高エネルギー重イオン照射場におかれた無機材料の挙動

岩瀬 彰宏* 石川 法人** 知見 康弘***

1. はじめに

100 MeV-GeV 領域の高エネルギー重イオンが物質中を通過するとき、物質中の原子核と直接衝突する確率(弾性的相互作用の断面積)は極めて小さいが、そのビームパスに沿って電子を極めて高密度に励起するという特徴的な現象が生ずる。このプロセスは、弾性的相互作用と異なり、原子核(あるいは格子系)に直接エネルギーを与えるプロセスではない。しかし、実際には高エネルギー重イオンによる電子励起状態が物質中で緩和する過程で格子系へとエネルギーを移行し、原子の変位(移動)に寄与する現象が、現在までに多くの物質で観測されている⁽¹⁾。過去の有名な例は高分子膜での潜在的トラック(latent track)生成である⁽²⁾。高エネルギー重イオンを高分子膜など有機物に照射したのち適当なエッチング液に浸すと、イオンの飛跡に沿った1次元状の領域がエッチングされることがよく知られており、フィルター作製などにも応用されている。この現象は、高エネルギー重イオンによってビームパス周辺の電子が励起・電離され、そのエネルギーが原子の変位をもたらす高分子の構造や結合状態が変化したために起こるものである。

このように高エネルギー重イオンによる電子励起が格子系へと緩和し固体の原子を変位させる現象(電子励起・原子変位過程と呼ぶ)は、従来、有機材料に多く見られる現象であった。無機材料でも、絶縁性のきわめて高い一部の酸化物などでは非晶質トラックとして以前から観測されていたが、半導体や金属系を含む物質でのより一般的な現象として、この電子励起・原子変位過程が注目を集めるようになったのは1980年代に入ってからである。それは、この時期に日本、フランスなどで大型重イオン加速器の稼動が始まり、核物理

研究領域だけでなく物性・材料研究領域の研究者も、これら大型施設を用いて積極的に実験を遂行したことと大いに関係があるように思われる。1980年代後半から90年代にかけて、イオン結晶、酸化物など絶縁体における非晶質トラック形成はもちろん、従来は電子励起・原子変位過程が起こらないとされていた金属系物質(アモルファス金属、合金、純金属)においてさえ、格子欠陥の消滅や生成⁽³⁾⁽⁴⁾、マクロな変形⁽⁵⁾、構造相転移⁽⁶⁾⁽⁷⁾といった形で電子励起・原子変位過程が報告されるに至った。また、バルクの現象だけでなく、電子励起が誘起するスパッタリングなどの表面現象も多く報告された⁽⁸⁾⁽⁹⁾。これらの現象は、固体内、あるいは表面で局所的・瞬間的に生ずる非熱平衡現象として学術的に興味深いものである。最近では、研究対象がクラスタービームによる電子励起効果⁽¹⁰⁾、電子励起・原子変位過程による異種元素ミキシング⁽¹¹⁾など多岐にわたるようになり、これらの結果から最近では、無機材料においても電子励起・原子変位過程を「ものづくり」に応用しようという動きが出てきている。さらに、核燃料の高燃焼度化時代を迎えた原子力の分野でも、100 MeV 領域のエネルギーを持つ核分裂生成物の燃料体への照射効果の解明が今後の重要なテーマとなっている⁽¹²⁾。

本稿では、最近筆者らが行った研究の成果を中心に、100 MeV-GeV 領域の高エネルギー重イオン照射場、特に、それによる高密度電子励起が無機材料に及ぼす効果と、そのメカニズムに関する考察について述べる。そして、この現象の材料改質への応用や原子炉の燃料体における照射効果についても言及したい。

2. 電子励起・原子変位過程による材料の構造変化

まず、我々の最近の研究成果のうち、高エネルギー重イオ

* 大阪府立大学教授；大学院工学研究科マテリアル工学分野(〒599-8531 堺市中区学園町1-1)

** 日本原子力研究開発機構原子力基礎工学研究部門主任研究員

*** 日本原子力研究開発機構安全研究センター研究員

Materials Response under High Energy Heavy Ion Irradiation Field; Akihiro Iwase*, Norito Ishikawa**, Yasuhiro Chimi***(*Department of Materials Science, Osaka Prefecture University, Sakai. **Nuclear Science and Engineering Directorate, Japan Atomic Energy Agency, Naka-gun, Ibaraki. ***Nuclear Safety Research Center, Japan Atomic Energy Agency, Naka-gun, Ibaraki)

Keywords: high energy heavy ions, high density electronic excitation, Coulomb explosion model, materials modification, nuclear fuels

2006年1月13日受理

ンによる酸化物超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ 、化合物半導体 GaAs での電子励起・原子変位過程の具体例を紹介する。

酸化物超伝導体(いわゆる高温超伝導体)は1986年に発見されて以来、超伝導転移温度が従来の合金系超伝導体と比べてはるかに高いことから、基礎的にも実用的にも注目され多く研究が成されてきた。しかし、酸化物超伝導体の弱点は、臨界電流密度が小さいことである。これは、磁場中で少し電流を流すと電気抵抗が現れ、超伝導体としては利用できないことを意味する。電気抵抗が現れる原因は、超伝導体中に侵入している磁束量子が磁場と電流の存在によるローレンツ力で移動することにより電圧が発生するためである。この電圧発生を抑えて磁場下で抵抗0の状態で使用できるようにするには、磁束量子が動かなくなるようにしてやればよい。これを磁束のピン止めというが、高エネルギー重イオンによって生成される1次元状の非晶質トラックが極めて有効であることがわかり、ある時期盛んに照射実験が行われた。

図1は、酸化物超伝導体の1種である $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_x$ (いわゆる Bi-2212)に理化学研究所リングサイクロトロン加速器を用いて0.7 GeV Kr, 3.5 GeV Xe, 3.8 GeV Ta, あるいは3.1 GeV Biを照射した後、電子顕微鏡で結晶構造変化を観察した結果を示す⁽¹³⁾。重イオンビームは紙面に対して垂直方向から入射している。いずれのイオン照射においても直径数ナノメートルの円状の白い像が見えるが、この領域は、実際は紙面に対して垂直方向に円柱状に伸びている結晶構造が著しく乱れた非晶質に近い領域である。これを柱状欠陥(Columnar defects)と呼ぶ。この欠陥の数密度は、照射したイオンの数密度と一致することから、これはイオン1本1本に対応する効果であるといえる。このようにイオンの通過した周辺領域に連続的に効果が現れるのは、それが電子励起に伴うことを強く示唆する。弾性的相互作用では、照射効果は不連続に現れるはずである。

同じく図1には、柱状欠陥の半径分布を各イオン照射に対して示している。半径の平均値は、照射イオンの質量、あるいは単位距離あたりの電子励起に費やされるエネルギー(電子的阻止能)が大きくなるにつれて増加する。Kr イオン照射では平均半径2 nm であるが、Xe イオン照射では2.5 nm, Bi イオン照射では5 nm に達する。もう1つ注目すべき点は、照射イオンの電子的阻止能が大きくなるに従い、柱状欠陥の径の分散が小さくなることである。これはターゲット内部でイオンの有効電荷の揺らぎが起これ、それに伴って電子的阻止能も変動することで説明できる。電子的阻止能の小さい場合、電氣的阻止能の揺らぎは円柱状欠陥の径に大きく影響を与えた結果、径の分散が大きくなったと考えられる。

図2は、化合物半導体 GaAs 単結晶を3.5 GeV のXe イオンで照射した後、超高真空中において円柱状欠陥に沿った場所でへき開し、その面をトンネル顕微鏡(STM)で観察したものである⁽¹⁴⁾。幅数ナノメートルの1次元状イメージが見えるが、これはXe イオンがGaAs中を通過したあと結晶構造が変化したことを示している。トラック中心部の黒く見える領域は結晶が大きく乱れた非晶質に近い状態であると考えられるが、その周辺領域でも異なった構造が見える。これは、結晶の乱れだけでなく、格子欠陥が入ることによって電子状態が大きく変化したことにもよる。

図1 (a) 0.7 GeV Kr, (b) 3.5 GeV Xe, (c) 3.8 GeV Ta, (d) 3.1 GeV Bi を照射した酸化物超伝導体 Bi-2212 における柱状欠陥と、その半径のサイズ分布⁽¹³⁾。

3. 電子励起・原子変位過程のメカニズムに関する考察

図1, 2で示されるような柱状欠陥は、その1次元的形状や電子的阻止能依存性から、重イオンによる電子励起がもたらしたことは間違いない。ではそのメカニズムはどのようなものであろうか。それは、電子励起状態から格子系へのエネルギー緩和プロセスが絡んでくるため、弾性的相互作用による欠陥生成過程と比べてはるかに複雑である。このメカニズムを考察するには、高速重イオンによる照射効果をより詳細

図2 3.5 GeV の Xe イオンを照射した GaAs 単結晶の柱状欠陥 (STM によるイメージ)⁽¹⁴⁾.

に調べる必要がある。そこで、我々は酸化物超伝導体 $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ をターゲットに選んで広いエネルギー範囲でさまざまなイオン種を用いた実験を行い、照射効果の電子的阻止能、イオン速度依存性などの詳細なデータを得た⁽¹⁵⁾⁽¹⁶⁾。ここでは結果の概略を紹介し、それに基づいて電子励起・原子変位過程のメカニズムを考察する。

酸化物超伝導体の高速重イオンによる柱状欠陥の研究は、前述したように超伝導特性の向上をもたらすこともあり盛んに行われたが、そのほとんどが電子顕微鏡によるものである。我々は、柱状欠陥内部の結晶構造が大きく乱れており、その部分の電気抵抗が他の部分と比べて増加しているであろうことを利用して、高速重イオン照射した試料の電気抵抗を「その場」測定し、電気抵抗の照射量依存性のデータから柱状欠陥の直径を求めることを試みた。図3に模式図を示す。イオン照射方向に電気抵抗の高い柱状領域が形成されるが、電流はそれと垂直方向に流し、試料両端の電圧を測定する。測定結果の例を図4に示す。照射による電気抵抗増加分を照射前の電気抵抗値で割った相対値をイオン照射量の関数としてプロットしている。当然のごとく、いずれの照射でも照射量とともに電気抵抗は増加していくが、特徴的なことはその増加の仕方である。Cl, Sr など比較的軽いイオンの場合、図4(a)に示すように照射量の増加とともに電気抵抗は飽和する傾向にある。それに対して I, Au といったより重いイオンでは、図4(b)に示すように、照射とともに電気抵抗は発散する方向である。これは円柱状欠陥内部の電気抵抗がイオン種によって異なると考えれば少なくとも定性的には説明できる。柱状欠陥内部の抵抗が周辺の抵抗に比べてあまり大きくない場合が前者である。一方、欠陥内部の抵抗が非常に大きい場合、照射とともに試料全体の抵抗は発散傾向を示す。極端な場合は欠陥内部の抵抗が無限大になったときであり、この場合は、照射量が大きくなっても発散傾向は続くことになる。我々は、柱状欠陥の直径と内部抵抗の2つをフィッティングパラメータとして用いて、Klaumuenzer が提唱した理論式⁽¹⁷⁾と実験で得られたカーブを一致させることによって、欠陥の直径と内部抵抗を求めた。図4の曲線がフィッティングさせた理論カーブであり、実験データと非常によく

図3 電気抵抗「その場」測定法による柱状欠陥の直径と欠陥内部抵抗測定。

図4 各種高速重イオン照射した酸化物超伝導体 $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ における電気抵抗変化(照射前の値との相対値)の照射量依存性⁽¹⁵⁾⁽¹⁶⁾。(a) 120 MeV Cl, 150 MeV Sc 照射の場合、(b) 90 MeV I, 200 MeV Au 照射の場合。

一致を示すことがわかる。

得られた結果を図5(a)に示す。図では各イオンに対して得られた柱状欠陥の直径を電子的阻止能でプロットしている。このデータを得るのに我々は2つの大型加速器を利用している。Cl, Sc, Ni, Br, I, Au はエネルギー域が 90–200 MeV のイオンであり、日本原子力研究開発機構(東海)のタンデム加速器により加速されたイオンである。また、Kr, Xe, Ta は GeV 領域のエネルギーのイオンであり、理化学研究所のリングサイクロトロン加速器で加速されたイオンである。電子的阻止能は、イオンが単位距離ターゲット中を進む

図5 (a)酸化物超伝導体 $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ の柱状欠陥の電子的阻止能依存性⁽¹⁵⁾⁽¹⁶⁾. (b)各種重イオンの電子的阻止能のイオン速度依存性.

間にターゲットの電子励起に費やすエネルギーであり、電子励起に関する最も基本的な物理量であるから、電子励起に伴う照射効果を電子的阻止能でまずプロットするのは自然なことである。いくつかのイオン種に対する柱状欠陥の直径は電子的阻止能に良く比例している。しかし、この比例直線から大きく外れたデータもいくつか見られる。柱状欠陥内部の電気抵抗に関しても全く同じ傾向が見られる⁽¹⁵⁾⁽¹⁶⁾。比例直線に良く載ったデータのうち、Cl, Scのエネルギー域は90-200 MeVであり、Kr, Xe, TaはGeV領域のイオンである。従って、エネルギーの大小で、電子的阻止能と照射効果(柱状欠陥の直径と内部抵抗)が比例したりしなかったりするわけではない。

では、電子的阻止能に対する依存性がイオン種によって2つのグループに分かれる理由は何であろうか。それを考察するために、電子的阻止能のイオン速度依存性を見てみよう(図5(b))⁽¹⁸⁾。図の横軸はイオンのエネルギーをイオンの質量で割ったものであるが、これはイオン速度の2乗に相当するので、このグラフは電子的阻止能のイオン速度依存性を示しているとして良い。一般に、電子的阻止能は、はじめはイオン速度の増加とともに増大するが最大値を示した後減少する。これは、主にイオンがターゲット電子に与えるエネルギーとその相互作用の断面積といった2種類の物理量のイ

オン速度依存性によって決まるが、ターゲット内でのイオンの有効電荷もまた電子的阻止能を決定する重要な要因である。図には、阻止能の最大値よりも低速度側にあるイオンを●印で、高速度側にあるイオンを○印で示している。図5(a)と比べると、電子的阻止能の最大値を与える速度より高速度側のイオンでは、照射効果が電子的阻止能に比例し、低速度側のイオンでは、それより大きな照射効果を示すということがわかる。つまり、同じ電子的阻止能を与えるイオンでも速度が異なれば異なった照射効果を示すことになる、これを「速度効果」(velocity effect)と呼んでいる。電子励起・原子変位のメカニズムは、少なくとも、実験で示されたこの速度効果を説明できなければならない。この点から、現在提唱されているメカニズムのうち主な2つ、すなわち「熱スパイクモデル」と「クーロン爆発モデル」について検証してみる。

「熱スパイクモデル」とは、ターゲットに入射した放射線のエネルギーがターゲットの電子系または格子系へ移行した状態を、温度の局所の上昇として捉えるものである。格子系における熱スパイクモデルの概念は、1952年出版のSeitz, Koehlerの論文にすでに記されており⁽¹⁹⁾、そこには電子系での熱スパイクに関しても少し記述されている。高エネルギー重イオン(核分裂片)によるトラック形成メカニズムとして熱スパイクモデルを提唱したのはChadderton⁽²⁰⁾であり、1980年後半からはフランスCIRIL研究所のToulemonde、中国近代物理研究所のWangらが、電子系での緩和と電子・格子相互作用も含めた形での熱スパイクモデルを、金属における電子励起・原子変位過程や酸化物などで得られた高エネルギー重イオンによる柱状欠陥形状の解析に用いている⁽²¹⁾⁽²²⁾。Toulemondeらの熱スパイクモデルによる照射イオンからターゲット原子へのエネルギー過程に関する模式図を図6に示す。高速重イオンはターゲット内で電子の高密度励起を起こした結果、高エネルギーの2次電子(デルタ線という)が大量に発生する。デルタ線はターゲット中を走る途中に他の電子と衝突を繰り返し、電子系が高温になった状態が出現する。その後、電子格子相互作用によりそのエネルギーは格子系へと移行する。その結果、格子系も高温状態となり局所的に融解するが、イオンが通り過ぎたあと、もはや熱源がないので融解された状態は高速クエンチされて非晶質化する、というストーリーである。Toulemondeらは、「速度効果」についても彼らの熱スパイクモデルの枠内で以下のように説明ができると主張している。電子励起に伴うデルタ線のエネルギーはイオン速度の増加に伴って増加し飛程が増す。その結果、より広い領域でデルタ線のエネルギーが格子系に移行する。それは格子系に与えられるエネルギー密度が減少することを意味する。非晶質化の程度はこのエネルギー密度が大きいほど大きいと考えられるので、同じ電子的阻止能でも、格子に与えられるエネルギー密度の大きい低速度イオンのほうが照射効果は大きい。しかし、もしこの説明に従うなら、イオンの速度が大きくなればなるほど格子へ緩和されるエネルギーの密度は減少するはずである。従って、図5(b)で示す高速度側のイオン(○印で示したイオン)に関しても速度効果は現れなければならない。しかし実験結果はそうではなく、これらのイオンでは照射効果は電子的阻止能に

図6 熱スパイクモデルによる照射イオンからターゲット原子へのエネルギー移行の模式図。

よって一義的に決まりさらにそれに比例する。つまり、熱スパイクモデルは、実験で示された速度効果を説明できないのである。Toulemonde らの熱スパイクモデルは他にもいろいろ問題を含んでいる。電子系、格子系それぞれにおいて温度の空間的・時間的変化を追いかけけるのであるが、そのときマクロな系でしかも熱平衡状態で得られた熱伝導率や比熱の値を用いている。さらに温度の概念を 10^{-17} 秒といった短時間の現象で用いるのである。

熱スパイクモデルと並んで良く議論されるもう1つのモデルは、「クーロン爆発モデル」と呼ばれるモデルである。これは鉱物などの絶縁体や高分子の潜在トラック(latent track)生成に対して Fleischer らが用いたものである⁽²³⁾。このモデルによる照射イオンからターゲット格子系へのエネルギー移行の様子を示したものが図7である。高速重イオンがターゲット内で電子を高密度に電離するところまでは熱スパイクモデルと同じであるが、それにより発生した2次電子線に注目するのではなく、ターゲットの格子系の状態が電子の電離によってどう変わったかを議論するのである。電子が電離するということは、ターゲットを構成する原子がプラスに帯電するということである。イオンの通った周辺で電子が電離すれば、そこに存在するプラスに帯電した原子同士はクーロン相互作用により反発する。いいかえれば格子系に静電エネルギーが蓄積することになる。静電エネルギーは反発力で原子が格子位置から移動することによって格子系へと緩和される。

熱スパイクモデルの場合、照射イオンから電子励起を経て格子系へエネルギーを移行させるのに2次電子(デルタ線)のエネルギーが重要な役割を担った。イオンが単位距離進む間に発生するデルタ線の総エネルギーはほぼ電子の阻止能であるから、熱スパイクモデルの場合電子の阻止能が最重要の物理的パラメータであった。一方、クーロン爆発モデルの場合は、イオンが単位距離進む間に電離する電子の数、あるいはプラスに帯電した原子の数が重要なパラメータになる。これを表すのが初期イオン化断面積(Primary Ionization Cross Section)であり、通常 dJ/dx で表す(これに対して電子の阻止能は Se と書く)。電子の阻止能 Se と初期イオン化断面積 dJ/dx は、詳しい係数や補正項などは別として本質的には以

図7 クーロン爆発モデルによる照射イオンからターゲット原子へのエネルギー移行の模式図。

下のように書ける。

$$Se \approx \int E_i d\sigma \approx \frac{(Z_1^*)^2}{v^2} \ln \left(\frac{2m_e v^2}{I} \right) \quad (1)$$

$$\frac{dJ}{dx} \approx \int d\sigma \approx \frac{(Z_1^*)^2}{v^2} \quad (2)$$

ここで、 $d\sigma$ は重イオンと電子との散乱微分断面積、 E_i はその衝突で電子が受け取るエネルギー、 Z_1^* は重イオンの物質内での有効電荷、 v は重イオン速度、 I は平均励起ポテンシャル、 m_e は電子の質量である。電子の阻止能とは、照射イオンから電子に移ったエネルギー E_i の重みをつけて、そのような相互作用が起こる微分断面積 $d\sigma$ を積分した量であり、式(1)に示すように、イオンの有効電荷の平方に比例し、イオン速度の平方に反比例する他、イオン速度の対数の項も現れる。これに対し、初期イオン化断面積は、電離された電子に移行するエネルギーではなく電子を電離する現象の回数であるから、電離された電子のエネルギーの重みをつけないで、電子を電離する事象の微分断面積だけを積分すればよい。その結果、式(2)のように電子の阻止能で現れた対数の項の無い表式が得られる。実際の解析では、式(1)、(2)ではなく、Bethe などによって求められたより正確な Se および dJ/dx の値を用いている⁽²⁴⁾。

図8にはイオン種がXe、ターゲット物質がEuBa₂Cu₃O_xの場合の Se 、 dJ/dx のイオン速度依存性を示す(横軸はエネルギーをイオンの質量で割ったものであり、イオン速度の2乗に相当する)。一般的に、どのようなイオンとターゲットの組み合わせに対しても、 Se と dJ/dx のイオン速度依存性の違いは図8に示したようになる。2つの物理量のイオン速度依存性の違いのポイントは2つある。1つは、高速度イオン、つまり電子の阻止能の最大値を与えるイオン速度よりも速いイオンに関しては、2つともほぼ同じイオン速度依存性を示すことである。そしてもう1つは、低速度イオンに関しては、両者のイオン速度依存性は大きく異なることである。イオン速度が減少して電子の阻止能が最大値を過ぎて減少し始めていても、初期イオン化断面積は、さらに増加する傾向にある。このことは、図5(a)で示したように電子の阻止能の関数としてはうまくスケールリングできなかった照射効果が、初期イオン化断面積を用いればうまくスケールリングで

図8 電子阻止能と初期イオン化断面積。図は照射イオンがXe，ターゲットがEuBa₂Cu₃O_xの場合を表しているが，一般的に， S_e と dJ/dx は同様のイオンエネルギー依存性を示す。

図9 酸化物超伝導体EuBa₂Cu₃O_xの柱状欠陥の初期イオン化断面積依存性⁽¹⁵⁾⁽¹⁶⁾。

きるのではないかとこの予感をいだかせる。実際それは事実である。図9には、酸化物超伝導体EuBa₂Cu₃O_xの高エネルギー重イオン照射によって生成した柱状欠陥の直径を初期イオン化断面積でプロットしたものを示す。電子の阻止能の関数としてプロットしたときは大きくばらつくが(図5(a))，初期イオン化断面積の関数としては見事にスケールされることがわかる。さらに、興味深いことは、柱状欠陥の直径は、はじめのうちは初期イオン化断面積に比例して増加することである。柱状欠陥内部の電気抵抗も同様に初期イオン化断面積に比例して増加する⁽¹⁵⁾⁽¹⁶⁾。このことは、ある初期イオン化断面積の値より以下では照射効果は現れず、ある値から突然現れるということは無く、初期イオン化断面積が非常に小さな値でも、なんらかの照射効果が出るであろうことを示唆している。柱状欠陥の電子顕微鏡観察では、しばしば電子の阻止能の閾値というのが出てきて、この値以下の阻止能では照射効果は現れないとしているが、本当は照射効果が現れないのではなく、「見ていない」ということであろう。

初期イオン化断面積が電子励起による照射効果をうまくス

図10 (a) 高エネルギー重イオン照射したイットリウム鉄ガーネット(YIG)の(a)柱状欠陥半径の電子的阻止能依存性⁽²⁵⁾，および(b)初期イオン化断面積依存性(文献(25)のデータをもとに，本稿の筆者が再プロットしたもの)．図のカーブはデータ点に合わせて引いたものである。

ケーリングする例をあといくつか紹介しよう。図10は、熱スパイクモデルを熱心に主張する Toulemonde のグループによってなされた実験結果に関するものである⁽²⁵⁾。彼らはイットリウム鉄ガーネット(YIG)を各種重イオンで照射し、電子顕微鏡観察などで柱状欠陥の直径を調べ電子的阻止能の関数としてプロットしている。図10(a)には彼らの論文に現れるグラフを示す。我々の実験結果と同様、速度効果が明確に現れている。これらのデータを初期イオン化断面積で再プロットしたものが図10(b)である。多少のデータのばらつきは残るものの、電子的阻止能でプロットした場合よりははるかに良くデータが整理されている。図11は、純鉄をターゲットにして得られた電子励起による欠陥生成断面積を電子的阻止能および初期イオン化断面積でプロットしたものである⁽²⁶⁾⁽²⁷⁾。純鉄の場合、電子励起・原子変位過程によって作られる欠陥は、非晶質トラックではなく、空格子点と格子間原子からなるフレンケル対と考えられる。この場合も、電子的阻止能の関数としては大きくばらつく欠陥生成断面積が dJ/dx の関数として非常にうまくスケールされていることがわかる。さらに、図11(b)によれば、純鉄の電子励起に伴う欠陥生成断面積は (dJ/dx) の3乗に比例している。

照射効果の dJ/dx 依存性については、特に電子励起による

図11 高速重イオン照射した純鉄の電子励起による欠陥生成断面積⁽²⁶⁾⁽²⁷⁾. (a)は電子的阻止能の関数として、また(b)は初期イオン化断面積の関数としてプロットしたもの。

スパッタリング現象に関して議論されている。Haff は、簡単な物理的考察から、電子励起によるスパッタリング率は dJ/dx の 2 乗に比例することを予測し⁽²⁸⁾、Bringa らは、計算機シミュレーションにより同様な結果を得ている⁽²⁹⁾⁽³⁰⁾。また、Seiberling らは、クーロン爆発により格子系に移行したエネルギーが熱化するモデル(thermalized ion explosion model)を用いて、スパッタリング率が dJ/dx の 4 乗に比例する実験事実を説明している⁽³¹⁾。一方、バルク材料の高エネルギーイオン照射効果について我々は、これまで本稿で述べた実験結果以外にも高エネルギー重イオン照射効果に関するいくつかの dJ/dx 依存性を見出している。高エネルギー重イオン照射した酸化物超伝導体 $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ の格子定数変化は、 dJ/dx の 4 乗に比例し⁽¹⁶⁾⁽³²⁾、純鉄における照射アニリング現象(試料中に存在する格子欠陥が照射によって消滅する現象)の断面積は dJ/dx の 2 乗に比例する⁽²⁷⁾。

以上のように、多くの場合、初期イオン化断面積 dJ/dx は高エネルギー重イオン照射場におかれた無機材料の挙動をうまく整理できる。これらの実験結果は、クーロン爆発モデルを主張するための強力な状況証拠である。今後、クーロン爆発が起こるのに十分な電子励起状態の寿命がどのような機構で確保されるのか、そして、高エネルギー重イオン照射効果が 2 乗、3 乗、4 乗といった様々な (dJ/dx) のべき乗に比例するという、 dJ/dx に対する大きな非線形性の物理的意味は何か、といった点を解明していくことが重要である。

4. マテリアル工学への応用

100 MeV-GeV 領域の高エネルギー重イオンによる高密度電子励起・原子変位過程の大きな特徴の 1 つに、その効果がイオンパスの周辺数ナノメートルに局在することが挙げられる(図 1, 2 参照)。これは材料をナノメートルスケールで改質できる可能性を示している。直径数ナノメートルの非晶質トラック導入による高温超伝導体の臨界電流向上は成功例の 1 つである。また、照射粒子の種類やエネルギー、照射量、照射時の材料温度など、高精度で制御できるパラメータが多いことも、マテリアル改質の観点からみて大きな利点であろう。

既に挙げた実験例の他に、高エネルギー重イオン照射場を利用した材料改質に繋がるものとして、我々はこれまでに、異種元素ミキシング⁽³³⁾、合金における磁性変化⁽³⁴⁾⁻⁽³⁶⁾、固体内ナノ微粒子分散⁽³⁷⁾といった現象を見出している。これらの現象を用いて、より具体的な材料改質への展開が今後の課題である。

5. 高エネルギー重イオン照射場におかれた燃料体

核分裂型原子炉のシステムを構成する材料・燃料は、中性子やガンマ線などの放射線場に曝されるが、その燃料体(二酸化ウランセラミックス)に対する放射線場は特に過酷である。燃料体内部では、ウランが中性子を吸収して、質量数の分布が 90-100、および 135-145 付近にピークを持ち合計の運動エネルギーが約 170 MeV である 2 個の核分裂片が生成される。このような高エネルギー核分裂片は、燃料体内部で結晶組織や密度を大きく変化させることが判っている⁽³⁸⁾⁽³⁹⁾。その原因となるのは以下の 3 つのプロセスの重畳効果であると考えられる。まず核分裂片と燃料体との弾性衝突によって大量の弾き出し損傷が形成される。また、ウランの 7% 程度の燃焼といった燃焼の大幅な進行により核分裂生成物が蓄積する。核分裂生成物のうち特に希ガス原子(Xe, Kr)は燃料体に固溶せず、照射下で動的に固溶するか気泡形成や粒界への析出が起こる。さらに、高エネルギー核分裂片がもたらす電子励起・原子変位過程による欠陥の生成、欠陥のアニール、希ガス原子の拡散促進などが生ずることが予想される。これら 3 つの効果、すなわち、弾性的弾き出しによる欠陥生成、電子励起・原子変位過程、そして希ガス原子の蓄積、が同時に起こることが、照射効果をより複雑なものとする。その結果、たとえばリム組織⁽⁴⁰⁾といった特殊な構造変化が発現すると思われる。そのメカニズムを理解するには、電子励起・原子変位過程をはじめとする個々のプロセスに対するメカニズムを十分理解し、それらを燃料体におかれた複合照射場に応用して行くというアプローチが必要である⁽¹²⁾。

6. おわりに

高エネルギー重イオン照射場において物質・材料中にもたらされる高密度電子励起・原子変位過程は、学術的に大変興味ある対象であるとともに、そこで生ずるエキゾチックな構

本稿の一部は、原子力委員会の評価に基づき、文部科学省原子力試験研究「照射・高線量領域の材料挙動制御のための新しいエンジニアリング」（研究代表者：木下幹康電力中央研究所上席研究員）の研究費を用いて実施された研究調査に基づくものである。

- (1) 高エネルギー重イオンによる高密度電子励起が物質に与える効果については、その多くが、物質内の高速重イオン国際シンポジウム(International Symposium on Swift Heavy Ions in Matter, SHIM)および、固体内原子衝突国際会議(International Conference on Atomic Collisions in Solids, ICACS)において発表されている。両会議とも、ProceedingsはNucl. Instr. Meth. Bに掲載されている。
- (2) R. L. Fleischer, P. B. Price and R. M. Walker: Nuclear Tracks in Solids (University of California Press, 1975)。
- (3) A. Iwase, S. Sasaki, T. Iwata and T. Nihira: Phys. Rev. Lett., **58**(1987), 2450-2453.
- (4) A. Dunlop, D. Lesueur, P. Legrand and H. Dammak: Nucl. Instr. Meth., B **90**(1994), 330-338.
- (5) S. Klaumuenzer, Ming-dong Hou and G. Schumacher: Phys. Rev. Lett., **57**(1986), 850-853.
- (6) H. Dammak, A. Barbu, A. Dunlop and D. Lesueur: Phil. Mag. Lett., **67**(1993), 253-259.
- (7) A. Barbu, A. Dunlop, D. Lesueur and R. S. Averback: Europhys. Lett., **15**(1991), 37-42.
- (8) M. Toulemonde, W. Assmann, C. Trautmann, F. Gtuenner, H. D. Mieskes, H. Kucal and Z. G. Wang: Nucl. Instr. Meth., B **212**(2003), 346-357.
- (9) N. Matsunami, M. Sataka and A. Iwase: Nucl. Instr. Meth., B **175-177**(2001), 56-61.
- (10) たとえば, N. Ishikawa, C. J. Van der Beek, A. Dunlop, G. Jaskierowicz, M. Li, P. H. Kes and S. Della-Negra: J. Phys. Soc. Jpn., **73**(2004), 2813-2821.
- (11) たとえば, S. Kraft, B. Schattat, W. Bolse, S. Klaumuenzer, F. Harbsmeier, A. Kulinska and A. Loeffl: J. Appl. Phys., **91**(2002), 1129-1134.
- (12) 原子炉の燃料体における高エネルギー核分裂生成物照射効果の研究に関しては、平成16年度から、文部科学省において原子力試験研究「照射・高線量領域の材料挙動制御のための新しいエンジニアリング」(研究代表者: 木下幹康電力中央研究所上席研究員)が充足している。
- (13) N. Kuroda, N. Ishikawa, Y. Chimi, A. Iwase, H. Ikeda, R. Yoshizaki and T. Kambara: Phys. Rev., B **63**(2001), 224502.
- (14) A. Hida, A. Iwase, Y. Mera, T. Kambara and K. Maeda: Nucl. Instr. Meth., B **209**(2003), 140-144.
- (15) N. Ishikawa, A. Iwase, Y. Chimi, O. Michikami, H. Wakana and T. Kambara: J. Phys. Soc. Jpn., **69**(2000), 3563-3575.
- (16) N. Ishikawa: Thesis (The University of Tsukuba, 2000)。
- (17) S. Klaumuenzer: Radiat. Eff., **126**(1993), 141-145.
- (18) J. F. Ziegler, <http://www.srim.org/>
- (19) F. Seitz, J. S. Koehler: in Solid State Physics (Academic, New York, 1956) vol. **2**, pp. 305-448.
- (20) L. T. Chadderton and H. M. Montagu-Pollock: Proc. Royal Soc., A **274**(1963), 239-252.

- 岩瀬彰宏
 1978年 3 月 東京大学大学院工学系研究科(物理工学専攻)博士課程中途退学
 1978年 4 月 日本原子力研究所入所
 2003年 4 月 大阪府立大学先端科学研究所教授
 2005年 4 月 現職
 専門分野：放射線物性，格子欠陥学
 放射線と物質の相互作用，各種ビーム(電子，イオン，X線)を用いた材料研
 究，材料評価などの研究に従事。

知見康弘