

# 高速重イオン照射したアルミン酸マグネシウムの照射欠陥形成と構造変化に関する研究

山本, 知一

<https://hdl.handle.net/2324/4784724>

---

出版情報 : Kyushu University, 2021, 博士 (工学), 論文博士  
バージョン :  
権利関係 :

氏 名 : 山本 知一

論 文 名 : 高速重イオン照射したアルミン酸マグネシウムの照射欠陥形成と  
構造変化に関する研究

区 分 : 乙

## 論 文 内 容 の 要 旨

酸化物セラミックス材料は、融点が高く高温での安定性に優れ、絶縁性や優れた光学特性を有することから原子力分野においてもなくてはならない材料である。原子力材料は、放射線環境下で使用されることから、材料の特性変化を引き起こす照射効果を明らかにすることが重要である。セラミックス材料は、一般にイオン性の結晶であり、照射により形成される点欠陥の種類も多く、照射損傷の機構は複雑である。そのため、さまざまな放射線場での照射実験および原子スケールでのシミュレーションが盛んに行われている。本研究では、中性子照射に対して優れた放射線耐性を有することから、放射性廃棄物中の長寿命放射性核種の核変換処理における不活性母相材料や核融合炉における絶縁体材料およびプラズマ診断用レーザー窓の候補材料となっているアルミン酸マグネシウム（鉱物名：スピネル）を対象として照射損傷の研究を行なった。アルミン酸マグネシウムは代表的な鉱物でもあり、放射性廃棄物の地層処理における鉱物の照射損傷のモデル材料とみなすこともできる。不活性母相材料としての使用を考えた場合には、数十 MeV の核分裂片による照射損傷の影響が大きいと考えられるが、核分裂片のような高速重イオンによる照射欠陥の原子スケールでの形成機構の理解は不十分である。そこで本研究では、高速重イオン照射により形成される照射欠陥の構造および照射欠陥の蓄積に組織変化を電子顕微鏡および分子動力学シミュレーションにより明らかにすることを目的とした。

第 1 章では、本研究の背景と複合酸化物の照射損傷過程に関する研究を概説した後に、本研究の目的および本論文の構成について述べた。

第 2 章では、特性 X 線の発生強度が入射電子線のチャネリング条件に依存することを利用してイオン配列を解析する高角度分解能電子チャネリング X 線分光法 (HARECXS) の理論を述べた後に、電子顕微鏡を用いた測定方法およびシミュレーションを用いた X 線プロファイルの解析手法について述べた。

第 3 章では、高速重イオン照射したスピネル単結晶試料について高分解能電子顕微鏡 (HRTEM) 観察および HARECXS 法によるイオン配列の解析を行ない、高速重イオンによる高密度電子励起により形成される照射欠陥であるイオントラックの構造および照射欠陥の蓄積に伴う結晶構造の変化について検討した。HRTEM 観察からイオントラックの中心領域は、非晶質構造とはなっておらず結晶性であるものの原子数密度が数十%低下していることを明らかにした。イオントラック形成に伴うイオン配列の変化を HARECXS 法によるより調べたところ、HRTEM 観察において像として観察される領域の数倍の領域が不規則化していることを明らか

となった。またイオントラック面密度の照射量依存性について調べたところ、イオントラック損傷が重畳するような照射量において面密度が飽和することが明らかになった。このことは、イオントラックの形成時の結晶の融解に伴い既存のイオントラック損傷の回復が起こっていることを示唆しており、その影響領域の大きさは 200 MeV の Xe イオンに対して直径 14 nm と見積もられた。またイオントラック損傷が十回以上重畳するような高い照射量では、転位網が発達している様子が観察された。電子回折における 220 反射の強度が著しく低下したことから、高照射量の試料では、四面体位置の陽イオンが八面体位置へ移動し、結晶構造が欠陥岩塩構造へ変化することが明らかとなった。このことからイオントラックとして観察される中心領域以外の領域においても点欠陥および微小点欠陥クラスターが高密度電子励起によって形成されていることを示唆しており、高速重イオンによる照射損傷を考える場合には、じきだし損傷に加えて高密度電子励起による点欠陥導入を考慮に入れる必要があることを示した。

第 4 章では、Morooka らにより構築された経験的ポテンシャルを用いてスピネルのアンチサイト欠陥などの点欠陥や点欠陥クラスターの欠陥エネルギーを評価し、照射損傷における点欠陥の挙動について考察した。Mg イオンおよび Al イオンの格子間原子の安定構造は 16c ワイコフ八面体位置におけるスプリット構造であることが明らかとなった。また不規則スピネル構造、欠陥岩塩構造、アモルファス構造の格子エネルギーを評価することで、第 3 章で得られた構造変化の正当性を考察した。

第 5 章では、第 3 章で観察されたスピネル構造から欠陥岩塩構造への相変化過程を理解するために、フレンケル欠陥を逐次、導入しながら分子動力学計算法を用いて結晶構造変化を調べた。低温では、格子間原子は八面体位置を優先的に占有して欠陥岩塩構造に変化することを再現した。一方、格子間原子の移動が顕著となる高温では八面体空位を介した再結合が容易に生じ、陽イオン配列の不規則化が起こった後に欠陥岩塩構造への相変化が起きることが明らかとなったスピネル型構造の優れた耐照射損傷性は、八面体空位を介した再結合の起りやすさにあると考察した。

第 6 章では、本研究の得られた成果を総括し、今後の研究展望についてまとめた。