

令和元年6月4日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06963

研究課題名(和文) 高速重イオン照射によって形成された表面ナノ構造の直接観察

研究課題名(英文) Direct observation of surface nanostructure created by swift heavy ions

研究代表者

石川 法人 (Ishikawa, Norito)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター・研究主幹

研究者番号：90354828

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：100 MeV以上の高速重イオンをセラミックスに照射すると、表面に10 nm程度の隆起物(ナノヒロック)が形成されることが知られている。表面ナノ構造(ナノヒロック)の形成メカニズムの解明に向けて、様々なセラミックスについて、照射した微小試料の透過型電子顕微鏡観察を行った。ナノヒロックの内部が非結晶質である材料群(Y3Fe5O12, ZrSiO4等)の他に、内部が結晶質である材料群(CeO2, CaF2等)が存在することが判明した。セラミックスは照射すると一旦融けて結晶構造が崩れることはすでに分かっていたが、後者の材料のみ、溶けた後に急速に結晶構造を復元できる能力を有していることが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

高速重イオン照射はセラミックス材料に対する破壊力が高く、照射によって結晶構造が崩れていくことは不可避だと考えられてきた。しかし、本研究により、一部のセラミックスにおいては、結晶構造が崩れた後でも急速に結晶構造を修復させる能力を有していることが分かった。耐照射性の高いセラミックス材料を開発する上で、一部のセラミックスのもつこの損傷修復能力の発見は非常に重要である。この損傷修復能力を最大化する方向に研究開発が進めば、今後新しい耐照射性材料を開発する道が開けると期待できる。

研究成果の概要(英文)：Nanohillocks are formed at the surface of ceramics when irradiated with swift heavy ions with the energy above 100 MeV. To elucidate the mechanism of such surface nanostructures, transmission electron microscopy observation has been performed for various types of irradiated ceramics. We found that there are some materials where nanohillocks have crystalline feature, whereas most of the materials exhibit noncrystalline feature of the nanohillocks. Although crystal lattice structure is temporally lost near ion path for all the irradiated ceramics, crystal lattice structure is found to recover quickly only in the specific materials (e.g. CeO2, CaF2). Capability of restoring lattice structure is found in the materials where nanohillocks exhibit crystalline feature.

研究分野：照射損傷学

キーワード：ナノ構造 照射損傷 イオン照射 セラミックス

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

高速重イオンを照射すると、多くのセラミックス材料の照射表面にナノサイズの隆起物（ナノヒロック）が形成される。ナノヒロックの形成は、高速重イオンと固体との相互作用を解明するための重要な現象である。我々は近年ナノヒロックの新しい観察手法を世界に先駆けて発見した。本手法の発見により、透過型電子顕微鏡(TEM)を用いたナノヒロックの直接観察が可能になった。

### 2. 研究の目的

我々が開発したナノヒロックの直接観察手法を利用することで、ナノヒロックの寸法や結晶構造などのナノヒロックの詳細分析をすることを研究目的とする。また、ナノヒロックのような表面損傷に関連が深い内部損傷（イオントラック損傷）についても、ナノヒロックが観察できる観察視野と同じ観察視野内で観察可能なことを最大限に生かし、イオン照射損傷のメカニズムを解明することも本研究の目的である。

### 3. 研究の方法

照射に強いとされるセラミックス群と照射に弱いとされるセラミックス群を用意し、TEM用の微小試料を作製する。試料を高速重イオン(例:200 MeV Au イオン)で斜めから照射し、照射下試料をTEMで観察する。観察されたナノヒロック損傷とイオントラック損傷をそれぞれ、寸法の観点から分析するとともに、その結晶構造などの照射影響を調べた。

### 4. 研究成果

様々なセラミックスについてナノヒロックの結晶構造を調べた結果、ナノヒロックが結晶質であるセラミックス(例:CeO<sub>2</sub>やCaF<sub>2</sub>)と非晶質であるセラミックス(例:Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub>, ZrSiO<sub>4</sub>)とに材料が分類されることがわかった。さらに、前者のセラミックスは、照射に強いとされるセラミックスであること、一方で、後者のセラミックスは、照射に弱いとされるセラミックスであることがわかった。どのセラミックスも、共通して、イオンの軌跡に沿って一旦は結晶構造が崩れた領域が形成されることは知られていたが、本研究により、特定のセラミックスでは、一旦結晶構造が崩れても再結晶化によってすぐに結晶構造を修復できる能力を有していることが示唆された。

以下に、研究の詳細を示す。

従来は、高速重イオン照射に伴って照射表面に形成される隆起物（ナノヒロック）は、TEMでなくAFM（原子間力顕微鏡）で観察されてきた。しかし、AFMの探針の先の大きさとナノヒロックの大きさが近いために、AFMで測定するとナノヒロックの直径を過剰評価してしまう問題が存在した。また、AFMを使う限り、ナノヒロックの結晶構造を同定することは出来ないという技術上の壁があった。これらの問題を解決するために、図1（左図）のように通常の照射方向でなく、図1（右図）のように斜めから照射した上でTEM観察すると、ナノヒロックを分解能よく観察でき、かつ結晶構造が同定できることが分かった。本研究では、この手法を用いて、様々なセラミックスに形成されたナノヒロックを観察した。

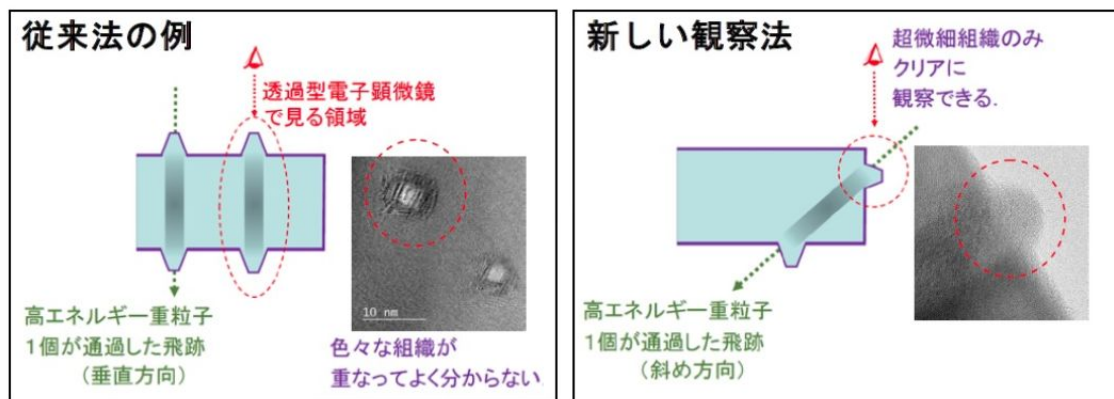


図1 従来法と新しい観察法との比較

その結果、通常のセラミックスの場合、図2（左図）のようにナノヒロックは非晶質であることがまず確認できた。どのセラミックスも、共通して、イオンの軌跡に沿って一旦は結晶構造が崩れた領域が形成されると考えられてきたので、予想通りの観察結果が得られたことになる。しかし、一方で、図2（右図）のように、特定のセラミックス（CaF<sub>2</sub>, BaF<sub>2</sub>など）においては、ナノヒロックの内部の原子配列が整列しており、再結晶化が起きていることが分かった。この結果は、これらの特定のセラミックスは、照射によって一旦結晶構造が崩れても、再結晶化して急速に結晶構造を修復できる能力を有していることを示唆している。耐照射性の高いセラミックスを開発する上で、この損傷修復能力を最大化することが重要であることがわかった。

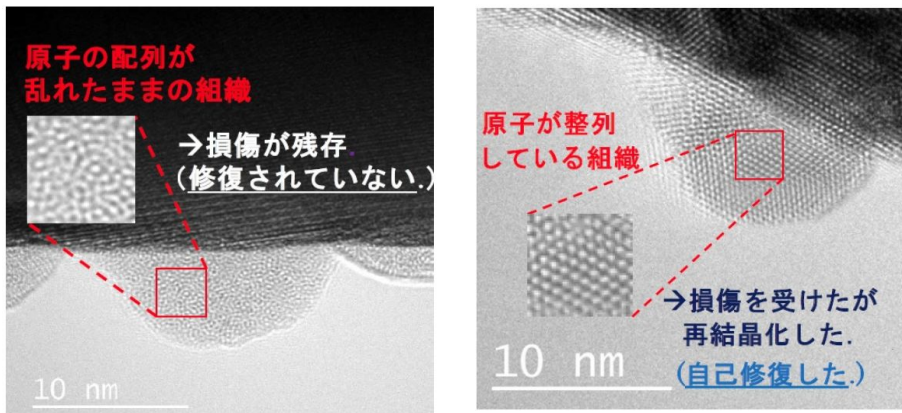


図2 (左図) 高速重イオンを照射した Y3Fe5O12 の表面に形成されたナノヒロック (内部の結晶構造が乱れたままで、損傷が残存した状態。)(右図) 高速重イオンを照射下 BaF2 の表面に形成されたナノヒロック。(内部の結晶構造が整列していることが確認でき、一旦結晶構造が乱れたにもかかわらず、再結晶化により自己修復したことが示唆される。)

## 5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 2件)

1) Y. Sasajima et al., “ Structure analysis of the defects generated by a thermal spike in single crystal CeO<sub>2</sub>: A molecular dynamics study ”, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B, 査読有, 440 (2019) 118-125.

2) N. Ishikawa, T. Tomitsugu, N. Okubo, “Hillocks created for amorphizable and non-amorphizable ceramics irradiated with swift heavy ions: TEM study ”, Nanotechnology 査読有, 28 (2017) 445708.

〔学会発表〕(計 5件)

1) 石川法人, 「セラミックスへの高速重イオン照射による表面ナノ構造の形成過程」, 日本金属学会 2019 年春季 (第 164 回) 講演大会

2) N. Ishikawa, “ TEM study of Surface Nanostructure of Ceramics Irradiated with Swift Heavy Ions ”, 第 28 回日本 MRS 年次大会 (国際会議) 2018

3) N. Ishikawa, “ Is a hillock just a protruded part of an ion track? ”, SHIM-ICACS (10<sup>th</sup> International Symposium on Swift Heavy Ions in Matter & 28<sup>th</sup> International Conference on Atomic Collisions in Solids) 招待講演(国際会議) 2018

4) N. Ishikawa et al., “ Structure of hillocks at surface of ceramics irradiated with swift heavy ions ”, ISI-2017 (イオンー表面相互作用国際会議) (招待講演)(国際会議) 2017

5) N. Ishikawa, “ Hillock formation at the surface of ceramics irradiated with swift heavy ions ”, 欧州材料学会 E-MRS(European Materials Research Society) Fall meeting 2016(国際学会)

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0件)

取得状況 (計 0件)

〔その他〕

ホームページ等

原子力機構 プレス発表

<https://www.jaea.go.jp/02/press2017/p17102702/>

原子力機構の研究開発成果 2018-19

[https://rdreview.jaea.go.jp/review\\_jp/2018/4\\_2.html](https://rdreview.jaea.go.jp/review_jp/2018/4_2.html)

アニュアルレポート原子力機構 2018

[https://www.jaea.go.jp/study\\_results/annual\\_report/2018/pdf/annualreport2018.pdf](https://www.jaea.go.jp/study_results/annual_report/2018/pdf/annualreport2018.pdf)

## 6 . 研究組織

### (1)研究分担者

研究分担者氏名：田口 富嗣

ローマ字氏名：Taguchi Tomitsugu

所属研究機関名：国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構

部局名：高崎量子応用研究所 東海量子ビーム応用研究センター

職名：上席研究員（定常）

研究者番号（8桁）：50354832

研究分担者氏名：篠嶋 妥

ローマ字氏名：Sasajima Yasushi

所属研究機関名：茨城大学

部局名：理工学研究科（工学野）

職名：教授

研究者番号（8桁）：80187137

### (2)研究協力者 なし

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。