照 射 損 傷

桐 谷 道 雄*

1. はじめに——照射損傷研究の性格

照射損傷の研究においてはその目的がいかにあれ、入射粒子の材料構成原子への衝突にはじまる初期損傷から最終的な損傷構造発達までの過程を一貫して理解することが望まれる。その間に介入する多様な要素過程を考えれば、この分野が極めて総合的な研究分野であることが明らかである。例えば、初期損傷における点欠陥の形成過程、その後の反応の主役をなす各種点欠陥の基本的動的行動、点欠陥と溶質原子との相互作用、あらゆる種類の構造欠陥と点欠陥の相互作用反応、合金の場合には析出、相分離や規則度変化、物によっては非晶質化や結晶化など、あらゆる種類の過程が現象の要素過程として介入してくる。従って照射損傷研究の経過なり歴史は他の欠くことのできない事象の解明と対になって進んできたと言ひ得る。これらの要素過程を分析し、それに含まれる各種反応の素過程を抽出すること、および逆の方向ではこれら素過程から出発して要素過程を構成し、要素過程の総合的な組合せから損傷現象を全体として構築することが必要である。これに照射による材料の機械的性質をはじめとする物性変化をもその研究対象として含ませるとき、照射効果の研究がいかに広い研究分野を包括しているかが理解できる。

このようにこの研究分野に原理的に要請される広範な守備範囲に加えて最近具体的に要請のある核融合炉壁材料の開発をも組入れた場合、数ページでその進歩を分析し展望を行うことは筆者の能力を越えている。ここでは筆者の近辺でのここ 10 余年をふりかえり、私見を加えるに止めよう。

2. 我が国における照射損傷研究の足どり

まず日本金属学会の春秋の講演大会における照射効果セッションの講演数の推移をみてみよう。10 年前の昭和 52 年頃は全講演数の 3% 程度に止っていたものが、

* 名古屋大学教授；工学部原子核工学科
Radiation Damage; Michio Kiritani (Faculty of Eng., Nagoya Univ., Nagoya)
Keywords: radiation damage, research history, electron radiation damage, neutron radiation damage, ion radiation damage, point defect, cascade damage, fusion reactor materials, high voltage electron microscopy, fusion neutron source
1987 年 5 月 1 日受理

徐々に増加して 57 年には 8% 台に、現在は 10% に近く、学会において最大のセッションを構成している。これに講演の全体数が昭和 58~59 年を境として 500 編前後から 750 編以上に急激に増加したことを考え合せると、研究成果の公表に関しては少なくとも数の上では目をみはるべきものがある。

照射損傷の研究は同一の照射方法を用いた場合でも、その目的に多面性を持っている。その一面は照射損傷そのものが目的ではなく、格子欠陥導入の優れた手法としての取扱いである。他の側面は、照射場において使用される材料を開発することを最終の目的として行なわれてきたもので、具体的には原子炉構造材料や特に最近の核融合炉材料の開発がそれである。前者の目的を持った研究は金属学会で照射効果の研究が大きくとり上げられるよりはるか以前から、我が国においては日本物理学会を中心に進んでいたもので、後者の立場での研究の要請が高まった時期が金属学会における研究量の増加の時期と一致している⁽¹⁾。初期損傷そのものを対象とした研究はこの分野の研究の主軸をなすべきであるが、それ自体を直接に抽出することが容易でなく、前二者に組込まれた形で進んできたと言えよう。

3. 照射方法の多様化

最も単純な初期損傷を与えることのできる電子照射は当初加速器によるものであったが、超高圧電子顕微鏡の発達と普及に伴いそれが照射損傷研究の手段として多用され、その地位を確立したといえよう。この手法での研究は特に我が国において顕著であり、後に一項をもうけて説明する。

原子炉による中性子照射の歴史はすでに長く、今はないが日本原子力研究所の低温照射装置、現在も稼動している京都大学原子炉および原研の材料試験炉をあげることができる。中性子照射損傷研究の特徴あるものとして近年の核融合中性子源によるものがあげられ、これも後に一項をもうけて説明する。

加速器によるイオン照射については、その卓上型数 10 keV のものから巨大なタンデム型の数 GeV に到るエネルギーの広がりを持ち、イオンの種類も多用されている軽イオンから物質を構成している原子と同種の粒子で照射する重イオン照射に到るまであらゆる場合が追求

され、目的も極めて幅が広い。特徴あるものとして電子顕微鏡内にイオン流を導き照射中に観察を行うもの、更に超高压電子顕微鏡にイオン流を導入して、電子照射損傷との組合せを行うものがあげられる。

4. 実験手法の開発および高度化

照射損傷の研究は照射により導入される構造変化の検知、観察、測定、技術の発達と共に進んで来たことは他の分野と変わらない。近年それぞれの実験手法が果たしてきた役割の特徴をひろってみよう。

構造欠陥の全体量の増減をみることのできる電気抵抗変化の精密測定は、使い古され研究の主手段としての役割は失いつつあるものの、他の手法と併用されてその地位を保っている。この手法と似て地道にその役割をはたしつつあるものには内部摩擦測定や比熱測定がある。

個々の欠陥の局在した異方性を検出できる X-線小角および散漫散乱による方法は、1975 年頃までに特に照射によって導入された格子間原子の原子配置を決定することによりその地位を確立したが、その後の大きな進展はうかがえない。

照射損傷研究の殆どすべての課題に関与してきたのが電子顕微鏡による構造変化の観察である。結晶中の原子配位の観察を可能にした格子像、または構造像は結晶中に局在した欠陥を観察できるまでに到っていないため、この分野での実績が殆どないが、高分解能暗視野観察法の改良は原子サイズに近い欠陥の観察を可能とし、照射損傷研究に大きく貢献しつつある。発生する X-線による微小領域の元素分析と相まって、定性的な構造変化観察法から定量的な測定手段へと脱皮したこの手法は、当分この分野の研究手法の主軸をなしていくであろう。

核的手法と総称されるものの代表である陽電子消滅法は、この分野の研究への導入後 20 数年を経て日常的な手法とみなされるに到っている。特にその特徴である原子空孔またはそれに類似の欠陥の存在に対する高い感度は、上記電子顕微鏡法の未だ到達し得ない部分を補っている。近接原子間の相関に鋭敏なメスバウアー効果は溶質原子に関係した照射効果の検出に役割をはたしつつあり、攝動角相関や μ -SR の手法による研究では、数少ないながら特徴的な成果が得られつつある。

5. 超高压電子顕微鏡による電子照射損傷

超高压電子顕微鏡は初期の 500 kV 程度の加速電圧から、現在の通常型とみなされる 1000 kV 程度に発達して以来久しく、損傷を発生させる電子と構造変化観察用の電子が同一であることから、損傷構造発達の連続直接観察を可能としたため、照射損傷研究の分野に大きな足跡をのこし、現在も継続して活用されつつある⁽²⁾。この手法による研究は他の多くの研究や技術開発と同じく残念

ながらその最初のものは外国において行なわれたが、その後は質量共に我が国の研究が他を抜き出ている。

電子照射により結晶中にほぼ均一に連続的に導入される格子間原子と、原子空孔の反応によって引起される欠陥構造変化を連続的に観察することが可能となり、これが点欠陥系の反応論的取扱法の確立を促した⁽³⁾。格子間原子集合体発生の解析から行なわれた格子間原子の移動度の測定は、それまでに格子間原子の自由拡散に関して定着しなかった議論を落着けるのに大きな役割をはたしたと言える。この外関連では原子空孔の移動度や点欠陥と溶質原子の結合度測定など、それまでの他の方法では困難であった材料に対しても、普遍的に適用できる方法として評価され活用されつつある。

上記の研究の間に明らかにされた照射により導入される点欠陥量と構造変化速度との関係を適確に利用して、損傷現象の基本として重要な変位損傷の結晶方位依存の実験的検討が行なわれた。実験手法は確立されたにもかかわらず、具体的な実行には周到な実験環境に対する配慮と実験技術を要するため、その後多種の材料には適用発展していないのは残念である。

照射によって導入される点欠陥を担体として進行する照射加速拡散に関する具象的現象として、溶質原子や合金要素の偏析や析出が超高压電子顕微鏡電子照射法によって明瞭に把握され、現在は中性子強照射による材料変化の一重要過程として注目されている。この加速拡散と混同されやすい入射電子からのわずかのエネルギーの原子への移行による点欠陥の非熱活性化移動は照射誘起拡散と称され、やはりこの手法によりその存在と重要性が指摘されたもので、現在はカスケード損傷時の衝突の動的効果による点欠陥の反応を理解するのに役立ちつつある。

原子変位損傷の素過程と導入される点欠陥の基礎的性質の抽出に活躍した超高压電子顕微鏡による電子照射損傷は、最近はその高損傷率を利用して異種材料のミキシングおよび重照射効果の研究に新しい分野を開拓しつつある。後者は核融合炉材料開発のための中性子照射を模擬しようとするもので、高エネルギー中性子の場合の核変換によるガス元素の発生をイオン源による注入で賄う試みがなされている。

6. 原子炉による中性子照射

原子炉を用いて行なわれてきた膨大な量の研究は、やはり損傷研究一般として述べたごとく、2つの方向に分類できる。その1つは具体的には低照射領域を主体とするもので、カスケード損傷に特徴づけられる初期損傷の原理と、それを初期条件とした欠陥構造発達の間の固体反応に関するものである。他の1つは高照射領域を目指すもので、具体的には原子炉材料特に最近では核融合炉壁材料の開発を目的としたものである。

上記の低照射領域の照射は、我が国においては古くは原子力研究所において低温照射ループを主軸として実行され、現在は京都大学原子炉実験所および材料照射用として稼動しつつある JMTR で続行されている。これらの原子炉照射の歴史をふり返って現在反省されるのは、多大の努力をはらったにもかかわらず照射条件の制御に甘さがあった故に、多くの研究をふり出しにもどさざるを得ないという現状である。照射温度の厳格な制御計測、中性子スペクトルを含めた中性子環境の同定、などに対して最近その必要性の認識が高まり、望ましい方向に進むきざしがみえていえると言えよう。

高照射領域を目指すための原子炉としては、懸案であった高速増殖炉 JOYO が材料照射にここ数年開放され、より組織的な長期照射の計画が具体化しつつあることは喜ばしい。他方、核融合炉壁材料の寿命試験にせまり得る照射設備の国内での欠除を補うため、米国 HEDL の高速増殖炉を用いた研究が 67 年度より 8 カ年計画で開始されている。膨大な経費を照射費用として必要とするこの種の研究は、国内で可能な研究との整合性を考慮し、従来の研究の上に立脚し、諸外国との競合関係をも十分に考慮し、狭義での材料開発のみならず照射損傷の本質にせまり得る部分を含んで進行することが望まれる。

7. 核融合中性子源による中性子照射

1982 年度から 5 カ年間に日米協力の名のもとに、米国ローレンスリバモア国立研究所の回転ターゲット核融合中性子源 RTNS-II を使用して行なわれた照射実験は、複数の点で我が国のひいては国際的にも照射損傷研究に重要な時期を画しつつある⁽⁴⁾。14 MeV という高エネルギーの核融合中性子による実験という特徴は自ずと明らかであるが、中性子一般として考えた場合、現在までに原子炉照射では実現し得なかった照射環境の定量化を達成し得たことが特徴としてあげられる。すなわち中性子照射量の精密計測、照射温度の厳格な制御計測という当然の必要条件をはじめ満足したものであり、これと照射後の観察・測定的高度化・精密化とが合体して、研究がサイエンスとしての形態を整えつつある。もう一つの重要な特徴は研究組織の面であげられる。それ以前においても原子炉照射などで単独の小グループでの照射の実行が困難な場合、グループ間の協力により照射を実行したケースはあったが、日本全国の関係研究者が長期にわたり組織化されて活動した初のケースといえる。この協調関係は前に述べた今後の重照射研究に引き継がれれば有効に作動するものと考えられる。

この種の中性子源による照射はほぼ点とみなされる中性子源からの中性子を利用するため、一般の原子炉照射とは異なり点源からの距離により広い範囲に照射量を変

化させた照射が同時に可能であること、線源外に試料装置を設置できるため環境制御が容易であること、などの利点がある。これらの有利な条件を活用して低温から高温に至る広い範囲にわたり照射量の関数としての研究が、現在考えられるほぼすべての種類の材料について行なわれつつある。

高エネルギー中性子からの巨大なエネルギーの材料構成原子への移行に始まるカスケード損傷がそのサブカスケードへの分割も含めて実測され、衝突のエネルギー分布との直接の関係を論じ得るまでに到っている。また、極低照射領域における照射量の関数としての欠陥構造変化を追跡することおよびその温度依存から、衝突のエネルギーの動的効果による欠陥の反応機構が徐々に明らかになりつつある⁽⁵⁾。

カスケード損傷から最終の欠陥構造発達に到るまでの点欠陥反応過程が、境界条件を制御した照射実験の解析から一貫した形で理解されつつある。また、明らかになりつつある照射量の増加に伴うカスケード間の相剰作用の原理は将来の重照射効果理解の基礎を築きつつある。またこの種の中性子源による低照射領域では予想されなかった多くの材料におけるボイドの発生は、高エネルギー中性子による核反応ガス不純物発生の効果として注目されつつある⁽⁶⁾。

この中性子源照射における照射容積の苛酷な制限に強制されて開発が急速に進んだ微小試験片による種々の機械的性質試験法は、その標準化の域にまで達しつつあり、原子炉照射やイオン照射に還元されつつある。予期されなかったある種の物質における比較的高温での照射軟化現象の発見や、機械的性質変化を欠陥構造変化とを同一照射の中で対応させるなど、機械的性質変化に対する中性子照射効果の系統的な理解の獲得が期待されている。

8. 加速器によるイオン照射

使用されてきたイオンの種類およびエネルギーは極めて広範で研究の目的も多様であり、この項目だけで独立して論じては容易ではない。特に我が国の近況としては数種の理由からこの手法による研究は膨大なものである。まず加速器照射実験は特に高エネルギーや大電流の場合を除き、これまでに述べた原子炉などの様な巨大な装置を必要とせず、また使用目的や使用法によっては巨大装置と全く同等、またはそれ以上の性能を発揮できるとの認識が、特に我が国においては強いことがあげられる。これは例えば米国において目的を核融合炉壁材料の直接の開発にしばったために、中性子による直接的な手法に制限してこの種の手法を疎外してきたのと対照的である。照射損傷が初期衝突エネルギーでまず特徴づけられるという原理を認めるならば、現段階でそのエネルギーを自

由に選択することが可能なのはイオン照射であろう。すなわち加速粒子とそのエネルギーを適切に選定することではぼすべての種類の照射損傷現象を実現し得るからである。

材料に入射したイオンはそのエネルギーの減衰の間に原子への衝突により損傷を起しつつ、最終的には休止し材料に注入された型となる。損傷の入射面からの深さ分布の観察には、浅いものでは電子顕微鏡ステレオ観察が有効に使用されて来たが、深い分布のものに関しては近年試料をイオン入射方向に縦割りにする技術が開発され、一見して損傷分布がみえるようになっている。材料構成原子に対するイオン衝突とイオン休止位置の深さ分布の理論計算も改良が進みつつあり、多種多様な実験方法の見直しとも相まって、イオン照射による研究を標準化しようとする動きもみられている⁽⁷⁾。

低エネルギー軽イオンによる照射は従来表面層におけるブリスタリングやフレーキング現象に関連して行なわれてきたが、最近では水素、重水素、目的としてはトリチウムも含めてこれらの注入とその後の拡散挙動の解明に多く用いられている。同時に導入される構造欠陥との相互作用下におけるこれら軽ガス元素の挙動の解明は、核融合炉環境下での壁材料表面での 1 つの重要な過程として研究対象となっている。

重イオンによる照射の特徴の 1 つはそれぞれの場合の確定したエネルギー原子から出発したカスケード損傷を把握することにある。低エネルギーイオンによる単一カスケード損傷から高エネルギーイオンによるサブカスケード損傷まで、それ自体で興味ある重要な研究対象であるが、そのそれぞれが PKA エネルギーに大きな幅を持つ高エネルギー中性子照射損傷の部分過程となっていることから、原子炉材料開発の基礎研究という役割をも担って行なわれて来た。特に材料構成要素と同種のイオンを使用し、これを中性子の場合のはじき出された原子に想定し、イオン注入による材料の変質を避けた照射が試みられている。その成果は系統化されるまでには至っていないが、イオン照射の特徴を生かして将来初期損傷の結晶方位依存も含めた完成された成果が期待できる。

入射粒子のエネルギーの殆どを失うことなく試料を通して様な高エネルギーイオンの場合は、カスケード損傷を均一に分布させて発生させる方法として重要視され、逆に低エネルギーの場合は照射場に勾配のある典型的ケースとして実験と解析が進みつつある。イオンの注入を利用した人工的な材料の変質への応用は、金属学会では未だに大きくとり上げられていないが、この点も含

めてイオン照射はその使い方によって、今後も極めて広範囲の可能性を持つことを再び指摘しておこう。

9. むすび——日本金属学会と照射損傷研究

本稿のはじめに指摘したごとく照射効果の研究は、金属学会における研究報告の約 10% を占めているが、現在もその対象はほぼ金属・合金に限られており、数年前に同学会が半導体やセラミックスその他の非金属材料に門戸を開放した実は未だにあがっていない。

照射効果の研究のこの 10 年に大きな影響を及ぼしてきたのは、文部省サイドの科学研究費核融合特別研究により組織された研究、および科学技術庁サイド・文部省サイドの二、三の大型プロジェクト研究であることは否まないが、学会において核融合指向でなければ損傷研究は価値がないがごとき発言をししばしみることは、学会をプロジェクトの御用機関になり下らすもので、長期的な学会の発展の視点からも気をつけるべきものと思われる。この意味でも本稿の表題からは編集者の要請では記載されていた核融合炉壁という単語は取り除いた。勿論日本金属学会が結果としてある特定の重要な開発研究にも貢献することは必要であり否定するものではなく、自他ともに材料科学と呼べる立場から要請される科学技術の進歩に大きく貢献できることを願うものである。

照射損傷研究はこの稿の最初にその性格として指摘したように、金属学の殆どあらゆる分野の研究と融合した型でのみ進歩し得るもので、それぞれの分野の進展がこの分野の研究の進歩をうながし、またこの分野での著しい進展が、それぞれの分野に貢献する形で進んで行くことが期待される。

文 献

- (1) 科学研究費補助金エネルギー特別研究(核融合)材料重照射班研究報告「重照射研究の進歩」(1986, 編集 北島一徳, 井形直弘)。
- (2) *Proc. Int. Symp. Behavior of Lattice Imperfections in Materials—In Situ Experiments with HVEM*, Osaka, (1985)。
- (3) *J. Nucl. Mater.*, 69 & 70(1978)(*Proc. Int. Conf. Atomic Defects in Metals*, Argonne, (1986))。
- (4) 科学研究費補助金成果報告書「RTNS-II 核融合中性子被照射材料の欠陥構造と機械的性質の研究」(昭和 60, 61 年度, 代表 桐谷道雄)。
- (5) *J. Nucl. Mater.*, 133 & 134(1985)(*Proc. 1st Int. Conf. Fusion Reactor Materials*, Tokyo, (1984))。
- (6) *J. Nucl. Mater.*, 141-143(1986)(*Proc. 2nd Int. Conf. Fusion Reactor Materials*, Chicago, (1986))。
- (7) 科学研究費補助金成果報告書「加速粒子による材料照射効果の評価法標準化に関する研究」(昭和 62 年度, 代表 石野 稔)。