## 加速器結合型電子顕微鏡によるその場観察法の高度化と 材料劣化機構の解明

### Development of transmission electron microscopes on line with ion accelerators, and their application to materials degradation mechanism

阿部弘亨<sup>A)</sup>, Dongyue CHEN<sup>A)</sup>, 村上健太<sup>A)</sup>, 叶野翔<sup>A)</sup>, 大久保彰<sup>B)</sup>, 藤井克彦<sup>C)</sup>,

Hiroaki Abe <sup>A)#</sup>, Dongyue Chen <sup>A)</sup>, Kenta Murakami <sup>A)</sup>, Sho Kano <sup>A)</sup>, Akira Ohkubo <sup>B)</sup>, Katsuhiko Fujii <sup>C)</sup>

<sup>A)</sup> The University of Tokyo, <sup>B)</sup> JAEA, <sup>C)</sup> INSS

## Abstract

We have installed a TEM interfaced with an ion accelerator at HIT Facility in University of Tokyo. In this report, we briefly describe the facility and some results in simultaneous observations under ion irradiation in steel at elevated temperature.

Keyword: Ion Accelerator, In-situ TEM, Radiation damage, Displacement cascades

#### 1. 加速器結合型電子顕微鏡法の開発

加速器結合型電子顕微鏡はイオン照射による 組織変化のその場観察が可能な装置である。高エ ネルギーー次はじき出し原子の生成が可能な照 射場を用い、照射損傷に起因する材料特性変化の 機構論の解明を目的として、はじき出しカスケー ド損傷に起因した二次欠陥や照射誘起相変態の 直接その場観察が可能な、世界的に見ても稀有な 手法である[1-15]。最近では核融合炉材料など照 射過酷環境での材料挙動の評価手法として改め て注目され、新規装置の設置も複数のプロジェク トが進んでいる[8-15]。近年大きく進展した原子 レベルモデリングとの比較の観点からの活用が 望まれている。

本プロジェクト[16,17]では、HIT の MeV クラ スのタンデトロン型イオン加速器のビームライ ン BL7 を電子線構造測定室へ伸長し、同室に設 置した透過電子顕微鏡JEM 2000EX へ結合した。 このシステムは、現在利用可能な加速器結合型電 子顕微鏡で、かつその場観察実験が可能な装置の 中では、当該装置は ANL の装置と並んで最高エ ネルギーのイオン照射実験が可能な装置である。 システムの構成を図1に示す。また加速器側の室 および顕微鏡側の室におけるビームラインの外 観を図2に示す

本その場観察装置の開発では、以下の点を目標 とした。①イオン照射中に透過電子顕微鏡観察が 可能となるように、電子線とイオンビームの光軸 のなす角は小さく設計する;②加速器システムが 供給できる最高エネルギーのイオンビームを入 射可能な設計にする;③入射するイオンビームの フラックスは、一つのイオンと材料の相互作用の 影響が観察可能な低密度から1日で 0.1 dpa 以 上のはじき出し損傷を与える高密度まで可変す る;④カスケード損傷の二次生成物の観察を可能 にするために通常ビデオレート程度の CCD カメ ラを搭載する。

電子顕微鏡内に入射したイオンビームは、内部 で不要な照射をすることを避けるため、導入管の 内部を通って試料位置近傍まで導かれる。導入の 直径は段階的に小さくなり、最終的にφ2.5のビ ームが試料位置へ照射されることになる。導入管 は基本的に地絡されるが、一部は電気的に区分さ れており、電流検出のために使用することができ る。電子顕微鏡への入射部分の外観を図3に示す。

観察用 CCD カメラとしては、オリンパス製 MegaView 2をTEM の蛍光板のやや上方に設置 した。解像度は 1376×1032 ピクセル、レームレ ート最大 25 fps であり、照射欠陥クラスタの観察 に適する。ただし高倍率での撮影には不向きであ る。また平成 29 年度には電子顕微鏡の筐体にボ トム型の CCD カメラ(Gatan 社製 Orius SC200) を新規に設置した。このカメラは 2K×2K ピクセ ル、ダイナミックレンジ 14bit の性能を有し、高 分解能観察に優れる。

#### 2. その場観察実験

これまでの経験からカスケードに相当する欠陥クラスタが観察される金を用いて、2 MeV Fe<sup>2+</sup> イオン照射その場観察実験を行った。照射開始直

後より、直径数~数 10nm 程度の欠陥クラスタが 形成され、やがて消滅する過程が観察された。図 4には欠陥クラスタの形成、および図5には欠陥 クラスタの消滅の様子を示す。欠陥クラスタの形 成は瞬時に生じるのに対して、消滅は比較的ゆっ くりと進行した。欠陥クラスタの形成効率はイオ ンフラックスの15%程度で、実験範囲では温度 依存性はなかった。1 フレームにひとつの欠陥ク ラスタが発現することもあるが、図4のように複 数の欠陥クラスタが比較的近い位置に同時に現 れることもある。これらの特徴から、その場観察 される欠陥クラスタは、カスケード損傷によって 形成された空孔型欠陥が短距離拡散によって集 合し、歪コントラストを誘起したと考えられる。 また、欠陥クラスタは不安定であり寿命を有した。 この寿命は高温ほど短い。ただしサイズが断続的 に減少するという特徴が明らかになった。図 5(b) で形成された欠陥クラスタは(c)までは殆ど変化 せず、次フレームの(d)ではサイズが半分程度に減 じた。このように、照射下における欠陥クラスタ は数回の急激なサイズの減少を経て消失するこ とが多い。この挙動は、欠陥クラスタの近傍に形 成されたカスケード損傷から放出された多数の 格子間原子と相互作用が断続的に生じていると 考えられる。

さらに、ステンレス鋼に対し、同様に 2 MeV Fe<sup>2+</sup>イオン照射その場観察実験を 300℃および 400℃において行った[18]。図 6 に微細組織の変 化の様子を示す。Au と同様にはじき出しカスケ ードに相当する欠陥クラスタが観察された。 300℃照射では欠陥クラスタ数密度は照射量に伴 って増加し、徐々に飽和に至る傾向を示した。一 方で、400℃照射では生成効率が低く、また数密 度は照射の初期に最大値に至ったのち減少する 傾向を示した。この違いは、欠陥クラスタの消滅 に寄与する母相中の点欠陥密度とその移動度と の関係として整理している。

3. まとめ

東京大学HITのタンデトロン加速器を使用 し、透過電子顕微鏡と結合したその場観察装置を 開発した。この装置では、透過電子顕微鏡内照射 その場観察が可能な装置としては、世界最高レベ ルのエネルギーのイオン照射が可能である。この 装置を使用して、面心立方金属のモデル合金であ るAuおよびSUSに対してイオン照射下でのその 場観察実験を行い、照射後実験では観察できない 欠陥の形成および消滅の動的な過程を観察する ことに成功した。

尚、本研究ではJAEAに設置の加速器結合型電 子顕微鏡も用いることとしているが、本年度は装 置の立ち上げ整備作業を実施した。

参考文献

[1] C. W. Allen et al, Nucl. Instrum. Meth. B 40-41 (1989) 553-556.

[2] C.W. Allen, Ultramicroscopy 56 (1994) 200-210.

[3] R. M. Hengstler-Eger et al, J. Nucl. Mater. 423 (2012) 170-182.

[4] Y. Idrees et al, J. Nucl. Mater. 433 (2013) 95-107.

[5] Y. Idrees et al, J. Nucl. Mater. 441 (2013) 138-151.

[6] L. F. He et al, J. Nucl. Mater. 456 (2015) 125-132.

[7] Y. Serruys et al, Nucl. Instrum. Meth. B 240 (2005) 124-127.

[8] Y. Serruys et al, C. R. Physique 9(2008) 437-444.

[9] L.P. Guo et al, Nucl. Instrum. Meth. A 586 (2008) 143–147.

[10] M-L. Lescoat et al, J. Nucl. Mater. 428 (2012)176-182.

[11] C. Sabathier et al, Nucl. Instrum. Meth. B 326 (2014) 247-250.

[12] K. Hattar et al, Nucl. Instrum. Meth. B 338 (2014) 56-65.

[13] C. Chisholm et al, Materials Transactions 55 (2014) 418-422.

[14] D. Bufford et al, Chemical Communications 50 (2014) 7593-7596.

[15] J. A. Hinks et al, Nucl. Instrum. Meth. B, 267, 3652-3662, 2009.

[16] K. Murakami, et. al., Nucl. Instrum. Meth.B, 381 (2016) 67-71.

[17] K. Murakami, et. al., Proc. ICAPP 2017, No. 17288

[18] D.Y. CHEN et al, Acta Materialia (2018) submitted.

# [H27-7]



図1 その場観察ビームラインの概要



図2 その場観察ビームラインの外観 左:重イオン加速器兼照射室側 右:電子線構造測定室側 図3 電子顕微鏡/加速器の結合部

平成 29 年度原子力機構施設利用共同研究 連携重点研究 成果報告書









図 5 照射下での Au の欠陥クラスタ消滅挙動 図 6 300℃にて 2MeV Fe<sup>2+</sup>イオン照射した SUS 中の欠陥クラスタ形成挙動