

高速重イオン照射による MgAl_2O_4 の欠陥構造と不規則化過程

吉岡聡¹, 鶴田幸之介¹, 山本知一¹, 安田和弘¹, 松村晶¹, 杉山武晴¹

大場洋次郎², 石川法人², 奥平幸司³, 小林英一⁴,

¹九州大学, ²日本原子力研究機構, ³千葉大学, ⁴九州シンクロトロン

MgAl_2O_4 は, 放射線照射に優れた耐性を持つことが知られている. このような特性は, スピネル型構造である MgAl_2O_4 の Mg と Al のサイトの交換, すなわちカチオンの不規則化と密接に関係している. しかし, 不規則化の発達過程の微細構造解析は十分には理解されていない. 本研究では, MgAl_2O_4 に高速重イオンを照射し, それ伴った微細組織を定量的に観察することを目的とした. 特に, イオン照射で生じる飛跡領域の形状について小角 X 線散乱法 (SAXS) により観察した. さらに, カチオン不規則化での Mg および Al の局所構造変化を各元素で個別に観察するために X 線吸収分光法 (XAFS) を適用した.

イオン照射実験は, JAEA のタンデム加速器で行い, MgAl_2O_4 多結晶に 100 MeV Xe イオンを照射した. 照射量増加に伴う変化を観察するために, 照射量 $3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \sim 1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ 範囲で 5 種設定した. SAXS 実験は, SAGA-LS BL06 で行い, カメラ長 1.0 m, 波長 1.5 \AA に設定した. XAFS 測定は, KEK PF-BL11A で行い, 照射及び非照射試料について, Mg *K*-edge 及び Al *K*-edge XANES を蛍光法により測定した.

図 1 に 100 MeV Xe イオンを $1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ まで照射した MgAl_2O_4 の SAXS パターンを示す. 図 1 (a) はイオン照射方向と平行に X 線を入射した場合の散乱像であり, 同心円状の散乱パターンからイオントラックの半径を評価することができる. 一方, 図 1 (b) は試料を X 線ビーム方向に対して 15° 傾斜した場合の散乱像であり, ストリークからイオントラックの長さとの径のアスペクト比が大きいことがわかる.

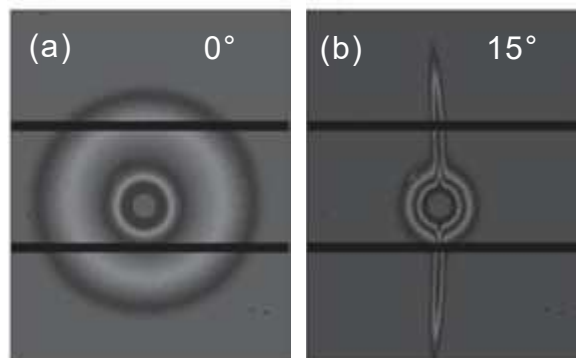


図 1 MgAl_2O_4 試料の小角 X 線散乱パターン(a) 傾斜角 0° , (b) 傾斜角 15°

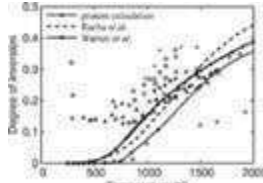
高速重イオン照射による MgAl₂O₄ の欠陥構造と不規則化過程

吉岡 聡^{1*}, 鶴田 幸之介¹, 山本 知一¹, 安田 和弘¹, 松村 晶¹, 松村 晶¹, 杉山 武晴², 大場 洋次郎³, 石川 法人³, 小林 英一⁴, 奥平 幸司⁵

¹九州大学 工学研究院
²九州大学 シンクロトロン光利用研究センター
³日本原子力研究開発機構 原子力科学研究部門
⁴九州シンクロトロン光研究センター
⁵千葉大学 融合科学研究科
 *syoshioka@nucl.kyushu-u.ac.jp

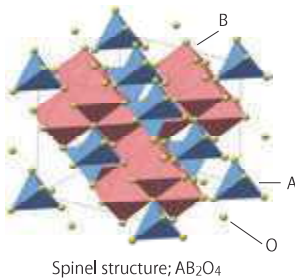
背景 & 目的

スピネルのカチオンが不規則化
 $[A_{1-x}B_x](A_xB_{2-x})O_4$
 x: inversion parameter
 x = 0: ideal spinel
 x = 2/3: random spinel
 x = 1: invers spinel



Seko et al., PRB,73, 094116 (2006)

Under swift heavy ion (SHI) irradiation, structural changes related to the cation disordering of MgAl₂O₄ has been observed, but not fully revealed. It is also necessary to focus on the structural dependence on the fluence of SHIs. Moreover, experimental determination of the local structure of MgAl₂O₄, including a control, irradiation free sample, can only be understood by a theoretical approach. In this study, cation disordering in MgAl₂O₄ was investigated with a combination of XANES and DFT calculation spectra, and the inversion degree of the spinel cation was quantitatively determined.



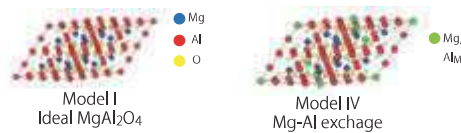
実験

イオン照射
 ・日本原子力研究機構 東海センター
 タンデム加速器ビームライン H1
 ・100 MeV Xe ions
 ・照射量; 3×10^{11} , 5×10^{11} , 1×10^{12} ,
 5×10^{12} , 1×10^{13} /cm²

XAFS
 ・Photon Factory BL11A
 ・Fluorescence mode
 ・Mg K-edge (1300 eV),
 Al K-edge (1550 eV)

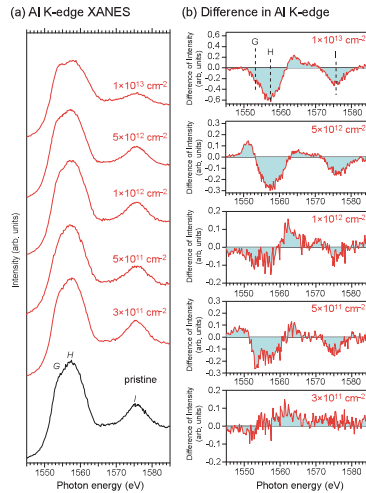
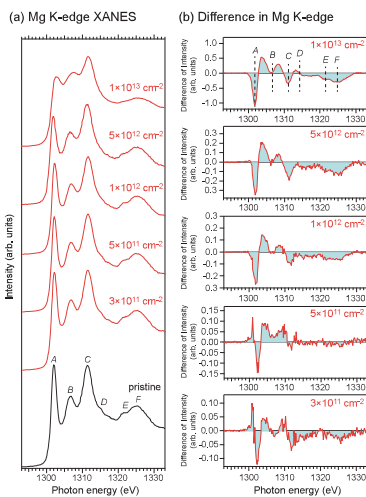
First Principles methods
 1st. 構造最適化 PAW(VASP)
 2nd. スペクトル計算 FL-APW(Wien2K)

SAXS
 ・SAGA-LS
 BL06 (九州大学ビームライン)
 ・波長; $\lambda = 0.15$ nm
 ・カメラバス; 1.5 m

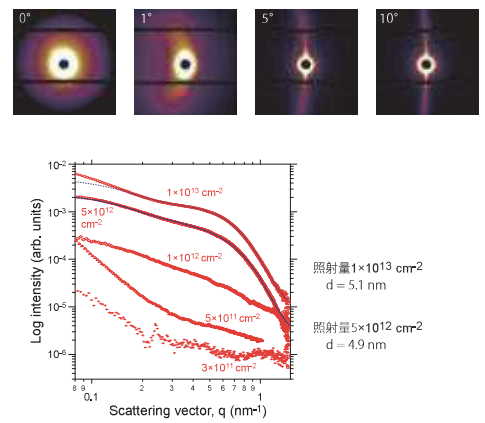


結果

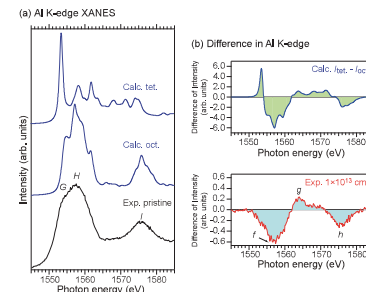
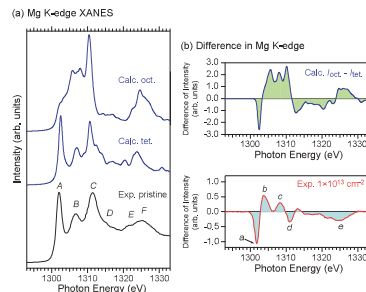
Experimental XANES



Experimental XANES



Theoretical XANES



結論

We investigated the disorder in the MgAl₂O₄ spinel with a focus on the local structure of cations. Experimental and theoretical XANES spectra were directly and independently examined to determine the local structure surrounding Mg and Al atoms irradiated with SHIs. Depending on the fluences of SHI, the changes in the experimental spectral were observed for both the Mg K-edge and Al K-edge and the results were interpreted as site exchange between the A site of Mg and the B site of Al in the spinel structure.