

科学研究費補助金研究成果報告書

平成 25 年 6 月 3 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究 (A)

研究期間：平成 22 年度～24 年度

課題番号：22686088

研究課題名 (和文) イオン加速器連結型トンネル顕微鏡を用いた照射下原子動的挙動解明に関する研究

研究課題名 (英文) Dynamic behavior of surface atoms under irradiation by using a linked facility between an ion accelerator and STM

研究代表者

沖田 泰良 (OKITA TAIRA)

東京大学・人工物工学研究センター・准教授

研究者番号：50401146

研究成果の概要 (和文) : 本研究では、イオン加速器連結走査型トンネル顕微鏡を用いて、イオン照射によって形成する Au(111)表面欠陥を原子レベルの空間分解能で観察した。また、高さ測定を用いることによって、表面はじき出し欠陥の同定と形状の定量化に成功した。更に、分子シミュレーションにより照射欠陥形成過程を再現し、非平衡状態における計算科学の妥当性検証を行った。

研究成果の概要 (英文) : Surface defects on Au(111) formed by ion irradiation were observed at an atomistic resolution by scanning tunnel microscope combined with an ion accelerator. The step-height method with this equipment enabled to identify the nature of defects and to quantify their size. Molecular simulations were conducted with equivalent conditions to the experiments, and it was clarified that the results were reasonably consistent with the experimental observations. This comparison attested the validity of the simulations under non-equilibrium states.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
平成 22 年度	13,500,000	4,050,000	17,550,000
平成 23 年度	1,800,000	540,000	2,340,000
年度			
年度			
年度			
総計	15,300,000	4,590,000	19,890,000

研究分野：工学領域

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：STM, ナノ組織, 計算科学, 非平衡科学, 表面物理

1. 研究開始当初の背景

結晶性材料中に、高エネルギー放射線粒子が入射すると、空孔と格子間原子に代表される照射欠陥が形成する。これらの照射欠陥が拡散・相互作用することにより、結晶性材料のマイクロ組織が変化し、それに伴いマクロな

機械的特性変化が発生する。このように放射線下での材料特性変化は、ナノレベルの現象である原子個々のはじき出しが、マイクロレベルの現象を介して、大型人工物システムの劣化要因となる典型的なマルチスケール現象である。照射環境で使用される原子力材料に

において、これらの過程を含めた挙動を把握するためには、単一の物理モデルや実験手法のみでは不可能であり、複数の手法・機構を組み合わせるマルチフィジックスのアプローチが求められる。特に、原子炉構造材料の機械的特性変化は、プラントシステム全体の安全性評価に直接的に結びつく非常に重要な検討事象である。このような原子炉構造材料の劣化を予測する手法の1つとして、各々のスケールに於いて物理的メカニズムを明らかにして、これに基づいたシミュレーションから材料挙動予測を行い、併せて模擬環境によって予測モデルの検証実験を行うことの重要性について、我々のグループは立証してきた。この過程に於いて、原子力材料特有の現象で、且つ物理的メカニズムに基づいたモデル構築が非常に困難なものは、原子レベルでの照射欠陥形成・拡散・回復挙動に関する定量化である。この項目は、マイクロ組織発達シミュレーションにおいて必須の入力パラメータである。一方、原子レベルの空間分解能における評価が求められるにも関わらず、実験手法として適切な手段が存在しなかった事が、この定量化を困難にしていた。従来、高空間分解能での照射欠陥挙動は、透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いた観察が行われてきた。しかし、TEM で得られる空間分解能は 1nm 程度であり、それより 1桁程度低い現象である原子個々の挙動を観察することは不可能であった。また、他方で微小スケール現象の計算科学的手法として、分子シミュレーションが用いられてきた。特に、はじき出しを再現する手法として分子動力学法 (MD 法) が、拡散・回復過程を含むマイクロ現象を取り扱う手法として機構論的モンテカルロ法が用いられ、材料挙動予測に関するナノスケール現象の再現が試みられてきた。これらの分子シミュレーションの実験的検証としての極低温照射下陽電子消滅試験や電気抵抗変化測定等は、材料中の変化の累積的情報しか得られないため、原子個々の挙動を検証に当たって、大きな課題が残されていた。

2. 研究の目的

本研究では、日本で唯一、世界にも数台しか存在しない数 10keV オーダーイオン加速器連結型走査トンネル顕微鏡 (STM) を用い、高エネルギー粒子入射下における金属材料の表面はじき出しを原子レベルの空間分解能で観察する。これによって、従来の TEM 観察では不可能であったはじき出し損傷過程を原子レベルの空間分解能で定量化する。この結果に基づき、MD 法との直接的な比較を行い、非平衡状態における計算科学の妥当性を検証する。これらを通じて、放射線照射下に於ける原子力材料の劣化挙動を予測す

る手法の確立に資することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、金属試料である Au(111)表面を対象として、真空条件や加速器条件等を適正化することで、照射欠陥を原子レベルの空間分解能で観察する手法を確立する。これに基づいて、Au(111)表面に形成する照射欠陥の形状・サイズ等を定量化する。これにより、原子力材料特性変化を引き起こすナノレベルでの現象を従来の TEM 観察より 1桁程度高い空間分解能で観察する事が可能となる。

また、照射・照射後観察を通して、試料を液体窒素温度に保持する技術を確立し、照射欠陥の拡散・回復を抑制した条件下にて、表面欠陥の定量化する。

更に、同等照射条件における Au 表面のはじき出し過程に関する分子シミュレーションを行い、実験結果との比較により、計算科学の妥当性評価を行う。

このような研究は、はじき出し損傷が支配的な数 10keV オーダーの加速器を STM に連結させた装置を有する我々のみに達成可能な研究であり、これにより原子力材料の照射劣化挙動を再現するマルチスケールモデル構築に資する。

4. 研究成果

本研究では、対象試料を従来の n 型半導体 Si(111)7x7 再構成面から金属材料 Au(111)面に拡張した。金属材料に於いては、自由電子のため、Si と比較して STM 観察は困難であるが、試料加工法及び走査トンネル顕微鏡の観察条件を適正することによって、表面を原子レベルの高空間分解能で観察することに成功した。また、真空条件の適正化等によって、イオン照射後にも、同等の高空間分解能像を得ることが可能となった。この技術を用いて、30keV Ar イオン照射によって形成する照射欠陥の観察実験を行った。これまでの STM 観察では、表面第一層に形成した空孔集合体のみの測定に限定されていたが、照射欠陥近傍の高さ測定を取り入れることにより、照射によって形成した空孔集合体のサイズを定量化することが可能となった。更に、この手法によって表面の凹凸測定を行い、照射ではじき出され表面に吸着した原子から構成される集合体のサイズと密度も定量化することに成功した。

冷却チャンバーに液体窒素を充填し、十分な時間保持することによって、試料処理分析チャンバー、像観察チャンバー双方の温度を約 77K まで冷却した。放射温度計に

よって、ビーム照射中に於いても、表面温度上昇は最大2°C程度に抑えられていることを確認した。これによって、照射・観察中の試料を液体窒素相当温度の低温に保ち、照射欠陥の拡散を極力抑制した条件で、欠陥集合体の密度と形状を評価した。

金属材料を対象として、はじき出し損傷が支配的なエネルギー領域である数10keV以上のイオン照射によって形成した欠陥を原子レベルの空間分解能で定量化した例は極めて稀であり、学術的な価値の高い成果である。これにより、分子シミュレーションによるはじき出し損傷と直接的な比較を行うことが出来る実験結果を取得することが可能となった。

照射実験と同等の条件にて、Au表面近傍に形成する欠陥の立体形状をMD法により求めた。MD法による計算では、数個の空孔からなる集合体が形成すること、またその集合体近傍にはじき出された原子が集合体となって存在すること等が明らかとなった。これらは、実験結果とおおむね一致することが明らかとなった。これら本研究の成果により、金属材料の高エネルギー付与下はじき出し損傷過程における非平衡状態MD法の妥当性検証が可能となった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計9件)

- S. Miyashiro, S. Fujita, T. Okita, “MD simulations to evaluate the influence of applied normal stress or deformation on defect production rate and size distribution of clusters in cascade process for pure Cu” *Journal of Nuclear Materials* 415 (2011) 1-4
- T. Okita, N. Sekimura, F.A. Garner, “Effects of dpa rate on swelling in neutron-irradiated Fe-Cr and Fe-Cr-Mo alloys” *Journal of Nuclear Materials* 417 (2011) 944-948
- M. Sagisaka, Y. Isobe, F.A. Garner, S. Fujita, T. Okita, “Development of Nondestructive Inspection Techniques for Measurement of Void Swelling in Irradiated Microscopy Discs”, *Journal of Nuclear Materials* 417 (2011) 992-995
- F.A. Garner, T. Okita, N. Sekimura, “Swelling of pure vanadium and V-5Cr at 430°C in response to variation in neutron flux-spectra in FFTF”, *Journal of Nuclear Materials* 417 (2011) 314-318
- S. Miyashiro, S. Fujita, T. Okita, H. Okuda, “MD simulations to evaluate the

influence of normal strain on defect production at various PKA energies”, *Fusion Engineering and Design*, 87 (2012) 1352-1355

- 後藤和哉, 志賀 淳二, 林雅江, 沖田泰良, 奥田 洋司: “アセンブリ構造解析のための多点拘束前処理付き並列反復解”, *日本機械学会論文集*, 2012年5月号(第78巻789号) 708-717
- J. Etoh, M. Sagisaka, T. Matsunaga, Y. Isobe, F.A. Garner, P.D. Freyer, Y. Huang, J.M.K. Wiezorek, T. Okita, “Development of a non-destructive inspection method for irradiation-induced microstructural evolution of thick 304 stainless steel blocks”, *Journal of Nuclear Materials*, in press
- S. Miyashiro, S. Fujita, M. Itakura, T. Okita, “Molecular dynamics simulations to evaluate the effect of applied strain on interstitial cluster formation and orientation under collision cascade damage”, *Proceedings of 2012 20th International Conference on Nuclear Engineering, ICONE20 – POWER 2012 – 54840*
- T. Horinouchi, S. Miyashiro, M. Itakura, T. Okita, “Molecular dynamics simulations to evaluate the effect of the difference in material properties on irradiation-induced defect formation under applied strain”, *Proceedings of 2012 20th International Conference on Nuclear Engineering, ICONE20 – POWER 2012 – 54777*
- M. Sato, T. Kikuchi, K. Murakami, S. Miyashiro, T. Okita, “Direct observation of irradiation-induced defect formation on a Si (111) surface by a linked facility between an ion accelerator and STM”, *Proceedings of 2012 20th International Conference on Nuclear Engineering, ICONE20 – POWER 2012 - 55025*

〔学会発表〕(計65件) 代表例のみを示す。

- T. Okita, K. Murakami, S. Miyashiro, M. Suzumura, K. Nishikawa, “STM observations of Si (111) 7x7 reconstructed surfaces after Ar⁺ irradiation”, *Material Workshop at Tsinghua Week at Todai*, 2010.5. Tokyo, Japan
- T. Okita, “Recent Activities of the University of Tokyo”, *Invited presentation at Westinghouse Electric Power Company*, 2010.6, Pittsburgh, USA

- 沖田泰良, “EBR-II 廃材を用いた高速炉材料照射劣化・評価に関する研究開発”, 招待講演, 2010 年度日本原子力学会材料部会夏期セミナー, 2010.8, 常陸太子
- T. Okita, K. Murakami, S. Miyashiro, M. Suzumura, K. Nishikawa, “Atomistic observation of the displacement damage on surfaces by a linked facility with an ion accelerator and Scanning Tunnel Microscope”, Nuclear Materials 2010, 2010.10, Karlsruhe, Germany
- J. Maeda, M. Ota, T. Okita, “Molecular dynamics simulations to evaluate the interactions between a dislocation and vacancy-type or interstitial-type loop”, Poster session of Nuclear Materials 2010, 2010.10, Karlsruhe, Germany
- S. Miyashiro, S. Fujita, T. Okita, “Effects of external stress on irradiation behavior in FCC materials by integrating data analysis and atomistic simulations”, Poster session of Nuclear Materials 2010, 2010.10, Karlsruhe, Germany
- T. Okita, S. Miyashiro, M. Sagisaka, J. Etoh, Y. Isobe, “Development for a non-destructive evaluation method detecting irradiation-induced microstructure change”, the 5th Annual Asia-Pacific Nuclear Energy Forum on Materials for Nuclear Applications, 2011.6, Berkeley, CA, USA
- S. Miyashiro, S. Fujita, T. Okita, “Modeling for stress-induced deformation of fusion reactor materials under irradiation”, International Symposium on Fusion Technology, 2011.9, Portland, OR, USA
- S. Miyashiro, S. Fujita, T. Okita, “MD simulations for defect cluster orientation modeling under external stress”, The 15th International Conference on Fusion Reactor Materials, 2011.10, Charleston, SC, USA
- T. Okita, M. Shimizu, S. Fujita, H. Okuda, “A study to evaluate the interaction between a line dislocation and glissile loops in BCC Fe”, The 15th International Conference on Fusion Reactor Materials, 2011.10, Charleston, SC, USA
- M. Sagisaka, J. Etoh, Y. Isobe, T. Okita, “Development of Prediction Model of Ultrasonic Waves due to Irradiation-induced Material Degradations”, The 15th International Conference on Fusion Reactor Materials, 2011.10, Charleston, SC, USA
- 沖田泰良, 板倉充洋, 宮代聡, 菊池大朗, 佐野貴士, 磯部仁博, 匂坂充行, 江藤淳二, “実験的アプローチからの計算科学への貢献 – オーステナイト鋼の照射劣化を対象として-”, 第 21 回人工物コロキウム、第 23 回 CCSE ワークショップ, 2012.1
- 菊池大朗, 佐藤元洋, 森田賢史, 村上健太, 宮代聡, 沖田泰良, “イオン加速器連結走査型トンネル顕微鏡を用いたはじき出し損傷の直接観察による分子シミュレーションへの貢献”, 第 21 回人工物コロキウム、第 23 回 CCSE ワークショップ, 2012.1
- 沖田泰良, 磯部仁博, 匂坂充行, 江藤淳二: 原子力発電プラント構造材を対象とした放射線照射下マイクロ組織変化検出のための非破壊検査技術”, 応用物理学会第 59 回応用物理学関係連合講演会 2012.3, 東京
- T. Okita, M. Itakura, S. Fujita, S. Miyashiro, “A study to evaluate the interaction between a line dislocation and glissile loops in BCC Fe”, 10th World Congress on Computational Mechanics, July 2012, Sao Paulo, Brazil
- M. Itakura, S. Miyashiro, T. Okita, M. Yamaguchi, “Development an EAM potential for Fe-Cr-Ni alloys”, 10th World Congress on Computational Mechanics, July 2012, Sao Paulo, Brazil
- T. Okita, T. Sano, M. Sagisaka, J. Etoh, Y. Isobe, “Development of prediction model of ultrasonic wave changes due to irradiation-induced material degradations”, 20th International Conference on Nuclear Engineering Collocated with ASME 2012 Power Conference, July 2012, Anaheim, CA, USA
- S. Miyashiro, S. Fujita, M. Itakura, T. Okita, “Molecular dynamics simulations to evaluate the effect of applied strain on interstitial formation and orientation under collision cascade damage”, 20th International Conference on Nuclear Engineering Collocated with ASME 2012 Power Conference, July 2012, Anaheim, CA, USA
- T. Horinouchi, S. Miyashiro, M. Itakura, T. Okita, “Molecular dynamics simulations to evaluate the effect of the

difference in material properties on irradiation-induced defect formation under applied strain”, 20th International Conference on Nuclear Engineering Collocated with ASME 2012 Power Conference, July 2012, Anaheim, CA, USA

- M. Sato, T. Kikuchi, K. Murakami, S. Miyashiro, T. Okita, “ Direct observation of irradiation-induced defect formation on a Si(111) surface by a linked facility between an ion accelerator and STM”, 20th International Conference on Nuclear Engineering Collocated with ASME 2012 Power Conference, July 2012, Anaheim, CA, USA
- 佐藤元洋, 菊池大朗, 村上健太, 宮代 聡, 沖田泰良, ” イオン加速器連結型 STM による表面はじき出し損傷の原子レベルでの観察“, 日本原子力学会 2012 年秋の大会, 広島
- T. Okita, J. Etoh, T. Matsunaga, M. Sagisaka, Y. Isobe, F.A. Garner, “A non-destructive evaluation to measure irradiation-induced microstructure and resultant mechanical property changes by use of ultrasonic techniques”, Nuclear Materials 2012, 2012.10, Osaka, Japan
- 佐藤元洋, 平林潤一, 村上健太, 沖田泰良, ” イオン加速器連結型 STM による表面はじき出し損傷の原子レベルでの観察 (2)”, 日本原子力学会 2013 年春の大会, 大阪

[図書] (計 2 件)

- 沖田泰良 「原子炉のシミュレーション : 放射線環境下における材料損傷シミュレーション」, シミュレーション Vol. 30, No. 2, June, 2011
- 高橋浩之, 沖田泰良, 落合孝正, 「状態把握新技術適用性研究分科会の活動状況」, 保全学 Vol.10, No.2 July, 2011

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
出願年月日 :
国内外の別 :

○取得状況 (計 0 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
取得年月日 :
国内外の別 :

[その他]
ホームページ等 なし

[受賞] (6 件)

- 堀之内利浩, 宮代聡, 沖田泰良, 第 4 回日本原子力学会関東甲越支部学生研究発表会奨励賞 平成 23 年 3 月
- S. Miyashiro, S. Fujita, M. Itakura, T. Okita, Quantified student award for the 20th International Conference on Nuclear Engineering, 2012.8
- S. Miyashiro, S. Fujita, M. Itakura, T. Okita, Best Poster Competition for the 20th International Conference on Nuclear Engineering, 2012.8
- 細川 哲, 西尾慶太, 宮代 聡, 沖田泰良, 日本原子力学会 2013 年春の大会学生ポスターセッション, 優秀賞
- K. Asari, S. Miyashiro, M. Itakura, T. Okita, Quantified student award for the 21st International Conference on Nuclear Engineering, 2013
- J. Hirabayashi, M. Sato, K. Murakami, T. Okita, Quantified student award for the 21st International Conference on Nuclear Engineering, 2013

6. 研究組織

(1) 研究代表者

沖田泰良 (OKITA TAIRA)

東京大学 人工物工学研究センター 准教授

研究者番号 : 50401146

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし ()