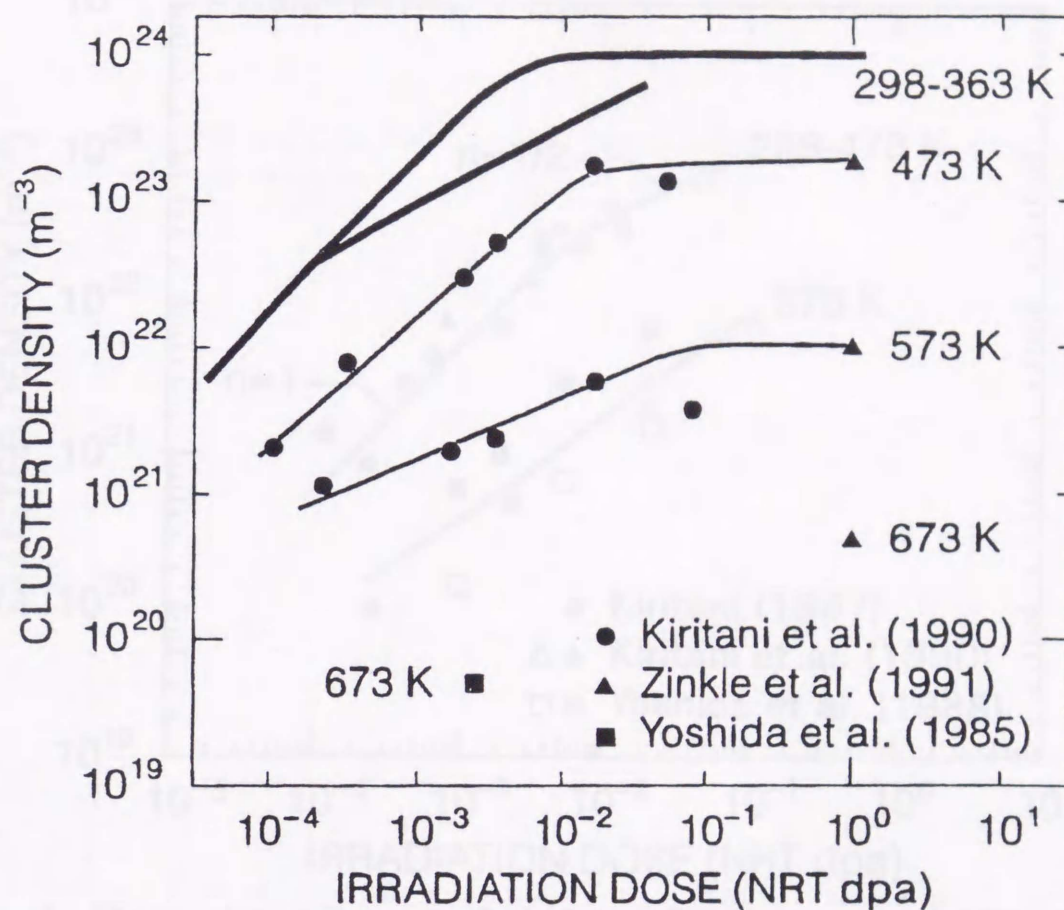


Fig. 3. Fluence dependence of defect cluster accumulation in neutron-irradiated copper at different irradiation temperatures [17,31,32]. The trend line for the 298-363 K data is taken from fig. 2.

図1.7(a) 銅を様々な温度で中性子照射したときの欠陥集合体数密度の照射量依存性 [6]



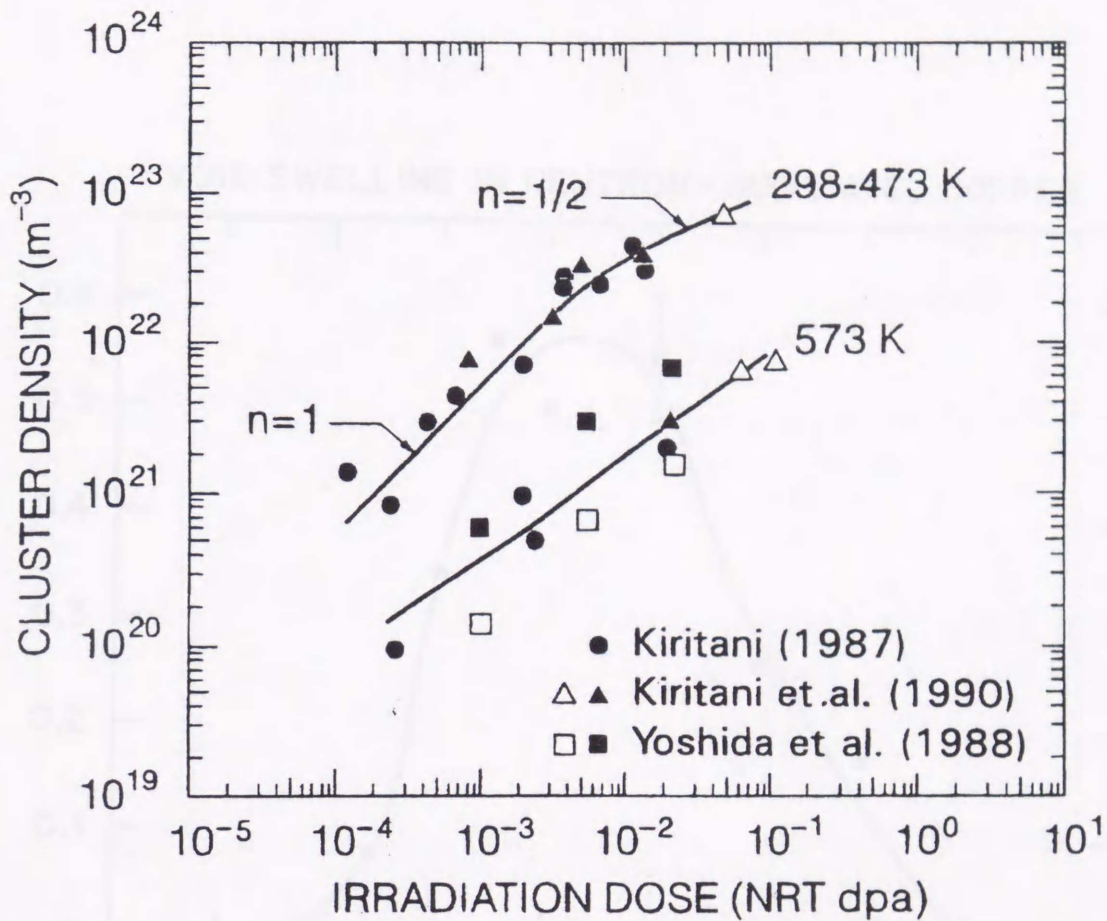


Fig. 4. Dose dependence of defect cluster accumulation in nickel irradiated with neutrons at different temperatures [27,31,33]. All of the data were obtained on 14-MeV neutron irradiated specimens except for the open triangles, which denote to fission neutron specimens.

図1.7(b) ニッケルを様々な温度で中性子照射したときの欠陥集合体数密度の照射量依存性 [6]

VOID SWELLING IN NEUTRON-IRRADIATED COPPER

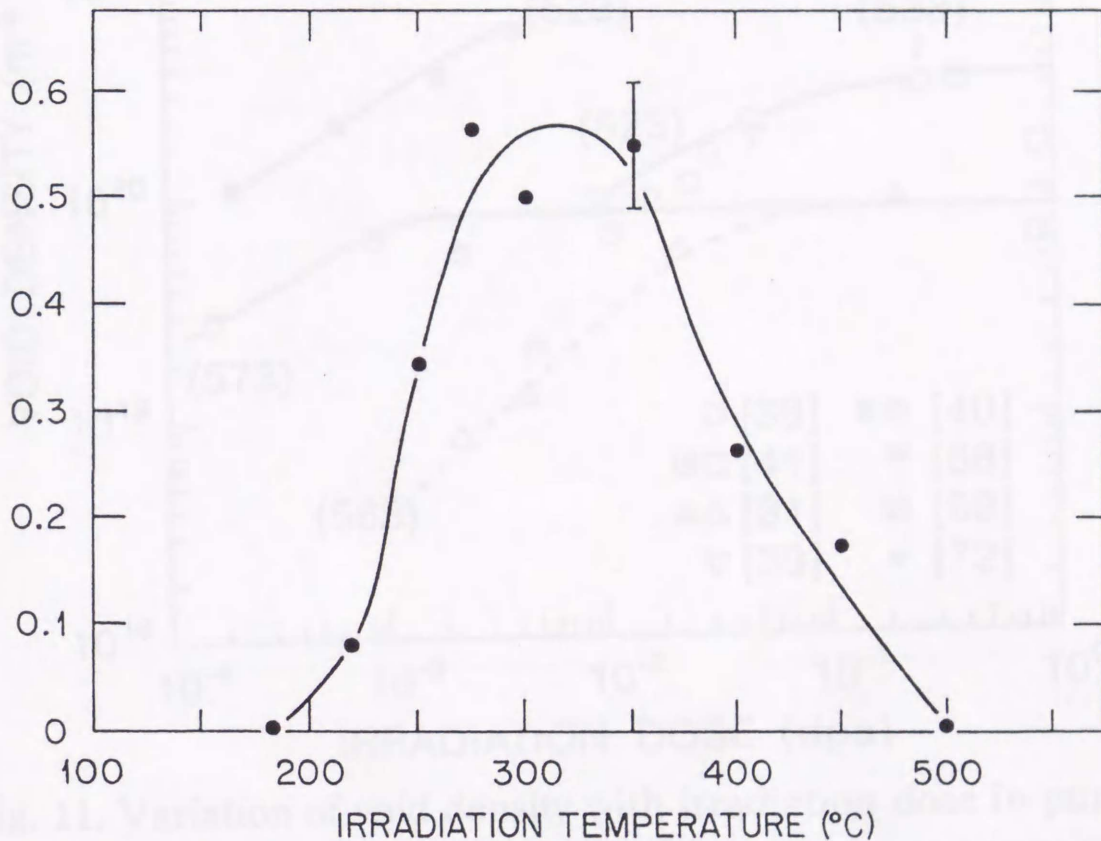


Fig. 2. Swelling in copper as determined from density measurements of irradiated disks. The displacement levels range from 1.1 to 1.3 dpa and the damage rate was  $\sim 2 \times 10^{-7}$  dpa/s.

図1.8 銅を182-500°Cの温度範囲で核分裂中性子照射（損傷レベル：1.1～1.3 dpa、損傷速度： $2 \times 10^{-7}$  dpa/s）したときのボイドスエリング温度依存性 [7]

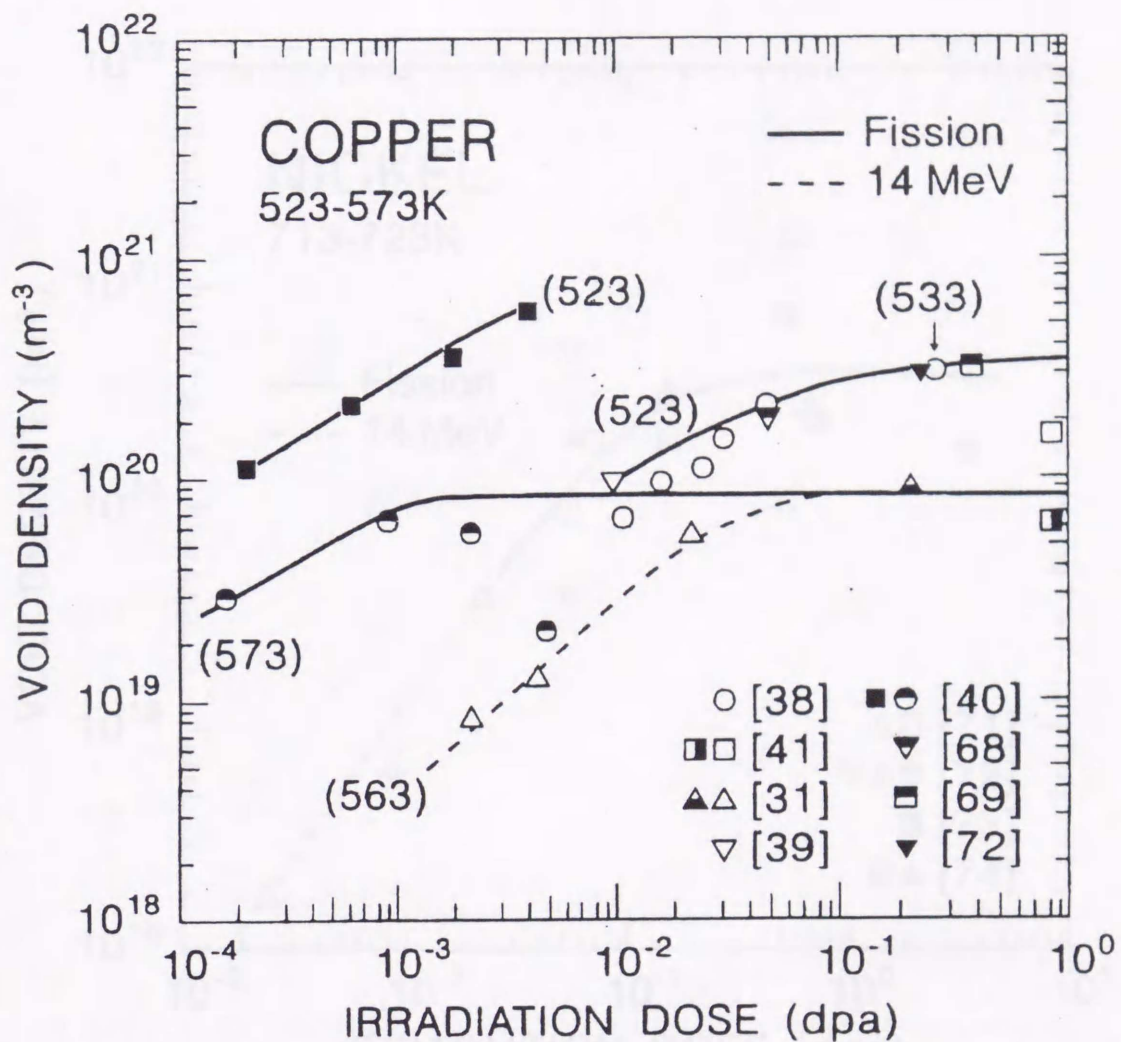


Fig. 11. Variation of void density with irradiation dose in pure copper irradiated with fission and fusion neutrons at temperatures in the range 523–573 K [31,38–41,68–69,72]. Data points for 523 and 558 K [38] are represented by ○. Numbers in brackets are irradiation temperatures for various trend lines. Note that the void density begins to saturate at a low dose level of  $\sim 10^{-2}$  dpa.

図1.9(a) 523-573Kにおいて中性子照射した銅のボイド数密度の照射量依存性 [6]

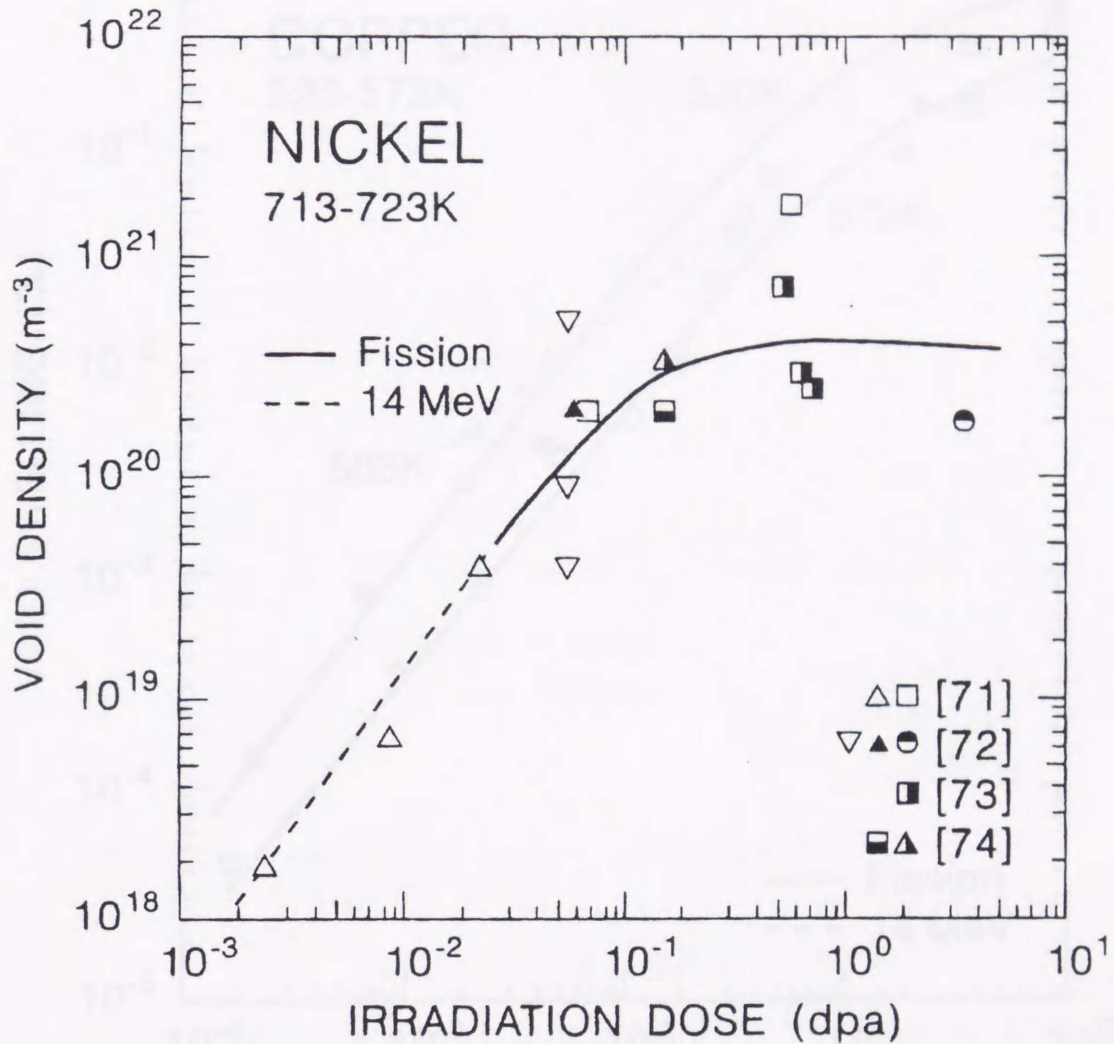


Fig. 12. Dose dependence of void density in nickel irradiated with fission and fusion neutrons at temperatures in the range 713–723 K [71–74]. Note that the maximum void density is reached at  $\sim 0.1$  dpa.

図1.9(b) 713-723Kにおいて中性子照射したニッケルのボイド数密度の照射量依存性 [6]

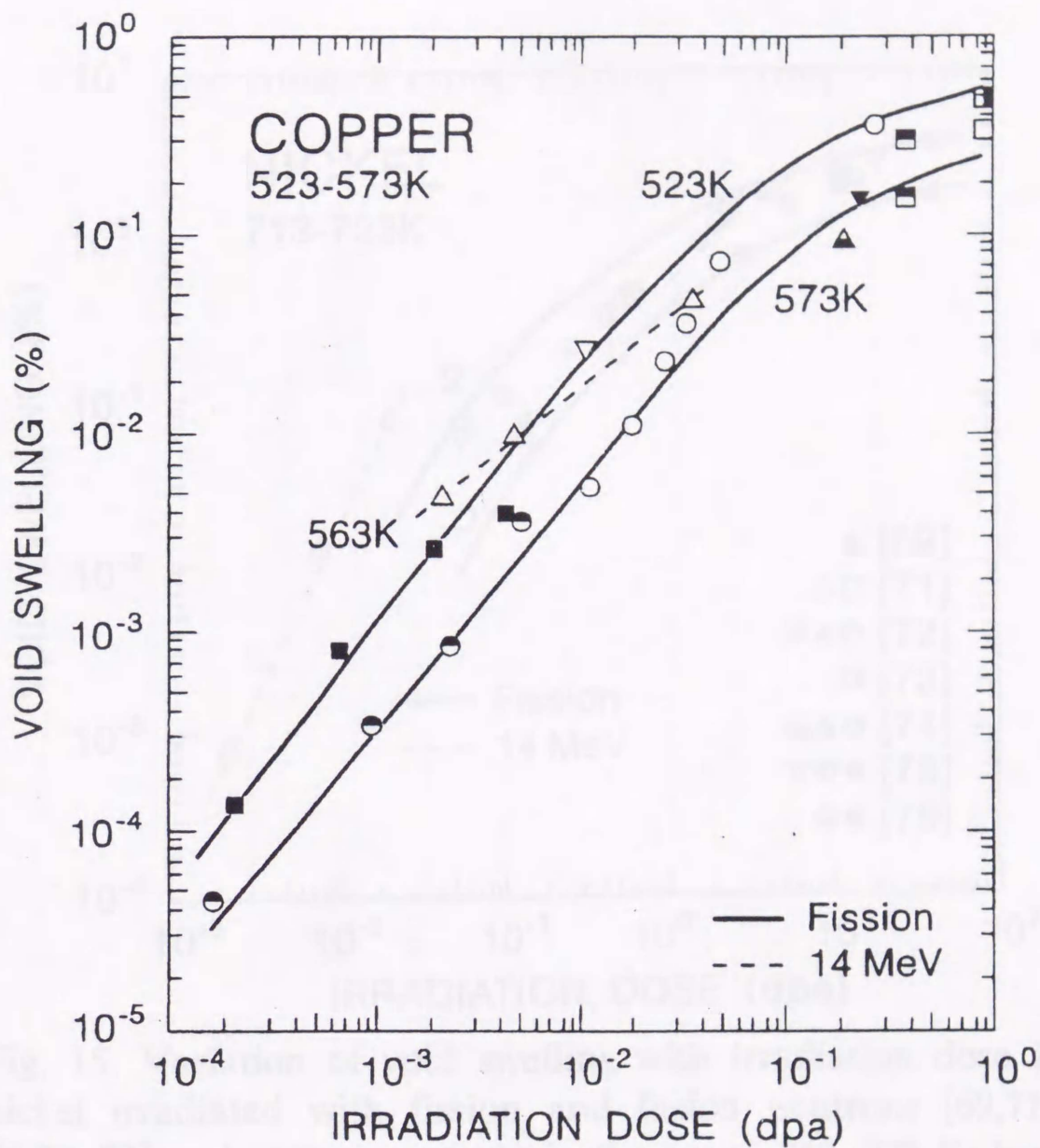


Fig. 13. Variation of void swelling with irradiation dose in copper irradiated with fission and fusion neutrons at temperatures in the range 523–573 K [31,38–41,68–69,72]; the keys have the same definition as in fig. 11. Note that the swelling rate is higher at lower doses when the dislocation density is very low and begins to decrease at a low dose of  $\sim 0.1$  dpa.

図1.10(a) 523-573Kにおいて中性子照射した銅のスエリング照射量依存性 [6]

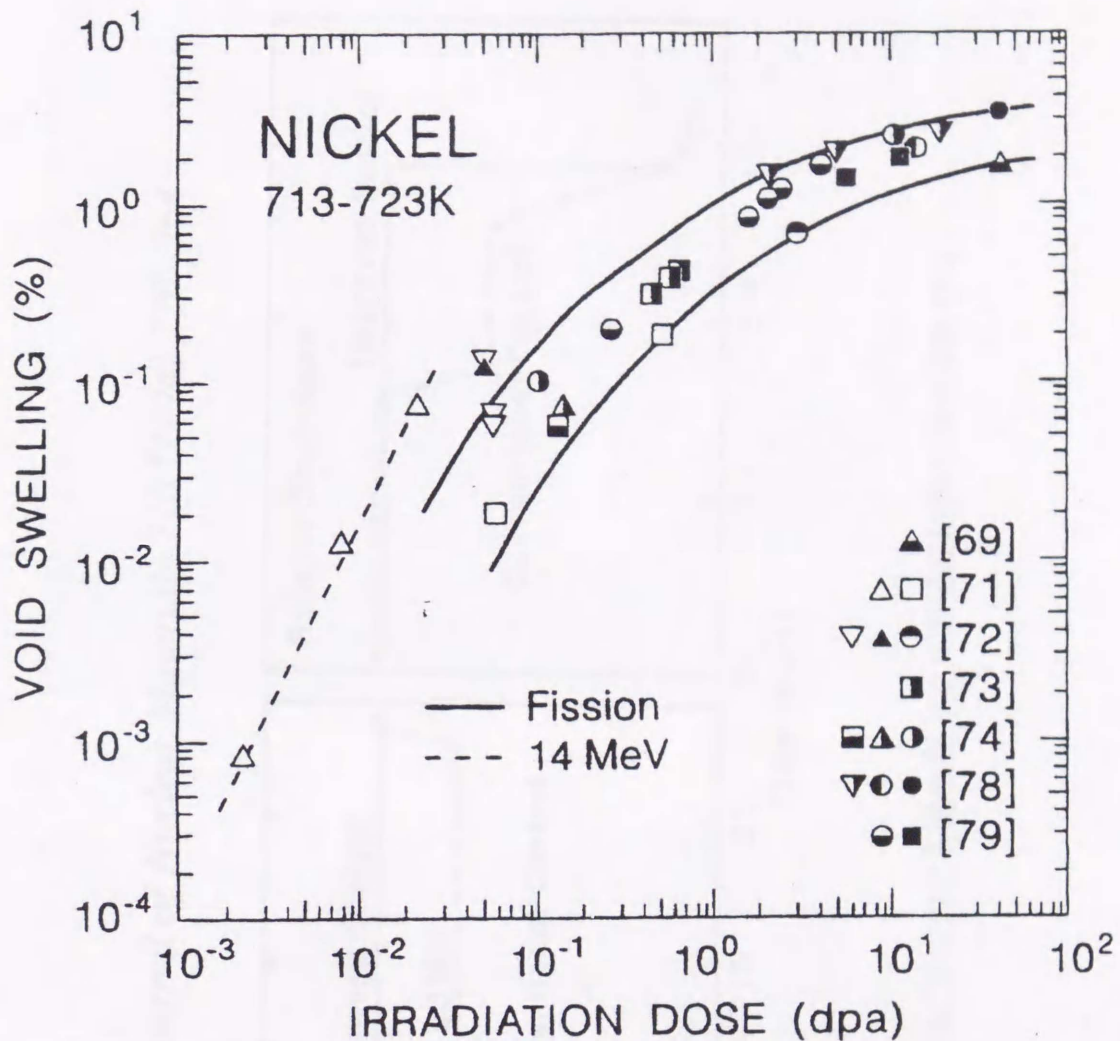


Fig. 15. Variation of void swelling with irradiation dose in nickel irradiated with fission and fusion neutrons [69,71-74,78-79] and at temperatures in the range 713-723 K; keys have the same definition as in fig. 12. Like in the case of copper, the swelling rate is higher at low doses and begins to decrease at a dose level of  $\sim 0.1$  dpa. Note that the swelling in the fusion neutron irradiated nickel is significantly higher than that in fission neutron irradiated nickel.

図1.10(b) 713-723Kにおいて中性子照射したニッケルのスエリング照射量依存性 [6]

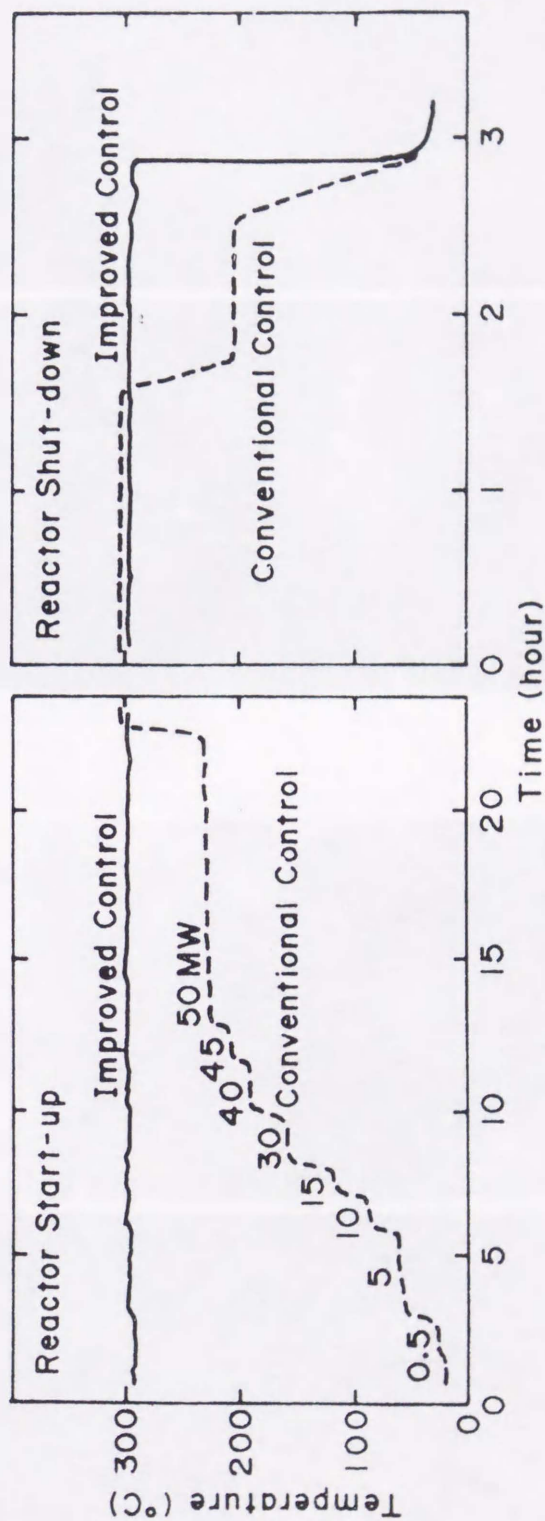


図1.11 JMTRにおける従来型/改良型温度制御の温度履歴 [31]

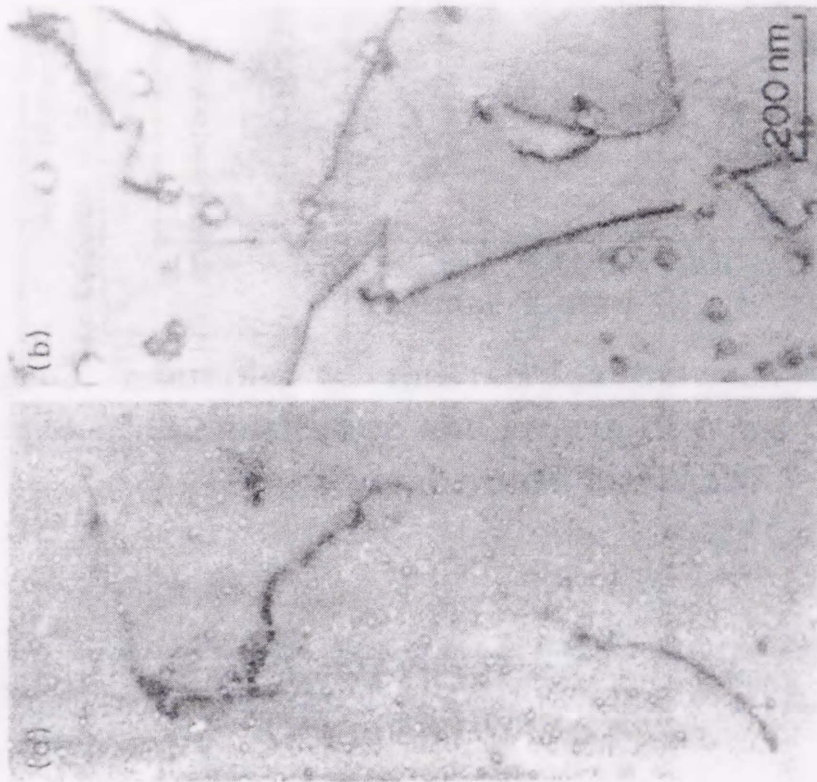


Fig. 41. Comparison of defect microstructures in nickel for (a) conventional and (b) improved temperature control. Irradiated as bulk at 673 K. Note the large difference in size and number of voids.

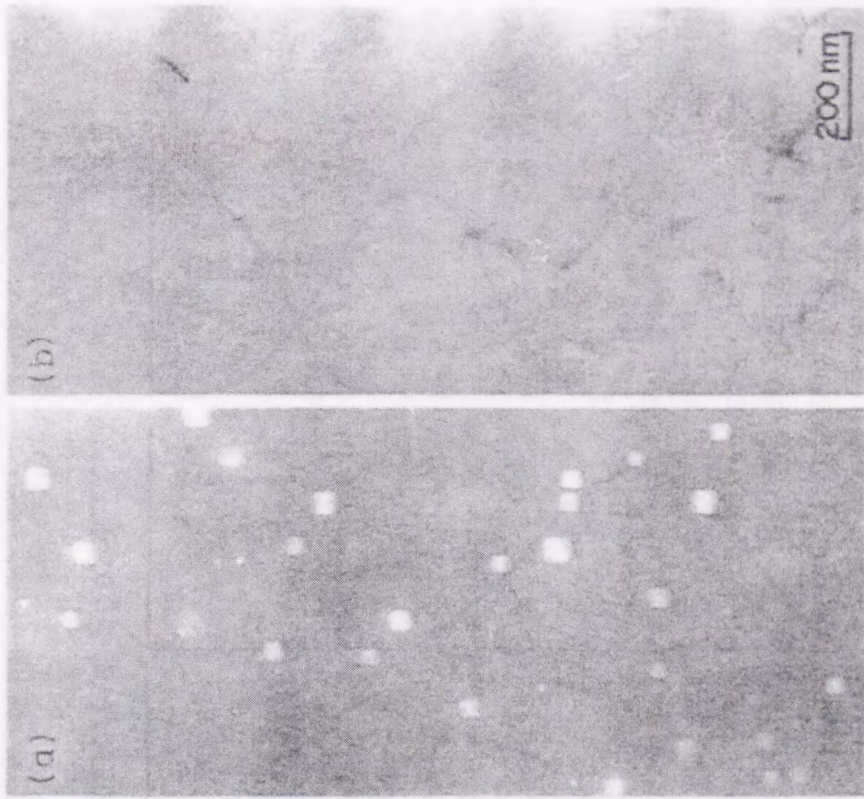


Fig. 42. Difference of void formation in copper irradiated as a bulk sample at 673 K for (a) conventional and (b) improved temperature control. No voids are observed in the improved temperature control case.

図1.12 銅とニッケルについて従来型制御と改良型制御における照射では明らかに損傷欠陥の組織が異なる [30, 31]。ボイド数密度が従来型照射では大きい。



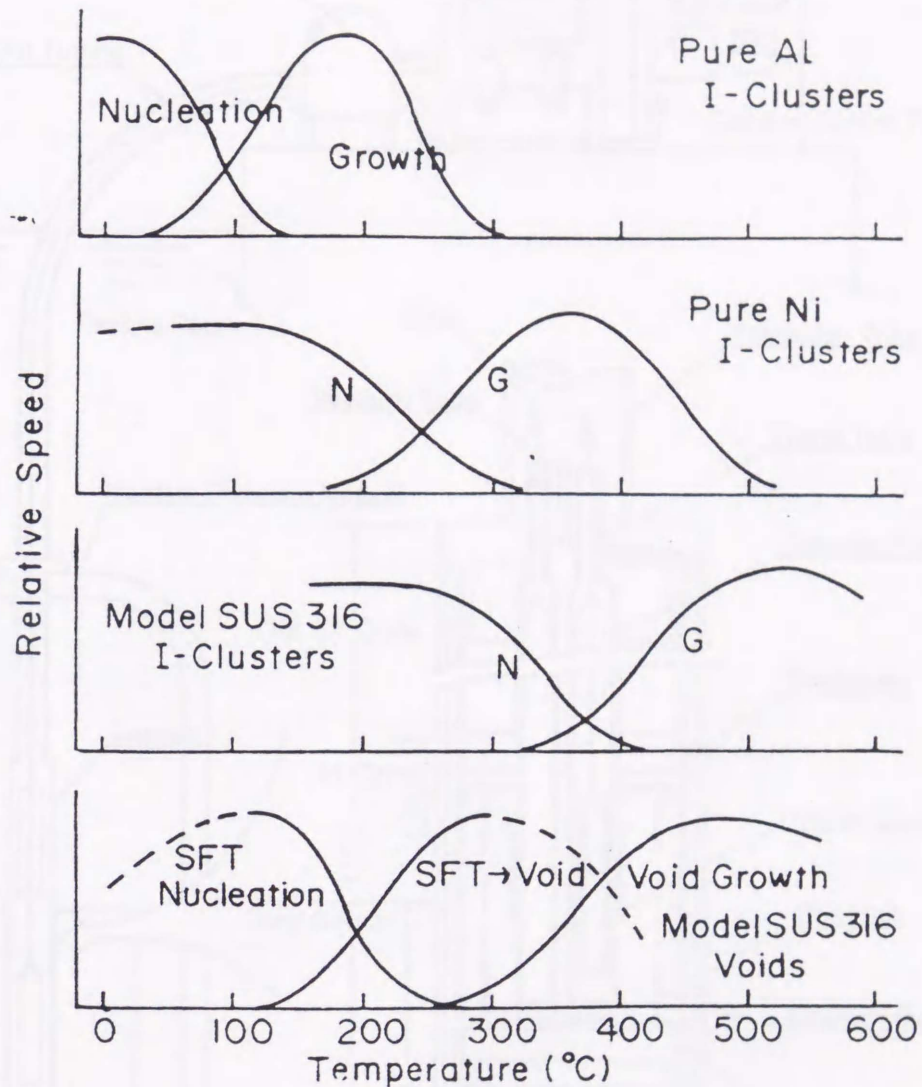


Fig. 3. Examples of the relation between the temperature ranges of the nucleation and growth of point defect clusters in several typical materials.

図1.13 照射損傷（原子空孔・格子間原子集合体）の形成は、一般的に低温側で核形成、高温側で成長するために設定温度以下でのわずかな中性子照射が数多くの核を形成する [31]。

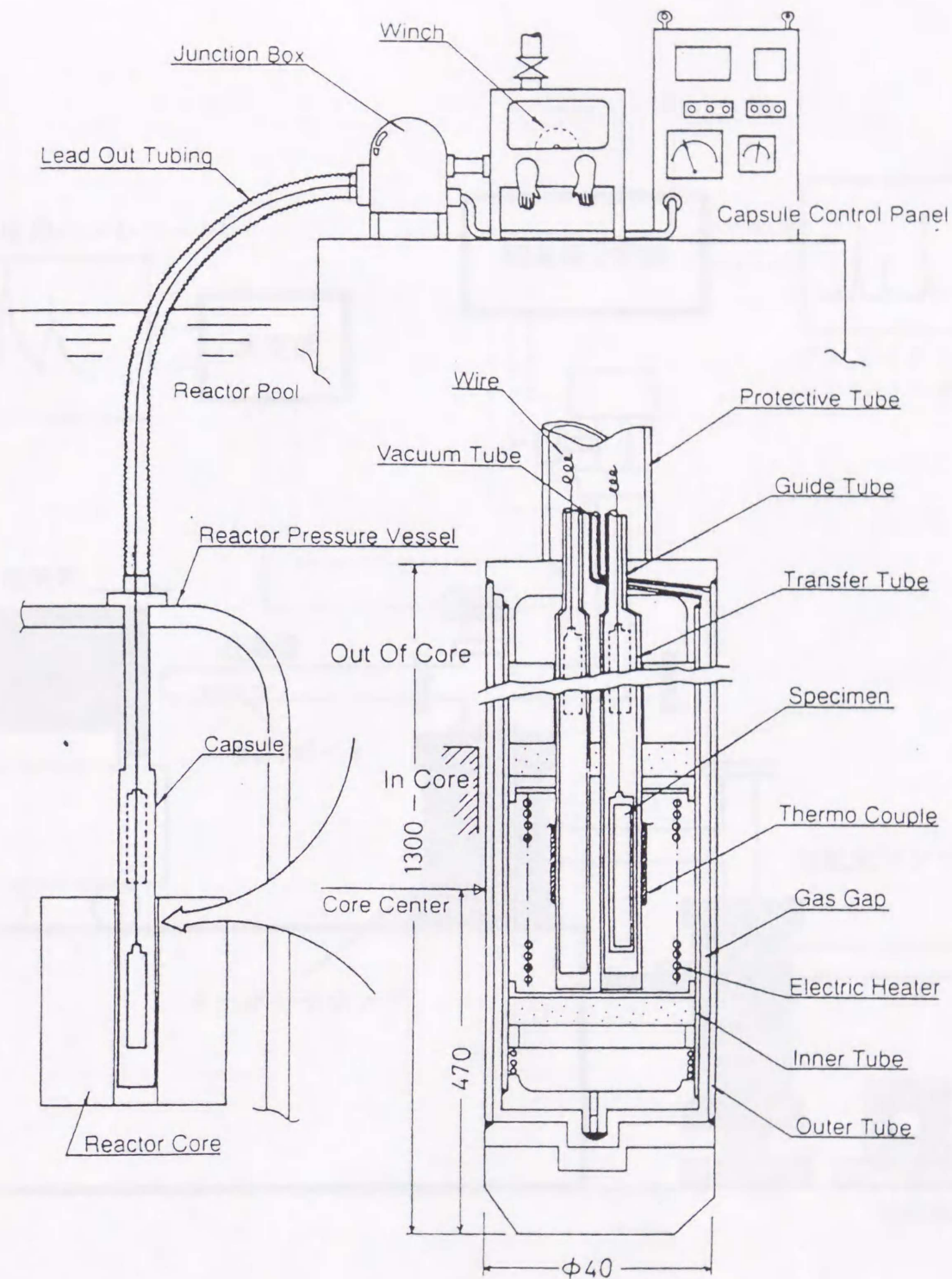


Fig. 6. Rig under development for fluence and temperature-controlled irradiations.

図1.14 同じ中性子束で照射量が変化できるように開発された多段多分割型温度制御リグ [28]

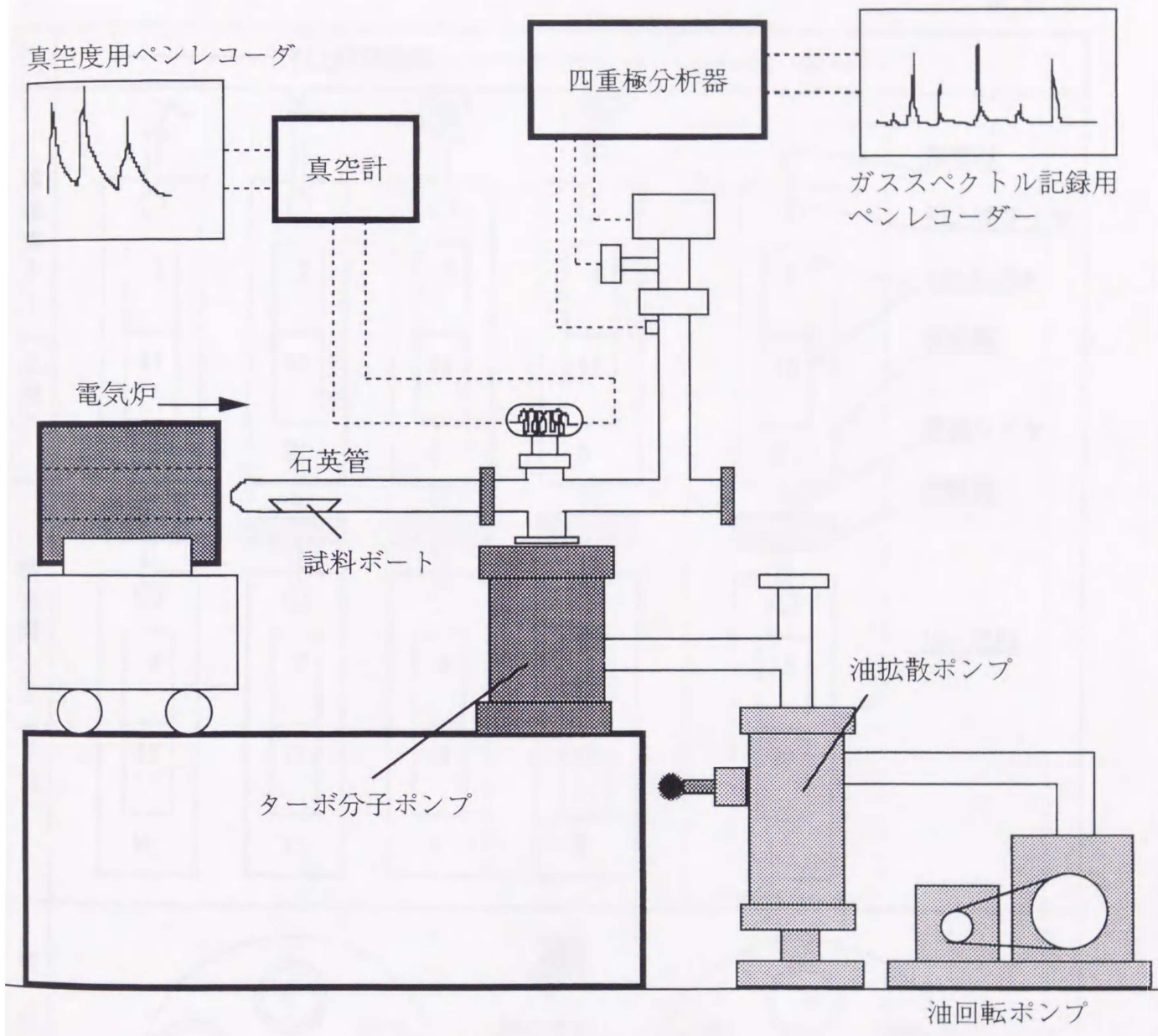


図2.1 残留ガス除去処理試料作製装置概略



94M-15U

# インナ・キャプセル等の番号と配置

H7.6/ 8

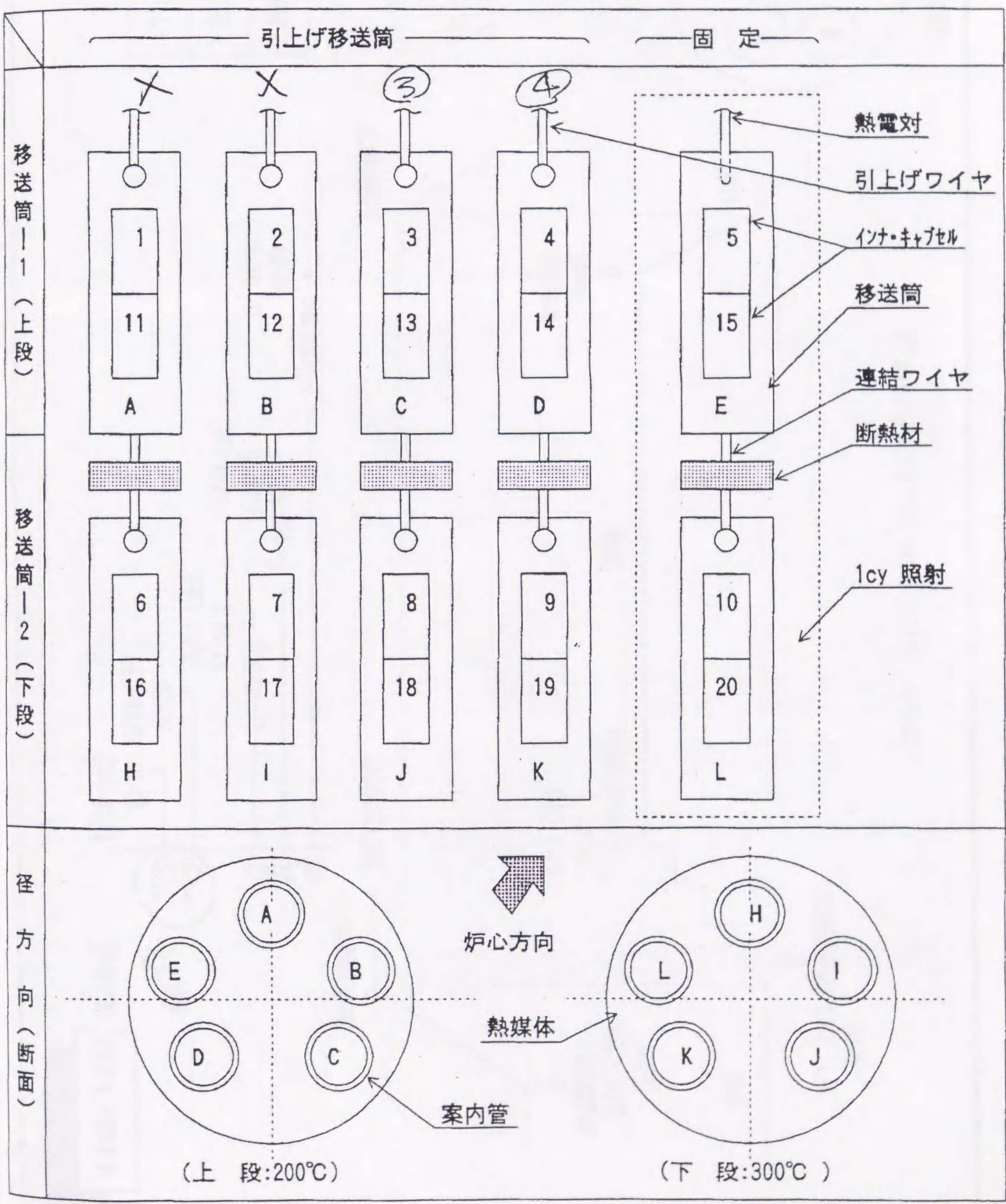


図2.2 JMTR多段多分割温度制御照射リグの概念図

HT

	目標温度 *1
1 段目	<del>300</del> → 200°C
2 段目	<del>400</del> → 300°C

\*1: HT. 5/11  
 30MW昇時時に変更  
 \*2: 樹線  
 \*3: 樹線(300mm引上げ)

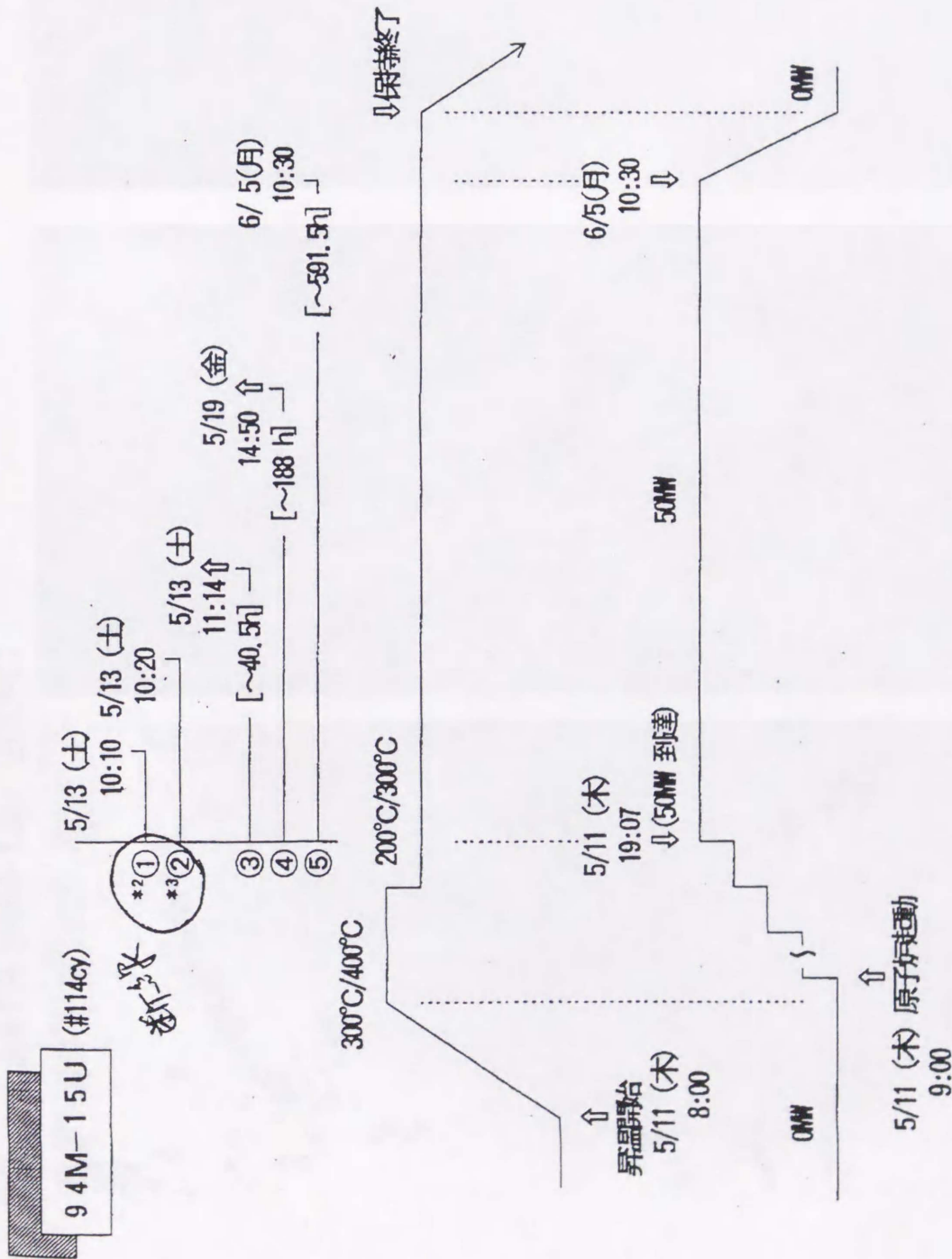
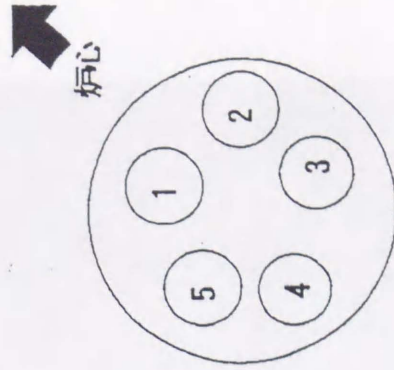


図2.3 JMTR 94M-15u 引上作業実績

Cu JMTR 94M-15u 200°C

$5.3 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$

$2.5 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

$7.7 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

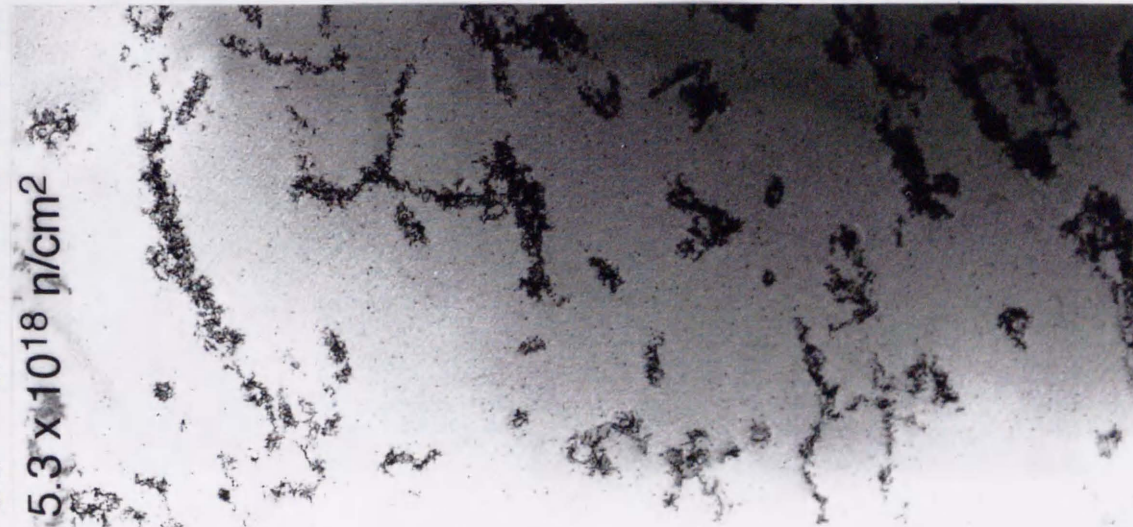
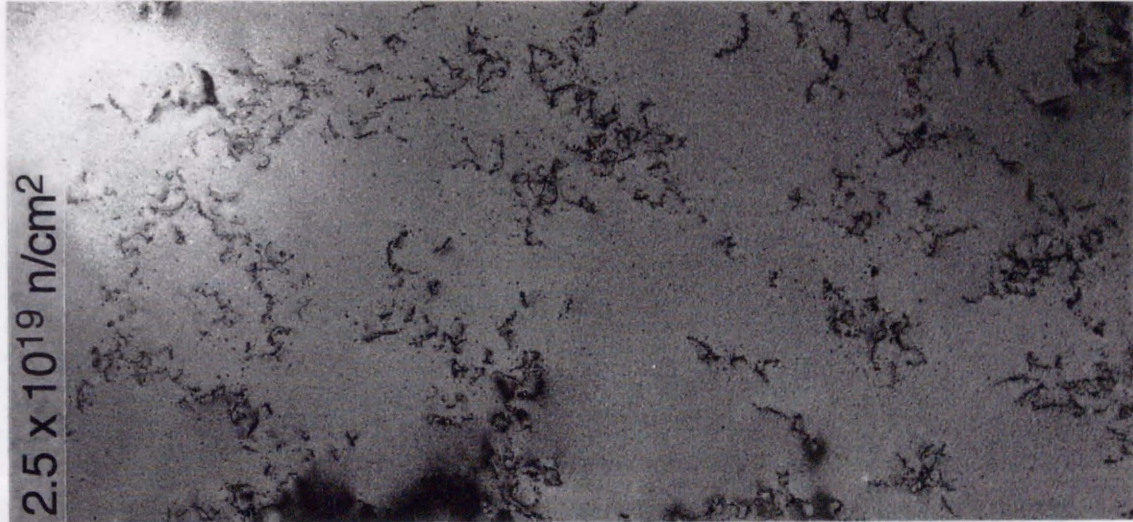
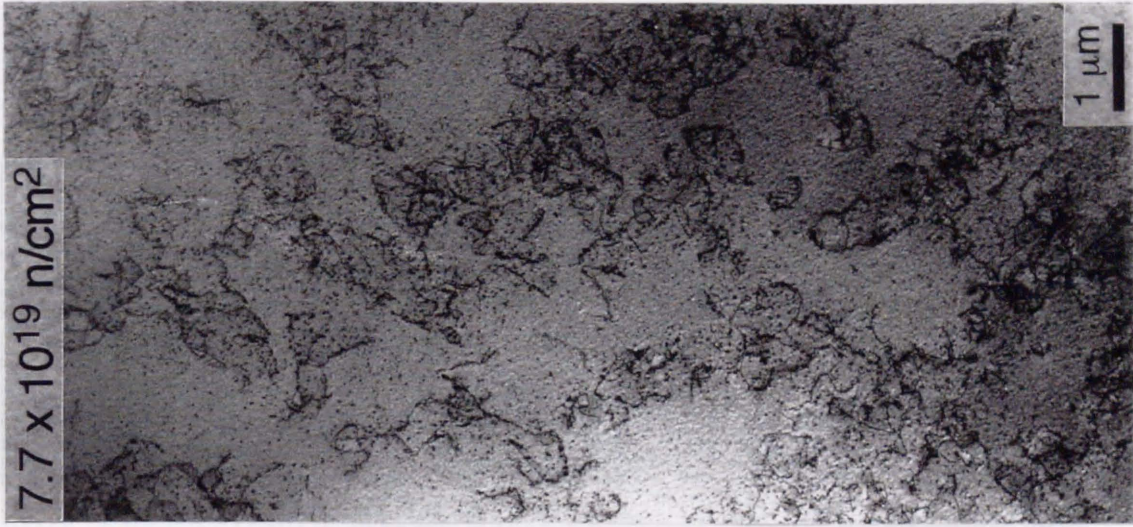
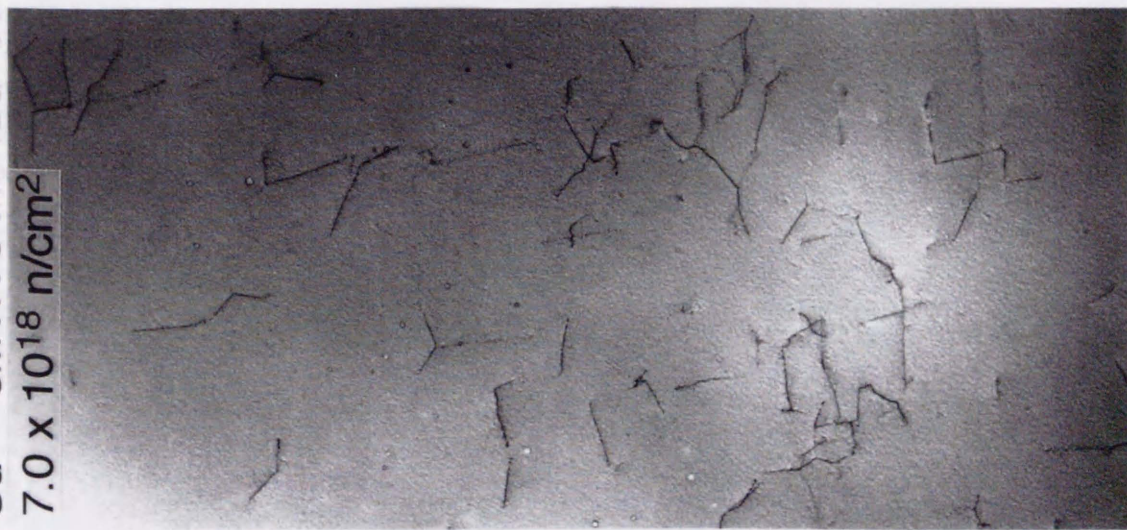
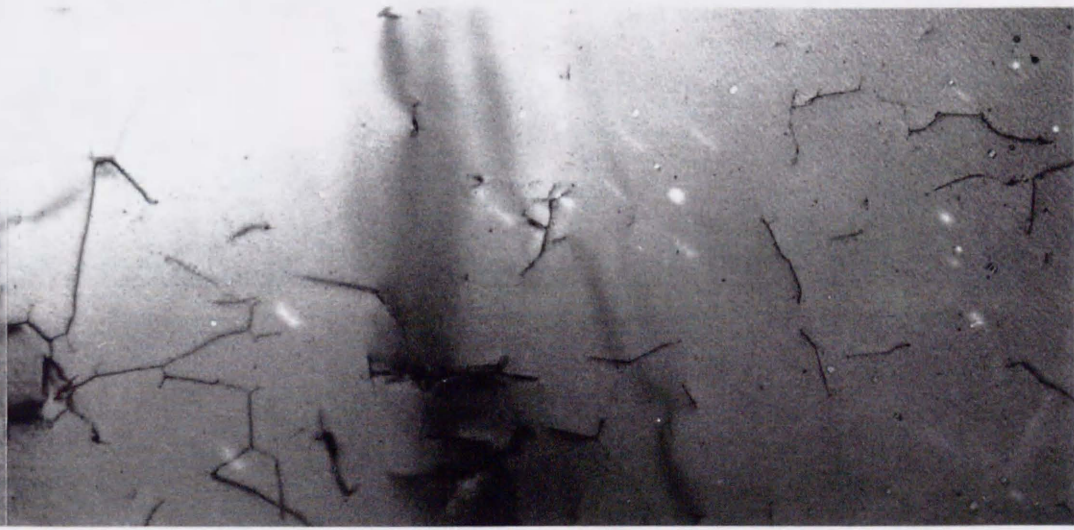


図3.1.1 200°C照射した純銅 (as-received 試料) の損傷組織照射量依存性

Cu JMTR 94M-15u 300°C  
7.0 x 10<sup>18</sup> n/cm<sup>2</sup>



3.3 x 10<sup>19</sup> n/cm<sup>2</sup>



1.0 x 10<sup>20</sup> n/cm<sup>2</sup>

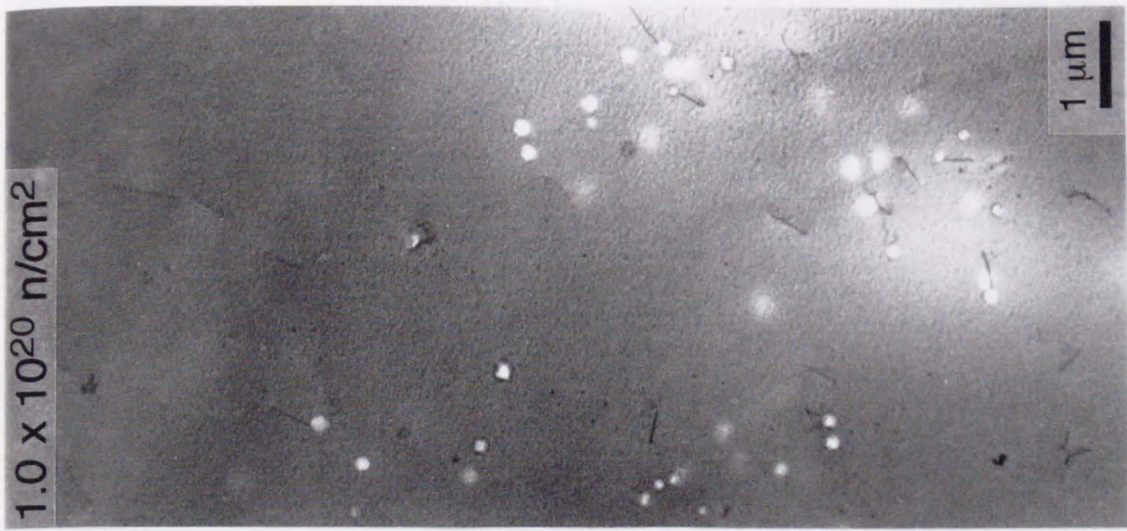
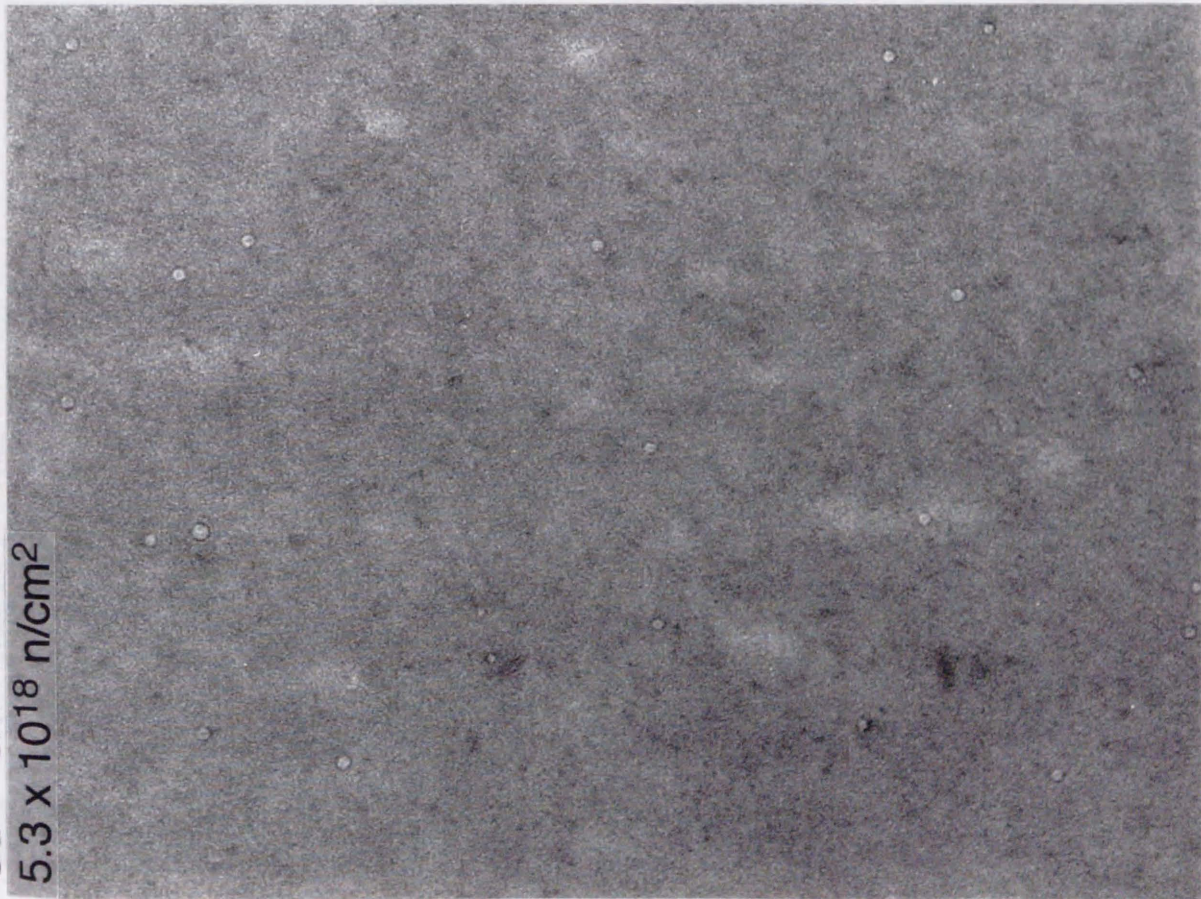


図3.1.2 300°C照射した純銅 (as-received 試料) の損傷組織照射量依存性

Cu JMTR 94M-15u 200°C

$5.3 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$



$7.7 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

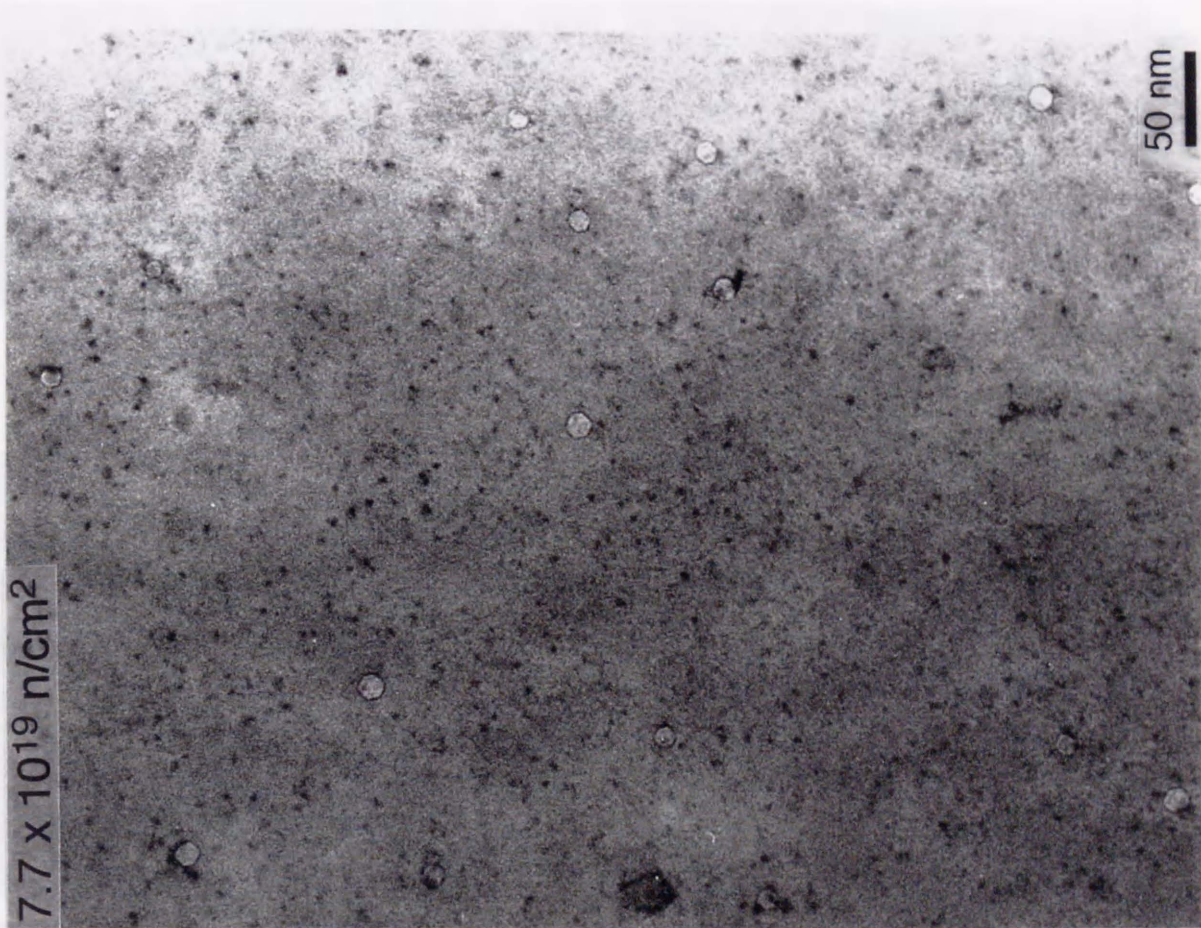
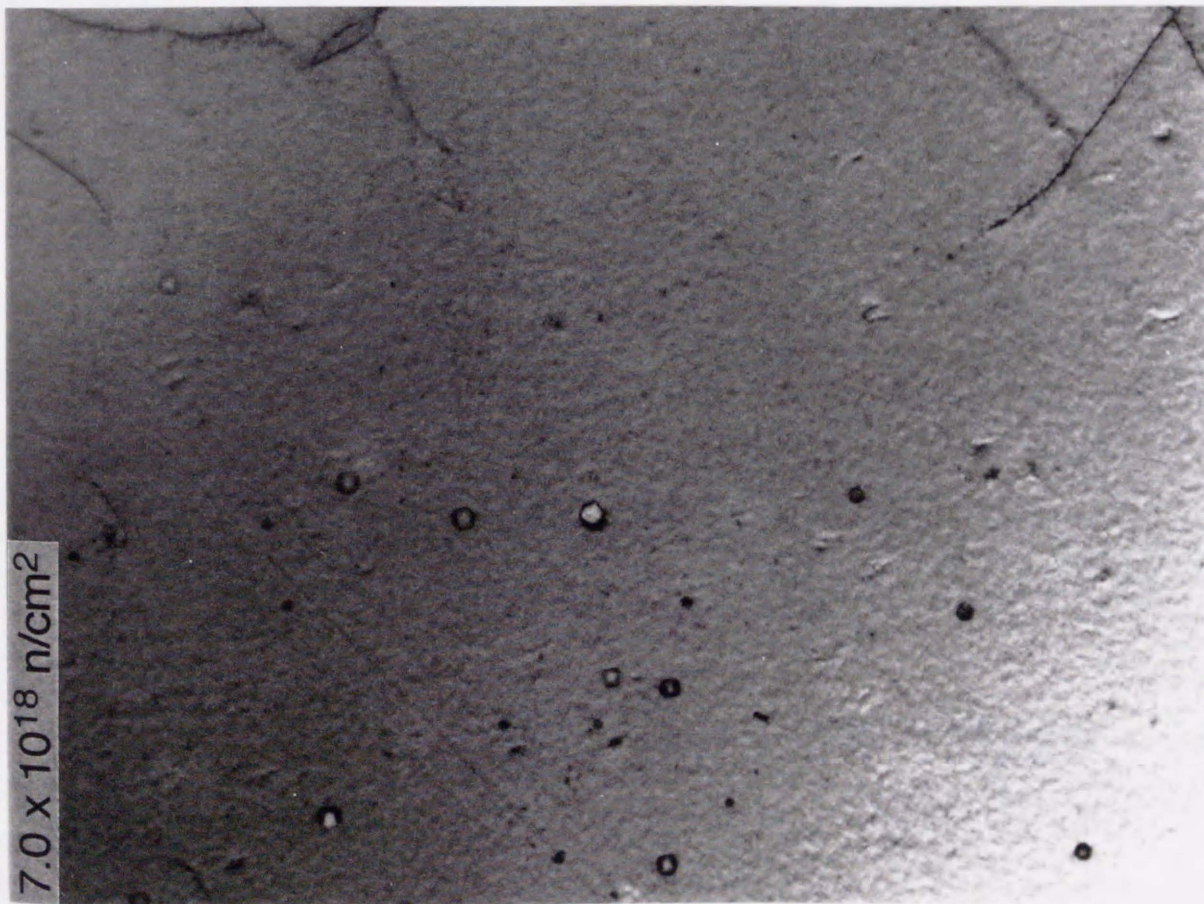


図3.1.3 200°C照射した純銅 (as-received 試料) のボイド組織照射量依存性



Cu JMTR 94M-15u 300°C

7.0 x 10<sup>18</sup> n/cm<sup>2</sup>



1.0 x 10<sup>20</sup> n/cm<sup>2</sup>

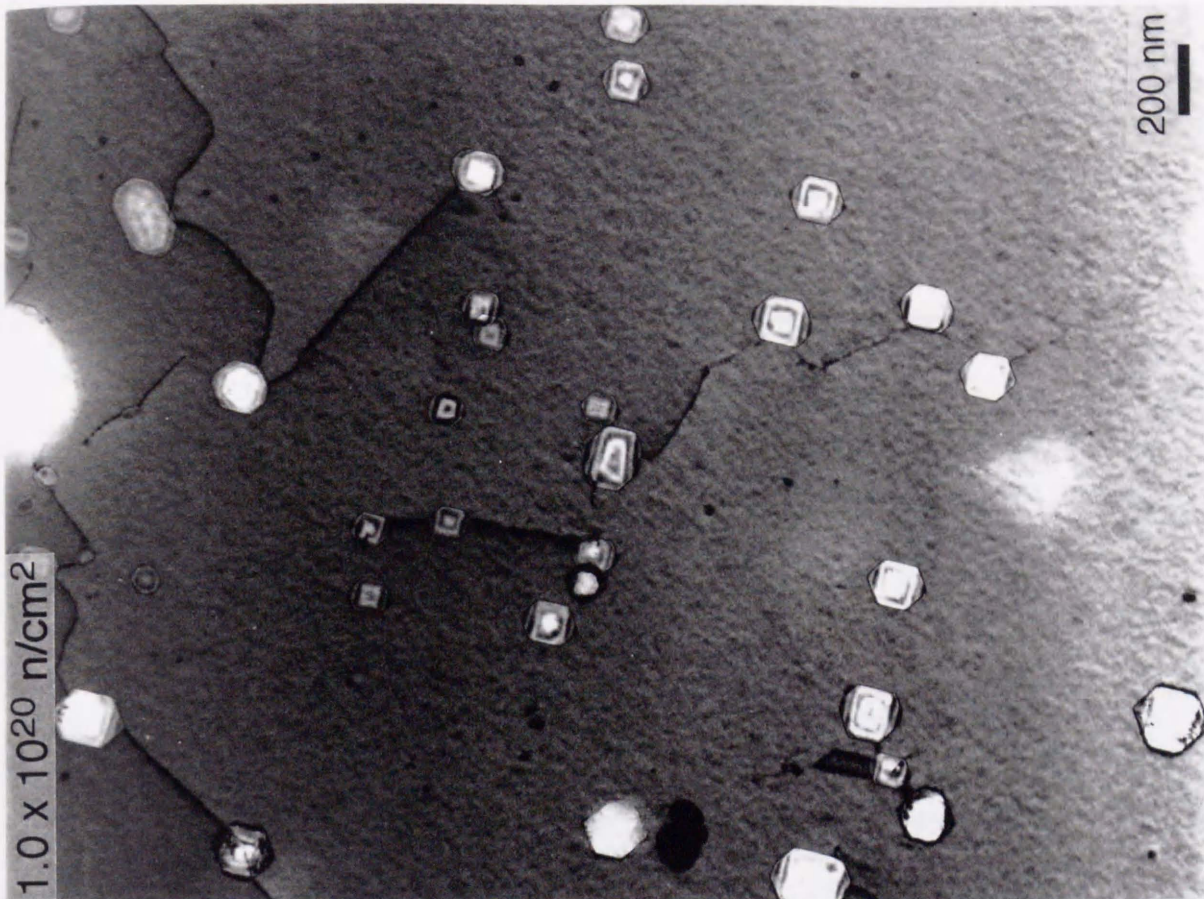


図3.1.4 300°C照射した純銅 (as-received 試料) のボイド組織照射量依存性

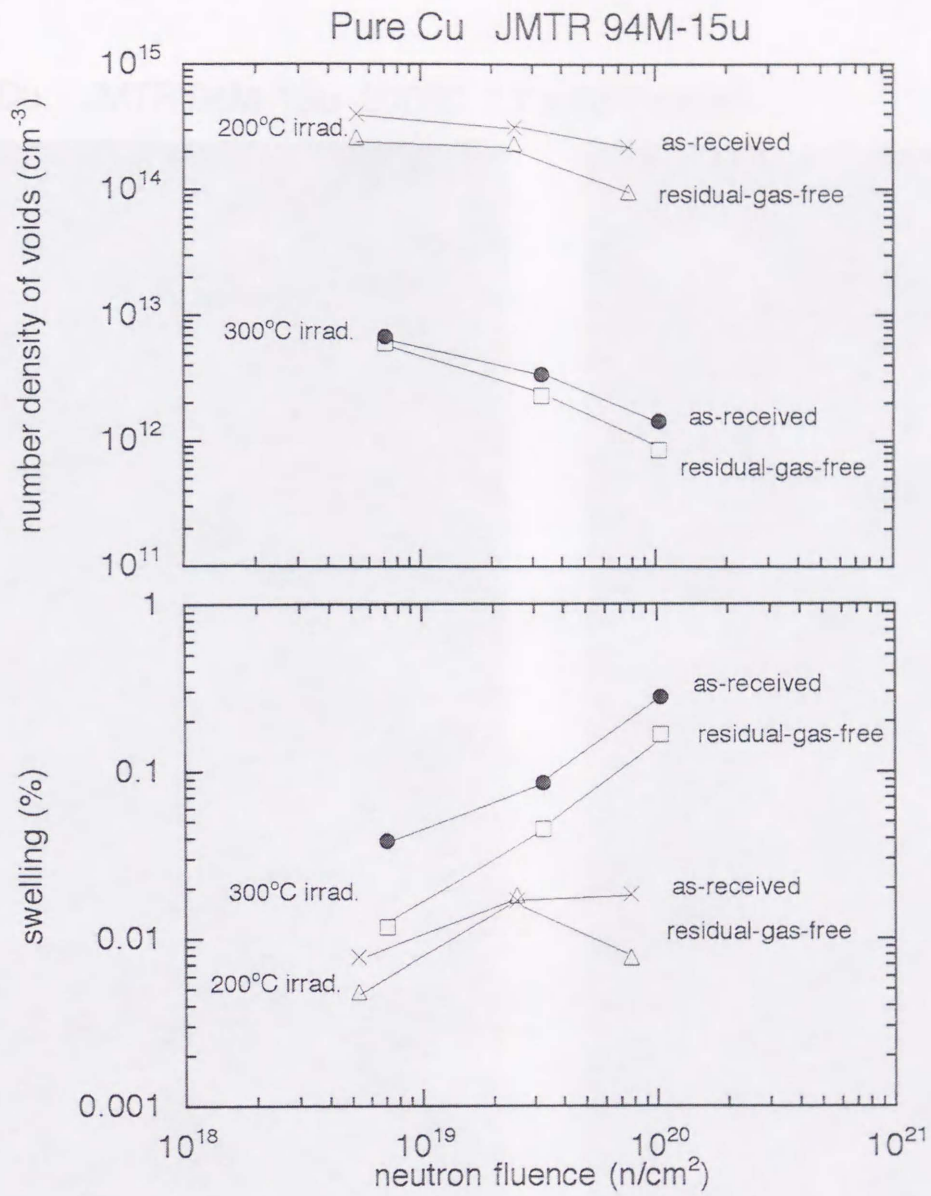


図3.1.5 200、300°C照射した純銅のボイド数密度照射量依存性

Cu JMTR 94M-15u 200°C  $7.7 \times 10^{19}$  n/cm<sup>2</sup>

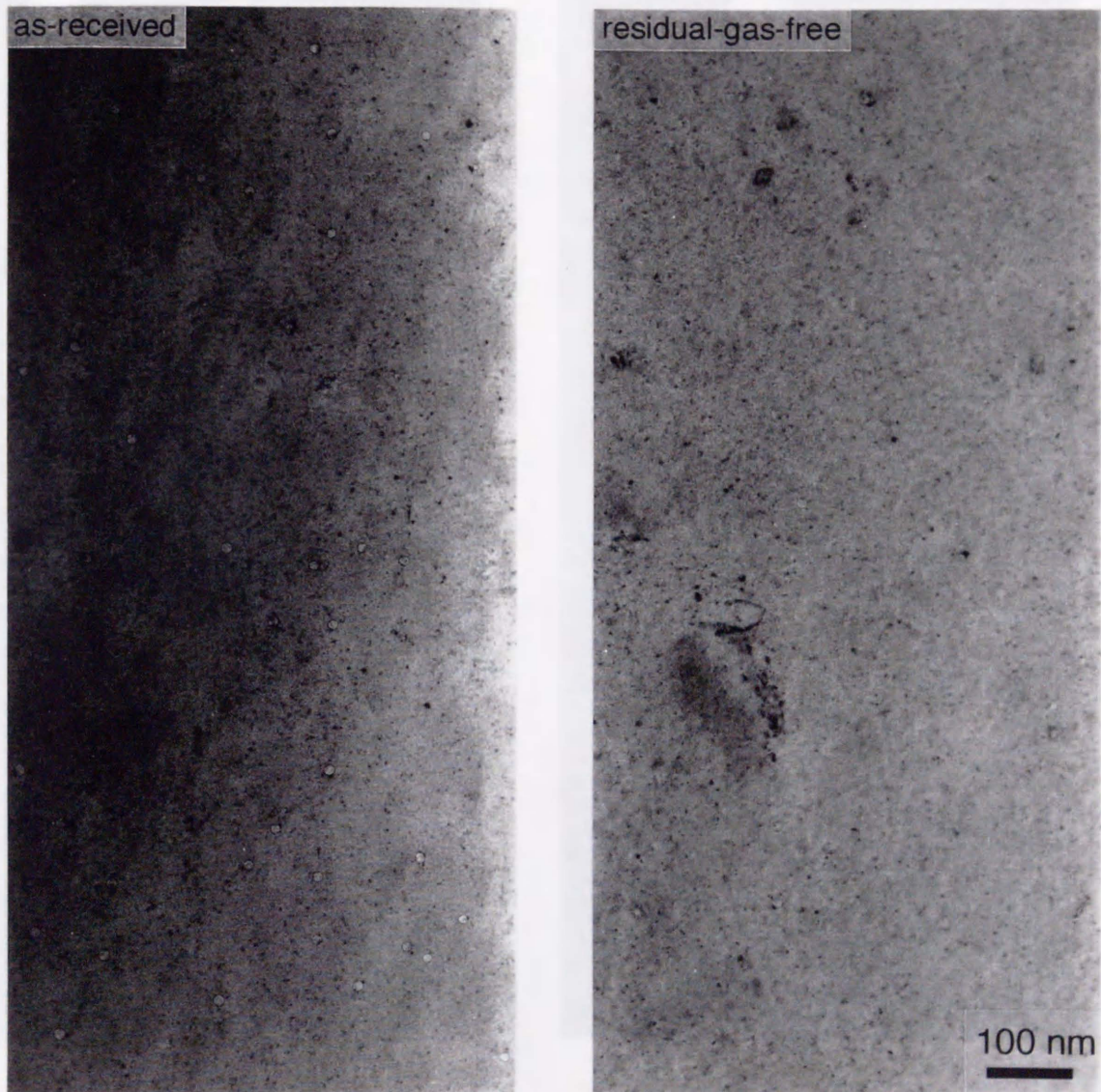


図3.1.6 200°C照射した純銅 (as-received 試料および残留ガス除去試料の比較)

Cu JMTR 94M-15u 300°C  $1.0 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup>

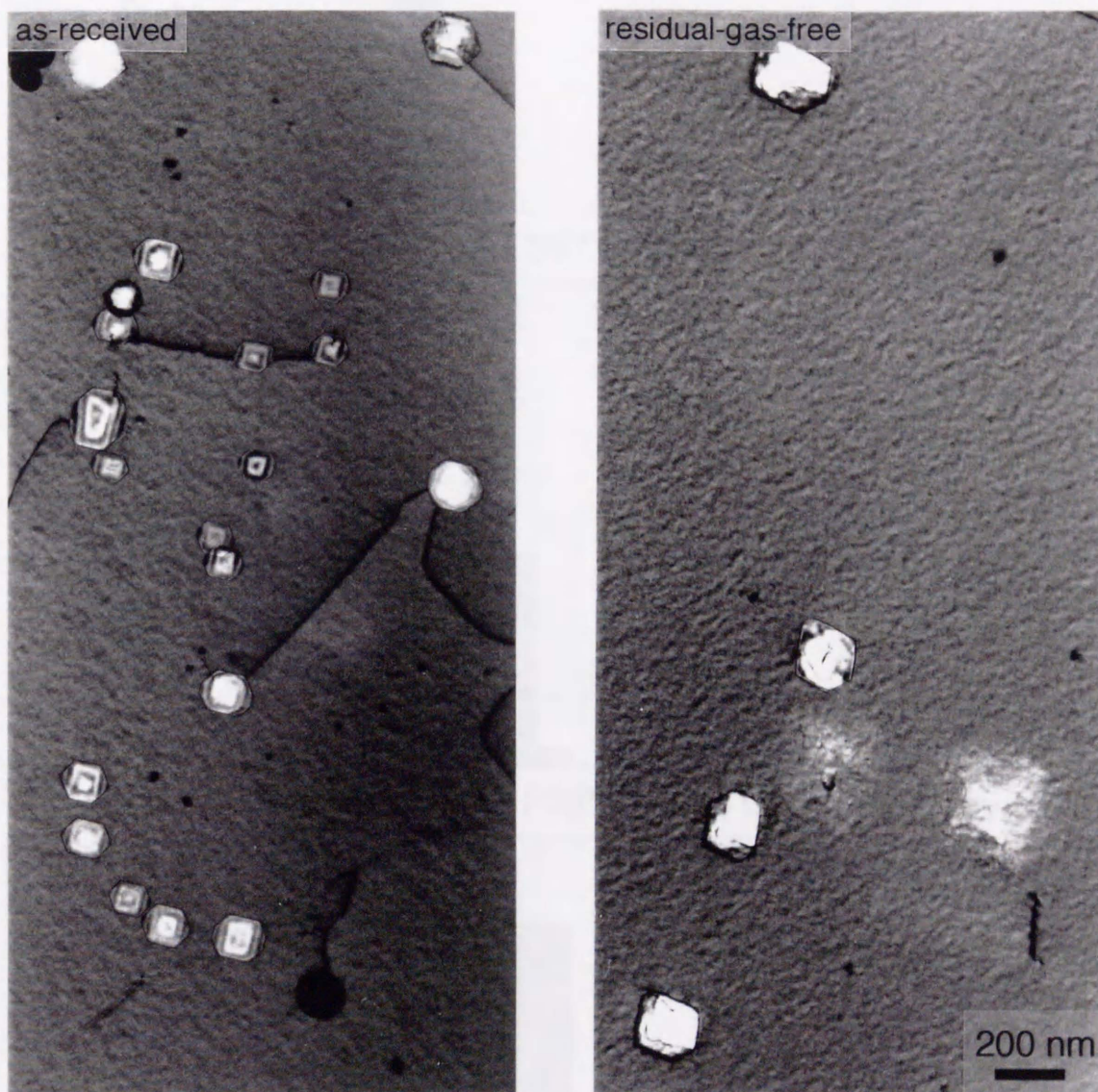


図3.1.7 300°C照射した純銅 (as-received 試料および残留ガス除去試料の比較)

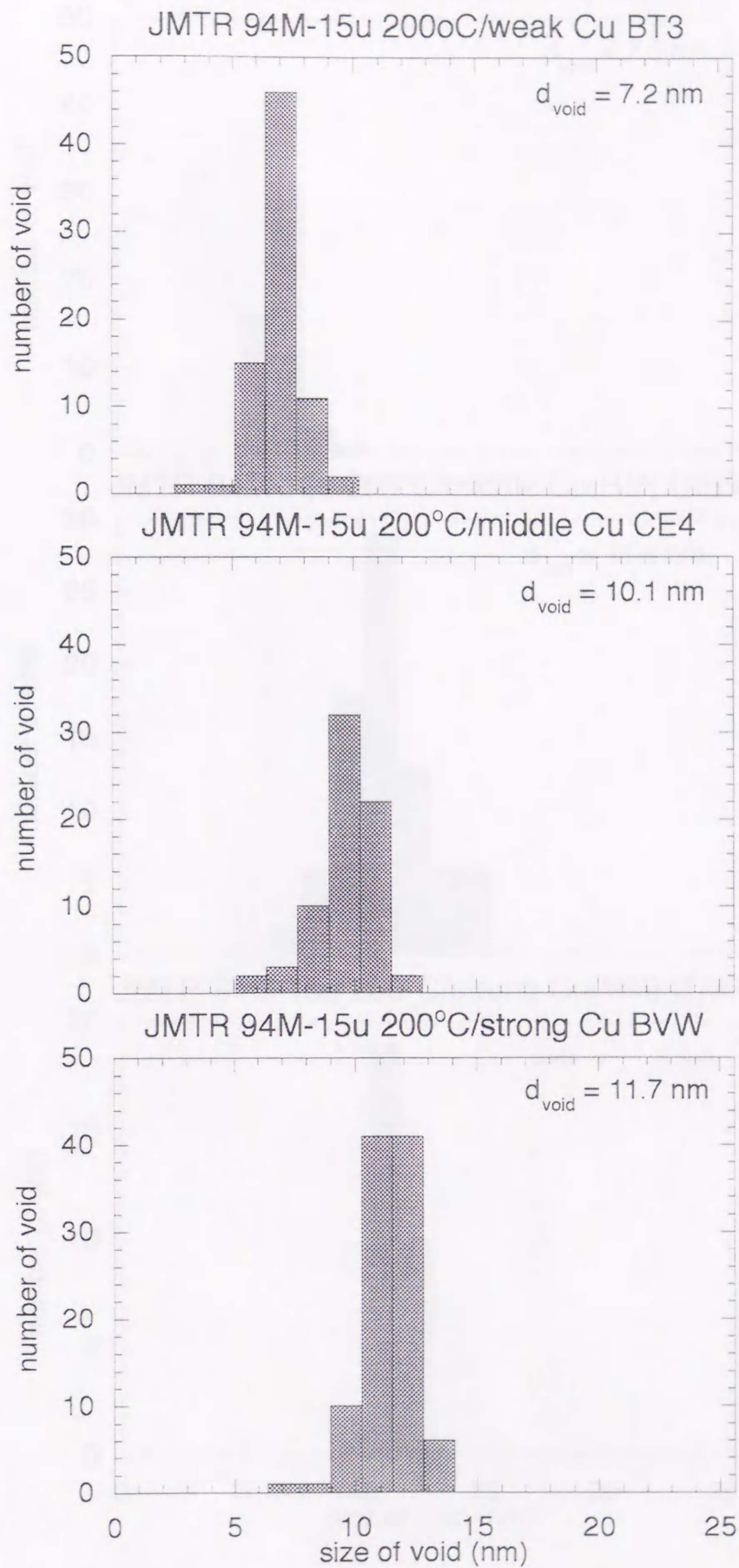


図3.1.8 200°C照射した純銅 (as-received 試料) のボイドサイズ分布

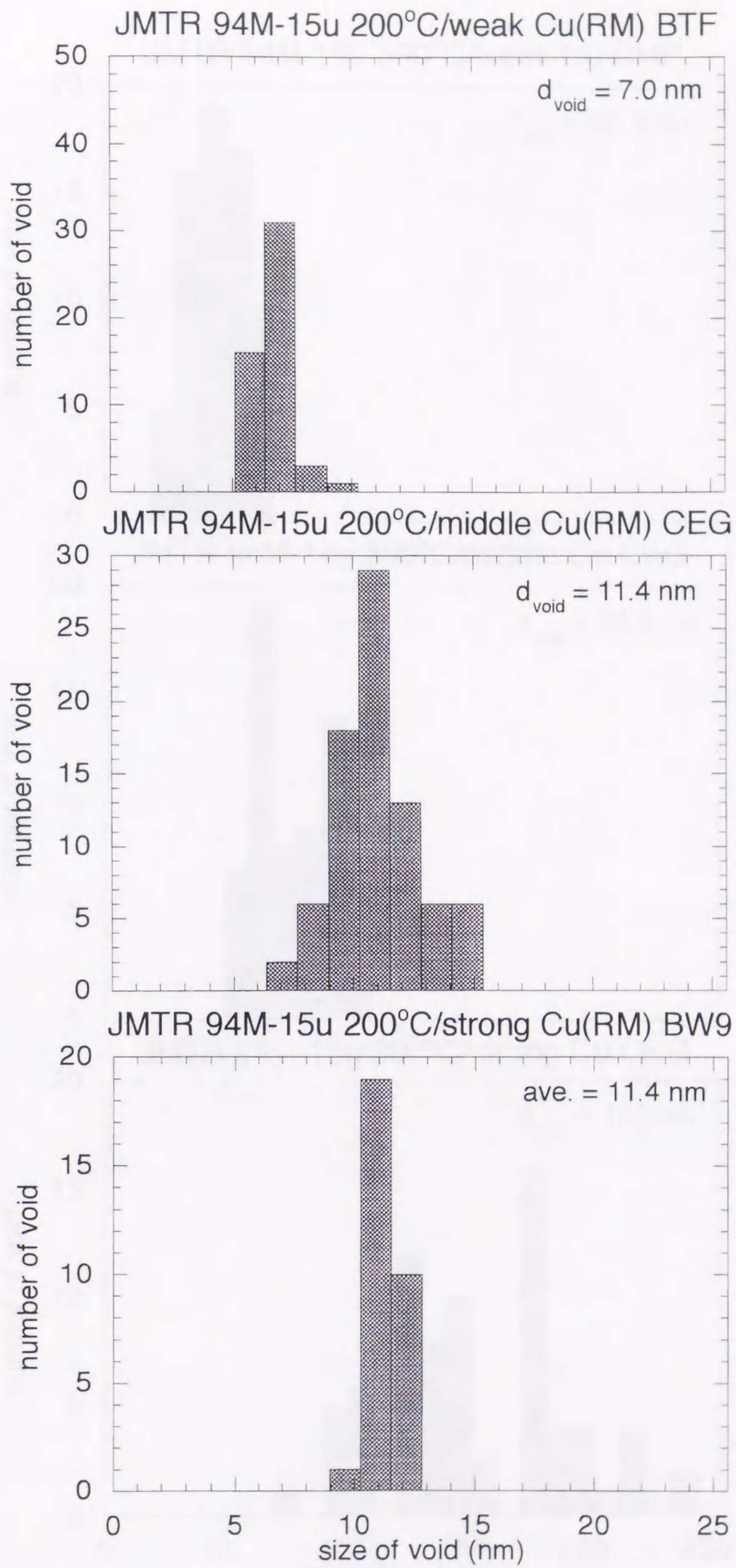


図3.1.9 200°C照射した純銅（残留ガス除去試料）のボイドサイズ分布

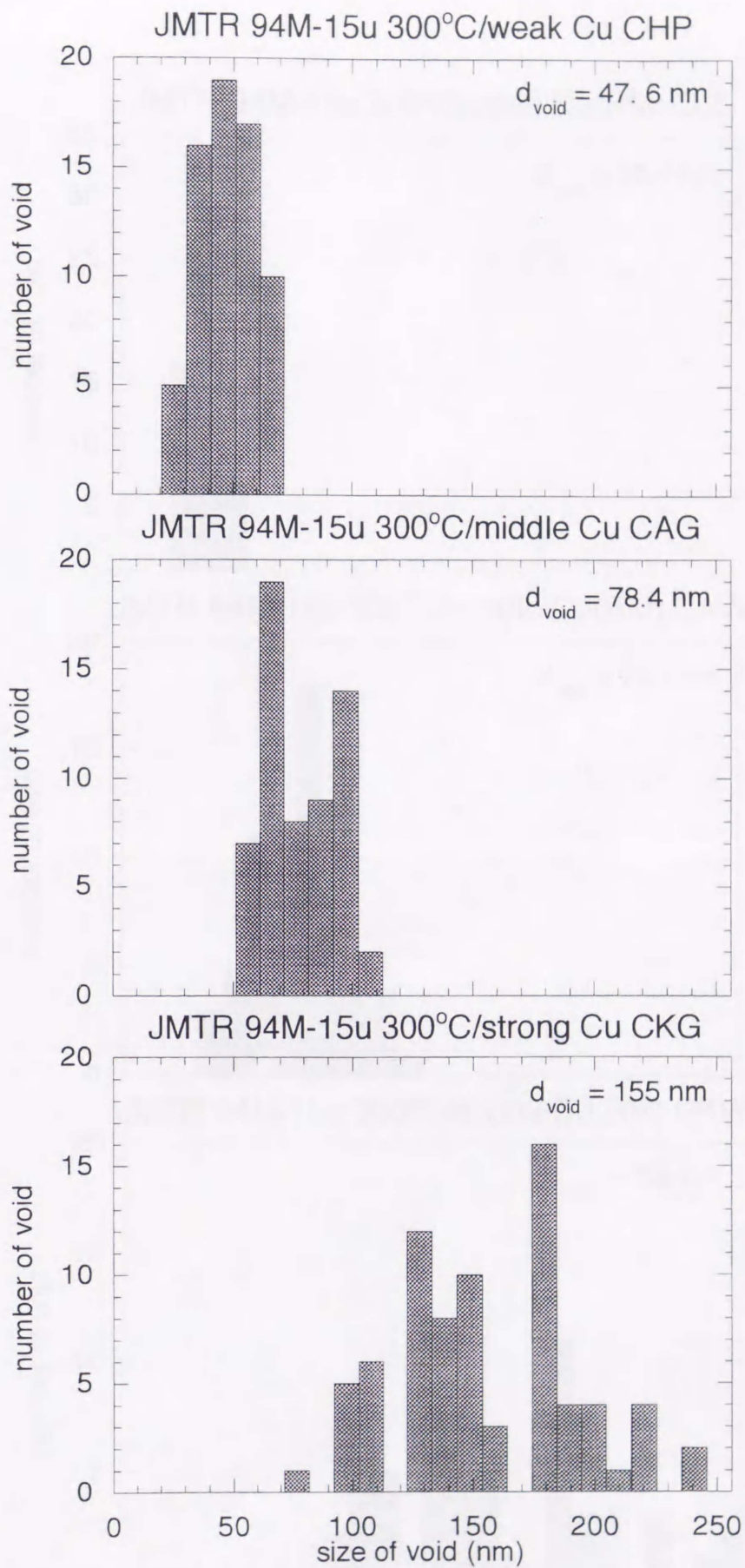


図3.1.10 300°C照射した純銅 (as-received 試料) のボイドサイズ分布

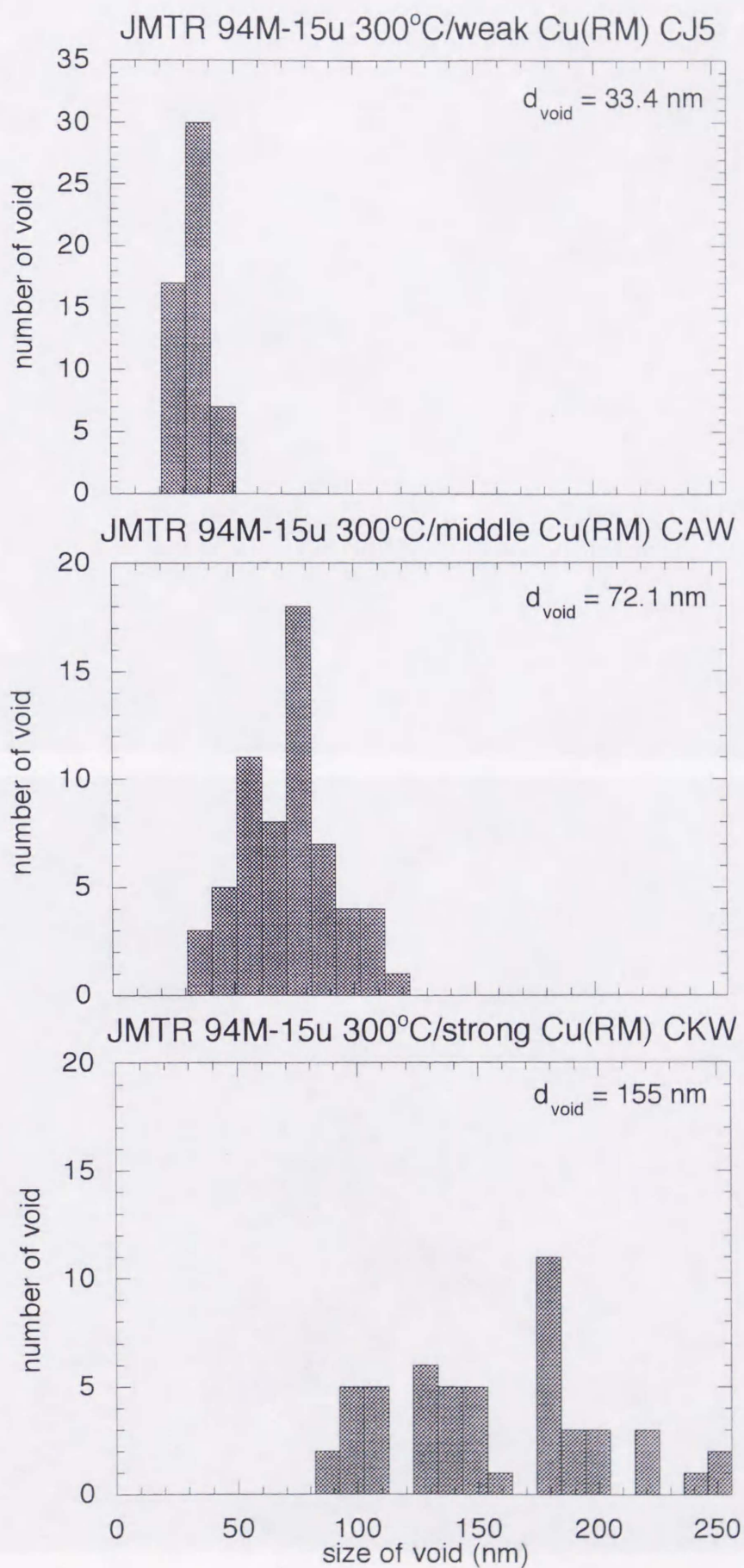
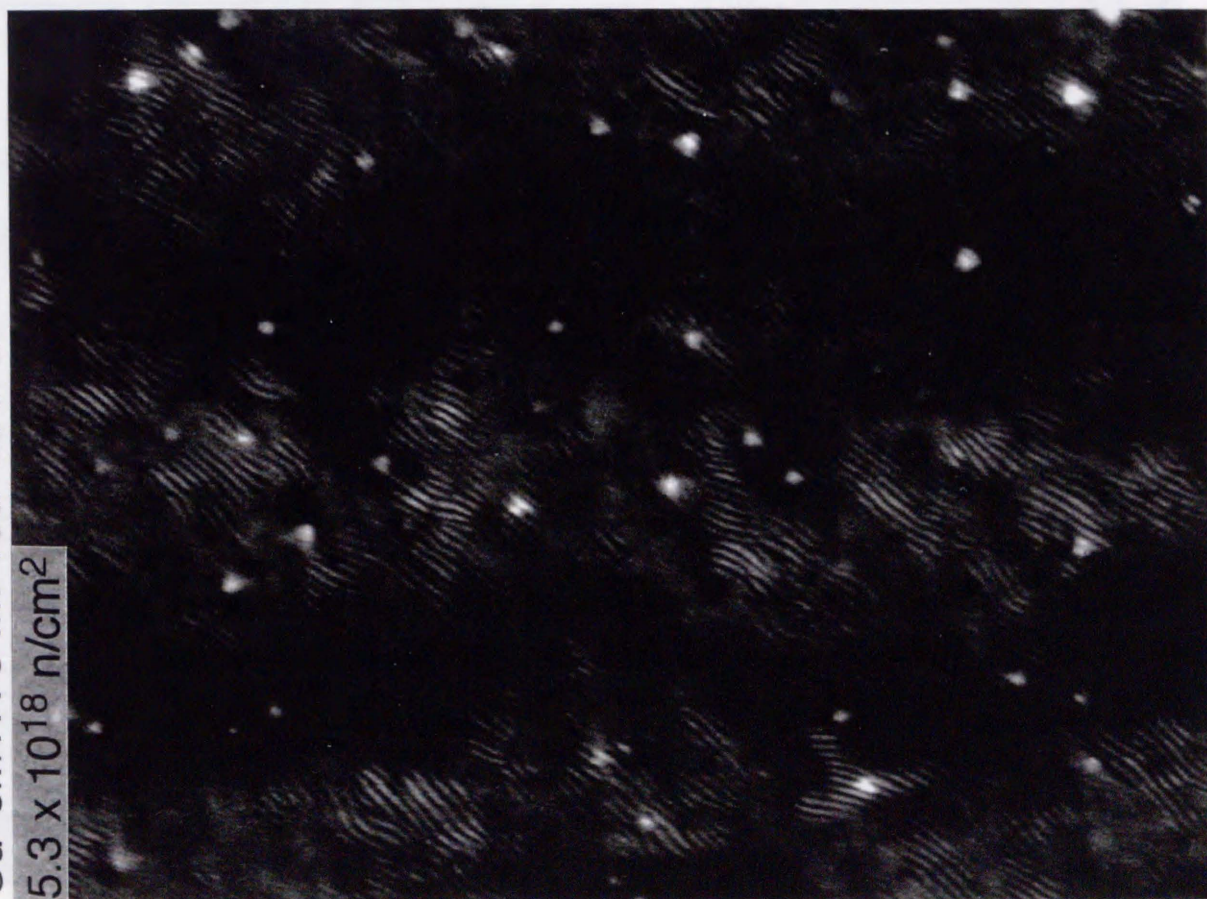


図3.1.11 300°C照射した純銅（残留ガス除去試料）のボイドサイズ分布



Cu JMTR 94M-15u 200°C

$5.3 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$



$7.7 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

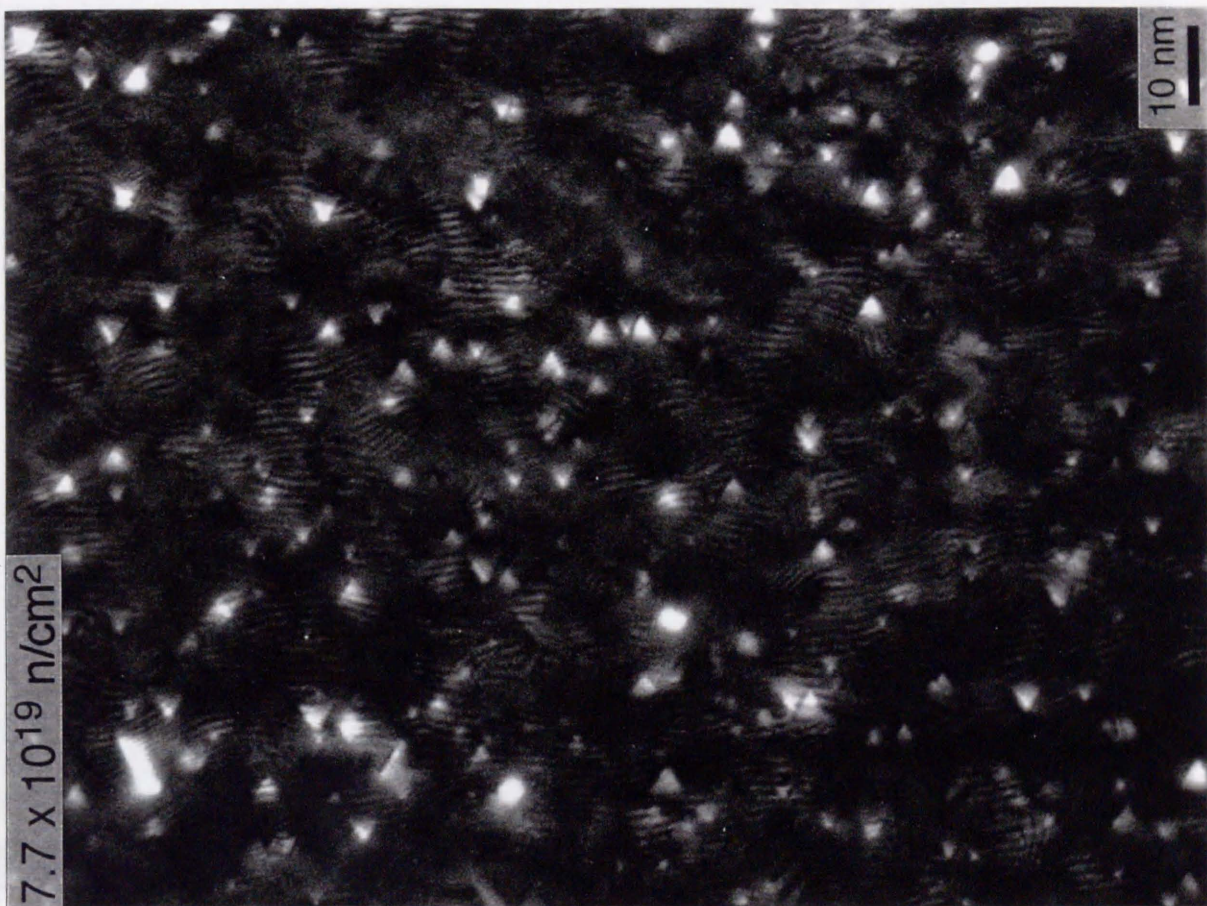
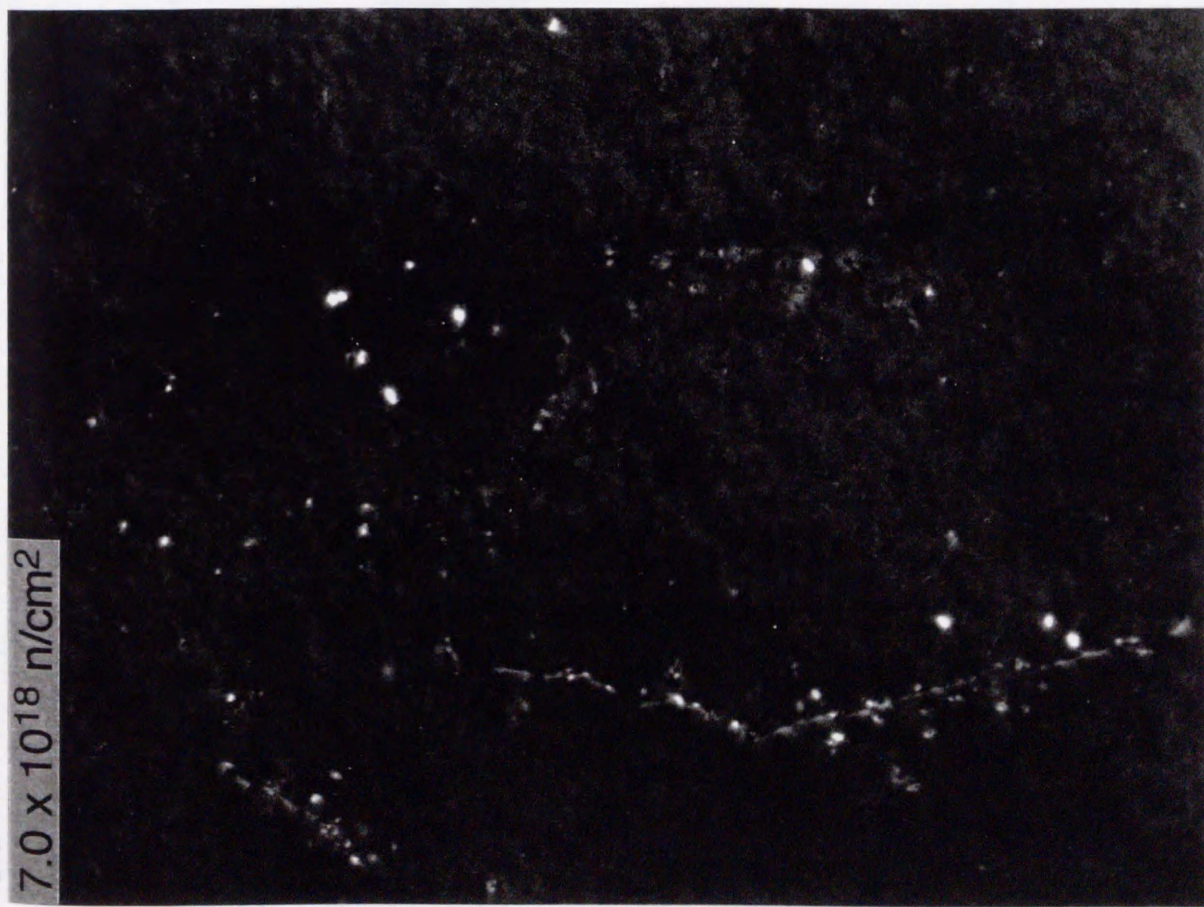


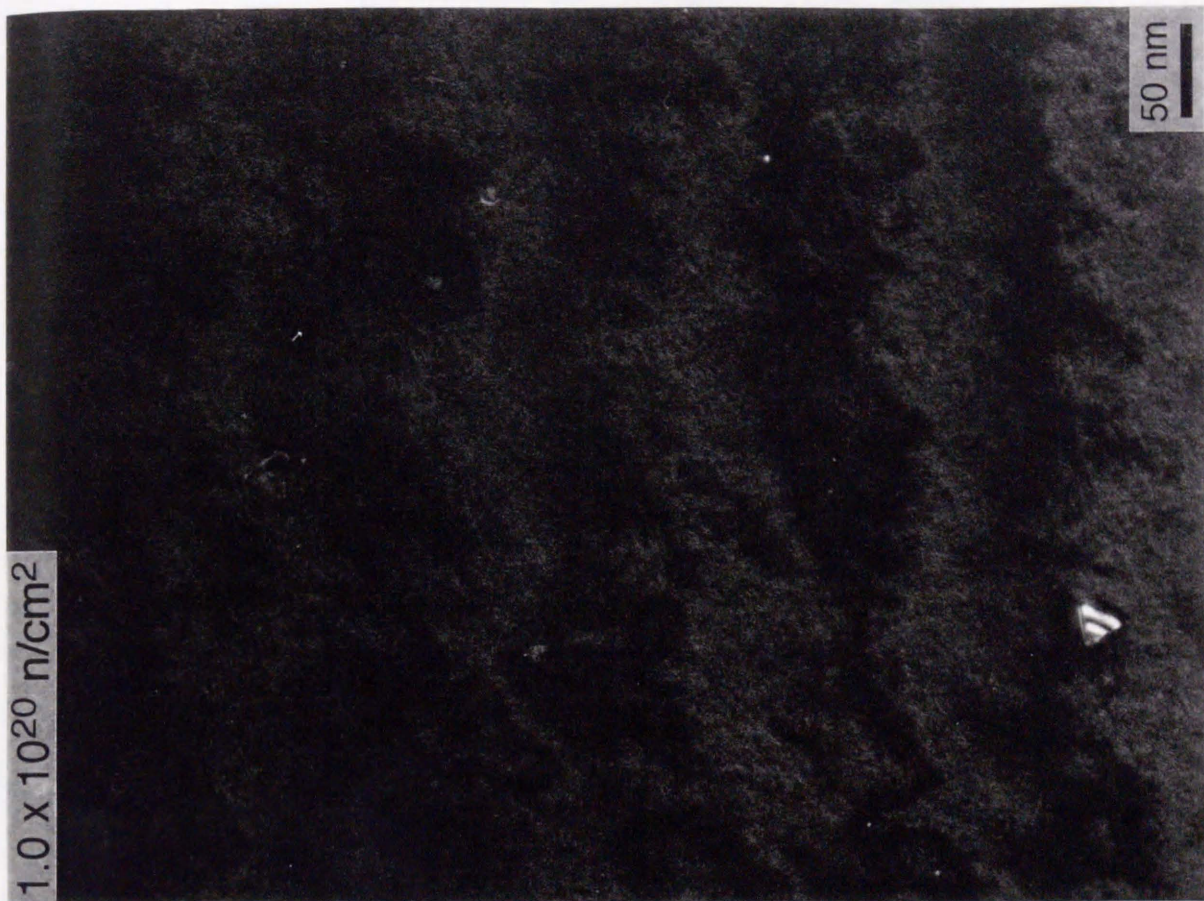
図3.1.12 200°C照射した純銅 (as-received 試料) のSFT組織照射量依存性

Cu JMTR 94M-15u 300°C

$7.0 \times 10^{18}$  n/cm<sup>2</sup>



$1.0 \times 10^{20}$  n/cm<sup>2</sup>



50 nm

図3.1.13 300°C照射した純銅 (as-received 試料) のSFT組織照射量依存性

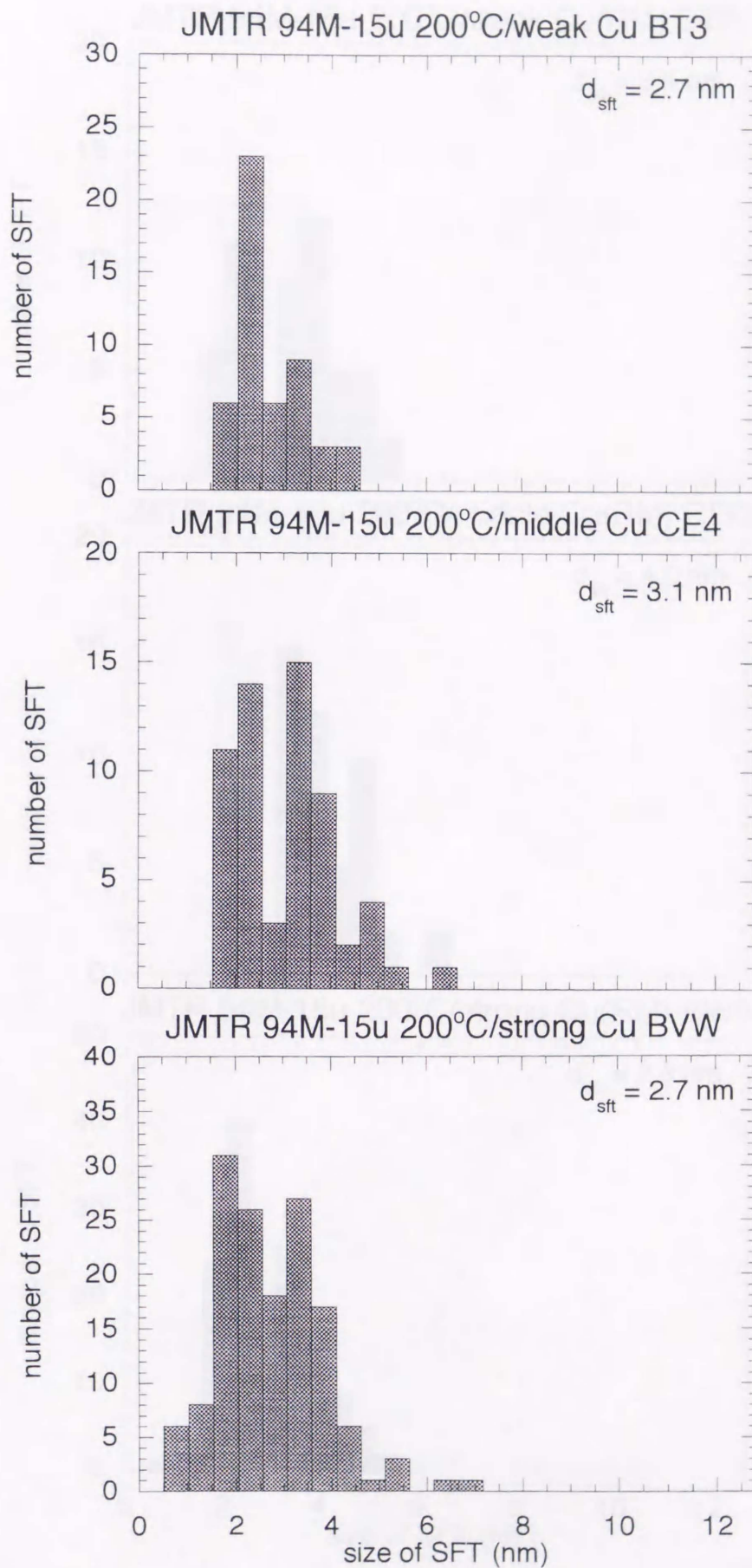


図3.1.14 200°C照射した純銅 (as-received 試料) のSFTサイズ分布

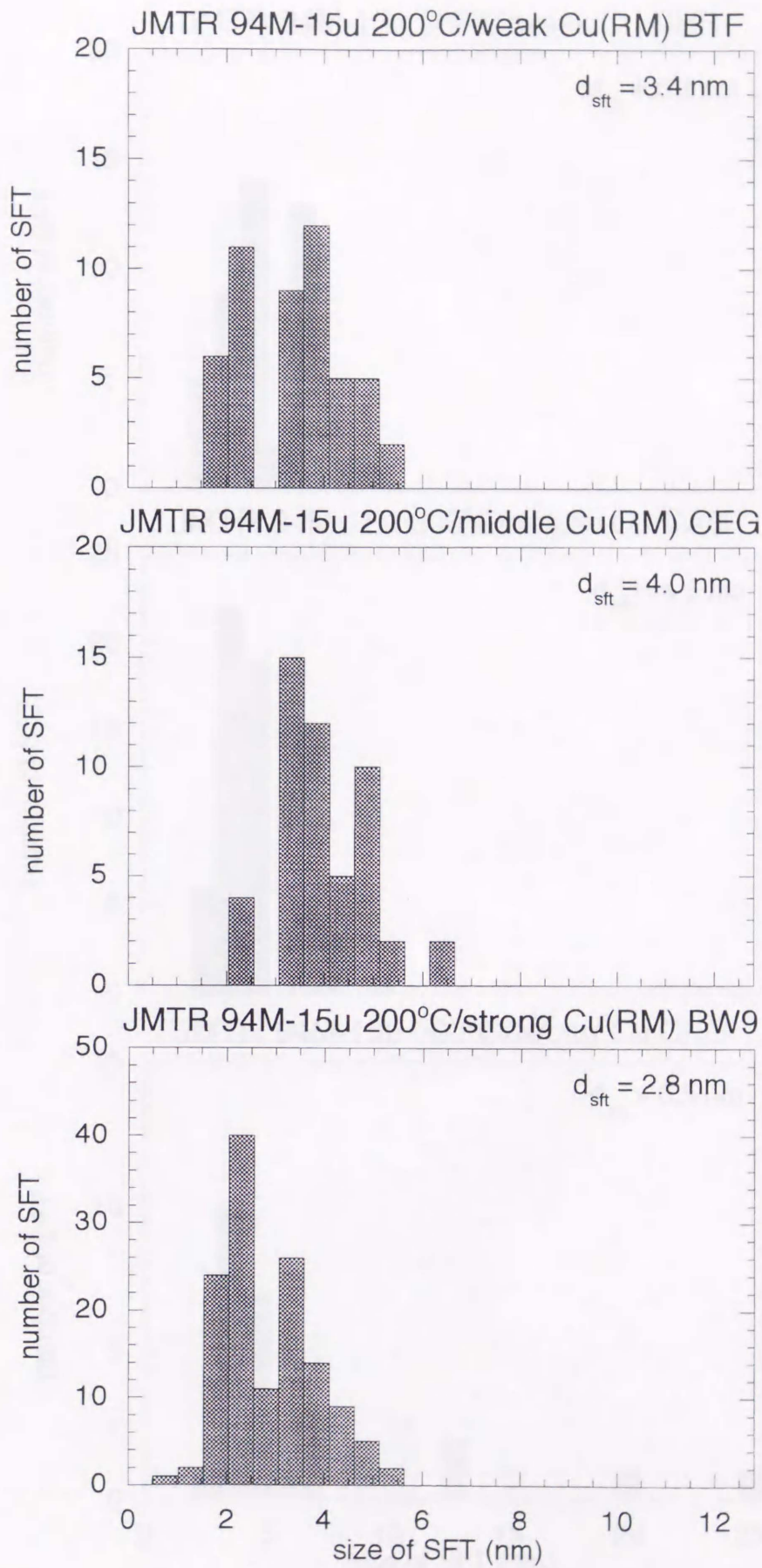


図3.1.15 200°C照射した純銅（残留ガス除去試料）のSFTサイズ分布

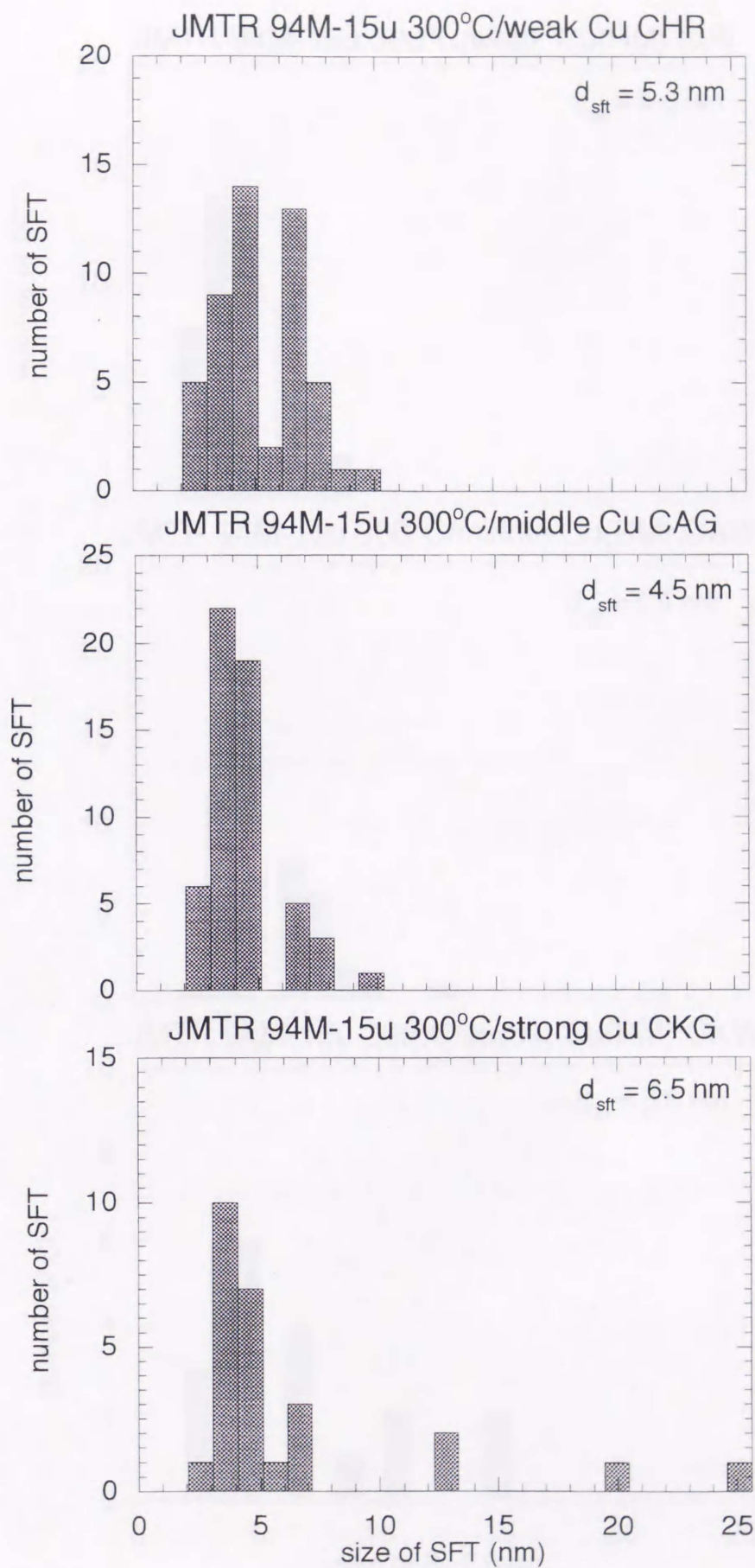


図3.1.16 300°C照射した純銅 (as-received 試料) のSFTサイズ分布

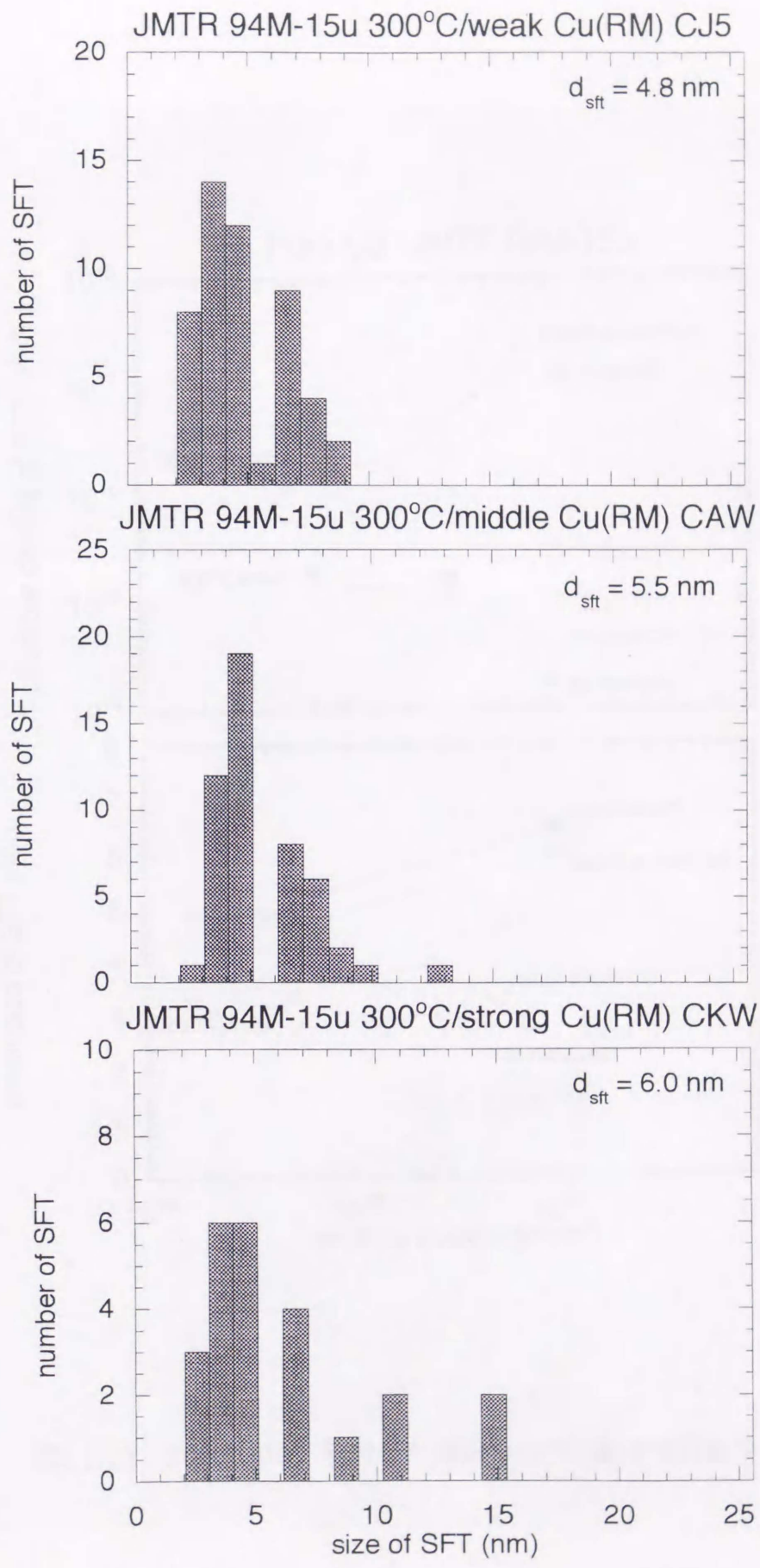


図3.1.17 300°C照射した純銅 (残留ガス除去試料) のSFTサイズ分布

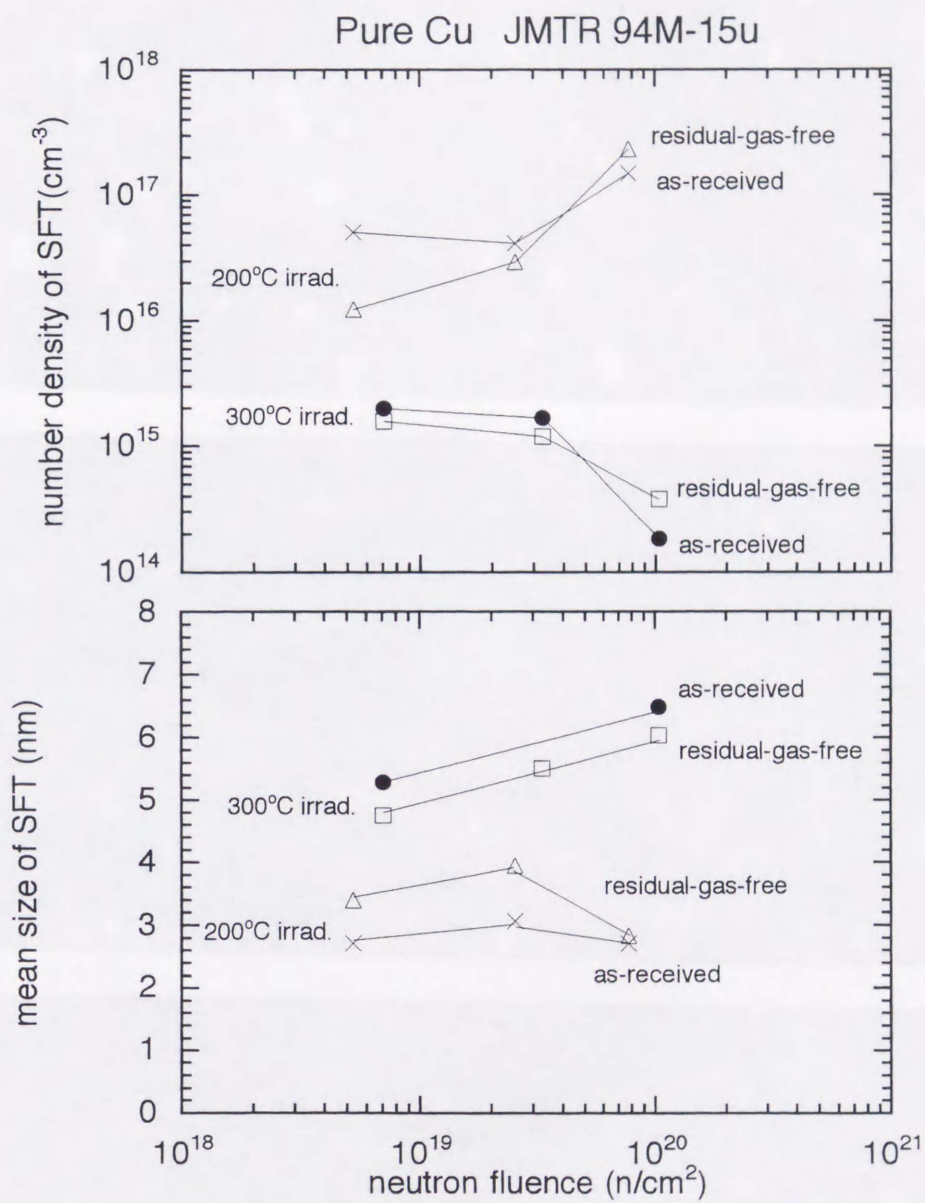
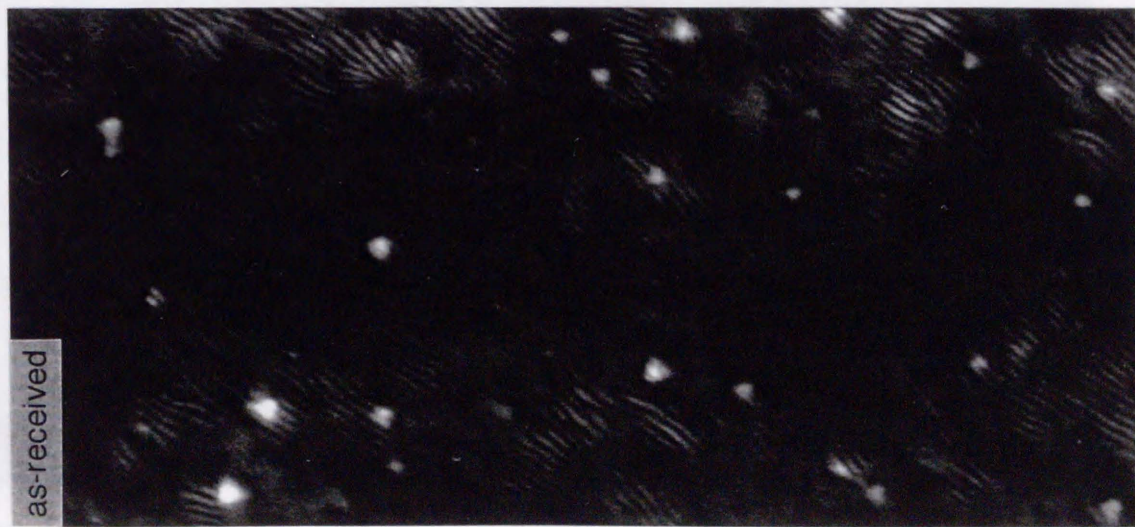


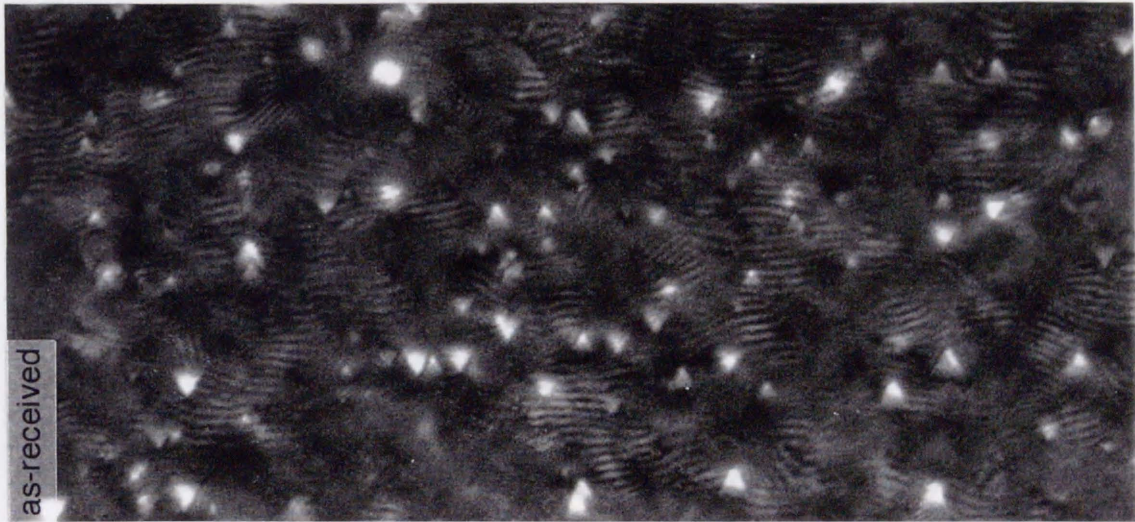
図3.1.18 200、300°C照射した純銅のSFT数密度照射量依存性

Cu JMTR 94M-15u 200°C



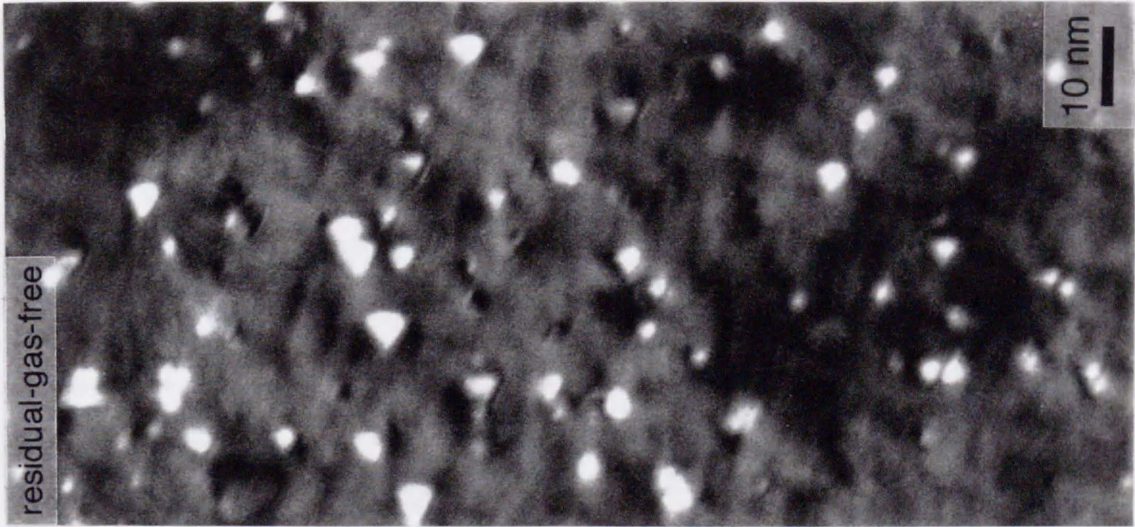
as-received

$5.3 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$



as-received

$7.7 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$



residual-gas-free

10 nm

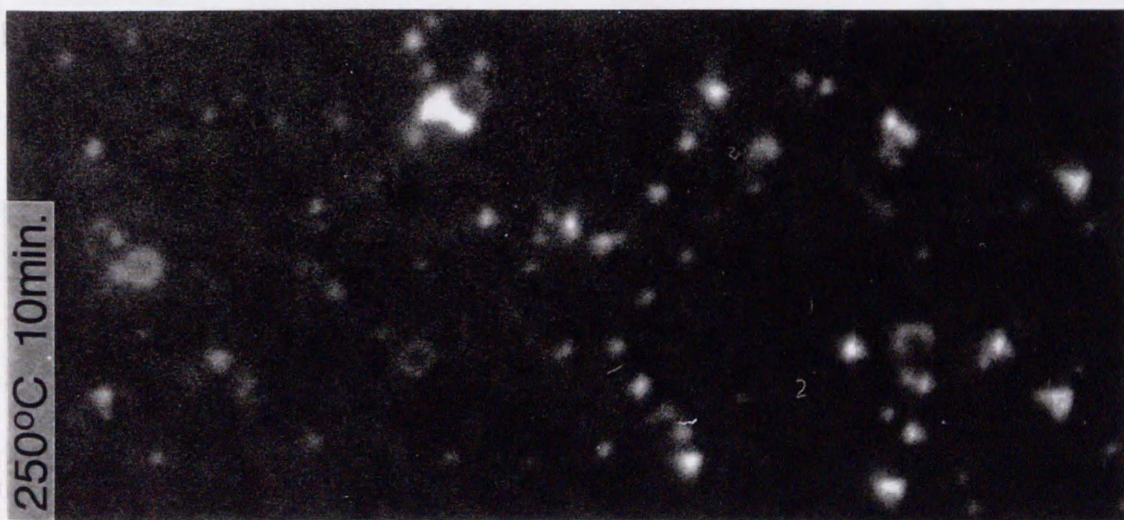
$7.7 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

図3.1.19 200°C照射した純銅 (as-received 試料および残留ガス除去試料の比較)

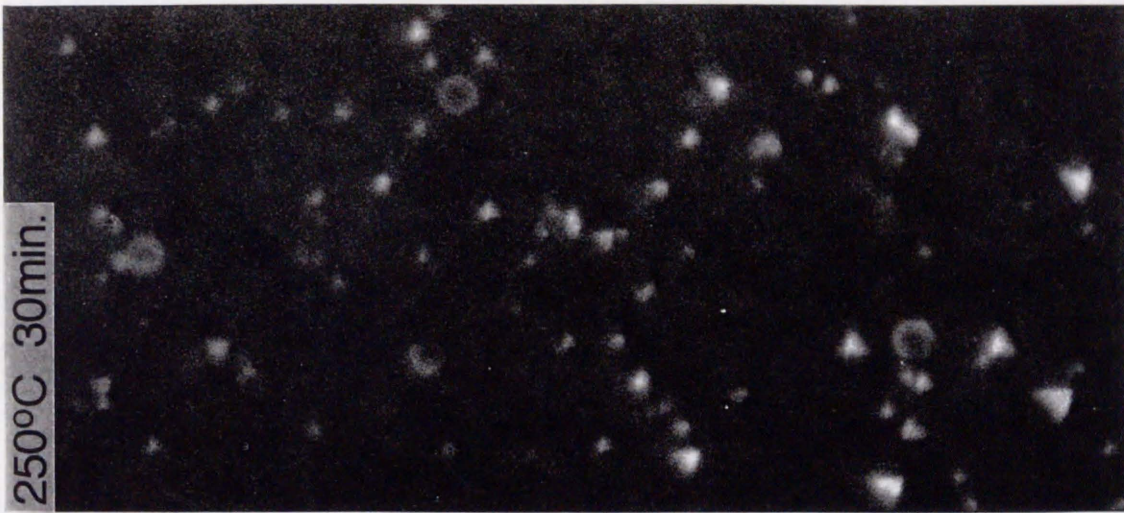


Cu JMTR 94M-15u 200°C  $5.3 \times 10^{18}$  n/cm<sup>2</sup>

250°C 10min.



250°C 30min.



250°C 70min.

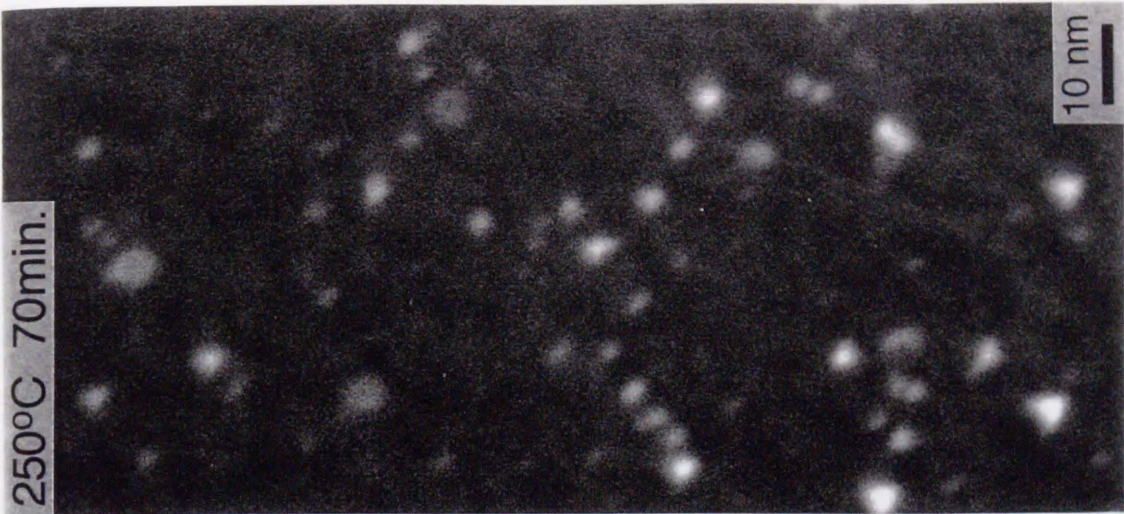


図3.1.20 200°C・0.0073dpa 照射した純銅の等時焼鈍実験(1)  
各温度・時間の焼鈍後に室温に冷却して撮影した。

Cu JMTR 94M-15u 200°C  $5.3 \times 10^{18}$  n/cm<sup>2</sup>

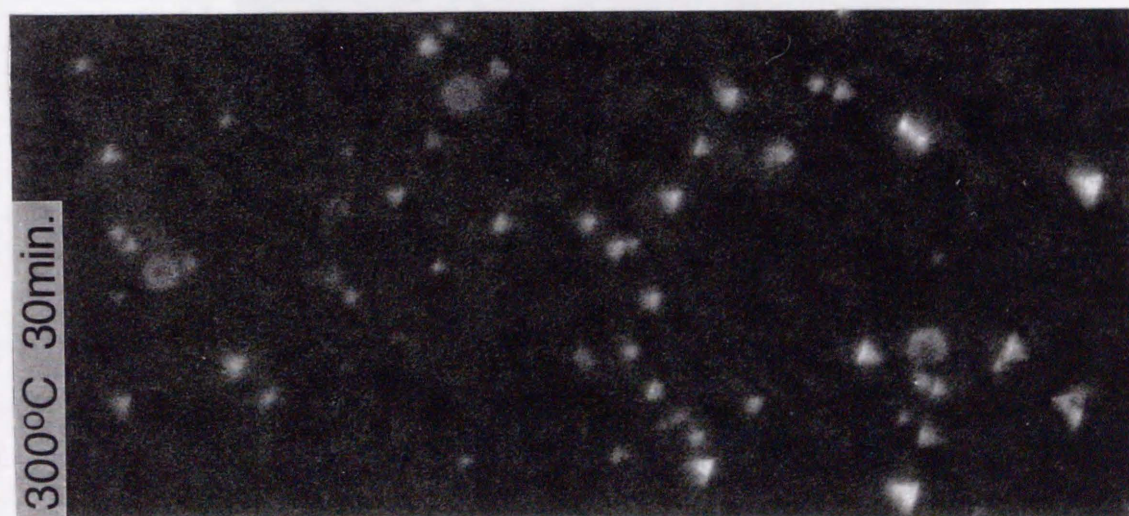
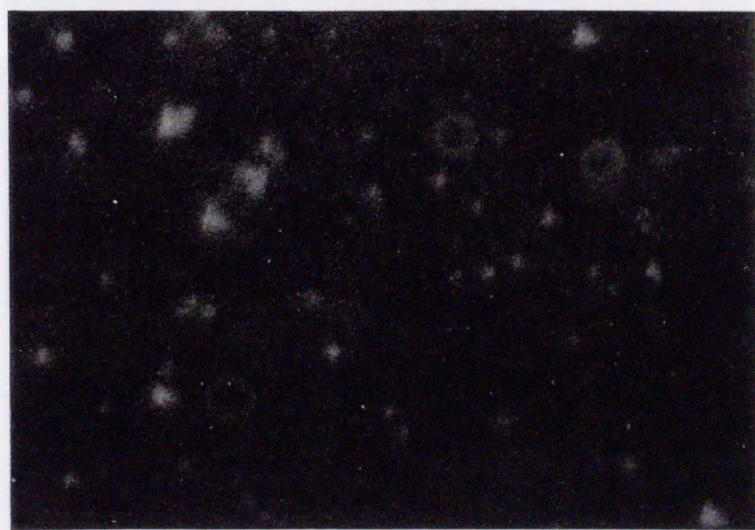
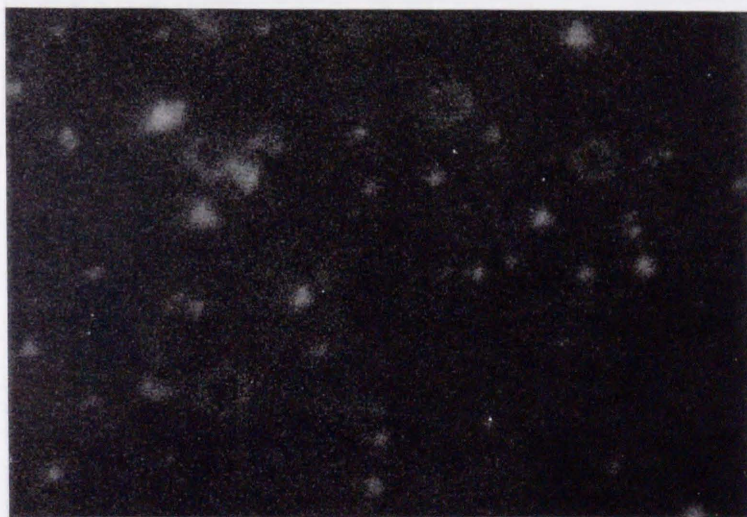


図3.1.20 200°C・0.0073dpa 照射した純銅の等時焼鈍実験(2)  
各温度・時間の焼鈍後に室温に冷却して撮影した。

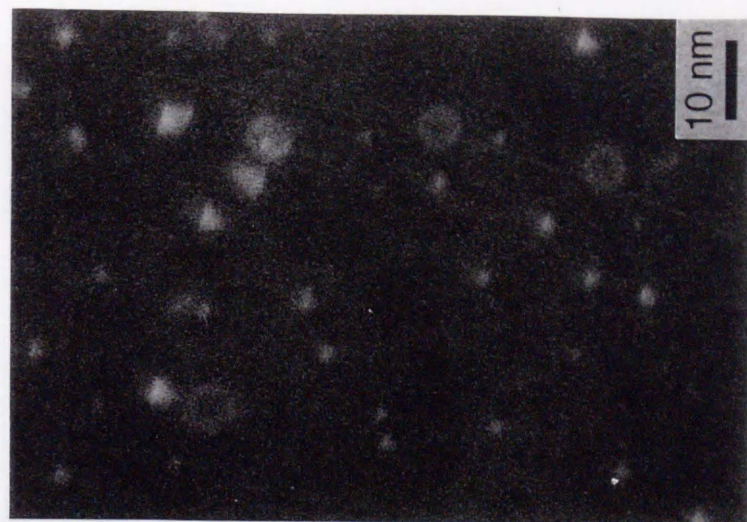
Cu JMTR 94M-15u 200°C  $5.3 \times 10^{18}$  n/cm<sup>2</sup>



250°C 70min.



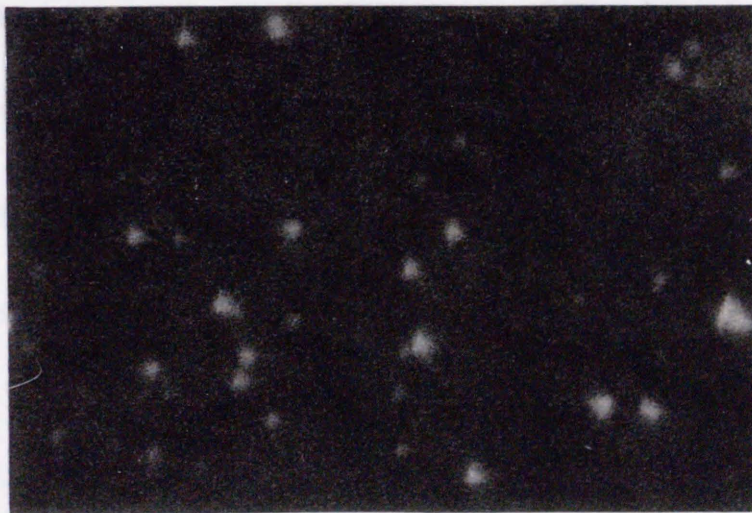
300°C 10min.



300°C 30min.

図3.1.21 200°C・0.0073dpa照射した純銅の等時焼鈍実験  
図中に矢印で示したボイドが動いていることがわかる。

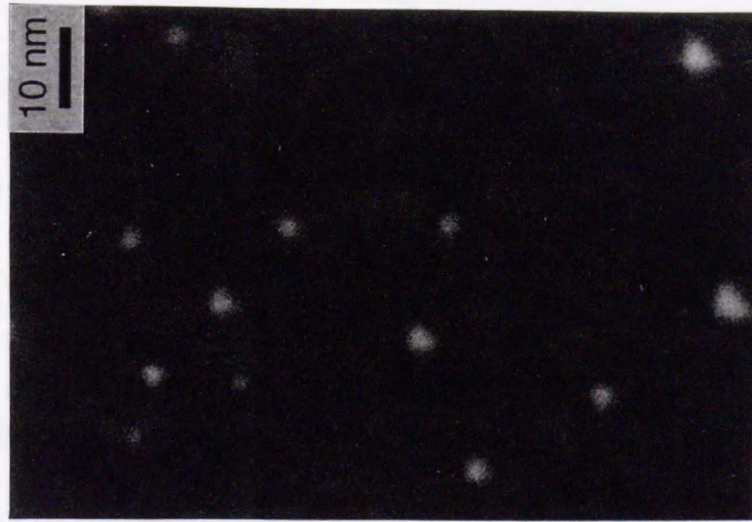
Cu JMTR 94M-15u 200°C 5.3 x 10<sup>18</sup> n/cm<sup>2</sup>



250°C 70min.



300°C 30min.



350°C 30min.

図3.1.22 200°C・0.0073dpa 照射した純銅の等時焼鈍実験

SFTが合体して大きなものに成長しているものが観察される。

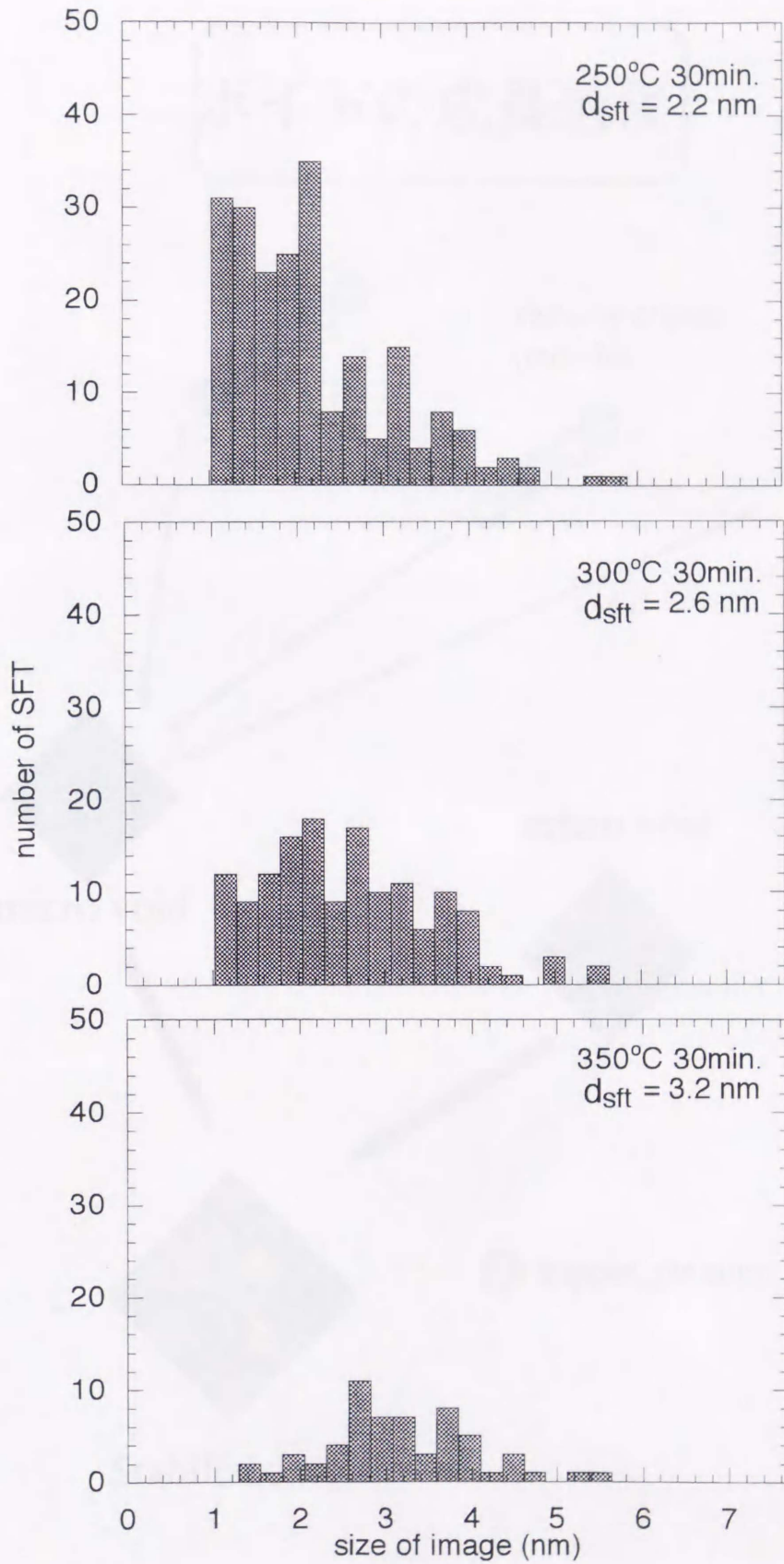


図3.1.23 200°C・0.0073dpa 照射した純銅の等時焼鈍実験  
各温度・時間の焼鈍後のSFTサイズ分布。小さいSFTから消えていく。

# ボイドの成長過程

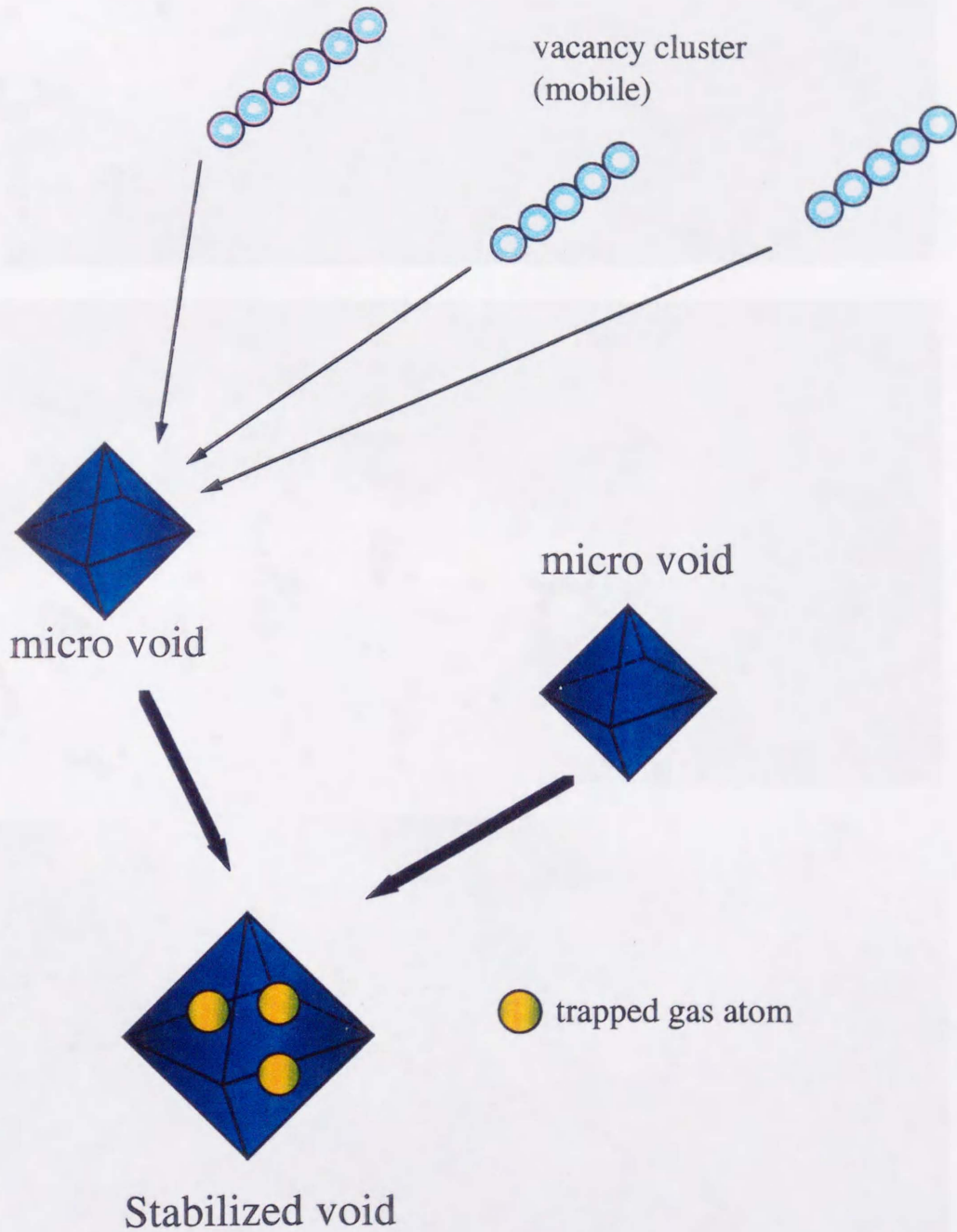
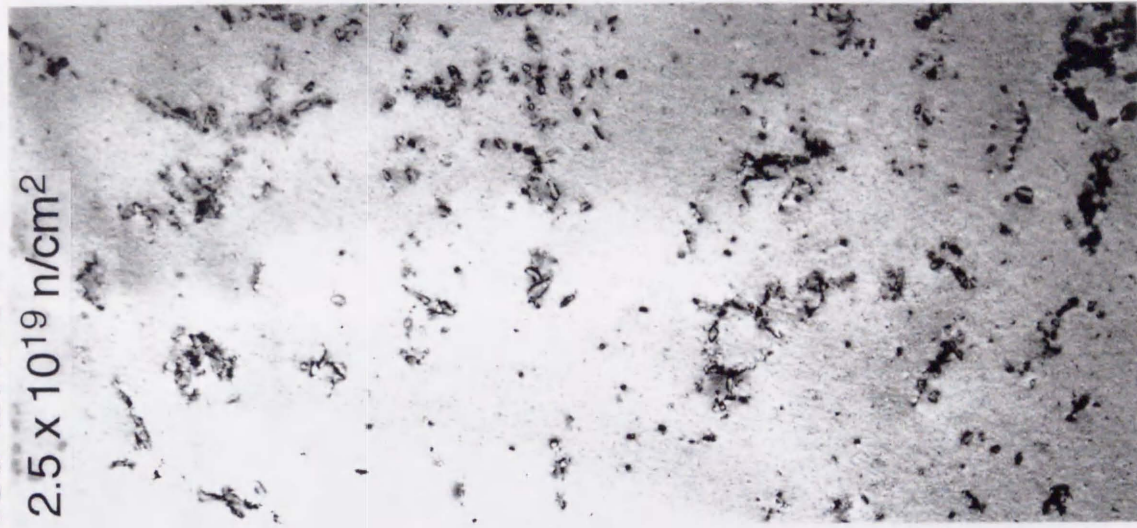


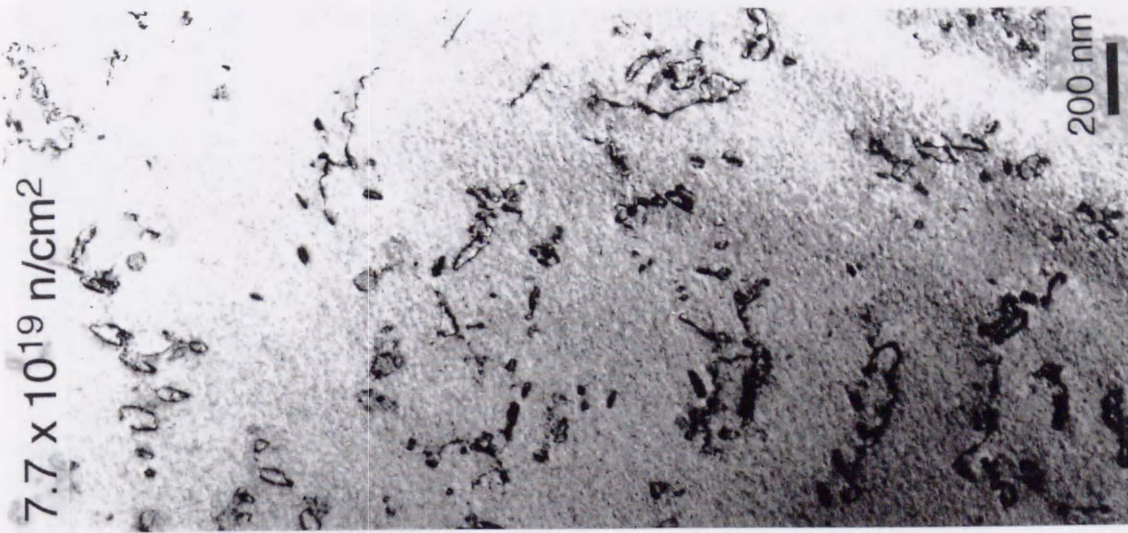
図3.1.24 ボイド成長過程のモデル図

Cu-5at.%Ni JMTR 94M-15u 200°C

$5.3 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$



$2.5 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$



$7.7 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

200 nm

図3.2.1 200°C照射したCu-5at%Niの損傷組織照射量依存性

Cu-5at.%Ni JMTR 94M-15u 300°C 1.0 x 10<sup>20</sup> n/cm<sup>2</sup>  
as-received residual-gas-free



図3.2.2 300°C照射したCu-5at%Ni (as-received 試料および残留ガス除去試料の比較)



Cu-5at.%Ni JMTR 94M-15u 200°C

$5.3 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$

$2.5 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

$7.7 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

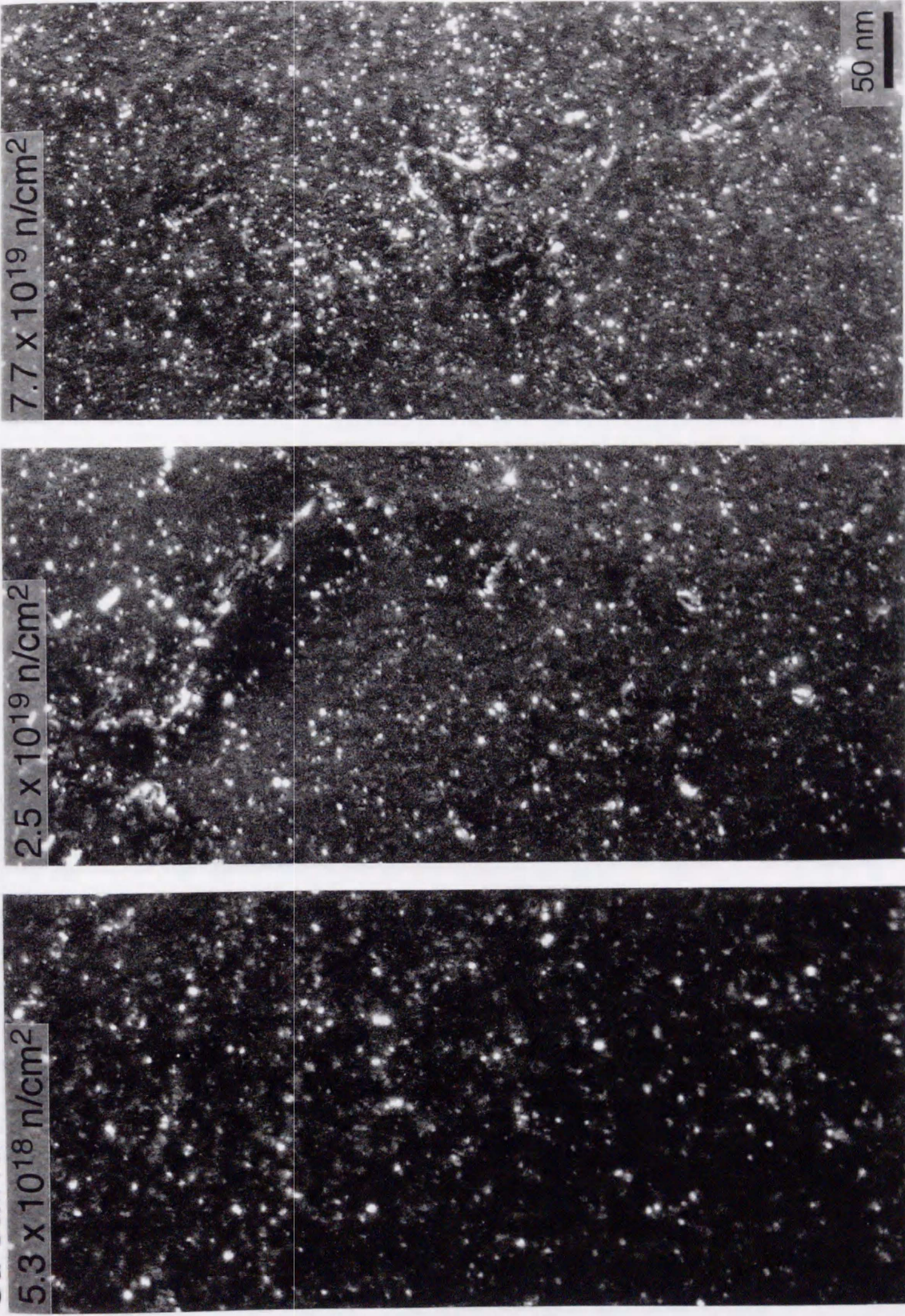


図3.2.3 200°C照射したCu-5at%Ni (as-received 試料) の暗視野像

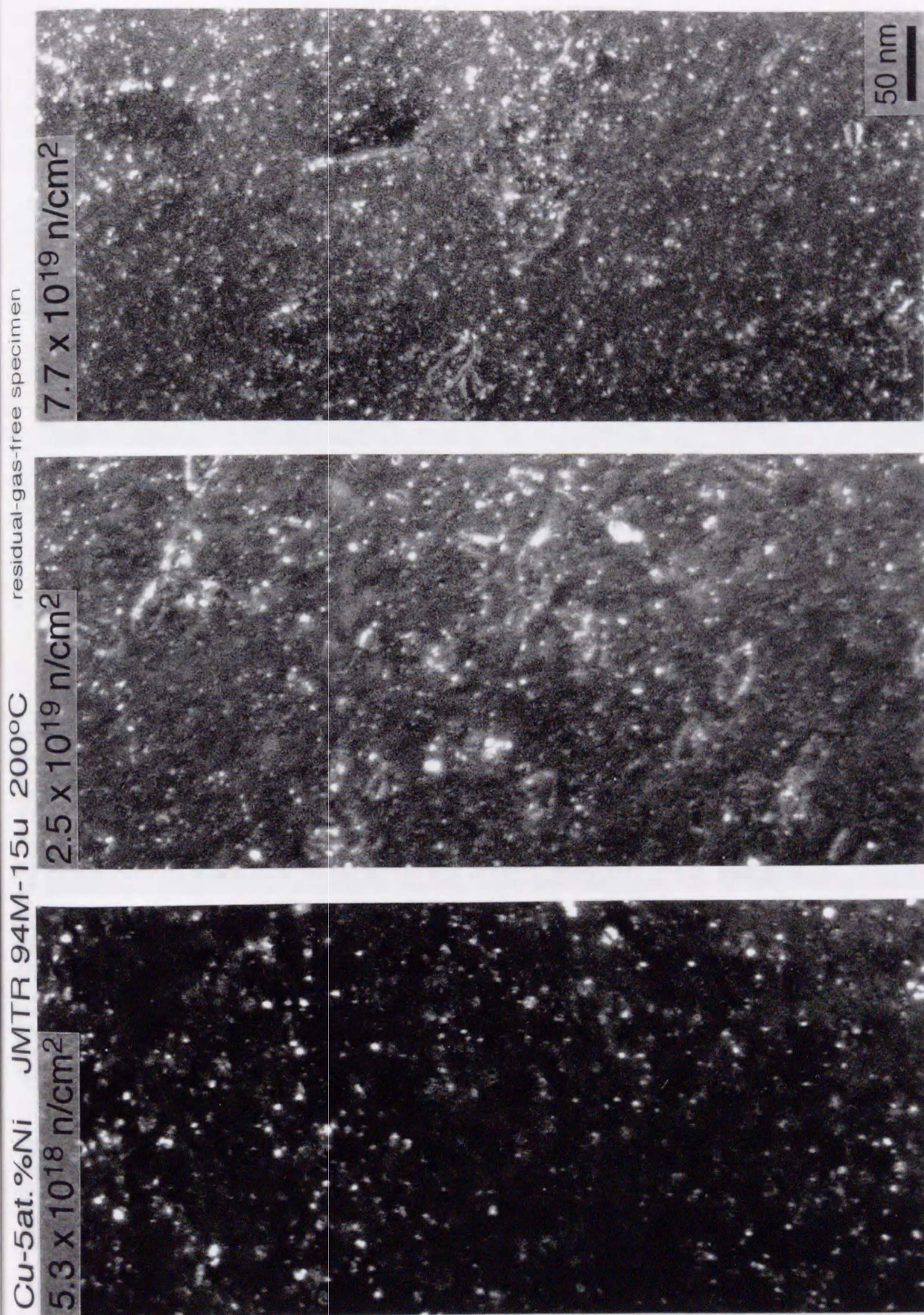


図3.2.4 200°C照射したCu-5at%Ni (残留ガス除去試料)の暗視野像

Cu-5at.%Ni JMTR 94M-15u 300°C

7.0 x 10<sup>18</sup> n/cm<sup>2</sup>

3.3 x 10<sup>19</sup> n/cm<sup>2</sup>

1.0 x 10<sup>20</sup> n/cm<sup>2</sup>

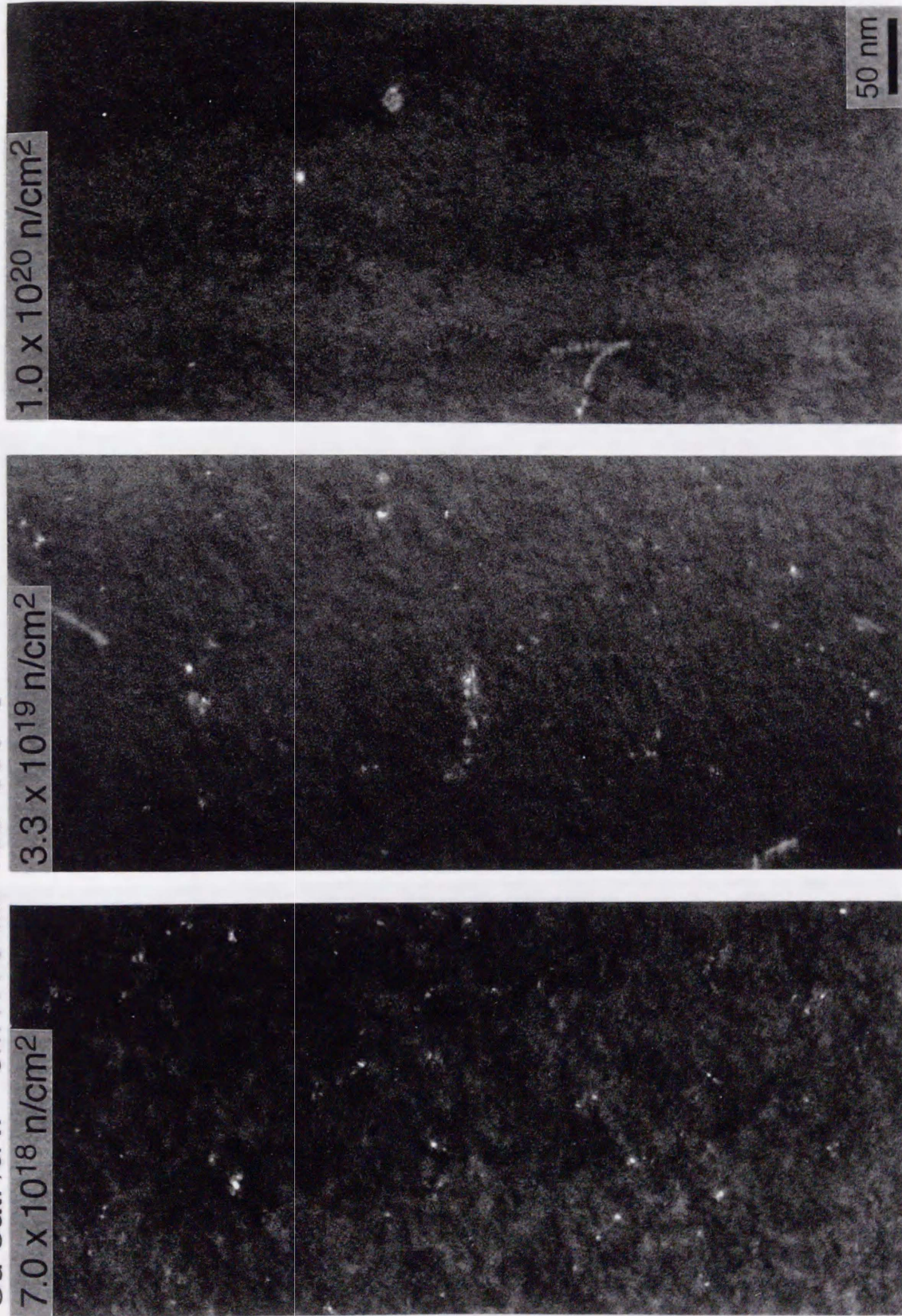


図3.2.5 300°C照射したCu-5at%Ni (as-received 試料) の暗視野像

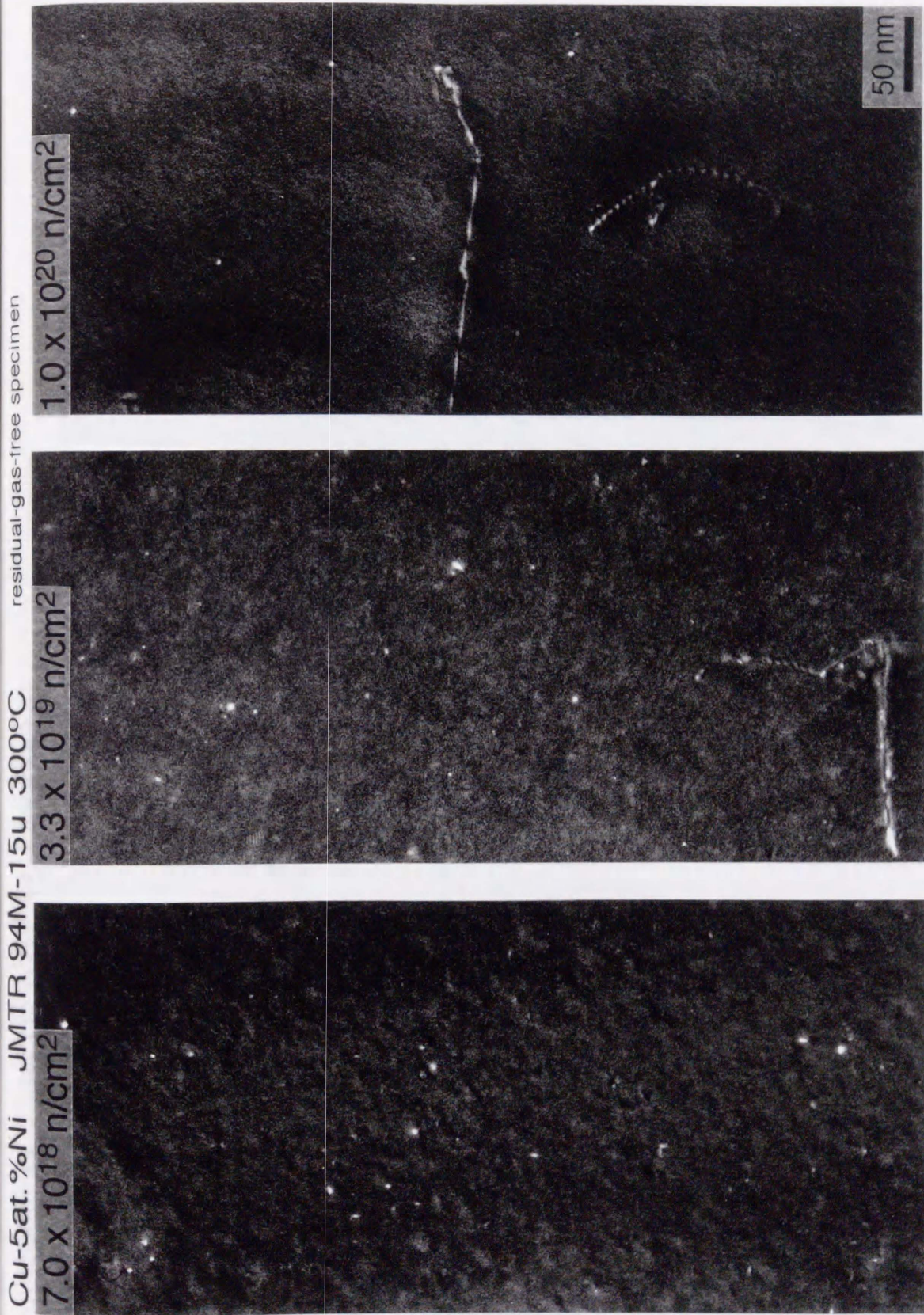


図3.2.6 300°C照射したCu-5at%Ni（残留ガス除去試料）の暗視野像

Cu-5at.%Al JMTR 94M-15u 200°C

$5.3 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$

$2.5 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

$7.7 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

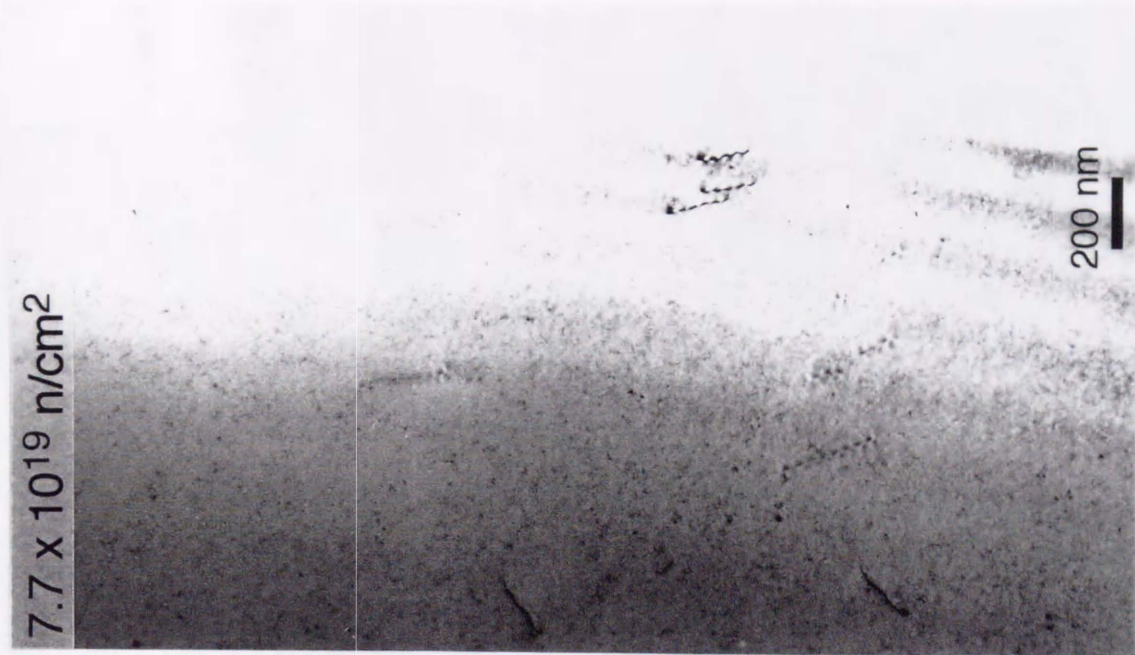
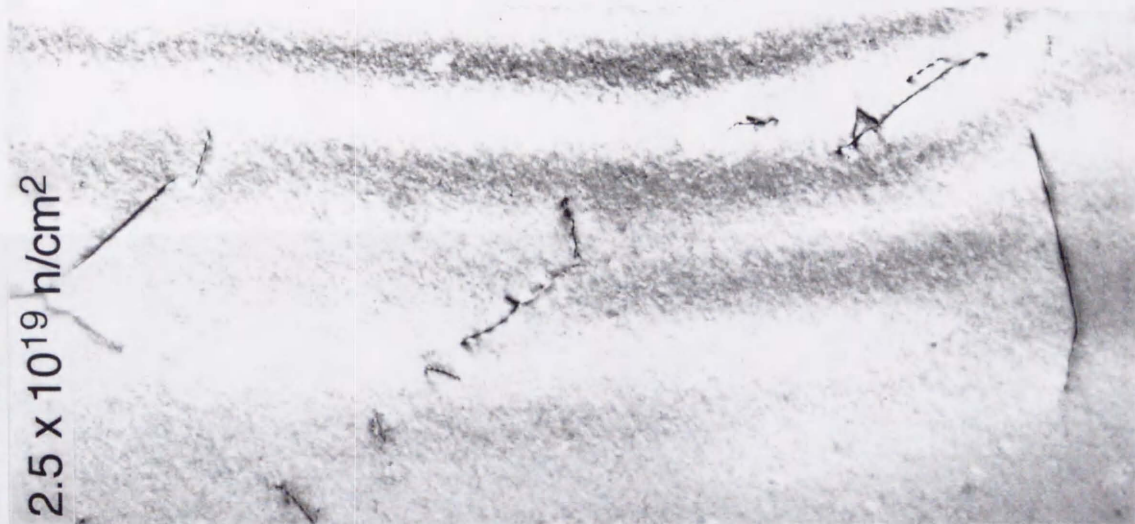
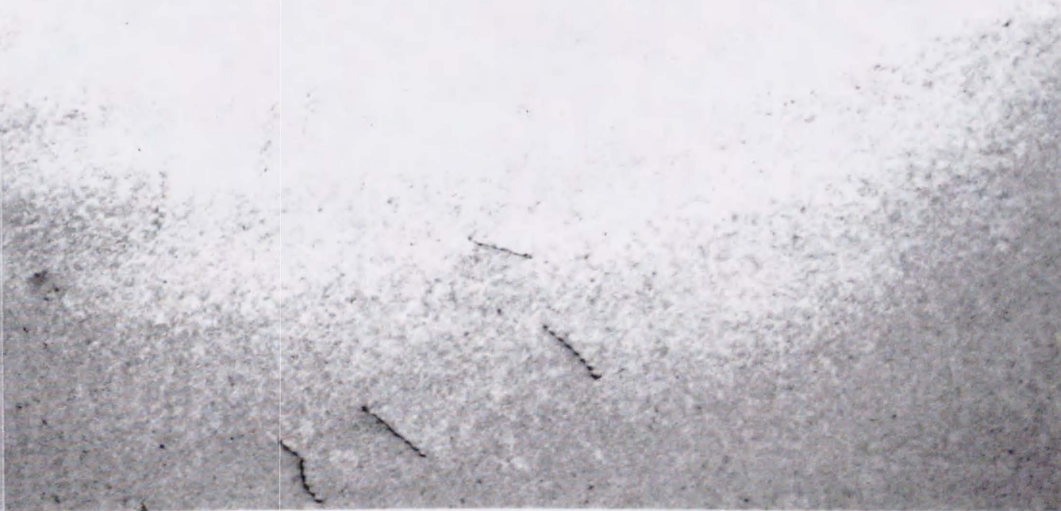


図3.2.7 200°C照射したCu-5at%Alの損傷組織照射量依存性

Cu-5at.%Al JMTR 94M-15u 300°C 1.0 x 10<sup>20</sup> n/cm<sup>2</sup>  
as-received residual-gas-free

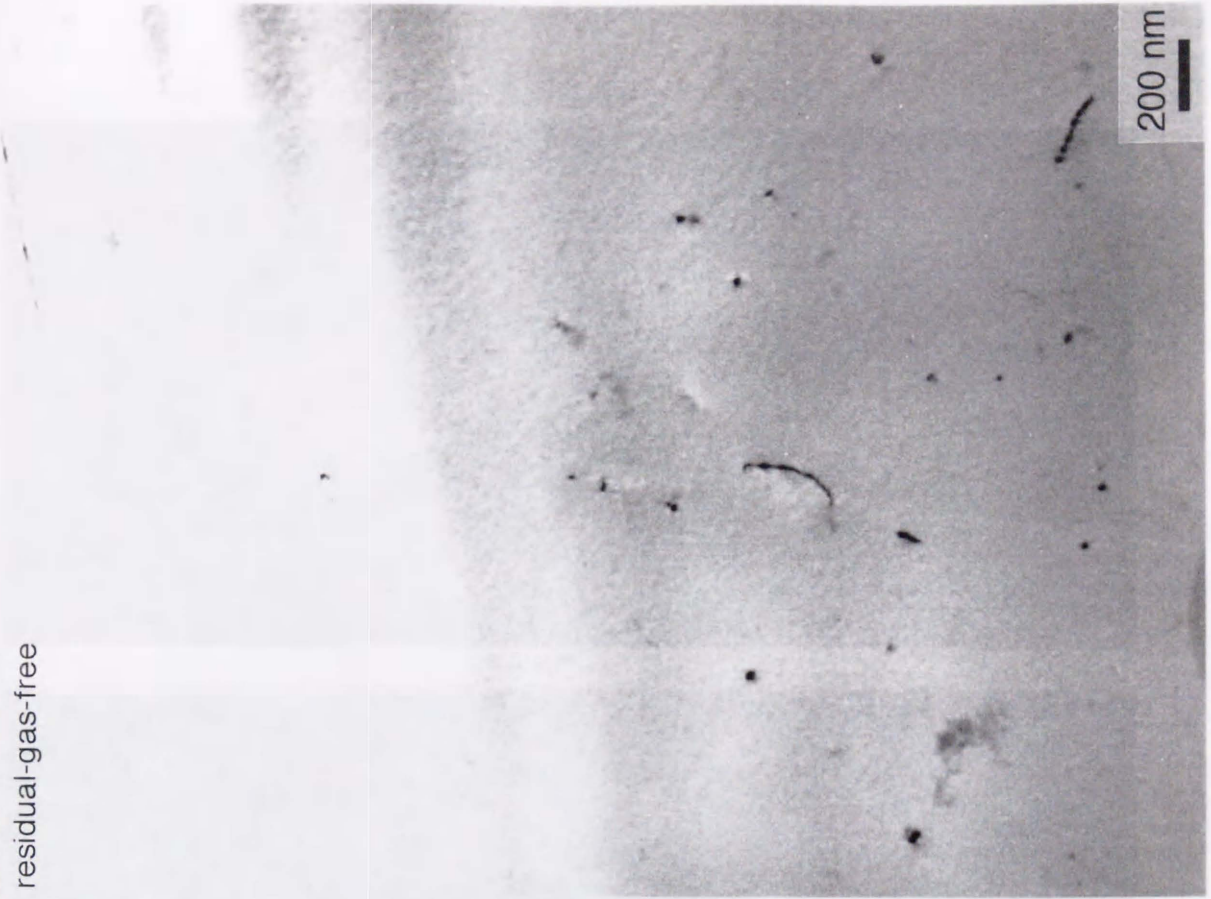
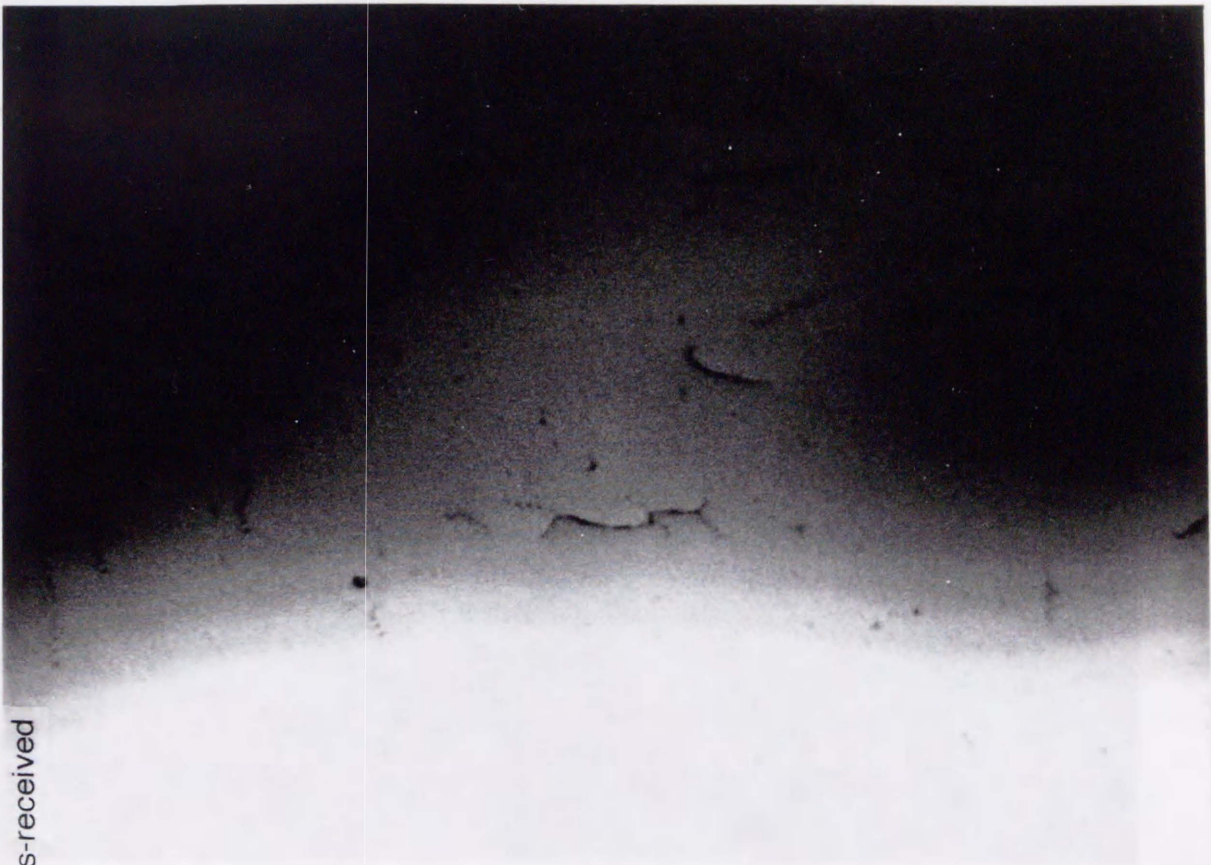


図3.2.8 300°C照射した Cu-5at%Al (as-received 試料および残留ガス除去試料の比較)

Cu-5at.%Al JMTR 94M-15u 200°C

$5.3 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$

$2.5 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

$7.7 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

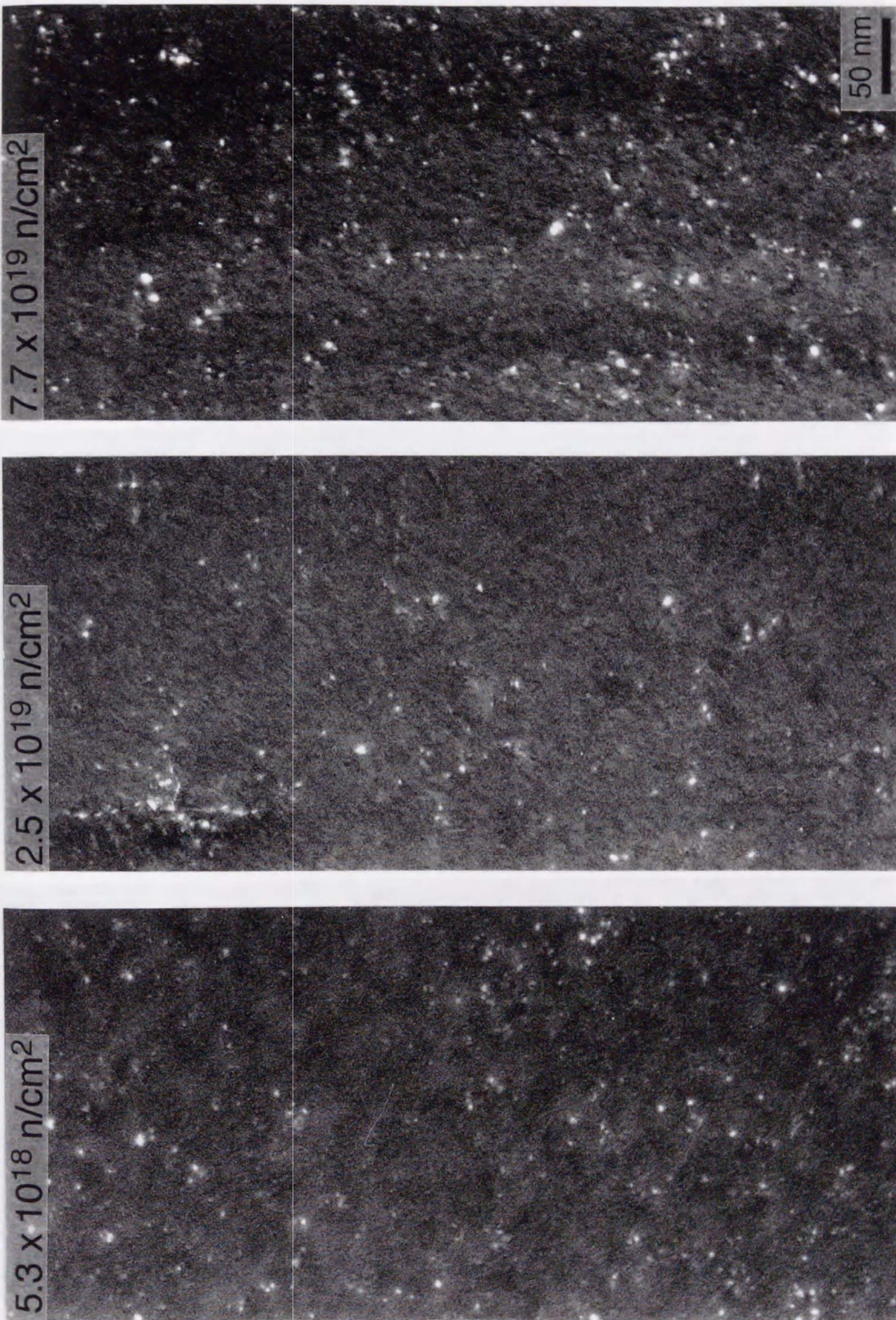


図3.2.9 200°C照射したCu-5at%Al (as-received 試料) の暗視野像

residual-gas-free specimen

Cu-5at.%Al JMTR 94M-15u 200°C

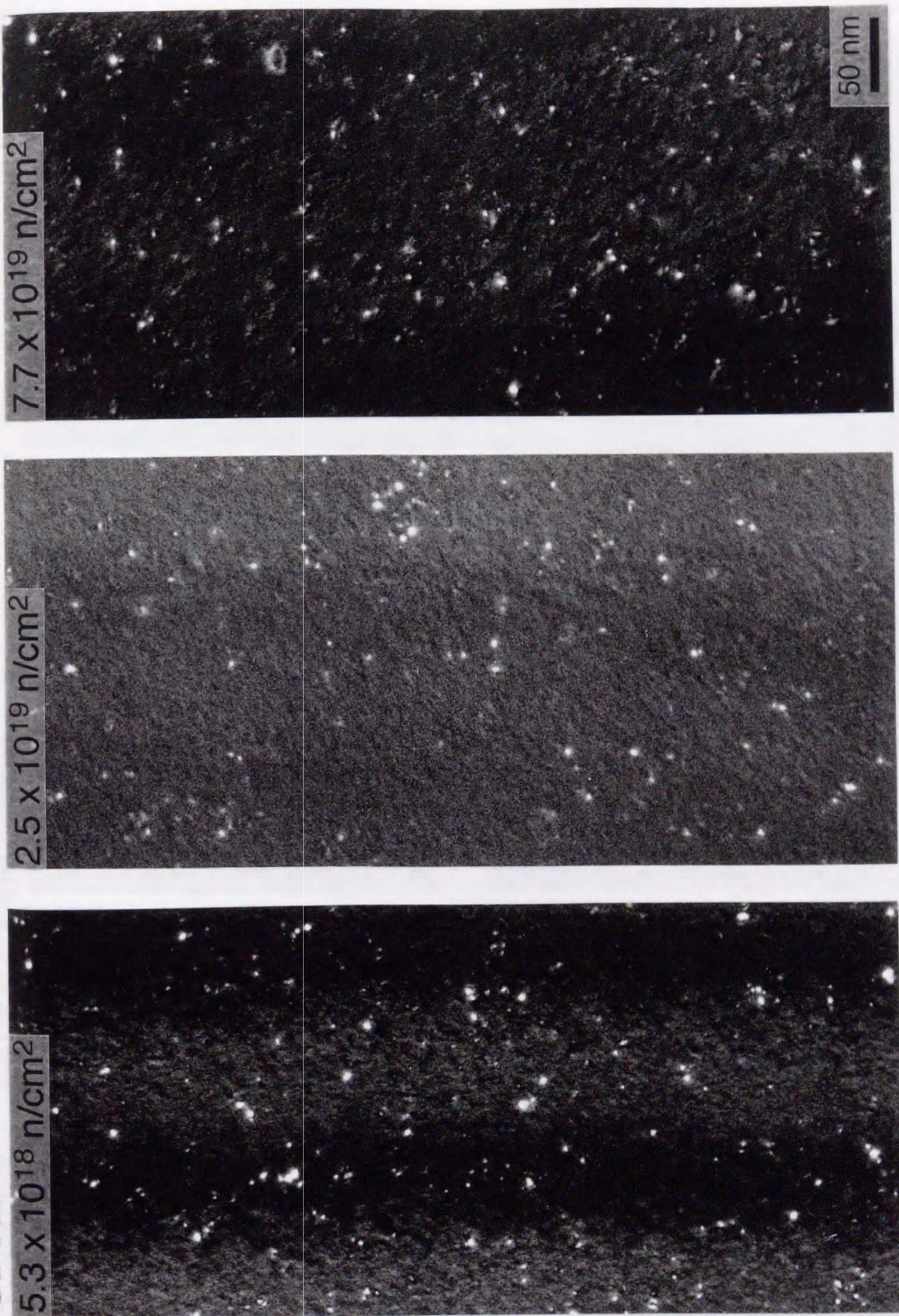


図3.2.10 200°C照射したCu-5at%Al（残留ガス除去試料）の暗視野像



Cu-5at.%Al JMTR 94M-15u 300°C

$7.0 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$

$3.3 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

$1.0 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$

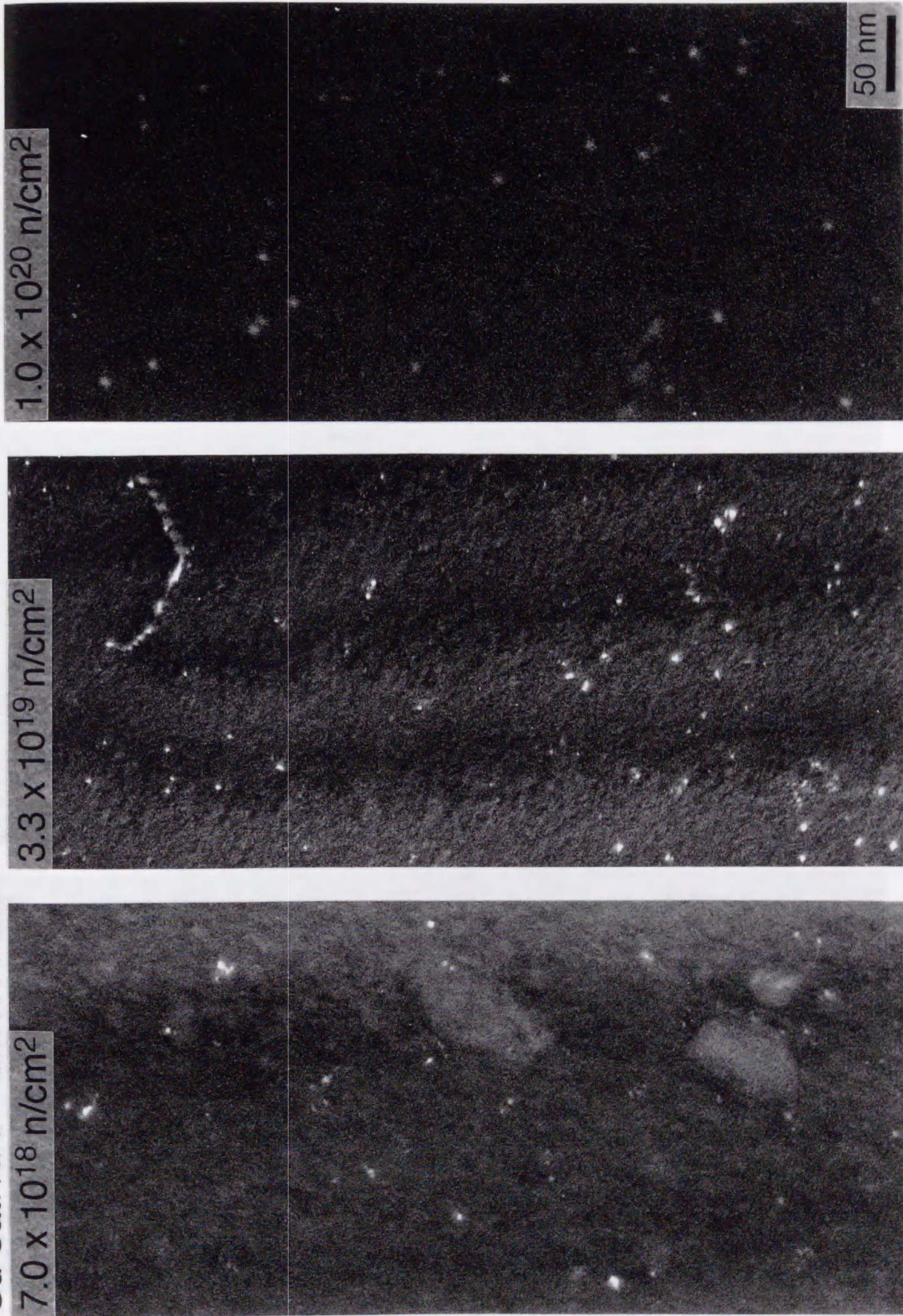


図3.2.1I 300°C照射したCu-5at%Al (as-received 試料) の暗視野像

Cu-5at.%Al JMTR 94M-15u 300°C

7.0 x 10<sup>18</sup> n/cm<sup>2</sup>

3.3 x 10<sup>19</sup> n/cm<sup>2</sup>

1.0 x 10<sup>20</sup> n/cm<sup>2</sup>

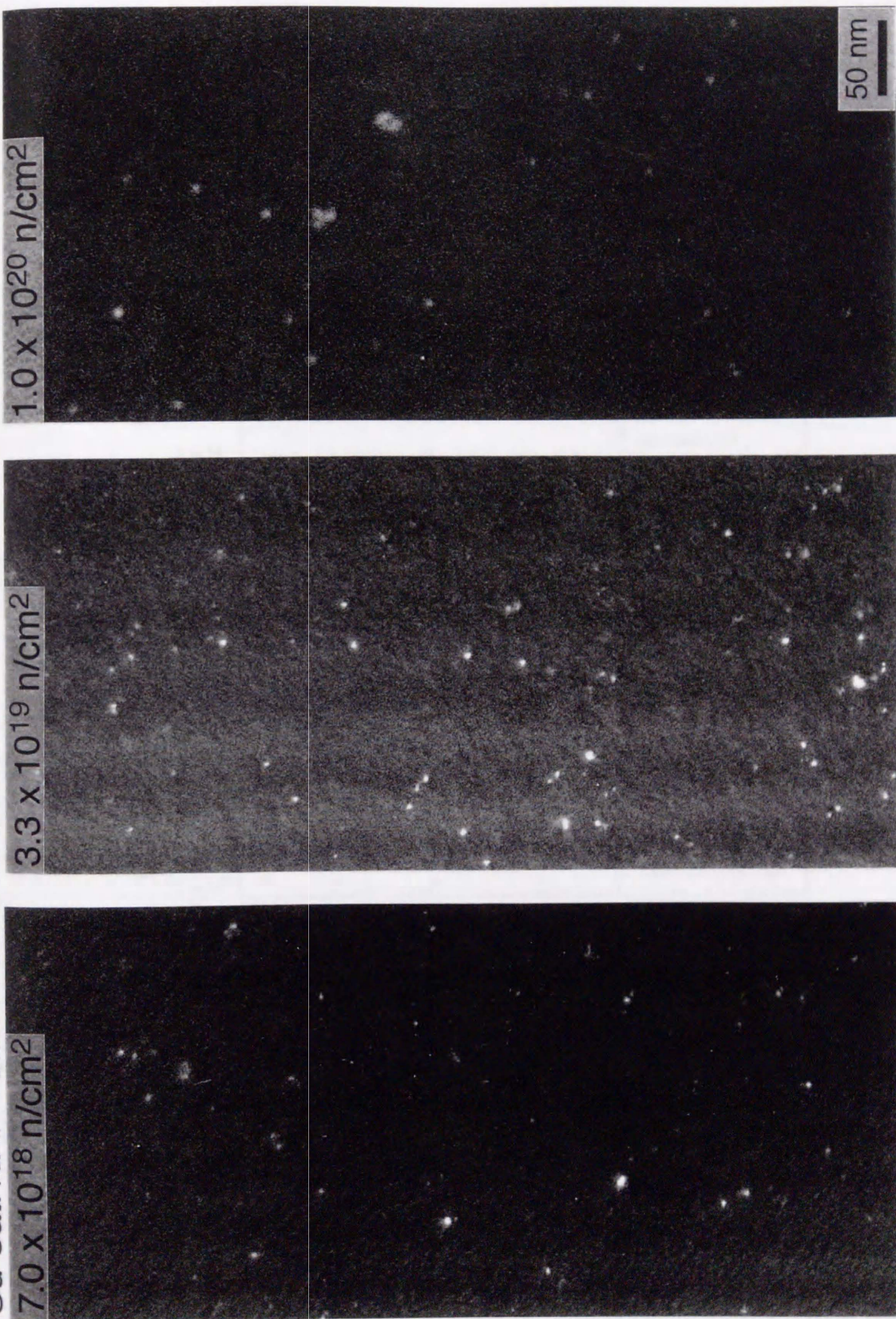


図3.2.12 300°C照射したCu-5at%Al（残留ガス除去試料）の暗視野像

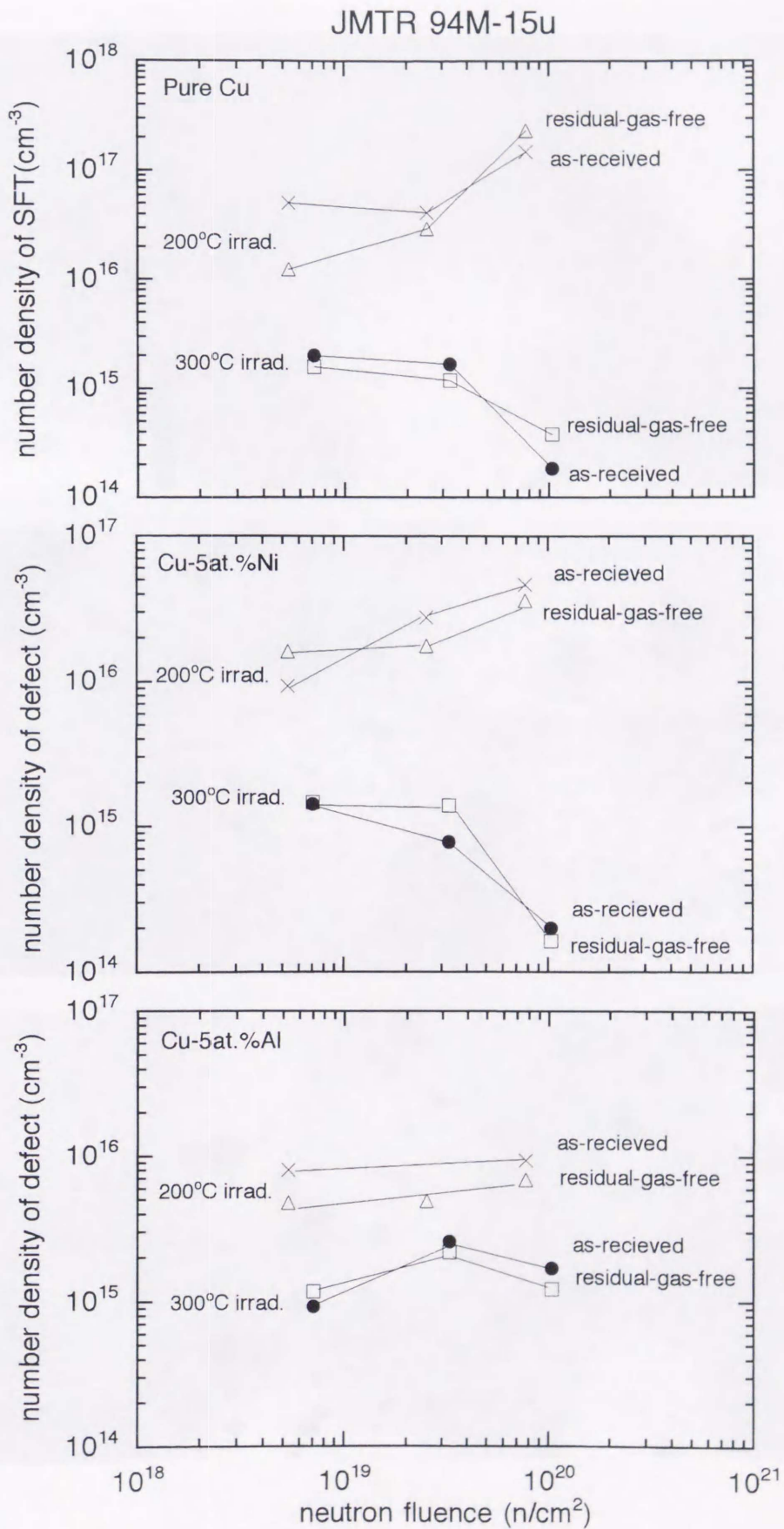
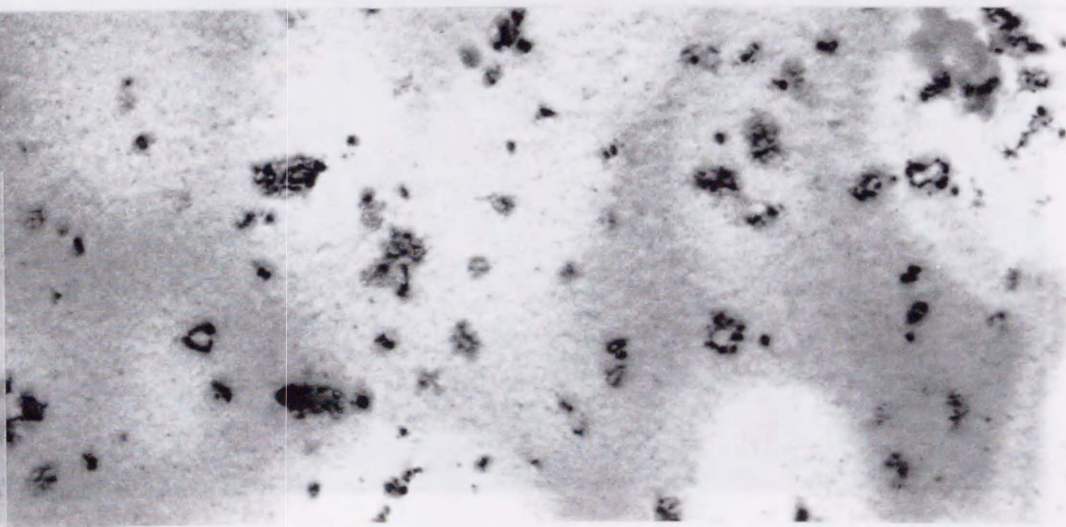


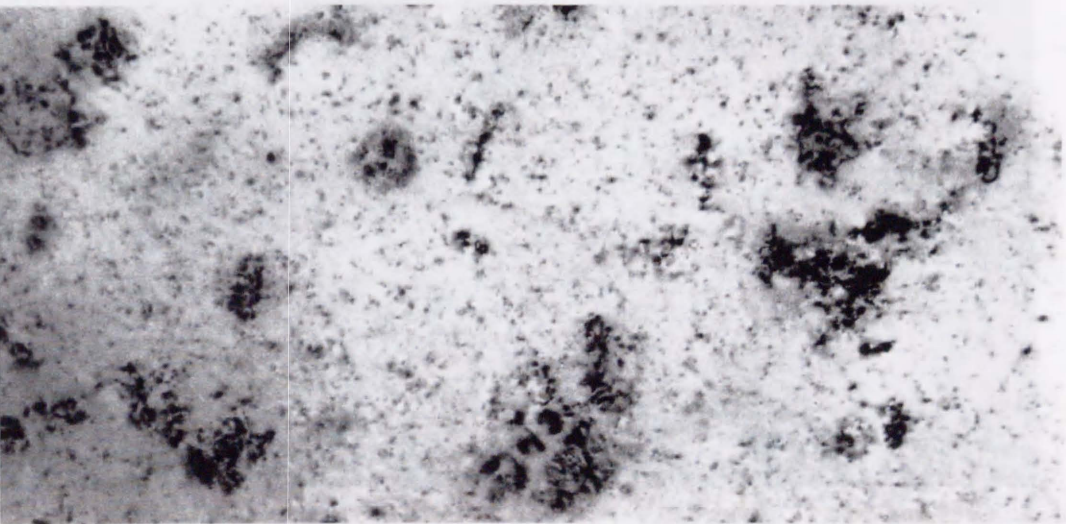
図3.2.13 200、300°C照射した純銅・Cu-5at%Ni・Cu-5at%AlのSFT数密度照射量依存性

Ni JMTR 94M-15u 200°C

$5.3 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$



$2.5 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$



$7.7 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

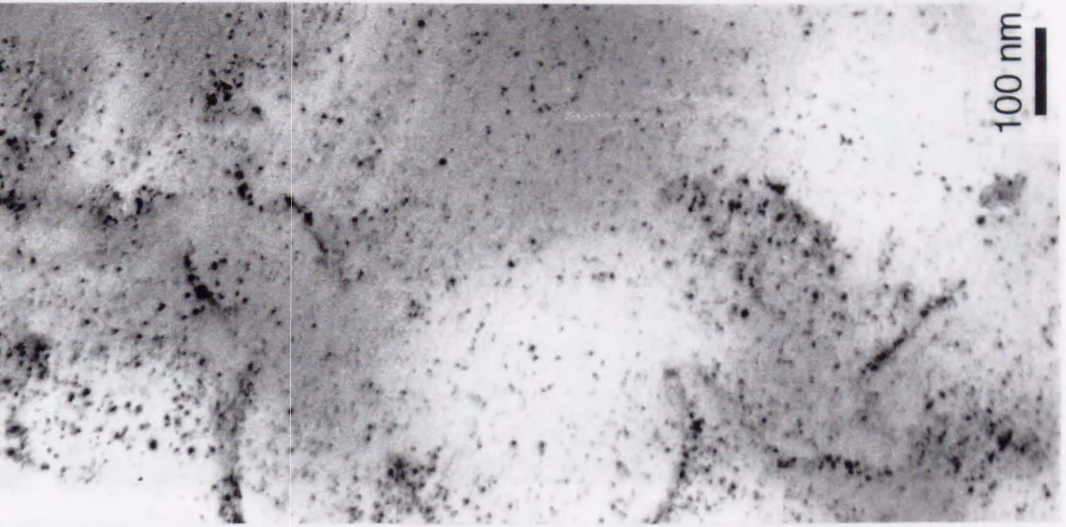


図3.3.1 200°C照射した純ニッケル (as received 試料) の損傷組織照射量依存性

Ni JMTR 94M-15u 200°C

5.3 x 10<sup>18</sup> n/cm<sup>2</sup>

2.5 x 10<sup>19</sup> n/cm<sup>2</sup>

7.7 x 10<sup>19</sup> n/cm<sup>2</sup>

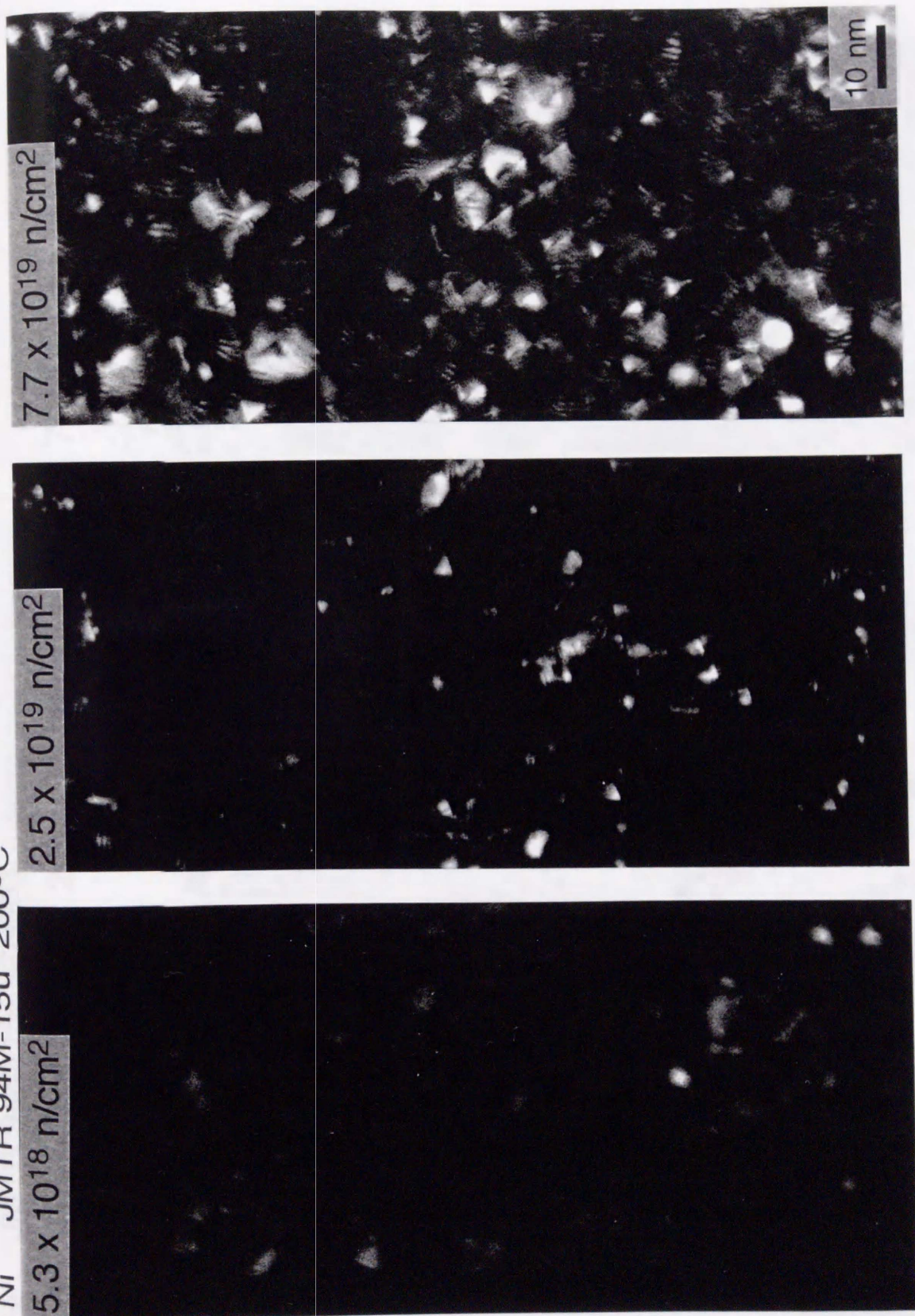


図3.3.2 200°C照射した純ニッケル (as-received 試料) の損傷組織照射量依存性

Ni JMTR 94M-15u 200°C residual-gas-free specimen

$5.3 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$

$2.5 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

$7.7 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

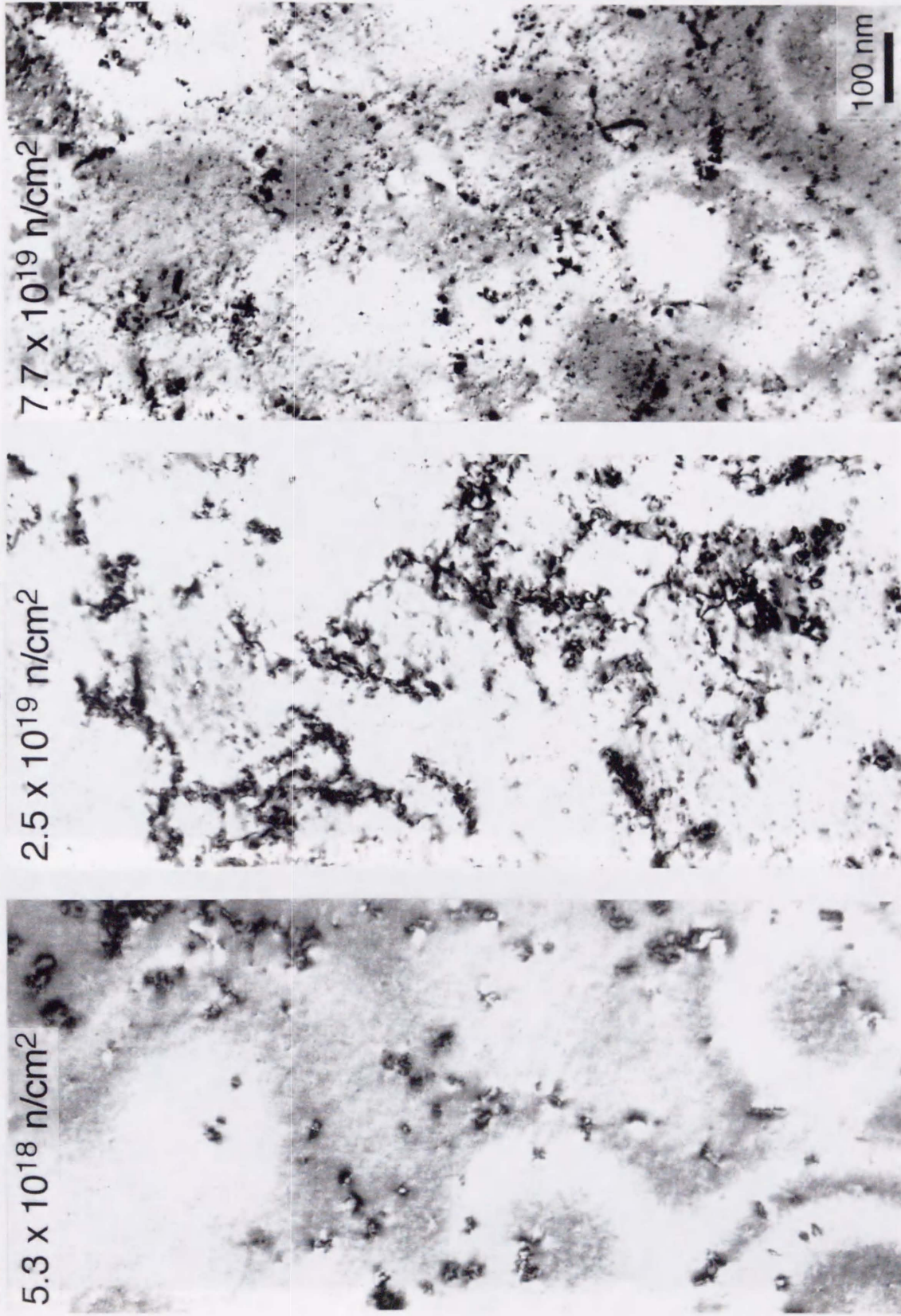


図3.3.3 200°C照射した純ニッケル（残留ガス除去試料）の損傷組織照射量依存性

Ni JMTR 94M-15u 200°C residual-gas-free specimen

5.3 x 10<sup>18</sup> n/cm<sup>2</sup>

2.5 x 10<sup>19</sup> n/cm<sup>2</sup>

7.7 x 10<sup>19</sup> n/cm<sup>2</sup>

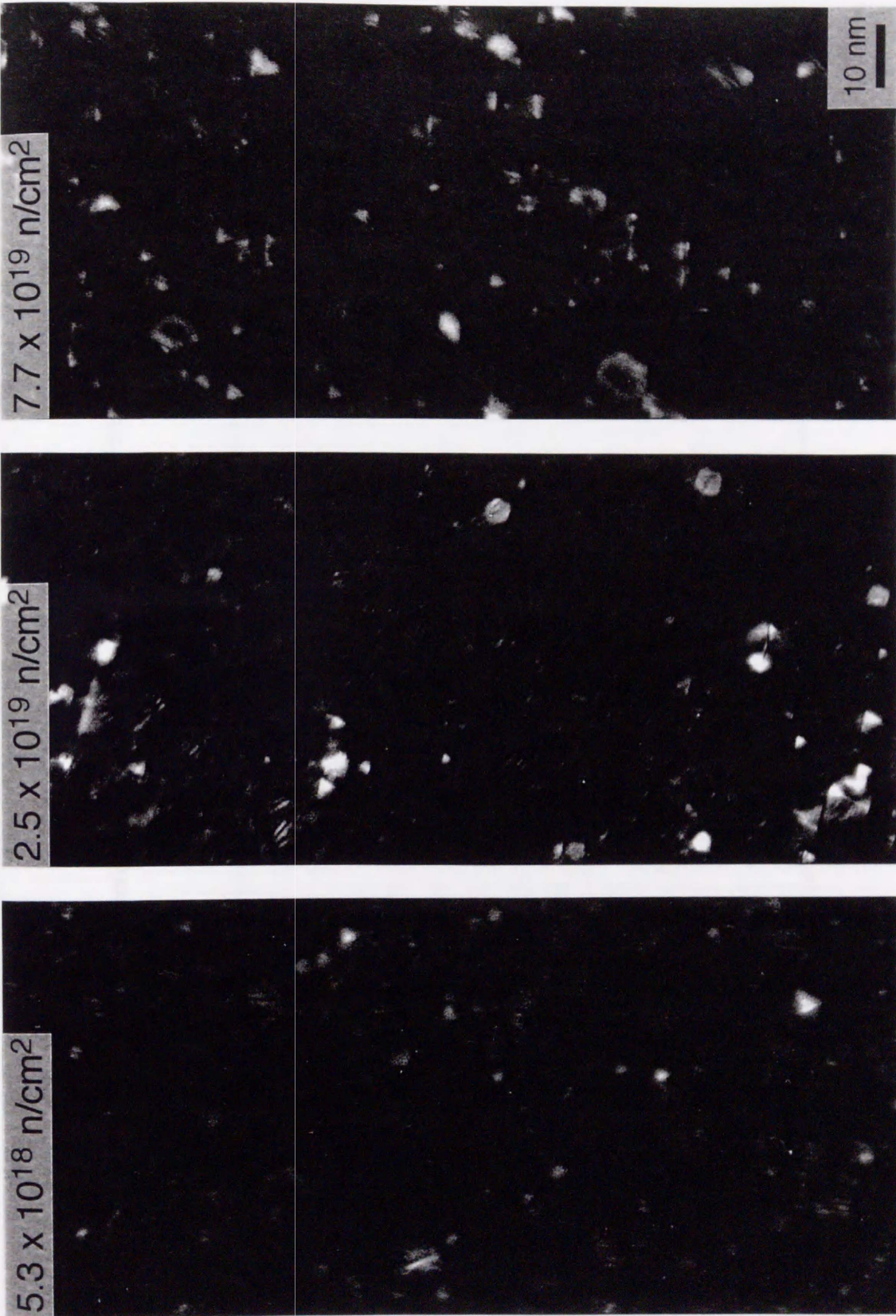


図3.3.4 200°C照射した純ニッケル（残留ガス除去試料）の損傷組織照射量依存性

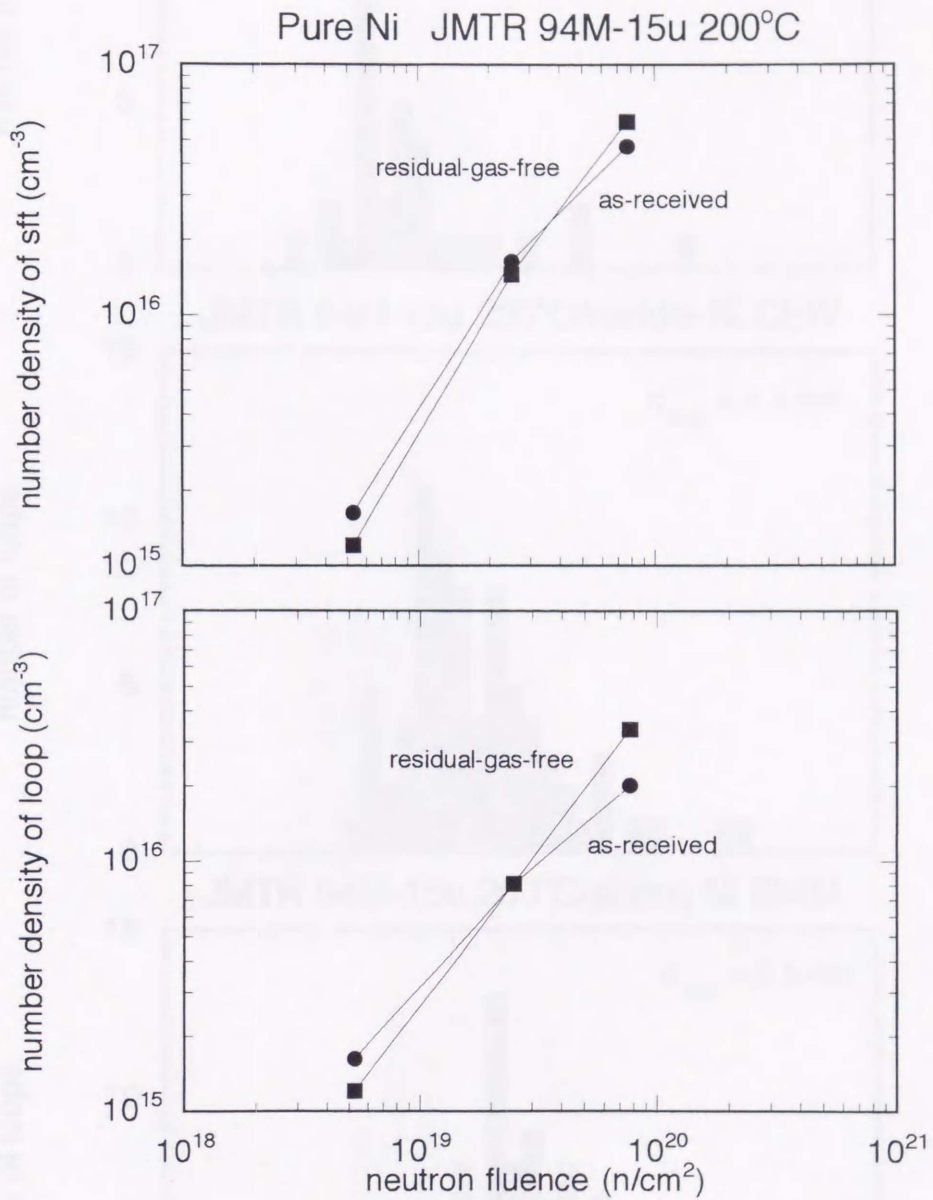


図3.3.5 200°C照射した純ニッケルの転位ループ・SFT数密度照射量依存性



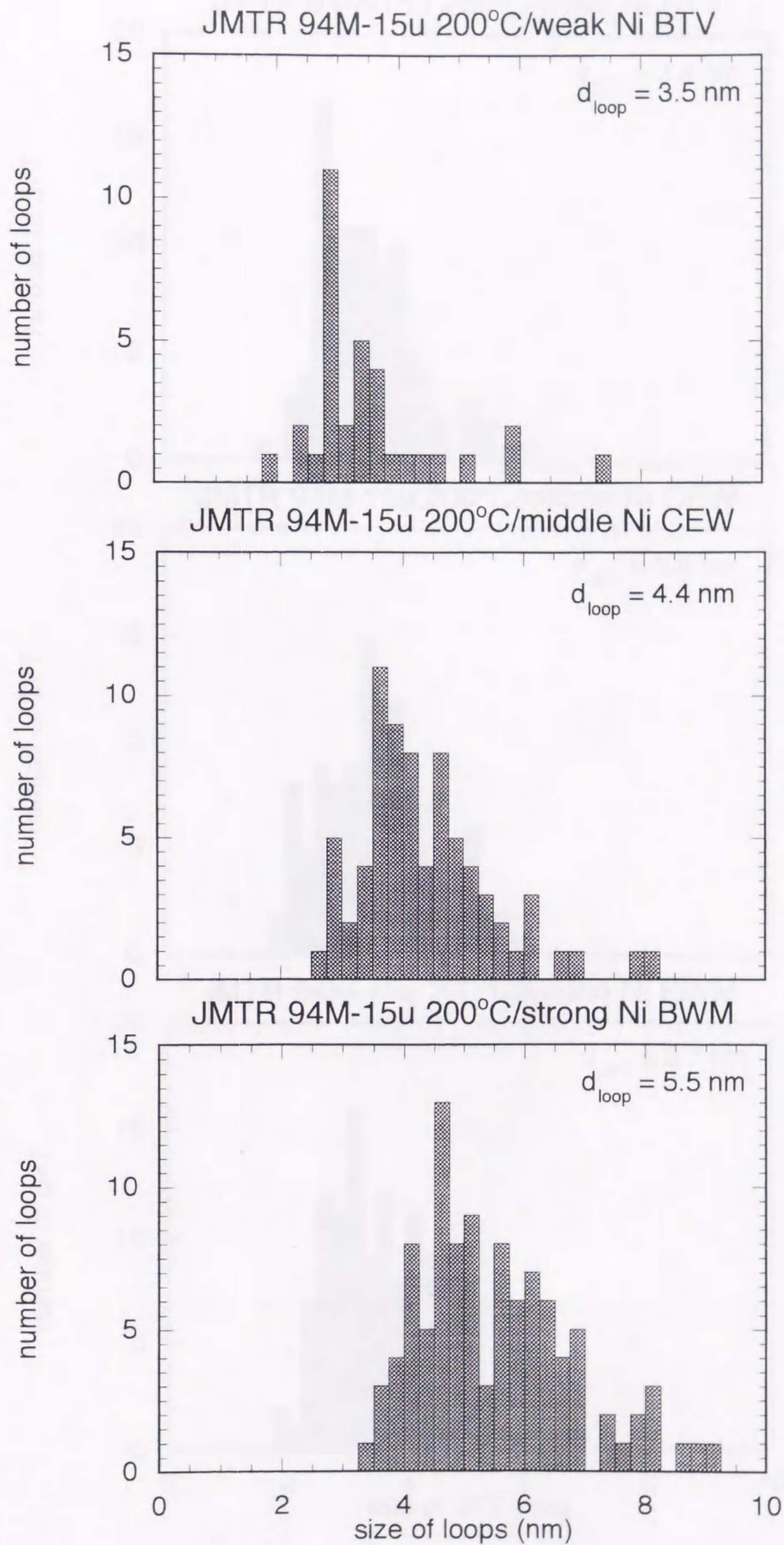


図3.3.6 200°C照射した純ニッケル (as-received 試料) の転位ループサイズ分布照射量依存性

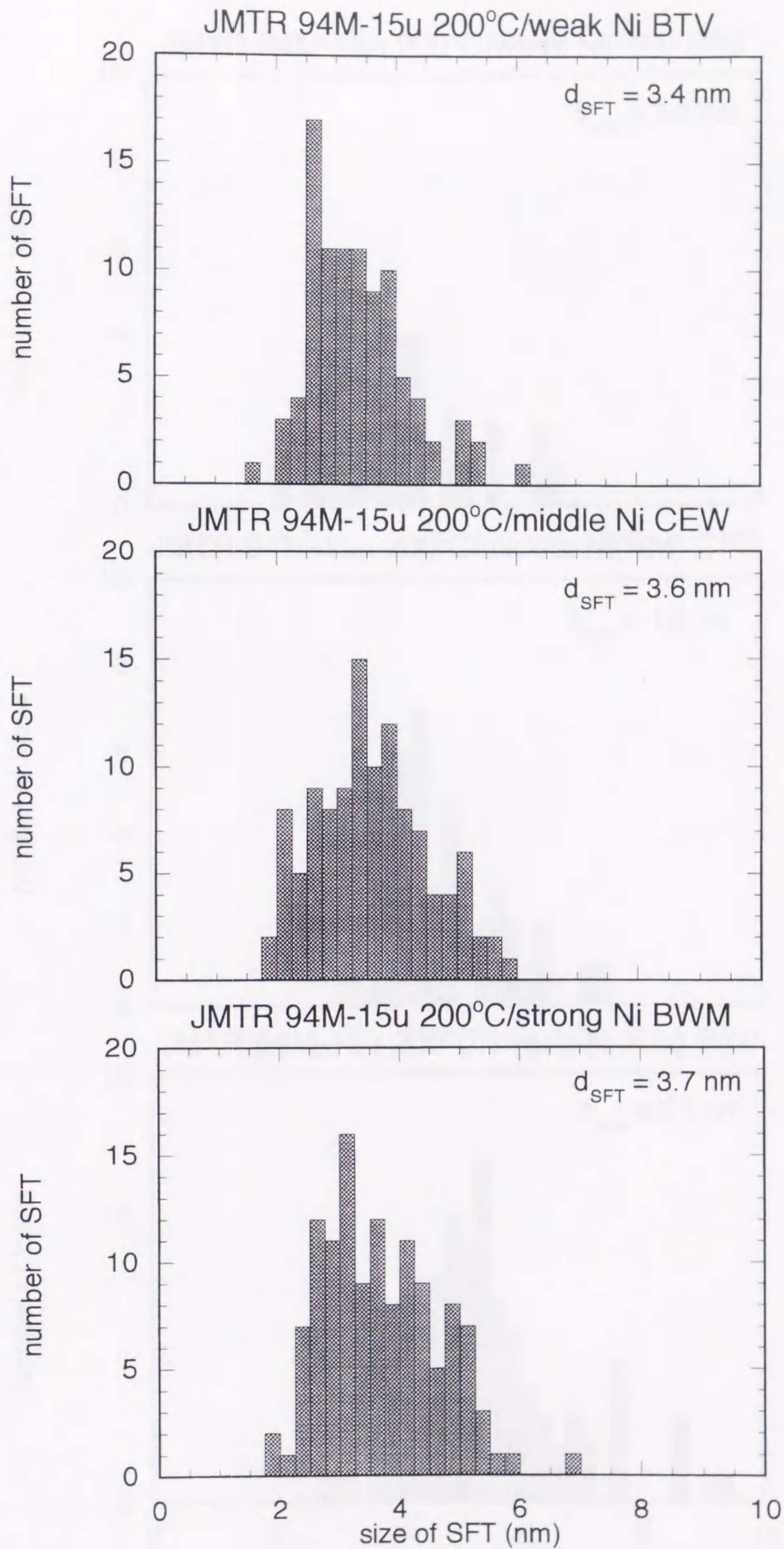


図3.3.7 200°C照射した純ニッケル (as-received 試料) の SFTサイズ分布照射量依存性

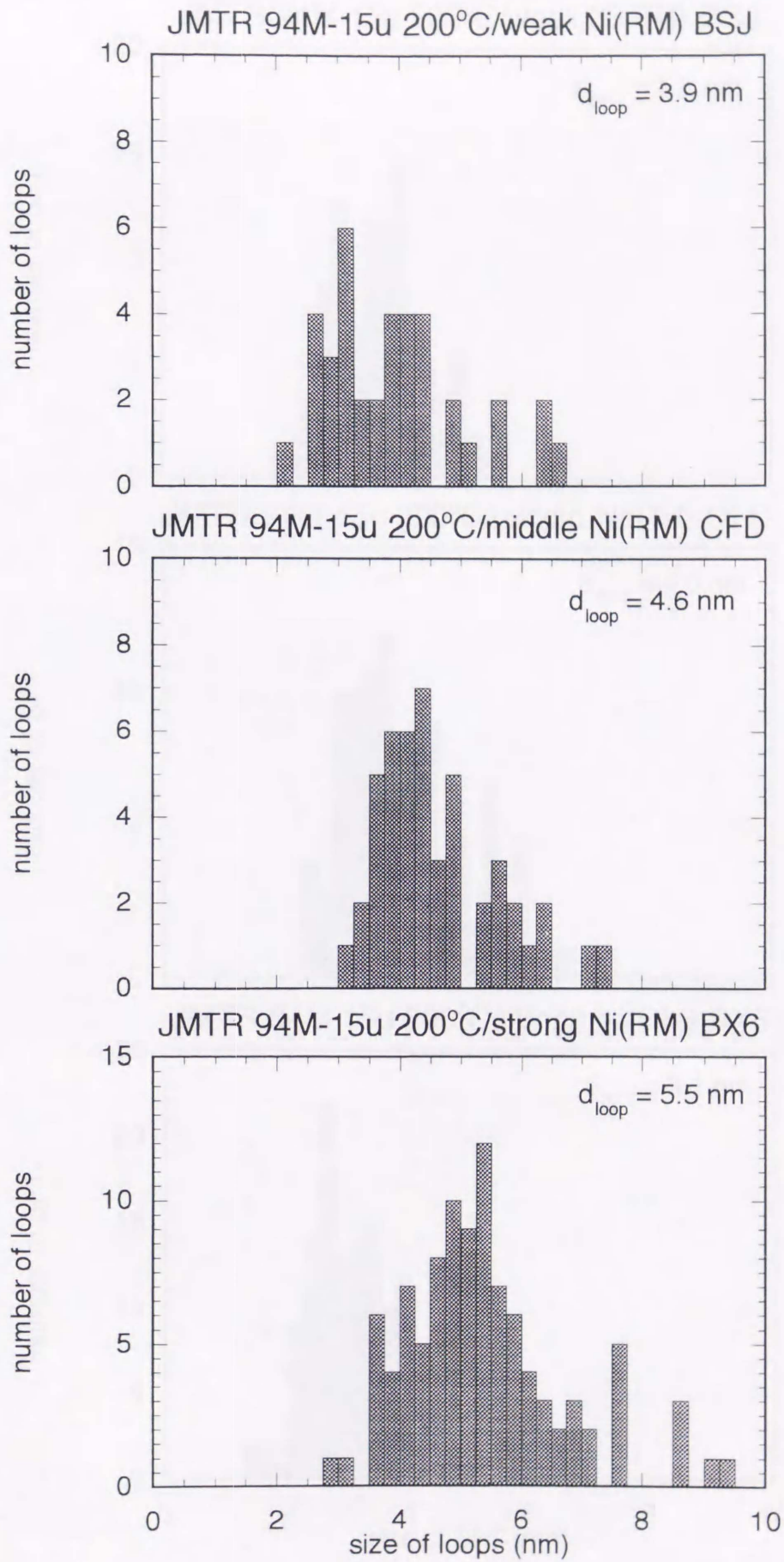


図3.3.8 200°C照射した純ニッケル（残留ガス除去試料）の転位ループサイズ分布照射量依存性

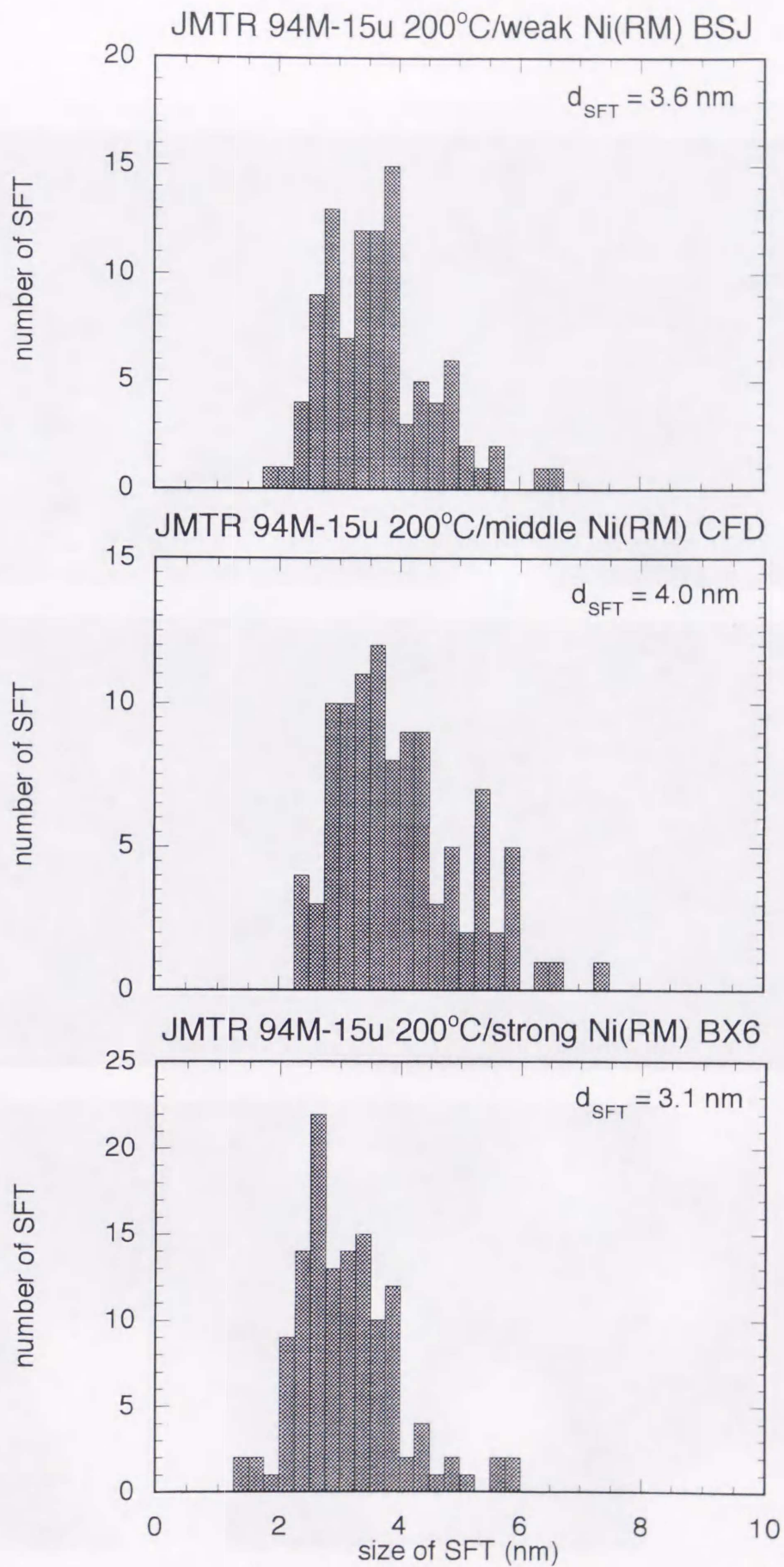


図3.3.9 200°C照射した純ニッケル（残留ガス除去試料）の SFTサイズ分布照射量依存性

Ni JMTR 94M-15u 300°C

7.0 x 10<sup>18</sup> n/cm<sup>2</sup>

3.3 x 10<sup>19</sup> n/cm<sup>2</sup>

1.0 x 10<sup>20</sup> n/cm<sup>2</sup>

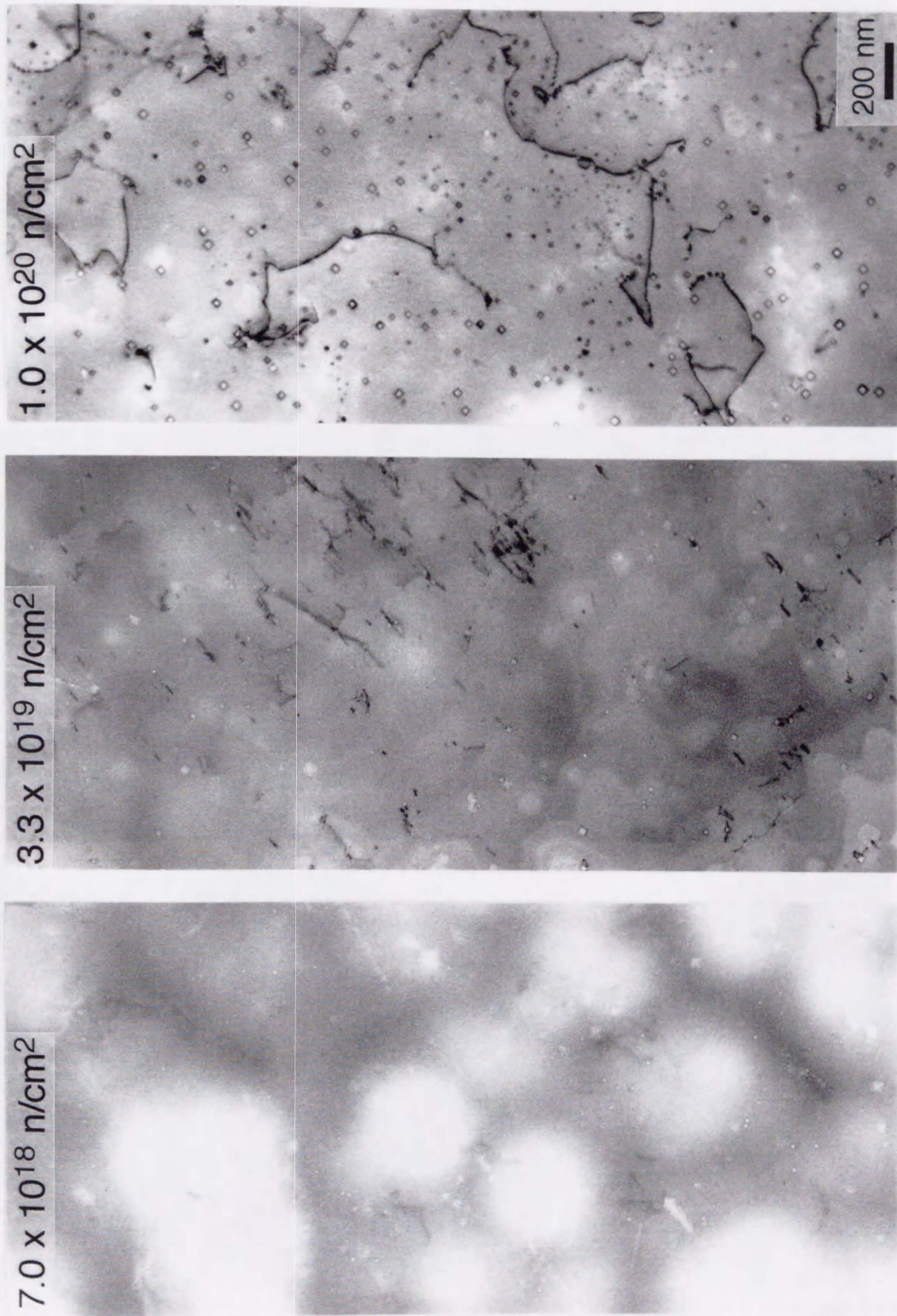


図3.3.10 300°C照射した純ニッケル (as-received 試料) の損傷組織照射量依存性

Ni JMTR 94M-15u 300°C

$7.0 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$

$3.3 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$

$1.0 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$

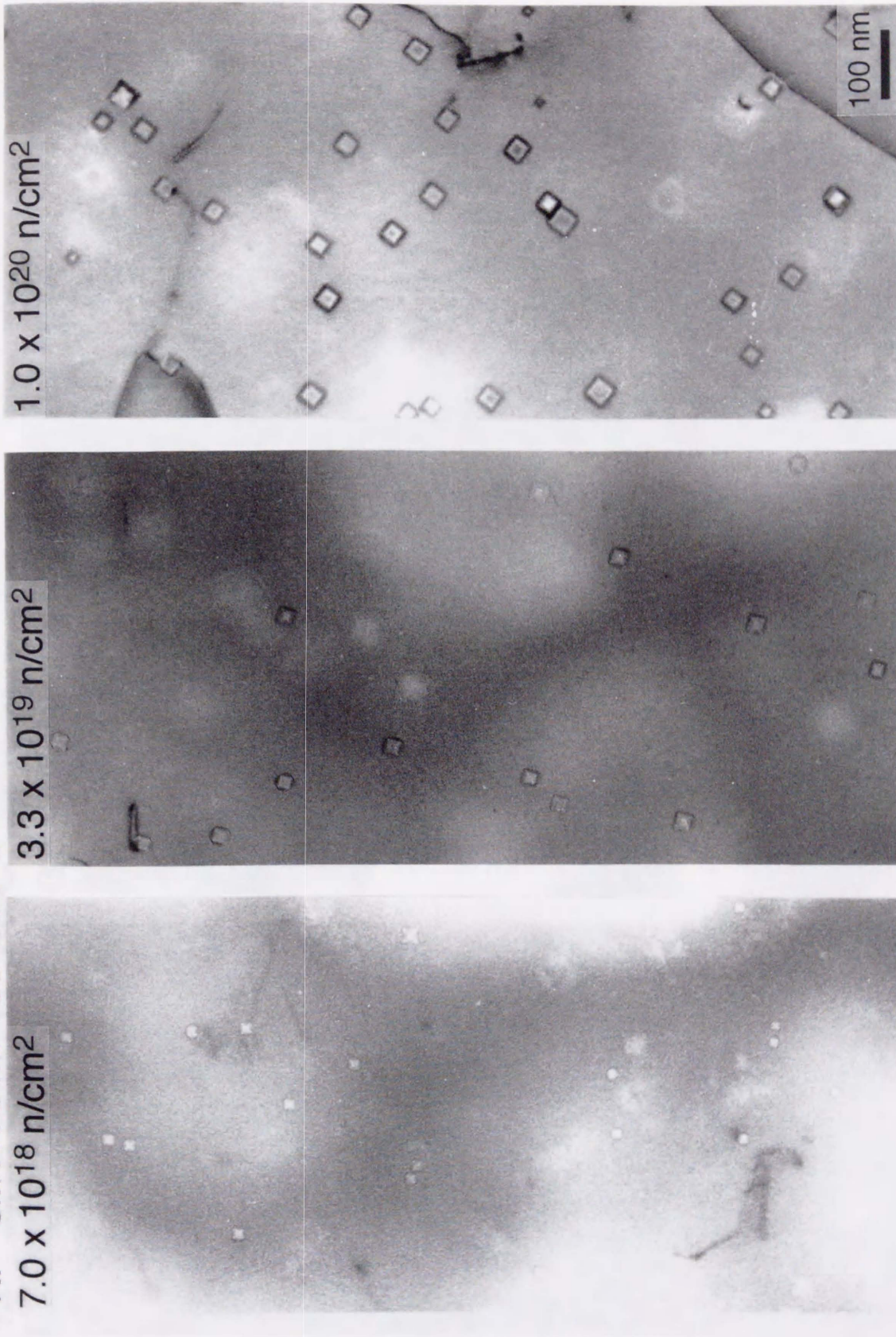


図3.3.11 300°C照射した純ニッケル (as-received 試料) の損傷組織照射量依存性

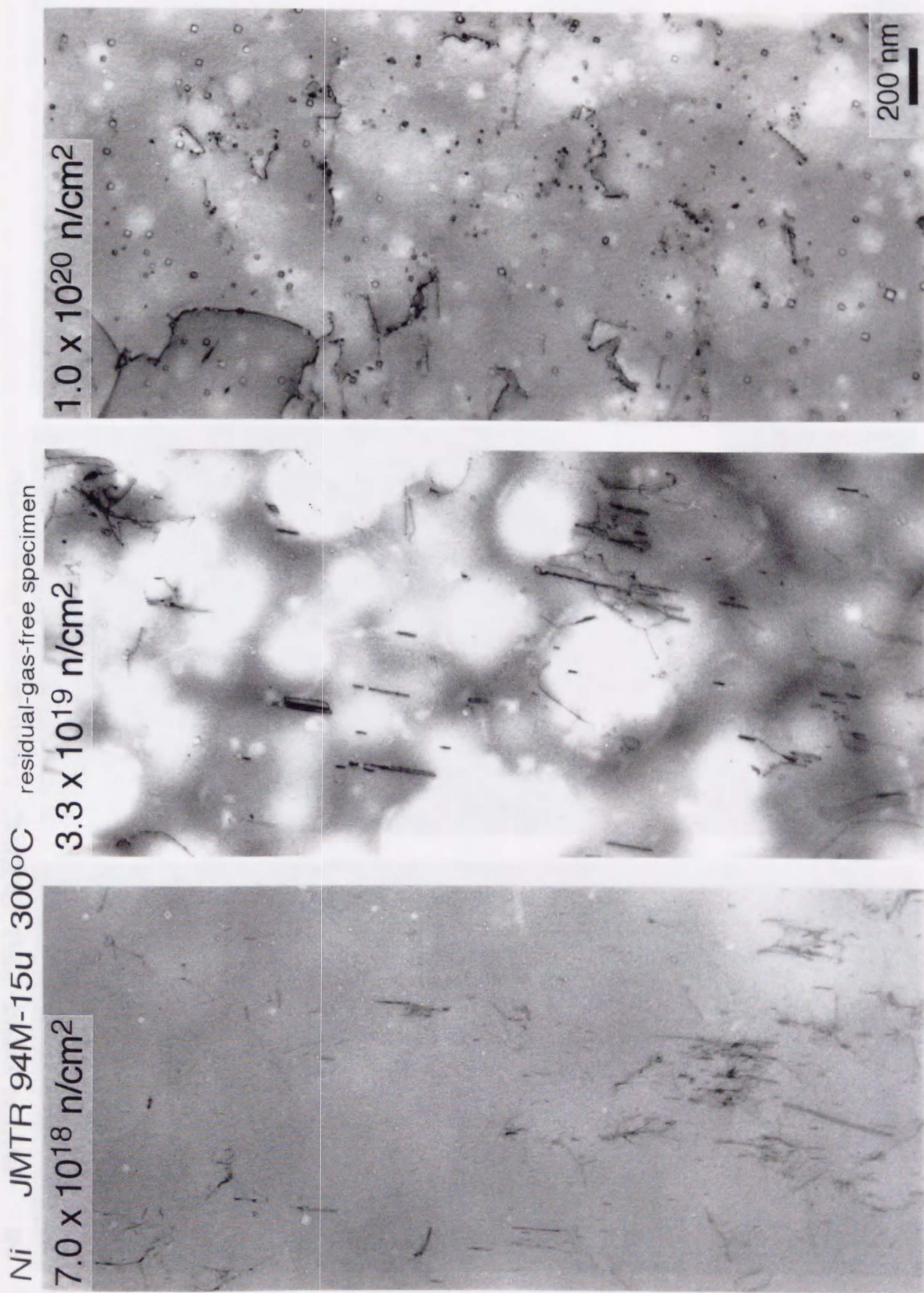


図3.3.12 300°C照射した純ニッケル（残留ガス除去試料）の損傷組織照射量依存性

Ni JMTR 94M-15u 300°C residual-gas-free specimen

7.0 x 10<sup>18</sup> n/cm<sup>2</sup>

3.3 x 10<sup>19</sup> n/cm<sup>2</sup>

1.0 x 10<sup>20</sup> n/cm<sup>2</sup>

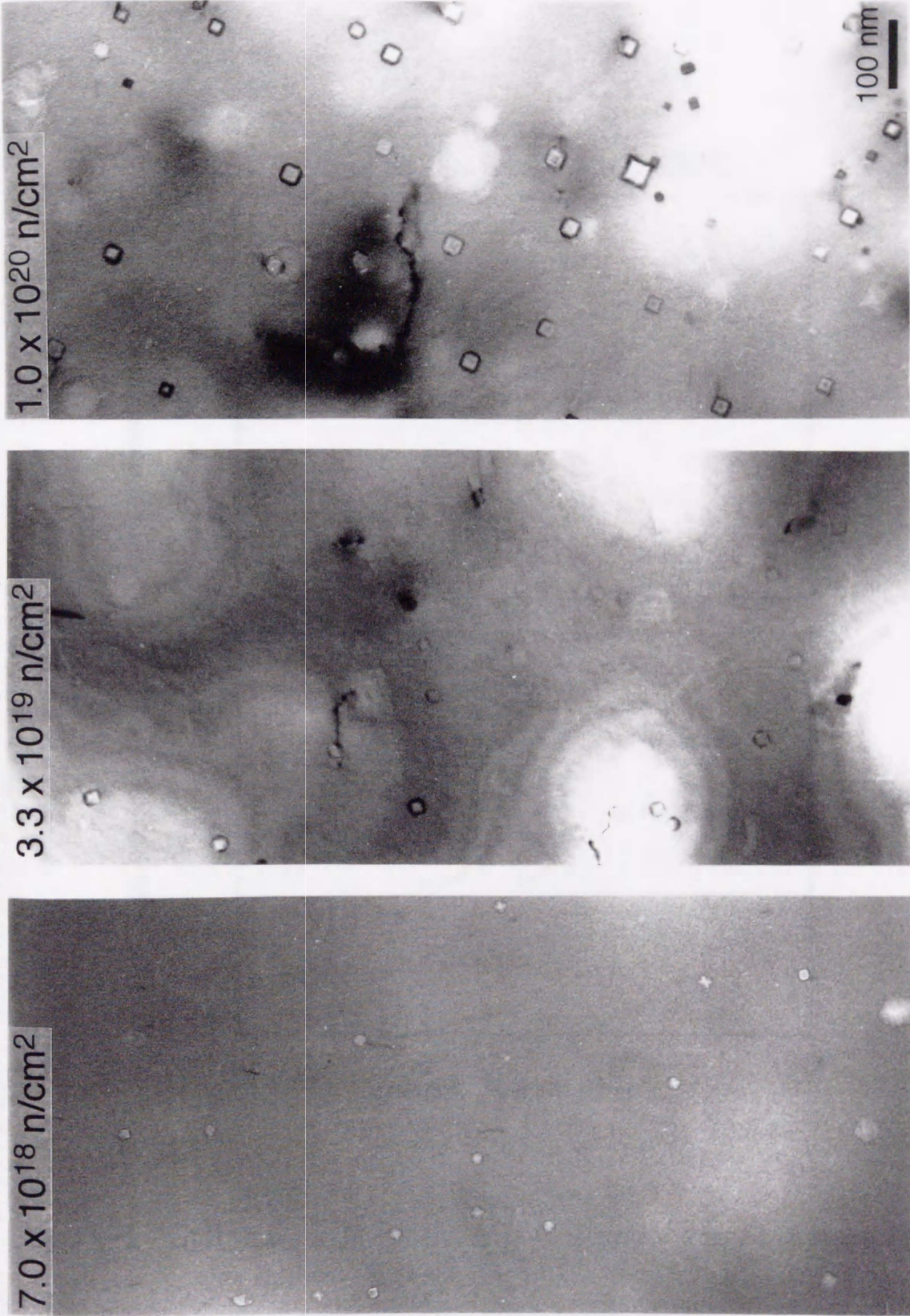


図3.3.13 300°C照射した純ニッケル（残留ガス除去試料）の損傷組織照射量依存性



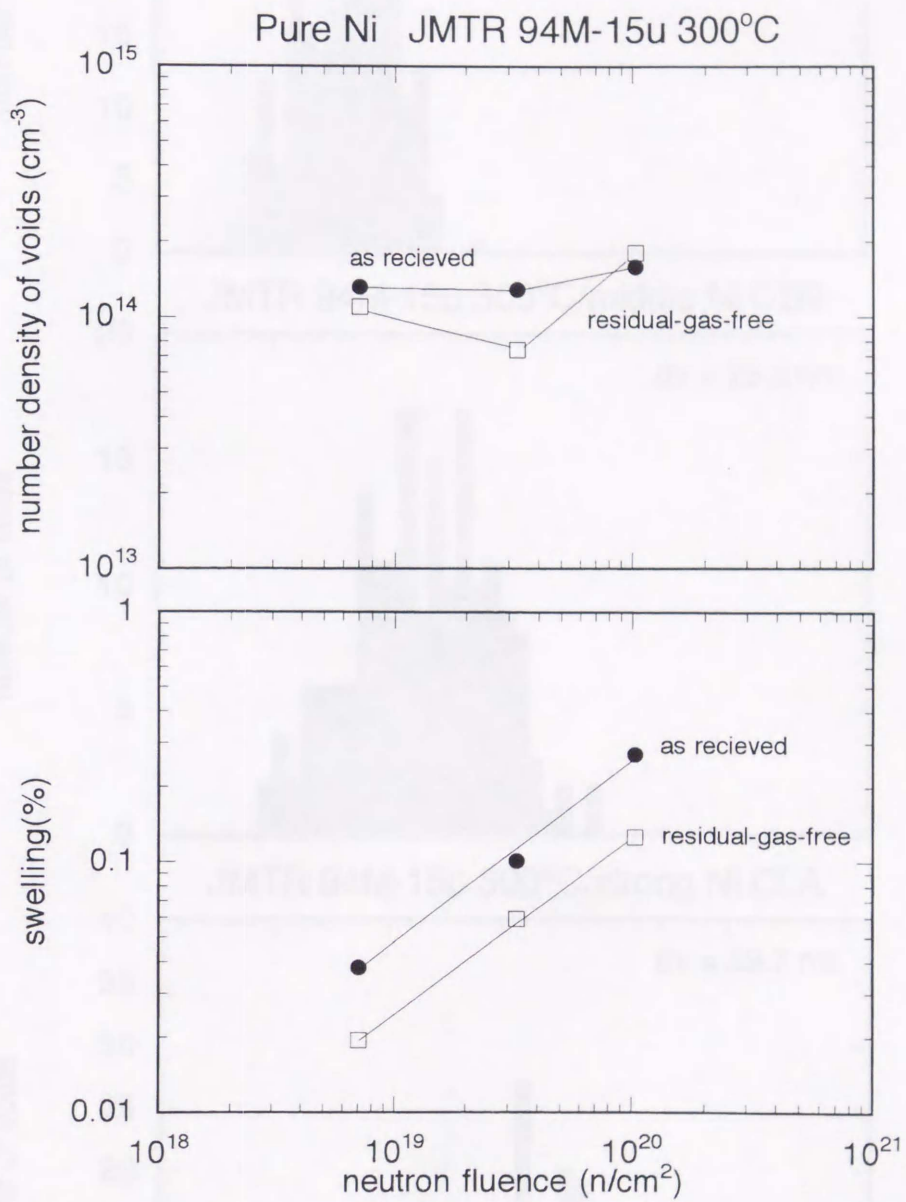


図3.3.14 300°C照射した純ニッケルのボイド数密度・スエリング照射量依存性

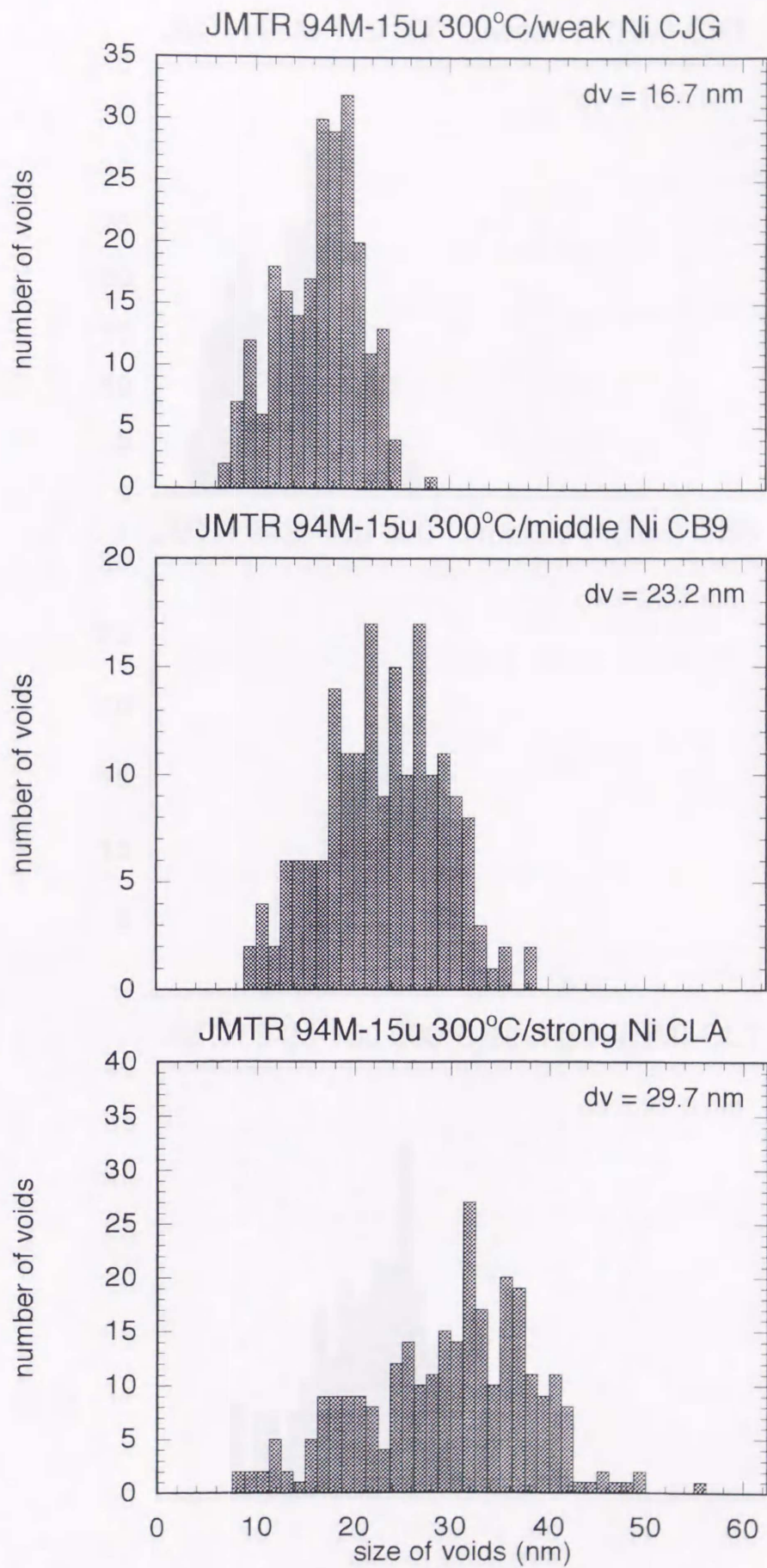


図3.3.15 300°C照射した純ニッケル (as-received 試料) のボイドサイズ分布照射量依存性

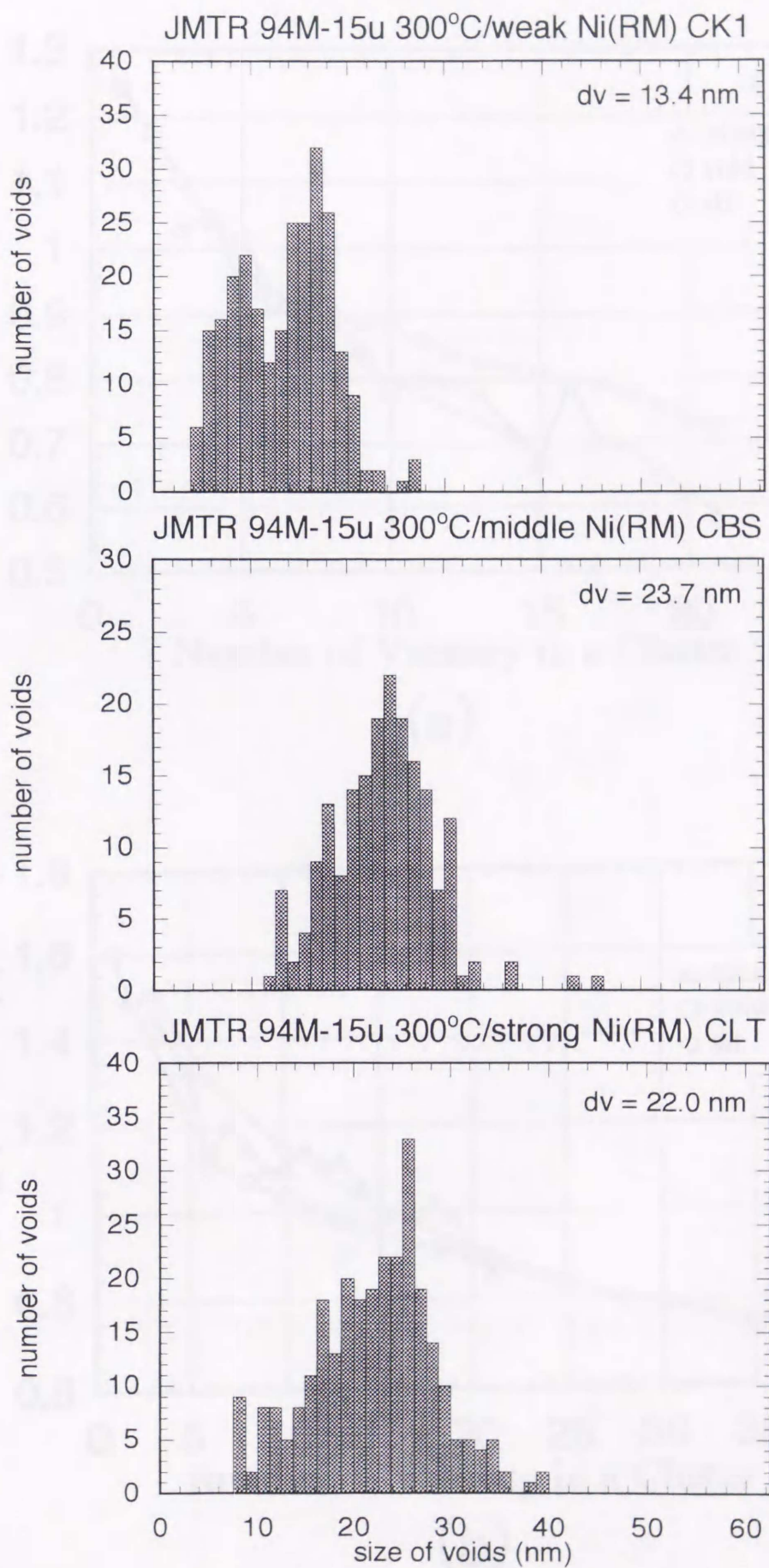
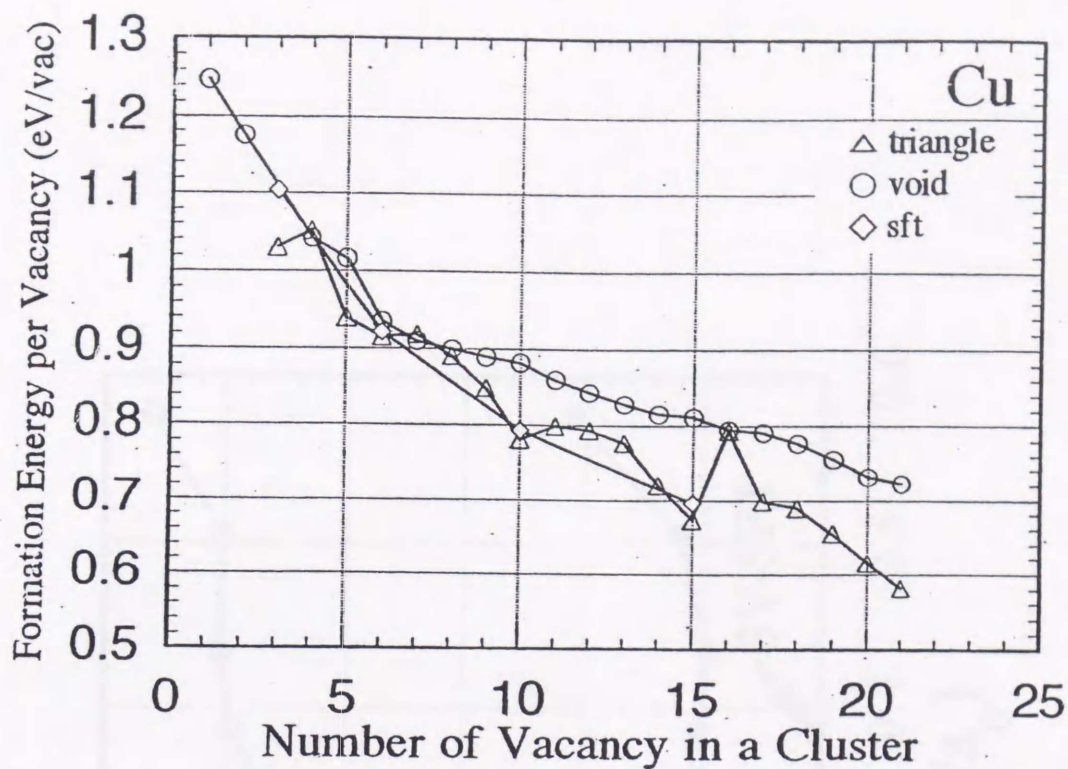
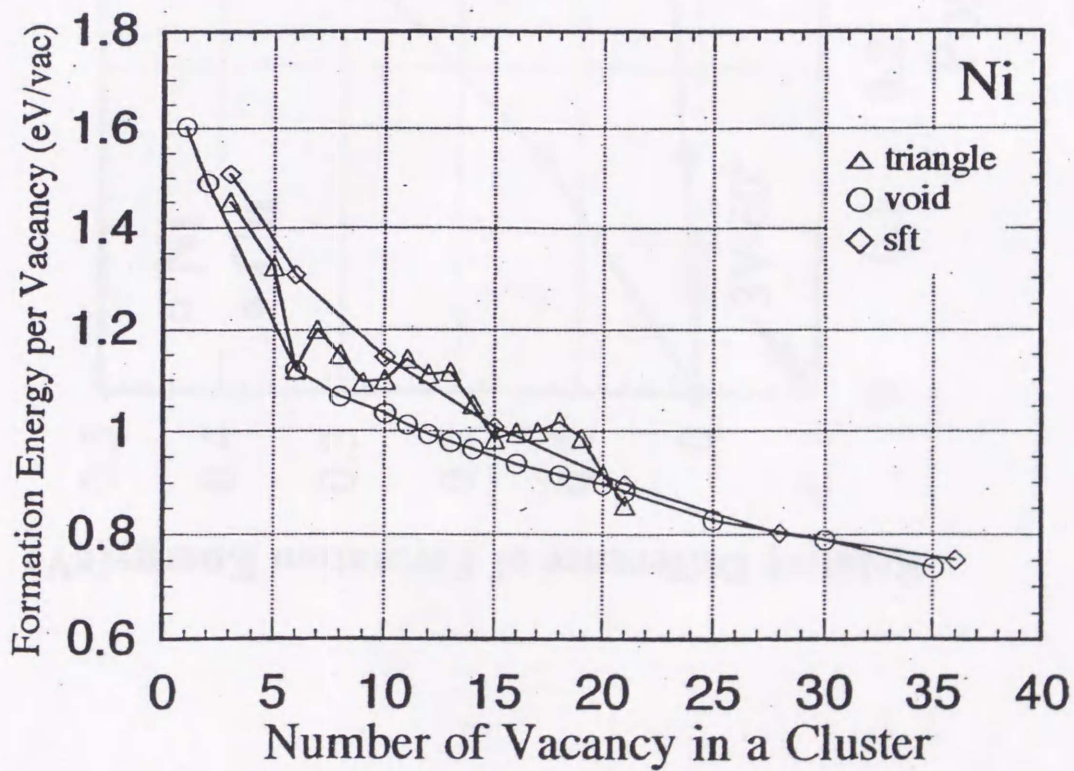


図3.3.16 300°C照射した純ニッケル（残留ガス除去試料）のボイドサイズ分布照射量依存性



(a)



(b)

図4.1 原子空孔集合体の1原子空孔あたりの形成エネルギー  
(a) 銅 (b) ニッケル

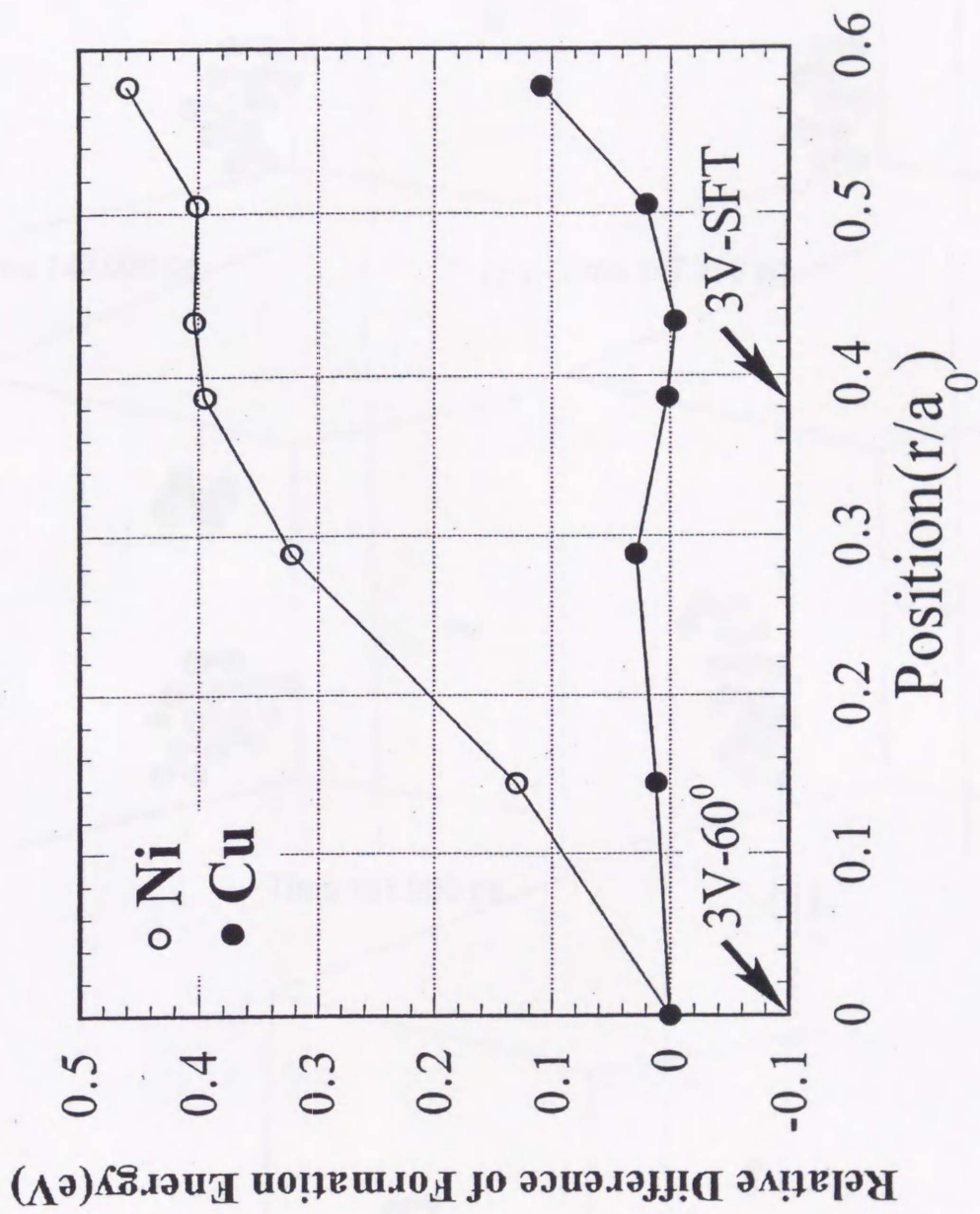


図4.2 銅とニッケルにおける 3v-60 から 3v-SFT に緩和するときのエネルギー変化

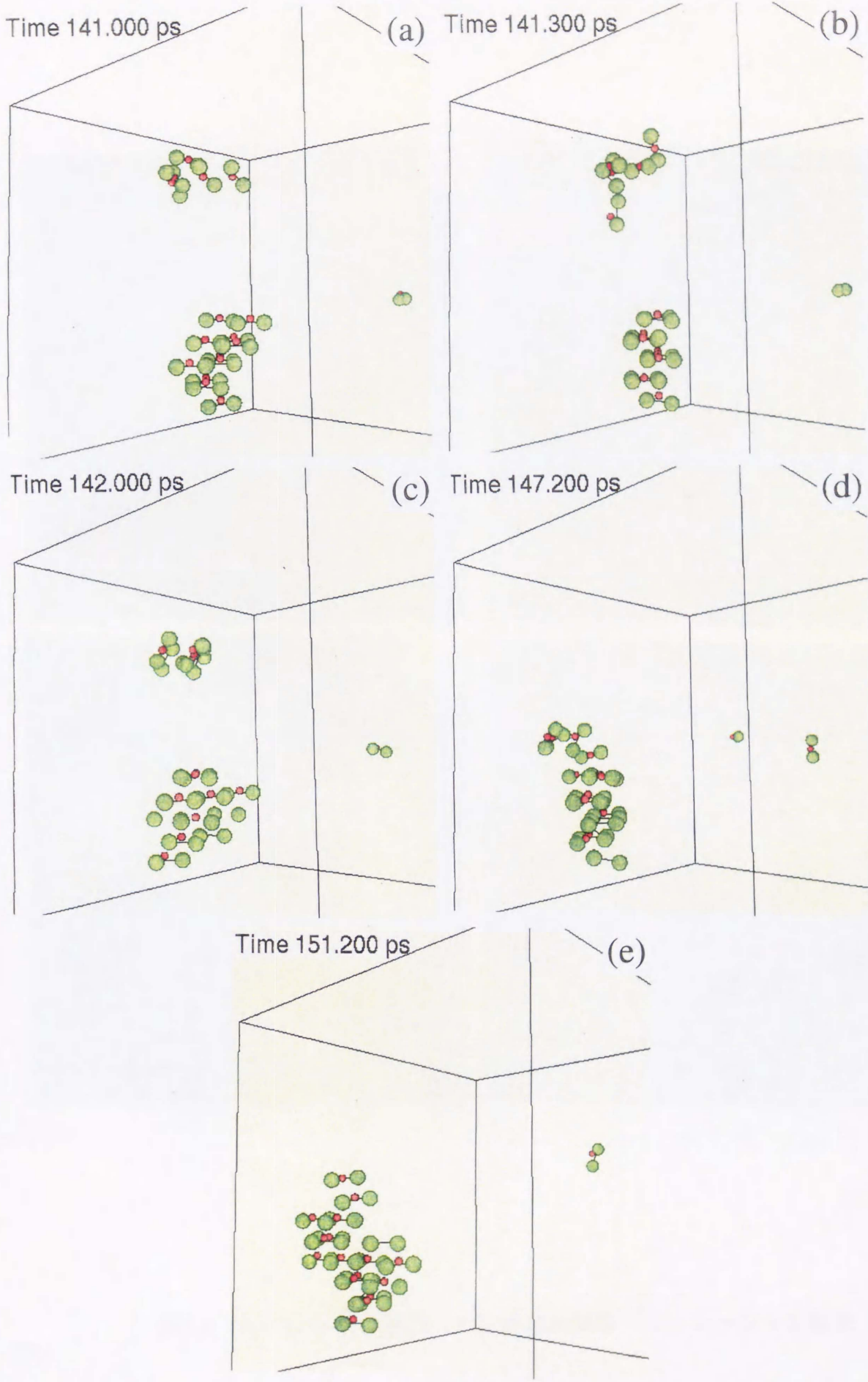


図4.3 格子間原子集合体の移動過程

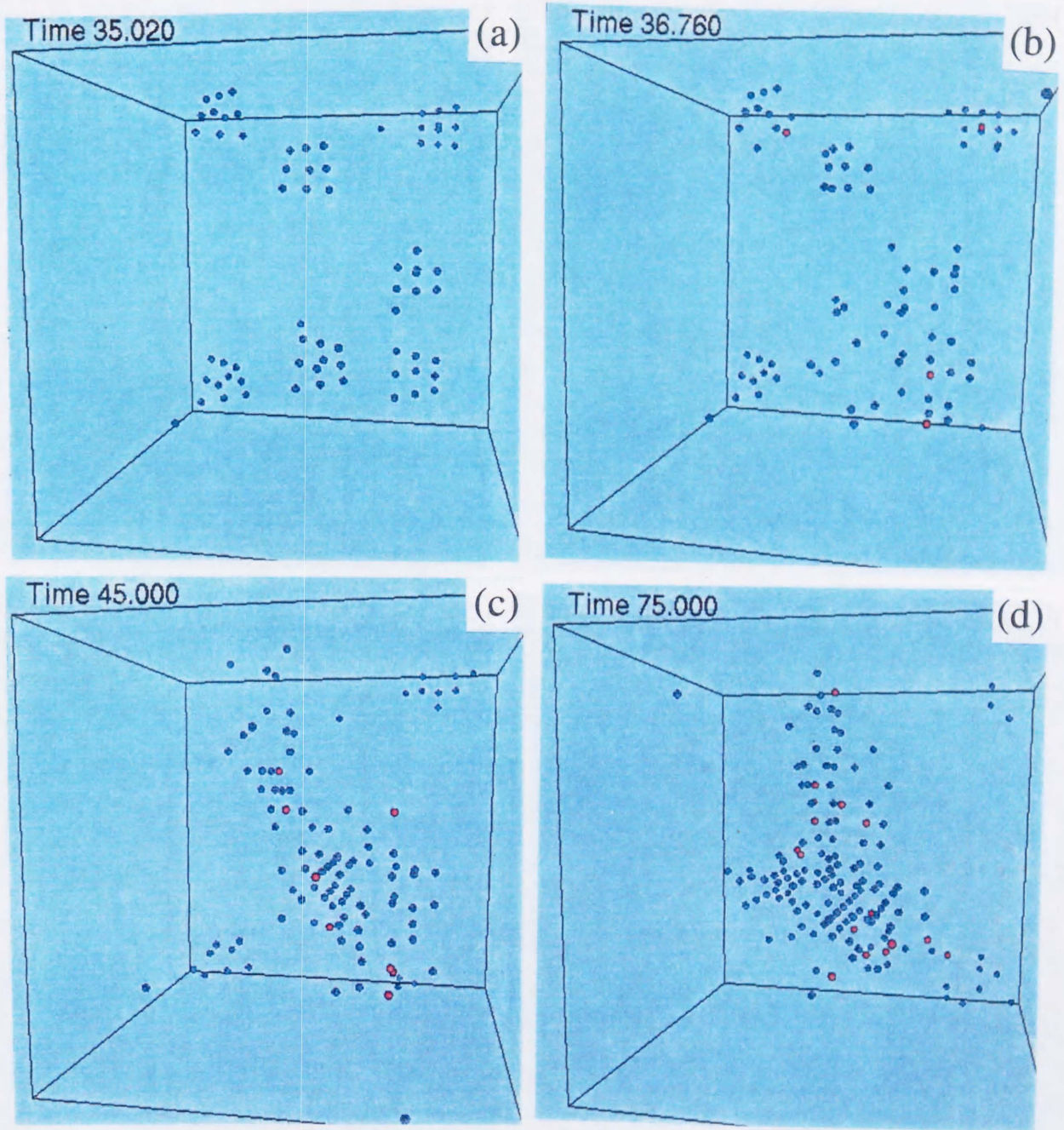


図4.4 10v-void を7個導入した結晶のMDシミュレーション結果

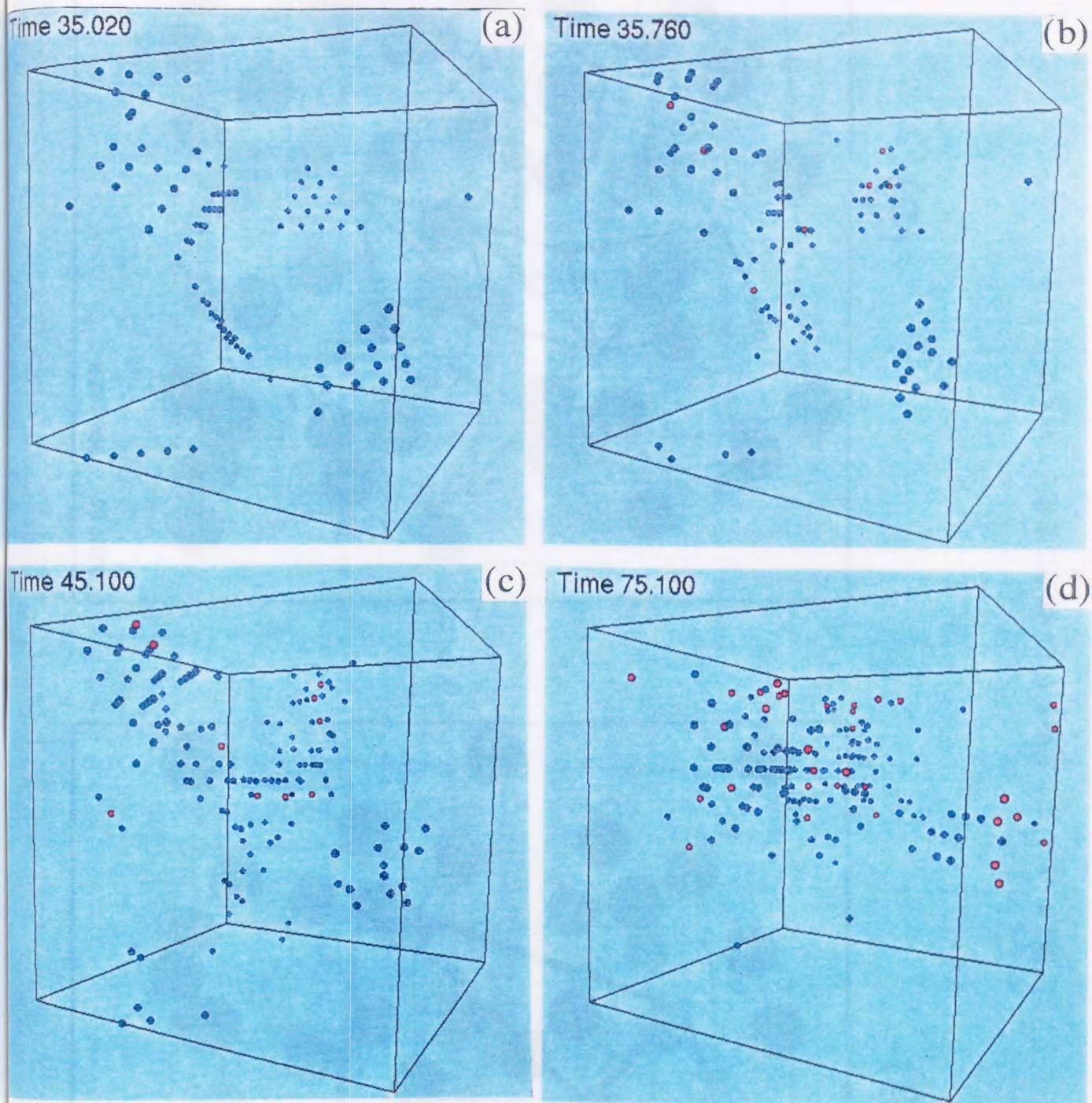
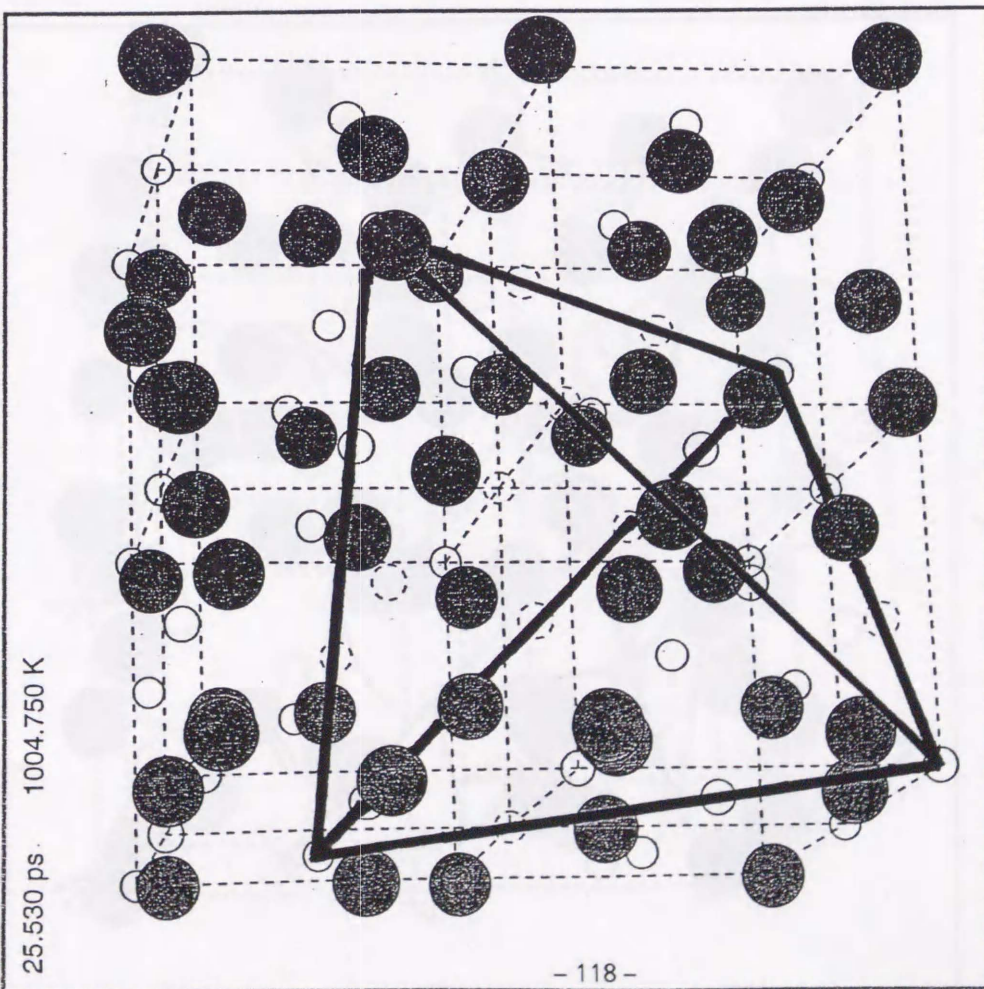


図4.5 15v-SFT を 7 個導入した結晶のMDシミュレーション結果

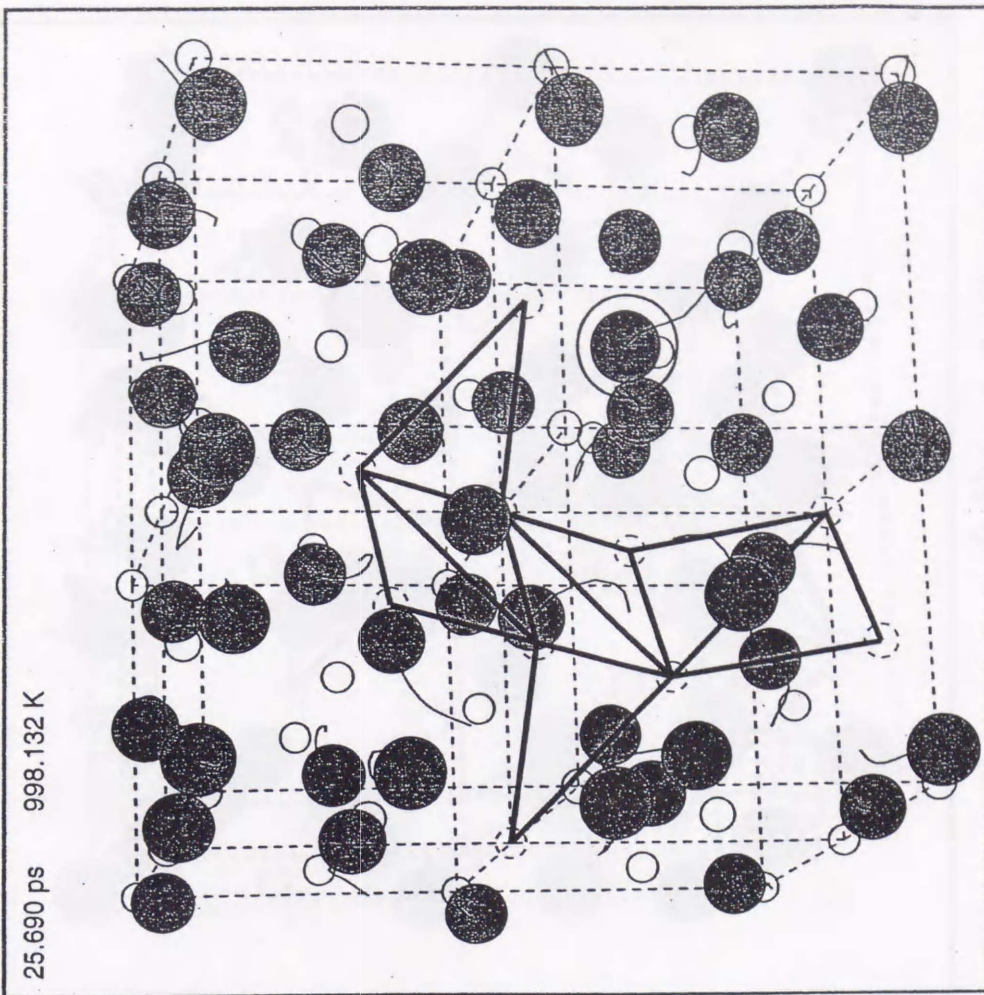


25.530 ps 1004.750 K



(a)

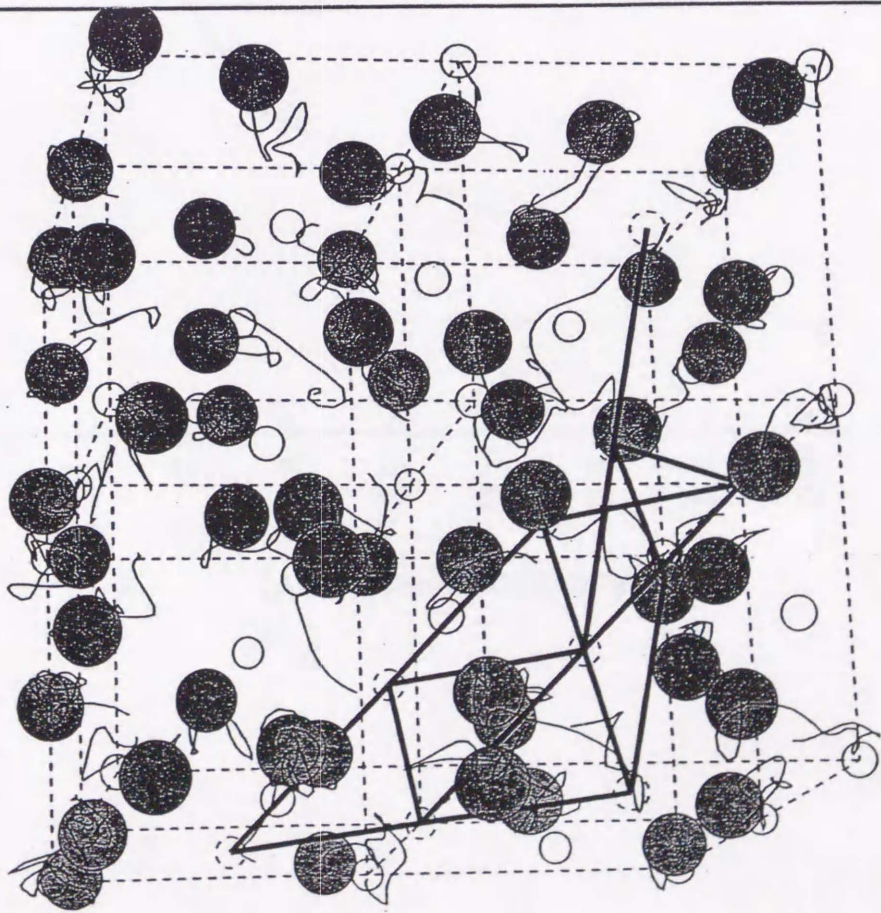
25.690 ps 998.132 K



(b)

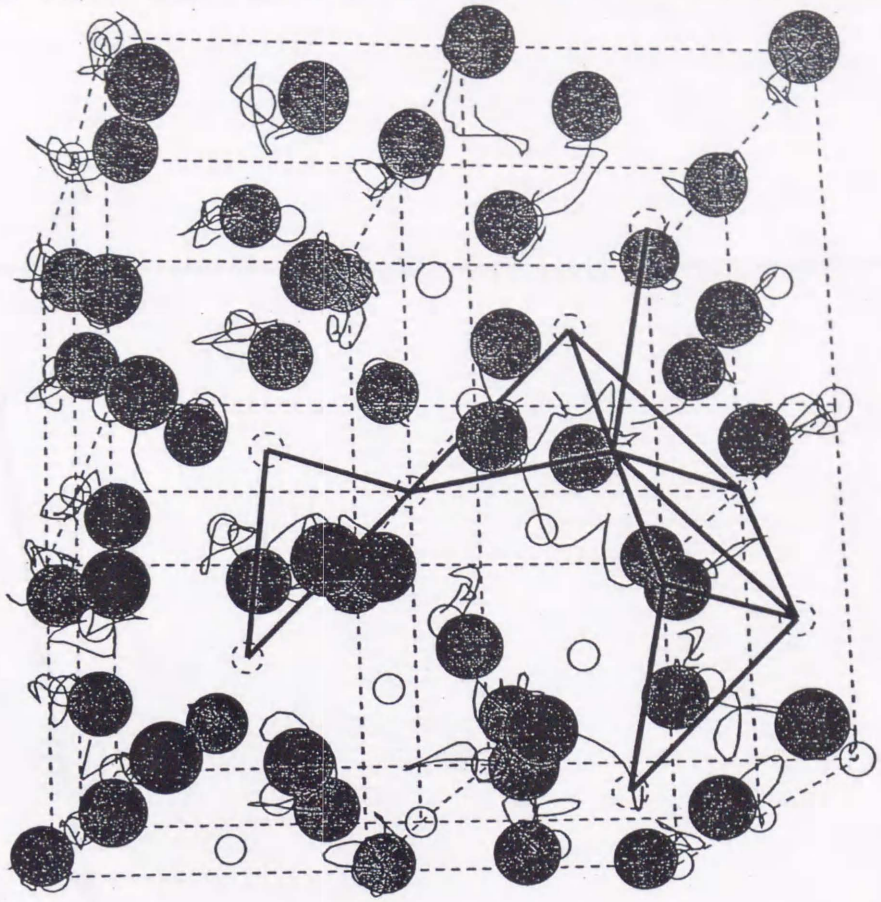
図4.6 10v-SFT が動きやすい構造に変化していく様子 (1)

26.330 ps 1021.115 K



(c)

26.580 ps 1015.233 K



(d)

図4.6 10v-SFT が動きやすい構造に変化していく様子 (2)

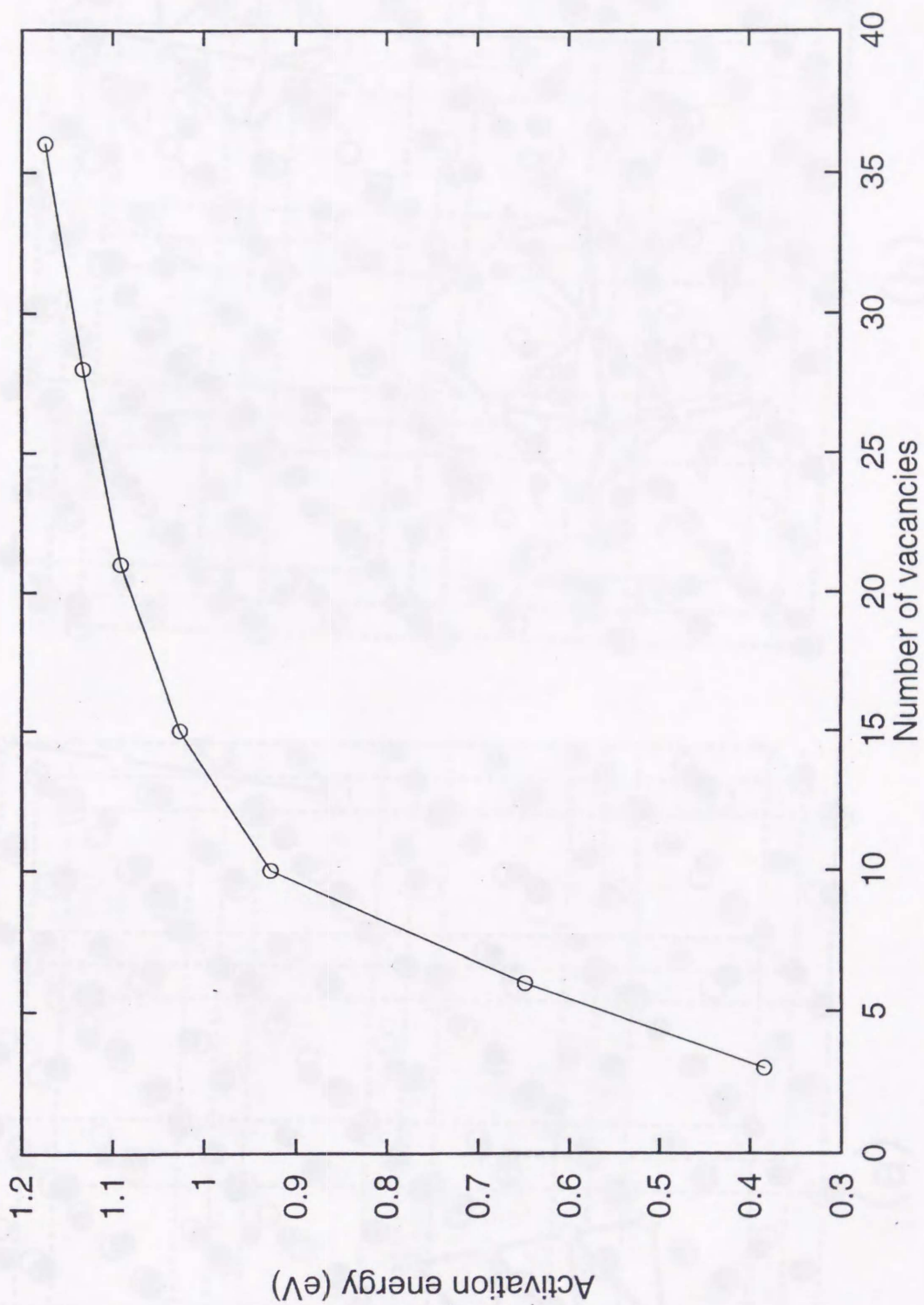


図4.7 最近接原子がSF<sub>6</sub>中にジャンプするために必要な活性化エネルギーをSF<sub>6</sub>のサイズに対してプロット

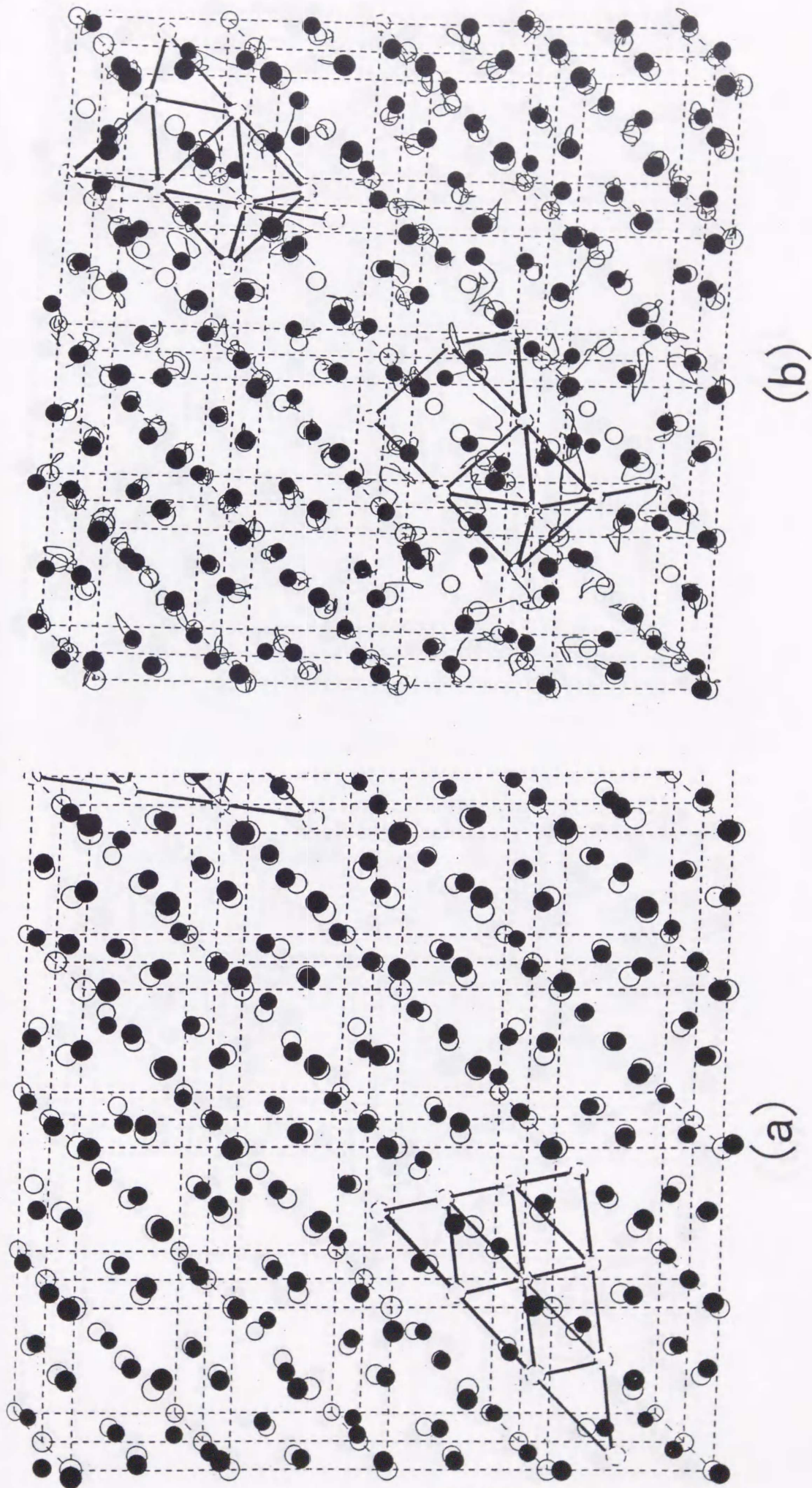
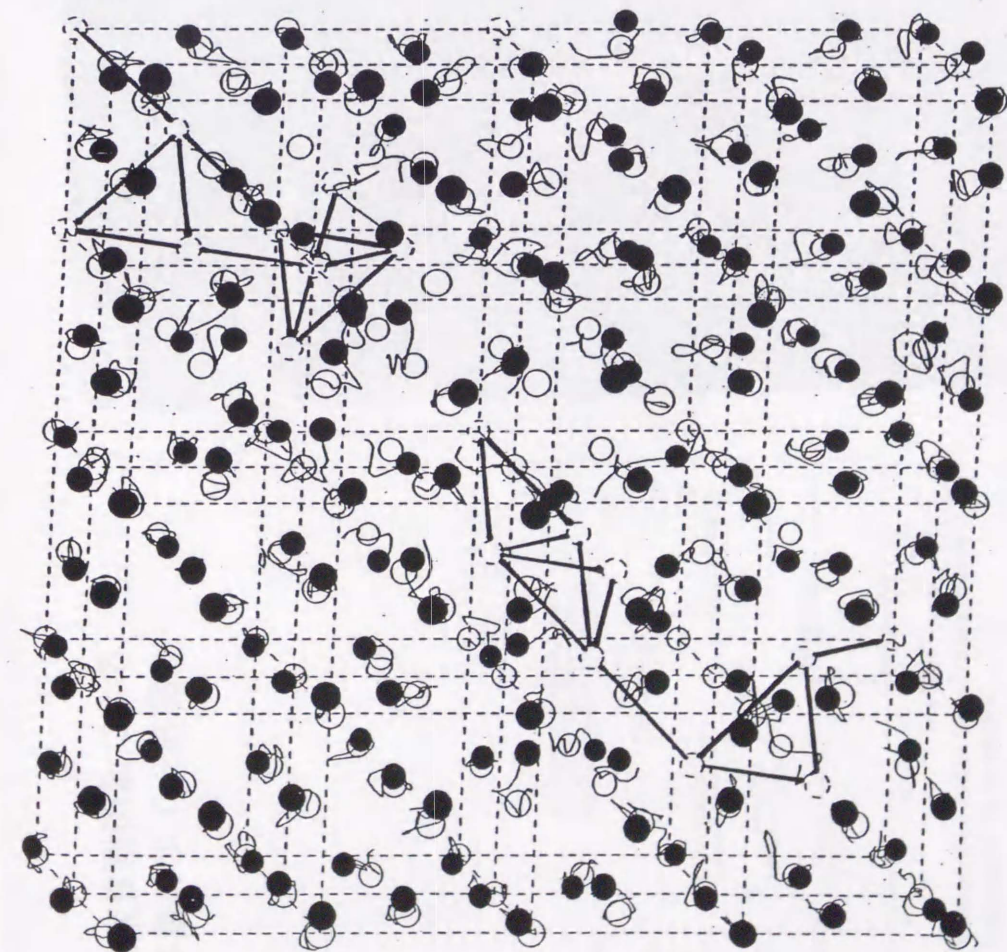
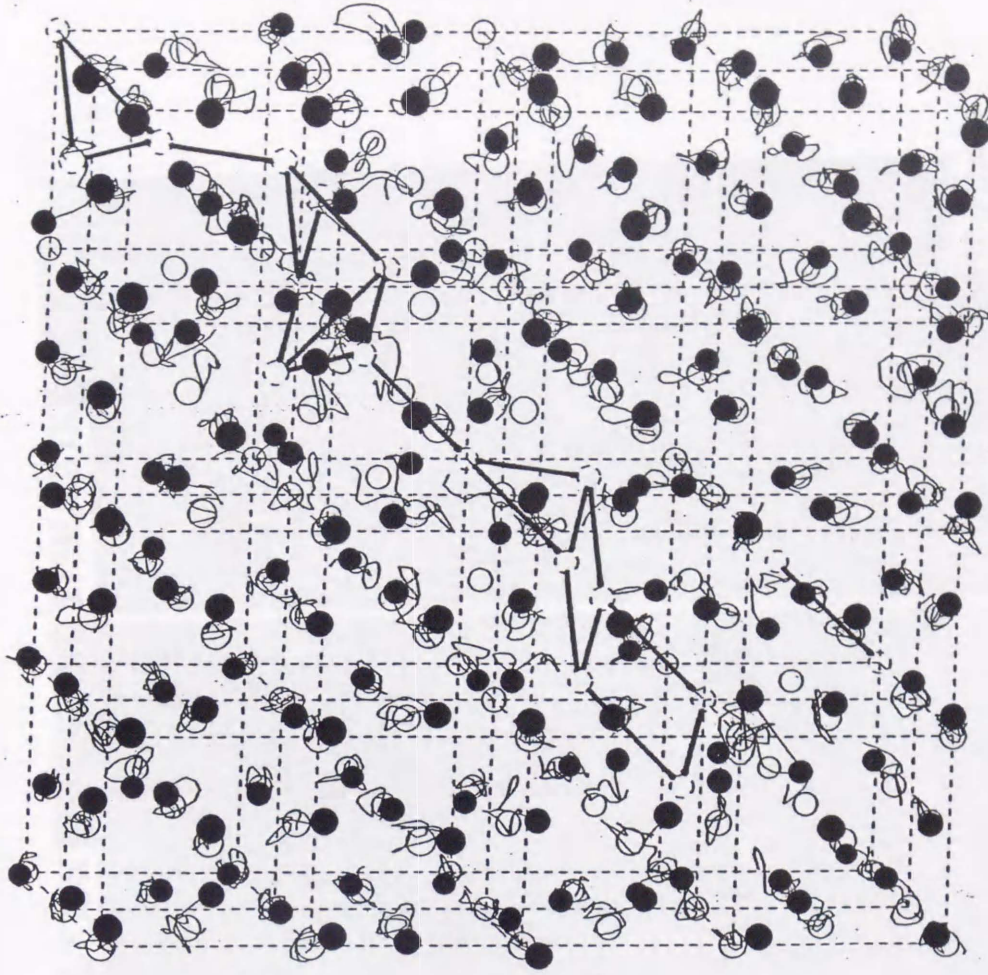


図4.8 十分高温においてはSF Tやポイドは紐状の構造に緩和する。この図のように二つの 10v-SFT が動きやすい紐状の構造に緩和して一つのクラスターに合体する。二つの 10v-SFT は集合体として移動する。(1)



(c)



(d)

図4.8 十分高温においてはSFTやボイドは紐状の構造に緩和する。この図のように二つの10v-SFTが動きやすい紐状の構造に緩和して一つのクラスターに合体する。二つの10v-SFTは集合体として移動する。(2)

温度変動照射による  
多量のボイド形成

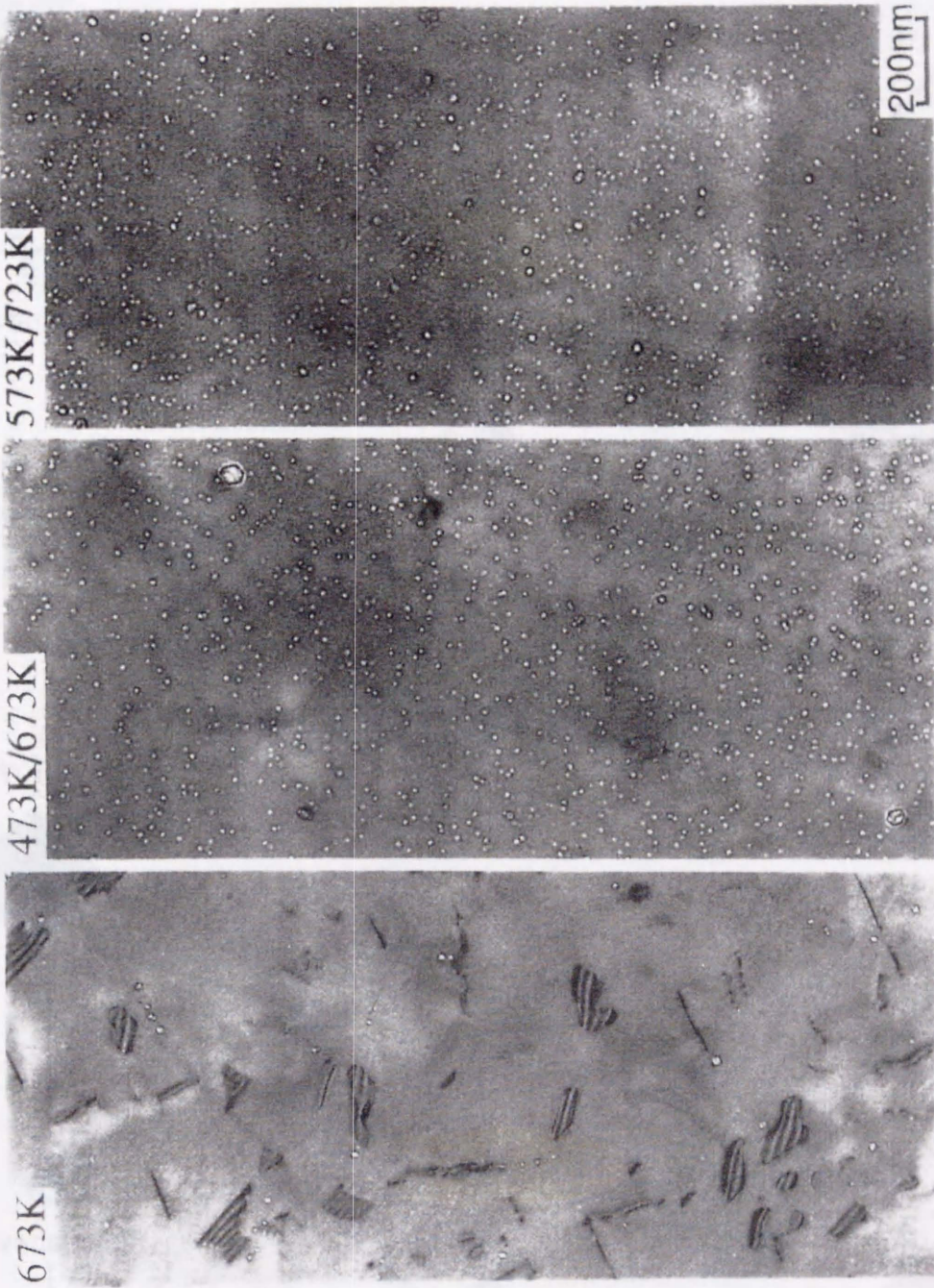


Fig. 4. Typical microstructures formed in Fe-16Cr-17Ni-0.25Ti at various temperature conditions denoted in the pictures.

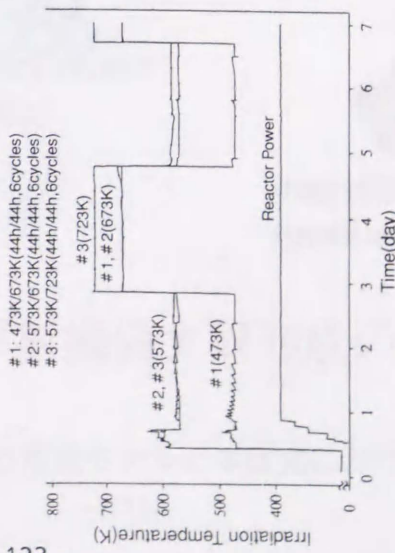
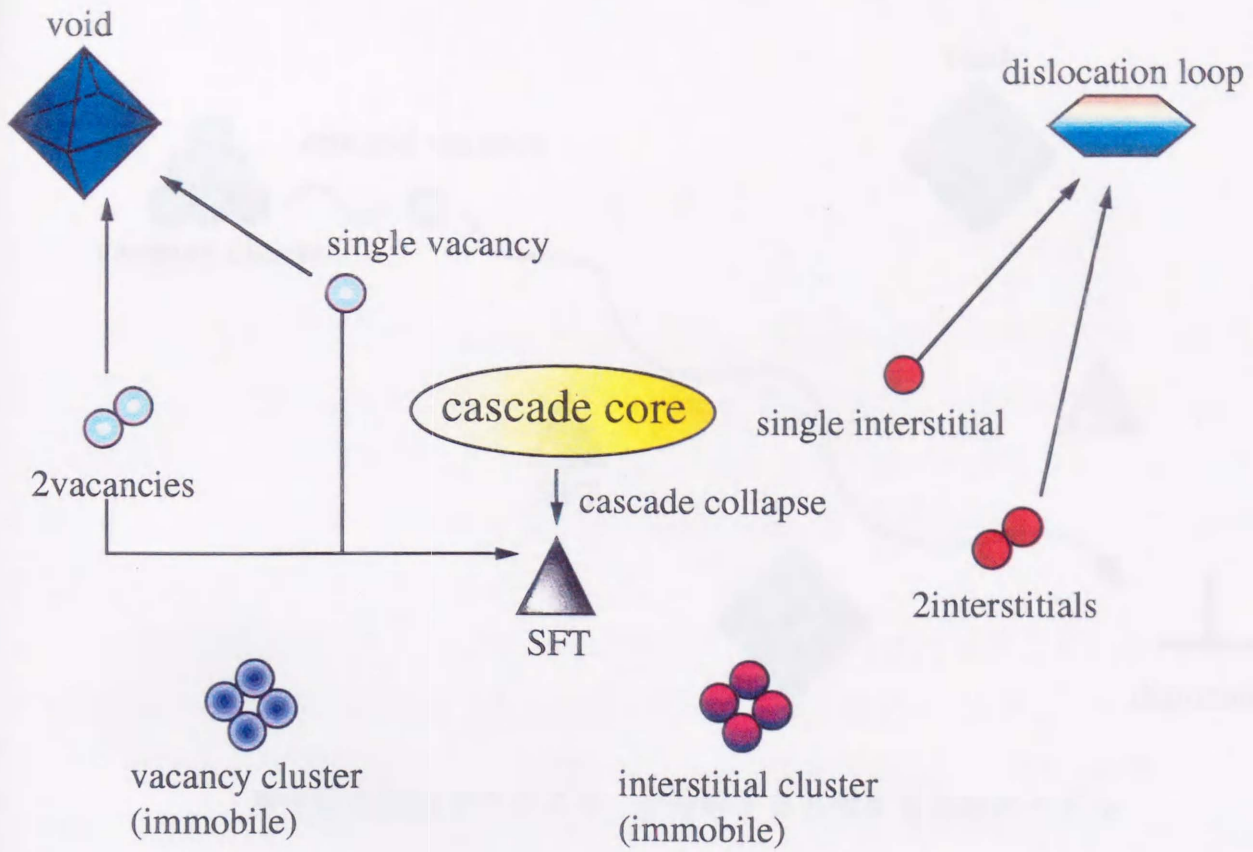


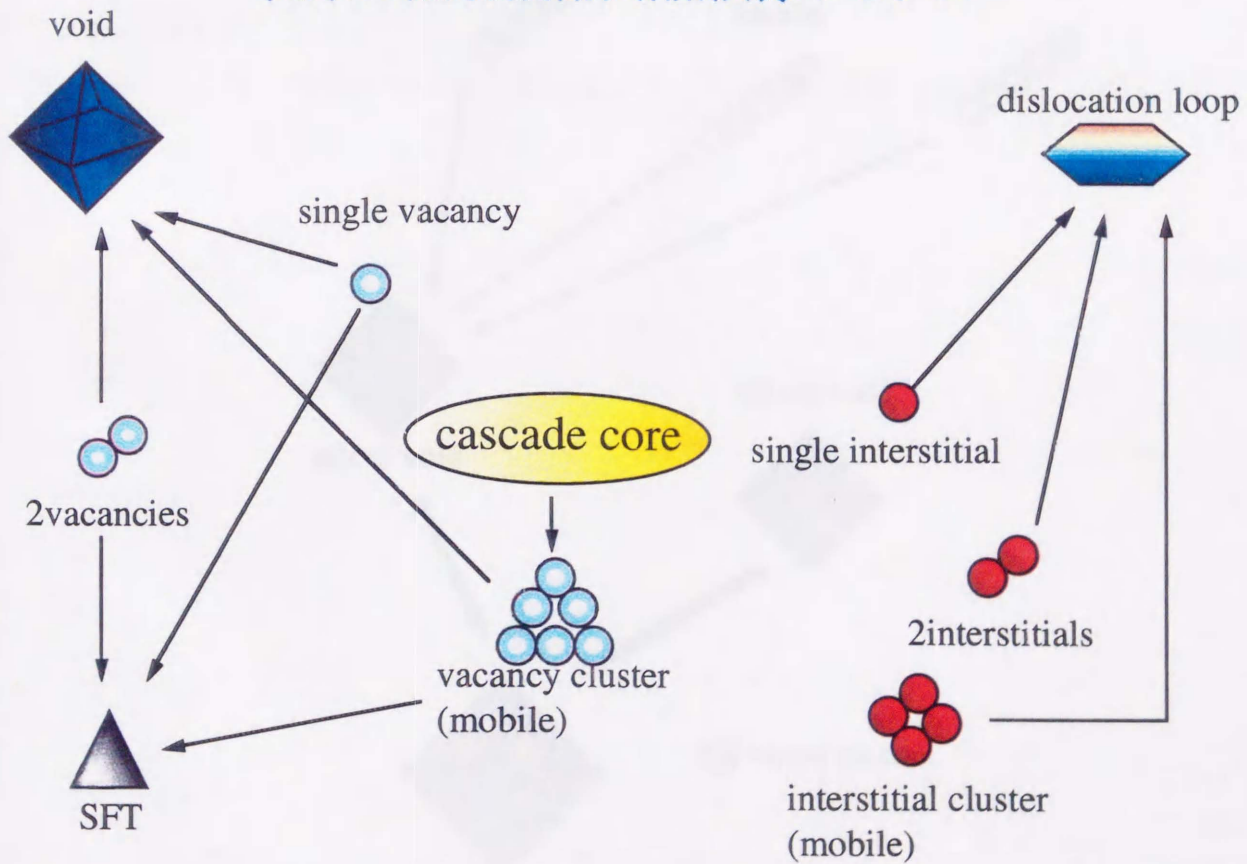
Fig. 1. Records of irradiation temperatures and reactor power at the beginning of the irradiation.

N. Yoshida et al. / Journal of Nuclear Materials 212-215 (1994) 471-475

図4.9 温度変動照射による多量のボイド形成[39]

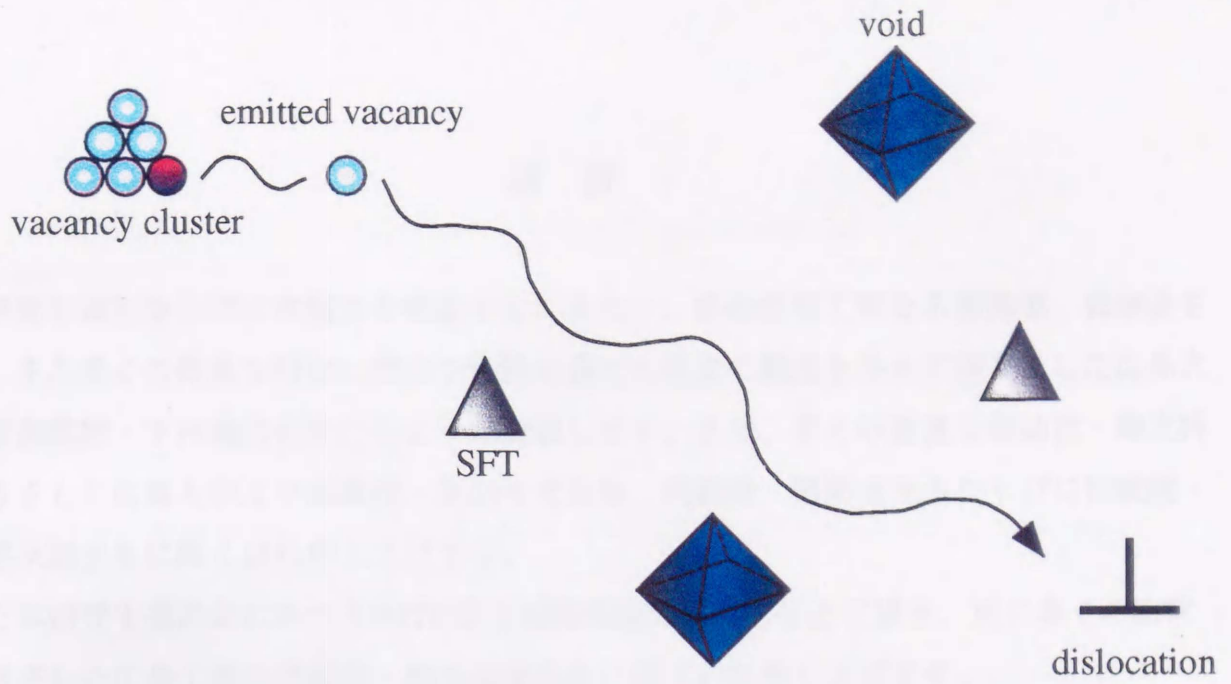


従来の照射損傷欠陥形成のモデル

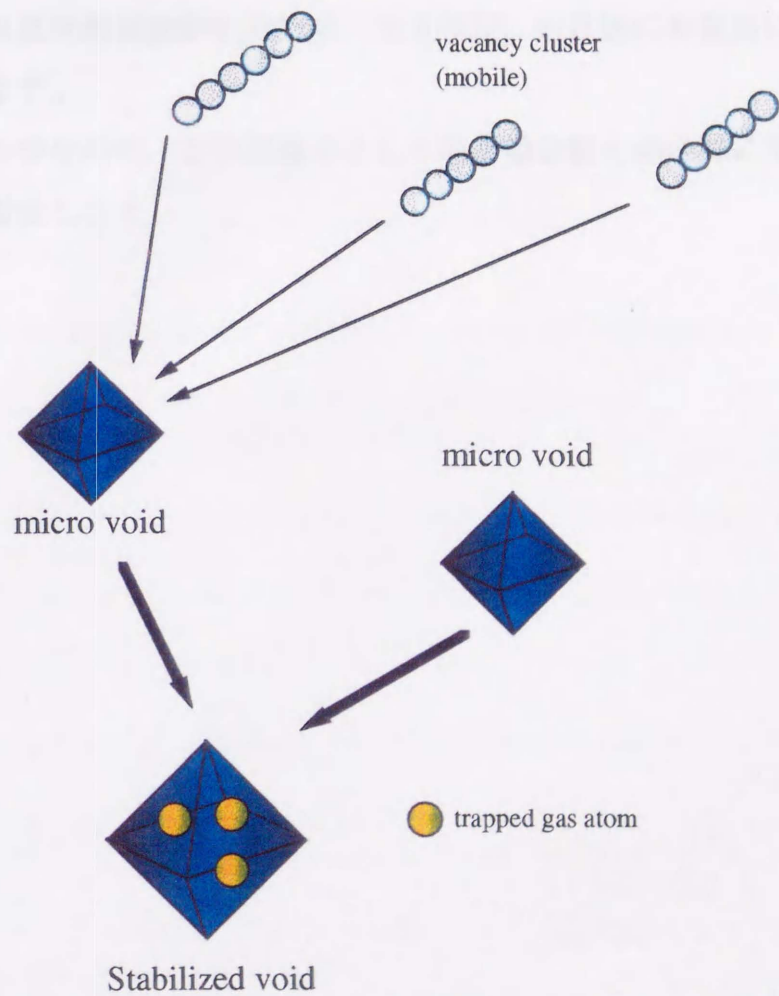


本研究における照射損傷欠陥形成のモデル

図4.10 従来の照射損傷欠陥の形成モデルと本研究におけるモデルの比較



原子空孔放出でクラスターが分解すると考える従来のモデル



マイクロボイドが移動して安定したボイドを形成するモデル

図4.11 ボイド成長モデルの概念図の比較



## 謝 辞

本研究を遂行ならびに本論文を執筆するにあたり、終始懇切丁寧なる御指導、御鞭撻を頂き、また多くの貴重な研究の機会や国際会議での発表の機会を与えて頂きました広島大学工学部教授・下村義治先生に心より感謝致します。また、多くの貴重な御助言・御支援を頂きました広島大学工学部教授・尾田年充先生、同教授・静間清先生ならびに同教授・中佐啓次郎先生に厚くお礼申し上げます。

また本研究を進めるにあたりJMTR温度制御照射の機会を与えて頂き、更に多くの助言を頂きました広島工業大学教授・桐谷道雄先生に厚くお礼申し上げます。

また、応用力学研究室助教授・山川浩二先生（現愛媛大学教授）、同福島博先生には多くの実験全般にわたり懇切な御指導を頂きました。JMTR中性子照射実験に関しては東北大学金属材料研究所附属材料試験炉利用施設（大洗施設）の皆様にお世話になりました。深く感謝の意を表します。

最後に、これまでの学生時代・工学部助手としての活動全般を全面的に支援して頂いた両親・家族に深く感謝致します。

1998年6月

向田一郎

## 研究業績リスト

1. Damage Evolution in Neutron-irradiated Cu during Neutron Irradiation  
I. Mukouda and Y. Shimomura  
J. Nucl. Mater. (1998) in press.
2. Computer simulation on the void formation in neutron-irradiated Cu and Ni at high temperature  
Y. Shimomura, I. Mukouda and K. Sugio  
J. Nucl. Mater. (1998) in press.
3. Atomistic processes of damage evolution in neutron-irradiated Cu and Ni at high temperature  
Y. Shimomura, I. Mukouda, K. Sugio and Ping Zhao  
Radiation Effects and Defect in Solid (1998) in press.
4. The influence of dynamical structural relaxation in point defect cluster on void formation in irradiated copper  
Y. Shimomura, I. Mukouda and K. Sugio  
J. Nucl. Mater. 251 (1997) 61-71.
5. The Effects of the Gas Atoms on the Formation of Voids in Neutron-irradiated Metals  
I. Mukouda and Y. Shimomura  
Sci. Rep. RITU A45 (1997) 29-35.
6. Impurity Atoms Responsible on the Void Formation in Quenched Pure Aluminum  
Y. Shimomura, I. Mukouda, Q. R. Chen and T. Diaz de la Rubia  
Mater. Trans. JIM 36 (1995) 413-419.
7. Experiments to examine the contribution of the gaseous atoms on the void formation in irradiated metals  
Y. Shimomura, I. Mukouda, M. Kiritani, S. Kojima and F. A. Garner  
J. Nucl. Mater. 212-215 (1994) 352-357.
8. Dependence of observed cascade defects on neutron spectrum and dose in Au and Ag irradiated with fission and fusion neutrons at low temperature  
H. Fukushima, Y. Shimomura, M. Kiritani, M. W. Guinan, H. Gerstenberg, I. Mukouda and T. Mitoma  
J. Nucl. Mater. 212-215 (1994) 154-159.
9. Visibility of small vacancy cluster of the size of 3 to 15 on structure images of high resolution TEM  
Y. Shimomura, I. Mukouda, S. Horiuchi and M. W. Guinan  
Comp. Aided Innov. of New Mater. II eds. M. Doyama et al. (1993) 673-676.
10. Void formation in neutron-irradiated Cu and Cu-alloys  
K. Yamakawa, I. Mukouda and Y. Shimomura  
J. Nucl. Mater. 191-194 (1992) 396-400.

11. Effects of low-temperature neutron irradiation on Tc of  $\text{LnBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$  (Ln = Y, La) and  $\text{La}_2\text{CuO}_4$   
I. Mukouda and Y. Shimomura  
Jpn. J. Appl. Phys. 30 (1991) 2744-2746.
12. Electron microscope observation of fabrics of the high-Tc Y-Ba-Cu-oxide  
Y. Kitano, I. Mukouda, Y. Komura, H. Fujii and T. Okamoto  
J. Electron Microsc. 36 (1987) 241-245.
13. Analysis of crystal structure of an Y-Ba-Cu-oxide  
Y. Kitano, K. Kifune, I. Mukouda, H. Kamimura, J. Sakurai, Y. Komura, K. Hoshino, M. Suzuki, A. Minami, Y. Maeno, M. Kato and T. Fujita  
Jpn. J. Appl. Phys. 26 (1987) L394.
14. Electron diffraction study of  $n/7\langle 123 \rangle$  diffuse scattering from  $\text{Ti}_{48.5}\text{Ni}_{51.5}$  alloy  
Y. Kitano, I. Mukouda, H. Tamura and Y. Komura  
Phil. Mag. B56 (1987) 579-591.