

JAERI-M

6 2 4 3

真空壁の表面現象に関する研究の現状と問題点

(1. スパッタリング)

1975年9月

曾根和穂

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

真空壁の表面現象に関する研究の現状と問題点

(1. スパッタリング)

日本原子力研究所東海研究所核融合研究部

曾 根 和 穂

(1 9 7 5 年 8 月 3 0 日 受 理)

本報告は将来の核融合炉およびそれを目標とした大型トカマク等の研究・開発において最近その重要性が急速に認識されてきている真空壁の表面現象のうちの一つ、スパッタリングに関する研究のレビューである。ここでは主として金属の多結晶の、軽イオン (H^+ , H_2^+ , D^+ , D_2^+ , He^+ など) および自己イオンをふくむ重イオンによるスパッタリング、さらに高速中性子によるスパッタリングについて実験を中心にその研究の現状をまとめ、併せてこれから必要とされる研究内容およびその問題点について指摘した。

JAERI-M 6243

Review of the works on Plasma-Wall Interactions in
Fusion Reactors (1. Sputtering)

Kazuho SONE

Division of Thermonuclear Fusion Research, Tokai, JAERI

(Received August 30, 1975)

A review is made of the works on sputtering as one of the plasma-wall interactions in thermonuclear fusion devices. The present status and future problems are described mainly in experiments of low-energy light ions such as H^+ , H_2^+ , D^+ , D_2^+ and He^+ , heavy ions including self-ions, and fast neutrons for polycrystalline metal targets.

目 次

§ 1.	はじめに	1
§ 2.	スパッタリング研究のあゆみ	1
§ 3.	スパッタリング収率	2
§ 4.	スパッタリング収率の入射イオンエネルギー依存性	5
§ 5.	スパッタリング収率の入射角度依存性	8
§ 6.	スパッタリング収率の原子番号依存性	14
§ 7.	スパッタリング収率のターゲット温度依存性	17
§ 8.	スパッターされた粒子のエネルギー・スペクトル	18
§ 9.	スパッターされた粒子の放出角度分布	21
§ 10.	高速中性子によるスパッタリング	24
§ 11.	おわりに	27

参考文献

§ 1. はじめに

1974年のFusion Reactor Design Problemsの国際会議は、不純物イオンの混入によるプラズマのエネルギー損失がトカマク型の核融合炉のエネルギー・バランスを破綻させる重大な因子となりうることを結論した。不純物は炉心プラズマを閉じ込めている真空壁から供給されるから、炉心プラズマと真空壁との相互作用について関心が急速に高まってきた。もちろん、それまでにも高速イオンによる真空壁のスパッタリングやブリスタリング、D-T 14.1 MeV中性子によるスパッタリングなどについての研究がなかったわけではない。これらについては真空壁の損耗による炉の寿命との関連で主として論じられてきた。現在の段階においては、真空壁の候補材料についてこれらの表面現象に関する可能な限り精度のよい実験データを供給し、炉の設計に生かしていくことが重要である。本報告においてはイオンおよび高速中性子によるスパッタリングに関する種々の実験のレビューを行う。

粒子バランスにとって重要な過程は、燃料イオンの真空壁からの後方散乱(backscattering)、壁内部での捕捉(trapping)、捕捉粒子の再放出(re-emission)、熱脱離(thermal desorption)および透過(permeation)などである。

前述のごとく本報告はスパッタリングの実験的研究を中心にまとめたもので、ブリスタリングやイオンの後方散乱・捕捉・再放出・熱脱離・透過などの諸過程については次報以下にゆずることにした。

§ 2. スパッタリング研究のあゆみ

スパッタリングの研究はイオン源における気体の放電による陰極スパッタリング現象と関連してスタートした。以来100年以上の間今日に至るまで、様々なイオンとターゲットの組合わせおよびイオンエネルギーについて非常に多くの実験がなされデータが蓄積されてきた。とりわけここ10年間の超高真空技術の進歩とともに、固体の表面状態を再現性よくコントロールできるようになってデータの精度も向上した。特にAr⁺イオンを初めとした希ガスイオン(He⁺イオンを除く)によるスパッタリングの実験は、これらのイオン・ビームが固体表面の洗浄やエッチングなどの目的に実用できることから、様々な金属や半導体などについて0.1 keV ~ 1 MeVの広いエネルギー範囲にわたってなされてきている。数keV ~ 数10 keVのAr⁺やO⁺イオン・ビームによるスパッタ・エッチングを利用して固体表面層の深さ方向の元素分析を行うことのできるIMMA (Ion Micro-probe Mass Analysis)やSIMS (Secondary Ion Mass Spectrometry)などの表面分析技術が現在確立されつつある段階である。^{1, 2)}これらは1次イオン・ビームの強度や収束などをコントロールしてターゲットに照射し、そこから放出される2次イオンの質量分析を行うものであるが、スパッタリングの応用技術の代表的なものとして注目に値する。

スパッタリングの系統的な研究に先鞭をつけたのはWehner³⁾およびAlmén & Bruce^{4, 5)}である。Wehnerはターゲットとして金属の単結晶を用い、スパッター粒子は単結晶の低指数軸

§ 1. はじめに

1974年のFusion Reactor Design Problemsの国際会議は、不純物イオンの混入によるプラズマのエネルギー損失がトカマク型の核融合炉のエネルギー・バランスを破綻させる重大な因子となりうることを結論した。不純物は炉心プラズマを閉じ込めている真空壁から供給されるから、炉心プラズマと真空壁との相互作用について関心が急速に高まってきた。もちろん、それまでにも高速イオンによる真空壁のスパッタリングやブリスタリング、D-T 14.1 MeV中性子によるスパッタリングなどについての研究がなかったわけではない。これらについては真空壁の損耗による炉の寿命との関連で主として論じられてきた。現在の段階においては、真空壁の候補材料についてこれらの表面現象に関する可能な限り精度のよい実験データを供給し、炉の設計に生かしていくことが重要である。本報告においてはイオンおよび高速中性子によるスパッタリングに関する種々の実験のレビューを行う。

粒子バランスにとって重要な過程は、燃料イオンの真空壁からの後方散乱(backscattering)、壁内部での捕捉(trapping)、捕捉粒子の再放出(re-emission)、熱脱離(thermal desorption)および透過(permeation)などである。

前述のごとく本報告はスパッタリングの実験的研究を中心にまとめたもので、ブリスタリングやイオンの後方散乱・捕捉・再放出・熱脱離・透過などの諸過程については次報以下にゆずることにした。

§ 2. スパッタリング研究のあゆみ

スパッタリングの研究はイオン源における気体の放電による陰極スパッタリング現象と関連してスタートした。以来100年以上の間今日に至るまで、様々なイオンとターゲットの組合わせおよびイオンエネルギーについて非常に多くの実験がなされデータが蓄積されてきた。とりわけここ10年間の超高真空技術の進歩とともに、固体の表面状態を再現性よくコントロールできるようになってデータの精度も向上した。特に Ar^+ イオンを初めとした希ガスイオン(He^+ イオンを除く)によるスパッタリングの実験は、これらのイオン・ビームが固体表面の洗浄やエッチングなどの目的に実用できることから、様々な金属や半導体などについて0.1 keV ~ 1 MeVの広いエネルギー範囲にわたってなされてきている。数keV ~ 数10 keVの Ar^+ や O^+ イオン・ビームによるスパッタ・エッチングを利用して固体表面層の深さ方向の元素分析を行うことのできるIMMA (Ion Micro-probe Mass Analysis)やSIMS (Secondary Ion Mass Spectrometry)などの表面分析技術が現在確立されつつある段階である。^{1, 2)}これらは1次イオン・ビームの強度や収束などをコントロールしてターゲットに照射し、そこから放出される2次イオンの質量分析を行うものであるが、スパッタリングの応用技術の代表的なものとして注目に値する。

スパッタリングの系統的な研究に先鞭をつけたのはWehner³⁾およびAlmén & Bruce^{4, 5)}である。Wehnerはターゲットとして金属の単結晶を用い、スパッター粒子は単結晶の低指数軸

の方向へ優先的に放出されることを指摘した。これによって、スパッタリング現象は格子原子のはじき出しのカスケードが固体表面と交わった際に表面原子を放出する過程として理解されるようになった。こうしてスパッタリングを熱スパイクによる蒸発現象と解釈してきた従来の考えが訂正されることになった。また Almén & Bruce は固体（単体）の自己スパッタリングの実験をイオンエネルギー 45 keV で行い、スパッタリング収率の原子番号依存性が強い周期性を有することを示した。⁴⁾ また Ag, Cu, Ta の 3 種類の金属ターゲットのスパッタリング収率を 45 keV の照射イオンの原子番号の関数として測定し、前述の自己スパッタリングの場合とは異なった周期性を得た。⁵⁾

Wehner や Almén & Bruce らの実験を含めそれ以後のスパッタリングに関するレビューには優れたものがいくつかある。たとえば, Kaminsky⁶⁾, Carter & Colligon⁷⁾, Pleshivtsev,⁸⁾ McDonald⁹⁾ および McCracken¹⁰⁾ のレビューなどである。核融合における真空壁の損耗という観点からスパッタリングをまとめたものに Behrisch¹¹⁾ のレビューがある。本報告においては、これらのレビューのレビューを書くというよりも、できるだけ核融合におけるスパッタリングにおいて興味の対象となっているイオン種、物質およびエネルギー範囲にしばって、どのようなデータが不足しているかと立場からまとめてゆくことにする。。

§ 3. スパッタリング収率

スパッタリング収率は入射イオン 1 個当りスパッターされる原子の個数として定義される。固体表面に入射した高速イオンは固体中でエネルギーを失ってゆく。このエネルギー損失には、遮蔽クーロン場でのイオンとターゲット原子との弾性衝突によるものと、核外電子の励起・電離によるものとの 2 つがある。前者は低エネルギー領域で支配的であり、スパッタリングの過程を説明する上で特に重要である。すなわち入射イオンによって生み出された 1 次ノック・オン原子がさらに 2 次以降の格子原子のはじき出しのカスケードを作り出し、これが表面に到達した際に表面の結合エネルギー U_0 よりも大きなエネルギーを持てば表面原子が放出されると考える。Sigmund¹²⁾ はこのスパッタリングの過程をボルツマンの輸送方程式を基礎にして取扱い大きな成功を得た。これはターゲットの結晶性を無視し、衝突のカスケードも全くランダムなものとして取扱うものである。これによれば、スパッタリング収率 S は

$$S = \frac{3}{4\pi^2} \frac{F(x=0, E, \eta)}{NC_0 U_0} \quad (1)$$

で与えられる。ここで N はターゲット物質の原子数密度であり、 C_0 は低エネルギー (eV 領域) の原子衝突の相互作用ポテンシャルとして Born-Mayer 型を採用したときに決まる定数であって Sigmund¹²⁾ によって $C_0 = 1.81 (\text{\AA}^2)$ とされている。また $F(x, E, \eta)$ は入射エネルギー E のイオンが、入射角 θ でターゲット表面に入射したとき ($\eta = \cos \theta$)、深さ x におけるイオンのエネルギー損失率 (たとえば $\text{eV}/\text{\AA}$) である。

(1) 式から明らかなように、スパッタリング収率 S は入射イオンのエネルギー、固体表面への

の方向へ優先的に放出されることを指摘した。これによって、スパッタリング現象は格子原子のはじき出しのカスケードが固体表面と交わった際に表面原子を放出する過程として理解されるようになった。こうしてスパッタリングを熱スパイクによる蒸発現象と解釈してきた従来の考えが訂正されることになった。また Almén & Bruce は固体（単体）の自己スパッタリングの実験をイオンエネルギー 45 keV で行い、スパッタリング収率の原子番号依存性が強い周期性を有することを示した。⁴⁾ また Ag, Cu, Ta の 3 種類の金属ターゲットのスパッタリング収率を 45 keV の照射イオンの原子番号の関数として測定し、前述の自己スパッタリングの場合とは異なった周期性を得た。⁵⁾

Wehner や Almén & Bruce らの実験を含めそれ以後のスパッタリングに関するレビューには優れたものがいくつかある。たとえば, Kaminsky⁶⁾, Carter & Colligon⁷⁾, Pleshivtsev,⁸⁾ McDonald⁹⁾ および McCracken¹⁰⁾ のレビューなどである。核融合における真空壁の損耗という観点からスパッタリングをまとめたものに Behrisch¹¹⁾ のレビューがある。本報告においては、これらのレビューのレビューを書くというよりも、できるだけ核融合におけるスパッタリングにおいて興味の対象となっているイオン種、物質およびエネルギー範囲にしばって、どのようなデータが不足しているかと立場からまとめてゆくことにする。。

§ 3. スパッタリング収率

スパッタリング収率は入射イオン 1 個当りスパッターされる原子の個数として定義される。固体表面に入射した高速イオンは固体中でエネルギーを失ってゆく。このエネルギー損失には、遮蔽クーロン場でのイオンとターゲット原子との弾性衝突によるものと、核外電子の励起・電離によるものとの 2 つがある。前者は低エネルギー領域で支配的であり、スパッタリングの過程を説明する上で特に重要である。すなわち入射イオンによって生み出された 1 次ノック・オン原子がさらに 2 次以降の格子原子のはじき出しのカスケードを作り出し、これが表面に到達した際に表面の結合エネルギー U_0 よりも大きなエネルギーを持てば表面原子が放出されると考える。Sigmund¹²⁾ はこのスパッタリングの過程をボルツマンの輸送方程式を基礎にして取扱い大きな成功を得た。これはターゲットの結晶性を無視し、衝突のカスケードも全くランダムなものとして取扱うものである。これによれば、スパッタリング収率 S は

$$S = \frac{3}{4\pi^2} \frac{F(x=0, E, \eta)}{NC_0 U_0} \quad (1)$$

で与えられる。ここで N はターゲット物質の原子数密度であり、 C_0 は低エネルギー (eV 領域) の原子衝突の相互作用ポテンシャルとして Born-Mayer 型を採用したときに決まる定数であって Sigmund¹²⁾ によって $C_0 = 1.81 (\text{\AA}^2)$ とされている。また $F(x, E, \eta)$ は入射エネルギー E のイオンが、入射角 θ でターゲット表面に入射したとき ($\eta = \cos \theta$)、深さ x におけるイオンのエネルギー損失率 (たとえば $\text{eV}/\text{\AA}$) である。

(1) 式から明らかなように、スパッタリング収率 S は入射イオンのエネルギー、固体表面への

イオンの入射角，さらには固体表面の結合エネルギー等の関数である。また $F(0, E, \eta)$ はイオンとターゲット物質の組合わせによって異なった値をもつ。関数 $F(x, E, \eta)$ については Winterbon ら¹⁵⁾ や Sigmund ら¹⁴⁾ によって計算されている。近似的には Sigmund の与えた

$$F(0, E, 1) \simeq \alpha S_n(E) \quad (2)$$

の関係を用いることができる。ここで $S_n(E)$ は遮蔽クーロン場での弾性衝突によるイオンのエネルギー損失率である。 $S_n(E)$ が E の関数としてどのように表わせるかについては，Thomas-Fermi のポテンシャルを用いた Lindhard ら^{15,16)} の理論がある。これによれば，

$$S_n(E) = 4\pi a_{TF} N Z_1 Z_2 e^2 \frac{M_1}{M_1 + M_2} s_n(\epsilon) \quad (3)$$

である。ここで ϵ は無次元のエネルギー変数であって， E と次の比例関係で結ばれている。

$$E = \frac{Z_1 Z_2 e^2 (M_1 + M_2)}{a_{TF} M_2} \quad (4)$$

ただし e は電子の電荷であり，

$$a_{TF} = \frac{0.8853 a_0}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}} \quad (5)$$

は Thomas-Fermi の遮蔽半径で， a_0 はボーア半径 ($a_0 = 0.529 \text{ \AA}$) である。また Z_1, Z_2 はそれぞれ入射イオンおよび物質原子の原子番号であり， M_1, M_2 はそれぞれの質量 (amu) である。さらに(3)式の $s_n(\epsilon)$ は無次元化されたエネルギー損失率であって

$$s_n(\epsilon) = \frac{1}{\epsilon} \int_0^\epsilon f_n(t^{1/2}) dt^{1/2} \quad (6)$$

と表わすことができる。また $f_n(t^{1/2})$ はイオンと原子の間の遮蔽クーロン・ポテンシャルに依存する関数であって，Lindhard ら¹⁷⁾ によって数値計算がなされている。しかしながら以上の Lindhard らの理論¹⁵⁻¹⁷⁾ は低エネルギー側へどれだけでも延長して適用できるものではなく $\sim 1 \text{ keV}$ 以下のエネルギー領域では(3)式のかわりに

$$S_n(E) = NC_0 \frac{4M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2} E \quad (7)$$

を用いた方がよい。¹²⁾ 再び(2)式にもどる。パラメータ α は用いるべき相互作用ポテンシャルと質量比 M_2 / M_1 だけに依存する無次元の定数である (Fig. 1 参照)。

注意しなければならないことは，(2)式の $S_n(E)$ として(3)式を用いる場合でも(7)式を用いる場合でも，入射イオンが電子の励起・電離によってエネルギーを失ってゆく過程が無視できるエネルギー範囲においてのみ適用できるということである。 H^+, D^+, T^+, He^+ などの軽イオンでは 1 keV 程度でもすでに電子的なエネルギー損失が無視できなくなるから， α の値を軽イオ

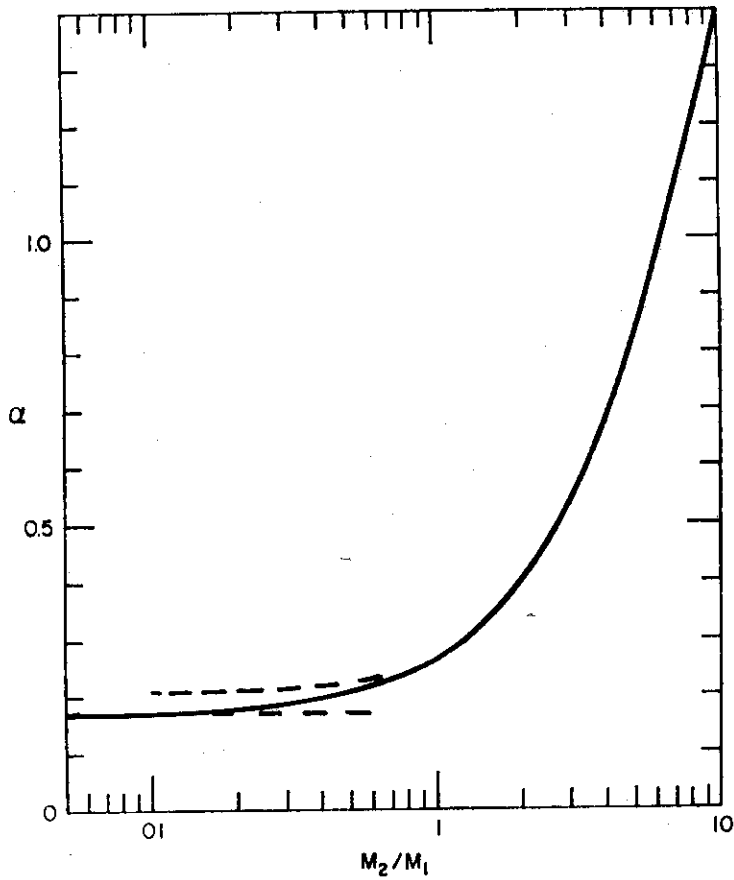


Fig. 1 Factor α [eq.(2)] as a function of mass ratio in the elastic collision region. [After Sigmund.¹²⁾]

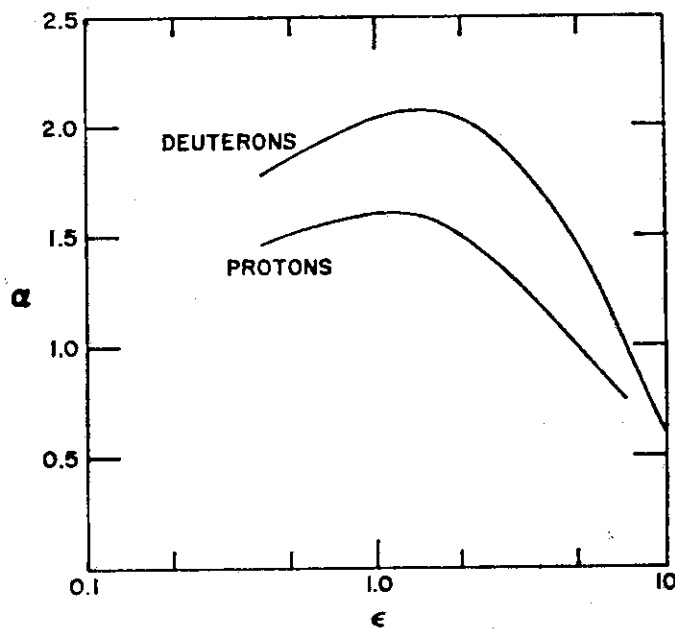


Fig. 2 Factor α in eq.(2) for protons and deuterons incident on a heavy target, as a function of Lindhard's dimensionless energy variable. [After Sigmund.¹²⁾]

ン用に特別に準備してやるか (Fig. 2 参照), または $F(0, E, 1)$ の値を(2)式のような近似を使わずに計算しなければならない。

さらにスパッタリング収率は原子番号 Z_1, Z_2 に対する顕著な周期性のあることは前述の通りである。また, ターゲット温度依存性もそれほど顕著ではないが存在する。これらについても順次具体的な実験例を参考にしつつみてゆくことにする。

§ 4. スパッタリング収率の入射イオンエネルギー依存性

Fig. 3 に Nb をターゲットとして H^+, D^+, T^+, He^+ などの軽イオンと, Kr^+, Xe^+, Nb^+ などの重イオンによるスパッタリング収率をイオンの入射エネルギーの関数として示す。¹¹⁾ また Fig. 4 に H^+, D^+, He^+, Ar^+ によるステンレス鋼, Fe, Ni などのターゲットのスパッタリング収率曲線を示す。¹⁸⁾ いずれの場合も, $\theta = 0^\circ$, すなわち $\eta = 1$ である。これらのターゲット物質は単体または合金の状態で核融合の真空壁材料として現在候補に上っているもののひとつである。この外に重要な候補材料に Mo, V, C などがあるが, これらに関する実用的なデータはほとんどない。また入射イオンに関しても T^+ によるスパッタリング収率の実験データは全くない。

これらの図から次のことがわかる。

- 1) 軽イオンではいずれの曲線も 1 keV 付近にスパッタリング収率の極大が存在する。
- 2) 自己イオンやそれに近い質量数を有する重イオンの場合には, スパッタリング収率曲線はエネルギー E について単調増加の傾向を有する。
- 3) 0.1 ~ 10 keV のエネルギー範囲における軽イオンのスパッタリング収率は, $H^+ : D^+ : T^+ : He^+ = 1 : 3 : 5 : 30$ ほどの比になっている。自己イオンまたはそれに近い重イオンでは H^+ の場合の $10^2 \sim 10^3$ 倍に達する大きな値をもつ。
- 4) 同じイオンの同じエネルギーに対しては, ステンレス鋼のスパッタリング収率は Nb のその約 2 倍程度である。
- 5) H^+, D^+ に対する 0.1 ~ 10 keV 程度の実験データが非常に少ない。

1) および 2) に関しては, 前節ですでに述べたごとく, スパッタリング収率が遮蔽クーロン場でのイオンと原子の間の弾性衝突によるエネルギー損失率 $S_n(E)$ に比例することから理解できる。すなわち $S_n(E)$ を極大にする E の値 E_{max} を Lindhard の理論によって計算すると, Table 1 のようになる。ここには Nb, Fe, Ni 以外に Mo, V, C も加えておいた。これらの値は(4)式における ϵ の値が 0.3 に等しい場合に対応している。軽イオンについては, Behrisch の推定曲線における極大を与えるエネルギーに比べて若干低エネルギー側に寄っているが, よい一致を示すといつてよいであろう。また自己イオンまたはそれに近い重イオンでは E_{max} の値が $C^+ \rightarrow C$ の場合を除いて軽イオンの場合よりも非常に大きくなることもわかり, 推定曲線が E に対して単調増加となっていることが理解できる。

Table 2 に(2)式を用いて計算した各物質のスパッタリング収率の値を示す。上段がイオンの入射エネルギー 1 keV, 下段が 10 keV のときの値である。 T^+, He^+ に対する定数 α の値が

ン用に特別に準備してやるか (Fig. 2 参照), または $F(0, E, 1)$ の値を (2) 式のような近似を使わずに計算しなければならない。

さらにスパッタリング収率は原子番号 Z_1, Z_2 に対する顕著な周期性のあることは前述の通りである。また, ターゲット温度依存性もそれほど顕著ではないが存在する。これらについても順次具体的な実験例を参考にしつつみてゆくことにする。

§ 4. スパッタリング収率の入射イオンエネルギー依存性

Fig. 3 に Nb をターゲットとして H^+, D^+, T^+, He^+ などの軽イオンと, Kr^+, Xe^+, Nb^+ などの重イオンによるスパッタリング収率をイオンの入射エネルギーの関数として示す。¹¹⁾ また Fig. 4 に H^+, D^+, He^+, Ar^+ によるステンレス鋼, Fe, Ni などのターゲットのスパッタリング収率曲線を示す。¹⁸⁾ いずれの場合も, $\theta = 0^\circ$, すなわち $\eta = 1$ である。これらのターゲット物質は単体または合金の状態で核融合の真空壁材料として現在候補に上っているもののひとつである。この外に重要な候補材料に Mo, V, C などがあるが, これらに関する実用的なデータはほとんどない。また入射イオンに関しても T^+ によるスパッタリング収率の実験データは全くない。

これらの図から次のことがわかる。

- 1) 軽イオンではいずれの曲線も 1 keV 付近にスパッタリング収率の極大が存在する。
- 2) 自己イオンやそれに近い質量数を有する重イオンの場合には, スパッタリング収率曲線はエネルギー E について単調増加の傾向を有する。
- 3) 0.1 ~ 10 keV のエネルギー範囲における軽イオンのスパッタリング収率は, $H^+ : D^+ : T^+ : He^+ = 1 : 3 : 5 : 30$ ほどの比になっている。自己イオンまたはそれに近い重イオンでは H^+ の場合の $10^2 \sim 10^3$ 倍に達する大きな値をもつ。
- 4) 同じイオンの同じエネルギーに対しては, ステンレス鋼のスパッタリング収率は Nb のその約 2 倍程度である。
- 5) H^+, D^+ に対する 0.1 ~ 10 keV 程度の実験データが非常に少ない。

1) および 2) に関しては, 前節ですでに述べたごとく, スパッタリング収率が遮蔽クーロン場でのイオンと原子の間の弾性衝突によるエネルギー損失率 $S_n(E)$ に比例することから理解できる。すなわち $S_n(E)$ を極大にする E の値 E_{max} を Lindhard の理論によって計算すると, Table 1 のようになる。ここには Nb, Fe, Ni 以外に Mo, V, C も加えておいた。これらの値は (4) 式における ϵ の値が 0.3 に等しい場合に対応している。軽イオンについては, Behrisch の推定曲線における極大を与えるエネルギーに比べて若干低エネルギー側に寄っているが, よい一致を示すといつてよいであろう。また自己イオンまたはそれに近い重イオンでは E_{max} の値が $C^+ \rightarrow C$ の場合を除いて軽イオンの場合よりも非常に大きくなることもわかり, 推定曲線が E に対して単調増加となっていることが理解できる。

Table 2 に (2) 式を用いて計算した各物質のスパッタリング収率の値を示す。上段がイオンの入射エネルギー 1 keV, 下段が 10 keV のときの値である。 T^+, He^+ に対する定数 α の値が

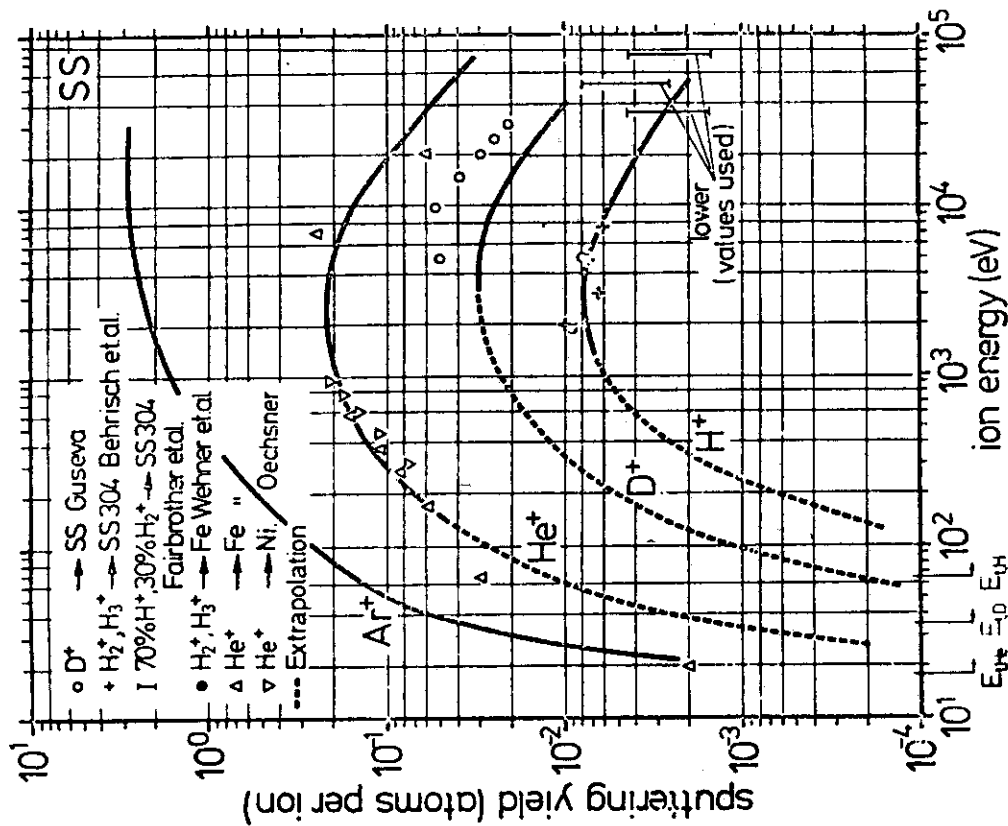


Fig. 4 Sputtering yields of stainless steel as a function of ion energy for different ions at normal incidence. [After Behrlich and Kadomtsev, 18)]

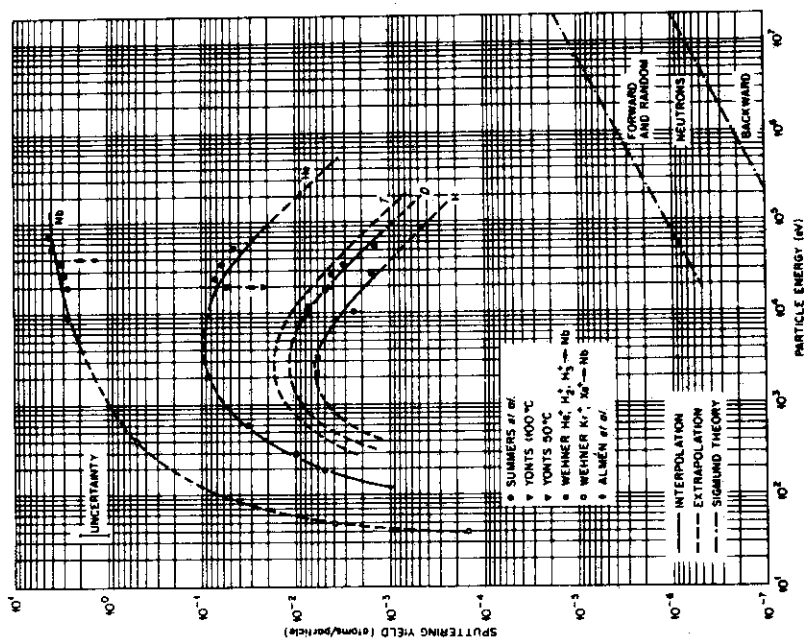


Fig. 3 Sputtering yields for different ions and neutrons at normal incidence on polycrystalline Nb. [After Behrlich, 11)]

Table 1 The energy E_{\max} giving the maximum sputtering yield which corresponds to the dimensionless energy $\epsilon=0.3$.

Ion Target	H ⁺	D ⁺	T ⁺	He ⁺	self-ion
Mo	1.42	1.43	1.44	2.98	161.6
Nb	1.37	1.39	1.40	2.90	151.2
V	0.65	0.66	0.68	1.42	39.2
Fe	0.76	0.78	0.79	1.65	52.3
Ni	0.84	0.85	0.87	1.81	61.7
C	0.12	0.13	0.14	0.33	1.71

Table 2 Sputtering yields calculated from eq.(3) for 1 keV (upper) and 10 keV (lower) ions.

Ion Target	H ⁺	D ⁺	self-ion
Mo	<u>0.026</u>	<u>0.072</u>	3.0 6.4
Nb	<u>0.024</u>	<u>0.067</u>	2.7 5.8
V	0.085 0.029	0.203 0.087	3.4 6.0
Fe	0.075 0.032	0.180 0.091	3.3 6.2
Ni	0.070 0.033	0.168 0.095	3.3 6.3
C	<u>0.042</u>	<u>0.112</u>	0.36 0.28

Fig. 1, 2 に示されていないため、イオン種については H^+ , D^+ および自己イオンに対する計算値のみであるが、この表から D^+ のスパッタリング収率が H^+ のその約3倍となっていることがわかる。しかしながら計算値は Behrisch の推定値や実験値よりもかなり大きな値となっており、この傾向は特に軽イオンについて著しい。実験的にも再現性のある信頼できるデータが必要とされているし、理論的にもさらに検討してゆくことが必要である。

4) に関しては Table 2 からの推定では、Fe のスパッタリング収率が Nb のその約 1.4 倍程度となっていることからほぼ説明できる。

スパッタリング収率のエネルギー依存性に関する Sigmund¹²⁾ の理論を希ガス・イオン (Ne^+ , Ar^+ , Kr^+ , Xe^+ など) と金属ターゲットとの組合せにおける実験データと比較し、その一致の程度を示すものが Fig. 5 および Fig. 6 である。これら重イオンに対する両者の一致はかなりよいといえるであろう。しかしながら、前述のごとく軽イオンについての両者の一致は非常に悪いことは注意しておかねばならない。

§ 5. スパッタリング収率の入射角度依存性

Fig. 7 は Summers ら¹⁹⁾ が測定したスパッタリング収率の入射角 θ への依存性を示すデータである。これは垂直入射 ($\theta = 0^\circ$) の場合のスパッタリング収率 $S(E, 1)$ に対する入射角 θ の場合の収率 $S(E, \eta)$ の比の値を、 θ の関数としてプロットしたものである。実験値はかなりばらついてはいるが、この図で見るかぎり θ の増大につれて $S(E, \eta)$ も増大していることがわかる。これは簡単に次の理由によるものと考えられる。すなわち θ が大きくなるにつれ、原子のはじき出しのカスケードも表面付近で形成され、そのために表面からのスパッター粒子数も増大していく。しかし Fig. 8 に示すように、 θ が $60^\circ \sim 70^\circ$ 付近でスパッタリング収率は極大となり、これ以上では急激に減少してゆく。²⁰⁾ これは斜入射がはなはだしくなると原子のはじき出しカスケードが表面のごく近傍に集中し、この領域での入射粒子の後方散乱が原子のはじき出しカスケードの拡大を妨げて反跳原子の生成効率が小さくなり、急激にスパッタリング収率を低下させることによる。また表面にはほぼ平行にイオンを入射させた場合には、表面でのイオンの反射率が增大し、実効的な照射イオン数が減少してしまうことになる。

スパッタリング収率の入射角度依存性についても Sigmund¹²⁾ によって計算されている。 $0^\circ \leq \theta \leq 60^\circ$ の範囲では、これは簡単に書くことができ、

$$\frac{S(E, \eta)}{S(E, 1)} = (\cos \theta)^{-f} \quad (8)$$

で与えられる。ただし f は入射イオンとターゲット原子との相互作用ポテンシャルと質量比 M_2/M_1 だけに依存する無次元の定数であり、 $M_2/M_1 < 3$ の範囲で $f \approx 5/3$ である。 $M_2/M_1 > 3$ では f は単調に減少し $M_2/M_1 \approx 8$ で $f = 1$ となる。Fig. 9 にこの Sigmund の計算結果と実験データの比較が示されている。 $\theta \leq 70^\circ$ の範囲での一致はよいと考えてよからう。しかしながら $\theta = 80^\circ$ 付近での急激な減少は説明できていない。これは表面の原子列との

Fig. 1, 2 に示されていないため、イオン種については H^+ , D^+ および自己イオンに対する計算値のみであるが、この表から D^+ のスパッタリング収率が H^+ のその約3倍となっていることがわかる。しかしながら計算値は Behrisch の推定値や実験値よりもかなり大きな値となっており、この傾向は特に軽イオンについて著しい。実験的にも再現性のある信頼できるデータが必要とされているし、理論的にもさらに検討してゆくことが必要である。

4) に関しては Table 2 からの推定では、Fe のスパッタリング収率が Nb のその約 1.4 倍程度となっていることからほぼ説明できる。

スパッタリング収率のエネルギー依存性に関する Sigmund¹²⁾ の理論を希ガス・イオン (Ne^+ , Ar^+ , Kr^+ , Xe^+ など) と金属ターゲットとの組み合わせにおける実験データと比較し、その一致の程度を示すものが Fig. 5 および Fig. 6 である。これら重イオンに対する両者の一致はかなりよいといえるであろう。しかしながら、前述のごとく軽イオンについての両者の一致は非常に悪いことは注意しておかねばならない。

§ 5. スパッタリング収率の入射角度依存性

Fig. 7 は Summers ら¹⁹⁾ が測定したスパッタリング収率の入射角 θ への依存性を示すデータである。これは垂直入射 ($\theta = 0^\circ$) の場合のスパッタリング収率 $S(E, 1)$ に対する入射角 θ の場合の収率 $S(E, \eta)$ の比の値を、 θ の関数としてプロットしたものである。実験値はかなりばらついてはいるが、この図で見るかぎり θ の増大につれて $S(E, \eta)$ も増大していることがわかる。これは簡単に次の理由によるものと考えられる。すなわち θ が大きくなるにつれ、原子のはじき出しのカスケードも表面付近で形成され、そのために表面からのスパッター粒子数も増大していく。しかし Fig. 8 に示すように、 θ が $60^\circ \sim 70^\circ$ 付近でスパッタリング収率は極大となり、これ以上では急激に減少してゆく。²⁰⁾ これは斜入射がはなはだしくなると原子のはじき出しカスケードが表面のごく近傍に集中し、この領域での入射粒子の後方散乱が原子のはじき出しカスケードの拡大を妨げて反跳原子の生成効率が小さくなり、急激にスパッタリング収率を低下させることによる。また表面にはほぼ平行にイオンを入射させた場合には、表面でのイオンの反射率が增大し、実効的な照射イオン数が減少してしまうことになる。

スパッタリング収率の入射角度依存性についても Sigmund¹²⁾ によって計算されている。 $0^\circ \leq \theta \leq 60^\circ$ の範囲では、これは簡単に書くことができ、

$$\frac{S(E, \eta)}{S(E, 1)} = (\cos \theta)^{-f} \quad (8)$$

で与えられる。ただし f は入射イオンとターゲット原子との相互作用ポテンシャルと質量比 M_2/M_1 だけに依存する無次元の定数であり、 $M_2/M_1 < 3$ の範囲で $f \simeq 5/3$ である。 $M_2/M_1 > 3$ では f は単調に減少し $M_2/M_1 \simeq 8$ で $f = 1$ となる。Fig. 9 にこの Sigmund の計算結果と実験データの比較が示されている。 $\theta \leq 70^\circ$ の範囲での一致はよいと考えてよからう。しかしながら $\theta = 80^\circ$ 付近での急激な減少は説明できていない。これは表面の原子列との

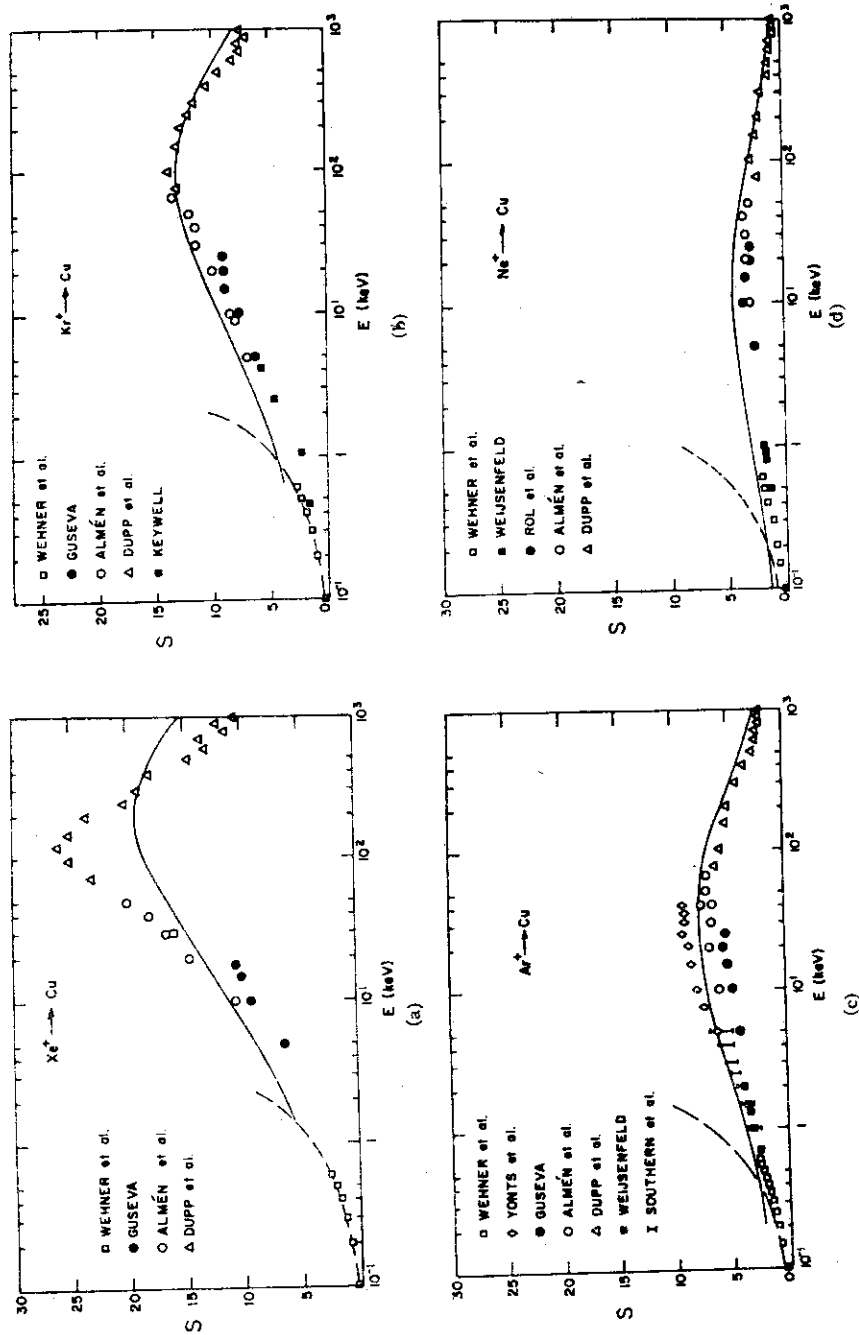


Fig. 5 Sputtering yields for Cu calculated from eq.(3) (solid curve) and eq.(7) (dashed curve), compared with experimental results. $U_0=3.51$ eV. Low-energy yields of Wehner et al. have not been corrected for secondary electrons. (a) Xe^+ ions; (b) Kr^+ ions; (c) Ar^+ ions; (d) Ne^+ ions. [After Sigmund. 12]

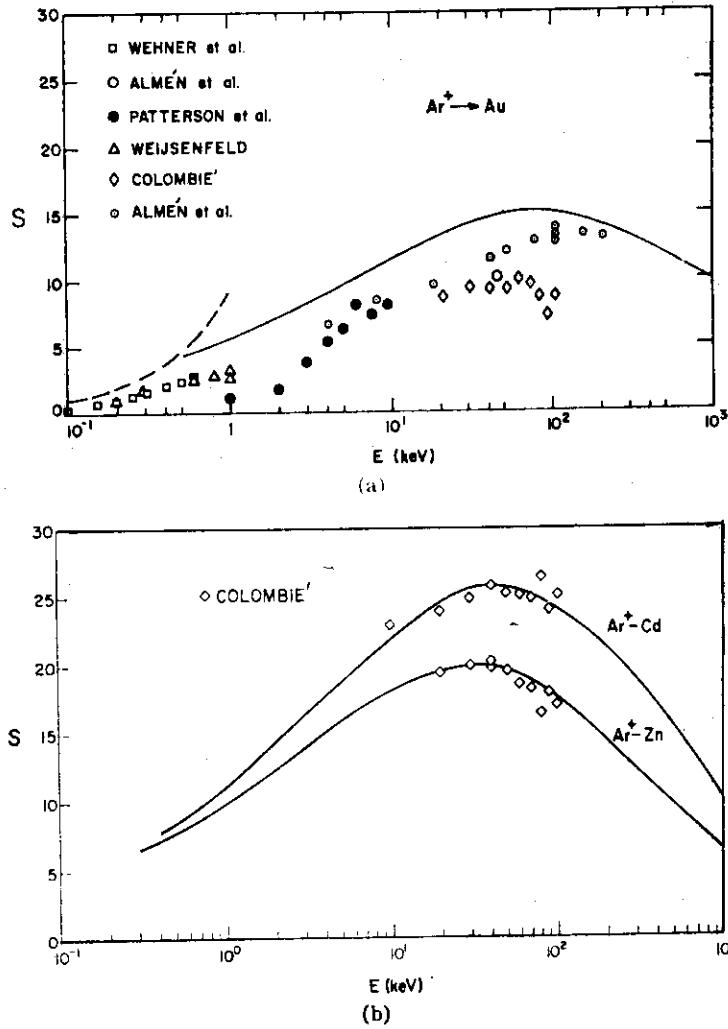


Fig. 6 Sputtering yields for argon ions. (a) Gold $U_0=3.80$ eV. (b) Zinc and cadmium $U_0=1.35$ eV (Zn), 1.16 eV (Cd). [After Sigmund,¹²⁾]

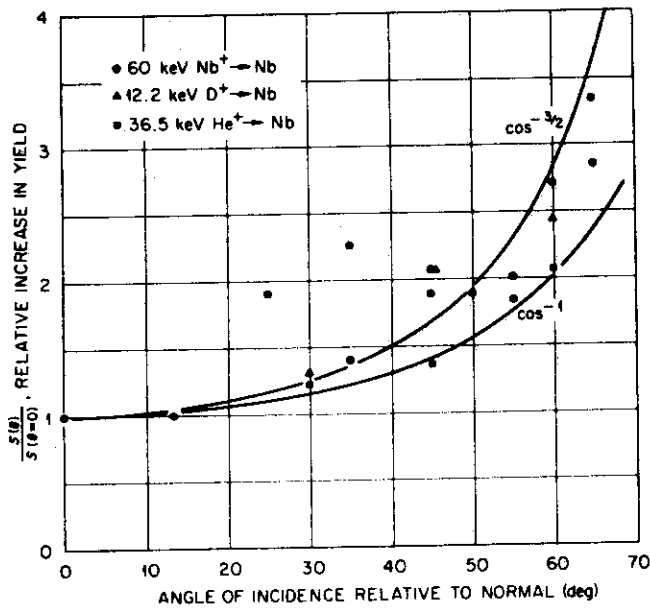


Fig. 7 Dependence of sputtering yields on angle of incidence for different ions on Nb. [After Summers et al.¹⁹⁾]

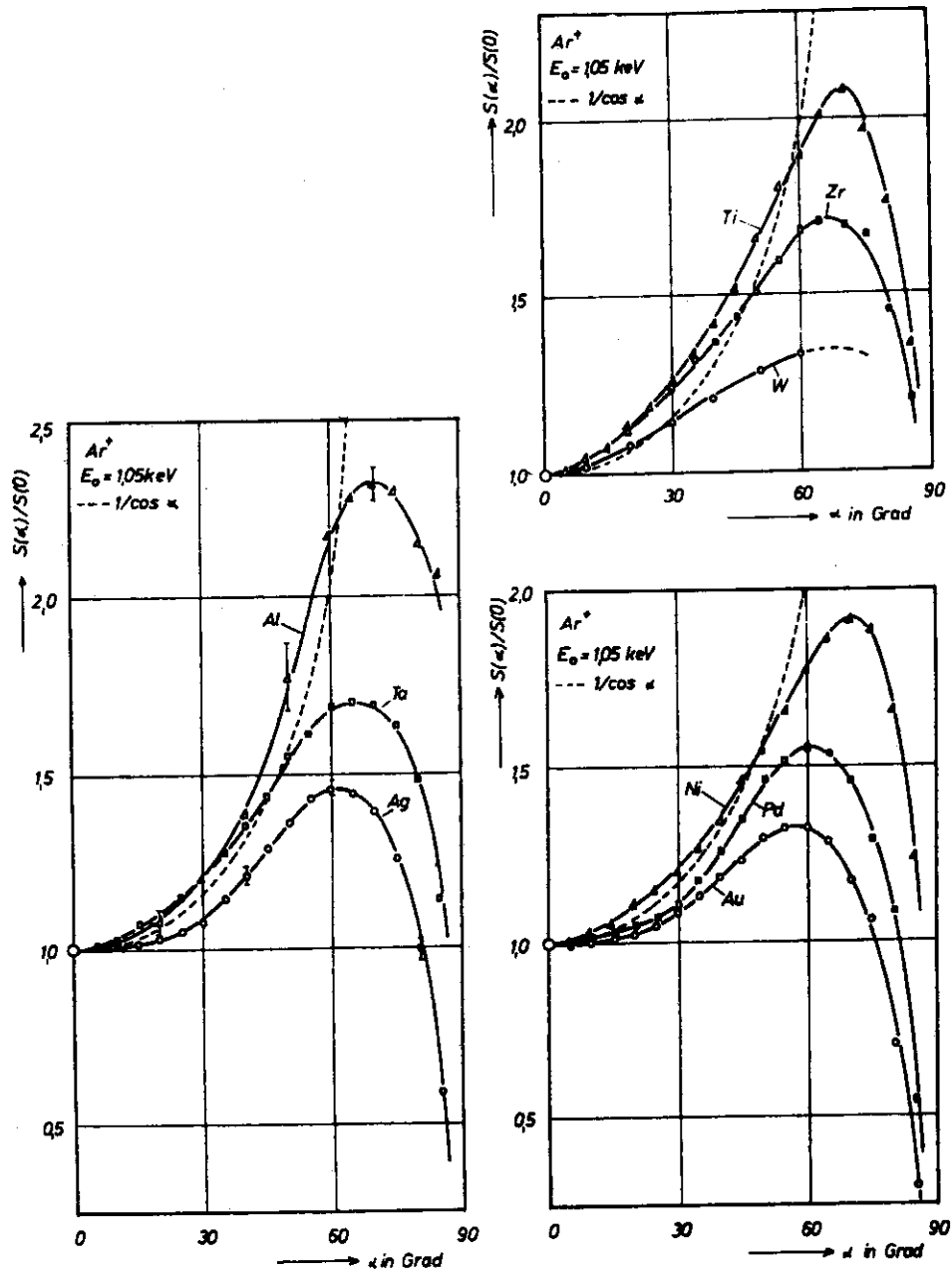


Fig. 8 Dependence of sputtering yields on angle of incidence for 1.05 keV Ar^+ ions incident on different materials. Dashed curves: $1/\cos \alpha$. [After Oechsner.²⁰⁾]

多重散乱との関係で検討することが必要となるであろう。²¹⁾またこのような表面散乱は表面の構造を反映する点からも注目に値する。²²⁾

さて Sigmund¹²⁾ によって導入されたスパッタリング効率 $r(\eta)$ はスパッタリング収率の入射角度依存性を計算する上で重要な因子である。ここで $\eta = \cos \theta$ である。スパッタリング効率は

$$r(\eta) = \frac{1}{E} \int_{-\infty}^0 F(x, E, \eta) dx \quad (9)$$

で定義される量であつて η に強く依存している。 r の物理的意味は、スパッタリングおよびイオンの後方散乱によってターゲット表面から持ち去られるエネルギーの入射エネルギーに対する割合である。 $r(\eta)$ は(1)式における $F(0, E, \eta)$ と密接な関係をもっている。また、Sigmund はこれが

$$r(\eta) = r_p + (\frac{1}{2} - r_p)(1 - \eta)^2 \quad (9')$$

の形に近似できることを示唆している。ここで r_p は垂直入射 ($\theta = 0^\circ$) のときの r の値であつて、(9')式より r の η 依存性を決めるただ一つのパラメータである。Andersen²³⁾ は実験によって r の入射角依存性を調べ Fig. 10 のような結果を得ている。入射角が $0^\circ \leq \theta \leq 43^\circ$ の範囲においては(9')式が実験的によい近似であることがわかる。さらに(9')式を

$$\frac{r(\eta)}{r_p} = 1 + \left(\frac{1}{2r_p} - 1 \right) (1 - \eta)^2 \quad (9'')$$

と変形し、ターゲット物質とイオン種の数多くの組合せについて実験で求めた(9)式の左辺の値を r_p に対してプロットすると Fig. 11 のようになる。これより $r(\eta)$ の値を決めるものは r_p だけであり、質量比 M_2/M_1 やイオンの入射エネルギーには無関係であることがわかる。

ターゲットが単結晶であるときのスパッタリング収率の入射角度依存性は、結晶の規則的な配列が入射イオンのターゲット中での散乱に直接影響をおよぼし多結晶の場合とは全く異なった様相を呈する。^{24~26)} すなわちチャンネルリング効果によって、低指数軸の方向から結晶へ入射したイオンは、格子原子との相互作用の少ないまま結晶内へ深く侵入してゆく。こうしてこの入射角においてはスパッタリング収率が極小となる。核融合の真空壁は単結晶の状態で使用することはないのでこれ以上言及することは止めるが、スパッタリングのメカニズムを理解する上では重要なことである。

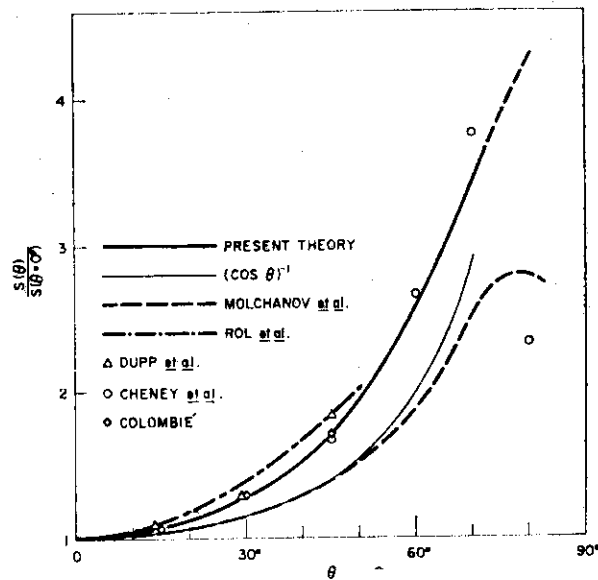


Fig. 9 Variation of the sputtering yield with angle of incidence for Ar^+ ions incident on polycrystalline copper. Thick solid curve: Sigmund's theory; thin solid curve: $1/\cos\theta$. [After Sigmund.¹²⁾]

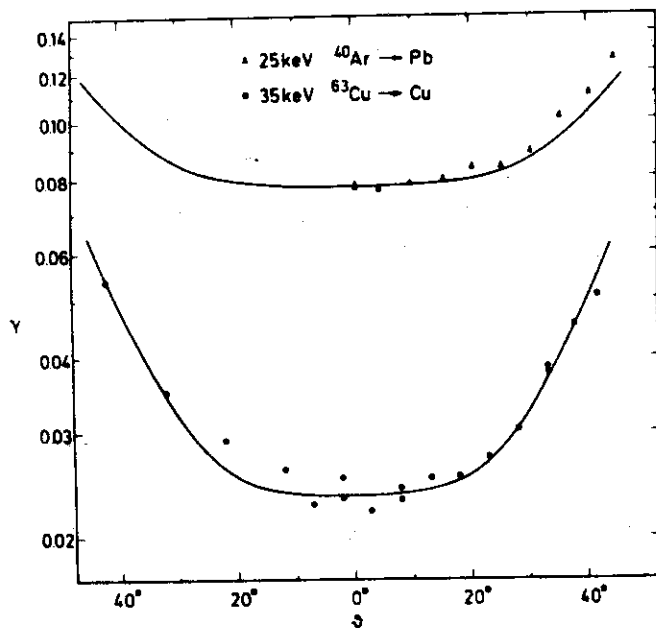


Fig. 10 Dependence of γ on a copper and lead target on angle of ion incidence compared with the formula $\gamma(\eta) = \gamma_p + (1/2 - \gamma_p)(1 - \eta)^2$ (full-drawn curves). [After Andersen.²³⁾]

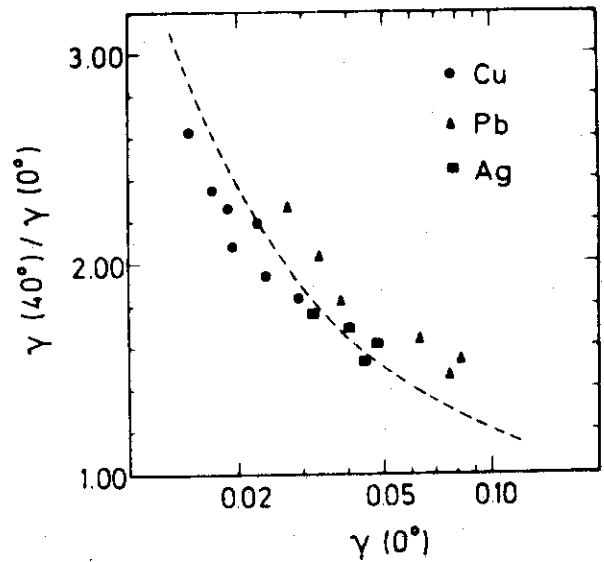


Fig. 11 $\gamma(40^\circ)/\gamma(0^\circ)$ for 17 different combinations of target material and ion species and energy. The broken curve represents the function $1 + (1/2\gamma_p - 1)(1 - \eta)^2$ with $\eta = 40^\circ$. [After Andersen.²³⁾]

§ 6. スパッタリング収率の原子番号依存性

すでに §2 において述べたように、自己スパッタリング収率の原子番号依存性は強い周期性をもっていることが 1961 年にわかった。⁴⁾この時のイオンのエネルギーは 45 keV と比較的高い。その後 Rosenberg と Wehner²⁷⁾ は 400 keV の希ガスイオンを用いて 30 種類の固体のスパッタリング収率を測定した。Fig. 12 に He⁺ イオンの場合の実験結果を示す。ターゲットの原子番号に対してスパッタリング収率が強い周期性をもっていることがわかる。Fig. 12 に示した収率は $S/(1+r)$ の値で表わされていることに注意しなければならない。 r はイオン照射による 2 次電子放出率である。これは実験が放電管の中で行われたために、入射イオンビームの電流値の測定の際にこの補正が出来なかったことによる。Fig. 13 に 7keV H₂⁺ イオンによるスパッタリング収率の原子番号依存性を示す。²⁸⁾ いずれも Cu, Ag および Au においてスパッタリング収率は極大となる。これはターゲット原子の電子配置において、3d, 4d, 5d 殻が満席になり、それぞれ 4s, 5s, 6s 殻に 1 個の電子が存在することに対応している。このように d 殻が閉殻となり空席の少ない電子配置を有する原子とイオンとの衝突は剛体球どうしの衝突に近くなるのでスパッタリングも起こりやすくなると考えられる。このような考え方にたてば Pd は Ag よりもスパッタリング収率が大きくなるはずであるが、逆になっている。これは表面原子の結合エネルギーが Pd で 4.8 eV, Ag で 2.7 eV と Ag の 1.8 倍にもなっているからである。この表面原子の結合エネルギー U_0 は固体の昇華熱 E_s に等しいと考えてよいが、 E_s 自身も原子番号に対して顕著な周期性をもっている。すなわち $1/E_s$ を原子番号に対してプロットしてみるとスパッタリング収率の場合とよく似た周期性が現われる。(1)式からスパッタリング収率は U_0 に逆比例していることを考えれば上述のことは理解できる。スパッタリング収率が極小になる元素は Ti, V, Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W などであることも予想通りである。

一方、ターゲットの原子番号は一定にしてイオンの原子番号を変化させた場合のスパッタリング収率の周期性が初め Almén & Bruce によって調べられた。Fig. 14 にその結果を示す。⁵⁾ Sigmund¹²⁾ の理論からは α も $s_n(\epsilon)$ も Z_1 に対してなめらかに変化するから Fig. 14 の太線のようなになるはずである。Andersen と Bay はこの不一致が何によるのかを確かめるために追試を行った。²⁹⁾ その結果を Fig. 15 に示す。Almén & Bruce の指摘した周期性はみられず Sigmund¹²⁾ の理論との一致はかなりよいということがわかった。真空蒸着法によって薄膜ターゲットを製作する際に、残留ガスの圧力が大きい ($\sim 10^{-5}$ Torr) 雰囲気の下で作られたものは、圧力の小さい ($\sim 10^{-7}$ Torr) 雰囲気の下で作られたものに比較して、スパッタリング収率がイオンのフルエンスの増大と共に急激に減少する。これは蒸着の際に混入した不純物ガスがイオン照射によって表面から拡散して逃げてゆくためであると考えられている。またイオンのフルエンスがある量に達するとスパッタリング収率は飽和状態になる。飽和に達するまでの時間が非常に長いことから、これはイオン照射損傷による増速拡散によって、一たんターゲット中へ侵入したイオンが表面にクラスターを作り表面の結合エネルギー U_0 が変化してしまうためと考えられる。また表面の凹凸の状態がイオン照射とともにゆっくりと変化することも原因しているだろう。いずれにせよ、Almén & Bruce⁵⁾ の実験においては以上にみたようなイオン・フル

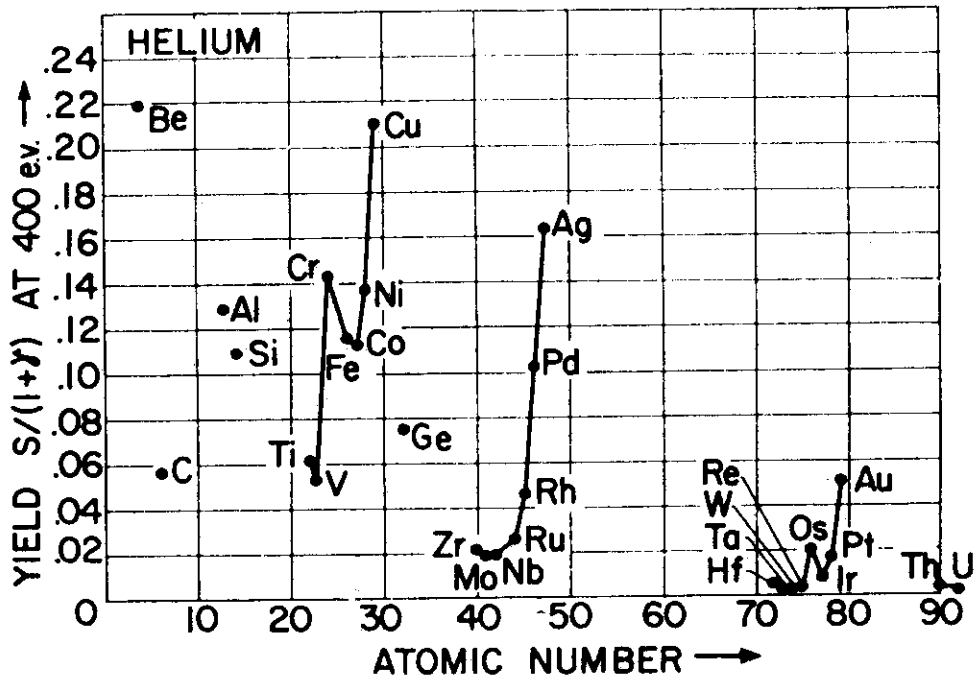


Fig. 12 The sputtering yield for 400 eV He^+ bombardment as a function of the target's atomic number. The divisor $(1+\gamma)$ indicates that the ion current was uncorrected for secondary electron yield γ . [After Rosenberg and Wehner.²⁷⁾]

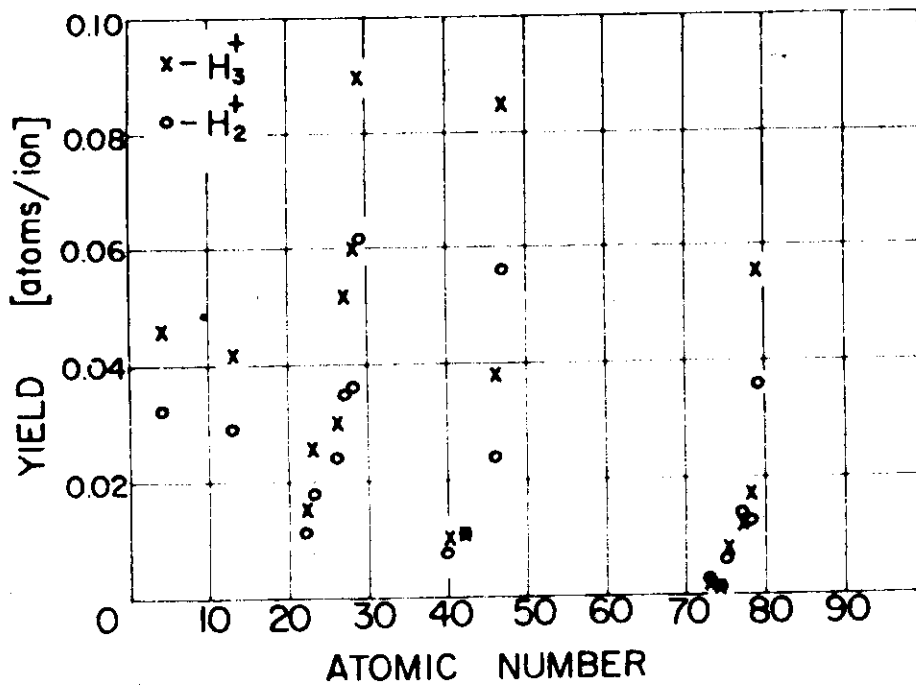


Fig. 13 Sputtering yield for 7 keV H_2^+ and H_3^+ bombardment as a function of the target's atomic number. Largest yields in periods 4, 5 and 6 occur at Cu, Ag and Au, respectively. [After KenKnight and Wehner.²⁸⁾]

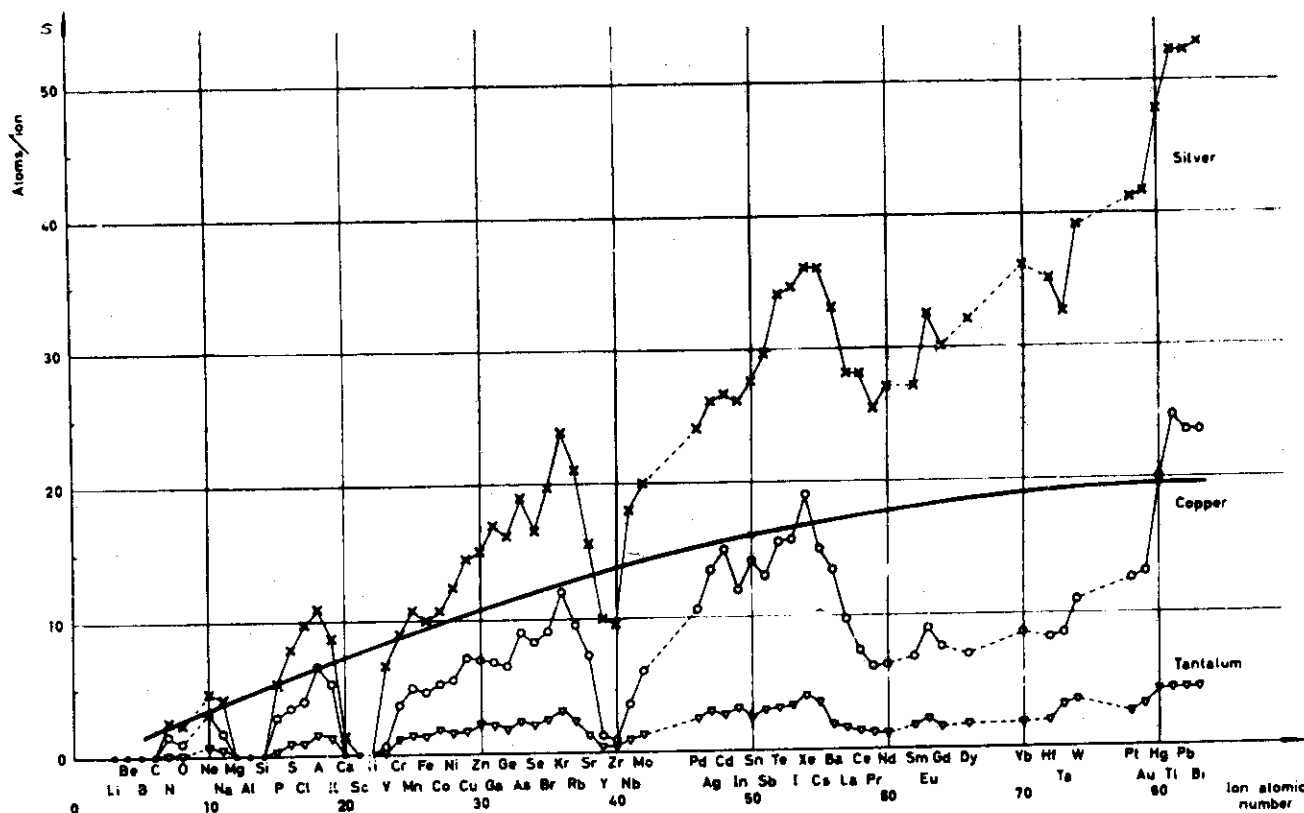


Fig. 14 Saturation sputtering yields of copper, silver, and tantalum for numerous 45-keV ions as measured by Almén and Bruce, together with Sigmund's theoretical result for copper (solid line). [After Andersen and Bay.²⁹⁾]

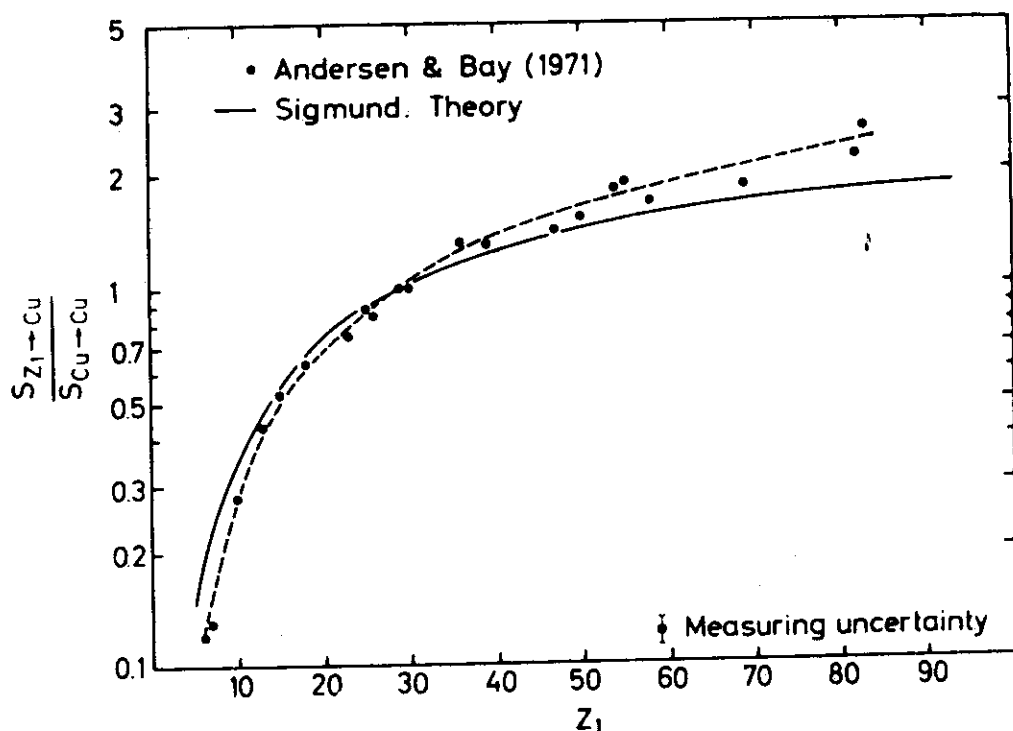


Fig. 15 Reduced sputtering yield of copper for 21 different 45-keV ions together with the theoretical prediction of Sigmund.¹²⁾ [After Andersen and Bay.²⁹⁾]

エンス依存性が注意深く考慮されていなかったため、スパッタリング収率の Z_1 依存性が周期性をもつという誤った結論を導いてしまった。このようにスパッタリングの実験において再現性のある信頼できるデータを得るためには、ターゲットの純度、表面仕上げの程度、真空度、さらにはイオンのフルエンスなどを精度よくコントロールしなければならない。

§ 7. スパッタリング収率のターゲット温度依存性

Fig. 16 にいくつかの物質のスパッタリング収率のターゲット温度依存性を示す Nelson³⁰⁾の実験結果を示す。多結晶ターゲットでは、ある温度以下ではスパッタリング収率はほぼ一定である。しかしターゲット物質の飽和蒸気圧が顕著になる温度領域でスパッタリング収率も温度とともに急激に上昇している。Mo, Nb, V, ステンレス鋼などの軽イオン、自己イオンによるスパッタリング収率の温度依存性に関する実験例は見当たらないが、Nelsonの結果と同様、 $T \leq 0.5 T_m$ (T_m は融点)の実用温度範囲では温度依存性は無視できる程度であろう。

しかしながら単結晶では少し様子が異なっている。Elichら³¹⁾がCuの単結晶ターゲットを用いた20keVによるスパッタリング収率の温度依存性を調べた実験では、(112)面に垂直な方向からのイオンの入射に対してはスパッタリング収率は温度とともに減少する傾向が観測されている。

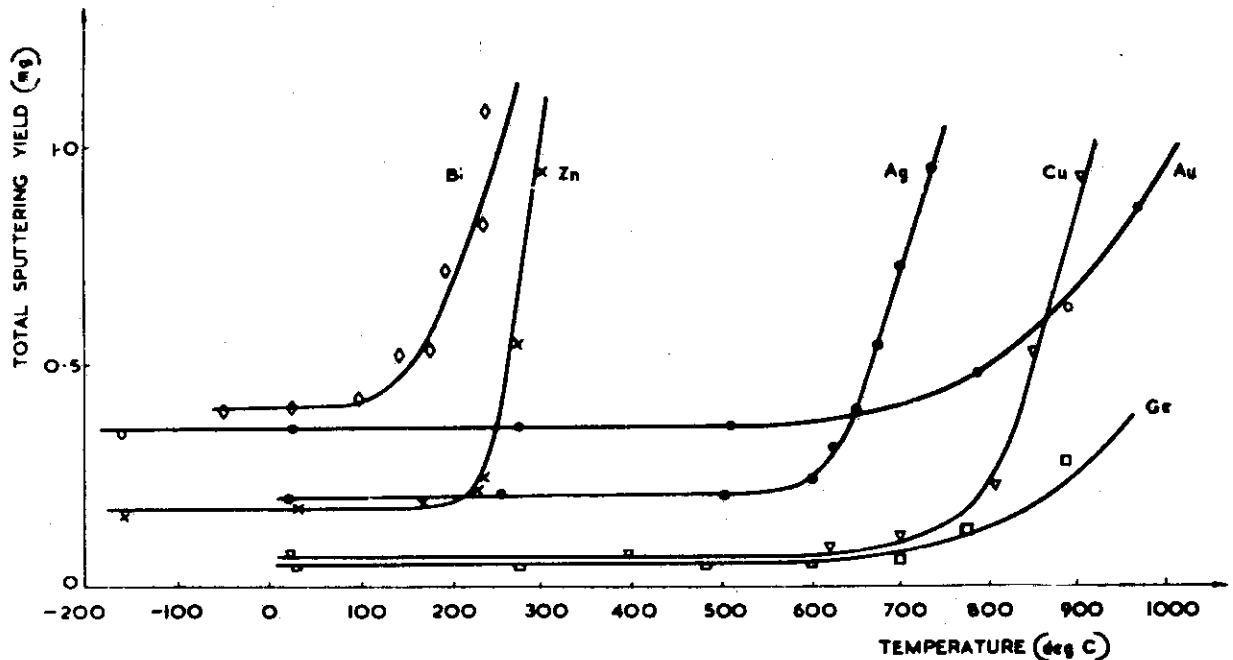


Fig. 16 Total sputtering yield (loss in weight) after irradiation with 45 keV Xe^+ ions, to total dose of 2.9×10^{16} ions, as a function of temperature. [After Nelson,³⁰⁾]

エンス依存性が注意深く考慮されていなかったため、スパッタリング収率の Z_1 依存性が周期性をもつという誤った結論を導いてしまった。このようにスパッタリングの実験において再現性のある信頼できるデータを得るためには、ターゲットの純度、表面仕上げの程度、真空度、さらにはイオンのフルエンスなどを精度よくコントロールしなければならない。

§ 7. スパッタリング収率のターゲット温度依存性

Fig. 16 にいくつかの物質のスパッタリング収率のターゲット温度依存性を示す Nelson³⁰⁾ の実験結果を示す。多結晶ターゲットでは、ある温度以下ではスパッタリング収率はほぼ一定である。しかしターゲット物質の飽和蒸気圧が顕著になる温度領域でスパッタリング収率も温度とともに急激に上昇している。Mo, Nb, V, ステンレス鋼などの軽イオン、自己イオンによるスパッタリング収率の温度依存性に関する実験例は見当たらないが、Nelsonの結果と同様、 $T \leq 0.5 T_m$ (T_m は融点)の実用温度範囲では温度依存性は無視できる程度であろう。

しかしながら単結晶では少し様子が異なっている。Elichら³¹⁾がCuの単結晶ターゲットを用いた20keVによるスパッタリング収率の温度依存性を調べた実験では、(112)面に垂直な方向からのイオンの入射に対してはスパッタリング収率は温度とともに減少する傾向が観測されている。

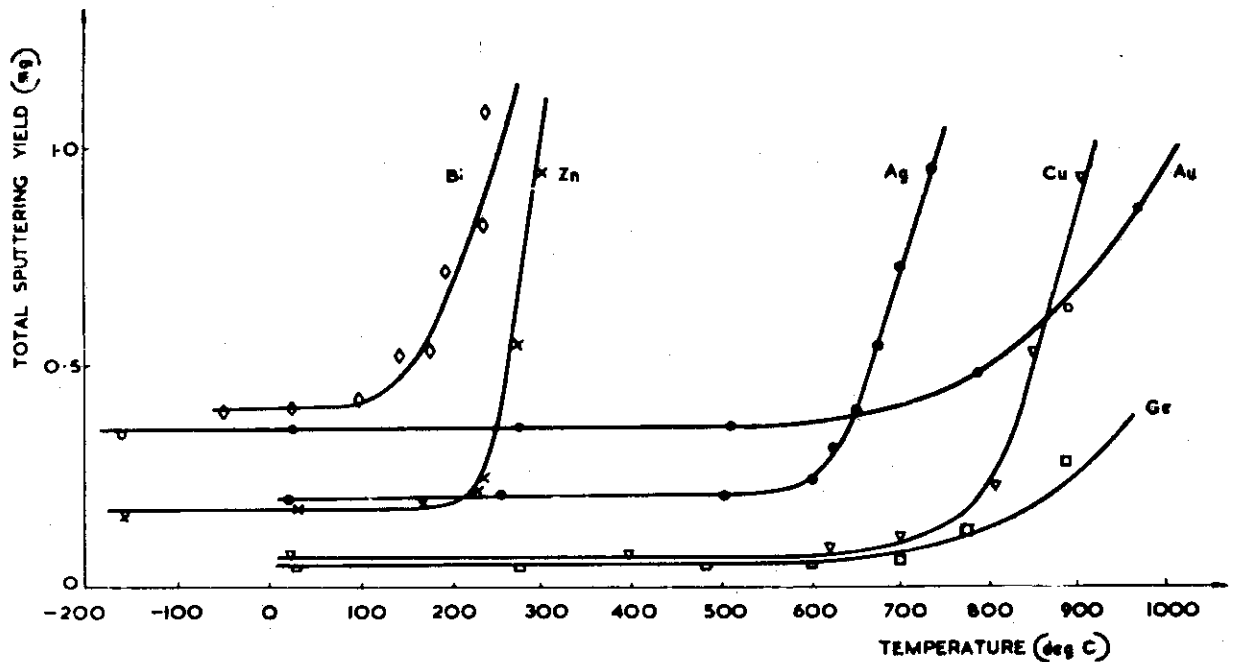


Fig. 16 Total sputtering yield (loss in weight) after irradiation with 45 keV Xe^+ ions, to total dose of 2.9×10^{16} ions, as a function of temperature. [After Nelson.³⁰⁾]

§ 8. スパッターされた粒子のエネルギー・スペクトル

スパッターされた粒子のほとんどは電気的には中性である。またスパッター粒子の大部分は格子点からはじき出された原子が多重衝突をした後にターゲット表面から放出されたものであるから、放出時のエネルギーは非常に低く、0～20 eV程度の領域にある粒子が多い。Fig.17は35 keVのKr⁺およびXe⁺イオンによってスパッターされた金属原子の平均エネルギー \bar{E} の原子番号依存性を示す。³²⁾ここに示される周期性から、 \bar{E} も表面の結合エネルギー U_0 に関係していることが考えられる。平均エネルギー \bar{E} は次の式で定義される量である。

$$\bar{E} = \int_0^{E_m} E \cdot \phi(E) dE / \int_0^{E_m} \phi(E) dE \quad (10)$$

ここで E はスパッターされた原子のエネルギー、 E_m は E の最大値、 $\phi(E)$ はエネルギー・スペクトルである。スパッターされた粒子の大部分が中性で低エネルギーであるということから、これらの粒子のエネルギー・スペクトルを測定するには特別な工夫が必要である。最もよい方法は飛行時間法 (Time of Flight Method) である。この方法によるものには Stuart と Wehner らのグループ^{33~35)}、Politiek と Kistemaker³⁶⁾、および Thompson らのグループ^{37~39)}の仕事がある。また高周波による中性原子のイオン化を利用したものに Oechsner らの方法がある。^{40,41)}

Stuart と Wehner らが測定したエネルギー・スペクトルの一例を Fig. 18 に示す。³⁵⁾この図からターゲット原子が重いほど放出エネルギーが高エネルギー側にずれていることがわかる。また彼らはイオン・エネルギー1200 eV以下における一連の実験の結果から次のようなことを結論している。^{34,35)}

- 1) 表面の法線方向から測った放出角度が大きいほど、放出エネルギーも大きい。
- 2) イオンの入射エネルギーが高くなるにつれて、高エネルギー側への裾野も顕著になってくる。
- 3) 入射イオンが軽いほど放出エネルギーは減少する。
- 4) ターゲットが単結晶の場合、放出エネルギーは単結晶の方位や構造にはほとんど影響をうけない。
- 5) スパッタリング収率の大きい物質ほど、放出エネルギーは低い。

Thompson³⁷⁾は格子原子のはじき出しのカスケードの簡単なモデルから、スパッターされた粒子のエネルギー・スペクトルが

$$\phi(E, \varphi) = \frac{1 - \{(U_0 + E) / AE_0\}^{1/2}}{E^2 (1 + U_0/E)^3} \cos \varphi \quad (11)$$

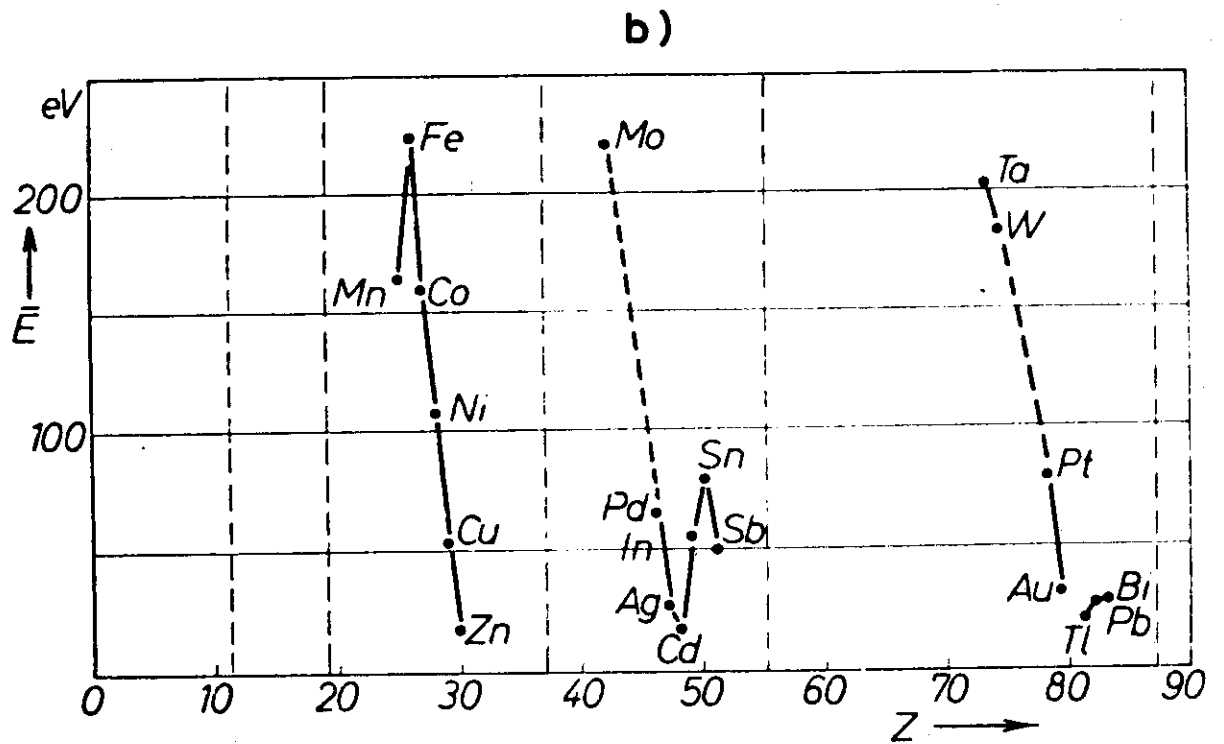
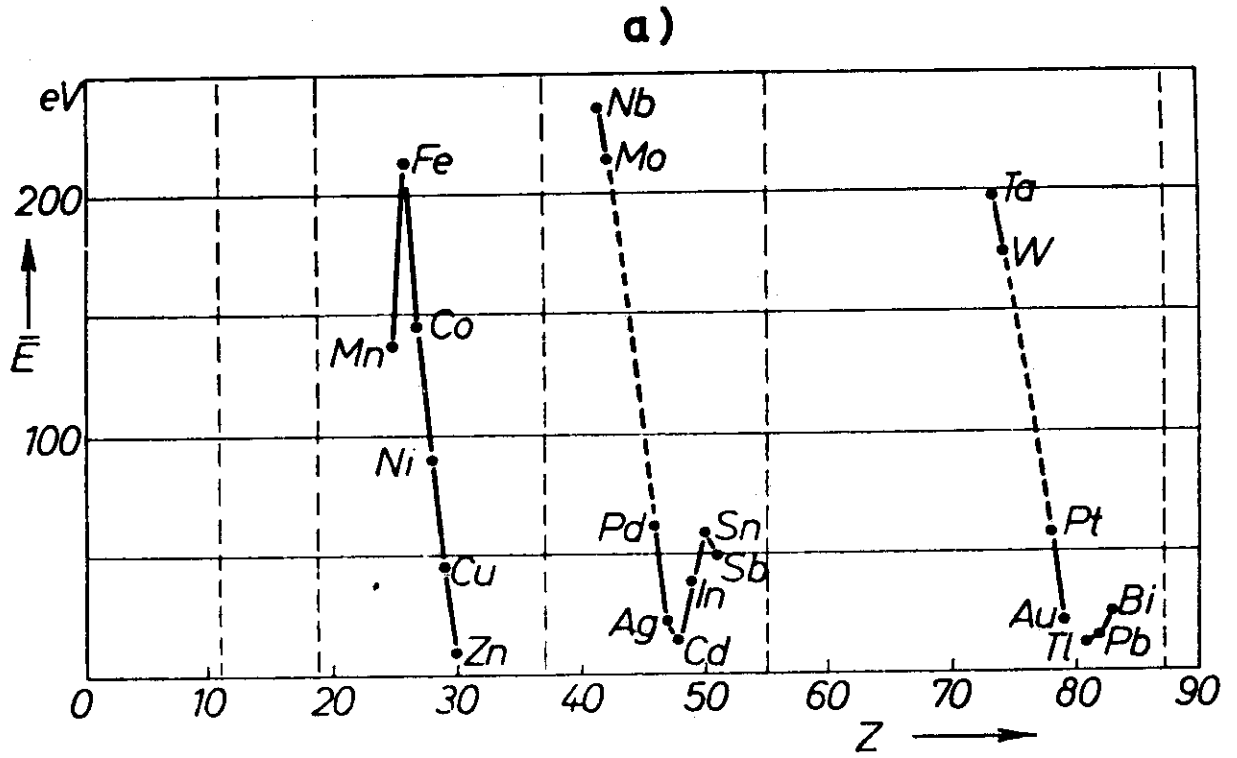


Fig. 17 The average energy of atoms sputtered from polycrystalline targets as a function of atomic number. a) Xe⁺ ions; b) Kr⁺ ions. [After Kopitzki and Stier.³²⁾]

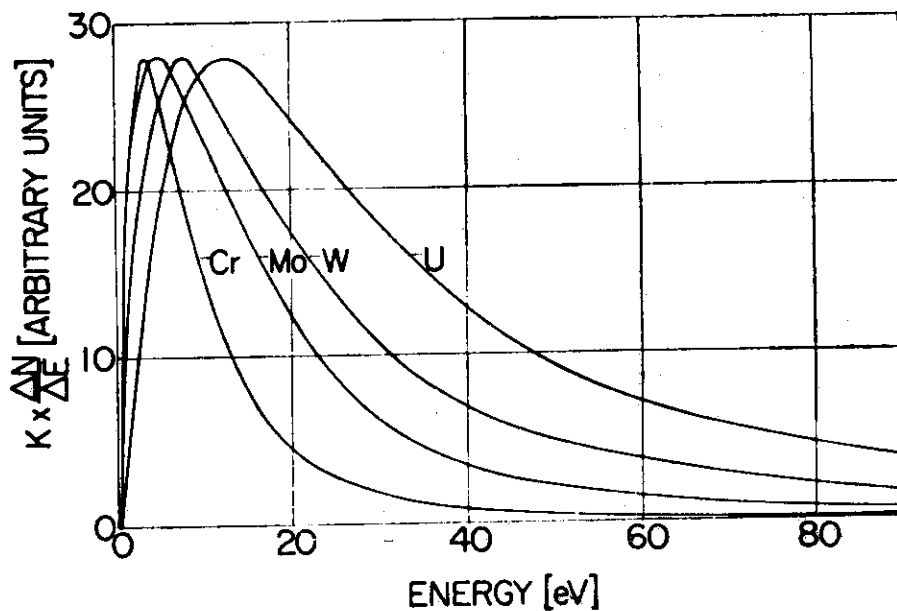


Fig. 18 Energy distributions of atoms ejected in the normal direction from polycrystalline Cr, Mo, W, and U targets under bombardment by normally incident Kr^+ ions at 1200 eV. [After Stuart et al.³⁵⁾]

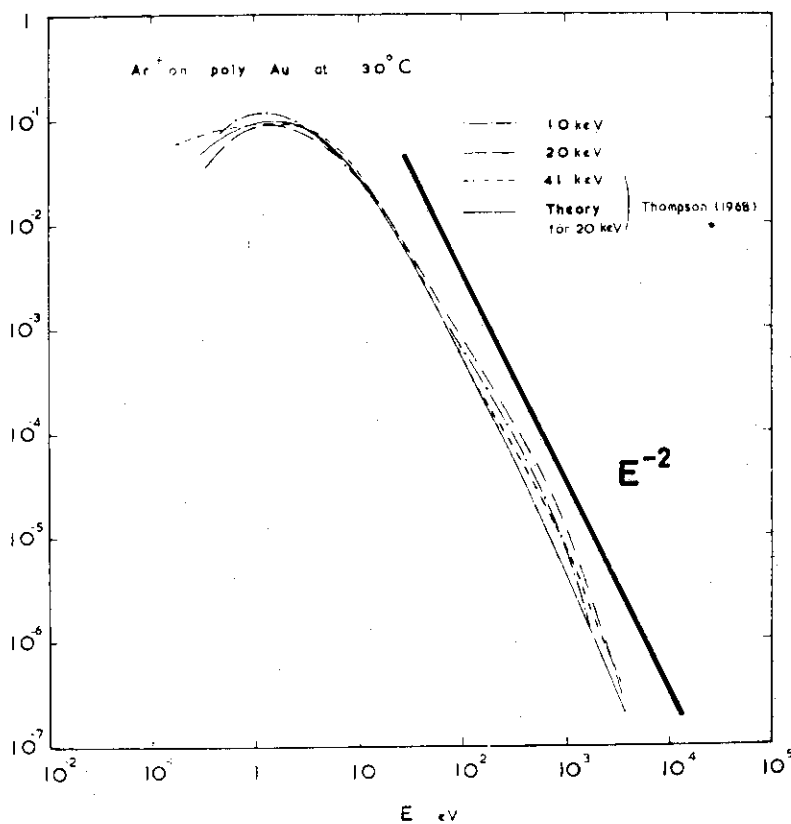


Fig. 19 Energy spectra for 10, 20 and 41 keV argon on polycrystalline gold at room temperature compared with random cascade theory. [After Chapman et al.³⁹⁾]

で与えられることを示した。ここで E_0 は入射イオンのエネルギーであり、 φ はスパッターされた粒子の放出角度である。また $A = 4 M_1 M_2 / (M_1 + M_2)^2$ である。(10) 式の E_m は $A E_0$ に等しい。(11) 式から $E \ll U_0$ においては、 $\phi(E, \varphi) \propto E \cos \varphi$ 、 $E \approx \frac{1}{2} U_0$ で最大となり、以後 E の増大と共に $\phi(E, \varphi) \propto E^{-2} \cos \varphi$ で減少してゆく。 E が十分に大きくなり、 $E = E_m$ においては(11)式の分子が 0 になることから $\phi(E_m, \theta) = 0$ となる。また(11)式を用いて(10)式における \bar{E} を計算することができ、 $E_m \gg U_0$ においては

$$\bar{E} = \frac{1}{2} U_0 \log \left(\frac{E_m}{4 U_0} \right) \quad (12)$$

となる。これより Fig. 17 における \bar{E} の U_0 依存性が説明できる。またイオンの入射エネルギーの増大とともに、ゆるやかに \bar{E} が増加することもいえる。

Fig. 19 に比較的エネルギーの大きい Ar^+ イオンによる Au ターゲットのスパッタリングのエネルギー・スペクトルを示す。³⁹⁾ Thompson の理論と実験の結果はかなりよいことがわかる。特にスペクトルの極大を与えるエネルギーが約 2 eV であること、および高エネルギー側で E^{-2} の関数で変化していることなどがはっきりとわかる。ところで、ターゲットの温度を融点に近づけてゆくと、エネルギー・スペクトルの形は特に低エネルギー領域で大きく変化し、スペクトルの極大を与えるエネルギーが常温の場合に比べて低エネルギー側へ大きく移動し、約 0.1 eV の付近に位置するようになる。(Fig. 20)³⁹⁾ これは Chapman らによって熱スパイクのメカニズムがやはりスパッタリングに寄与しているとして説明されている。このことは、スパッタリングが原子衝突のカスケードによるものであるという定説をくつがえし、すでに否定されたと考えられている熱スパイク・モデルの復活を示唆するものとして興味がある。Fig. 21 に Politiek と Kistemaker の測定したエネルギー・スペクトルを示す。³⁶⁾ 彼らはエネルギー・スペクトルを Thompson の理論と対照させながら、K ターゲットの表面の結合エネルギー U_0 が 0.71 eV であり、これが K の融点における蒸発熱 0.82 eV より若干小さいのは K ターゲットの熱膨張から予期できることであるとしている。

さてスパッターされた粒子のエネルギー・スペクトルの測定については軽イオンのデータが非常に少ない。わずか He^+ イオンによる単結晶の Cu (110) でのスペクトルが測定された程度である。³⁴⁾ 水素によるものは全くない。

§ 9. スパッターされた粒子の放出角度分布

(11) 式から明らかなように、スパッターされたターゲット原子の放出角度分布は $\cos \varphi$ に比例する。^{注)} Fig. 22 に O'Briain らの測定した放出角度分布を示す。⁴²⁾ これは 9250 eV の H^+ 、 H_2^+ 、 D^+ イオンを多結晶 Ag ターゲットに垂直に入射させたときの Ag 原子の放出角度分布である。これから分布は余弦法則にかなりよく一致していることがわかる。またスパッ

注) (11) 式の $\phi(E, \varphi)$ を E に関して 0 から E_m まで積分してやればよい。

で与えられることを示した。ここで E_0 は入射イオンのエネルギーであり、 φ はスパッターされた粒子の放出角度である。また $A = 4 M_1 M_2 / (M_1 + M_2)^2$ である。(10) 式の E_m は $A E_0$ に等しい。(11) 式から $E \ll U_0$ においては、 $\phi(E, \varphi) \propto E \cos \varphi$ 、 $E \approx \frac{1}{2} U_0$ で最大となり、以後 E の増大と共に $\phi(E, \varphi) \propto E^{-2} \cos \varphi$ で減少してゆく。 E が十分に大きくなり、 $E = E_m$ においては(11)式の分子が 0 になることから $\phi(E_m, \theta) = 0$ となる。また(11)式を用いて(10)式における \bar{E} を計算することができ、 $E_m \gg U_0$ においては

$$\bar{E} = \frac{1}{2} U_0 \log \left(\frac{E_m}{4 U_0} \right) \quad (12)$$

となる。これより Fig. 17 における \bar{E} の U_0 依存性が説明できる。またイオンの入射エネルギーの増大とともに、ゆるやかに \bar{E} が増加することもいえる。

Fig. 19 に比較的エネルギーの大きい Ar^+ イオンによる Au ターゲットのスパッタリングのエネルギー・スペクトルを示す。³⁹⁾ Thompson の理論と実験の結果はかなりよいことがわかる。特にスペクトルの極大を与えるエネルギーが約 2 eV であること、および高エネルギー側で E^{-2} の関数で変化していることなどがはっきりとわかる。ところで、ターゲットの温度を融点に近づけてゆくと、エネルギー・スペクトルの形は特に低エネルギー領域で大きく変化し、スペクトルの極大を与えるエネルギーが常温の場合に比べて低エネルギー側へ大きく移動し、約 0.1 eV の付近に位置するようになる。(Fig. 20)³⁹⁾ これは Chapman らによって熱スパイクのメカニズムがやはりスパッタリングに寄与しているとして説明されている。このことは、スパッタリングが原子衝突のカスケードによるものであるという定説をくつがえし、すでに否定されたと考えられている熱スパイク・モデルの復活を示唆するものとして興味がある。Fig. 21 に Politiek と Kistemaker の測定したエネルギー・スペクトルを示す。³⁶⁾ 彼らはエネルギー・スペクトルを Thompson の理論と対照させながら、K ターゲットの表面の結合エネルギー U_0 が 0.71 eV であり、これが K の融点における蒸発熱 0.82 eV より若干小さいのは K ターゲットの熱膨張から予期できることであるとしている。

さてスパッターされた粒子のエネルギー・スペクトルの測定については軽イオンのデータが非常に少ない。わずか He^+ イオンによる単結晶の Cu (110) でのスペクトルが測定された程度である。³⁴⁾ 水素によるものは全くない。

§ 9. スパッターされた粒子の放出角度分布

(11) 式から明らかなように、スパッターされたターゲット原子の放出角度分布は $\cos \varphi$ に比例する。^{注)} Fig. 22 に O'Briain らの測定した放出角度分布を示す。⁴²⁾ これは 9250 eV の H^+ 、 H_2^+ 、 D^+ イオンを多結晶 Ag ターゲットに垂直に入射させたときの Ag 原子の放出角度分布である。これから分布は余弦法則にかなりよく一致していることがわかる。またスパッ

注) (11) 式の $\phi(E, \varphi)$ を E に関して 0 から E_m まで積分してやればよい。

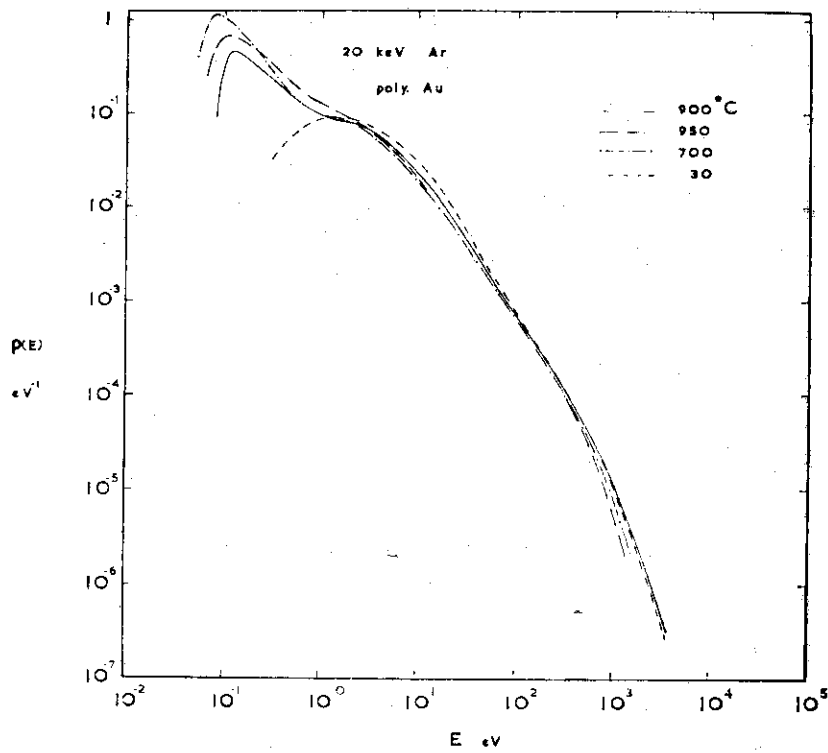


Fig. 20 Energy spectra for 20 keV argon on polycrystalline gold at high temperatures. [After Chapman et al.³⁹⁾]

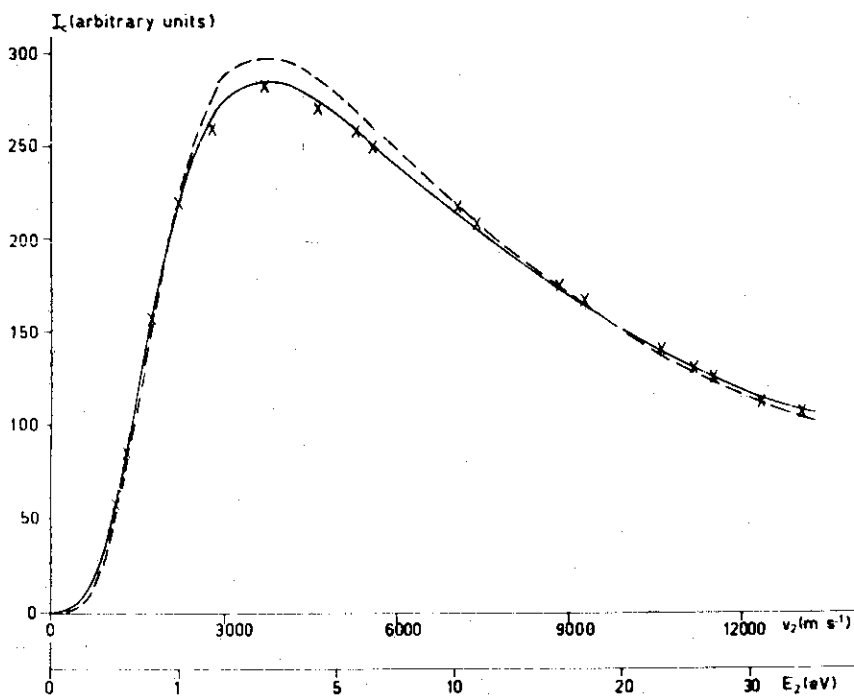


Fig. 21 Energy spectra of potassium atoms sputtered by 8 keV argon, compared with thermal spike theory: x experiment; — theory with binding energy 0.71 eV; --- theory with binding energy 0.82 eV. [After Politiek and Kistemaker.³⁶⁾]

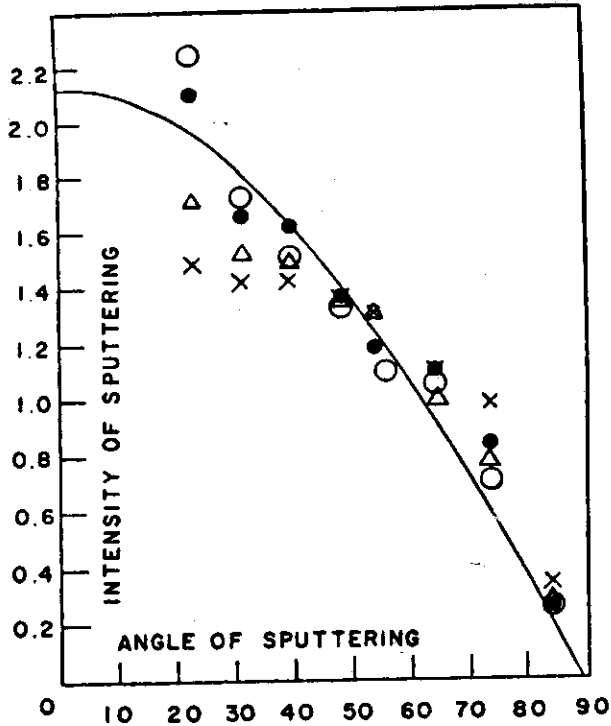


Fig. 22 a) Angular dependence of sputtering of silver by H^+ ions at normal incidence and 9250 volts. The solid curve is a cosine function. Amount sputtered: \circ 9.4 μ g; \bullet 6.4 μ g; \times 2.5 μ g; \triangle 0.6 g. [After O'Briain et al.⁴²⁾]

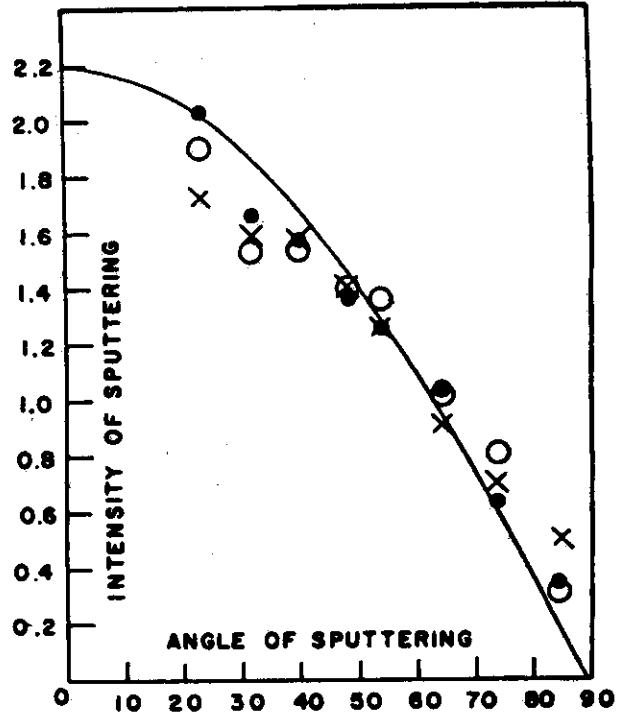


Fig. 22 b) Angular dependence of sputtering of silver by H^+ ions at normal incidence and 9250 volts. Amount sputtered: \bullet 4.4 μ g; \times 2.5 μ g; \circ 1.0 μ g. [After O'Briain et al.⁴²⁾]

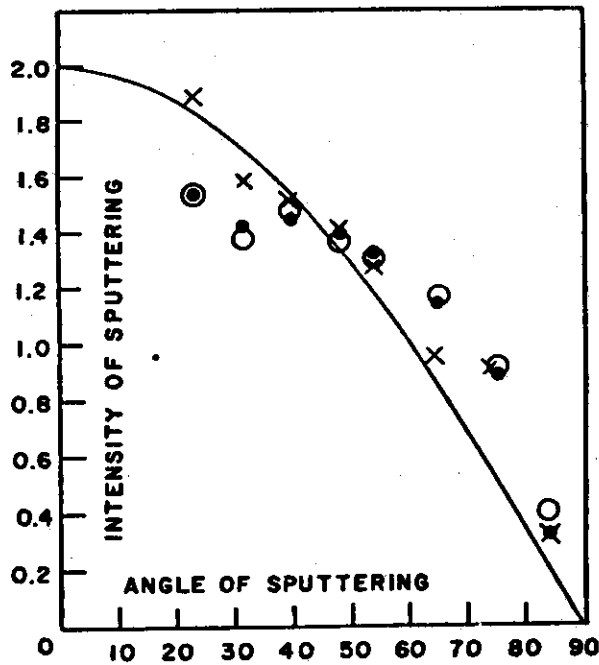


Fig. 22 c) Angular dependence of sputtering of silver by D^+ ions at normal incidence and 9250 volts. Amount sputtered: \circ 13.9 μ g; \bullet 6.0 μ g; \times 2.7 μ g. [After O'Briain et al.⁴²⁾]

ターされたターゲット原子の全量を大きくすると、 ϕ が小さい方向への放出強度が次第に増大する傾向がみられる。これはスパッタリングによってターゲットが掘られ、次第に深くなった凹型の影響によるものかもしれない。また余弦法則からの若干のずれは、多結晶物質における原子配列が全くランダムであると仮定できないことを意味している。Fig. 23にGrönlundとMoore⁴³⁾が測定した9 keVのD⁺イオン・ビームによる多結晶Agターゲットにおける放出角度分布を示す。この場合はイオン・ビームの入射角度は $\theta = 60^\circ$ であるが、放出角度分布は実線で示した余弦曲線にかなりよく一致している。しかしよくみると $\phi = 60^\circ$ 付近においてわずかに $\cos \phi$ の曲線より大きい値が得られている。これはちょうど入射イオンの鏡面反射に対応する角度である。Fig. 24は同様の実験を4 keV Ne⁺イオンについて行った結果である。⁴⁵⁾この場合はイオンの侵入深さが前者に比べてずっと浅く、かつターゲット原子に与える運動量は大きい。放出角度分布は余弦法則によい一致を示し、 $\theta = 60^\circ$ 付近でのずれは観測されていないことがわかる。これはNe⁺イオンの衝突が2体衝突とならず、集団としてのターゲット原子と相互作用するためであると考えられている。

ターゲットが単結晶である場合には多結晶の場合に比べて全く異なった放出角度分布を示す。^{44,45)}すなわちスパッターされた原子は格子原子の最も密につまった方向へ強く放出される。これを説明するためにSilsbee⁴⁶⁾はこの原子列方向に沿って収束するような衝突のメカニズム (Focusing Collision Sequences) を考えた。しかしこれのみでは、説明できないことがLehmanとSigmundによって指摘され⁴⁷⁾またこれを裏づける実験結果も提出されている。⁴⁸⁾これは結晶内での原子のはじき出しのカスケードも基本的にはランダムであるが、このカスケードが表面に達した際に、表面原子の結合エネルギーが最小の方向へ優先的に原子がスパッターされるといふモデル (Surface Ejection Model) である。

核融合におけるスパッタリングの観点からみると、放出角度分布はプラズマの汚染という問題と関連して非常に重要である。Mo, Nb, V, Fe, Niなどについてのデータは現在の段階では全くない。上述のように放出角度分布はほぼ余弦法則に従っていると考えてよいかもしれないが、入射エネルギーがどの程度でこの曲線からずれてくるのか、また自己イオンではどうかなどについてはさらに検討してゆく必要がある。

§ 10. 高速中性子によるスパッタリング

現在最も有望視されている核融合炉の形式はD-T反応を利用するトカマク炉である。この反応においては14.1 MeVの高速中性子が発生し、これがブランケット内の⁶Liと反応して³Tを生み出し同時に外部にエネルギーを供給することになる。真空壁はこの高速中性子の直撃をうけ最もきびしい損傷をうけることが予想される。ブランケットの構成によって異なるが、真空壁の位置では全中性子束の約20~25%の14.1 MeV中性子による照射を覚悟しなければならない。

高速中性子の照射によってもスパッタリングが起こる。中性子の場合もイオンと同様に固体内に一次ノック・オン原子が作り出され、これが原子のはじき出しのカスケードを生み出す。

ターされたターゲット原子の全量を大きくすると、 φ が小さい方向への放出強度が次第に増大する傾向がみられる。これはスパッタリングによってターゲットが掘られ、次第に深くなった凹型の影響によるものかもしれない。また余弦法則からの若干のずれは、多結晶物質における原子配列が全くランダムであると仮定できないことを意味している。Fig. 23にGrönlundとMoore⁴³⁾が測定した9 keVのD⁺イオン・ビームによる多結晶Agターゲットにおける放出角度分布を示す。この場合はイオン・ビームの入射角度は $\theta = 60^\circ$ であるが、放出角度分布は実線で示した余弦曲線にかなりよく一致している。しかしよくみると $\varphi = 60^\circ$ 付近においてわずかに $\cos \varphi$ の曲線より大きい値が得られている。これはちょうど入射イオンの鏡面反射に対応する角度である。Fig. 24は同様の実験を4 keV Ne⁺イオンについて行った結果である。⁴³⁾この場合はイオンの侵入深さが前者に比べてずっと浅く、かつターゲット原子に与える運動量は大きい。放出角度分布は余弦法則によい一致を示し、 $\theta = 60^\circ$ 付近でのずれは観測されていないことがわかる。これはNe⁺イオンの衝突が2体衝突とならず、集団としてのターゲット原子と相互作用するためであると考えられている。

ターゲットが単結晶である場合には多結晶の場合に比べて全く異なった放出角度分布を示す。^{44,45)}すなわちスパッターされた原子は格子原子の最も密につまった方向へ強く放出される。これを説明するためにSilsbee⁴⁶⁾はこの原子列方向に沿って収束するような衝突のメカニズム (Focusing Collision Sequences) を考えた。しかしこれのみでは、説明できないことがLehmanとSigmundによって指摘され⁴⁷⁾またこれを裏づける実験結果も提出されている。⁴⁸⁾これは結晶内での原子のはじき出しのカスケードも基本的にはランダムであるが、このカスケードが表面に達した際に、表面原子の結合エネルギーが最小の方向へ優先的に原子がスパッターされるといふモデル (Surface Ejection Model) である。

核融合におけるスパッタリングの観点からみると、放出角度分布はプラズマの汚染という問題と関連して非常に重要である。Mo, Nb, V, Fe, Niなどについてのデータは現在の段階では全くない。上述のように放出角度分布はほぼ余弦法則に従っていると考えてよいかもしれないが、入射エネルギーがどの程度でこの曲線からずれてくるのか、また自己イオンではどうかなどについてはさらに検討してゆく必要がある。

§ 10. 高速中性子によるスパッタリング

現在最も有望視されている核融合炉の形式はD-T反応を利用するトカマク炉である。この反応においては14.1 MeVの高速中性子が発生し、これがブランケット内の⁶Liと反応して³Tを生み出し同時に外部にエネルギーを供給することになる。真空壁はこの高速中性子の直撃をうけ最もきびしい損傷をうけることが予想される。ブランケットの構成によって異なるが、真空壁の位置では全中性子束の約20~25%の14.1 MeV中性子による照射を覚悟しなければならない。

高速中性子の照射によってもスパッタリングが起こる。中性子の場合もイオンと同様に固体内に一次ノック・オン原子が作り出され、これが原子のはじき出しのカスケードを生み出す。

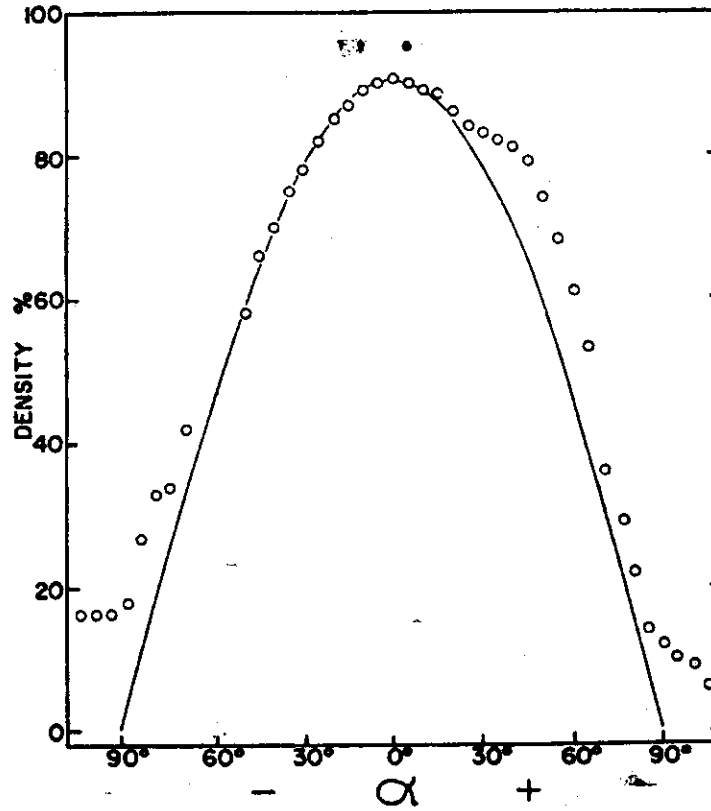


Fig. 23 Angular distribution of silver sputtered by D⁺ ions incident at $\theta=60^\circ$ and 9 keV. The solid curve is the cosine function. [After Grønlund and Moore.⁴³⁾

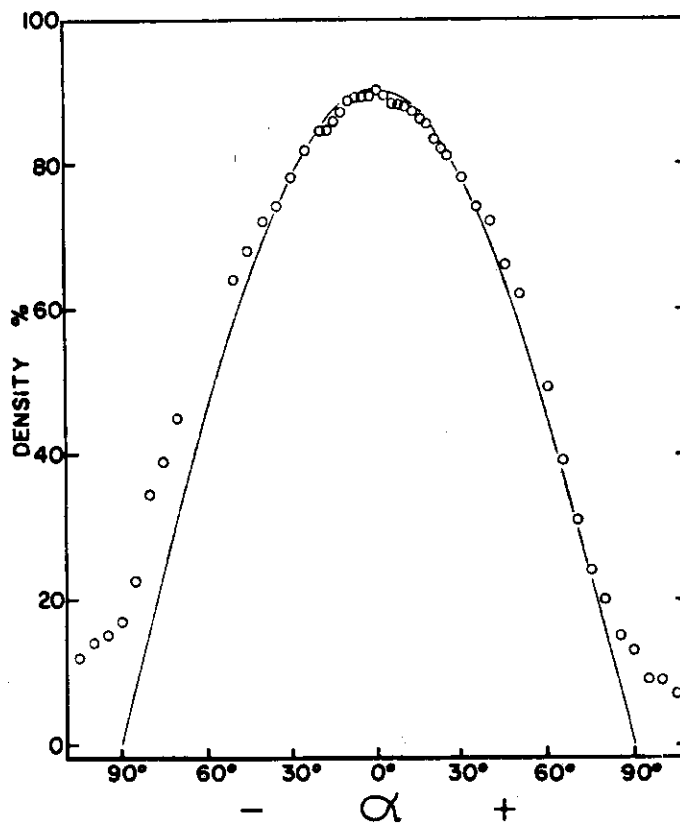


Fig. 24 Angular distribution of silver sputtered by Ne⁺ ions incident at $\theta=60^\circ$ and 4 keV. The solid curve is the cosine function. [After Grønlund and Moore.⁴³⁾

これが表面と交われば表面原子がスパッターされることになる。イオンの場合と異なり高速中性子の飛程は圧倒的に長く、したがって厚さ数 μm の真空壁材料内にはこの衝突カスケードが均一に分布し、また壁の両面でスパッタリングが引き起こされる。これによって壁面が損耗し、プラズマと接する側ではさらにプラズマ中への不純物の混入という好ましくない事態を引き起こす。スパッタリングに寄与する中性子核反応は弾性散乱、非弾性散乱、 $(n, 2n)$ 反応などである。原研2次設計核融合動力炉(真空壁はMo)の中性子スペクトルの下での各反応の寄与率はそれぞれ43%, 28%, 29%である。⁴⁹⁾

スパッタリング収率曲線(Fig. 3)にもどる。この図の右下に破線で示してあるのが中性子によるNbのスパッタリング収率(atoms/neutron)についてのSigmund¹²⁾の理論値である。ここには前方(またはランダムな系)および後方スパッタリングについて別々に示してある。最も重要な14.1 MeVでの値は前方で 1.5×10^{-5} 程度、後方で 8×10^{-7} 程度である。他方、中性子スパッタリングについての信頼できるデータは非常に乏しい。Auターゲットにおける14.1 MeVの中性子スパッタリング収率のデータはいくつかあるが、その実験値もGarberら⁵⁰⁾は 3×10^{-3} 、Keller⁵¹⁾は $< 6 \times 10^{-4}$ 、さらにBehrischら⁵²⁾は 5.9×10^{-4} などとかなり分散している。Sigmund¹²⁾の理論値が 4.0×10^{-5} であるから実験値は1~2桁も大きい値を示している。KulcinskiとEmmertがUWMAK-Iの設計にあたり、真空壁の材料としてステンレス鋼を選んだ際、10 MeV以上のエネルギーを有する中性子による平均的なスパッタリング収率を0.2とした。⁵³⁾このような大きな値を採ったのはNbターゲットの14.1 MeV中性子によるチャンク放出(Chunk Emission)をスパッタリングの一部として考えるべきだとするKaminskyとDas⁵⁴⁾らの実験結果を積極的に評価したからである(Table 3を参照)。

Table 3 Summary of first wall erosion rates in UWMAK-I.

- a) Will not total 100% due to round off.
b) Includes both sides of wall.

[After Kulcinski and Emmert.⁵³⁾]

Ion	Mean energy(keV)	S	Flux($\text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$)	Erosion rates ($\mu\text{m}/\text{year}$)	% total ^{a)}
Sputtering					
D ⁺	23	0.02	6.4×10^{15}	0.0047	2
T ⁺	23	0.03	6.4×10^{15}	0.0070	3
He	23	0.15	4.7×10^{12}	0.0026	1
He	≈ 100	0.03	1.7×10^{11}	0.00002	—
n	> 10000	0.2	9.4×10^{13}	0.14 ^{b)}	64
n	0.1-10000	0.009	3.4×10^{14}	0.022 ^{b)}	10
Metal	23	25	2.6×10^{12}	0.023	10
Total sputtering				≈ 0.20	
Blistering					
He	23	1	4.7×10^{12}	0.017	8
He	≈ 100	3	1.7×10^{11}	0.0019	1
D ⁺	23	0.01	6.4×10^{15}	0.0023	1
T ⁺	23	0.01	6.4×10^{15}	0.0023	1
Total blistering				≈ 0.024	
Total wall erosion				$\approx 0.22 \mu\text{m}/\text{year}$	

先にみたように Nb のスパッタリング収率は前方と後方を加えても 1.6×10^{-5} 程度が理論値であることを考えると、中性子スパッタリングについては、今後この隔りをうめるような理論と精度の高い実験が絶対必要となる。

§ 11. おわりに

本報告においてはスパッタリング現象の種々の側面に関する研究の現在の到達点と、核融合が真空壁とプラズマとの相互作用という観点から、実験データの集積の状態やその信頼度などについて述べた。ここではスパッタリングによる不純物原子がプラズマ中でどのような挙動を示すかについては全くふれなかった。これについては IAEA 東京会議の Behrisch と Kadomtsev¹⁸⁾ の論文や原研大型トカマク開発室の一連の仕事を参照して頂きたい。

全体としていえることは低エネルギー軽イオン (H^+ , H_2^+ , D^+ , D_2^+ , T^+ , T_2^+ , He^+ など) や自己イオンによる高融点の真空壁材料のスパッタリングのデータの集積は非常に乏しい。これは従来プラズマによる真空壁材料のスパッタリングがそれほど問題となっていなかったこと、軽イオンのスパッタリング収率が $\sim 10^{-3}$ atoms/ion という小さな値であること、さらに高融点金属イオンビームの引出・加速が技術的に簡単でないことなどによるものと思われる。また Summers ら¹⁹⁾ が述べているように、再現性のあるデータを得るためには残留ガスの効果の補正が必要となる。したがって超高真空技術がスパッタリングの実験にとっては不可欠のものである。またターゲット表面の清浄さや粗さの程度も実験精度を大きく左右する。^{29, 54)} こうして超高真空技術に加えてターゲットの表面処理技術も重要なものとなってくる。これからのスパッタリングの実験、とくに数 100 eV 付近の低エネルギー領域の実験では、このような点を十分に考慮し洗練された技術をもって行うべきであろう。

プラズマと真空壁との相互作用という観点に立ったスパッタリングに関する実験においてこのレビューが役立つことを期待したい。

最後に、スパッタリングに関する研究の端緒を筆者に与えて下さった核融合研究部森 茂部長に感謝いたします。

先にみたようにNbのスパッタリング収率は前方と後方を加えても 1.6×10^{-5} 程度が理論値であることを考えると、中性子スパッタリングについては、今後この隔りをうめるような理論と精度の高い実験が絶対必要となる。

§ 11. おわりに

本報告においてはスパッタリング現象の種々の側面に関する研究の現在の到達点と、核融合が真空壁とプラズマとの相互作用という観点から、実験データの集積の状態やその信頼度などについて述べた。ここではスパッタリングによる不純物原子がプラズマ中でどのような挙動を示すかについては全くふれなかった。これについてはIAEA東京会議の Behrisch と Kadomtsev¹⁸⁾の論文や原研大型トカマク開発室の一連の仕事を参照して頂きたい。

全体としていえることは低エネルギー軽イオン (H^+ , H_2^+ , D^+ , D_2^+ , T^+ , T_2^+ , He^+ など) や自己イオンによる高融点の真空壁材料のスパッタリングのデータの集積は非常に乏しい。これは従来プラズマによる真空壁材料のスパッタリングがそれほど問題となっていなかったこと、軽イオンのスパッタリング収率が $\sim 10^{-3}$ atoms/ion という小さな値であること、さらに高融点金属イオンビームの引出・加速が技術的に簡単でないことなどによるものと思われる。また Summers ら¹⁹⁾ が述べているように、再現性のあるデータを得るためには残留ガスの効果の補正が必要となる。したがって超高真空技術がスパッタリングの実験にとっては不可欠のものである。またターゲット表面の清浄さや粗さの程度も実験精度を大きく左右する。^{29,54)} こうして超高真空技術に加えてターゲットの表面処理技術も重要なものとなってくる。これからのスパッタリングの実験、とくに数100 eV 付近の低エネルギー領域の実験では、このような点を十分に考慮し洗練された技術をもって行うべきであろう。

プラズマと真空壁との相互作用という観点に立ったスパッタリングに関する実験においてこのレビューが役立つことを期待したい。

最後に、スパッタリングに関する研究の端緒を筆者に与えて下さった核融合研究部森 茂部長に感謝いたします。

参 考 文 献

1. B. F. Phillips, J. Vac. Sci. Technol., 11 (1974) 1093.
2. H. W. Werner, Vacuum, 24 (1974) 493.
3. G. K. Wehner, Phys. Rev., 102 (1956) 690.
4. O. Almén and G. Bruce, Nucl. Instrum. Methods, 11 (1961) 257.
5. O. Almén and G. Bruce, *ibid.* p.279.
6. M. Kaminsky, "Atomic and Ionic Impact Phenomena on Metal Surfaces" (Springer-Verlag, Berlin, 1965).
7. G. Carter and J. S. Colligon, "Ion Bombardment of Solids" (Heineman, London, 1968).
8. N. V. Pleshivtsev, "Cathode Sputtering" (Atomizdat, Moscow, 1968).
9. R. J. McDonald, Adv. Phys., 19 (1970) 457.
10. G. M. McCracken, Rep. Prog. Phys., 38 (1975) 241.
11. R. Behrisch, Nucl. Fusion, 12 (1972) 695.
12. P. Sigmund, Phys. Rev., 184 (1969) 383.
13. K. B. Winterbon, P. Sigmund and J. B. Sanders, Kgl. Danske Vidensk. Selsk. Mat.-Fys. Medd., 37 (1970) No.14.
14. P. Sigmund, M. T. Matthies and D. L. Phillips, Radiation Effects, 11 (1971) 39.
15. J. Lindhard, V. Nielsen, M. Scharff and P. V. Thomsen, Kgl. Danske Vidensk. Selsk. Mat.-Fys. Medd., 33 (1963) No.10.
16. J. Lindhard, M. Scharff and H. E. Schiøtt, *ibid.*, 33 (1963) No.14.
17. J. Lindhard, V. Nielsen and M. Scharff, *ibid.*, 36 (1968) No.10.
18. R. Behrisch and B. B. Kadomtsev, IAEA-CN-33/S-2 (1974).
19. A. J. Summers, N. J. Freeman and N. R. Daly, J. Appl. Phys., 42 (1971) 4774.
20. H. Oechsner, Z. Physik, 261 (1973) 37.
21. A. D. Marwick, M. W. Thompson, B. W. Farmery and G. S. Harbinson, Radiation Effects, 15 (1972) 195.
22. K. B. Cheney and E. T. Pitkin, J. Appl. Phys., 36 (1965) 3542.
23. H. H. Andersen, Radiation Effects, 7 (1971) 179.
24. D. Onderdelinden, Appl. Phys. Letters, 8 (1966) 189.
25. J. J. Elich, H. Roosendaal and D. Onderdelinden, Radiation Effects, 14 (1972) 93.
26. E. Zwangobani and R. J. McDonald, Radiation Effects, 20 (1973) 81.
27. D. Rosenberg and G. K. Wehner, J. Appl. Phys., 33 (1962) 1842.
28. C. E. KenKnight and G. K. Wehner, J. Appl. Phys., 35 (1964) 322.

29. H. H. Andersen and H. Bay, *Radiation Effects*, 13 (1972) 67.
30. R. S. Nelson, *Phil. Mag.*, 11 (1965) 291.
31. J. J. Elich, H. E. Roosendaal and D. Onderdelinden, *Radiation Effects*, 10 (1971) 175.
32. K. Kopitzki and H. E. Stier, *Z. Naturforsch.*, 17a (1962) 346.
33. R. V. Stuart, K. Brower and W. Mayer, *Rev. Sci. Instrum.*, 34 (1963) 425.
34. R. V. Stuart and G. K. Wehner, *J. Appl. Phys.*, 35 (1964) 1819.
35. R. V. Stuart, G. K. Wehner and G. S. Anderson, *J. Appl. Phys.*, 40 (1969) 803.
36. J. Politiek and J. Kistemaker, *Radiation Effects*, 2 (1969) 129.
37. M. W. Thompson, *Phil. Mag.*, 18 (1968) 377.
38. B. W. Farmery and M. W. Thompson, *Phil. Mag.*, 18 (1968) 415.
39. G. E. Chapman, B. W. Farmery, M. W. Thompson and I. H. Wilson, *Radiation Effects*, 13 (1972) 121.
40. H. Oechsner and L. Reichert, *Phys. Letters*, 23 (1966) 90.
41. H. Oechsner, *Z. Phys.*, 238 (1970) 433.
42. C. D. O'Briain, A. Linder and W. J. Moore, *J. Chem. Phys.*, 29 (1958) 3.
43. F. Grønlund and W. J. Moore, *J. Chem. Phys.*, 32 (1960) 1540.
44. R. S. Nelson, "The Observation of Atomic Collisions in Crystalline Solids" (North-Holland Pub., Amsterdam, 1968).
45. M. W. Thompson, "Defects and Radiation Damage in Metals" (Cambridge Univ. Press, London, 1969).
46. R. Silsbee, *J. Appl. Phys.*, 28 (1957) 1246.
47. C. Lehman and P. Sigmund, *Phys. Stat. Sol.*, 16 (1966) 507.
48. W. O. Hofer, *Radiation Effects*, 19 (1973) 263.
49. K. Sone and K. Shiraishi, JAERI-M (to be published).
50. R. I. Garber, G. P. Doyle, V. M. Kolyada, A. A. Modlin and A. I. Fedorenko, *JETP Letters* 7 (1968) 296.
51. K. Keller, *Plasma Physics* 10 (1968) 195.
52. R. Behrisch, R. Gäler and J. Kalus, *J. Nucl. Mat.*, 53 (1974) 183.
53. G. L. Kulcinski and G. A. Emmert, *ibid.* p.31.
54. M. Kaminsky and S. K. Das, *ibid.* p.162.