

JAERI - M  
83-226

固体内原子衝突過程の計算機シミュレーション研究会報告書

1984年1月

原子分子データ研究委員会

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。  
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section, Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1984

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 いばらき印刷(株)

固体内原子衝突過程の計算機シミュレーション研究会報告書

日本原子力研究所原子分子データ研究委員会

(1983年12月5日受理)

原子分子データ研究委員会の粒子・固体相互作用ワーキンググループによる「固体内原子衝突過程の計算機シミュレーション」の研究会が1983年1月27日原研本部で開催された。この研究会では、固体内原子衝突に関する計算コードとしてE-DEP-1, Brice, Marlowe, Cascade及びモンテカルロ法によるTrim及びDaiquiriなどがとりあげられ、それらの現状を概観した。また、これらのコードによる核融合炉のプラズマ粒子と壁材料との相互作用の計算を議論した。本報告書は、研究会において発表された論文9編をまとめたものである。

編者 小沢 国夫  
岩田 忠夫

Report of Workshop on Computer Simulation of  
Atomic Collision Processes in Solids

Research Committee on A & M Data, JAERI

(Received December 5, 1983)

A workshop on the computer simulation of atomic collision processes in solids was held at the JAERI Headquarters, Tokyo on January 27, 1983.

The aim of this workshop has been both to obtain an overview of the computer codes on the atomic collisions in solids and to discuss the calculations of such particle-material interactions in fusion reactors as damage distribution, hydrogen recycling, atomic displacement, damage annealing, sputtering, etc. by using these codes.

This report contains nine papers presented in the workshop.

Keywords: Atomic Collision in Solids, Computer Simulation, Plasma-Wall Interaction, Reactor Materials.

Editors K. OZAWA  
T. IWATA

## ま え が き

原研原子分子データ研究委員会の原子分子データ収集・評価専門部会、粒子物質相互作用ワーキンググループは、核融合プラズマ粒子と壁物質との相互作用に関して、データの収集及び評価の作業を進めている。

プラズマ粒子と物質との相互作用は、本質的には固体内の多体的原子衝突過程である。この固体内原子衝突過程の研究を通常の実験のみによって行うことは非常に困難であって、その研究には計算機によるシミュレーション実験が必要である。そこで、粒子-物質相互作用ワーキンググループは、各種のシミュレーション計算コードを利用して固体内原子衝突過程を研究している専門家が互いの問題点の指摘も含めて現状をレビューしあい、情報を交換することを目的とする「固体内原子衝突過程の計算機シミュレーション」に関する研究会を1983年1月17日に原研本部で開催した。

研究会では次のような計算コードの報告及び検討が行われた。第1に、イオン照射における損傷の空間分布を計算するE-DEP-1コード及びBRICEコードなどがとりあげられた。これらのコードについて、高エネルギー領域への拡張及び計算精度の向上の試みが報告され、更に水素同位体リサイクリング、損傷及び注入イオンの分布などについて計算と実験の比較が行われた。第2に、分子動力学法とよばれるGRAPEコードがとりあげられ、これを利用した原子のはじき出しエネルギーの計算が報告された。第3に、二体衝突近似とよばれるMARLOWEコードやCASCADE/CLUSTERコード、第4にモンテカルロ法とよばれるDAIQUIRIコード、TRIMコード、ACATコードなどがとりあげられ、MARLOWEとDAIQUIRIとを組み合わせて行った原子のはじき出しのカスケード及びそのアニーリング計算が報告された。次いで、MARLOWE、TRIM、ACATなどのコードの相互比較が損傷及びスパッタリングの計算を通して行われた。最後に、これらの計算に欠くことのできない物理量であるイオン阻止能に関して問題点の検討が行われた。

本報告書は、これらの計算コードに関して研究会で報告されたものをまとめたものである。

(世話人代表 小沢 国夫)  
岩田 忠夫

## 目 次

1. E-DEP-1 コードの高エネルギー領域への拡張	原 研 有賀 武夫	1
2. (コメント) 飛程, 損傷エネルギー分布計算コード	東大工 福谷 耕司	10
3. 水素同位体リサイクリング特性と照射損傷	原 研 曾根 和穂	14
4. イオン照射における損傷及び注入イオンの深さ分布	東 芝 寺澤 倫孝	21
5. 分子動力学法によるはじき出ししきいエネルギーの異方性の計算	原 研 横田 光史, 田次 邑吉, 岩田 忠夫	44
6. 多重衝突法による材料中の原子はじき出しカスケード計算	原 研 田次 邑吉	54
7. MARLOWE-DAIQUIRI コードを用いたカスケード損傷のアニーリング計算	東大工 室賀 健夫	69
8. Damage 及び Sputtering 計算におけるモンテカルロシミュレーション	岡山理大 山村 泰道	82
9. 低エネルギー領域でのイオン阻止能	湘北短大 北川 盈雄	96

## Contents

1. Extension of E-DEP-1 to high energy region Takeo Aruga (JAERI) .....	1
2. Comment on the Computer Code for Calculating Ion Range and Energy Deposition Distribution Koji Fukuya (The University of Tokyo) .....	10
3. Hydrogen Isotope Recycling Problems in Relation to Radiation Damage at Wall Surfaces in Tokamaks Kazuho Sone (JAERI) .....	14
4. Depth Distribution of Radiation Damage and Implanted Ions by Ion-irradiation into Matters Mititaka Terasawa (Toshiba Nuclear Engineering Lab.) .....	21
5. Anisotropy of Displacement Threshold Energies Calculated by the Molecular Dynamical Method Terufumi Yokota, Yukichi Taji and Tadao Iwata (JAERI) ....	44
6. Analyses of Atomic-Displacement Cascades in Solids by the Multiple-Collision Method Yukichi Taji (JAERI) .....	54
7. Annealing Simulation of Cascade Damage Using MARLOWE-DAIQUIRI Codes Takeo Muroga (The University of Tokyo) .....	69
8. Monte Carlo Simulation for Theoretical Calculations of Damage and Sputtering Processes Yasunori Yamamura (Okayama University of Science) .....	82
9. Stopping Power for Heavy Ions in Low Energy Region Mitsuo Kitagawa (North Shore College) .....	96

# 1. E-DEP-1コードの高エネルギー領域への拡張

原研 有賀 武夫

## 1. はじめに

核融合炉や高速炉で使われる材料の照射損傷の研究で中性子照射を模擬したイオン照射実験は有効な方法である。これまでに、金属材料のボイドスウェリングや照射誘起析出などの照射下での材料の挙動を解明するのに大きな貢献をしてきた。イオン照射によって試料中につくられる照射損傷はふつう試料表面の極く近傍のミクロンのオーダーの深さの範囲に限られる。また損傷の分布はイオンの飛程の範囲内で深さ方向に大きな勾配で変化し平均飛程付近に鋭いピークをもつ。同時に照射イオンが試料中に注入される。イオン照射による損傷のこのような特徴は、材料中に均一な損傷を与える中性子照射と著しく異なる。イオン照射実験の結果から照射損傷効果の議論をする場合、イオン照射した試料について損傷率と注入原子の分布を試料表面からの深さの関数として知ることが重要である。

注入イオンの平均飛程とそのストラグリングおよび損傷エネルギーの分布を、LSS理論にもとづいて計算するコードとしてE-DEP-1コード<sup>1)</sup>が広く使われている。任意のイオンとターゲットの組み合わせについてイオン種とエネルギーおよびターゲット物質の成分と原子密度を入力するだけで使用できるという簡便さと汎用性が大きな特徴である。しかし、軌道電子がはぎとられ裸の原子になるような高エネルギー領域のイオンについては、LSS理論は電子的エネルギー損失率を過大に評価するため、適用できるエネルギーはLSS理論の範囲内という限界があった。一方、高エネルギー加速器の利用によって平均飛程の大きな高エネルギーイオンの照射実験が可能になり試料表面の影響を余り受けずに材料の照射損傷効果を調べたり、照射下クリープ試験などの照射下での機械的性質の変化を追究する実験が行なわれるようになった。必然的に、高エネルギーイオンを照射した試料中の損傷分布などの照射実験解析用のデータが必要になってきた。ここでは、E-DEP-1コードの簡便さと汎用性という長所を損わずに、高エネルギーイオンを使った照射実験用に電子的エネルギー損失率の適用エネルギーをBethe-Blochの高エネルギー領域まで拡張することを試みたのでその内容を報告する。

## 2. 電子的阻止能の高エネルギー領域への拡張

低エネルギー領域におけるイオンのエネルギー損失に関するLSS理論は、Thomas-Fermiの原子の統計モデルに基づいている。任意のイオンとターゲットの組み合わせについて原子のイオン化や励起による電子的エネルギー損失は無次元化されたエネルギーと無次元化された飛程の簡単な関係式で表わされる。この理論が適用できる低エネルギー領域の上限は、イオンの速度で  $V_0 Z_1^{2/3}$  でありエネルギーでは  $0.0248 Z_1^{4/3}$  (MeV/amu) である。但し  $V_0$  はボーア速度  $Z_1$  は

---

Extension of E-DEP-1 to high energy region., Takeo Aruga, JAERI



イオンの原子番号である。E-DEP-1コードは、適用上限エネルギー  $E_{Lim} = 0.0248 M_1 Z_1^{4/3}$  (MeV) を出力しこのエネルギーを超えたコードの使用に対し警報メッセージを出す。  $E_{Lim}$  の値は例えば He: 0.25, C: 3.2, N: 4.6, Ni: 122 (いずれも MeV) などである。LSS理論と実験値の比較は直接的な電子的阻止能に関するものより、飛程を比較したものが多く、全体として理論の値は実測値より10~30%程大きく、エネルギーの低いほど、理論と実験との一致がよいとされている。<sup>2,3)</sup> また、必ずしもLSS理論での速度に比例した形の電子的エネルギー損失ではなく、 $Z_1$  依存性も考慮する必要があるほか、一般に  $k \epsilon^p$  ( $\epsilon$  は無次元化エネルギー、 $k$  は定数) の方が測定値との一致がよく、 $p$  は0.4~0.58の間とされている。<sup>4)</sup> E-DEP-1コードでも電子的エネルギー損失を与えるサブルーチン ELCLAW を書きかえて対応する改良をすることができるが、今回は高エネルギー領域への拡張を主とする改良であるので、低エネルギー領域の電子的エネルギー損失はLSS理論によるものを使用する。

電子的エネルギー損失はイオンのエネルギーの増加とともに大きくなるが、速度が  $V_0 Z_1^{2/3}$  程度で最大となりその後は減少する。イオンの速度が  $V_0 Z_1^{2/3}$  より大きな高エネルギーのイオンについては、電子的エネルギー損失をLSS理論で表わすことはできない。

一方、 $V_0 Z_1$  より十分大きな速度のイオンでは、軌道電子がはぎとられ裸の原子として物質中の電子と相互作用し、その大きさは一次のBorn近似で正確に表わすことができる。電子的エネルギー損失が最大となる  $V_0 Z_1^{2/3}$  の速度と  $V_0 Z_1$  の速度のエネルギー領域は有効電荷の概念を導入しなければならない領域であり、理論的な取り扱いの困難さの故に、エネルギー損失は有効電荷のスケールリング則等の半実験的な評価に依らざるを得ない。内殻電子の効果に対する補正のほか、相対論補正、密度効果を含めた高エネルギー領域の電子的エネルギー損失はBethe-Bloch公式として知られている。さらに有効電荷のスケールリングを含む中間領域のエネルギー損失に関する議論・解説は文献5), 6) などに詳しいほか、この研究会でも報告されているのでここでは省略する。

中間領域および高エネルギー領域で汎用性に富んだ電子的エネルギー損失の表現という点で、多くの実測値と比較され比較的よい一致をみせているZieglerらの式<sup>7)</sup>が現在適当と考えられる。文献7)では、0.2 MeV/amu以上のエネルギーについてエネルギー損失が示されているが、内殻補正項を内外挿できるデータ(図表)として与えているのは、2 MeV/amuまでであり、これより低いエネルギーについては汎用性をもって計算コードに組み込むことはできない。

一方、杉山<sup>8)</sup>は0.0125~10 (MeV/amu)まで使える式(杉山の式)を与えている。この式では、有効電荷のスケールリングのほかに、内殻補正項に代るものとして、入射イオン自身の電離、励起に費やされるエネルギー損失補正の因子をフィッティングで求めさらに平均イオン化エネルギーの値を  $Z_2$  の関数で表わしており、汎用性に優れている。中間領域で±5%の精度で実験値と一致すると評価している。

これらのことを考慮し、0から  $0.0248 Z_1^{4/3}$  (MeV/amu)の領域はLSS理論を、 $0.0248 Z_1^{4/3}$  から2 (MeV/amu)で杉山の式を、2 MeV/amu以上でZieglerの式を適用して、E-DEP-1コードの適用エネルギーを拡張した。それぞれのエネルギー領域の境界で公式がなめらかにつながることは少ない。LSSと杉山の式では、0.0125 MeV/amuと  $0.0248 Z_1^{4/3}$  MeV/amuの間で、杉山の式とZieglerの式では2~4 MeVのエネルギーの範囲で、それぞれの電子的エネルギー

一損失の、エネルギー巾での荷重平均をとってなめらかに接続させた。但し、LSSと杉山の式との接続で1つ以上交点がある場合は低エネルギー側の交点を境界とした。エネルギー損失の特徴的な接続の例をいくつかのイオンとターゲットの組み合わせについてFig.1に示した。このような接続はターゲットが多成分系の場合（最大6成分）にも同様に行うことができる。Nイオンとステンレス鋼ターゲットの場合についてFig.2に示した。接続した後の電子的エネルギー損失をHeイオンとNiターゲットの組み合わせおよびCイオンとNiターゲットの組み合わせについて、Fig.3, 4に核的エネルギー損失と併せて示す。

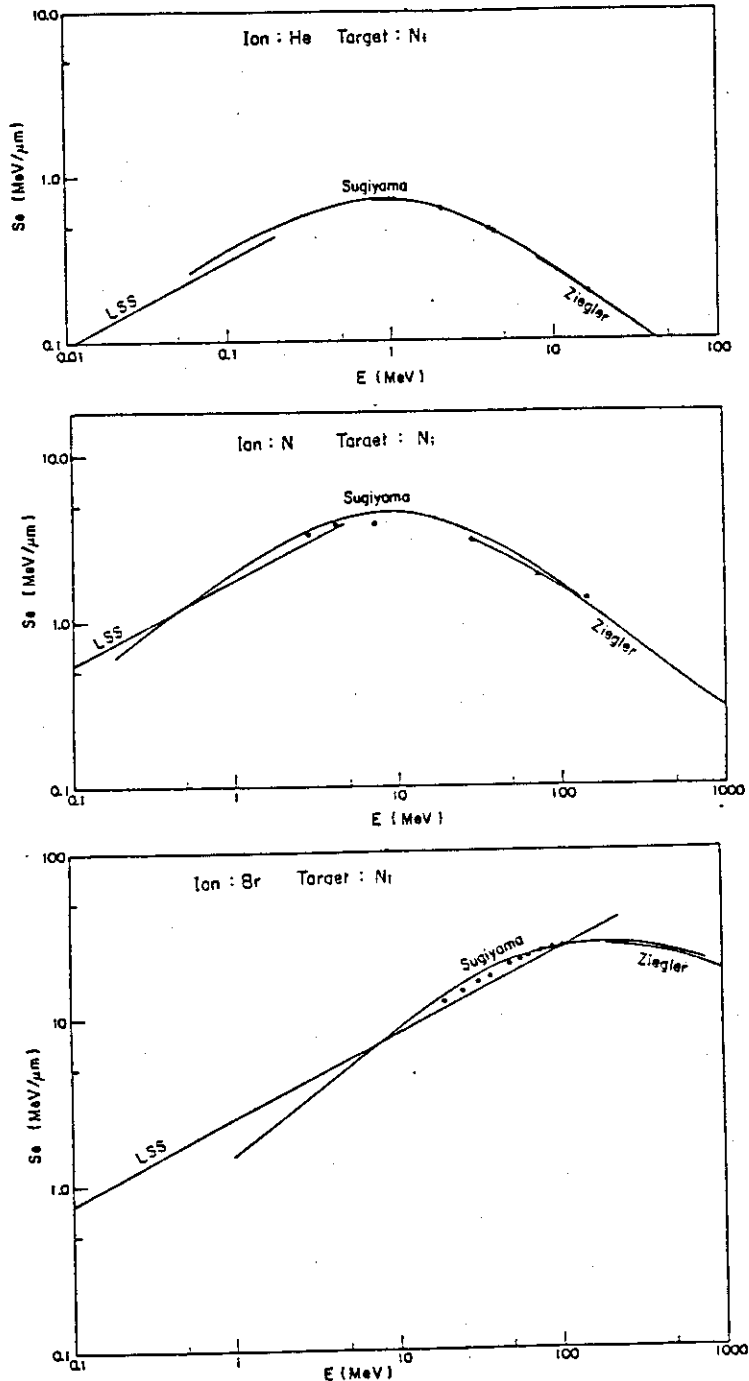


Fig. 1 LSS理論式、杉山の式及びZieglerの式で計算したHe-Ni, N-Ni及びBr-Ni系の電子的エネルギー損失のエネルギー依存

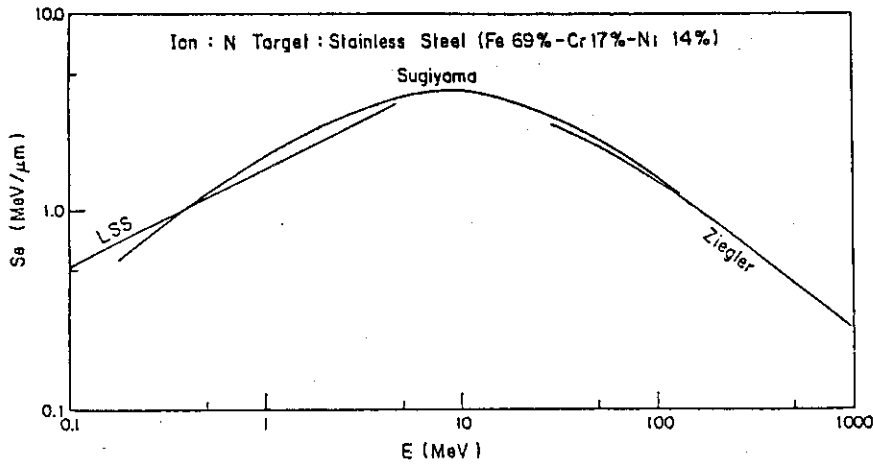


Fig. 2 ステンレス鋼にNイオンを照射した場合についてLSS理論式, 杉山の式, 及びZieglerの式で計算されたイオンの電子的エネルギー損失のエネルギー依存.

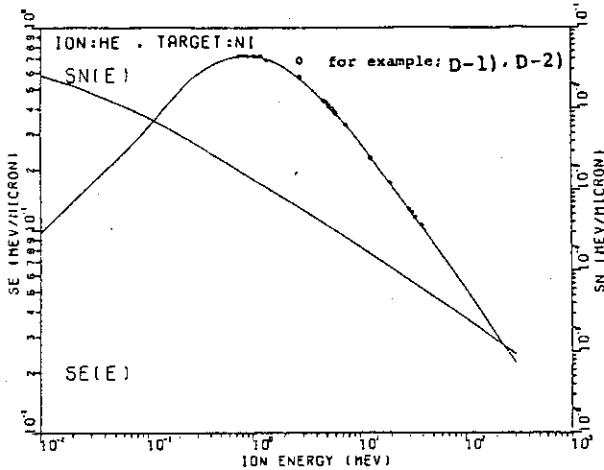


Fig. 3  $^4\text{He}$ イオンのNi中における電子的エネルギー損失と核的エネルギー損失のエネルギー依存.

○印は実験値を示す。

D-1) D. Ward et al., Can. J. Phys. 50 (1972) 2302.

D-2) J. E. E. Baglin and W. K. Chu, Nucl. Instr. and Meth. 149 (1978) 695.

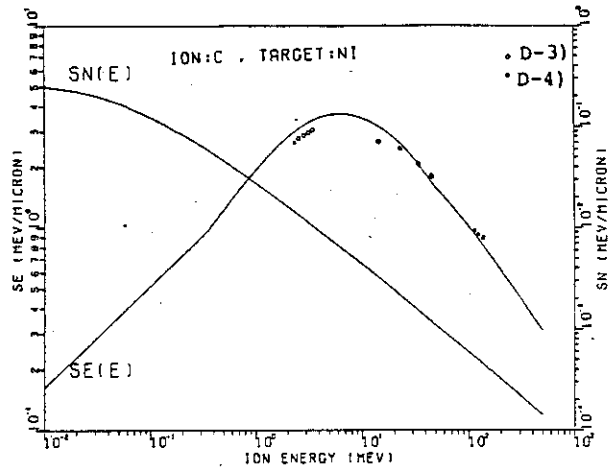


Fig. 4 CイオンのNi中における電子的エネルギー損失と核的エネルギー損失のエネルギー依存. ○印は実験値

D-3) D. J. Porat and K. Ramavatram, Proc. Phys. Soc. 77 (1961) 97.

D-4) P. G. Roll and F. E. Steigert, Nucl. Phys. 17 (1960) 54.

リングDRM, DXMのエネルギー依存. ○印は実験値. D-4)はFig.

### 3. 核的エネルギー損失と飛程，ストラグリングおよび損傷率分布

核的エネルギー損失は、イオン照射した試料中の損傷分布に関係する。低エネルギー領域の核的エネルギー損失はLSS理論によって、Thomas-Fermiの原子モデルにもとづく遮蔽ポテンシャルを使って無次元化されたエネルギー、飛程で任意のイオン、ターゲットの組み合わせについて一般的な形で表わされる。さらにこの領域の核的エネルギー損失は非遮蔽クーロンポテンシャルによる裸の原子の衝突と做せる領域となめらかにつながっている。ここでは、LSS理論の核的阻止能をラザフォード散乱の領域へ単純に外挿して使用した。

E-DEP-1コードでの核的エネルギー損失率の深さ分布は、ガウス分布を仮定した飛程分布にもとづいてKulcinskiらの残留飛程(residual range)の近似<sup>9)</sup>で計算されている。すなわち、ある深さでのエネルギー分布とそれに対応する核的エネルギー損失率は、その深さのところから統計的に飛程分布で与えられる位置までの残留飛程を走るだけのエネルギー分布をもとに計算される。ここでは、飛程とその分布の広がりを与えるストラグリングの計算はLSS理論に準じたE-DEP-1の計算方式をそのまま使用し、前述の核的エネルギー損失率の分布をもとにdpa単位のはじき出し損傷率の分布を出力するルーチンをつけ加えた。

高エネルギー領域に拡張したE-DEP-1コードで計算した電子的、核的エネルギー損失にもとづいて(Fig.4参照)、CイオンをNiに照射したときの飛程とそのストラグリングをFig.5に示す。但しRMはイオンの飛程に沿った全飛程でありXMは入射方向への投影飛程で、対応するストラグリングをDRM, DXMで示した。また、CイオンをNiに、HeイオンをNiに照射したときの損傷率分布と注入イオンの分布の結果をFig.6, 7に示す。D(X), F(X)で示した損傷率(dpa)および注入原子濃度(原子分率 at. ppm)はイオン粒子数で $1 \mu A/cm^2$ の強度で1h照射したときの値として示した。

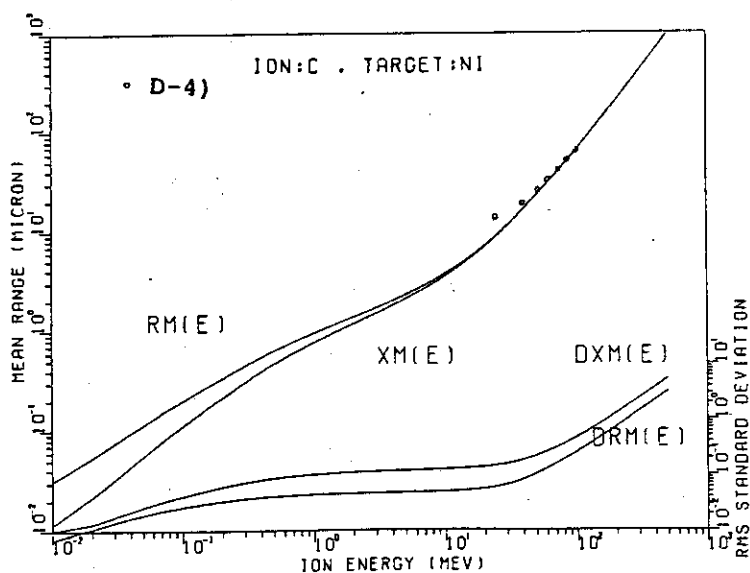


Fig. 5 CイオンのNi中での全飛程RMと投影飛程XM, および対応するストラグリングDRM, DXMのエネルギー依存, ○印は実験値. D-4)はFig.4参照

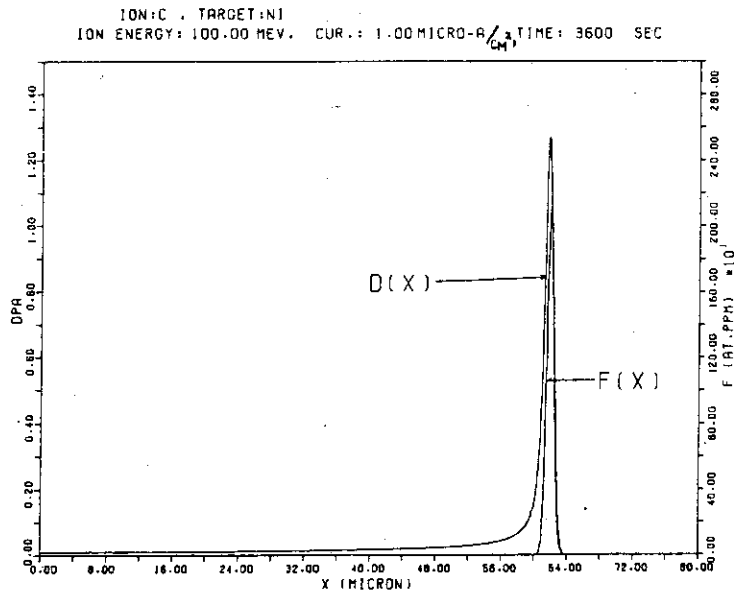


Fig. 6 100 MeV の C イオンを  $1 \text{ Particle} - \mu\text{A}/\text{cm}^2$  の強度で Ni に照射したときの 1h 当りの損傷率 (dpa) と停止イオンの原子濃度 (at.ppm) の深さ依存性

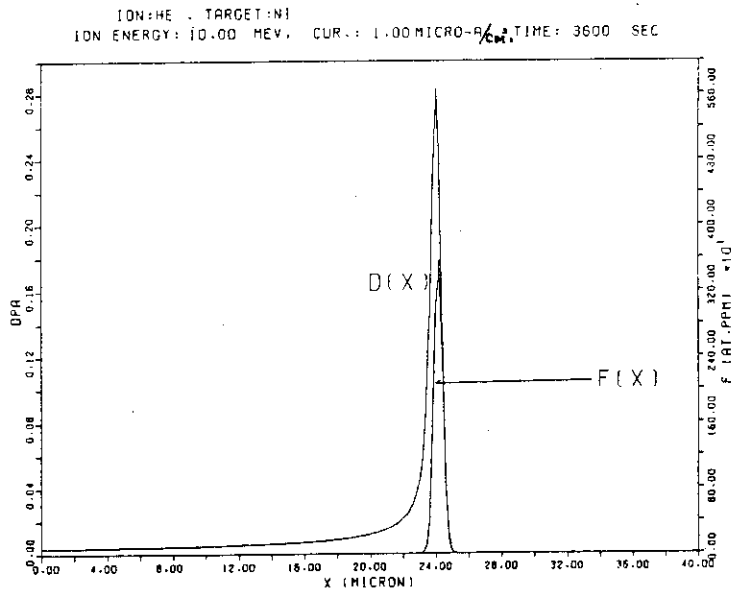


Fig. 7 10 MeV の  $^4\text{He}$  イオンを  $1 \text{ Particle} - \mu\text{A}/\text{cm}^2$  の強度で Ni に照射したときの 1h 当りの損傷率 (dpa) と停止イオンの原子濃度 (at.ppm) の深さ依存性

飛程を決めるエネルギー損失の評価とともに投影飛程とそのストラグリングの計算結果は、損傷分布との関連でE-DEP-1では重要な役割を占める。拡張したE-DEP-1コードによるストラグリングの計算値と実験値では余りよい一致が得られていない。10および20MeVのHeイオンを室温で照射したMoのヌープ硬さの深さ依存性<sup>10)</sup>を、拡張したE-DEP-1コードで計算した損傷率分布と比較してFig. 8に示す。室温照射したMoの硬さ分布は照射欠陥によるものと考えられるから、損傷分布と直接比較することができる。測定値のピークは両方のエネルギーで計算値より少し表面側にあるがよい対応を示しているが、エネルギーが高くなるとE-DEP-1のストラグリングは実測値よりかなり小さい。ストラグリングの計算値と実測値の不一致は、LSS理論での核的エネルギー損失を高エネルギーのラザフォード衝突まで外挿してストラグリングを計算している数値計算の誤差によるもののほかに、電子的エネルギー損失によるストラグリングを考慮していないことが考えられる。高エネルギー領域では、電子的エネルギー損失による投影飛程ストラグリングを無視することはできない<sup>11)</sup>(Fig. 9参照)。さらに飛程の分布についても、TRIM<sup>12)</sup>と比較した測定値<sup>13)</sup>で示されるように、単純なガウス分布より、Pearson<sup>14)</sup>分布などの高次モーメントをもつ非対称分布の方がよく合う。また、非対称飛程分布については、1回の衝突で電子的エネルギー損失の最大値より低いエネルギーまで核的エネルギー損失をおこす確率として近似的に求めている例もある<sup>15)</sup>(Fig. 10参照)。これは対数的な詳細な停止イオンの分布という意味で興味深い。高エネルギーイオンによる損傷率分布の評価との関係でリニアスケールでは停止分布はほぼガウス分布をしているとして、Kulcinskiの近似は充分使える。

Thomas-Fermiの原子モデルに基づく遮蔽ポテンシャルの遮蔽の効果は原子間距離の大きなところで小さいため、 $\epsilon$ (無次元化エネルギー)が $\sim 0.01$ 以下での核的エネルギー損失を過大評価する。<sup>16)</sup>この難点に対しMoliere型ポテンシャルの定数を変えたポテンシャル<sup>16)</sup>のほか、実験値によく合う形の核的エネルギー損失の式が出されている。<sup>17)</sup>

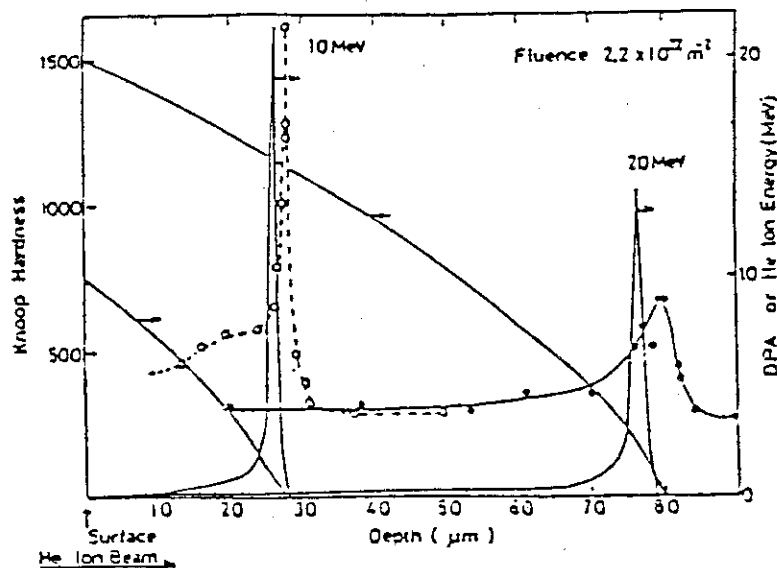


Fig. 8 10及び20MeVの<sup>4</sup>HeイオンによるMo試料のヌープ硬さ(測定点を含む実, 点線), dpa(ピークをもつ実線)及びイオンのエネルギー(実線)の試料深さ依存性。(ref. 10)

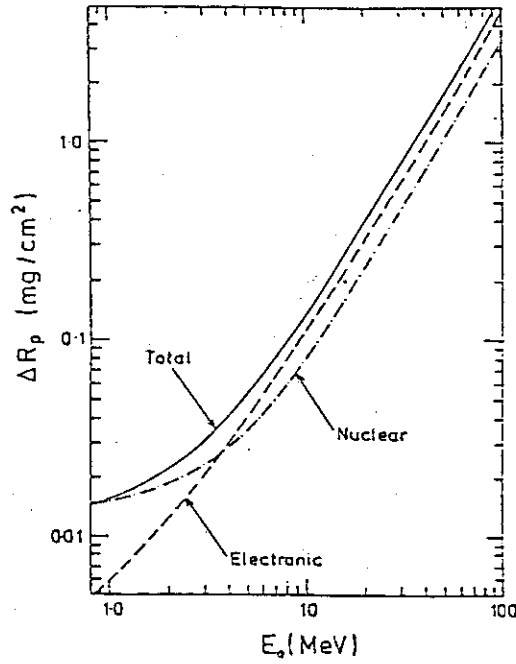


Fig. 9  $^4\text{He}$  イオンの C 中で投影線程のストラグリングのエネルギー依存性。  
 電子的及び核的エネルギー損失の寄与を示す。(ref. 11)

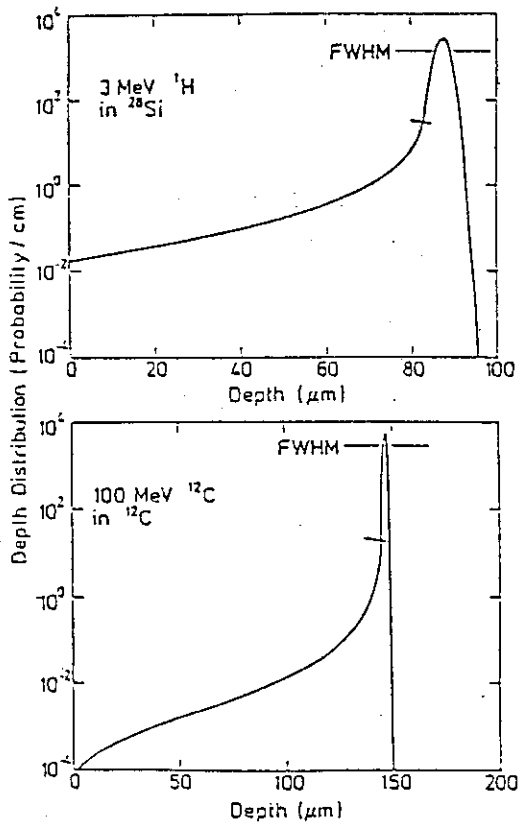


Fig. 10 Si 中の 3 MeV の H イオンおよび C 中の 100 MeV の  $^{12}\text{C}$  イオンの飛程分布。分布曲線上のスラッシュ印以下では核的エネルギー損失の寄与が大きく、分布曲線の半値巾 (fwhm) は殆ど電子的損失による。(ref. 15)

## 4. おわりに

イオン照射実験の解析に供する目的で、簡便さと汎用性に重点をおいて、E-DEP-1 コードを高エネルギー領域に拡張した。使用したエネルギー損失の公式の評価は今後蓄積される実測値と比較しながら進めるとともに、ストラグリングの値と損傷率の分布については、それらの物理的メカニズムを含む検討を加え、予測精度を向上させる必要がある。具体的なコードの作業は日立製作所日立研究所の仲田清智氏によるものである。記して謝意を表します。

## 参考文献

- 1) I. Manning and G.P. Mueller, *Comp. Phys. Comm.*, 7 (1974) 85.
- 2) D. Powers, et al., *Phys. Rev.* 165 (1968) 376.
- 3) W.K. Chu, et al., *Phys. Rev.* 175 (1968) 342.
- 4) M.D. Matthews, AERE-R9883 (1981).
- 5) 道家忠義, 応用物理, 49 (1970) 1080.
- 6) 北川盈雄, 応用物理, 52 (1983) 282.
- 7) J.F. Ziegler, "The stopping and Ranges of Ions in Matter", Vol.5, Pergamon Press (1977).
- 8) 杉山治男, 電子技術総合研究調査報告書第181号 (1974).
- 9) G.L. Kulcinski, et al., *Rad. Effects.* 7 (1971) 195.
- 10) 諸住正太郎, 科研費補助エネルギー特研(核融合)報告書, 1983.
- 11) N.E.B. Cowern, *Phys. Letters*, 82A (1981) 200.
- 12) J.P. Biersack and L.G. Haggmark, *Nucl. Instr. and Meth.* 174 (1980) 251.
- 13) D. Fink, et al., *Nucl. Instr. and Meth.* 194 (1982) 105.
- 14) A.F. Burenkov, et al., *Rad. Effects.* 66 (1982) 115.
- 15) N.E.B. Cowern, *Nucl. Instr. and Meth.* 194 (1982) 101.
- 16) W.D. Wilson, et al., *Phys. Rev. B*, 15 (1977) 2458.
- 17) J.F. Ziegler, *Appl. Phys. Letters.* 31 (1977) 544.



## 2. (コメント) 飛程、損傷エネルギー分布計算コード

東大. 工 (現. 東芝, 原子力技研) 福谷 耕司

我々のグループでは, 400 keV 重イオン加速器を用いた照射実験を行っているが, その場合の打込みイオン分布, 損傷分布を評価するために, LSS理論に基づく計算コードを, 従来より計算精度を向上させ整備したので報告する。

### (1) 計算のモデル

核的阻止能は LSS 理論の無次元パラメータで表わした。

$$S_n(\epsilon) = \frac{1}{\epsilon} \int_0^\epsilon f(t^{1/2}) dt^{1/2}$$

の式において, Winterbonらの近似式<sup>1)</sup>

$$f(t^{1/2}) = \lambda t^{1/6} [1 + (2\lambda t^{2/3})]^{-3/2}$$

$$\lambda = 1.309$$

を用いて解析的に求められた式

$$S_n(\epsilon) = \frac{9}{8} \frac{1}{\epsilon} \left[ \ln(A+B) - \frac{A}{B} \right]$$

$$A = (2\lambda)^{1/3} \epsilon^{4/9}, B = (1+A^2)^{1/2}$$

を用いた。電子的阻止能は, LSS理論による

$$S_e(\epsilon) = k_L \epsilon^{1/2}$$

を用いた。その他, 深さ方向の核的エネルギー損失と, はじき出し損傷率は EDEP-1コード<sup>2)</sup>と同様の近似式を用いた。数値計算は24点 Gauss 積分, スプライン補間法を用いて行った。

### (2) 他の計算コードとの比較

計算結果を, Winterbon<sup>3)</sup>と Brice<sup>4)</sup>の表, および TRIMコード<sup>5)</sup>と比較する。

表1は600 keVの炭素イオンがニッケルに入射した場合の  $R$ ,  $R_p$ ,  $\Delta R_p$  を示す。本計算の  $\Delta R_p$  は他よりやや小さくなっている。図1は, Briceの表<sup>4)</sup>と損傷エネルギー分布について比較したものである。本計算が非常に簡単なものにもかかわらず, 数%の範囲で一致している。両者の違いは,  $S_e(\epsilon)$ のモデル,  $R_p$ ,  $\Delta R_p$ の差によって起こるものと考えられる。

### (3) 計算結果とマイクロ組織変化との比較

図2は400 keV  $Ar^+$  イオンを  $1 \times 10^{17} / \text{cm}^2$  照射した試料 (Ni) を Sectioning 法で内部組織の断面を示したものである。照射によって欠陥ループが表面からある一定の深さのところに層状に形成している。写真ではループは表面から300~450 nm 付近に見られるが, 計算では  $R = 193.42$ ,  $R_p = 147.29$ ,  $\Delta R_p = 43.08$  (nm) となり大きな差を見せている。これは格子間原子の奥方向への拡散, カスケード損傷における空孔と格子間原子の分布のちがひ, 照射によ

---

Comment on the Computer Code for Calculating Ion Range and Energy Deposition Distribution. Koji Fukuya, Faculty of Engineering, University of Tokyo.

る応力の効果等が考えられるが、阻止能の妥当性についても検討する必要がある。

参考文献

- 1) K.B. Winterbon, P. Sigmunt and J.B. Sanders; Kgl. Danske. Vidensk. Selsk. Mat-fys. Medd., 37 (1970), No.14.
- 2) I. Manning and G.P. Mueller; Comp. Phys. Commun., 7 (1974) 85.
- 3) K.B. Winterbon; Ion Implantation Range and Energy Deposition Distribution, Vol.2 (Plenum, New York, 1975).
- 4) D.K. Brice; *ibid*, Vol. 1.
- 5) J.P. Biersack and L.G. Haggmark; Nucl. Inst. Meth., 174 (1980) 257.

Table 1 飛程, 投影飛程, ストラグリングの比較

	R ( $\mu\text{m}$ )	R <sub>p</sub> ( $\mu\text{m}$ )	$\Delta R_p$ ( $\mu\text{m}$ )
Winterbon	-	0.5423	0.1082
Brice	0.6943	0.5249	0.1167
TRIM	0.7255	0.5587	0.1046
This calculation	0.7150	0.5485	0.0920

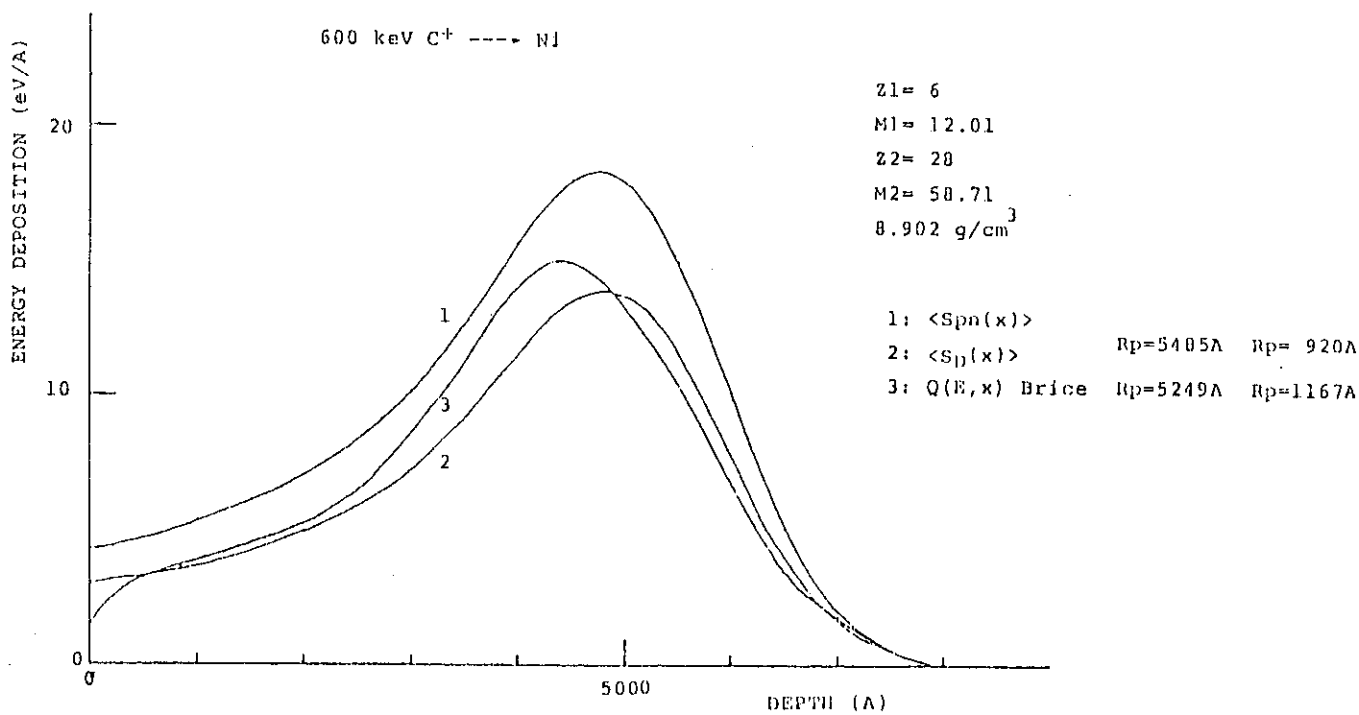
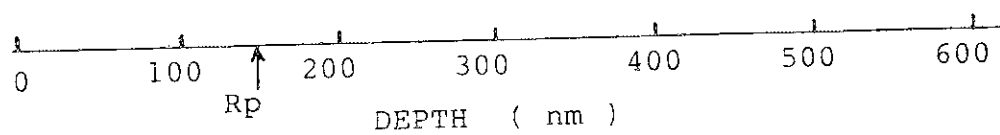
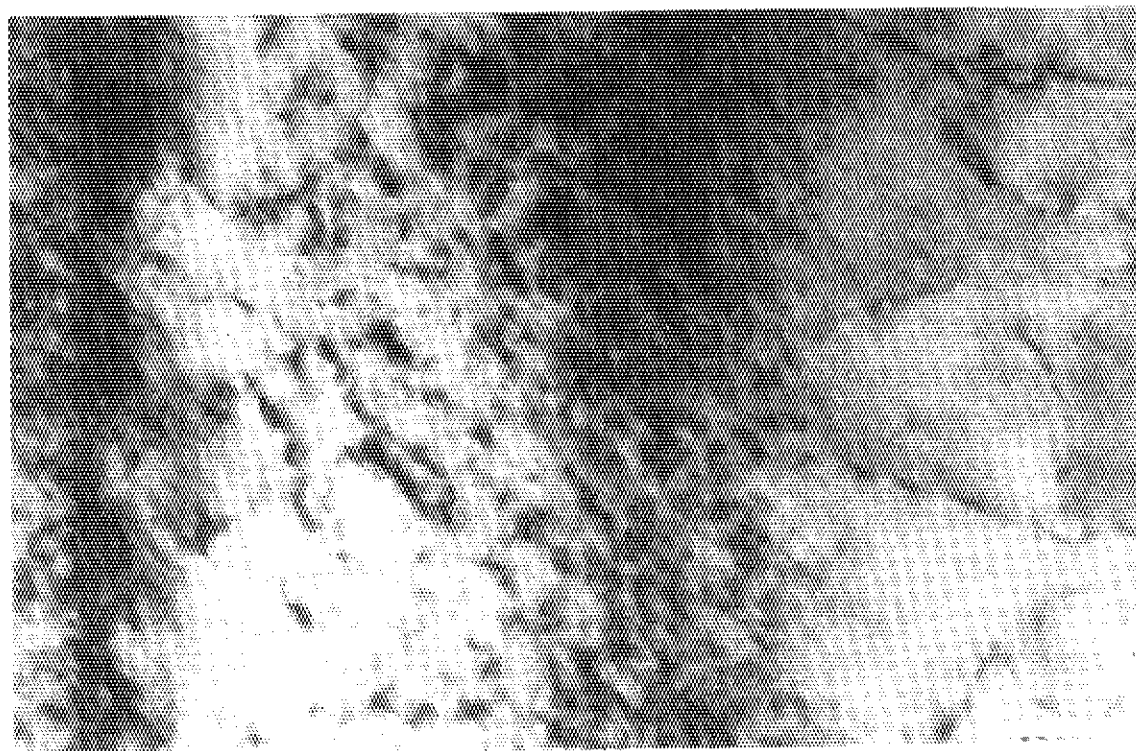


Fig. 1 損傷エネルギー分布の比較



400 keV Ar<sup>+</sup> → Ni ( Room Temperature )  
 $1 \times 10^{17}$  /cm<sup>2</sup> ( 116 dpa at peak )  
 Calculation

R = 193.42 nm  
 Rp = 147.29 nm  
 $\Delta R_p = 43.08$  nm

Fig. 2 イオン照射による組織変化の断面

### 3. 水素同位体リサイクリング特性と照射損傷

原 研 曾根 和穂

#### 1. はじめに

プラズマの臨界条件の達成を目ざすJT-60級の大型トカマクでは長パルス運転(数sec放電)を予定しているため、第二段加熱として中性粒子入射加熱を用いるとプラズマの粒子密度が増加し、何らかの方策を講じないと安定な放電を維持できなくなることが予想される。また次期核融合実験炉では、燃料粒子としてのトリチウムが炉壁を透過したり、炉壁材料内部に捕捉されてインベントリーを増加させることなどが考えられる。

このような問題はプラズマと壁との相互作用のうち特に壁材料内でのプラズマ粒子のリサイクリング特性に関連している。ここでリサイクリング特性とは、壁へ入射したプラズマ粒子の行方に関係する反射・捕捉・透過・脱離(熱または粒子衝撃によるもの)・表面化学反応などのすべての特性を意味する。これらの特性のうち、拡散・捕捉・透過などは粒子が通過する材料の表面や内部の損傷の程度に深くかかわっている。ここではいくつかの計算や実験の例を挙げて表面からの粒子の再放出率におよぼす損傷の効果について述べる。

#### 2. 拡散モデルで説明できる再放出率

ここに1つの計算例を示す。<sup>1)</sup> Fig.1は壁(材料はモリブデンおよび炭化チタン)にイオン温度500 eVの水素プラズマが、フラックス $1 \times 10^{16}$  H/cm<sup>2</sup>secで入射するとして、入射パルス時間10 sec, 休み時間10 minのサイクルを10回まで繰り返した時の水素の再放出率を時間の関数として計算したものである。壁の温度は初め60°Cで10 min間につき13°Cの上昇を仮定している。この計算結果は、水素の再放出が拡散で完全に律速されているとして、水素の濃度についての一次元の拡散方程式

$$\frac{\partial C(x, t)}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + G(x) \quad (1)$$

を解くことによって得られたものである。ここで

D : 壁材料内での水素の拡散係数

C(x, t) : 表面よりの深さにおける時刻tでの水素濃度

G(x) : 水素の発生項

であり、また再放出率 $= (-D \frac{\partial C}{\partial x} \Big|_{x=0}) + (\text{反射係数}) + (\text{飽和濃度を越えてあふれる割合})$ で計算したものである。G(x)は

---

Hydrogen Isotope Recycling Problems in Relation to Radiation Damage at Wall Surfaces in Tokamaks, Kazuho Sone, JAERI

$$G(x) = \int_0^{\pi/2} d\theta \int_0^{\infty} dE \sin 2\theta f(E) \rho_0(x, E, \theta) \quad (2)$$

で与えられ、この  $f(E)$  にはマックスウェル分布を与えている。また入射エネルギー  $E$ 、入射角  $\theta$  のときの反射係数を  $B(E, \theta)$  として(2)式の粒子の飛程分布をガウス分布

$$\rho_0(x, E, \theta) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{J_0 [1 - B(E, \theta)]}{4R_p [1 + \operatorname{erf}(\epsilon_0)]} \times \exp \left\{ -\frac{(x - R_p \cos \theta)^2}{2 \cdot 4R_p^2} \right\}, \quad \epsilon_0 = \frac{R_p \cos \theta}{\sqrt{2} \cdot 4R_p} \quad (3)$$

で近似している。ここで

$J_0$  : 壁への粒子入射フラックス

$R_p(E)$  : エネルギー  $E$  の粒子の飛程

$4R_p(E)$  : エネルギー  $E$  の粒子の飛程ストラグリング

である。

さて問題はこの方程式を解くにあたっての拡散係数の値のとり方である。プラズマ粒子照射によって表面層には粒子を捕捉する損傷がつくられる。こうして表面への粒子拡散は実効的に、通常の損傷がない場合に比べて  $\sim 1/100$  程度に減少するといわれている。<sup>2,3)</sup> Fig.1 に示したものは各壁材料について左側が損傷ありと考えた場合の拡散係数を用い、右側はその100倍の値を与えた時の結果である。損傷ありとした場合の拡散係数 ( $\text{cm}^2/\text{sec}$ ) はモリブデンに対しては

$$D(T) = 2 \times 10^{-4} \exp(-1.47 \times 10^4 / RT) \quad (4)$$

TiC に対しては

$$D(T) = 6.56 \times 10^{-13} \exp(-3.053 \times 10^3 / RT) \quad (5)$$

を用いている。RT の単位は  $\text{cal/mol}$  である。これからわかることは、再放出率の変化の様子がこの拡散係数の与え方によって大きく異なってくるということである。モリブデンの場合、損傷がない時には再放出率は1パルス目の終了時にはすでに95%にも達してしまう。またパルス終了時からの減衰の仕方も速い。これに対して損傷がある場合には8パルス目で初めて95%を越える。TiC の場合はMo に比べて拡散係数が3~4桁小さいので、損傷なしの場合でも再放出率が95%に達するには10パルス程度は必要である。これに対して損傷がある場合には、8パルス目位までは飽和濃度を越えて急激に再放出する粒子が見られるが、これを考慮に入れてもせいぜい80%以下に抑えられている。また9パルス以降は壁温が上昇してくるため、水素粒子が動きやすくなり、濃度飽和によるあふれ出し再放出は見られなくなる。

このような壁表面層での粒子のリサイクリングは、放電中にプラズマ粒子のポンピング作用を壁がある程度果すことが予想され、プラズマの密度制御においても十分に考慮に入れなければならないことである。

上の計算例においては、損傷の効果を単に拡散係数  $D$  の減少という形でおきかえたが、Wilson らは照射損傷による水素捕捉点の生成を考慮した拡散方程式を用いることを試みている。<sup>4,5)</sup> これによれば、

$$\frac{\partial C(x, t)}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + G(x) - \frac{\partial C_T}{\partial t} \quad (6)$$

$$\frac{\partial C_T}{\partial t} = \frac{D \cdot C \cdot C_T^e}{\lambda^2} - C_T \nu_0 \exp\left(-\frac{E_T}{RT}\right) \quad (7)$$

$$NC_T^e = NC_T^o - C_T / N_T \quad (8)$$

という方程式をベースにしている。ここで

- C : 動きうる水素の濃度
- $C_T$  : 捕捉された水素の濃度
- $NC_T^e$  : 空の捕捉点の濃度
- $NC_T^o$  : 全捕捉点の濃度
- $\lambda$  : 捕捉水素のジャンプ長
- $\nu_0$  : 水素が熱脱離によって捕捉点から脱出する頻度 ( $=10^{13}/\text{sec}$ )
- $N_T$  : 1個の捕捉点が捕捉しうる水素原子の数
- N : 壁材料の単位体積中の原子数密度

である。(7)式右辺の第1項は捕捉水素の生成速度、第2項は捕捉水素の熱脱離速度である。これらの方程式(6)~(8)においては、照射損傷による捕捉点の生成速度、消滅速度のバランスは陽には表現されていないが、1~10 keV  $D^+$  であらかじめたたいた316ステンレス鋼での熱脱離や304LNステンレス鋼での10 keV  $D^+$ ,  $D_3^+$ の再放出率の測定曲線を上記のモデルによる曲線と対応させ拡散係数 ( $\text{cm}^2/\text{sec}$ ) について、316ステンレス鋼に対して

$$D = 0.12 \exp(-0.61/kT)$$

304LNステンレス鋼に対して

$$D = 0.002 \exp(-0.535/kT)$$

なる値を得ている。ここで  $kT$  は eV の単位としている。これらの値は  $300^\circ\text{C}$  以下の温度領域で測定した通常の損傷なしの場合の値と大方合致する。

こうして得られた値を用いて、入射エネルギー 200 eV (マックスウェル分布)、フラックス  $2 \times 10^{16} \text{ H}/\text{cm}^2 \text{ sec}$ 、1 sec 放電、300 sec 休みを周期的に繰り返した時の定常的な再放出曲線を計算したのが Fig. 2 である<sup>5)</sup>。このように壁はトカマク放電中に壁をたたく水素同位体を捕捉する役割をするので、照射損傷が水素のリサイクルングにとって非常に重要なパラメータであることがわかる。

### 3. 拡散モデルで説明できない再放出率

水素の拡散係数が  $D \leq 10^{-15} \text{ cm}^2/\text{sec}$  のように非常に小さい場合(たとえば数  $100^\circ\text{C}$  以下の炭素材料や炭化物材料など)には、拡散で表面へ達する速度が小さいため、再放出曲線は拡散モデルでは説明できない。Fig. 1 の TiC の場合ですで見たとおり、壁の温度が比較的低い時にはある照射量(たとえば1パルス目では  $7.5 \times 10^{16} \text{ H}/\text{cm}^2$  付近)で再放出率が急に立ち上がるような現象が計算で予測されている。これはすでに述べたように、壁をたたく水素粒子が飽和濃度を越えて表面へ出て来るという仮定にもとづくものである。炭素材料などでは、重水素原子の再放出が照射による捕捉点の生成速度および消滅速度のバランスだけでよく説明できることが報告されている<sup>6,7)</sup>。これは時刻  $t$ 、深さ  $x$  での捕捉点の濃度  $n(x, t)$  に関して

$$\frac{dn(x,t)}{dt} = J_0(1-B)Af_D(x) - J_0(1-B)\sigma n \quad (9)$$

という方程式を基礎にしている。ここで

A : 1個の粒子が作る捕捉点の数

$\sigma$  : 捕捉点の消滅断面積

$f_D(x)$  : 損傷の深さ x 方向の分布関数。 $f_D(x)$ は x について規格化されている。

$$\int_0^{\infty} f_D(x) dx = 1.$$

(9)式の境界条件を  $n(x, 0) = N_1$ ,  $n(x, \infty) = N_{SAT}$  とすれば,  $\sigma = Af_D(x)/N_{SAT}$  となる。ここで  $N_{SAT}$  は捕捉点の飽和濃度である。照射量  $F = J_0 t$  を用いて(9)式の解を書き直すと

$$n(x, F) = (N_1 - N_{SAT}) \exp \{-A(1-B)Ff_D(x)/N_{SAT}\} + N_{SAT} \quad (10)$$

となる。照射量が少ない間は, 入射粒子数は生成された捕捉点の数より少ないので, 反射される割合 B を除いてすべて捕捉されてしまう。しかし照射量の増加と共に, 捕捉点が次第に入射重水素原子で埋まっていき, また一度生成された捕捉点も消滅していく割合が増す。したがって照射量の増大と共に  $F - \int_0^{\infty} n(x, F) dx$  だけの数の重水素が再放出される。したがって F における再放出率  $R(F)$  は, これを F で微分して

$$R(F) = 1 - A(1 - N_1/N_{SAT})(1 - B) \times \int_0^{\infty} f_D(x) \exp \{-A(1-B)Ff_D(x)/N_{SAT}\} dx \quad (11)$$

(11)式に現われる  $f_D(x)$  の計算に E-DEP-1 コード<sup>8)</sup> と内容がほぼ同じイオン照射損傷コード<sup>9)</sup> を用いることによって  $R(F)$  を計算した例 Fig.3 に示す。この計算の場合には, 照射損傷の項が  $f_D(x)$  という形で陽に入ってくる。これからわかるように, 炭素材料での再放出率には照射損傷が重要な役割を果たしている。

#### 4. まとめ

ここでは水素同位体リサイクリング特性のうち, 特にトカマク放電で重要な壁材料表面からの再放出率に注目した。ステンレス鋼, モリブデンなどのように使用温度での拡散係数が比較的大きい壁材料では再放出率を拡散モデルで説明できる。他方, 同じ温度で炭素材料では拡散係数が小さく, 拡散が支配的にならず捕捉飽和濃度を越えてのあふれ出しが再放出を支配するようになる。また TiC のように拡散係数が両者の中間に位置するものは, 両方の効果を考慮しなければならない。いずれの場合も照射損傷による捕捉点の生成が重要な役割を果たす。



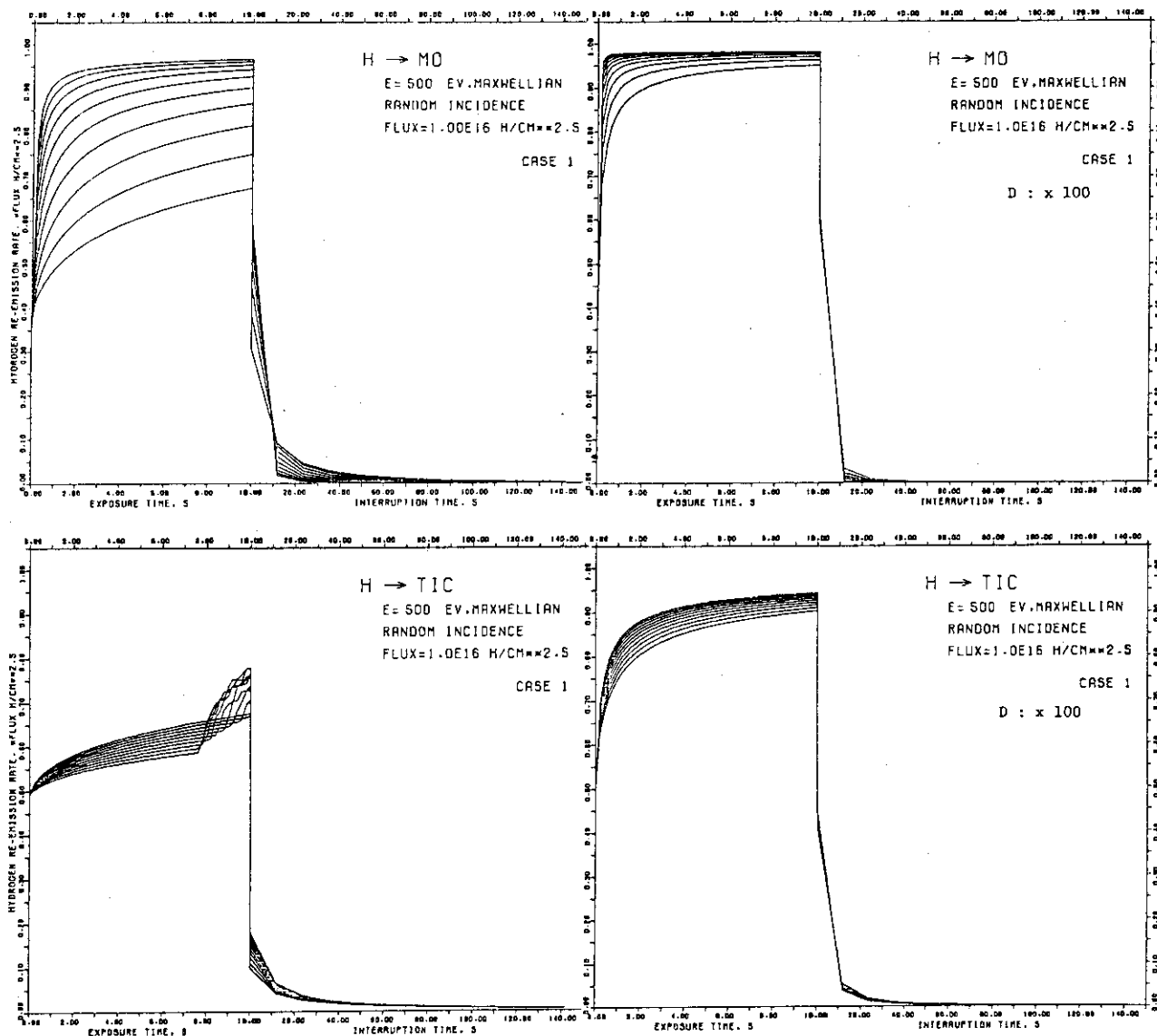


Fig.1 Variations of re-emission rates of hydrogen atoms with cyclic exposures ( 10 sec discharge, 10 min interruption) to a hydrogen plasma calculated as a function of time by eqs.(1)-(5). The wall materials are molybdenum ( top ) and titanium carbide ( bottom ). The picture on the right in each material shows the case when the diffusion constant is assumed to be 100 times that of the one on the left. "Case 1" means the temperature rise of the wall with time by 13°C/600 sec. ( Ref.1 )

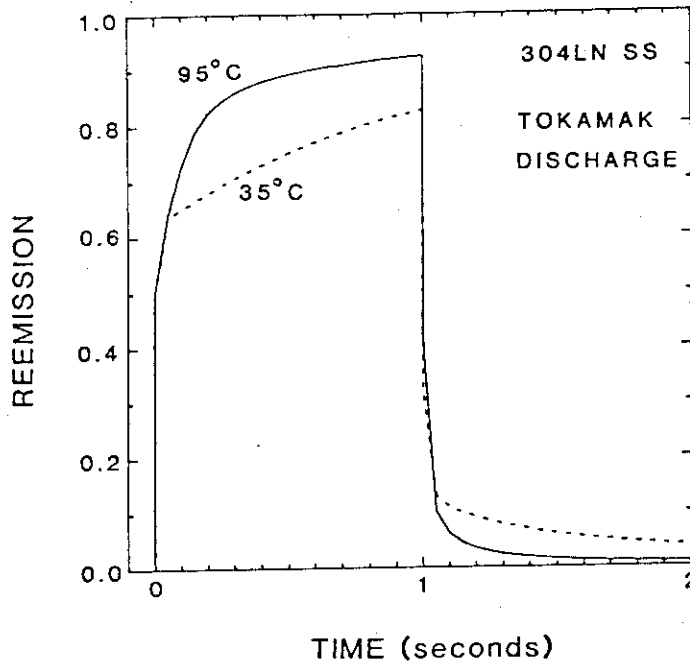


Fig.2 Steady-state fractional re-emission of deuterium atoms from a 304LN stainless steel at 35°C and 95°C for cyclic exposures ( 1 sec discharge, 5 min interruption ) to a hydrogen plasma with edge temperature of 200 eV and deuteron flux of  $2 \times 10^{16} \text{D/cm}^2 \text{sec}$ . These results are calculated by eqs.(6)-(8) using parameters obtained by fitting the model to the measured re-emission. ( Ref.5 )

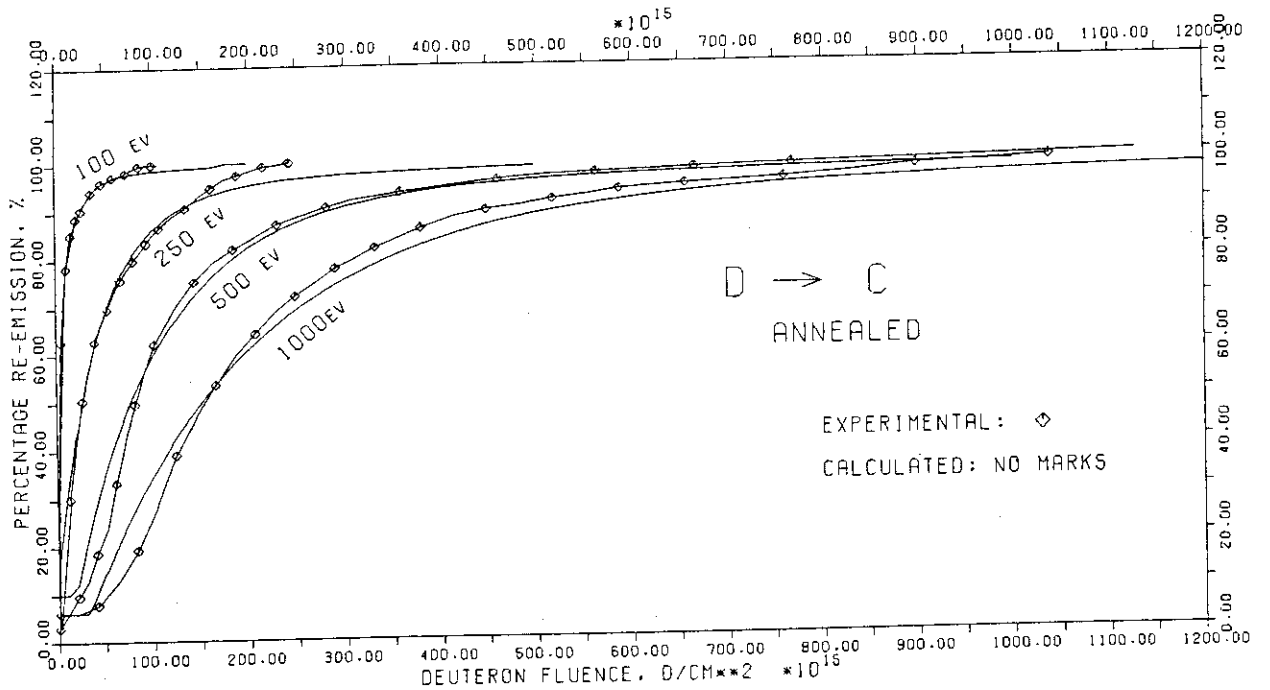


Fig.3 Percentage re-emission as a function of fluence calculated by damage build-up model, eq.(9)-(11). The experimental data are also plotted. ( Ref.7 )

References

- 1) Sone, K., Yamada, R. and Murakami : Y., JAERI-M Report (to be published).
- 2) Erents, K. and McCracken, G.M. : Radiat. Effects, 3 (1970) 123.
- 3) Tanabe, T., Saito, N., Etoh, Y. and Imoto, S. : J. Nucl. Mater., 103/104 (1981) 483.
- 4) Wilson, K.L. and Baskes, M.I. : *ibid.*, 76/77 (1978) 291.
- 5) Wilson, K.L. and Baskes, M.I. : *ibid.*, 111/112 (1982) 622.
- 6) Erents, S.K. and Hotston, E.S. : Nucl. Instrum. Methods, 170 (1980) 449.
- 7) Sone, K. and McCracken, G.M. : J. Nucl. Mater., 111/112 (1982) 606.
- 8) Manning, I. and Mueller, P. : Comp. Phys. Comm., 7 (1974) 85.
- 9) Sone, K. and Shiraishi, K. : JAERI-M 6094 (1975).

## 4. イオン照射における損傷及び注入イオンの深さ分布

東芝原子力技術研究所 寺澤 倫孝

### 1. はじめに

イオン注入及びイオンによる中性子照射効果のシミュレーションなど、固体へのイオン衝撃に関連した応用技術が進むに従って固体中でのイオン飛程、ストラグリング及び照射損傷の深さ分布の詳細な情報が要求されるようになった。現在この要求に十分応じられる状況ではないが、関連する基礎データの取得が進められており、一方理論モデルに基づく各種の計算法も研究されている。それらの研究対象はイオン種、ターゲット種の組合せも多くエネルギーも10keV以下から数10MeVに広がっているため統一的に実験データを通覧することはきわめて困難である。

この調査研究は現在までに公表されたイオン照射による損傷（ボイドスエリング及び点欠陥または欠陥クラスター）の深さ分布及び飛程の実験データを収集し、理論計算との比較を行うことを目的として実施した。飛程については古くから研究が行われているが、新しい実験データの収集を主眼として1975年以降の文献資料を中心に調査した。イオン照射損傷の理論計算には現在E-DEP-1コードが広汎に利用されている。他にBriceの方法、Winterbonの方法あるいはモンテカルロ計算による方法などがあるが、E-DEP-1は複雑な計算を必要とせず利用しやすいため、パラメータサーベイ実験の予備検討などに有用である。本調査では理論計算にはE-DEP-1を採用して実験データとの比較を行なった。

### 2. E-DEP-1による理論計算

E-DEP-1による理論計算は、はじめKulcinskiらにより提案され、Manning and Muellerにより改良されてFORTRANコンピュータコードにまとめられた<sup>1)</sup>このコードはイオンビームが非結晶性のターゲット物質中で停止するまでにターゲット原子に弾性散乱衝突を通して与えるエネルギーの分布を計算するコードである。この計算はKulcinskiの近似、即ちターゲット原子に与えるエネルギーのゆらぎは飛程のストラグリングに対応しているとする考えに基づいている。平均飛程及びストラグリングはLSS理論により求めるようになっておりLSS理論はこの計算の基本である。<sup>2)</sup>またLindhardの分配則を使って損傷をつくらぬ非弾性過程で失なわれるエネルギーは損傷形成エネルギーから除外している。

E-DEP-1コードではLSS理論によっているため、同理論の適用と同じ制限条件がある。まざイオンビームエネルギー $E_B$ の高エネルギー側に対しては式(1)で限定される。

$$E_B \leq E_{LIM} \quad (1)$$

$$E_{LIM} \text{ (MeV)} = 0.024801 A_1 Z_1^{4/3}$$

---

Depth Distribution of Radiation Damage and Implanted Ions by Ion-irradiation into Matters. Mititaka Terasawa, Toshiba Nuclear Engineering Lab.

これはイオンビームの電子的阻止能に対するLSS理論の仮定から決められる。即ち同理論では電子的阻止能 $Se$ は

$$Se = \left( -\frac{d\rho}{d\varepsilon} \right)_e = k_{LSS} \varepsilon^{1/2} \quad (2)$$

$$k_{LSS} = \xi_e \frac{0.0793 Z_1^{1/2} Z_2^{1/2} (A_1 + A_2)^{3/2}}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/4} A_1^{3/2} A_2^{1/2}} \quad (3)$$

$$\xi_e \approx Z_1^{1/6}$$

で示される。ここで $Z_1, A_1$ はイオンビームの、また $Z_2, A_2$ はターゲット原子のそれぞれ原子番号、質量数である。 $\varepsilon, \rho$ は無次元化されたイオンエネルギー及びイオン入射方向の長さである。

E-DEP-1コードでは一次ノックオン原子(PKA)自身が十分なエネルギーを持ち原子変位カスケードをつくることを仮定して、

$$E_B \gg 0.28 \frac{A_1^{1/2} A_2^{1/2}}{A_1 + A_2} E_L \quad (4)$$

$$E_L (\text{keV}) = 0.0307358 Z_1 Z_2 Z^{1/3} (A_1 + A_2) / A_2$$

$$Z = (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}$$

図1に式(1)及び式(4)によって決まるE-DEP-1の適用エネルギー範囲をSi(14), Ni(28), Mo(42), Au(79)(カッコ内は原子番号)をターゲットとした場合について $Z_1$ の関数として図示した。上限のエネルギーを与える条件はターゲット原子によらない。図からわかるようにイオンエネルギーが電子的阻止能で決められる上限値に及ぶことは重イオンではほとんどない。一方陽子ヘリウムなどでは数100keV程度が適用の限界であり、高エネルギーの軽イオン照射には修正が必要となる。高エネルギー側に拡張した電子的阻止能はZieglerあるいはNorthcliffe and Schillingにより実験データをベースとして求められ図表化されている。<sup>3) 4)</sup>またBriceは実験データから3パラメータ近似式と呼ばれる電子的阻止能の計算式を導いている。<sup>5)</sup>このエネルギー領域はいわゆるBethe-Bloch-Bohrの領域へ移行する中間領域で阻止能は最大値を持ち、その後 $E^{-1}$ に比例して緩やかに減少する。図2に電子的阻止能のエネルギー依存性の一例を $Al^+ \rightarrow Ni$ についてそれぞれの方法で求めた結果を示す。LSS理論の計算では式(2)の $k_{LSS}$ の代りに

$$k = \nu k_{LSS}, \quad \nu = k / k_{LSS} \quad (5)$$

で置き換えた電子的阻止能

$$S_e = k \varepsilon^{1/2} \quad (6)$$

も付記した。図中の $k/k_{LSS}$ (= $\nu$ )はLSS理論からの偏差を示し、 $\nu = 1.0$ がLSS理論自身によるものである。 $E_{LIM}$ 前後を境界に高エネルギーではLSS理論値が実験データより求められた値からずれることがわかる。低エネルギー領域でも実験データから求められた電子的阻止能はLSS理論からかなりずれる場合があり、しかもエネルギーによっても変動する。電子的阻止能はイオン又はターゲット原子の原子番号により振動することが知られているが、 $k_{LSS}$ にはそれが考慮されていないので、実験データ評価の際注意を要する。

E-DEP-1コードによる計算も電子的阻止能の入力をLSS理論によらず、例えばBriceの3

パラメータ近似による計算式を使って部分的に修正して使うことも可能である。

図3は4 MeV Ni<sup>+</sup>→Niにおける損傷曲線をE-DEP-1コード及びBriceコードによる計算

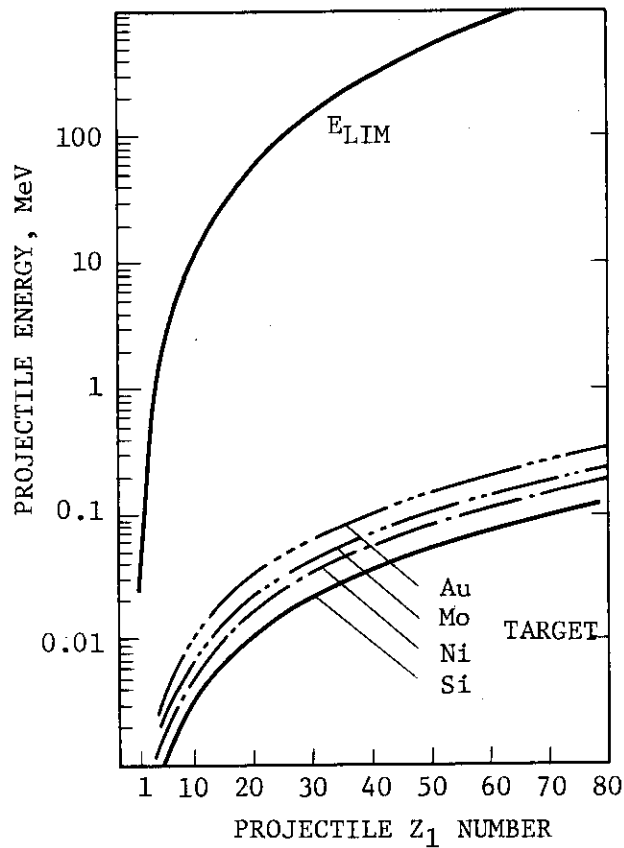


図1 E-DEP-1コードの入射イオンエネルギー範囲  
Al on Nickel

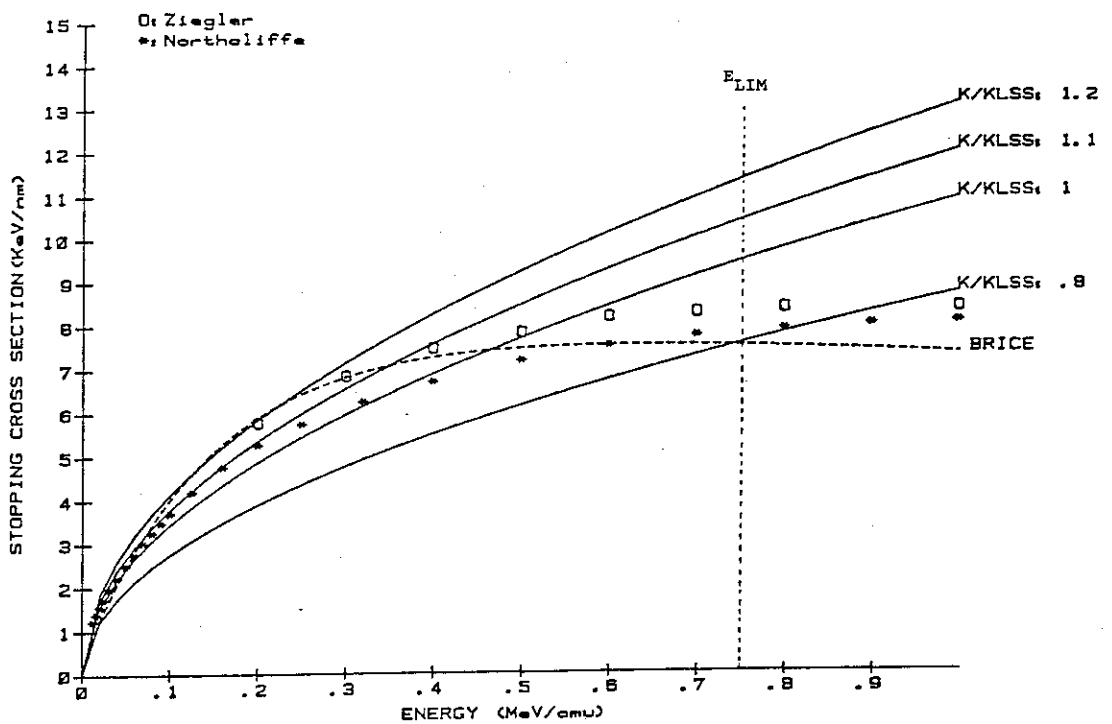


図2 Al<sup>+</sup>→Niにおける電子的阻止能のLS理論とBrice, Northcliffe and Schilling, Zieglerによる数値との比較

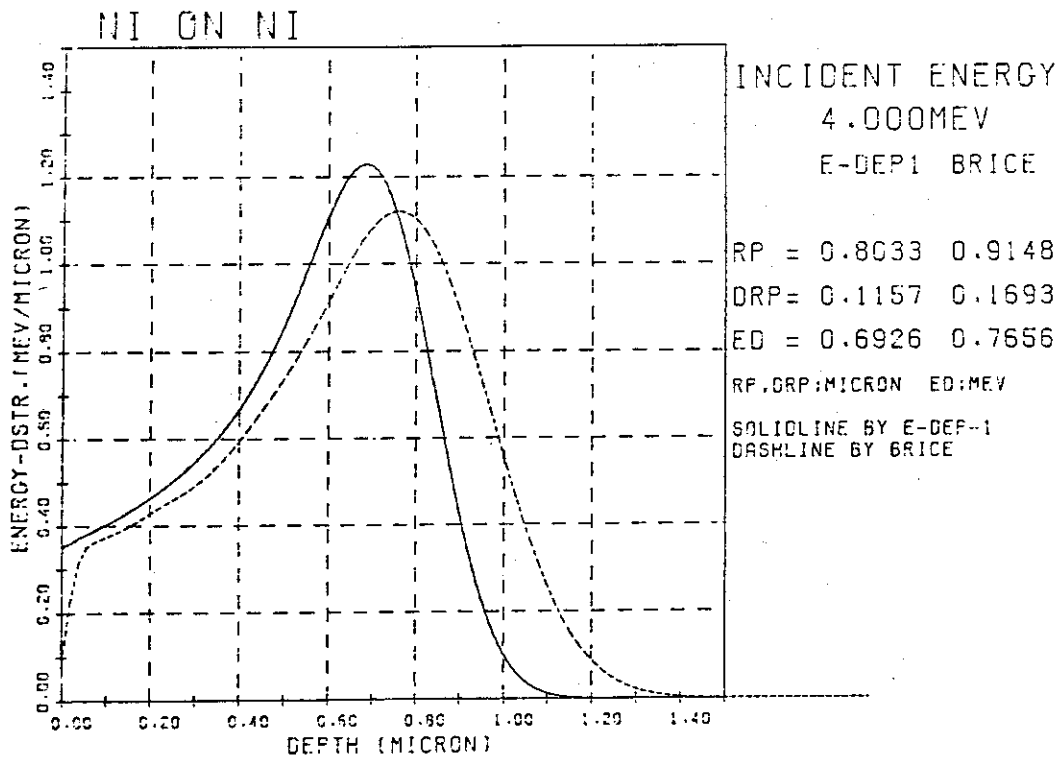


図3 4 MeV Ni<sup>+</sup>→Niにおける損傷曲線. E-DEP-1  
及び Brice コードによる計算の比較

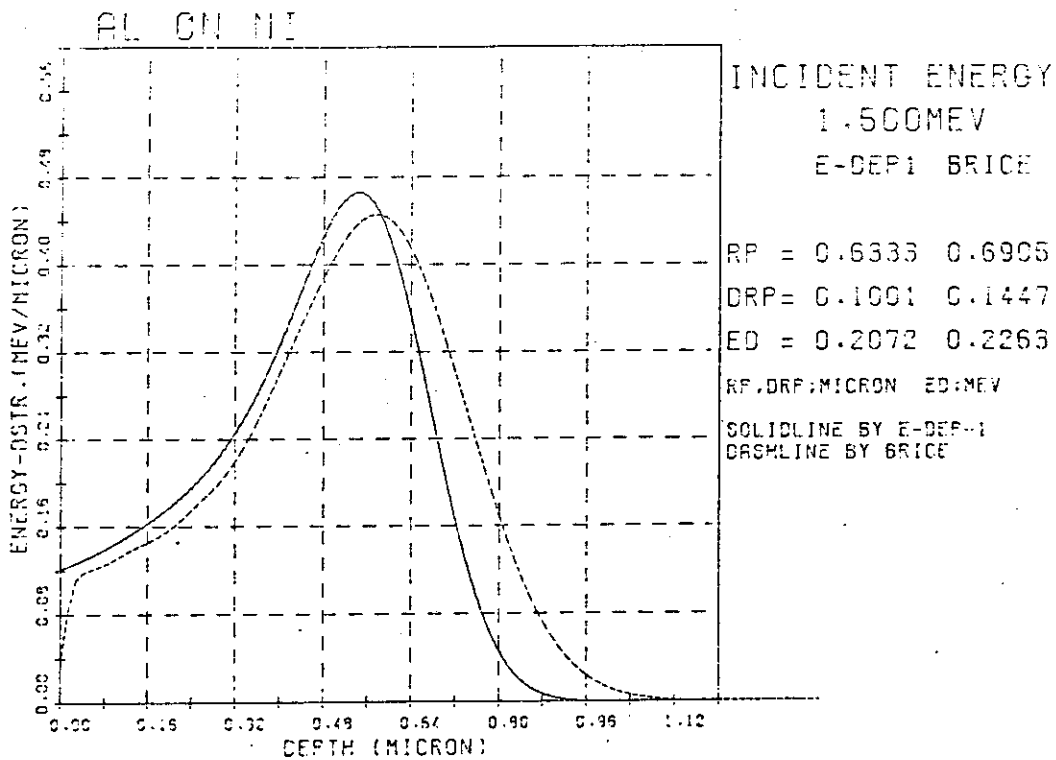


図4 1.5 MeV Al<sup>+</sup>→Niにおける損傷曲線. E-DEP-1  
及び Brice コードによる計算の比較

により求めた結果である。図中のRPは投影飛程, DRPはストラグリング, EDは原子変位損傷に分配される総エネルギーである。E-DEP-1の方が飛程が短かく損傷ピーク深さも若干浅くなっている。図4は同じく  $1.5\text{MeV Al}^+ \rightarrow \text{Ni}$  における損傷曲線を求めた結果である。一般に入射イオンのエネルギーが高くなるに従い E-DEP-1 コードによる飛程及び損傷ピーク位置は Brice コードに比べ深くなる傾向が認められる。

### 3. ボイドスエリングの分布

ボイドスエリングあるいはボイド密度のイオン照射深さ方向の分布に関する実験研究を調査し、21例の実験データ(文献数18編)を収集した。スエリングはイオンの照射によってできた点欠陥が高温下で拡散し、点欠陥同志の相互作用あるいは点欠陥の固溶原子、転位、析出などの相互作用を繰り返した結果として生じる損傷であるため、原子変位損傷分布を示す E-DEP-1 の損傷曲線と直接比較することはできないが、両者の比較はスエリング損傷のメカニズム解明に有効であるとともにスエリング実験の設計にも有益な情報を提供する。

実験データ及び E-DEP-1 との比較結果を概括すると

- (1) ボイドスエリングの最大値を示す深さ(ピーク深さ)は E-DEP-1 の損傷曲線のピーク深さより深くなっている例が多い。逆の結果を示す例もあるが少ない。
- (2) 単位付与エネルギー(Deposited Energy)あたりのスエリング [% / (MeV /  $\mu\text{m}$ )] は表面近傍でピーク付近に比べ高くなっているデータがあるが、逆の傾向を示すデータもあり、表面効果に関して一定の結論を得ることはできない。
- (3) E-DEP-1 損傷曲線のピーク前後の損傷幅は実験値に比べ一般に狭い。
- (4) スエリングの値よりもボイド密度の方が E-DEP-1 曲線に一致する分布を示す場合がある。

スエリングの多くの実験は照射イオンエネルギーは  $10\text{keV}/\text{amu}$  以上で電子的エネルギー損失が飛程及び損傷エネルギー付与の深さを決めるのに支配的な領域である。LSS理論では前述した通り、電子的阻止能はエネルギーの平方根に比例し比例係数は  $k_{\text{LSS}}$  で記される。ここではスエリングの深さ分布の実験データと E-DEP-1 の差異を考慮して、前者のピーク深さに理論損傷曲線を一致させる比例係数  $k (= \nu k_{\text{LSS}})$  を求めた。 $\nu < 1$  であれば電子的阻止能は LSS理論より小さくなり、損傷領域及びピーク深さははじめの LSS理論( $\nu = 1.0$ )による計算に比べ深い方向へ移行することになり、 $\nu > 1$  の場合はその逆となる。

図5は  $8.1\text{MeV Al}^+ \rightarrow \text{Ni}$  におけるボイドの実験データと E-DEP-1 の計算により得られた損傷曲線を示す。理論曲線は  $\nu = 0.5$  から  $\nu = 1.5$  まで  $0.1$  間隔で計算したそれぞれの曲線である。 $\nu = 1.0$  は LSS理論により与えられる曲線である。図5の例では  $\nu = 0.9$  付近でピーク深さが一致する。 $14\text{MeV Ni}^+ \rightarrow \text{Ni}$ ,  $19\text{MeV Cu}^+ \rightarrow \text{Ni}$  でも  $\nu = 0.9$  が得られる。 $5\text{MeV Ni}^+$  のオーステナイト系ステンレス鋼の照射では 304鋼が  $\nu = 0.96$ , 316鋼が  $\nu = 0.9$ , 321鋼が  $\nu = 1.1$  とそれぞれ分布位置に差がある。また  $4\text{MeV Ni}^+$  の 304鋼照射では  $\nu = 0.85$ ,  $1.1\text{MeV N}^+$  の 316鋼照射では  $\nu = 1.1$  である。一方  $3.2\text{MeV Ni}^+ \rightarrow \text{Nb}$  では LSS理論と一致( $\nu = 1.0$ )した分布を示す。



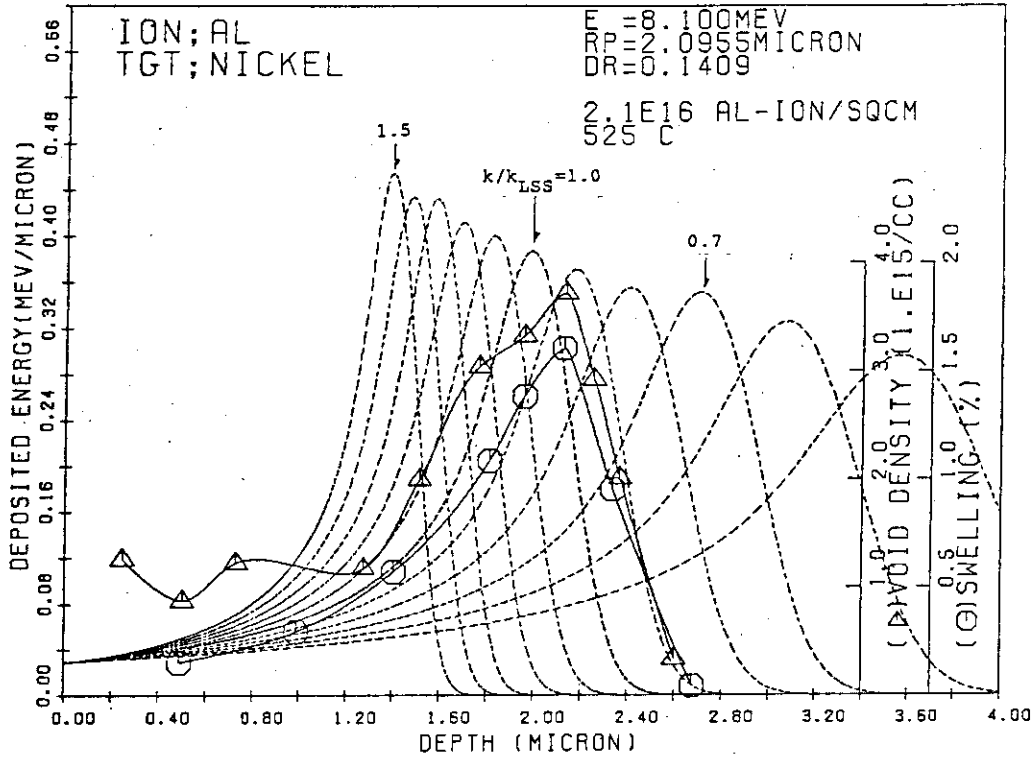


図5 8.1MeV Al<sup>+</sup> → Niにおけるボイド及びスエリングの深さ分布, 点線はE-DEP-1による損傷曲線で  $k/k_{LSS}$  をパラメータとして示す。

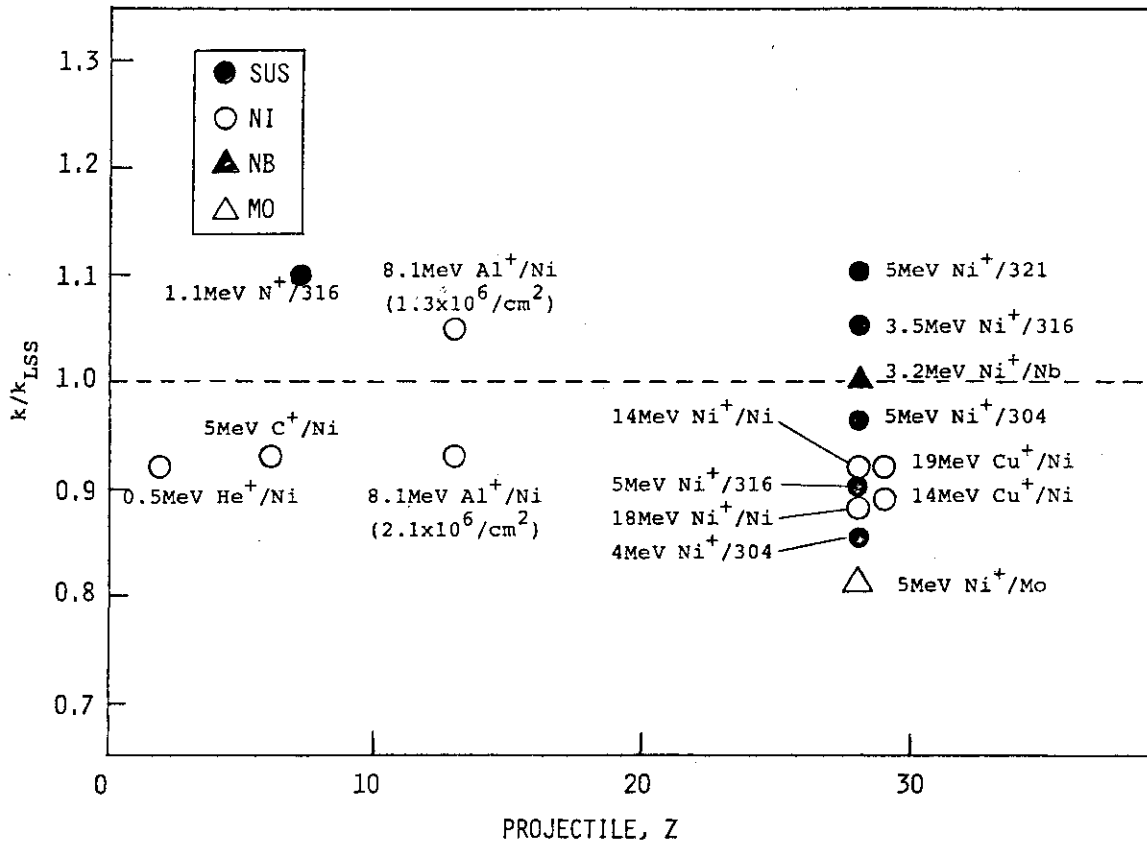


図6 スエリング深さ分布における  $k/k_{LSS}$  の入射イオン及びターゲット原子依存

図6に実験データに一致するようにして得た  $\nu = k/k_{LSS}$  の値を各種のイオンとターゲットの組合せについて示す。実験例が少なくデータも広範囲に分布しているが、図から以下の事実が認められる。

- (1) 全体に  $k$  は  $k_{LSS}$  に比べ小さい値をとる。Ni ターゲットの場合は  $Z = 2$  (He) ~ 29 (Cu) の範囲にわたり  $\nu = 0.9$  で一致する。
- (2) Ni<sup>+</sup> のステンレス鋼照射では  $\nu = 0.85 \sim 1.10$  の広い範囲に分散する。

スエリングのデータから直接電子的阻止能を評価するのは適当でないことはすでに前述した通りであるが、 $\nu < 1.0$  となる傾向は後述する点欠陥の分布でも認められており、照射損傷に共通の問題を提起しているものと考えられる。

注入されたイオンは損傷のピーク深さ付近にある飛程の前後に蓄積し、照射によってつくられた空格子をトラップするとともに、転位の周囲に偏析し照射欠陥の消滅確率を増加させる可能性があることが指摘されている。<sup>5)</sup> そうなれば空格子濃度の過飽和度が低下し、飛程付近でボイドの核生成が抑制されるため、スエリングのピークは理論損傷曲線のピークより浅い方へずれることになる。前出の  $1.1 \text{ MeV N}^+ \rightarrow 316$  鋼の結果 ( $\nu = 1.1$ ) はそれを示唆するデータと解釈されている。この結果は  $\nu \approx 0.9$  となる Ni<sup>+</sup>  $\rightarrow$  Ni などのデータと一致しないが、今後詳細な実験の積み重ねと検討が必要である。

#### 4. 点欠陥及び点欠陥クラスターの分布

イオン照射により誘起された点欠陥及び点欠陥クラスター、また単結晶体の disorder, amorphization などの深さ分布に関する文献を調べ、39例の実験データ(文献数23編)を収集した。これらの実験は室温ないし低温で実施されているため点欠陥あるいは点欠陥クラスターの移動は最小限に抑制され理論計算との直接の比較が有効と考えられる。しかし収集したデータの多くは Si, Au へのイオン注入に関するものできわめて低いエネルギー領域に限られているためこの調査では除外した。低エネルギーでは Brice または Winterbon の方法により実験結果に一致する分布が得られる。ここでは6実験例について E-DEP-1 損傷曲線と比較した。その結果を記すと

- (1) イオンエネルギーが比較的高い場合は実験データと E-DEP-1 の損傷曲線のプロフィールは良く似ているが損傷分布及び損傷ピーク深さとも前者が深い方にずれている。
- (2) 損傷ピーク付近の損傷幅は実験データの方が E-DEP-1 よりやや広いがその差は著しくはない。
- (3) 単結晶の低指数方位へのイオン照射では損傷は非常に深い位置まで及んでいて、イオンチャンネルリングが起っていることを示している。

損傷の理論計算に E-DEP-1 を使うことにより、実験事実を良く説明することができるが、損傷ピーク深さのシフトを検討する必要がある。スエリングの項で試みたと同様に再び LSS 理論における  $k$  の値を考慮する。図7は  $4 \text{ MeV Ni}^+ \rightarrow \text{Ni}$  における点欠陥密度の分布と E-DEP-1 の計算により得られた損傷曲線を示す。理論計算は  $\nu = 0.5$  から  $\nu = 1.5$  まで  $0.1$  間隔で計算したそれぞれの曲線を図示した。図7の例では  $\nu = 0.78$  で両者のピーク深さが一致する。同様の検

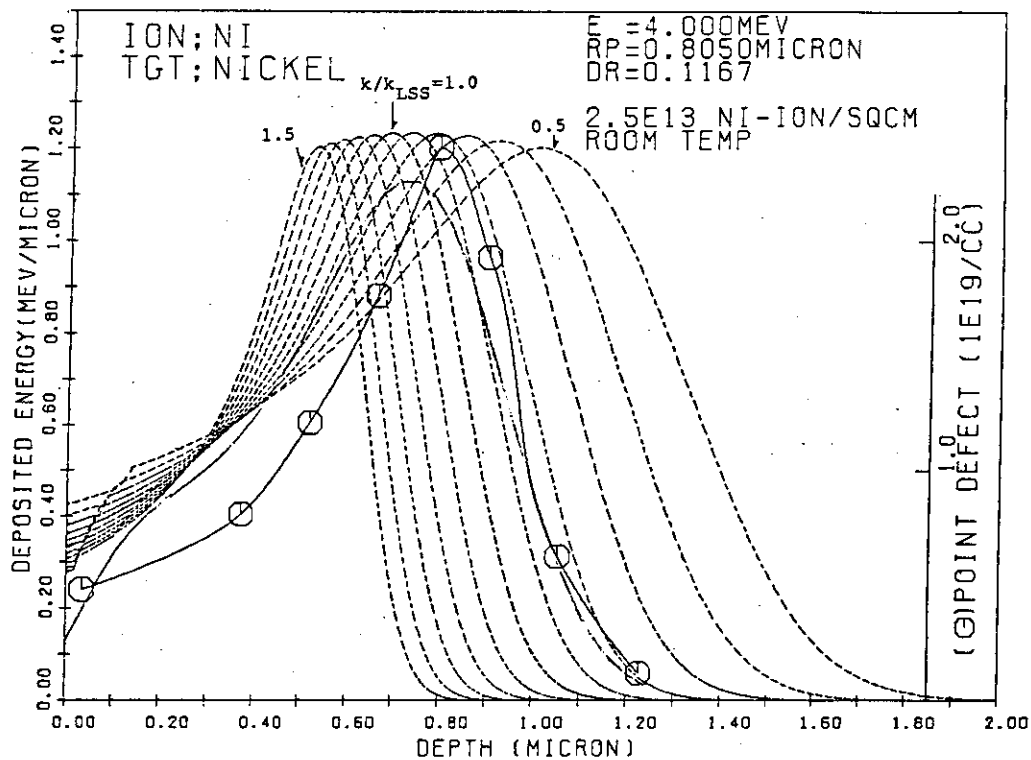


図7 4 MeV Ni<sup>+</sup>→Niにおける点欠陥密度の深さ分布，点線はE-DEP-1による損傷曲線で  $k/k_{LSS}$  をパラメータとして示す。

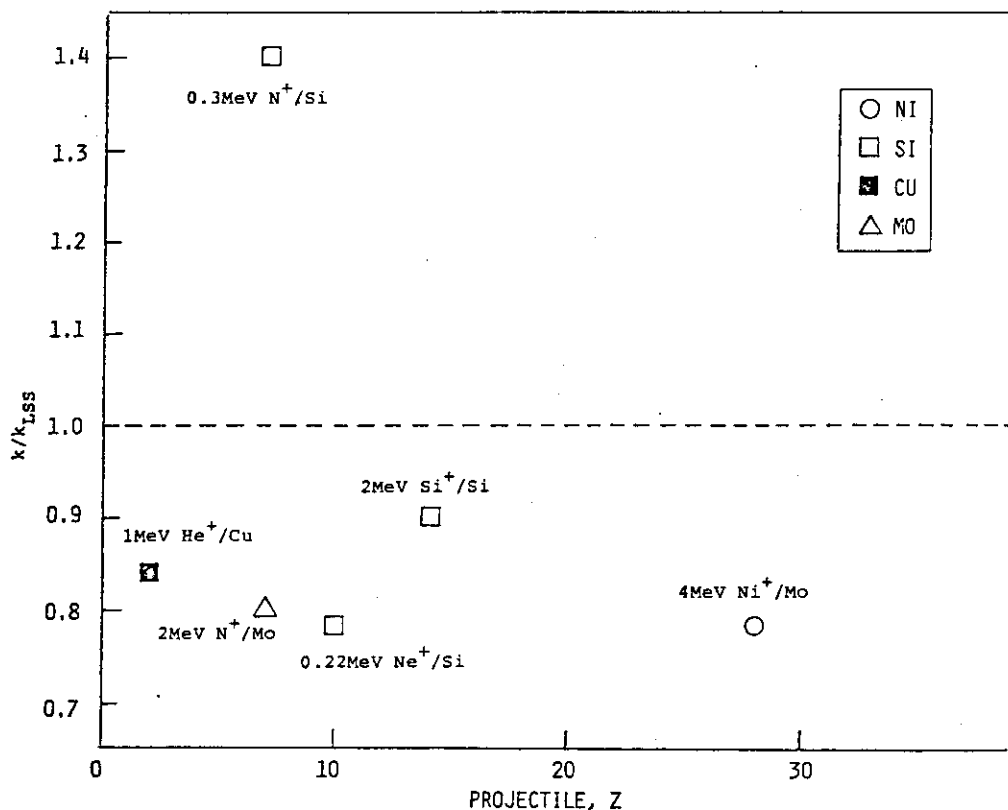


図8 点欠陥深さ分布における  $k/k_{LSS}$  の入射イオン及びターゲット原子依存

討を行ない、 $0.22\text{MeV Ne}^+ \rightarrow \text{Si}$ では $\nu = 0.78$ 、 $2\text{MeV N}^+ \rightarrow \text{Mo}$ では $\nu = 0.80$ 、 $1.0\text{MeV He}^+ \rightarrow \text{Cu}$ では $\nu = 0.84$ 、 $2\text{MeV Si}^+ \rightarrow \text{Si}$ では $\nu = 0.90$ 、 $0.3\text{MeV N}^+ \rightarrow \text{Si}$ では $\nu = 1.40$ が求められる。図8にこの結果をそれぞれのイオンとターゲットの組合せを併記して図示した。図からわかるように、

- (1)  $\nu \approx 0.8$ で実験データと一致する場合が多い。
- (2) 原子番号の周期的依存性 ( $Z$ 振動)の傾向は認められない。
- (3)  $0.3\text{MeV N}^+ \rightarrow \text{Si}$ は例外的に $\nu = 1.4$ と高い。

損傷分布から導き出した電子的阻止能の $k$ がLSS理論と系統的にずれていることは注目される。2で前述したようにBriceコードでは $E\text{-DEP}-1$  ( $\nu = 1.0$ )に比べ若干後方に損傷ピークを示すが $\nu = 0.8$ のピークとの差に比べれば差は少ない。スエリングのピーク深さでは $\nu = 0.9$ であり、点欠陥、クラスター分布のピーク深さでは $\nu = 0.8$ であることは、前者のピークが後者のピークに比べ前方に移動していることを示していることになり前述の空格子を注入原子がトラップするモデルを示唆しているとも考えられる。しかしまだ実験例がきわめて少なく断定的な結論を出すことは困難である。詳細な検討のできる精度の高いデータが要求される。

## 5. 飛程

飛程及びストラグリングの研究は1920年代の古くから実施されており、また近年は半導体へのイオン注入技術の発展もあり夥しい数の実験データが報告されていて、関連するものの全数を網羅することはほとんど不可能に近い。すでにNorthcliffe and Schilling (1970), Ziegler (1980)は主要な実験データをもとにして一般化し、各種イオン、ターゲットの組合せについて飛程、阻止能の図表を完成している。<sup>3) 4)</sup>ここではスエリング、点欠陥に関する前項で確認した照射損傷深さ分布の実験、理論の差異に注目し、その主要な要因のひとつと考えられる投影飛程 $R_p$ について実験データを調べた。主として1975年以降の新しいデータを集収した。文献数は例えば1977年から1981年の5年間でも83件に達するが、大部分は半導体のイオン注入に関するものである。イオン照射損傷の研究が実施されている、電子的阻止能が支配的に飛程を決めるエネルギー領域 ( $\epsilon > 1.0$ )の研究はきわめて少ない。ここでは紙面も限られているので後者の実験に限定して記述する。なお $\epsilon \leq 1.0$ では核的散乱が主要なエネルギー損失機構で飛程もそれによって支配されるが、LSS理論に比べ一般に大きい飛程を示す。またBethe-Bloch-Bohrのエネルギー領域 ( $\epsilon \geq 10^3$ )では電子的阻止能にはLSS理論は適用できないのは前述した通りである。

図9~図11には $\text{N}^+$ 及び ${}^3\text{He}^+$ の投影飛程データ $R_p$ をLSS理論と比較した結果を示す。スエリング、点欠陥と同様に $\nu = 0.75$ から $\nu = 1.25$ の間で0.05間隔で変化させて計算した $R_p$ を図示してある。実験値に適合する $\nu$ 値はエネルギーによっても若干変るが、イオン・ターゲットの組合せによって大幅に変化することを示唆している。

図12には ${}^{15}\text{N}^+ \rightarrow \text{Y}$ ;  $\text{X}^+ \rightarrow \text{Ta}$ についての $R_p$ 実験データのLSS理論値に対する比をエネルギー $\epsilon$ の関数として示した。参考にモンテカルロ法によって得た理論値についても併記した。図から $\epsilon \geq 3$ のエネルギーでは計算値と実験値との一致は良好である。エネルギーが低くなるに従っ

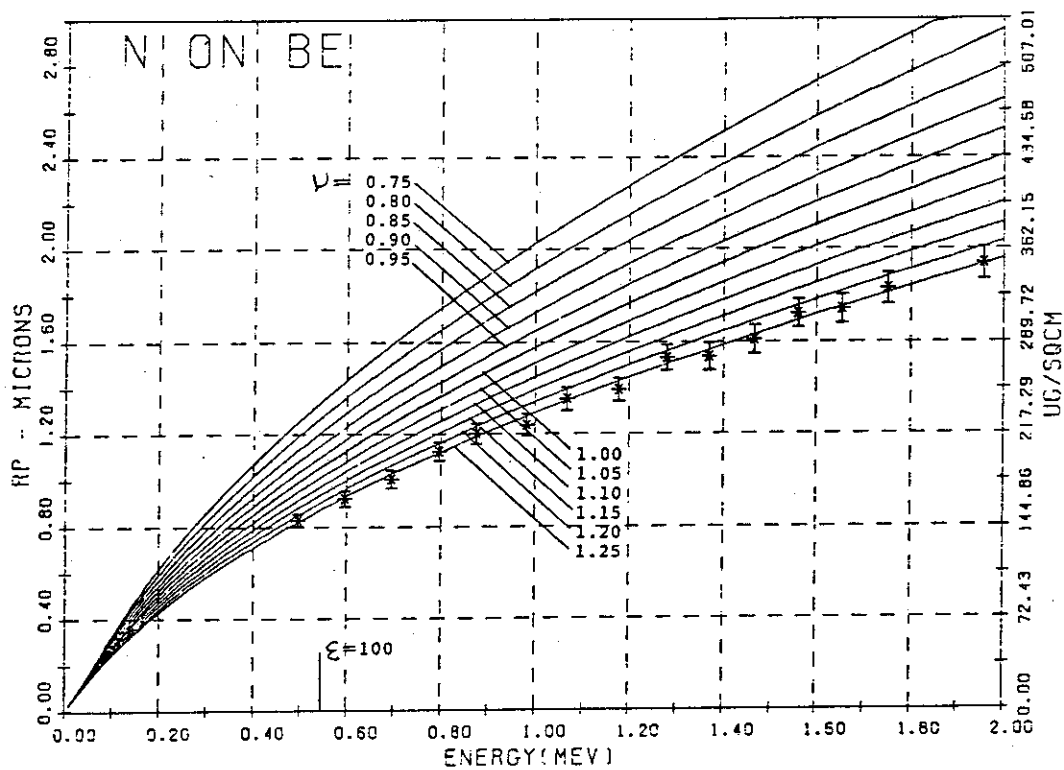


図9  $N^+ \rightarrow Be$ における投影飛程のエネルギー依存。  
 実線は理論計算で  $k/k_{LSS} (= \nu)$  をパラメータとして示す。

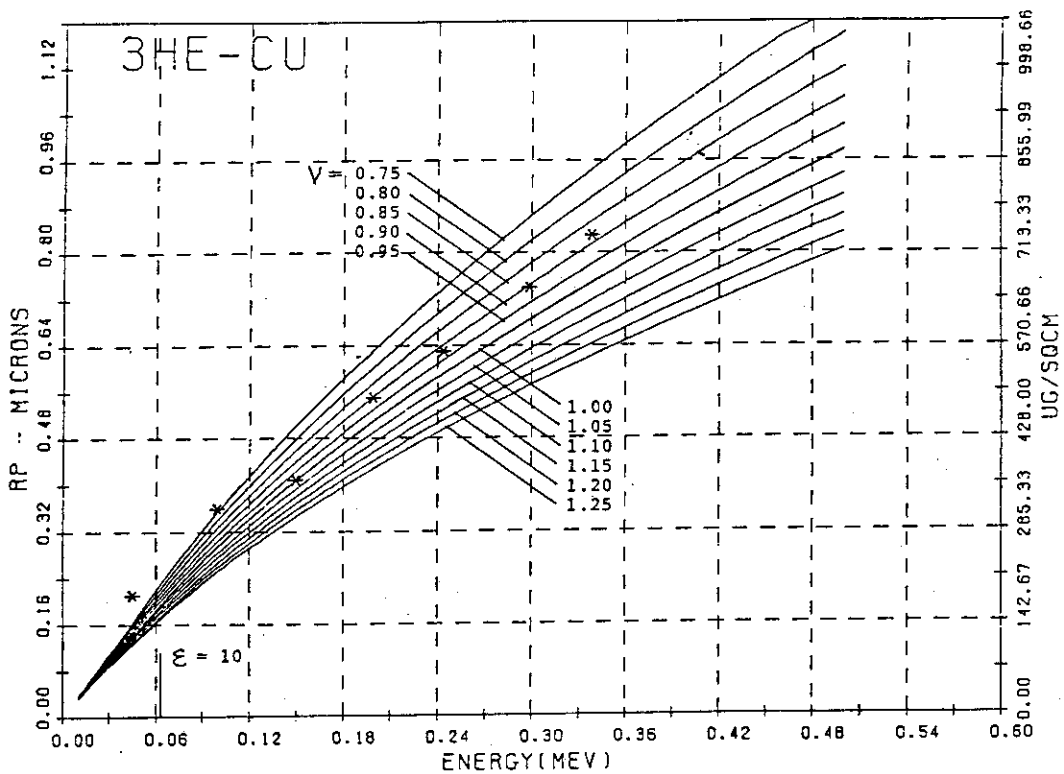


図10  ${}^3He^+ \rightarrow Cu$ における投影飛程のエネルギー依存。  
 実線は理論計算で  $k/k_{LSS} (= \nu)$  をパラメータとして示す。

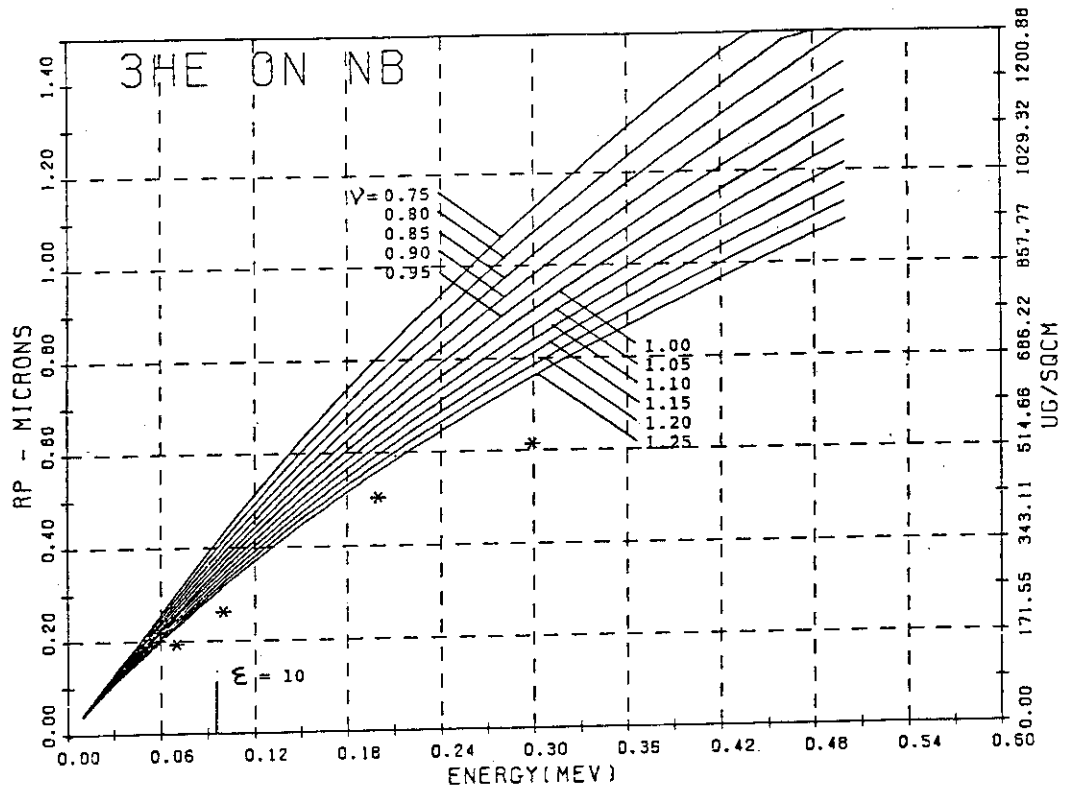


図 11  $^3\text{He}^+ \rightarrow \text{Nb}$  における投影飛程のエネルギー依存。  
 実線は理論計算で  $k/k_{LSS} (= \nu)$  をパラメータとして示す。

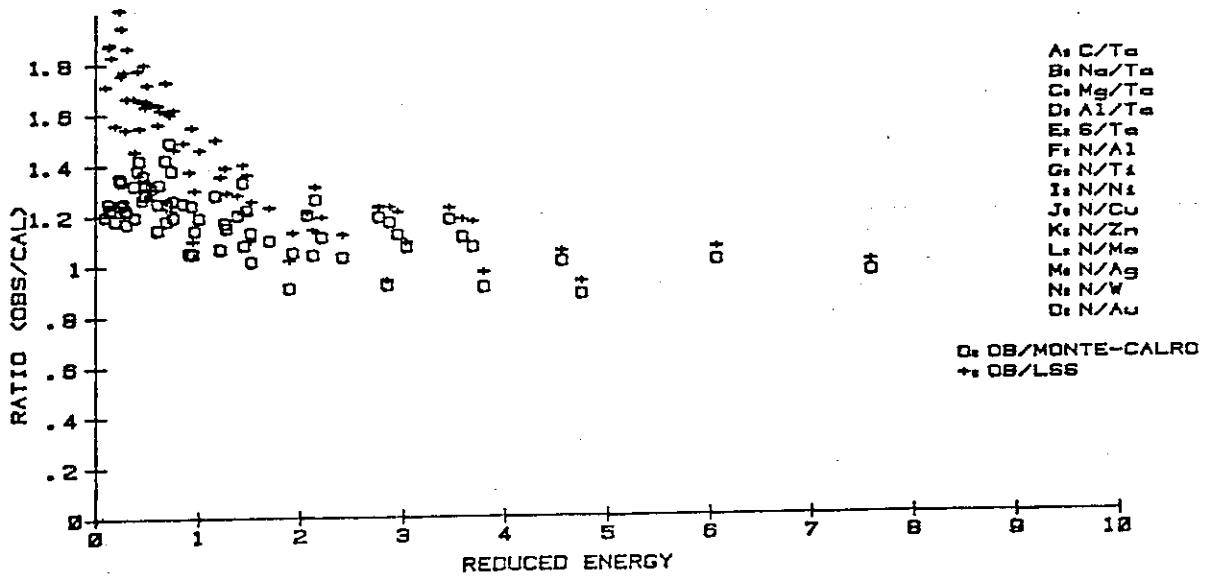


図 12  $^{15}\text{N}^+ \rightarrow \text{Y}$ ,  $\text{X}^+ \rightarrow \text{Ta}$  (Y, X は図中に示した各原子) における投影飛程実験データと理論計算値 (LSS 及びモンテカルロ計算) の比。

て両者の差が大きくなり、計算値に対する実験値の比は大きくなる。モンテカルロ法による計算の方が実験値により近い飛程を示している。

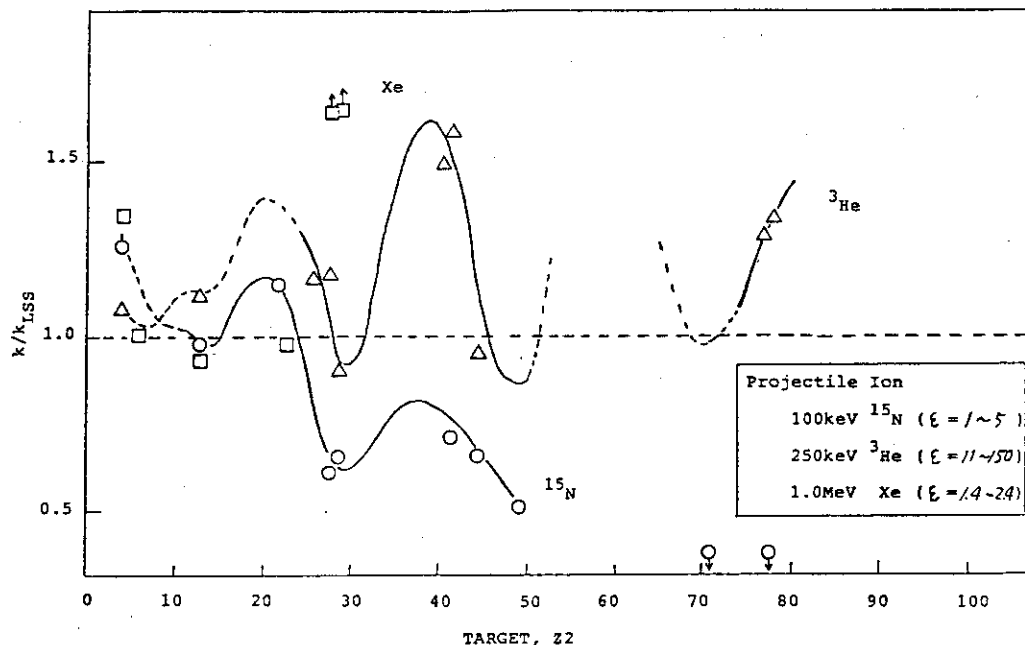


図 13 投影飛程における  $k/k_{LSS}$  のターゲット原子依存.

$R_p$  の実験データに最も適合する  $\nu$  を求めた代表的な例を図 13 に示す。図はイオンに  ${}^3\text{He}^+$ ,  ${}^{15}\text{N}^+$ ,  $\text{Xe}^+$  を選びターゲットの  $Z_2$  依存性をプロットした結果である。 ${}^3\text{He}^+$  では LSS 理論値より大きい  $k$ , 従って  $\nu > 1$  を示すデータが多い。一方  ${}^{15}\text{N}^+$  では反対に  $\nu < 1$  を示すデータが多い。両者とも  $\nu = 1.0$  から大幅にずれるデータがあるのが注目される。データ数は少ないが、 ${}^3\text{He}^+$ ,  ${}^{15}\text{N}^+$  ともターゲットの  $Z_2$  による振動現象が認められ不活性原子の前後で  $k$  の周期的な上昇が示唆される。これらのデータから電子的阻止能で認められている  $Z$  振動が飛程に反映していることがわかる。

$R_p$  のデータより  $\nu = k/k_{LSS}$  を検討した結果を要約すると

- (1)  $\epsilon \geq 3$  のエネルギー領域では  $R_p$  は LSS 理論に近い値をとるが、 $\epsilon < 3$  ではエネルギーの減少に従って同理論に比し大きくなる。
- (2)  $R_p$  データについての  $\nu$  値はイオン種 ( $Z_1$ ), ターゲット種 ( $Z_2$ ) により周期的変化を示し、変化幅も大きい。

飛程に関連して注入イオンの分布を示すストラグリングも重要な物理量であるが、実験例が少ないばかりでなく、実験データにもかなり大幅な分散がみられる。特に低エネルギー領域のデータにおいてそうであるが、照射イオンがエネルギーを漸時損失して低エネルギーになり停止直前での挙動がストラグリングに寄与することを考慮すれば低エネルギーでの値も重要性は劣らない。図 14 はストラグリングの相対値のエネルギー依存性を示す図である。極言すれば LSS 理論は単に傾向を示すにすぎず、 $\epsilon < 1$  での実験データとの大きな差違あるいは実験データ自身の大きな誤差のため、ストラグリングの正しい評価は今後の研究に待たざるをえない。

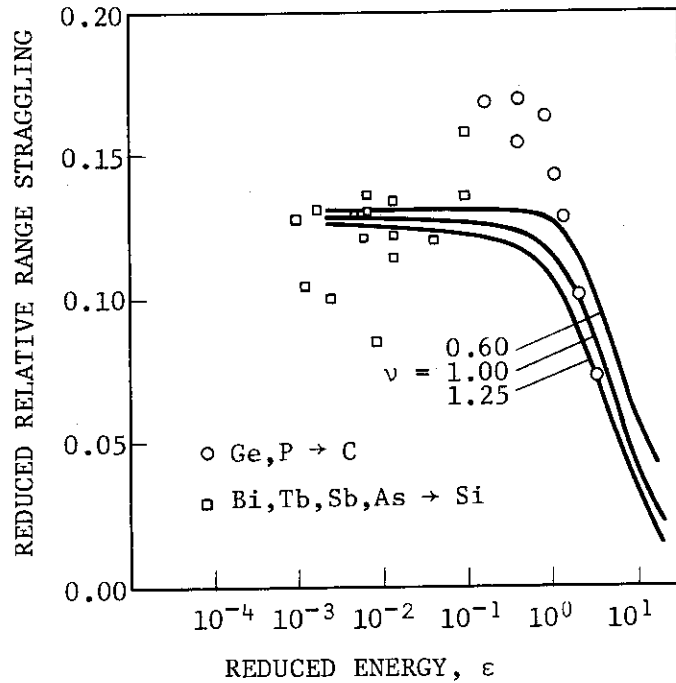


図14 飛程ストラグリングのエネルギー依存.

## 6. おわりに

スエリングはイオンと固体の相互作用に関する研究で現在最も強い関心を持たれているトピックスである。イオン照射によって形成されるボイドあるいはスエリング、点欠陥とそのクラスターなどの損傷の深さ分布、また注入イオンの飛程と分布の実験データが集積されつつある。これらのデータを集収し、E-DEP-1による理論計算と比較することを試みた。

イオン照射による損傷深さは理論値に比べ深い分布をすることがわかったが、飛程については必ずしも同一の結果ではなく理論計算の方が深いデータも多くあり、両実験の整合性が見られなかった。電子的阻止能のZ振動は飛程データに反映していることがわかったが、損傷分布データには認められなかった。今まで損傷の実験とイオン注入の実験は独立に実施されており、対象としているイオン、ターゲット、エネルギー範囲など共通性がないことが、この調査研究におけるデータの比較研究を制約あるものになっている。今後損傷と飛程を同一の実験から求めるような企画が望まれる。この種の実験を積み重ねて現象の正しい把握をはかるべきである。現時点では少なくとも電子的阻止能のLSS理論値が実験データあるいはZiegler, Northcliffe and Schilling, またはBriceの3パラメータ近似など実験データにもとづいた値と差異を示すようなイオン・ターゲットの組合せについては後者をE-DEP-1コードに組込んで損傷計算を実施することが望ましい。



参考文献

- 1) I. Manning and G.P. Mueller, *Comp. Phys. Comm.*, 7 (1974) 85
- 2) J. Lindhard, M. Scharff and H.E. Schiøtt, *Danske Videnskab. Selskab* 33, No.14 (1963)
- 3) L.C. Northcliffe and R.F. Schilling, *Nucl. Data Tables* A7 (1970) 233
- 4) J.F. Ziegler, *Handbook of Stopping Cross-Section for Energetic Ions in All Elements*, Vol.5 (Pergamon Press, New York, 1977)
- 5) L.K. Mansur and M.H. Yoo, *J. Nucl. Mater.*, 85 & 86 (1979) 523

## 〔収集文献リスト〕

## ボイドスエリング関係

- 3-1. W. G. Johnston, W. G. Morris and A. M. Turkalo:  
Proc. Int. Conf. Radiation Effects in Breeder Reactor Structural  
Materials, Scottsdale 1977, 421-430
- 3-2. J. B. Whitley, G. L. Kulcinski, G. L. Smith, Jr. and P. Wilkes:  
UWFDM-252
- 3-3. S. Diamond, M. L. Bleiberg, I. M. Baron, R. Bajaj and  
R. W. Chickering;  
Proc. Int. Conf. Radiation Effects and Tritium Technology for  
Fusion Reactor, ORNL 1976, I-207-I-229
- 3-4. B. A. Loomis, A. Taylor and S. B. Gerber:  
ibid, I-93-I-105
- 3-5. G. Fenske, S. K. Das and M. Kaminsky:  
J. Nucl. Mater. 85 & 86 (1979) 707-711
- 3-6. G. Fenske, S. K. Das and M. Kaminsky:  
J. Nucl. Mater. 80 (1979) 373-378
- 3-7. G. Fenske, S. K. Das, M. Kaminsky and G. H. Miley:  
J. Nucl. Mater. 76 & 77 (1978) 247-248
- 3-8. J. B. Whitley, G. L. Kulcinski, P. Wilkes and H. V. Smith, Jr.:  
J. Nucl. Mater. 79 (1979) 159-169
- 3-9. J. B. Whitley, G. L. Kulcinski, P. Wilkes and J. Billen:  
J. Nucl. Mater. 85 & 86 (1979) 701-706
- 3-10. E. H. Lee, K. Mansur and M. H. Yoo:  
J. Nucl. Mater. 85 & 86 (1979) 577-581
- 3-11. G. Fenske, S. K. Das, M. Kaminsky and G. H. Miley:  
Trans. Am. Nucl. Soc., 28 (1978) 196-197
- 3-12. K. L. Rusbridge:  
J. Nucl. Inst. and Meth., 182/183 (1981) 521-529
- 3-13. T. Lauritzen, G. M. Konze, W. L. Bell and W. K. Appleby:  
J. Microscopy, 116, Pt 1 (1979) 65-76
- 3-14. G. Fenske, S. K. Das, M. Kaminsky and G. Miley:  
J. Nucl. Inst. and Meth., 170 (1980) 465-470
- 3-15. J. L. Brimhall and C. H. Henager, Jr.:  
Trans. Am. Nucl. Soc., 26 (1977) 179
- 3-16. E. R. Bradley and J. L. Brimhall:  
Trans. Am. Nucl. Soc., 26 (1977) 179-180
- 3-17. K. Shiraishi, T. Aruga and Y. Katano:  
J. Nucl. Mater., 103 & 104 (1981) 1053

## 点欠陥及び点欠陥クラスタ関係

- 4-1. L. C. Feldman and L. C. Rodgers:  
J. Appl. Phys. 41, (1970) 3776-3782
- 4-2. E. K. Baranova, V. M. Gureev, Yu. V. Martynenko and K. V. Starinin:  
Sov. Phys. Semicond. 13(10) (1979) 1176-1177
- 4-3. B. Y. Tsaur, S. Matteson, G. Chapman, Z. L. Liao and M-A. Nicolet:  
Appl. Phys. Lett. 35(10) (1979) 825-828
- 4-4. K. F. Heidemann and H. F. Kappert:  
Inst. Phys. Conf. Ser. No. 46, Chapter 8, (1979) 492-499
- 4-5. I. A. Abroyan, N. F. Zitta, V. V. Konyshov, A. I. Titov and  
A. V. Khlebalkin:  
Bull. Acad. Sci. USSR Phys. Ser. 40, No.8, (1976) 170-173
- 4-6. J. Narayan and O. S. Oen:  
Proc. Workshop on Correlation of Neutron and Charged Particle  
Damage, ORNL CONF-760673, (1976) 356-368
- 4-7. J. Narayan, T. S. Noggle and O. S. Oen:  
ERDA-C-751006, (1976) 90-97
- 4-8. P. Baeri, S. U. Campisano, G. Ciavola, G. Foti and E. Rimini:  
Nucl. Inst. and Meth., 132, (1976) 237-240
- 4-9. S. T. Picraux and D. M. Follstaedt, P. Baeri, S. U. Campisano,  
G. Foti and E. Rimini:  
Rad. Eff. 49, (1980) 75-80
- 4-10. H. E. Roosendaal, M. Weick, H. H. Hubbes and H. O. Lutz:  
Rad. Eff. 45, (1979) 19-28
- 4-11. H. F. Kappert, N. Pfannkuche, K. F. Heidemann and E. TE Kaat:  
Rad. Eff. 45, (1979) 33-44
- 4-12. F. Cembali, R. Galloni and F. Zigani:  
Rad. Eff. 26, (1975) 161-171
- 4-13. D. A. Thompson, J.E. Robinson and R. S. Walker:  
Rad. Eff. 32, (1977) 169-175
- 4-14. J. H. Evans:  
Rad. Eff. 8, (1971) 115-120
- 4-15. P. P. Pronko:  
Nucl. Inst. and Meth., 132 (1976) 249-259
- 4-16. M. O. Rault, H. Bernas and J. Chaumont:  
Phil. Mag. A, 39, (1979) 757-783
- 4-17. A. Anttila, J. Hirvonen and M. Hautala:  
Phys. Rev. 23, (1981) 1082-1808

- 4-18. C. E. Christodoulides, N. J. Kadhim and G. Carter:  
Rad. Eff. 52, (1980) 225-234
- 4-19. D. I. R. Norris:  
Atomic Collision Phenomena in Solids, (1970) 97-110
- 4-20. S. T. Picraux, J. Bottiger and N. Rud:  
Appl. Phys. Lett., 28, (1976) 179-181
- 4-21. N. A. G. Ahmed, C. E. Christodoulides and G. Carter:  
Rad. Eff. 52 (1980) 211-224
- 4-22. D. A. Thompson, A. Golanski, K. H. Haugen and D. V. Stevanovic:  
Rad. Eff. 52, (1980) 69-84
- 4-23. N. A. G. Ahmed, C. E. Christodoulides and G. Carter:  
Phys. Letter 69 (1979) 431-435

## 飛程關係

- 5-1. A. K. Jain, V. N. Kulkarni and D. K. Sood:  
Nucl. Instr. and Meth. 191 (1981) 151
- 5-2. K. F. Heidemann:  
Phys. Status Solidi A 68 (1981) 607
- 5-3. A. F. Akkerman, S. A. Akkerman:  
Phys. Status Solidi A68 (1981) 69
- 5-4. L. E. Tailamani and M. C. Joshi:  
Nucl. Instr. and Meth. 191 (1981) 327
- 5-5. K. Wittamack and W. Wach:  
Nucl. Instr. and Meth. 191 (1981) 327
- 5-6. Shi-Duan Yin, Jing-Ping Zhang, Quan Gu, Shi-Jie Liu:  
Nucl. Instr. and Meth. 191 (1981) 147
- 5-7. C. A. B. Ball, F. D. Auret and H. C. Snyman:  
Phys. Status Solidi A 68 (545) 1981
- 5-8. H. Naramoto and K. Ozawa:  
Nucl. Instr. and Meth. 191 (1981) 367
- 5-9. C. E. Christdoulides, N. J. Kadhim:  
Nucl. Instr. and Meth. 191 (1981) 124
- 5-10. R. G. Willson and D. M. Jamba:  
Appl. Phys. Lett. 39 (1981) 715
- 5-11. T. Onuma, T. Hirao and T. Sugawa:  
J. Appl. Phys. 52 (1981) 6128
- 5-12. J. Cervena, V. Hantowicz, J. Hoffmann, Z. Kosina, J. Kvitek, and  
P. Onheiser:  
Nucl. Instr. and Meth. 188 (1981) 185
- 5-13. R. G. Willson:  
J. Appl. Phys. 52 (1981) 3954
- 5-14. S. Kalbitzer and Oetzmann:  
Rad. Effects 47 (1980) 57
- 5-15. J. Amano, A. Wargner and N. D. Seidman:  
Phil. Mag. A 44 (1981) 177
- 5-16. G. Fenske, S. K. Das, M. Kaminsky, G. Mtlej, B. Terreault,  
G. Abel and J. P. Abrif:  
J. Appl. Phys. 52 (1981) 3618
- 5-17. A. G. K. Lutsch, C. A. B. Ball, F. D. Auret and H. C. Snyman:  
Microelectron. J. 12 (1981) 25

- 5-18. F. Jahnel, H. Ryssel, G. Prinke, K. Hoffmann, K. Muller, J. Riesack and R. Henkelmann:  
Nucl. Instr. and Meth. 182 (1981) 223
- 5-19. M. Berti, A. Carnera, A. V. Drigo, A. Armigliato, A. Desalvo and R. Rosa:  
Nucl. Instr. and Meth. 182 (1981) 215
- 5-20. W. Jager and J. Roth:  
Nucl. Instr. and Meth. 182 (1981) 975
- 5-21. M. Baron, A. L. Chang, J. Schreurs and R. Kossowsky:  
Nucl. Instr. and Meth. 182 (1981) 531
- 5-22. J. Greggi, W. J. Choyke, C. F. Tzeng, C. L. Chamberlain, N. J. Doyle and D. M. Matuza:  
Appl. Phys. Lett. 38 (1981) 528
- 5-23. J. B. Malherbe and S. Hofmann:  
Surf. and Interface Anal. 2 (1980) 187
- 5-24. H. Ryssel, G. Prinke, K. Habberger, K. Hoffmann, K. Muller and R. Henkelmann:  
Appl. Phys. 24 (1981) 39
- 5-25. K. L. Wang and H. A. Storms:  
Secondary Ion Mass Spectrometry Sims-II. Proceedings of the Second International Conference (1980) 110
- 5-26. J. E. Baker, P. Williams, D. J. Wolford, J. D. Obstar and B. G. Streetman:  
Secondary Ion Mass Spectrometry Simes-II. Proceedings of the Second International Conference (1980) 106
- 5-27. J. Bohdansky, K. L. Wilson, A. E. Pontau, L. G. Haggmark and M. I. Baskes:  
J. Nucl. Mater. 93-94 (1980) 594
- 5-28. W. H. Cheistie and C. W. White:  
Surf. Sci. 100 (1980) 43
- 5-29. W. K. Chu, M. R. Popniak, E. T. Alessandrini and R. F. Lver:  
Rad. Effects 49 (1980) 23
- 5-30. F. Bernhard, H. Kerkow and F. Kudella:  
Rad. Effects 49 (1980) 107
- 5-31. H. Ryssel, K. Habberger, K. Hoffmann, G. Prinke, R. Dumcke and A. Sachs:  
IEEE Trans. Electron Devices ED-27 (1980) 1484
- 5-32. H. Attaya and G. L. Kulcinski:  
Trans. Am. Nucl. Soc. 34 (1980) 224
- 5-33. J. Comas, and R. G. Wilson:  
J. Appl. Phys. 51 (1980) 3697

- 5-34. J. Roth, W. Eckstein and J. Bohdanský:  
Rad. Effects 48 (1980) 91
- 5-35. W. K. Chu, R. H. Kastl and P. C. Murley:  
Rad. Effects 47 (1980) 73
- 5-36. I. Brylowska, M. Subotowics, K. Paprocki and H. Derewiecki:  
Rad. Effects 47 (1980) 137
- 5-37. R. G. Wilson and J. Comas:  
Rad. Effects 47 (1980) 137
- 5-38. R. G. Wilson:  
Rad. Effects 46 (1980) 141
- 5-39. H. Ryssel, G. Lang, J. P. Biersack, K. Muller and W. Kruger:  
IEEE Trans. Electron Devices Ed-27 (1980) 58
- 5-40. D. P. Leta, G. H. Morrison, G. L. Harris and C. A. Lee:  
Int. J. Mass Spectrom and Ion Phys 34 (1980) 147
- 5-41. M. Meyer:  
J. Phys. 41 (1980) 409
- 5-43. J. Keinonen and A. Anttila:  
Appl. Phys. Lett 36 (1980) 271
- 5-44. C. W. Megee, S. A. Choen, D. E. Voss and D. K. Brice:  
Nucl. Instr. and Meth. 168 (1980) 383
- 5-45. A. B. Campbell, B. D. Sartwell and P. B. Needham:  
J. Appl. Phys. 51 (1980) 283
- 5-46. H. Ryssel, G. Lang, K. Muller, J. Biersack, W. Kruger and  
F. Jahnel:  
Phys. Status Solidi A 57 (1980) 619
- 5-47. F. J. Demond, S. Kalbitzer, H. Mannsperger and G. Muller:  
Nucl. Instr. and Meth. 168 (1980) 69
- 5-48. H. F. Kappert, K. F. Heidemann, D. Eichholz, F. Kaat and  
W. Rothemund:  
Appl. Phys. 21 (1980) 151
- 5-49. J. P. Biersack, D. Fink, R. A. Henskelmann. and K. Muller:  
J. Nucl. Mater. 85 (1979) 1165
- 5-50. G. K. Hubler, P. R. Malmberg and T. P. Smith:  
J. Appl. Phys. 50 (1979) 7147
- 5-51. G. Braunstein, I. Bernstein, U. Carsenty and R. Kalish:  
J. Appl. Phys. 50 (1979) 5731
- 5-52. E. A. Konorova, V. F. Sergienko, S. D. Tkachenko, V. A. Dravin  
and A. V. Spitsyn:  
Sov. Phys.-Lebedev Inst. Rep. 4 (1978) 9

- 5-53. M. R. Risch, J. Roth and B. M. U. Scherzer:  
J. Nucl. Mater. 82 (1979) 220
- 5-54. G. Fenske, S. K. Das, M. Kaminsky and G. H. Miley:  
Trans. Am. Nucl. Soc. 28 (1978) 196
- 5-55. M. M. Tosic:  
Fizika 10 (1978) 93
- 5-56. T. Hirao, K. Inoue, Y. Yaegashi and S. Takayanagi:  
Proceedings of the Sixth Yugoslav Symposium on Physics of Condensed  
Matter (1978) 17
- 5-57. G. Mullwe, M. Trapp, R. Schimko and C. E. Richter:  
Phys. Status Solidi A 51 (1978) 87
- 5-58. M. Luomajarvi, J. Kfinonen, M. Bister and A. Anttila:  
Phys. Rev. B 18 (1978) 4657
- 5-59. A. Wagner, and D. N. Seidman:  
Phys. Rev. Lett. 42 (1979) 515
- 5-60. D. J. Land, D. G. Simons, J. G. Brennan, M. D. Brown, J. K. Hirvonen  
and J. P. Biersack:  
Rad. Effects 48 (1980) 105
- 5-61. G. Abel, G. Ross, B. Terreault and J. P. Labrie:  
Nucl. Instr. and Meth. 170 (1980) 171
- 5-62. A. Anttila, J. Hirvonen and M. Hautala:  
Rad. Effects 57 (1980) 41
- 5-63. B. M. U. Scherzer, H. L. Bay, R. Behrisch, P. Borgessen and J. Roth:  
Nucl. Instr. and Meth. 75 (1978) 15
- 5-64. Z. E. Switkowski, J. C. Overley, W. U. Shiu-chin, C. A. Barnes  
and J. Roth:  
J. Nucl. Mater. 78 (1978) 64
- 5-65. W. Moller, P. Borgesen and J. Bottiger:  
J. Nucl. Mater. 76 (1978) 287
- 5-66. P. Borgesen, J. Bottiger and W. Moller:  
J. Appl. Phys. 49 (1978) 4401
- 5-67. H. F. Kappert, K. F. Heidemann, B. Grabe and E. T. Kaan:  
Phys. Status Solidi A 47 (1978) 751
- 5-68. Suk Tai Kang, R. Shimizu and T. Koshikawa:  
Technol. Rep. Osaka Univ. 27 (1977) 327
- 5-69. J. Bottiger, P. S. Jensen and U. Littmark:  
J. Appl. Phys. 49 (1978) 965
- 5-70. S. Nasu, K. Shiozawa, T. Tanifugi, K. Noda and K. Uchida:  
J. Nucl. Mater. 73 (1978) 132



- 5-71. R. M. More and F. J. Venskytis:  
Rad. Effects 35 (1978) 129
- 5-72. K. Guttner, S. Hofmann, D. Marx, G. Munzenberg and F. Nickel:  
Nucl. Instr. and Meth. 146 (1977) 413
- 5-73. A. Z. Nagy, J. Bogancs, J. Gyulai, A. Csoke, V. Nazarov, Z. Seres,  
A. Szabo and YU. Yazvitsky:  
J. Radional. Chem. 38 (1977) 19
- 5-74. B. Terrault, J. G. Martel, R. G. ST-Jacques, G. Veilleux,  
J. Fcuyer, C. Brassard, C. Cardinal, L. Deschenes and J. P. Labrie:  
J. Nucl. Mater. 68 (1977) 334
- 5-75. J. C. Overley and H. W. Lefevre:  
Proceedings of the 4th Conference on the Scientific and Industrial  
Applications of Small Accelerators (1977) 557
- 5-76. H. R. Kastl:  
Electrochemical Society Fall Meeting (1976) 865
- 5-77. H. W. Lefevre, J. D. Anderson and J. C. Davis:  
Proceeding of the 4th Conference on the Scientific and Industrial  
Applications of Small Accelerators (1977) 13
- 5-78. A. Anttila, M. Bister, A. Fontell and K. B. Winterbon:  
Rad. Effects 33 (1977) 13
- 5-79. H. Ryssel, H. Kranz, K. Muller, R. A. Henkelmann and J. Biersack:  
Appl. Phys. Lett. 30 (1977) 13
- 5-80. R. Shimizu, S. T. Kang, T. Koshikawa, M. Ogata, K. Kanayama,  
Y. Ogata, Y. Akasaka and K. Horie:  
J. Appl. Phys. 48 (1977) 1745
- 5-81. F. Burkhardt and C. Wagner:  
Phys. Status Solidi A 39 (1977) 63
- 5-82. N. G. Blamires and B. J. Smith:  
J. Phys. D. 10 (1979 ) 799
- 5-83. K. Tsukamoto, Y. Akasaka and K. Horie:  
Jpn. J. Appl. Phys. 16 (1977) 663
- 5-84. D. C. Santry and R. D. Werner:  
Nucl. Instr. and Meth. 139 (1976) 135
- 5-85. Y. Y. Chu and L. Friedman:  
Nucl. Instr. and Meth. 38 (1965) 254
- 5-86. O. S. Oen, D. K. Holmes and M. T. Robinson:  
J. Appl. Phys. 34 (1963) 302
- 5-87. W. K. Shu, P. D. Burland, K. H. Wang and D. Powers:  
Phys. Rev. 175 (1968) 342

- 5-88. D. E. Davies:  
Can. J. Phys. 47 (1967) 1750
- 5-89. E. M. Zarutskii:  
Sov. Phys. -Solid State 11 (1969) 1364
- 5-90. R. A. Langley:  
Phys. Rev. A 4 (1971) 1868
- 5-91. D. Power, W. K. Chu, P. D. Bourland:  
Phys. Rev. 126 (1968) 376
- 5-92. G. W. Neilson, B. W. Farmery and M. W. Thompson:  
Phys. Lett. 46a (1973) 45

## 5. 分子動力学法によるはじき出ししきいエネルギーの異方性の計算

原 研 横田 光史・田次 邑吉・岩田 忠夫

### 1. はじめに

照射損傷の低エネルギー過程を考える上で、最も基本的な量のはじき出しのしきいエネルギーである。はじき出しのしきいエネルギーは、完全結晶の構成粒子の1つに運動エネルギーを与えると、フレンケル対ができるのに必要な最低エネルギーとして定義される。しきいエネルギーの値は、結晶軸の方向に対する1次はじき出し粒子(PKA)の初速方向によって違ってくるという意味で、異方性をもつ。物質によって結晶構造や結晶構成粒子間の相互作用が異なるので、その結果、異方性も物質によって異なってくる。

ところで、異方性の問題は、粒子間相互作用が十分には明らかでない上に、粒子間衝突が、単純な2体衝突で近似できない多体衝突であるというように、二重の意味で困難な問題である。そのため、現在、理論による定量的取り扱いはできておらず、定性的にも新たな発展のきざしはない。実験では、いくつかの金属について、結晶軸に近い方向についてのしきいエネルギーが調べられている。しかしながら、全方向に対するしきいエネルギーが、信頼できるような形で求まっているとは言い難い。こうした状況からみて、計算機実験が1つの有効な手段となり得る。実際、過去にVineyardらによる先駆的な仕事があり、照射損傷の低エネルギー過程について、多くの知見を得ている<sup>1)</sup>。ここでは、はじき出しのしきいエネルギーの異方性についても、Cuについては特定の方向に対して、Feについては、後で述べる“simple” directionに対して調べられている。

計算機実験の有用性は、複雑なダイナミクスを数値的に解けることにあるが、その意味には2つの場合がある。1つには、相互作用がはっきりしているときで、この場合、定量的な結果に意味がある。もう1つの重要な意義は、相互作用の詳細な形にはよらない定性的な現象を見つけ出すことである。

しきいエネルギーの異方性の計算機実験の場合、粒子間相互作用が、十分には明らかではないので、計算結果をあまり厳密に定量的なものとして解釈するのは正しくない。過去に行われた計算機実験のうち、定性的な意味で重要なのは、Vineyardらによる収束衝突の研究<sup>1)</sup>及びSchiffgensとBourquin, KingとBenedekによる“simple” directionと“complex” directionの発見<sup>2)</sup>である。ところで、過去の計算機実験は、多くがfcc金属ではCu, bcc金属ではFeのものである。しかも、結晶のすべての方向について計算機実験が行われたことはなかった。しきいエネルギーの異方性が、結晶構造や結晶構成粒子間の相互作用によって、どのように違っ

---

Anisotropy of Displacement Threshold Energies Calculated by the Molecular Dynamical Method. T. Yokota, Y. Taji and T. Iwata, JAERI

てくるかを調べるためには、多くの金属に対して、異方性についてのデータがあることが望まれる。そこで、ここでは、不十分ながら過去にいくらかのデータのある Cu, Fe をとらずに、bcc 金属 Mo について計算機実験を行い、しきいエネルギーの異方性を全方向について調べ、過去の計算機実験と比較する。この計算機実験は、しきいエネルギーの異方性を全方向で調べ、しかも過去に計算機実験の行われていない Mo についてのデータを得たという意味がある。

## 2. GRAPE コード

はじき出ししきいエネルギーの異方性などを調べるために、Vineyard らによってつくられたのが GRAPE コードである<sup>1)</sup>。このコードにより、分子動力学の方法で欠陥のできる過程を追うことができた。Vineyard らは、1960 年に fcc 金属 Cu について、1964 年には bcc 金属 Fe について詳細にしきいエネルギーの異方性などを調べている。そこで使われた分子動力学の方法を簡単にまとめておく。

はじき出しのしきいエネルギーで問題になる衝突現象の時間のスケールは、格子振動の時間のスケールにくらべて短いので、はじき出しのしきいエネルギーの計算で、格子振動を考えるとときには、初期条件での粒子の位置のゆらぎとして考えることができる<sup>3)</sup>。しかし、初期条件での粒子の位置のゆらぎを考えると、PKA の初速度の 1 つの方向についての計算を初期条件での粒子の位置を変えて、何度も行わなければならない、それを全方向について行うのは、実際上不可能である。そこで、以下の話では、簡単のため、温度および量子効果による格子振動は考えない古典的零度で計算を行う。このようにしても、はじき出しエネルギーの本質的な事柄は、十分調べられるはずである\*。しきいエネルギーの計算は、格子点に粒子を配置することによって、直方体の結晶を用意し、その中の 1 つの粒子に初速度を与え、フレンケル対ができるかどうかを見ることによって行われる。運動方程式は、n 番目の粒子について、

$$\begin{cases} m \dot{\mathbf{v}}_n = \mathbf{F}_n \\ \mathbf{F}_n = \sum_{i \neq n} -\nabla_{\mathbf{r}_{ni}} V_{n,i}(\mathbf{r}_{ni}) \quad (\mathbf{r}_{ni} \equiv \mathbf{r}_n - \mathbf{r}_i) \end{cases}$$

となる。ここで、粒子間の力は、粒子間の座標にのみよる 2 体中心力であると仮定した。この運動方程式を次式に示すように積分することにより問題を解くことになる。

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{v}}_n(t) \simeq [\mathbf{v}_n(t + \Delta t/2) - \mathbf{v}_n(t - \Delta t/2)] / \Delta t \\ \dot{\mathbf{r}}_n(t + \Delta t/2) \simeq [\mathbf{r}_n(t + \Delta t) - \mathbf{r}_n(t)] / \Delta t \\ \begin{cases} \mathbf{v}_n(t + \Delta t/2) \simeq \mathbf{v}_n(t - \Delta t/2) + \Delta t m_n^{-1} \mathbf{F}_n[\mathbf{r}_i(t)] \\ \mathbf{r}_n(t + \Delta t) \simeq \mathbf{r}_n(t) + \Delta t \mathbf{v}_n(t + \Delta t/2) \end{cases} \end{cases}$$

時間間隔  $\Delta t$  は、t での系のエネルギーと  $t + \Delta t$  での系のエネルギーが、求めるべき精度以内の食い違いしか起こることのないように十分小さく選ぶが、不必要に小さく選ぶと計算時間の無駄となる。

\* 初期条件での粒子の位置のゆらぎは、収束衝突に影響が大きい。その結果、はじき出しエネルギーに対する格子振動の影響は、“complex” direction についてよりも“simple” direction について大きく出るかもしれない。

計算において問題となるのは、計算機の容量の関係で、結晶が十分大きくはとれないために表面の影響が重要となることである\*。今の問題で、表面に単純に周期的境界条件を置くのは、明らかに適切でない。表面の粒子には、3種類の力を加える。第1の力は、結晶を安定させるための一定の力である。結晶の表面の粒子は、内側にしか相互作用する粒子がないので、そのままでは、格子点の位置につき合うことはない。そこで、内側からの力を格子点の位置で打ち消すような一定の力を表面に加える。第2、第3の力は共に、本来まわりにあるべき媒質が、表面粒子の動きにしたがってどのように表面粒子に対して力をおよぼすかを取り入れたものであり、扱っている小さい有限の結晶が、無限大の結晶の一部であることを表わそうとする意図をもったものである。第2の力は、表面の変位に比例する力であり、固体のマクロな弾性的性質を反映するようにとる。Vineyardらの力の決め方を簡単にまとめておく。詳しくは、文献(1)に書かれている。計算に用いられる直方体の結晶と同じ体積の球を考え、その球が連続体の中にあるとする。球の半径をRとしてRを $\delta R$ だけ大きくすると、球の表面に

$$P = \frac{4C_{44}}{R} \delta R$$

の圧力がかかる。この圧力を表面の原子の密度Nで割ったものが、表面の原子に加えるべき力であり、バネ定数として

$$k_n = \frac{4C_{44}}{NR}$$

をとることができる。 $k_n$ は表面に垂直な方向の変位に対するバネ定数であるが、平行な方向に対するバネ定数 $k_t$ も似たような議論をすると、 $k_t = k_n/4$ となる。我々が、Moに対して行った計算についてもこのようにして求めたバネ定数を用いた。このバネ定数を用いることは、結晶の大きさによって、表面の運動が異なってくるという意味で不満足である。バネ定数の別の決め方については、他の機会に触れたい。第3の力としては、表面粒子の速度に比例した減衰力を取り、まわりにエネルギーの逃げていくのを表わそうとする。もちろん、これらの力だけでは、無限大の結晶を扱うことにはならず、表面があまり大きく動かないような計算の方が、信頼できる。Moに対して、我々が用いた表面力は、バネ定数が、

$$k_n = \frac{5.06287 \times 10^{-4}}{n} \text{ dyn} \cdot \text{cm}^{-1}$$

である。ここで、nは結晶の大きさを表わす。

2体中心力を表わすポテンシャルとして、我々がMoに対してとったものは、JohnsonとWilsonによる点欠陥の計算に用いられたものをもとにしている<sup>4)</sup>このポテンシャルは、eVを単位として、次式で表わされる。(Fig. 1)

$$V(r) = \begin{cases} Ae^{-Br}, & A = 5109.500 \text{ eV} \quad B = 3.311892 \text{ \AA}^{-1} \quad (r < 1.7 \text{ \AA}) \\ 9.549910r^4 - 108.7556r^3 + 465.5270r^2 - 888.2687r + 637.5701 & (1.7 \text{ \AA} < r < 2.93 \text{ \AA}) \end{cases}$$

\* 我々の計算では、結晶の大きさは $20 \times 20 \times 20$ 程度である。ここで、距離の単位は、第2近接原子までの距離を2としている。したがって最近接原子までの距離は $\sqrt{3}$ である。

$$\left\{ \begin{array}{l} 2.960482r^5 - 49.55566r^4 + 329.1443r^3 - 1083.838r^2 + 1768.996r \\ - 1145.079 \end{array} \right. \quad (r > 2.93 \text{ \AA})$$

さらに、第2近接粒子と第3近接粒子の間距離より外のポテンシャルはゼロにする。このポテンシャルの多項式部分は、固体の弾性的性質に合致するように選んであるが、ボルン-マイヤー部分との接続点の選び方や、多項式を決めるためのパラメーターの選び方は、微妙な問題である。

### 3. 計算結果

はじき出しのしきいエネルギーの計算では、最終的にフレンケル対ができるかどうかの問題になる。したがって、フレンケル対の安定性をあらかじめ調べておくことは、はじき出しのしきいエネルギーの計算を見通しよくする。もちろん、フレンケル対の安定性の問題は、それ自身興味ある問題でもある。ここでは3.1で、フレンケル対の安定性についての計算結果を述べ、3.2では、はじき出しのしきいエネルギーの異方性についての結果を報告する。

#### 3.1 フレンケル対の安定性

2.で触れたポテンシャルを用いて、欠陥のまわりの原子配置およびフレンケル対の安定性を調べた。前にも述べたが、粒子間相互作用を2体中心力で記述することの正当性がはっきりしない上に、ポテンシャルの形が、それを決めるためのパラメーターのとり方に対して不安定であるために、計算機実験による格子欠陥の性質の追求に対して、厳密な定量的信頼性を置くことは適切でない。しかしながら、欠陥の周囲の原子配置を理論的に取り扱う事は、最も簡単と思われる空孔の場合についてすら、満足できる状況にあるとは言い難い。そこで、計算機実験による、定性的な意味での原子配置および安定性の追求に意味があると思われる。

フレンケル対の安定性を調べる前に、空孔と格子間原子が、単独で存在するときの周囲の原子配置を求めた。

空孔についての計算は、完全結晶中の原子を1つ取り除いて、分子力学的に計算を行い、最終的な原子配置を決定した。空孔のまわりの原子配置については、空孔から最近接位置にある原子は、3.1%内側へ、第2近接位置にある原子は、1.7%外側へ動く。

格子間原子は、ダンベル型になるという予想をたて、 $\{100\}$ と $\{110\}$ ダンベル型の安定性を調べた。 $\{100\}$ は不安定であり、 $\{110\}$ の配置に落ちつく。(Fig. 2)その他の可能性については調べなかったが、3.2で示す計算の結果でも、格子間原子は、すべて $\{110\}$ ダンベル型であったので、その他の配置が、安定に存在する可能性は薄い。ダンベルを構成する2つの原子の間の距離は、1.494である。格子間原子からみて、最稠密方向である $\{111\}$ 方向の原子配置については、 $\langle 111 \rangle$ の向きと $\langle 1\bar{1}\bar{1} \rangle$ の向きが、格子間原子のダンベルの方向に対して、等価でない向きとなっている。その結果、Fig. 2において(1, 1, 1)にある最近接原子は、17%外へ動いた位置をとるのに対して、(1, 1,  $\bar{1}$ )にある最近接原子は、1.9%内側へ動いた位置に落ちつくというように、きわだった違いを示す。さらに、(2, 2, 2)の位置であった原子が、3.9%外、(2, 2,  $\bar{2}$ )の原子が0.04%外、(3, 3, 3)が1.1%外、(3, 3,  $\bar{3}$ )が0.07%外へ移動するというように、 $\{111\}$ 方向の原子配置に対して、2つの向きの違いは、距離と共に減少するものの、3番目

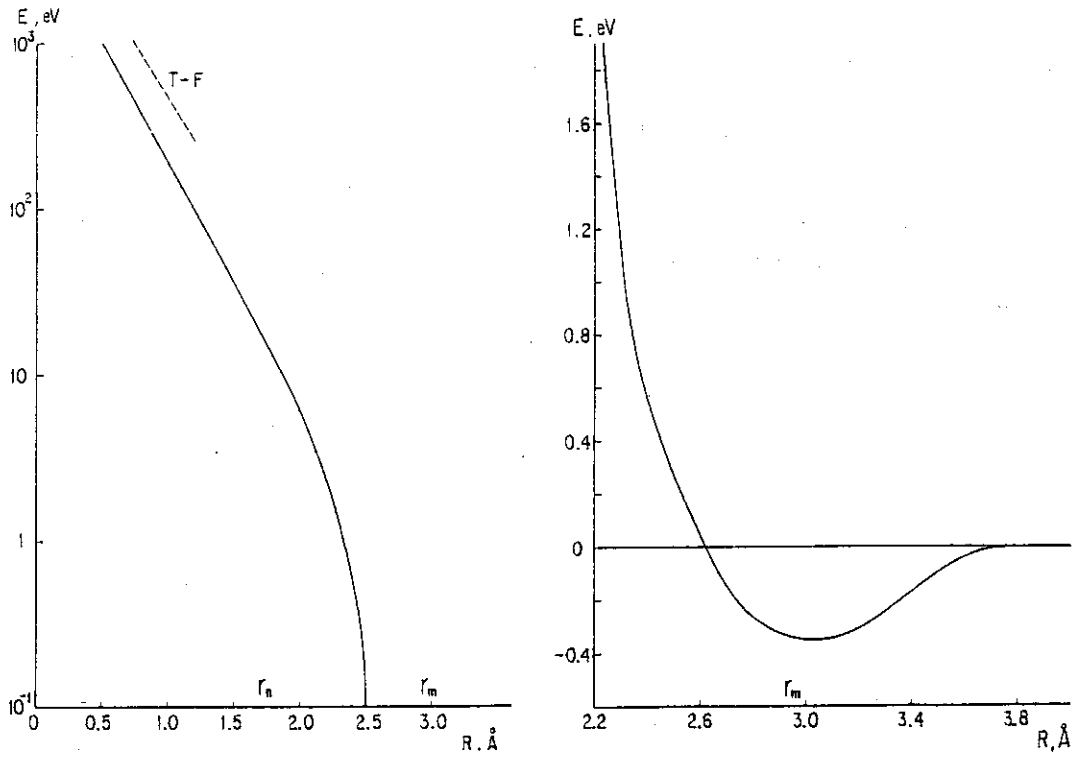


Fig. 1 Moに対する原子間ポテンシャル。<sup>4)</sup>点線はFirsovのThomas-Fermiポテンシャル

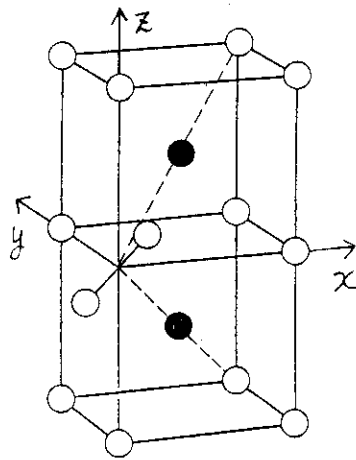


Fig. 2 ダンベル型格子間原子とそのまわりの原子。ダンベル型格子間原子は(0,0,0)の位置で $\langle 101 \rangle$ の方向を向いている。 $[111]$ ,  $[100]$ の方向についてそれぞれ等価でない2つの向きがある。

にある原子の位置でも顕著に現われる。これと同様な向きによる原子配置の相違は、他の方向に対しても存在する。たとえば、(2, 0, 0)の原子が、4.5%外へ動いた位置になるのに対して、(0, 2, 0)の原子は、2.1%へ動いた位置をとる。

このことは、フレンケル対の安定性に対しても重要な影響がある。フレンケル対の安定性は、[110]ダンベル型の格子間原子があるときの結晶をあらかじめつくっておき、空孔を様々な位置につくったときに安定かどうかを分子動学的に調べたものであるが、上に述べた向きによるフレンケル対の安定性に対する影響は、たとえば、Fig. 2の格子間原子の配置のとき、稠密線上  $\langle 11\bar{1} \rangle$ の向きの位置に空孔があると、そのフレンケル対は、比較的不安定であるのに対して、稠密線上  $\langle 11\bar{1} \rangle$ の向きでは、比較的安定であるという結果をもたらす。そして、最近接位置(1, 1,  $\bar{1}$ )に空孔がある場合においてすら、安定にフレンケル対が存在する可能性があることが見い出された。フレンケル対の安定性については、Table 1にまとめてある。

こうして求められたフレンケル対の安定性から、実験で求められているものと対応するフレンケル対の再結合領域がただちに求められると考えるのは正しくない。同じ配置のフレンケル対ができるかどうかという場合でも、それにいたる過程によって、周囲の原子の配置および運動状態は様々であって、厳密には、どういう過程を経たフレンケル対かによって安定性も異なる。実験では、周囲の原子の擾乱が大きく、しかも格子間原子が、はじめから安定したダンベルの位置にあるわけではないので、フレンケル対は不安定になりやすい。そこで、実験で求めた再結合領域は、ここで計算した、フレンケル対の安定性から求めた再結合領域よりも広くなると予想される。

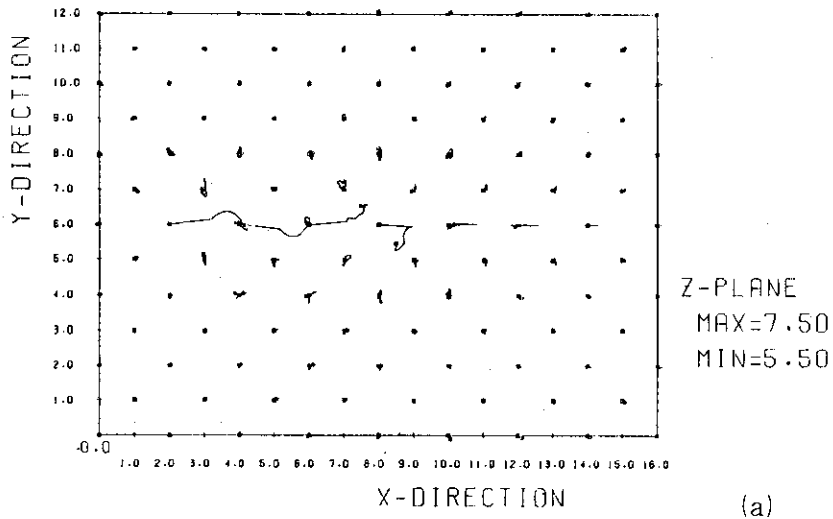
### 3.2 はじき出ししきいエネルギーの異方性

はじき出しのしきいエネルギーは、完全結晶の中の1つの原子(PKA)に運動エネルギーを与えることを初期条件として、分子動学的計算を行って、フレンケル対ができるかどうかから決定する。3.1でも述べたが、このようにしてできたフレンケル対はすべて[110]ダンベル型であった。また、3.1で示したような空孔と格子間原子が最近接位置にあるフレンケル対も計算の結果できる場合があった。フレンケル対がどのようにできるかを見るために、2つの方向に対する実際の計算例をFig. 3に示す。

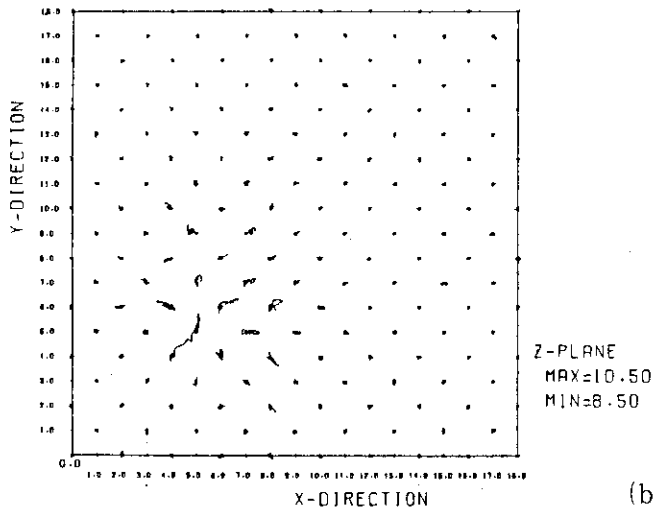
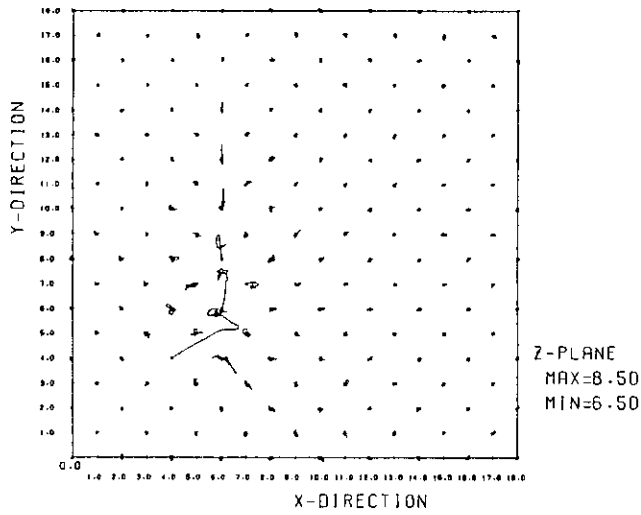
しきいエネルギーの異方性についての計算結果がFig. 4である。計算は、Fig. 4での角度5度おきに行い、34方向が調べられた。Fig. 4は、それら34方向の結果から描かれたものである。比較のために、Feに対する結果も示してある。結晶軸に近い方向では、収束衝突が原因となる原子置換の連鎖によるフレンケル対の生成が重要である。このように、1つの方向の連鎖にエネルギーの多くが伝わり、主として1次元的結晶が乱れるといった比較的「単純な方向」\*と、そのような単純な描像ではよくなく、エネルギーが多くの方向にちらばり、3次元的な結晶の乱れが生じる「複雑な方向」があることが、fcc金属に対して調べられている。bcc金属に対しても、当然同じことが期待される。実際、複雑な方向については、Fig. 5に示すように、PKAのエネルギーの増加に対して、生成するフレンケル対の数が、単調な増加関数になるとは限らないという、

\* ここで注意しなくてはならないのは、単純な方向に対しては、粒子の動きが遠くまで伝わって表面が大きく動く場合があり、計算の信頼性が落ちることである。



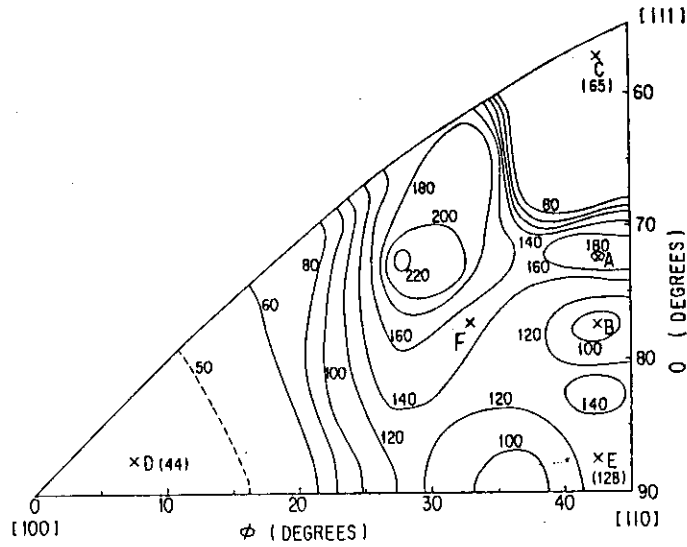


(a)

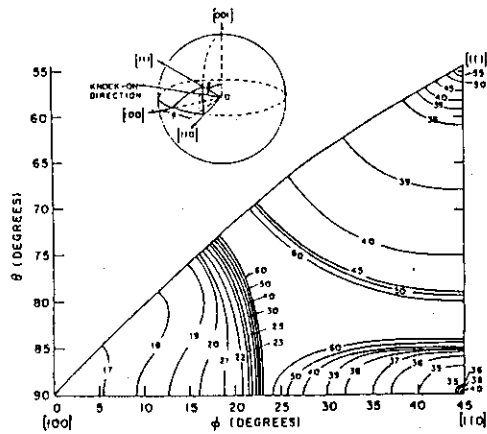


(b)

Fig. 3 フレンケル対ができるときの計算例。(a)はPKAがFig.4のDの方向に初期運動エネルギー57.7eVをもったときのものであり、(b)はPKAがFの方向に144.3eVをもったときのものである。MAX, MINはZ座標がMAXとMINで示される値の間にある原子が描かれていることを表わす。(b)では、Z座標の広い範囲にわたって原子衝突が起こっているために図が2つある。



(a)



(b)

Fig. 4 (a)はMoに対するはじき出しきいエネルギーの異方性。(b)はFeに対するもの。<sup>1)</sup>

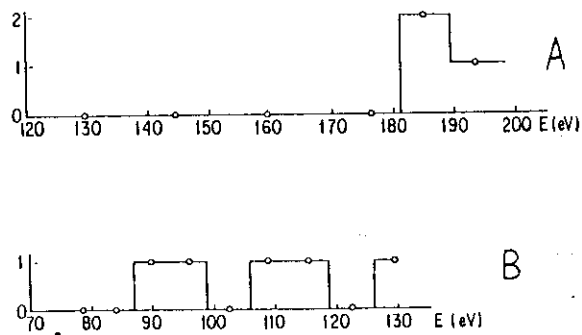


Fig. 5 Fig. 4でのA, B方向に対して, PKAのエネルギーを横軸に, 生成したフレンケル対の数を縦軸にとったもの。

複雑な方向で特徴的な現象<sup>2)</sup>が見いだされた。

単純な方向と複雑な方向の存在という観点から Fig. 4 を見てみると、Mo では〔111〕の単純な方向が Fe に比較してかなり狭く、Fe の場合は〔110〕周辺に単純な方向が存在するのに対して、Mo では存在しない。また、しきいエネルギーのそれぞれの結晶軸方向の比  $T_d[111]/T_d[100]$ 、 $T_d[110]/T_d[100]$  も Fe と Mo とでは大きく異なっている。これらのことは、異方性について、格子間距離やポテンシャルのパラメータに対する単純なスケールリングが成り立つ可能性の薄いことを示している。すなわち、個々の原子-原子衝突の詳細が、異方性に反映してきていると言えよう。

#### 4. まとめ

GRAPE コードによる計算機実験は、フレンケル対の安定性やはじき出しエネルギーの異方性といった複雑で理論的取り扱いの極めて困難な問題に対して、実際に「解」が求まるという意味で有効な手段である。しかし、前にも述べた様に、求まった「解」は、主として、粒子間相互作用の不確定さと、結晶の大きさが有限であることによる表面の取り扱いの不完全さによって本当の解とは言えない。今後、粒子間相互作用の取り方と表面の取り扱いの改善が必要である。現在のところ、GRAPE コードを用いた計算機実験での「解」は、より物理的である実験や理論を発展させていく上での手掛りとして受けとめることができる。

次に、ここで得られた結果をまとめておく。フレンケル対の安定性に対して、格子間原子と空孔との間の距離と方向だけでなく、格子間原子のダンベルの向きが本質的な役割をしていることが明らかになり、その結果、格子間原子と空孔が非常に近い位置にあるフレンケル対が安定に存在している可能性もある。はじき出しのしきいエネルギーの計算では、単純な方向と複雑な方向を含めた全方向に対して系統的に計算が行われ、Fig. 4 の結果が得られた。そして、単純な方向と複雑な方向の存在が、bcc 金属に対しても重要であることを示した。

最後に、GRAPE コードでは膨大な運動方程式を解いているので、計算時間がかかなり必要である。我々の異方性の計算では、34 方向に対して 200 時間程度が必要であった。使用した計算機は FACOM M200 である。

#### References

- 1) J.B. Gibson, A.N. Goland, M. Milgram, and G.H. Vineyard, Phys. Rev. 120 (1960) 1229.  
C. Erginsoy, G.H. Vineyard, and A. Englert, Phys. Rev. 133 (1964) A595.
- 2) J.O. Schiffgens and R.D. Bourquin, J. Nucl. Mater. 69 & 70 (1978) 790.  
W.E. King and R. Benedek, Phys. Rev. B23 (1981) 6335.
- 3) V.M. Agranovich and V.V. Kirsanov, Fiz. Tverd. Tela, 11 (1969) 674.  
[Sov. Phys.-Solid State, 11 (1969) 540.]

- 4) R.A. Johnson and W.D. Wilson, in Interatomic Potentials and Simulation of Lattice Defects, ed. by P.C. Gehlen et al. (Plenum, 1972).

Table 1 ダンベル型格子間原子が (0, 0, 0) の位置に <101> の方向で存在するときの空孔の位置とそのフレンケル対の安定性 (Fig. 2 参照)

空孔の座標	pairの距離		空孔の座標	pairの距離	
(1, 1, 1)	$\sqrt{3}$	不安定	(3, 1, -1)	$\sqrt{11}$	安定
(1, 1, -1)	$\sqrt{3}$	安定	(2, 2, 2)	$2\sqrt{3}$	不安定
(2, 0, 0)	2	不安定	(2, 2, -2)	$2\sqrt{3}$	安定
(0, 2, 0)	2	安定	(4, 0, 0)	4	安定
(2, 2, 0)	$2\sqrt{2}$	不安定	(4, 0, 2)	$2\sqrt{5}$	安定
(2, 0, 2)	$2\sqrt{2}$	安定	(4, 0, -2)	$2\sqrt{5}$	安定
(2, 0, -2)	$2\sqrt{2}$	安定	(3, 3, 3)	$3\sqrt{3}$	不安定
(1, 3, 1)	$\sqrt{11}$	安定	(0, 6, 0)	6	安定
(3, 1, 1)	$\sqrt{11}$	安定	(4, 4, 4)	$4\sqrt{3}$	安定

## 6. 多重衝突法による材料中の原子はじき出しカスケード計算

原 研 田次 邑吉

### 1. はじめに、LSS 理論と多重衝突法

高エネルギーのイオン照射により、金属結晶中の原子が格子からはじき出され、更に、勢いを持った原子は他の原子をはじき出すというようにして、はじき出しカスケードが引き起こされる。ここでは、多重衝突法によるカスケードの解析法について述べ、鉄のような重い原子の結晶の中に炭素のような比較的軽い原子が混入した時、カスケードの広がり方にどんな影響をおよぼすか、といった限られた問題を扱う。照射損傷はこのような第一次損傷よりも、それにひきつづいて起る内部組織の変化による機械的性質や容積そのものが変化する第二次損傷の方が重要である。ここでの研究は第二次損傷解析の初期条件となるものである。

入射したイオンがどのような機構で原子や電子にエネルギー伝えるかという問題もそれだけで大きな問題であるが、ここではイオンと原子との間で、または、原子同志の間での弾性的な衝突、および原子の電子を励起してエネルギーを失う電子的損失のみを考慮する。弾性衝突によって、ある値以上のエネルギー ( $E_d$ : はじき出しのしきいエネルギー) を与えられた原子は格子よりはじき出され、また、他の原子と弾性的にあるいは非弾性的に衝突するというようにして、はじき出しのカスケードが生ずる。イオンや原子のエネルギーがある程度高い時は、このような2体衝突による近似が適用出来るけれども、次第にエネルギーを失った原子は結晶内で多体相互作用をこうむる。このエネルギー領域ではカスケード像は成立しないけれども、原子の飛程は小さくカスケード全体の広がりからすればそれは無視しうる。ただし、この多体相互作用は、はじき出しのしきいエネルギーや生じた欠陥の安定性等の問題と関連しており、損傷解析の本来的な問題に帰着するものである。

カスケードを扱う理論としては、大きく分けてLSS理論<sup>1)</sup>と多重衝突法の2ケがある。LSS理論は確率論的な扱い方で輸送理論の一部とみなし得る。輸送理論との関連は付録に示されている。LSS理論はモーメント法により簡便に扱う事ができ、経験的に有用である事が知られているが、異方散乱の扱い方に限界があると考えられる。また、上に述べたような微小な混合物の効果は断面積の計算での平均操作の中であらわれてしまい、扱いがむつかしくなるものと考えられる。

一方、多重衝突法はカスケードの2体衝突を計算機でシミュレートしてゆく手法であり、その計算コードとして、CASCADE/CLUSTERコード<sup>2)</sup>、MARLOWEコード<sup>3)</sup>などが知られている。この手法では、2体衝突の解析において原子の飛行方向が絶対方向で扱われるため、LSS理論では十分に解析しえなかった異方(前方)散乱の効果も解析出来るメリットがある。実際に、LSS

---

Analyses of Atomic-Displacement Cascades in Solids by the Multiple-Collision Method, Yukichi Taji, JAERI

理論による Brice のコード<sup>4)</sup>と多重衝突法による MARLOWE コードにより計算した欠陥の深さ方向分布を比較したものが Fig. 1 に示されている。これはいずれも 1 MeV の炭素イオンを鉄に照射した場合で、LSS 理論の方は各場所での発熱量を通じて計算したものであるが同一の物理量で比較してある。LSS 理論の方が平均値として浅く分布しており、分布の広がり方もやや異なった形をしている。他の例でも同様な傾向を示しており、両者の手法の差が出ているものとみなされる。

多重衝突法のもう一つの特長は、微小な混合物の効果も扱えるのではないかと言う事である。これは、LSS 理論におけるような平均操作を行わず、ある確率で不純物原子と衝突する時、衝突過程が正しく力学的に扱われるからである。それで次のような問題を設定して、比較的軽い混合物の効果調べた。「1 MeV の炭素イオンを、純鉄と炭素を 1% 含んだ鉄に照射した時、両者の欠陥の深さ方向分布はどうなるか」、という事である。鉄の結晶はガンマ鉄を模擬して面心立方格子とし、混合物の配位は格子間位置にあるのが現実に近いのであろうが、ここでは格子位置の鉄原子を確率的に 1% だけ置き替えるという近似を行う。また、カスケードにより生じたフレンケル対のうち、自発的な再結合領域内にとどまった対は再結合させる処理も行う。更に生じた欠陥のうち格子間原子は単独なもののみを 10 ステップだけ酔歩させて再結合領域内に入ったものを焼きなますという試みも行う。これは 300K で  $10^{-7}$  秒程度の焼きなましに相当する。

## 2. 計算スキームと計算条件

イオン照射によるカスケード、およびそれにより生じた欠陥の焼きなましをシミュレートするコード・システムとして、すでに CASC MARL コード<sup>5)</sup>が開発されている。ここでは、このシステムを Fig. 2 のようなスキームで利用する。すなわち、1 回のイオンの入射によるカスケードのシミュレーションを MARLOWE コードで行ない、CLUSTER コードにより生じた空孔と格子間原子のクラスターの大きさや位置を分類し、DAIQUIRI コード<sup>6)</sup>により自発的再結合領域内にあるフレンケル対を消滅させ、孤立した格子間原子を酔歩させて焼きなましを行う、次のイオンは新しい結晶に入射させて同様な計算を繰り返す、結果を重ね合わせるという近似を行う。重照射の効果はここでは計算機の容量の制約により取り入れる事が出来なかった。このように重ね合せによって得られた各計算段階における欠陥の表面からの深さを PLOT ルーチンで計算して、図形により出力する。

弾性散乱のポテンシャル関数としては、Thomas-Fermi ポテンシャルを次のような Moliere 近似で求めたものを用いる。

$$\left. \begin{aligned} V(r) &= (Z_1 Z_2 e^2 / r) f(r) \\ f(r) &= 0.35 y + 0.55 y^4 + 0.1 y^{20}, \quad y = \exp(-0.3 r / a_{12}) \\ a_{12} &= (9 \pi^2 / 128)^{1/3} a_B (Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{-2/3} \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

ここで  $a_B$  は Bohr 半径である。 $a_{12}$  は、鉄-鉄の場合は  $0.0996 \text{ \AA}$  であり、鉄-炭素の場合は  $0.1217 \text{ \AA}$  であり、炭素-炭素の場合は  $0.1624 \text{ \AA}$  である。鉄の面心立方格子における最隣接距離が  $2.58 \text{ \AA}$  であるのに比して、 $a_{12}$  はかなり小さいと言える。非弾性散乱によるエネルギーの散逸は次のように計算する。

$$Q(E, s) = 0.45 (k \sqrt{E} / \pi a_{12}^2) \exp(-0.3s / a_{12}) \quad (2)$$

ここでEは入射エネルギー、sは衝突径数である。このQを全平面で積分するとLindhardの電子的阻止能と一致する。すなわち

$$S_e = k \sqrt{E} = 2 \pi \int_0^{\infty} ds s Q(E, s) \quad (3)$$

実際の計算では衝突径数の最大値RBは0.48格子単位が用いられた。RBを大きくするとチャンネルリングが多くなり計算の効率がわるくなる。

計算に用いられたはじき出し閾いエネルギー( $E_d$ )、結合エネルギー( $E_b$ )及び計算打ち切りエネルギー( $E_{cut}$ )はTable 1のとおりである。次にカスケード過程でははじき出し反応、置換反応、格子間原子の形成等の各反応の区分及びそれらのエネルギー統計の仕方につきまとめておく。入射原子のエネルギーを $E_1 + T + Q$ とし、標的原子と衝突して、Qは非弾性的に散逸し、Tは標的原子の運動エネルギーとなり、入射原子は $E_1$ のエネルギーを持つに至るとする。標的原子は $T > E_d$ の時、格子からはじき出されるけれども、結合を切断するのに $E_b$ を消費し、 $E_2 = T - E_b$ のエネルギーを持ってカスケード過程に加わるとする。各反応の分類はTable 2にまとめておく。

入射エネルギーのうち損傷の形成に費されたエネルギーを損傷エネルギーと呼ばれ、次のように定義される。

$$[\text{損傷エネルギー}] = [\text{入射エネルギー}] - [\text{電子的損失}] \quad (4)$$

この(4)式の右辺の各値は上記のようなカスケードの扱い方の中で完全に決まるけれども、実際の中味は、Table 2から分かるように、結合切断のためのエネルギーとしきい値以下反応に費したエネルギー、それに、計算打ち切りによる残留運動エネルギーという事になる。このうち、残留運動エネルギーの全部が核的損失に含まれるかどうか疑問であるが、ここでは(4)式を用いる。

入射方法は、1MeVの炭素イオンを、ミラー指数(3, 4, 7)の表面へ垂直に打ち込んだ。平面上の位置は乱数で決める。標的が純鉄(Case A)の場合も、炭素を1%含んだ鉄(Case B)の場合も、共に243個のイオンを入射した。

### 3. 計算結果

カスケード過程をMARLOWEコードによりシミュレートした結果の各事象の集計がTable 3に示されている。Case Aは純鉄の場合で、Case Bは炭素が1%含んだ鉄の場合である。たとえばCase Aの場合、1イオン入射につき平均として9817回の衝突が起き、1052回のはじき出し反応が起き、そのうち388個が置換反応であった(1の誤差は平均による)。そのため、残った空孔は663個で、格子間原子は664個(1個は入射したイオン)であった。Case Bの場合も、Table 3より同様に解釈できる。また、損傷エネルギーとして費された割合は、Case Aで7.61%であり、Case Bで6.96%であった。すなわち、炭素を1%含んだ鉄の方が、損傷エネルギーは9.3%だけ少なくなり、生じた欠陥の数も6.9%だけ少なくなるという結果を得た。

以上はカスケード過程の直接の結果であるが、再結合領域内に接近しているフレンケル対を消滅させ、更に孤立している1-格子間原子だけをそれぞれ10ステップだけ酔歩させた結果がTable 4に示されている。各計算段階で欠陥の数は減少しているが、Case AとCase Bの間の比

率は変化していない。なお、自発的な再結合領域の判定は Gibson et al.<sup>7)</sup> による銅に対する値を用いた。また、10ステップの酔歩は鉄の場合、300 K で  $10^{-7}$  秒程度の焼なましに相当する (移動エネルギー = 0.33eV)。各計算段階における欠陥クラスターのサイズ分布は Table 5 に示されている。カスケード過程の直接の結果 (stage 1) では、生じた最大の空孔クラスターは Case A で 30、Case B で 29 であったが、自発的に崩壊するので、Table では 15 まで示した。格子間原子のクラスターが若干、生長したかのように見えるが、より大きなクラスターが分裂して生じたものであり、生長とは言いがたい。カスケードが次第にエネルギーを失うにつれて、原子間相互作用の範囲は急に広くなり、多体間相互作用が生じ、二体衝突による取り扱いは近似的となる。また、欠陥クラスターの安定性の問題は多体的であり、統計的であり、今後、更に検討する必要がある。

次に生じた欠陥の表面からの深さ方向分布について、Case A と Case B が比較された。Table 6 は生じた欠陥の平均の深さであり、空孔と格子間原子の各々のすべてについての平均で、各計算段階に分けて示してある。深さ方向の分布は Fig. 3 ~ 6 に示した。グラフはクラスターの大きさで分けられており、 $[L=1]$  は、欠陥のすべての数について、 $[L=2]$  は単独なものを除いて、2 クラスター以上のものを構成する欠陥の総数である。Fig. 3 が純鉄の Case A の空孔の深さ方向分布であり、Fig. 4 が同じく Case A の格子間原子の深さ方向分布である。Fig. 5 と Fig. 6 が混合物の入った Case B の場合である。結果は、いずれの場合も Case B の方が 6.9% だけ深く分布している事を示している。

最後に、入射した炭素イオンがどんな深さで停止したかを示したのが Fig. 7 である。両 Case とも 243 個のイオンが分布しているが、バラツキが大きい。表面付近にピークがあるのは、表面の外側から入射したため、正面衝突に近いものがそのまま停止したものと考えられる。

#### 4. 結 論

計算は十分に収束したとは言えないけれども、純鉄と炭素を 1% 混入した鉄の 2 ケの場合、明らかに異なる結果を得た。炭素原子は鉄原子に比して軽く、相互作用の範囲は広いという特徴を持つ。故に、炭素原子はカスケードの中に取り込まれ易く、大きな速度を得て、エネルギーを電子的損失により多く消費する。結局、軽い原子の混入は、欠陥を広く分散させるが、損傷エネルギーは減少し損傷を少なくする働きをすと言えらる。ただし、軽い原子のこの働きはカスケード過程の第一次損傷に対してのみ言える事であって、第二次過程にどんな影響を与えるかは、また別の研究をまたねばならない。

損傷の深さ方向分布に関しては、LSS 理論により大部分は解析できるけれども、より正確に、あるいは、微小な混合物の効果を求めようとする、多重衝突法が必要になる。この手法は計算時間もかかり (上の場合、FACOM の M 200 で約 20 時間)、データ管理も手間がかかるので、より合理的なシステムが望まれる。混合物の配置は、格子点でなく、格子間位置におかれねばならない。これにより、混合物の効果はより一層顕著になるであろう。他に、多体相互作用の効果、重照射の効果、焼なまし法等、多くのむづかしい問題が残ったが、また研究の発展をまたねばならない。



## 謝 辞

本研究に対して有益な助言を戴いた材料物性研究室の白石健介氏と有賀武夫氏に感謝します。図形処理については原子炉システム研究室の筒井恒夫氏にお世話になった。計算システムについては原子炉工学部の朝岡卓見氏の開発したものを利用して戴いた。また、固体物理第1研究室の小沢国夫氏、固体物理第2研究室の岩田忠夫氏、横田光史氏には色々お世話になり感謝します。

## 参 考 文 献

- 1) Lindhard J., Nielsen V., Scharff M. and Thomsen P.V.: "Integral Equations Governing Radiation Effects", Mat. Fys. Medd. Danske Vid. Selsk., 33, No.10 (1963); Lindhard J., Scharff M. and Schiøtt: "Range Concepts and Heavy Ion Ranges", *ibid.* 33, No.14 (1963)
- 2) Besco D.G., Baumgardt N.R.: "CASCADE and CLUSTER", GEMP-356 (1965)
- 3) Robinson M.T., Torrens I.M.: "Computer Simulation of Atomic-Displacement Cascades in Solids in the Binary-Collision Approximation", Phys. Rev. B9, 5008 (1974)
- 4) Brice D.K.: "Ion Implantation Range and Energy Deposition Codes COREL, RASE4 and DAMG2", SAND75-0622 (1975)
- 5) Asaoka T., Taji Y., et al.: "Computer Codes for Simulating Atomic-Displacement Cascades in Solids Subjected to Irradiation", JAERI-M 8178 (1979)
- 6) Besco D.G.: "Computer Simulation of Point Defect Annealing in Metals", GEMP-644 (1967)
- 7) Gibson J.B., et al.: "Dynamics of Radiation Damages", Phys. Rev., 120, 129 (1960)

## 付録 LSS 理論と輸送理論

LSS理論は照射面からの深さ方向の分布を扱う理論であるが、その導出方法が明確でないので、輸送理論との関係を明らかにしておく。イオン輸送と中性子輸送との相異は、イオンの場合は自由飛行程が媒質系の大きさに比して小さく媒質の幾何形状と関係しないという事である。1次元中性子輸送方程式を一般的な輸送方程式から導出する時は、y, z成分を $(-\infty, \infty)$ で積分し、中性子の飛行方向はx軸からの余弦として残される。イオン輸送の場合は、媒質からカスケードの途中でもれ出ることはないから、入射方向の成分のみを追跡するという手法で1次元的な関係式を導出する。輸送方程式は次のように書かれる。

$$\frac{1}{v} \frac{\partial}{\partial t} \rho(\mathbf{r}, \bar{E}, \Omega, t / \mathbf{r}_0, E, \Omega_0, t_0) + \Omega \cdot \frac{\partial \rho}{\partial \mathbf{r}} + N \sigma(\bar{E}) \rho$$

$$= N \int d\sigma (\bar{E}' \rightarrow \bar{E}, \Omega' \cdot \Omega) \rho(\mathbf{r}, \bar{E}', \Omega', t / \mathbf{r}_0, E, \Omega_0, t_0) + S(\mathbf{r}_0, E, \Omega_0, t_0), \quad (\text{A} \cdot 1)$$

ここでSは外部源を表し、場所 $\mathbf{r}_0$ に、エネルギーEの粒子を $\Omega_0$ 方向に $t_0$ 時刻に投入したとする。 $\rho$ はその外部源より生じた $(\mathbf{r}, \bar{E}, \Omega, t)$ の粒子束を表わす。 $d\sigma$ は微分断面積であり、 $\sigma$ は全断面積である。

入射方向 $\Omega_0$ の $\mathbf{r}_0$ からの深さ $x$ 、及び、深さ方向の空間微分は次のように定義される。

$$x = \Omega_0 \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_0), \quad \partial / \partial x = \Omega_0 \cdot (\partial / \partial \mathbf{r}) \quad (\text{A} \cdot 2)$$

エネルギーEで投入した粒子が深さ $x$ でエネルギー $\bar{E}$ で現われる粒子束 $P(E \rightarrow \bar{E}, x)$ は次のように書ける。

$$P(E \rightarrow \bar{E}, x) = \rho(\mathbf{r}, \bar{E}, \Omega_0 / \mathbf{r}_0, E, \Omega_0) \quad (\text{A} \cdot 3)$$

ここで、時間は定常状態として省かれた。以上から分るように、Pについての関係式は(A・1)式において、すべての $\Omega$ を $\Omega_0$ に置きかえる事により得られる。ただし、(A・1)式の右辺第一項において、 $\Omega'$ 方向成分の粒子の効果は、 $\Omega_0$ 方向への射影成分だけが寄与する。すなわち、 $\Omega_0$ 方向の粒子の効果をもとすれば、 $\Omega'$ 方向のそれは $(\Omega' \cdot \Omega_0)$ であるから

$$\rho(\mathbf{r}, \bar{E}', \Omega' / \mathbf{r}_0, E, \Omega_0) = (\Omega' \cdot \Omega_0) \rho(\mathbf{r}, \bar{E}', \Omega_0 / \mathbf{r}_0, E, \Omega_0) \quad (\text{A} \cdot 4)$$

と置かれねばならない。(A・4)式は媒質から粒子が逃げ出さないという前提に立っている。かくして、(A・1)式のすべての $\Omega$ を $\Omega_0$ におきかえ、(A・2)、(A・3)そして(A・4)を用い、エネルギー変数を $T = \bar{E}' - E$ と変換する事により、次式を得る。

$$\frac{\partial}{\partial x} P(E \rightarrow \bar{E}, x) = N \int d\sigma (T, \Omega_0 \cdot \Omega') \{ (\Omega_0 \cdot \Omega') P(E - T \rightarrow \bar{E}, x) - P(E \rightarrow \bar{E}, x) \} \quad (\text{A} \cdot 5)$$

(A・5)式はLSS理論に他ならない。以上のように、LSS理論は入射方向のみの成分を追跡するという意味において1次元的であるが、1次元化の手続きは入っていない。従って、(A・5)式を実際に解く場合には、3次元の考慮を必要とする。

Table 1 Displacement threshold energy ( $E_d$ ), binding energy ( $E_b$ ) and cut-off energy ( $E_c$ ) for the iron and carbon atoms

	$E_d$ (eV)	$E_b$ (eV)	$E_c$ (eV)
Iron	40	20	40
Carbon	3	3	40

Table 2 Classification of events in the cascade process

The incident particle with energy  $E_1+T+Q$  collides with the target atom to give energy  $T$ . The  $Q$  is lost for the electronic loss and  $E_1$  remains on the incident particle.

	Incident Particle	Target Atom
Displacement	$E_1 > E_d$	$T > E_d$ (A)
Proper replacement	$E_1 < E_d$ (B)	$T > E_d$ (A)
Improper replacement	$E_1 > E_d$	$T < E_d$ (B)
Interstitials	$E_1 < E_d$ (B)	$T < E_d$ (B)

The (A) and (B) denote the energy loss due to the cutting of bindings and the subthreshold collision, respectively.

Table 3 Results of displacement cascades in the pure ion (Case A) and the iron containing carbons (Case B). Normalized to an injected ion.

Number of	Case A	Case B
Collisions	9871	9920
Atoms involved	1053	976
Vacancies remaining	663	620
Interstitials remaining	664	621
Proper replacements	388	355
Improper replacements	0	0
Energy (eV)		
Inelastic loss	923871	930382
Remaining kinetic	17513	15579
Subthreshold loss	37271	34633
Lost to binding	21058	19140
For damage	76076	69593
Conservation test	999713	999734

Table 4 Number of defects yielded at each simulating stage. Normalized to an injected ion.

	Case A		Case B	
	Vac.	Int.	Vac.	Int.
Stage 1	663	664	619	620
Stage 2	271	272	253	254
Stage 3	161	162	150	151

Table 5 Size distribution of defect clusters at each simulating stage. Normalized to an injected ion.

size	Case A						Case B					
	Stage 1		Stage 2		Stage 3		Stage 1		Stage 2		Stage 3	
	V	I	V	I	V	I	V	I	V	I	V	I
1	186.3	521.5	170.3	263.4	112.7	129.6	174.2	487.9	156.3	244.9	103.7	121.0
2	50.3	54.5	32.6	4.51	17.7	14.8	46.5	49.9	31.0	4.34	17.0	13.9
3	28.3	9.00	7.83	.946-1	3.39	1.10	26.2	8.49	7.40	.140	3.07	.946
4	15.8	1.34	2.08	.823-2	.695	.453-1	14.5	1.36	2.04		.708	.453-1
5	9.24	.313	.626		.119	.823-2	8.69	.308	.511		.156	
6	5.94	.946-1	.119		.164-1		5.56	.823-1	.193		.453-1	
7	4.58	.823-2	.494-1		.0		4.03	.288-1	.494-1		.164-1	
8	3.04	.412-2	.123-1		.823-2		2.91	.411-2	.411-2			
9	2.11		.123-1				2.13		.411-2			
10	1.69						1.40					
11	1.14						1.03					
12	0.774						.770					
13	.580						.617					
14	.407						.403					
15	.251						.272					

Table 6 Mean depth of defects yielded at each simulating stage. Normalized to an injected ion.

	Case A		Case B	
	Vac. (Å)	Int. (Å)	Vac. (Å)	Int. (Å)
Stage 1	7034	7039	7559	7563
Stage 2	7183	7195	7707	7717
Stage 3	7189	7206	7717	7734

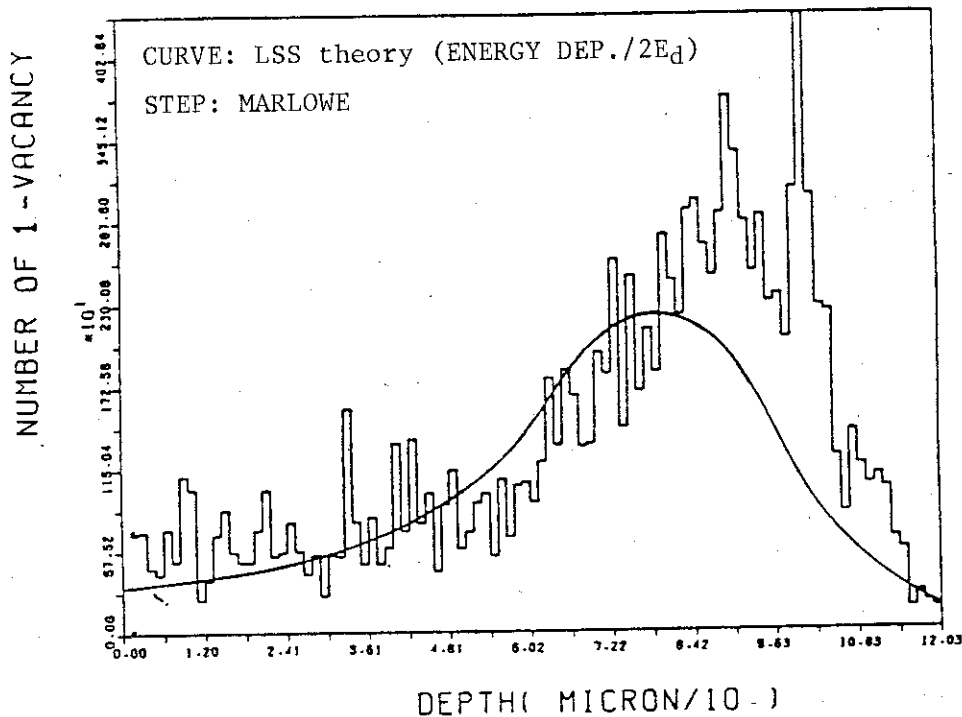


Fig. 1 Comparison of defects distributions in the depth direction calculated by the multi-collision method and the LSS theory. The carbon ions with energy of 1 MeV are injected in the iron target. The mean depth is 7822 Å and 6929 Å in the multi-collision method and the LSS theory, respectively.

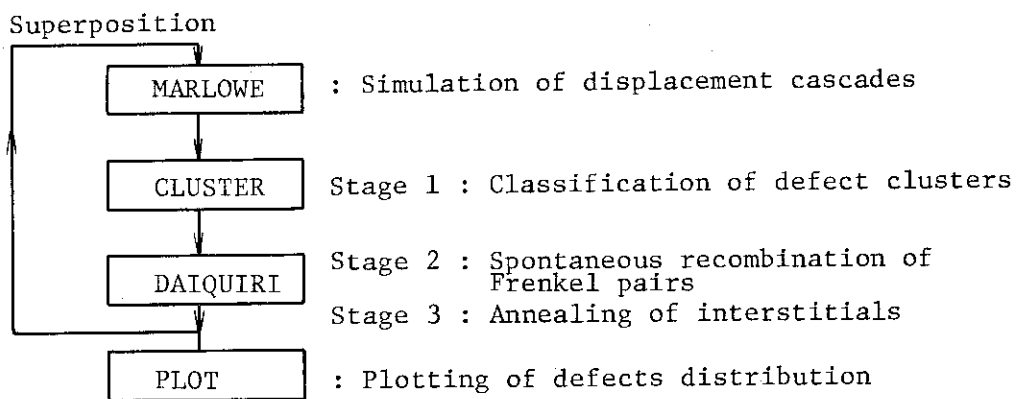


Fig. 2 Flow chart of the CASCMARL code system

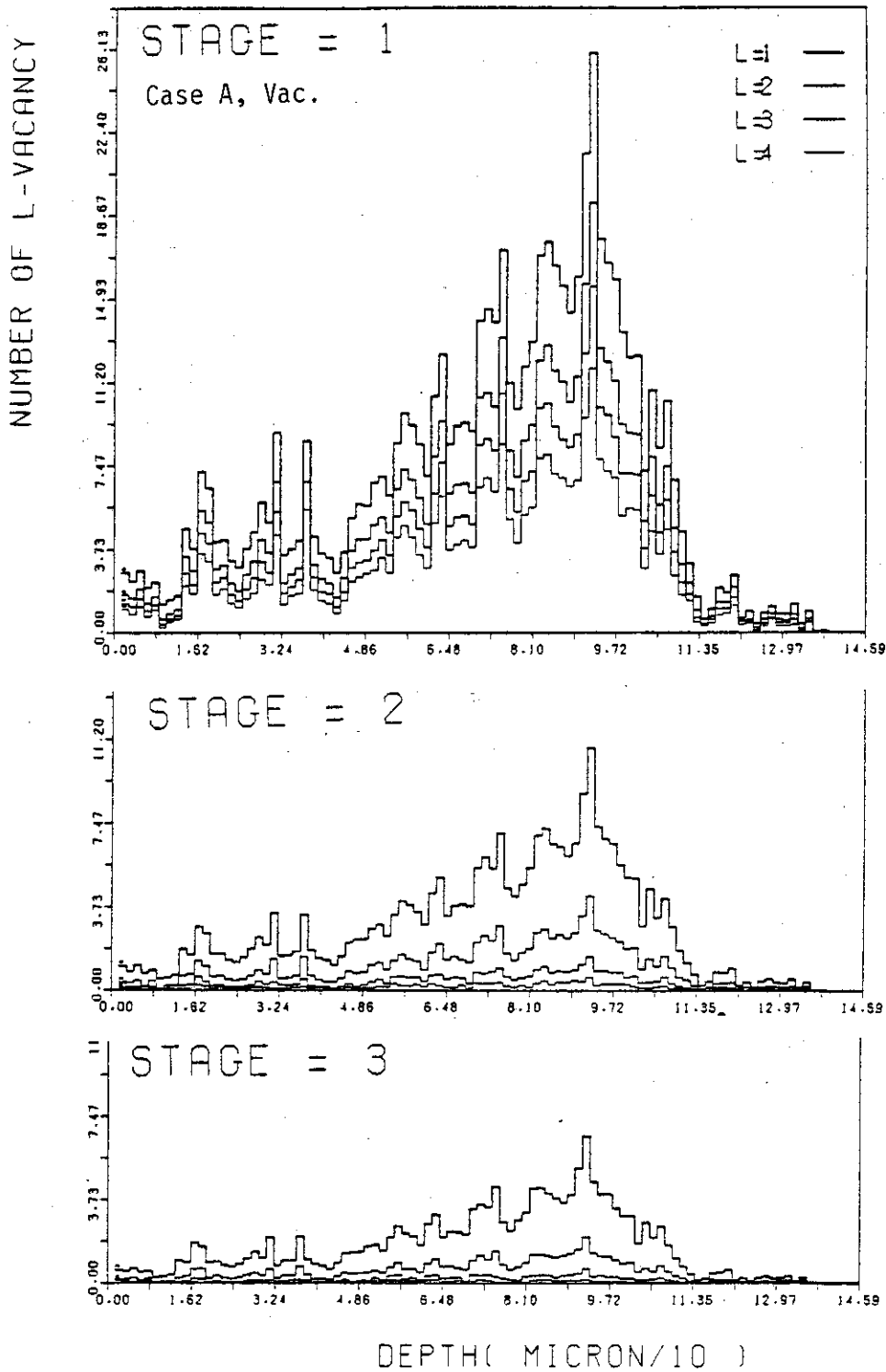


Fig. 3 Spatial distributions of vacancies in the depth direction in the pure iron (Case A) normalized to an injected ion. The stages 1, 2 and 3 correspond to the results of the cascade simulation, the spontaneous recombination and the annealing of interstitials, respectively. The line L means the total number of defected lattices which are included in the clusters larger than L in size.

NUMBER OF L-INTERSTITII

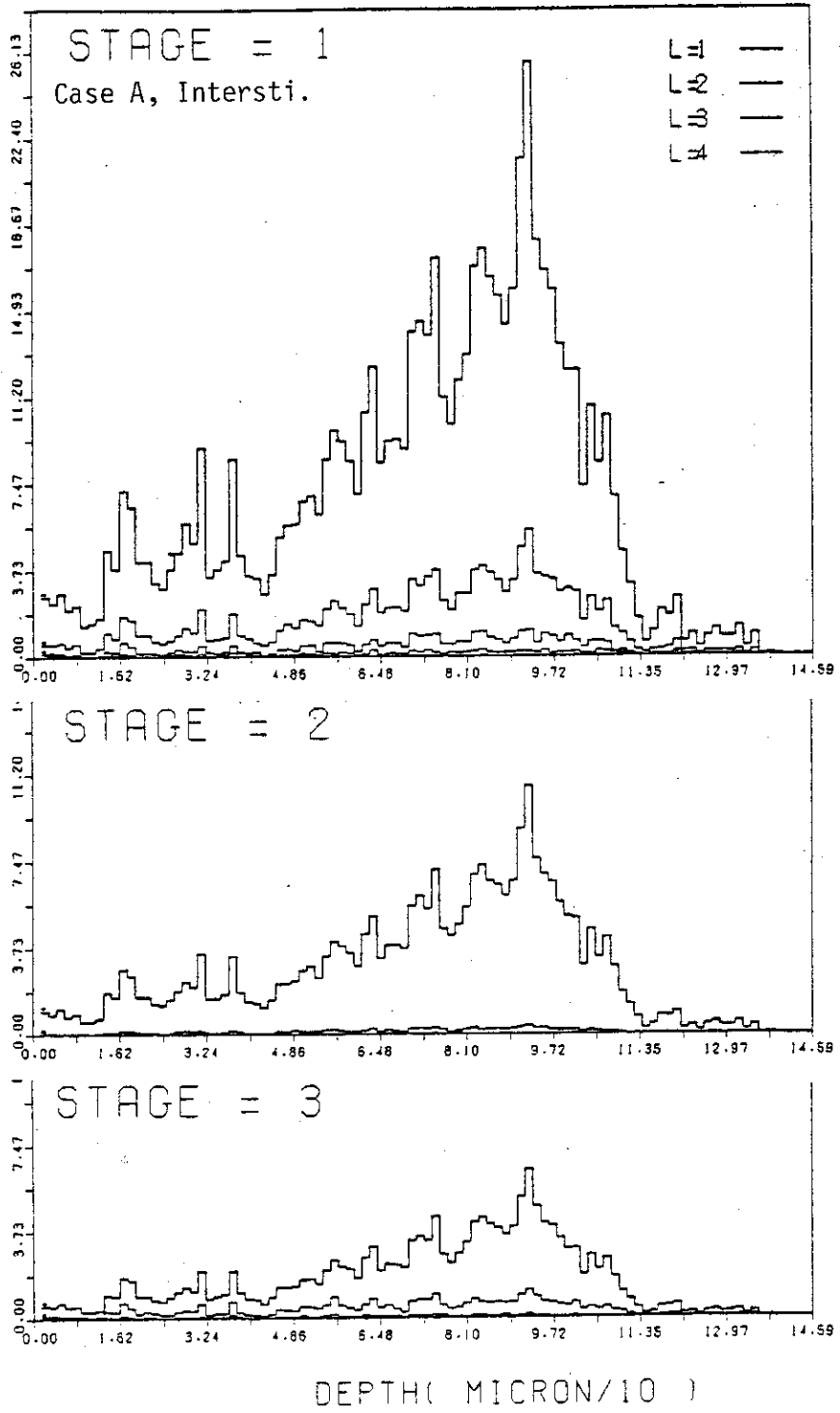


Fig. 4 Spatial distributions of interstitials in the depth direction in the pure iron (Case A) normalized to an injected ion. The notations are the same as those in Fig. 3.



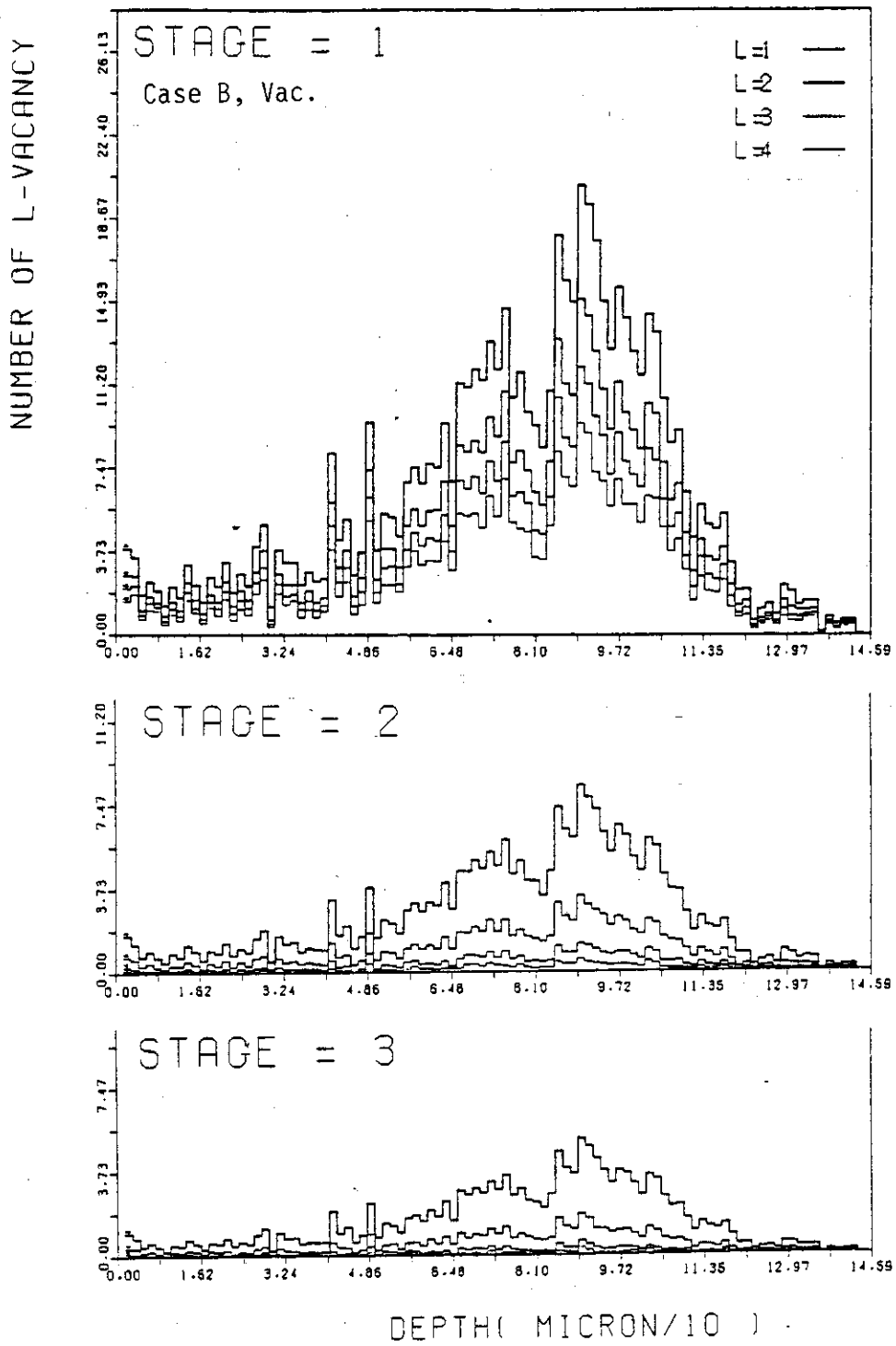


Fig. 5 Spatial distributions of vacancies in the depth direction in the iron containing carbons (Case B) normalized to an injected ion. The notations are the same as those in Fig. 3.

NUMBER OF L-INTERSTITI

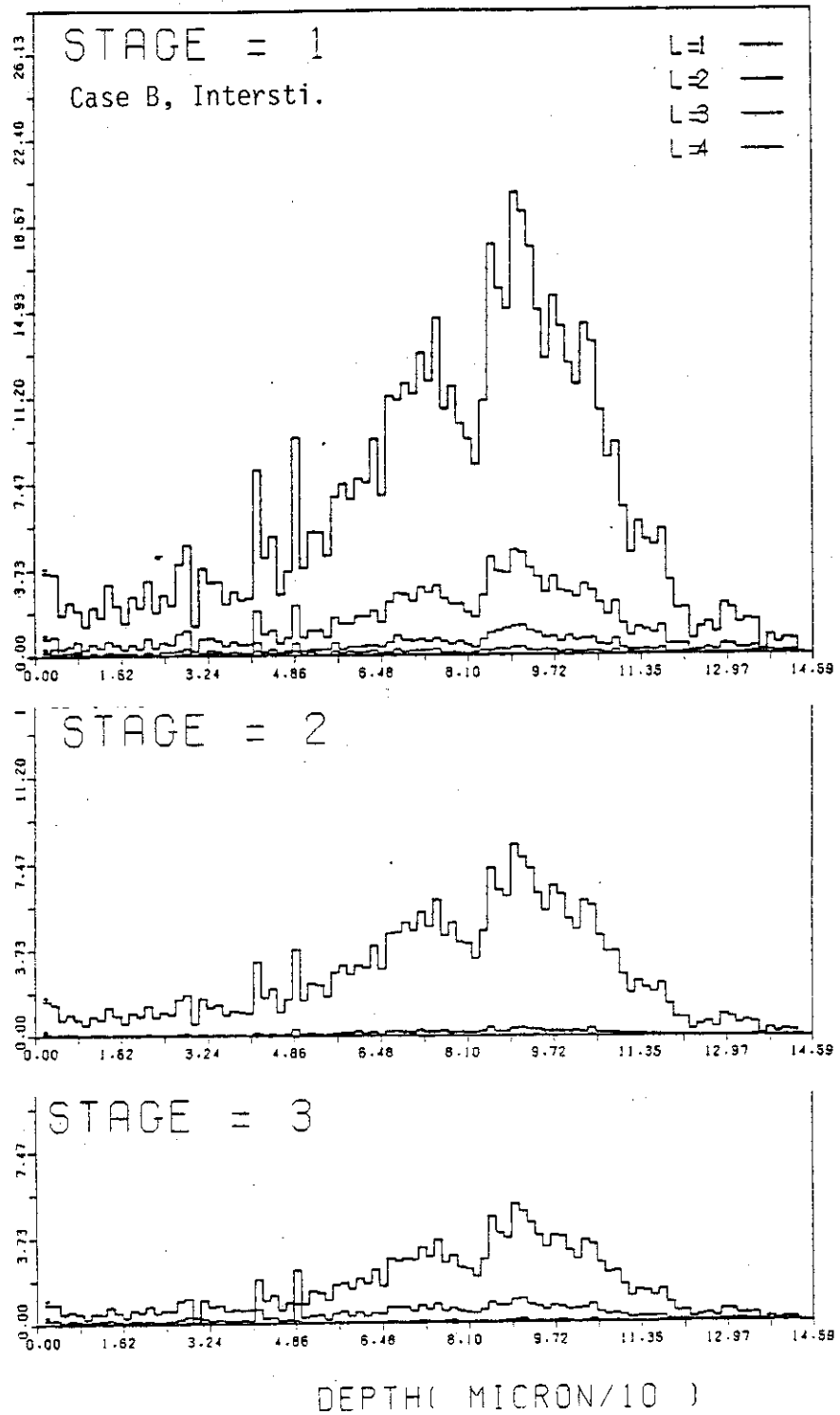


Fig. 6 Spatial distributions of interstitials in the depth direction in the iron containing carbons (Case B) normalized to an injected ion. The notations are the same as those in Fig. 3.

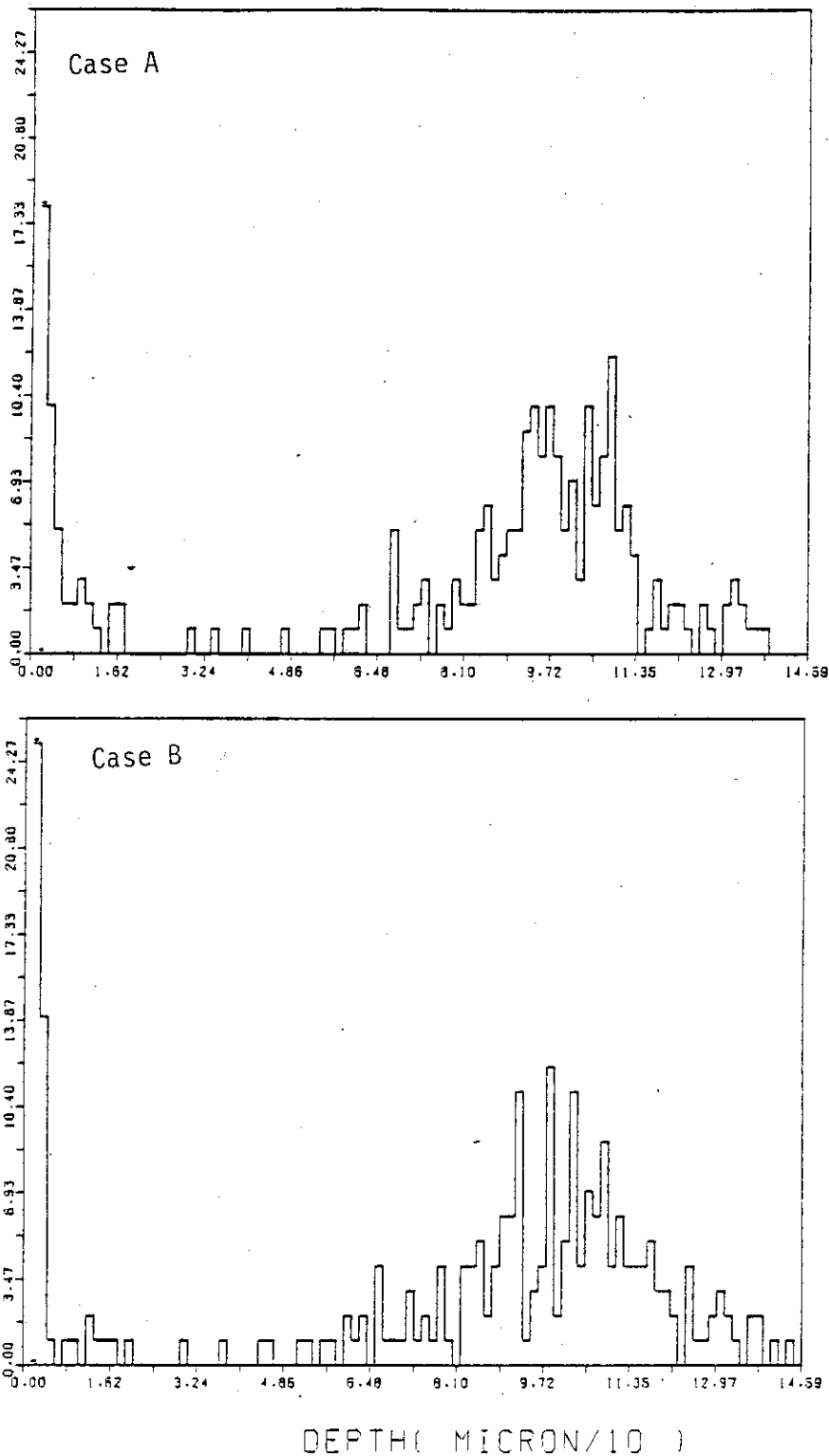


Fig. 7 Spatial distributions in the depth direction with respect to the rest ions injected in the pure iron (Case A) and in the iron containing carbons (Case B). Both the cases are integrated to 243 ions.

## 7. MARLOWE-DAIQUIRIコードを用いたカスケード 損傷のアニーリング計算

東大 工 室賀 健夫

### 1. 緒 言

#### 1.1 核融合炉材料におけるカスケード損傷の問題点

核融合炉材料, 特に D-T核融合炉の場合, 14MeV 中性子照射によって発生する数 $10 \sim$ 数 $100\text{keV}$  の PKA (一次はじき出し原子) によるカスケード損傷が大きな問題となる。カスケード損傷によって生成された, 局所的に高濃度な格子欠陥は, その後の熱的拡散過程をへて, ボイドスウェリングやクリープ等材料特性の変化に重大な影響を与える。特にボイドの核生成や転位の上昇運動等基素事象への効果が大きいと言われている。

しかし現在, 核融合炉そのものが存在しないので, その実験的研究では, 一部の14MeV中性子源を利用した研究以外は, 加速器や核分裂炉を用いたシミュレーション照射実験が行われている。従って理論研究においては, 核融合炉中性子による損傷のみでなく, 種々のエネルギーの中性子, イオンによるカスケード損傷の解析も重要な意味をもつと言えよう。

損傷解析においては, 照射下の格子欠陥の挙動のモデリングが必要になるが, 一般の速度方程式による方法では, 欠陥生成が空間的に均一という仮定をせざるを得ない。近年速度方程式の中に種々のカスケード効果 (例えば空孔型ループの直接生成の効果) を取り入れる事も試みられているが<sup>1)</sup>, カスケード構造の詳細の効果についてはほとんど不可能である。

一方, カスケード構造を求める手段として計算機シミュレーションによる方法が開発されているが, これに欠陥の熱的移動によるショートタイム アニーリング計算を接続する事により, 高温でのカスケード損傷の効果の評価が可能になる。この方法は速度方程式ほど長時間の効果の評価は不可能だが, カスケード損傷特有の効果の把握に極めて有力と考えられる。

カスケード損傷の, 組織変化に与える影響は大きく次の様に分類される。

(1) 欠陥の局存による効果

(2) 衝突過程の影響

(1)は, 生き残り欠陥数に影響を与え, また, 局所的クラスタリング, 転位の, 非均質な欠陥流入による不連続な上昇運動, 欠陥濃度のゆらぎによる欠陥集合体核生成への影響などがあげられ, 例えば電子線照射損傷の場合とは大きく異った欠陥組織が形成される。(2)については, 形成された微小析出の再固溶, 空孔クラスター内に捕獲されている He 原子のマトリクスへの再放出などがあげられる。

本報告では主として(1)の効果について, 2体衝突近似法とモンテカルロ法を用いたコードの計

Annealing Simulation of Cascade Damage Using MARLOWE-DAIQUIRI Codes.  
Takeo Muroga, Faculty of Engineering, University of Tokyo.

算によって考察を進める。

## 1.2 カスケード、アニーリング計算の現状と応用例

はじき出しカスケードのシミュレーション計算としては大別して、(1) モンテカルロ法 (2) 完全動力学的方法 (3) 2体衝突近似法 (4) 半動力学的方法 の4つがあげられる。

(1)は初期の吉田<sup>2)</sup>による方法や、石谷 志水<sup>3)</sup>による表面近傍の計算、近年のTRIMコード<sup>4)</sup>等が代表例である。これらは注入イオンの分布、表面現象等の解明には有力だが、結晶性の効果やそれに伴う種々の特性の異方性が取入れられていない事から、カスケード構造の効果の解明にはあまり用いられていない。

(2)は、多体効果を取り入れた計算で、Gibsonら<sup>5)</sup>のGRAPEコードが代表的コードである。この方法は、原子のポテンシャルを考慮して、古典力学により追跡するという基本的な方法をとっている。はじき出しのしきいエネルギーの方向依存性、結晶表面現象、欠陥の生成エネルギー等結晶構造内での基本事象の計算に適している。またカスケード内部での局所的発熱とそれに続く冷却、自発的再結合等の詳細な計算が行われている。しかしこの方法は計算時間の制約により、数千～数万の原子数の範囲に限定されるので、PKAエネルギーに限界があり、空間的に広がったカスケードを追えないので、実用的なシミュレーションを行うには致っていない。

(3)は、原子間衝突を2体間のみの過程として近似する方法で、BeelerらのCASCADEコード<sup>6)</sup>、RobinsonらのMARLOWEコード<sup>7)</sup>等が用いられている。近年数100 keVのPKAによるカスケード構造が調べられ、<sup>8)</sup>サブカスケード、ローブの数を求めその値と材料特性の変化との相関を求める試みが行われている。<sup>9)</sup>これは14 MeV 中性子源を用いた実験との対応という意味で注目されている。2体衝突近似は高エネルギー領域で有効なため、低エネルギー領域での多体効果を取り入れる必要がある場合、運動エネルギーがある値以下になった場合、動力学的方法で取り扱うという方法も試みられている。<sup>10)</sup>

(4)は(2)、(3)の方法の長所を兼ね備える目的として開発されたもので、運動する原子の範囲、エネルギー下限を設ける事により、完全動力学的方法より計算時間を減らしている。この方法はTorrens<sup>11)</sup>によって初めてカスケードシミュレーションに適用され、その後ADDES<sup>12)</sup>、CASSD<sup>13)</sup>等が開発されている。しかしこの方法でもkeV以上のPKAについてはかなりの計算時間を要し、モデルにも改良の余地が残され、今後の課題となっている。

モンテカルロ法を用いたアニーリングシミュレーションコードはBesco<sup>14)</sup>によって初めて開発された。これはDAIQUIRI (Defect Annealing in Quenched or Irradiated Specimens) と呼ばれ、欠陥をその移動エネルギーに従った頻度で1つ1つ計算機のメモリー内で動かし、相互作用の領域に従って、再結合やクラスタリングを行うコードである。その後Doran<sup>15)</sup>はDAIQUIRIコードを改良したANNEALコードにCASCADEコードの計算結果を接続し、種々のカスケード損傷のアニーリング過程の計算を行った。これらは $\alpha$ 鉄(BCC)におけるシミュレーションであったが、その後 $\gamma$ 鉄(FCC)にも応用されている。(HAPFCCコード)<sup>16)</sup>

Doranら<sup>17)</sup>やBeelerら<sup>18)</sup>はカスケード、アニーリング計算の結果から、空孔がクラスターと残って残る割合や自由な空孔が存在する割合をPKAエネルギーの関数として求めている。これらの評価値は、従来のdpaなどよりも、組織変化との対応性が良いと考えられる。

### 1.3 計算の目的と概要

本報告では、 $\alpha$ 鉄についてMARLOWEとDAIQUIRIコードを一部改良して用いたカスケード損傷のアニーリング計算について述べる。特に核融合炉条件と、シミュレーション照射下の欠陥挙動を求める事を目的にする。そのため従来の単なるPKAから出発する計算だけでなく、転位のバイアス効果、イオン照射を模擬した種々の入射粒子による損傷の比較、カスケードの重なり効果の計算を行う。なお、一部の結果はすでに報告されているので参照されたい。<sup>19)</sup>

## 2. 計算方法

### 2.1 カスケード計算

カスケード計算においては、2体衝突近似を用いたMARLOWEコードVersion 10を用いた。原子間ポテンシャルはトーマス・フェルミポテンシャルのMolière近似にFirsovの遮蔽定数を用いた。計算はすべて $\alpha$ 鉄(BCC)で行い、はじき出しのしきいエネルギー $E_d$ は40eVを用いた。

### 2.2 アニーリング計算

アニーリング計算はモンテカルロ法を用いたDAIQUIRIコードを改良して用いた。今回の計算での主な改良点は、

- (1) カスケード計算との接続において、得られた欠陥のうち、自発的に再結合やクラスタリングを起こすものを取出し、それぞれ消滅、クラスタ生成を行った。
- (2) 欠陥のジャンプ頻度を変えて、多くの温度においてシミュレーションを行えるようにした。さらに空孔クラスタの移動と熱的な分解、それに対するHeの効果を加えたクラスタリング計算も行った<sup>20)</sup>が本報告では割愛する。

$\alpha$ 鉄での欠陥の基素データはJohnsonの計算結果<sup>21)</sup>を用いた。これは以前のBesco, Doranの計算でも用いられている。ここで特に問題なのは、空孔と格子間原子の再結合領域で、図1はDoranの用いた領域である。<sup>15)</sup>しかし近年は、温度が上がると再結合領域はむしろ狭くなるという見方が一般的になっている。本計算では3.1を除いて図の低温側の値をすべての温度で用いた。

## 3. 計算結果と考察

### 3.1 アニーリングの温度依存性とクラスタ成長

最初に、MARLOWE-DAIQUIRIコードを用いた、20keVのPKAカスケード、アニーリング計算について報告する。ここでは、PKAを10方向にランダムに発生した結果の平均をとっている。また再結合領域は図1の値を用いた。

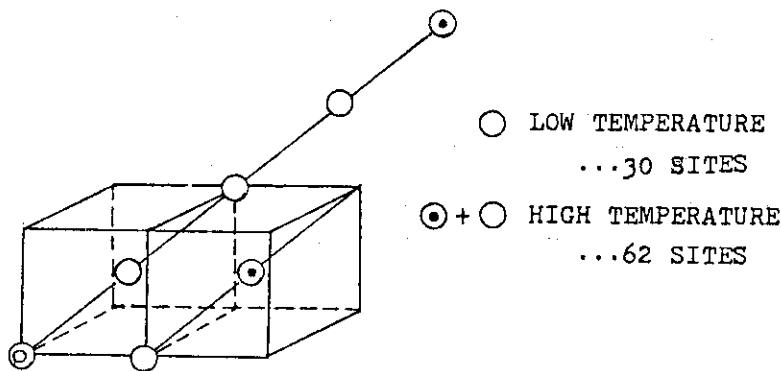


図1  $\alpha$ 鉄におけるフレンケル欠陥の再結合領域<sup>15)</sup>

表1 欠陥の移動エネルギーとジャンプ確率

MODE	DEFECT TYPE	MIGRATION ENERGY	JUMP PROBABILITY
300K	VACANCY	0.68 (eV)	0
INTERSTITIAL	INTERSTITIAL(Unc)	0.33	0.1
MOBILE MODE	INTERSTITIAL(Cor)	0.27	1.0
	DI-INTERSTITIAL	0.18	30.0
300K	VACANCY		1.0
VACANCY	INTERSTITIAL		0
MOBILE MODE			
800K	VACANCY	0.68 (eV)	0.001
	INTERSTITIAL(Unc)	0.33	0.1
	INTERSTITIAL(Cor)	0.27	0.2
	DI-INTERSTITIAL	0.18	1.0

表1は用いた移動エネルギーとジャンプ確率を示している。このデータの多くは Johnson の計算値からとった。ジャンプ確率  $P$  と移動エネルギー  $E^m$  とは

$$P = \mu \nu \exp(-E^m/kT) \quad (1)$$

の関係がある ( $\mu$ ,  $\nu$ ,  $kT$  はそれぞれ1タイムステップの実時間, 熱振動数, Boltzmannエネルギー) ので高温ほど  $\mu$  が小さくなり長時間のシミュレーションが難しくなる。

図2はアニーリング過程における生残りフレンケル対数の時間変化を示す。ここではタイムステップを(1)式に従って実時間に直し示している。300Kの計算では、空孔の動きが他の欠陥に比べ無視はできないが極めて遅いので空孔の動きを無視した計算に、空孔を動かす計算を接続し、実時間に換算して1つの曲線で表わした。300Kと800Kと比べると、アニーリングの進行が800Kのほうがかなり速く、 $10^{-7}$ 秒ほどで、ほぼ定常になっている事がわかる。この違いはカスケードの重なるの効果を考える場合大きなファクターになる。生残り欠陥数に大きな差が見られるが、これは高温で再結合領域を広げた事による影響が大きい。300Kでは空孔が動いても生残り欠陥数にほとんど変化がないのは興味深い結果だが、この時点では後で示される様に主として空孔のクラスタリングが起っている。

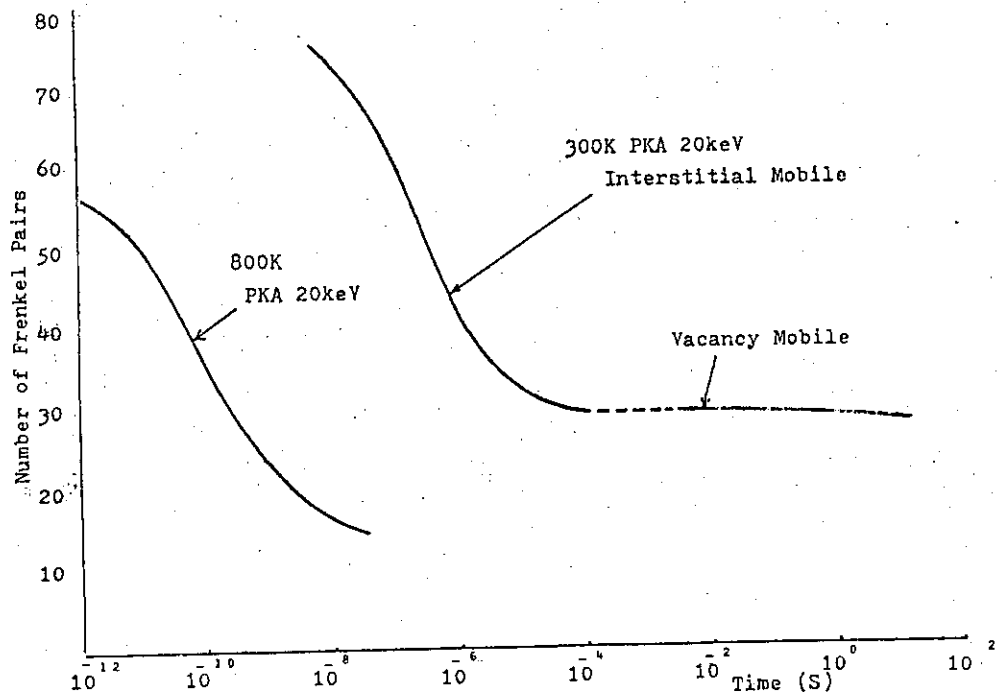


図2 20 keV PKAによるカスケードのアニーリング曲線

図3は300Kでのアニーリング過程における欠陥クラスターのサイズ分布の変化を示している。aはカスケードが生成し、自発的再結合とクラスタリングが行われた直後、bは格子間原子の移動によるアニーリングがほぼ終了した時、cは空孔の移動によるアニーリングがほぼ終了した時を示している。図からわかる様に、移動欠陥と同種のクラスターは成長し異種のクラスターは縮小している。またDi-interstitialの様に易動度の高い欠陥の濃度は低い事がわかる。

### 3.2 カスケードの重なる効果

カスケードの重なる効果は、重照射損傷を考える場合に評価しておく必要があるが、本計算を実際の照射条件に合わせて組み合わせるのは、計算時間やメモリーの制約上不可能である。従ってここでは、カスケードが極端に重なった場合の変化を調べそれらのデータの内挿として現実的な評価を行うという方向をとる事にする。その第一歩として、50keV PKAのカスケードを2つ、空間距離と時間間隔を変えて重ね合わせる計算を行う。計算の手順は

- (1) MARLOWEを用い50keVカスケードの計算を行う。
- (2) 定められた時間だけアニーリングを行う。
- (3) もう1つの50keVカスケードを定められた距離だけ離して、重ねる。ここで同一場所に欠陥が重なる場合には、クラスタリングか再結合を行う。
- (4) 全体のアニーリングを行う。

計算は300Kで格子間原子のみが動く仮定した。



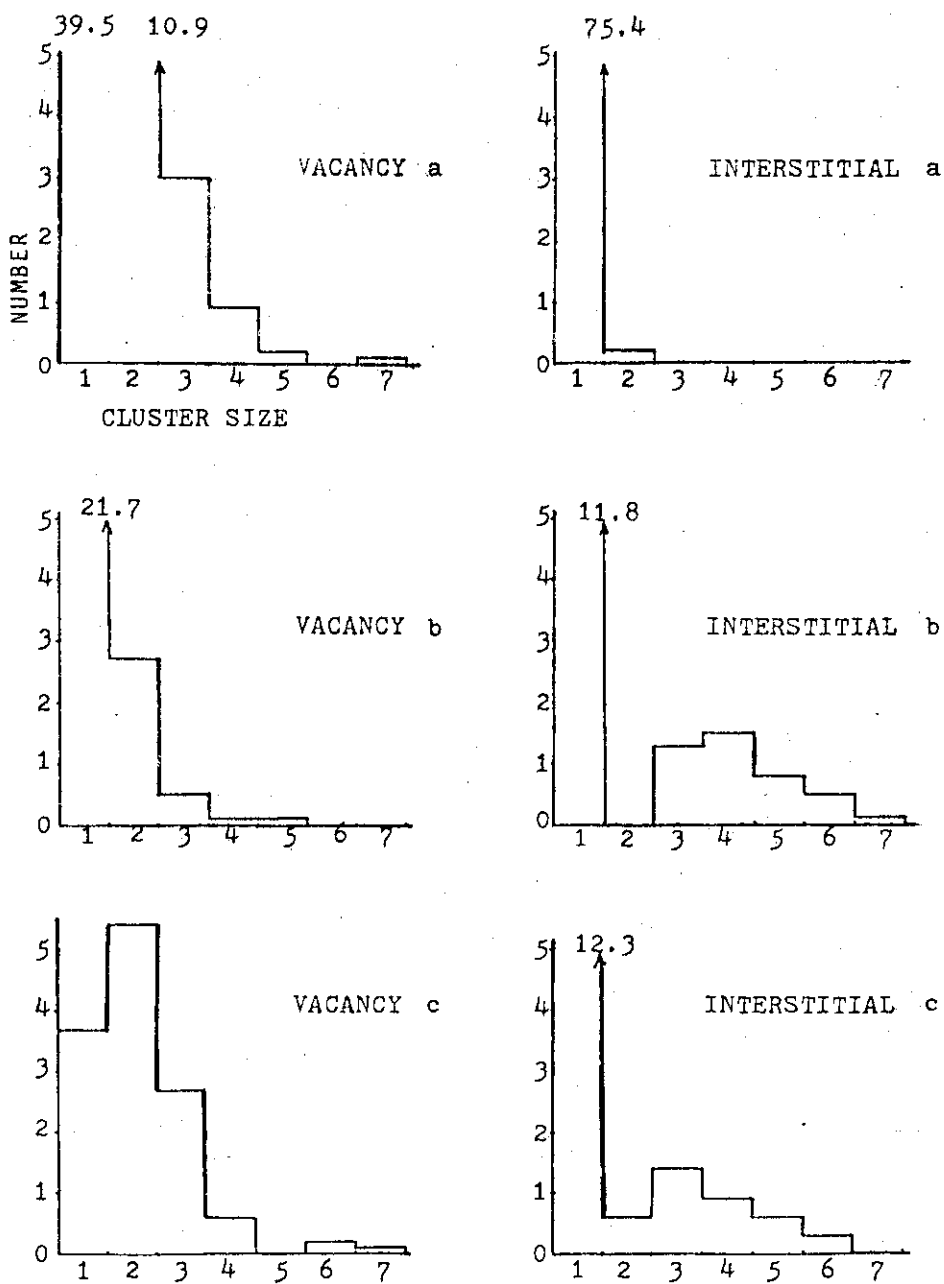


図3 アニール過程におけるクラスターサイズ分布の変化

- a アニール前
  - a~b 格子間原子の移動
  - b~c 空孔の移動
- 20 keV PKA, 300 Kの計算

表2は重なるパラメータを示す。ここでCase 1は大きく重なった場合、Case 2は少し重なった場合、Case 3は重なっていない場合である。Case 4は、重なる時間間隔が異なる。

表2 カスケードの重なるパラメータ

	Time Interval	Spatial Separation
Case 1	$1 \times 10^{-6}$ (sec)	8.1 (nm)
Case 2	$1 \times 10^{-6}$	81.1
Case 3	$1 \times 10^{-6}$	$\infty$
Case 4	$1 \times 10^{-7}$	8.1

図4はこれら4つの場合の生残りフレンケル対数の変化を示す。Case 1, 2, 3を比べる事により重なりが大きいほど生残り欠陥数が減る事がわかる。図5は約 $2 \times 10^{-6}$ 秒後のクラスターのサイズ分布を示す。重なる大きいCase 1はCase 2に比べ、動きやすく2次欠陥形成、成長に寄与する単一欠陥が減少している事がわかる。カスケードの重なり具合は照射速度に対応し、加速シミュレーション下では、実効線量が下がる事が類推できる。

### 3.3 カスケードと転位の相互作用

純金属 (Al, Fe, Ni 等) のイオン照射, 中性子照射実験においてしばしば転位近傍に空孔型のクラスターが観察されている。Alの実験では、室温ではこの様なクラスターが見られるが、<sup>22)</sup> 100°Cまで温度を上げると見られない。<sup>23)</sup> 同様な温度依存性はFeにおいても報告されている。<sup>24)</sup> 転位はそのまわりに応力場を伴い、格子間原子を優先的に吸収するのでこの機構を調べるには今までのランダムウォークではなく方向性をもった欠陥の移動の計算を行う必要がある。ここでは格子間原子が特定方向 (ここでは{010}方向) へ動きやすいという条件で、 $\alpha$ -Feで50 keV PKAのアニーリング計算を行った。

表3は計算に用いた移動エネルギーとジャンプ確率である。格子間原子に{010}方向のジャンプとその他のジャンプについて値を変えたのが特徴である。計算は200K (空孔が動かない), 600K (空孔は動くが遅いので、格子間原子とは別に計算), 1000Kで行った。

表3 転位のバイアス効果を含めた場合の移動エネルギーとジャンプ確率

	Migration Energy	Jump Probability			
		200K	600K(1)	600K(2)	1000K
Vacancy	0.68 (eV)	---	---	0.1	$2 \times 10^{-3}$
Interstitial (Toward Dislocations)	0.29	1	0.22	---	0.16
(Away from Dislocations)	0.33	0.1	0.1	---	0.1
(Correlated)	0.29	1	0.22	---	0.16
DI-Interstitial	0.18	600	2	---	1
Real Time of One Time Step (sec)		$2 \times 10^{-6}$	$6 \times 10^{-12}$	$5 \times 10^{-9}$	$5 \times 10^{-13}$

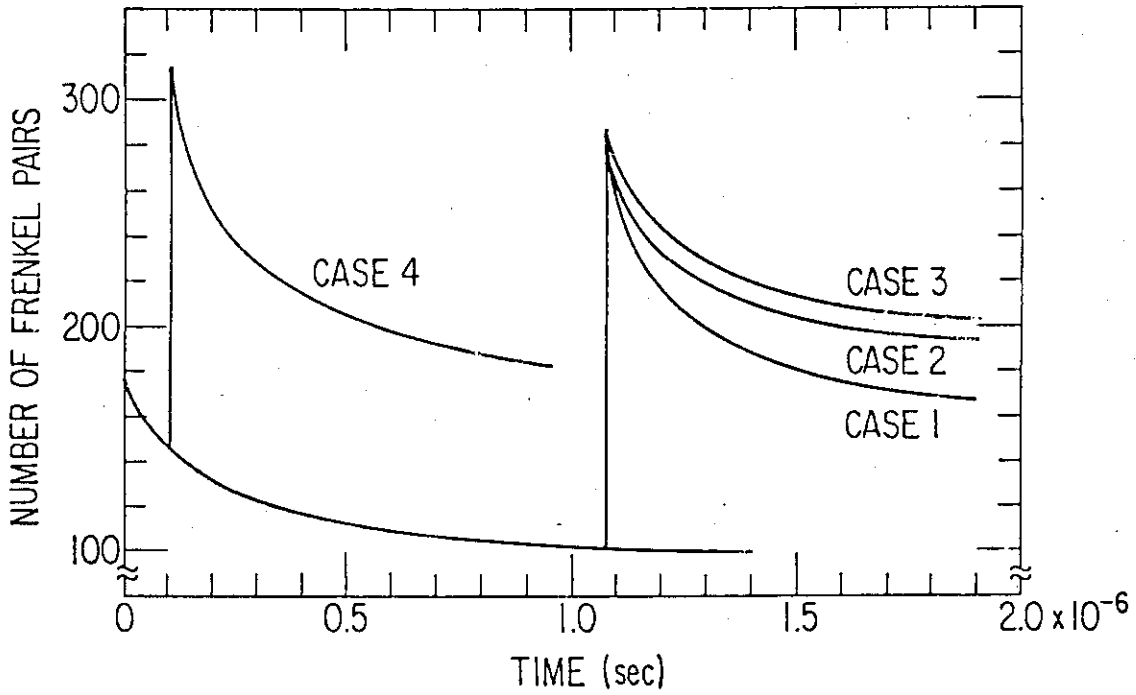


図4 カスケードが重なった場合のアニーリング曲線 (50keV PKA, 300K)

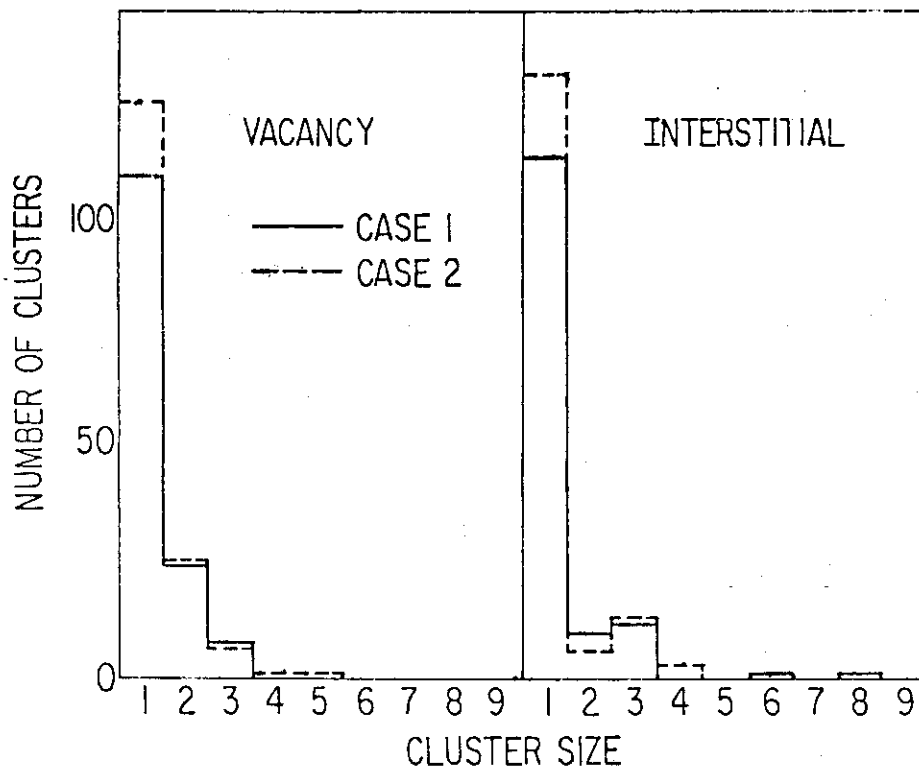


図5 カスケードが重なった場合のアニーリング後のクラスターサイズ分布

図6は各温度でのフレンケル数の生残り数と、 $V_5$ 以上のクラスターを作る空孔総数の変化を示す。なおこの結果はランダムな10方向PKAの平均である。図より、低温では転位の効果が大きく、効果を取り入れた場合(biased)と取入れない場合(non-biased)の生残り欠陥数の差が大きい。空孔が動けないので、空孔のクラスター成長が起こらない。また高温では転位の効果が小さくなり、結局中間の温度で空孔が集合体を作る事がわかる。この結果は上述の実験結果を定性的に説明し、また純Feの結果<sup>24)</sup>とは温度範囲もほぼ一致している。この効果はカスケードコラプスと関連して、カスケード損傷の評価の上で大きなファクターとなると考えられる。

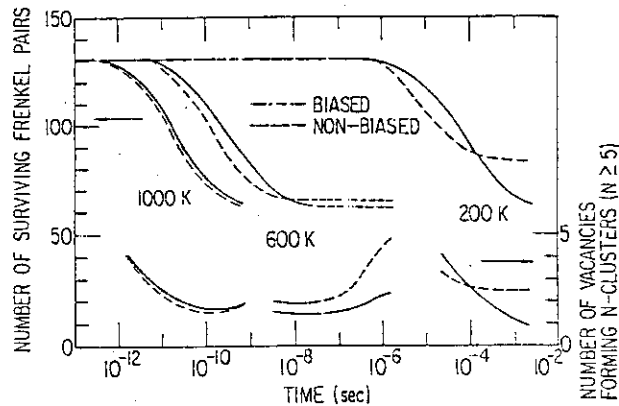


図6 転位のバイアス効果を含めた場合のアニーリング曲線と空孔クラスター成長 (50 keV PKA)

#### 3.4 種々のイオン照射のシミュレーションと欠陥生成効率の評価

核融合炉中性子照射損傷のシミュレーションとして行われてきた荷電粒子照射実験は現在かなりのデータを蓄積するに至っている。しかしこれらのデータと中性子損傷の相関はまだ不充分で多くの解明されるべき点が残されている。<sup>25)</sup> また荷電粒子照射相互の相関も重要である。従来のシミュレーション実験ではdpa当りのスウェリング量は照射粒子により大きな差が見られ、<sup>26)</sup> 特に軽イオン照射での高いスウェリング速度は、カスケード構造との関連性が考えられ、重要な研究課題の1つである。

ここでは、種々のイオン照射の効果を調べるため、質量の異なるPKAを発生させアニーリング後の生残り欠陥、クラスター成長を調べる事により、カスケード効果を求めてゆく。

図7は、MARLOWEで $\alpha$ 鉄中に種々の原子を10keVのエネルギーで動かして生成した欠陥分布、および、それをDAIQUIRIコードで格子間原子移動(300K)によるアニーリングを行った後の欠陥分布の投影図である。図により入射粒子によりカスケード形状が大きく変わる事がわかる。図8はランダムな10方向の入射粒子につき同様の計算を行った平均の欠陥の生残り率を示す。図からアニール前の自発的再結合後、アニール後も入射粒子の質量が小さいほど生残り率が高く、また単一格子間原子(動き易く2次欠陥形成・成長への寄与が大きいと考えられる)の生残り率ではさらにこの傾向が強い事がわかる。

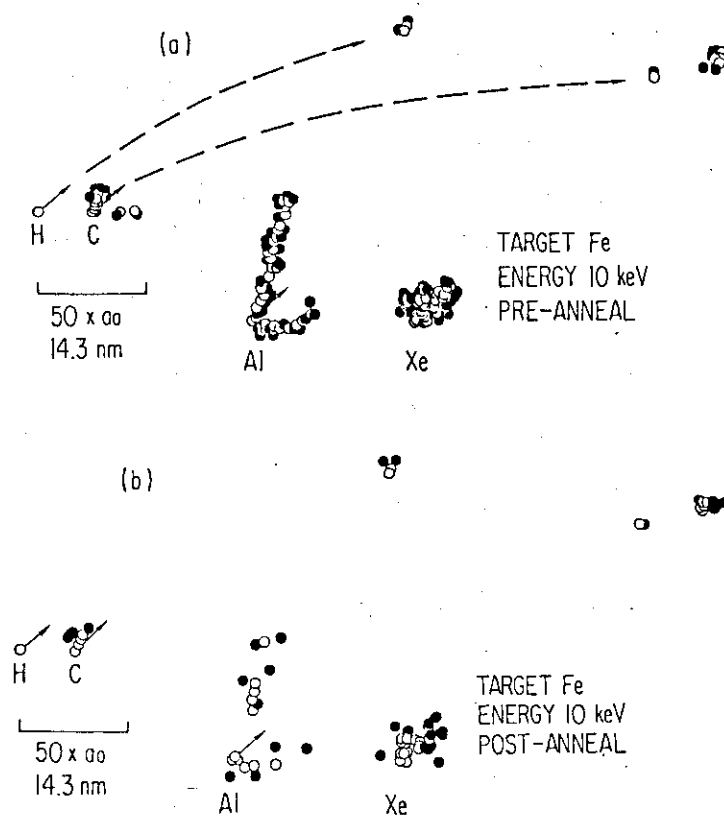


図7 種々の入射粒子で形成するカスケードの投影図

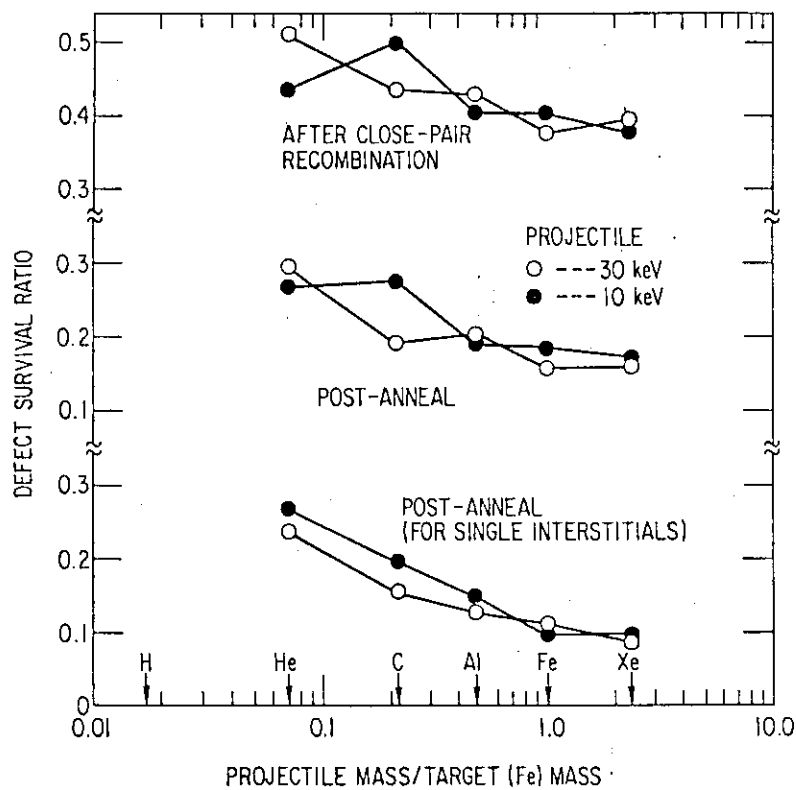


図8 入射粒子質量と欠陥生残り率との関係

以上の結果から軽イオンと重イオンのdpa当りの組織変化量の差の実験データが一応説明できるが、より系統的には、PKAエネルギースペクトルによって結果を整理する必要がある。図9は  $E_{p,max}/2E_d$  をパラメータとし、単一格子間原子の生残り率の変化を求めた結果である。なお図にはNi-Si合金の照射下析出成長速度から求めた欠陥生成効率も示した。<sup>27) 28)</sup> 図で、 $E_{p,max}/2E_d$  が大きい事は、カスケードが大きくなる事を意味し、その場合、再結合やクラスタリングの頻度が高まるので、欠陥生成効率は低くなる。同様な値の評価はGuinanら<sup>29)</sup>により抵抗測定や動力学的計算で行われ、類似した結果が得られている。しかしそれらは欠陥の熱的移動によるアニーリングが考えられない極低温での評価値であり、本研究は、高温での評価値なので、さらに重要な意味を持つと考えられる。

2体衝突近似計算によってこの様なPKAエネルギーによる差が得られた事は、それが、欠陥の空間分布の差に起因する事を意味している。これは、Averbackら<sup>30)</sup>の、カスケード中心部の局所発熱の効果という解釈とは異り、今後解明されるべき課題である。

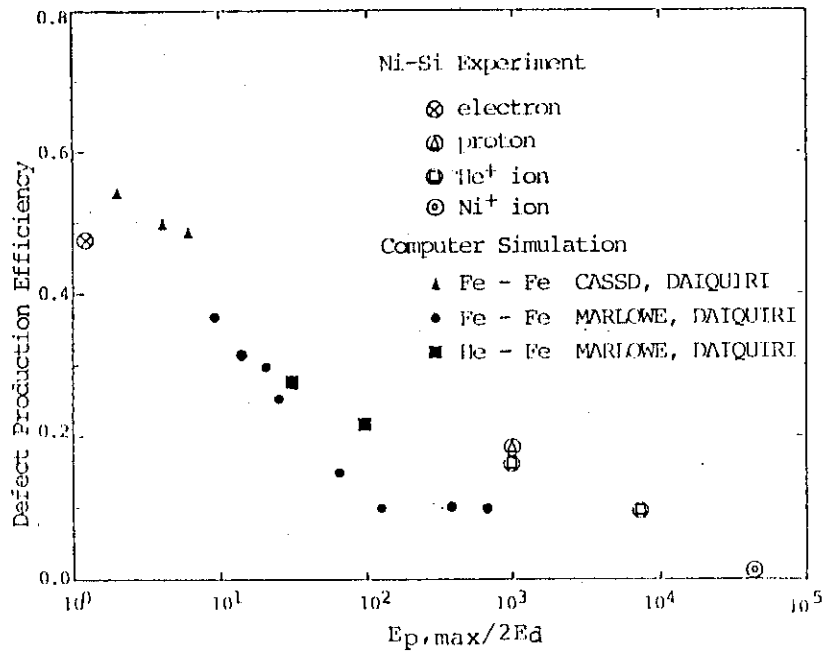


図9 PKAエネルギーと欠陥生成効率との関係

#### 4. 計算の問題点と今後の方向

本計算では多くの物性値、格子欠陥特性値が仮定されている。特に、欠陥の移動エネルギー、はじき出しのしきいエネルギー、フレンケル対の再結合領域に関しては基礎データが乏しくそれらを充実させる事が計算の向上につながると言える。中でも合金に関しては信頼できるデータが現在ほとんどない状態で、カスケード計算も非現実なモデルシミュレーションに頼らざるを得ない。ここで重要なのは、結果と実験値（例えば抵抗値やTEM観察、強度変化など）との相関を求めながらモデルを逐次改良してゆく事であろう。そのためにはカスケード効果を引き出す実験

(例えばその場実験や動的観察)が開発され、進められる必要がある。3.3節で述べた計算は、カスケード損傷のその場観察実験の結果<sup>23)</sup>との対応を考えながら進めたものであるが、今後この計算結果をふまえて、新しく実験条件、実験手法を設定、開発するという方向が望ましい。

2体衝突近似法は現在高エネルギーカスケード構造を求めるほとんど唯一の方法であるが、その限界を認識しておく必要がある。動力学的計算で得られるカスケードの冷却時の現象やフォーカシングによる格子間原子の移動等は2体衝突近似法ではほとんど求められず、またチャネリングや、規則合金での計算では明らかに不合理な結果が得られている。<sup>31)</sup> これらは今後さらに高エネルギーPKAのカスケードを計算したり、実用合金や不純物を含む系にした場合、重照射を扱う場合などには大きな問題になる事が考えられ、それらの計算手法を確立する必要がある。

カスケード損傷は非平衡現象であり、それを平衡論や速度論で記述するのは無理があると言える。しかし損傷過程、拡散過程に関しこれまで得られてきた平衡論、速度論による方法は今後とも大きな役割りをもたざるを得ないので、そこにカスケード効果をいかに組み入れるかを考えてゆく必要があろう。この様な方向にそって計算機シミュレーションで得られたカスケード効果をその詳細を失わない様に平均化、定式化してゆくのが今後の方向と思われる。またシミュレーション計算自身もこの様な流れにそって、パラメータ設定、手法改良が行われる必要がある。

#### References

- (1) M.R. Hayns and M.H. Wood; J. Nucl. Mater., 92 (1980) 26.
- (2) 吉田正幸 ; J. Phys. Soc. Japan, 16 (1961) 44.
- (3) T. Ishitani and R. Shimizu; J. Appl. Phys., 46 (1975) 241.
- (4) J.P. Biersack and L.G. Haggmark; Nucl. Inst. Met., 174 (1980) 257.
- (5) J.B. Gibson, A.N. Goland, M. Milgram and G.H. Vineyard; Phys. Rev., 120 (1960) 1229.
- (6) J.R. Beeler, Jr. and D.G. Besco; Phys. Rev., 130 (1964) A530.
- (7) M.T. Robinson and I.M. Torrens; Phys. Rev., B9 (1974) 5008.
- (8) H.L. Heinisch; J. Nucl. Mater., 103 & 104 (1981) 1325.
- (9) H.L. Heinisch and R.L. Simons; DAFS Quart. Prog. Rep. DOE/ER-0046/9 (1982) 147.
- (10) J.R. Beeler, Jr.; ORO-3912-26 (1974). (未発表コード)
- (11) I.M. Torresn; J. Phys., F3 (1973) 1771.
- (12) D.M. Schwartz, J.O. Schiffgens, D.G. Doran, G.R. Odette and R.G. Ariyasu; Nucl. Met., 20 (NBS, 1976) 75.
- (13) S. Ishino, S. Iwata, Y. Matsutani, S. Tanaka, K. Shiraishi and T. Aruga; Radiation Effects in Breeder Reactor Structural Materials, (TMS-AIME, 1977) 879.
- (14) D.G. Besco; GEMP-644 (1967).
- (15) D.G. Doran; Rad. Effects, 2 (1970) 249.
- (16) D.G. Doran and R. Burnett; Interatomic Potentials and Simulation

- of Lattice Defects, (Plenum, New York, 1972) 403.
- (17) D.G. Doran, R.L. Simons and W.N. McElroy; ASTM-STP-570, (ASTM, 1975) 290.
  - (18) J.R. Beeler, Jr., M.F. Beeler and C.V. Parks; Radiation Effects and Tritium Technology for Fusion Reactors, (Gatlinburg, 1975) I-362.
  - (19) T. Muroga and S. Ishino; J. Nucl. Mater., 117 (1983) 36.
  - (20) T. Muroga and S. Ishino; Proc. Yamada Conf. V, Point Defects and Defect Interactions in Metals, (Univ. Tokyo Press, 1982) 895.
  - (21) R.A. Johnson; Phys. Rev., 134 (1964) A1329.
  - (22) T. Muroga, K. Fukuya, H. Kawanishi and S. Ishino; J. Nucl. Mater., 103 & 104 (1981) 1349.
  - (23) S. Ishino, H. Kawanishi, K. Fukuya and T. Muroga; IEEE Trans. Nucl. Sci. NS30 No.2 (1983) 1255.
  - (24) E. Kuramoto, N. Yoshida, N. Tsukuda, K. Kitajima, N.H. Packan, M.B. Levis and L.K. Mansur; J. Nucl. Mater., 103 & 104 (1981) 1091.
  - (25) 石野 稔; 照射損傷 (東大出版会, 1978) 218.
  - (26) F.A. Garner, et al.; Proc. Workshop on Correlation of Neutron and Charged Particle Damage, (ORNL, 1976), CONF-760673, 147.
  - (27) T. Muroga, P.R. Okamoto and H. Wiedersich; Rad. Effects. Lett., 68 (1983) 163.
  - (28) T. Muroga, S. Ishino, P.R. Okamoto and H. Wiedersich; J. Nucl. Mater., in press.
  - (29) M.W. Guinan and J.H. Kinney; J. Nucl. Mat., 103 & 104 (1981) 1319.
  - (30) R.S. Averback, R. Benedek and K.L. Merkle; Phys. Rev., B18 (1978) 4156.
  - (31) M.T. Robinson; 私信



## 8. Damage及びSputtering計算におけるモンテカルロシミュレーション

岡山理大 山村 泰道

### 1. 序 論

イオン照射に伴う放射線損傷及びそれに付随して引き起される種々の問題は、Boltzmann方程式を解く事により原理的に求まる筈のものである。しかしながら、現実的にいって、半無限体系のそれは、一般に解く事はできない。さらに結晶の効果、斜入射等の問題は事態をさらに困難にしている。これら種々の複雑な固体内衝突現象とそれに伴う放射線損傷及びスパッタリング等の問題の解析は計算機シミュレーションを通してはじめて可能になる場合が多い。

現在、固体内原子衝突現象をシミュレーションする方法として大別すると

- 1) Molecular Dynamics 法
- 2) Monte Carlo 法

とがある。Molecular Dynamics においてはNewton方程式をそのまま time-dependent に数値計算する方法で<sup>1,2)</sup> 多体効果、非線型効果は考慮できる大きな長所があるが、膨大な計算時間を必要とし、高エネルギーのカスケード発展には多くの問題がある。しかしながら最近ではD.E. Harrison等は重イオンスパッタリングにおける衝撃波の可能性までシミュレーションにより確かめている。<sup>3)</sup>一方、Monte Carlo はより簡便ではあるが多体効果、非線型効果は考慮できない。現在、Monte Carlo による固体内原子衝突のシミュレーションとしては

- 1) Betz and Shimizu's method<sup>4,5,6)</sup>
- 2) MARLOWE<sup>7)</sup>
- 3) TRIM<sup>8)</sup>
- 4) ACAT<sup>9)</sup>
- 5) non-linear Monte Carlo simulation

などがある。以下の章において簡単にこれらのコードの特徴を列記してみる。

### 2. Monte Carlo simulationの特徴と問題点

#### 2.1 Betz and Shimizu's method

この方法は中性子輸送の問題において最もよく用いられている方法で、謂ゆる平均自由行程と定義して固体内衝突現象を追跡する方法である。(Fig.1参照) i 番目の自由行路は

$$S_i = \lambda(\epsilon) \ln R \quad (R: \text{一様乱数})$$

---

Monte Carlo Simulation for Theoretical Calculations of Damage and Sputtering Processes, Yasunori Yamamura, Okayama University of Science

で決定され  $\lambda(\epsilon)$  は平均自由行路で

$$\lambda(\epsilon) = \frac{1}{N \sigma_T(\epsilon)} \quad (N: \text{ 的の数密度})$$

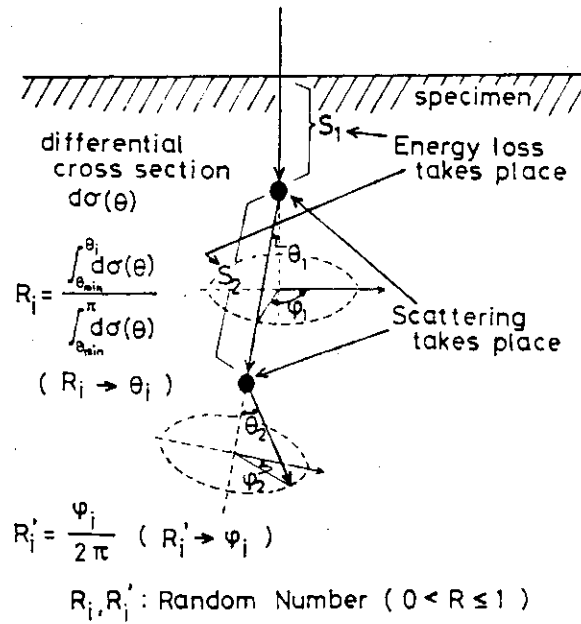


Fig. 1 Schematic representation of Monte Carlo trajectories

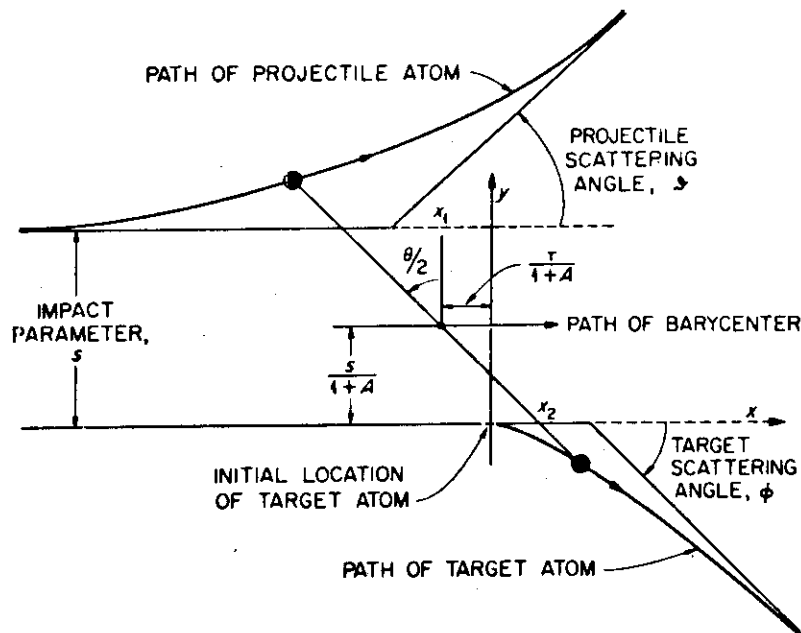


Fig. 2  $L$  trajectories of two particles interacting according to a conservative central repulsive force. The positions of the particles and of the barycenter are shown at the apsis of the collision.

$$\sigma_T = \int_{\theta_{\min}}^{\pi} \left( \frac{d\sigma}{d\theta} \right) d\theta$$

で与えられる。中性子のように相互作用が短距離力の場合は  $\sigma_T$  は  $\theta_{\min} = 0$  でも有限の値をもつが、イオンと原子の相互作用のように長距離力の場合には  $\sigma_T$  は  $\theta_{\min} \rightarrow 0$  の極限で発散する。この困難を克服するため種々の工夫がなされている。志水らは

$$\int_{\theta_{\min}}^{\pi} d\sigma(\theta) = \left( \frac{1}{N} \right)^{2/3}$$

でもって  $\theta_{\min}$  を決定している。また Walker 等は損傷にのみこの方法を適用して  $\theta_{\min}$  として  $E_d$  (はじき出しエネルギー) に対応する角度を選んでいる。<sup>10)</sup> しかしながら  $\theta_{\min}$  をあまり大きくすると多重散乱の効果が考慮できなくなり、軽イオンの損傷の計算には適用できない。また  $d\sigma(\theta)$  としては Winterbone の近似式を用いている。<sup>11)</sup>

## 2.2 MARLOWE コード

MARLOWE コードは本来単結晶系における原子衝突をシミュレートするために、作られたコードであるが多結晶系に应用する場合には、結晶軸を random に Euler の角を選んで回転するという操作を用いている。散乱は 2 体衝突近似を用いており、粒子は 2 体間衝突における漸近線に沿って進むと仮定している。そのために次の諸量を散乱の都度数値計算している。(Fig.2)

重心系の散乱角

$$\theta = \pi - 2s \int_R^{\infty} dr [r^2 g(r)]^{-1}$$

time integral

$$\tau = (R^2 - s^2)^{1/2} - \int_R^{\infty} \left\{ [g(r)]^{-1} - \left(1 - \frac{s^2}{r^2}\right)^{-1/2} \right\} dr$$

ここに

$$g(r) = \left\{ 1 - \frac{s^2}{r^2} - \frac{V(r)}{E_r} \right\}^{1/2}$$

上記の式中の  $s$  は impact parameter,  $E_r$  は relative kinetic energy,  $R$  は  $g(r) = 0$  の根で謂ゆる apsidal distance である。また、 $\tau$  は重心の運動に関係した物理量で漸近線の決定に用いられている。 $V(r)$  は 2 体間ポテンシャルで MARLOWE コードでは Molière の potential を用いている。非弾性散乱は 1974 年の論文では Firsov モデルを用いていたが 1976 年からは謂ゆる Oen<sup>12)</sup> -Robinson の local model という impact-parameter-dependent な式を用いて評価している。MARLOWE コードでは、散乱角の計算と次の衝突の相手を探がす手順に非常に多くの時間を要する。しかしながら現時点において 2 体間衝突近似を基礎にしたシミュレーションコードとしては完成度が最も高い。また、2 体間衝突近似の特徴は衝突係数で散乱角と軌跡を決定するため、2.1 のモンテカルロ法における  $\theta_{\min}$  のような ambiguity がないが mean free path を基にするシミュレーションに較べて時間がかかる。

2.3 TRIMコードとACATコード

TRIMコードとACATコードはMARLOWEコードの考え方をもとに非晶質系にだけ使用できるという限られた条件のもとにMARLOWEコードで時間のかかっていた次のcollision partnerを探し手順を簡素化している。すなわちTRIMコードでは粒子は $N^{-1/3}$ のきまった自由行路しか進まないとし、その時点で一様乱数を用いて衝突径数を決定している。すなわち

$$s = \{R_n / \pi p_{\max}^2\}^{1/2}$$

ここに $p_{\max} = 1/\sqrt[3]{N}$ としている。 $R_n$ は一様乱数である。

一方、ACATコードでは衝突径数を一様乱数で選ぶのではなく、標的原子を一様乱数で選ぶ手順を採用している。すなわち、媒質を $1/\sqrt[3]{N}$ の平均格子間隔をもつ単純立方格子とみなし、その単位胞の中に一様に標的原子を分布さす方法である。謂ゆる細胞モデルという方法で液体論でしばしば用いられる手法である。

Fig. 3は8 keVの水素をAuに照射した場合の後方散乱粒子のエネルギースペクトルを上記の3つのコードMARLOWE, TRIM, ACATについて比較したものである。計算に用いたpotential, 非弾性エネルギー損失の評価はすべて統一してある。<sup>13)</sup> MARLOWEに較べてACAT, TRIM共に少々大きめの値を与えているが3者の一致は満足すべきものである。Fig. 4にはやはり8 keV H→Auの場合の飛程分布の違いを3つのコードに対して比較してある。ACATコードは大体においてTRIMとMARLOWEの中間の値を与える傾向があるが、どちらかと云えばTRIMコードに近い。

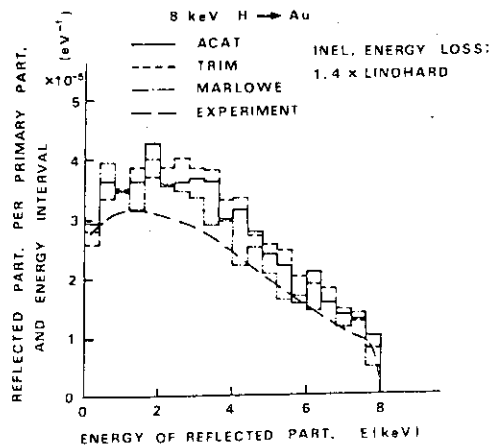


FIGURE 3 Comparison of energy spectra of backscattered particles calculated from ACAT, TRIM and MARLOWE codes with experimental spectrum.

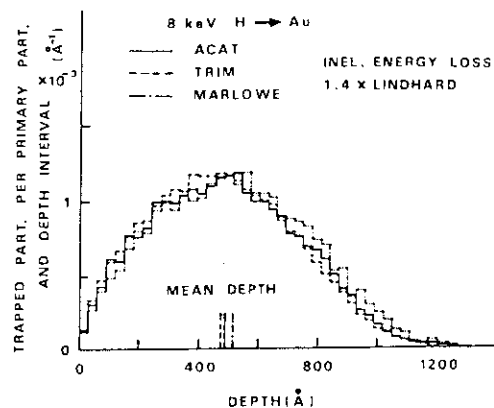


FIGURE 4 Depth distributions of implanted particles calculated with ACAT, TRIM and MARLOWE computer codes.

TRIMコードとACATコードの違いは、一回の散乱がその分布に大きな影響を与える場合により大きな差がでる。例えばgrazing angleに軽イオンを照射した場合のスプッター原子の角度分布がそれである。Fig. 5に示すようにスパッタリングの機構として通常2つのmechanismが考えられている。ひとつは入射イオンがつくる衝突カスケードによるというもの、いまひとつは固体内部で後方散乱してきた粒子が固体表面につくるcascadeによるという機構である。<sup>14)</sup>前者は重イオンスパッタリングにおける主たる機構で軽イオンスパッタリングでは主として後者(Fig.5のmechanism II)による寄与が大きい。ところが軽イオンの斜入射( $0 > 70^\circ$ )においては、イオンと表面原子との直接散乱によるスパッターの機構(Fig.5のmechanism Ia)が

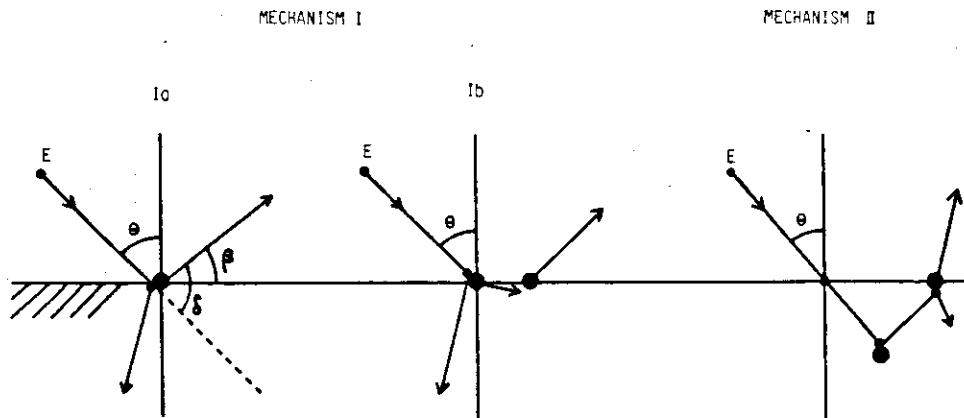


Fig. 5 Sputtering mechanism for oblique incidence

Table 1 Comparison of theoretical angle of preferential emission with experimental values.

Target	Ion	Energy	Theory			Experiment
			$\theta$	$\hat{\beta}_p$	$\beta_p$	
Ni	H	450 eV	80°	43°	34°	40° <sup>b</sup>
			70°	44°	37°	45° <sup>a</sup>
		1 keV	80°	57°	51°	47° <sup>a</sup>
			70°	58°	53°	55° <sup>a</sup>
		4 keV	80°	69°	65°	70° <sup>a</sup>
			70°	61°	58°	—
50 keV	80°	72°	69°	70° <sup>b</sup>		
	70°	64°	61°	—		
Ni	He	4 keV	80°	74°	72°	76° <sup>a</sup>
			70°	64°	61°	—
W	H	4 keV	70°	37°	27°	—
			80°	51°	44°	45° <sup>a</sup>

a: Bay, Bohdansky, Hofer, Roth (1980)    b: Bohdansky (1983)

重要となってくる。<sup>15)</sup> この direct knock-out model を用いてスパッター原子の preferential angle を評価すると

$$\beta_p = \cos^{-1} \{ \sin(\theta + \delta_p) (\cos \theta + 2q) \}^{1/2}$$

で与えられる。<sup>16)</sup> ここに  $\delta_p = \cos^{-1} [q (\cos \theta + 2q)]^{1/2}$  で  $q = \sqrt{U_s / \gamma E}$  で与えられている。U は表面結合エネルギー,  $\gamma = 4M_1M_2 / (M_1 + M_2)^2$  である。実験値との比較は Table 1 に示してある。<sup>17)</sup> しかしながら上式は  $\theta > \theta_{opt}$  ( $\theta_{opt}$ : 収率の最大値を与える入射角) の入射角に適用できるが  $\theta < \theta_{opt}$  では斜入射に対する衝突径数の最大値 ( $R_0 \cos \theta$  のオーダー) が存在する事がより重要となり

$$\delta_p = \cos^{-1} \left[ \frac{1}{2\epsilon} \left( \frac{ak_m}{R_0 \cos \theta} \right) \right]^{1/m}$$

となる。m は巾乗近似における巾を表わし,  $R_0 = 1 / \sqrt[3]{N}$ ,  $k_m$  は常数である。すなわち, これら 2 つの  $\delta_p$  に関する式は  $\theta < \theta_{opt}$  では  $\delta_p$  は  $\theta$  について増加関数,  $\theta > \theta_{opt}$  では減少関数となっている。いいかえれば direct knock-out model の範囲では  $\delta_p$  は  $\theta = \theta_{opt}$  で最大値をもつ。その様子は Fig. 6 に示してある。

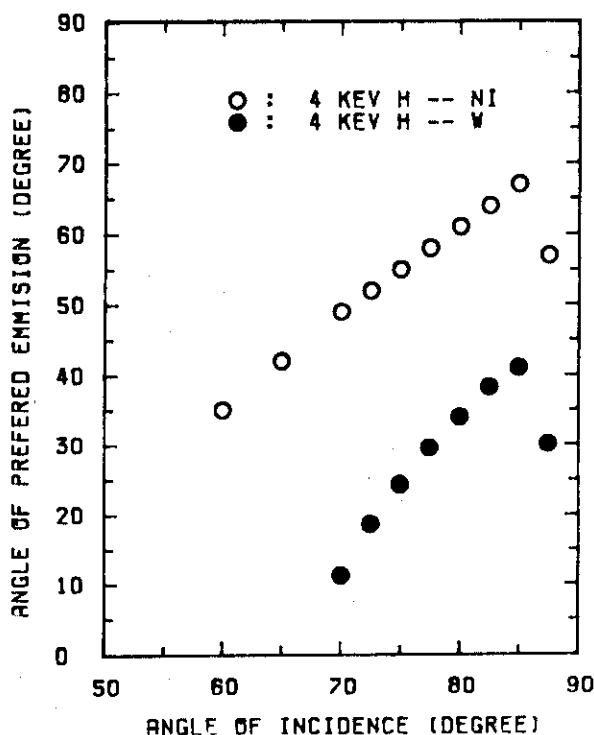


Fig. 6 Angles of preferential emission as a function of angle of incidence

Fig. 7 に  $450\text{eV H}^+ \rightarrow \text{Ni}$  について種々の入射角についての角度分布に関して, 計算コードと実験値を比較してある。<sup>18)</sup> TRIM コードの特徴は  $\theta = 80^\circ$  に関する角度分布が実験に比して極端にねている事である。すなわち, TRIM コードでは衝突径数を  $p_{max}$  をきめて一様乱数できめている特徴がでる。一方, ACAT コードではピークの値については実験値とよい一致をみている。

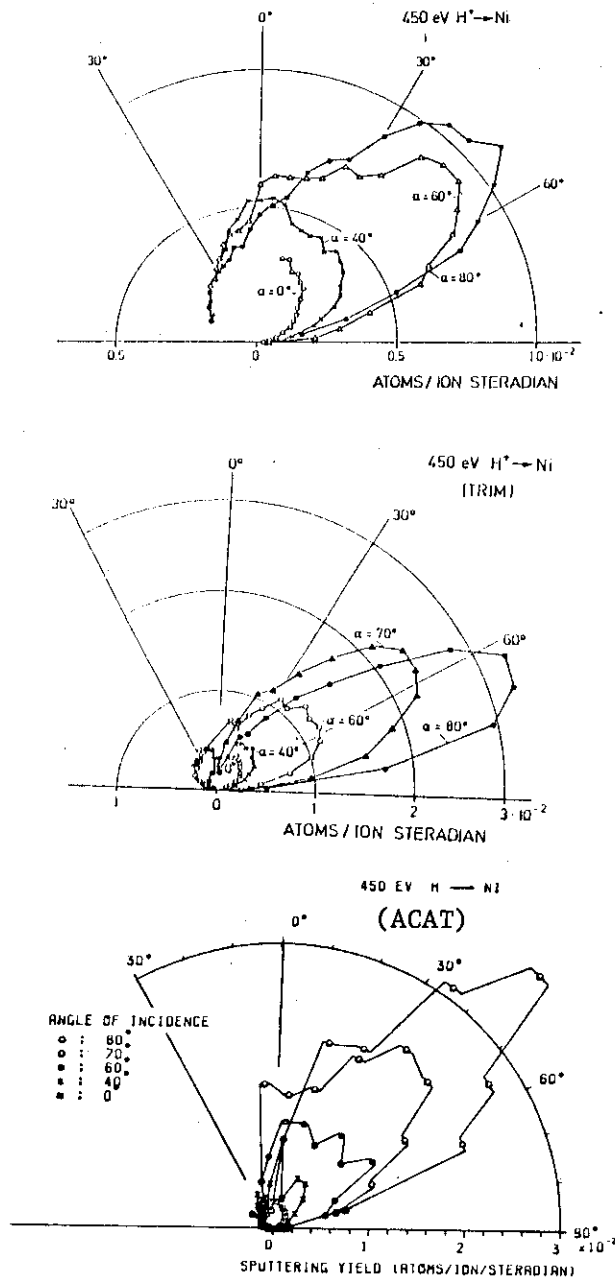


Fig. 7 Angular distributions of sputtered atoms for 450 eV H<sup>+</sup> → Ni

最後に2体衝突近似による散乱の取り扱いに関する限界についてみると、実験室系における projectile の漸近線の出発点は Fig. 2 において  $x_1$  と表示されているが

$$x_1 = [2 + (A-1) s \tan \frac{\theta}{2}] / (A+1)$$

ここに  $A = M_2 / M_1$  である。low energy limit において、しかも  $A = 1$  で正面衝突の場合を考えると

$$\lim_{s \rightarrow 0} x_1 = R$$

となる。<sup>7)</sup> 2体間衝突近似が適用可能な条件は凡そ  $R < \frac{1}{2} P_{max}$  ぐらいで  $Au \rightarrow Au$  の場合で  $\sim 30\text{eV}$ ,  $Cu \rightarrow Cu$  で  $10\text{eV}$  ぐらいが実際は限界で例えば  $25\text{eV}$  の  $Cu$  を結晶中に入れた場合の周りの原子の運動を Molecular Dynamics でシミュレートすると Fig. 8 に示すようになる。

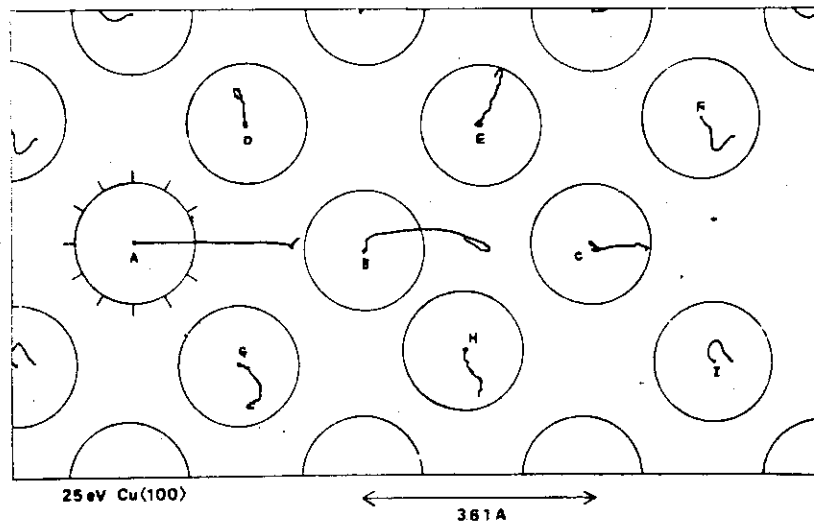


Fig. 8 Cascade development by a 25 eV primary recoil atom

### 3. Non-Linear Monte Carlo simulation

Molecular Dynamicsの方法は、時間がかかりすぎるが非線型効果は取り入れる事ができる。Monte Carlo法は時間はあまりかからないがMarkov過程を仮定している。この両者の特徴を生かしたコードの作成は多くの研究者が試みている。例えばsemi-dynamical methodなんかがある。高エネルギー領域は2体衝突近似で取り扱い低エネルギーではMolecular Dynamics的に処理しようという試みである。<sup>19)</sup>

いまひとつの試みはMonte Carlo simulationにおいてcascadeの発展を時間的に追跡しようという試みである。MARLOWE, TRIM, ACATコードではcascadeの発展は空間的に追跡している。すなわち、空間的に最も近接した格子原子と衝突をする事になっている。このnon-linear Monte Carlo simulationでは時間的に最も近接した原子、もしくは格子間原子、運動している反跳原子と衝突するようcollision partnerを選んでいく。

Figs. 9, 10, 11にはそれぞれ3 keV  $H_3 \rightarrow Au$ , 1 keV  $Ar \rightarrow Au$ , 20 keV  $Sb_2 \rightarrow Ag$ におけるcascade developmentを時間的に追跡したもので、それぞれsingle knock-on regime, linear cascade regime, spike regimeに対応している。



3 keV  $H_3^+ \rightarrow Au$

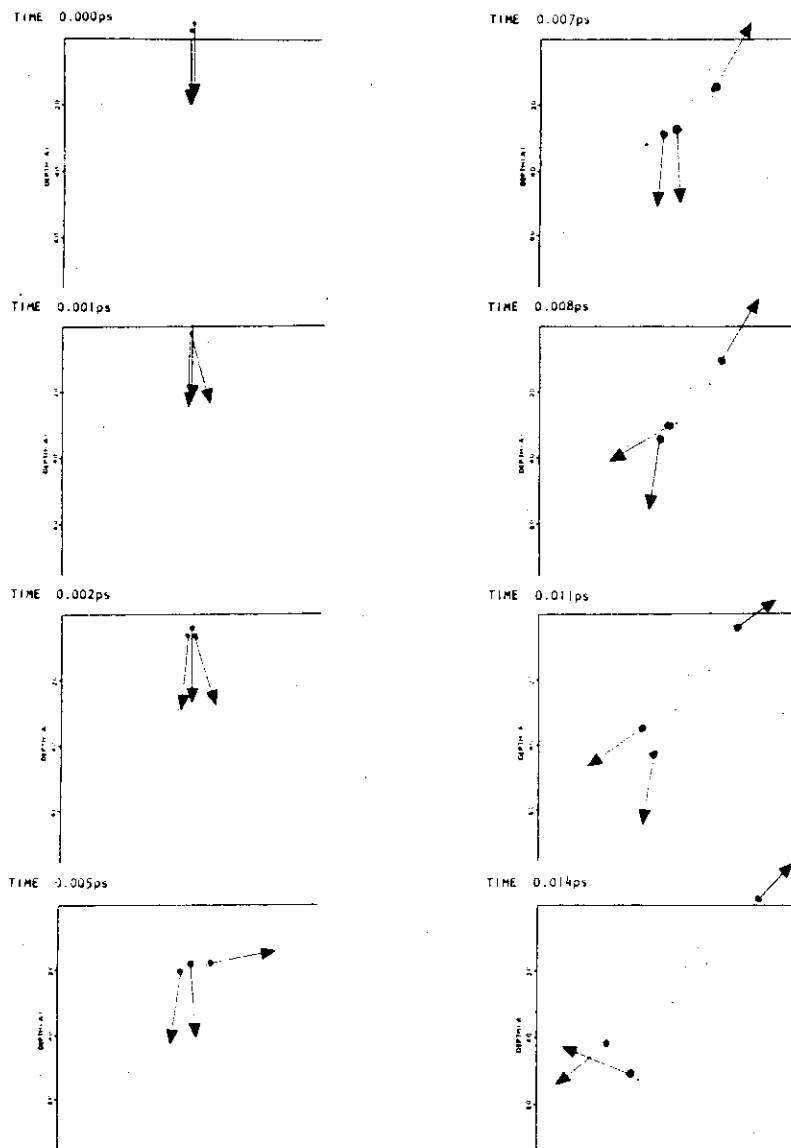


Fig. 9 Time-dependent cascade development for 3 keV  $H_3^+ \rightarrow Au$

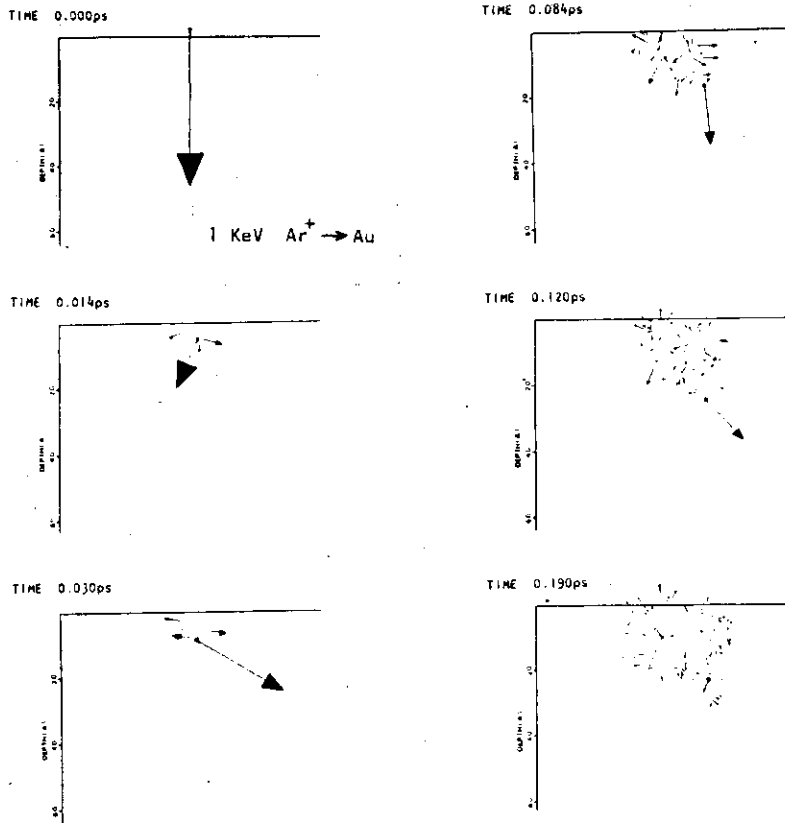


Fig. 10  
Time-dependent cascade  
developments for  
1 keV Ar<sup>+</sup> → Au

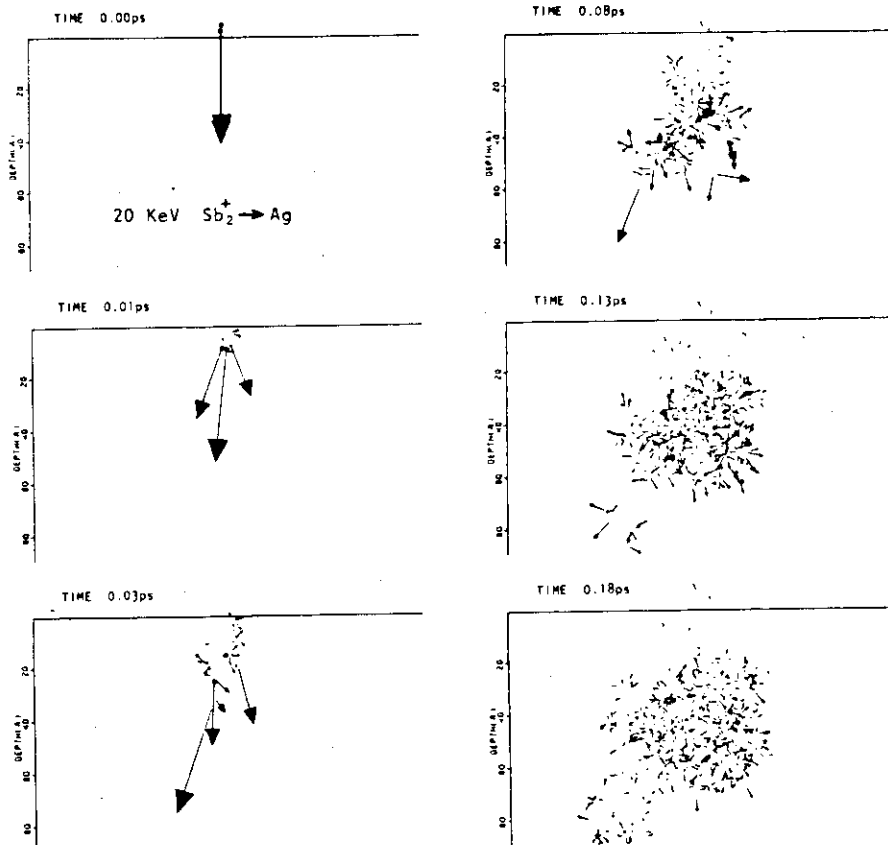


Fig. 11  
Time-dependent  
cascade developments  
for Sb<sub>2</sub><sup>+</sup> → Ag.

我々はこの non-linear simulation を 10keV の primary recoil atom の displacement efficiency の計算に応用し、非線型効果を評価してみた。Fig. 12 は slowing down の過程において lattice atom との散乱回数、recoil atom 同志の散乱回数、格子間原子との散乱回数を時間について平均をとったもので、この図からみる限りそれ程非線型効果は期待できないがかなりの高密度カスケードが発生している可能性を示唆している。このコードは当然線型的に時間発展を追跡できるようパラメータを選ぶ事ができる。Table 2 は linear simulation と non-linear

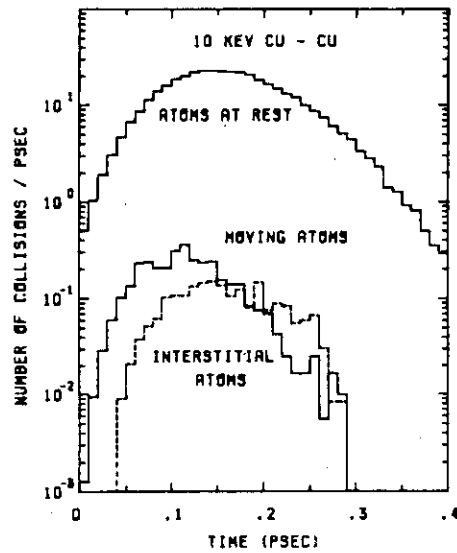


Fig. 12 Non-linear Monte Carlo simulation of cascade developments by 10 keV primary Cu recoil atom, where the number of collisions between different collision partners are plotted against the slowing time.

Table 2

Spatial moments of range and damage distributions for 10 keV Cu → Cu

	Damage (Å)			Range (Å)		
	<Z>	$\sigma$	$\sigma_Y$	<Z>	$\sigma$	$\sigma_Y$
Linear	47.3	32.0	23.3	49.1	32.5	24.0
Non-linear	48.3	32.5	26.8	49.8	33.0	27.3

simulationをした場合空間能率を比較したものであるが、有意の差はみとめられない。このsimulationにおいてはdisplacement energy  $E_d$  でもって空格子点の生成を評価できないので我々はrecombination radius を用いて評価した。まずACATコードで $E_d$  によるvoidの評価をしてそれに対応する同等のlinear simulation を行い、voidの数が一致するrecombination半径を選んだ。我々の採用したモデルでは約 $r_s = 1.5 \times 1 / \sqrt{N}$ であった。

Fig. 13はlinear simulationとnon-linear simulationの空格子点と格子間原子の分布をrecombination radiusを変えてとった図であるが明らかにnon-linear simulationの場合の方が空格子点の個数が多い。

Fig. 14は空格子点のクラスタの分布を横軸にクラスタの大きさをたて軸にその個数を示した図であるがこの場合においてもnon-linear simulationの場合が空格子点の数を増加させる傾向を示している。

displacement efficiency  $\xi$  は次式で定義されている。すなわち

$$\nu_0 = \xi \frac{\nu(E)}{2E_d}$$

ここに $\nu_0$ は空格子点の数、 $\nu(E)$ はdamage energyである。Fig. 14よりnon-linear simulationの方が $\xi$ を大きく評価する可能性を示しており、Table 3にTorrensの計算<sup>(20)</sup>との比較も合わせてlinear simulationとnon-linear simulationの結果を示した。未だ統計誤差はかなり大きいと思われるがdisplacement efficiencyにおける非線型の効果は10 keVのprimary recoil energyではCuのような比較的重いイオンの場合には充分あるのではないと思われる。

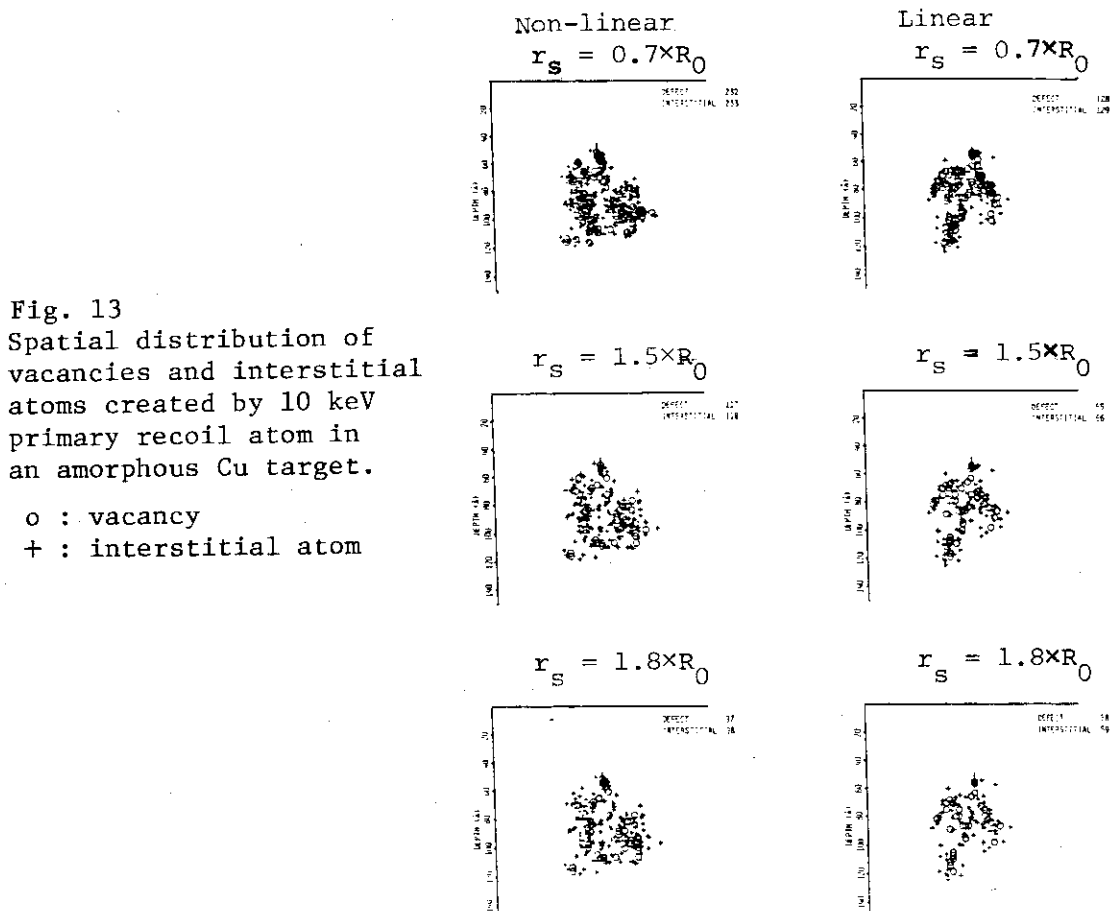


Fig. 13  
Spatial distribution of vacancies and interstitial atoms created by 10 keV primary recoil atom in an amorphous Cu target.

o : vacancy  
+ : interstitial atom

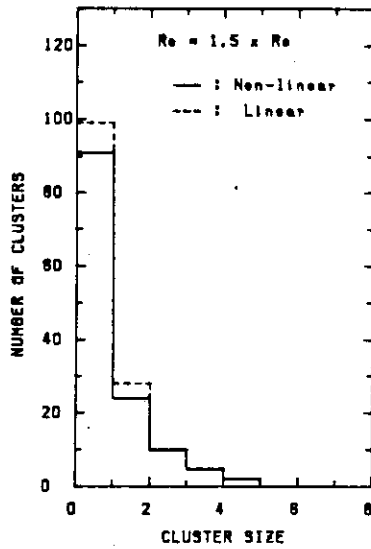


Fig. 14  
Void clusters created by 10 keV primary recoil atom in an amorphous Cu target.

Table 3

Displacement efficiency for 10 keV Cu→Cu

Calculation method	$\xi$
Torrens & Robinson (1971)	0.86
Present                      Linear	0.85
Simulation*                Non-linear	0.92

\* Recombination radius  $r_s = 1.5R_0$

#### 4. 結 び

2体間衝突近似をもとにして計算する Monte Carlo simulationコード, MARLOWE, TRIM, ACATの比較を軽イオンの後方散乱スペクトルの計算を通して行った。その結果これら3つの計算方法には有無の差がないが, TRIM, ACATはどちらかといえばランダム性を強調している可能もある。TRIMコードは impact parameter の最大を設定して impact parameter を一様分布から決定しているがその効果が顕著にひびく軽イオンの斜入射のスペクタリング, 特にその角度分布の計算においてあらわれる事が指摘された。

比較的簡単に非線型効果を取り入れうる non-linear Monte Carloコードの計算が10keV Cuの primary recoil に対してなされた。そして displacement efficiency における非線型効果が指摘されたが, 計算時間がかなりかかるという大きな問題があり, これからの問題として残る。

## 参考文献

- 1) J.B. Gibson, A.N. Goland, M. Milgram and G.H. Vinegard, Phys. Rev., 120, 1229 (1960)
- 2) D.E. Harrison, J.P. Johnson and N.S. Levy, J. Appl. Phys., 34, 3268 (1966)
- 3) R.P. Webb and D.E. Harrison, Appl. Phys. Lett. 39, 311 (1981)
- 4) G. Betz; Int. J. Mass Spectrum & Ion Phys. 6, 451 (1971)
- 5) T. Ishitani and R. Shimizu, Jpn. J. Appl. Phys., 11, 125 (1972)
- 6) R. Shimizu, Proc. 7th Intern. Vac. Congr. & 3rd Intern. Conf. Solid Surfaces, edit by R. Dobrozemsky et al. (Vienna, 1977) p.1417
- 7) M.T. Robinson and I.M. Torrens, Phys. Rev. B9, 5008 (1974)
- 8) L.G. Haggmark and W.D. Wilson; J. Nucl. Mater. 76 & 77, 149 (1978)
- 9) W. Takeuchi and Y. Yamamura, Radiat. Eff., 71, 53 (1983)
- 10) R.S. Walker and D.A. Thompson, Radiat. Eff. 37, 113 (1978)
- 11) K.B. Wintorbon, P. Sigmund and J.B. Sanders, Kgl. Danske Vidensk. Selsk. mat.-fys. Medd. 37, No.14 (1970)
- 12) O.S. Oen and M.T. Robinson, Nucl. Instr. Methods, 132, 647 (1976)
- 13) W. Eckstein, H. Verbeek, and J.P. Biersack, J. Appl. Phys. 51, 1194 (1980)
- 14) R. Weissmann and R. Behrisch, Radiat. Eff., 19, 69 (1973)
- 15) H.L. Bay and J. Bohdansky, Appl. Phys., 19, 421 (1979)
- 16) Y. Yamamura, Radiat. Eff. (in press)
- 17) H.L. Bay, J. Bohdansky, W.O. Hofer, and J. Roth, Appl. Phys., 21, 327 (1980)
- 18) J. Bohdansky, Nucl. Fusion (in press)
- 19) S. Ishino, S. Iwata, Y. Matsutani, Y. Tanaka, K. Shiraishi, Structural Materials ed. by M.L. Bleiberg and J.W. Bennett (TMS-AIME, 1977) p.879
- 20) I.M. Torrens and M.T. Robinson, Proc. Int. Conf. on Radiation-Induced Voids in Metals, Albany, New York, (1971) p.739

## 9. 低エネルギー領域でのイオン阻止能

湘北短大 北川 盈雄

### 1. はじめに

物質中を通過する重イオン阻止能の解析は、重イオン科学の基礎テーマであると共に、核融合研究との関連から、プラズマ物理、放射線物理、固体物理に渡る学際的境界に位置するテーマでもある。1960年代初頭に、実験データと理論の定量的比較の糸口が開かれて以来(重イオン阻止能、飛程に関する理論(LSS理論<sup>1)</sup>, Firsov理論<sup>2)</sup>)の提案。また加速器の物性研究への利用もこの時期にはじまる)、理論的、実験的に進められてきた阻止能研究は、次のような流れに分けることができる。

まず、軽イオン阻止能に関する各種パラメーター<sup>3)</sup>(平均イオン化エネルギー、内殻補正項、 $Z_1^3$ -項、Bloch項)の定量的決定である。この種の研究では、膨大な実験データとの比較に裏打ちされた平均イオン化エネルギーの解析<sup>4)</sup>が行われており、近年においてはより高次の補正項に対応する $Z_1^3$ -項、Bloch項<sup>5)</sup>の解析が開始されている。又これらの解析と平行して $H^+$ や $He^+$ に対する阻止能、飛程のテーブル作成<sup>6)</sup>が進められている。重イオン阻止能の研究は、均質中での重イオン有効電荷の解析と不可分な関係にある。'70年代前半期における十分に重いイオンに対する有効電荷のスケーリング則<sup>7)</sup>の提案以来、低速領域での重イオン阻止能の速度依存性、異なるイオン荷電状態に対するサイズ効果<sup>8)</sup>の指摘が行われている。イオンの有効電荷の研究は、重イオンのみならず阻止能最大を与える領域から低速領域にわたる軽イオン阻止能の経験式による解析とも関連し、このため軽、重イオンの有効電荷は当該領域での阻止能解析の主パラメーターの役割を果たしている。第三には、核融合炉真空第一壁のイオン照射損傷、飛程分布解析を行う上での電子的阻止能と核的阻止能のデータ蓄積の必要性という実用サイドからの要請による研究があげられる。核的阻止能は、イオン照射損傷における損傷分布、損傷断面積を解析する際の重要パラメーターであり、最近においては異種原子間の阻止能に関する研究が進められている<sup>9)</sup>。本稿では、近年、当該分野において進められた重イオン阻止能における有効電荷解析、ならびに核的阻止能解析について報告する。軽イオン阻止能の各種パラメーターに関する解析については文献3、4を参照して頂きたい。

### 2. 重イオン阻止能と有効電荷

近年、重イオン阻止能実験研究の進展により、重イオン阻止能データを $\pm 10\sim 20\%$ 前後の精度で解析することが可能となっている。当該解析は、AnthonyとLanford,<sup>10)</sup>ならびにZieglerら<sup>11)</sup>によって行われたものであるが、解析対象として、従来はスケーリング則の枠外にあったイ

---

Stopping Power for Heavy Ions in Low Energy Region, Mitsuo Kitagawa,  
North Shore College

オンをも含んでいる点に特色を有する。以下に各解析を概略的にまとめておく。Anthony と Lanford の解析<sup>10)</sup> は10種の入射イオン(C, Si, Cl, Ti, Fe, Ni, Ge, Br, Nb, I)と5種類のターゲット(C, Al, Cu, Ag, Au)に関し行われている。各イオンターゲット対に関する測定値とNorthcliffeとSchillingのテーブル<sup>12)</sup> Zieglerのテーブル<sup>13)</sup>との比較が行われており、測定値と上述の二テーブルとのずれは25%内外の範囲内にある。総じて測定結果は、各テーブル値よりも大きな値を与えている。Agターゲット中に入射した各種イオンに対する比較例を図1に示す。

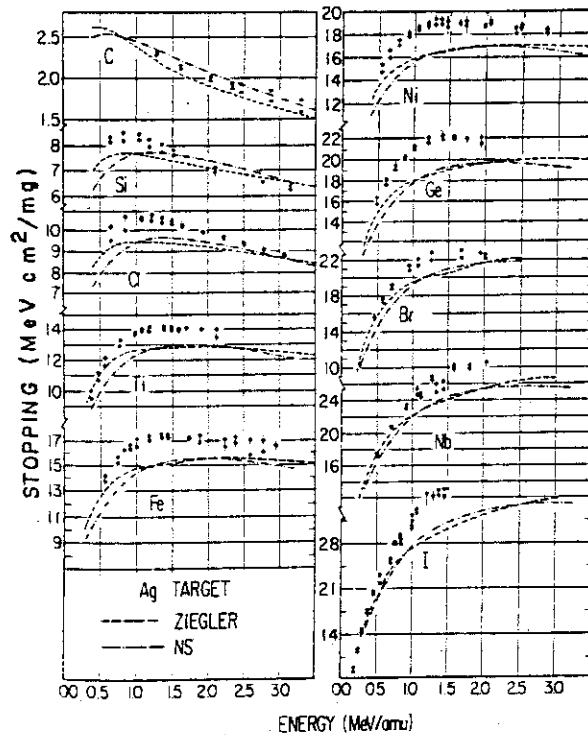


図1 Agターゲット中に入射した各種重イオン阻止能 (文献10)

有効電荷による解析は、

$$r = 1 - A \exp\left(-\frac{\lambda V}{V_0 Z_1^\beta}\right) \tag{1}$$

による解析式が採用されている。ここで  $r$  は有効電荷比、 $V, V_0$  は入射イオン速度、ボーア速度、 $Z_1$  はイオンの原子番号である。 $A, \lambda, \beta$  は解析パラメーターである。Brown と Moak による解析(スケーリング則)<sup>7)</sup> は、 $\beta = 0.688, A = 1.034, \lambda = 1$  の場合に対応する。Anthony と Lanford による解析では、 $\beta = 2/3, A, \lambda$  には試料依存性として  $Z_2$  の 2 次多項式が仮定されている ( $Z_2$ ; ターゲットを構成する原子の原子番号)。  $A, \lambda$  に対する最適値は次式で与えられる。

$$\left. \begin{aligned} A &= 1.16 - 1.91 \times 10^{-3} Z_2 + 1.26 \times 10^{-5} Z_2^2 \\ \lambda &= 1.18 - 7.5 \times 10^{-3} Z_2 + 4.53 \times 10^{-5} Z_2^2 \end{aligned} \right\} \tag{2}$$

Ag に対する解析結果、ならびに  $A, \lambda$  の  $Z_2$  依存性を図2、図3に示す。解析精度は±10%の範囲内にある。ターゲット依存性として  $Z_2$  をパラメーターとして採用することの妥当性、上記解析とスケーリング則からのずれの構造との関連など、更に基本的な課題を残しながらも、阻止能データの解析精度の向上が得られた点は、進展と言える。



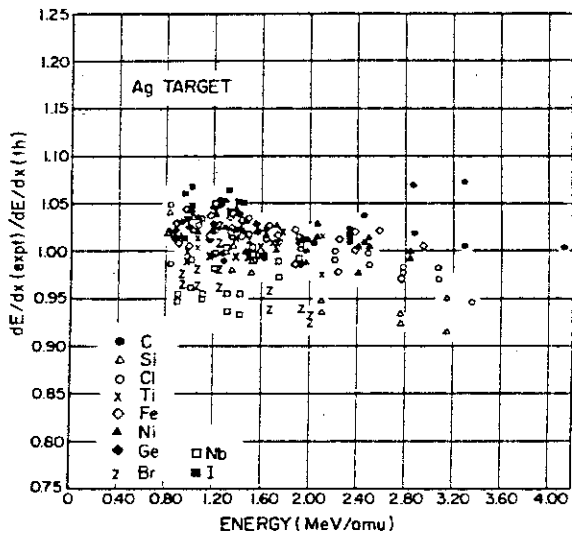


図2 有効電荷解析による阻止能比 (文献10)

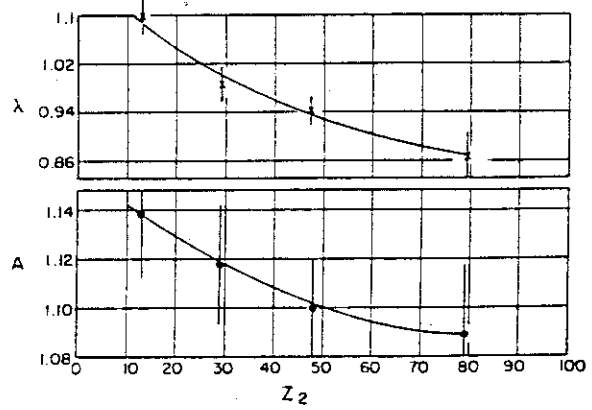


図3 A, λ の Z<sub>2</sub> 依存性 (文献10)

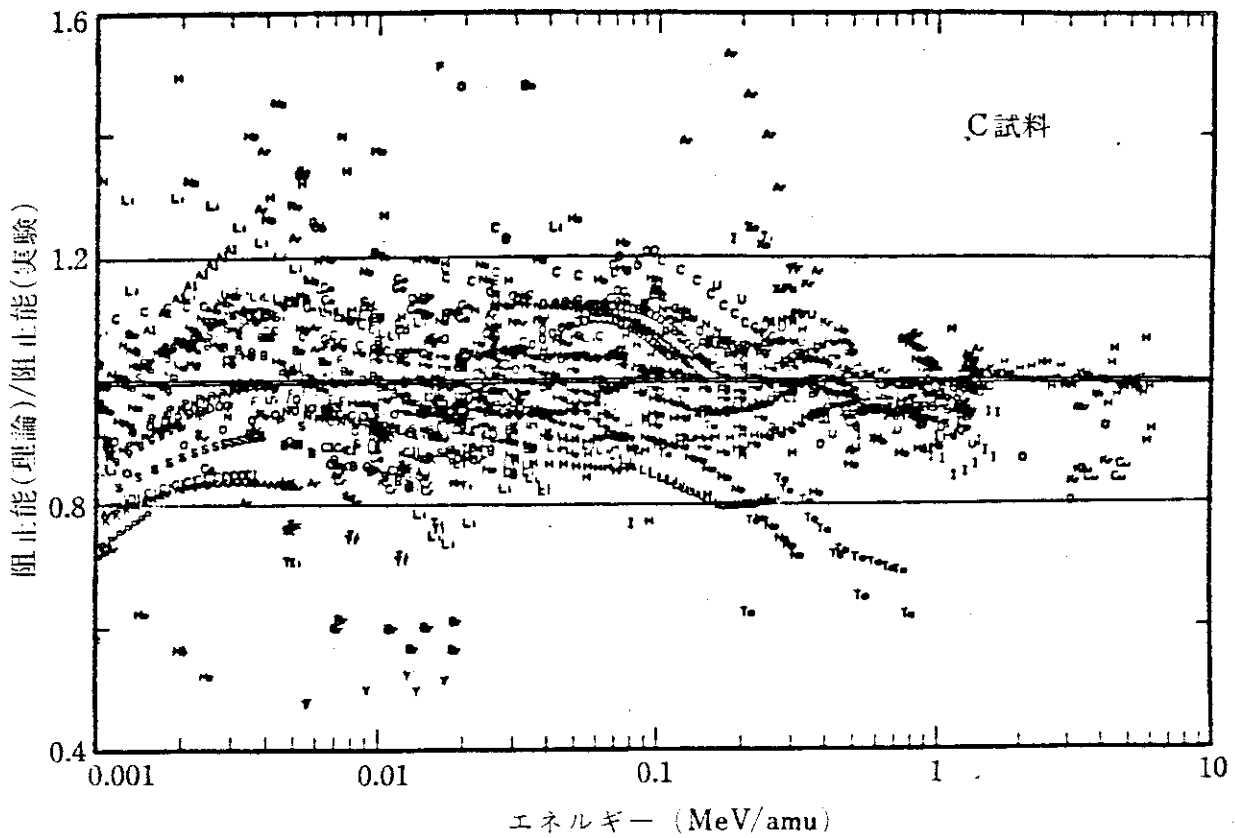


図4 有効電荷解析による阻止能比 (文献11)

陽子に対する阻止能データと、有効電荷に基づく重イオン阻止能解析がZieglerら<sup>11)</sup>により行われている。高エネルギー側での内殻電子による寄与を考慮した補正が行われている。Cターゲットに関する解析結果を図4に示す。縦軸は、阻止能の計算結果と測定値間の比を表わす。エネルギーは1 keV/amuから10 MeV/amuの広範囲の領域にわたり、また実験データも、軽イオンから重イオンにわたる広い範囲から抽出されている。90%前後のデータの解析精度は±20%の範囲内にある。AnthonyとLanfordによる解析に比べ、解析精度そのものは劣るが、比較対象のエネルギー領域、イオンの種類が広範囲であること、また年代的にも、場所的にも異なる多くの実験データ数を抽出することによる測定データのばらつきを考慮すれば、必ずしもAnthonyとLanfordによる解析よりも劣るとは言えない。阻止能研究、特に実験研究の興味が、軽イオン阻止能から重イオン阻止能へと移りつつある今日、当該分野における実験研究の進展、解析精度の確定ならびに詳細化が、更に期待されるものである。

### 3. 異種原子間での核的阻止能

核的阻止能の理論計算は、'63年のLindhard, Scharff, Schiøtt<sup>1)</sup>によるものがよく知られているが、'70年代後半になり、数値波動関数に基づく数値結果の解析的な表示<sup>14)</sup>、統計的なスケールリング則からのずれに関する異種原子間の阻止能の研究<sup>9)</sup>など、いくつかの進展をみせた。ここでは、これらの仕事を概略的にまとめておく。LSSによる核的阻止能の理論では、原子間の衝突ポテンシャルは統計的手法に基づいたフェルミ関数で記述されるが、原子番号が比較的小さい原子間での衝突、原子番号 $Z_1, Z_2$ が非対称的である原子間の衝突では、統計的なスケールリング則が成立しなくなる。1977年、Wilsonら<sup>14)</sup>は、多原子系での数値波動関数を用いて、各種原子対、イオン-原子対に対する原子間ポテンシャルを導出した。いくつかの計算例と統計的手法により算出されている解析式との比較を図5に示す。Bohrポテンシャルは遠距離部分で急激に減少する。また数値計算の結果は、Thomas-FermiポテンシャルやMolièreポテンシャルに比べ、遠距離部分での減少がやや速い。図中のAverageは、8つの数値計算の平均値を示す。原子間ポテンシャルに見られるこの種のずれは、核的阻止能においても現われる。数値曲線を再現するパラメターの最適化により、次の2種の解析式が提案されている。

$$\left. \begin{aligned} S_n &= \{ \text{Aln}(B\varepsilon) \} / \{ B\varepsilon - (B\varepsilon)^{-C} \} \\ S'_n &= \{ 0.5 \ln(1 + \varepsilon) / (\varepsilon + A\varepsilon^B) \} \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

ここで $\varepsilon = aM_2E/Z_1Z_2e^2(M_1+M_2)$ は換算エネルギーを表わし、またA, B, Cは最適値として決定されるパラメターを示す。

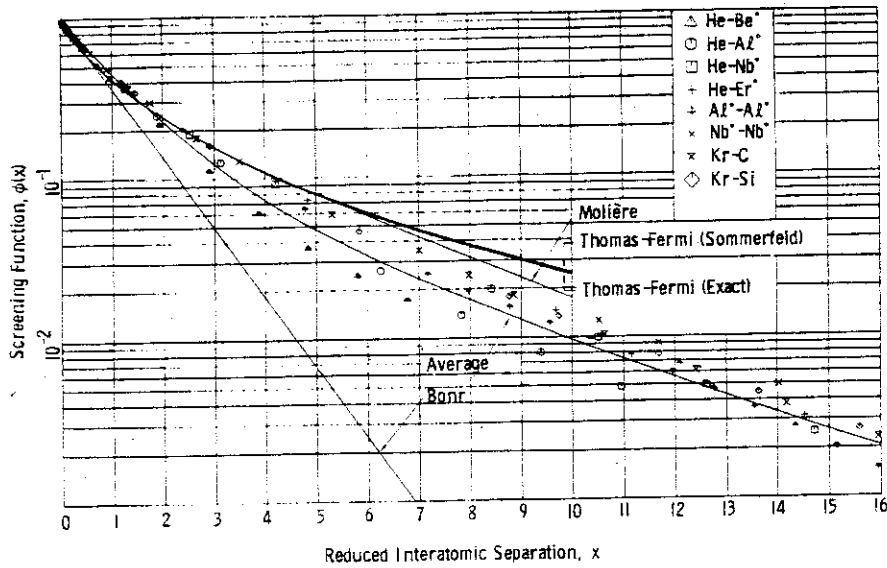


図5 各種モデルに基づくフェルミ関数（スクリーニング関数）（文献14）

### UNIVERSAL Reduced Nuclear Stopping

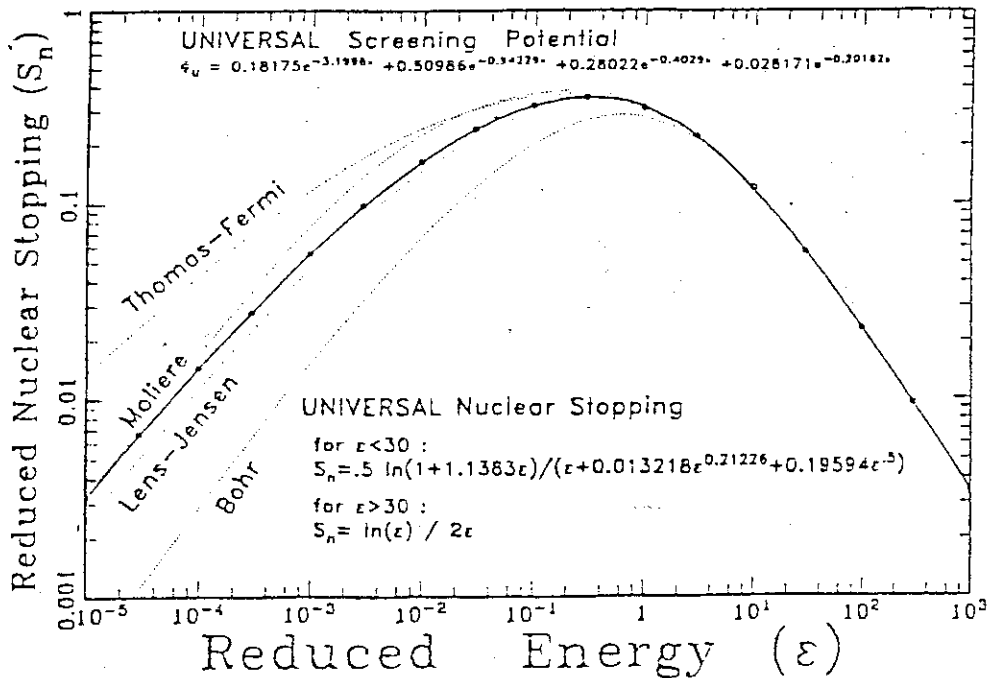


図6 換算核の阻止能（文献11）

各ポテンシャルに対して決定されたパラメータ値を表1に示す。同様な手法に基づく核的阻止能の計算が、Zieglerら<sup>11)</sup>によっても行われている。核的阻止能に関する解析式は、(3)式と若干異なる。各種統計的ポテンシャルに基づく結果との比較を図6に示す。結果は、MolièreポテンシャルないしはLens-Jensenポテンシャルの結果に近い。ただしLens-Jensenポテンシャルは1次近似によるもので、更に高次の近似による結果(近似としての精度は高くなる)がThomas-Fermiポテンシャルに漸近的に近づくという点<sup>15)</sup>は、今後検討しなければならない点である。

Table 1 各種モデルに対する核的阻止能パラメータ(文献14)

Potential	Constants			Largest deviation from actual calculation	
	A	B	C	%	At $\epsilon$
$S_n = \frac{A \ln(B\epsilon)}{B\epsilon - (B\epsilon)^{-C}}$					
Thomas-Fermi	0.494 71	1.3572	0.504 10	-2.7 +2.9	1 0.0001
Molière	0.691 43	3.6012	0.712 52	-12.9 +11.2	1 0.0001
Bohr	0.516 61	1.4821	0.832 73	-3.6 +4.5	0.002 0.0001
Kr-C	0.598 18	2.1829	0.689 37	-7.3 +9.2	1 0.0001
Average	0.562 56	1.1776	0.626 86	-6.6 +8.0	0.002 0.0001
$S_n = \frac{0.5 \ln(1+\epsilon)}{\epsilon + A \epsilon^2}$					
Thomas-Fermi	0.103 96	0.507 93		-2.9 +2.3	0.1 0.002
Molière	0.051 953	0.320 11		-1.7 +3.9	0.001 0.5
Bohr	0.258 20	0.297 61		-4.2 +6.0	0.0001 0.002
Kr-C	0.107 18	0.375 44		-2.7 +4.1	0.05 0.0001
Average	0.141 20	0.420 59		-12.5 -5.7	1 0.02

異種原子間における衝突ポテンシャル、核的阻止能の数値波動関数によらない近似計算法が、BiersackとZiegler<sup>9)</sup>によって提案されている。基本的なベースは、同種原子間に対する衝突ポテンシャルの計算に置かれており、異種原子間における衝突ポテンシャルとして、次のような実行関数(相乗平均)が採用されている。

$$V_{12}(r) = \sqrt{V_{11}(r) V_{22}(r)} \tag{4}$$

ここで $V_{11}(r)$ は同種原子間に対する衝突ポテンシャルである。 $V_{11}(r)$ に対する計算には、 $\phi(r) = \sum_{j=1}^3 C_j e^{-b_j r/a}$ なるMolièreタイプのフェルミ関数が採用されている。ここで $c_1, c_2, c_3, b_1, b_2, b_3$ は最適化パラメータである。また、これらの計算法の中には交換効果ならびに相関効果が考慮されている。当該計算法による同種ならびに異種原子間ポテンシャルに対する結果ならびに、前述した数値波動関数による結果との比較を図7~9に示す。図7および8より、原子番号の減少に伴ない充分重い原子に対して成立するスケール則からのずれが現われる。縦軸はフェルミ関数、横軸はスクリーニング半径を単位とした核間距離である。図9は異種原子間(He-Be, He-Nb)に対する衝突ポテンシャルの計算結果である。対象となる原子対に依存したポテンシ

ル・エネルギーの変化が現われる。元来、核的阻止能は、十分に低いエネルギー領域外では、電子的阻止能に比較して充分小さくなるため、飛程定量においては、必ずしも重要な物理量とされてはなかった。このため、スパッタリング、イオン照射損傷の定量解析において用いられてきた核的阻止能は、第0次近似に相当する域を出ていなかったと言える。今後、異種原子間での核的阻止能の実験データの蓄積により、当該阻止能のテーブル作成が行われることが期待されるものである。

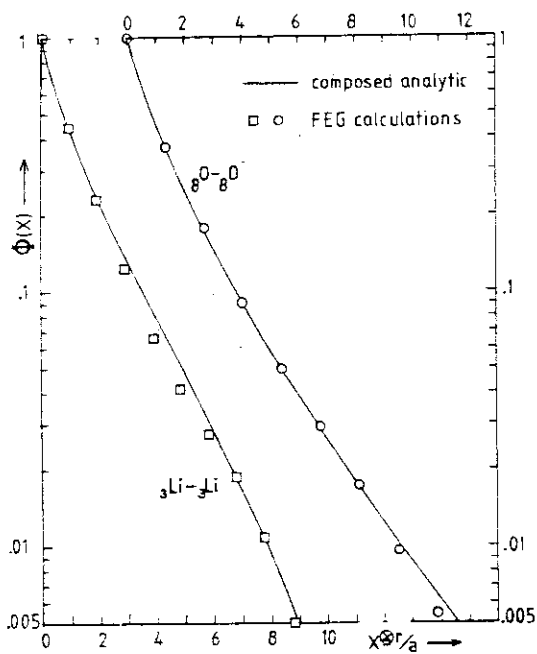


図7 同種原子対に対するフェルミ関数 (低原子番号領域) (文献9)

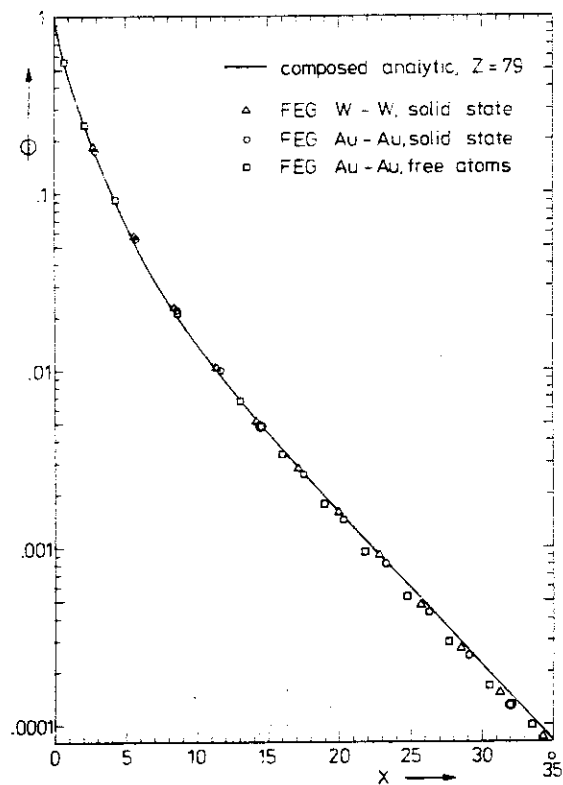


図8 同種原子対に対するフェルミ関数 (高原子番号領域) (文献9)

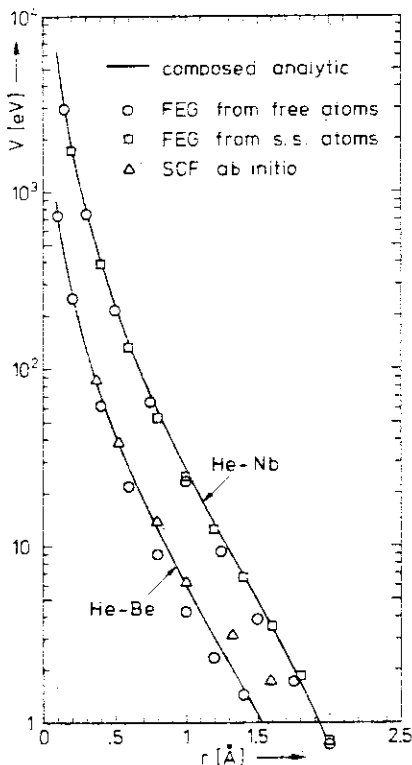


図9 異種原子対に対する原子間ポテンシャル (文献9)

## 4. おわりに

1970年代の後半期から、低エネルギー領域における重イオン（電子的）阻止能、ならびに核的阻止能の研究はいくつかの進展を見せた。これらの進展は、加速器の固体研究への応用の進展と、それに伴う重イオン阻止能研究への興味による所が多い。重イオン阻止能の有効電荷による解析は、1972年のBrownとMoakの実験にはじまるが、1980年代に入り、従来はスケーリング則の枠外にあったイオンをも含んだ解析が行われるようになり、広範囲なエネルギー領域、イオン種に対する阻止能を±10～20%の範囲内で解析することが可能となっている。これらの有効電荷による重イオン阻止能解析には、データ蓄積による、陽子やHeイオンなどの軽イオン阻止能データ解析精度の向上という土台があることは言うまでもない。広範なイオン、エネルギー領域に対する解析精度の向上は、低原子番号側でのイオンに対して観測されている、スケーリング則からのずれに関する構造解析研究のガイドとなるばかりでなく、既存の重イオン阻止能テーブルの評価、判定、新たな実験式の作成、テーブル化をうながすものでもある。

核的阻止能の理論も、いくつかの進展をみせた。すなわち、計算機研究の発展に伴った、衝突ポテンシャルと核的阻止能の数値波動関数による導出である。また、異種原子間衝突に対する解析的な近似計算法の開発も行われ、統計的なスケーリング則からのずれの解析もなされている。特に、長時間を要する計算機研究に比べても、計算結果の定量的一致が良ければ、後者の手法の有用性はいうまでもない。核的阻止能は、イオン照射損傷における損傷分布、損傷断面積の解析においては重要な物理量となるため、各種原子対、イオン-原子対に対する詳細な解析が今後進められるであろう。更に、上述した阻止能研究の進展は、計算機シミュレーションによる飛程等の研究においても重要な意味を持つ。軽イオン阻止能データのテーブル、重イオン阻止能の有効電荷および核的阻止能の解析式の計算機コードへの繰入れが、今後期待されるものである。

## 文 献

- 1) J. Lindhard, M. Scharff and H.E. Schiøtt: K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 33, No.14 (1963)
- 2) O.B. Firsov: Sov. Phys. JETP, 7, 308 (1958)
- 3) たとえば S.P. Ahlen: Rev. Mod. Phys. 52, 121 (1980)
- 4) 石割隆太郎: 応用物理 51, 286 (1982).
- 5) H.H. Andersen, J.F. Bak, H. Knudsen and B.R. Nielsen: Phys. Rev. A16, 1929 (1977)
- 6) たとえば H.H. Andersen and J.F. Ziegler: Hydrogen Stopping Powers and Ranges in All Elements (Pergamon, New York, 1977)
- 7) M.D. Brown and C.D. Moak: Phys. Rev. B6, 90 (1972)
- 8) S. Datz, J. Gomez del Campo, P.F. Dittner, P.D. Miller and J.A. Biggstaff: Phys. Rev. Lett. 38, 1145 (1977)
- 9) J.P. Biersack and J.F. Ziegler: Nucl. Instr. and Meth, 194, 93 (1982)

- 10) J.M. Anthony and W.A. Lanford: Phys. Rev. A25, 1868 (1982)
- 11) J.F. Ziegler, J.P. Biersack and U. Littmark: Proc. US-Japan Seminar on "Charge States and Dynamic Screening of Swift Ions in Solids" CONF-820131 (Oak Ridge National Laboratory, 1983)
- 12) L.C. Northcliffe and R.F. Schilling: Nucl. Data. Sec. A7, 4 (1970)
- 13) J.F. Ziegler: Handbook of Stopping Cross-Sections on Energetic Ions in All Elements (Pergamon, New York, 1980)
- 14) W.D. Wilson, L.G. Haggmark and J.P. Biersack: Phys. Rev. B15, 2458 (1977)
- 15) M. Bister and M. Hautala: Phys. Lett. 68A, 98 (1978)