

令和 5 年 5 月 17 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05389

研究課題名(和文)耐照射性セラミックスの表面ナノ構造観察による照射損傷メカニズムの解明

研究課題名(英文)Clarification of Radiation Damage Mechanism by Surface Nanostructure Observation of Radiation-Resistant Ceramics

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) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：高速重イオンを様々な酸化物セラミックスに照射し、照射損傷組織を透過型電子顕微鏡で観察した。照射損傷組織(イオントラックとナノヒロック)がアモルファス化している材料とアモルファス化しない材料とを分けるのは、材料が持つ再結晶化能力であることが分かってきた。一方で、SrTiO₃等は、前者と後者の中間的な材料であることが判明した。さらにSrTiO₃を対象とすることで、照射直後の物質移動が最終的な損傷形態に大きく影響を与えることが分かった。本課題の研究によって、照射損傷メカニズムに関して、特に再結晶化および物質移動に関するプロセスが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

UO₂を含む核燃料セラミックス中の核分裂によって100 MeV程度のエネルギーをもつ高速核分裂片が発生する。このような高速重イオンの照射に伴って形成される高燃焼度組織(リム組織)を理解することは長年の課題である。この微細組織は「表面」に形成されるカリフラワー状組織であり、表面での照射損傷現象の基礎的観点から改めてその形成メカニズムを見直すことは意義がある。本研究では、表面ナノヒロックの観察にメカニズム解明の突破口を見出して、さらにセラミックスの耐照射性メカニズムの解明に挑むものである。本研究を通して、再結晶化や物質移動の概念を持ち込むことで、従来より一段高いレベルのメカニズム解明に到達できる。

研究成果の概要(英文)：Various ceramics were irradiated with swift heavy ions. The irradiated samples were observed by transmission electron microscope. It is found that the irradiation-induced nanostructure can be either amorphous or crystalline, depending on the recrystallization ability of the ceramics. It is also found that SrTiO₃ is the intermediate material in terms of amorphizability/recrystallizability of the materials. Further study of SrTiO₃ shows the morphology of radiation damage can be significantly affected by material transport near the surface. The present research has led to the better understanding of the radiation damage mechanism especially the processes of recrystallization and material transport.

研究分野：照射損傷学

キーワード：照射損傷 高速重イオン照射 ナノ構造

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

セラミックスに 100 MeV 以上の高速重イオンを照射すると、イオンの飛跡に沿ってイオントラック損傷が形成される。この照射損傷メカニズムを解明することは、過酷な照射環境で使用される原子力材料・燃料のふるまいを予測する上で必要である。加えて耐照射性の高い材料を開発する上でも重要である。

従来研究のようにイオントラック損傷を観察するだけでは、照射損傷メカニズムの解明に本来必要な「物質移動」や「再結晶化」の発想は出てこない。一方で、ナノヒロック形成は、「物質移動」と「再結晶化」のプロセスを直接的に反映した現象である。つまり、表面への物質移動＝ナノヒロック形成、物質移動後の再結晶化＝ナノヒロックの結晶化として理解でき、一気に損傷形成プロセスの全体像にせまることが出来る。しかも、ナノヒロックとイオントラック損傷を同じ電子顕微鏡視野内で観察出来ることが、我々の大きな強みである。予測モデルを検証する直接的な実験事実を提示でき、一段高い現象理解に到達できる。

2. 研究の目的

目的 1 「再結晶化」を最大化する材料特性を明らかにする。

ナノヒロックの結晶性を解析する。さらに、ナノヒロックの寸法と中心部(残留損傷部＝イオントラック損傷)の寸法の寸法比を解析し、再結晶化の進行度を評価する。耐照射性(再結晶化能力)と材料特性との相関関係を解析することで、高い耐照射性を実現する材料条件を明らかにする。

目的 2 「物質移動」プロセスを定量的に解析し、新しい損傷予測モデルを構築する。

表面ナノヒロックとイオントラック損傷の寸法を比較し、物質移動量を解析する。既存の熱スバイク理論の先の物質移動を想定した新しい理論モデルを構築する。

目的 3 高精度の照射損傷予測コードを開発する。

局所溶融、物質移動などを含めた損傷プロセスの全体像を再現できる分子動力学(MD)計算コードの開発を通じて、高精度の損傷予測コードにつなげる。

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、透過型電子顕微鏡(TEM)用の微小試料を作製する。微小試料を高速重イオン(例:200 MeV Au イオン)で斜めから照射し、照射した試料を TEM 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る。電子顕微鏡観察データを踏まえて、観察結果を再現する計算コードを開発する。

4. 研究成果

様々な酸化物セラミックス(LiNbO_3 , ZrSiO_4 , $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$, SrTiO_3 等)について、高速重イオンを照射し、透過型電子顕微鏡で照射損傷組織(イオントラックとナノヒロック)を詳細に観察した。その結果、 LiNbO_3 , ZrSiO_4 , $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ は、イオントラックとナノヒロックともにアモルファス化していることが確認され、これらの材料は、耐照射性の低い「アモルファス化可能材料(Amorphizable materials)」に分類されることが確認された。一方で、 CeO_2 や CaF_2 などの蛍石型セラミックスは、耐照射性の高い「非アモルファス化可能材料(Non-amorphizable materials)」に分類されることも分かった。上記のように、一般にセラミックス材料は、耐照射性の観点から2つの材料分類に区別される[1,2]。しかし、本研究で調べた SrTiO_3 及び Nb ドープした SrTiO_3 は、2つの材料分類の中間的な材料であることが判明した[2]。本研究の一連の結果から、イオン結合性の強さ、および結晶対称性の高さが、耐照射性を左右する材料特性であることが示唆された[3]。

SrTiO_3 がわずかな照射条件に対して敏感に損傷度合いが変化する材料であるという仮説に基づいて、高速重イオンを微小入射角で照射した Nb 添加した SrTiO_3 の表面ナノ構造を調べた成果についてまとめた。セラミックスに対して高速重イオンを微小入射角で照射すると、ヒロックチェーン(イオンの飛跡に沿って、複数個並んで形成されるナノヒロック)が表面付近に形成されることが知られている。我々は、AFM(原子間力顕微鏡)とSEM(走査型電子顕微鏡)を利用して、ヒロックチェーンの形態・性状を詳細に調べた。その際に、全く同じヒロックチェーンを、AFMとSEMのそれぞれで観察することに成功した。AFMの観察データは、先行研究の示す通り

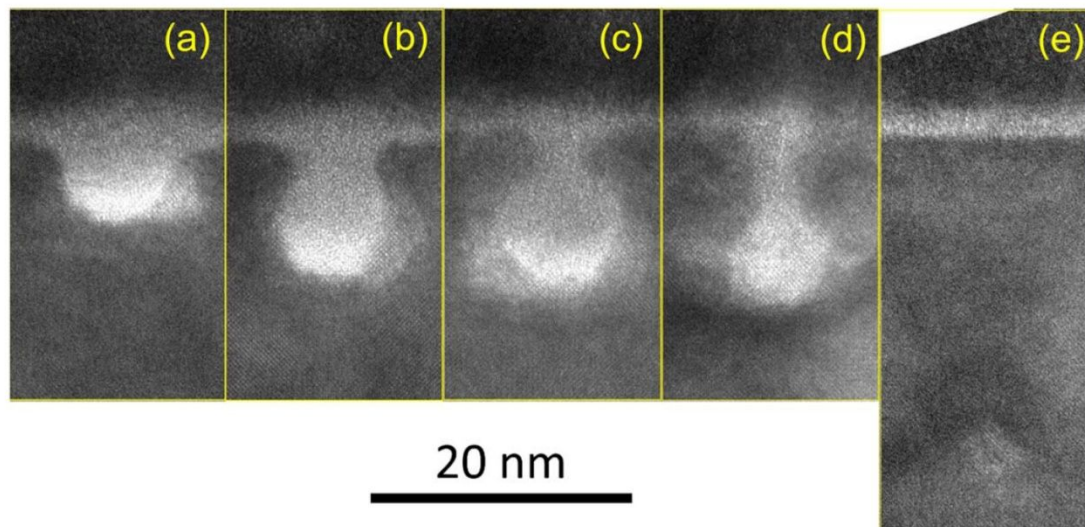


図1 Nb添加したSrTiO₃に200 MeV Auイオンビームを微小入射角で照射して形成されたイオントラックのTEM像。表面からイオンの飛跡の距離が近い順に(a)から(e)まで並べたもの。表面から距離に依存して損傷の寸法、形態が次第に変化する。

に、ヒロックチェーンが形成されていることを示している一方で、SEMの観察データは（同じヒロックチェーンを観察しているにもかかわらず）ヒロックチェーンをつなぐ黒い線状コントラストも現れることが判明した。これらの新しい損傷データをもとに、複数ある既存のヒロックチェーンの形成メカニズムの妥当性について検証できるようになった。さらにTEM観察した結果、表面近傍の照射損傷と材料材部の照射損傷の形態が異なることが判明し、表面の存在が大きく照射損傷形態に影響を及ぼすことが分かった(図1)。本結果より、表面付近に形成されたイオントラック損傷は瞬間的に融けたことを反映して寸法が比較的大きいのに対して、表面から遠い材料内部に形成されたイオントラック損傷は瞬間的に融けたのちに部分再結晶した結果、寸法が比較的小さいことが分かった。このことから、表面と飛跡の距離は、物質移動の度合いに影響を与え、その結果として損傷状態が大きく変化することが強く示唆された[4]。さらに、極薄膜の試料を想定したMD計算の結果、イオン飛跡から動径方向への物質移動、および表面方向への物質移動を反映したナノ穿孔が形成される可能性が示された[5]。本課題の研究によって、再結晶化、物質移動を伴うナノ構造形成プロセスを体系化し、包括的な耐照射性メカニズムの解明に近づくことができた。

<引用文献>

- [1] N. Ishikawa, T. Taguchi, A. Kitamura, G. Szenes, M. E. Toimil-Molares, and C. Trautmann, "TEM analysis of ion tracks and hillocks produced by swift heavy ions of different velocities in Y₃Fe₅O₁₂", J. Appl. Phys. 127 (2020) 055902.
- [2] N. Ishikawa, T. Taguchi, and H. Ogawa, "Comprehensive understanding of hillocks and ion tracks in ceramics irradiated with swift heavy ions", Quantum Beam Science, 4 (2020) 43.
- [3]石川法人, 田口富嗣, 大久保成彰, "(解説)高速重イオン照射したセラミックスにおける照射損傷メカニズム", しょうとつ(原子衝突学会誌), 第18巻 (2021) 43.
- [4] N. Ishikawa, Y. Fujimura, K. Kondo, G.L. Szabo, R.A. Wilhelm, H. Ogawa, and T. Taguchi, "Surface nanostructures on Nb-doped SrTiO₃ irradiated with swift heavy ions at grazing incidence", Nanotechnology, 33 (2022) 235303 (10pp).
- [5] Y. Sasajima, R. Kaminaga, N. Ishikawa, and A. Iwase, "Nanopore Formation in CeO₂ Single Crystal by Ion Irradiation: A Molecular Dynamics Study", Quantum Beam Science, 5 (2021) 32.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Ishikawa N, Fujimura Y, Kondo K, Szabo G L, Wilhelm R A, Ogawa H, Taguchi T	4. 巻 33
2. 論文標題 Surface nanostructures on Nb-doped SrTiO ₃ irradiated with swift heavy ions at grazing incidence	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nanotechnology	6. 最初と最後の頁 235303 ~ 235303
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6528/ac58a5	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 石川法人、田口富嗣、大久保成彰	4. 巻 18
2. 論文標題 高速重イオン照射したセラミックスにおける照射損傷メカニズム	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 しょうとつ (原子衝突学会誌)	6. 最初と最後の頁 43 ~ 55
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.50847/collision.18.3_43	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Sasajima Yasushi, Kaminaga Ryuichi, Ishikawa Norito, Iwase Akihiro	4. 巻 5
2. 論文標題 Nanopore Formation in CeO ₂ Single Crystal by Ion Irradiation: A Molecular Dynamics Study	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Quantum Beam Science	6. 最初と最後の頁 32 ~ 32
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/qubs5040032	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Ishikawa Norito, Taguchi Tomitsugu, Ogawa Hiroaki	4. 巻 4
2. 論文標題 Comprehensive Understanding of Hillocks and Ion Tracks in Ceramics Irradiated with Swift Heavy Ions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Quantum Beam Science	6. 最初と最後の頁 43 ~ 43
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/qubs4040043	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 石川法人
2. 発表標題 NbドープしたSrTiO3に対して微小入射角で高速重イオン照射した際に形成される表面ナノ構造
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 石川法人
2. 発表標題 高速重イオン照射したセラミックスにおける照射損傷メカニズム
3. 学会等名 令和3年度材料照射研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 石川法人
2. 発表標題 Surface morphology of Nb-doped SrTiO3 irradiated with swift heavy ions at grazing incidence
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2021 (MRM 2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 石川法人
2. 発表標題 高速重イオン照射した Y3Fe5O12 におけるナノ構造形成
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 石川法人
2. 発表標題 Surface nanostructures on Nb-doped SrTiO ₃ irradiated with swift heavy ions at grazing incidence
3. 学会等名 ICACS&SHIM 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 石川法人
2. 発表標題 Nanostructure of Ceramics Irradiated with Swift Heavy Ions: TEM Study
3. 学会等名 第23回「イオンビームによる表面・界面の解析と改質」特別研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 石川法人
2. 発表標題 Nanostructure of Zirconia-Based Oxides Irradiated with Swift Heavy Ions
3. 学会等名 第32回日本MRS 年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 石川法人
2. 発表標題 高速重イオン照射した薄膜状セラミックスにおける特殊なナノ構造
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	田口 富嗣 (Taguchi Tomitsugu) (50354832)	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・高崎量子応用 研究所 東海量子ビーム応用研究センター・上席研究員 (82502)	
研究 分担者	篠嶋 妥 (Sasajima Yasushi) (80187137)	茨城大学・理工学研究科(工学野)・教授 (12101)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------