

審査の結果の要旨

氏名 土平 広樹

核融合炉固体増殖材は高エネルギー粒子照射環境下に置かれるため、照射欠陥の生成によって材料物性が変化する。材料の長期的な健全性を確保するためには、照射欠陥に関する知見が欠かせないが、詳細な照射損傷過程については必ずしも明らかになっていない。中でも、原子核との衝突による欠陥の生成・回復挙動は体系的な理解に至っていないとの認識のもと、本研究は三元素系 Li 酸化物中での衝突シーケンスにおける、欠陥の生成・回復挙動について新たな知見を得ることを目的としている。研究対象には、固体増殖材料の候補の一つである γ -LiAlO₂ を選んでいる。本研究では、研究手法として分子動力学法 (MD) を用いている。また、MD 計算で観察される現象の理解を深める目的で二体衝突近似 (BCA) モデルも用いている。

本論文は 6 章より構成されている。第 1 章は研究の背景と目的である。第 2 章では本研究で使用したポテンシャルモデルの構築方法について述べている。次に第 3 章では、構築したポテンシャルモデルに基づき、MD による弾き出しエネルギーの閾値 (E_d) の評価を行っている。第 4 章においては、MD による衝突シーケンスシミュレーションを行い、各元素へのエネルギー分配挙動などを評価している。さらに第 5 章では、BCA シミュレーションを行い、第 4 章で得られたデータについてさらに深く考察している。最後に第 6 章で本研究の結論を述べている。

第 2 章では、ポテンシャルモデルを構築する際にフィッティングをかける対象として、 γ -LiAlO₂ における結晶構造変化時の系の全エネルギーの応答を、CASTEP コードを用いた量子力学計算により評価している。 γ -LiAlO₂ はイオン性の強い結晶であるため、原子間の相互作用は二体間のポテンシャルモデルで表現している。ポテンシャルモデルには逆冪型多項式モデルを用いている。原子間距離 $r < 0.5 \text{ \AA}$ の領域には ZBL ポテンシャルモデルを適用し、五次の多項式を用いて逆冪型多項式との間を補間している。このようにして得られたポテンシャルモデルを用いて、 γ -LiAlO₂ の線膨張係数と融点を評価したところ、実験値と比較して妥当な結果を得、本研究においてこのポテンシャルモデルの使用が妥当と判断している。

第 3 章における弾き出しエネルギーの閾値の評価では、まず γ -LiAlO₂ において、数十 eV 程度の初期エネルギー (E_p) を与えた一次弾き出し原子を $\langle ij k \rangle$ 方位に弾き出した計算を行っている。ここで初期温度は 0 K としている。一次弾き出し原子の弾き出しから約 3 ps が経過した時点で一次弾き出し原子と同元素の安定なフレンケル対を形成していた場合、 E_d を超えたと判定している。この結果得られた E_d の値は、いずれの元素においても、強い異方性を示すことが示されている。また、異なる方位について立体角による重み付け平均値 E_d を評価したところ、 $E_d(\text{Li}) < E_d(\text{O}) < E_d(\text{Al})$ が成り立ち、これは各元素が持つ電荷の大

きさの絶対値と大小関係が同じであることを示している。その理由として、 γ -LiAlO₂の結晶はイオン性が強くクーロン力が最大の相互作用であるため、電荷が大きい場合 E_d が高くなりやすいことによるとしている。更に、シミュレーションの際に観察されたフレンケル対について、生成エネルギーの評価を行い、ポテンシャルモデルと第一原子計算により評価された値は概ね良好に一致すること、さらに、格子間原子の存在位置においても良好な一致を示している。

第4章における分子動力学法による衝突シーケンスシミュレーションでは、 γ -LiAlO₂において、1, 3, 5 keVの E_p を与えた一次弾き出し原子を9通りの方位に弾き出し、その後の欠陥の生成・回復挙動を観察している。その結果、自己アニーリングが終了した時刻における、各元素における最大の運動エネルギーは、完全結晶における点欠陥の移動障壁に近い値となることを示し、これは各元素における最大の運動エネルギーが点欠陥の移動障壁を下回る時刻に自己アニーリングが終了することによると考えている。また、50 eVの運動エネルギーを持つAlがLiに衝突した後の、AlとLiそれぞれが有するエネルギーを、二体衝突による計算から評価している。その結果、原子間衝突によりAl原子がLi原子を弾き出し、さらにAl原子がその場に留まることにより、Al_{Li}の antisite を生成するケースはほとんどないと考えられること、及び原子間衝突の直後にLi_{Al}の antisite を生成する確率も低いことがわかるという興味深い結果を示している。

第5章では、二体衝突近似シミュレーションについて述べている。ここでは、 γ -LiAlO₂において、1 keVの E_p を与えた一次弾き出し原子を、MDによる衝突シーケンスシミュレーションと同じ9通りの方位に弾き出し、欠陥の生成挙動を観察している。その結果、MDシミュレーションと、BCAにおいて E_d を固定値とした場合と、BCAにおいて E_d に方位依存性を持たせた場合に、生成するフレンケル対の数を評価している。ここで E_d の固定値としては、第3章で得られた E_d' の値、すなわちそれぞれの方位が占める立体角による重みづけ平均値を用いている。方位依存性を持たせた場合、原子間衝突後の速度ベクトルに最も近い方位における E_d の値を採用している。その結果、 E_d を固定とした場合と方位依存性を持たせた場合とで、生成する欠陥数に有意な差を生じており、方位依存性を持たせた場合の方が、MDに近い値を得ている。このことは、 E_d の方位依存性が生成する欠陥量を決定する重要な要素であることを示すと考えている。このように、BCAシミュレーションを用いて、MDシミュレーション結果についての理解を深めている。

以上、要するに、本研究はMDシミュレーションを通じて、LiAlO₂における欠陥の生成・回復挙動に関して新たな知見を得たものであり、原子力工学特に核融合炉材料工学に対する貢献が少なくない。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。