

## 話 題

## イオン加速器による複合ビーム材料照射装置と産業支援

木村 晃彦\*・檜木 達也\*・笠田 竜太\*・藪内 聖皓\*・松井 秀樹\*・近藤 創介\*

## Industry Support Program by Dual-beam Materials Irradiation Accelerator

Akihiko KIMURA\*, Tatsuya HINOKI\*, Ryuta KASADA\*, Kiyohiro YABUUCHI\*, Hideki MATSUI\* and Sosuke KONDO\*

## Abstract

Dual-beam irradiation facility for Energy science and Technology (DuET) has been used to support nuclear industry researches as well as those of non-nuclear field. Both the in-situ and post-irradiation experimental techniques, which are critical to understand radiation damage mechanisms such as irradiation creep, irradiation hardening evaluation by nano-indentation method and fabrication procedure of TEM thin foiles, are introduced. Besides radiation induced lattice defect formation, an example of surface modification technology using ion-accelerators is also introduced.

## 1. はじめに

京都大学エネルギー理工学研究所では、「イオン加速器とマルチスケール材料評価装置群による産業支援 (Application of DuET and MUSTER for Industrial Research Engineering, ADMIRE計画)」事業を実施している。本事業は文部科学省の委託事業で、平成19年度より「先端研究施設共用イノベーション創出事業【産業戦略利用】」として開始されているが、平成21年度からは補助金事業である「先端研究施設共用促進事業」に移行され、さらに平成25年度からは「先端研究基盤共用・プラットフォーム形成促進事業」として発展・強化されている。また、平成28年度からは新規事業としての展開が計画されている。本事業は、産業界をはじめとする産官学の研究者等との共用を促進するとともに、これらの施設・設備のネットワーク化や先端性の向上等を支援し、多様なユーザーニーズに効果的に対応するためのプラットフォームを形成し、もって「科学技術イノベーションによる重要課題の達成」、「日本企業の産業競争力の強化」、「研究開発投資効果の向上」に貢献することを目的としている<sup>1)</sup>。全国で34の大学・公共研究機関が同じ枠組みで実施しており、加速器関連では京都大学のほか、筑波大学、

高エネルギー加速器研究機構、日本原子力研究開発機構、放射線医学総合研究所が当該事業に採択されている。

## 2. 複合ビーム材料実験施設 (DuET)

DuET (Dual-beam irradiation facility for Energy science and Technology) は、図1に示すように加速電圧1.7 MVのタンデム型加速器 (HVEE Tandetron™ Model 4117) および加速電圧1.0 MVのシングルエンド型加速器 (Singletron™) の2つのラインで構成されている<sup>2)</sup>。この施設は、材料照射影響評価の研究用として建設されており、タンデム加速器では材料への照射損傷導入のための重イオン照射が行われ、ヘリウムイオン照射用のシングルエンド加速器との同時使用によって、核融合炉で想定される核変換反応により生成されるヘリウムの影響を模擬することが可能である。ターゲット室としては、タンデム加速器からのTBL-1とシングルエンド加速器からのSBL-1の交点に高精度照射室 (Dual-beam Materials Irradiation Station: DuMIS) が設置され、TBL-2とSBL-1の交点に高温分析室 (High-Temperature Materials Analyzing Station: HiMAS) が設置されている。HiMASでは1400°Cを超える超高温下での照射実験も可能であり、炭

\* 京都大学エネルギー理工学研究所 Kyoto University, Institute of Advanced Energy  
(E-mail: kimura@iae.kyoto-u.ac.jp)

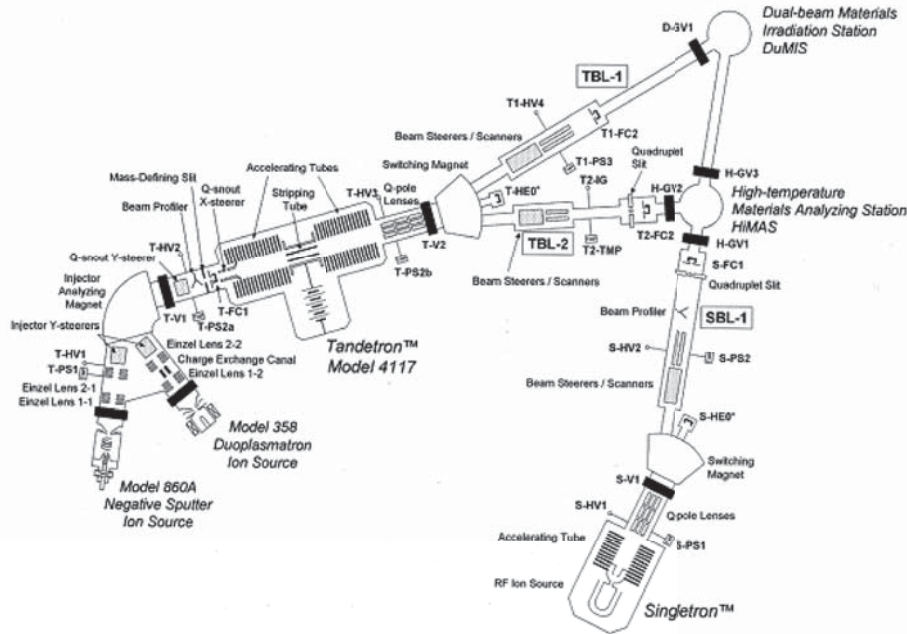


図1 DuET施設のビームライン構成<sup>2)</sup>

素複合材料ヒーターを装填した超高温加熱ホルダを用いて、最高温度 1600°Cでの照射実績がある。

### 3. 照射影響評価法

#### 3.1 炭化ケイ素の照射下寸法変化

材料の照射損傷の理解は、調べたい材料特性の損傷量（一般には dpa, displacement per atom の単位が用いられる）と照射温度への応答性を調べることから始まる。中性子照射データの重要性は議論の余地が無いが、広範な照射条件での原子炉照射には莫大な時間とコストが必要である。そのため、原子炉の安全性と熱効率の向上のための材料開発研究において、迅速にしかも低コストで照射データを取得できるイオン照射実験が果たしてきた役割は大きい。ここでは、比較的新しい材料である炭化ケイ素 (SiC) のイオン照射下における寸法変化の評価法を紹介する。

一般に、材料は照射を被ると原子の整列が乱れて密度が低下し、結果として体積を膨張させる場合がある。材料の一部にだけイオンビームを当てると、照射面だけが表面方向に膨張するため、ビームに晒されていない未照射域と照射域との間に段差が生じる。段差は通常数十 nm 程度であるが、原子間力顕微鏡や干渉光顕微鏡によって高精度に測定することができる。図2は Si イオンを照射した SiC 表面に形成された段差から見積もつ

た体積膨張 (スウェリング) の照射温度依存性を示している<sup>3)</sup>。He イオンを同時照射した結果も合わせて示してある。図から明らかなように、SiC のスウェリングは 1 dpa 程度で飽和傾向を示し、照射温度の上昇とともにその飽和値が低下していく。中性子照射した場合と比較しても、その値に有意差はほとんどないことが確認されており、本手法は SiC の寸法変化挙動を調べるための簡便な方法として利用されている。また、高純度の SiC は 1000°C 以下ではほとんど熱クリープを生じないが、非平衡の格子欠陥が生成される照射下においては、応力が負荷されると、いわゆる照射クリープが発生する。図3に、試料表面に曲げ変形により 300 MPa の引張応力を負荷してイオン照射した際の SiC 試料と試料ホルダを示す。100 μm 厚の SiC 薄板を弾性変形させたまま保持することで、照射後の試料はホルダから取り出した後も曲率を維持しており、最初に付与した曲率との差分から照射クリープを評価することができる。

#### 3.2 ナノインデントによる照射硬化評価

高エネルギー粒子線照射を受けた固体材料は、内部組織が変化することによって、強度特性が劣化する場合がある。例えば商用軽水炉の圧力容器は、安全上極めて重要な機器であり、用いられる低合金鋼の破壊靱性が使用条件を満たすことが要

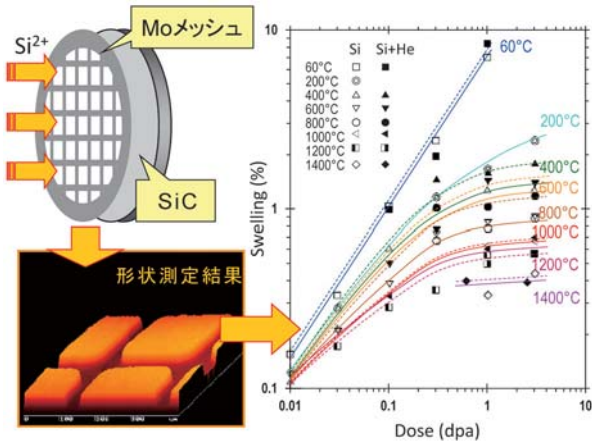


図2 AFM測定によるSiCのスウェリング評価<sup>3)</sup>

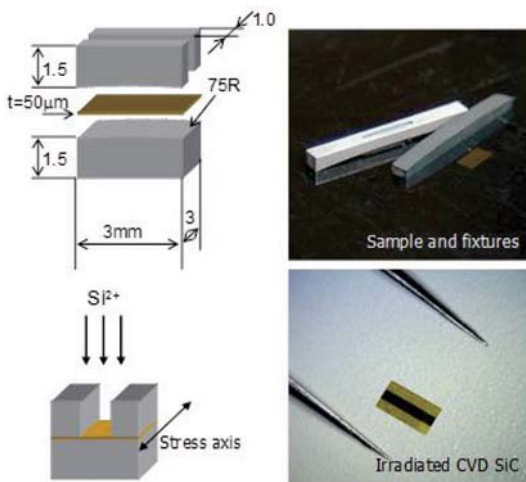


図3 応力負荷下照射による照射クリープ試験ホルダと薄板SiC試料

求されるが、炉心の核分裂反応によって生じる高速中性子の照射によって、破壊靱性が低下する(実際には延性脆性遷移温度の上昇として計測される場合が多い)「照射脆化」現象が年月の経過とともに徐々に進行することが知られている。照射脆化は、中性子照射によって形成される照射欠陥が結晶内の転位のすべり運動に対する障害物として作用することによって材料が硬化する「照射硬化」を伴うことから、照射硬化・脆化現象の理解は、将来の核融合炉に用いられる構造材料の開発にとっても重要な課題とされている。照射硬化現象の機構論的理解のためには、照射実験を簡便に実施することの可能な加速器を用いたイオン照射法が有用であり、我々の研究グループではこれまでに鉄基モデル合金を対象とするイオン照射研究により、压力容器鋼の主要構成元素であるMn原子が高照射領域において照射硬化を顕著に促進する

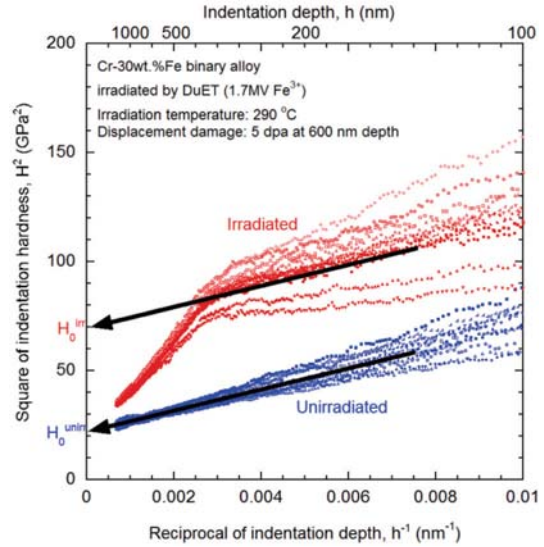


図4 鉄イオン照射したCr-30wt.%Fe合金に対するナノインデンテーション試験から得られた押し込み硬さ(H)と押し込み深さ(h)の関係をバルク相当硬さ(H<sub>0</sub>)の導出のために押し込み深さの逆数に対する押し込み硬さの二乗としてプロットした図<sup>5)</sup>

ことを明らかにしている<sup>4)</sup>。もちろん、イオン照射法における高損傷速度条件(弾き出し損傷量で換算すると、原子炉照射40年の損傷量をイオン照射では1時間以内で達成することも可能)で得られた知見をそのまま実機環境に適用できるわけではないが、イオン照射実験法が照射下での微細組織発達に伴う照射硬化・脆化機構の解明において有効な手段であることは過去の研究から広く認識されている。

一方、MeV程度エネルギーを持つ重イオン照射によって材料表面に与えられる損傷の深さは数 $\mu\text{m}$ 程度と微小な領域に限られるため、イオン照射硬化の評価はナノインデンテーション法を用いて行われてきた。しかし、イオン照射表面から得られる押し込み硬さは、損傷勾配影響、軟質背面影響、押し込みサイズ影響等が複雑に作用するため、ナノインデンテーション法による評価には注意を要することが指摘されていた。本研究グループでは、図4に示すように、イオン照射領域の押し込み硬さからビッカース硬さに換算可能な「バルク相当硬さ」を理論的に導出する方法を提案し、イオン照射法と中性子照射法で得られた材料強度特性を直接的に比較しうる方法を開発した<sup>5)</sup>。

### 3.3 微細組織観察

上述のイオン照射による強度などの材料のマク

口的特性の変化は、ミクロ的にはイオン照射下における原子の振る舞いの結果として形成される照射損傷組織に起因しており、照射による組織変化を明らかにすることは、材料照射影響評価研究において重要である。微細組織の変化を捉える方法は様々あるが、ここではイオン照射材に対してよく用いられている透過型電子顕微鏡 (TEM) に焦点を絞り、イオン照射材が故に難しいとされている TEM 試験片の作製方法について述べる。

前述したように、数 MeV 程度のエネルギーを持つ重イオン照射によって損傷を受ける領域は、試料表面からわずか数  $\mu\text{m}$  程度である。このような非常に浅い領域から TEM 試験片を作製する方法として、集束イオンビーム装置 (FIB) を用いる方法は有力な手法のひとつである。FIB は Ga イオンを試験片表面に衝突させることで原子をはじき飛ばし、超微細加工を行う装置である。ここではやや詳細にその手順を紹介する。まず、加工する試験片の表面にタングステン蒸着し、試料表面を保護する (図 5 (1))。次に保護した周囲を加工しておよそ  $1 \sim 2 \mu\text{m}$  程度の薄膜を作成する (図 5 (2))。その後、薄膜の周囲を切り取り (図 5 (3))、マイクロサンプリングシステムを用いて薄膜を取り出す (図 5 (4))。TEM 観察用のメッシュにのせた後 (図 5 (5))、さらに薄膜を薄く削っていくことで最終的には  $100 \text{ nm}$  程度の薄さに仕上げれば (図 5 (6))、FIB による工程は終了する。試験片が十分薄ければこのままでも TEM による観察は可能ではあるが、薄膜の表裏には FIB 加工に起因する損傷表面 (ダメージ層) が形成されており、これを除去しなければイオン照射により形成された損傷組織との区別が極めて困難となり、信頼性の高いデータは得られない (図 6 (a))。ダメージ層を除去する方法としては、低エネルギーイオンによる物理的除去および極短時間の電解研磨 (フラッシュ研磨) による化学的除去の 2 通りが挙げられる。前者は、数  $100 \text{ eV} \sim$  数  $\text{keV}$  程度の低エネルギー Ar イオンを用いて物理スパッタリングによりダメージ層を除去するため、材料によっては本手法に起因する欠陥や試験片表面のリップルが残存してしまう。これらの予期せぬ損傷と本来の観察対象である照射欠陥の区別は非常に困難であるため、本手法の適用については十分に注意が必要で

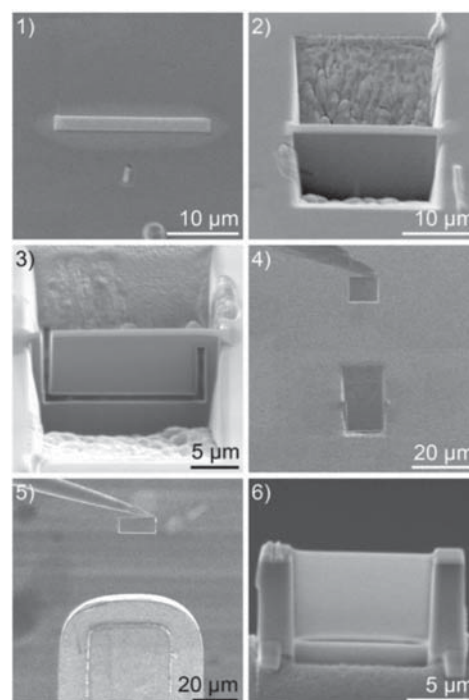


図 5 FIB による TEM 試験片作製手順

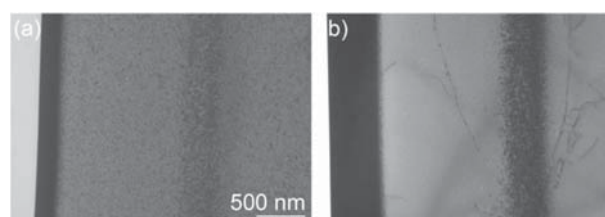


図 6 フラッシュ研磨前後の FIB ダメージ層の比較。  
(a) FIB まま, (b) フラッシュ研磨後

ある。後者は、電解研磨が可能な試験片であればもっとも信頼性の高い TEM 薄膜を得ることのできる手法であり、電解研磨時間をタイマーにより数  $\text{ms} \sim$  数  $10 \text{ ms}$  程度の極短時間に制御することにより、ダメージ層のみを除去することが可能である。電解研磨による試験片厚さの減少を予測し、事前の FIB による最終厚さを決定しなければならない難しさはあるが、電解研磨法では欠陥が導入されないため、照射欠陥の観察には適切な最終仕上げの手法と言える (図 6 (b))。

#### 4. イオンビームと表面微細加工技術

これまで紹介した照射影響評価法は、いわゆる材料に高エネルギー粒子線を照射することで照射損傷の度合いを調べ、原子炉材料などの健全性を評価するための実験的手法であり、イオン加速器は照射欠陥の導入を目的として使用されている。

一方、高エネルギー粒子線照射による損傷組織の形成を積極的に利用する「材料表面改質」の研究が進められている。ここでは、イオンビームを局所的に照射することで、表面に周期的な形状を任意に作成し、その後にイオンビームを全面に照射することで、表面形状をさらに変化させる手法を紹介する<sup>6)</sup>。

図7は非晶質化処理を施していないGe(100)ウェーハ上にGaイオンを初期ドーズ量  $1.13 \times 10^6$  ions/dot で照射して形成されたドット間隔120 nmの初期構造(scan 0)と、その後にそれに対し、さらにイメージスキャンを5, 10, 15, 20回行った場合(スキャン1回あたりのドーズ量は  $4.8 \times 10^{14}$  ions/cm<sup>2</sup>)のセル構造の変化の様子を示している(左が断面SEM像, 右が表面像)<sup>6)</sup>。この微細セル状構造の形成は、ナノ材料加工法として魅力的であり、応用例としてはセル構造自体の機能を利用することで電子エミッタ, フォトニック結晶などへの適用が考えられている。また, セル構造に磁性体や半導体を充填することでそれぞれ磁気メモリおよび電子デバイスとしての応用が期待されている。

## 5. 最後 に

加速器を利用しての産業支援は、現状においても原子力産業に限らず、磁性材料, 電子材料, 医療技術, 食品技術, 分析技術などの様々な分野を対象にして実施されており, 今後, ますます多様な応用分野に展開すると推測される。一方, 他分野のユーザーに対し, 加速器利用の有効性や可能性を理解してもらうための努力も必要である。その意味において, 日本原子力学会はもとより, 日本金属学会, 日本鉄鋼協会, 日本化学会, 日本物理学会などの他学会との連携が必要である。

なお, 京都大学の複合ビーム材料照射装置(DuET)の利用については, 下記のURL:

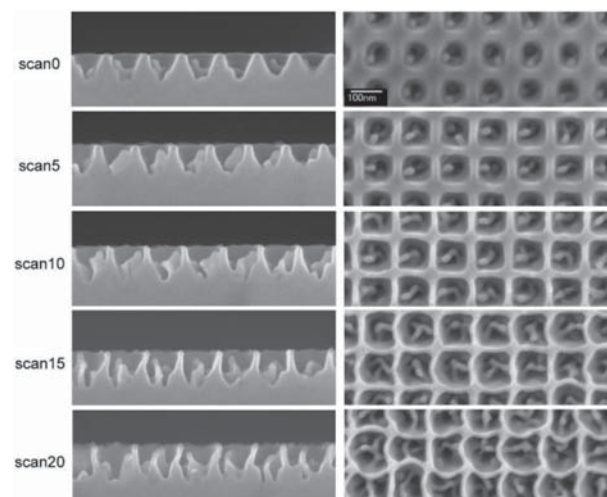


図7 非晶質化処理を施していないGe(100)ウェーハ上に形成されたセル構造(左が断面SEM像, 右が表面像)<sup>6)</sup>

<http://admire.iae.kyoto-u.ac.jp/public.html>を参照されたい。

## 参考文献

- 1) 文部科学省の共用ナビ HP : <http://kyoyonavi.mext.go.jp/info/about04>
- 2) Y. Katoh, H. Kishimoto, A. Kohyama, "The influences of irradiation temperature and helium production on the dimensional stability of silicon carbide," *Journal of Nuclear Materials*, 307-311, 1221-1226 (2002).
- 3) S. Kondo, T. Koyanagi, T. Hinoki, "Irradiation creep of 3C-SiC and microstructural understanding of the underlying mechanisms," *Journal of Nuclear Materials*, 448, 487-496 (2014).
- 4) K. Yabuuchi, R. Kasada, A. Kimura, "Effect of Mn addition on one-dimensional migration of dislocation loops in body-centered cubic Fe," *Acta Materialia* 61 (2013) 6517.
- 5) 笠田竜太, 「原子炉・核融合炉材料の照射硬化評価のための硬さ試験とナノインデンテーション」, *材料試験技術* Vol.60 No.1 (2015) 18.
- 6) 森田憲治, 新田紀子, 谷脇雅文, *日本金属学会誌* 第77巻第3号 (2013) 64.