

[H27-07]

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 in-situ observation technology in transmission electron microscopes on line with ion accelerators, and its application to materials degradation mechanism

阿部弘亨^{A)}, 村上健太^{A)}, 叶野翔^{A)}, 大久保彰^{B)}, 藤井克彦^{C)},

Hiroaki Abe^{A) #}, Kenta Murakami^{A)}, Sho Kano^{A)}, Akira Ohkubo^{B)}, Katsuhiko Fujii^{C)}

^{A)} The University of Tokyo, ^{B)} JAEA, ^{C)} INSS

Abstract

We have recently installed a TEM interfaced with an ion accelerator at HIT Facility in University of Tokyo. In this report, we briefly describe the facility set-up and its performance especially in microscopic simultaneous observations under ion irradiation in gold at elevated temperature, as well as its future applications to nuclear materials development.

Keyword: Ion Accelerator, 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ビームを透過電子顕微鏡試料室へ輸送し照射その場観察を行う装置であり、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観察が可能な、世界的に見ても稀有な装置である[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。

本プロジェクトでは、照射影響の機構論的解明に資する実験的手法として、高エネルギー一次はじき出し原子 (PKA) 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的解明を目的とする。そこで、MeV クラスのイオン加速器に透過電子顕微鏡を結合したその場観察装置を構築し、原子炉材料、核融合炉材料の照射下安定性を考察することとした。

本プロジェクトにおける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ビデオレート程度の CCD カメラを搭載する。

その場観察システムは、東京大学 H I T の B L 7 を延長して隣接する電子線構造測定室へイオンビームを輸送し、東京大学が所有する透過電子顕微鏡 JEM 2000EX を分解して、イオンビームを入射可能な試料室を新たに組み込んだ。イオンビームを入射可能な試料室を新たに製作してポールピースと集束レンズの間に十分な空間を作り、ポールピースの上部から 30° でイオンビームを入射する構造とした。

電子顕微鏡の設置室へイオンを導くには、ビーム

を水平および垂直方向に変更させる必要がある。H I T のタンデントロンの高圧側の分析電磁石は、電子顕微鏡設置室に近い B L 7 に対して 32 MeV amu の偏向性能を有している。そこで、B L 7 の終端から電子顕微鏡までビームラインを延長するに当たり、新規に設置した偏向電磁石は同等の性能とした。可能な限り高フラックスなイオンビームを輸送するために、偏向電磁石はエッジフォーカスが最大となるように偏向経路を設計した。

観察用 CCD カメラとして MegaView 2 (オリンパス) を採用した。このカメラの視野は、JEM-2000EX のフィルム位置とほぼ対応しており、解像度は 1376 × 1032 である。フレームレート最大 25 fps であり、照射欠陥集合体の観察に適している。ただし高倍率での撮影には向いていない。

本プロジェクトで構築したその場観察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。加速器から射出されたイオンは高圧端側の分析電磁石によって左 30° に偏向して B L 7 へと入射する。B L 7 の従来の終端は RBS 用のチャンバであったが、このチャンバのフランジを加工して、ビームラインの延長部分を取り付けた。始めに水平偏向電磁石によって更に左へ 45° 偏向させて、加速器を設置している重イオン加速器兼照射室から電子顕微鏡を設置している電子線構造測定室へとイオンビームを輸送する。水平偏向部のストレートポートには固定式のファラデーカップを取り付ける。偏向部の出口位置には挿入式のファラデーカップを取り付ける。電子線構造測定室へと入射したイオンビームは垂直偏向電磁石によって下向きへ 60° 偏向され、その後電子顕微鏡へ向かって直線的に輸送される。ビーム位置の微調整のために、垂直偏向電磁石と電子顕微鏡の間には、1 組の静電レンズおよび X Y 方向に各 2 組の静電ディフレクタが設けられている。ビームラインの終端近傍には挿入式のファラデーカップを設けており、ビームラインの終端および電子顕微鏡の入射部にはそれぞれゲートバルブを設け、その間を溶接ベローズで接続している。機械的な振動を抑制するため、ビームラインは 3 台のスパタイオン

[H27-07]

ポンプで排気する。上記の構成のうち、水平偏向電磁石用電源、静電レンズ、静電ディフレクタおよび高圧電源、そしてスパッタイオンポンプ 2 台は東京大学で以前所有していた 400 kV 静電加速器に使用されたもの等を利用した。

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、導入管の内部を通し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 $\phi 2.5$ 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、一部は電氣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。

加速器と電子顕微鏡の位置合わせを精緻に行い、最終的にカプトンフィルムにイオンビームと電子ビームの焼き目を付け位置を決め、ファラデーカップでビームプロファイルを確認した。そして電子顕微鏡試料上で約 $\phi 2$ の領域にイオンビームの入射を確認した。この条件でのビームプロファイルを測定し図 4 に示す、ほぼ均一なイオンビームが得られていることを確認した。

2. その場観察実験

当該装置を用いてその場観察実験を行った。

実験に使用した試料は Zr-1.8 at. %Nb 合金である。被覆管形状の材料を軸方向に二つに切断し、軸方向に 50 % 冷間圧延し、853 K $\times$ 24 時間焼鈍により板材を得た。これから $\phi 3$ ディスクを打ち抜き、機械研磨を施した後、Tenupol-5 を用いてテヌポールにて薄膜化した。試料温度 573 K にて 2.0 MeV Fe イオンを照射した。イオンビームフラックスは 5×10^{14} ions/cm² として、これは 4×10^{-5} dpa/s に相当する。

図 5 に明視野法で観察した組織の照射時間依存性を示す。照射前に観察されている楕円形のコントラストは β -Nb 析出物である。これらのコントラストについては、 5×10^{18} ions/cm² (約 0.4 dpa) までの照射で有意な変化は無く、析出物は照射下で安定であることを示唆している。一方、母相においては照射に伴って微細なドット状のコントラストが高密度に形成された。これらはイオン照射に伴い導入された点欠陥がクラスタ化し、転位ループなどとして観察されたことを示唆している。観察時間とともに観察条件(回折条件)が徐々に変化し、ドット状コントラストの密度やサイズの測定には至っていない。

3. まとめ

東京大学 H I T 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。この装置は、照射その場での透過電子顕微鏡観察が可能なその場観察装置としては、世界最高レベルのエネルギーでイオンを入射できる。この装置を使用して、ジルコニウム・ニオブ合金系の新型燃料被覆管模擬材における β -Nb 相の照射下安定性評価を実施した。0.4 dpa 程度まではじき出し損傷に対して、被覆管の製造過程で形成した大きなニオブ析出物のサイズはほとんど変化せず、安定に存在し続けることが明らかになった。このことは、ニオブ添加に起因する耐食性が照射によって影響を受けにくいことを示唆している。また、実験の成功に至る試行錯誤の過程を経て、新たなその場観察装置の特性に習熟し、原子モデリングと対応可能なさまざまな照射下その場観察実験を行うための技術基盤を構築できた。

参考文献

- [1] C. W. Allen et al, Nuclear Instruments and Methods in Physical Research B 40-41 (1989) 553-556.
- [2] C.W. Allen, Ultramicroscopy 56 (1994) 200-210.
- [3] R. M. Hengstler-Eger et al, Journal of Nuclear Materials 423 (2012) 170-182.
- [4] Y. Idrees et al, Journal of Nuclear Materials 433 (2013) 95-107.
- [5] Y. Idrees et al, Journal of Nuclear Materials 441 (2013) 138-151.
- [6] L. F. He et al, Journal of Nuclear Materials 456 (2015) 125-132.
- [7] Y. Serruys et al, Nuclear Instruments and Methods in Physics research Section B 240 (2005) 124-127.
- [8] Y. Serruys et al, C. R. Physique 9(2008) 437-444.
- [9] L.P. Guo et al, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 586 (2008) 143-147.
- [10] M-L. Lescoat et al, Journal of Nuclear Materials 428 (2012) 176-182.
- [11] C. Sabathier et al, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 326 (2014) 247-250.
- [12] K. Hattar et al, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research 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, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, 267, 3652-3662, 2009.

[H27-07]

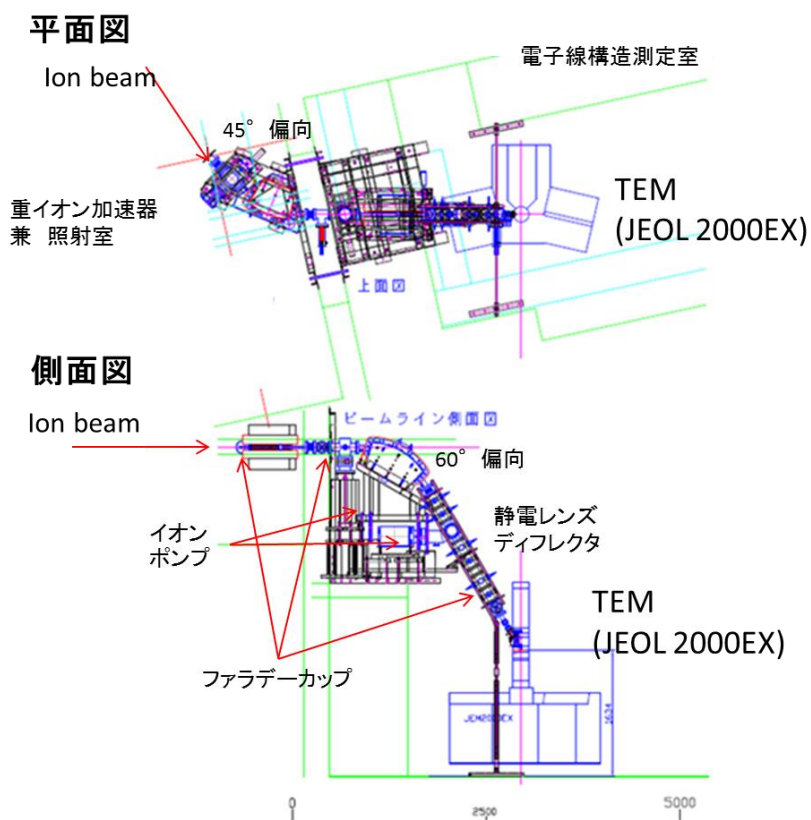


図 1 その場観察ビームラインの概要

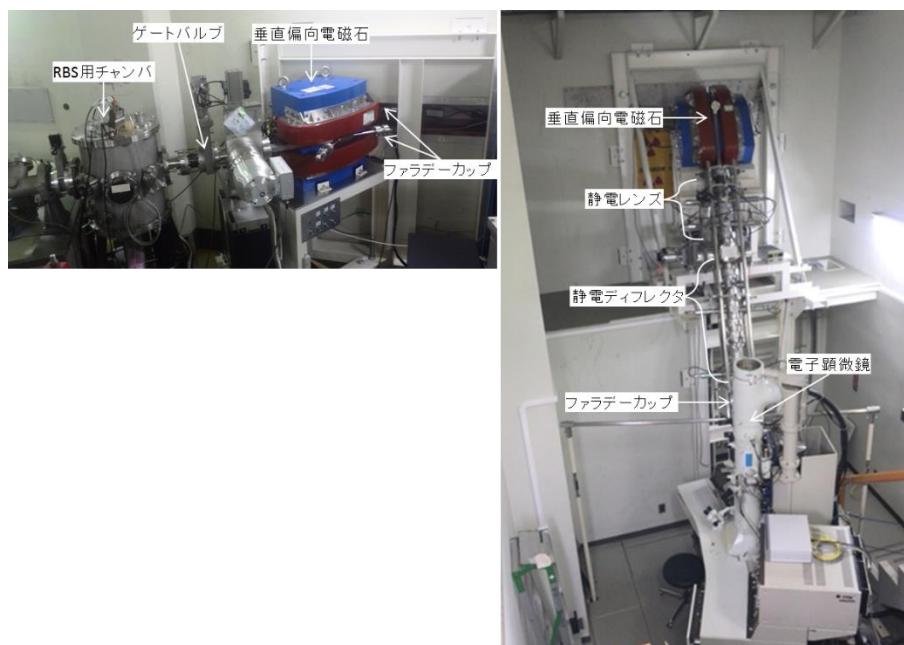


図 2 その場観察ビームラインの外観

左：重イオン加速器兼照射室側 右：電子線構造測定室側

[H27-07]

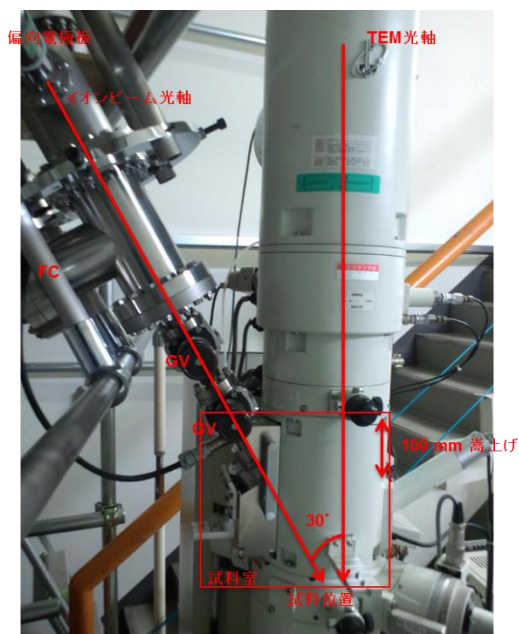


図 3 ビームラインと電子顕微鏡の接合部の外観

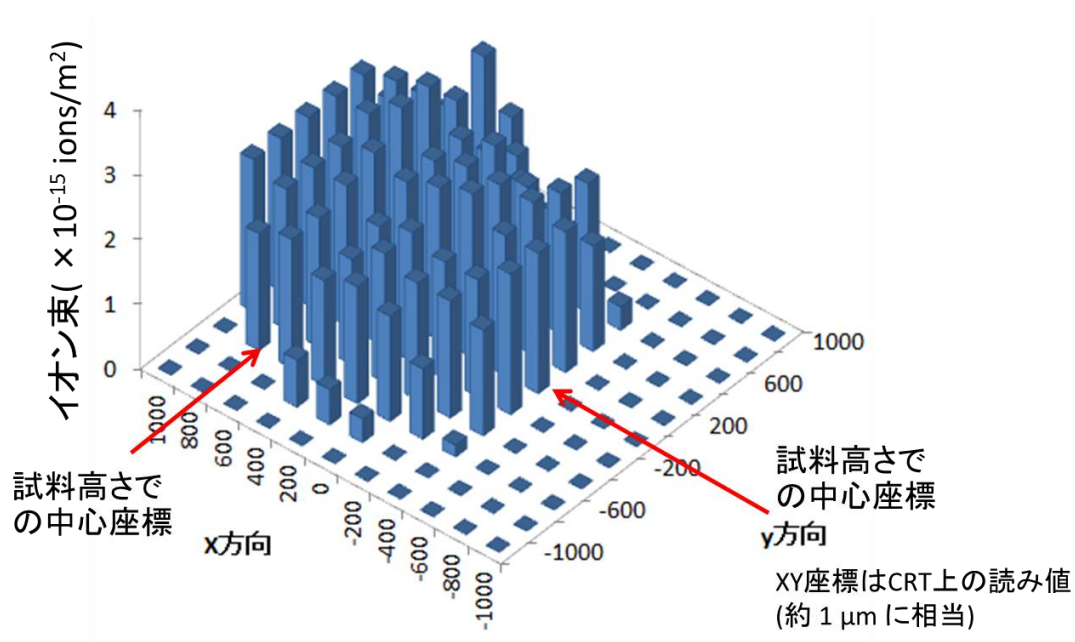


図 4 試料位置におけるビームプロファイル

ファラデーカップ (φ0.21) 付き試料ホルダを用いて、Y 軸方向に 22° 回転させて測定した。

[H27-07]

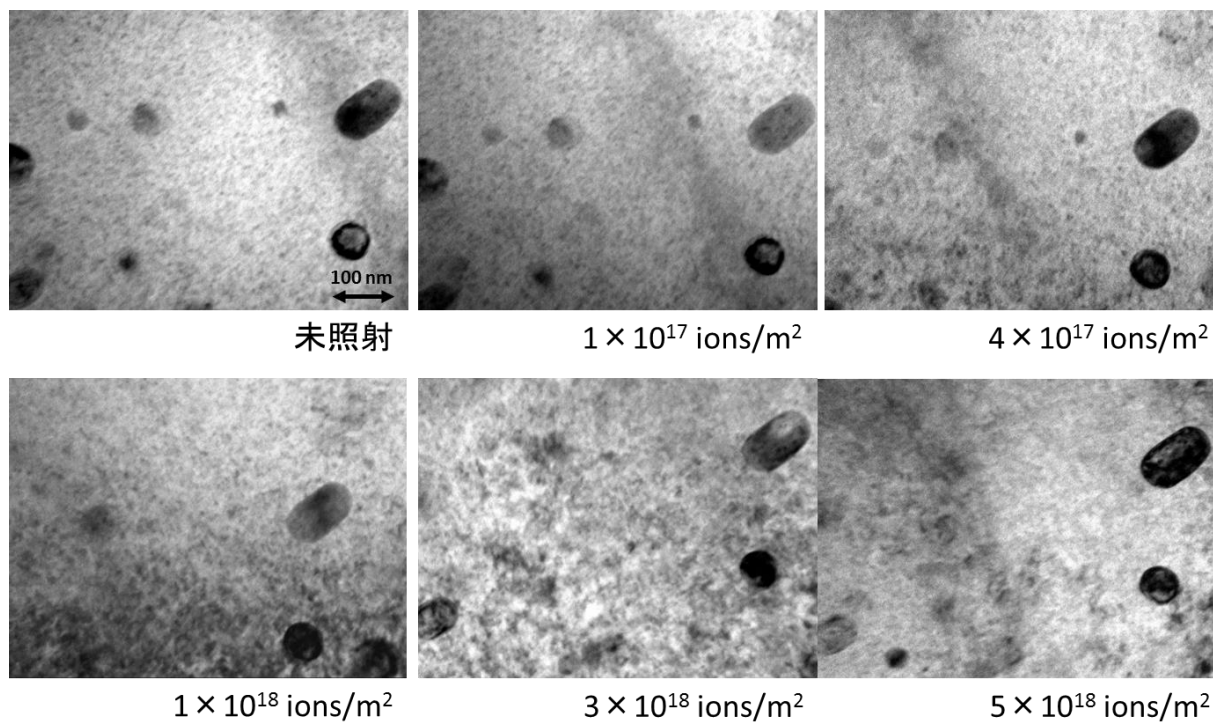


図 5 Zr-1.8Nb 合金の照射その場観察結果