



JAEA-Technology

2024-012

DOI:10.11484/jaea-technology-2024-012

EBSD を利用したセラミックス中の照射損傷の 解析手法の検討

Application of EBSD as a Method for Analyzing Irradiation Damage in Ceramics

藤村 由希 石川 法人 近藤 啓悦

Yuki FUJIMURA, Norito ISHIKAWA and Keietsu KONDO

原子力科学研究所

原子力基礎工学研究センター

Nuclear Science and Engineering Center

Nuclear Science Research Institute

October 2024

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Technology

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。本レポートはクリエイティブ・コモンズ表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。本レポートの成果（データを含む）に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の条件で利用してください。（<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja>）
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト（<https://www.jaea.go.jp>）より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究開発推進部 科学技術情報課
〒 319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 番地 49
E-mail: ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en>).
Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under the same terms and conditions as CC-BY.
For inquiries regarding this report, please contact Library, Institutional Repository and INIS Section, Research and Development Promotion Department, Japan Atomic Energy Agency.
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan
E-mail: ird-support@jaea.go.jp

EBSD を利用したセラミックス中の照射損傷の解析手法の検討

日本原子力研究開発機構 原子力科学研究所
原子力基礎工学研究センター

藤村 由希、石川 法人、近藤 啓悦

(2024 年 7 月 4 日受理)

高い高温強度・耐腐食性を有するセラミックス材料は化学的に安定であり、その中でも特に酸化アルミニウム (Al_2O_3) は、耐照射性にも優れた材料であることが分かっている。一方で、耐照射性が高いということは照射損傷の度合いが小さいということを意味しており、ごくわずかな照射影響について検知し、適切に評価するのは非常に困難である。本研究ではこの「微小な照射損傷」を捉えるため、金属などを主体とする他の構造材料における照射影響解析の場面で利用されている電子後方散乱回折 (EBSD) パターンを用いた格子ひずみ (弾性ひずみ) の解析をセラミックス材料に適用した。照射損傷の影響を抽出するために、酸化アルミニウム (Al_2O_3) を原料とした単結晶サファイアを対象にし、いくつかの異なる照射量でイオン照射試験を行い、EBSD 測定と格子ひずみ解析を実施したところ、これまでに分かっていた照射面と垂直方向の照射影響 (格子膨張) に加えて、新たに水平方向の照射影響 (格子収縮) を捉えることに成功した。さらに、照射量が増加するとともに照射損傷の程度も大きくなる傾向が見られた。以上のことから、EBSD は照射損傷によるセラミックス中の格子ひずみの照射量依存性を検知・評価できる有力な手法であることを明らかにした。

Application of EBSD as a Method for Analyzing Irradiation Damage in Ceramics

Yuki FUJIMURA, Norito ISHIKAWA and Keietsu KONDO

Nuclear Science and Engineering Center
Nuclear Science Research Institute
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received July 4, 2024)

While ceramic materials exhibit high temperature strength and corrosion resistance, they are also chemically stable. Specifically, aluminum oxide (Al_2O_3) is recognized as one of the highly radiation resistant materials. On the other hand, the precise evaluation of irradiation damage in these materials poses a significant challenge because detecting radiation damage induced in highly radiation-resistant ceramics is difficult. The objective of this study is to evaluate irradiation-induced lattice strain using Electron BackScatter Diffraction (EBSD), a technique commonly employed for damage analysis in metals. Ion irradiation tests were conducted on Al_2O_3 , a representative highly radiation-resistant ceramic, at various doses. Through lattice strain analysis using EBSD, we successfully identified irradiation-induced lattice strain in the direction parallel to the irradiation, consistent with previous XRD analysis results. Lattice strain in the direction perpendicular to the irradiation was also detected. It was observed that the lattice strain tends to increase with increasing irradiation damage. In conclusion, lattice strain analysis using EBSD proves to be an effective method for assessing the irradiation effects on ceramics.

Keywords: Ceramic Materials, Al_2O_3 , EBSD, Ion Irradiation, Lattice Strain Analysis, Irradiation Damage

目次

1. はじめに	1
2. 測定・解析手法	2
3. 実験方法	7
3.1 試料情報およびイオン照射条件	7
3.2 前処理および SEM 観察・EBSD 測定条件	10
3.3 格子ひずみ解析条件	18
4. 結果と考察	19
5. まとめ	25
謝辞	26
参考文献	26

Contents

1. Introduction	1
2. Measurement and Analysis Methods	2
3. Experiment	7
3.1 Sample and Ion Irradiation Conditions	7
3.2 Sample Preparation, SEM Observation and EBSD Measurement Conditions	10
3.3 Lattice Strain Analysis	18
4. Results and Discussions	19
5. Summary	25
Acknowledgements	26
References	26

This is a blank page.

1. はじめに

高い高温強度・耐腐食性を有するセラミックスは、原子力システムにおいて、絶縁材等の機能材料として利用されている。また、化学的に不活性なことから、岩石型酸化物燃料の母材としても検討されてきた。岩石型酸化物燃料は高レベル廃棄物として直接地層処分することも想定しているが、地層処分では、プルトニウムの自発核分裂により生成する100~200 MeV のキセノン (Xe) 照射に対して長期間の構造安定性が求められ、その構造評価法の開発および材料劣化予測が重要課題である。近年の報告^{1,2)}では、特定のセラミックスが照射環境下でも高い安定性をもつことが分かりつつあり、特に酸化アルミニウム (Al_2O_3) は、耐照射性が高い材料であることが分かっている。一方で、耐照射性の高いセラミックス材料の照射影響について評価する際、評価対象となる結晶の配列変化などのわずかな構造変化を検知することが難しく、照射損傷およびそれに伴う材料の構造変化の適切な評価手法については模索中の段階である。

一方、金属などを主体とする他の構造材料における照射に誘起される構造変化の解析においては、試験片の結晶方位の変化やひずみの分布状態を観察・測定することが照射劣化機構解明の手段として用いられることが増えてきており、これらの情報を得るために、電子後方散乱回折 (Electron BackScatter Diffraction:EBSD) 測定が適用されている。

金属などの材料に照射損傷が導入、もしくは外力が負荷されると、材料内部において局所的な結晶のひずみや結晶方位の変化が生じる。EBSD 測定は材料に電子線を当てて取得できる電子回折パターンを解析することで結晶構造の微小な変化を検知し、解析することを可能とする方法である。近年は、PC 性能の向上やそれに伴う画像処理技術の向上により、塑性ひずみに至る前段階である格子ひずみ (弾性ひずみ) の解析技術が急速に発達してきている。格子ひずみを測定する方法は EBSD 以外にもいくつかあるが、その中でも EBSD パターンによるひずみ測定の特徴として、圧縮・引張、せん断、微小回転を区別することができる、それらを視覚的に分かりやすく出力できるといった利点がある。

本研究では、この EBSD 測定法のセラミックス材料の照射影響評価への適用可能性について検証するため、セラミックス材料を対象としてイオン照射によって引き起こされる格子ひずみの評価を試みた。照射損傷に伴う微小な格子ひずみを検知して解析するという本研究の目的のためには、複雑な結晶構造を有する多結晶材料よりも単結晶材料の方が解析の考察がし易いと考えられる。このことから、冒頭で述べたセラミックス材料開発における課題の一つである「微小な照射損傷の検知」については、単結晶のセラミックス材料の EBSD パターンを利用した格子ひずみ解析が有効ではないかと考えた。具体的には、高温強度に優れ耐腐食性・耐照射性の高いセラミックスの代表である酸化アルミニウム (Al_2O_3) を原料とした単結晶サファイアを対象として EBSD・格子ひずみ解析を実施し、照射影響評価に取り組んだ。本報告書は、これらの実験手法とその結果についてまとめたものである。

2. 測定・解析手法

① EBSD法の概要

EBSDとは電子後方散乱回折（Electron BackScatter Diffraction:EBS D）のことで、EBSP（Electron BackScattering Pattern:EBSP）と呼ばれることもある。通常、EBSD測定装置は走査電子顕微鏡（Scanning Electron Microscope:SEM）の試料室内に組み込んで使用される。Fig.2.1に示すように、SEM試料室内で試料を大きく傾斜させた状態で電子線を照射すると、試料表面から約20 nm深さの内部領域で電子線が散乱（非弾性散乱）し、試料中の全方向に広がる。試料表面方向に向かって散乱した電子の一部は、試料表面近傍の特定の結晶面で相互作用した後に試料表面から出てくる。このような過程を経て表面から放射された電子の強度分布をEBSD測定用のカメラにて撮影すると、Fig.2.1に示すような電子線回折像（EBSDパターン）を得ることができる。EBSDパターン中には、バンド状のコントラスト模様が複数、規則的に交差しているのを確認することができる。これらは菊池バンドと呼ばれ、散乱電子が試料中に存在する結晶面で相互作用したことによって形成されたものであり、結晶面による回折現象によって形成されたものであるが、X線回折パターンのように逆格子を反映したものではなく、試料中の結晶面の実格子を反映して蛍光板に投影されているとみなすことができる。すなわち、菊池バンドは材料中の結晶面の配置に関する情報を与えるものであり、複数の菊池バンドを含むEBSDパターンを解析することで、電子線を照射した領域の結晶構造とその配置角度に関する情報を取得することが可能となる³⁾。EBSD解析においては、SEM試料室内に設置されたカメラで取り込まれたEBSDパターン画像を記録し、この画像に対してHough変換法という画像解析手法を適用することでパターン中のすべての菊池バンドを検出・位置情報を取得する。その後、この複数の菊池バンド同士の角度関係（すなわち結晶面が形成する角度関係）を計算し、事前に解析ソフトウェアに入力している観察材料の結晶構造データと照らし合わせながら試料表面に対する結晶の配置状況（結晶方位）を算出する。試料表面で電子線を走査し、連続的に上述の結晶方位計算を行うことで、試料表面に存在する結晶情報を得ることが可能となる。パターンを取り込む際にあらかじめ結晶構造のデータを入力しておく必要があるため、結晶構造が一切不明な試料については適応できないが、測定前に結晶構造が既知の結晶については非常に有効な結晶評価法である⁴⁾。

EBSD法で結晶方位を算出することで得られる結晶情報の一例として、結晶粒形、再結晶率・変形率、相同定・分布および相変化、局所的な結晶格子の回転角度、などがある。電子線を走査して連続的なデータを取得する性質上、これらの情報を視覚的に理解しやすいマッピングデータとして出力できる。

一例として、本研究でを使用した SEM/EBSD システムを用いてこれまでに取得した SUS316L オーステナイト系ステンレス鋼 SEM 観察像と、同一視野を EBSD 分析して得られた結晶情報の 1 つである逆極点図マップ (Inverse Pole Figure Map: IPF map) を Fig.2.2 に示す。

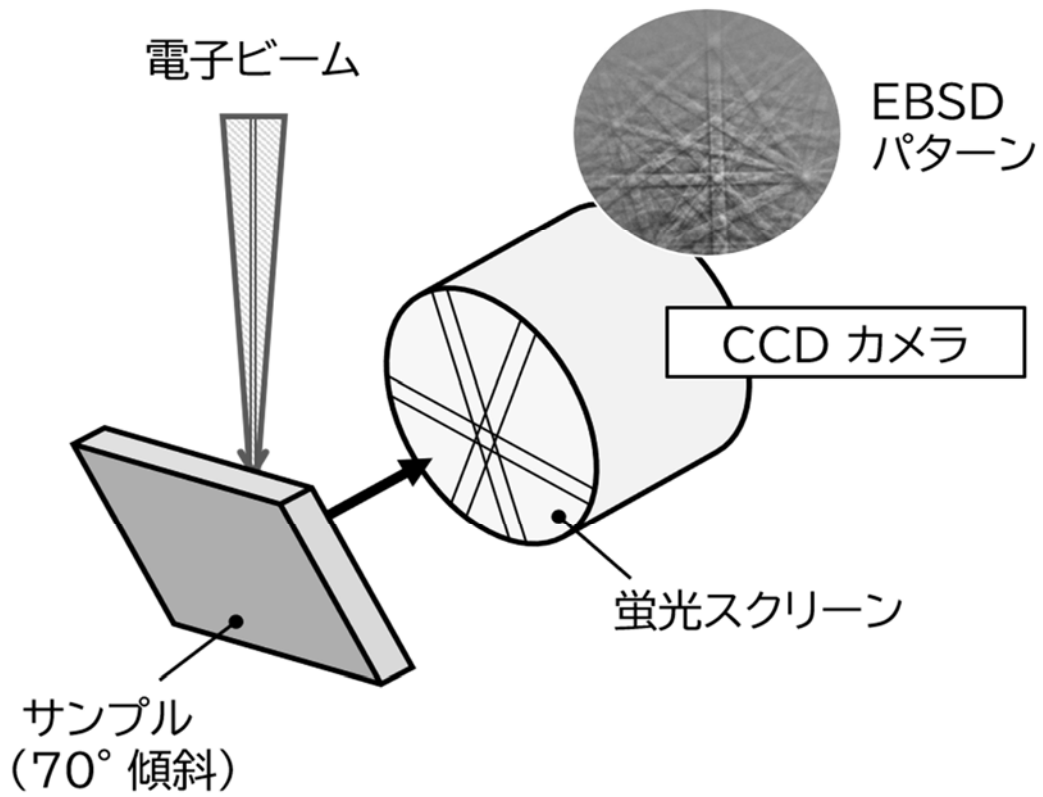


Fig.2.1 SEM チャンバー内の模式図

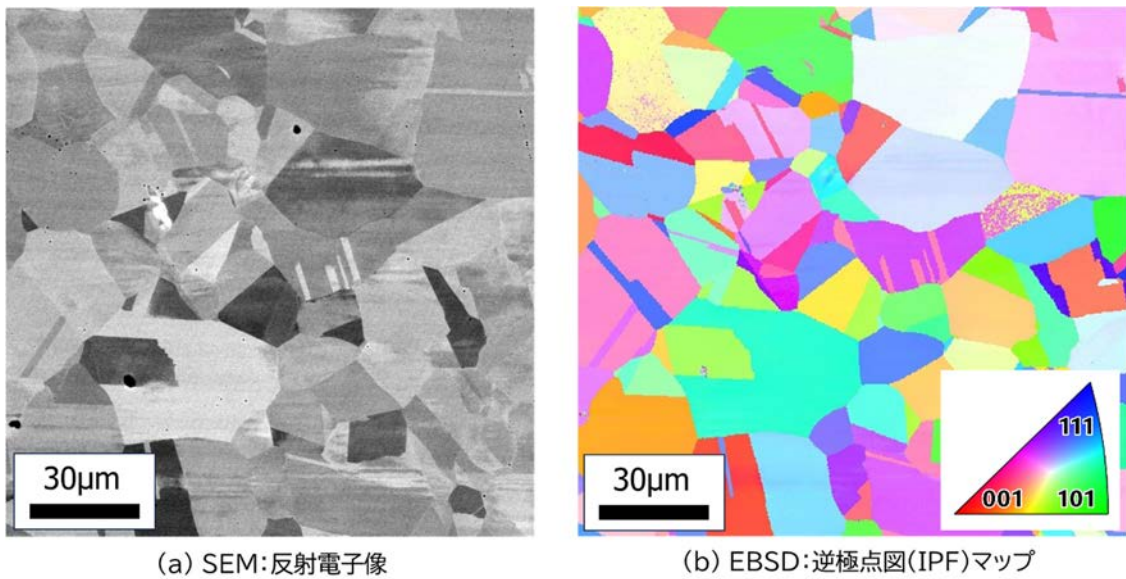


Fig.2.2 SUS316L オーステナイト系ステンレス鋼の
(a) SEM 観察結果および(b)EBSD による結晶方位解析例

② EBSD データを用いた格子ひずみ解析法

上述した Hough 変換法によるバンド検出と角度計算を用いた結晶方位解析 (Hough transform analysis) では、算出される結晶方位の精度は 2° 程度とされており、バンド検出の精度が主に影響を及ぼしている⁵⁾。一方で、EBSD 法で取得する EBSD パターンは実格子をそのまま投影しているため、パターン画像そのものを直接画像解析 (Direct pattern analysis) することにより、より精度の高い結晶方位情報を得ることができる。このような解析を実際に行うには高い演算処理能力を有する計算機が必要となるが、この手法を実現することにより近年、算出される結晶方位の精度は 0.5° 以下と Hough 変換解析よりも格段に向上し、結晶格子のひずみのような微小な格子変化を捉えることが可能となってきている⁶⁾。本研究でも、精度の高いこの手法を採用している。

本研究では、イオン照射されることによって生じるセラミックス材料の結晶格子変化を捉えることを目的として、照射後サンプルに EBSD 測定を実施した。その際の手順を以下に示す。取得したすべての EBSD パターンについて、まずは画像として保存する。次に、高速フーリエ変換による画像解析により、測定点 (格子ひずみが発生している箇所) の EBSD パターンと、参照点のパターンとを比較し、測定点の EBSD パターンに現れる菊池バンドのシフト量や回転角度を精度よく解析する。ここで、本研究では測定点と同一結晶粒内で KAM 値 (Kernel Average Misorientation) が最も小さい測定点を参照点として設定している。この解析により、参照点の結晶格子と比較して、測定点に存在する結晶格子が引張もしくは圧縮状態にあるか等の情報を得ることができる (Fig.2.3)。この手法による大きな特徴は、測定点において生じているわずかなひずみ、例えば、弾性変形によるひずみを定量的に、3次元 (試料横幅方向、試料縦幅方向、試料面法線方向) で評価することが可能となることである。このわずかな変化の検出においては、EBSD パターンの全体をそのまま比較するのではなく、Fig.2.4 に示すように EBSD パターンを複数の対象領域 (ROI) に分割したのち、測定点と参照点の同一 ROI で比較し、その差をひずみに換算して格子ひずみとして算出する。

この一連の解析 (EBSD パターンの変化を解析し格子ひずみを捉える) を行うためのソフトウェアが、Graham Meaden 博士が運営する BLG Production Inc. (英) により『CrossCourt』として製品化されている⁷⁾。CrossCourt を使用するためのハードウェアはユーザーレベルで高性能化が可能なことや、既存の EBSD 測定データを使用して解析を行うことから、格子ひずみを非常に迅速かつ簡便に解析することが可能である。

格子ひずみの測定方法は、X 線回折法や顕微ラマン分光法などいくつかあるが、EBSD パターンによるひずみ測定の特徴は、圧縮/引張、せん断そして微小回転を区別しテンソルとして 3 次元的に算出できることである。他の手法と比較して、精度を損なうことなく、より多くの情報を取得し、可視化することが可能となっている。

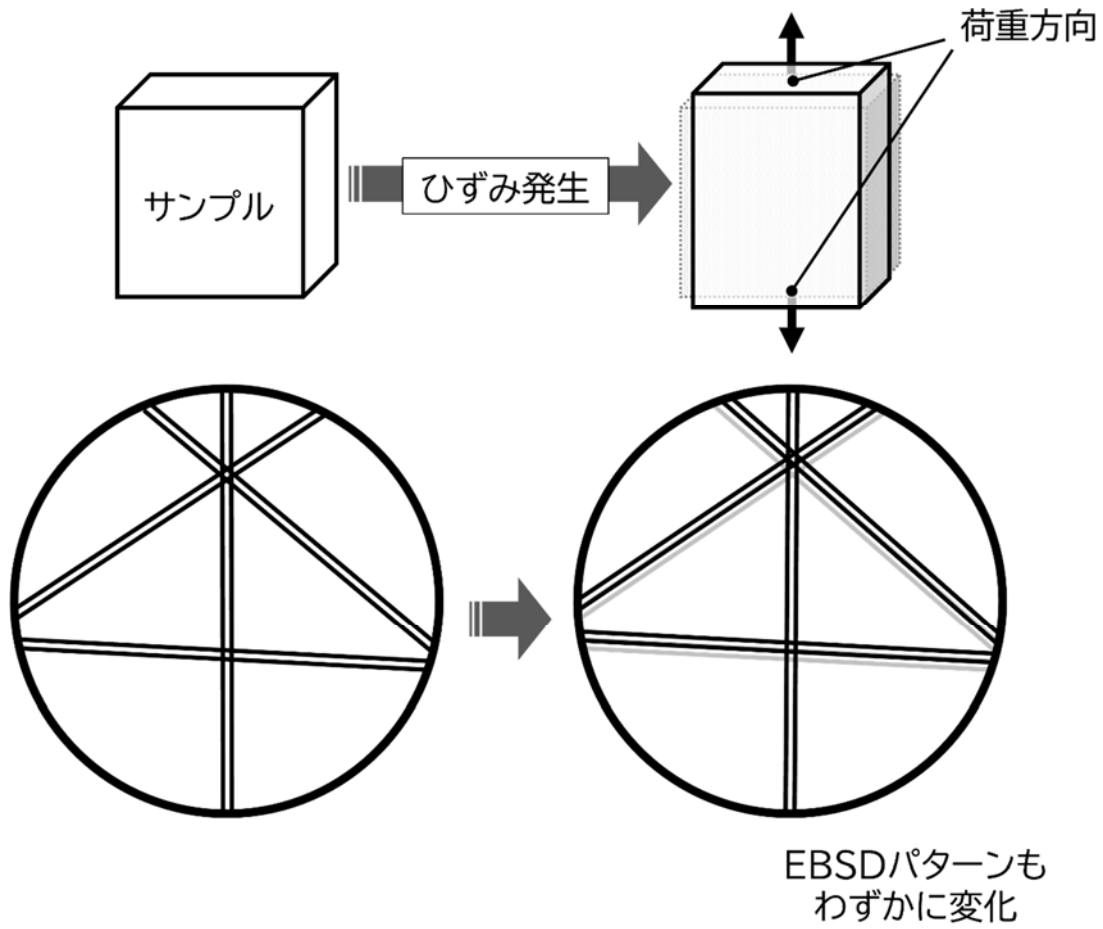


Fig.2.3 格子ひずみと EBSD パターンの関係性

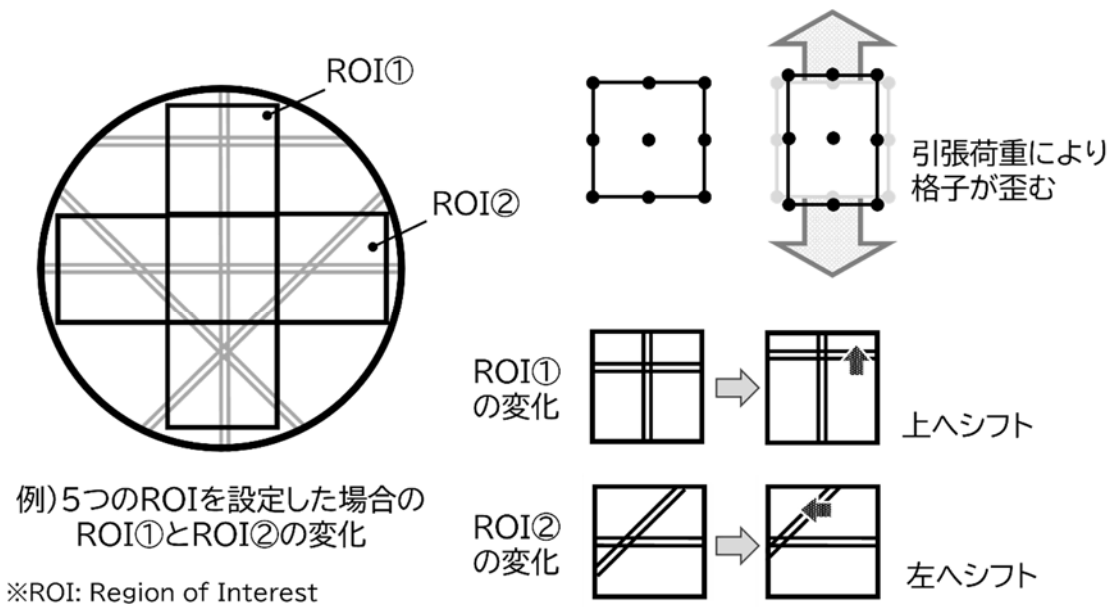


Fig.2.4 ROI による EBSD パターン解析方法の概念

3. 実験方法

本研究における試料の前処理から解析までの工程を示す。片面を鏡面研磨したサファイア (Al_2O_3) 単結晶試料にイオン照射試験を実施し、照射後にオスミウムコーターにて導通処理を行った。その後、電界放出型走査型電子顕微鏡 (FE-SEM: Field Emission gun-Scanning Electron Microscope) を使用し、データ収集ツール OIM Data Collection (OIM-DC) にて EBSD パターンの収集を行った。取得した EBSD パターンから CrossCourt にて結晶ひずみ解析を行い、試料の照射部と未照射部の違いを評価した。以下に各工程の詳細を示す。

3.1 試料情報およびイオン照射条件

(1) 試料

CrysTec 社製の $20\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 0.2\text{ mm}$ の片面研磨サファイア (Al_2O_3) 単結晶 (11 $\bar{2}$ 0) 面を使用した。酸化アルミニウムの単結晶で、高温安定型のコランダム構造をとる $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ となっている。試料の外観を Photo 3.1 に、結晶構造情報を Fig.3.1 に示す⁸⁾。

(2) イオン照射試験

日本原子力研究開発機構 原子力科学研究所の 20 MV タンデム加速器のビームラインにおいて、室温、真空中で 200 MeV Au¹⁴⁺イオンビームを試料に照射した。このイオン種、イオンエネルギーの条件では、30.6 keV/nm という比較的高い電子的阻止能 (イオンから材料の電子系に伝達されるエネルギー密度) を実現できる。高エネルギー核分裂片による照射損傷は高い電子的阻止能が主な原因であり、このような高エネルギー核分裂片を実験的にシミュレーションするために、本研究では高い電子的阻止能を実現する照射条件を設定した。また、結晶のひずみ変化の照射量依存性を調べるために、4 つの試料について、それぞれ 2×10^{12} , 4×10^{12} , 6×10^{12} , 8×10^{12} ions/cm² の異なる照射量まで照射した。先行研究⁹⁾によると、 $10^{12} \sim 10^{13}$ ions/cm² の範囲で顕著な XRD ピークのシフトが観測されたことから、本研究でもその範囲の照射量を設定した。200 MeV Au イオンのアルミニウム中の飛程は 20 μm であり、その 10 倍の厚さの 0.2 mm 厚のアルミニウムであれば十分イオンがアルミニウム中で止まるため、本研究では、0.2 mm 厚のアルミニウムを使用してマスクを製作し、サンプルの一部にマスクングを行った。照射の際は、マスク部分が未照射部分、それ以外が照射部分となるように配慮した。マスクングのイメージ図を Fig.3.2 に示す。これは前述した通り最終的に CrossCourt にてひずみ解析を行う際、ひずみ測定部 (イオン照射部) 近傍でひずみの無い箇所を参照点 (マスク部) として設定する必要があるためである。

今回のような高エネルギーの条件では、主に高い電子的阻止能に由来して照射損傷が形

成される。具体的には、表面付近では 30.6 keV/nm の電子的阻止能に由来する照射損傷が形成される。また、表面から離れるにつれて電子的阻止能が低下するものの、電子的阻止能の深さ依存性を考慮すると、表面から深さおよそ $20 \text{ }\mu\text{m}$ にわたって照射損傷が形成されると考えられる。一方で、EBSD は極表面（数 nm 程度）での結晶情報を検知している。したがって、表面からある程度深くまで照射損傷が分布しているものの、実際には極表面近くの格子ひずみを EBSD で評価していると考えられる。

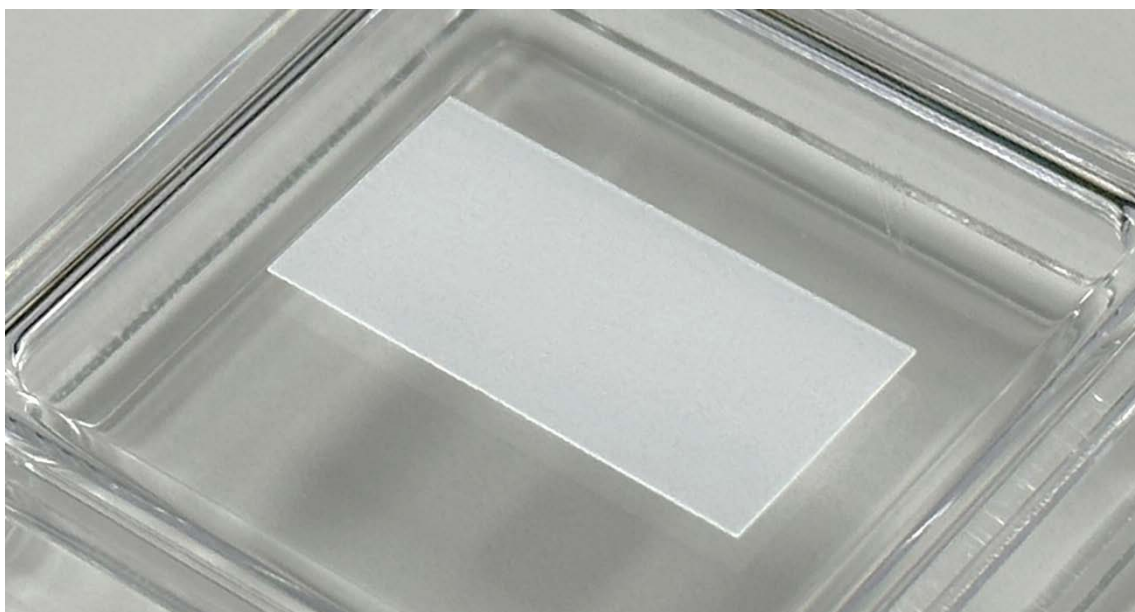


Photo 3.1 試料外観

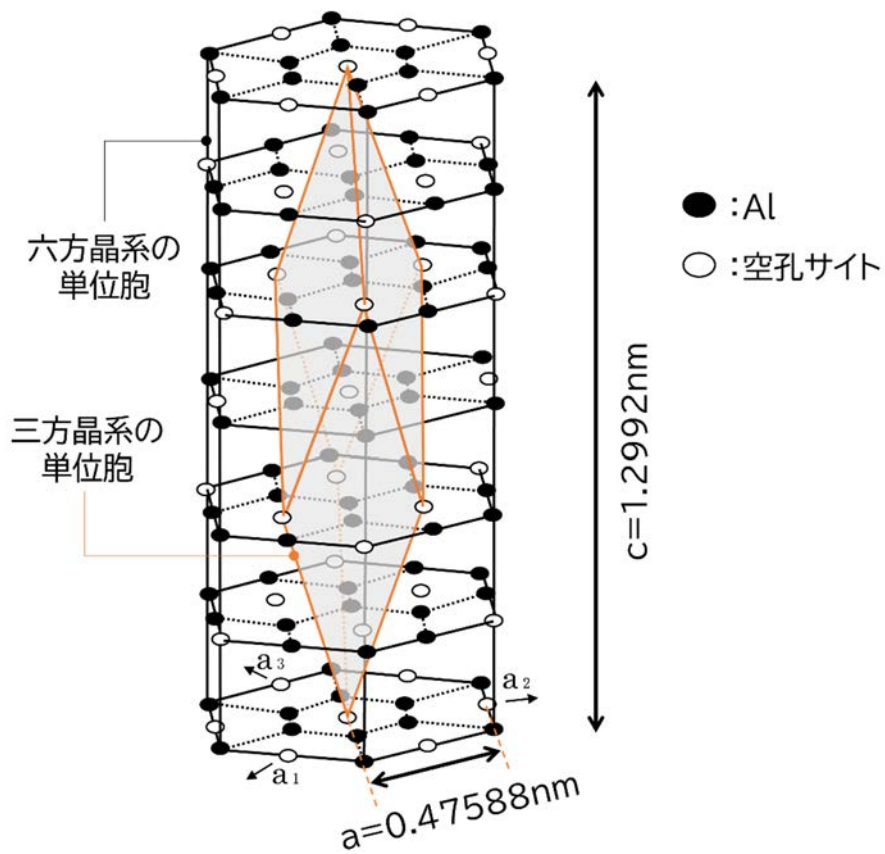


Fig.3.1 結晶構造情報

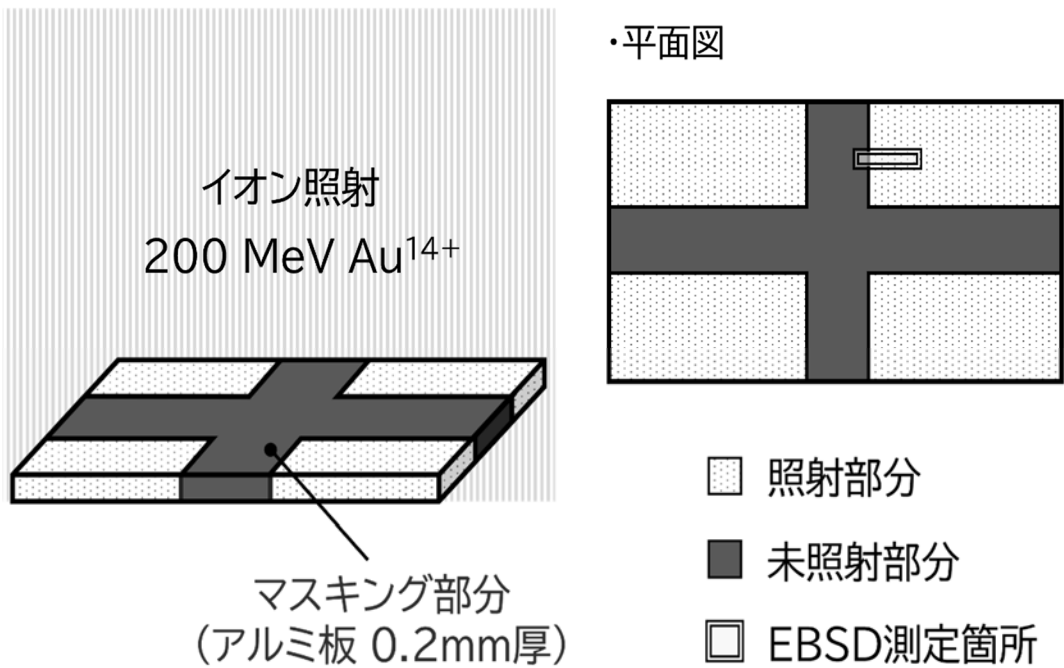


Fig.3.2 マスキングのイメージ図

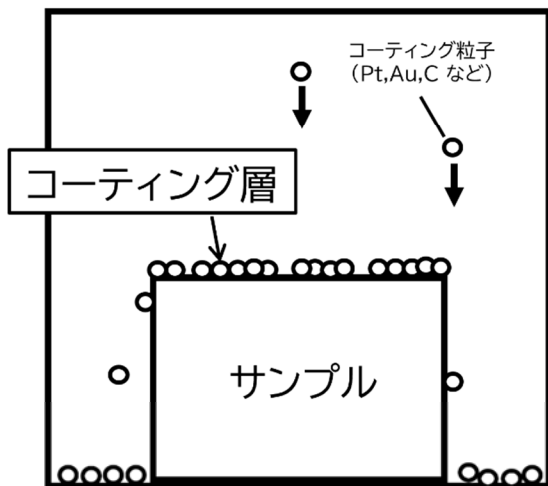
3.2 前処理および SEM 観察・EBSD 測定条件

(1) コーティング

本研究で使用するサファイア (Al_2O_3) 単結晶試料は導電性のない試料であることから、SEM 観察および EBSD 測定を行うためには帯電を防ぐ導通処理が必要になる。そこでオスミウムコーター (真空デバイス社製、HCP-20) を用いて、オスミウムを使用した導通処理 (オスミウムコーティング) をイオン照射後の試料に対して行った。オスミウムコーティングは真空チャンバー内に四酸化オスミウムガスを導入し、放電によりプラズマ化させて、試料に薄いオスミウムの膜をコーティングする。ガスを利用したこのコーティング方法は、一般的なスパッタコーティング法に比べ非常に薄い (約 10 nm 程度) コーティング膜を均一に生成可能である (Fig.3.3)。オスミウムのコーティング膜はアモルファス (非晶質) のため EBSD パターンは発生しないことから、本研究で実施する EBSD 測定への影響はほとんど無いと考えられる。

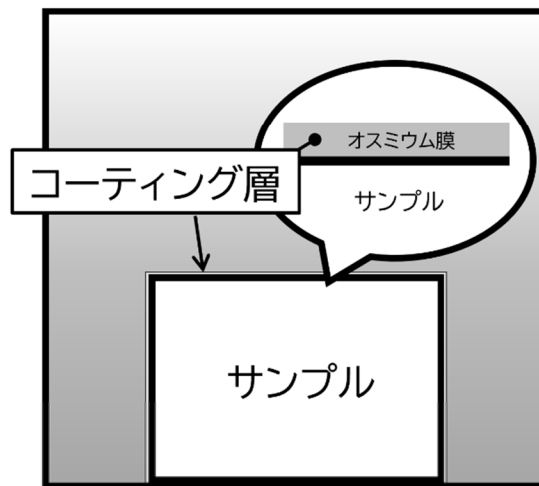
コーティングについては、試料をチャンバー中央部に置き、空気雰囲気中で 10 秒間 (膜厚換算: 12 nm) 実施した。本方法で用いたコーティング装置の外観を Photo 3.2 に、コーティング時間と膜厚の相関図を Fig.3.4 に示す¹⁰⁾。

スパッタ コーティング法



コーティング層:不均一
測定時の影響 :あり

オスmium コーティング法



コーティング層:均一
測定時の影響 :なし

Fig.3.3 コーティング方法によるコーティング層の違い

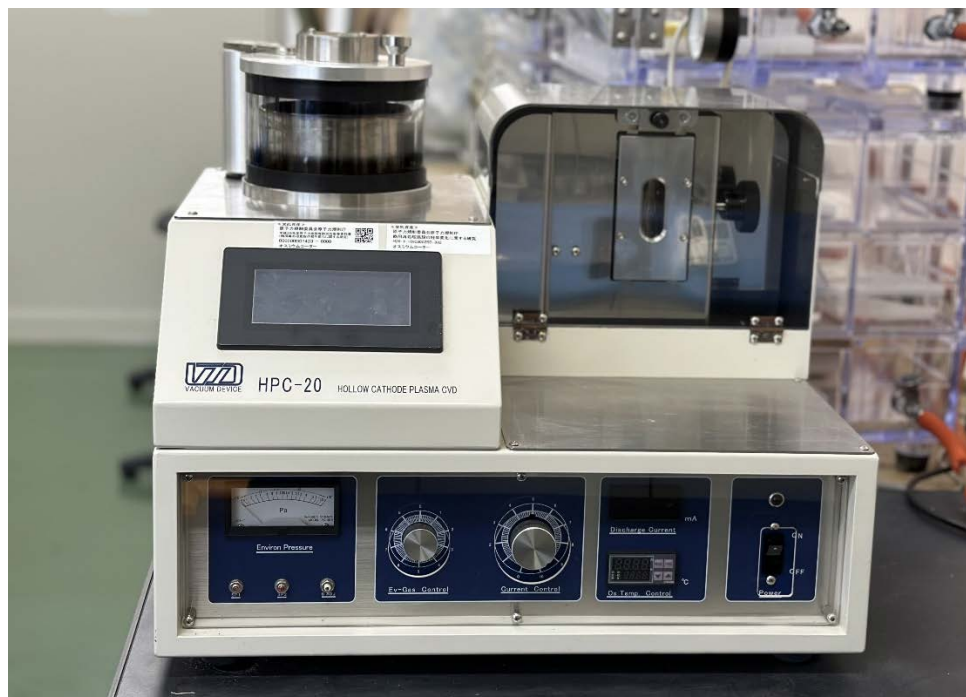


Photo 3.2 オスmiumコーティング装置

HPC-20膜厚特性

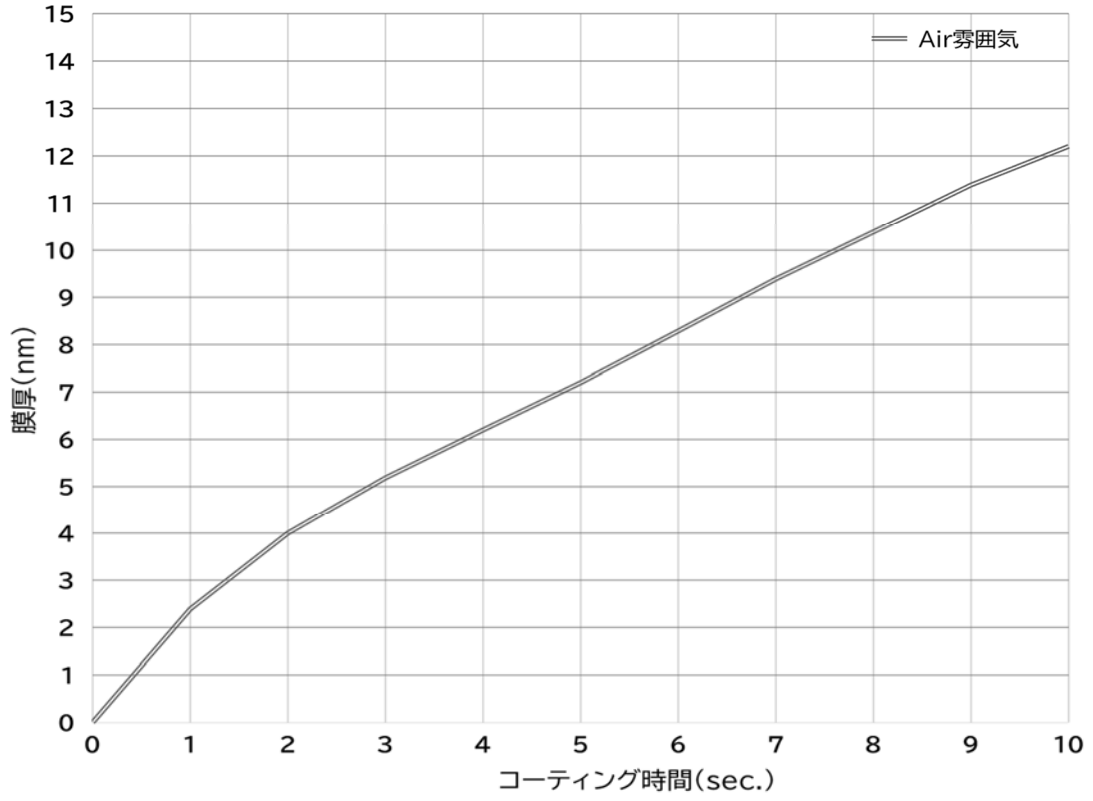


Fig.3.4 コーティング時間と膜厚の相関図

(2) FE-SEM

本研究における FE-SEM 観察時の観察条件を Table 3.1 に、装置の外観写真を Photo 3.3 に、装置の主な仕様を Table 3.2 にそれぞれ示す。FE-SEM を用いた試料表面の観察では、照射・未照射領域の位置関係が目的に適し、かつ EBSD 測定領域にデータに影響を及ぼすような傷や汚れ等がない場所を選択した。EBSD 測定の条件に合わせた高い加速電圧、大電流で観察を行うことからサンプル表面に電子ビームによるダメージ（コンタミネーション）が発生しやすい状態となっているため、観察時に気をつける必要がある。過度なコンタミネーションが発生した箇所を EBSD 測定するとデータ品質に一部影響が出る可能性が考えられるので、観察の際はこのコンタミネーションの発生を最小限に押さえるために必要箇所のみを迅速に観察するよう心掛けた。

Table 3.1 FE-SEM 観察条件

加速電圧	20 kV
作動距離 (WD)	10～15 mm
観察倍率	200 倍
観察像の種類	二次電子像

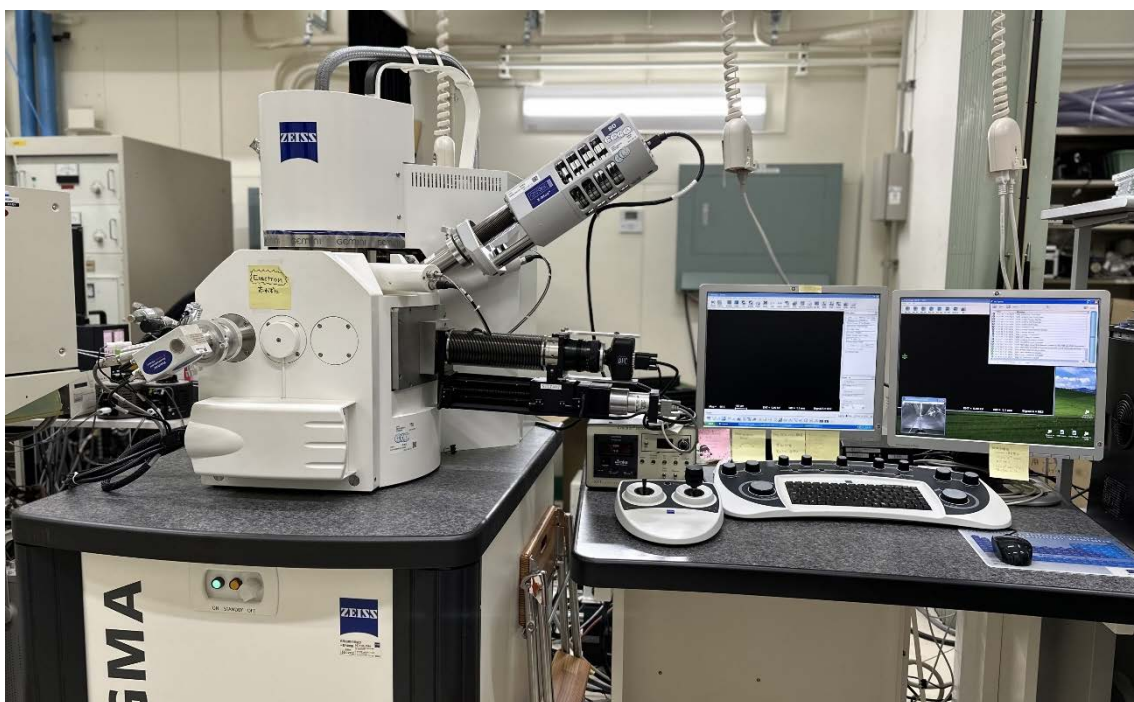


Photo 3.3 FE-SEM 装置外観

Table 3.2 FE-SEM の仕様

Carl Zeiss 社製 Sigma Gemini FE-SEM	
分解能	1.3 nm @ 20 kV, 1.5 nm @ 15 kV, 2.8 nm @ 1 kV
倍率	12 倍 - 1,000,000 倍
加速電圧	0.1 kV - 30 kV
電流値	4 pA - 20 nA
電子銃	ショットキー電界放出電子銃
検出器	Inlens, 二次電子検出器, 反射電子検出器, EBSD
ステージ	125 mm×125 mm×50 mm

(3) EBSD 測定条件

EBSD パターンの取込は TSL ソリューションズ社製の DigiView (Digiview5) 検出器を使用し、データ収集ソフト (OIM Data Collection) にてデータ収集を行った。サンプル未照射部と照射部の測定において記録されたパターンの例を Fig.3.5 に示す。サンプルの未照射部と照射部で EBSD パターンの鮮明さに差があることを確認した。これはイオン照射によって照射部の結晶性が多少乱れるため不鮮明なパターンとなっているが、CrossCourt による格子ひずみ解析が可能な程度には EBSD パターンが維持されている。EBSD パターンが維持されているのは、照射によって格子ひずみが増加するものの、今回の照射量範囲では、その格子ひずみ量がわずか (1%以下) であることが関係していると思われる。

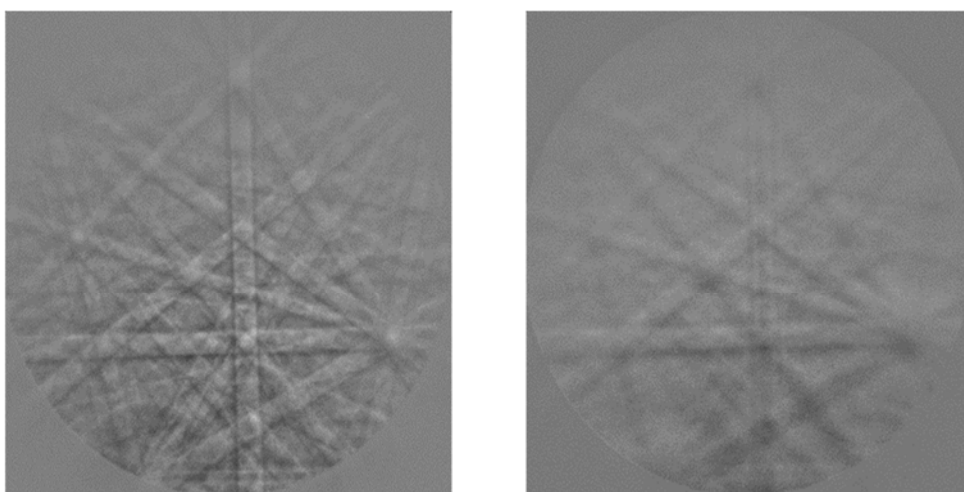
EBSD 測定条件を Table 3.3 に、カメラ条件を Table 3.4 に、SEM 装置に取り付けた EBSD 検出器の外観を Photo 3.4 に、試料座標と Al_2O_3 の結晶配列 (六方晶) との関係性を表わした模式図を Fig.3.6 に示す。本研究では試料座標について、 x_1 方向を試料横幅方向、 x_2 方向を試料縦幅方向、 x_3 方向を試料面法線方向と定義する。なお、照射方向は x_3 方向に相当する。試料の照射表面 ($(11\bar{2}0)$ 面) は x_3 と垂直な面である。

Table 3.3 EBSD 測定条件

加速電圧	20 kV
Aperture	120 μm , (High Current mode)
Dynamic focus	55 %
作動距離 (WD)	15 mm
取込倍率	70 倍
取込範囲	Y 100 μm , X 800 μm
ステップ間隔	2 μm
スキャンタイプ	Square Grid

Table 3.4 OIM Data Collection カメラ条件

Binning	1×1
Gain	2.16
Exposure	400 msec.



(a)未照射部のEBSDパターン

(b)照射部のEBSDパターン

Fig.3.5 (a)未照射部の EBSD パターンおよび(b)照射部の EBSD パターンの比較の例

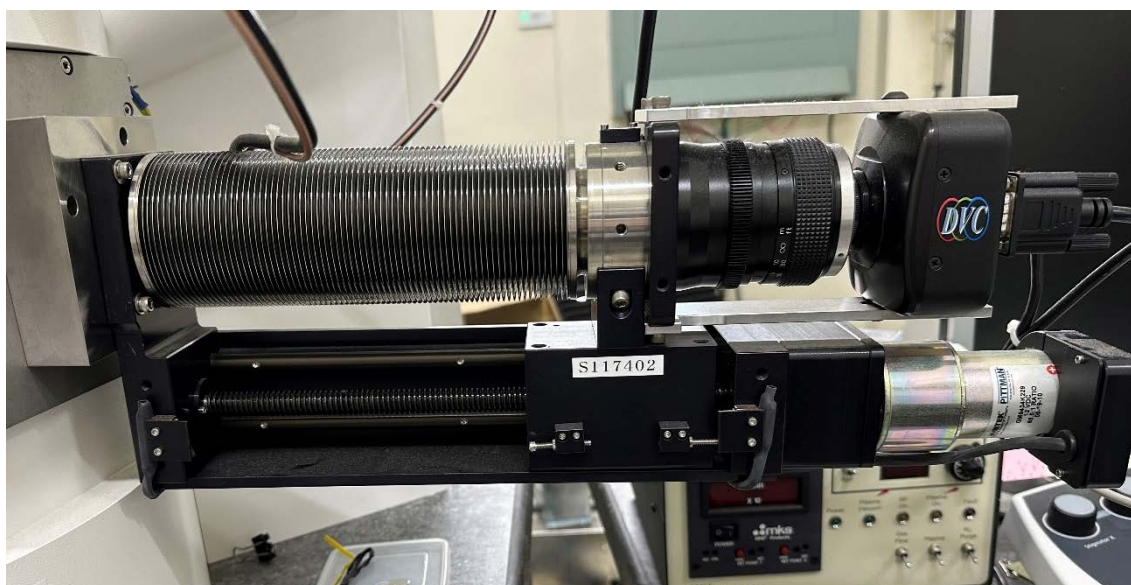


Photo 3.4 EBSD 検出器外観

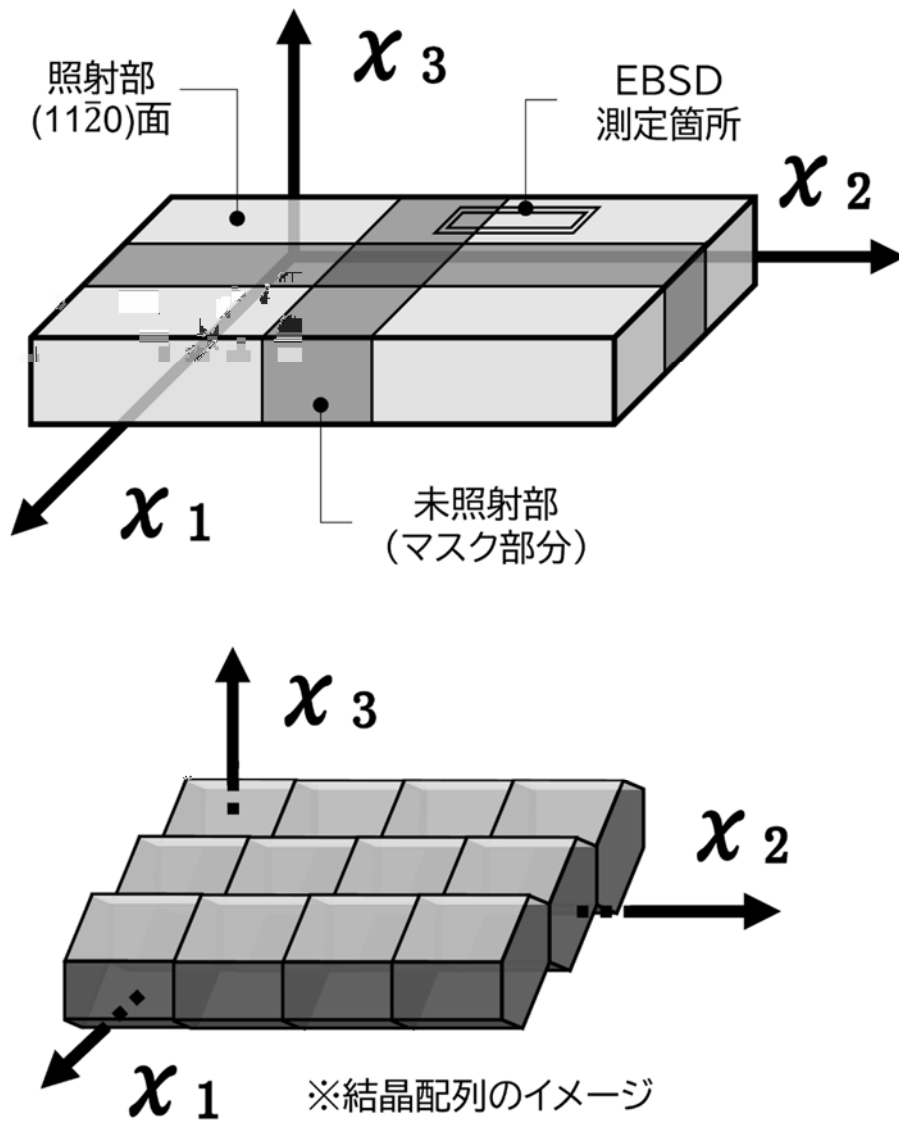


Fig.3.6 試料座標と Al_2O_3 の結晶配列（六方晶）との関係性を表わした模式図

3.3 格子ひずみ解析条件

取得した EBSD パターンを用いて格子ひずみ解析を行った。解析ソフトウェアとして CrossCourt4 Rapid (Ver 4.5)を使用した。CrossCourt の解析条件を Table 3.5 に示す。なお、測定点 20,000 点に対し解析に要した時間は約 10 分であった。解析に使用した PC の仕様を Table 3.6 に示す。

Table 3.5 CrossCourt 解析条件

Data Filtering	Data source	CI Map
	Filter type	Threshold
	Scale Range	Exclude below 0.2
Reference Pattern Determination	Data source	Kernel Average Misorientation
Regions of Interest	Number	25
	Size	256
EBSD Pattern FFT Filter	Low Frequency Cutoff	7
	High Frequency Cutoff	42
	Low Frequency Width	7
	High Frequency Width	25

Table 3.6 格子ひずみ（弾性ひずみ）解析用 PC の仕様

CPU	Intel Corei9-11900K
GPU	NVIDIA GeForce RTX3090
メモリ	128 GB
SSD	容量 1000 GB、NVMe Gen4、 読込速度 7000 MB/s、書込速度 5300 MB/s

4. 結果と考察

照射量 $2 \times 10^{12} \sim 8 \times 10^{12}$ ions/cm² の各サンプルについて、CrossCourt 解析によって得た垂直ひずみマップ (Normal Strain Sample Axes Map) の照射量による変化を Fig.4.1、Fig.4.2、Fig.4.3 および Fig.4.4 にそれぞれ示す。ここでは x_1 方向に発生する試料横幅方向のひずみを ϵ_{11} 、 x_2 方向に発生する試料縦幅方向のひずみを ϵ_{22} 、 x_3 方向に発生する試料面法線方向のひずみを ϵ_{33} と記述している。Fig.4.3 において一部白い領域が存在しているが、これは異物が表面に付着していたため、その部分の解析ができずデータが欠損した箇所である。欠損部以外の領域は、良好な解析結果が得られているためデータとして問題無いと判断した。

この Map において、水色から青色で示される領域はマイナスのひずみ値、すなわち圧縮ひずみを受けている領域であり、一方で黄色から赤色の色合いで示される領域はプラスのひずみ値、すなわち引張ひずみを受けている領域に相当する¹¹⁾。このことから全サンプルとも、 x_1 方向、 x_2 方向については圧縮ひずみが、 x_3 方向については引張ひずみが働いており、未照射部と照射部の境界近傍部で特に顕著になっていることが分かった。そこで、未照射部と照射部の x_1 方向、 x_2 方向および x_3 方向の格子ひずみの正負を、結晶に対しての引張、圧縮であることが分かるように模式図にしたものを Fig.4.5 に示す。

高エネルギー重イオンを照射した場合、イオンの飛跡に沿ってイオントラックと呼ばれる線状の特殊な照射損傷が形成されることが知られている。このイオントラックは、格子欠陥を多く含んでいると考えられ、イオントラックの周りの母材はイオントラックによって照射方向に引っ張られると考えられる。実際に、照射方向への格子膨張は先行研究の X 線回折の結果で証明されている。一方で、照射方向とは直交する方向については X 線回折で観測することは困難であり、その報告例はない。したがって、今回、照射方向と直交する方向について、格子ひずみが圧縮方向に働くことを見出したことが重要な結果である。

また、照射量が多くなるにつれ、Map の色合いが段々と濃くなっていることが分かった。この Map は Y 方向に 100 μm 、X 方向に 800 μm 、2 μm の間隔で測定した EBSD データをプロットしており、Y 方向に 50 点、X 方向に 400 点、合計 20,000 点の測定データが存在する。それぞれの測定点ごとに、 ϵ_{11} 、 ϵ_{22} 、 ϵ_{33} の情報が含まれている。今回は Y 方向 50 点の ϵ_{11} 、 ϵ_{22} 、 ϵ_{33} の数値データをそれぞれ平均し、照射境界からの距離 (Distance from interface) 依存性をグラフ化して比較した。結果を Fig.4.6、Fig.4.7 および Fig.4.8 にそれぞれ示す。

これらの Map およびグラフの結果から、格子ひずみは照射量とともに増大するという系統的な照射量依存性があると考えられる。

照射による格子ひずみの影響に関して、X線回折測定を用いた先行研究¹²⁾によって、照射によって試料面法線方向 (x_3) は結晶格子が膨張することが判明しており、Fig.4.8の結果と矛盾しない。一方でそれ以外の方向 (x_1 , x_2) については未知であったが、本研究で採用したEBSDパターンを用いたCrossCourt解析手法を用いることによって x_1 , x_2 および x_3 軸の3つの方向の格子ひずみ分布を可視化することに今回成功した。本結果により、照射環境におかれたセラミックスについてEBSD法による微小な構造変化の評価が可能であることが分かった。

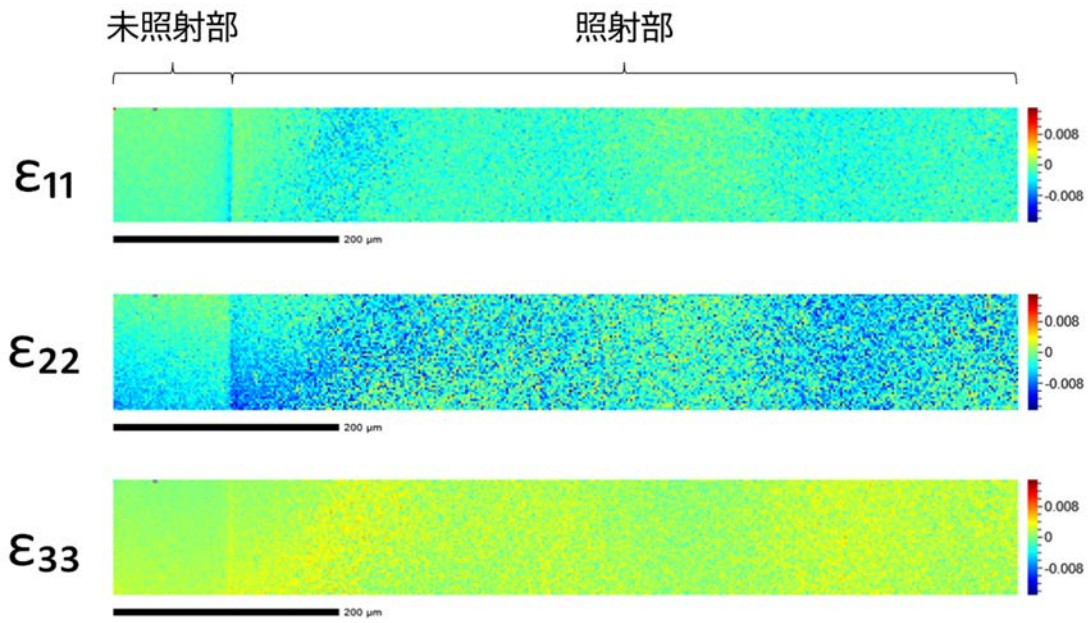


Fig.4.1 200 MeV Au¹⁴⁺イオンビームを 2×10^{12} ions/cm² 照射した Al₂O₃ の Normal Strain Sample Axes Map

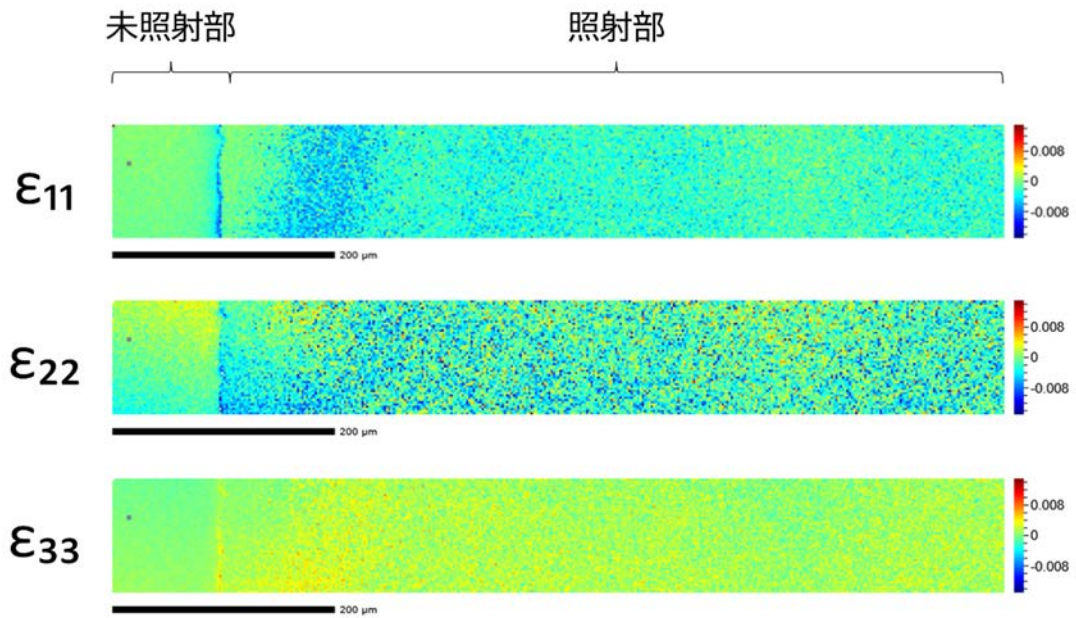


Fig.4.2 200 MeV Au¹⁴⁺イオンビームを 4×10^{12} ions/cm² 照射した Al₂O₃ の Normal Strain Sample Axes Map

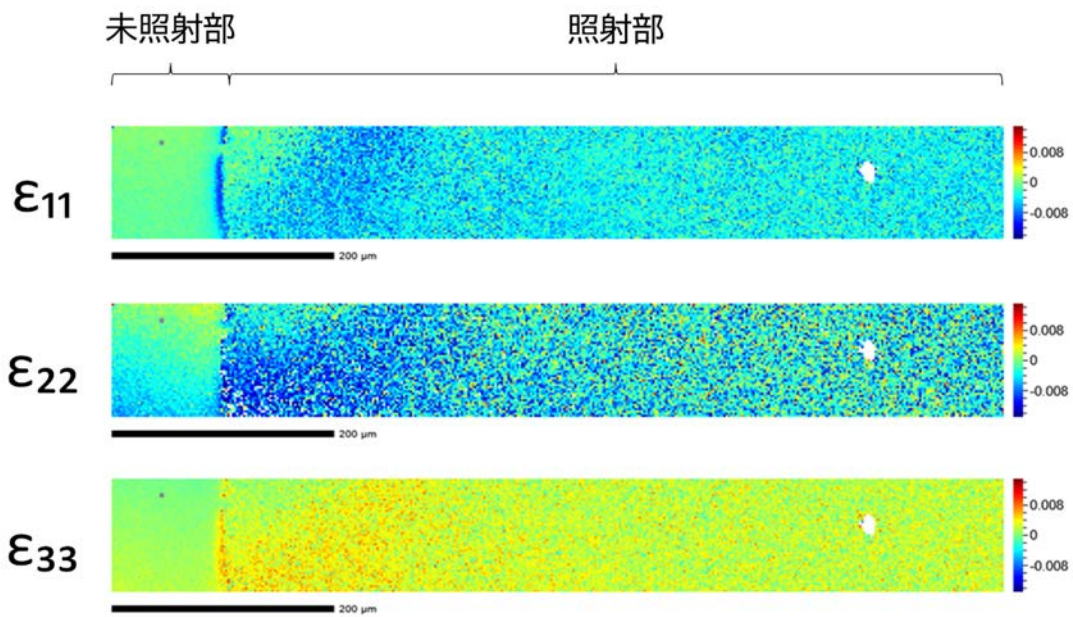


Fig.4.3 200 MeV Au¹⁴⁺イオンビームを 6×10^{12} ions/cm² 照射した Al₂O₃ の Normal Strain Sample Axes Map

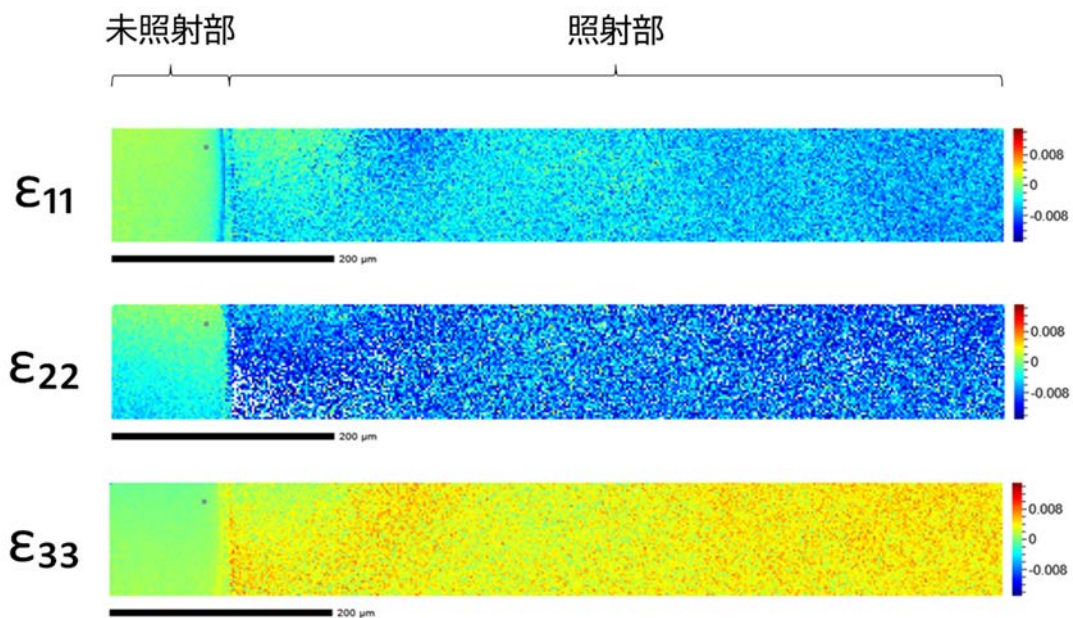


Fig.4.4 200 MeV Au¹⁴⁺イオンビームを 8×10^{12} ions/cm² 照射した Al₂O₃ の Normal Strain Sample Axes Map

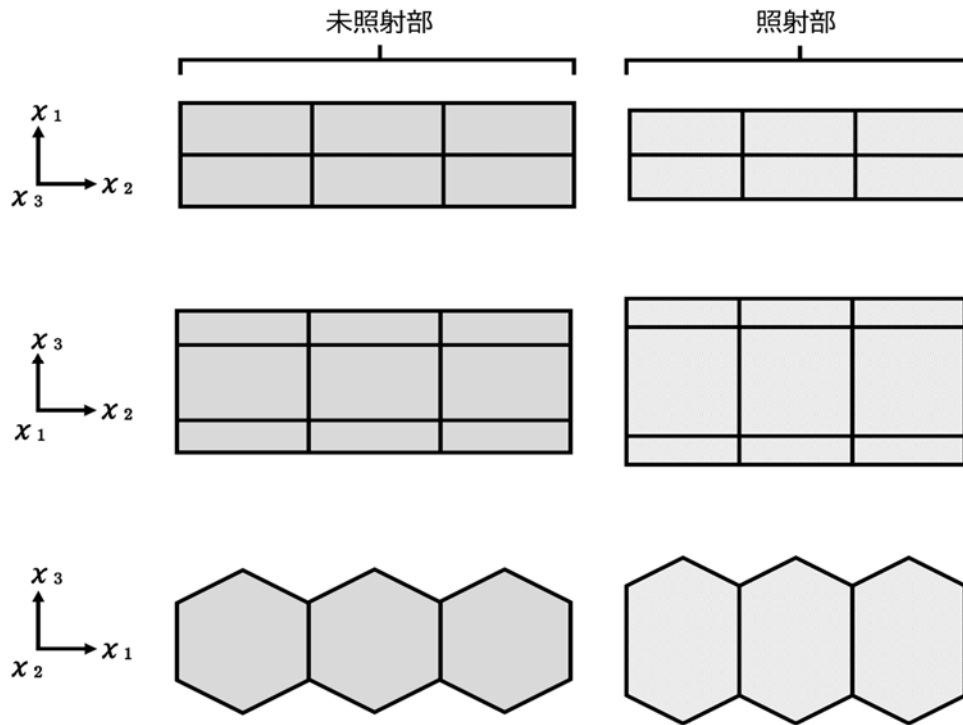


Fig.4.5 Al₂O₃ の六方晶結晶構造の圧縮・引張の方向を表わした照射部と未照射部との比較（結晶の変化を誇張した概念図）

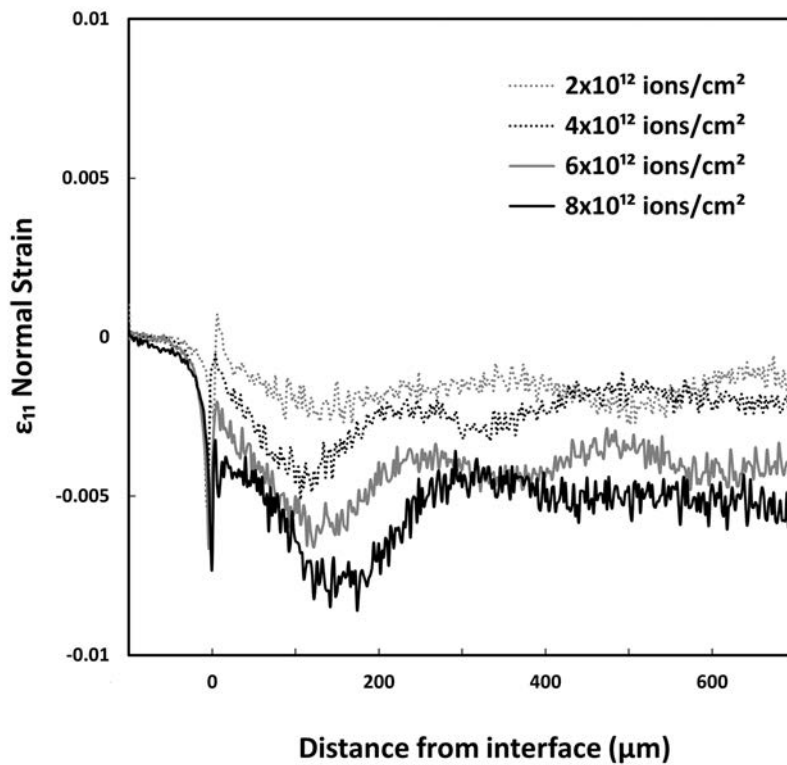


Fig.4.6 試料横幅方向 (x₁) に発生するひずみ ε₁₁ の比較例

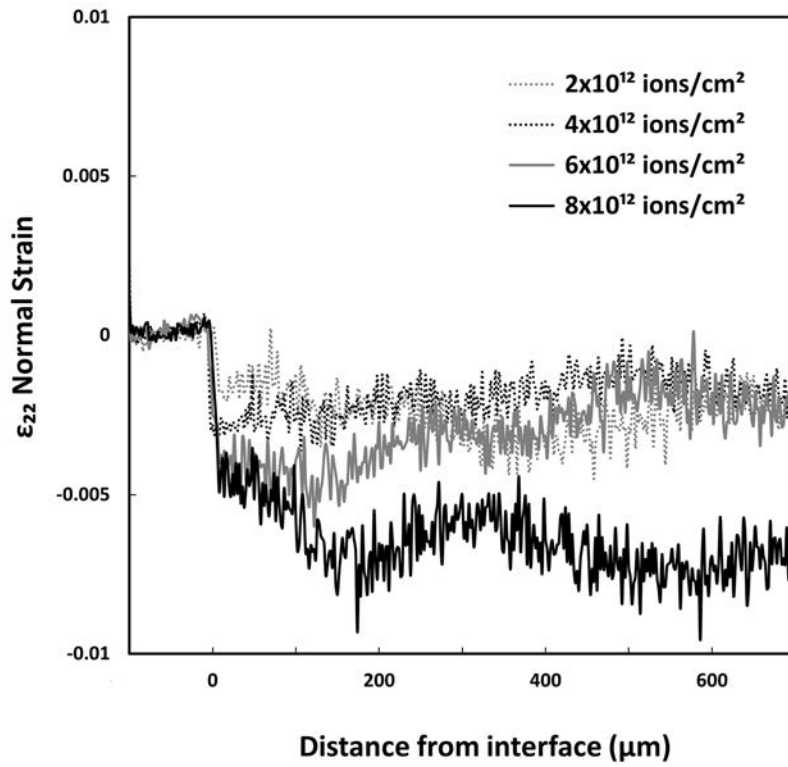


Fig.4.7 試料縦幅方向 (x_2) に発生するひずみ ϵ_{22} の比較例

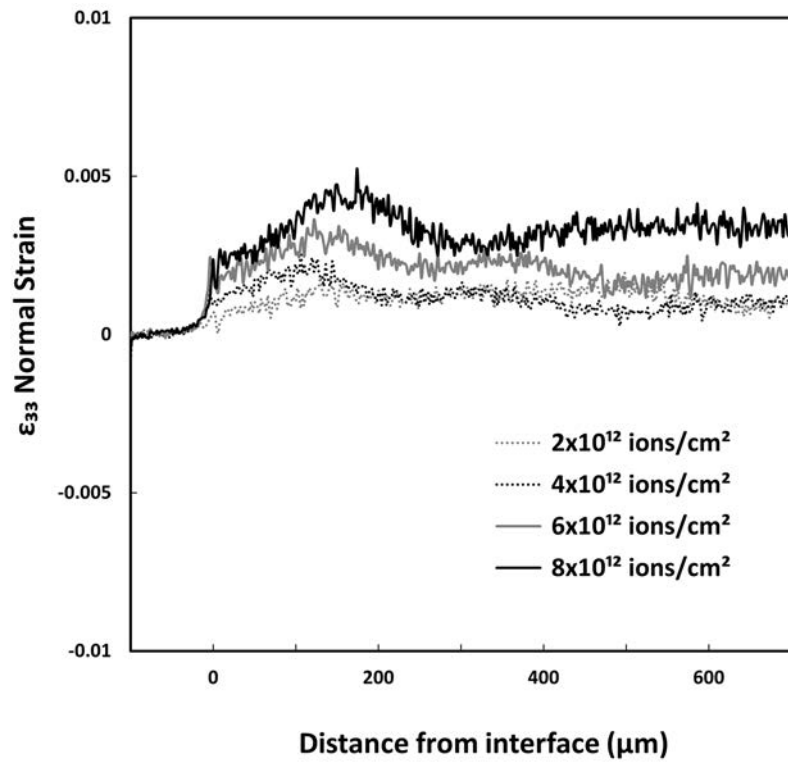


Fig.4.8 試料面法線方向 (x_3) に発生するひずみ ϵ_{33} の比較例

5. まとめ

本研究では高温強度に優れ耐腐食性・耐照射性の高いセラミックスの代表である Al_2O_3 を対象とし、セラミックス材料開発における課題の一つである「微小な照射損傷の検知」について EBSD パターンを利用した格子ひずみ解析を実施し、照射影響評価を行った。

単純な結晶構造を有する単結晶材料を採用するとともに、1つのサンプルから照射部と未照射部の連続した EBSD パターンを取得するために、試料の一部をマスクする方法でイオン照射試験を実施し、照射後に帯電現象（チャージアップ）を抑制する目的でオスミウムコーターにてコーティング処理をする手法を取った。その結果、照射部と未照射部の違いをその境界部を含めて EBSD データを取得することができた。取得した EBSD パターンを用いて結晶ひずみ解析を実施することで 3次元（ x_1 方向、 x_2 方向、 x_3 方向）での評価を行うことが可能であるということを確認できた。先行研究¹²⁾で分かっていた x_3 方向については、格子ひずみの値のオーダーが同じであり、そのことから先行研究と整合性が取れるデータを取得できたと考えられる。一方で、未知であった情報（ x_1 方向、 x_2 方向の格子ひずみ）についても知る事ができ、照射損傷の新たな知見の獲得に大きく貢献した。

今回は単結晶試料を使用し、EBSD パターンを用いた格子ひずみ解析は照射による微小な損傷を検知する手法として、金属だけでなくセラミックスにおいても非常に有効であることを実証した。ただし、実用的なセラミックスは多結晶体であることが多く、EBSD を多結晶体に適用するためにはさらなるハードルがあることは確かである。一方で、実用的なセラミックスの粒界付近の格子ひずみの解析や、照射によって発生する格子ひずみの解析は工学的に重要であり、今後も EBSD 自体の重要性がますます増えていくものと考えている。

謝辞

本研究における 20 MV タンデム加速器を用いた照射実験を遂行するにあたり、イオンビームの提供にご尽力いただきました日本原子力研究開発機構原子力科学研究所加速器管理課のスタッフの皆様には感謝いたします。

参考文献

- [1] Sunil Kumar, Sejal Shah, Indra Sulania, Fouran Singh, Arun Chakraborty, Structural investigation of low energy ion irradiated Al₂O₃, *Ceramics International*, Vol. 45, No. 16, 2019, pp. 20346-20353.
- [2] C. Grygiel, F. Moisy, M. Sall, H. Lebius, E. Balanzat, T. Madi, T. Been, D. Marie, I. Monnet, In-situ kinetics of modifications induced by swift heavy ions in Al₂O₃: Colour centre formation, structural modification and amorphization, *Acta Materialia*, Vol. 140, 2017, pp. 157-167.
- [3] 鈴木清一, EBSD 法の基礎原理と材料組織解析への応用 エレクトロニクス実践学会誌, Vol. 13, No. 6, 2010, pp. 469-474.
- [4] 鈴木清一, EBSD 読本 (B3.00), 株式会社 TSL ソリューションズ, 2009.
- [5] S.Wright, M. Nowell, J. Basinger, Precision of EBSD based Orientation Measurements, *Microscopy and Microanalysis*, Vol. 17, 2011, pp. 406-407.
- [6] 鈴木清一, EBSD 法の基礎と最近の進歩, スマートプロセス学会誌, Vol. 9, 2020, pp. 20-27.
- [7] 株式会社 TSL ソリューションズ, CrossCourt 弾性歪解析ソフト, <https://www.tsljapan.com/products/crosscourt> (accessed 2023-12-14).
- [8] 株式会社 信光社, サファイアの物理的特性, <https://www.shinkosha.com/techinfo/feature/sapphire-physics/> (accessed 2023-12-28).
- [9] Paramita Patra, Sejal Shah, S.K. Kedia, I. Sulania, M.J. Singh, Study on structural properties of swift heavy ion induced damage in Al₂O₃, *Radiation Physics and Chemistry*, Vol. 212, 2023, 111128.
- [10] 株式会社真空デバイス, オスミウムコーター取説説明書.
- [11] 鈴木清一, David J. Dingley, EBSD パターンを用いた格子歪みの精密測定, 顕微鏡, Vol. 42, No. 2, 2007, pp. 89-93.
- [12] A. Kabir, A. Meftah, J.P. Stoquert, M. Toulemonde, I. Monnet, M. Izerrouken, Structural disorder in sapphire induced by 90.3 MeV xenon ions, *Nucl. Instr. Meth. B*, Vol. 268, No. 19, 2010, pp. 3195-3198.

