

JAERI-M

9775

荷電粒子と固体の相互作用研究会報告書

1981年11月

原子分子データ研究委員会

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

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

荷電粒子と固体の相互作用研究会報告書

日本原子力研究所原子分子データ研究委員会

(1981年10月8日受理)

原子分子データ委員会の粒子・固体相互作用ワーキンググループの全体会議が1981年1月12、13日の2日間、原研本部会議室で開催された。この会議は核融合研究のための原子分子データと材料研究に横たわる問題点を明確にし、今後の研究開発推進の展望を得る事を目的とした。ワークショップでは各委員が専門とする分野のテーマに関してのレビュー及び調査報告19編が提出されたが、本報告書はこれを取りまとめ編集したものである。

内容は大別して、Ⅰ総合報告(3編)、Ⅱ保持、放出、反射及びデソープションを含む水素リサイクリング(8編)及びⅢ壁材料とイオン及び中性子照射による損傷機構(8編)から構成されている。

研究会世話人

下 司 和 男  
岩 田 忠 夫  
小 沢 国 夫 (W.S. 責任者)  
白 石 健 介

Report of Workshop on Particle Material Interactions  
for Fusion Research

The Research Committee on A & M Data of JAERI

(Received October 8, 1981)

The discussion meeting of workshop on the particle material interaction for fusion research was held at a conference room in the JAERI Headquarters, Tokyo, January 12&13, 1981. The meeting was sponsored by the Research Committee on A&M data of JAERI. The aim of this workshop has been not only to stress the problems connected with the A&M data to the relevant materials for fusion research, but also to obtain an overview of the approaches that should be developed for solving the problems.

In the workshop, nineteen papers were presented. These are three general reviews and sixteen comprehensive surveys on topical subjects which have been developed very intensively in recent years. The proceedings are divided into three sessions which are essentially connected each other: 1) general reviews, 2) hydrogen recycling processes which cover the area of trapping, re-emission, reflection and desorption, and 3) wall materials and their radiation damage by ion and neutron irradiation.

The editors would like to thank all participants for their assistance and cooperation in making possible a publication of these proceedings.

Keywords: Fusion Research, Plasma-wall Interaction, Hydrogen Isotope, Trapping, Re-emission, Reflection, Desorption, Radiation Damage, Ion, Neutron.

---

Editors

K. Gesi

T. Iwata

K. Ozawa

K. Shiraishi

## 目 次

I 総合報告	
I-1 原子分子データと材料研究	1
	原研 濱 口 由 和
I-2 トカマク型核融合装置におけるプラズマ壁相互作用	2
	原研 村 上 義 夫
I-3 Boulder 会議と PMI の展望	7
	原研 小 沢 国 夫
II 水素リサイクリング (保持, 放出, 反射, 脱着)	
II-1 材料中にイオン注入された同位体及び He の保持・放出	19
	東北大工 山 口 貞 衛
II-2 材料中の水素及びその同位体と He 保持及び放出	25
	筑波大物工 工 藤 博
II-3 低エネルギー軽元素粒子の固体表面による反射	32
	原研 下 司 和 男
II-4 H 及び He の固体表面による反射	47
	大放研 多 幡 達 夫
II-5 低エネルギー軽元素粒子の固体表面による反射	53
	名大工 森 田 健 治
II-6 イオンおよび電子による脱着	59
	原研 永 井 士 郎
II-7 固体表面での H 粒子の化学反応	72
	原研 西 堂 雅 博
II-8 イオン及び電子衝撃による 2 次電子放出	75
	原研 大 野 新 一
III 壁材料とイオン及び中性子照射損傷	
III-1 壁材料としての耐熱物質 (eg. MO, Nb, V, W and Alloys)	79
	京大炬 中 川 益 夫
III-2 固体中での重イオン阻止能と有効電荷	89
	湘北短大 北 川 盈 雄
III-3 固体内に注入された低 Z 原子の同定とその評価	95
	東大教養 小 牧 研一郎
III-4 金属のイオン照射損傷	101
	阪大基礎工 桐 谷 道 雄・佐々木 茂 美
III-5 金属のイオン照射における欠陥生成率	118
	原研 岩 田 忠 夫



CONTENTS

I General Review	
I-1	"A&M Data and Material Research Programme." JAERI, Yoshikazu Hamaguchi ..... 1
I-2	"Plasma Wall Interactions in Tokamak Devices." JAERI, Yoshio Murakami ..... 2
I-3	"Reports of the Boulder Work-shop and Review on the Plasma-material Interaction." JAERI, Kunio Ozawa and GIT, E.D. Thomas ..... 7
II Hydrogen Recycling (Trapping, Re-emission, Reflection and Desorption)	
II-1	"Trapping and Re-emission of Energetic Hydrogen and Helium Ions in Materials." Faculty of Engineering, Tohoku University, Sadae Yamaguchi .... 19
II-2	"Trapping-detrapping Phenomena of Hydrogen, Helium and Their Isotopes into or from Materials." Physical Engineering, The University of Tsukuba, Hiroshi Kudo ..... 25
II-3	"Reflection of Low-energy Light-element Ions from Solid Surfaces." JAERI, Kazuo Gesi ..... 32
II-4	"Empirical Formulas for the Reflection of Light Ions from Solids." Radiation Center of Osaka Prefecture, Tatsuo Tabata ..... 47
II-5	"Reflection of Low Energy Light Element Projectiles by Solid Surface." Faculty of Engineering, Nagoya University, Kenji Morita ..... 53
II-6	"Desorption by Ions and Electrons." JAERI, Shiro Nagai ..... 59
II-7	"Chemical Reactions of H Particles at Solid Surface." JAERI, Masahiro Saidoh ..... 72
II-8	"Secondary Electron Emission by Ionic and Electronic Bombardment." JAERI, Shinichi Ohno ..... 75
III Materials for First Wall and Their Irradiation Damage by Ion and Neutrons	
III-1	"Refractory Materials for the First Wall (e.g. V, Nb, Ta, Mo, W and alloys)." Research Reactor Institute, Kyoto University, Masuo Nakagawa ..... 79
III-2	"Stopping Power and Effective Charge of Low-velocity Ions in Metals." North Shore College, Mitsuo Kitagawa ..... 89
III-3	"Identification and Lattice Location of Low-Z Impurities Implanted into Solids." College of General Education, University of Tokyo, Kenichiro Komaki ..... 95

III-4	"Ion Irradiation Damage of Metals." Faculty of Engineering Science, Osaka University, Michio Kiritani .....	101
III-5	"Defect Production Rates in Ion-irradiated Metals." JAERI, Tadao Iwata .....	118
III-6	"Blistering due to Neutral He Particle Bombardment in Refractory Metals." Faculty of Engineering, Osaka University, Touichi Okada .....	125
III-7	"Neutron Irradiation Damage in Fusion Reactor Materials." JAERI, Kensuke Shiraishi .....	130
III-8	"Data Base Systems for Radiation Damage Problems in Structural Materials of Fusion Reactors." JAERI, Takeo Aruga .....	137



## I - 1 原子分子データと材料研究\*

原 研 濱 口 由 和

原研原子分子データ研究委員会は、核融合研究に有用な評価済み原子分子データライブラリー (JEAMDL) の編集作業を開始している。

粒子-固体衝突 W. G. もこの一環としての作業を続けて行く必要がある。当面緊急に必要な当 W. G. 関係の原子分子データのうち、プラズマの挙動と直接関係ある問題としては表面からのスパッタリングのデータがあるが、このデータはすでに名大プラズマ研企画情報センターが着手しており、重複して作業を行う必要もないので、当 W. G. としてはこの作業に積極的に協力するに止めたい。従って当 W. G. は当面の作業目標を水素、ヘリウムのリサイクリングの問題に置くことにした。この問題はスパッタリングよりもさらに照射粒子の特性のみならず、照射を受ける材料の表面、内部などの物理的・化学的性質に依存するところが多い。従ってすでに固体物理・固体化学・表面物性などに多くの研究経験、実績を有しておられる委員の方々の御協力を得て、ユニークなデータ収集・評価作業が行われることを期待している。なおこのテーマは最近 IAEA の A & M Data Section より提案された協同研究計画の一つともなっており、我々としてはこの提案に積極的に協力することを計画中である。

第2の重点として当 W. G. が目標にしているテーマはイオン照射による損傷断面積の収集・評価である。この問題はプラズマの挙動に関係したものではなく、核融合炉材料の照射損傷に関するテーマである。よく知られているように核融合炉材料で問題になっているのは 14 MeV 中性子重照射効果の評価である。しかしながらこの評価を直接に行うための中性子源はまだ存在していない。従って各国とも種々の中性子源や照射装置を利用し、14 MeV 中性子重照射の効果をシミュレートすることを試みている。我国においてはこのために利用できる照射装置としてはタンデム加速器、各種 V. d. G. 加速器、サイクロトロン等のイオン照射装置しか存在しないので、イオン照射が固体に与える損傷量を的確に推定すると共に、その損傷機構を解明し、それを基にして 14 MeV 中性子重照射効果の推定を行いたい。この計画の後半の部分は核融合炉材料研究委員会に近く設置が予定されているデータベース W. G. の作業と密接に関連しているが、損傷断面積の評価は当 W. G. で実施し、これをデータ・ベース W. G. に引きついで行くことを計画中である。昨年度にまとめを行ったブリストリングのデータはこの方向での作業の一環であると考えている。

以上が当 W. G. の当面の目標であるが、この点を御理解いただき、各委員の方々の積極的な御協力を御願い致したい。

---

\* A&M Data and Material Research Programme.

## I - 2 トカマク型核融合装置におけるプラズマ壁相互作用\*

原研 村上 義夫

トカマク装置では、プラズマの中心温度が 10 keV 程度であるのに対して、それを取囲んでいる壁の温度は 0.1 eV 程度で、両者の間には  $10^5$  の温度差がある。高温のプラズマと壁との間の空間は真空で、その間の距離に比べて粒子の平均自由行程が充分長い。この場合、 $10^5$  の温度差をプラズマ内で約  $10^2$ 、プラズマ表面（周辺プラズマ）と壁との間で約  $10^3$  の割合で分配すると考えられる。周辺プラズマの平均 100 eV 前後（実際には広いエネルギー分布を持っている）の電子、イオン、中性粒子が壁を衝撃することになる（図 1 参照）。実際の装置の壁は、図 1 に示すように、プラズマの形状を定めるためプラズマ側に突出したりリミタと、プラズマより少し遠い位置にあるライナ（いわゆる壁）とから構成される。リミタは直接プラズマと接するので、特に相互作用が大きい。このほか、磁気リミタ（ダイバータ）板や中性粒子ビーム対向面にも大きな粒子束と熱が流入する。このようなことから、不純物放出制御や燃料粒子のリサイクリング率制御、あるいはトリチウム装荷量制御のために、表面材料の選択、コーティング技術や表面清浄化技術などの開発が重要な課題となる。

プラズマ壁相互作用に関する研究や技術開発で取扱われる範囲を図示すると図 2 のようになる。これらは大きく 3 つの分野に分けることができる。その 1 は、トカマク装置実機におけるリミタ、壁への熱負荷や粒子束、周辺プラズマにおける不純物のふるまい、ダイバータや磁気リミタによる不純物（ヘリウムも含む）の除去などを取扱う研究で、プラズマ物理からのアプローチである。その 2 は、真空壁における表面現象の研究である。すなわち、プラズマの放射損失の原因となる壁からの不純物放出の機構や、燃料粒子の壁面におけるリサイクリングの機構について明らかにし、表面材料の開発やトカマク装置の設計・運転に資することを目的としている。ここでは多くの場合、イオン加速器などを用いて実機条件を模擬し、化学反応、粒子衝撃脱離、スパッタリング、ブリスタリング、後方散乱（反射）、捕捉・再放出などの素過程を解明するという方法論が採られている。この研究は、原子核、物性、真空などの境界領域に属する新しい分野にあると思われる。その 3 は、プラズマを閉込めるために適した第一壁（リミタ、ライナなど）の作成に関する開発研究である。ここでは第一壁のコーティングや清浄化処理、清浄表面の長時間維持などの問題が含まれ、真空技術が基礎となっている。プラズマ壁相互作用の研究開発は、上記の 3 者が有機的に結合して進められなければならない。

次に、トカマク装置におけるプラズマ壁相互作用で材料開発や原子分子データ収集の観点から特に重要であると考えられる諸点について箇条書にし、今後の研究開発推進の一助としたい（図 3 参照）。

(1) ライナ（いわゆる壁）と周辺プラズマが直接接する固定リミタや磁気リミタ（ダイバー

\* Plasma Wall Interactions in Tokamak Devices.

タ)板などとは、主たる表面現象が異なる。

- (2) 第一壁に金属を用いる場合には、プラズマ中の酸素・炭素などの低Z不純物は主に吸着ガスに起因し、これが壁から放出される機構は水素との化学反応と粒子衝撃脱離であると考えられる。ライナでは前者が支配的である。ここでは水素を含む3元系の反応を取扱わねばならない。吸着酸素の放出に関しては、酸素-金属の結合エネルギーと酸素-水素の結合エネルギーの大小関係によって様相が大幅に変化することに注意する必要がある。<sup>1,2)</sup> リミタや磁気リミタ板などでは電子やイオンによる粒子衝撃脱離が支配的である。実用的には、粒子衝撃脱離係数が材料表面の清浄度を表わす指標として重要である。<sup>3)</sup>
- (3) ベークアウトや放電洗浄は第一壁表面の清浄化やコンディショニングに有効であるが、このような処理を施しても金属壁表面はかなりのガス不純物で被われており、原子的に清浄な単結晶表面からほど遠いものである。<sup>2)</sup> 理想的な清浄表面と実用材料を用いたトカマク装置第一壁表面とのギャップを認識しておくことが必要であろう。
- (4) 清浄表面の長時間維持に関しては、金属壁ではなく、活性ガスの付着確率の小さい炭素などの低Z材壁を用いることが考えられる。<sup>4)</sup> 種々の低Z材表面における活性ガスの吸着特性に関するデータが要求される。
- (5) 壁材不純物の放出機構については、スパッタリング、蒸発、ブリスタリング(薄皮の剥離)、単極性アーキングなどが考えられるが、これらの中でスパッタリングとアーキングが支配的であるとみられる場合が多い。アークは壁の表面状態が悪く放電が不安定なときに発生しやすい。プラズマの第二段加熱が強力に行なわれ、プラズマが炉条件に近づくと、リミタやダイバータ板への熱負荷は局部的に数kW/cm<sup>2</sup>にも達するとみられ、<sup>5)</sup> 壁材の熱分解や蒸発も無視できない。ブリスタや同様の現象による薄皮の剥離は、中性粒子ビームの対向面における100keV前後の水素粒子の照射や、D-T反応により生じる $\alpha$ 粒子(He)の照射により発生する可能性がある。
- (6) 壁材不純物の制御には系全体の粒子のリサイクルリングについて検討する必要があるが、一般に次の方法が考えられている。
- i) 周辺プラズマの冷却→スパッタリング、アーキングの低減
  - ii) ダイバータ、磁気リミタ運転→シールド効果
  - iii) 第一壁の低Z化→〔不純物臨界許容量〕/〔スパッタリング収率〕の向上
- リミタなどの材料については、スパッタリングを考慮した壁材の“figure of merit”の検討から、いわゆる低Z材料が有利である。<sup>6)</sup> このため現在建設中の大型トカマク装置では、第一壁をC, TiC, SiC, TiB<sub>2</sub>などの耐熱性低Z材料でコーティングすることが検討されている。<sup>7, 8)</sup>
- (7) スパッタリングでは、低Z材料の化学スパッタリング、不純物イオンによるスパッタリング、大電流イオンビームによる表面侵食などが重要な課題である。また金属のスパッタリング収率は微量の酸素の存在によっても大きく変化するので、<sup>1,9)</sup> 実機壁条件との関連において検討する必要がある。
- (8) 水素同位体の捕捉・再放出に関しては、第一壁にチタンを使用すると壁におけるリサイクルリング率が小さくなるが、水素の滞留量が10<sup>19</sup> atoms/cm<sup>2</sup>を超えるので、トリチウム

を使用する装置では問題である。C, TiC, TiB<sub>2</sub>などの壁では、水素の滞留量を 10<sup>17</sup> atoms/cm<sup>2</sup> 程度に抑えることができ、水素同位体間の置換もイオン衝撃法により比較的容易に行なうことができる。<sup>10,11)</sup>

- (9) トリチウムのβ-崩壊が表面現象に及ぼす影響はプラズマからの影響に比して小さい。<sup>12)</sup>

#### 文 献

- 1) Y. Murakami and T. Abe, Proc. 2nd Meeting on uhv Techniques for Accelerators and Storage Rings (Tsukuba, 1978) p.67.
- 2) H. F. Dylla, J. Nucl. Materials 93 & 94 (1980) 61.
- 3) A. G. Mathewson, Proc. 2nd Meeting on uhv Techniques for Accelerators and Storage Rings (Tsukuba, 1978) p.88.
- 4) Y. Murakami, to be published.
- 5) H. Nakamura, et al, Proc. 11th Symp. on Fusion Technology (Oxford, 1980).
- 6) R. Behrisch, J. Nucl. Materials 85 & 86 (1979) 1047.
- 7) H. Nakamura, JAERI-M 8971 (1980) p.330.
- 8) M. Ulrickson, ibid p.313.
- 9) R. Behrisch, et al, J. Nucl. Materials 93 & 94 (1980) 645.
- 10) K. L. Wilson and A. E. Pontau, ibid 569.
- 11) B. L. Doyle, et al, ibid 551.
- 12) M. E. Malinowski, ibid 96.

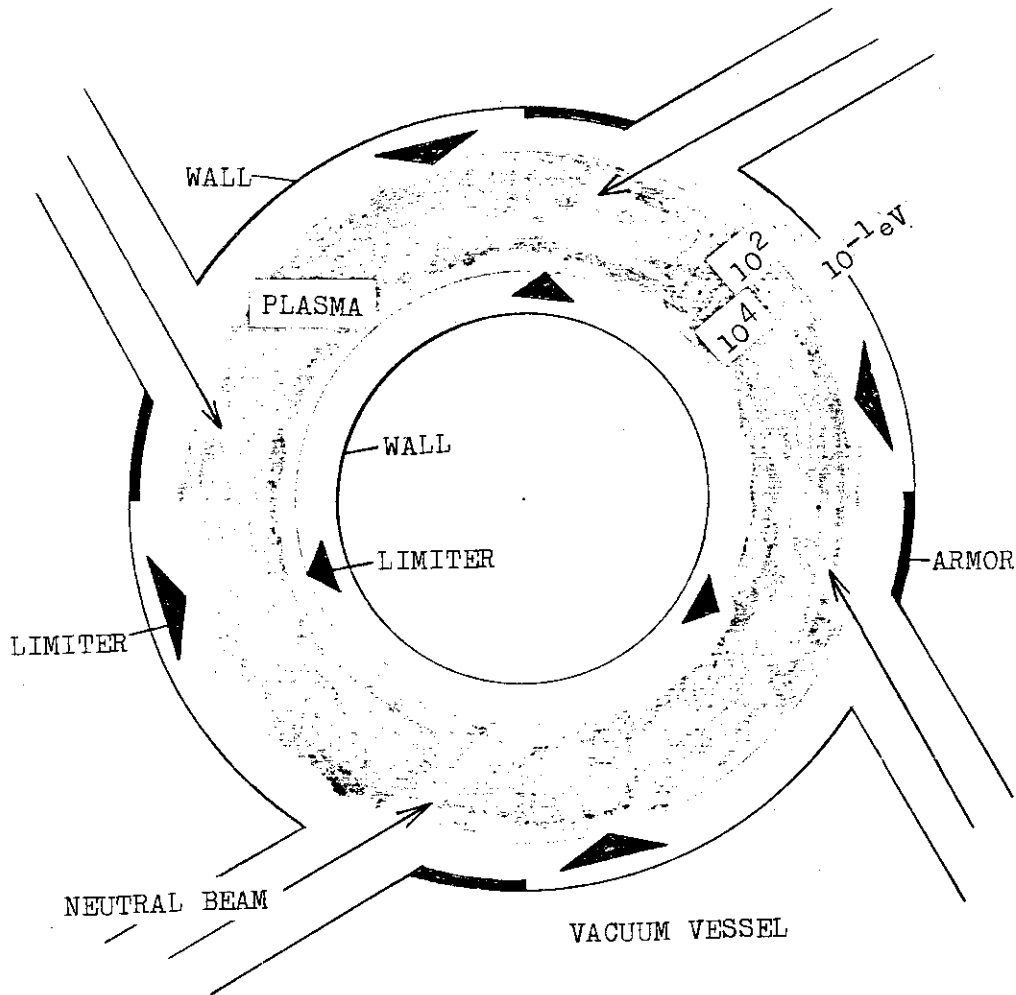


図1 トカマクプラズマと第一壁との関係

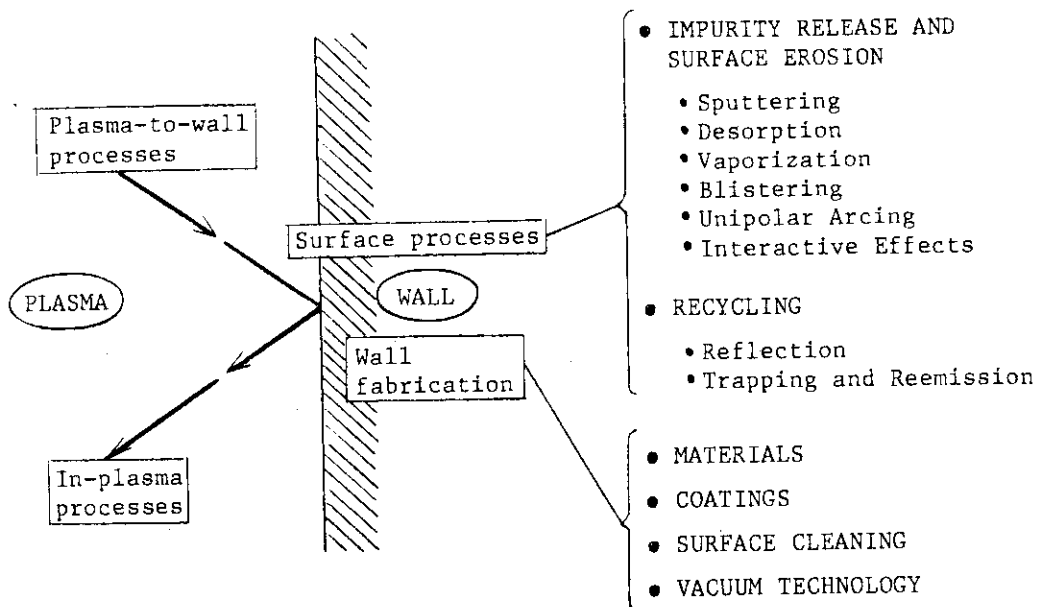


図2 プラズマ壁相互作用に関する研究や技術開発で取扱われる範囲

PLASMA-TO-WALL PROCESSES

- Heat and particle fluxes to limiter and wall
  - Plasma edge cooling
- Impurity transport in boundary plasmas
  - Shielding with diverters and magnetic limiters
  - Helium exhaust

SURFACE PROCESSES

- Chemical reaction with hydrogen isotopes
- Desorption
  - Electron stimulated desorption
  - Ion induced desorption
- Sputtering
  - Chemical sputtering of low-Z materials
  - Sputtering by impurity ions
  - Surface erosion by high flux hydrogen beams
  - Sputtering in oxidizing atmosphere
- Vaporization and decomposition due to plasma irradiation
- Blistering and flaking
  - by neutral beams ( $\sim 100\text{keV}$ )
  - by alpha-particles (up to  $3.5\text{MeV}$ )
- Unipolar arcing
- Trapping and detrapping
  - Recycling rate of hydrogen isotopes
  - Tritium buildup and recovery by ion induced replacement
- Adsorption
  - Titanium gettering
  - Sticking probability of impurity particles
- Tritium-related surface effects

WALL FABRICATION

- Material
  - Technological materials
- Low-Z coatings
  - Application of coating technology
  - Film adhesion (thermal fatigue, thermal shock test)
- Surface treatment
  - Chemical cleaning
  - Baking
  - Discharge cleaning

図3 プラズマ壁相互作用の研究で特に重要であると考えられる事項  
(材料開発や原子分子データ収集の観点から)

## I - 3 Boulder 会議とPMIの展望\*

原研 小 沢 国 夫

「核融合のための原子衝突過程データ」に関する日米作業委員会 (the US-Japan Workshop on Atomic Collision Data for Fusion) が1980年10月27～31日にBoulder市コロラド大学のキャンパス内にある天体物理共同研究所(JILA)で行われた。この作業委員会はelectron-ion散乱及びion-atom散乱が主題テーマであったが、それ以外の関連するテーマとして、原子構造とプラズマ・壁相互作用に関するデータの現状把握と問題点の展望も併せ行われた。その際Tokamak型核融合炉に対する原子データのニーズとして、1) プラズマ加熱、2) 不純物原子の制御、3) 分光診断、及び4) 壁及びスクレイプオフ領域のプラズマ相互作用が挙げられた。この第4の主題は所謂PWI (plasma wall interaction) の問題であり、これに関する日米WSは1981年秋、名古屋で実施される事が合意された。Boulder会議ではGeorgia Institute of TechnologyのE.D. Thomas教授により、下記のようなPWIに関するReviewが行われたので再録してこの作業委員会の参考資料としたい。その要旨は、1) Tokamakの壁とは、真空壁、リミッター、及びダイバータの総称であり、2) その材質はstainless steel, 高融点金属及び低Zコーティング材で構成される。3) これら壁材からプラズマとの相互作用で生ずる放出過程を、物質、温度及びビームフラックスをパラメータとした素過程として整理する事が必要。4) 原子過程としてはH及びその同位体の反射スパッタリング及び脱着を、半経験式化してプラズマモデリング則が可能にする事が必要。5) 集団的な過程として逃走電子、アーキングによる融解や熱的蒸発がプラズマ中への不純物の主な原因となる。収集データも断片的であるが、恐らく、装置デザインや運転条件の改善で減少する。

一方、壁材料に関する核融合開発の近い将来を考えるとDT燃焼に伴う14 MeV中性子及び3.5 MeV He粒子による材料の照射損傷に関するデータが重要項目になることが予想される。このため、既存の中程度照射によるデータを延長して、重照射効果の挙動予測を可能にするが必要となり、基礎データとしての材料損傷の生成と成長についてのシミュレーションモデルの確立が求められている。材料選定とその材料組織がH及びHeのサイクル負荷と照射損傷により生ずる変形や破壊に就てのデータが優先されるであろう。従って本作業委員会の活動も、1) 特定材料の水素同位体及びHeのリサイクリングに関するデータ収集及び生産と2) イオン粒子線による損傷機構のデータにその焦点を絞る方針を採って来た。この様な展望に立てば、当然PWI過程からPMI (Particle Material Interaction) 過程へと、粒子のエネルギー範囲をMeV領域まで拡大した作業内容が要求される訳で、今後PMI過程の評価活動実施に各委員の御協力をお願いしたい次第である。

\* Reports of the Boulder Work-shop and Review on the Plasma-material Interaction.

## Atomic & Molecular Particles Entering Plasma from Surfaces

by E. W. Thomas

### A. Introduction

#### 1. Relevant Surfaces

- (i) Tokamak Vacuum wall or liner. Bombarded by uncharged particles (photons, neutrals); unconfined particles (generally low energy ions & electrons); all particles during disruption.
- (ii) Limiter. Bombarded by all species at plasma edge. Protects wall. Takes high power load.
- (iii) Divertor plates. High power flux of impurities, electrons and hydrogen.

#### 2. Nature of Surfaces

- (i) Wall- structured metal (generally steel).
- (ii) Limiter- refractory metals are often used but these give high Z impurities. Experiments with carbon and low Z coatings  $TiB_2$ ,  $TiC$ , B. Limiter is expendable and replaceable.
- (iii) Divertor plates- Refractory metals.

#### 3. Variables

- (i) Material.
- (ii) Temperature.
- (iii) Fluxes.

#### 4. Processes

- (i) Atomistic. Reflection, Sputtering, Desorption.
- (ii) Collective. Thermal evaporation, Melting-Arcs, Melting-Runaway el.
- (iii) Synergistic.

### B. Reflection of Light Ions

Occurrence: Inevitable.

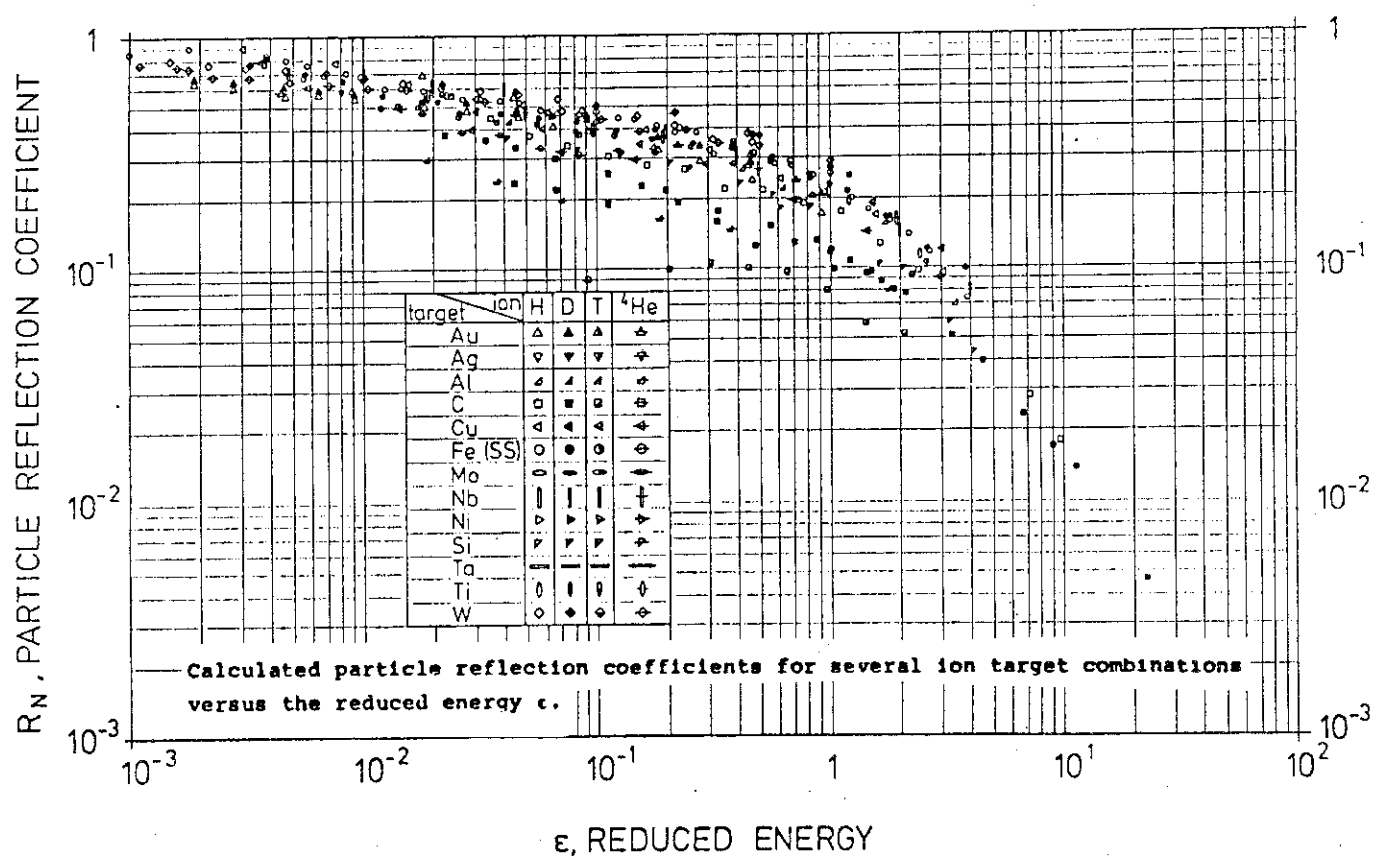
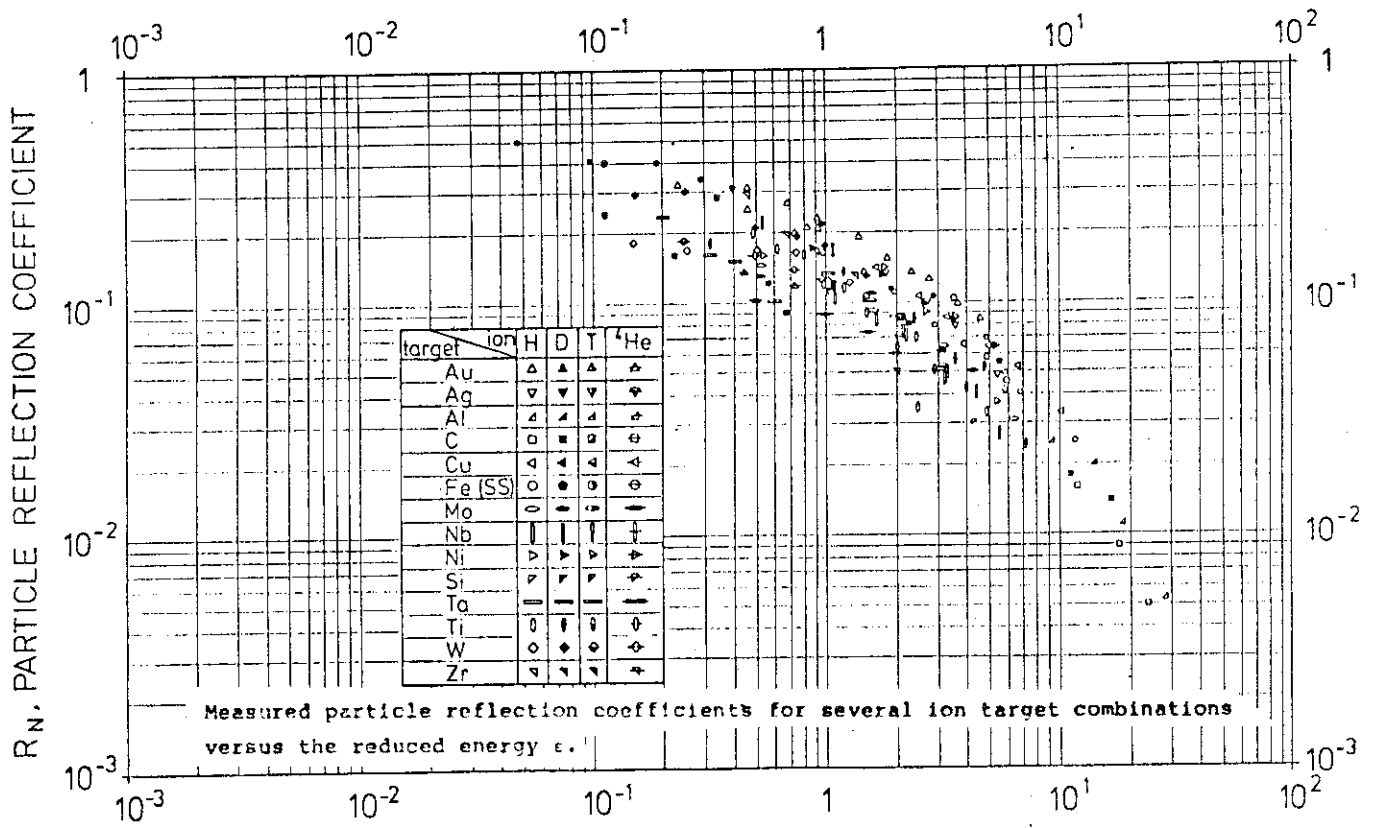
Conditions: Injector Energy to zero.

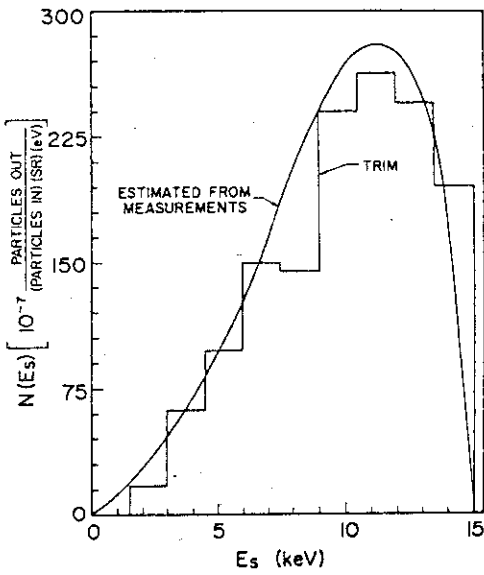
Parameters: Reflection Coefficient, Energy Distribution, Charge State Distribution.

Experimental Data: Copious, Consistent. Data can readily be scaled permitting estimates for materials.

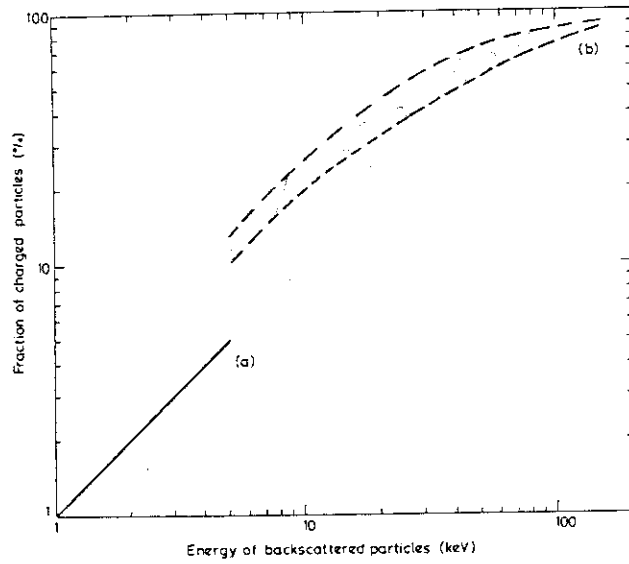
Theoretical: Reflection coefficient & energy distribution can be





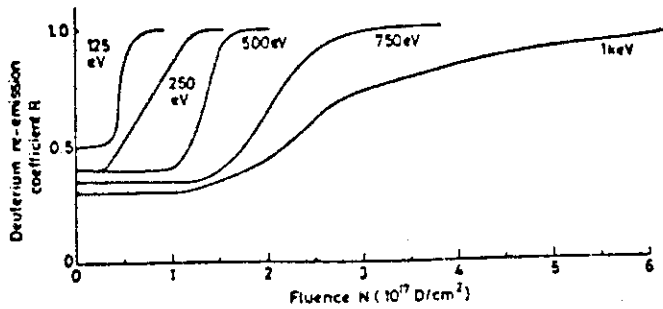


Estimated recoil-flux energy spectrum of all species ( $H^+$ ,  $H^0$ , and  $H^-$ ) for the case of 15-keV  $H^+$  on Cu incident at  $69^\circ$  from the surface normal; scattering angle  $\theta$  is  $30.4^\circ$ . The experimental estimate is achieved from the  $H^+$  energy spectrum shown in Fig. 4 by dividing by the charge state fraction as measured by Behrisch *et al.*<sup>22</sup> The histogram is a computer simulation by Haggmark<sup>21</sup> using the TRIM code.

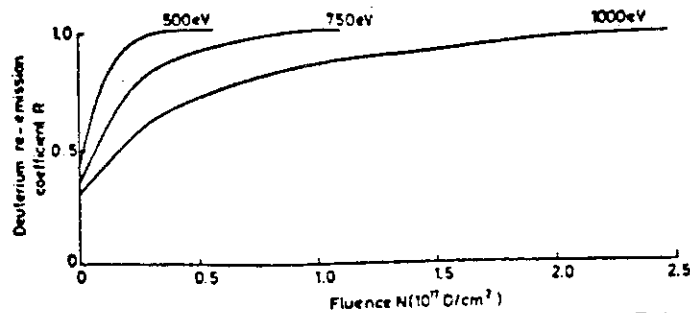


Fraction of particles backscattered as ions as a function of the energy of the backscattered particles.

- (a) 5 keV  $H_1^+$  and 10 keV  $H_2^+$  ions on clean gold [67].
- (b) Range of values compiled for  $H^+$  on various materials [66].



Re-emission of deuterium from stainless steel bombarded by  $D^+$  ions of various energies; the target temperature is  $90^\circ K$ .



Re-emission of deuterium from stainless steel bombarded by  $D^+$  ions of various energies; the target temperature is  $300^\circ K$ .

accurately modelled by TRIM & MARLOWE codes. Charge state distribution seems to be given by same formulation as equilibrium of beam in a thick gas.

Major References: W.Eckstein. H.Verbeck. MPI Garching. Report IPP 9/32 August 1979. Bibliography and Data Comendium.

Needs: None

Input on plasma: Cooling.

### C. Trapping & Re-emission

Occurrence: Inevitable.

Conditions: Injector energies down to zero. Strong function of temperature. Re-emission may be negligible for materials with large positive heats of solution.

Experimental data: Good for Fe, C, Steel, Ni, Ti, Zr. Can be readily measured as need arises.

Theoretical: Semi-empirical models based on bath tub model and diffusion can be fitted to data. No a-priori treatment.

Major references: None. See general review by McCracken and Stott Nucl. Fusion.

Needs: Work continues - mainly in Garching and Sandia.

Input on plasma: Major component in recycling models. Influences the density as a function of time during discharge. Relates to Tritium inventory. Probably need to avoid materials which react with H.

### D. Sputtering by Light Ions

Occurrence: Inevitable.

Conditions: Injector Energy down to zero.

Parameters: Sputtering Coefficient, Energy Distribution, Charge State.

Experimental data: Coefficients - copious data which can be scaled together.

Energy - Little information but generally low (few 10s of eV)

Charge - Predominantly neutral except for low work function materials.

Theoretical: Coefficients fit simple semi-empirical equations.

Energy and Charge States poorly understood.

Major references: Matsunami et al. Nagoya Report IPPJ-AM-14, June 1980.

Roth, Bohdanský & Ottenberger. MPI Garching

Report IPP 9/26, May 1979. Both include data compendia.

Needs: Understand charge states.

Input on plasma: Contaminants. By maximising ion component may enhance divertor action. Wall erosion- structural failure.

#### E. Chemical Sputtering by H, D & T

Occurrence: Observed with C and compounds of C. If target is at elevated temperature one gets enhancement of sputtering coefficient by orders of magnitude. Due to formation of volatile hydrocarbons which evaporate at the elevated temperature.

Conditions: Elevated temperatures. Probably will be significant only for carbides and some oxides.

Experimental data: Fragmentary. Mainly for C. Varies greatly with origin of the carbon studied.

Theoretical: No treatment.

Major references: McCracken & Stott. Review Nuclear Fusion.

Needs: Determine whether this occurs also for oxides.

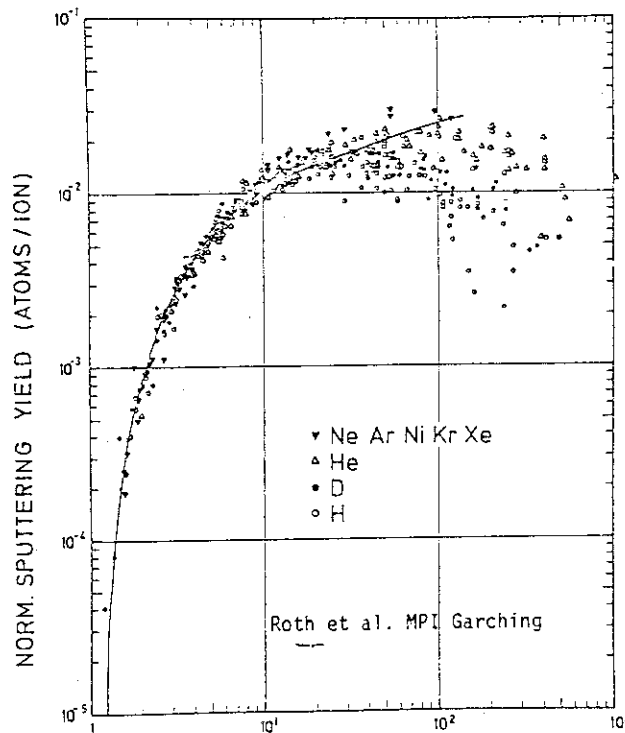
Input on plasma: Will influence choice of wall. Probably makes use of C unfeasible. Influences decision on allowable wall temperature.

#### F. Sputtering by Heavy Ions

Occurrence: Depends on impurity content of plasma.

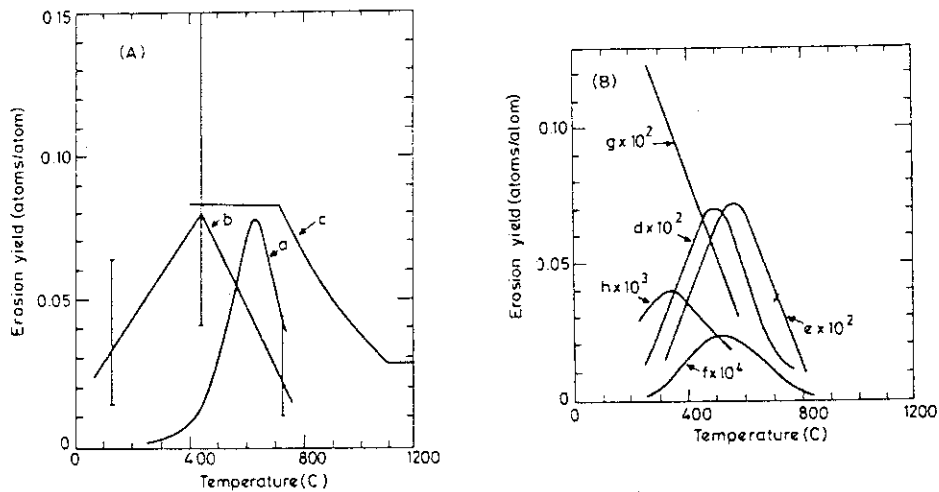
Conditions: Threshold to a few hundred eV.

Experimental data: What is needed is sputtering of the wall material by C, O and the constituents of the wall (or limiter) itself. Generally this is available.



NORM. ION ENERGY  $E/E_{th} = E^1$   
 $E_{th} = 10 \text{ eV} (H^+ + C), 27 \text{ eV} (H^+ + Be),$   
 $400 \text{ eV} (H^+ + W)$

Universal plot for the normalized sputtering yield. The curve gives the empirical formula for energy dependence of the sputtering yield



Comparison [132] of the temperature dependence of the erosion yield of carbon with hydrogen measured by different authors.

- (A) For energetic hydrogen ions: (a) 670 eV  $H^+$  on pyrolytic graphite [132]; (b) 200–1100 eV  $H^+$  and  $H^0$  on reactor-grade graphite [134]; (c) 10 keV  $H^+$  on graphite [133].  
 (B) For thermal hydrogen atoms: (d) [223], (e) [129], (f) [224], (g) [130], (h) [225].

Theoretical: Adequate treatments available. Semi-empirical formulations fit the data.

Major references: Matsunami et al. IPP Nagoya Report IPPJ-AM-14.  
June 1980. Data compendium.

Needs: Nothing obvious.

Input on plasma: Contaminants.

Note: Sputter coefficients for heavy ions can be orders of magnitude greater than for H & D. So small fluxes can be significant. Unless impurity content is small Tokamak will not achieve Break-even so heavy ion sputtering may not be important in practise.

### G. Desorption

- (a) By Photons: Quantum process. Excitation of bonding electrons.  
 (b) By Electrons: Quantum process. Excitation of bonding electrons.  
 Also of inner shells.  
 (c) By Atoms: Energy transfer- same as sputtering. Cross section for H and D impact  $\approx 10^{-18}$  cm<sup>2</sup>. Quantum effects for high energy light ions. Excites inner shell electrons. Recent work by Thomas.  $\sigma \approx 10^{-16}$  cm<sup>2</sup>.  
 (d) Thermal:

$$\frac{dc}{dt} = \frac{c}{\tau_0} \exp - \left( \frac{E_d}{kT} \right)$$

$c$  = concentration  
 $T$  = temperature  
 $E_d$  = binding energy

For  $E_d = 1$  eV

$T = 300$  K — 1 monolayer removed 10 hrs

$600$  K — monolayer removed 1 sec

For present Tokamaks

temperature rise  $\approx 1$  K. Thermal effects negligible.

Desorbing species: H, C, O and combinations thereof.

Preliminary treatment of wall (baking and discharge cleaning) will reduce material adsorbed. However does not eliminate such material as it is replenished by diffusion from bulk.

### H. Arcing

Localized arcs primarily to limiter - some to wall.

Related to sheath potential. Occurs at specific sites (e.g., points and oxide spots)

Material eroded as vapour, ions, drops (blobs?)

Erosion rate. For W 0.03 atoms/e

Al 0.43 atoms/e

(yield increases as melting point goes down)

Very ill-defined phenomena.

Precautions are needed to inhibit arcing.

- (a) Good materials preparation.
- (b) Utilize slow rise of plasma current.
- (c) Use smaller diameter limiter.
- (d) Condition machine (in DITE arcing decreased by an order of magnitude in a year).

### I. Blistering

Precipitation of implanted gases.

Unlikely in present machines.

### J. Macroscopic Particles

Swarf  
Ti Flakes  
Blobs  
Dust

} must be avoided.

### K. Synergistic Effects

Largely unexplored.

### L. Diagnostics

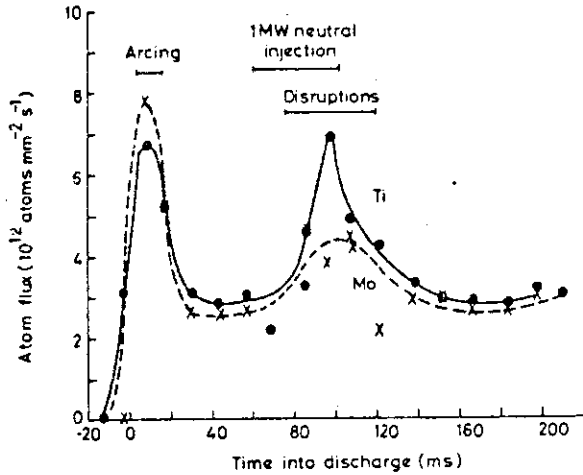
Concerned with monitoring incident and ejected fluxes at wall and plasma edge conditions.

Largely rudimentary.

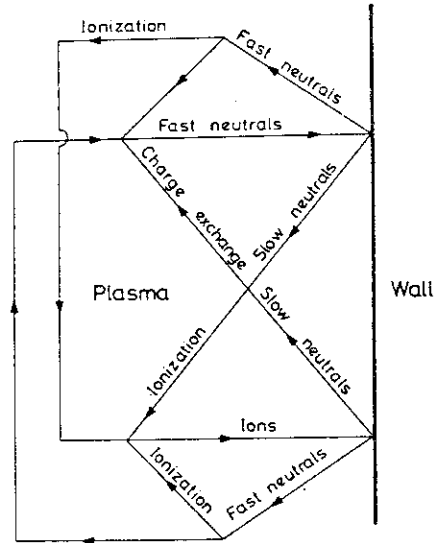
Will give typical examples to indicate fluxes and consequent generation of impurities.

(1) Heavy impurities

Time resolved flux in DITE. Correlation with arcing and disruption. See Ti (from wall) - in other machines get Fe and Cr. Also Mo from limiter. C, O and S show similar behaviour. Heavy impurities from arcing and from sputtering (probably by O).



Metal flux as a function of time for DITE shots 11039 and 11040 normalized to a single shot. 1 MW of neutral beam heating power was injected during the indicated time period; disruptive instabilities were observed as a result of injection during the period indicated.



Schematic of the processes considered in the extended global model of recycling [86].

(2) Moderate mass

O, C, S principally from desorption. Can be greatly reduced by preliminary cleaning but always present due to diffusion from bulk. Possibility of using Be or B or C as liner or limiter coating. They would then replace Ti, Mo, Cr and Fe as principal impurities.

(3) Hydrogen

Recycled fuel from wall constitutes as impurity. Flux of H to wall about  $10^{17}$  atoms/cm<sup>2</sup> sec. About 50% reflected, mostly neutral with some energy loss. Hydrogen trapped in wall eventually returns to plasma. Recent experiment (10/24/80) on ISX suggests that in any given shot half the fuel comes from hydrogen adsorbed in the wall.

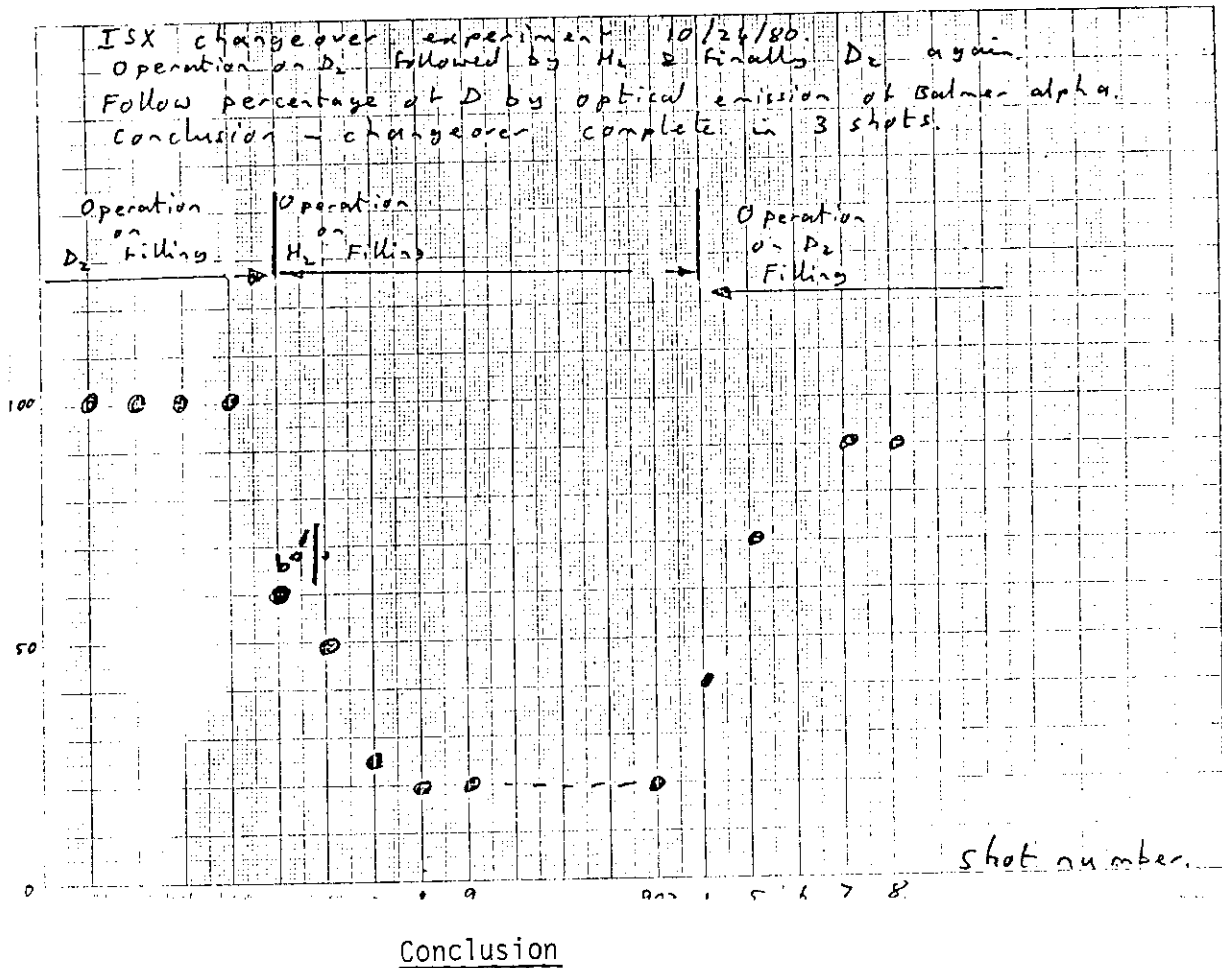
(4) Electrons

Particularly impact on limiter.

(5) Photons

Large fluxes from impurity radiation. 50 kW/m<sup>2</sup>. Mainly from O, H and multiply ionized impurity radiation.





Materials entering plasma from the wall

- (i) Reflected H (energetic)
- (ii) Re-emitted H (thermal)
- (iii) Sputtered metals (few eV)
- (iv) Arc ejected metals (thermal)
- (v) Desorbed C, O, S (few eV)

Ejection mechanisms are generally atomic; exception is arcing.

Prognosis

Reflection and Re-emission of H inevitable.

Sputtering by H inevitable.

Production of heavy species must be reduced by proper design (to inhibit arcing) and operation (discharge cleaning). Moderate mass species (C, O, S) can be reduced also.

Some interest in low Z coatings so that if impurities are produced they have minimal effect on plasma.

## II - 1 材料中にイオン注入された水素同位体 及びヘリウムの保持・放出\*

東北大・工 山口 貞 衛

### 1. はじめに

材料中に注入された水素あるいはヘリウムイオンは、各種の衝突によりエネルギーを失い、いわゆる投影飛程附近で止まる。通常の注入条件の下では表面附近の注入原子濃度は、すぐにターゲットの原子濃度と同じレベルになり、濃度勾配や熱勾配などにより拡散して行く。このうち、ある部分はターゲット内に留るが、再び表面から抜け出し再放出されるものも存在する。このように、材料中にイオン注入された水素同位体及びヘリウムの保持・放出は、入射イオンとターゲット原子の衝突過程に関係する効果と材料中における水素・ヘリウムの挙動に関係する効果からみ合うために、非常に複雑である。本稿では水素・ヘリウムの保持・放出に関するいくつかの実験例を紹介すると共に、この現象に影響するいくつかの因子を指摘したい。

### 2. 水素同位体の保持・放出

水素は室温附近でも比較的高い拡散係数をもっている。また、イオンの投影飛程はターゲットの厚さに比べるとはるかに小さいので、濃度分布の山は表面附近にあるから、表面に向っての濃度勾配はターゲット内部への勾配よりもずっと急になる。したがって、表面に向う拡散流量は内部に向っての拡散流量よりもずっと大きく、注入後直ちに注入イオン量と同程度になることが予想される。第1図は、グラファイト中に注入された重水素及びヘリウムの保持量の注入量依存性を示す。いずれの場合にも  $10^{18}$  ions/cm<sup>2</sup> 程度で飽和に達することが認められよう。イオン注入された水素のトラップ率はターゲットの種類により著しく異なることが知られている。第2図は、Mo, Ti, Zr及びTa中に注入された水素イオンのトラップ率の注入量依存性を示す。水素を殆んど固溶しないMoでは  $3 \times 10^{16}$  H/cm<sup>2</sup> 以上注入した場合殆んどトラップされない。これに対して、水素を固溶する金属Ti, Zr, Taは、1に近い高いトラップ率を示し、その値は照射量に殆んど依存しない。Ti, Zr及びTa中の水素は負の溶解熱をもち、且つ拡散の活性化エネルギーは溶解熱よりも小さい。したがって、低温においては注入された水素は、表面のポテンシャル障壁を越えることなく金属内部に拡散して行くために高い保持率を示すものと思われる。水素と反応しない金属では、時間と共にターゲット内に保持される水

\* Trapping and Re-emission of Energetic Hydrogen and Helium Ions in Materials.

素量が減少することが知られている。1例として、第3図に316SS中に注入された重水素量の変化を示す。第4図は、注入エネルギーによる再放出率の照射量依存性を示す。重水素を殆んど固溶しないステンレス・スチールでは飽和点に対応する照射量は、入射イオンのエネルギーが低いほど少ない。これは、注入エネルギーが低いほど飛程が短くなるから表面迄の拡散距離が短く、且つ濃度勾配が急になる。従って、表面より流出する重水素量が多くなるため試料中に保持される量が少なくなる。これに対して、水素を多量に固溶するTi, ZrおよびTa等では、エネルギー依存性を殆んど示さない。種々の温度でSAS中に注入された水素の再放出率の注入量、依存性を第5図に示す。注入温度が高いほど保持率は急速に飽和に達し、保持される水素量は少なくなる傾向が認められる。このような再放出挙動を拡散モデルを用いて説明するためには、実効的な拡散係数として、通常の数よりも2桁も小さい値を用いる必要があり、イオン照射により生じた損傷によるトラップ効果が不一致の原因として挙げられている。第7図は、Mo中に注入された重水素の保持量のHeイオンによる効果を示したものであり、明らかに照射損傷による保持量の増加が認められよう。Nb, Zr, Tiのように水素をよく固溶する金属は、第6図に示すように高いトラップ率を示すが、高温になるに従い実効的な保持率は減少する。これは注入水素原子が負の溶解熱に起因する表面のポテンシャル障壁を乗り越えるに十分な熱エネルギーをもつようになるためである。このような保持率の温度変化はSievertの法則を用いた拡散モデルに基づく理論式により説明されることが示されている<sup>6)</sup>。更に、イオン照射により誘起される放出も重要であることが最近示されている。これは、入射イオンが先にトラップされている原子を脱離する現象であり、その機構については未だよく理解されていない。しかし、脱離確率などは断面積の概念によりよく表すことができる。第8図にSAS中に注入された重水素の同じエネルギーの水素イオン照射による脱離断面積を示す。照射温度が高い程断面積は大きい。

### 3. ヘリウムの保持・放出

注入されたヘリウムの放出率の注入依存性がAl, V, Nb, Mo, W, 316SSにおいて種々の温度で測定されている。第9図にAlに対する測定例を示す。温度に依存した3種の放出モードが認められる。すなわち、低温度(0.1T<sub>m</sub>, T<sub>m</sub>:融点)での放出データには比較的高い保持率を示す期間が存在し、次いで再放出率は次第に上昇して行く。中間の温度範囲(0.2-0.4T<sub>m</sub>)ではヘリウムガスの急激な噴出によって特徴づけられる。高温(>0.5T<sub>m</sub>)では初期のごく短期間のみヘリウムが保持され、次いで急激に定常的なガス放出に移行する。ガス放出率の注入エネルギー依存性は、水素同様ターゲットに保持されるヘリウ

△量は、エネルギーが高い程増加する傾向がある。第10図にNbに対する測定例を示す。

#### 4. おわりに

以上、水素同位体およびヘリウムの保持・放出に関して、注入量依存性、注入温度依存性、注入エネルギー依存性照射欠陥の影響などを調べた研究例を示した。特に水素に関しては、標的材料の水素の固溶度の影響が大きいことが認められている。

#### ●参考文献

- 1) R. A. Langley, R. S. Blewer and J. Roth, J. Nucl. Mat. 76&77 (1978) 313.
- 2) G. M. McCracken and J. M. C. Maple, Brit. J. Appl. Phys. 18 (1967) 919.
- 3) C. J. Altstetter, R. Behrisch, J. Böttiger, I. Pohl and S. M. V. Scherzer, Nucl. Instr. and Methods 147 (1978) 59.
- 4) R. S. Blewer, R. Behrisch, B. M. V. Scherzer and K. Schulz, J. Nucl. Mat. 76&77 (1978) 305.
- 5) W. Bauer and G. Thomas, J. Nucl. Mater. 53 (1974) 127.
- 6) E. S. Hotston and G. M. McCracken, J. Nucl. Mater. 68 (1977) 277.
- 7) J. Böttiger, S. T. Picraux, N. Rud and T. Laursen, J. Appl. Phys. 48 (1977) 920.
- 8) C. M. Braganza, S. K. Erents, E. S. Hotston and G. M. McCracken, J. Nucl. Mater. 76&77 (1978) 298.
- 9) K. L. Wilson and G. J. Thomas, J. Nucl. Mater. 63 (1976) 299.
- 10) R. Behrisch, J. Böttiger, W. Eckstein, J. Roth and B. M. V. Scherzer, J. Nucl. Mater. 56 (1975) 365.

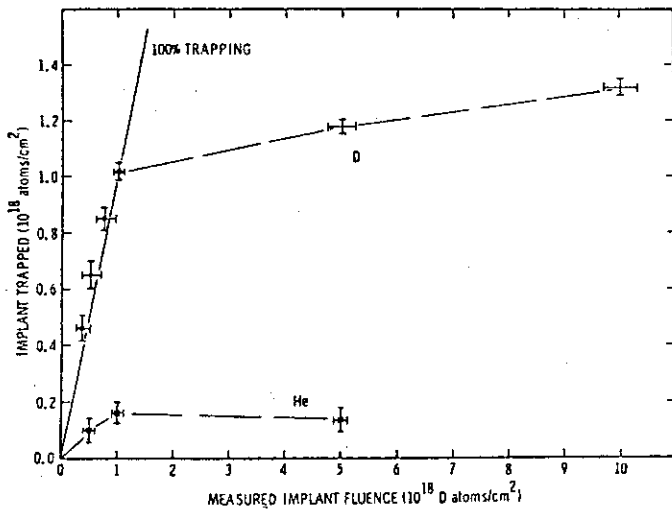


Fig. 1  
Implant (8 keV D and He) trapped in graphite as a function of implant fluence at room temperature. (ref.1)

Fig. 2  
Variation of trapping efficiency of  $H^+$  ions with dose. (ref.2)

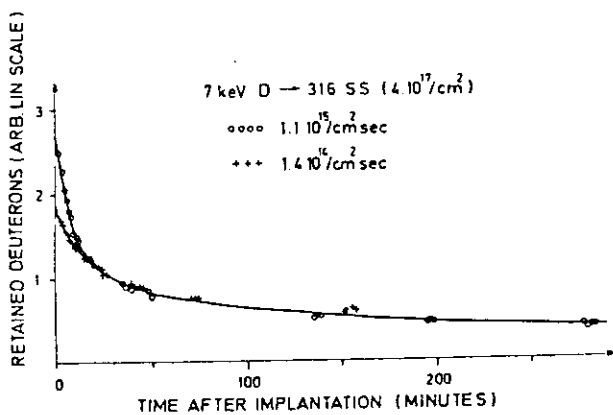
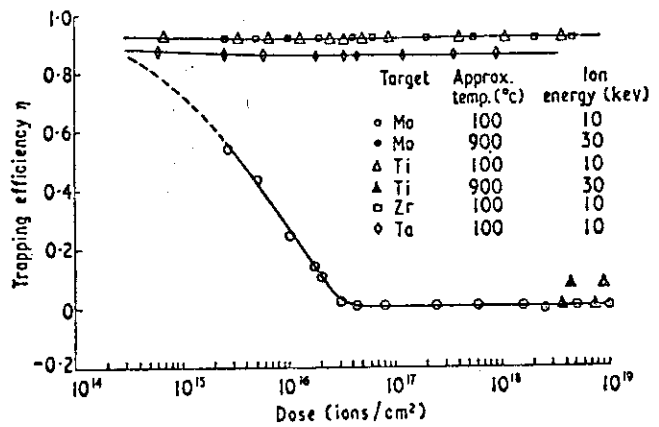
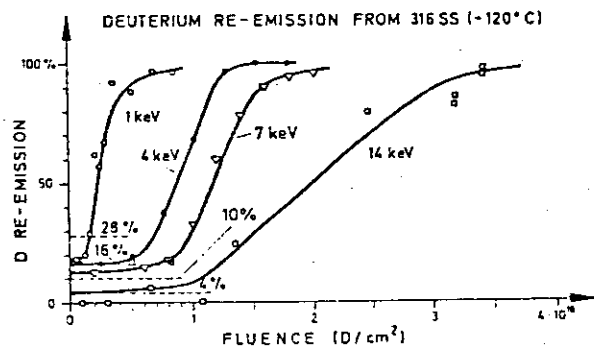


Fig. 3  
Deuterium retained in 316 SS as a function of time after implantation. (ref.3)

Fig. 4  
Re-emission of deuterium as a function of fluence for various ion energies. (ref.4)



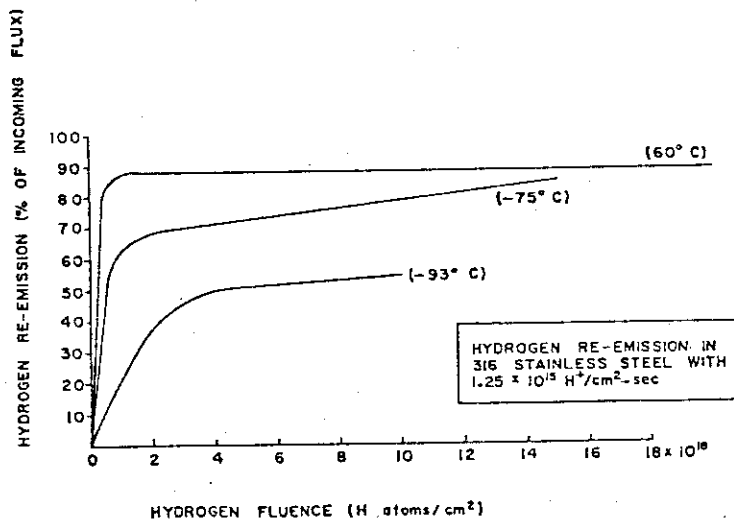


Fig. 5 Hydrogen re-emission during 150 keV H implantation as a function of fluence in 316 SS at three different temperature. (ref.5)

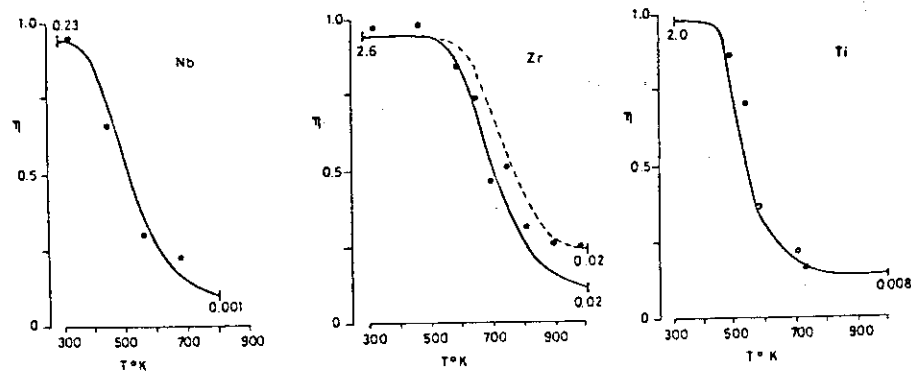


Fig. 6 Trapping coefficient for Nb, Zr, Ti targets bombarded with 18 keV  $\text{D}^+$  as a function of temperature. (ref.6)

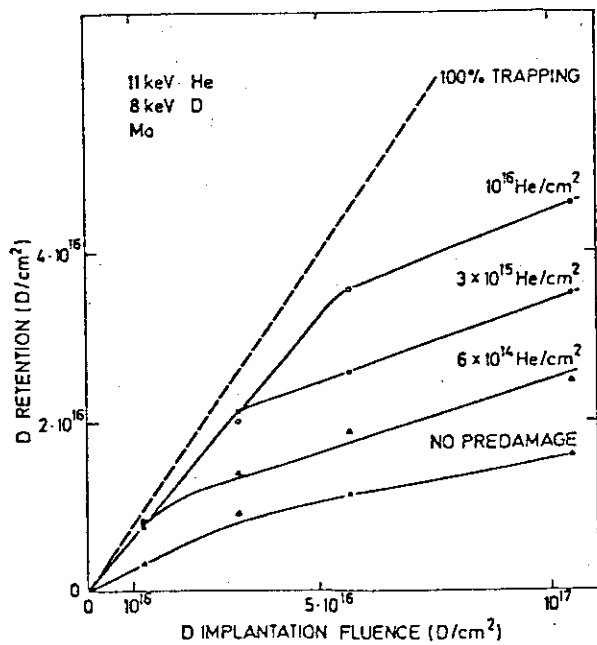


Fig. 7 Total D retained in Mo pre-damaged with 11 keV He, plotted as a function of D fluence. (ref.7)

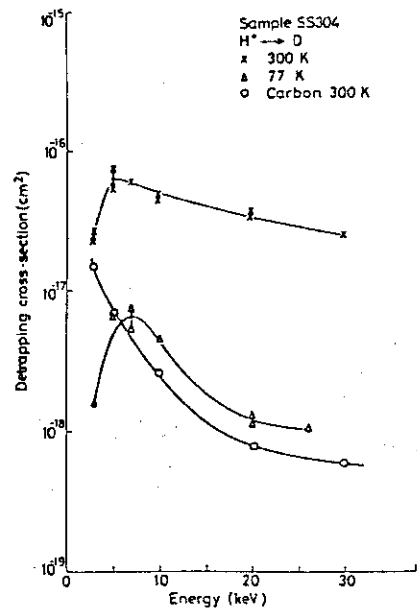


Fig. 8 Cross section for the release of D from SS by incident protons. (ref.9)

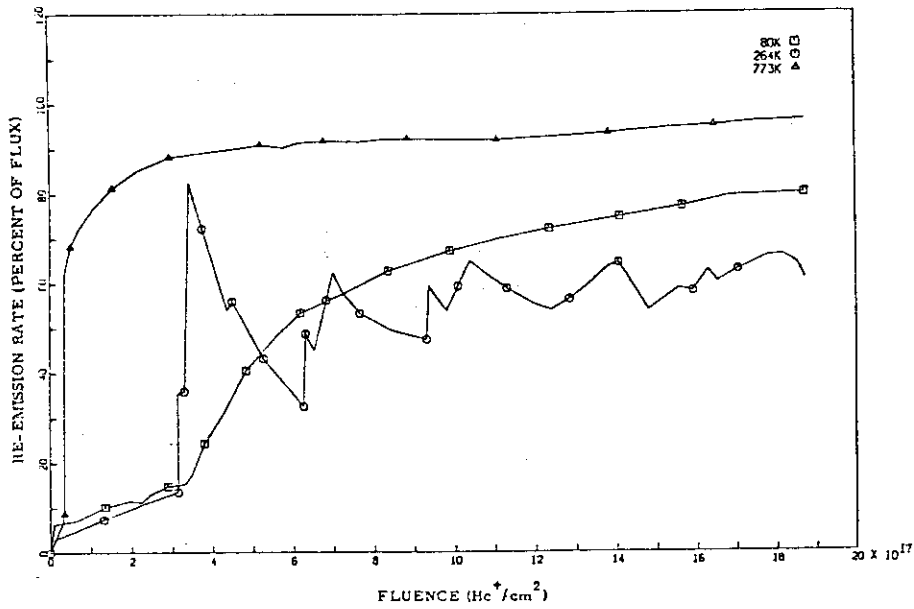


Fig. 9 The re-emission rate (percent of incident flux) as a function of fluence for annealed Al implanted with 20 keV  $\text{He}^+$  at  $6.2 \times 10^{14}$   $\text{He}^+/\text{cm}^2$  sec. (ref.9)

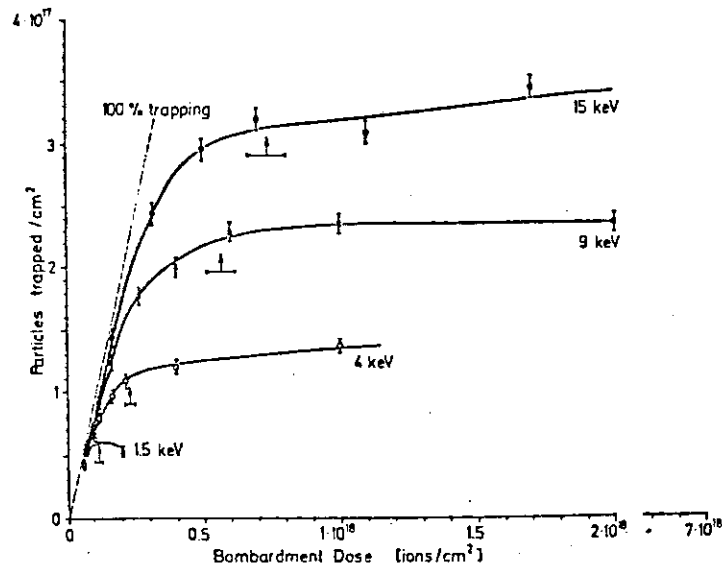


Fig. 10 Trapping of  $^3\text{He}$  ions in a Nb single crystal for different energies implanted to different doses in random direction. (ref.10)

## II - 2 材料中の水素及びその同位体とHeの保持及び放出\*

筑波大・物工 工 藤 博

固体中へのkeV-H\*, He\* (\*は同位体を含めた意味で用いる)の保持, および放出に関して末尾の文献に見られるように, この数年間に多くの測定が行われている。(註)これらの現象は個々の系について極めて多様であり, そこに関与していると考えられる物理的な機構がようやく指摘され始めたのが現状である。

粒子-第一壁相互作用のデータとして数多い実験結果を整理する観点からは, 粒子のエネルギー, 試料温度等のパラメータによる分類とは別にtrapping (detrapping)の物理的機構を検討しこのような側面からそれらの現象を捉えることが極めて重要であろう。ここでは最近のいくつかの実験とその解析からtrapping (detrapping)の形態, 要因等に関連した物理的機構を可能な範囲で整理してみたい。

trapping (detrapping)の測定では, 特別な場合を除いてH\*あるいはHe\*を固体へイオン注入し, 固体表面からのH\*あるいはHe\*の深さ分布, trapping量をイオン後方散乱および核反応法で解析する方法が一般に行われている。Fig. 1 (ref. 80-Mo)は70 KのZrに10 keV Dを注入し, trappingとDの照射射量との関係を示したものである。室温になると約1μm径のblisterが表面に形成されることから, 室温以下でもtrapping (detrapping)現象にblisteringが介在していることは疑いない。

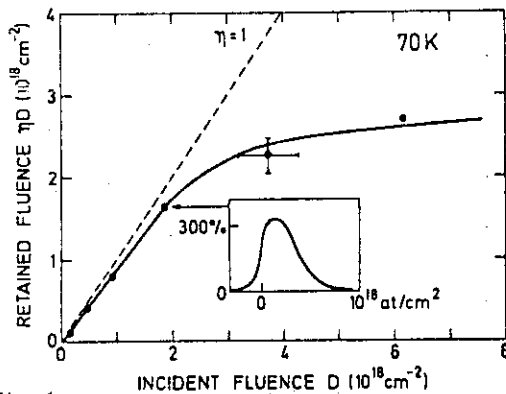


Fig. 1 Retention curve for 10 keV D implanted into Zr at 70 K. The insert shows a correspondent depth profile at  $D = 1.85 \times 10^{18}/\text{cm}^2$ . The particle flux was  $2 \times 10^{14}/\text{cm}^2 \cdot \text{s}$ .

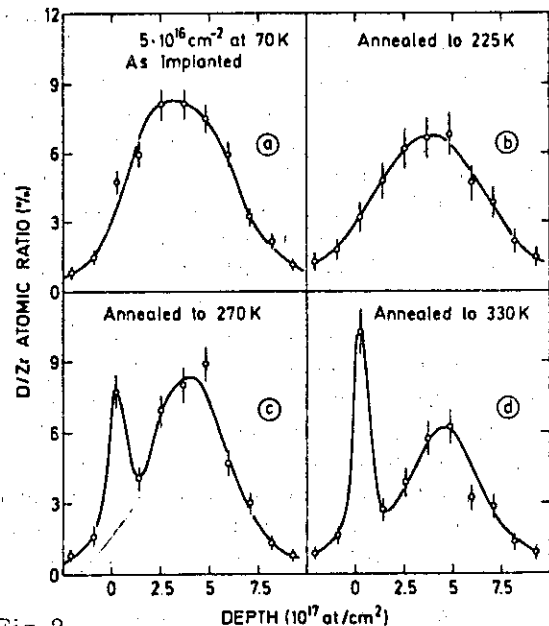


Fig. 2 Evolution of depth profiles after low dose implantation at 70 K and heating to different temperatures. The temperature was varied stepwise; profiles were measured within ~30 min at constant temperature.

(註) "trapping"と"retention", "detrapping"と"reemission"については現在のところtechnical termとしての使い分けはされていないようである。ここでは"trapping", "detrapping"を用いておく。

\* Trapping-detrapping Phenomena of Hydrogen, Helium and Their Isotopes into or from Materials.



Fig. 2 (ref. 80-Mo) は同じく Zr に 70 K で注入された D の深さ分布の注入後の温度依存性が示されている。250 K 以上では表面付近に分布のピークが現われる。このピークは D の拡散現象ではなく、照射時の Zr の損傷に、あるいは注入された D に起因した Zr 中の応力場による trapping と考えられる。また Zr のような水素化合物を形成する物質では析出の形態で trapping が起きる。事実、約  $10^{18}$  D/cm<sup>2</sup> 以上の注入を室温以上の温度で行った Zr 中に  $\gamma$ -,  $\delta$ -hydride の析出が観測されている。(ref. 80-Mo)

Fig. 3 (ref. 80-Mo) は Zr 中に生じた照射損傷位置に D が trapping されたことを示す。△印の分布は pre-implantation をしない場合の D の分布 (Fig. 4 の □印) と異なり、pre-implantation ( $8 \times 10^{17}$  D/cm<sup>2</sup>) 時の分布に相似な形をとる。

また Fe 中にあらかじめ注入された Y と注入時に形成された Fe 中の空孔との複合体が Y-H\* 結合を介して D を強く trapping することが報告されている。(Fig. 5/ref. 80-My)

以上の例から trapping (detrapping) 現象は blistering, 照射損傷, 析出, 応力場等をその構成要素としていることが理解される。これらの関係を概略的に Fig. 6 に示して見た。これらの構成要素のそれぞれについて H\*, He\* の trapping 係数を計算することは将来の課題であるが、C 中の照射損傷による trapping については、簡単な random-walk モデルで実験結果が説明されることは興味深い。(Figs 7 and 8/ref. 80-Er)

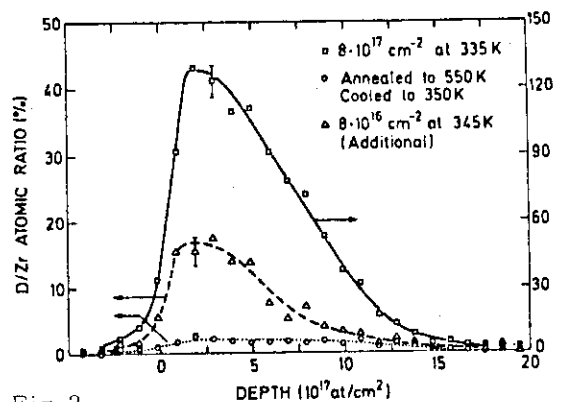


Fig. 3  
Reappearance of the deuteron profile after annealing (dotted line) and reimplantation profile (dashed line).

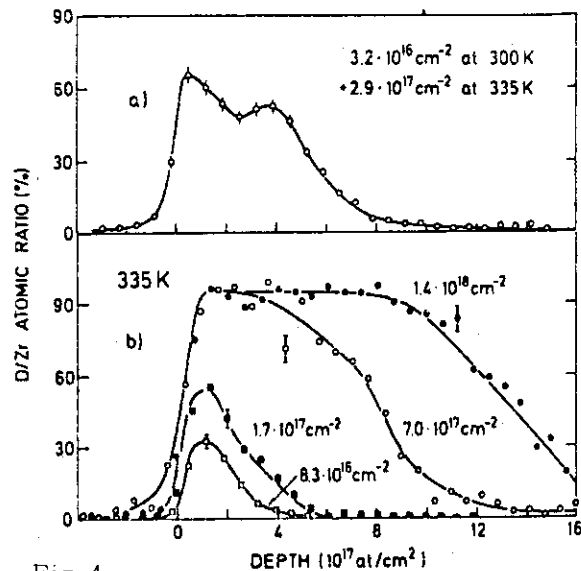


Fig. 4  
(a) Influence of prebombardment at lower temperature on an implantation profile at 335 K. (b) Dose dependence of the implantation profiles of 10 keV deuterons in Zr at 335 K.

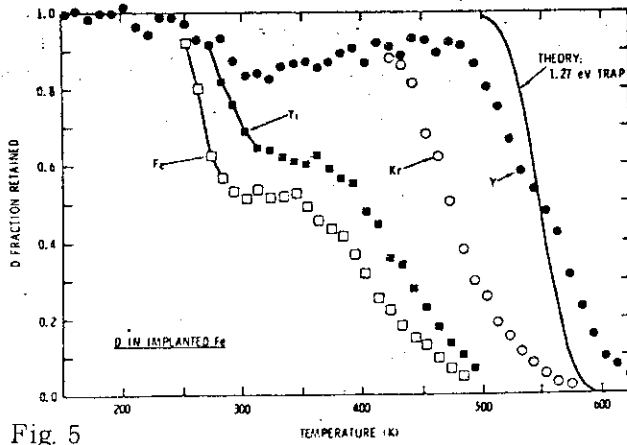


Fig. 5 Deuterium release during linear ramping of temperature for Fe implanted with Y, Kr, Ti, or Fe ions.

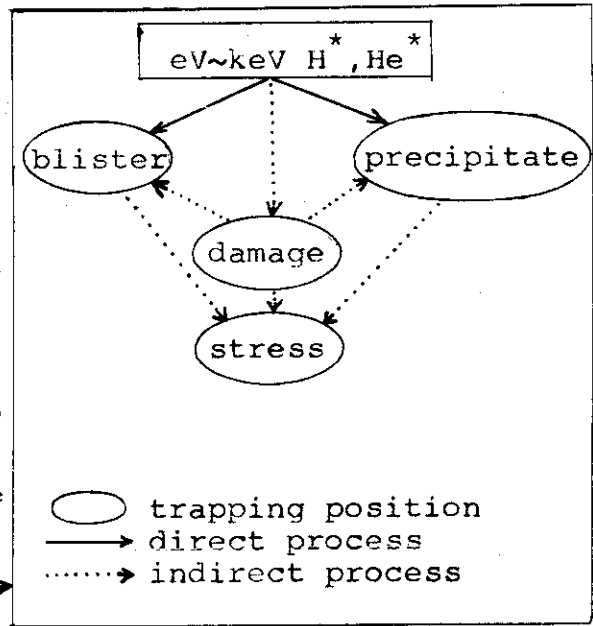


Fig. 6

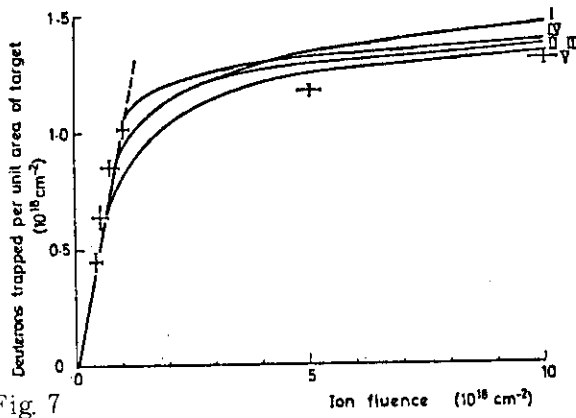


Fig. 7 Deuterons trapped per unit area of carbon target as a function of incident ion influence, for normal bombardment with 8 keV deuterons. The solid lines are the predictions of the model and the experimental points are from ref. 9. The values of  $A$  and  $N_1$  used are:

Curve	$A$ (traps/deuteron)	$N_1$ ( $\text{cm}^{-3}$ )
I	2	$10^{20}$
II	2	$10^{17}$
III	2	$10^{15}$
IV	3	$10^{17}$
V	1.5	$10^{17}$

It should be noted that curves II and III cannot be resolved on the scale for which the figure is drawn.

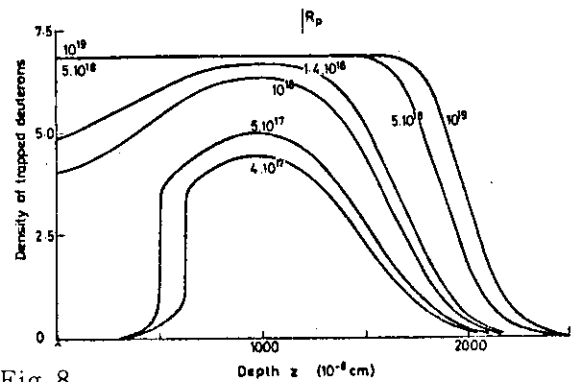


Fig. 8 Density of trapped deuterons in units of  $10^{22} \text{ cm}^{-3}$  as a function of depth in the carbon target as predicted by the model for incident deuteron fluences ranging from  $4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-2}$  to  $10^{19} \text{ cm}^{-2}$ . Deuteron energy 8 keV.  $A = 2.5$  traps/deuteron.  $N_c = 6.8 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ .

## References (from 1978)

- 78-Ab Abraham et al; Diffusion and trapping of tritium in grain boundaries of 304L stainless steel  
 J. N. M. 73, 77 (1978) thermal T<sub>2</sub> + SS
- 78-A1 Altstetter et al: Depth profiling of deuterium Implanted into stainless steel at room temperature  
 Nucl. Instru. Methods 149, 59 (1978) 7 keV D<sup>+</sup> + SS
- 78-A1-2 Altstetter et al: Trapping of deuterium implanted into stainless steel at low temperatures  
 J. Vac. Sci. Technol. 15, 706 (1978) 7 keV D<sup>+</sup> + SS
- 78-Ba Bauer: Surface processes in plasma wall interactions  
 J. Nucl. Mat. 76&77, 3 (1978) review
- 78-Ba-2 Bauer et al: Diffusion of hydrogen and deuterium in Nb and Ta at high concentrations  
 Z. Phys. B 29, 17 (1978) exp. thermal (H,D)+(Nb,Ta)
- 78-Be Benninghoven et al: Hydrogen detection by SIMS:hydrogen on polycrystalline vanadium  
 Surface Sci. 78, 565 (1978) exp. H<sub>2</sub>+V
- 78-B1 Blewer et al: Trapping and replacement of 1-14 keV hydrogen and deuterium in 316 stainless steel  
 J. N. M. 76-77, 305 (1978)
- 78-Br Braganza et al: J. Nucl. Mat. 76&77 (1978) 298 D+304SS
- 78-C1 Clausing et al: Studies of hydrogen recycle from the walls in Tokamaks using a Plasma-wall interaction simulator  
 J. N. M. 76+77, 267 (1978) 30-200 eV H<sup>+</sup>, H<sub>2</sub><sup>+</sup> + SS 304L
- 78-Fa Farrel and Donnelly: Thermal desorption and bombardment-induced release of deuterium implanted into stainless steel  
 JNM 76+77, 322 (1978) 15-3000 eV H<sub>2</sub><sup>+</sup>, D<sub>2</sub><sup>+</sup> + SS 304, SS 321 (trapping)
- 78-Ho Hoston: The choice of Materials for divertor targets  
 JNM 76+77, 536 (1978) <31 keV D<sup>+</sup> trapping in Li, Ti, V, Zr, Nb, Ta
- 78-Ko Kompanietz et al: Study of the Kinetics of hydrogen penetration through copper membranes (in Russian)  
 Fiz. Tverd. Tela 20, 3533 (1978) H<sub>2</sub> trapping on Cu (membrane)

- 78-La Langley et al: J. Nucl. Mat. 76&77 (1978) 316 D, He+C
- 78-Mö Möller et al: J. Nucl. Mat. 76&77 (1978) 287 D+Zr
- 78-Mö-2 Möller: Background reduction in D( $^3\text{He}, \alpha$ )H depth profiling experiments using a simple electrostatic deflector  
N. I. M. 157, 223 (1978) exp. 10-20 keV D +  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Ta}_2\text{O}_3$
- 78-Ro Roth et al: Nucl. Instru. Meth. 149 (1978) 53  $^3\text{He}$ ,  $^4\text{He}+\text{Nb}$
- 78-Sc Scherzer et al: Depth profiling of helium in Ni and Nb - comparison of different methods  
NIM 157, 75 (1978) exp, 30 keV + Ni, Nb
- 78-St Stel'makh et al: Accumulation of radiation defects and amorphization of silicon during boron ion implantation (in Russian) : Fiz. Tverd. Tela 20, 2074 (1978) 100keV  $\text{B}^+$  trapping in Si
- 78-Th Thomas and Wilson: Microstructure of low energy deuterium implanted stainless steel  
JNM 76+77, 332 (1978) 10 keV  $\text{D}^+$  trapping in Ba
- 78-Wi Wilson and Baskes: Deuterium trapping in Irradiated 316 stainless steel  
J. N. M. 76+77, 291 (1978) T + SS316
- 79-Al Alimov et al: Helium accumulation and distribution in molybdenum bombarded by  $\text{He}^+$  ions at 1-9 keV  
Sov. Phys.-Tech Phys. 24, 705 (1979) exp. 1-9 keV  $\text{He}^+$  + Mo
- 79-Bi Biersack et al: Range profiles and thermal release of helium implanted into various metals  
JNM 85-6 part B, 1165 (1979) 0.2-340 keV exp.  $\text{He}^+$  + Ni, Cu, Ag, Au, Pt, Be, Zr, Fe, Nb, Mo
- 79-Do Doyle and Vook: Hydrogen retention and release in first wall coatings for Tokamaks  
Thin Solid Films 63, 277 (1979) exp. 60 keV  $\text{H}^+$  +  $\text{TiB}_2$ ,  $\text{B}_4\text{C}$
- 79-Do-2 Doyle and Vook: Hydrogen trapping and re-emission in  $\text{TiB}_2$  coatings for tokamaks upon thermal, pulsed electron and laser annealing  
JNM 85-6, part B, 1019 (1979) exp. 60 keV  $\text{H}^+$  +  $\text{TiB}_2$
- 79-Ga Garr and Pard: Effect of high helium and hydrogen concentrations on the microstructure of SAP  
JNM 85-6, part B, 919 (1979) exp. 1.8 MeV  $\text{He}^+$ ,  $\text{H}_2^+$  + sintered aluminium (SAP)

- 79-La Langley: Interaction of implanted deuterium and helium with beryllium radiation enhanced oxidation  
JNM 85-6 part B, 1123 (1979) exp. 5 keV  $D^+$ ,  $He^+$  + Be
- 79-Lo Look and Baskes: Hydrogen profiles in tokamak fusion reactor 1st walls  
JNM 85-6, part B, 995 (1979) 10 keV  $D_3^+$  + SS, Inconel, TZM, Ti alloy
- 79-Ma Magee et al: Depth distributions of low energy deuterium implanted into silicon as determined by SIMS  
Princeton University Report PPPL-1575, August 1979 exp. 0.1-5 keV  $D^+$  + Si
- 79-Mc McCracken and Stott  
Nucl. Fusion 19, 889 (1979)
- 79-Ok Okude et al: Depth profiles of implanted H and He in Metal Mo Determined with backscattered Protons  
JJAP 18, 465 (1979) exp. 2-12 keV  $He^+$ ,  $H_3^+$ , + Mo
- 79-Po Pontau et al: Deuterium profiles in titanium and alloys  
JNM 85-6 part B, 1013 (1979) exp. 10 keV  $D_3^+$  + Ti and Ti alloys
- 79-Ra Razdow et al: Thermal desorption measurements of hydrogen-isotope retention in alcator-A  
Princeton University Report PPPL-1616, December 1979 exp. D + SS
- 79-Sc Scherzer et al: Radiation induced detrapping of implanted deuterium in BeO by high energy He-3 and proton irradiation  
JNM 85-6 part B, 1025 (1979) exp. 5 keV  $D^+$  + BeO
- 79-Wa Wampler et al: J. Nucl. Mat. 85&86 (1979) 983 D + C, Si
- 79-Wi Wilson: Hydrogen trapping studies in fusion 1st wall Materials  
IEEE Trans. Nucl. Sci. 26, 1296 (1979) 5-60 keV  $D^+$ ,  $H^+$  + SS, Ti, Mo Trapping of D(H) on metals reviewed as a function of temperature and fluence
- 79-Wi-2 Wilson and Pontou: J. Nucl. Mat. 85&86 (1979) 989  
D + Ti-6Al-4V, 304SS, TZM, Inconel-625
- 80-Er Erents and Hoston: A simple model for the trapping of deuterons in a carbon target  
Nucl. Instru. Meth. 170, 449 (1980)  $D^+$  + C

- 80-Er-2 Erents: Low energy proton induced re-emission of deuterium from carbon  
 Nucl. Instru. Meth. 170, 455 (1980)  $H^+ + (D+C)$
- 80-Gr Greger et al: Diffusion of tritium in zircaloy-2  
 JNM 88, 15 (1980)
- 80-Ma Magee et al: Depth distributions of low energy deuterium implanted into silicon as determined by SIMS  
 Nucl. Instru. Meth. 168, 383 (1980)  $D^+ + Si$
- 80-Mö Müller and Böttiger: Retention and precipitation of 10 keV deuterons implanted into zirconium  
 JNM 88, 95 (1980) exp. 10 keV  $D^+ + Zr$  Nuclear reaction depth profiling studies; the diffusion of D implanted in Zr as a function of temperature
- 80-My Myers et al: Deep deuterium traps in Y-implanted Fe  
 Appl. Phys. Lett. 37, 168 (1980) exp. 15 keV  $D + Fe$
- 80-Ro Roth et al: Depth profiling of D implanted into Ti at different temperatures  
 Radiat. Effects 48, 231 (1980)  $D^+ + Ti$
- 80-Sc Schulz et al: D and  $^3He$  trapping and mutual replacement in Molybdenum  
 Nucl. Instru. Meth. 168, 295 (1980)  $^3He + Mo$
- 80-Th Thomas: Retention and reemission of 0.125-1.0 keV deuterium in stainless steel  
 J. Appl. Phys. 51, 1176 (1980)  $D^+ + SS (exp)$

## II - 3 Reflection of Low-Energy Light-Element Ions from Solid Surfaces

Kazuo GESI

*Solid State Physics I Laboratory, Division of Physics, JAERI, Tokai*

### §1. Introduction

Reflection data of light-element ions with low incident energies from solid surfaces provide important pieces of information in the course of the fusion research to estimate the interaction between plasma and first wall materials. The needs of the reflection data were stressed in the report of Fontenay aux Roses Meeting,<sup>†</sup> and it was emphasized that the reflection data of H\* and He\* with incident energy range of thermal ( $\sim 10^{-2}$  eV) to 10 keV should be requested. Where the asterisk indicates all isotope, charged, and molecular states of atoms. In the recent few years, many investigations have been done both experimentally and theoretically on the particle reflection phenomena from solid surfaces. These studies seem to be divided into two categories: One treats the particle reflection with incident energies ranging from 0.1 keV to 20 keV. While the other is referred to very low incident energy molecular beam scattering (incident energy  $\sim 100$  meV). The latter group of works intend to use the particle reflection as a sensitive probe for research of surface structures of solids. Then, if one draw the distribution of experimental data available against the incident particle energy, one would obtain a curve having two maxima in the ranges of 0.1 keV - 10 keV and below 0.1 eV, respectively. In the intermediate range of incident energy (0.1  $\sim$  100 eV) experimental data seem to be very scarce.

As to the data obtained by the works of the first group, two bibliographic reports were published, IPP 9/32 [1] and ORNL-5207/R1 [2]. These reports widely collected reflection data which could be referred till the

---

<sup>†</sup>K.Katsonis (ed.): Report of Working Groups of 2nd Technical Committee Meeting on Atomic and Molecular Data for Fusion, Fontenay aux Roses, 19-22 May, 1980.

middle of 1979. Some of data, for example the total particle reflectivity  $R_N$  showed a beautiful universality when it is plotted against the reduced incident energy as shown in Fig. 5. Agreement between experimental results and computer calculation seems quite satisfactorily. This gives a hope to use the computer calculation instead of experimental measurements when experimental results are hardly obtainable, especially in the intermediate incident energy range of 0.1 - 100 eV. In fact, at the U. S. - Japan Workshop at Boulder,<sup>†</sup> Thomas mentioned that almost all data of light element ion reflection necessary for the fusion research were gathered up in these two reports, and that there were no additional needs of data compilation.

However, there would still remain the following problems as to the low incident energy light element ion reflection:

- (1) Is the computer calculation safely applied to the incident energies lower than 100 eV where experimental data were hardly obtainable ?
- (2) Usually experimental measurements were done with monochromatized incident beam and obtained corresponding information of reflected particles. However, in the real plasma-wall interaction processes, the wall materials would be exposed with panchromatic incident beam, namely, particles with various energies fall into the wall surface. In addition, the incident particles may consist of a variety of species. Can we expect that there is a law of superposing with respect to the reflection phenomena ? If the law of superposing does not hold in the real situation, the panchromatic incident beam problem can hardly be deduced from the monochromatic cases.
- (3) Is there a linear relation in the reflection phenomena ? For example, the reflectivity of the particle is independent of beam intensity ? If nonlinear effect is appreciable, the reflection of heavily irradiated cases are not treated on the basis of experimental results obtained.
- (4) There are not sufficient data with regard to the anisotropic reflection. Most of available data are concerned with fixed angle of incidence. Reflections with varying the incident and scattering angles have been studied since very recent years.
- (5) Experiments and calculations were carried out for very clean and well defined surfaces. Effects of surface contamination, defective struc-

---

<sup>†</sup>Report at U. S. - Japan Workshop on Atomic Collision Data for Fusion, held at Boulder, October 27-31, 1980.



ture caused by irradiation, forming of surface layer or oxidation, and so on will be studied in future.

In the present report, the author would like to present a brief description of reflection process and to give definitions of parameters which describe the process. Then, a list of references is given.

## §2. Reflection Process of Particles from Solid Surfaces

As shown in Fig. 1, the reflection process of the particles from solid surface as the target can be described by specifying the states of (1) the incident particles, (2) the target (surface of the solid), and (3) reflected particles.<sup>†</sup> In the followings, the parameters which specify the incident particles, target, and reflected particles are shortly described.

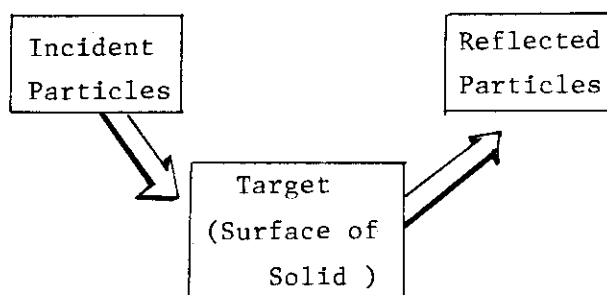


Fig. 1 Reflection process of particles from solid surface.

### (a) Incident particles

Up to date experimental and computer calculation works were usually carried out for the monochromatic incident particle beam. So that the important parameters which specify the incident particles are:

- (i) Species: Element, charged, molecular, isotope states;  $H^+$ ,  $H^0$ ,  $H_2^+$ ,  $H_2^0$ ,  $D^+$ , ....
- (ii) Energy:  $E_0$ .
- (iii) Direction of incident beam with regard to the target surface:  $\alpha$ ,  $\phi$ . Where  $\alpha$  denotes the angle between the incident beam direction and the normal to the surface as shown in Fig. 2. The angle  $\phi$  denoted the deviation of the plane which includes the incident beam direction and the normal to the surface from a special di-

<sup>†</sup>The author prefer to use reflection rather than backscattering though the latter has been often used in literature. Because the reflection is not necessarily restricted in the back direction. (Namely, we meet often the case of  $\delta < 90^\circ$ .)

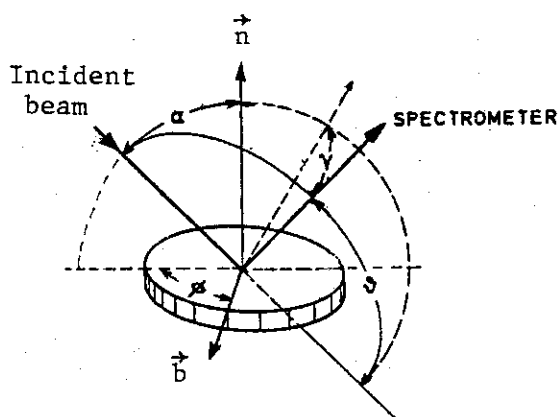


Fig. 2 Angular relation of the incident and reflected beams.  $\vec{n}$ : normal direction to the solid surface,  $\vec{b}$ : a special direction of the anisotropic solid. If the target material is isotropic the reflection does not depend the angle  $\phi$ .

rection. If the target material is polycrystalline and the grain size is sufficiently small and the anisotropic property is well averaged out over the area of incident beam spread, the reflection process would be independent of the angle  $\phi$ . However, if the target material is a single crystal or having anisotropic nature, the  $\phi$ -dependence of the reflection becomes important.

(b) Target

For the target material, the following would be defined:

- (i) Species: Element, alloy, compound, composit elements or chemical formula.
- (ii) Crystalline or surface states: Single crystal, polycrystal, glassy or amorphous. What is surface cleaning ? ; mechanically polished, chemically etched, thermally annealed, sputter-cleaned by ion or electron beam, etc.
- (iii) Temperature of the target during beam irradiation, ultimate vacuum in the target chamber.
- (iv) Pre-treatments of the target material: Thermal, mechanical, or irradiative treatments.
- (v) Index of the surface plane if the target material is single cryatal.

(c) Reflected particles

One can get all information about the reflected particle by knowing

the scattering function  $F^{(*)}(E_r, \gamma, \delta)$  for all reflected particle energy  $E_r$ , spatial direction  $(\gamma, \delta)$ , and ionic states denoted by  $(*)$ . The definition of  $F^{(*)}(E_r, \gamma, \delta)$  is;

- (i)  $F^{(*)}(E_r, \gamma, \delta)dE_r d\Omega$  : the number of the reflected particles in the energy range of  $E_r \sim E_r + dE_r$  and in the solid angle  $d\Omega$  around the spatial direction  $(\gamma, \delta)$ . Where the superscript  $(*)$  indicates one of possible charged, excited, or molecular states of reflected particles.

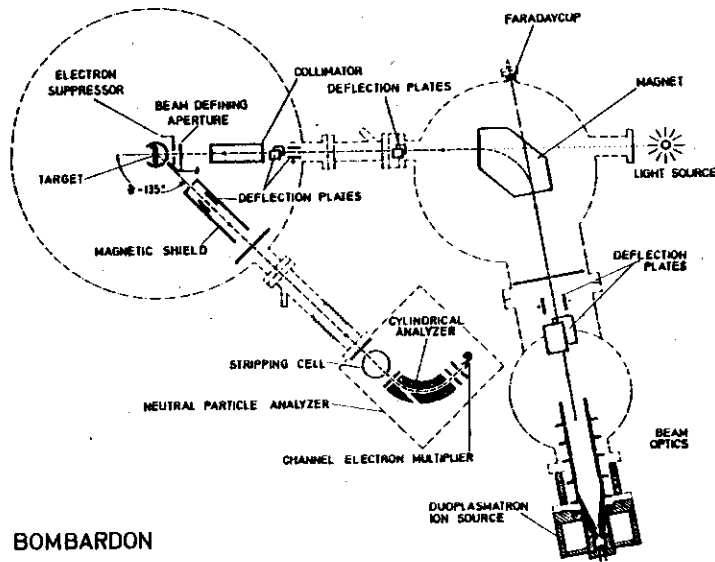
In practice, however, the scattering function  $F^{(*)}$  for all charged state, energy, spatial direction are hardly obtainable both from experiments and from computer calculations. Instead, some integrated or averaged-out values were often discussed as follows:

- (ii) Energy distribution of all particles reflected:  $F(E_r) = \sum^{(*)} \int F^{(*)}(E_r, \gamma, \delta)d\Omega$ . The summation is carried out over all charged states of reflected particles.
- (iii) Spatial distribution of reflected particles:  $r_N(\gamma, \delta) = \sum^{(*)} \int F^{(*)}(E_r, \gamma, \delta)dE_r$
- (iv) Fraction of the charged state of reflected particles:  $\eta^{(*)}(E_r) = [\int F^{(*)}(E_r, \gamma, \delta)d\Omega] / [F(E_r)]$ . The superscript  $(*)$  indicates one of charged states of the reflected particles. As indicated later, reflected particles are almost all neutralized. (See Fig. 7)
- (v) Total particle reflectivity:  $R_N = \int F(E_r)dE_r / N$ . Where  $N$  represents the number of the incident particles.
- (vi) Mean reflected energy:  $\langle E_r \rangle = [\int E_r F(E_r)dE_r] / [\int F(E_r)dE_r]$ .
- (vii) Total energy reflectivity:  $R_E = R_N \cdot \langle E_r \rangle / E_0$ .

Parameters  $F(E_r)$  and  $r_N(\gamma, \delta)$  can be also defined for each charged state,  $(*)$ , of reflected particles. The above parameters are dependent upon the incident energy  $E_0$  and incident angle  $(\alpha, \phi)$ .

### §3. Examples of Experimental Results

As to the experimental procedures, the following references would be referred; [1], [6], [47]. Figure 3 indicates the experimental arrangement of BOMBARDON which is the instrument of low energy ion reflection research used by the Garching group [1], [6]. Figure 4 shows the arrangement to



BOMBARDON

Fig. 3 BOMBARDON; an instrument for the study of the low energy particle reflection [1].

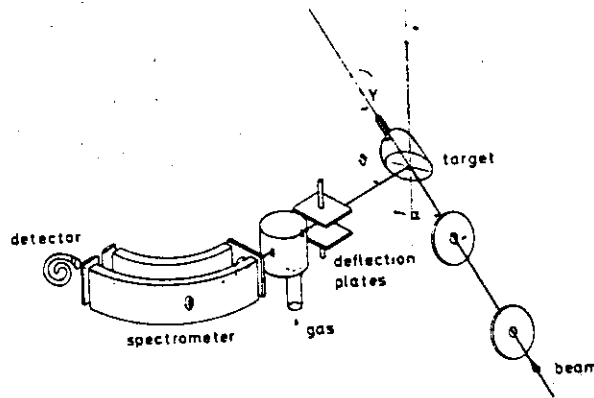


Fig. 4 Experimental arrangement of the reflection study. The incident and reflection angles,  $\alpha$ ,  $\delta$ , can be changed [47].

investigate the anisotropic reflection of the low energy ion beam [47].

The reliability and reproducibility of the experimental data would depend upon various factors, for example, ultimate vacuum in the target chamber, monochromatization of the incident beam, accuracy of measurement of  $E_0$ , sensitivity of the detector, efficiency of energy analyzer, and so on. As will be mentioned in (3-2), most parts of the reflected particles are neutralized. So that, the efficiency of charge stripping cell seriously affect the error in counting the reflected particle number. The experimental error becomes larger as the energy of particle decreases. Eckstein and Verbeek [27] gave an estimation of experimental errors involved in the total particle reflectivity  $R_N$ . They concluded that when  $H^+$  ions are incident on W surface the error in  $R_N$  is about 30 % and 10 % with  $E_0 = 1.5$  keV and 15 keV, respectively. When low energy ions fall on lower atomic number materials, the experimental error becomes much larger because of increase in statistical error. If  $H^+$  ions are incident on C surface, the error in  $R_N$  is estimated to be about 50 % [27]. Such error estimation should be taken in one's mind, when one wants to deduce empirical formulae from experimental results.

In the following sections, some of experimental results will be shown.

### (3-1) Total particle reflectivity $R_N$

The total particle reflectivity  $R_N$  as a function of reduced incident energy has been given for various combinations of incident particle species and target materials. Figure 5 shows the total particle reflectivities against Lindhard's reduced energy  $\epsilon$  which is defined as

$$\epsilon = E_0 a M_2 / [(M_1 + M_2) Z_1 Z_2 e^2]. \quad (1)$$

In eq. (1),  $a$  is Firsov's screening length in the interaction potential;

$$a = 0.4683 (Z_1^{1/2} + Z_2^{1/2})^{-2/3} \text{ (A)}, \quad (2)$$

where  $M$  and  $Z$  indicate atomic mass and atomic number, respectively, and subscripts 1 and 2 respectively correspond to incident and target. If the target material is alloy or compound composed by plural elements, some procedure of average out over composite elements is necessary to define the reduced energy  $\epsilon$  [31].

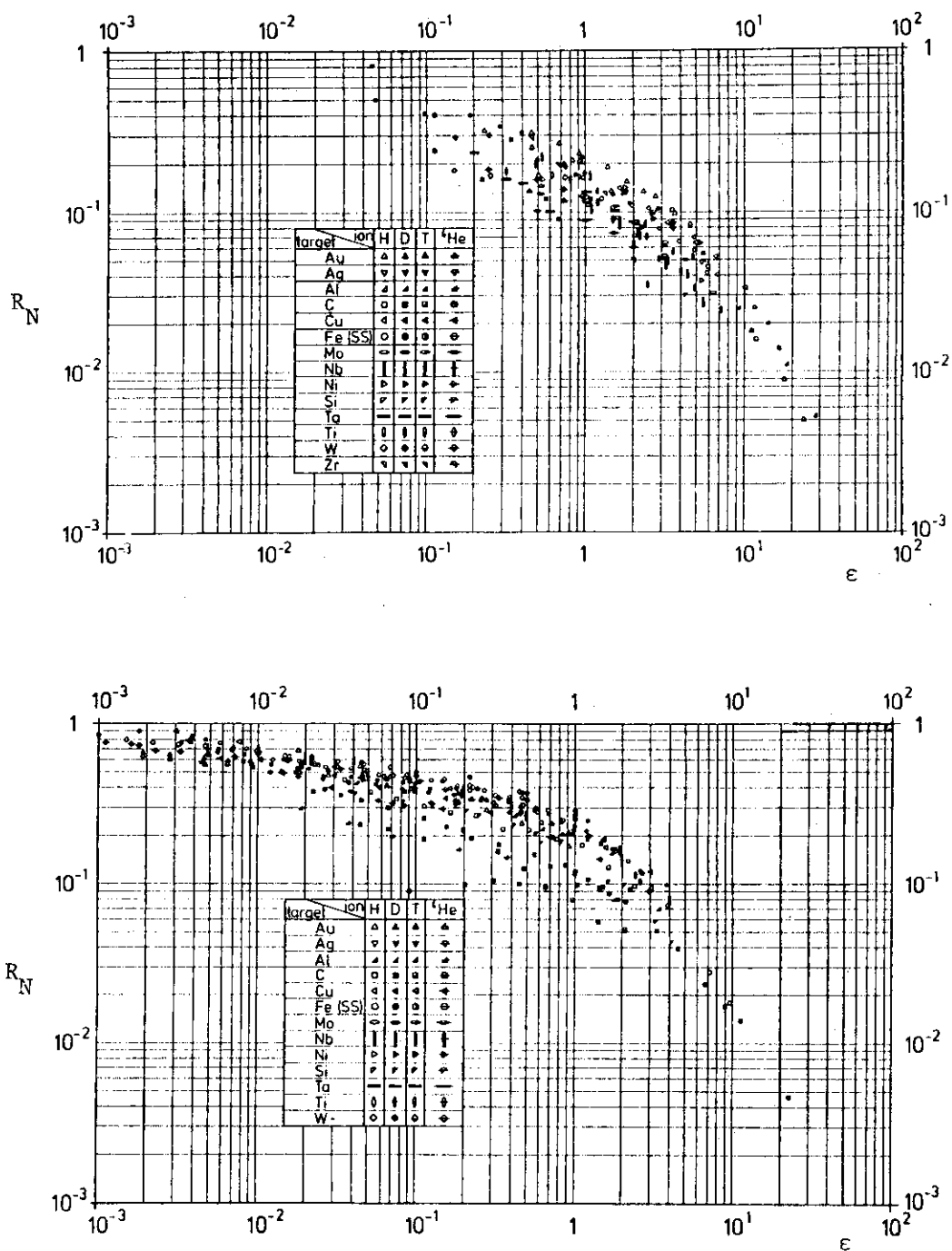


Fig. 5 Reduced energy  $\epsilon$  dependence of the total particle reflectivity  $R_N$ . Experimental (above) and computed (below) results are shown [1].

Figure 5 shows the relation between the total particle reflectivity  $R_N$  and the reduced incident energy  $\epsilon$  for various combinations of incident particles and target materials [1]. There seems to be a universal relation of  $R_N$  vs.  $\epsilon$ , and it can be represented by an empirical formula. Theoretical calculation based upon Monte Carlo simulation were also widely done to represent the  $R_N$  vs.  $\epsilon$  relation. The below figure in Fig. 5 shows the results of calculation [1]. Similar universal relation between total energy reflectivity  $R_E$  and the reduced energy  $\epsilon$  was also observed [18].

### (3-2) Charged states of reflected particles

Figure 6 shows the energy distribution profiles of the reflected helium atoms when Ni surface is bombarded with low energy  $\text{He}^+$  ions. If the incident energy  $E_0$  is sufficiently low, there is a sharp peak slightly below the incident energy. The peak is called surface peak, and it is caused by a single elastic collision of incident particles against surface atoms. Then the energy of the surface peak locates at  $E_r = E_0 [(1-x)/(1+x)]^2$ , where  $x$  represents the atomic mass ratio of the incident particle to the solid atom,  $x = M_1/M_2$ . As the incident energy of the particle increases there is a continuous distribution of particles in the lower reflected energy region. These lower energy reflections are caused by multiple-collision processes in somewhat deeper region from the surface, and as the results of multiple collisions with solid atoms almost all the reflected particles are neutralized. When the incident energy further increases the surface peak becomes more and more insignificant and finally masked in the continuous distribution spectrum as seen in Fig. 6.

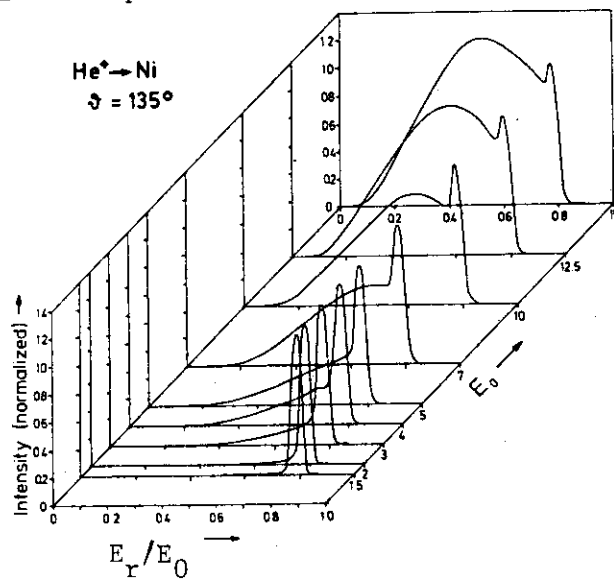
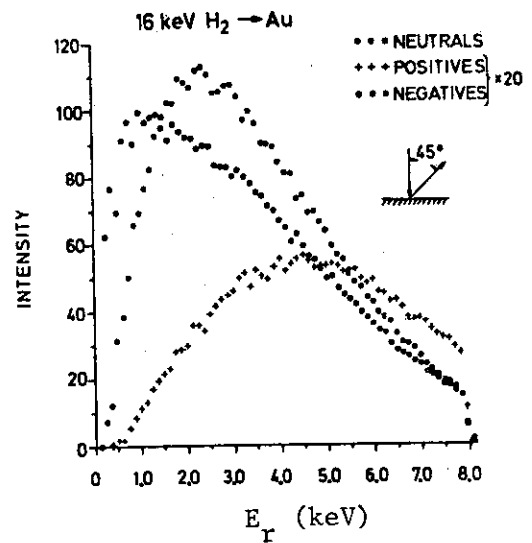


Fig. 6 Energy distribution of He reflected from Ni surface for different  $E_0$ . The intensity is normalized to the surface peak height.

Figure 7 shows the fractional intensities of the various charged states of reflected particles when Au is bombarded with  $\text{H}_2^+$  ions with  $E_0 = 16$  keV.

Figure 7 shows the fractional intensities of the various charged states of reflected particles when Au is bombarded with  $H_2^+$  ions with  $E_0 = 16$  keV. Such a charged state analysis of the reflected particles is important in the plasma engineering since only neutral particles reenter into plasma and change temperature.



(3-3) Spatial dependence of the reflection

Early works on the particle reflection were carried out by fixing the incident angle  $\alpha$  and reflection angle  $\delta$ . Recently, small angle reflection ( $\delta < 90^\circ$ ) and spatial dependence of the reflection have been studied [24],[38],[47], [48], [49].

Fig. 7 Energy distribution of various charged states of reflected particles, when  $H_2^+$  with  $E_0 = 16$  keV are incident on Au surface[41].

In the same time, computer simulations were carried out to represent the spatical dependence of particle reflection [47]. Figure 8 shows a result of the spatial distribution of the particle reflection when  $H^+$  ions with  $E_0 = 5$  keV are incident on stainless steel surface. The computer simulation seems moderately good in agreement with observed results.

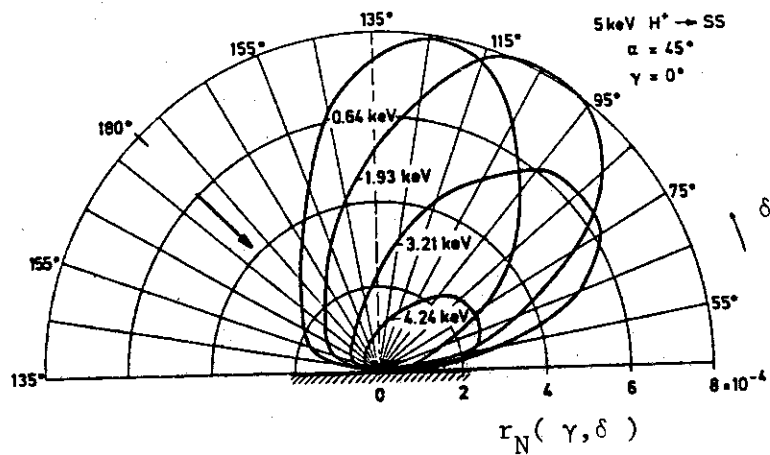


Fig. 8 Spatial distribution of the reflected particle intensity when  $H^+$  ions with various incident energies  $E_0$  are incident on stainless steel [47].



#### 4. Bibliography of Reflection Data

In the table of reference the author list up those references which could be referred in Japan at the end of 1980. Most of the references published before the middle of 1979 were also cited in Refs. [1] and [2]. This list would never be a complete one, but we hope that it can be used as a supplement to the bibliographies of [1] and [2].

- (a) For the theoretical study, the interaction potential between the particles and solid atoms is a fundamental information to calculate reflection process. References [3], [4], [5], [40], [46] are connected to this problem. Computer calculations were carried out by using Monte Carlo simulation. Computer codes TRIM, MARLORE, TAVERN, SAVOY were used for this object. Description and comparison of these computer codes were given by [39] and [44] (and references cited in them). As to the empirical formulation of  $R_N$  vs.  $\epsilon$  or  $R_E$  vs.  $\epsilon$  relation, see [20] and the report by Dr. Hatano presented at the present Meeting.
- (b) As to the very low energy particle reflection ( $E_0 < 0.1$  eV) Ref. [36] gave a good review article. Since the very low energy particle reflection is very sensitive to the surface structure and the data would be difficult to apply to engineering problems directly.

References

- [1] W.Eckstein and H.Verbeek: Data on Light Ion Reflection, IPP 9/32 August 1979.
- [2] E.W.Thomas, S.W.Hawthorne, F.W.Meyer, and B.J.Farmer: Atomic Data for Controlled Fusion Research, Revisions and Additions to Section D.1 Sputtering, D.5 Ion Reflection from Surfaces, and D.6 Trapping, ORNL-5207/R1, November 1979.
- [3] O.B.Firsov: Calculation of the interaction potential of atoms, Zh. Eshp.Teor.Fiz. 33 (1957) 696; Sov.Phys.JETP 6 (1958) 534.
- [4] J.Lindhard and M.Sharff: Energy dissipation by ions in the keV region, Phys.Rev. 124 (1961) 128.
- [5] J.Lindhard, M.Sharff, and H.E.Schiøtt: Range concepts and heavy ion ranges (Notes on atomic collisions, II), Klg.Danske Videnskab. Selkav. Mat.-Fys.Medd. 33 (1963) No.14.
- [6] W.Eckstein and H.Verbeek: Bombardon: An apparatus for investigating the influence of 5-20 keV ions on metal targets, Vacuum 23 (1973) 159.
- [7] P.Meischner and H.Verbeek: Energy distributions of charged and neutral hydrogen atoms backscattered from metal surfaces bombarded with 5 to 18 keV protons, J.Nucl.Mater. 53 (1974) 276.
- [8] M.T.Robinson and I.M.Torrens: Computer simulation of atomic displacement cascades in solids in the binary-collision approximation, Phys.Rev. B 9 (1974) 5008.
- [9] H.Verbeek: Total back scattering yields of 3-15 keV protons from polycrystalline Nb, J.Appl.Phys. 46 (1975) 2981.
- [10] H.H.Andersen, T.Lenskjaer, G.Sidenius, and H.Sørensen: Energy reflected from solid targets bombarded with keV protons and helium ions, J.Appl.Phys. 47 (1976) 13.
- [11] W.Eckstein and F.E.P.Matschke: Charge-state fractions of hydrogen backscattered from gold, Phys.Rev. B 14 (1976) 3231.
- [12] D.Hilderbrandt and R.Manns: Reflection of kinetic energy during the bombardment of polycrystalline solids with He and Ne ions, Phys.Status Solidi (a) 38 (1976) K155.
- [13] H.Verbeek, W.Eckstein, and S.Datz: Positive and negative hydrogen ions backscattered from Au, Ta, and ThO<sub>2</sub> in the energy range up to 15 keV, J.Appl.Phys. 47 (1976) 1785.
- [14] H.Sørensen: Energy reflection from gold bombarded with keV protons

- at various angles of incidence, *App.Phys.Lett.* 29 (1976) 148.
- [15] W.Eckstein, F.E.P.Matschke, and H.Verbeek: Reflection of hydrogen from stainless steel and Nb, *J.Nucl.Mater.* 63 (1976) 199.
- [16] O.S.Oen and M.T.Robinson: Computer studies of the scattering of low energy hydrogen ions from polycrystalline solids, *J.Nucl.Mater.* 63 (1976) 210.
- [17] O.S.Oen and M.T.Robinson: Computer studies of the reflection of light ions from solids, *Nucl.Instr.Meth.* 132 (1976) 647.
- [18] G.Sidenius and T.Lenskjaer: Total backscattering of protons from metal surfaces, *Nucl.Instr.Meth.* 132 (1976) 673.
- [19] H.Verbeek, W.Eckstein, and F.E.P.Matschke: Energy analysis of neutral H, D, He, and Ne atoms with energies from 200 eV to 10 keV, *J.Phys. E* 10 (1977) 944.
- [20] A.F.Akkerman: Reflection of slow hydrogen and helium ions from solid surfaces, *Phys.Status solidi (a)* 48 (1978) K47.
- [21] M.Hou and M.T.Robinson: Mechanisms for the reflection of light atoms from crystal surfaces at kilovolt energies, *Appl.Phys.* 17 (1978) 295.
- [22] H.H.Brongersma and T.M.Buck: Low-energy ion scattering (LEIS) for composition and structure analysis of the outer surfaces, *Nucl.Instr.Meth.* 149 (1978) 569.
- [23] W.Eckstein, V.A.Molchanov, and H.Verbeek: The charge states of He and Ne backscattered from Ni in the energy range of 1.5-15 keV, *Nucl.Instr.Meth.* 149 (1978) 599.
- [24] M.Hou, W.Eckstein, and H.Verbeek: Small angle backscattering of hydrogen, deuterium, helium, and neon from single and polycrystalline nickel, *Rad.Eff.* 39 (1978) 107.
- [25] J.E.Robinson and D.P.Jackson: Scattering of keV hydrogen and helium ions and neutrals from oxygen covered surfaces, *J.Nucl.Mater.* 76/77 (1978) 353.
- [26] J.Schou, H.Sørensen, and U.Littmark: Energy reflection coefficients for 5-10 keV He ions incident on Au, Ag, and Cu, *J.Nucl.Mater.* 76/77 (1978) 359.
- [27] W.Eckstein and H.Verbeek: Reflection of H, D, and He from C, Ti, Ni, Mo, W, and Au, *J.Nucl.Mater.* 76/77 (1978) 365.
- [28] O.S.Oen and M.T.Robinson: Computer simulation of the reflection of hydrogen and the sputtering of hydrogen from metal hydrides, *J.Nucl.Mater.* 76/77 (1978) 370.

- [29] K.Akaishi, A.Miyahara, and A.Sagara: Low-energy ion scattering study of adsorbed layers on molybdenum surface, *J.Nucl.Mater.* 76/77 (1978) 378.
- [30] L.W.Carlson and N.F.Lane: Atomic excitation in  $\text{He}^+$  and  $\text{H}^+$  reflection from a metal surface, *J.Phys. B* 12 (1979) L457.
- [31] R.S.Bhattacharya, W.Eckstein, and H.Verbeek: Backscattering of H and He from W and  $\text{WO}_3$ , *J.Nucl.Mater.* 79 (1979) 420.
- [32] G.Staudenmaier, J.Roth, R.Behrisch, J.Bohdansky, W.Eckstein, P.Staib, S.Matteson, and S.K.Erents: Trapping of deuterium implanted in carbon and silicon: A calibration for particle-energy measurements in the plasma boundary of Tokamaks, *J.Nucl.Mater.* 84 (1979) 149.
- [33] W.Heiland, U.Beitatz, and E.Taglauer: Scattering of molecular and atomic hydrogen ions from single-crystal surfaces, *Phys.Rev. B* 19 (1979) 1677.
- [34] H.Asada: Specular reflection of helium and hydrogen molecular beams from the (111) plane of silver, *Surf.Sci.* 81 (1979) 386.
- [35] R.C.McCune, J.E.Chelgren, and M.A.Z.Wheeler:  $^4\text{He}^+$  ion scattering spectrometry of tantalum oxide below 1.0 keV, *Surf.Sci.* 84 (1979) L515.
- [36] G.Ertl: Scattering of atomic and molecular beams at metal surfaces, *Surf.Sci.* 89 (1979) 525.
- [37] T.Engel and H.Kuipers: A molecular-beam investigation of the scattering, adsorption, and absorption of  $\text{H}_2$  and  $\text{D}_2$  from/on/in Pd(111), *Surf.Sci.* 90 (1979) 162.
- [38] W.Eckstein, H.Verbeek, and J.P.Biersack: Angular and energy distributions of H and He atoms backscattered from gold, *J.Appl.Phys.* 51 (1980) 1783.
- [39] H.Verbeek, W.Eckstein, and R.S.Bhattacharya: Computer simulation of the backscattering and implantation of hydrogen and helium, *J.Appl. Phys.* 51 (1980) 1194.
- [40] W.E.Carlos and M.W.Cole: Interaction between a He and a graphite surface, *Surf.Sci.* 91 (1980) 339.
- [41] R.S.Bhattacharya, W.Eckstein, and H.Verbeek: Positive charge fractions of H, D, and He backscattered from solid surfaces, *Surf. Sci.* 93 (1980) 563.
- [42] H.Verbeek, W.Eckstein, and R.S.Bhattacharya: Negative hydrogen ion formation by backscattering from solid surfaces, *Surf.Sci.* 95 (1980) 380.

- [43] S.Iannotta and U.Valbusa: High resolution H atom scattering from NaCl (001), Surf.Sci. 100 (1980) 28.
- [44] D.P.Jackson: Comparison of ion backscattering models, J.Nucl.Mater. 93/94 (1980) 507.
- [45] L.G.Haggmark and J.P.Biersack: Monte Carlo studies of light ion reflection from metal surfaces, J.Nucl.Mater. 85/86 (1979) 1031.
- [46] E.S.Parilis and V.K.Verleger: Energy spectra and charge states of light atoms scattered by solid surface, J.Nucl.Mater. 93/94 (1980) 512.
- [47] W.Eckstein and H.Verbeek: Reflection of hydrogen from stainless steel for non-normal incidence, J.Nucl.Mater. 93/94 (1980) 518.
- [48] E.W.Thomas, R.Young, J.E.Harriss: Small angle scattering of hydrogen from surfaces, J.Nucl.Mater. 93/94 (1980) 524.
- [49] S.H.Overbury, P.F.Dittner, and D.Datz: Energy and angular distribution of low energy  $H^+$  and  $D^+$  backscattered from polycrystalline carbon, J.Nucl.Mater. 93/94 (1980) 529.
- [50] J.R.Hiskes and P.J.Schneider: A model for  $H^-$ ,  $D^-$  production by hydrogen backscattering from alkali and alkali/transition-metal surfaces, J.Nucl.Mater. 93/94 (1980) 536.

## II - 4 Empirical Formulas for the Reflection of Light Ions from Solids\*

Tatsuo Tabata, Radiation Center of Osaka Prefecture

### 1. Introduction

As a commentary to Gesi's review on the reflection of light ions from solids, our preliminary result of formulating empirical equations related to the phenomenon is described.

We consider the following parameters:

- (1) the number-reflection coefficient  $R_N$  defined as the ratio of the total number of reflected particles, charged and neutrals, to the number of primary particles,
  - (2) the energy-reflection coefficient  $R_E$  defined as the ratio of the total energy reflected to the total incident energy,
  - (3) the relative mean energy  $r_E$  of reflected particles.
- The last quantity is expressed by the ratio of the former two:

$$r_E = R_E/R_N \quad (1)$$

The projectiles considered are H, D and He ions normally incident on effectively semiinfinite targets.

### 2. Formulation

Following the theoretical prediction<sup>1-3)</sup> that  $R_N$  and  $R_E$  for a given light projectile are respectively scaled on to a single curve as a function of Thomas-Fermi reduced energy  $\epsilon$ , we express  $R_N$  by the equation of the form:

$$R_N = a_1/[\epsilon^{a_2}(1 + a_3\epsilon + a_4\epsilon^2)] \quad (2)$$

\* 軽いイオンの固体からの反射に関する経験式

Work performed under the joint research program of data compilation at the Research Information Center, Institute of Plasma Physics, Nagoya University. Coworkers are Rinsuke Ito from Radiation Center of Osaka Prefecture, Noriaki Ito and Kenji Morita from Faculty of Engineering, Nagoya University.

where the symbols  $a_i$  ( $i=1, 2, 3, 4$ ) denote constants for a given projectile. The reduced energy  $\epsilon$  is given by

$$\epsilon = 32.5EA_2/[(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}(A_1 + A_2)Z_1Z_2] \quad (E \text{ in keV}), \quad (3)$$

where  $E$  is the incident kinetic energy of the projectile, and  $Z_1, A_1, Z_2$  and  $A_2$  are the atomic and mass numbers for the projectile and target atoms, respectively.

While experimental and Monte Carlo studies have shown that the aforementioned scaling law is reasonably well valid for some targets, the experimental data for other targets lie on a different curve with nearly equal slopes in logarithmic scales. One of main reasons for this deviation from the scaling law is considered to be the effect of  $Z_2$ -oscillations of the stopping power.<sup>4)</sup> To take account of this fact, we classify targets into two groups, and assume that only the parameter  $a_1$  takes on different values for the two groups ( $a_1$  for group 2 is denoted as  $a_1'$ ).

On the basis of the finding of Robinson et al.<sup>5,6)</sup> that  $r_E$  of light ions varies in a universal manner as a function of  $R_N$ , we express  $r_E$  by

$$r_E = b_1 + (1 - b_1)R_N^{b_2}, \quad (4)$$

where  $b_1$  and  $b_2$  are constants independent of projectile and target material. From eq. (1),  $R_E$  is then expressed also by a function only of  $\epsilon$  defined as the product of right sides of eqs. (2) and (4).

### 3. Determination of the Constants

Values of the constants in eqs. (2) and (4) have been determined through the least-squares fit to available experimental data and representative sets of Monte Carlo data at lower energies. The sources of data used are shown in Table I.

The classification, mentioned in the previous section, of targets into two groups has been made by using the experi-

mental<sup>7)</sup> and theoretical<sup>8)</sup> results of the electronic stopping power for  ${}^7\text{Li}^+$  and  ${}^{14}\text{N}^+$  ions. Materials with the stopping power near the minima of  $Z_2$ -oscillations have been classified into group 1, and those with the stopping power near the maxima, into group 2. The classification of targets for the data used is shown in Table II.

First, values of  $a_i$  ( $i=1, 2, 3, 4$ ),  $a_1'$  and  $b_j$  ( $j=1, 2$ ) have been determined for H ions with a single run of least-squares fit, in which the functions for  $R_N$  and  $R_E$  have been fitted to the respective sets of data so as to minimize the rms relative error for the combined set of data. Next, values of  $a_i$  and  $a_1'$  for D and He ions have been sought by using the values of  $b_j$  determined from the H-ion data.

#### 4. Results

The values of the constants obtained are given in Table III. In the last row of the table, values of the rms relative error  $\delta$  are also shown. Examples of comparison of the empirical formulas with the data points are shown in Figs. 1-3. Generally, satisfactory agreement is seen.

Using the ratio of stopping power formulas to remove the effect of  $Z_2$ -oscillations of the stopping power, we have recently developed improved formulas. The new results will be reported elsewhere.

#### References

- 1) G. McCracken and N. J. Freeman: J. Phys. B 2 (1969) 661.
- 2) R. Weissmann and P. Sigmund: Radiat Eff. 19 (1973) 7.
- 3) J. Vukanić and P. Sigmund: Appl. Phys. 11 (1976) 265.
- 4) D. Hildebrandt and R. Manns: Phys. Status Solidi a 38 (1976) K155.
- 5) J. E. Robinson, A. A. Harms and K. Karapetsas: Appl. Phys. Lett. 27 (1975) 425.
- 6) J. E. Robinson, K. K. Kwok and D. A. Thompson: Nucl. Instrum. & Methods 132 (1976) 667.
- 7) D. G. Simons, D. J. Land, J. G. Brennan and M. D. Brown: Phys. Rev. A 12 (1975) 2383.



- 8) D. J. Land, J. G. Brennan, D. G. Simons and M. D. Brown: Phys. Rev. A16 (1977) 492.
- 9) H. H. Andersen, T. Lenskjaer, G. Sidenius and H. Sørensen: J. Appl. Phys. 47 (1976) 13.
- 10) W. Eckstein and H Verbeek: Max-Plank-Institute for Plasma Physics Report IPP 9/32 (1979).
- 11) G. Sidenius and T. Lenskjaer: Nucl. Instrum. & Methods 132 (1976) 673.
- 12) H. Sørensen: Proc. Int. Symp. Plasma Wall Interaction, Jülich, 1976 (Pergamon Press, New York, 1977) p. 437.
- 13) O. S. Oen and M. T. Robinson: Nucl. Instrum. & Methods 132 (1976) 647.
- 14) S. Shou, H. Sørensen and U. Littmark: J. Nucl. Mater. 76 & 77 (1978) 359.

Table I Sources of the data used

Projectile	Author	Ref.
H	Andersen et al.	9
	Eckstein, Verbeek	10
	Sidenius, Lenskjaer	11
	Sørensen	12
	Oen, Robinson <sup>a)</sup>	13
D	Eckstein, Verbeek	10
	Eckstein, Verbeek <sup>a)</sup>	10
He	Andersen et al.	9
	Eckstein, Verbeek	10
	Hildebrandt, Manns	4
	Schou et al.	14
	Oen, Robinson <sup>a)</sup>	13

a) Monte Carlo data.

Table II Classification of targets.

Group	Atomic number of target material
1	21-32, 34, 46-48, 50-52, 78, 79, 82
2	6, 12-14, 22, 23, 40-42, 73, 74

Table III Values of the constants in the empirical formulas and the rms relative error  $\delta$  of fit.

	H ion	D ion	He ion
$a_1$	$0.253 \pm 0.018$	$0.310 \pm 0.034$	$0.197 \pm 0.010$
$a_1'$	$0.186 \pm 0.013$	$0.222 \pm 0.021$	$0.161 \pm 0.009$
$a_2$	$0.219 \pm 0.020$	$0.156 \pm 0.029$	$0.234 \pm 0.016$
$a_3$	$0.437 \pm 0.070$	$0.46 \pm 0.13$	$0.293 \pm 0.044$
$a_4$	$0.0046 \pm 0.0022$	$0.0049 \pm 0.0066$	0
$b_1$	$0.192 \pm 0.017$	0.192	0.192
$b_2$	$1.05 \pm 0.12$	1.05	1.05
$\delta$	0.18	0.20	0.24

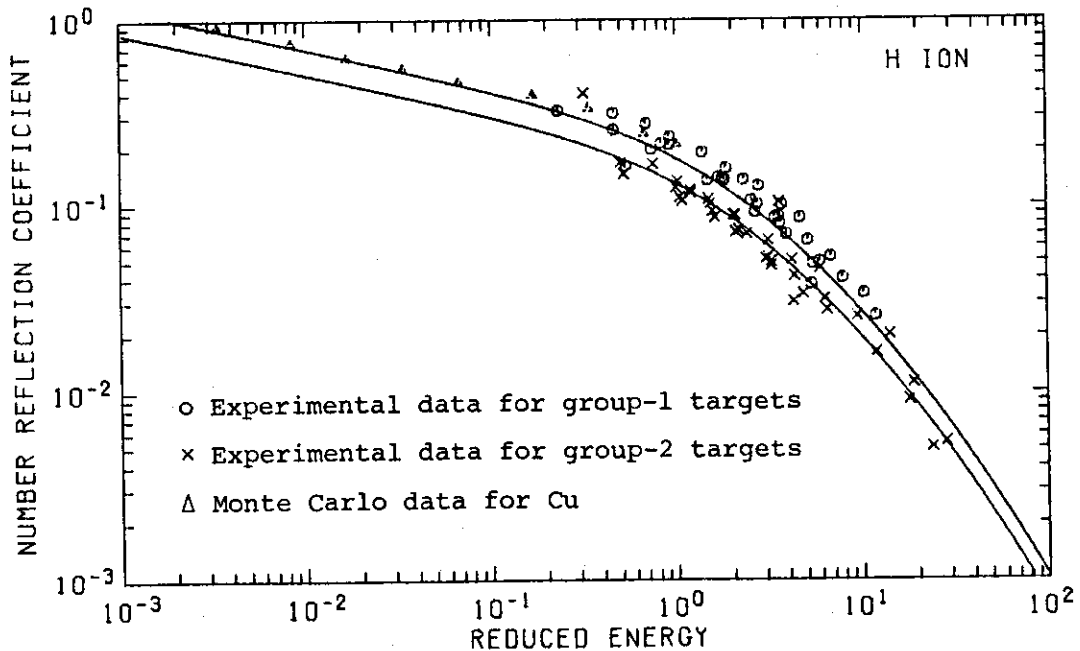


Fig. 1 Number reflection coefficient of H ions normally incident on effectively semiinfinite targets. Curves: present empirical formula

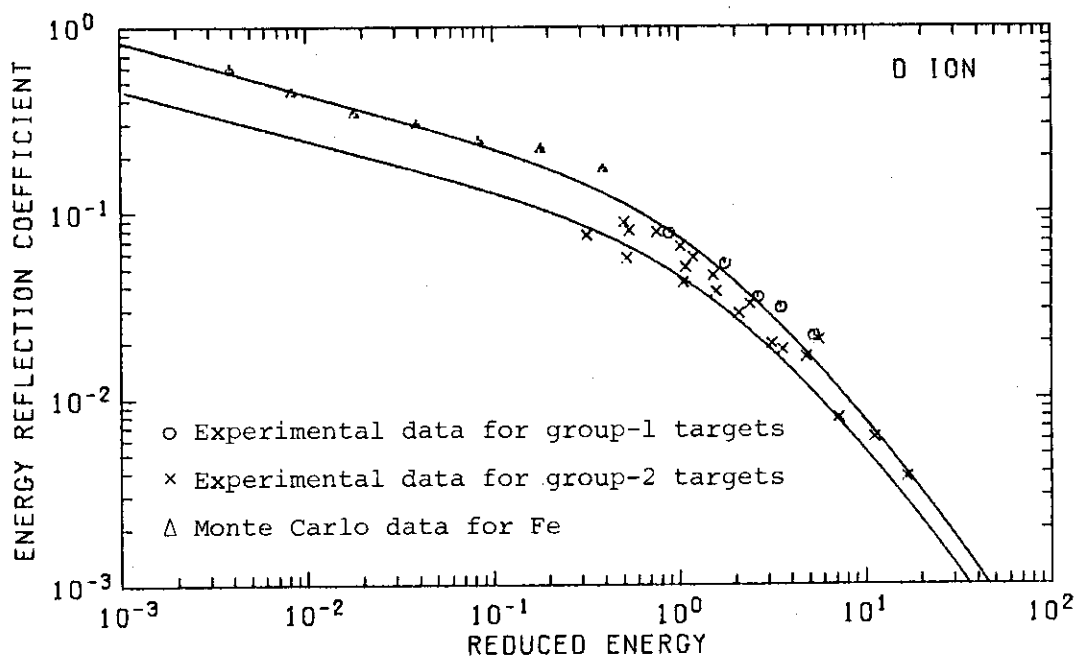


Fig. 2 Energy reflection coefficient of D ions normally incident on effectively semiinfinite targets. Curves: present empirical formula.

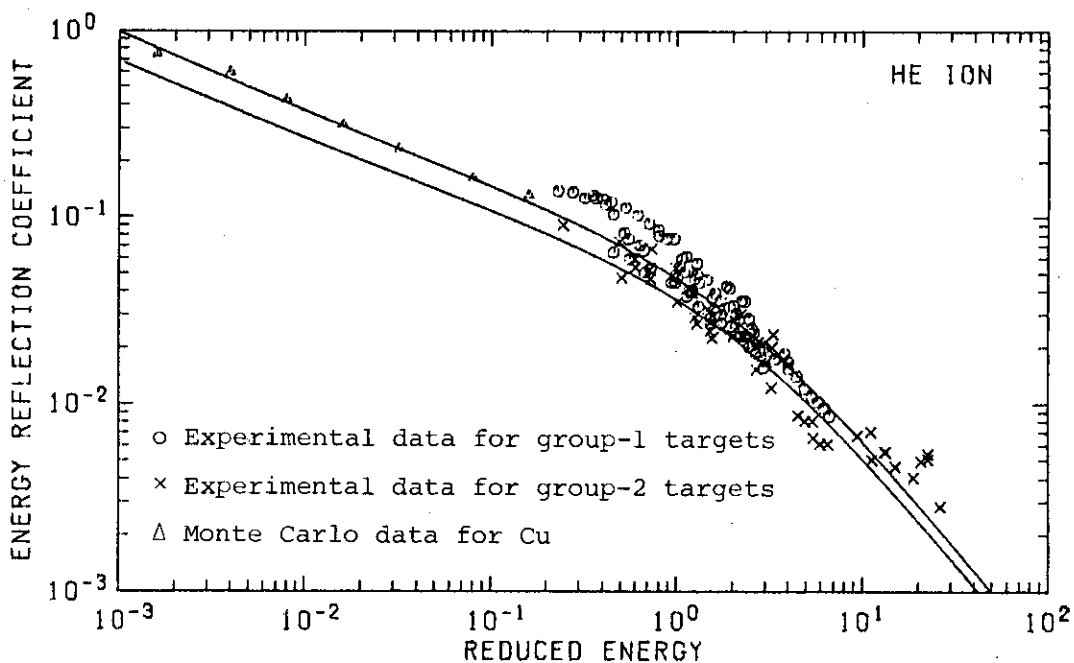


Fig. 3 Energy reflection coefficient of He ions normally incident on effectively semiinfinite targets. Curves: present empirical formula.

## II - 5 低エネルギー軽元素粒子の固体表面による反射\*

名大工 森 田 健 治

### 1. はじめに

軽元素イオンの固体表面による反射（粒子反射係数，エネルギー反射係数）について，これまで得られているデータの概要を紹介する。このテーマは核融合炉装置においてプラズマ中からの散逸中性粒子（H, D, T, He 及び不純物原子）が第1壁材により反射され，エネルギーを持ってプラズマ内に再流入するリサイクリングの問題と結びついている。<sup>1), 2)</sup> 具体的には炉設計において粒子平衡及びエネルギー平衡を評価するため，種々の材料に対するこれら粒子の反射係数のデータが必要である。従って反射係数を理論的に算出することも重要である。第1壁を衝撃する散逸粒子束は水素同位体では  $10^{15} \sim 10^{16}$  atoms/cm<sup>2</sup>·s，ヘリウムでは  $10^{14} \sim 10^{15}$  atoms/cm<sup>2</sup>·s であり，これらの粒子のエネルギーは数eVから数十keVであると概算されている。<sup>3)~6)</sup>

### 2. 反射係数

核融合炉設計において必要とされる軽元素粒子の反射に関する量は，粒子反射係数  $R_N$  及びエネルギー反射係数  $R_E$  の2つである。これらの量は通常反射粒子のエネルギー・スペクトル（二重微分反射係数）を積分して得られる。粒子が固体表面を入射エネルギー  $E_0$ ，入射角  $\phi_{in}$  で衝撃し，入射方向から測った散乱角  $\beta$ ，粒子の入射方向に垂直で且つ固体表面に平行な方向から測った方位角  $\zeta$  に反射される粒子のエネルギー・スペクトルを  $(E_0, \phi_{in}, E, \beta, \zeta)$  とすると，粒子反射係数  $R_N$  は，

$$R_N(E_0, \phi_{in}) = \int_0^{E_0} dE \int_0^\pi \int_0^{\pi/2} n(E_0, \phi_{in}, E, \beta, \zeta) 2 \sin \zeta d\zeta d\beta \quad (1)$$

で与えられる。式(1)の  $n$  は入射粒子強度について規格化した微分反射係数である。又，エネルギー反射係数は，

$$R_E(E_0, \phi_{in}) = I/E_0 \int dE \int_0^\pi \int_0^{\pi/2} E \cdot n(E_0, \phi_{in}, E, \beta, \zeta) 2 \sin \zeta \cdot d\zeta \cdot d\beta \quad (2)$$

で表わされる。これらの反射係数は，実験的にも理論的にも数多く調べられていて，下記の換算エネルギー  $\epsilon$ <sup>7)</sup> の関数として表わされている。

$$\epsilon = \frac{E_0 a}{e^2} \cdot \frac{M_2}{Z_1 Z_2 (M_1 + M_2)} \quad (3)$$

ここで  $\epsilon$  は電子の電荷， $a$  はトーマス・フェルミーの遮蔽距離， $M_1, Z_1, Z_2, M_2$  は，それぞれ入射粒子及び標的原子の原子番号及び質量である。

\* Reflection of Low-energy Light-element Ions from Solid Surfaces.

3. 測定手段

粒子反射係数及びエネルギー反射係数は式(1), (2)において示した様に, 反射方向 ( $\beta, \zeta$ ) におけるエネルギー・スペクトル (微分反射係数)  $n$  を測定して ( $\beta, \zeta$ ) に関して, 積分し, 求められてきた。<sup>8)</sup> この方法は反射粒子の荷電状態に関する情報をも与える。反面今問題にしている粒子のエネルギー範囲では, 反射粒子の大部分は中性粒子であるため, 中性粒子のエネルギー分析を行わなければならない。このため, 実験装置は大がかりで, エネルギー・スペクトルを種々の反射方向 ( $\beta, \zeta$ ) について測ることは, 時間を要し, 困難が多い。

一方, このエネルギー領域の軽元素粒子衝撃により, 固体表面から放出される粒子の大部分は反射粒子で, スパッタされた標的原子や不純物原子の量が小さいため, 下記のような直接積分量である粒子反射係数やエネルギー反射係数を測定する方法が開発されている。

- Colorimeter 法<sup>9)~11)</sup> → エネルギー反射係数
- proportional counter 法<sup>11), 12), 13)</sup> → 粒子反射係数, エネルギー反射係数
- trapping yield の決定を利用する方法<sup>14)</sup> → 粒子反射係数

4. 実験データ

軽元素イオンの反射は, 1963年頃から実験的に調べられてきた。1970年頃までの実験結果の大部分は, 反射イオンのエネルギー・スペクトルに関するものである。<sup>8)</sup> 中性粒子のエネルギー分析を行ない, 全反射係数の実験データを得られたのはそれ以後である。<sup>11), 13), 15), 16), 17), 18), 19), 20)</sup> これまで測定されている実験データの大部分は, 積分測定法によるもので, イオンを標的表面に対して垂直 ( $\phi_{in} = 90^\circ$ ) に衝撃した場合についてである。又, 入射イオンのエネルギーは 1 ~ 50 keV である。

4-1 粒子反射係数

種々の標的に  $H^+, D^+, T^+, He^+$  を衝撃した場合の粒子反射係数  $R_N$  のデータを換算エネルギー  $\epsilon$  の関数としてまとめた結果を図1に示す。図1から  $R_N$  の値は  $\epsilon$  の増加と共に単調に減少

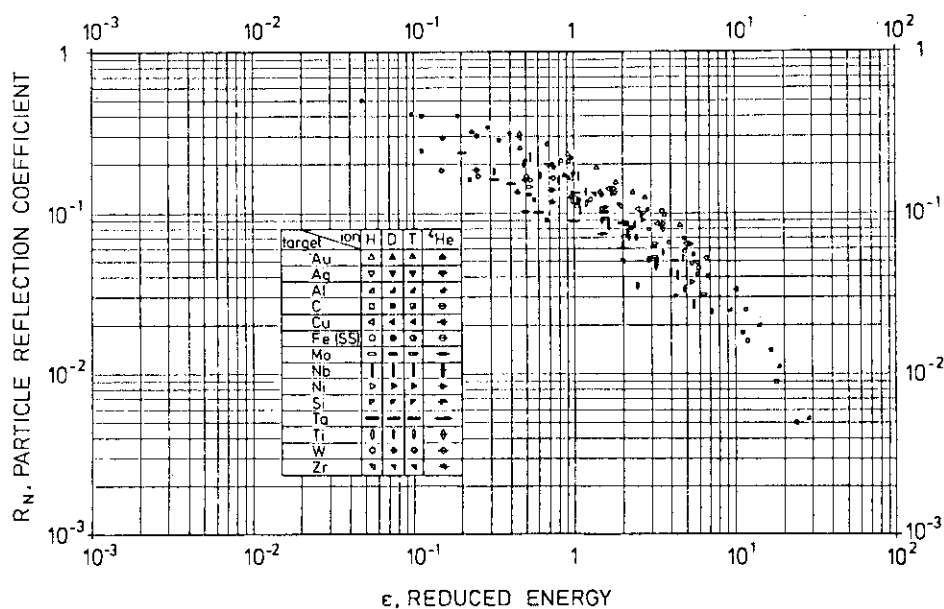


図1 粒子反射係数 (文献 20 による)

していることがわかる。又、種々の標的に対して  $R$  の絶対値が factor 2 の範囲内に存在することがわかる。更に  $\epsilon < 0.1$  以下の領域では、データが殆んどないこともわかる。(cf.  $8 \text{ keV H}^+ \rightarrow \text{Au}$  の場合,  $\epsilon = 0.744$ ,  $8 \text{ keV H}^+ \rightarrow \text{Fe}$  の場合,  $\epsilon = 1.95$ ,  $8 \text{ keV H}^+ \rightarrow \text{C}$  の場合,  $\epsilon = 19.3$  である。)

#### 4-2 エネルギー反射係数

エネルギー反射係数  $R_E$  のデータの結果を図 2 に示す。図 2 から  $R_E$  の値も  $R_N$  の結果と同様に  $\epsilon$  の増加と共に単調に減少していることがわかる。

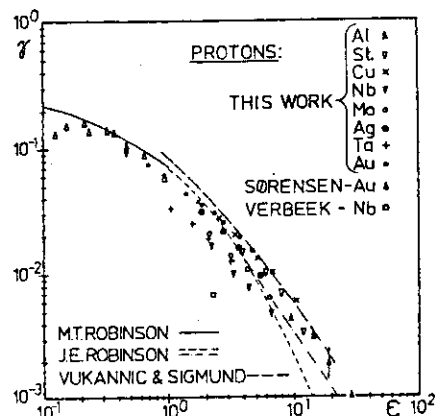


図 2 エネルギー反射係数 (文献 13 による)

#### 5. 反射過程の理論的取り扱い

軽元素イオンの固体表面による反射の過程は、入射イオンと個々の標的原子との 2 体衝突の連続として取り扱われてきた。イオンの反射係数は、下記のその過程を解析的に計算する方法と直接統計的なモンテカルロ法により模擬計算する方法により求められた。

- 1) 輸送理論による方法<sup>21)~23)</sup>
- 2) 単一衝突モデルによる方法<sup>24), 25)</sup>
- 3) 計算機シミュレーションによる方法<sup>26), 27), 28), 29)</sup>

これらの理論的な取り扱いにより計算した反射係数の結果は、いずれも図 2 に示す如く全反射係数の実験結果とよく一致している。単一衝突モデルに基いた取り扱いは粒子反射係数  $R_N$  が  $Z_2$  の大きい標的に対して  $(1/A(Z_2))R(\epsilon)$  に比例することを示した。ここで  $R(\epsilon)$  は標的に依存しない単調減少の  $\epsilon$  だけの関数であり、 $A(Z_2)$  は阻止断面積を  $A(Z_2)E^{1/2}$  で表わした時の係数である。この結果は図 1 における実験データの標的に対するバラツキは阻止断面積の相異により生じていることを示唆している。実際に種々の単体標的に対する実験データを  $R_N A(Z_2) \sim \epsilon$  プロットすると一つの曲線に scaling できることが、大阪府立放射線中央研究所の多幡氏により確かめられている。

一方、反射粒子のエネルギー・スペクトル (二重微分反射係数) の計算結果は、必ずしも実験結果と一致していない。多組成材料を含む種々の炉壁材料について、種々の入射角における反射係数を理論的に求めるためには、反射粒子のエネルギー・スペクトルをよく説明する理論的取り扱い方法を開発することが必要である。

#### 6. まとめ

これまで得られている軽元素イオンの反射のデータの現状を紹介した。図 1 からわかる様に、 $\epsilon < 0.1$  の領域のデータが殆んどない。このデータの欠如をモンテカルロシミュレーション

(TRIM)を用いて補うことが試みられている。

これまでの実験データの大部分は入射粒子としてイオンを用いて得たものである。実際に炉壁を衝撃するのは、中性粒子である。1 keV以上の入射粒子の固体内で走る距離は荷電変換の平均自由行程に比べ十分に長いので、イオン入射に対するデータは中性粒子入射に対するデータと相異がないと見てよい。しかし、1 keV以下では問題になるかもしれない。

これまでの実験データは、反射粒子の電荷状態について積分した全反射係数である。各電荷状態に対する反射係数のデータは、積分測定法では得られないので、従来の微分測定法を用いなければならない。

## 文献

- 1) R. Behrisch, "Fusion-first wall problem," in: Critical Materials Problems in Energy Production (ed. C. Stein), Academic Press, New York (1976).
- 2) C. M. McCracken, in: Plasma Wall Interaction, Pergamon Press, New York (1977), p. 339.
- 3) R. Behrisch, Nucl. Fusion 18, 1315 (1978); R. Behrisch, J. Nucl. Mater. 19, 684 (1979).
- 4) Proc. Conf. on Surface Effects in Control. Fusion, J. Nucl. Mater. 53, (1974).
- 5) Proc. Conf. on Surface Effects in Control. Fusion Devices, J. Nucl. Mater. 63, (1976).
- 6) Proc. Conf. on Plasma Surface Interaction in Control. Fusion Devices, J. Nucl. Mater. 76 and 77, (1978).
- 7) J. Lindhard, M. Scharff and H. E. Schiött, Mat. Phys. Medd. Dan. Vid. Selsk 33, No. 1 (1963).
- 8) E. S. Mashkova and V. A. Molchanov, Radiat. Eff. 16, 143 (1972).
- 9) H. H. Andersen, Radiat. Eff. 3, 51 (1970).
- 10) H. H. Andersen, Radiat. Eff. 7, 179 (1971).
- 11) H. H. Andersen, T. Lenskjaer, G. Sidenius and H. Sorensen, J. Appl. Phys. 47, 13 (1971).
- 12) G. Sidenius, Phys. Lett. A49, 409 (1974).
- 13) G. Sidenius and T. Lenskjer, Nucl. Instr. Meth. 132, 673 (1976).
- 14) J. Bohdanský, J. Roth, M. K. Sinha and W. Ottenberger, J. Nucl. Mater. 63, 115 (1976).
- 15) H. Sorensen, Appl. Phys. 9, 321 (1976).
- 16) J. Schou, H. Sorensen and U. Littmark, J. Nucl. Mater. 76 and 77, 359 (1978).
- 17) B. Hildebrandt and R. Manns, Phys. Status Solidi A38, K115 (1976).
- 18) H. Verbeek, J. Appl. Phys. 46, 2981 (1975).
- 19) R. S. Bhattacharya, W. Eckstein and H. Verbeek, J. Nucl. Mater. 79, 420 (1979).
- 20) W. Eckstein and H. Verbeek, "Data on Light Ion Reflection" IPP 9/32 August 1979, Max-Planck-Institut für Plasma-Physik, Garching bei München



- 21) R. Weissmann and P. Sigmund, Radiat. Eff. 19, 7 (1973).
- 22) J. Bottiger and K. B. Winterbon, Radiat. Eff. 20, 65 (1973).
- 23) K. B. Winterbon, P. Sigmund and J. B. Sanders, Mat. Fys. Medd. Dan. Selsk. 37, No. 14 (1970).
- 24) J. Vukanic and P. Sigmund, Appl. Phys. 11, 265 (1976).
- 25) G. M. McCracken, Rep. Prog. Phys. 38, 241 (1975);  
G. M. McCracken and N. J. Freeman J. Phys. B2, 661 (1969).
- 26) T. Ishitani, R. Shimizu and K. Murata, Jpn. J. Appl. Phys. 11, 125 (1972).
- 27) M. T. Robinson, J. M. Torrens, Phys. Rev. B29, 5008 (1974).
- 28) O. S. Oen and M. T. Robinson, Nucl. Instr. Meth. 132, 647 (1976).
- 29) J. E. Robinson, K. K. Kwok and D. A. Thompson, Nucl. Instr. Meth. 132, 667 (1976).
- 30) S. Yu. Mikheev, Yu. A. Ryzhov and D. S. Strizhenov, Izv. Akad. Nauk. SSSR, Ser. Fiz 43, 573 (1979).

## II - 6 イオンおよび電子による脱着\*

原研 永 井 士 郎

## 1. はじめに

固体表面上に吸着した分子に高エネルギーイオンあるいは電子を照射すると、吸着分子の脱着が起る。このうちイオンによる脱着はIon Impact Desorption (IID), 一方電子による脱着は、Electron Stimulated Desorption (ESD) あるいはElectron Impact Desorption (EID) と呼ばれており、いずれの研究からも脱着現象の観測を通じて吸着分子の表面状態に関する知見が得られる。核融合の分野においても、プラズマ容器壁はたえずイオンおよび電子の照射ふん囲気にあるから、これらによる吸着分子の脱着はプラズマ内への不純物混入という意味で重要な現象である。<sup>1), 2)</sup>

IIDおよびESDに関して収集されたデータは表にまとめて整理しながら作業を進めているが、ここではまず、研究例の多いESDについて、次に研究例は少いがより脱着断面積の大きいIIDに関する最近の研究動向を概観する。次に、それぞれについて整理した表の一部を示し、データ収集の立場からみた問題点をのべる。

## 2. ESD (EID)

金属表面上に吸着した分子(原子)に電子衝撃を行うと吸着分子の脱着が起ることは古くから知られており、比較的最近では、ESDによりAES(オージェ電子分光)など電子のプロブとする表面分析が妨害されることや、脱着分子に関する知見のみでなく、吸着分子の表面状態に関する情報が得られることから多くの研究がなされており、その総説も多い。

ESDが起る機構については、Menzel & Gomer<sup>3)</sup>およびRedhead<sup>4)</sup>によりそれぞれ独立に提唱された同じモデルが広く受け入れられている。このモデル(Figure 1参照)は、一次元の古典論に基づくもので、気相分子の励起モデルと類似している。吸着分子-金属を仮想分子と考え、この仮想分子は入射電子によりFranck-Condon Principleに従って、その基底状態から反撥型エネルギー準位へ励起される。この過程により、仮想分子は吸着分子からのイオン(あるいは励起分子)と金属に解離し、

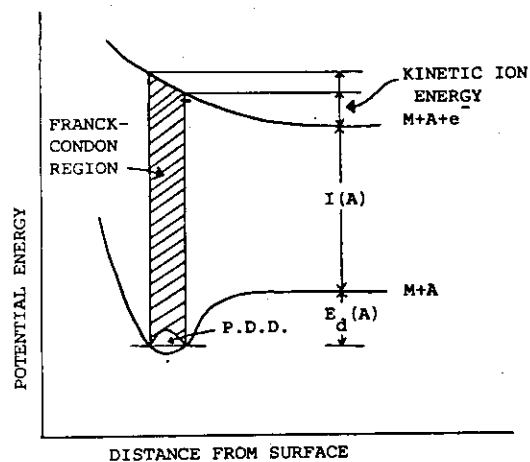


Figure 1. Schematic potential curves for interaction between a surface M and an atom A, and between M and the ion  $A^+$ . A possible electronic transition resulting in electron-stimulated desorption of  $A^+$  is indicated by the Franck-Condon region.  $E_d(A)$ ; binding energy of A to M,  $I(A)$ ; ionization potential of A, P.D.D.; square of the wave function for the ground state M-A oscillator.

\* Desorption by Ions and Electrons.

生成したイオン（励起分子）は高い確率で金属により中性化（あるいは失活）されて再捕獲されるため、脱着断面積は気相分子の励起断面積に比べてかなり小さくなる。イオンの中性化の過程は、イオンから金属へのelectron tunnellingで説明される。Zingerman & Ishchukは、<sup>5)</sup>金属の表面原子によりelasticに反射された原子のみがESDを起し得るとする考えを提出しているが、広い支持は得られていないようである。

ESDに関する多くの実験事実は、上に述べたMenzel & Gomer, Redheadによるモデルで説明されるが、金属表面上で、たとえば、O原子が $O^-$ あるいは $O^{2-}$ の状態にあると考えられる系から脱着するイオンが、主に $O^+$ である事実を説明するには困難がある。最近、Knotek & Feibelman<sup>6,7)</sup>は $O_2-TiO_2$ からの $O^+$ の脱着は吸着分子（原子）-金属原子間のAuger過程によるとする新しい説を提唱し、 $O_2-Mo$ 等の系からの $O^+$ の脱着も同じように解釈できると述べている。この説を支持する実験事実はMenzelら<sup>8)</sup>によっても報告されており、表面結合がイオン性と考えられる系においては有力な説であろう。

脱着するspeciesとしては、基底状態の中性分子（原子）が主要なものであり、この他に励起中性分子（原子）、正イオン、準安定正イオンおよび負イオンがある。このうち、負イオンの脱着は最近見出されたものであり、現在までに $H^- (H_2-W^9)$ および $O^- (O_2-W^{10}, O_2-Mo^{11}, CO-W^{12})$ が観測されているが、これら負イオンの収率は、対応する正イオンに比べて1ケタ以上小さい。

脱着speciesのうちイオンについては、そのエネルギー分布が測定されている。たとえば $H_2-W$ の系から脱着する $H^+$ イオンについては、その最確エネルギーは2eVであり、エネルギー分布はWの結晶面により若干異なることが報告されている（Figure 2参照）<sup>13)</sup>。同じWに吸着した $O_2$ およびCOからの $O^+$ については、最確エネルギーは $H^+$ の場合よりやや大きく6eV程度である。<sup>13)</sup>これら脱着イオンのエネルギーは入射電子のエネルギーに依存するが、イオンのもつ最大のエネルギーは10eV程度である。

ESDの断面積（Desorption Cross Section） $Q$ は、入射電子のエネルギー（ $E_e$ ）に依存する。 $E_e = 100$  eV付近で $Q$ が最大になる場合と、 $E_e < 400$  eVまで $E_e$ の増加と共に $Q$ が徐々に大きくなる場合がある。ふつう $E_e = 100$  eVの入射電子では中性分子の $Q$ は $10^{-18} \text{cm}^2$ 程度、正イオンの $Q$ （ $Q^+$ ）は $10^{-22} \text{cm}^2$ 程度である。<sup>14)</sup>  $Q$ の測定法は実験手段により異なるが、 $Q^+$ は、たとえば、そのイオンの電流（ $i^+$ ）と次式の関係にあるから、

$$i^+ = I_e \cdot Q^+ \cdot N$$

電子電流 $I_e$ と $i^+$ を測定し、吸着分子密度 $N$ が分かれば容易に求まる。また、電子衝撃時間による $i^+$ の変化を測定すれば、電子衝撃による全過程（吸着分子の脱着、解離等）の断面積（Total

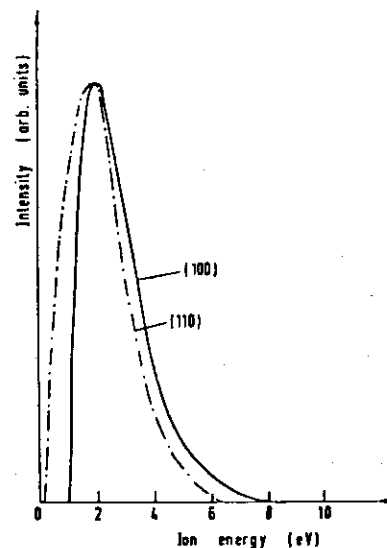


Figure 2. Ion energy distribution of  $H^+$  ions from hydrogen adsorbed at (100) and (110) tungsten. Energy scale uncorrected for contact potential difference.

Cross Section) を求めることができる。

$$-di^+ / dt = n \cdot Q \cdot i^+$$

ここで  $n$  は入射電子の flux である。

ESDの起る threshold エネルギーは一般に  $Q$  が小さいために測定が困難であるが、高感度測定の結果<sup>13)</sup>によると 15 ~ 20 eV 程度である。

ESD, とくに (正) イオンの ESD の断面積が小さい理由は、前述したように、金属表面で生成した正イオンが表面により再び中性化される確率が大きいと解釈される。この中性化の確率は、(正) イオンが表面近傍に滞在する時間、すなわちイオンの速度に依存する。Isotope 粒子のポテンシャルエネルギー曲線および遷移の確率は等しいので、質量の相異により脱着断面積が異なることになる。 $m_1, m_2$  の質量をもつ 2 つの Isotope 粒子の断面積の比は次式で表わされる。

$$\ln(Q_1^+ / Q_2^+) = \{ (m_2 / m_1)^{1/2} - 1 \} \ln(Q_{ex} / Q_1^+)$$

ここで  $Q_{ex}$  は気相分子の励起断面積である。このような同位体効果は Madey ら<sup>15)</sup>により  $O_2 - W$  からの  $O^+$  について始めて見出され、実測値と計算値がよく一致することが確かめられている。

すでに述べたように、ESDに関する多くの実験事実は Menzel & Gomer, Redhead の一次元モデルで説明されるが、比較的最近になって、W単結晶に吸着した  $O_2$  から脱着する  $O^+$  が角度分布をもち (Electron Stimulated Desorption Ion Angular Distribution, ESDIAD), その角度分布は、金属表面原子の対称性と対応つけられることが示された。<sup>16)</sup>この事実は、EDSを3次元的に考える必要があることを示すと同時に、吸着分子の吸着サイトに関する直接的な情報が得られることを意味している。

ESDに関する総説には次のものがある。

- D. Lichtman and R. B. MaQuistan, in "Progress in Nuclear Energy (Series IX), Vol. 4, Pt. 2 (1965) p. 95.
- P. A. Redhead, J. Vac. Sci. Technol., 7, 182 (1970).
- T. E. Madey and J. T. Yates, Jr., J. Vac. Sci. Technol., 8, 525 (1971).
- J. H. Leck and B. P. Stimpson, J. Vac. Sci. Technol., 9, 293 (1972).
- V. N. Ageev and N. I. Ionov, Progr. Surf. Sci., 5, 1 (1974).
- R. Gomer, Solid State Phys., 30, 93 (1975).
- D. Menzel, Surf. Sci., 47, 370 (1975).
- M. J. Drinkwine and D. Lichtman, Progr. Surf. Sci., 8, 123 (1977).
- T. E. Madey and J. T. Yates, Jr., Surf. Sci., 63, 203 (1977).
- P. J. Feibelman and M. L. Knotek, Phys. Rev., B18, 6531 (1978).

## 3. IID

すでに2.で述べたように、ESDに関しては多くのデータがある。IIDについてはまだその歴史も浅く、データはまだ少い。しかしながら現在までに報告されたデータによれば、イオンによる脱着断面積（あるいは脱着収率）は電子によるよりも数ケタ大きいので、プラズマ壁相互作用の見地からはより重要と考えられる。

イオン衝撃による吸着分子の脱着（IID）は、Sigmundのsputtering theory<sup>17)</sup>を拡張した一連の2体衝突モデルで説明できることがWinters & Sigmundにより示されている<sup>18)</sup>。Figure 3はWに吸着したN原子をイオン照射した時に起るsputteringの機構を説明したものである。表面原子のsputteringは入射イオンと表面原子間のエネルギー移動によるものであり、したがって

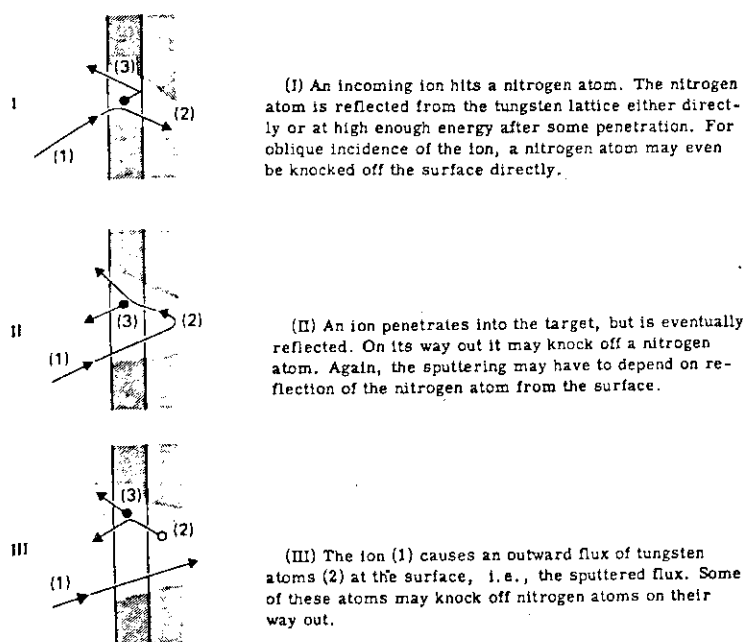


Figure 3. The three postulated sputtering mechanisms illustrated schematically.

sputteringの収率は表面の結合エネルギーに逆比例する。吸着分子（原子）の表面結合エネルギーは吸着熱と一次の関係にあるので、吸着分子の脱着断面積（収率）は吸着熱に逆比例することになる。このことは最近Taglauerらにより実験的に確かめられている（Figure 4参照）<sup>19)</sup>。

IIDの実験方法には、脱着speciesを直接観測する方法と、ISS（Ion Scattering Spectroscopy）等の分析手段を用いて表面状態を観測する方法がある。いずれの場合にも、脱着断面積はESDの場合と同様、表面被覆量あるいはそれに関連づけられる観測量のイオン照射による時間的減少を測定することにより求められる。

今までに報告されたデータによれば、IIDの断面積は $10^{-14} \sim 10^{-17} \text{cm}^2$ の範囲にあり、ESDの全断面積より1ケタ以上大きい。脱着断面積の重要なパラメータは、入射イオンの種類、エネルギー（ $E_i$ ）および入射角（ $\psi$ ）である。入射イオンの種類は、衝突に与る2粒子間のエネルギー移動因子（Energy transfer factor）の大きさを決定する。 $E_i$ は多くの場合、高いほど脱着断面積が大きくなるが、逆の場合もある（Figure 5, Figure 6参照）<sup>20)</sup>。また $\psi$ は表面に対して $30^\circ$

のとき断面積が最大になることがNiに吸着したO原子 (Figure 7 参照), およびS原子<sup>21)</sup>について観測されている。

すでに述べたように, IIDとESDは類似の現象であるが, それらの機構は本質的に異なるものであり, このことが両者の断面積に大きな相異を与えるものと考えられている。IIDについては, ESDほど詳細な研究がなされていないのが現状であり, 脱着speciesの電荷およびエネルギーに関する報告もまだないようである。

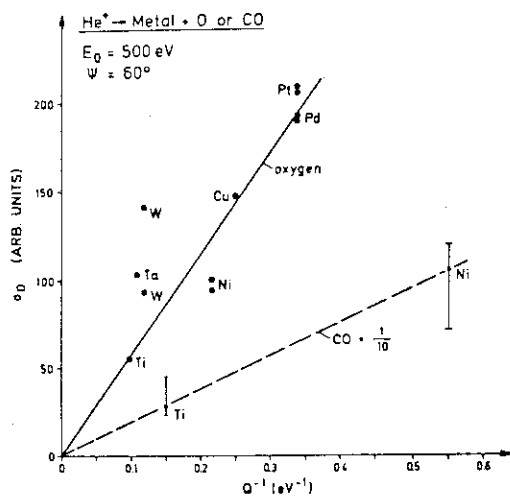


Figure 4. Dependence of the desorption cross sections for O and CO on various metals as a function of the inverse heat of adsorption. The error bars for CO correspond to the minimum and maximum slope in the desorption curve, the points to the least square fit. For O usually several desorption curves were taken, the scatter of the results is indicated in some cases by several points for one element.

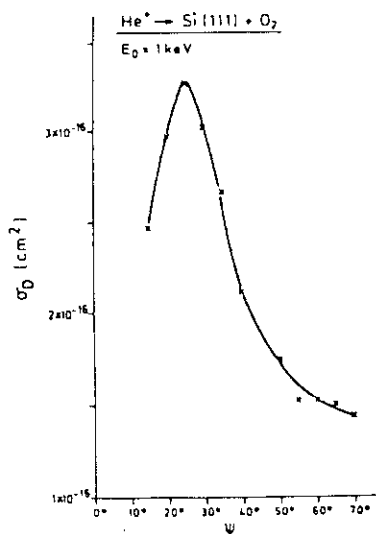


Figure 7. Measured dependence of the desorption cross section on the impact angle relative to the surface.

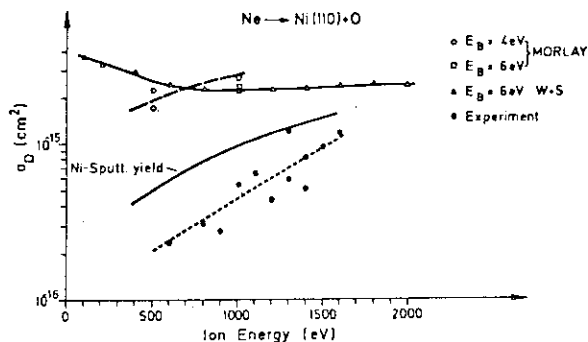


Figure 5. Calculated and experimental cross sections for the desorption of oxygen from Ni(110) with  $^{20}\text{Ne}^+$ . W+S means calculations according to Winters and Sigmund.<sup>18)</sup>

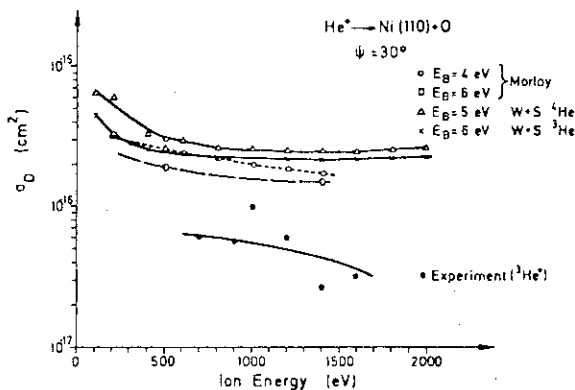


Figure 6. Calculated and experimental cross sections for the desorption of oxygen from Ni(110) with  $^3\text{He}^+$ .

## 4. 収集データのまとめと問題点

ESDおよびIIDに関するデータ収集は中間段階であるが、収集されたデータはそれぞれ表にまとめて整理を行っている。Table 1 にはW表面に吸着したH<sub>2</sub>に関するESDのデータを、また、Table 2 には今までに整理したIIDのデータを示し、各Tableの引用文献はそれぞれのTableの次に示した。文献の記号は、初めの2数字が発行年の下2ケタ、次にfirst authorの頭2文字、後に続く2数字はfirst authorの略号が同じ場合の論文を区別するための年次順を示すものである。

ESDについては、現在までに約100の文献を収集、整理を行っているが、これら文献の多くはhigh Z materialに吸着した分子(原子)を対象としたものであり、low Z materialを扱った報告は少い。またデータの多くは、入射電子のエネルギー(E<sub>e</sub>)が100eV付近のものであり、E<sub>e</sub>の高い領域とくにE>3keVの領域のデータが見当たらない。ESDにおいては、電子の入射角は余り重要でないと考えられるが、これに関する詳しい報告はない。

IIDについては、データの収集作業もまだ進んでいないが、ESDに比べてデータはかなり少く、得られている情報も貧弱である。対象とする系の定義—たとえば分子の吸着状態—もESDほど明確でない。

## 参考文献

1. Report to the American Physical Society by the study group on physics problems relating to energy technologies: Radiation effects on materials, Rev. Mod. Phys., 47, Suppl. 3(1975).
2. R. Behrisch and B. B. Kadomtsev, Plasma Physics and Controlled Nuclear Fusion Research (IAEA, Vienna 1975), p229.
3. D. Menzel and R. Gomer, J. Chem. Phys., 41, 3311(1964).
4. P. A. Redhead, Can. J. Phys., 42, 886(1964).
5. Ya. P. Zingerman and V. A. Ishchuk, Soviet Phys. Solid State, 9, 2638(1968).
6. M. L. Knotek and P. J. Feibelman, Phys. Rev. Lett., 40, 964(1978).
7. P. J. Feibelman and M. L. Knotek, Phys. Rev., B18, 6531(1978).
8. J. Kirschner and D. Menzel, Surf. Sci., 87, L267(1979).
9. J. L. Hock, J. H. Craig, Jr. and D. Lichtman, Surf. Sci., 85, L218(1979).
10. J. L. Hock, J. H. Craig, Jr. and D. Lichtman, Surf. Sci., 85, 101(1979).

11. J. L. Hock and D. Lichtman, Surf. Sci., 77, L184(1978).
12. J. L. Hock, J. H. Craig, Jr. and D. Lichtman, Surf. Sci., 87, 31(1979).
13. S. Sayyid and E. M. Williams, Surf. Sci., 62, 431(1977).
14. T. E. Madey and J. T. Yates, Jr., Surf. Sci., 63, 203 (1977).
15. T. E. Madey, J. T. Yates, Jr., D. A. King and C. J. Uhlener, J. Chem. Phys., 52, 5215(1970).
16. T. E. Madey, J. Czyzewski and J. T. Yates, Jr., Surf. Sci., 49, 465(1975).
17. P. Sigmund, Phys. Rev., 184, 383(1969).
18. H. F. Winters and P. Sigmund, J. Appl. Phys., 45, 4760 (1974).
19. E. Taglauer, W. Heiland and U. Beitat, Surf. Sci., 89, 710(1979).
20. E. Taglauer, G. Marin, W. Heiland and U. Beitat, Surf. Sci., 63, 507(1977).
21. E. Taglauer, U. Beitat, G. Marin and W. Heiland, J. Nucl. Mater., 63, 193(1976).



TABLE OF ESD DATA (Table 1)

Substrate (Temp.)	Adsorbate (state)	Electron Beam E(eV) I(A)	Technique <sup>1)</sup>	Cross Section(cm <sup>2</sup> , 2) Species Q <sup>+</sup> Q <sup>T</sup>	Remarks	Ref.
W polycrystal (20K)	H <sub>2</sub> (1) H <sub>2</sub> (2) H <sub>2</sub> *	80- 100	FEM	3.5x10 <sup>-20</sup> 5x10 <sup>-21</sup> 7.3x10 <sup>-21</sup>	All Q <sup>T</sup> 's are temperature independent (20K, 150K), but dependent on E. H <sub>2</sub> *; partially covered.	64Me01
W(100)	H <sub>2</sub> (β <sub>1</sub> )	90 1.3x10 <sup>-3</sup>	FD	1x10 <sup>-21</sup>		69Ta01
W polycrystal (430K)		150	MS	3x10 <sup>-17</sup> 5x10 <sup>-20</sup>		70K102
W polycrystal	H <sub>2</sub> (1)	300	MS	3x10 <sup>-23</sup>	E(H <sup>+</sup> ) peak=1.7eV, ΔE(H <sup>+</sup> )=1.7eV	70N101
W polycrystal (~300K)	H <sub>2</sub> (1)	100	cylindrical magnetic spectrometer	3x10 <sup>-23</sup> 10 <sup>-17</sup>		70N102
W polycrystal	H <sub>2</sub>	300 (10 <sup>-6</sup> A/cm <sup>2</sup> )	MS		ψ = 20° relative to surface plane. H <sup>+</sup> yield depends on H <sub>2</sub> exposure.	72Be02
W polycrystal	H <sub>2</sub> , D <sub>2</sub> (β <sub>2</sub> ) (α)	100 10 <sup>-6</sup> - 4x10 <sup>-3</sup>	MS	6x10 <sup>-23</sup> ~5x10 <sup>-19</sup> 8x10 <sup>-20</sup>	Q <sup>+</sup> (H <sup>+</sup> )/Q <sup>+</sup> (D <sup>+</sup> )=154 Q <sup>+</sup> (H <sup>+</sup> )/Q <sup>+</sup> (D <sup>+</sup> )=5.7	73Je01, 73Je02
W (110) (280K)	H <sub>2</sub> , D <sub>2</sub> (β <sub>2</sub> )			1.2x10 <sup>-16</sup> ~5x10 <sup>-22</sup> ~1.4x10 <sup>-18</sup>	Q(H <sub>2</sub> )/Q(D <sub>2</sub> )=1 x refers to the state of H <sub>2</sub> on preadsorbed CO.	73K102

1) FEM; Field Emission Microscope, FD; Flash Desorption, MS; Mass Spectrometer, ESDIAD; Electron Stimulated Desorption Ion

Angular Distribution, LEED, Low Energy Electron Diffraction, T.O. F.; Time of Flight.

2) Q<sup>+</sup>; Ionic Cross Section, Q<sup>T</sup>; Total Cross Section.

TABLE OF ESD DATA (Table 1 continued)

Substrate (Temp.)	Adsorbate (state)	Electron Beam E (eV)	I (A)	Technique <sup>1)</sup>	Cross Section (cm <sup>2</sup> ) <sup>2)</sup>		Remarks	Ref.
					Species	Q <sup>+</sup> / Q <sup>T</sup>		
W(100) (100K, 400K)	H <sub>2</sub> (β <sub>2</sub> , β <sub>1</sub> )	175- 190	10 <sup>-7</sup>	ESDIAD			Single spot pattern. In β <sub>2</sub> state, H atoms directly above W atoms.	75Ma08
W(100) (260K)	H <sub>2</sub> (θ < 0.25) (θ = 1)	120		ESD, FD, LEED	H <sup>+</sup> H <sup>+</sup>	1.5x10 <sup>-19</sup> < 10 <sup>-26</sup>	Qualitative agreement in H <sub>2</sub> exposure dependence between H <sup>+</sup> yield and c(2x2) intensity.	77Ja01
W(100), W(110)	H <sub>2</sub>	16-90		T.O.F.	H <sup>+</sup>		E(H <sup>+</sup> ) peak = 2eV, E <sub>c</sub> (H <sup>+</sup> ) = 16.5 eV. H <sup>+</sup> yield varies with E <sub>e</sub> .	77Sa03
W(100), W(110), H <sub>2</sub> W(111) (300K)				Theoretical	H <sup>+</sup>		Calculation of E(H <sup>+</sup> ) spectra.	78Ja02
W polycrystal (300K)	H <sub>2</sub> (β <sub>2</sub> )	1000	1-5x10 <sup>-6</sup>	MS	H <sup>-</sup>	6.3x10 <sup>-19</sup>	Variation of H <sup>-</sup> yield with H <sub>2</sub> exposure is similar to that for H <sup>+</sup> in H <sub>2</sub> -W polycrystal or W(100)	79Ho02

1) FEM; Field Emission Microscope, FD; Flash Desorption, MS; Mass Spectrometer, ESDIAD; Electron Stimulated Desorption Ion Angular Distribution, LEED, Low Energy Electron Diffraction, T.O. F.; Time of Flight.  
2) Q<sup>+</sup>; Ionic Cross Section, Q<sup>T</sup>; Total Cross Section.

## Reference (Table 1)

- 72Be02 A. Benninghoven, E. Leobach and N. Treiz, *J. Vac. Sci. Technol.*, 9, 600 (1972).  
 79Ho02 J. L. Hock, J. H. Craig, Jr. and D. Lichtman, *Surf. Sci.*, 85, L218 (1979).  
 77Ja01 R. Jaeger and D. Menzel, *Surf. Sci.*, 63, 232 (1977).  
 78Ja02 R. Janow and N. Tzoar, *Surf. Sci.*, 75, L766 (1978).  
 73Je01 W. Jelend and D. Menzel, *Chem. Phys. Lett.*, 21, 178 (1973).  
 73Je02 W. Jelend and D. Menzel, *Surf. Sci.*, 40, 295 (1973).  
 73Ki02 D. A. King and D. Menzel, *Surf. Sci.*, 40, 399 (1973).  
 70Kl02 A. Klopfer, *Vakuumtechnik*, 19, 167 (1970).  
 75Ma08 T. E. Madey, J. Czyzewski and J. T. Yates, Jr., *surf. Sci.*, 49, 465 (1975).  
 64Me01 D. Menzel and D. Gomer, *J. Chem. Phys.*, 41, 3311 (1964).  
 70Ni01 M. Nishizima and F. M. Propst, *Phys. Rev.*, B2, 2368 (1970).  
 70Ni02 M. Nishizima and F. M. Propst, *J. Vac. Sci. Technol.*, 7, 420 (1970).  
 77Sa03 S. Sayyid and E. M. Williams, *Surf. Sci.*, 62, 431 (1977).  
 69Ta01 P. W. Tamm and L. D. Schmidt, *J. Chem. Phys.*, 51, 5352 (1969).

TABLE OF IID DATA (Table 2)

Substrate (Temp.)	Adsorbate	Ion	Ion Beam E (eV)	$\psi$ (°)	Technique <sup>1)</sup>	Cross Section $\sigma_0$ (cm <sup>2</sup> )	Remarks	Ref.
Mo polycrystal (300 K)	residual gas	D <sup>+</sup>	5000- 35000	—	MS	—	H <sub>2</sub> , CO and CO <sub>2</sub> are released.	74Mc01
Stainless steel (300 K)	residual gas (after baking at 70°C) residual gas (unbaked)	D <sup>+</sup>	5000- 35000	—	MS	$\sim 2 \times 10^{-17}$ (for H <sub>2</sub> ) $> 10^{-16}$ (for H <sub>2</sub> )	$\sigma_0$ increases with E <sub>i</sub> .	
Stainless steel (77 K)	CO <sub>2</sub>	D <sup>+</sup>	5600	—	MS	—	Initial yield of CO produced by dissociation of CO <sub>2</sub> is $\sim 10$ molec.ion <sup>-1</sup> . Desorption efficiency of H <sub>2</sub> O increases with E <sub>i</sub> .	
W polycrystal	N <sub>2</sub> (N atom)	He <sup>+</sup> , Ne <sup>+</sup> , Ar <sup>+</sup> , Kr <sup>+</sup> , Xe <sup>+</sup>	0-500	—	MS	—	Sputtering yield increases with E <sub>i</sub> . Mechanism is considered theoretically.	74W102
Ni(110)	S	He <sup>+</sup> , Ne <sup>+</sup> , Ar <sup>+</sup>	100-1600, 30°	—	ISS	$10^{-16} - 10^{-14}$	$\sigma_0$ increases with ion mass and E <sub>i</sub> .	76Ta01
Ni(111), Ni(110)	S	Ne <sup>+</sup>	—	—	—	—	$\sigma_0$ for Ni(111) is higher than for Ni(110). For S on Ni(111), $\sigma_0$ max is obtained at $\psi = 30^\circ$ .	
Ni(110)	O	He <sup>+</sup>	—	—	—	$\sim 10^{-16}$	—	
Ni(110)	O <sub>2</sub> (O atom)	He <sup>+</sup>	1200	—	ISS	$6 \times 10^{-17}$	—	77Ta03
Ni(110)	O <sub>2</sub>	<sup>3</sup> He <sup>+</sup> <sup>20</sup> Ne <sup>+</sup>	100-2000 100-2000	30° 30°	ISS ISS	$\sim 5 \times 10^{-17}$ $\sim 5 \times 10^{-16}$	$\sigma_0$ increases with E <sub>i</sub> . $\sigma_0$ increases with E <sub>i</sub> .	77Ta04

1) ISS; Ion Scattering Spectroscopy, IPP; Ion Produced Photons, SIMS; Secondary Ion Mass Spectroscopy, MS; Mass Spectrometry,  
2)  $\psi$ ; Incidence angle relative to surface.

TABLE OF IID DATA (Table 2 continued)

Substrate (Temp.)	Adsorbate	Ion	Ion Beam E (eV)	$\psi$ 2)	Technique 1)	Cross Section $\sigma_b$ (cm <sup>2</sup> )	Remarks	Ref.
Ni polycrystal	CO ( $\theta=0.5$ )	He <sup>+</sup>	2000	45°	ISS, IPP, SIMS	2.6x10 <sup>-15</sup>	Recoil implantation of adsorbed atoms may occur when surface coverage is high.	78Mc02
		Ne <sup>+</sup>				7.7x10 <sup>-15</sup>		
		Ar <sup>+</sup>				1.8x10 <sup>-14</sup>		
Mo polycrystal	O <sub>2</sub>	H <sup>+</sup>	20000	30°, 75°	Scanning monochrometer		Sputtering yields of O <sub>2</sub> are 0.0029 and 0.0012 atoms/ion at $\psi=30^\circ$ and $\psi=75^\circ$ , respectively.	78Ra01
W(100)	H <sub>2</sub>	<sup>3</sup> He <sup>+</sup>	500-2000	30°	ISS, AES	3x10 <sup>-16</sup>	$\sigma_b$ increases with E <sub>i</sub> .	78Ta06
		<sup>4</sup> He <sup>+</sup>				1.2x10 <sup>-15</sup>		
Ti, Ta, W, Ni, Cu, Pt, Pd polycrystal	O <sub>2</sub> ( $\theta=1$ ), CO ( $\theta=1$ )	<sup>4</sup> He <sup>+</sup>	500	60°	ISS	$\sim 10^{-16}$	$\sigma_b$ increases linearly with 1/E <sub>B</sub> .	79Ta07
		He <sup>+</sup>	1000	0°-90°	ISS	$\sim 10^{-16}$	$\psi=25^\circ$ gives $\sigma_b$ max.	80On01

1) ISS; Ion Scattering Spectroscopy, IPP; Ion Produced Photons, SIMS; Secondary Ion Mass Spectroscopy, MS; Mass Spectrometry, 2)  $\psi$ ; Incidence angle relative to surface.

## Reference (Table 2)

- 74Mc01 G. M. McCracken, Vacuum, 24, 463(1974).
- 78Mc02 R. J. McDonald, E. Taglauer and W. Heiland, Appl. Phys. Lett., 33, 576(1978).
- 80On01 J. Onsgaards, W. Heiland and E. Taglauer, Surf. Sci., 99, 112(1980).
- 78Ra01 E. O. Rausch and E. W. Thomas, Nucl. Instr. Meth., 149, 511(1978)
- 76Ta01 E. Taglauer, U. Beitatz, G. Marin and W. Heiland, J. Nucl. Mater., 63, 193(1976).
- 77Ta03 E. Taglauer and W. Heiland, Appl. Phys., 13, 47(1977).
- 77Ta04 E. Taglauer, G. Marin, W. Heiland and U. Beitatz, Surf. Sci., 63, 507(1977).
- 78Ta06 E. Taglauer and W. Heiland, J. Nucl. Mater., 76-77, 328 (1978).
- 79Ta07 E. Taglauer, W. Heiland and U. Beitatz, Surf. Sci., 89, 710(1979).
- 74Wi02 H. F. Winters and P. Sigmund, J. Appl. Phys., 45, 4760 (1974).

## II - 7 固体表面でのH粒子の化学反応\*

原研 西 堂 雅 博

核融合炉の炉心プラズマに直接さらされる第一壁では、プラズマ壁相互作用 (PWI) と総称される種々の過程が発生し、プラズマ中への不純物混入や第一壁の損耗を引き起す。プラズマを構成する水素、あるいは水素の同位体は、化学的に活性な粒子であるため、固体表面でのH粒子の化学反応は、PWI過程において重要な役割を演じている。例えば、プラズマ容器の清浄化に水素の放電が利用されるが、これは化学的に活性なH粒子と金属表面に吸着した炭素、酸素などとの間の化学反応によって、プラズマ容器から排出し易い揮発性メタンや水が生成されることを利用している (例えば(1), (13))。また、プラズマ試験装置の大型化や放電持続時間の長時間化に伴って、放射損失が小さく、プラズマ不純物としての許容量を大きく取ることができる低原子番号材料の第一壁への応用が検討されているが、候補に挙げられている低原子番号材料は、主に炭素やその化合物などである。従って、高速のH粒子がこれらの材料を衝撃した時に誘起するH粒子との間の化学反応過程は、重要な研究課題である。

最近、McCracken と Stott が「トカマクにおけるプラズマ壁相互作用」という題の総説を書き、1978年までの文献を集録している。そして、軽元素不純物混入過程の1つとして、固体表面でのH粒子の化学反応について論じている(1)。従って、上述の文献およびその中に集録されている文献には、\*印をつけ、集録されていない文献と区別することとする。

H粒子との化学反応過程が最も詳細に研究されているのは、炭素材料である。水素と炭素の系では、化学反応によりメタンが生成されるが、以下の事柄が明らかにされている。

- (1) メタン生成に寄与する水素は $H_2$ 分子ではなく、解離したH原子である (2, 3, 4)。
- (2) メタン生成は、炭素材料の内部ではなく表面で起る (9, 12)。
- (3) メタン生成率は、特長的な温度依存性を示し、 $500^\circ C \sim 600^\circ C$ 付近で最大となる (6~9, 11~15, 17)。
- (4) 打ち込まれたH原子の100%が捕捉される高エネルギー $H^+$ イオン照射の場合、熱エネルギーのH原子を照射した場合に比べて、メタン生成率が約2桁程度大きい (7)。
- (5) メタン生成率は、特長的なエネルギー依存性を示し、1 keV付近で最大となる (20)。
- (6) メタン生成率は、 $H^+$ イオン照射の初期には材料依存性 (履歴依存性) を示すが、平衡に達すると材料依存性は小さくなる (20)。

以上の事柄に加えて、最近、H原子を炭素材料に照射しながら電子 (18)、あるいは $H^+$ イオン (21) を同時に照射する実験が試みられ、メタン生成機構のより詳細な知見が得られている。

炭素の化合物に関しては、最近、精力的に研究されてきているが、 $B_4C$ 、 $SiC$ でメタン生成率に特長的な温度依存性の存在が報告 (6) される一方、 $SiC$ 、 $TiC$ での重量測定によるスパッタリング収率には、温度に対して余り違いがみられないなどの報告 (19, 22) があり、確実なことはまだ言い切れない状況にある。化合物の場合に特長的な現象として、表面における組成が、

\* Chemical Reactions of H Particles at Solid Surface.

H<sup>+</sup>イオンの照射によって変化することが挙げられる(16, 22)。化合物表面でのH粒子の化学反応は、表面組成に密接に関係すると考えられるので、表面組成の変化量を変数に取った、より緻密な研究が今後要求される。

#### 参考文献

\*印の付した文献は、文献(1)に集録されている。

- (1) G. M. McCracken and P. E. Stott, Nucl. Fusion 19 (1979) 889
- \* (2) B. J. Wood and H. Wise, J. Phys. Chem. 73 (1969) 1348
- \* (3) R. K. Gould, J. Chem. Phys. 63 (1975) 1825
- \* (4) M. Balooch and D. R. Olander, J. Chem. Phys. 63 (1975) 4772
- \* (5) J. Burt, G. M. McCracken and P. E. Stott, in Plasma-Wall Interactions (Proc. Int. Symp. Julich, 1976), Pergamon Press, Oxford (1977) p.457
- \* (6) C. M. Braganza, G. M. McCracken and S. K. Erents, *ibid.* p.257
- \* (7) J. Roth, J. Bohdansky, W. Poschenrieder and M. K. Sinha, J. Nucl. Mat. 63 (1976) 222
- \* (8) N. P. Busharov, E. A. Gorbatov, V. M. Gusev, M. I. Guseva and Yu. V. Martynenko, *ibid.*, 63 (1976) 230
- \* (9) S. K. Erents, C. M. Braganza and G. M. McCracken, *ibid.*, 63 (1976) 399
- \* (10) R. B. Wright, R. Varma and D. M. Gruen, *ibid.*, 63 (1976) 415
- \* (11) B. Feinberg and R. S. Post, J. Vac. Sci. Technol. 13 (1976) 443
- \* (12) C. M. Braganza, S. K. Erents and G. M. McCracken, J. Nucl. Mat. 75 (1978) 220
- \* (13) R. J. Taylor, *ibid.*, 76 & 77 (1978) 41
- \* (14) J. N. Smith Jr. and C. H. Meyer Jr., *ibid.*, 76 & 77 (1978) 193
- (15) K. Sone, H. Ohtsuka, T. Abe, R. Yamada, K. Obara, O. Tsukakoshi, T. Narusawa, T. Satake, M. Mizuno and S. Komiya, in Plasma-Wall Interactions (Proc. Int. Symp. Julich, 1976), Pergamon Press, Oxford, 1977, p.323



- (16) T. Yamashina, M. Mohri, K. Watanabe, H. Doi and K. Hayakawa,  
J. Nucl. Mat. 76 & 77 (1978) 202
- (17) T. Abe, K. Obara and Y. Murakami, *ibid.*, 91 (1980) 223
- (18) C. I. H. Ashby and R. R. Rye, *ibid.*, 92 (1980) 141
- (19) F. Brossa, J. Bohdansky, J. Roth and A. P. Martinelli, *ibid.*,  
93 & 94 (1980) 474
- (20) R. Yamada, K. Nakamura, K. Sone and M. Saidoh, *ibid.*, 95 (1980)  
278
- (21) R. Yamada, K. Nakamura and M. Saidoh, *ibid.*, (1981) in press.
- (22) K. Sone, M. Saidoh, K. Nakamura, R. Yamada, Y. Murakami, T. Shikama,  
M. Fukutomi, M. Kitajima and M. Okada, *ibid.*, (1981) in press.

## II - 8 イオン及び電子衝撃による2次電子放出\*

原研 大野 新一

高エネルギーの粒子（イオン，原子，分子など）や電子の衝撃を受けた固体表面から放出される二次電子の研究は古く（前世紀末）から研究されている。

研究目的としては，(i)真空放電機構の解明，(ii)粒子線検出器の開発，とくに質量分析計におけるイオン検知器，原子衝突実験におけるビーム強度の測定や高速時間分解測定など。さらに近年では，(iii)固体表面の電子状態の研究や，(iv)核融合技術との関連があげられる。

報告されている実験データは，(i)入射粒子あたりの放出電子数  $\gamma$ ，(ii)放出電子のエネルギー・スペクトルおよび角度分布，(iii)入射粒子のエネルギー，電荷，角度依存性に分類される。

## 1. イオン衝撃に伴う二次電子

電子衝撃が起こるためには，固体内における電子の結合が解放され，運動エネルギーが付与されなければならない。このエネルギーの供給源として，次の2つが区別される。

入射イオン中和のさいの放出エネルギー：potential electron emission (PEE)

入射イオンの運動エネルギー：kinetic electron emission (KEE)

## i) PEE

入射イオンが固体表面で中和されるさいに放出されるポテンシャルエネルギー  $E_i$  が固体の仕事関数  $\phi$  の2倍よりも大きいときに起こる。この現象の解釈については，Oliphantのクーロン場説（1930）以来，多くの考え方が提案されたが，本質的に正しい考え方は入射イオンと固体を1つの電子系としてみるもので，ShekhterのAuger機構（1937）がそれである。

Hagstrum（1954）は，実験・理論の両面からPEEを徹底的に研究した。これにより，この問題の本質は解かれたと考えられる。なお， $\gamma$ 値を表わす半経験式がKishinevski（1973）によって提出された：（Fig. 1参照）

$$\gamma = 0.2(0.8E_i - 2\phi) / E_{\text{fermi}}$$

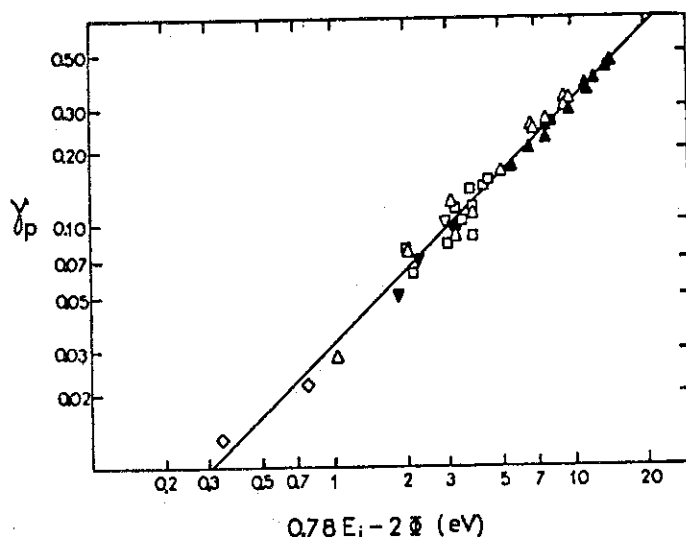


Fig. 1. PEE yields  $\gamma_p$  versus  $0.78E_i - 2\phi$ ; ( $\Delta$ ,  $\triangle$ ) Arifov [6] for  $\text{Ne}^+$  and  $\text{Ar}^+$  ions respectively; ( $\bullet$ ,  $\nabla$ ,  $\triangledown$ ,  $\circ$ ,  $\otimes$ ) Hagstrum [7] for  $\text{He}^+$ ,  $\text{Ne}^+$ ,  $\text{Ar}^+$ ,  $\text{Kr}^+$  and  $\text{Xe}^+$  ions respectively; ( $\square$ ) Oechsner [9] for  $\text{Ar}^+$  ions. The line is a least-square fit.

\* Secondary Electron Emission by Ionic and Electronic Bombardment.

## ii) KEE

入射イオンのエネルギーが1 keV以上になると、PEEだけでなくKEEも加わる。これまでに知られた主な特徴は、固体の表面状態によって $r$ が大きく変動する(場合によっては10倍)、入射粒子のエネルギーないしは速度に対して $r$ が直線的に増加する場合が多い、 $Z_1$ (入射粒子の原子番号)および $Z_2$ (標的の原子番号)依存性がある、入射粒子の電荷依存性はあまりない、分子イオン効果もあまりなさそうであるなどである。

理論的な解釈もしくは計算結果に関しても報告がなされている。いずれも、①固体内部(表面からの深さ $x$ の地点)における二次電子発生数の算出、② $x$ から固体表面への電子の輸送、③固体表面からの電子の脱出の3つのプロセスから構成される。各プロセスにどのようなモデルを採用するかにより種々の組み合わせが可能となる。

たとえば、Sternglass(1957)の提出した $r$ は、

$$r = \int_0^{\infty} \frac{S_i}{2E_0} \cdot P \cdot k(v_i, x) \exp\left(-\frac{x}{L}\right) dx$$

である。 $S_i$ は電子励起の阻止能、 $\overline{E_0}$ は入射イオンによる電子生成の平均エネルギー損失、その中でもsoft collisionによる電子は除外してhard collisionによる電子だけが効くとして、因子 $\frac{1}{2}$ を用いる。 $k(v_i, x)$ は $\delta$ 線による電子生成に対する補正。結局、

$$n(v_i, x) = \frac{1}{E_0} \times \frac{1}{2} S_i k(v_i, x)$$

が速度 $v_i$ のイオン入射により表面からの深さ $x$ における発生電子数を表わす。 $L$ は電子輸送に対する平均自由行路、 $P$ が表面における電子脱出の確率でSternglassは0.5ととった。

また、Parilis, Kishinevski(1960, 1962)らは電子発生の機構として、Firsov理論に基づく電子・空孔対の形成(それに続くAuger decay)によるものと考えた。また、Harrison(1965)は、放出される電子はすべて固体表面に衝突するprojectileから来ると考えた。

## 2. 電子衝撃に伴う二次電子

電子衝撃中の固体表面から放出される電子のエネルギー分布を分析すると、①入射電子の反射、②固体表面でのエネルギー損失を伴う反射、③オージェ電子、④真の二次電子(通常50 eV以下)などが区別される。エネルギー分析や角度依存性の測定はMarton(1954), Harrower(1954)らによってなされた。固体中における電子のエネルギー損失機構に関しては、Bohm, Pines(1953)らの主張するplasma励起説とBand-to-band励起説が対立している。また収量 $r$ に関しては、Kadyshevich(1940)以降、universal yield curveの提出が試みられている。

## 3. まとめ

金属試料に比較的低エネルギー(< 1 keV)のイオンが入射するさいの二次電子については、そのメカニズムが理解され、収量を表わす半経験式が使える。金属以外の試料についての適用性の検討が残されている。

入射エネルギーが大きい(> 1 keV)ときの電子放出、いわゆるKEEについても'きれいな'

金属表面のデータが報告されている。しかしながら、高速イオンによる固体中の電子発生のメカニズム自体が明確に理解されていないため、報告されたデータの整理がなされないままになっている。電子励起のメカニズムを除けば、イオンによるKEEと電子衝撃に伴う二次電子放出とは共通の理論ないしモデルで取扱うことができる。さらに放出電子の角度依存性、エネルギースペクトルについての多くは、今後の研究を待たなければならない。

#### 4. 文献

Reviewを3つだけあげておく。最近では、年間10件程度の報告がPhys. Rev., Surface Sci., Radiat. Effects, J. Appl. Phys., J. Phys. D誌などに掲載されている。

- U.A. Arifov, 'Interaction of Atomic Particles with a Solid Surface', Consultant Bureau N.Y. (1969).
- G. Carter, 'Ion Bombardment of Solids', Heinemann, London (1968).
- R.A. Baragiola, et al., 'Ion-induced Electron Emission from Clean Metals', Surface Sci., 90, 240-255 (1979).

### III - 1 壁材料としての耐熱物質\* (e.g. V, Nb, Ta, Mo, W and alloys)

京大炉 中 川 益 夫

トカマク型核融合炉の第一壁材料の撰択には、概念設計上ではあるが一定の歴史的変遷がみられる。1960年代ではMoが、70年代前半ではNbないしTZM, SUS 316, PE-16, Mo合金など、又、後半ではTi合金の検討からはじまって、SUS 316などオーステナイト系ないしはフェライト系におちついてきた様子である。問題は、ステンレス鋼の場合、ポイドをどう避けるかが大きな課題として残されていると言われている。

ところで、上記の撰択には技術的問題のほか経済性が成立する条件を大きく加味している。つまり、経済性を成り立たせる壁負荷に耐える材料であることが、撰択の大きな決め手となっている。筆者は、核融合開発研究はもっと時間/経費のかかる長期戦であるとの考えに立って、今しばらく「経済性」のファクターを抜いて、純材料工学的見地からもう一度、第一壁材料を見直してみたいと思う。そうすると、高融点金属のうちでも、V, Ta, Wなどは従来、最終候補からはずされてきていたが、<sup>1,2)</sup> NbやMoと共にTaなどもそれなりの魅力をもって相対的に浮かび上がってくるようになる。

以下、主要項目について大略ながら概観してゆきたい。

#### 1) 物理・熱的性質 (Physical and thermal properties)

まず、Table 1から<sup>2)</sup> 五族・六族の高融点金属六種類を基礎的な物理常数についてステンレス

Table 1. Comparative Properties of the Refractory Metals and Their Alloys

	Group V			Group VI			Stainless Steel	Desired Value	
	V	Nb	Ta	Cr	Mo	W			
P	Melting Temperature, °C	1890	2468	2996	1875	2610	3410	1550	High
U	Density (25°C), g/cm <sup>3</sup>	6.1	8.6	16.6	7.2	10.2	19.3	8.0	Low
R	Thermal Expansion (600°C) μcm/cm/°C	9.6	8.3	6.7	8.3	5.8	4.6	21	Low
M	Thermal Conductivity (600°C) cal/cm <sup>2</sup> /sec/°C/cm	0.09	0.15	0.16	0.16	0.28	0.30	0.05	High
E	Specific Heat (20°C), cal/g/°C	0.119	0.065	0.036	0.11	0.061	0.032	0.14	High
T	Young's Modulus (25°C), GPa	130	97	185	290	325	400	140	High
A	(Approx.) Recrystallization Temperature, °C	900	1150	1350	900	1200	1500	650	High
L	Mechanical Properties (0-1000°C) ● Tensile/Creep Strength ● Fatigue Strength ● DBTT (bending)	High Good <0°C	V.High Good <0°C	V.High Good <0°C	High -- >>0°C	V.High Good 30°C	V.High Good? >>0°C	(0-600°C) High Good --	High High Low
	Chemical Properties ● Liq. Metal Compatibility ● Gas-Mtl. Interactions	Good Poor	Good Poor	Good Poor	-- Fair	V.Good Fair	V.Good Fair	Fair Good	Good Good
O	Fabricability ● Forming ● Joining (welding)	Good Good	Good Good	Good Good	Poor Poor	Diff. Diff.	Poor V.Poor	Good Good	Good Good
	Domestic Availability	High	V.Low	V.Low	V.Low	V.High	High	High	High
S	Cost (Sheet)	All are high: ~\$50/kg (Mo) to >\$200/kg (others)						Low	Low
	Nuclear Properties	Widely variable; not likely to dominate selection.						--	--

\* Refractory Materials for the First Wall (e.g. V, Nb, Ta, Mo, W and alloys).

鋼との比較を行なうと、Nb, Ta, Moで常温附近での比熱の値が相対的に小さいことおよび密度がTa, Mo, Wで大きいこと以外は、おおむねすぐれた特性を有していると言える。

II) 核的性質 (Radiation damage response)

Fig. 1にUWMAX-1(トカマク)炉で壁負荷  $1.25 \text{ MW/m}^2$ , 2年運転後の各種材料の放射能減衰が示されている<sup>3)</sup>。図から、Vは減衰が早く、次いでCr, MoとなるがステンレスはFig. 2と合わせ考えると<sup>4)</sup>、Moと同様4桁以下になるのに約1000年の期間を要する。図にはないが、Ta, Wとも吸収断面積がFeの10倍近く大きい上、半減期もTaで115d, Wで73dの共にr崩壊があ

って、その他の壊変も含めると有利とは言えず、大抵このへんでVやMo, Nbなどより実用のランクが下がる。しかし、こうした核的な性質の弱点も例えば、外ばり等でカバー出来ないことはないとも考えられる。

Fig. 3に、炉停止後の崩壊熱の炉型材料毎の比較を行なったものをおかけた。<sup>5)</sup>

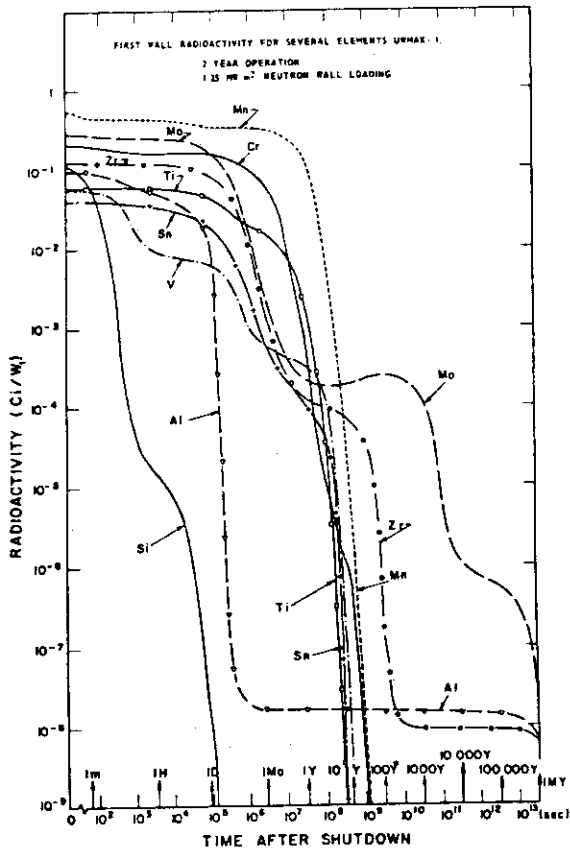


Fig. 1 Radioactivity of fusion reactor first wall/blanket structural materials

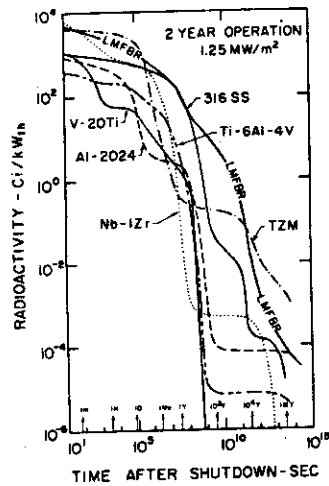


Fig. 2 Radioactivity in CTR Blankets After Shutdown Following Two Years of Operation

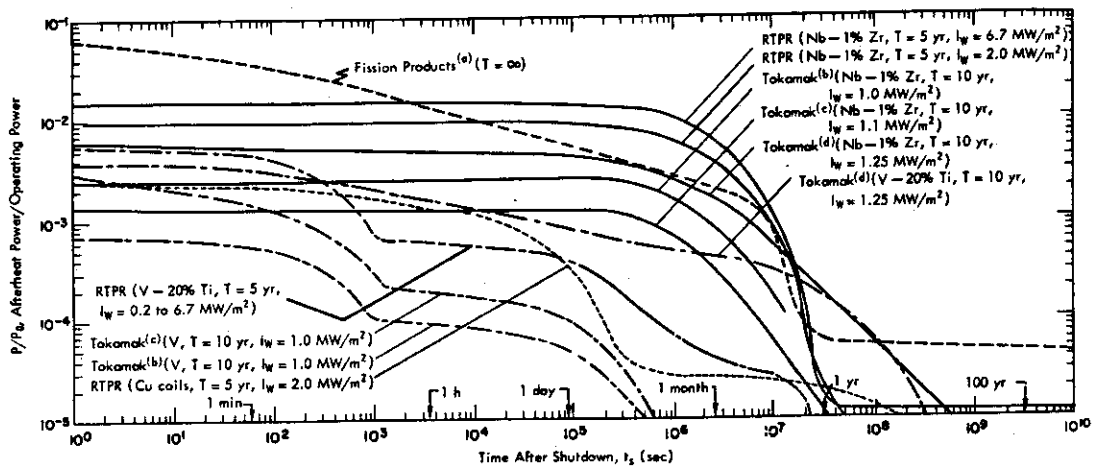


Fig. 3 Comparison of nuclear afterheat,  $P/P_0$ , for the RTPR (Nb-1% Zr and V-20% Ti,  $I_w = 2.0$  and  $6.7 \text{ MW/m}^2$ ,  $T = 5 \text{ yr}$ ) with other fusion reactors and fission reactors: (a) Ref. 35, (b) Ref. 9, (c) Ref. 10, and (d) Ref. 12.

さて、核的性質で主要な問題となってくるのは、第一壁材料の核変換と材料中での水素及びヘリウムガスの生成の問題である。Table 2 には Nb, V, SUS 316 の場合について、ブランケットモデルで計算した 1 年当たりの核種変換率が壁面負荷 1 MW/m<sup>2</sup> として示されている。<sup>6)</sup>

同様に Table 3 には、組成変化の観点から重要な生成元素について材料中での生成量と固溶限を比較したものが示されている。<sup>1)</sup> Ta, Cr, W の場合の計算は表中にはないが、同一モデルでの計算はやっておくだけの価値があるように思う。

Table 4 は Kulcinski<sup>1)</sup> が種々の材料についてまとめた水素、ヘリウム生成量の値で、核融合炉第一壁と比較のため、高速炉 EBR-II との対比が行なわれている。高融点金属の中では、V が最も大きく、次に Mo, Nb の順になっている。ここでも Ta, Cr, W の計算が望まれる。

ところで、Table 4 の示すところから、核融合炉と高速炉を比較した場合、最も顕著

なのは、核変換効果が核融合炉の場合 10 ~ 100 倍程度大きいことである。これに対し、はじき出し損傷形成率は、現在の設計条件では高速炉の方が核融合炉の 3 ~ 4 倍大きい。しかし、高速炉でもっとも苛酷な燃料被覆材は 1 ~ 2 年で交換されるのに対し、核融合炉の場合の構造材は、はるかに長期にわたり使われるので、寿命中の dpa 値は、ほぼ同程度になろう。このような点から、第一壁材料はラッパーなど高速炉炉心構造材に対比される。dpa に対してヘリウム生成量が大いことは、はじき出しと核変換が同時に関与する現象を既存の原子炉照射で模擬することを困難にし、又、寿命を 30 年と仮定するとき、生成率の少ない高融点金属でも、ヘリウム量は 600 ~ 2000 ppm にも達するが、このような高いレベルのヘリウムを含む材料の性質は、まだ殆んど調べられていない（この段落は、石野葉氏の議論<sup>7)</sup> から抜粋した）。

Table 2 1 MW/m<sup>2</sup>, 1 年当りの第一壁材料の核種変換率

Nb		V		SUS 316 ステンレス鋼*	
Mo	7.6×10 <sup>-5</sup>	Cr	1.1×10 <sup>-4</sup>	Mn	1.2×10 <sup>-3</sup>
Zr	1.3×10 <sup>-3</sup>	Ti	7.4×10 <sup>-5</sup>	V	1.8×10 <sup>-4</sup>
Y	6.9×10 <sup>-4</sup>	Sc	6.1×10 <sup>-7</sup>	Ti	4.5×10 <sup>-5</sup>
He	3.3×10 <sup>-4</sup>	He	7.2×10 <sup>-5</sup>	He	2.8×10 <sup>-4</sup>
H	8.9×10 <sup>-3</sup>	H	1.2×10 <sup>-4</sup>	H	6.4×10 <sup>-4</sup>
Nb	-1.4×10 <sup>-3</sup>	V	-1.8×10 <sup>-4</sup>	Cr	+2.4×10 <sup>-3</sup>
				Fe	-1.2×10 <sup>-3</sup>
				Ni	-1.8×10 <sup>-4</sup>

\* 推定値

Table 3 核融合炉第一壁材料の核変換

第一壁材料	主要生成元素	生成量 at%/年 (1 MW/m <sup>2</sup> 当り)	0.4 Tm <sup>*</sup> における 固溶限 (at%)
Al	Si	5×10 <sup>-4</sup>	0.06
	Mg	0.05	4
SUS 316 ステンレス鋼	Mn	0.15	60
	Ti	5.6×10 <sup>-3</sup>	3
	V	0.022	20
Nb	Zr	0.18	10
V	Cr	0.013	全率
	Ti	0.008	~70
Mo	Tc	0.12	~35

\* Tm: 融点 °K

Table 4 格子原子の移動およびガス生成の比較

Material	Fusion Reactor First Wall 1 MW/m <sup>2</sup>			First Fission Test Reactor-EBR-II (max)		
	dpa/yr	appm He/yr	appm H/y	dpa/yr	appm He/yr	appm H/yr
SAP <sup>a)</sup>	17	410	790	76	7.9	50
316SS <sup>b)</sup>	10	200	540	44	4.7	270
Nb	7	24	79	28	1	6.6
Mo	8	47	95	30	1.8	3.5
V	12	57	100	54	0.5	14
C	10	2700	Neg.	5	130	Neg.
Be <sup>c)</sup>	(d)	2800	130 <sup>e)</sup>	(d)	3300	Neg.

- a) SAP = Sintered Aluminum Product, 5-10% Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in Al
- b) SS- Stainless Steel
- c) ~Typical of 5 cm from first wall
- d) displacement cross-section not available
- e) Tritium

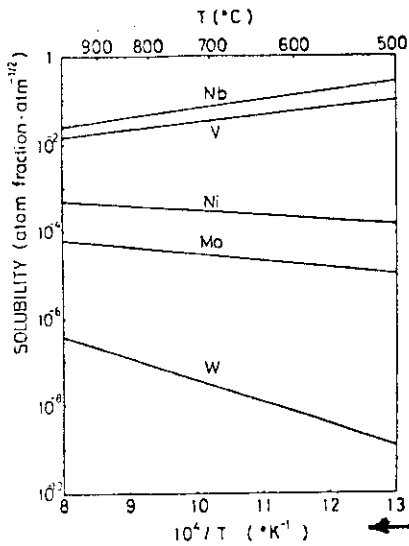


Fig. 4

高温における各金属中でのH, DおよびTの拡散定数 $D_i^0$ および活性化エネルギー $Q_d^i$ の実験値例

Table 5

$$D_i = D_i^0 \exp\left(\frac{-Q_d^i}{RT_i}\right)$$

	$D_H^0$	$D_T^0$	$D_D^0$	$Q_d^H$	$Q_d^D$	$Q_d^T$
	(10 <sup>3</sup> cm <sup>2</sup> /sec)			(kcal/g-atom)		
Ni (73)	7.04	5.27	4.32	9.43	9.24	9.10
V (85)	0.88	—	—	2.5	—	—
Nb (85)	1.1	—	—	3.4	—	—
Mo (85)	255	—	—	11.7	—	—
W (61)	41	—	—	9.0	—	—
304S.S.	576 (84)	—	1883	15.4 (84)	—	14.1 (83)

V, Nb, Mo 中へのO, N, Cの溶解度

Table 6

固溶元素	金属	溶解度 wt%	
		700 °C	1000 °C
O	V	1.500	1.998
	Nb	$2.709 \times 10^{-1}$	$4.302 \times 10^{-1}$
	Mo	$3.082 \times 10^{-3}$	$4.263 \times 10^{-3}$
N	V	$8.513 \times 10^{-1}$	1.727
	Nb	$2.117 \times 10^{-2}$	$3.482 \times 10^{-2}$
	Mo	$2.794 \times 10^{-5}$	$3.118 \times 10^{-4}$
C	V	$9.258 \times 10^{-2}$	$1.973 \times 10^{-1}$
	Nb	$8.277 \times 10^{-6}$	$5.963 \times 10^{-4}$
	Mo	$4.171 \times 10^{-7}$	$5.935 \times 10^{-5}$

Table 7  
Coolant/structural material compatibility.

WORKING FLUID/ COOLANT	MAXIMUM TEMPERATURE FOR COMPATIBILITY				
	STAINLESS STEEL	NICKEL BASE	V	Nb	Ti
LIQUID LITHIUM	500°C	450°C	800°C	1000°C	800°C
HELIUM	700°C	750°C	<350°C	<350°C	400°C
MOLTEN SALT	650°C	700°C	<300°C	<300°C	<300°C
H <sub>2</sub> O	~400°C	~450°C	<300°C	<300°C	<350°C(a)

(a) NO PERTINENT DATA; NUMBER CITED IS BASED ON SIMILARITY TO ZIRCALOY.

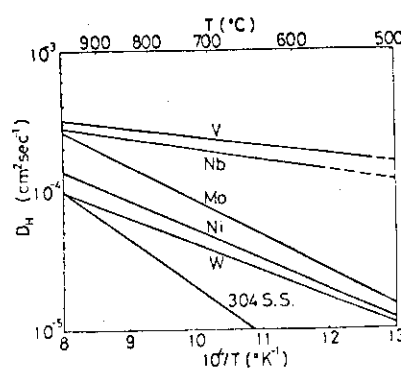


Fig. 5 各金属における水素の拡散係数の温度依存

各金属における水素溶解度の温度依存

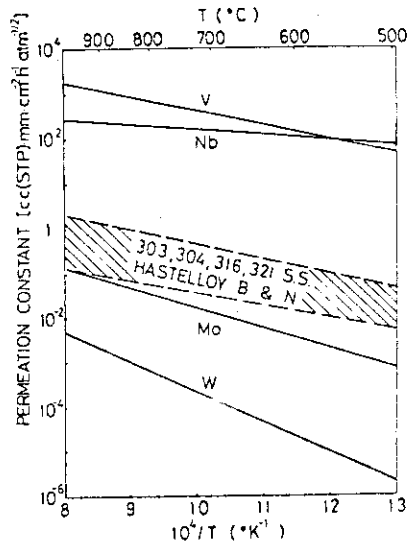


Fig. 6 各金属および合金における水素透過率の温度依存

### III) 化学的性質, 両立性 (Compatibility)

上記の議論と関連して、核融合炉第一壁材料の化学的性質も重要度の高い要素の一つである。以下に高融点金属のデータで目につくものを列挙するが、網羅しつくしていない点、あらかじめおことわりしておく。

まず、Fig. 4に各金属における水素溶解度の温度依存性を示した。<sup>8, 9)</sup>

次に、Fig. 5に各金属における水素の拡散係数の温度変化が示されている。<sup>8)</sup> これら曲線の勾配から拡散の活性化エネルギーが求まるが、高温における実験値例をTable 5に示してある。<sup>8)</sup>

Fig. 6に各金属および合金における水素透過率の温度依存性が示されている。<sup>8)</sup>

Table 6には水素以外のO, N, CのV, Nb, Mo中への溶解度をかかげた。<sup>10)</sup> (但し、表はRef. 8に掲載されているのを引用した)。

Table 7には、第一壁ではないが、冷却材/構造材としての高融点金属等のCompatibilityをかかげた。<sup>3)</sup>

以上から、両立性の点ではV, Nbは若干問題があるにしても、Mo, Wなどは総じてステンレスより良い特性を持っていると言えそうである。ここでもTaのデータの欠けているのが惜まれる。



N) 機械的性質 (Mechanical properties)

第一壁材料に要請される最重要要素の一つは、材料の機械的性質である。Table 8 に第一壁の厚みを 0.5, 1.0, 1.5 cm とした場合、Nb, Mo, V および SUS の板に生ずる温度差とそれによる熱応力値を算出した結果が示されている<sup>1)</sup>。熱源はプラズマからの制動放射等による表面熱流入として 4 W/cm<sup>2</sup>, 更に中性子と γ 線による発熱が考慮されている。また、許容応力値との比も参考までに同表に示されている。ここで許容応力としては、ASME code を参考として室温および使用温度での引張強さの 1/4, 室温の耐力の 1/2, または使用温度での耐力の 0.9 の値の最小値がとられている。温度差、熱応力とも SUS が大きく、1 MW/m<sup>2</sup> の壁面負荷では SUS 板を 1 cm 以上にすることは出来ないことになる。この点、高融点金属材料は、比較的有利であろう。

Fig. 7 は Thermal stress parameter M を横軸温度に対して描いたもので、<sup>4)</sup> M は次式で定義される。

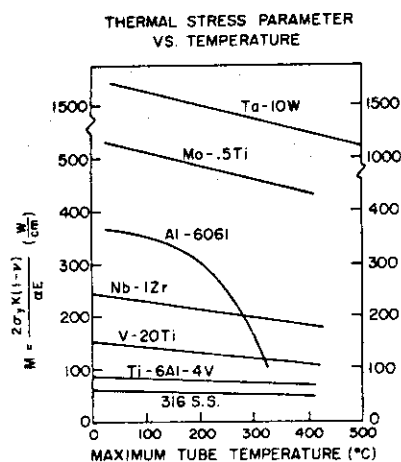
$$M = \frac{2 \sigma_y k (1 - \nu)}{\alpha E}$$

ここで  $\sigma_y$  は yield strength, k は thermal conductivity,  $\nu$  は Poisson 比,  $\alpha$  は熱膨脹係数, E は Young 率である。M の値が大きい程, thermal stress を軽減するのに有利である。SUS より, Mo, Ta 合金が格段にすぐれていることが図から明らかである。

Table 8, 温度差および熱応力の各材料の相異 (Wall loading: 1 MW/m<sup>2</sup>)

			Nb	Mo	V	SUS*
温度差 (第一壁) (°C)	ℓ=0.5 cm	第一壁	646	372	749	1498
	1.0 cm		1928	1081	2033	2640
	1.5 cm		3827	2119	3839	5537
熱応力 (第一壁) 600°C kg/mm <sup>2</sup>	ℓ=0.5 cm	第一壁	054(74)	046(130)	062(119)	325(33)
	1.0 cm		170(24)	140(43)	176(42)	650(16)
	1.5 cm		321(12)	281(21)	341(22)	1382(08)
熱応力 (第一壁) 1000°C kg/mm <sup>2</sup>	ℓ=0.5 cm	第一壁	060(35)	049(67)	073(29)	
	1.0 cm		188(11)	148(22)	208(10)	
	1.5 cm		355(06)	297(11)	403(05)	

- \* SUS の熱発生量は V の熱発生量で近似
- 熱応力の項のカッコ内の数値は許容応力との比



(\*M FOR Cu AT 20°C 727W/cm)  
Figure 7

次に、照射による降伏強さや引張強さの変化、更にスエリング (ボイドスエリング) や照射下クリープの問題などをとりあげなければならない。ところが、こういった照射による機械的性質の変化についてのデータが不可欠に重要であるが、それにもかかわらず、高速中性子フルエンスにして 10<sup>22</sup> n/cm<sup>2</sup> 以上におよぶ重照射効果については、スエリングや照射下クリープについて、SUS 316 のような限られた材料について、限られた条件下の工学的データがあるにすぎず、他の原子炉材料、特に高融点金属材料の重照射効果の工学的データを得ることは、全く今後の課題である。スエリングとクリープ以外の問題についても、材料という観点からはほとんど手がつけられていないのが現状のようである。

V) 表面 (Surface properties)

第一壁表面は真空壁をかねるが、ここが heat pulse をはじめ、ion や neutron の照射も受ける。種々のイオンの反射、捕獲、放出も行なわれ、sputtering や blistering の特性がきわめて重要な材料撰択の要素であると言わなければならない。

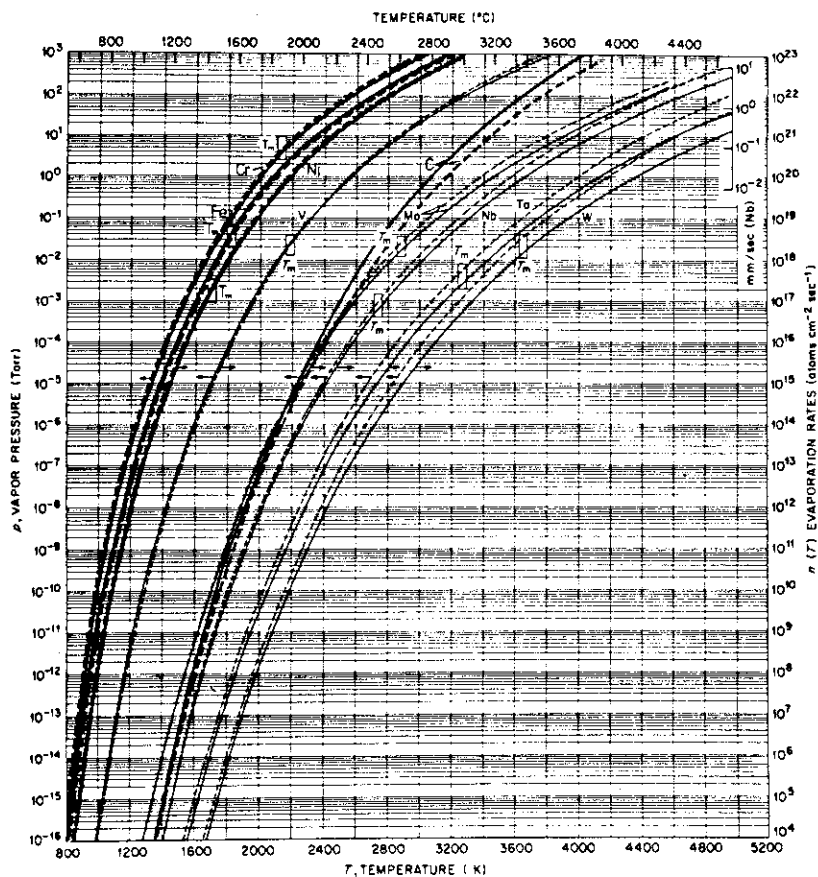


Fig. 8 Vapour pressure data and evaporation rates for different first wall materials as a function of the temperature [21-23].

Fig. 8は各種材料の蒸気圧を温度の関数として描いた曲線である。<sup>12-14)</sup> Mo, Nb, Ta, Wなどは格段にすぐれた特性をもつ。

Fig. 9-(a)は、 $R_n$  (number or particle reflection coefficient)を、-(b)は $R_e$  (energy reflection coefficient)を、W, Be, Mo及びFeの表面にDおよびTを入射した場合について求めたものである。<sup>15)</sup>

Fig.10には、 $H^+$ イオンの捕獲効率の照射量による変化が示されている。<sup>16)</sup> 図から、100℃で10 keVの $H^+$ イオンを照射したMoでは  $3 \times 10^{16}$   $H^+/cm^2$  程度の低い照射量で $H^+$ の捕獲は飽和に達している。Taでは  $10^{19}$  (域いはそれ以上) まで照射量による変化はない。

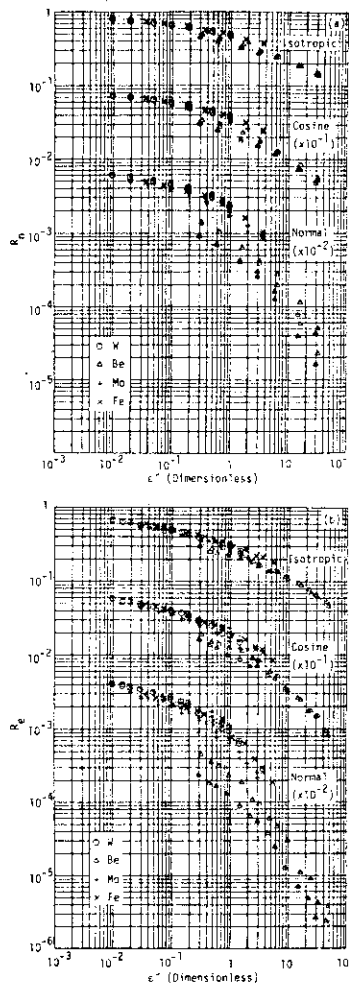


Fig. 9 Particle and energy reflection coefficients ( $R_n$  and  $R_e$ , respectively) as a function of the reduced energy  $\epsilon^*$  (see text) for all the calculated results shown in Fig. 1.

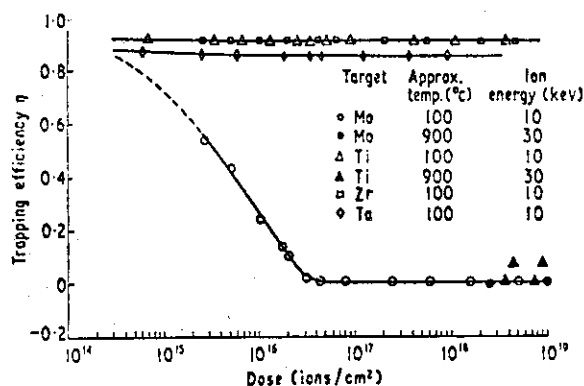


Fig.10  $H^+$ イオンの捕獲効率の照射量による変化

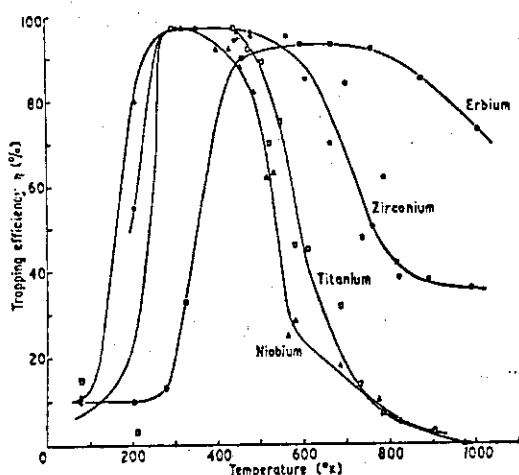


Fig. 11 18keVのD<sup>+</sup>イオン照射における捕獲効率(照射量は $5 \times 10^{18}$  ions/cm<sup>2</sup>)<sup>17)</sup>

Fig.11には、Dの捕獲の効率が例えばNbでは300Kではほぼ100%になるが、照射温度がこれより高くても低くても、捕獲の効率は急激に小さくなることが示されている。<sup>17)</sup> V, Mo, Ta, W などと同種のデータが欠けているように思われる。

Fig.12は、10 keVのDを各種金属にインプラネーションした際のイオン捕獲と表面の変形更にそれらの回復を測定した結果である。<sup>18)</sup> 低温照射による、きめのこまかい貴重なデータであると思われる。

Fig.13は、sputtering yieldのイオンエネルギー依存性をTaおよびTaCについて調べた結果を示したもので、計算値と実験値が共に描かれている。<sup>19)</sup> Taの場合、スパッター率がピークに達するエネルギーはWなどと共に比較的高いようである。

次頁に、Fig.14およびFig.15で、それぞれMoおよびWについて、sputtering yieldの各種イオンによる測定の結果を示した。<sup>20)</sup>

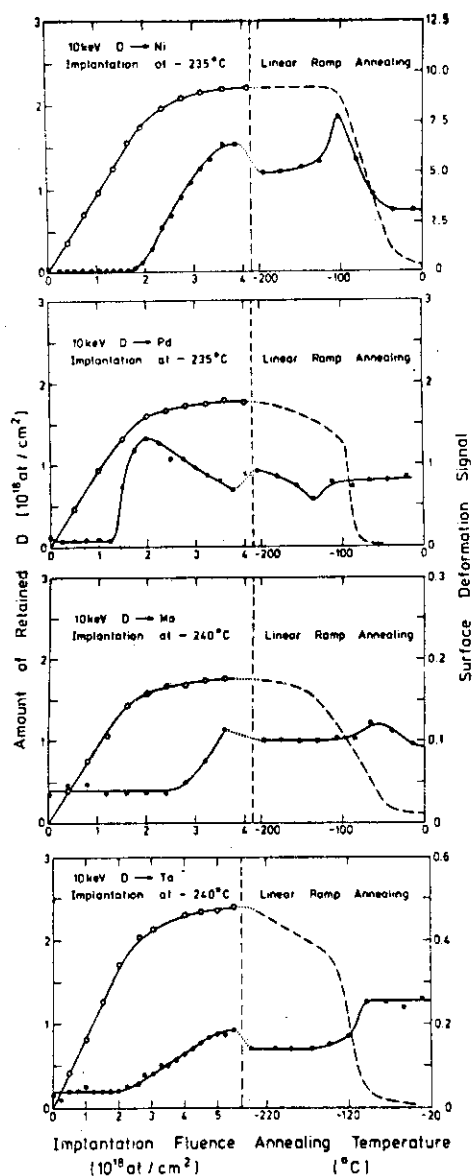


Fig. 12 Ion retention (open circles and dashed lines) and surface deformation (full points) under implantation of 10 keV deuterons and subsequent thermal annealing for Ni, Pd, Mo, and Ta.

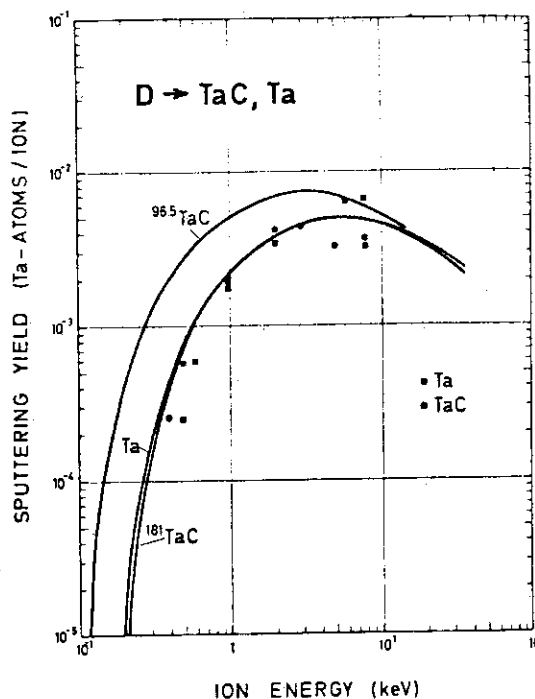


Fig. 13 Sputtering yield for Ta and TaC [77]. Comparison of measured data and empirical relation (solid lines eq. (6)). The upper curve has been calculated assuming the mean mass of the compound.

H.H. Andersen, M.L. Day & Sputtering-yield data for plasma-wall interaction

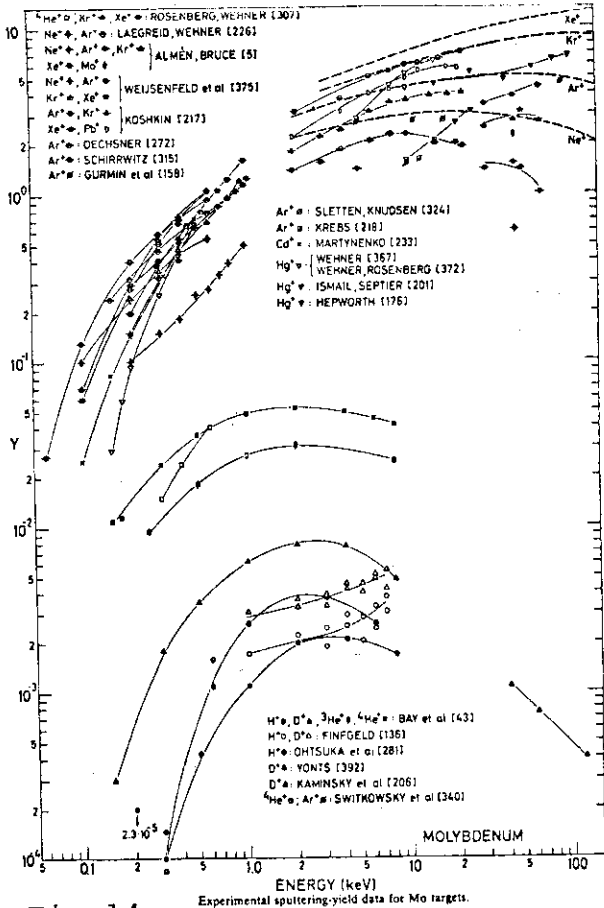


Fig. 14

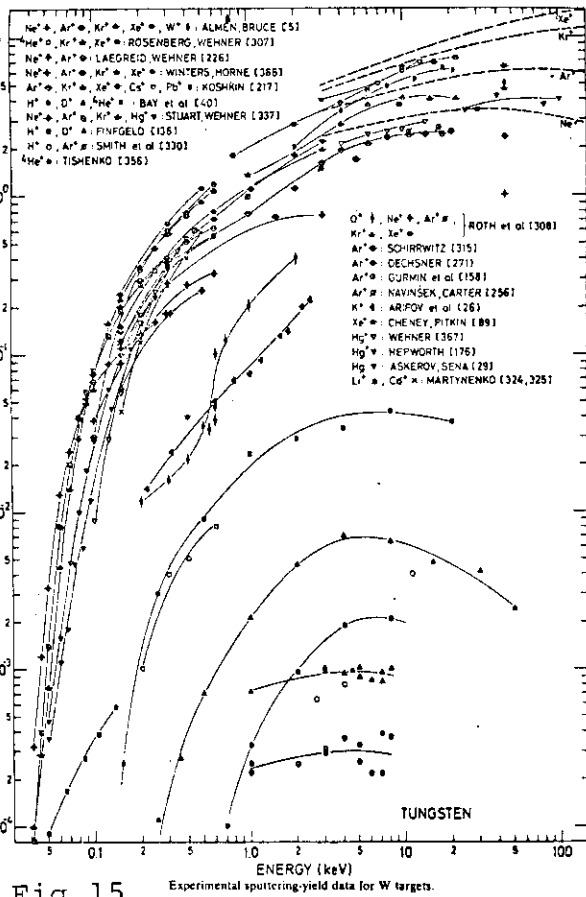


Fig. 15

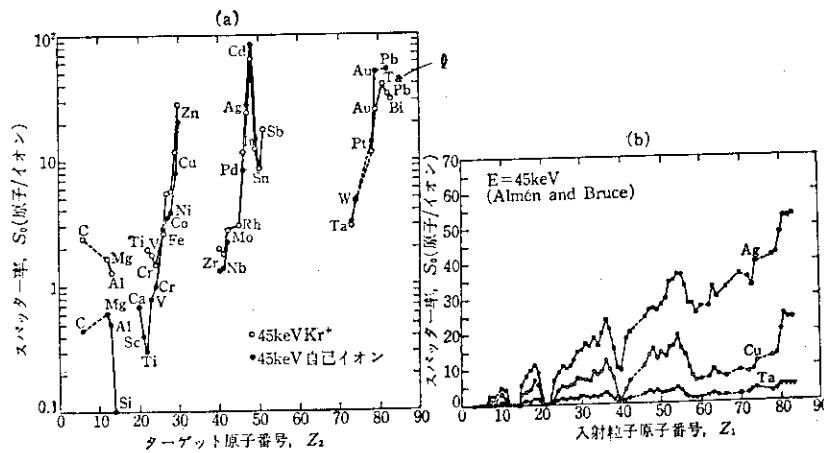


Fig. 16 スパッター率の(a)ターゲット原子番号依存性、および (b)入射粒子原子番号依存性[Almen and Bruce<sup>9-28)</sup>による]

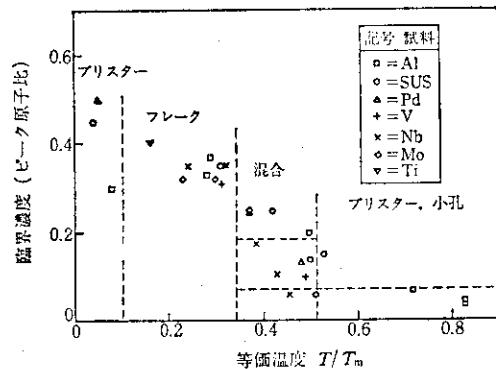


Fig. 17

20-300 keV He<sup>+</sup> を打込んだ数種の材料の表面損傷の起こり方[G. T. Thomasによる、文献9-31)より引用] 臨界温度は打込みイオンの深さ分布をガウス分布としてそのピーク値から計算している。

Fig.16は、スパッター率の a) ターゲット原子番号依存性、および b) ターゲットが Ag, Cu, Ta の場合の入射粒子原子番号依存性を示したものである。<sup>21)</sup>

また、Fig.17は、数種の金属で照射温度に依存してどの程度の照射を行なうとどのような表面損傷があらわれるかをまとめたもので

ある。<sup>22)</sup> (Fig.16 および 17 は、石野栄著、「照射損傷」(東大出版会 1979) に掲載のものを引用させていただいた)

プリスターの生成はLNT程度の低温で照射した

場合にも認められているが、(実験条件を考慮して)少なくとも室温以下でも生成することは確かなようである。

Fig.18には単色エネルギーのヘリウムイオン照射で起るブリストリングの予想図を原子番号を横軸にとって描いたものである。<sup>23)</sup>境界線は概略を示すにすぎないが、Nb, Ta など原子番号が高くなるほど材料としては有利といえる。

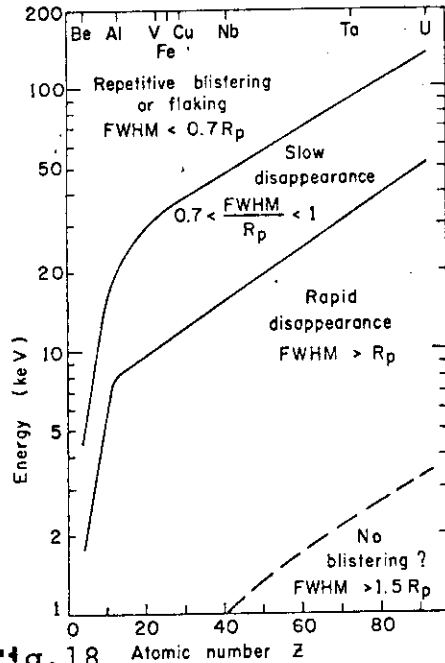


Fig.18 Predictions for the various blistering regimes under monoenergetic helium irradiation of metals.

以上のほか、工作性 (Fabricability, Joinabilityを含む) や実用性 (Availability) さらに cost などの観点からも第一壁の材料撰択が決定されなければならないことはもちろんである。この点、高融点金属は概してクラーク数が低位にあり、鉄鋼等に比して殆んど決定的とも言える程の遜色を有するが、もし第一壁の条件が高融点耐熱材料を要求するならば、これらを技術的に克服して行かねばならないし、また克服してゆけると思う。必要は発明の母だから。

Table 9に、R. W. Conn<sup>4)</sup>によって与えられた各種材料の評価をかかげた。但し表中Taについては、筆者の私見を、浅学をかえりみずつけ加えたものである。

Table 9

Criteria for Selecting First Wall Materials\* In Fusion Reactors in General Priority Order

Criteria	Favored Materials	Less Favored
1. Radiation damage and lifetime		
a. Swelling (dim. stability)	Ti, V, Mo, SS	Ta Nb, Al, C
b. Embrittlement	C, Nb, V, Ti, SS	Mo, Al
c. Surface properties	V, Ti, Al, C	Ta SS, Nb, Mo
2. Compatibility with coolants and tritium		
a. Lithium	Ti, V, Nb, Mo, SS	(Al, C)**
b. Helium	SS, Ti, Mo, Al, C	(Nb, V)**
c. Water	SS, Al, Ti	(C)**
d. Tritium	Mo, Al, SS	Ti, V, Nb, C
3. Mechanical and thermal properties (Irradiated)		
a. Yield strength	Mo, Nb, V, Ti, SS	Ta Al, C
b. Fracture toughness	SS, Ti, Al	V, Nb, Mo, C
c. Creep strength	Mo, V, Ti, SS	C, Al, Nb
d. Thermal stress parameter $M \equiv \frac{2\alpha_y k (1-\nu)}{\alpha E}$	Mo, Al, Nb, V	Ta Ti, SS, C
4. Fabricability and joining	SS, Al, Ti	Ta Nb, V, Mo, C
5. Industrial capability and data base	SS, Al, Ti, C	Mo, Nb, V Ta
6. Cost	C, Al, SS, Ti	Mo, Nb, V Ta
7. Long lived induced radioactivity	V, C, Ti, Al	SS, Nb, Mo Ta
8. Resource availability (USA)	C, Ti, Mo, Al, SS	Nb, V Ta

\* Alloys. Ti-6Al-4V, V-20Ti, TZM, Nb-1Zr, 316 SS, Al-6061. This is an illustrative list.  
 \*\* Materials in parenthesis are unacceptable with stated coolant.

## References

- 1) Kulcinski, G.L., Proc. 5th Int. Conf. on "Plasma Physics and Controlled Nuclear Fusion Research" (1974, Tokyo) IAEA-CN-33/S3-1 (IAEA 1975) 251.
- 2) Gold, R.E. and Harrod, D.L., J. Nucl. Mater. 85&86 (1979) 805.
- 3) Kummer, D.L., J. Nucl. Mater. 85&86 (1979) 47より引用。originalは Davis, J.W. and Kulcinski, G.L., EPRI-ER-386 (April 1977) 25.
- 4) Conn, R.W., J. Nucl. Mater. 85&86 (1979) 9.
- 5) Dudziak, D.J. and Krakowski, R.A., J. Nucl. Technol. 25 (1975) 32.
- 6) 「核融合炉の構造材料評価に関する試験研究」成果報告書。原委 48 原 2501号。三菱原子力工業 (1975)
- 7) 石野 栞「核融合研究の進歩と動力炉開発への展望」(「核融合炉調査」研究専門委員会, 1976) 296頁より引用。
- 8) 諸佳正太郎。同上, 367頁より引用。originalは, 次のRef. 9.
- 9) Thomas, D.E., "Hydrogen Isotopes in Fusion Reactors" Hydrogen in Metals (A.S.M. 1973) 691.
- 10) Smith, D.L. and Natesan, K., Nucl. Technol. 22 (1974) 392.
- 11) 浅見直人。Ref. 7と同じ, 268頁より引用。
- 12) Honig, R.E. and Cramer, D.A., RCA Review 30 (1969) 285.
- 13) Touloukian, Y.S. Ed., Thermophysical Properties of High Temperature Solid Materials (Macmillan, New York, 1970).
- 14) Hultgren, R., Orr, R.L., Anderson, P.D. and Kelley, K.K., Selected Values of Thermodynamic Properties of Metals and Alloys (Wiley, 1963 and 1972).
- 15) Haggmark, L.G. and Biersack, J.P., J. Nucl. Mater. 85&86 (1979) 1031.
- 16) McCracken, G.M. and Maple, J.H.C., Brit. J. Appl. Phys. 18 (1967) 919.
- 17) McCracken, G.M., Jefferies, D.K. and Goldsmith, P., Proc. 4th Inter. Vacuum Congr. (1968) 149.
- 18) Möller, W., Besenbacher, F. and Laursen, T., J. Nucl. Phys. 93&94 (1980) 750.
- 19) Bohdanský, J., J. Nucl. Mater. 93&94 (1980) 44より引用。
- 20) Andersen, H.H. and Bay, H.L., J. Nucl. Mater. 93&94 (1980) 625.
- 21) Almen, O. and Bruce, G., Nucl. Instr. Methods 11 (1961) 257, 279.
- 22) Bauer, W., J. Nucl. Mater. 76&77 (1978) 3.
- 23) Terreault, B., J. Nucl. Mater. 93&94 (1980) 707.

## III - 2 固体中での重イオン阻止能と有効電荷\*

湘北短大 北川 盈雄

ニューヨーク大 W. Brandt

## 1. はじめに

固体中での低速領域重イオン阻止能と有効電荷の研究は、Northcliffe<sup>1)</sup>, Betz<sup>2)</sup>の総合報告、最近のZiegler<sup>3)</sup>によるH<sup>+</sup>, He<sup>+</sup>, 重イオンに関するデータ集など長い実験研究の歴史を持つ。理論的には'60年代前半のLSS<sup>4)</sup>やFirsov<sup>5)</sup>, またLindhardとWinther<sup>6)</sup>の研究によって、この領域での阻止能の実験データとの定量的比較が可能となったが、各種パラメーターとの一致は必ずしもよくない。また、重イオン有効電荷については、Bohrの有効電荷に関する速度条件<sup>7)</sup>, Lambのエネルギー条件<sup>8)</sup>の提案以来、 $v_1/Z_1^{2/3}$ によるスケーリング則の立場からの研究が、Brandt<sup>9)</sup>やMoak<sup>10)</sup>によって行なわれ、低速側での比較的重いイオン(原子番号が6~20位までのイオン)のスケーリング則からのずれの説明についての試みがいくつかなされている。ただし $v_1$ ,  $Z_1$ は入射イオンの速度および原子番号である。近年FerrellとRitchie<sup>11)</sup>により、誘電関数法によるイオン内電子分布を考慮した阻止能理論の改良が行なわれた。電子分布は通常の非弾性散乱理論と同型の形状因子として取入れられる。この研究は、非常に重いイオンでのスケーリング則、重イオン内電子のイオン速度に依存した分布の変分原理による決定などの諸点をふまえ、C<sup>+</sup>からAr<sup>+</sup>程度の原子番号を持つイオンの有効電荷(阻止能より得られる)のスケーリング則からのずれの動的構造に関するものである。

## 2. 阻止能より得られる有効電荷

物質中を通過する荷電粒子のエネルギー損失過程の電子励起部分は、個別電子を励起、イオン化することによるclose collision部分と、プラズモンなどの集団モードがよく定義される領域での集団モード励起によるdistant collision部分に分けることができる。今、イオンの電荷数を $Z_1 - N$ 、阻止能より決定される有効電荷を $Z_1^*$ とすれば( $N$ はイオン内電子数)、通常個別励起の最小衝突径数がイオン半径より小さくなることより、 $Z_1^*$ は $Z_1 - N$ より大きくなる。この効果はイオンの原子番号が小さい方へ移行する程、又低エネルギー領域へ移行する程大きくなる。低速領域でのイオン内電子分布を考慮した阻止能は、誘電関数法により次のように定義される。<sup>11)</sup>

$$S = \frac{2}{\pi v_1^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} [\rho_{ne}(k)]^2 \int_0^{kv_1} d\omega \omega \operatorname{Im}(-\epsilon^{-1}(k, \omega)). \quad (1)$$

(1)式中の $\rho_{ne}(k)$ は、原子核の正電荷も含んだイオンの電荷のフーリエ成分であり、以下の計算においては次式で定義される分布を用いる。

$$\rho_{ne}(k) = Z_1 \left( 1 - \frac{N}{Z_1} \frac{\alpha^2}{k^2 + \alpha^2} \right) \quad (2)$$

\* Stopping Power and Effective Charge of Low-velocity Ions in Metals.

ここで  $1/\alpha$  はイオン半径を与える。  $\alpha$  はイオン内電子の全エネルギーを最小にする変分原理

$$\partial E / \partial \alpha = 0, \quad \partial E / \partial \lambda |_{N=Z_1} = 0, \quad E = E_{np} + \lambda E_{ep} + E_{ke} \quad (3)$$

より決定される。すなわち  $\alpha = \frac{Z_1^{1/3} (1 - \frac{N}{7Z_1})}{2C_0 (N/Z_1)^{2/3}}$  ( $C_0 \approx 0.240$ ) を得る。(3)式中,  $E_{np}$ ,

$\lambda E_{ep}$ ,  $E_{ke}$  は各々原子核-電子間のポテンシャル・エネルギー, 電子間相関エネルギー ( $\lambda$  は中性原子状態がイオン状態に対しエネルギー最小を与えるという条件より決定される変分パラメータで, 上記モデルでは  $\lambda = 1 - N/Z_1$  であり, 又 L-J は Lenz-Jensen 模型<sup>12)</sup> による結果を表わす。ここでは紙面の都合上, 上記手法の詳細については省略するが, 細かな方法論は Gombas<sup>12)</sup> のテキストに紹介されているので参照していただきたい。(1)式より充分速度の遅い領域での阻止能, および有効電荷比  $S$  についての解析的結果を得ることができる。すなわち

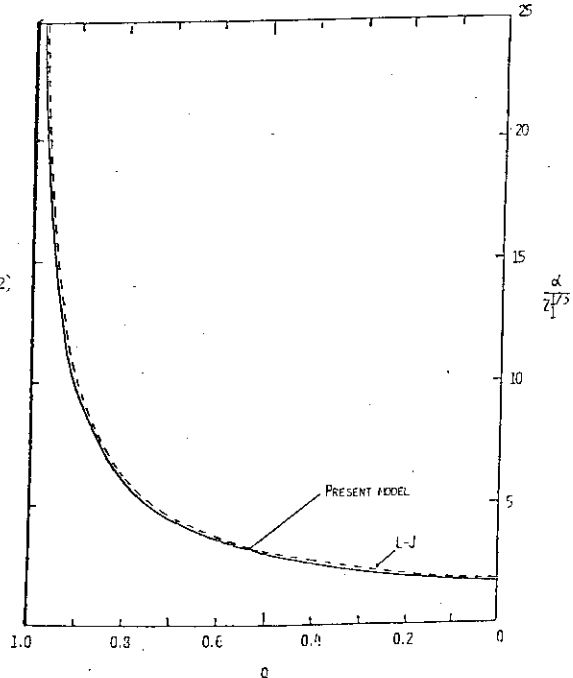


図 1

$$S = \frac{2}{3\pi} Z_1^{*2} \nu_1 I_0(\pi K_F) \quad (4)$$

$$\begin{aligned} \zeta^2 = \left(\frac{Z_1^*}{Z_1}\right)^2 &= \left(1 - \frac{N}{Z_1} \frac{1}{1 - \frac{4K_F}{\pi\alpha^2}}\right)^2 + \left(\frac{N}{Z_1}\right)^2 \frac{1}{\left(1 - \frac{4K_F}{\pi\alpha^2}\right)^2} \frac{I_0(4K_F/\alpha^2)}{I_0(\pi K_F)} \\ &+ 2 \frac{N}{Z_1} \frac{1}{1 - \frac{4K_F}{\pi\alpha^2}} \left(1 - \frac{N}{Z_1} \frac{1}{1 - \frac{4K_F}{\pi\alpha^2}}\right) \times \frac{I_1(\alpha, K_F)}{I_0(\pi K_F)} \end{aligned} \quad (5)$$

を得る。上式中  $I_0(x) = \ln(1+x) - \frac{x}{1+x}$ ,  $I_1(\alpha, K_F) = \frac{1}{1 - \frac{4K_F}{\pi\alpha^2}} \left\{ \ln\left(1 + \frac{4K_F^2}{\alpha^2}\right) - \frac{4K_F}{\pi\alpha^2} \ln(1 + \pi K_F) \right\}$  である。(5)式中の有効電荷比  $S$  は実際の電荷比  $Q = 1 - \frac{N}{Z_1}$  の関数と

して更に次のように近似できる。

$$\zeta \cong Q + C(K_F)(1-Q) \ln\left(1 + \frac{4K_F^2}{\alpha^2}\right) \quad (6)$$



ただし、 $C(K_F) = \pi K_F / (1 + \pi K_F) I_0(\pi K_F) - 2/\pi K_F$  である。図2に(5)および(6)式の計算結果を示す。図中  $N^*$  は、 $1 - N^*/N = (\zeta - Q)/(1 - Q)$  より定義される有効電子数である。 $1/\alpha, 1/2K_F$  はイオン半径と低速領域での最小衝突係数を表わすことより、図2は、 $r_s$  値が1~6程度の領域で(6)式で定義される  $1 - N^*/N$  が、 $(2K_F/\alpha)$  を変数とする準スケーリング曲線として表わされることを示している。図中 ×印のプロットは(5)式中の計算結果を示す。(2)は統計モデルを  $He^+$  の場合に外挿した結果であり、デモンストレーションの意を表わす。この場合(6)式からのずれは大きくなる。異なる  $r_s$  値に対する各曲線の上限は、原子番号4のケースの  $(2K_F/\alpha)^2$  の最大値 ( $Q=0$ ) の場合を目安としている。更に  $\zeta \geq Q$  (あるいは  $Z_1 \geq Z_1 - N$ ) の関係が(6)式より判定できる。

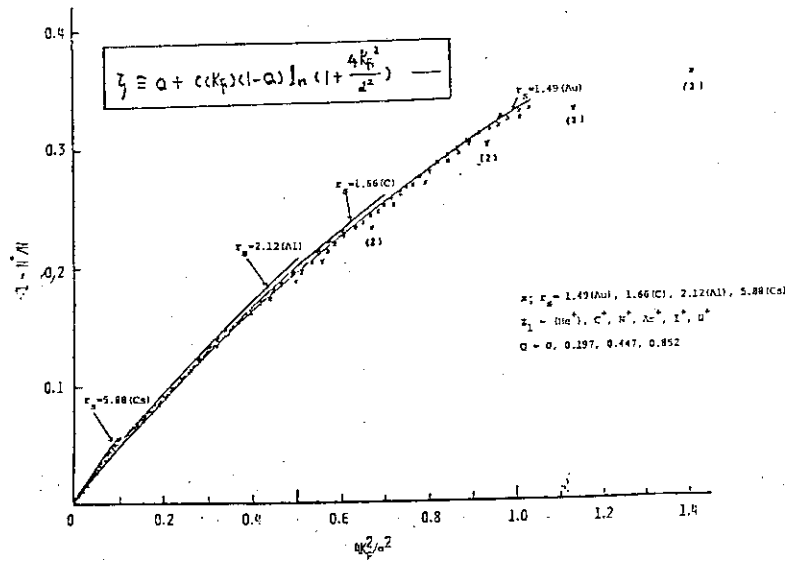


図2

### 3. イオン電荷の速度依存性

次に  $Q = 1 - N/Z_1$  の入射速度依存性について述べる。イオンあるいは重イオンの電荷数は、荷電粒子の飛程にも関連して、原子核物理、放射線物理の分野における古くからの重要パラメータであり、Bohrによる速度条件、Lambによるエネルギー条件以来多くの仕事がなされてきている。この問題についての歴史的推移はBetzの総合報告に詳しいので参照していただきたい。ここでは統計的手法に基づく別種の速度条件について述べることにする。イオン内電子分布を統計的に扱う時、イオン内1電子に対する特徴的な速度の  $\gamma$  乗は、次のように定義される。

$$\langle v_e^\gamma \rangle = 4C_2^\gamma(r) Z_1^{2\gamma/3} \left(1 - \frac{N}{Z_1}\right)^\gamma / \left(\frac{N}{Z_1}\right)^{\gamma/3} \quad (7)$$

ここで  $C_2(r) = b \left(\frac{3\pi}{4}\right)^{\gamma/3} \left(1 + \frac{\gamma}{3}\right)^{\gamma/3 - 2/\gamma} \Gamma^{1/\gamma} \left(2 - \frac{\gamma}{3}\right) / 8C_0$  であり、 $b$  および  $\Gamma$  は各

々統計的手法に導入されたBrandtパラメータ<sup>9,13)</sup> およびガンマ関数である。今、(7)式により定義される部分的にイオン化されたイオン内電子の特徴的な速度と中性原子の場合の特徴的な速度との差  $v_d$  を考える。すなわち、 $v_d = \langle v_e^\gamma \rangle_{N^*}^{1/\gamma} - \langle v_e^\gamma \rangle_{N=Z_1}^{1/\gamma}$  である。(7)式より

$$v_d = 4C_2(r) Z_1^{2\gamma/3} \left\{ \left(1 - \frac{N}{Z_1}\right) / \left(\frac{N}{Z_1}\right)^{\gamma/3} - \frac{6}{7} \right\} \quad (8)$$

を得る。更に  $Q = 1 - \frac{N}{Z_1}$  より

$$Q = 6 \left\{ \left( 1 + \frac{7}{24 C_2(\gamma)} \frac{v_d}{Z_1^{2/3}} \right) \times \left[ 8 \left( 1 + \frac{7}{24 C_2(\gamma)} \frac{v_d}{Z_1^{2/3}} \right)^3 + \left( \frac{7}{4} \right)^2 \right]^{1/2} + \frac{7}{4} \right\}^{1/3} - \left\{ \left[ 8 \left( 1 + \frac{7}{24 C_2(\gamma)} \frac{v_d}{Z_1^{2/3}} \right)^3 + \left( \frac{7}{4} \right)^2 \right]^{1/2} - \frac{7}{4} \right\}^{1/3} - 1 \quad (9)$$

の解析的解を得る。上式より明らかなようにQは  $v_d / Z_1^{2/3}$  のユニバーサルな関数となる。図3に  $\gamma = 1, 2, 3$  についての結果を示す。一点鎖線は、Lenz-Jensen 模型を(7)式に適用した結果を示す。波線は、Bohr の速度判定条件<sup>7)</sup>を発展させたBrandtによる別型の速度条件による数値結果<sup>9,13)</sup>であり、非常に重いイオンの阻止能より得られる有効電荷は、このカーブによくのることが実験データの解析より良く知られている(ただし、実験では速度パラメータは入射速度  $v_1$ )。図より  $\gamma = 2$  は、root mean square に相当するが、この結果は  $v$  を  $v_1$  と等価と考える仮定のもとで、中性原子内電子分布を用いたBrandtによる別模型に基づく数値結果、および非常に重いイオンの実験データの解析による有効電荷のユニバーサル曲線に、ほぼ全領域に渡ってよく一致する結果を与えている。こうした考え方によるイオン内電子数を考慮した、イオン電荷数の速度依存性の導出は他には無い。

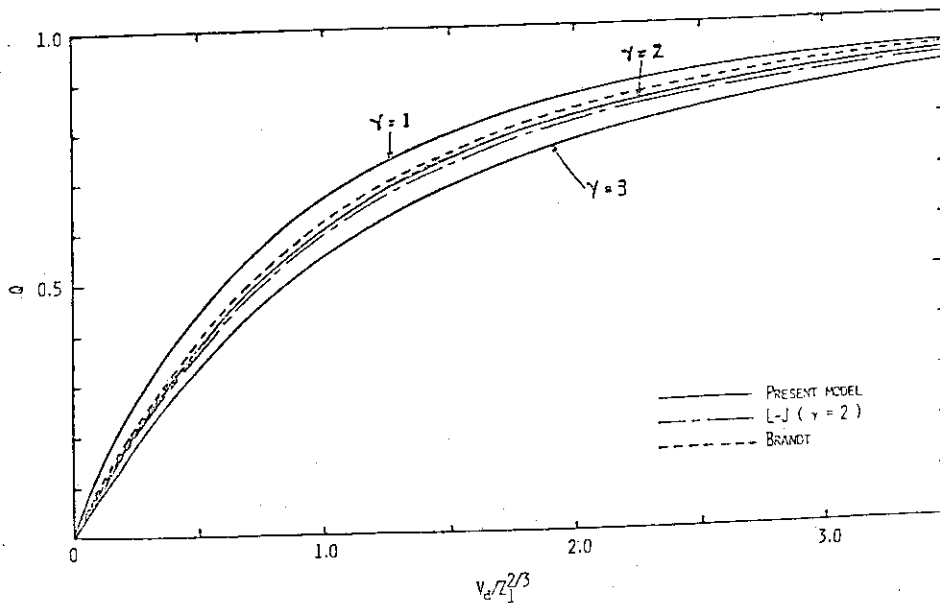


図3

4. おわりに

2, 3の結果に基づいた  $N^+(Z_1 = 7)$  の Au, Al, C (非晶質) への入射時に対する数値結果を図4に示す。図中Yarlagadda et al.<sup>13)</sup>は実験データを示す。この物質依存性は、 $\zeta$ が実際の阻止能と電子を持たない核のみの場合の阻止能間の比であるため、小さく、又図中の実験データは、多くの物質に対する測定データの平均値を表わす。図中、実線は(1)式を数値積分した結果(Lindhardの誘電関数<sup>6)</sup>を用いた)、波線は充分低速領域に対する近似式((6)式)を用いたものである。又一点鎖線は3で述べたユニバーサル曲線である。図中  $V_{th}(2p)Al$  は、Ashley<sup>14)</sup>による

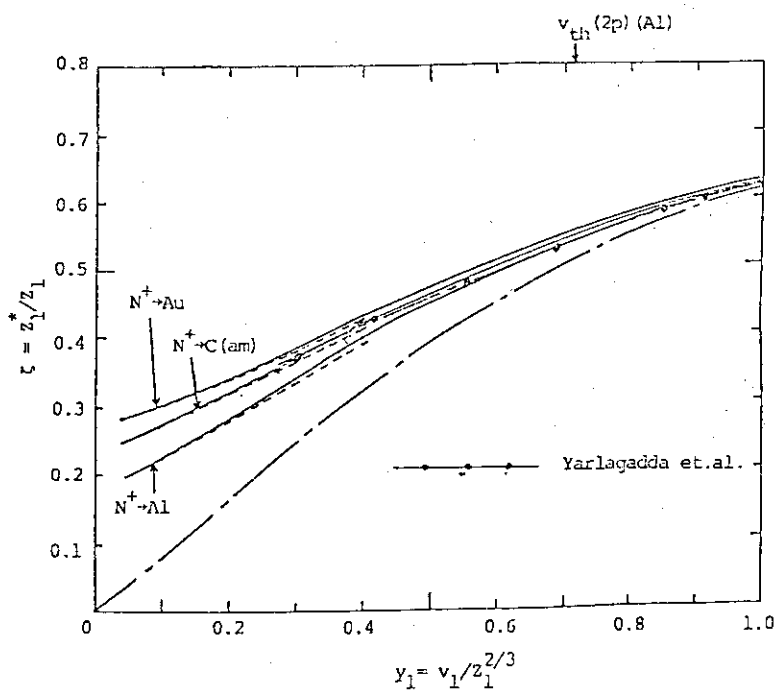


図 4

Al 中, Al2p 電子が阻止能に対する寄与を開始する速度であり, Ashley の結果を採用するとすれば,  $V_{th}$  以下の速度では誘電関数法が充分良く,  $V_{th}$  以上で 2p 電子の寄与による  $\epsilon$  の大きな変更は無いと考えられる。C (非晶質) は, 1S 電子 2 個であるため, 上記 3 物質中, 誘電関数法による記述が最も良い物質であると考えられる。Au についての  $V_{th}$  は, その電子構造の複雑さのため, かなり確かな値は得られていない。以上, 比較的重いイオンの阻止能より得られる有効電荷のユニバーサル曲線からのずれを, 個別励起部分の最小衝突径数が, 通常イオン半径より小さくなるという物質的観点より解析してきた。計算結果と実験データの一致は良い。He などの軽イオンに関しては多くの実験データの蓄積がなされていることもあり, 又核融合など実用化を課題とする分野においてもその有効電荷は重要なパラメータであるため, 多くの関心が寄せられている。軽イオン側での理論, 実験両面の発展が期待されるものである。尚, 当研究は著者の 1 人 (M. K.) の米国ニューヨーク大学留学期間中になされたものである。

## Reference

- 1) L.C. Northcliffe and R.F. Schilling; Nucl. Data, Sect. A7 (1970) 233.
- 2) H.D. Betz; Rev. Mod. Phys. 44 (1972) 74.
- 3) J.F. Ziegler; Helium stopping powers and ranges in all elements (Pergamon Press, New York, 1977) etc.
- 4) J. Lindhard, M. Scharff and H.E. Schiøtt; Kgl. Danske-Videnskab. Selskab, Mat.-Fys. Medd. 33 (1963) No.14.
- 5) O.B. Firsov; Zh. Eksp. Teor. Fiz. 36 (1959) 15.
- 6) J. Lindhard and A. Winther; Kgl. Danske-Videnskab. Selskab. Mat.-Fys. Medd. 34 (1964) No.4.
- 7) N. Bohr; Phys. Rev. 58 (1940) 654; 59 (1941) 270.
- 8) W.E. Lamb; Phys. Rev. 58 (1940) 696.
- 9) W. Brandt; in Atomic Collisions in Solids (Plenum, New York 1973). Vol.1, p.261.
- 10) M.D. Brown and C.D. Moak; Phys. Rev. B6 (1972) 90.
- 11) T.L. Ferrell and R.H. Ritchie; Phys. Rev. B16 (1977) 115.
- 12) P. Gombas; Die Statistische Theorie der Atoms und ihre Anwendungen (Springer-Verlag, Vienna, 1949).
- 13) B.S. Yarlagadda, J.E. Robinson and W. Brandt; Phys. Rev. B17 (1978) 3473.
- 14) J.C. Ashley; private communications.

### III - 3 固体内に注入された低Z原子の同定とその評価\*

東大教養 小 牧 研一郎

固体内に注入された不純物の挙動、特に、その深さ分布および格子位置を知ることは、物性研究の基礎であると共に、材料技術の上からも重要な課題となっている。核融合炉真空壁においては、プラズマ構成粒子の注入および壁材料中での核反応によって生じた軽元素の挙動が重要である。本報告では固体中の軽元素不純物のイオンビームによる検出法、格子位置決定法について述べる。

母体結晶を構成する原子より質量の大きい不純物の検出には通常ラザフォード後方散乱 (BS) が用いられる。質量分解能は、プローブイオンの質量が大きくなると共に高くなる。Heイオンが最も多く用いられるが、C、N等の重イオンも良く用いられている。

母体原子より軽い不純物の検出には、種々の原子核反応が用いられる。荷電粒子反応の場合には入射・放出両粒子のエネルギー損失を、熱中性子反応や共鳴核反応では放出あるいは入射粒子のエネルギー損失を利用して、不純物の深さ分布を調べることができる。

不純物原子の格子位置は、入射粒子のチャネリング効果又は放射粒子のブロッキング効果、あるいはその両方を用いて決定することができる。表1に、これらの方法を用いて、これまでに決定された軽元素不純物の格子位置についてのデータ及び文献を示す。

軽元素のうち、C、N、O等残留ガス中に含まれる元素の場合は、表面吸着層中のものと、結晶内部のものとの判別が困難であるので、 $^{13}\text{C}$ 、 $^{15}\text{N}$ 、 $^{18}\text{O}$ 等の不純物として用いることが有効である。

水素同位体の挙動は核融合炉壁において特に重要であるが、本表作成の時点では軽水素 ( $^1\text{H}$ ) の格子位置に関する報告は見られなかった。 $^1\text{H}$ の深さ分布については、( $^7\text{Li}, \alpha$ )、( $^{11}\text{B}, \alpha$ )、( $^{15}\text{N}, \alpha\gamma$ )等の反応を用いた報告があるが、収量が低いことと、ビームによって不純物位置が変わりやすいこと等のため、格子位置の決定にまでは至っていないようである。これは将来解決しなければならない重要な問題の一つである。

---

\* Identification and Lattice Location of Low-Z Impurities Implanted into Solids.

Table I Lattice sites of low-Z impurities determined by channeling technique

Impurity	Host	Introduction	Detection	Lattice Site	References
$^2\text{H}$	Be	I		near basal plane	Via80, Jac00, Kau00
	Mg	I	$^3\text{He}, \text{p}$	T(50K, dil.), R-T(110K), R(230K)	Lig78, Cha78
	Al	I	$^3\text{He}, \text{p}$	T(33-175K), R(300K)	Bug76, 79
	Si	I	$^3\text{He}, \text{p}$	I(anti-bond, 296K)	Pic78
	V	M	$^3\text{He}, \text{p}$	I(296K)	Oza78
	$\text{VO}_x$	M	$^3\text{He}, \text{p}$	0	Oza78
	Cr	I	$^3\text{He}, \text{p}$	T(90K, dil.), 0(d, 296K)	Pic74, 76
	Fe	I	$^3\text{He}, \text{p}$	0(d)	Mye79
	Cu	I	d, n	I(304K)	Fis69
		I	$^3\text{He}, \text{p}$	0(25-300K)	Bug79
	Nb	D	d, p	T(150K)	Ife67, Car72, 72a
		D	$^3\text{He}, \alpha$	T	Ska75, Ant00
				T(295K)	Ant00
	Mo	I	$^3\text{He}, \text{p}$	T(90K, dil.), 0(d)	Pic76
	Pd	D	$^3\text{He}, \text{p}$	0(295K)	Car78
	Pd <sub>.8</sub> Au <sub>.2</sub>	I	$^3\text{He}, \text{p}$	0(25-90K), T(90-180K)	Bug79
		D	d, p	0(296K)	Tak78
	Ag	I	$^3\text{He}, \text{p}$	0(25-320K)	Bug79
	Ta	D	$^3\text{He}, \text{p}$	T(296K)	Ant76
		D	d, p	T(296K)	Tak78
$\text{TaN}_x$	D		N-D dumbbell(83K)	Car00	
W	I	$^3\text{He}, \text{p}$	T I(90-296K)	Pic74, 74a, 75, 76	
Pt	I	$^3\text{He}, \text{p}$	0(25-70K), T(70-310K)	Bug79	
$^3\text{He}$	Be	I		R	Via80, Jac00, Kau00
	W	I	d, p	S(d)	Pic74
$^6\text{Li}$	Be	I	d, $\alpha$	S(100%)	Kau79, Via80
$^7\text{Li}$	Si	I	p, $\alpha$	I-R	Gib68
$^6\text{Li}$	Ge	D	n, $\alpha$	I(~T)	Bie74a
	Nb	I	n, $\alpha$	I-D	Bie74
$^9\text{Be}$	Cu	M	d, p	<100>-mixed dumbbell	Mat'78, Swa80
			d, $\alpha$	(1.32Åd)	
$^{10}\text{B}$	Be	I	BS	R-S	Via80, Jac00, Kau00
$^{11}\text{B}$	Al	I	p, $\alpha$	R	And72
	Si	I	p, $\alpha$	S(30%)-I	Nor79, Aka73
		I	p, $\alpha$	S	Sig73
		I	p, $\alpha$	I-S(irrad. eff.)	Gib68, Fla70
		I	p, 3 $\alpha$	on {111}-R	Pe175
		I	p, $\alpha$	I	And72
	Fe	I	p, $\alpha$	I	And72
	Ni	I	p, $\alpha$	R	And72
	Cu	I	p, $\alpha$	R	And72
	Ta	I	p, $\alpha$	R	And72
	W	I	p, $\alpha$	0	And72

Impurity	Host	Introduction	Detection	Lattice Site	References	
$^{12}\text{C}$	Fe	I	d,p	O(2/3)-R(1/3)	Fel73	
$^{13}\text{C}$						
$^{12}\text{C}$	Ni	surf.	d,p	long-bridge	Var80	
$^{15}\text{N}$	Si	I	d, $\alpha$	R	Mit75	
	$\alpha$ -SiC	I	p, $\alpha$	S(70%,HTI),S(50%,ann)	Cam75	
$^{14}\text{N}$	Ge	I	d, $\alpha$	R-S(<15%)	Cam75a	
$^{15}\text{N}$			p, $\alpha$			
$^{14}\text{N}$	Ta			O	Car00	
$^{16}\text{O}$	Ti	M	d,p	O	Del74,74a	
$^{18}\text{O}$		I	p, $\alpha$	O	Ale78	
$^{16}\text{O}$	V	M	d,p	O	Tak78a	
	Ni	surf.	d,p	long-bridge	Var80	
$^{18}\text{O}$	Nb	D	p, $\alpha$	O	Mat74	
$^{16}\text{O}$		D	d,p	O	Car76	
$^{18}\text{O}$		D	p, $\alpha$	O $\rightarrow$ O(<100>0.5 $\text{\AA}$ d)	Kai79	
$^{19}\text{F}$	Fe	I	p, $\alpha$	R	Mac00,Kau00	
	Ni	I	p, $\alpha$	R	Mac00	
	Ne	Be	I	BS	I-S-R	Via80
$^{23}\text{Na}$	Si	I	p, $\alpha$	T(40%)	Ska73	
	Mg	Al		S-D	Swa80	
	Al	Be	I	BS	I-S-R	Via80
	P	Si	D	BS	S	Fuj72
				$\beta^-$ -em	S(700 $^\circ\text{C}$ ann)	Gib68
		Ge	I	X	S(93%,dil.),S(63%)	Che74
	S	Ge	I	X	S(<25%)-I	Che74
	Ar	Fe	I	K-X	R-S(<5%)	Mac75

## Introduction

I:ion implantation, M:melt, D:diffusion, surf:surface adsorption

## Detection

BS:ion backscattering, x,y:nuclear reaction, em:emission, X:ion induced X-ray

## Lattice Site

S:substitutional, T:tetrahedral, O:octahedral, I:interstitial, D:defect associated, R:random, A-B:multiple site, dil.:dilute case, d:displaced, ann:annealed, HTI:high temperature implantation,  $\rightarrow$ :beam effect

## References

- Aka73 Y. Akasaka and K. Horie: J. Appl. Phys. 44, 3372 (1973).
- Ale78 R.B. Alexander and R.J. Petty: Phys. Rev. B18, 981 (1978).
- And72 J.U. Andersen, E. Lægsgaard and L.C. Feldman: Radiat. Eff. 12, 219 (1972).
- Ant76 M. Antonini and H.D. Carstanjen: Phys. Status Solidi A34, K153 (1976).
- Ant00 M. Antonini and H.D. Carstanjen: unpublished.
- Bie74 J.P. Biersack and D. Fink: Application of Ion Beams to Metals, ed. by S.T. Picraux, E.P. EerNisse and F.L. Vook (Plenum Press, N.Y., 1974) p.365.
- Bie74a J.P. Biersack and D. Fink: Atomic Collisions in Solids, ed. by S. Datz, B.R. Appleton and C.D. Moak (Plenum Press, N.Y., 1974) p.737.
- Bug76 J.P. Bugeat, A.C. Chami and E. Ligeon: Phys. Lett. 58A, 127 (1976).
- Bug79 J.P. Bugeat and E. Ligeon: Phys. Lett. 71A, 93 (1979).
- Cam75 A.B. Campbell, J.B. Mitchell, J. Shewchun, D.A. Thompson and J.A. Davies: Ion Implantation in Semiconductors, Science and Technology, ed. by S. Namba (Plenum Press, N.Y., 1975) p.291.
- Cam75a A.B. Campbell, J.B. Mitchell, J. Shewchun, D.A. Thompson and J.A. Davies: Can. J. Phys. 53, 303 (1975).
- Car72 H.D. Carstanjen and R. Sizmann: Ber. Bundesges. Phys. Chem. 72, 1223 (1972).
- Car72a H.D. Carstanjen and R. Sizmann: Phys. Lett. 40A, 93 (1972).
- Car76 H.D. Carstanjen: Ion Beam Surface Layer Analysis, ed. by O. Meyer, G. Linker and F. Käppler (Plenum Press, N.Y., 1976) p.497.
- Car78 H.D. Carstanjen, J. Dunstl, G. Lobl and R. Sizmann: Phys. Status Solidi A45, 529 (1978).
- Car00 H.D. Carstanjen and J. Dunstl: unpublished.
- Cha78 A.C. Chami, J.P. Bugeat and E. Ligeon: Radiat. Eff. 37, 73 (1978).
- Che74 J.F. Chemin, I.V. Mitchell and F.W. Saris: J. Appl. Phys. 45, 537 (1974).
- Del74 G. Della Mea, A.V. Drigo, S.Lo. Russo, P. Mazzoldi, S. Yamaguchi, G.G. Bentini, A. Desalvo and R. Rosa: Atomic Collisions in Solids, ed. by S. Datz, B.R. Appleton and C.D. Moak (Plenum Press, N.Y., 1974) p.791.



- Del74a G. Della Mea, A.V. Drigo, S.Lo. Russo, P. Mazzoldi, S. Yamaguchi, G.G. Bentini, A. Desalvo and R. Rosa: Phys. Rev. B10, 1836 (1974).
- Fel73 L.C. Feldman, E.N. Kaufmann, J.M. Poate and W.M. Augustyniak: Ion Implantation in Semiconductors and Other Materials, ed. by B.L. Crowder (Plenum Press, N.Y., 1973) p.491.
- Fis69 H. Fisher, R. Sizmann and F. Bell: Z. Phys. 224, 135 (1969).
- Fla70 G. Fladda, K. Björkqvist, L. Eriksson and D. Siguard: Appl. Phys-Lett. 16, 313 (1970).
- Fuj72 F. Fujimoto, K. Komaki, M. Watanabe and T. Yonezawa: Appl. Phys. Lett. 20, 248 (1972).
- Gib68 W.M. Gibson, F.W. Martin, R. Stensgaard, F.P. Jensen, N.I. Meyer, G. Golster, A. Johansen and J.S. Olsen: Can. J. Phys. 46, 675 (1968).
- Ife67 G.A. Iferov, G.P. Pokhil and A.F. Tulinov: Zh. Eksper. Teor. Fiz., Pisma 5, 250 (1967), Sov. Phys. JETP Lett. 5, 201 (1967).
- Jac00 T.E. Jackman, J.R. MacDonald, R. Vianden and E.N. Kaufmann: unpublished.
- Kai79 R.E. Kaim and D.W. Palmer: Philos. Mag. A40, 279 (1979).
- Kau79 E.N. Kaufmann, R. Vianden, T.E. Jackman, J.R. MacDonald and L.G. Haggmark: J. Phys. F9, L23 (1979).
- Kau00 E.N. Kaufmann: unpublished.
- Lig78 E. Ligeon, J.B. Bugeat and A.C. Chami: Nucl. Instr. Meth. 149, 99 (1978).
- Mac75 J.R. MacDonald, R.A. Boie, W. Darcey and R. Hensler: Phys. Rev. B12, 1633 (1975).
- Mac00 J.R. MacDonald, E.N. Kaufmann, W. Darcey and R. Hensler: unpublished.
- Mat74 P.P. Matyash, N.A. Skakun and N.P. Dikii: Zh. Eksper. Teor. Fis., Pisma 19, 33 (1974), Sov. Phys. JETP Lett. 19, 18 (1974).
- Mat'78 N. Matsunami, M.L. Swanson and L.M. Howe: Can. J. Phys. 56, 1057 (1978).
- Mit75 J.B. Mitchell, P.P. Pronko, J. Shewchun, D.A. Thompson and J.A. Davies: J. Appl. Phys. 46, 332 (1975).
- Mye79 S.M. Myers, S.T. Picraux and R.E. Stoltz: J. Appl. Phys. 50, 5710 (1979).
- Nor70 J.C. North and W.M. Gibson: Appl. Phys. Lett. 16, 126 (1970).

- Oza78 K. Ozawa, S. Yamaguchi, Y. Fujino, O. Yoshinari, M. Koiwa and M. Hirabayashi: Nucl. Instr. Meth. 149, 405 (1978).
- Pel175 G.P. Pelous, D.P. Lecrosnier and P. Henoc: Ion Implantation in Semiconductors, Science and Technology, ed. by S. Namba (Plenum Press, N.Y., 1975) p.439.
- Pic74 S.T. Picraux and F.L. Vook: Phys. Rev. Lett. 33, 1216 (1974).
- Pic74a S.T. Picraux and F.L. Vook: Application of Ion Beams to Metals, ed. by S.T. Picraux, E.P. EerNisse and F.L. Vook (Plenum Press, N.Y., 1974) p.407.
- Pic75 S.T. Picraux and F.L. Vook: Ion Implantation in Semiconductors, Science and Technology, ed. by S. Namba (Plenum Press, N.Y., 1975) p.355.
- Pic76 S.T. Picraux: Ion Beam Surface Layer Analysis, ed. by O. Meyer, G. Linker and F. K ppler (Plenum Press, N.Y., 1976) p.527.
- Pic78 S.T. Picraux and F.L. Vook: Phys. Rev. B18, 2066 (1978).
- Sig73 D. Siguard and K. Bj rkqvist: Radiat. Eff. 17, 209 (1973).
- Ska73 N.A. Skakun, N.P. Dikii, P.P. Matyash and V.M. Korol: Fiz. Tver. Tela 15, 180 (1973), Sov. Phys.-Solid State 15, 123 (1973).
- Ska75 N.A. Skakun, P.P. Matyash, N.P. Dikii and P.A. Svetashov: Zh. Tekh. Fiz. 45, 686 (1975), Sov. Phys. Tech. Phys. 20, 432 (1975).
- Swa78 M.L. Swanson, L.M. Howe and A.F. Quenneville: J. Nucl. Mater. 69-70, 372 (1978).
- Swa80 M.L. Swanson, L.M. Howe and A.F. Quenneville: Nucl. Instr. Meth. 170, 427 (1980).
- Tak78 J. Takahashi, S. Yamaguchi, M. Koiwa, Y. Fujino, O. Yoshinari and M. Hirabayashi: Radiat. Eff. 36, 135 (1978).
- Tak78a J. Takahashi, M. Koiwa, M. Hirabayashi, S. Yamaguchi, Y. Fujino, K. Ozawa and K. Doi: J. Phys. Soc. Jpn. 45, 1690 (1978).
- Var80 C. Varelas, H.D. Carstanjen and R. Sizmann: Phys. Lett. A77, 469 (1980).
- Via80 R. Vianden, E.N. Kaufmann and J.W. Rodgers: Phys. Rev. B22, 63 (1980).

### III - 4 金属のイオン照射損傷\*

大阪大学基礎工学部 桐谷道雄, 佐々木茂美

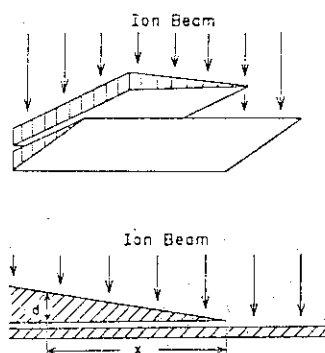
本研究は二部より構成されている。その一は、原研と協力して行なっている金属のイオン照射損傷に関する研究の報告であり、その二は原研より委託されているイオン照射損傷断面積に関する研究の調査の結果の中間報告である。

#### I. 透過電子顕微鏡法による金属のイオン照射損傷構造の研究

##### I-1. 実験方法

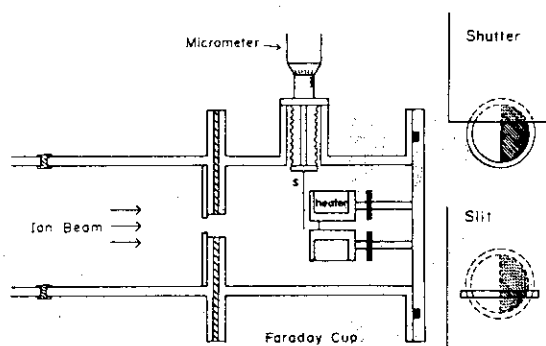
イオン照射は原研東海研究所の2 MVおよび5 MVのVdG加速器を用いて行なった。照射された試料の構造変化を電子顕微鏡により直接観察することを主な方法とし、欠陥構造の詳細な観察を容易にするため、予め観察可能な薄膜にしたものを照射した。用いたイオンがMeV程度であるため、重イオンの場合には損傷分布の深さとイオンのレンジがこの試料膜内にあり損傷構造を全て膜内に観察することが可能であるが、軽イオンの場合にはこの分布が観察可能な試料厚さより深くなるため第1図に示したようなマスク法を採用した。すなわち楔状(刃状)に勾配のついた二枚の試料を交叉させ極めて接近させて配置し、イオンビームは入射側の試料(マスク)の場所によって異なるpathを通過した後に第2の試料(本試料)に入射し、本試料の端に沿った観察に適した場所に損傷構造を発生させる。

また加速器の照射室にとりつけた一ヶの試料で単一の実験条件の照射しかできないのでは、照射強度依存、照射量依存、照射温度依存等の関数として定量的データをとることは不可能に近い。ため、第2図に示したようにイオン照射用試料の直前に可動なシャッターあるいはスリットを取付けた試料室を作製し、これにより有効サイズ2 mmの試料上で10以上の異なる照射条件での実験を行い得るようにした。



Specimen Setting for Ion Irradiation

第1図



Setting for ion irradiation under multiple experimental condition on a small specimen.

第2図

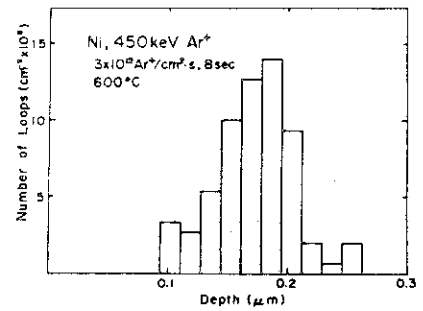
\* Ion Irradiation Damage of Metals.

1-2. 実験結果

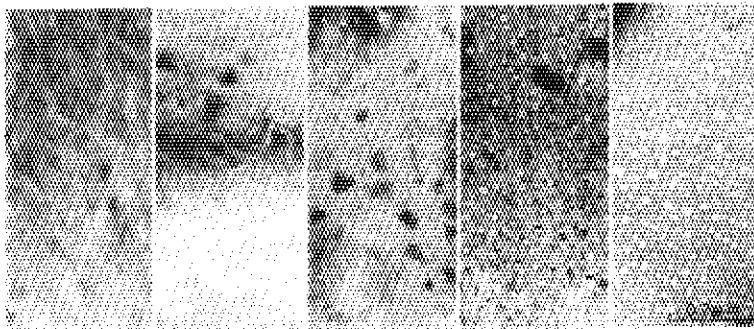
(a) ニッケルの高温 Ar イオン照射

高純度ニッケル (99.99%) を 450 keV のアルゴンイオンで照射し、損傷構造を照射量、照射温度の関数として観察した。第 3 図は 600 °C 照射の初期に現われた格子間原子型転位ループである。これらの転位ループの核形成は極めて短時間で完了し、その後は照射時間に比例してその大きさが増大する。第 4 図はこれら転位ループ発生位置のイオン入射面からの深さ分布を測定した結果である。更に照射を継続するとループ同志の衝突によりタングルした転位構造となる。転位構造の発達よりおくれで第 5 図にみられるごとくボイドが発生し成長する。第 6 図は照射量を同一にし、照射温度による欠陥構造の変化を示したものである。ボイドの発生は 450 °C 近辺から顕著になり、その数密度は温度の上昇とともに減少し大きさは増大する。

第 7 図はアルゴンイオン照射によって発生したボイドのステレオ観察の一例で、この様な対写真からそれぞれのボイドの試料中の深さを測定し試料断面での分布として示したのが第 8 図である。この図において丸の大きさはそれぞれのボイドの大きさに比例する様に記入したものである。楔状試料の端の薄い部分から厚い部分にかけて各厚さの位置でのボイドの分布を測定し、それぞれの場所の各深さでのスウェリング量に換算して示したのが第 9 図である。

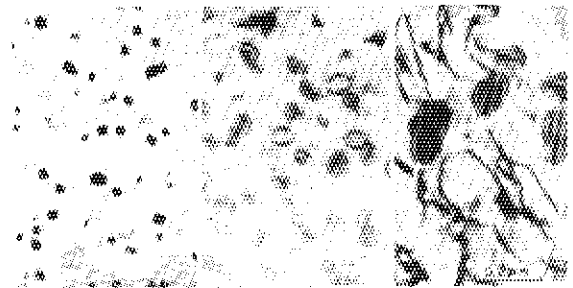


第 4 図



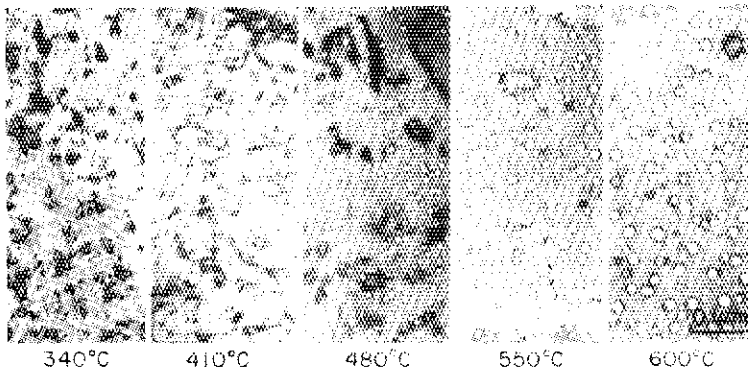
Ni, 0.45 MeV Ar<sup>+</sup>, 3 × 10<sup>12</sup> Ar<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup>s at 600 °C.

第 5 図



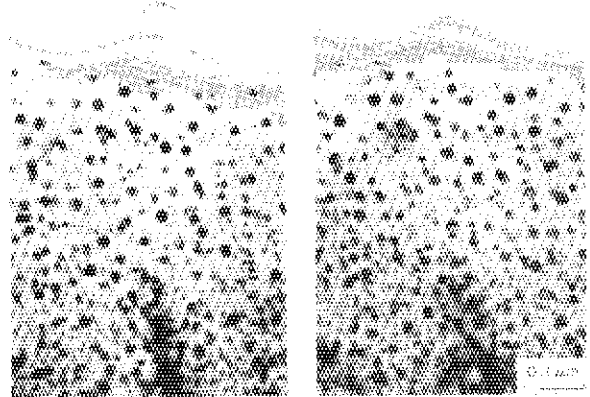
Ni, 0.45 MeV Ar<sup>+</sup>, 3 × 10<sup>12</sup> Ar<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup>s at 600 °C.

第 3 図



Ni, 0.45 MeV Ar<sup>+</sup>, 9 × 10<sup>15</sup> Ar<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup>.

第 6 図



Ar-irradiated Ni : Stereo Pair

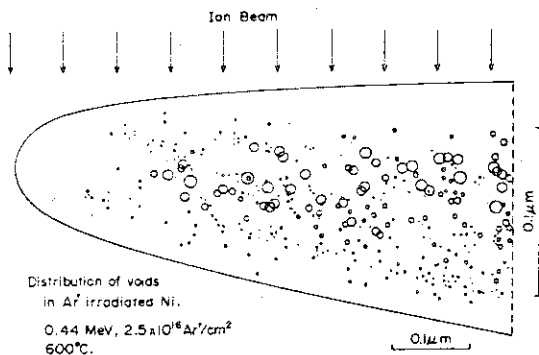
第 7 図

(b) ニッケルおよびモリブデンの軽イオン照射

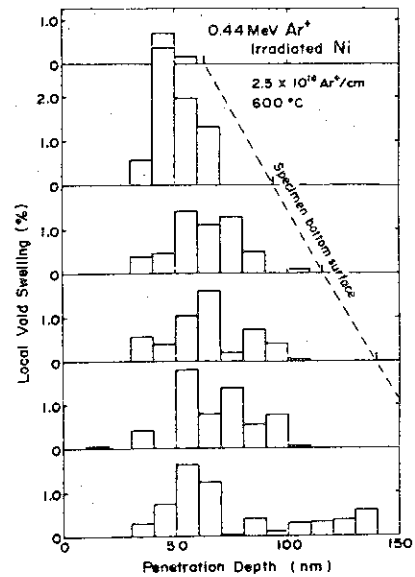
ヘリウムおよびプロトンによる照射を行ったが、この場合入射イオンの projected range が数  $\mu\text{m}$  となるため、電子顕微鏡用試料そのものでは損傷全体を観察することは不可能で I-1 に述べたマスク法を用いた。第10図はプロトン照射 ( $0.5\text{ MeV}$ ,  $8 \times 10^{17} \text{ p}^+/\text{cm}^2$  at RT) した Ni に発生した欠陥をマスクの厚さの異なる場所で観察したものである。それぞれの写真に示した数値はその場所のイオン入射側に配置された同一物質のマスクの厚さを示し、カッコ内の数値は刃状形マスクの端からの距離を示している。電子顕微鏡像の解析から観察されている点状の欠陥は格子間原子の集合した転位ループであることが確認された。この集合体欠陥の体積数密度をマスクの厚さすなわちイオンの物質内通過距離内関数としてみたものが第11図である。同種の方法でヘリウムイオン照射したモリブデンについての観察結果は上記プロトン照射したニッケルの場合と類似のものであった。

I-3 考察

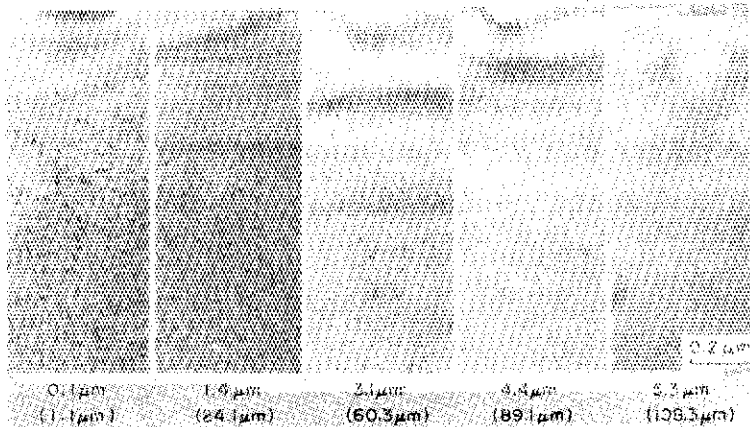
ニッケルを  $450 \text{ keV}$  のアルゴンイオンで照射した場合の核衝突によるエネルギー移行の分布を第12図上段に示した。下段は比較的厚い部分における前述のスウェリング分布と発生ボイド数の局在密度である。ボイド密度は試料下面に近づくに従い増大しているが、これはこの場合のアルゴンイオンのレンジがこの近傍にあり、Ar濃度が増大するためと考えられ、ボイドの核形成には Ar原子が必須の役割をはたすことを示している。



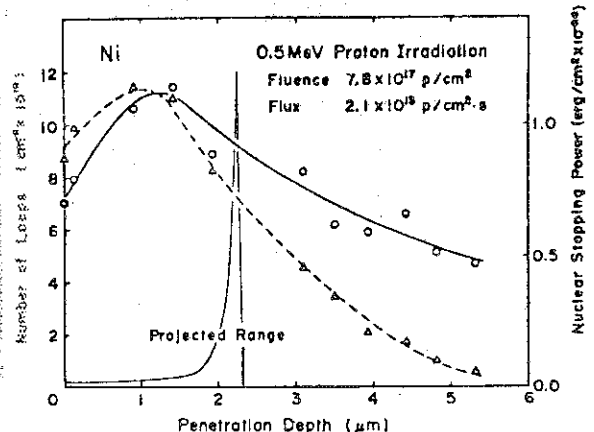
第8図



第9図

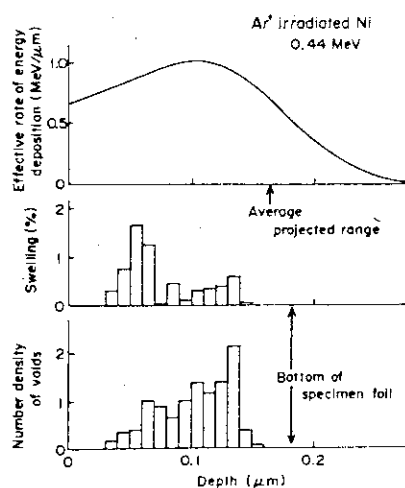


第10図



第11図

これに対してイオン入射側近傍では停止するAr濃度がひくくボイド数密度は低下しているが、上段の図にみられるごとく損傷自身はあまり下っていないため小数のボイドが十分な欠陥の供給により大きく成長するものと思われる。事実これらのボイドを含む試料を焼鈍し構造変化を追跡したところ、表面近傍の大きなボイドは原子空孔による自己拡散での収縮から理解できる速度で縮小し、中間サイズにまで縮小すると変化が停止することが判明し、深部にあるボイドは極めて収縮しにくいことがわかった。この観察結果はアルゴンイオン照射によってニッケルに現われたボイドはいわゆるボイドとバブルの中間状態にあることを示している。



軽イオンで室温照射したNiとMoに発生した欠陥の深さ分布に関しては、第11図に示したごとく理論計算したイオンのprojected rangeと大きくかけはなれている。室温照射では原子空孔は活発には移動せず、観察結果は格子間原子の発生と反応をほぼ直接に反映しているものと考えられるため、計算結果とのかけはなれた不一致は今のところ理解しにくい。

## Ⅱ. 金属および合金のイオン照射損傷断面積に関する調査

この調査は金属・合金のイオン照射に関して、特に損傷構造を透過電子鏡による直接観察を手段として行なわれた研究報告を探索し、その内容を分類整理したものである。

1. 1975年から1980年にかけて現われた研究報告について（完全ではないが）まとめた。
2. Ⅱ-1に特に顕著に取扱われている課題について文献を整理し、
3. 金属・合金の種類による分類をⅡ-2に行い、照射に用いられたイオンの種類に分けて文献をリストアップした。
4. Ⅱ-3に文献リストを添付した。
5. 関連の研究に走査型電子顕微鏡によるブリストアに関するものが多くあるが、これは割愛した。
6. 中性子照射損傷、電子照射損傷に関する同種の研究に関する報告は多いが含ませていない。

### Ⅱ-1. 特に顕著にとりあげられてきた課題（カッコ内は文献番号）

1. セルフィオン（照射される物質と同種の元素のイオン）による照射に関するもの  
(6, 7, 8, 11, 15, 19, 21, 22, 23, 25, 26, 30, 33, 39, 40, 44, 53, 56, 59, 60, 70, 74, 76, 79, 80, 82, 83, 84, 85, 97, 98, 99)
2. 照射下での偏析現象に関するもの  
(12, 13, 15, 16, 44, 45, 63, 65, 87, 88, 91, 93, 99, 101)
3. 損傷構造の深さ分布に関するもの  
(9, 18, 21, 26, 30, 46, 50, 53, 55, 59, 67, 74, 76, 85, 86,)

## 4. ヘリウム注入の効果に関するもの

(9, 18, 24, 28, 29, 31, 33, 34, 36, 41, 46, 52, 60, 62, 70, 71, 72, 77, 78, 79, 80, 83, 84, 90, 93, 101)

## II-2 金属・合金の種類とイオンの分類

記述例 物質名 (イオンの種類 (文献番号), ………)

Ag	(Ag (73), Cu, Au (48))
Al	(He (24, 72, 95), Al (70), H (72))
Al-alloy	(Al (25, 44, 65))
Au	(Ar (2, 13), Au (48), Cu (48), Fe (13), K (13, 55), Kr (13, 55), Mo (13), Rb (13, 55), Xe (13, 55), Yb (13, 55))
Co	(Au (35))
Cu	(Ar (57), Au (48), Cu (22, 23, 48, 74), He (9), Ni (9, 74), He (74), p <sup>+</sup> (100))
Cu <sub>3</sub> Au	(Cu (11, 19, 56))
Fe	(Ge, Fe, Xe, W (40))
GaAs	(As, P, B, Sb, Mg (68), Se (50))
Mo	(He (64), Cu (64), p <sup>+</sup> (75), Ta (90))
Mo-alloy	(Cu (91))
Nb	(He (31, 71), Ni (12, 32, 61), V (32))
Nb-1%Zr	(He (41), N (4), Ni, V (32))
Ni	(Au (48), Cu (48, 59), Dy (27), H (72), He (46, 62, 72, 86), Ni (6, 30, 34, 59, 85))
Ni-alloy	(N (45), Ni (15, 42, 65, 82), p <sup>+</sup> (88))
Si	(Ar (51), As (47, 68), B (1, 37, 68), Ge (67), Mg (68), N (38), P (47, 51, 68), Sb (68, 69), Si (39, 51, 53))
Ti-alloy	(Ni (101))
U	(Ar (20))
V	(Cu (94), He (96))
V-alloy	(Ni (93))
W	(Au (16))
Zn <sub>3</sub> Al	(C, N, Ar (54))
FV548	(C (33, 60), He (29), Ni (33, 60))
SUS 304	(He (8), Ni (26), Si (43, 78))
SUS 316	(Ar (17), C (58), Cr (8), Ni (21, 58, 76, 80, 83, 84, 97), He (81))
SUS 321	(N (7), Ni (21, 26))
SUS Misc	(C (33, 60), He (29), Ni (33, 60))

II-3. 文献  
以下に記載

## BIBLIOGRAPHY

- 1 J. J. Comer and S. A. Roosild  
Electron microscope observation of precipitation in boron implanted silicon  
Rad. Effects 25, 275-277 (1975)
- 2 F. Vasiliu and V. Teodorescu  
Gas bubble formation and growth processes in thin gold films bombarded by argon ion beams  
Rad. Effects 27, 75-79 (1975)
- 3 A. Hishinuma, Y. Katano, K. Jukaya and K. Shiraishi  
Re-irradiation effect on nucleation of voids  
J. Nucl. Mat. 55, 227-228 (1975)
- 4 B. A. Loomis, A. Taylor and S. B. Gerber  
Void swelling of Nb-1%Zr induced by  $^{58}\text{Ni}^+$  bombardment  
J. Nucl. Mat. 56, 25-37 (1975)
- 5 H. R. Brager  
The effects of cold working and pre-irradiation heat treatment on void formation in neutron-irradiated type 316 stainless steel  
J. Nucl. Mat. 57 103-118 (1975)
- 6 P. Regnier and L. D. Glowinski  
Effect du instantane sur la formation des cavites dans le nickel irradie aux ions  $\text{Ni}^+$  de 500 keV  
J. Nucl. Mat. 57, 243-245 (1975)
- 7 R. S. Nelson and J. A. Hudson  
The influence of different inert gas on void formation in stainless steel bombarded by 46.5 MeV  $\text{Ni}^{6+}$  ions  
J. Nucl. Mat. 58, 11-17 (1975)
- 8 C. A. English, B. L. Eyre, K. Shoaib and T. M. Williams  
Vacancy cluster damage in type 316 stainless steel irradiated with  $\text{Cr}^+$  ions  
J. Nucl. Mat. 58, 220-226 (1975)



- 9 J. Narayan, T. S. Noggle and O. S. Oen  
 Depth distribution of damage in copper irradiated with MeV Ni and He ions  
 Proc. Int. Conf. Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, Gatlinburg 1975 (USERDA CONF-751006) 90-97
  
- 10 M. Wilkens  
 Transmission electron microscopy of point defect clusters in metals produced by energetic heavy ions  
 Proc. Int. Conf. Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, Gatlinburg 1975 (USERDA CONF-751006) 98-112
  
- 11 M. J. Jenkins, K.-H. Katerbau and M. Wilkens  
 Displacement cascades in an ordered alloy  $\text{Cu}_3\text{Au}$  as revealed by transmission electron microscopy  
 Proc. Int. Conf. Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, Gatlinburg 1975 (USERDA CONF-751006) 113-119
  
- 12 J. B. Roberto and J. Narayan  
 Ni ion damage in Cu and Nb  
 Proc. Int. Conf. Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, Gatlinburg 1975 (USERDA CONF -751006) 134-137
  
- 13 M. O. Ruault, B. Jouffrey, J. Chaumont and H. Bernas  
 Study of clusters in ion irradiated gold  
 Proc. Int. Conf. Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, Gatlinburg 1975 (USERDA CONF-751006) 134-137
  
- 14 B. L. Eyre  
 Irradiation damage structures generated in metals and alloys during irradiation at elevated temperatures  
 Proc. Int. Conf. Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, Gatlinburg 1975 (USERDA CONF-751006) 729-763
  
- 15 D. I. Potter and H. A. Hoff  
 Effects of heavy-ion irradiation on the morphology of  $\gamma/\gamma'$  alloys  
 Proc. Int. Conf. Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, Gatlinburg 1975 (USERDA CONF-751006) 1092-1099
  
- 16 W. Jäger and M. Wilkens  
 Formation of vacancy-type dislocation loops in tungsten bombarded by 60 keV Au ions  
 Phys. Stat. Sol. (a) 32, 89-100 (1975)

- 17 S. Ishino, H. Kawanishi and K. Fukuya  
In-situ observation of radiation damage by 400 keV heavy ions  
US-Japan Sympo. Fusion Materials (1980)
- 18 W. A. Jesser, J. A. Horton and L. L. Scribner  
Adaptation of an ion accelerator to a high voltage electron microscope  
Rad. Effects 29, 79-82 (1976)
- 19 M. L. Jenkins and M. Wilkens  
Transmission electron microscopy studies of displacement cascades in  
Cu<sub>3</sub>Au II. Experimental investigation of cascades produced by  
energetic Cu<sup>+</sup> ions  
Phil. Mag. 34, 1155-1167 (1976)
- 20 P. E. Caillibat and I. J. Hastings  
Simulation of in-reactor swelling in U-3.5wt%Si-1.5wt%Al by ion  
bombardment  
J. Nucl. Mat. 59, 257-262
- 21 J. A. Hudson  
Void formation in solution-treated AISI 316 stainless steels under  
46.5 MeV Ni<sup>6+</sup> irradiation  
J. Nucl. Mat. 60, 89-106 (1976)
- 22 L. D. Glowinski  
Etude de la formation des cavites d'irradiation dans le cuivre  
II-irradiation aux ions cuivre de 500 keV-Effect de la dose  
J. Nucl. Mat. 61, 22-28 (1976)
- 23 L. D. Glowinski and C. Fiche  
Etude de la formation des cavites d'irradiation dans le cuivre  
III-irradiation aux ions cuivre de 500 keV-Effect des gaz implantés  
J. Nucl. Mat. 61, 29-40
- 24 E. Ruedl, O. Gautsch and E. Staroste  
Transmission electron microscopy of He-bubbles in aluminum  
J. Nucl. Mat. 62, 63-72 (1976)
- 25 D. J. Mazey, . Bullough and A. D. Brailsford  
Observation and analysis of damage structure in Al and Al/Mg(14) alloys  
after irradiation with 100 and 400 keV aluminum ions  
J. Nucl. Mat. 62, 73-88 (1976)

- 26 W. G. Johnston, J. H. Rosolonski and A. M. Turkalo and T. Lauritzed  
The depth distribution of void swelling produced by 5 MeV Ni ions  
J. Nucl. Mat. 62, 167-180 (1976)
- 27 R. Andrew  
A TEM study of an annealing behaviour of nickel implanted with  
dysprosium ions  
Phil. Mag. 35, 1153-1160 (1977)
- 28 D. J. Mazzey, B. L. Eyre, J. H. Evans, S. K. Erents and G. M. McCracken  
A transmission electron microscopy study of molybdenum irradiated with  
helium ions  
J. Nucl. Mat. 64, 145-156
- 29 T. M. Williams  
Void swelling in cold worked FV548 steel irradiated in a high voltage  
microscope after pre-injection with 10 ppm helium  
J. Nucl. Mat. 64, 183-188
- 30 J. Narayan and O. S. Oen  
Depth distribution of self-ion damage in nickel  
J. Nucl. Mat. 66, 158-162
- 31 L. A. Charlot, J. L. Brimhall and D. G. Atteridge  
Transmission electron microscopy on helium implanted niobium tensile  
specimens  
J. Nucl. Mat. 66, 203-208
- 32 B. A. Loomis, B. Gerber and A. Taylor  
Void ordering in ion-irradiated Nb and Nb-1%Zr  
J. Nucl. Mat. 68, 19-31
- 33 T. M. Williams, D. R. Arkell and B. L. Eyre  
The void swelling behaviour of solution-treated FV548 stainless steel  
irradiated with 22 MeV C<sup>2+</sup> and 46.5 MeV Ni<sup>6+</sup> ions and the influence  
of heat-treatment  
J. Nucl. Mat. 68, 69-81 (1977)
- 34 J. L. Brimhall and E. P. Simonen  
Effect of helium on void formation in nickel  
J. Nucl. Mat. 68, 235-243

- 35 H. Föll and M. Wilkens  
Transmission electron microscope studies of dislocation loops in heavy-ion irradiated H.C.P. Cobalt  
Phys. Stat. Sol. (a) 39, 561-571
- 36 G. Antesberger, W. Kesternich, K. Sonnenberg and B. D. Sharma  
 $\alpha$ -particle irradiation induced precipitation and phase instability in concentrated Fe-Cr-Ni alloys  
Rad. Effects 38, 45-51 (1978)
- 37 C. M. Shevlin and L. J. Demer  
Rapid identification of faulted loops in ion-implanted silicon  
Rad. Effects 38, 197-199
- 38 F. F. Komarov, I. A. Rogalevich and V. S. Tishkov  
Properties investigation of thin silicon nitride layers synthesized by ion implantation  
Rad. Effects 39, 163-167 (1978)
- 39 M. D. Rechtin, P. P. Pronko, G. Foti, L. Csepregi, E. F. Kennedy and J. W. Mayer  
An electron microscopy study of defect structures in recrystallized amorphous layers of self-ion-irradiated <III> silicon  
Phil. Mag. A 37, 605-620
- 40 M. L. Jenkins, C. A. English and B. L. Eyre  
Heavy-ion irradiation of  $\alpha$ -iron  
Phil. Mag. A 38, 97-114 (1978)
- 41 P. J. Goodhew and S. K. Tyler  
Bubbles and voids with ringed images  
J. Nucl. Mat. 73, 111-114
- 42 R. H. Jones  
Thoria redistribution in a Ni/ThO<sub>2</sub> alloy irradiated with 5 MeV Ni<sup>++</sup>  
J. Nucl. Mat. 74, 163-166 (1978)
- 43 J. N. McGruer, J. W. Choyke, J. R. Townsend, J. H. Chang, J. D. Yesso, J. A. Spitznagel, N. J. Doyle and F. J. Venskytis  
The effect of sequential and simultaneous helium implantation on void formation in a 304 stainless steel  
J. Nucl. Mat. 74, 174-177 (1978)

- 44 K. L. Bertram, F. J. Minter, J. A. Hudson and K. C. Russell  
Irradiation-enhanced precipitatin in Al-Ge alloys  
J. Nucl. Mat. 75, 42-51 (1978)
- 45 L. J. Chen and A. J. Ardell  
Void ordering in nitrogen-ion irradiated nickel-aluminum solid solutions  
J. Nucl. Mat. 75, 177-185 (1978)
- 46 G. Fenske, S. K. Das, M. Kaminsky and G. H. Miley  
Depth distribution of bubbles in  $^4\text{He}^+$ - ion irradiated nickel and the  
mechanism of blister formation  
J. Nucl. Mat. 76&77, 247-248
- 47 K. Seshan  
Observation on the development of secondary defects in heavily damaged  
ion-implanted (100) and (111) silicon  
Rad. effects 40, 29-35 (1979)
- 48 W. Frank, A. Seeger and R. Schindler  
Interpretation of radiation damage in platinum --- III Migration  
modes and thermal conversion of self-interstitials  
Rad. Effects 40, 239-248 (1979)
- 49 E. Dartyge, B. Reynaud and M.D.Ruault  
The observation of iron latent tracks in mica muscovite  
Rad. Effects 41, 115-117 (1979)
- 50 D. K. Sadana and G. R. Booker  
TEM structural studies on  $\text{Se}^+$  implanted GaAs  
Rad. Effects 42, 35-43 (1979)
- 51 F. F. Komarov, V. S. Solovyev and S. Yu. Shiryayev  
Crystallographic nature and formation mechanisms of highly irregular  
structure in implanted and annealed Si layers  
Rad. Effects 42, 169-178 (1979)
- 52 M. D. Rehtin  
A transmission electron microscopy study of the defects microstructure  
of  $\text{Al}_2\text{O}_3$  subjected to ion bombardment  
Rad. Effects 42, 129-144 (1979)

- 53 H. F. Kappert, N. Pfannkuche, K. F. Heidemann and E. te Kaat  
Spatial correlation between primary and secondary defect profiles  
after high dose self-irradiation of I crystals  
Rad. Effects 45, 33-43 (1979)
- 54 L. M. Howe and M. H. Rainville  
The nature of irradiation-produced damaged regions in ordered  $Zr_3Al$   
Phil. Mag. A 39, 195-212 (1979)
- 55 M. O. Uault, H. Bernas and J. Chaumont  
Transmission electron microscopy study of damage by ion implantation  
in gold Evidence for a spike threshold  
Phil. Mag. A 39, 757-783 (1979)
- 56 M. L. Jenkins and N. G. Norton and C. A. English  
Transmission-electron-microscopy studies of displacement cascades  
in  $Cu_3Au$  Cascades produced by 100-200 keV  $Cu^+$  ions  
Phil. Mag. A 40, 131-136 (1979)
- 57 Von B. Herter  
Elektronenmikroskopische Beobachtung von Fehlstellen-agglomeraten in  
Kupfer nach Beschuss mit 5 keV Argonionen  
Phil. Mag. A 40, 331-349 (1979)
- 58 T. M. Williams  
Interstitial loop nucleation and growth in solution-treated type  
316 stainless steel irradiated low doses with 22 MeV  $C^{2+}$  and 46.5 MeV  
 $Ni^{6+}$  ions  
J. Nucl. Mat. 79, 28-42 (1979)
- 59 J. B. Whilley, G. L. Kulcinsky, P. Wilkes and H. V. Smith Jr.  
The depth dependent damage profile in nickel irradiated with nickel  
or copper ions  
J. Nucl. Mat. 79, 159-169 (1979)
- 60 T. M. Williams and D. R. Arzell  
Void-swelling in 20% cold-worked FV548 austenitic stainless steels  
irradiated with 22 MeV  $C^{2+}$  ions or 46.5 MeV  $Ni^{6+}$  ions  
J. Nucl. Mat. 80, 79-87 (1979)
- 61 B. A. Loomis and S. B. Gerber  
Reduction of void-volume fraction in Nb by i alloying  
J. Nucl. Mat. 80, 383-385 (1979)

- 62 G. Fenske, S. K. Das and M. Kaminsky  
A technique for determining the depth distribution of cavities in He<sup>+</sup>-irradiated nickel  
J. Nucl. Mat. 80, 373-378 (1979)
- 63 P. R. Okamoto and L. E. Rehn  
Radiation-induced segregation in binary and ternary alloys  
J. Nucl. Mat. 83, 2-23 (1979)
- 64 K.-Y. Liou, H. V. Smith Jr., P. Wilkes and G. S. Kulcinski  
Observation on ordered voids in Molybdenum  
J. Nucl. Mat. 83, 335-339 (1979)
- 65 W. V. Vaidya  
Modification of the precipitate interface under irradiation and effect on the stability of precipitates  
J. Nucl. Mat. 83, 223-230 (1979)
- 66 E. M. Schulson  
The ordering and disordering of solid solutions under irradiation  
J. Nucl. Mat. 83, 239-264 (1979)
- 67 T. Bernstein, I. W. Hall and R. Kalish  
Study of the recrystallization of Si after implantation using different temperature and energy sequences  
Rad. Effects 46, 31-37 (1980)
- 68 J. Narayan, C. W. White and R. T. Young  
Transmission electron microscope study of laser annealing of ion damage in silicon and gallium arsenide  
Rad. Effects 47, 167-170 (1980)
- 69 W. K. Hofker, W. J. M. J. Josquin, D. P. Oosthoek and J. R. M. Gijbbers  
The influence of the implantation temperature on the generation of dislocations in antimony-implanted and annealed silicon  
Rad. Effects 47, 183-189 (1980)
- 70 U. Engmen and B. Holmgvist  
Electron microscopy studies of void swelling and annealing of voids in aluminum irradiated with aluminum ions  
Rad. Effects 47, 189-194 (1980)

- 71 R. G. St-Jacques, G. Veilleux, J. G. Martel and B. Terreault  
Helium blistering of niobium: large swelling measurements supporting  
the gas pressure model  
Rad. Effects 47, 233-236 (1980)
- 72 D. Kaletta  
Light element implantations in metals  
Rad. Effects 47, 237-252 (1980)
- 73 S. K. Sharma and J. Spitz  
Voids in thin silver films  
Phil. Mag. A 41, 209-217 (1980)
- 74 J. Narayan, O. S. Oen and T. S. Noggle  
Ion radiation damage in copper  
J. Nucl. Mat. 71, 160-170 (1977)
- 75 D. W. Keefer and A. G. Pard  
Void formation in proton-irradiated molybdenum  
J. Nucl. Mat. 71, 187-190 (1977)
- 76 E. H. Lee, L. K. Mansur and M. H. Yoo  
Spatial variation in void volume during changed particle bombardment  
The effect of injected interstitials  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 577-581 (1979)
- 77 J. A. Spitznagel, F. W. Wiffen and F. V. Nolfi  
Microstructure developed in 'simulated' fusion irradiation  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 629-646 (1979)
- 78 J. A. Spitznagel, N. J. Doyle and F. J. Venskytis  
Helium effects in ion-bombarded 304 stainless steel  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 647-651 (1979)
- 79 S. C. Agarwal, G. Ayrault, D. I. Potter, A. Taylor and F. V. Nolfi Jr.  
Microstructure of single and dual-ion irradiated Fe-20Ni-15 Cr and  
Ti-6Al-4V alloys  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 653-657 (1979)
- 80 E. A. Kenik  
The influence of helium on microstructural evolution in an ion-  
irradiated low-swelling stainless steel  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 659-663 (1979)



- 81 J. I. Bennetch, M. L. Sattler, L. L. Schiestle Horton, J. A. Horton,  
W. A. Jesser  
HVEM observations of in-situ He-ion bombardments  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 665-669 (1979)
- 82 D. J. Mazey and R. S. Nelson  
Observations of bubble-void transition effects in nickel alloys  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 671-675 (1979)
- 83 H. H. Packan and K. Farrell  
Simulation of first wall damage: Effects of the method of gas  
implantation  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 677-681 (1979)
- 84 K. Farrell and N. H. Packan  
A helium-induced shift in the temperature dependence of swelling  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 683-687 (1979)
- 85 J. B. Whitley  
Depth dependent void swelling rates in self-ion irradiated nickel  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 701-706 (1979)
- 86 G. Fenske, S. K. Das and M. Kaminsky  
The effect of dose on the evolution of cavities in 500-keV  $^4\text{He}^+$ -ion  
irradiated nickel  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 707-711 (1979)
- 87 P. J. Maziasz  
The precipitation response of 20%-cold-worked type 306 stainless steel  
to simulated fusion irradiation  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 713-717 (1979)
- 88 K. Janchorban and A. J. Ardell  
The early stages of irradiation induced  $\gamma'$  precipitation in proton  
irradiated nickel-silicon alloys  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 719-723 (1979)
- 89 K. Kitajima, K. Futagami and E. Kuramoto  
Nucleation of voids in Bcc metals  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 725-729 (1979)

- 90 J. L. Brimhall, L. A. Charlot, H. E. Kissinger  
Effect of He on the swelling/microstructure produced in Mo by  
ion bombardment  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 731-734 (1979)
- 91 K.-Y. Liou, P. Wilkes, G. L. Kulcinski, and J. H. Billen  
Void swelling and phase instability in heavy ion irradiated Mo-Zr alloy  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 735-738 (1979)
- 92 J. A. Sprague, F. A. Smith Jr., and J. R. Reed  
The microstructures of some refractory metals and alloys  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 739-743 (1979)
- 93 J. G. Schneider and W. Chen  
Helium gas bubble formation in binary and ternary alloys of vanadium  
irradiated by energetic  $Ni^{+++}$  ions  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 745-749 (1979)
- 94 R. G. Lott, G. L. Kulcinski, P. Wilkes and H. V. Smith Jr.  
Effect of nickel and nitrogen on void formation in ion bombarded  
vanadium  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 751-755 (1979)
- 95 E. Ruedl and P. Schiller  
The behaviour of He-bubbles in metals during high plastic deformation  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 769-773 (1979)
- 96 D. Kaletta  
The microstructure of vanadium implanted with 2-MeV helium ions  
under pulsed conditions  
J. Nucl. Mat. 85 & 86, 775-779 (1979)
- 97 T. M. Williams  
The effect of soluble carbon on void swelling and low dose dislocation  
structures in type 316 austenitic stainless steel irradiated with  
46.5 MeV  $Ni^{6+}$  ions  
J. Nucl. Mat. 88, 217-225 (1980)
- 98 L. Boulanger  
Boucles de dislocation multiples dans une austenite irradiee aux ions  
 $Ni^+$   
J. Nucl. Mat. 89, 129-135 (1980)

- 99 D. J. Mazey, D. R. Harries and J. A. Hudson  
The effects of silicon and titanium on void swelling and phase stability in 12Cr-15Ni austenitic alloys irradiated with 46 MeV Nickel ions  
J. Nucl. Mat. 89, 155-181 (1980)
- 100 P. B. Johnson and D. J. Mazey  
Hydrogen gas-bubble structure in proton-irradiated copper at 300 K  
J. Nucl. Mat. 91, 41-46 (1980)
- 101 R. H. Jones and L. A. Charlot  
Microstructure of irradiated Ti-70A and Ti-6Al-4V  
J. Nucl. Mat. 91, 329-335 (1980)

### III - 5 金属のイオン照射における欠陥生成率\*

原研 岩 田 忠 夫

#### 1. はじめに

金属に高速イオンを照射したときの欠陥生成率に関する実験の論文を調査した。いわゆる欠陥の回復が起こらない程度、即ち 10 K 以下の温度で照射した場合のみを対象とした。

欠陥の数の検出は電気抵抗の変化を測定して行っている。その他の物性を測定している例は未だない。電気抵抗の測定が他の測定と比べて容易だからであろう。電気抵抗の変化による欠陥の数の測定には問題がいろいろある。まず、照射によってできるフレンケル欠陥 1 対あたりの電気抵抗の値はほんのわずかの代表的金属について知られているだけである。合金に対しては全くわかっていない。次に、その値がどの程度信用できるか、また抵抗値の変化は欠陥濃度に対して linear かなどの問題がある。しかし、そういうことにいちいちこだわっているよりも、とにかく一歩でも前に進もうということであろう。

電気抵抗の測定は比較的容易であるのに、論文はそれ程多くなかった。それは、結晶性と純度のよい薄膜試料をつくるのが一般に難しいためであると思われる。

#### 2. 原子のはじき出しのカスケードについて

エネルギーが  $T$  の PKA (Primary Knock-on Atom, 1 次はじき出し原子) からはじまる衝突カスケードにおいて、つくられるはじき出しの数 (即ち、フレンケル欠陥の数) の平均値  $\nu(T)$  は  $T \gg T_d$  のとき、

$$\nu(T) = \xi \frac{T}{2T_d} \quad (1)$$

で与えられる。ここで、 $T_d$  は、はじき出しエネルギー (displacement threshold energy),  $\xi$  は損傷効率 (damage efficiency) である。 $T_d$  は結晶格子の中ではじき出される方向に依存するが、カスケードの生成に対してはそれを空間的に平均したものをを用いる。原子を 1 つだけはじき出すときの  $T_d$  とカスケードにおける  $T_d$  とは異なる筈であるが、現在のカスケード理論でなされている多くの仮定に比べれば、両者を同じと考えて差し支えない。 $\xi$  は衝突における相互作用のポテンシャルに依存して、即ち散乱断面積に依存して 0 と 1 の間の定数をとる。剛体球ポテンシャルに対しては  $\xi = 1$  であるが、ポテンシャルが soft な場合には  $\xi$  は 1 より小さくなる。二体衝突近似による計算機シミュレーションの結果にもとづいて、 $\xi \cong 0.8$  とすることが多い。後述の実験では、PKA のエネルギーが高くなると  $\xi$  が小さくなるが、これは相互作用のポテンシャルによるものではなく、主として spontaneous recombination によるものと考えられている。

#### 3. ANL における実験

Cu と Ag に各種のイオンを照射して、欠陥生成率を電気抵抗の測定より求めている。例えば、Cu の場合には、17 keV H, 35 keV He, 54 keV Li, 100 keV C, 150 keV N, 160 keV Ne,

\* Defect Production Rates in Ion-irradiated Metals.

320keV Ar, 500keV Cu, 520keV Kr, 560keV Ag 及び 855keV Bi などを照射している。

損傷断面積 (displacement cross section) の理論値  $\sigma_{d, cal}$  は, LSS 理論の微分散乱断面積と(1)式で  $\xi = 0.8$  とおいたものから計算している。損傷断面積の実験値  $\sigma_{d, exp}$  とこの  $\sigma_{d, cal}$  との比  $\sigma_{d, exp} / \sigma_{d, cal}$  を彼等は damage efficiency とよび,  $\xi$  とおいている。

ANL グループの  $\xi$  は, 照射粒子の質量あるいはエネルギーを増加させるなどして PKA のエネルギーを高くするとき, 1 に近い値から約 0.3 まで減少した。また, 中性子照射の結果とも比較している。(以上は I-1~4)。

更に, fission fragment や各種のイオンを照射し続けて電気抵抗が飽和したときの値, 即ち saturation resistivity が照射粒子によって異なることを見だし, はじき出しのカスケードについて論じている (I-5)。また, Pt, Au, Al の軽イオン照射についても欠陥生成率を測定している (I-6,7)。

#### 4. ORNL における実験 (II-1~6)

Noggle らは, 測定試料の直前にそれと同じ材質の absorber をおき, その absorber の厚さを変えながら照射による試料の電気抵抗の変化を 10 K 以下で測定した。これにより, 実質的に欠陥の分布を表面からの深さの関数として求めたことになる。

Al に Al イオンの照射, Ni に Ni イオンの照射及び Fe-Cr 合金に Ni イオンの照射を行って, それぞれの場合の欠陥分布を求めている。理論との比較にあたって, LSS 理論に含まれる電子的阻止能をパラメータとして curve-fitting を行っている。また, Al に各種のイオンを照射して, curve-fitting から求めた電子的阻止能を, イオンの原子番号  $Z_1$  の関数として示している。更に, Al  $\rightarrow$  Al の場合については, 表面における (即ち absorber なしのときの) 欠陥生成率及び分布のピークの高さについて理論と実験の比較を行っている。中性子照射における欠陥生成率との比較も行っている。

このグループは, 室温で照射した試料について, 電子顕微鏡観察により欠陥の分布 (この場合は転位ループとよばれる大型の欠陥の分布である) を調べることを最初に行ったグループである。しかし, 欠陥を nascent なかたちでとらえるには 10 K 以下の照射によらなければならないわけである。

#### 5. その他の実験

Andersen らは Ag, Pt, Au に 4~13 MeV の p と d, 及び 12~20 MeV の  $^3\text{He}$  と  $^4\text{He}$  を照射し, 欠陥生成率のエネルギー依存性を調べた (III-1)。エネルギー依存性はほぼラザフォード散乱から予想されるものに近いが, それからのずれも見られる。III-1 は 16 頁にも及ぶ大論文であり, 実験に関する詳しい記述がある。

McMaster では, Fe, Zr, Cu に 10~16 MeV の p を照射し, 電気抵抗変化より欠陥生成率を求めている (IV-1)。

Erlangen-Nurnberg では, Pb と Cu に 25 MeV の O を照射して欠陥生成率を測定している。その結果を recombination volume や annealing と関連させて議論している (V-1,2)。

JAERI では, Al に 0.4~1.8 MeV の p を, Ni に 0.9~1.8 MeV の p をそれぞれ照射したとき

の欠陥生成率を測定した。(1)式で $\xi = 0.8$ とおき、 $T_d$ をパラメータとして計算した。 $\sigma_{d, cal}$ が実験から求めた $\sigma_{d, exp}$ と一致するように $T_d$ をきめた。この $T_d$ は、IAEAのワークショップで提案されたNRTモデルの実効的なはじき出しエネルギー (effective displacement threshold energy) に相当するものであろう (VI-1,2)。

参考までに、中性子照射における欠陥生成率の実験と、はじき出しのしきいエネルギーに関するレビューをAppendix AとBに示した。

## 参 考 文 献

- I. Argonne National Laboratory (USA)
1. K. L. Merkle and L. R. Singer :  
"Radiation Damage in Thin Metal Films at 4.2K",  
Appl. Phys. Letters 11 (1967) 35.
  2. K. L. Merkle, R. S. Averback and R. Benedek :  
"Energy Dependence of Defect Production in  
Displacement Cascades in Silver",  
Phys. Rev. Letters 38 (1977) 424.
  3. R. S. Averback, R. Benedek and K. L. Merkle :  
"Efficiency of Defect Production in Cascades",  
J. Nucl. Mater. 69 & 70 (1978) 786.
  4. R. S. Averback, R. Benedek and K. L. Merkle :  
"Correlation between Ion and Neutron Irradiation :  
Defect Production and Stage I Recovery",  
J. Nucl. Mater. 75 (1978) 162.
  5. R. C. Birtcher, R. S. Averback and T. H. Blewitt :  
"Saturation Behavior of Cascade Damage Production  
Using Fission Fragment and Ion Irradiations",  
J. Nucl. Mater. 75 (1978) 167.
  6. Y. N. Lwin, P. A. Brown, J. J. Jackson and  
E. A. Ryan :  
"The Initial Rate of Accumulation of Frenkel  
Defects in Platinum",  
Phys. Stat. Sol. (a) 25 (1974) 223.
  7. K. Herschbach and J. J. Jackson :  
"Radiation Annealing in Deuteron-Irradiated Gold,  
Aluminum and Platinum",  
Phys. Rev. 153 (1967) 689.
- II. Oak Ridge National Laboratory (USA)
1. T. S. Noggle, B. R. Appleton, J. M. Williams,  
O. S. Oen, J. A. Biggerstaff and T. Iwata :  
"Damage Rates of MeV Aluminum Ions in Aluminum",  
Proceedings of the Fourth Conference on the

Scientific and Industrial Applications of Small Accelerators, ed. by J. L. Duggan and I. L. Morgan, IEEE 76CH1175-9 NTS, Piscataway, N. J., 1976, P. 225.

2. T. S. Noggle, B. R. Appleton, J. M. Williams, O. S. Oen, J. A. Biggerstaff and T. Iwata :  
"Damage Production Rates of 5 MeV Al Ions in Al",  
J. Nucl. Mater. 69 & 70 (1978) 797.
3. T. S. Noggle, J. M. Williams, B. R. Appleton and T. Iwata :  
"Damage Production Rates of 17.4-MeV Nickel Ions in Nickel", ORNL-5328 (1977) P. 103.
4. T. S. Noggle, J. M. Williams, B. R. Appleton and G. Vogl :  
"Ion Damage in Al",  
ORNL-5486 (1978) P. 98.
5. T. S. Noggle, B. R. Appleton and J. M. Williams :  
"Normalization of Fast-Neutron Damage to Self-Ion Damage in Al",  
ORNL-5486 (1978) P. 100.
6. T. S. Noggle, D. B. Poker and B. R. Appleton :  
"Ni-Ion Damage Production Rates in Fe-17%Cr",  
ORNL-5640 (1980) P. 131.

### III. Risø (Denmark)

1. H. H. Andersen and H. Sørensen :  
"The Energy Dependence of Proton, Deuteron, and Helium-Ion Radiation Damage in Silver, Platinum, and Gold",  
radiation effects 14 (1972) 49.

### IV. McMaster University (Canada)

1. A. M. Omar, J. E. Robinson and D. A. Thompson :  
"10-16 MeV Proton Irradiation of Iron, Zirconium and Copper : Resistivity-Dose Measurements",  
J. Nucl. Mater. 84 (1979) 173.



- V. Universität Erlangen-Nürnberg (West Germany)
1. S. Klaumünzer, G. Ischenko and H. Neumüller :  
"Study of Damage Rate Decrease of Lead Irradiated  
with 25 MeV Oxygen Ions at 7.2 K",  
Rad. Eff. 35 (1978) 45.
  2. M. Lehmann, G. Saemann-Ischenko, H. Adrian,  
J. Bieger and P. Müller :  
"Irradiation of Copper with 25 MeV Oxygen Ions-  
Defect Production and Annealing",  
Rad. Eff. 46 (1980) 227.

VI. JAERI

1. T. Iwata, A. Iwase, T. Nihira and S. Sasaki :  
"Study of Damage Production in Ion-Irradiated  
Metals by Calorimetry and Resistivity Measurement",  
Japan-US Seminar (A-10) on Materials, October  
27-30, 1980 at JAERI.
2. A. Iwase, T. Iwata, T. Nihira and S. Sasaki :  
"Defect Production Cross Section of Al and Ni  
for Proton Bombardment",  
Private communication (1980).

Appendix A : Defect Production Rates in Neutron-  
Irradiated Metals.

I. Chalk River (Canada)

1. M. L. Swanson and G. R. Piercy :  
"Low-Temperature Neutron Irradiation Damage in  
Aluminum and Gold",  
Can. J. Phys. 42 (1964) 1605.

II. Argonne National Laboratory (USA)

1. J. A. Horak and T. H. Blewitt :  
"Fast Neutron Irradiation Induced Resistivity in  
Metals",  
Phys. Stat. Sol. (a) 9 (1972) 721.

- III. Technische Universität München (Germany)
1. M. Nakagawa, K. Böning, P. Rosner and G. Vogl :  
"High-Dose Neutron-Irradiation Effects in FCC Metals at 4.6 K",  
Phys. Rev. B 16 (1977) 5285.
  2. M. Nakagawa, W. Mansel, K. Böning, P. Rosner and G. Vogl :  
"Spontaneous Recombination Volumes of Frenkel Defects in Neutron-Irradiated Non-FCC Metals",  
Phys. Rev. B 19 (1979) 742.

- IV. Oak Ridge National Laboratory (USA)
1. J. B. Roberto, C. E. Klabunde, J. M. Williams, R. R. Coltman, Jr., M. J. Saltmarch and C. B. Fulmer :  
"Damage Production by High-Energy d-Be Neutrons in Copper, Niobium and Platinum at 4.2K",  
Appl. Phys. Lett. 30 (1977) 509.
  2. R. R. Coltman, Jr., C. E. Klabunde and J. M. Williams :  
"Rates of Defect Production by Fission Neutrons in Metals at 4.7 K",  
ORNL-5640 (1980) P. 125 ; (to be published)

Appendix B : Reviews on Displacement Threshold Energies in Metals.

- I. Universite de Paris-Sud (Orsay, France)
1. P. Lucasson :  
"The Production of Frenkel Defects in Metals",  
US CONF-751006-P1 (1976) P. 42.
  2. P. Vajda :  
"Anisotropy of Electron Radiation Damage in Metal Crystals",  
Rev. Mod. Phys. 49 (1977) 481.

### III - 6 中性He粒子による高融点金属のブリスタリング\*

阪大工 布 垣 昌 伸, 岡 田 東 一

プラズマの追加熱を中性粒子入射により行う場合, 中性粒子入射器及び炉心プラズマを透過した高速中性粒子に対するエネルギー回収器, 可動リミッター, その他開放端系核融合炉の炉端からの漏洩プラズマを用いる直接発電器などの製作上, 中性粒子と各種器壁材料との相互作用が問題となる。しかし, 中性粒子ビームを用いたその種の実験的研究はあまりなされていない。

また, 炉構成材料一般に関して, 炉心プラズマにより近い環境下でのプラズマと壁材料との相互作用を調べるために, エネルギー分布をもつイオンビーム, 或いは中性粒子束を用いたPMI研究が必要である<sup>(1)</sup>

そこで単色エネルギーイオンビームを高融点且つスパッタリング収率の低いNbなどに反射させることにより, 入射エネルギーから熱速度までエネルギーが広く分布した中性(約90%)粒子束を簡便に得る方法が開発された<sup>(2)</sup>。この方法を用いて0~40 keVのエネルギー分布をもつ中性He粒子束を生成し, 約300°KのMo板に照射した結果, 写真1に示すブリスターが形成された。

写真1

反射板電流密度

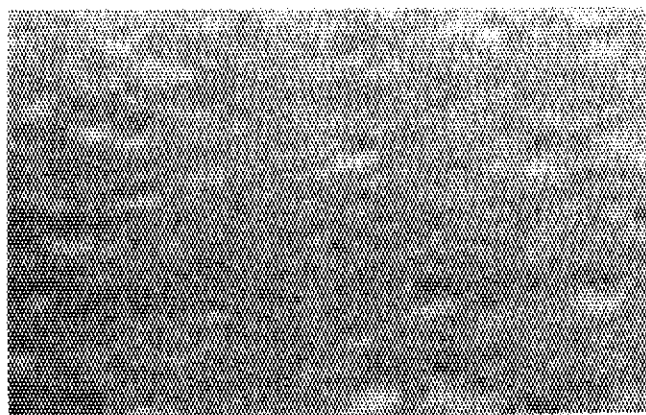
$$J = 1.8 \text{ mA} / \text{cm}^2$$

Mo板照射線量

$$\Phi = 13 \text{ C} / \text{cm}^2$$

照射温度

$$T = \text{ambient}$$



写真から, (a)ビームエネルギーが連続的に変化する中性粒子照射によってもブリスタリングは発生する, その場合(b)ブリスター表皮の面積分布は非常に小さいものから照射ビームの最大レンジに対応する大きなものまで広い分布を示す, (c)ブリスターの形状は円形の他に非対称のものが混在する, などの知見が得られた。以上は主としてビームエネルギーの分散による効果である。ビームの中性化による効果についてはビームエネルギーが主として数keV以下の低エネルギー領域について目下実験中である。

1979年までに公表されたブリスタリングに関するデータは原研未公開資料(鎌田, 西堂編)に整理記載されているので, それ以降に公表された1980年を中心とする文献についてのみ調査した<sup>(3)</sup>。探索対象雑誌名を次に列記した。

Journal of Nuclear Materials, Radiation Effects, Journal of Physics, Nuclear Fusion,

\* Blistering due to Neutral He Particle Bombardment in Refractory Metals.

Nuclear Instruments and Methods, Applied Physics Letters, Journal of Applied Physics, Ionizing Radiation, Ionics, 日本原子力学会誌, 日本物理学会誌, 日本金属学会誌, 第2回核融合連合講演会予稿集.

ブリスター関係の論文 28 編の内, 特に興味を引く約 10 編の論文の研究対象と結果の概略を次に記した。

- (I) P. B. Johnson らは Cu や Ti などの金属結晶に  $\text{He}^+$  や  $\text{H}^+$  などを室温照射した後, ブリスター形成直前の金属中の気泡の空間配位を透過型電顕で観察した。その結果, 生成された気泡は被照射金属と同じく f. c. c. 及び h. c. p. などの結晶構造をもつこと, 気泡の直径  $\phi$  及び格子間定数  $a_1$  は  $\phi \sim$  数 nm,  $a_1 \sim 7 - 12$  nm であること, それらの気泡が数珠状に繋がって 20 nm  $\sim$  50 nm の気泡となり, 更に成長することにより数 nm 程度のブリスターになることを述べている<sup>(4)</sup>
- (II) 上述のようにブリスター形成は気泡成長に深い関連をもつが, 気泡成長説を検証するためには気泡内ガス圧が金属中にブリスターを形成するに十分な程度の高ガス圧であることを実験により確認する必要がある。Donnelly らは加速器のストレージリングからの電子シンクロトロン放射による遠紫外線を He 気泡に照射して気泡ガス圧を測定した<sup>(5)</sup>。照射光の気泡ガスによる共鳴吸収が気泡表皮 (Al) での吸収よりも大きい性質を利用している。実験結果としてブリスター形成直前の気泡内圧は  $10^{23}$  atm/cm<sup>3</sup> 以上に相当することを述べている。
- (III) 国内 (九大) でも高完全度銅結晶に  $\text{Ar}^+$  ビームを照射し, 結晶方位とブリスター形成との関係が調べられた。そして, 表面層の球状湾曲性がブリスター形成上の重要因子であるとの示唆を得たことを述べている<sup>(6)</sup>。
- (IV) 核融合プラズマに近い状態で炉壁材のブリスタリングを調べる目的で, 種々の純金属及び合金に対してイオン種及びビームエネルギーの異なる  $\text{H}^+$ ,  $\text{D}^+$ ,  $\text{He}^+$  などから成るイオンビームの同時照射が行われた<sup>(7-9)</sup>。しかし, 共同効果などについての詳細は未だ十分に明らかにされるには至っていない。
- (V) 以上の他, 低 Z 材料の表面被覆膜に形成される気泡についての電顕観察<sup>(10)</sup>, 低温下での壁材料内部の転位ループと気泡の関係<sup>(11)</sup>, ブリスタリングやフレーキングの繰返し<sup>(12)</sup>が起る条件などについても報告がなされている。
- (VI) 以上紹介した以外のブリスタリングに直接関連する論文の題目, 著者, 書名, 号数などについては参考文献の (13) 以下に列記した。

References

- (1) Yu.L. Igitkhanov; I.P. Stakhanov : Effect of a temperature gradient on the neutral-atom distribution in the boundary region of the plasma column, Nuclear Fusion 19, 11(1979) 1534.
- (2) S. Okuda, H. Kuwahara, M. Nunogaki & T. Okada: Blister formation by scattered He particles, Proc of the 2nd Kakuyugo Rengo Koenkai, (1981) at Tsukuba.
- (3) Y. Nakai & N. Oda : Atomic and molecular processes for fusion research, J. Nucl. Sci. Technol. 22, 5 (1980).
- (4) P.B. Johnson & D.J. Mazey : The gas-bubble superlattice and the development of surface structure in He<sup>+</sup> and H<sup>+</sup> irradiated metals at 300K, J. Nucl. Mater. 93 & 94 (1980) 721.
- (5) S.E. Donnelly, J.C. Rife, J.M. Gilles & A.A. Lucas : Optical measurements of the density of helium in small bubbles in aluminum films, J. Nucl. Mater. 93 & 94 (1980) 767.
- (6) 北島貞吉, 徳納一成, 篠原和敏, 木下智見, 吉田博行, 林 禎彦, 希ガスイオン照射高安全度銅結晶のプリスタリング 日本金属学会 昭和 55 年秋季講演会予稿集
- (7) B.G. Vladimirov, M.I. Guseva, E.S. Ionova, A.N. Mansurova, Yu.V. Martynenko & A.I. Rjazanov : The blistering of stainless steel under simultaneous D<sup>+</sup> and H<sup>+</sup> ion irradiation, J. Nucl. Mater. 93 & 94 (1980) 734.
- (8) B. Navinseki, M. Peternel & A. Zabkar : Blistering and deuterium trapping induced by D<sup>+</sup> ion bombardment in metal alloys, J. Nucl. Mater. 93 & 94 (1980) 739.
- (9) W. Jager & J. Roth : Surface modification of Ni and stainless steel after multiple energy He and D implantation , Proc. of the 4th Int. Conf. on Plasma Surface Interactions in Controlled Fusion Devices, at Garmisch (1980).
- (10) S.E. Donnelly, G. Debras, J.M. Gilles & A.A. Lucas: The deformation of thin aluminum films under helium ion bombardment, Radiation Effects Letters. 50 (1980) 57.
- (11) R.S. Nelson : Radiation blistering-an interpretation based on radiation-stimulated vacancy migration, J. Nucl. Mater. 88 (1980) 322.

- (12) B. Terreault : When are blistering or flaking repetitive?, J. Nucl. Mater. 93 & 94 (1980) 707.
- (13) W. G. Wolfer : The role of gas pressure and lateral stress on blistering, J. Nucl. Mater. 93 & 94 (1980) 713.
- (14) P.B. Johnson & D.J. Mazey: The gas-bubble superlattice and the development of surface structure in He<sup>+</sup> and H<sup>+</sup> irradiated metals at 300K, *ibid.* (1980) 721.
- (15) M. Braun, B. Enmoth & J.L. Whitton : Blistering and exfoliation of 304 stainless steel studied by SEM and RBS, *ibid.* (1980) 728.
- (16) J.H. Evans : Blister lid thickness measurements - a discussion in terms of the interbubble fracture model of blister formation, *ibid.* (1980) 745.
- (17) W. Moller, F. Besenbacher & T. Laursen : The correlation between ion retention and surface deformation in deuterium-implanted metals, *ibid.* (1980) 750.
- (18) W. Jager & J. Roth : Microstructure of Ni and stainless steel after multiple energy He and D implantation, *ibid.* (1980) 756.
- (19) W.G. Wolfer : The role of gas pressure and lateral stress on blistering, *ibid.* (1980) 713.
- (20) Yu.V. Martynenko : The role of cascades in void generation, *Radiation Effects*, 41,1 (1979) 7.
- (21) S.K. Das & M. Kaminsky : Deuterium and helium ion irradiation effects on TiB<sub>2</sub> coatings, *Thin Solid Films* 63 (1979) 269.
- (22) F.J. Demond, S. Kalbitzer, H. Mannsperger & G. Muller : Range parameters of protons in silicon implanted at energies from 0.5 to 300 keV, *Nucl. Instrum. Methods* 168 (1980) 69.
- (23) Y.V. Martynenko : The theory of blister formation, *Radiat. Eff.* 45 (1979) 93.
- (24) B.M. Pande, M.S. Anand & R.P. Agarwala : Study of blisters formed due to helium ion bombardment on stainless steel, *Indian J. Pure Appl. Phys.* 18 (1980) 74.
- (25) L.M. Hively & G.H. Miley : Prompt and non-prompt contributions to fusion product bombardment of a tokamak first wall, *Nuclear Fusion*, 20, 8 (1980) 969.
- (26) G.R. Hopkins : Fusion reactor materials, *Nuclear Fusion*, 19, 9 (1979) 1273.

- (27) V.A. Abramov : Impurities in tokamaks:sources, effects and control, Nuclear Fusion 20, 2 (1980) 225.
- (28) JAERI-M 8971 : Proc. of the US/Japan workshop on divertors, first wall materials, and impurity control, (1980).

### III - 7 核融合炉材料の中性子照射損傷\*

原研 白石 健 介

#### 1. はじめに

核融合炉で設計研究が最も進んでいるのはD-Tトカマク炉であるが、この炉が経済的な観点から動力炉として成立するためには、ブランケット構造材料には2~4 MW/m<sup>2</sup>の中性子壁負荷で5~10年の使用に耐えること、すなわち10~20 MW·yr/m<sup>2</sup>の寿命をもつことが望まれている。

ブランケット構造材料としてステンレス鋼 (SUS 316 相当) を使用する場合、1 MW/m<sup>2</sup>の中性子壁負荷では1年間の照射によって~10 dpaのはじき出しが起こるほか、核変換により200 appmのヘリウムが生成する。このことは、10 MW·yr/m<sup>2</sup>に相当する使用期間中にステンレス鋼には100 dpaのはじき出しが起こり、2000 appmのヘリウムが生じることを意味する。この損傷は、高速増殖炉の炉心材料の使用限界\*\*の一応の目安である $1 \times 10^{27}$  n/m<sup>2</sup> (En > 0.1 MeV) が~50 dpaに当たることを考えると、ステンレス鋼にとって非常に大きなものであるといえる。

以上のことから、核融合動力炉の開発において、ブランケット構造材料の中性子照射損傷は乗り越えなくてはならない最大の障壁の一つであり、核融合炉における厳しい照射に耐える材料の開発が重要であることが理解できる。

高速増殖炉の燃料被覆管やラッパー管の材料として使用されているSUS 316に相当するステンレス鋼は、工業材料として信頼できるものであり、実際の使用経験から中性子照射による材料特性の変化も良く分かった材料であるといえる。高速増殖炉の材料としては、316鋼に比べてニッケル量を多くした合金の開発が進められているが、ニッケル量の多い材料では、それだけで高温でのヘリウムによる脆化が著しく、しかも核融合炉の照射条件ではヘリウムの生成量が多くなるので、核融合炉の材料としては、316鋼より優れているとはいえない。この他の材料では、実用的な観点から中性子照射損傷の程度を予測できるほどには試験データが整ってはいないし、核融合炉における照射損傷を評価するための実験手段さえないのが、現状である。従って、動力炉のブランケット構造材料として現実的な考慮の対象となるのは、現状ではSUS 316に相当するステンレス鋼のみである。<sup>(1)</sup>

#### 2. ステンレス鋼の中性子照射損傷

ステンレス鋼は、核変換によってヘリウムが多量に生成する様な場で照射すると、~500℃以上の温度で延性の低下およびスエリングによる寸法変化が著しい。<sup>(2)</sup>従って、核融合炉のブランケット構造材料としてのステンレス鋼の使用温度は500℃以下に限られる。最高使用温度を450℃程度にするならば、延性の低下、スエリングによる寸法変化、さらに疲労特性の観点から、20%

\* Neutron Irradiation Damage in Fusion Reactor Materials.

\*\* 高速増殖炉の炉心材料としては、現在 $2 \times 10^{27}$  n/m<sup>2</sup> (En > 0.1 MeV) 以上の使用に耐えることを目標に研究が進められている。



冷間加工したSUS 316に相当するステンレス鋼は少なくとも 50dpa程度の照射には耐えることが期待される<sup>(3)</sup>。この照射量は、 $5 \text{ MW} \cdot \text{yr}/\text{m}^2$ に相当するもので、動力炉の構造材料として望まれている  $10 \sim 20 \text{ MW} \cdot \text{yr}/\text{m}^2$ の寿命の僅か $\frac{1}{2} \sim \frac{1}{4}$ に過ぎない。しかし、このことは現在高速増殖炉で使用されているステンレス鋼の核融合炉での寿命は  $5 \text{ MW} \cdot \text{yr}/\text{m}^2$ であることを意味するのではなく、現状では  $5 \text{ MW} \cdot \text{yr}/\text{m}^2$ に相当する程度の照射試験データしか無いということである。もっとも、ヘリウムの影響が無視できるとすると、高速増殖炉の炉心材料としての照射試験のデータからSUS 316に相当するステンレス鋼は、核融合炉で  $7 \text{ MW} \cdot \text{yr}/\text{m}^2$ 程度の寿命は期待できる。

高速増殖炉の炉心材料の開発研究で、SUS 316に相当するステンレス鋼に0.2～0.3 w/oのチタンを添加すると照射による延性の低下が軽減されるほか、スエリングもかなり減少することが明らかにされている。この材料のスエリング特性の改善には珪素の添加も有効であるが、添加量が多いと長時間の照射中に $\text{Ni}_3\text{Si}$ が析出し、スエリングはかえって増加する。この様な経験から珪素の添加量は0.5 w/o程度が最適であるとされている。ステンレス鋼中の微量添加元素は、材料中に固溶しているとスエリングの抑制に効果を及ぼすが、化合物として析出するとスエリングを抑制する効果が無くなったり、かえって悪い影響を及ぼすようになる。この様なことを考慮すると炭素の最適量は0.5 w/o程度である。比較的短時間の照射試験ではクロム量が少ないほど、ステンレス鋼の耐スエリング性は良くなるが、耐食性が悪くなるほか、長時間の照射では、オーステナイト相の安定性が悪くなるので、クロム量は15 w/o程度が適量である。ニッケル量が多い材料では耐スエリング性が良くなることはよく知られているが、先に述べた様にニッケル量が多くなると照射によって脆化し易くなるほか、ステンレス鋼の組成がSUS 316から大きく外れると照射損傷に関する試験データが無いので、核融合炉で使用する際の寿命の見当がつかなくなる。これらの点を考慮し、オーステナイト鋼としての組成のバランスを考えるとニッケルの適量は15 w/o程度になる。

以上の考察から、SUS 316に相当するステンレス鋼の照射特性をかなり改善することが期待できる<sup>(4)</sup>。なお、この改良ステンレス鋼にジルコニウムやニオブを添加すると、照射特性がさらに改善できる可能性もあるが、これらの元素を添加すると材料の製造・加工性が悪くなるほか、材料特性の安全性も悪くなることが予想されるので、総合的にはこれらの元素は添加しない方が得策であると判断される。この改良ステンレス鋼は、核融合炉のブランケット構造材料としても、SUS 316に相当する材料より優れていると予想されるが、316ステンレス鋼に比べて照射試験データが極端に少ない。ステンレス鋼の改良ということでは、材料の組成をいじるよりは、現時点で最適と判断される組成の材料の照射試験を実施し、核融合炉における照射損傷の程度を的確に予測するために必要なデータを蓄積することがはるかに重要なことである。

### 3. 中性子照射の模擬試験

核融合炉材料の中性子照射試験に核分裂炉を活用しなくてはならないが、核分裂炉では非常に長時間の照射が必要になる。例えば、高速実験炉であるJOYOで、ステンレス鋼を  $5 \text{ MW} \cdot \text{yr}/\text{m}^2$ に相当する  $1 \times 10^{27} \text{ n}/\text{m}^2$  ( $E_n > 0.1 \text{ MeV}$ )の照射をするのに約2年の期間が必要であるし、研究用の熱中性子炉であるORRでは  $5 \text{ MW} \cdot \text{yr}/\text{m}^2$ に相当する照射に約10年を要する。加速器を

用いた重イオンの照射では、僅か数時間で5～10 MW・yr/m<sup>2</sup>に相当する損傷をステンレス鋼に与えることが出来る。

中性子照射を模擬した加速器による重イオン照射試験は、短時間に大きな損傷を起こすことができる特徴を生かして、高速増殖炉の炉心材料および核融合炉のブランケット構造材料の照射損傷に関する研究、さらにはこれらの材料開発に相当の成果を上げてきた。しかし、イオン照射の実験データが蓄積され、高速増殖炉における中性子照射試験のデータも豊富になり、両者がかなり良い精度で比較できるようになってくると、加速器を用いた重イオン照射の実験結果は原子炉を用いた中性子照射試験の結果と異ったものであることが次第に明らかになってきた。

加速器を用いた重イオン照射では、原子炉による中性子照射に比べて、ステンレス鋼では原子のはじき出し速度が3～4桁大きい。このため、重イオン照射した試料でスエリングが起こる温度範囲は、高速増殖炉で照射した試料より100℃程度高温側に移動する。このこと自体はそれほど重大なことではないが、照射誘起偏析や照射誘起析出が関係してくると事態は深刻になる。すなわち、イオン照射の場合、ボイドの生成・成長に大きな影響を及ぼす照射中の偏析や析出を中性子照射の場合と同様に起こさせることは望めない。照射中の偏析や析出は温度が重要な因子であり、損傷速度によって大きく変化しないと考えられる。もし、照射中に起こる偏析や析出が損傷速度に影響されるとすれば、照射温度の低い方で影響が大きいことが予想される。従って、イオン照射では中性子照射温度を基準として、ボイドによるスエリングの現象は高温側につれ、偏析や析出の現象はどちらかといえば低温側につれる。このことは、イオン照射試験では、照射による偏析や析出が関係したスエリングの現象について、中性子照射を模擬することができないことを意味する。実際、原子炉による中性子照射試験では、加速器を用いた重イオン照射の場合と全く異った析出相が観察されている。実際の原子炉における中性子照射で起こる照射誘起析出の現象を模擬するために、イオン照射で損傷速度を小さくすることは、重イオン照射試験の最大の利点である実験時間の短縮を放棄することで、無意味である。

ステンレス鋼の中性子照射の模擬試験としての重イオン照射実験において、原子の衝突の過程で生じるカスケードの効果について検討することを忘れてはならない。重イオン照射でも中性子照射と同様に大きなカスケードが生じるが、このことは重イオン照射が中性子照射をよく模擬していることを意味するものではない。重イオン照射では、中性子照射に比べて、はじき出し損傷率が3～4桁大きいので～400℃以下の温度ではステンレス鋼中にカスケードが残り、ボイドが生じない。(原子炉の中性子照射では～350℃の照射でもステンレス鋼にスエリングが起こる。)このことは、先に述べた照射誘起偏析のほか、チタンを添加した改良ステンレス鋼でスエリングが最大になる温度が500℃以下になること、ステンレス鋼の核融合炉での使用温度は～450℃以下であることを考え合わせると、中性子照射の模擬試験としての重イオン照射の有効性の本質に係る重要な問題である。この様な観点からは、比較的低い温度(<500℃)での中性子照射の模擬試験としては、カスケードの生じない、超高圧電子顕微鏡を利用した電子線照射試験の方が、重イオン照射よりも実際に起こる損傷を模擬しているといえる。

核融合炉の照射環境を模擬するために、重イオンの照射のほかに、ヘリウムイオンを材料中に注入することも行われているが、この場合、ヘリウムの注入方法に注意しなくてはならない。重イオン照射の前にヘリウムを注入する際にはヘリウムの注入温度によって材料のスエリング挙動

は大きく変化する。実験技術を上げ、二台の加速器を用いて、ヘリウムイオンと重イオンを同時に照射する場合には、ヘリウムの注入速度と照射欠陥の生成速度の比によってスエリング挙動は大きな影響を受ける。照射後電子顕微鏡で損傷組織を観察する領域の全体にわたって、ヘリウム注入速度と照射欠陥の生成速度の比を一定にすることは容易なことではない。

中性子照射の模擬試験としての重イオン照射で最も大きな欠点は、金属材料中では重イオンの飛程が短かく、照射による機械的性質の変化を直接評価するための試験ができないことがある。水素、ヘリウム、炭素などの比較的軽いイオンを用いると、金属材料の機械的性質を評価できる程度に飛程を長くできるが、これらの元素が金属材料中に残ると、それだけで材料の機械的性質が変化するので、そのこと自体を研究する特別の場合を除いて、これらの元素が試料中に残らないようにしなくてはならない。これらの比較的軽いイオンの照射で、照射するイオンが試料を通過する様にすれば、損傷速度は非常に小さく、原子炉の中性子照射の場合とそれほど変わらなくなるので、有効な加速試験にはならない。

#### 4. 核融合炉における照射環境

中性子壁負荷が  $1 \text{ MW/m}^2$  の D-T トカマク炉では、第一壁の表面に入射する  $14.1 \text{ MeV}$  の中性子束は  $4.4 \times 10^{17} \text{ n/m}^2 \cdot \text{s}$  であり、ブランケット構造材料によって後方散乱した中性子も入れると、設計によって多少の違いはあるが、照射損傷に寄与する中性子束は  $\sim 2.5 \times 10^{18} \text{ n/m}^2 \cdot \text{s}$  ( $E_n > 0.1 \text{ MeV}$ ) になる。このような中性子照射環境で SUS 316 に相当するステンレス鋼を使用する場合、 $3.5 \times 10^{-7} \text{ dpa/s}$  ( $10 \text{ dpa/yr}$ ) のはじき出し損傷が起こり、 $6.5 \times 10^{-6} \text{ appm/s}$  ( $200 \text{ appm He/yr}$ ) の速度でヘリウムが生成する。いっぽう、このステンレス鋼の高速増殖炉の炉心での損傷率は  $20 \sim 25 \text{ dpa/yr}$ 、 $2 \sim 3 \text{ appm He/yr}$  である。核融合炉のブランケット構造第一壁材料としてのステンレス鋼の損傷率は、高速増殖炉の炉心材料に比べて、核変換によるヘリウムの生成速度は 1 桁大きい、原子のはじき出しで比較するとそれほど大きくないといえる。このことから、核融合炉材料の中性子照射損傷は、せいぜい高速増殖炉の炉心材料程度のものであると結論するのは誤りである。

高速増殖炉の炉心で使用する燃料集合体は定期的に交換するものであり、好ましいことではないが、若し破損したとしても交換すればよいので修理する必要はない。さらに新しい材料を燃料集合体に試用することによって材料開発を効果的に進めることができるし、実際の燃料集合体としての使用実績を積み重ねることで材料の照射試験データを蓄積することができる。これに対して、核融合炉のブランケット構造物は、取替えることを原則とするものではないので、炉を建設する前にある程度長期の耐久限度を設定し、それを保証するように炉の運転条件を決定しなくてはならない。しかも、動力炉としての経済性を考えると、核融合炉では構造材料としての耐久性の極限近くまで使用しなくてはならない。実際の構造物では使用期間中、温度、負荷応力などが設計書通り均一になっているとは限らず、破損することが予想される。従って、核分裂炉の燃料集合体と異なり、ブランケット構造物は交換または修理をすることを考えなくてはならない。ブランケット構造物は一単位が大型なものであり、強い放射線があり、空間的にも制限された場所での交換・修理は容易なことではない。これらのことから、核融合炉のブランケット構造材料では中性子照射による材料特性の変化の程度を的確に予測することは、実用上、非常に重要なこと

である。

核融合炉では、核分裂炉に比べて、中性子のエネルギーが高い、中性子のエネルギーが高くなると金属材料では、原子のはじき出し損傷のほか、核変換によるヘリウム生成速度が大きくなる。このことによる金属材料の特性の劣化に関しては、延性の低下とスエリングによる寸法変化が実用上大きな問題になる<sup>(8)</sup>。原子のはじき出し損傷が大きいことの効果は、上で述べたように、高速実験炉を用いた照射試験によって確認することができる。また、ステンレス鋼のようにニッケルを含有する材料では、熱中性子と<sup>58</sup>Niとの二段の核反応を利用して、HFIR (High Flux Isotope Reactor) のような高速の熱中性子炉の照射によって、多量のヘリウムを生成させることができる<sup>(9)</sup>。しかし、HFIRを用いた照射試験では、appm He/dpa が非常に大きいので、高温 (> 500 °C) での材料特性の劣化の程度を、実際の核融合炉の場合より過大に評価することが考えられる。

大きな照射孔をもつ熱中性子炉を利用すれば、中性子スペクトルを調整することによって、ステンレス鋼の照射試験で appm He/dpa を核融合炉と同程度にすることができる。材料試験炉でも、高速中性子束は高速増殖炉の炉心に比べてかなり小さいので、ブランケット構造材料の寿命を評価するには非常に長い時間を必要とする。例えば、ORR (Oak Ridge Research Reactor) を利用する場合、 $5 \text{ MW} \cdot \text{yr} / \text{m}^2$  に相当する照射を行うのに約 10 年を要する。なお、JMTR では、高速中性子束は ORR と同程度であるが稼働率が低いので、 $5 \text{ MW} \cdot \text{yr} / \text{m}^2$  に相当する照射をするのに約 30 年の時間が必要である。

核融合炉のブランケット構造材料としてのステンレス鋼の照射試験に核分裂炉を用いることは核融合炉の高エネルギー (14 MeV) の中性子照射による材料特性の劣化は、はじき出し損傷および核変換によるヘリウム生成率とともに大きいことに起因するという仮定に基づいている。ステンレス鋼の中性子照射損傷においてこの仮定が成り立つことは自明ではない。この仮定が成立することを確かめるために、実際に 14 MeV の中性子の照射試験を行い、その結果を核分裂炉を利用した照射試験の結果と比較してみる必要がある<sup>(9)(10)</sup>。現在稼働している世界最大の高エネルギー中性子源は D-T 反応を利用する RTNS-II (Rotating Target Neutron Source-II) であるが、實際上照射試験に利用できる最大の照射量は  $10^{22} \text{ n} / \text{m}^2$  程度で、ブランケット構造材料として期待すべき寿命に相当する照射量  $10^{27} \text{ n} / \text{m}^2$  に比べて 5 桁も照射量が小さいので、RTNS-II を利用して工学的な照射試験を行うことはできない。

工学的な高エネルギー中性子照射試験を行うために、米国で FMIT (Fusion Materials Irradiation Test Facility) の建設が進められている。この照射施設は、Li (d, n) 反応によって生じた高エネルギーの中性子を利用するもので、 $1 \text{ cm}^3$  程度の小さな容積ではあるが  $1 \times 10^{19} \text{ n} / \text{m}^2 \cdot \text{s}$  ( $E_n > 0.1 \text{ MeV}$ ) 以上の高中性子束の照射ができることが期待されている<sup>(10)(11)</sup>。この照射施設では、照射容積が小さいほか、照射位置による中性子束の変化が大きいため、機械的性質に関する試験でも小さな試験片を使用しなくてはならない。さらに、Li (d, n) 反応を利用した中性子発生装置で、エネルギー分布曲線で最大値を 14 MeV にしようとする中性子のエネルギーは、40 MeV 程度にまで広がることに注意しなくてはならない。この装置を核融合炉の環境を模擬した中性子照射施設として活用するためには、材料の損傷へのエネルギーが 14 MeV 以上の中性子の寄与が評価できるようにしておかなくてはならない。このためには、エネルギーが 10 MeV 以

上の中性子の核反応断面積の整備，照射環境の中性子ドジメトリーの標準化，高エネルギー中性子によるはじき出し断面積の計算法を定式化するほか，電子顕微鏡で観察する損傷組織と機械的性質の変化との相関性を確立することも重要である。

核融合炉材料の中性子照射試験は核融合実験炉を利用すれば，実際の核融合と殆んど同じ照射環境であるし，照射容積も十分に大きくすることができる。しかし，核融合実験炉でもブランケット構造材料の中性子照射損傷の程度を評価するための照射施設として，問題が無い訳ではない。最大の問題は中性子照射量が大きく出来ないことである。トカマク炉では，高速増殖炉と異なり，原則として取り換えることをしない構造材料で照射損傷が大きい為に，損傷速度を大きくすることが出来ない。例えば，現在国際協力で設計の検討が進められているINTOR (International Tokamak Reactor)<sup>(10)(12)</sup>では，材料試験炉としての利用も考えられているが，この炉の寿命期間中に，試験試料としてのステンレス鋼は $5 \text{ MW} \cdot \text{yr} / \text{m}^2$ 程度に相当する損傷を受けるに過ぎない。この程度の照射量では，核融合実験炉を用いた中性子照射試験データのみから，構造材料の耐久限度を的確に予測することはできない。材料照射装置としての実験炉の最大の役割は，核分裂炉や高エネルギー中性子源を利用して得られた照射試験データと実際の核融合炉で使用する場合の損傷とを関連づけることである。

#### 5. ステンレス鋼の中性子照射試験

核融合炉のブランケット構造材料の開発で最も重要なことは，高速増殖炉の炉心材料の研究開発の経験を生かして，核融合炉の照射環境で使用に耐える改良 316 ステンレス鋼の組成を決定し炉の設計に必要な非照射の材料特性データを得るための確性試験を進めるとともに，炉の設計・運転条件を決めるために必要な中性子照射試験データの取得に努めることである。核融合炉材料の中性子照射損傷の程度は，先に述べたように単一の照射施設を利用した試験データのみで的確に評価することはできない。多くの照射施設を効率よく利用して，核融合炉における照射損傷の予測の精度を上げるようにしなくてはならない。また，異なった照射環境で得られた試験データを相互に関係づけるために，照射損傷の本質を理解するための基礎的な研究を行うことも重要である。

原子のはじき出し (高dpa) の効果を調べるためには，高速実験炉の利用が最も有効である。高速実験炉を利用した照射試験では，核融合炉材料の試験片の照射というよりも，高速増殖炉の炉心材料研究開発の一環としての照射試験を進めるべきである。例えば，JOYOを利用すれば，2年間で $5 \text{ MW} \cdot \text{yr} / \text{m}^2$ に相当する照射試験を行うことができる。従って， $10 \text{ MW} \cdot \text{yr} / \text{m}^2$ に相当する照射試験データを得るには，カプセルの製作，引張試験，電子顕微鏡による組織観察などの照射後試験に要する時間を加えると，約7年の期間が必要である。

高ヘリウムの効果を調べるために，HFIRを利用すれば，照射後の組織観察および引張試験に要する期間を加えたとしても約5年間でヘリウム生成量にして $15 \text{ MW} \cdot \text{yr} / \text{m}^2$ に相当する照射試験データを得ることができる。なお，この原子炉では照射孔が小さいので，計測カプセルの照射は著しく困難である。

大きな実験孔をもったORRでは， $\text{appm He} / \text{dpa}$ を核融合炉の照射条件に合わせた照射をすることができる。この原子炉は中性子束がそれほど大きくないので， $5 \text{ MW} \cdot \text{yr} / \text{m}^2$ に相当する

照射に約10年を要する(カプセルの製作および照射後試験の期間を入れると約13年)が、組織観察、引張試験のほかに、トカマク炉にとって重要な疲労特性に関する試験片も照射することができる。さらに、照射下のクリープ試験および疲労試験も比較的容易に実施することができる。

高エネルギー中性子の工学的な照射試験を実施するには、FMITの完成を待たなくてはならない。この照射施設を利用すれば、3年程度の期間中に $10 \text{ MW} \cdot \text{yr}/\text{m}^2$ に相当する照射後の組織観察に関する試験データを得ることができるが、核融合炉材料としての寿命に係る機械的性質に関して信頼できる試験データを蓄積することは容易なことではない。

## 6. まとめ

核融合炉において、ブランケット構造材料の中性子照射損傷は動力炉としての成否を決定するほど重要なものである。高速増殖炉の炉心材料としての使用経験が豊富なSUS 316に相当するステンレス鋼が、現実的な唯一の候補材料である。

ブランケット構造材料の開発試験では、高速増殖炉材料としての研究開発での経験に基づいて組成を決めた改良ステンレス鋼について核融合炉で使用する際の耐久限度を的確に予測するために必要な中性子照射試験データを蓄積することが急務である。

核融合炉の照射環境を近似できる単一の照射施設は存在しないので、多くの中性子照射施設を利用した照射試験データを蓄積しなくてはならない。これらの試験データを相互に関連させ、核融合炉における中性子照射損傷の程度を的確に予測するためには、照射損傷の本質を理解するための基礎的な研究を怠ってはならない。

## 参考文献

- (1) 白石健介, 原子力学会誌 21 (1979) 471.
- (2) E. E. Bloom, et al., Nucl. Technol. 31 (1976) 115.
- (3) 白石健介, 第2回核融合連合講演会予稿集 (1981) p. 70.
- (4) 吉田寿美, 白石健介, 原研未公開資料 (1980).
- (5) 白石健介, 高温学会誌 6 (1980) 179.
- (6) 白石健介, 金属物理セミナー 2 (1977) 135.
- (7) 橋口隆吉, 前出(3), p. 66.
- (8) 白石健介, 日本原子力学会誌 20 (1978) 620.
- (9) 住田健二, 日本原子力学会誌 20 (1978) 613.
- (10) 「強力中性子源」研究専門委員会, 日本原子力学会誌 23 (1981) 8.
- (11) J. J. Holmes and J. L. Straalsund, J. Nucl. Mater. 85 & 86 (1979) 447.
- (12) 森茂ほか, 日本原子力学会誌 22 (1980) 456.

## III - 8 核融合炉材料の照射損傷とデータベース\*

原研 有 賀 武 夫

核融合炉の第一壁・ブランケット構造材料における中性子照射損傷の問題と耐照射性に優れた材料の開発は、長期に亘る核融合動力炉に向けての研究開発の中で最も重要な課題の一つである。最高 14 MeV の高いエネルギーの高レベルの中性子束で長時間、高温で照射される構造材料におけるいわゆるバルクの照射損傷は、格子位置からの原子のはじき出しと (n,  $\alpha$ ), (n, p) 等の核反応で生じるヘリウム、水素等のガス原子に起因する。その結果として、想定される使用条件下での材料の寿命を決める照射効果が Table 1 に示すように問題となる。

高速増殖炉の燃料被覆管材料においても同様に中性子照射による損傷が生じるが、Table 2 に示すように燃料被覆管材料は 2~3 年の炉心滞在の後、燃料交換される。これに対しブランケット構造材料の照射損傷は核融合炉の寿命を決めると同時に、運転条件との関係で核融合炉が動力炉として経済的に成立するか否かを決定する。

当面の核融合炉の構造材料としては、高速炉の燃料被覆管材料として照射試験データが豊富な 316 ステンレス鋼、およびこれをベースに改良を加えたオーステナイトステンレス鋼以外にはあり得ない。

しかし核融合炉材料の開発にとって特徴的なことは、316 ベースの材料についても実際の使用条件に近い照射条件下での確性試験から、炉の設計または使用条件の決定に役立つ形で材料の照射データを得ることは容易なことではない。また長期的な観点からも、材料の選択を目的とする試作合金材料の照射損傷に関する試験は、核融合炉での中性子照射を模擬したシミュレーション照射に依らざるを得ない。また過去数年間に核融合炉の設計研究が進み、材料の使用条件についてもかなり定量的な議論ができるようになったが、炉の設計が使用条件を決定する材料の特性に依存することを考えれば、炉の設計自体も流動的なものであると思われる。

核融合炉のブランケット構造材料における照射損傷に関する問題がこのように複雑であればある程、材料のバルク照射損傷に関する照射試験データを蓄積するとともに、必要な質問に答える形で照射データの検索ができるデータベースシステムを整備することは、構造材料の開発を効果

Table 1 BULK RADIATION EFFECTS ON PROPERTIES THAT MAY LIMIT CTR FIRST-WALL LIFETIME

Property	Limitation
Swelling	Dimensional Tolerances Strain Imposed on System
Tensile Properties	Stress Limitation Strain to Failure
Thermal Creep	Deformation Rate Component Time to Failure
Radiation Creep	Deformation Rate
Fatigue and Creep Fatigue	Strain per Cycle Cycles to Failure

\* Data Base Systems for Radiation Damage Problems in Structural Materials of Fusion Reactors.

的に進めるために重要である。同時に、使用条件の決定や耐久寿命の評価を通して炉の設計に役立つ材料の照射データが統一的に、コンシステントに提供できるようになる点でその意義は大きい。

データベースに蓄積されたデータを評価し特にシミュレーション照射試験で得られた材料の特性値から核融合炉の使用条件での材料の照射効果を的確に推測するためには、照射損傷機構の基礎的な解析が不可欠である。

ここでは、材料のバルクの照射損傷に的を絞った材料データベースと照射損傷の解析に必要な損傷率のいくつかの評価について述べる。

Table 2 Anticipated Structural Materials Requirements for Fusion Reactor.<sup>1)</sup>

Parameter	LMFBR	Magnetically Confined Fusion	Inertially Confined Fusion
Temperature(°C)	300 - 600	400 - 600 Austenitic steel (316,304,etc.) 500 - 700 Ni-based alloy (PE16,Inconel,etc) 800 -1000 Refractory metals(Mo,Nb,V,alloys)	
dpa/s (max)	~10 <sup>-6</sup>	3-10x10 <sup>-7</sup> (Tokamaks,Mirrors) 1-10x10 <sup>-5</sup> (Theta pinch)	~1 - 10
dpa/yr(70%PF)	~ 50	10 - 30	10 - 30
He production (at.ppm/yr)	~ 10	200-600(steel) 15-150(Refract.)	200-600(steel) 15-150(Refract.)
Number of power cycles(yr <sup>-1</sup> )	~10	~10(Mirrors) 10 <sup>3</sup> - 10 <sup>5</sup> (Tokamaks) 3x10 <sup>6</sup> (Theta pinch)	10 <sup>7</sup> - 10 <sup>9</sup>
Stress level(MPa)	60 - 120	60 - 120	100 - 200
Desired lifetime condition			
dpa	100-150	ill-defined, but commercial feasibility ***** 300-1000	
He(at.ppm)	20-30	6000-20000(steel) 800-5000 (Refract.)	



1. 材料データベースシステム

核融合炉材料開発におけるバルク照射損傷関係のデータベースシステムの役割と位置づけを模式的にFig. 1に示す。合金材料の照射データは、合金成分、履歴、照射条件、試験方法、金属組織等々、材料の照射効果としての特性値と対応関係を決定するデータ項目が複雑であることが特徴である。現在主としてオーステナイトステンレス鋼について、ボイドスウェリング (Table 3には主要なパラメータを示す。以下同様)、照射下クリープ (Table 4) および照射脆性 (Table 5) に関するデータを、

FORM-I (Fig. 2, 情報源とデータの要約した記述および照射条件に関するデータ),

FORM-II (Fig. 3, 成分, 履歴, 組織および試験条件に関するデータ) および

FORM-III (Fig. 4, 図表データ)

の3つの型の入力シートを使って収集し、図表データはFig. 5に示すようにディジタイザーを使

核融合炉材料開発におけるデータベースシステムの位置づけ (照射損傷関係)

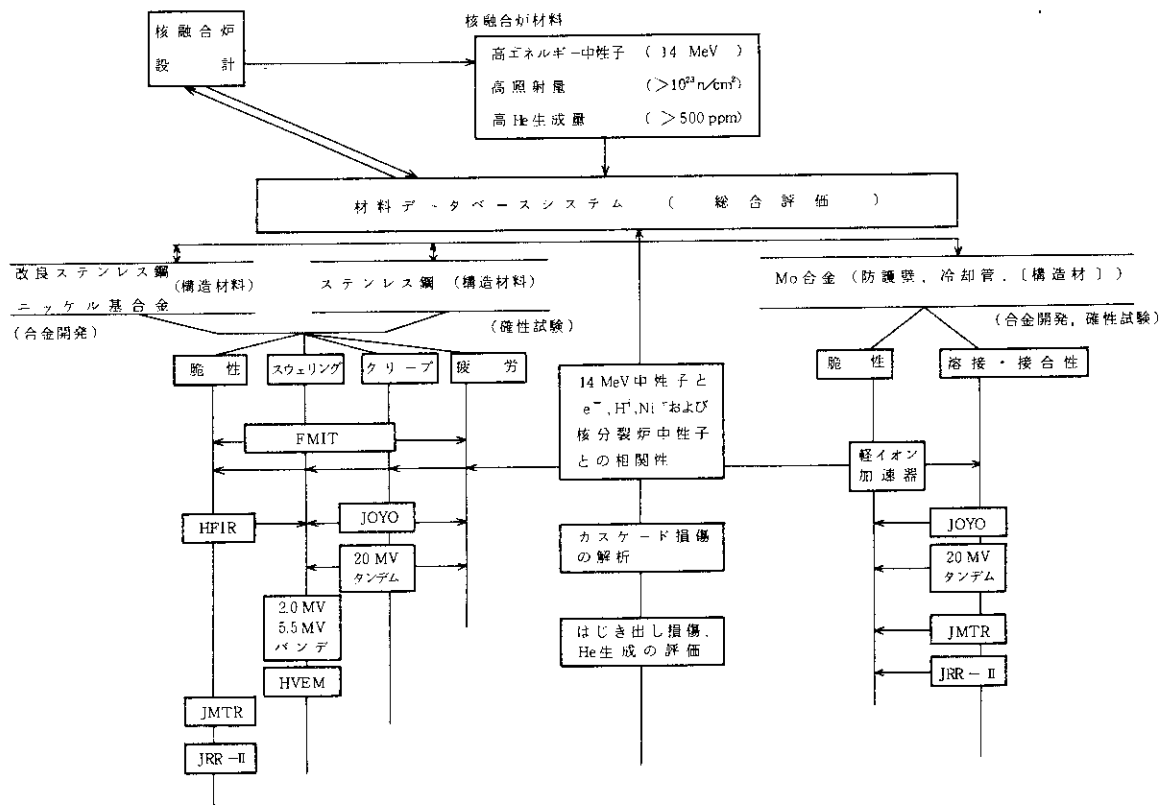


Fig. 1 核融合炉材料開発とデータベースシステム

って数値化読取をし、FACOM M-200 大記憶装置に格納している。

これらの特性値に関するデータは、論理的にデータソース（文献情報）と対応づけられており、現在、同一照射条件に近い材料のある特性値（例えばスウェリング量）を照射量や照射温度等をパラメータとして検索し編集・出力ができるようにシステムを整備している\*。

Table 3 SWELLING

<u>Cause:</u>	Vacancies and gas atoms precipitate Net volume increase result
<u>Critical Parameters:</u>	Fluence - dpa and gas atom production (He) Temperature of irradiation Composition Metallurgical state
<u>Modifying Parameters:</u>	Damage rate Stress state dpa/He ratio Duty Cycle ?
<u>Measure:</u>	Overall dimensional changes Dimensional changes between ion-bombarded and unbombarded regions of a sample Density by immersion Microstructure by TEM

Table 4 IRRADIATION CREEP

<u>Cause:</u>	Biased flow of point defects control deformation Deformation rates exceed out-of-reactor rate
<u>Critical Parameters:</u>	Flux - dpa generation rate
<u>Modifying Parameters:</u>	Fluence Stress Temperature Composition and metallographic state
<u>Measure:</u>	Stress, temperature Strain with high precision

Table 5 MECHANICAL PROPERTIES AFTER IRRADIATION

<u>Cause:</u>	Microstructural changes control matrix strength Insoluble gas bubbles affect fracture mode Ductility reduced by several processes plastic instability, DBTT shift, reduced fracture strength
<u>Critical Parameters:</u>	Fluence - dpa and gas generation Temperature of irradiation Composition Preirradiation microstructure
<u>Measure:</u>	Tensile, creep, or fatigue test Strength values Ductility values Microstructure and fractography

\* 核融合炉材料データベースシステムの開発研究は、50年から学振・核融合炉材料調査小委員会への委託研究<sup>2)</sup>として出発し、55年から科研（核融合）「材料データベースによる核融合炉設計と材料開発のインターフェイス」<sup>3)</sup>でも進められている。

Fig.2

MATERIALS DATA SHEET

3)

FORM I

Information Source	1	Input I.D. = <input type="text"/> Other I.D. = <input type="text"/> Input by: <input type="text"/> Date = <input type="text"/> C = <input type="text"/>	JO: Journal Name/Vol. No/Page BK: Book Name/Page
	2	Title: <input type="text"/>	Ex. JO: J. Nucl. Mater. 187, 2, 3 213-226
	3	Author: <input type="text"/>	BK: Radiation Effects in Breeder Reactor Structural Materials (M.L. Blumberg, J.W. Bennett)
	4	PI: <input type="text"/> RN: <input type="text"/>	ASR: As Received SAN: Sol. Anneal
	5	IO: <input type="text"/>	ANN: Anneal, ANN1, ... AGE: Age, AGE1, ... W: Work, W1, ... CW: Cold Work, CW1, ... HW: Hot Work, HW1, ...
	6	BK: <input type="text"/>	Ex. 9 H1 = ASR + W (10, 20) H2 = SAN, H3 = H1 + AGE (1000, 0) H4 = H2 + W (5, 20)
	7	C: <input type="text"/>	10 A1 = H1 Ex. A1 + H2, A2 + H3
Alloy Classification	8	Designation: <input type="text"/> A1 =	IS: Inad. Source D: Dose DR: Dose Rate C: Combination of Inad.
	9	History: <input type="text"/> H1 =	UA: Unaxial BA: Biaxial UT: Under Inad. PI: Post Inad. WI: Without Inad. OTH: Others
	10	Combinations: <input type="text"/>	
	11	Inad. Condition: $IS_1 = \left( \begin{matrix} N_1, P_1 \\ N_2, P_2 \\ N_3, P_3 \end{matrix} \right) \cdot \left( \begin{matrix} LWR, MTR \\ ACC, IREM \\ OTH \end{matrix} \right) \cdot ATM_1$ , $D_1 = \left( \begin{matrix} a, b, c \\ d, e, f \\ g, h, i \end{matrix} \right) \cdot \left( \begin{matrix} APPM \\ DPA \\ N/CM2 \\ P/CM2 \\ T/CM2 \\ AUCH2 \end{matrix} \right) \cdot DR = \left( \begin{matrix} DPA/SEC \\ N/CM2/SEC \\ P/CM2/SEC \\ T/CM2/SEC \\ AUCH2 \end{matrix} \right)$ $IS_2 = (Hk + ACC, ATM2)$ , $IS_3 = (Pk + ACC, ATM2)$ , $D1 = (0.5, 20MkV, 5.5, 50APPH)$ , $DR = 1.5 \times 10^{-6} A/CM2$ , etc.	IC1 = (IS, D, DR) IC2 = IC1 + IC3 IC3 = IC1 * H4 * Subseq. 1, 2, 3, ... * Simult. 1, 2, 3, ...
	12	*IS1 = <input type="text"/>	
	13	*D1 = <input type="text"/>	
	14	*DR1 = <input type="text"/>	
	15	Inad. Temp. = <input type="text"/> (C, K, F) Testing Temp. = <input type="text"/> (C, K, F)	
	16	Microstructure Description = <input type="text"/> (YES, NO) Swelling = <input type="text"/> (%) with stress = <input type="text"/> (KG/MM2, MPA, KSI)	
	17	Tensile Strength: $\sigma =$ <input type="text"/> (TS, M) $\sigma_y =$ <input type="text"/> $\sigma_{ult} =$ <input type="text"/> (KG/MM2, MPA, KSI)	
18	Ductility, Unif. Elon. = <input type="text"/> Tot. Elon. = <input type="text"/> Red. Ar. = <input type="text"/> (%)		
Contents of Importance	19	Creep Properties: Test Type = <input type="text"/> (UA, BA, UI, PI, WI, OTH) Atmosphere = <input type="text"/> (VAC, AIR, HE, OTH) Time = <input type="text"/> (hr) Stress = <input type="text"/> (KG/MM2, MPA, KSI) Creep Elon. = <input type="text"/> (%)	
	20	Comment: C = ... C (19) = ...	

Fig.3

MATERIALS DATA SHEET

3)

FORM II

Chemical & Phase Composition (atmosphere)	23	Input I.D. = <input type="text"/> Other I.D. = <input type="text"/> Input by: <input type="text"/>	A1: Alloy I.D. (A1, A2, ...) AN: Alloy Name (AISI 114) ATM: Atmosphere Name (ATM1, ATM2, ...) CAD: (MOD) (PRE) (GAS) FL: Element Symbol C: Composition AS: AS% PH PPM WS: WS% PB PPM VS: VS% RA: Ratio M%: Mol% PP: Partial Pressure CS: Crystal Structure SF: Shape Factor PC: Phase Composition PF: Phase Pattern
	24	ANN ( <input type="text"/> (C) <input type="text"/> (hr) , ATM1); QUR ( <input type="text"/> (C) <input type="text"/> (C) <input type="text"/> (C/SEC) ); RLL ( <input type="text"/> (C) <input type="text"/> (mm) <input type="text"/> (mm) , ATM1) ERW ( <input type="text"/> (A) <input type="text"/> (V) <input type="text"/> (cm/min) <input type="text"/> (J/cm) <input type="text"/> (mm) , ATM1) Ex H1 = ASR + SAN (1000, 1, ATM1); H2 = H1 + RLL (3, 800, 10, 9.5, ATM2); H3 = H2 + CW (10, ATM2); H4 = ASR + CW ( <input type="text"/> , <input type="text"/> , 1, 0.5) ... etc.	H1: History Name (H1, H2, ...) ASR: As Received ANN: Annealing SAN: Sol. Anneal AGE: Age QUR: Quench AQU: Air Quench WQU: Water Quench FUC: Furnace Cool CW: Cold Work RL: Roll EXT: Extrusion ERW: EB Welding TIG: TIG Welding OTH: Others MSA: Microstructural Aspects DSD: Dislocation Density Ex DSD = 2.5 x 10 <sup>9</sup> GSZ: Grain Size Ex GSZ = 3micron GSZ = #ASTM
	25	MSA: S1 = (TH) = <input type="text"/> (mm), W/D = <input type="text"/> (mm), L/E = <input type="text"/> (mm), G/L = <input type="text"/> (mm), DIA = <input type="text"/> (mm); ... A1 = (DSD) = <input type="text"/> , GSZ = <input type="text"/> , OTH = <input type="text"/> ; ...	
	26	C1 = A1 + H1 + H2 + S1 + IC1 Ex. C1 = A1 + H2 + IC2	
	27	C Ex. C (22) = ... or C = ...	



2. 損傷率の評価

照射データの評価と耐照射性に優れた材料開発の方針決定が効果的に行なわれるためには、照射損傷機構の基礎的な解析が重要である。オーステナイトステンレス鋼のボイドスウェリングの機構については相当理解が進み、ボイドスウェリングを抑制する冶金学的方策も知られるようになってきたが、照射下でのクリープや疲労等については、それらの損傷機構の基礎的な解明は未だ残されている。また照射下での相安定性の問題は、スウェリングや機械的性質に影響する重要な問題であるが、照射による過剰な点欠陥の供給と溶質原子との複雑な相互作用によるこれらの効果の解明は十分ではない。

これらのバルクの照射損傷のメカニズムの解明に向けての研究においても、試作合金材料の選択の場合と同様にTable 6に示すようなシミュレーション照射装置の利用が効率的に行なわれる。異なる照射装置を使った照射実験データの評価においては照射量の実効的な値の評価と照射によってできた格子欠陥の挙動の解析が重要である。Fig. 6にはKuspaらの解析システムに準じて照射による材料の特性値の変化の評価方法を第一次ノックオン原子(PKA)生成以後の計算プロセスで示し、原研で整備された損傷解析コードには下線を引いた。これらの解析手法をさらに開発・整備するとともに、照射データの解析にその手法を有効に利用することで照射損傷のメカニズムの理解が一層進められなければならない。

異なる照射源による照射損傷率の尺度としてdpaは一応の目安として広く利用されている。ステンレス鋼に対する中性子照射の場合のはじき出し損傷(dpa)の計算はほぼ標準化されており、

Table 6 CTR RADIATION EFFECTS FACILITIES

FISSION REACTORS	
(a) Characteristics ;	Available now, temperature control difficult Large volumes Damage rates CTR Transmutation products require special simulation
(b) Uses ;	Adaptable Generate base data Match CTR conditions in Ni-containing alloys Screening studies
ION BOMBARDMENT	
(a) Characteristics ;	Available now, temperature control good Very high damage rates Transmutation products can be included Restricted to thin samples
(b) Uses ;	Swelling and microstructural response Radiation creep studies
HVEM ELECTRON BOMBARDMENT	
(a) Characteristics ;	Available now, temperature control good Very high damage rates In-situ observation Restricted to thin samples
(b) Uses ;	Swelling and microstructural response Radiation creep studies
HIGH ENERGY NEUTRON SOURCES	
(a) Characteristics ;	Low flux, small volume Spectrum approximates CTR
(b) Uses ;	Correlation studies to verify simulation

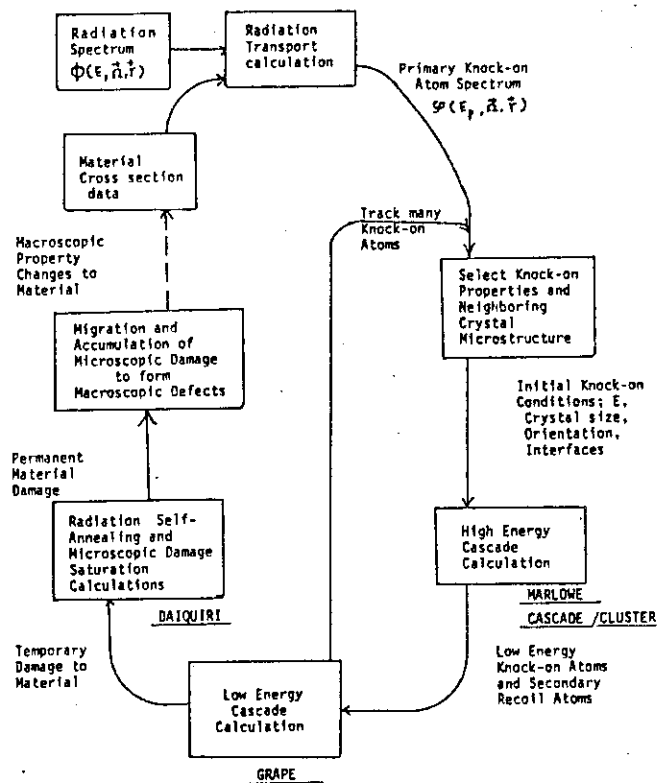


Fig. 6 Structure of the theory for radiation - induced property change - 4)

14 MeV 以下のエネルギーの中性子に対するはじき出し断面積とヘリウム、水素ガス原子生成断面積はほぼ整備されてきた。但し、FMIT等での照射における 20 MeV 以上のエネルギーの中生子に対するはじき出し損傷率の評価においては、(n, 2n) 反応が多くなり核反応断面積や反跳エネルギーの評価モデル等に不確定性が残されている。

鉄のはじき出しエネルギーを 40 eV とした時の鉄のはじき出し断面積の中生子エネルギー依存性を Fig. 7 に、ステンレス鋼の主要成分元素等に対するはじき出し損傷率とヘリウム、水素ガス原子生成率をいくつかの中生子束スペクトルについて Table 7 に示す。また Table 8 には 316 ステンレス鋼を同様にいくつかの中生子束場で照射した場合のはじき出し損傷率 (dpa/s)、ヘリウム生成率等を示す。

バルクの照射損傷としての材料の特性値の変化は dpa とは直接関係はなく、むしろ Fig. 6 の左側に示したように照射でつくられた格子欠陥がどのように材料中に残留するかによってつくられる PKA のエネルギースペクトルに係する。

中生子照射した鉄中の欠陥について残留空孔 (NTV)、可動な空孔 (NFV) 生成断面積およびはじき出し断面積の中生子エネルギー依存性を Fig. 8 に示し、Table 9 には核融合炉中生子で照射した鉄中

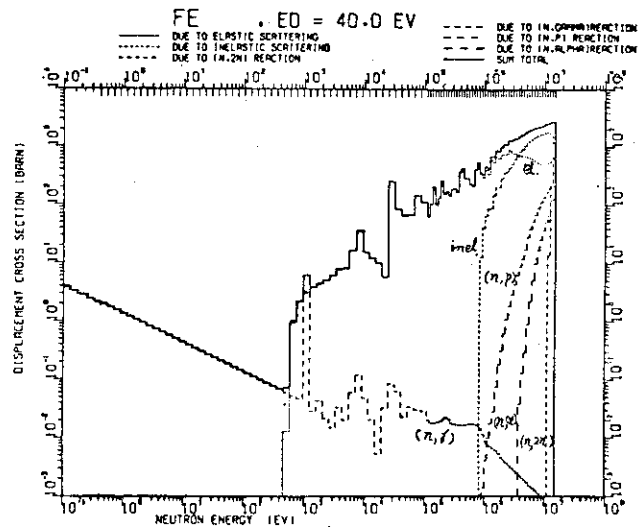


Fig. 7 Neutron energy dependence of displacement cross sections for iron (5)

Table 7 Calculated gas production, dpa and appmHe/dpa-values. Unit: dpa/year and appm/year, %

	Neutron Flux (n/cm²·sec)	JXFR 1.22x10 <sup>14</sup>	JOYO-11 5.3x10 <sup>15</sup>	EBR-II 2.78x10 <sup>15</sup>	HFIR 5.99x10 <sup>15</sup>	JMTR 5.98x10 <sup>14</sup>	JRR-2 2.0x10 <sup>14</sup>	
Fe	A. He / H (39.8) <sup>a</sup> (18.7) <sup>b</sup>	18.0 57.1 (57.9) <sup>a</sup> (81.0) <sup>b</sup>	15.2 248	7.0 126	10.6 190	2.2 37.4	0.29 5.5	
	B. dpa (appmHe/dpa)	1.98 (1.94) <sup>b</sup>	9.1 63.4 0.24	37.2 0.19	35.3 0.30	6.8 0.32	1.17 0.25	
Cr	A.	18.9 (28.5) <sup>a</sup> (17.5) <sup>b</sup>	38.3 (46.7) <sup>a</sup> (53.6) <sup>b</sup>	5.07 71.2	2.30 34.4	3.53 52.8	0.74 10.5	0.10 1.47
	B.	2.27 (1.92) <sup>b</sup>	8.3 65.6 0.076	39.8 0.058	34.4 0.10	6.6 0.11	1.16 0.086	
Ni	A.	68.0 (55.5) <sup>b</sup> (69.7) <sup>c</sup>	156 (156) <sup>a</sup> (213) <sup>b</sup>	197 3092	95.5 1628	152 2380 (74000) <sup>c</sup>	30.0 464 (1000) <sup>c</sup>	4.2 69.8 (100) <sup>c</sup>
	B.	2.29 (2.28) <sup>b</sup>	30.0 78.3 2.52	46.1 2.07	39.4 3.8 (1880) <sup>c</sup>	7.51 4.0	1.36 3.1	
Mo	A.	8.48 (8.0) <sup>d</sup> (1.27) <sup>d</sup>	11.9 (16.1) <sup>d</sup> 6.8	6.5 45.1	2.92 23.2 (1.8) <sup>d</sup> (3.5) <sup>d</sup>	4.1 34.8 (3.1) <sup>d</sup> (6.0) <sup>d</sup>	0.85 6.85	0.12 1.0
	B.	1.27 (1.27) <sup>d</sup>	6.8 37.6 0.17	23.4 (30.) <sup>d</sup>	0.12 (26.) <sup>d</sup>	16.9 (26.) <sup>d</sup>	0.24	3.2 0.27
Nb	A.	4.16 (4.1) <sup>d</sup> (4.9) <sup>b</sup>	19.0 (13.4) <sup>d</sup> (17.9) <sup>b</sup>					
	B.	1.28 (1.23) <sup>b</sup> (1.24) <sup>b</sup>	3.3		(28.4) <sup>d</sup>	(25.0) <sup>d</sup>	4.64 0.09	
V	A.	9.1 (9.7) <sup>b</sup> (8.0) <sup>b</sup>	16.9 (17.7) <sup>b</sup> (42.0) <sup>b</sup>		(0.31) <sup>d</sup> (14.5) <sup>d</sup>	(0.47) <sup>d</sup> (27.) <sup>d</sup>	0.15 6.1	
	B.	2.2 (4.2) <sup>b</sup>		(2.0) <sup>d</sup>	(54.) <sup>d</sup>	8.7 0.017		

\* Neutron flux is 0.01 - 15x10<sup>15</sup> eV integrated total.  
 \* Non-parenthesized are calculated using ENDF/B-IV data file, except for Mo (n, alpha), (n, p) cross sections which are not filed. These cross sections for Mo are referred to KEDAK-III data file.  
 a. JENDL - I data file used. (Japan Evaluated Nuclear Data Library)  
 b. T.A. Gabriel, P.W. Wiffen et al, Nuc. Tech. Vol. 38  
 c. Two step He generating Thermal neutron reaction is evaluated by the equation of S. Ganesan, J. Nuc. Mat. Vol. 62  
 d. G.L. Kulcinski et al. STP-570  
 \* The values for JXFR designated by b, d, are normalized to JXFR wall loading 0.17 MW/m<sup>2</sup>.

のPAKエネルギーの分布およびはじき出し損傷率、残留空孔生成率のPKAエネルギー依存性を中性子の弾性 (el), 非弾性 (n.el) 散乱別に示した。Table 9から0.1 MeV以上の高いエネルギーのPKAは非弾性散乱によって約30%を占める分がつくられるのに対し、これらのPKAによってできるはじき出し損傷 (DPA) と残留空孔 (NTV) は全体の約50%であることがわかる。これはFig. 9に示した様に高速炉 (FBR) の場合と比べて核融合炉 (CTR) での14 MeV 中性子が高いエネルギーのPKAを多くつくることを示し、核分裂炉での照射と異なる点である。このようなPKAのエネルギースペクトルの相異はカスケード的な原子のはじき出しを経て材料中の残留欠陥の空間的な構造の違いとなり、反応速度論で表わされる長時間の欠陥の移動および相

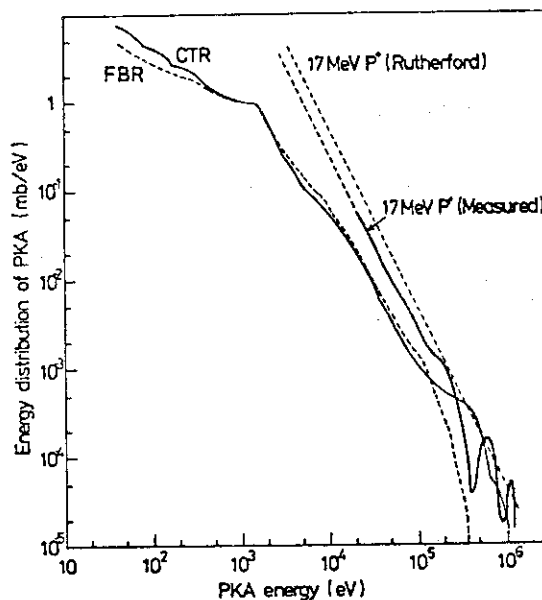


Fig. 9 Comparison of PKA energy spectra in iron for 17 MeV proton, fusion reactor and fast breeder reactor neutron irradiations.<sup>5)</sup>

Table 8 Comparison of displacements and gas atom production rates for proton and neutron irradiated 316 stainless steel. <sup>5)</sup>

Reactor (power, MW)	neutron flux (10 <sup>15</sup> n/cm <sup>2</sup> .sec) <sup>*1</sup>		dpa/sec x10 <sup>7</sup>	appH <sub>2</sub> /sec x10 <sup>7</sup>	appHe/dpa	appH/sec x10 <sup>7</sup>
	Total	Above 0.1 MeV				
CTR (1MW/m <sup>2</sup> )	0.32	0.04	3.9	42	11	118
JOYO-II (100) MOXJU (714)	5.3	4.0	20.7	10.0	0.5	158
EPR-II (52.5) FFE (400)	6.1	3.8	17.9	7.3	0.4	115
HFIR (100) ETR (175) JXFR (50) JRR-2	2.8	2.4	12.4 (14) <sup>2</sup> (26)	4.8 (1.5) (2.5)	0.8 (0.1) (0.1)	31 (85) (133)
Proton (17MeV, 10 μA/cm <sup>2</sup> , depth 0-200 μm Av.)	6.0	1.5	11 (14)	7.3, 2350 <sup>*3</sup> (2.6), (1330) (9.4)	214 (99) (9.4)	121 (141) (43)
	0.6	0.3	2.2	1.5, 33	15	24
	0.2	0.054	0.47	0.20, 3.5	7.4	3.6

\*1. Neutron flux was referred to J.L. Jackson et al., HEDL-TM-73-62(1973) for EPR-II, F.B.K. Kam et al., ORNL-TM-3322(1971) for HFIR, and others were referred from private communications.  
 \*2. Parenthesized quantities were referred to G.L. Kulcinski et al., ASTM-STP 570(1975)P.329.  
 \*3. Underlined helium production rates include the contribution through the 2-step <sup>58</sup>Ni(n,γ) <sup>59</sup>Ni(n,α) <sup>56</sup>Fe reaction.

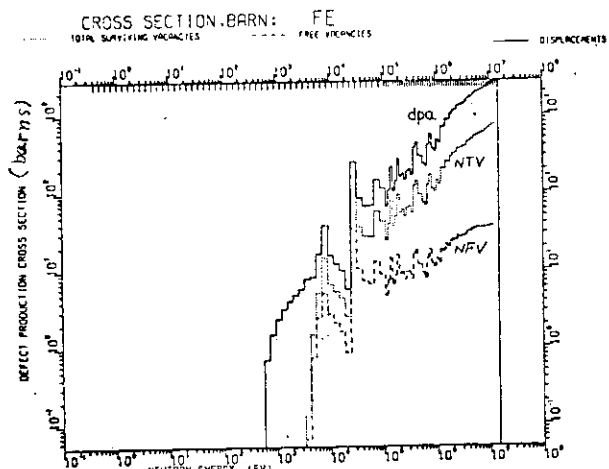


Fig. 8 Neutron energy dependence of displacement and residual defect production cross sections for iron. <sup>5)</sup>

Table 9 PKA spectrum and PKA energy dependence of displacement rate and residual defect production rates for JXFR neutron irradiated iron. <sup>5)</sup>

PKA energy range (keV)	SPKA(T)		SDPA(T)		SNTV(T)		SNRV(T)	
	el.	n.el	el.	n.el	el.	n.el	el.	n.el
0.1 - 0.1	7.8	3(-7) <sup>*2</sup>	0.04	2(-9)	-	-	-	-
0.1 - 0.58	21.6	6(-5)	0.5	2(-6)	0.6	3(-6)	3.2	2(-5)
0.58 - 1.2	15.2	3(-4)	1.0	1(-6)	1.6	2(-5)	6.5	8(-5)
1.2 - 5.5	30.4	0.02	5.6	0.005	7.4	0.006	21.0	0.01
5.5 - 12	8.2	0.06	4.7	0.04	5.4	0.04	10.2	0.08
12 - 52	9.9	0.63	15.	1.3	15.	1.3	20.	1.5
52 - 111	1.4	0.61	6.0	2.9	5.6	2.6	4.9	2.3
111 - 500	0.64	2.9	7.0	38.	6.4	35.	3.8	19.
500 - T <sub>m</sub>	0.22	0.4	5.7	13.	5.8	13.	2.3	5.1
Sum total	95.3	4.7	45.5	54.5	48.1	51.0	71.9	28.1

Neutron spectrum averaged defect production cross sections (barns)						
elastic	4.6	237	75	9.4		
inelastic						
(n,2n)	0.15	168	48	2.3		
(n,p)	0.053	76	21	0.96		
(n,α)	0.015	26	7.4	0.30		
(n,n)	0.0046	13	4.4	0.13		
Total	4.8	520	155	13		

\*1. T<sub>d</sub> : Displacement threshold energy, 40 eV for Fe.  
 \*2. 3(-7) reads 3x10<sup>-7</sup>.  
 \*3. T<sub>m</sub> : Maximum possible transferred energy.

互作用により種々の損傷の発生と展開に影響を及ぼす。

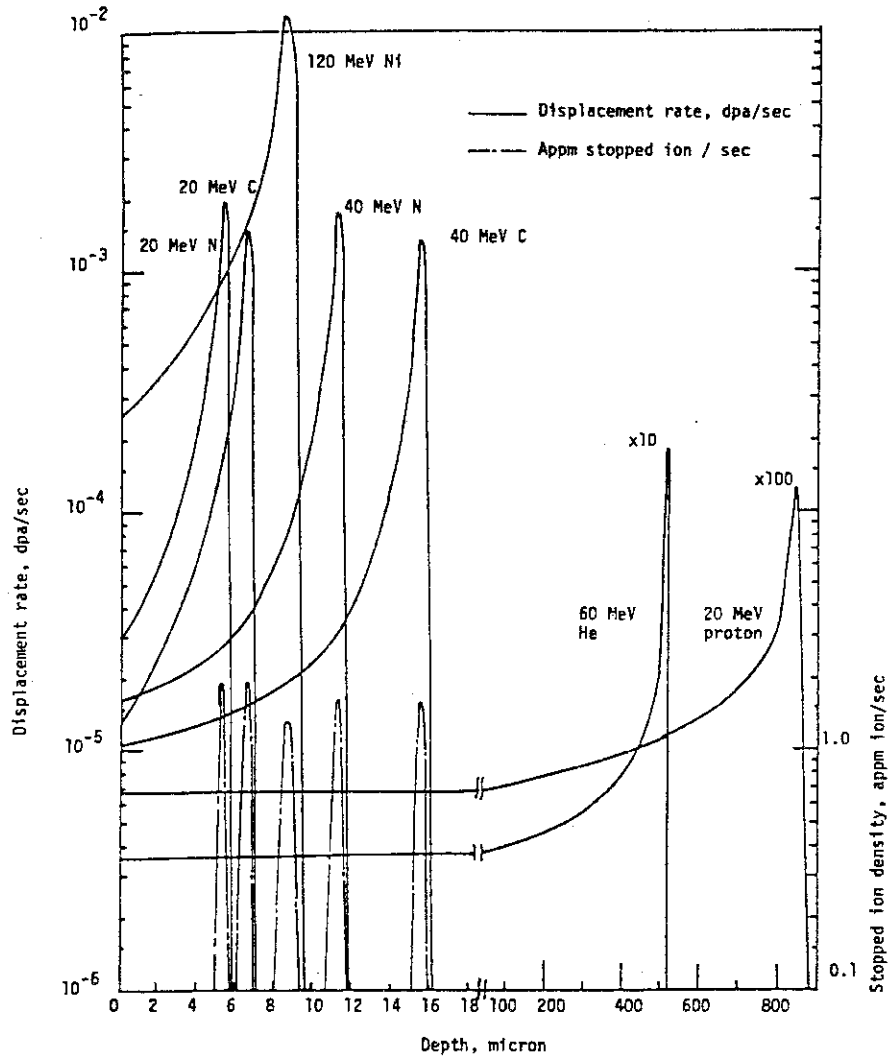


Fig. 10 Depth profiles of displacement rates and stopped ions for various high energy ions incident on 316 s.s. (iron) with  $1 \text{ particle-micro-A/cm}^2$ ,  $6.24 \times 10^{16} \text{ particles/cm}^2 \cdot \text{sec}$ .

加速器を利用した照射試験ではイオンによる損傷が照射面の極く近傍の限られた領域に中性子照射の場合の  $10^3 \sim 10^5$  倍の速さでつくられる (Fig.10 参照)。イオン照射による加速照射実験は、スウェリング、相安定性に関する基礎研究や材料選択にとって効果的な方法である。また、プロトン等の軽いイオンの照射によって核分裂炉での中性子照射より容易に制御できる照射条件で、核融合炉での損傷速度と見なし得る照射下のクリープや疲労に関する実験が可能であり (Table 8, Fig. 9, 10 参照), これらの照射損傷の解明に寄与するものである。

以上示した中性子照射, イオン照射に関する損傷断面積はさらに整備・拡充するとともに, 照射実験データの解析に効率よく組織的に利用できるようにデータベースシステムに格納・整備する必要がある。また, 照射損傷の解析をより定量的に行うには, 核反応断面積の整備と中性子スペクトル, 中性子線量の評価に関する標準化をすすめるとともに, イオン照射についても照射損傷の評価に関する標準化が望まれる。



参考文献

- 1) R. Bullough, B.L. Eyre, J. Nucl. Mater., 68 (1977) 168
- 2) 核融合炉材料調査小委員会 (学振) 受託研究報告書 (Ⅱ), 1977
- 3) 科研 (核融合) 研究報告書「材料データベースによる核融合炉設計と材料開発とのインタフェイス」, 1981
- 4) J.P. Kuspa et al., Rad. Damage Comp. Simulat. System, in Proc. of 1976 Int. Conf. on Comp. Simul. for Mater. Appl., 1976 Apr. 19 - 21, Maryland, p. 337
- 5) 有賀, 長崎, 核融合研究 (別冊その4) 43 (1980) 97
- 6) 有賀, 白石, 核融合研究 (別冊その1) 42 (1979) 35