

JAERI-M  
7997

ヘリウムイオン衝撃した多結晶  
モリブデン表面の同時連続観察

1978年11月

西堂 雅博・曾根 和穂・山田 禮司・大塚 英男

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）まで、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.

ヘリウムイオン衝撃した多結晶モリブデン表面の同時連続観察

日本原子力研究所東海研究所核融合研究部

西堂 雅博・曾根 和穂・山田 禮司

大塚 英男

(1978年11月9日受理)

真空壁の表面現象研究用加速器(400 kV コッククロフトワルトン型加速器)のビームラインに接続した走査型電子顕微鏡を用いて、100 keV ヘリウムイオン衝撃した多結晶モリブデン表面の同時かつ連続観察をおこなった。あらかじめ、ヘリウムの打ち込まれた試料(照射量  $4.4 \times 10^{17} \text{ He}^+ / \text{cm}^2$ )では、熱処理後の再照射によって、表面浸食の形態が、表面の脹れ(blistering)から大面積剝離(exfoliation)へと顕著に移行することが判明した。剝離現象は、ブリスターが時々刻々成長するのとは対照的に、瞬時に出現することが、同時連続観察の結果、明らかになった。実験結果から大面積剝離出現の過程について考察した。

Simultaneous and Continuous Observations of Helium Bombarded  
Surfaces of Polycrystalline Molybdenum

Masahiro SAIDOH, Kazuho SONE, Rayji YAMADA and Hidewo OHTSUKA

Division of Thermonuclear Fusion Research,  
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received November 9, 1978)

Simultaneous and continuous observations of 100 keV helium bombarded surfaces of polycrystalline molybdenum were made using a scanning electron microscope positioned on a beam line of the 400 kV Cockcroft-Walton type ion accelerator to study surface phenomena on the first wall of fusion reactors. In the pre-implanted target (to a fluence of  $4.4 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  at ambient room temperature) annealed, the transition from blistering to exfoliation evidently appears in 100 keV helium bombardment at ambient room temperature. Exfoliation of the surface layer occurs in a moment and blisters grow with irradiation dose in a short time. The process of exfoliation is discussed.

Keywords: Surface Observation, 100 keV Helium Bombardment, Molybdenum,  
First Wall, Blistering, Exfoliation, Surface Erosion

目 次

1. はじめに.....	1
2. 実験方法.....	2
3. 実験結果.....	2
4. 考 察.....	4
謝 辞.....	6
参考文献.....	7

CONTENTS

1. Introduction.....	1
2. Experimental Techniques.....	2
3. Experimental Results.....	2
4. Discussion.....	4
Acknowledgements.....	6
References.....	7

## Figure and Table Captions

- Fig. 1 Schematic representation of experimental apparatus.
- Fig. 2 Scanning electron micrographs showing the development of surface erosion in 100 keV helium bombarded molybdenum with irradiation dose up to a fluence of  $9.0 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  at ambient room temperature. Prior to the bombardment the target was annealed at  $1300^\circ\text{C}$  for 1 hour. Image contrast was made by detecting backscattered electrons.
- Fig. 3 Scanning electron micrographs showing the annealing behaviour of the blistered molybdenum surface after 100 keV helium bombardment to a fluence of  $9.0 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ . (a) before annealing, (b)  $400^\circ\text{C}$ , (c)  $800^\circ\text{C}$  and (d), (e) and (f)  $1300^\circ\text{C}$ . Annealing time was 1 hour. (a), (b), (c) and (d) backscattered electron image and (e) and (f) secondary electron image.
- Fig. 4 Blister size distributions. Solid line shows after 100 keV helium bombardment to a fluence of  $1.3 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ , chain line after successive annealing at  $400^\circ\text{C}$  for 1 hour after bombardment and broken line size distribution of the blisters formed by the pre-bombardment after annealing.
- Fig. 5 Scanning electron micrographs showing the development of surface erosion in 100 keV helium bombarded molybdenum with irradiation dose up to a fluence of  $5.2 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  at ambient room temperature. Prior to the bombardment the target (annealed at  $1300^\circ\text{C}$  for 1 hour) was pre-bombarded with 100 keV helium to a fluence of  $4.4 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  and successively annealed at  $400^\circ\text{C}$  for 1 hour. Backscattered electrons were detected to make an image contrast.
- Fig. 6 Scanning electron micrographs showing the development of surface erosion in 100 keV helium bombarded molybdenum with irradiation dose up to a fluence of  $5.4 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  at ambient room temperature. Prior to the bombardment the target (annealed at  $1300^\circ\text{C}$  for 1 hour) was pre-bombarded with 100 keV helium to a fluence of  $4.4 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  and successively annealed at  $800^\circ\text{C}$  for 1 hour. Backscattered electrons were detected to make an image contrast.

Fig. 7 Scanning electron micrographs showing the eroded surfaces in 100 keV helium bombarded molybdenum. Prior to the bombardment the targets (annealed at 1300 °C for 1 hour) were pre-bombarded with 100 keV helium to a fluence of  $4.4 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  and successively annealed (a) at 400 °C for 1 hour, (b) at 800 °C for 1 hour and (c) at 800 °C for 10 hours, respectively. Backscattered electrons were detected to make an image contrast.

Fig. 8 Scanning electron micrographs showing the development of surface erosion in 100 keV helium bombarded molybdenum with irradiation dose up to a fluence of  $1.4 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  at ambient room temperature. Prior to the bombardment the target (annealed at 1300 °C for 1 hour) was pre-bombarded with 100 keV helium to a fluence of  $4.4 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  and successively annealed at 1300 °C for 1 hour. Backscattered electrons were detected to make an image contrast.

Fig. 9 Scanning electron micrographs of eroded surfaces in 100 keV helium bombarded molybdenum. (a) shows the boundary between the blistered surface (bombarded to a fluence of  $5 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) and the sponge like surface (to a fluence of  $1 \times 10^{20} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) and (b) sponge like surface (to a fluence of  $1 \times 10^{20} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ). (c) and (d) show surfaces of the target successively annealed at 1300 °C for 1 hour after bombarding to a fluence of  $4.4 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  with 100 keV helium. (e) and (f) show surfaces of the pre-treated target (the same one as shown in (c) and (d)) after bombarding to a fluence of  $1.4 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  with 100 keV helium. (g) shows the surface of the pre-treated target (the same one as shown in (e) and (f)) after annealing at 1300 °C for 1 hour. Secondary electrons were detected to make an image contrast. In (b), (d), (f) and (g) scanning electron beam was incident normal to the target surface. In (a), (c) and (e) scanning electron beam was incident with an angle of 45° to the target surface normal.

Table 1 Critical fluence for appearance of surface erosion and deformation mode in 100 keV helium bombarded molybdenum. Annealing of the targets was made after bombarding to a fluence of  $4.4 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  at the respective temperatures. The values of fluence and critical fluence shown in table represent the respective values obtained from bombardment after annealing.

## 1. はじめに

核融合炉に対する期待が高まるにつれて、核融合炉第一壁のプラズマによる表面侵食、さらには、侵食された壁材のプラズマ中への混入などの、いわゆる、プラズマ壁相互作用に関する研究が活発になってきた。<sup>(1)-(4)</sup>このプラズマ壁相互作用のうち、特に壁表面の侵食に関係すると予想される現象として、スパッタリング、プリスタリング、蒸発などが挙げられる。<sup>(5),(6)</sup>将来のD-T核融合炉においては、燃料である水素の同位体、および融合反応によって発生するエネルギー3.52 MeVの $\alpha$ 粒子が炉の第一壁を衝撃するものと予想されるので、高速のガス原子(イオン)が固体表面を衝撃することによって出現するプリスタリングは重要な問題となろう。

ヘリウムイオン照射によるプリスタリングの研究は、これまで、多くの研究者によっておこなわれてきているが、<sup>(7),(8)</sup>プラズマ壁相互作用の立場から興味ある現象は、脹れた固体表面の剥離(flaking)あるいは、ある条件のもとで起きる表面の大面積剥離(exfoliation)などの剥離現象である。なぜなら、剥離した壁材の薄片が、プラズマ中へ混入すると、プラズマ温度は、急速に低下することが予想されるので、表面剥離を伴った表面侵食は、壁材の寿命を短くするとともに、プラズマ不純物の発生源となるからである。プリスタリングから大面積剥離へと移行する過程については、まだ明らかではないが、大面積剥離の出現に伴って、ヘリウムガスの放出が観測されること、<sup>(9),(10)</sup>また、大面積剥離は、 $(0.2 \sim 0.3) T_m$  ( $T_m$ は試料の融点)に試料を加熱して照射した場合に出現することなどが実験的に明らかになっている。<sup>(9),(11)</sup>さらに、最近になってThomasらは、大面積剥離は、瞬時に出現することを報告している。<sup>(12)</sup>

イオン衝撃した固体の表面侵食の観察には、通常、走査型電子顕微鏡を用いておこなわれる。従来、電子顕微鏡による表面観察は、一定量のイオン衝撃をおこなった試料を、衝撃用真空槽から観察用真空槽へ移し変えておこなわれてきた。そのため、試料表面の同じ場所を観察しながら表面形状変化の照射量依存性を明らかにすることは、事実上不可能に近いと言える。我々は、表面現象研究用加速器(400 kV コッククロフトワルトン型加速器)のビームラインの1本に直接、走査型電子顕微鏡を接続して、イオン衝撃した試料表面をイオン照射中に、連続かつ同時観察できる装置を製作した。本装置の詳細な、構成ならびに機能などは、すでに報告しているレポートを<sup>(13)</sup>参照していただきたい。さて、本装置を使用した実験から新たに得られる情報としては、以下の2点が重要と思われる。

- (1) 表面形状変化の時間分解観察ができる。

現在製作中のビデオ録画装置を取付けることにより、20m secの時間分解能を有する。

- (2) 観察表面の局所的な性質(例えば、不純物分布、形状、多結晶試料における各結晶粒の結晶方位など)と形状変化との対応が直接的におこなえる。

以上、2点の他に、従来の方法と比較して、効率的かつ精度の高い観察実験がおこなえることは、言うまでもない。

本報告は、同時観察装置(本装置の名称)を用いておこなった観察結果の第一報であり、特に、観察写真を多く掲載している。ここでは、100 keVのヘリウムイオンを衝撃したモリブデ



ン表面の連続かつ同時観察結果について述べる。特に、プラズマ壁相互作用において重要な問題である固体表面の剥離現象に注目し、あらかじめ打ち込まれたヘリウムの集合状態が、大面積剥離出現に影響をおよぼすこと、また、剥離現象は、瞬時に出現することなどを示す。実験結果にもとづいて、大面積剥離の出現する過程について考察する。

## 2. 実験方法

使用した試料は、純度 99.96% の Plansee 製 モリブデンで焼結後、厚さ 1 mm のシートに圧延加工をおこないその後 1000 °C で 10 分間焼鈍したものである。試料の大きさは、10 mm × 10 mm である。試料表面は 0.3 μm のアルミナ粉末懸濁液を用いて機械研磨し、鏡面に仕上げた。機械研磨後、試料は真空熱処理炉で圧力： $1 \times 10^{-7}$  Torr, 温度：1300 °C, 時間：1 時間の熱処理をおこなった。

イオン衝撃した試料表面の照射中の同時連続観察は、400 kV コッククロフト・ワルトン型加速器のビームラインに接続した走査型電子顕微鏡（日本電子（株）製、JSM-35、以下 SEM と記す）をもちいておこなった。Fig. 1 に同時観察装置のブロック図を示す。装置の詳細については、文献(9)を参照してもらうことにして、ここでは装置の概要を述べる。加速器からのイオンビームは 8 mm φ のスリット、電流測定用のファラデイカップを通過して、SEM 試料室の標的試料に導かれる。ファラデイカップは、円筒状になっており、底は 5 mm φ のスリットになっている。電流調整時には、圧縮空気を用いて上下移動するシャッターを上げ、ファラデイカップの底の孔をふさいで電流を測定する。イオン照射時には、イオンビームが 5 mm φ の孔を通過するように、シャッターを下げる。そして 5 mm φ の孔を通過しないで、ファラデイカップを衝撃するイオン電流を測定することによって、単位面積当りのイオン照射量を求めた。表面観察用の走査電子は、イオン照射した試料表面の中心を走査するように、あらかじめ調整されている。検出する電子としては、エネルギーの高い反射電子を使用し、試料を中心として回転できる PN 接合型の半導体検出器でこれを検出した。検出した信号は、イオン照射量と共にブラウン管（CRT）上に、画像として映し出される。CRT 上の画像は 35 mm カメラで写真撮影することによって記録した。試料ホルダーは、イオンビームおよび走査電子の両方を見込むようになっており、イオンビームの入射方向に対して、 $0^{\circ} \sim 60^{\circ}$ （加熱ホルダーの場合、 $0^{\circ} \sim 45^{\circ}$ ）の角度で、傾斜させることができる。加熱ホルダーを使用した場合、試料は 450 °C まで加熱できる。温度測定には、アルメル・クロメル熱電対を用いた。450 °C より高い温度で加熱する場合には、真空熱処理炉をもちいた。熱処理後の試料表面の観察には、JSM-35 以外に、目的に応じて簡便な SEM（日立製作所（株）製、S-310）を併用した。

## 3. 実験結果

1300 °C、1 時間の熱処理をおこなった多結晶モリブデンに、100 keV のヘリウムイオンを  $9.0 \times 10^{17} \text{He}^{+}/\text{cm}^2$  まで照射した時の同時連続観察写真の典型的な例を Fig. 2 に示す。試料は、水

ン表面の連続かつ同時観察結果について述べる。特に、プラズマ壁相互作用において重要な問題である固体表面の剥離現象に注目し、あらかじめ打ち込まれたヘリウムの集合状態が、大面積剥離出現に影響をおよぼすこと、また、剥離現象は、瞬時に出現することなどを示す。実験結果にもとづいて、大面積剥離の出現する過程について考察する。

## 2. 実験方法

使用した試料は、純度 99.96% の Plansee 製 モリブデンで焼結後、厚さ 1 mm のシートに圧延加工をおこないその後 1000 °C で 10 分間焼鈍したものである。試料の大きさは、10 mm × 10 mm である。試料表面は 0.3 μm のアルミナ粉末懸濁液を用いて機械琢磨し、鏡面に仕上げた。機械琢磨後、試料は真空熱処理炉で圧力： $1 \times 10^{-7}$  Torr, 温度：1300 °C, 時間：1 時間の熱処理をおこなった。

イオン衝撃した試料表面の照射中の同時連続観察は、400 kV コッククロフト・ワルトン型加速器のビームラインに接続した走査型電子顕微鏡（日本電子（株）製、JSM-35、以下 SEM と記す）をもちいておこなった。Fig. 1 に同時観察装置のブロック図を示す。装置の詳細については、文献(19)を参照してもらうことにして、ここでは装置の概要を述べる。加速器からのイオンビームは 8 mm φ のスリット、電流測定用のファラデイカップを通過して、SEM 試料室の標的試料に導かれる。ファラデイカップは、円筒状になっており、底は 5 mm φ のスリットになっている。電流調整時には、圧縮空気を用いて上下移動するシャッターを上げ、ファラデイカップの底の孔をふさいで電流を測定する。イオン照射時には、イオンビームが 5 mm φ の孔を通過するように、シャッターを下げる。そして 5 mm φ の孔を通過しないで、ファラデイカップを衝撃するイオン電流を測定することによって、単位面積当りのイオン照射量を求めた。表面観察用の走査電子は、イオン照射した試料表面の中心を走査するように、あらかじめ調整されている。検出する電子としては、エネルギーの高い反射電子を使用し、試料を中心として回転できる PN 接合型の半導体検出器でこれを検出した。検出した信号は、イオン照射量と共にブラウン管（CRT）上に、画像として映し出される。CRT 上の画像は 35 mm カメラで写真撮影することによって記録した。試料ホルダーは、イオンビームおよび走査電子の両方を見込むようになっており、イオンビームの入射方向に対して、 $0^{\circ} \sim 60^{\circ}$ （加熱ホルダーの場合、 $0^{\circ} \sim 45^{\circ}$ ）の角度で、傾斜させることができる。加熱ホルダーを使用した場合、試料は 450 °C まで加熱できる。温度測定には、アルメル・クロメル熱電対を用いた。450 °C より高い温度で加熱する場合には、真空熱処理炉をもちいた。熱処理後の試料表面の観察には、JSM-35 以外に、目的に応じて簡便な SEM（日立製作所（株）製、S-310）を併用した。

## 3. 実験結果

1300 °C、1 時間の熱処理をおこなった多結晶モリブデンに、100 keV のヘリウムイオンを  $9.0 \times 10^{17} \text{ He}^{+}/\text{cm}^2$  まで照射した時の同時連続観察写真の典型的な例を Fig. 2 に示す。試料は、水

ン表面の連続かつ同時観察結果について述べる。特に、プラズマ壁相互作用において重要な問題である固体表面の剥離現象に注目し、あらかじめ打ち込まれたヘリウムの集合状態が、大面積剥離出現に影響をおよぼすこと、また、剥離現象は、瞬時に出現することなどを示す。実験結果にもとづいて、大面積剥離の出現する過程について考察する。

## 2. 実験方法

使用した試料は、純度 99.96% の Plansee 製 モリブデンで焼結後、厚さ 1 mm のシートに圧延加工をおこないその後 1000 °C で 10 分間焼鈍したものである。試料の大きさは、10 mm × 10 mm である。試料表面は 0.3 μm のアルミナ粉末懸濁液を用いて機械琢磨し、鏡面に仕上げた。機械琢磨後、試料は真空熱処理炉で圧力： $1 \times 10^{-7}$  Torr, 温度：1300 °C, 時間：1 時間の熱処理をおこなった。

イオン衝撃した試料表面の照射中の同時連続観察は、400 kV コッククロフト・ワルトン型加速器のビームラインに接続した走査型電子顕微鏡（日本電子（株）製、JSM-35、以下 SEM と記す）をもちいておこなった。Fig. 1 に同時観察装置のブロック図を示す。装置の詳細については、文献(19)を参照してもらうことにして、ここでは装置の概要を述べる。加速器からのイオンビームは 8 mm φ のスリット、電流測定用のファラデイカップを通過して、SEM 試料室の標的試料に導かれる。ファラデイカップは、円筒状になっており、底は 5 mm φ のスリットになっている。電流調整時には、圧縮空気を用いて上下移動するシャッターを上げ、ファラデイカップの底の孔をふさいで電流を測定する。イオン照射時には、イオンビームが 5 mm φ の孔を通過するように、シャッターを下げる。そして 5 mm φ の孔を通過しないで、ファラデイカップを衝撃するイオン電流を測定することによって、単位面積当りのイオン照射量を求めた。表面観察用の走査電子は、イオン照射した試料表面の中心を走査するように、あらかじめ調整されている。検出する電子としては、エネルギーの高い反射電子を使用し、試料を中心として回転できる PN 接合型の半導体検出器でこれを検出した。検出した信号は、イオン照射量と共にブラウン管（CRT）上に、画像として映し出される。CRT 上の画像は 35 mm カメラで写真撮影することによって記録した。試料ホルダーは、イオンビームおよび走査電子の両方を見込むようになっており、イオンビームの入射方向に対して、 $0^{\circ} \sim 60^{\circ}$ （加熱ホルダーの場合、 $0^{\circ} \sim 45^{\circ}$ ）の角度で、傾斜させることができる。加熱ホルダーを使用した場合、試料は 450 °C まで加熱できる。温度測定には、アルメル・クロメル熱電対を用いた。450 °C より高い温度で加熱する場合には、真空熱処理炉をもちいた。熱処理後の試料表面の観察には、JSM-35 以外に、目的に応じて簡便な SEM（日立製作所（株）製、S-310）を併用した。

## 3. 実験結果

1300 °C, 1 時間の熱処理をおこなった多結晶モリブデンに、100 keV のヘリウムイオンを  $9.0 \times 10^{17} \text{ He}^{+}/\text{cm}^2$  まで照射した時の同時連続観察写真の典型的な例を Fig. 2 に示す。試料は、水

平面から45度傾斜しており、イオンビームおよび電子ビームはそれぞれ、試料に対して45度の角度で入射する。写真の下部には、左から順番に、電子の加速電圧、倍率、ナンバーリング、ミクロンバーそしてイオン照射量が表示してある。熱処理によって結晶粒界が明確になっているのが観察される。照射量  $7.1 \times 10^{17} \text{He}^+/\text{cm}^2$  付近から、まず粒界付近にプリスターが発生し始めた(上から1番目左から3番目)。プリスターが発生し始めた結晶粒では、短時間の間に結晶粒全体がプリスターで覆われていく。ちなみに、この観察結果からは約90secの間に、1つの結晶粒がプリスターで覆われてしまっている。但し、この場合、電流密度は  $45 \mu\text{A}/\text{cm}^2$  であった。特に興味深いのは、プリスター発生時の臨界照射量が、結晶粒に強く依存していることである。Fig. 2では、全ての結晶粒がプリスターで覆われるまで、プリスターが初めて発生し始めてから時間にして、13 min経過している。これは照射量にして、 $1.6 \times 10^{17} \text{He}^+/\text{cm}^2$  に相当している。

プリスターの発生によって、表面侵食されたモリブデンがさらに照射後の加熱によって、表面侵食が促進されるか否かを調べる目的で、100 keVヘリウムを  $9.0 \times 10^{17} \text{He}^+/\text{cm}^2$  照射した試料の焼鈍をおこなった。各温度で、1時間焼鈍した後の観察写真をFig. 3に示す。400℃、および800℃焼鈍後の観察写真は、焼鈍前に観察した試料表面と全く同じ表面を観察したものである。1300℃焼鈍後の観察写真は、表面形状が多孔質状に変化しており、粒界が不明確になっているため、焼鈍前の観察表面と必ずしも同じ表面を観察したものではない。写真から明らかのように400℃の加熱によって、プリスターの数および表皮の剥離したプリスターの数が増加している。焼鈍効果の詳細を調べるために、焼鈍前と、400℃焼鈍後のプリスターの大きさ分布を調べた。結果をFig. 4に示す。プリスターの平均直径としてFig. 4より  $2.5 \mu\text{m}$  が得られた。この値は、100keVのヘリウムイオンが45度の角度で入射した時の飛程  $0.249 \mu\text{m}$  の約10倍の値に等しい。400℃焼鈍によって、直径  $2.5 \mu\text{m}$  のプリスターの数が非常に増加している。図中照射によって発生したプリスターの焼鈍後の分布を点線で示している。従って、実線と点線とを比べれば、照射によって発生したプリスターの焼鈍に対する挙動を視ることができる。焼鈍によって、すでに発生しているプリスターは、全体的に大きな直径のプリスターへと変化していくことが明らかである。図中、一点鎖線から点線をさし引くと、照射後の平坦だった表面に、焼鈍によって新たに発生したプリスターの大きさ分布が得られるが、焼鈍によって、平坦部に現われるプリスターは、最大直径  $4.5 \mu\text{m}$  までの間に分布し、直径  $2.5 \mu\text{m}$  のプリスターが最も多く発生する。さらに、同じ試料を800℃で焼鈍したが、表面侵食の様子は、400℃の場合から変わっていなかった。1300℃焼鈍では、明確に観察された粒界は消失し、表面は、多孔質状に変化している。反射電子像では、検出器を見込まない陰の部分からの反射電子は検出されずに、黒としてのみ観察されるため、二次電子による観察写真をFig. 3には同時に示している。孔径は、 $0.5 \sim 1 \mu\text{m}$  程度の大きさで表面全体に孔が多数観察された。しかしながら、プリスター跡の面は、滑らかで、孔は観測されなかった。

核融合炉第1壁の温度は、放電の開始および停止に伴って周期的に変動することが指摘されている<sup>(14)</sup>。さらに、異常放電の場合、局所的な熱負荷がかかり、壁温度が異常に高くなることも予想される。あらかじめ打ち込まれたヘリウムおよび打ち込みによって導入された格子欠陥の集合状態は、試料温度が高くなると変化することが知られているので<sup>(15)</sup>、熱サイクルが表面侵食におよぼす影響を調べることは重要な問題である。そこで、ここでは、室温で  $4.4 \times 10^{17} \text{He}^+/\text{cm}^2$

のヘリウムを照射した試料を1時間加熱焼鈍し、さらに、室温で再照射をおこないつつ表面観察をおこなった。Fig. 5 および Fig. 6 は、それぞれ照射後、400℃ および 800℃ で1時間焼鈍し、その後室温で100 keV のヘリウムイオンを引き続き照射した時の同時連続観察写真である。まず、 $4.4 \times 10^{17} \text{He}^+/\text{cm}^2$  のヘリウムを打ち込んで、400℃ および 800℃ に加熱しても表面形状は、全く変化しないことがわかる。しかしながら、再照射による表面侵食の様子は、Fig. 2 で観察されたそれと比較すると、顕著な違いが見られる。即ち、大面積剥離を伴った表面剥離が顕著に出現している。Fig. 5 では、プリスター発生より表面剥離の出現が先行している。また、400℃ 焼鈍では、プリスターの発生している結晶粒と、表面剥離している結晶粒とが共存していることが特徴的である。一方、800℃ 焼鈍の場合、殆どどの結晶粒で表面剥離が起きている (Fig. 6 と Fig. 7 参照)。Fig. 6 で特に興味深いのは、直径  $10 \mu\text{m}$  のプリスターの生じている結晶粒において、次の瞬間には、結晶粒の大きさで表面剥離の起きていることである。

1300℃ 焼鈍の場合、表面形状は、再照射前からすでに変化している。即ち、 $4.4 \times 10^{17} \text{He}^+/\text{cm}^2$  のヘリウムがあらかじめ打ち込まれていると、1300℃ の焼鈍によって、表面は多孔質状に変化する。この時、孔径は  $0.5 \sim 1 \mu\text{m}$  の大きさである。Fig. 8 および Fig. 9 は焼鈍後の表面観察写真および引き続き再照射した後の表面観察写真であり、それぞれ反射電子像、2次電子像を示したものである。表面が多孔質状に変化しているため、反射電子像では、表面形状の微妙な変化は観察し難いが、 $1.4 \times 10^{18} \text{He}^+/\text{cm}^2$  照射後の表面は、照射前のそれより、しわ状の模様が増加している。これは、2次電子像でみられる球状に近い直径  $1 \mu\text{m}$  程度のふくれが発生しているためであると考えられる。しかしながら、表面剥離のような顕著な表面侵食のモードは観察されなかった。Fig. 9 には、再照射後、さらに1300℃ で焼鈍した試料の表面観察写真を示している。この場合さらに一層、表面の多孔質化が進んでいる。Fig. 9 には、同時に室温で  $1 \times 10^{20} \text{He}^+/\text{cm}^2$  までヘリウム照射したモリブデンの表面観察写真を載せている。表面は多孔質化しているが、孔径、分布状態など照射のみで多孔質化した場合と、焼鈍によって、多孔質化へ発展した場合とでは、表面形状に違いがみられる。

観察結果をまとめて Table 1 に示す。焼鈍した試料では、プリスターのみが発生し、臨界照射量は、 $7.1 \times 10^{17} \text{He}^+/\text{cm}^2$  であった。この値は、以前得られた値  $7.5 \times 10^{17} \text{He}^+/\text{cm}^2$  <sup>(16)</sup> より小さいが、これは試料が入射イオンビームに対して45度傾斜しているためである。あらかじめ、ヘリウムの打ち込まれた試料を焼鈍して、焼鈍後引き続き照射する条件のもとでは、臨界照射量は、焼鈍温度が高い程増加している。表には、観察表面において、剥離した面積の占める割合を同時に示しているが、剥離した面積が全表面積に対して占める割合は、焼鈍温度が高くなる程、増加している。

#### 4. 考 察

観察写真から明らかなように、エネルギーの高い反射電子を検出することによって、イオン照射をおこないつつ、イオン衝撃した試料表面を同時かつ連続観察することが可能となった。しかも、鮮明で、約8000倍の高倍率の観察像が得られる。特に、反射電子像に特徴的な、陰

のヘリウムを照射した試料を1時間加熱焼鈍し、さらに、室温で再照射をおこないつつ表面観察をおこなった。Fig. 5 および Fig. 6 は、それぞれ照射後、400℃ および 800℃ で1時間焼鈍し、その後室温で100 keV のヘリウムイオンを引き続き照射した時の同時連続観察写真である。まず、 $4.4 \times 10^{17} \text{He}^+/\text{cm}^2$  のヘリウムを打ち込んで、400℃ および 800℃ に加熱しても表面形状は、全く変化しないことがわかる。しかしながら、再照射による表面侵食の様子は、Fig. 2 で観察されたそれと比較すると、顕著な違いが見られる。即ち、大面積剥離を伴った表面剥離が顕著に出現している。Fig. 5 では、プリスター発生より表面剥離の出現が先行している。また、400℃ 焼鈍では、プリスターの発生している結晶粒と、表面剥離している結晶粒とが共存していることが特徴的である。一方、800℃ 焼鈍の場合、殆どどの結晶粒で表面剥離が起きている (Fig. 6 と Fig. 7 参照)。Fig. 6 で特に興味深いのは、直径  $10 \mu\text{m}$  のプリスターの生じている結晶粒において、次の瞬間には、結晶粒の大きさで表面剥離の起きていることである。

1300℃ 焼鈍の場合、表面形状は、再照射前からすでに変化している。即ち、 $4.4 \times 10^{17} \text{He}^+/\text{cm}^2$  のヘリウムがあらかじめ打ち込まれていると、1300℃ の焼鈍によって、表面は多孔質状に変化する。この時、孔径は  $0.5 \sim 1 \mu\text{m}$  の大きさである。Fig. 8 および Fig. 9 は焼鈍後の表面観察写真および引き続き再照射した後の表面観察写真であり、それぞれ反射電子像、2次電子像を示したものである。表面が多孔質状に変化しているため、反射電子像では、表面形状の微妙な変化は観察し難いが、 $1.4 \times 10^{18} \text{He}^+/\text{cm}^2$  照射後の表面は、照射前のそれより、しわ状の模様が増加している。これは、2次電子像でみられる球状に近い直径  $1 \mu\text{m}$  程度のふくれが発生しているためであると考えられる。しかしながら、表面剥離のような顕著な表面侵食のモードは観察されなかった。Fig. 9 には、再照射後、さらに1300℃ で焼鈍した試料の表面観察写真を示している。この場合さらに一層、表面の多孔質化が進んでいる。Fig. 9 には、同時に室温で  $1 \times 10^{20} \text{He}^+/\text{cm}^2$  までヘリウム照射したモリブデンの表面観察写真を載せている。表面は多孔質化しているが、孔径、分布状態など照射のみで多孔質化した場合と、焼鈍によって、多孔質化へ発展した場合とでは、表面形状に違いがみられる。

観察結果をまとめて Table 1 に示す。焼鈍した試料では、プリスターのみが発生し、臨界照射量は、 $7.1 \times 10^{17} \text{He}^+/\text{cm}^2$  であった。この値は、以前得られた値  $7.5 \times 10^{17} \text{He}^+/\text{cm}^2$  <sup>(16)</sup> より小さいが、これは試料が入射イオンビームに対して45度傾斜しているためである。あらかじめ、ヘリウムの打ち込まれた試料を焼鈍して、焼鈍後引き続き照射する条件のもとでは、臨界照射量は、焼鈍温度が高い程増加している。表には、観察表面において、剥離した面積の占める割合を同時に示しているが、剥離した面積が全表面積に対して占める割合は、焼鈍温度が高くなる程、増加している。

#### 4. 考 察

観察写真から明らかなように、エネルギーの高い反射電子を検出することによって、イオン照射をおこないつつ、イオン衝撃した試料表面を同時かつ連続観察することが可能となった。しかも、鮮明で、約8000倍の高倍率の観察像が得られる。特に、反射電子像に特徴的な、陰

陽のはっきりした画像は、モリブデンなどの金属表面におけるブリストア発生などの観察に適している。しかしながら、表面侵食が相当進行して、表面の凹凸が顕著になったり、多孔質化してしまうと、画面の陰陽が極端に強くなり過ぎるため、微妙な形状変化の観察には適さなくなる。さらには、反射電子像では、検出器を見込まない陰の部分の情報は、本質的に得られない。このような欠点を補うためには、エネルギーの低い2次電子を検出する2次電子像との併用が有効である。但し、2次電子像の場合には、同時観察はできないので、一旦イオンビームを遮断して、観察しなければならない。

ブリストリングによる表面侵食の形態および程度は、照射温度、試料自身の履歴等に強く依存することは良く知られているが、第1壁の寿命と共にプラズマへの不純物源という観点から、表面侵食の形態は重要な要因である。焼鈍した試料表面は、ヘリウム照射に対して、大面積剥離が主たる表面侵食の原因となることが、アルミニウム、チタンなどの金属で明らかにされている。<sup>(12), (16)</sup> 本実験結果は、試料があらかじめヘリウムを内蔵していると焼鈍効果をさらに高めて、ヘリウム照射による表面侵食は、効率良く大面積剥離へと発展することを示している。大面積剥離した薄片が、基板から剥離する時間は、非常に短時間で、目視観察では、一瞬のうちに剥離している。Thomasらは、ビデオ録画から、剥離の起きる時間を測定したが、16 msec以下の速さで起きていると報告している。<sup>(12)</sup> 従って、剥離した薄片は、非常に短時間の間に、プラズマ中へ混入するものと考えなければならない。今、薄片の平均的な大きさとして、直径20  $\mu\text{m}$ 、厚み0.25  $\mu\text{m}$ と見積られるが、この薄片には、約 $5 \times 10^{12}$ 個のモリブデン原子が含まれているので、プラズマに対する重大な不純物源になるものと予想される。

ここで、ブリストリングから大面積剥離へと、表面侵食の形態が移行する機構について考察しよう。打ち込まれたヘリウムは、飛程に相当した深さ付近に蓄積されるため、照射量の増大に伴ってヘリウムの集合した気泡が形成される。気泡は、各気泡間の相互作用によって、格子状に規則的に配置し、照射量の増大にはほとんど無関係に、一定の格子定数を有している。<sup>(15), (17)</sup> 照射量の増大に伴って、気泡内の圧力は高くなるため、各気泡の表面からクラックが発生し、遂には、一定間隔で釣り合っていた気泡は、相互に連合する。<sup>(18)</sup> この時、クラックの伝播が妨げられて、ある一定距離進んで停止すると、連合して大きくなった気泡が形成され、最終的に固体表面を脹せて、ブリストアが形成される。一方、クラックの伝播が阻止されない条件のもとでは、気泡間の連合は無限に続くことになり、衝撃された表面層は、薄片となって基板から剥離する。大面積剥離は瞬時に出現すること、<sup>(12)</sup> またガス放出の鋭いピークを伴うこと、<sup>(9), (10)</sup> さらに大面積剥離した跡の表面が、滑らかな面であることなどの実験事実は、<sup>(19)</sup> 上記模型を十分に支持している。

クラックの伝播に関しては、以下の事柄が一般に知られている。クラックの先端部(気泡の先端部)には応力場が発生し、クラックの進行方向の成分応力(剪断応力)がクラックの伝播に寄与する。<sup>(20)</sup> クラックの進行方向に格子欠陥などが存在すると、発生した応力を緩和するため、クラックの伝播は阻止されて、遂には停止する。金属の場合、塑性体であるため、発生した応力は、自ら、格子欠陥を形成することによって緩和され、クラックの伝播は制されて停止する。従って、冷間加工によって導入された表面層の欠陥が取り除かれている焼鈍した試料では、前述の理由により、大面積剥離し易くなっていると理解される。また、本実験のようにあらかじめ

めヘリウムを打ち込んで、その後焼鈍した場合、ヘリウムの再配列がおきること、さらには打ち込みによって生じた表面近傍の格子欠陥が、焼鈍によって消失ないしは、複合欠陥へと変化するために、より一層クラックが伝播され易い状態になっているものとして理解される。

## 謝 辞

同時観察装置の製作を担当した核融合研究部炉心工学研究室、小原建治郎、阿部哲也の両氏に感謝致します。

本研究をおこなうにあたり終始激励して下さい、核融合研究開発推進センター、森 茂センター長、当研究部、小幡行雄部長、ならびに当研究部炉心工学研究室、村上義夫室長に深く感謝致します。



めヘリウムを打ち込んで、その後焼鈍した場合、ヘリウムの再配列がおきること、さらには打ち込みによって生じた表面近傍の格子欠陥が、焼鈍によって消失ないしは、複合欠陥へと変化するために、より一層クラックが伝播され易い状態になっているものとして理解される。

## 謝 辞

同時観察装置の製作を担当した核融合研究部炉心工学研究室、小原建治郎、阿部哲也の両氏に感謝致します。

本研究をおこなうにあたり終始激励して下さった、核融合研究開発推進センター、森 茂センター長、当研究部、小幡行雄部長、ならびに当研究部炉心工学研究室、村上義夫室長に深く感謝致します。

## 参 考 文 献

- (1) "Proc. of Conf. on Surface Effects in Controlled Fusion Devices, Argonne, 1974", J. Nucl. Mat., 53 (1974)
- (2) "Proc. of Int. Conf. on Surface Effects in Controlled Fusion Devices, San Francisco, 1976", J. Nucl. Mat., 63 (1977)
- (3) "Proc. of Int. Conf. on Plasma Surface Interactions in Controlled Fusion Devices, Abingdon, 1978", J. Nucl. Mat., 76 & 77 (1978)
- (4) "Proc. of Int. Sym. on Plasma Wall Interaction, Julich, 1976", (Pergamon Press, 1977)
- (5) Vernickel H. : Phys. Reports 37 93 (1978)
- (6) Behrisch R. : Fusion-first wall problems, in Materials Problems in Energy Production, ed. Ch. Stein (Academic Press, New York, 1976)
- (7) Erents S. K. and McCracken G. M. : Radiat. Eff., 18 191 (1973)
- (8) Roth J. : Inst. Phys. Conf. Ser., no. 28 280 (1976)
- (9) Wilson K. L. and Thomas G. J. : J. Nucl. Mat., 63 266 (1976)
- (10) Bauer W. and Thomas G. J. : J. Nucl. Mat., 63 299 (1976)
- (11) Blewer R. S. and Langley R. A. : J. Nucl. Mat., 63 337 (1976)
- (12) Thomas G. J. and Bauer W. : J. Nucl. Mat., 63 280 (1976)
- (13) Obara K., Abe T. and Sone K. : JAERI-M 7797 (1978) (In Japanese)
- (14) Fusion Reactor System Laboratory : JAERI-M 7300 (1977) (In Japanese)
- (15) Mazey D. J., Eyre B. L., Evans J. H., Erents S. K. and McCracken G. M. : J. Nucl. Mat., 64 145 (1977)
- (16) Saidoh M., Sone K., Yamada R., Ohtsuka H. and Murakami Y. : JAERI-M 7182 (1977)
- (17) McCracken G. M. : Reports on Progress in Phys., 38 241 (1975)
- (18) Evans J. H. : J. Nucl. Mat., 68 129 (1977)
- (19) Risch M., Roth J. and Scherzer B. M. U. : Proc. of Int. Sym. on Plasma Wall Interactions, p.391 (Pergamon Press, 1977)
- (20) Kamada K. and Higashida Y. : Ionizing Radiation Vol.5 No.2 33 (1978) (In Japanese)

Table 1 Critical fluence for appearance of surface erosion and deformation mode in 100 keV helium bombarded molybdenum. Annealing of the targets was made after bombarding to a fluence of  $4.4 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  at the respective temperatures. The values of fluence and critical fluence shown in table represent the respective values obtained from bombardment after annealing.

Annealing	Fluence ( $\text{He}^+/\text{cm}^2$ )	Critical fluence ( $\text{He}^+/\text{cm}^2$ )	Deformation mode
	$9.0 \times 10^{17}$	$7.1 \times 10^{17}$ ( $2.7 \times 10^{17}$ )	Blister
400 °C 1 h	$5.2 \times 10^{17}$	$3.6 \times 10^{17}$	31% Blister 22% Exfoliation
800 °C 1 h	$5.4 \times 10^{17}$	$4.4 \times 10^{17}$	14% Blister 27% Exfoliation
800 °C 10 h	$6.6 \times 10^{17}$	$5.6 \times 10^{17}$	15% Blister 35% Exfoliation
1300 °C 1 h	$1.4 \times 10^{18}$		Blister (?)

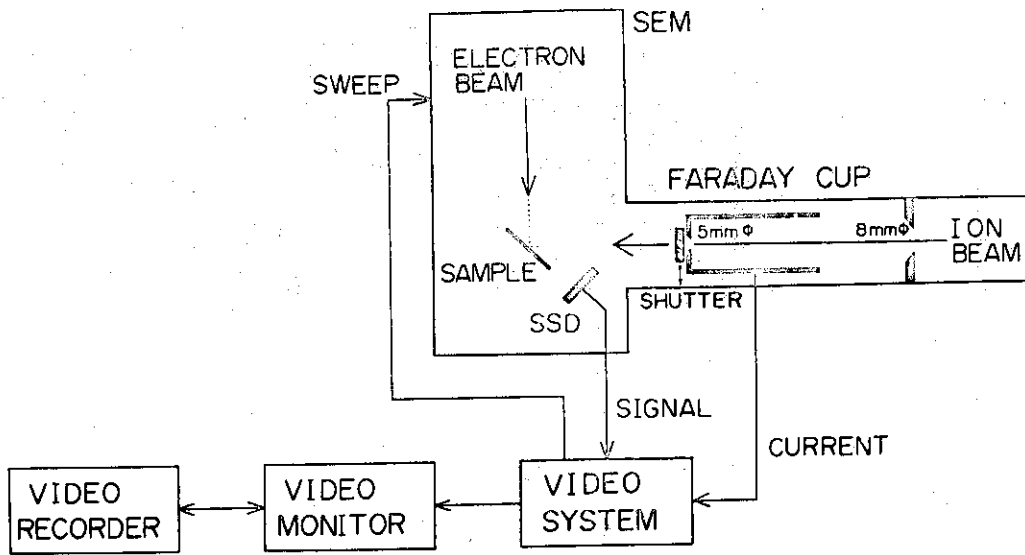


Fig. 1 Schematic representation of experimental apparatus.

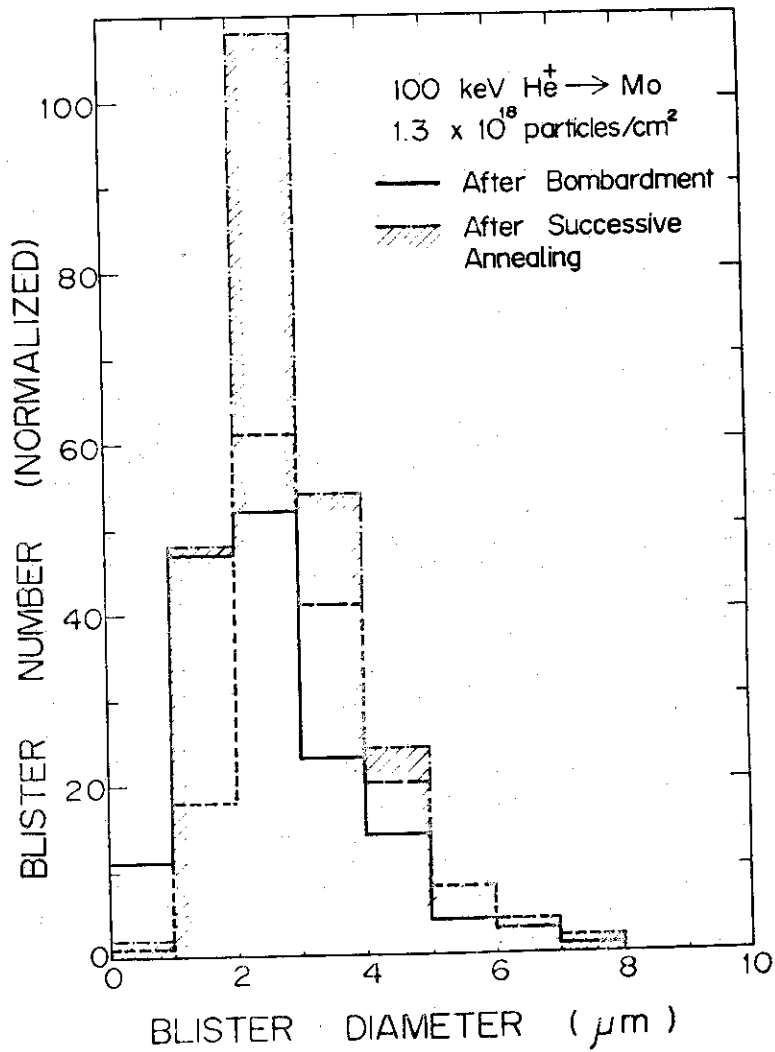


Fig. 4 Blister size distributions. Solid line shows after 100 keV helium bombardment to a fluence of  $1.3 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ , chain line after successive annealing at  $400^\circ\text{C}$  for 1 hour after bombardment and broken line size distribution of the blisters formed by the pre-bombardment after annealing.

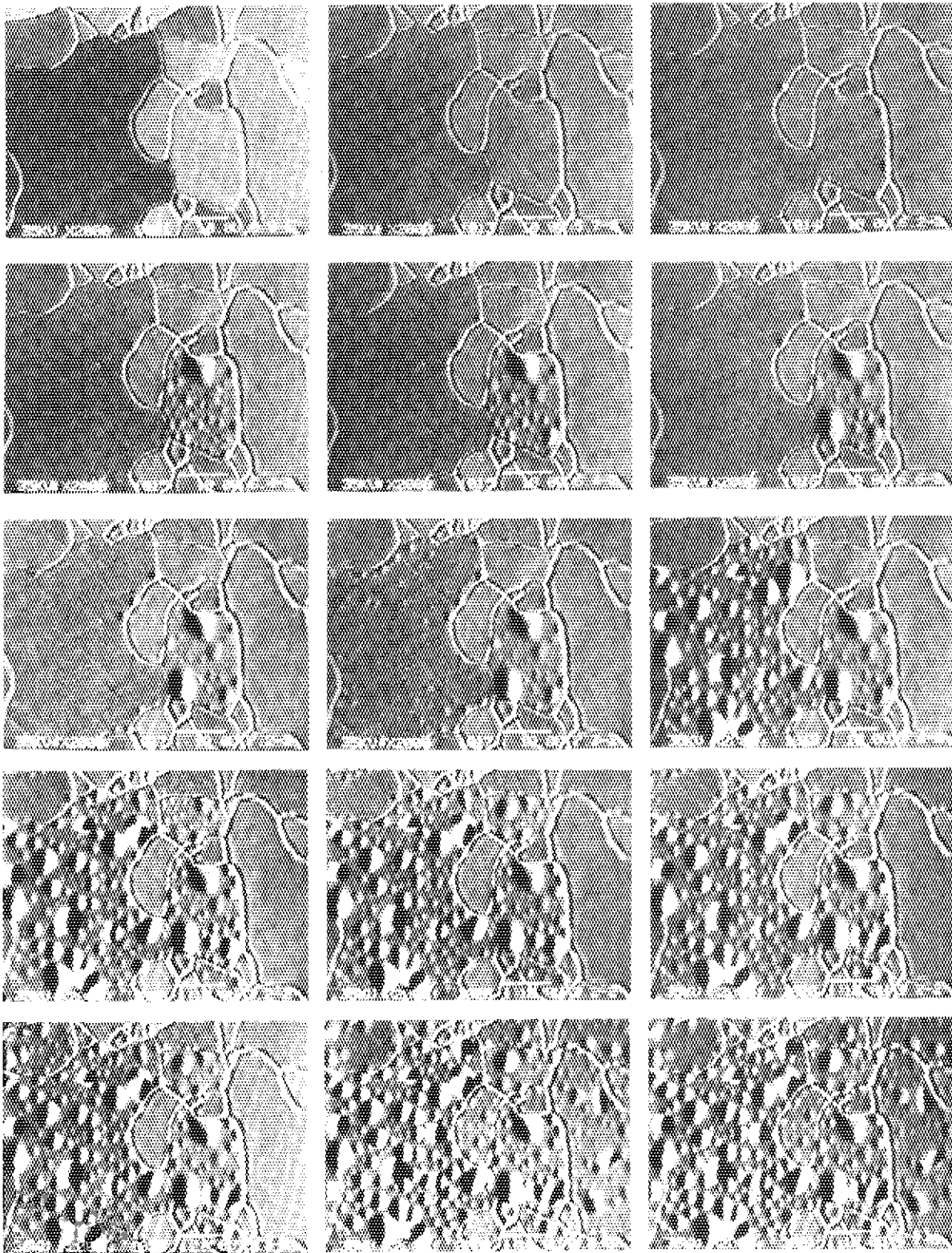
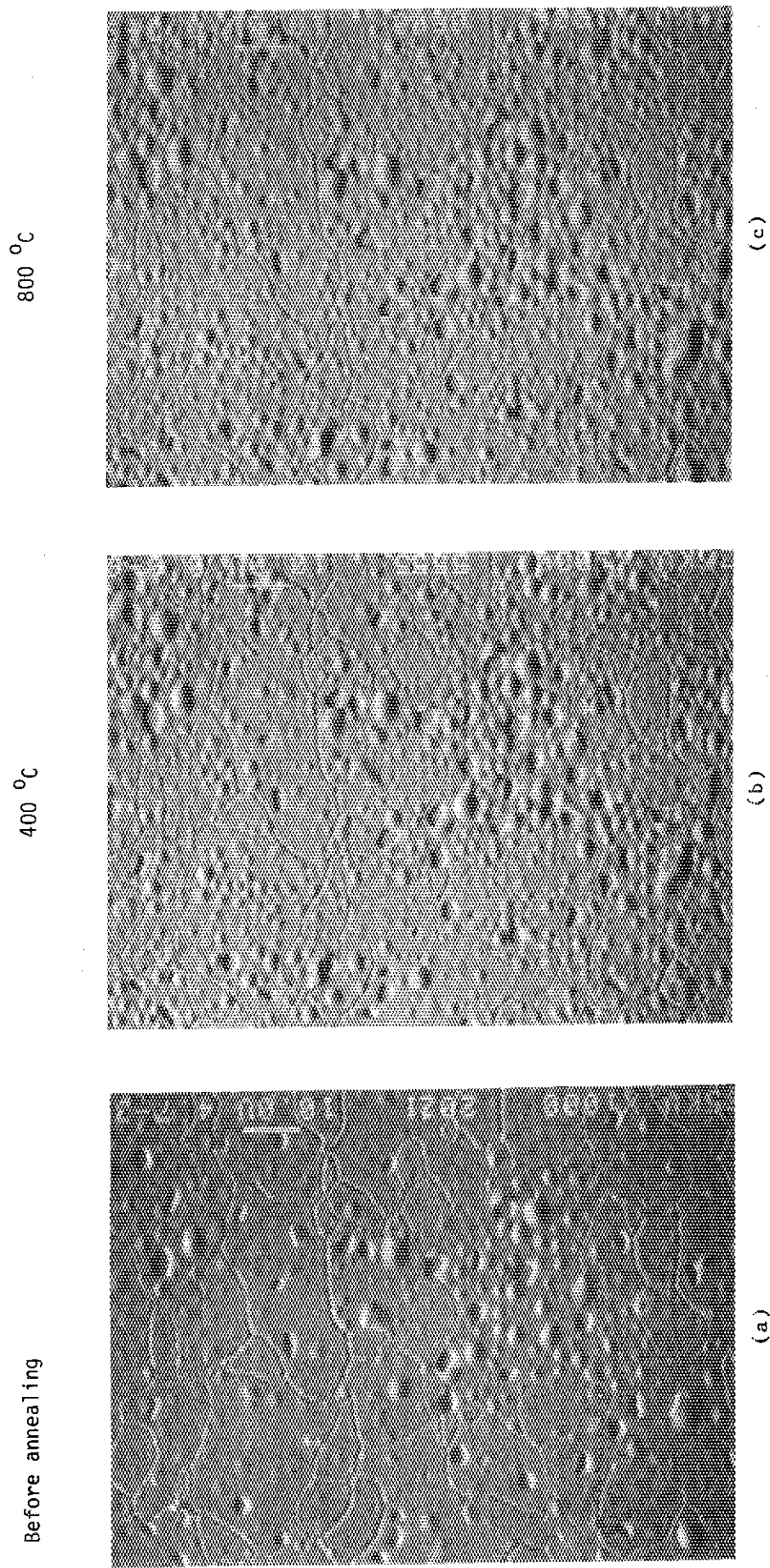


Fig. 2 Scanning electron micrographs showing the development of surface erosion in 100 keV helium bombarded molybdenum with irradiation dose up to a fluence of  $9.0 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  at ambient room temperature. Prior to the bombardment the target was annealed at 1300 °C for 1 hour. Image contrast was made by detecting backscattered electrons.



Before annealing

400 °C

800 °C

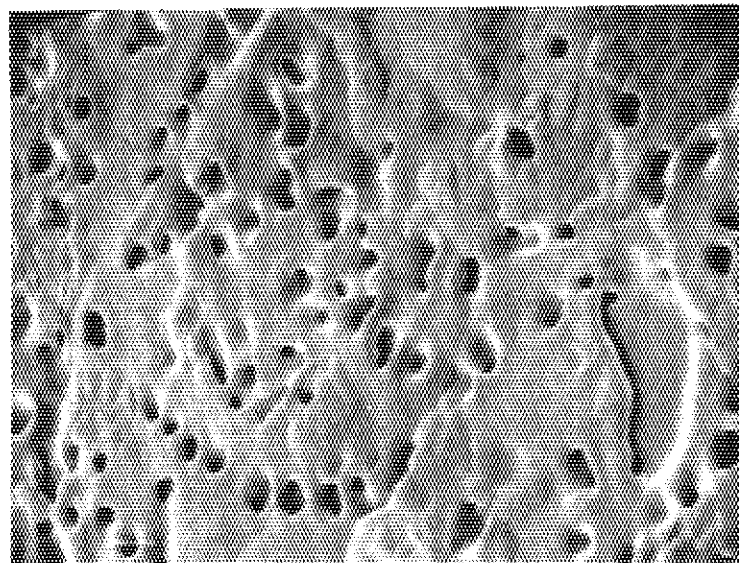
(a)

(b)

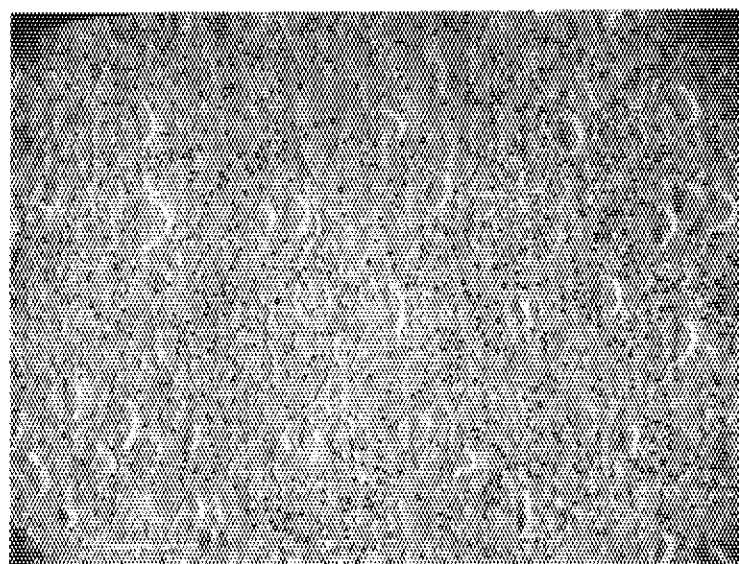
(c)

20 μm

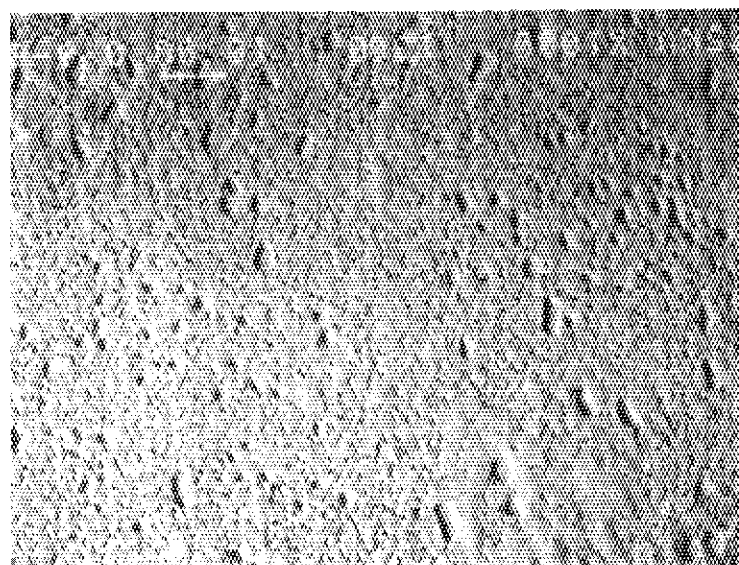
Fig. 3 Scanning electron micrographs showing the annealing behaviour of the blistered molybdenum surface after 100 keV helium bombardment to a fluence of  $9.0 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ . (a) before annealing, (b) 400 °C, (c) 800 °C and (d), (e) and (f) 1300 °C. Annealing time was 1 hour. (a), (b), (c) and (d) backscattered electron image and (e) and (f) secondary electron image.



(f)  
2  $\mu\text{m}$

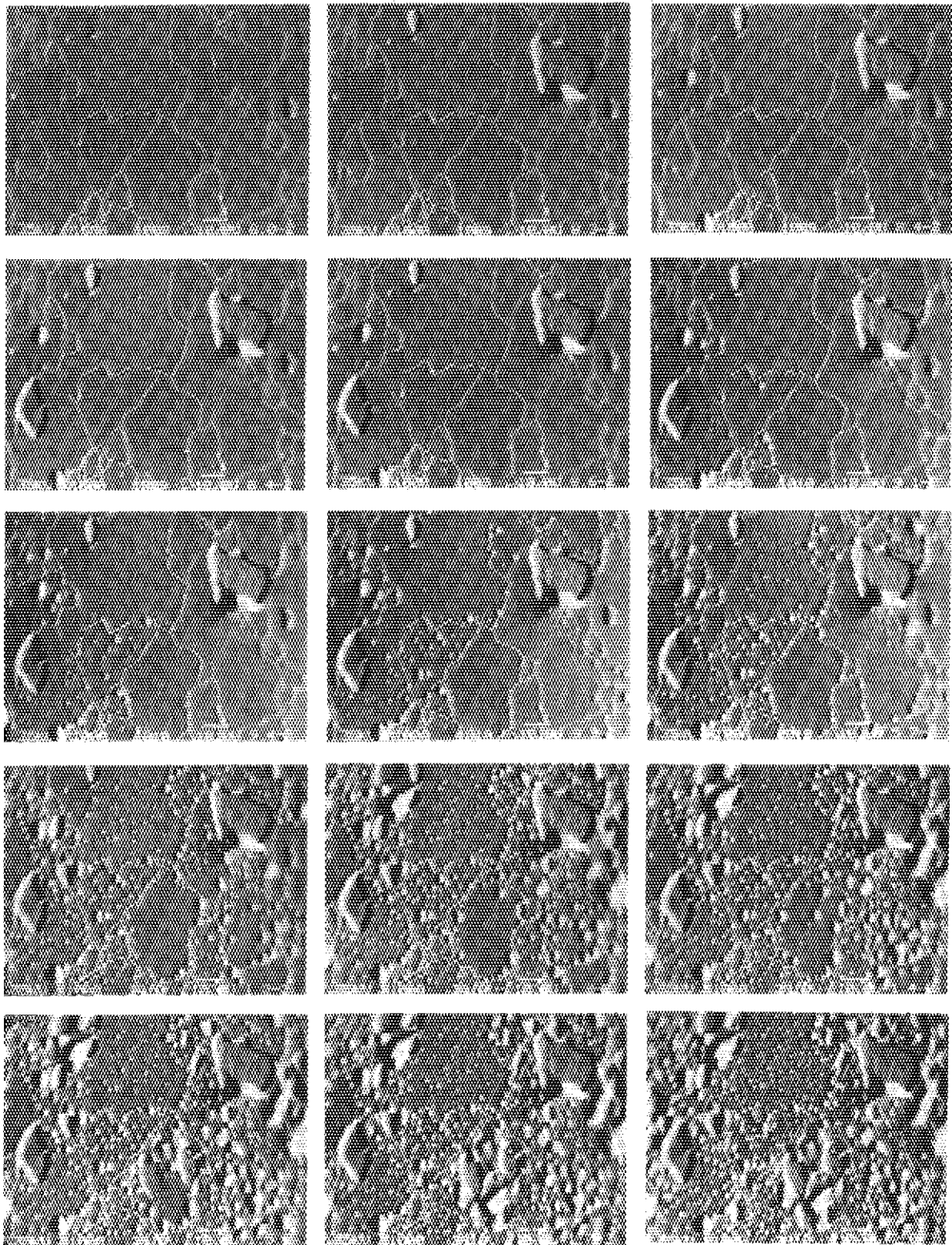


(e)  
10  $\mu\text{m}$



(d)  
20  $\mu\text{m}$

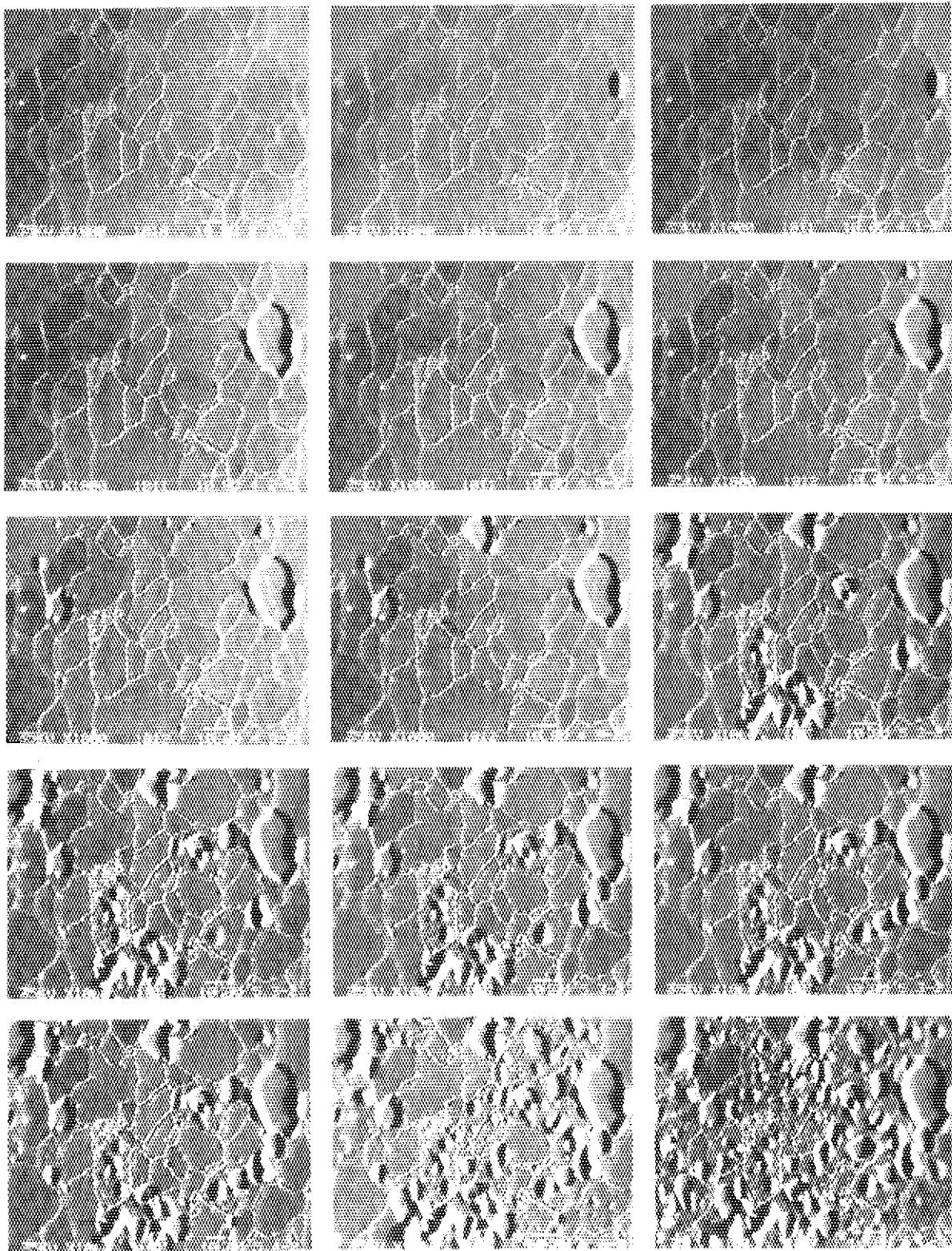
Fig. 3 (continued)



20  $\mu\text{m}$

Fig. 5 Scanning electron micrographs showing the development of surface erosion in 100 keV helium bombarded molybdenum with irradiation dose up to a fluence of  $5.2 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  at ambient room temperature. Prior to the bombardment the target (annealed at  $1300^\circ\text{C}$  for 1 hour) was pre-bombarded with 100 keV helium to a fluence of  $4.4 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  and successively annealed at  $400^\circ\text{C}$  for 1 hour. Backscattered electrons were detected to make an image contrast.

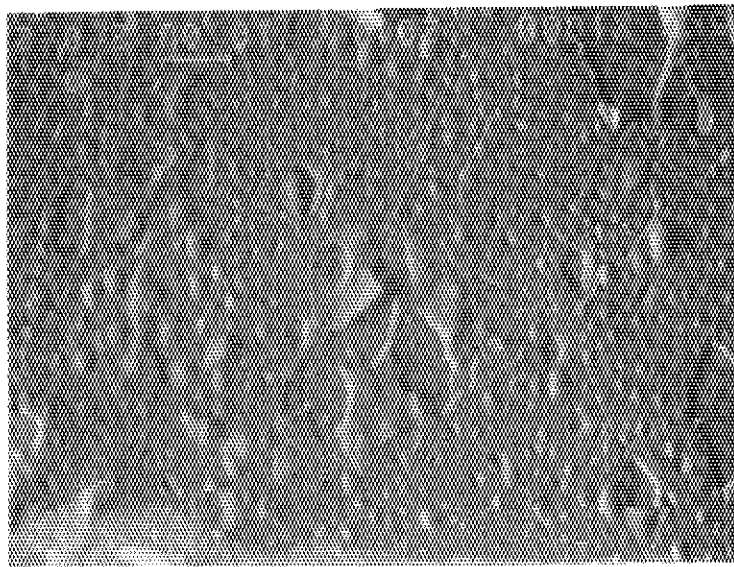




20  $\mu\text{m}$

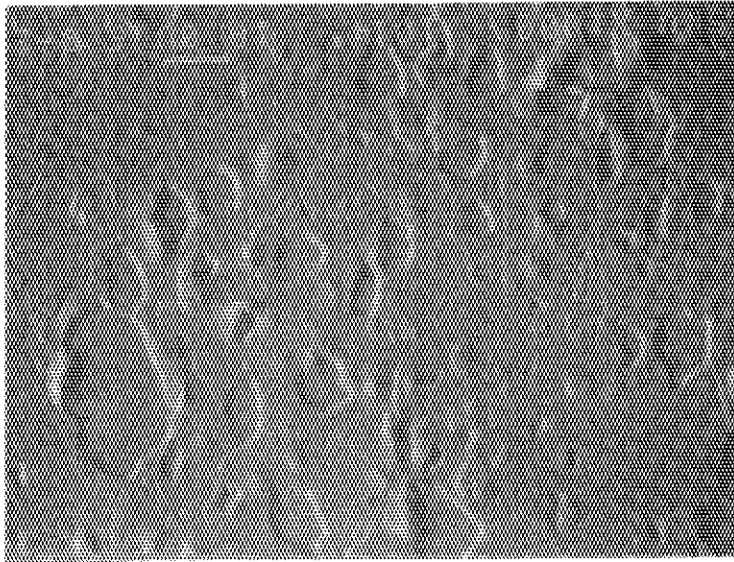
Fig. 6 Scanning electron micrographs showing the development of surface erosion in 100 keV helium bombarded molybdenum with irradiation dose up to a fluence of  $5.4 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  at ambient room temperature. Prior to the bombardment the target (annealed at  $1300^\circ\text{C}$  for 1 hour) was pre-bombarded with 100 keV helium to a fluence of  $4.4 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  and successively annealed at  $800^\circ\text{C}$  for 1 hour. Backscattered electrons were detected to make an image contrast.

400 °C 1 h  
 $5.2 \times 10^{17}$



(a)

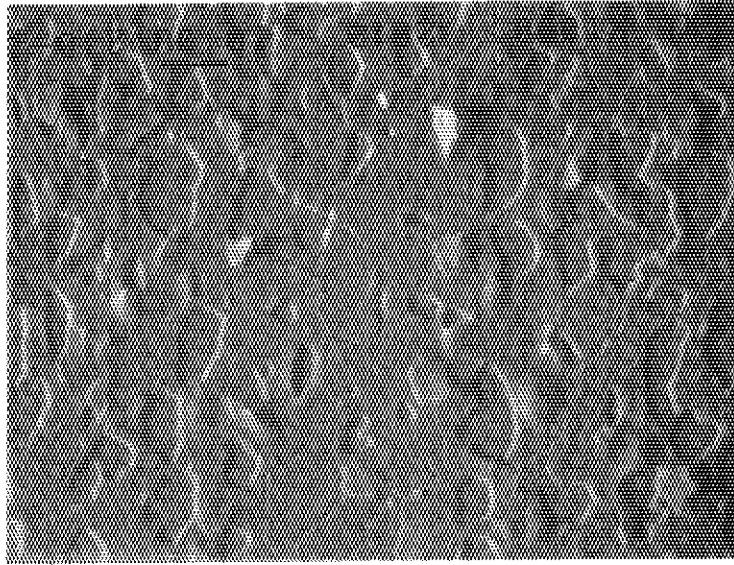
800 °C 1 h  
 $5.4 \times 10^{17}$



(b)

20 μm

800 °C 10 h  
 $6.6 \times 10^{17}$

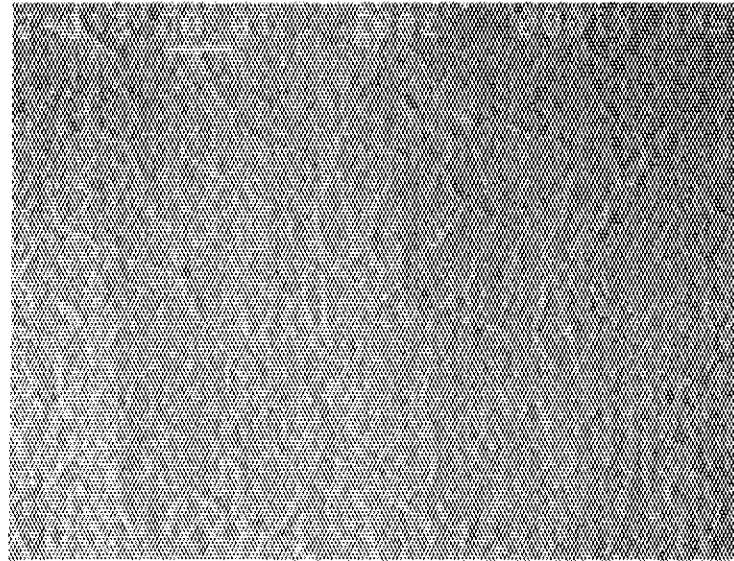
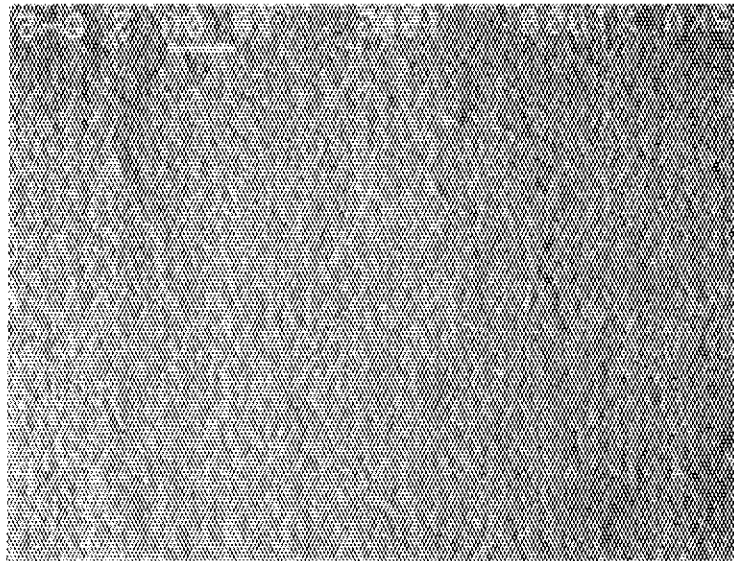
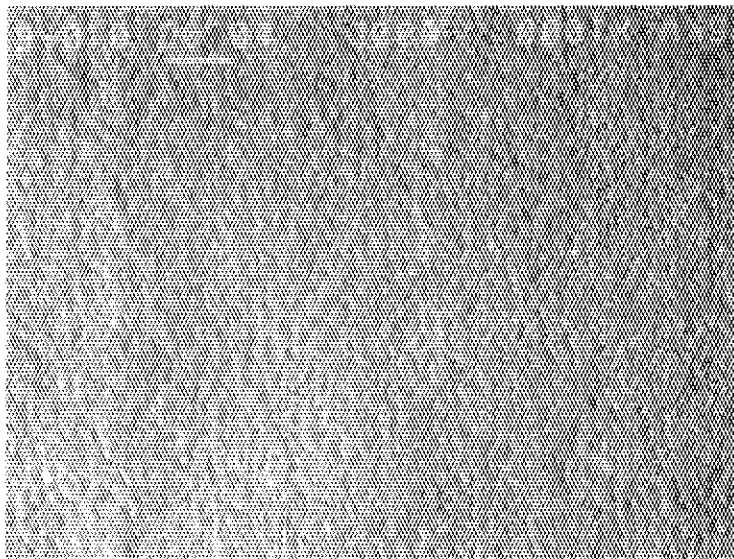


(c)

Fig. 7 Scanning electron micrographs showing the eroded surfaces in 100 keV helium bombarded molybdenum. Prior to the bombardment the targets (annealed at 1300 °C for 1 hour) were pre-bombarded with 100 keV helium to a fluence of  $4.4 \times 10^{17}$  He<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup> and successively annealed (a) at 400 °C for 1 hour, (b) at 800 °C for 1 hour and (c) at 800 °C for 10 hours, respectively. Backscattered electrons were detected to make an image contrast.

$5.5 \times 10^{17}$

$1.4 \times 10^{18}$



(a)

(b)

(c)

20  $\mu\text{m}$

Fig. 8 Scanning electron micrographs showing the development of surface erosion in 100 keV helium bombarded molybdenum with irradiation dose up to a fluence of  $1.4 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  at ambient room temperature. Prior to the bombardment the target (annealed at  $1300^\circ\text{C}$  for 1 hour) was pre-bombarded with 100 keV helium to a fluence of  $4.4 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  and successively annealed at  $1300^\circ\text{C}$  for 1 hour. Backscattered electrons were detected to make an image contrast.

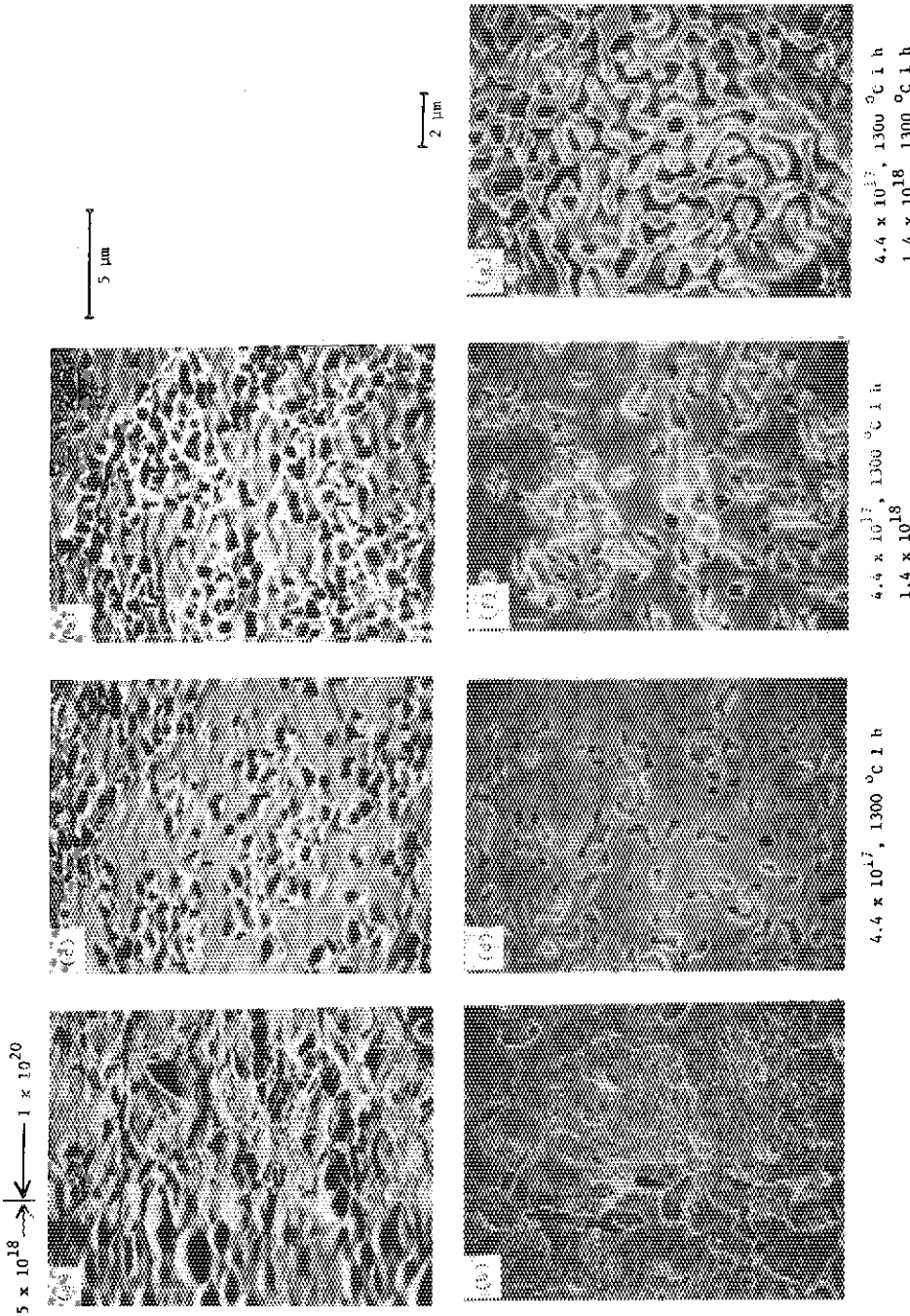


Fig. 9 Scanning electron micrographs of eroded surfaces in 100 keV helium bombarded molybdenum. (a) shows the boundary between the blistered surface (bombarded to a fluence of  $5 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) and the sponge like surface (to a fluence of  $1 \times 10^{20} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ) and (b) sponge like surface (to a fluence of  $1 \times 10^{20} \text{ He}^+/\text{cm}^2$ ). (c) and (d) show surfaces of the target successively annealed at  $1300 \text{ }^\circ\text{C}$  for 1 hour after bombarding to a fluence of  $4.4 \times 10^{17} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  with 100 keV helium. (e) and (f) show surfaces of the pre-treated target (the same one as shown in (c) and (d)) after bombarding to a fluence of  $1.4 \times 10^{18} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  with 100 keV helium. (g) shows the surface of the pre-treated target (the same one as shown in (e) and (f)) after annealing at  $1300 \text{ }^\circ\text{C}$  for 1 hour. Secondary electrons were detected to make an image contrast. In (b), (d), (f) and (g) scanning electron beam was incident normal to the target surface. In (a), (c) and (e) scanning electron beam was incident with an angle of  $45^\circ$  to the target surface normal.