九州大学学術情報リポジトリ Kyushu University Institutional Repository

重水素照射したEdge-HOPGのERDによる研究

大窪, 秀明 九州大学大学院総合理工学研究科材料開発工学専攻

竹中, 稔 九州大学応用力学研究所

佃, 昇 九州大学大学院総合理工学研究科材料開発工学専攻

蔵元, 英一 九州大学大学院総合理工学研究科材料開発工学専攻

https://doi.org/10.15017/17438

出版情報:九州大学大学院総合理工学報告.19(2), pp.187-190, 1997-09-01.九州大学大学院総合理工 学研究科 バージョン:

権利関係:

重水素照射した Edge-HOPG の ERD による研究

大 窪 秀 明* ・竹 中 稔**
佃 昇***・蔵 元 英 --***
(平成9年5月30日受理)

ERD study of deuterium implanted in Edge-HOPG

Hideaki OHKUBO*, Minoru TAKENAKA**, Noboru TSUKUDA*** and Eiichi KURAMOTO***

The present study shows recent progress in the depth profiling of deuterium near the surface of basal oriented (BO) and edge oriented (EO) Highly Oriented Pyrolytic Graphite (HOPG) and the isotropic graphite obtained by using elastic recoil detection (ERD) method. The implantations were made at R. T. with 8 keV D_2^+ ions to the fluences up to $^{-1}0^{22}D/m^2$ at normal incidence. The depth distribution curves of the deuterium in basal, edge oriented and the isotropic graphite were compared each other. In this study, four types edge oriented (EO) HOPG have been investigated : ZYA, ZYB, ZYD, ZYH grade from Union Carbide, USA. The grades were classified according to mosaic spread. ZYA is most high quality HOPG. Depth profiles obtained for EO-ZYA samples were almost uniform, namely, showed constant concentration for depth. Careful determination of the saturation concentration yielded a value of 10% D atoms /C atoms. The other HOPG samples also showed uniform depth distribution, but the concentration were 2-3 times higher than that in ZYA.

1. 緒 言

黒鉛あるいはアモルファス炭素についてのエネル ギーを持つ水素照射効果の研究は、現在の核融合デバ イスの黒鉛第一壁表面において化学的なスパッタ、ま たは水素リサイクルしている基本過程を理解すること のために不可欠である.しかし水素照射表面の特性評 価研究は主に、化学スパッタ率あるいは水素リサイ クル率の量的な評価を質量分光法で多くの実験がおこ なわれてきたが、高い配向性を持つ黒鉛中の水素の挙 動はまだ完全には明らかではない.

メタン分子あるいは他の炭化水素分子は後方拡散イ オンが表面炭素原子に反応するよりむしろイオン分布 の終端において形成されるという実験的な証拠が最近 報告された¹⁰. これらの揮発性の炭化水素分子が形成 されるか,あるいは表面領域を通して拡散するメカニ ズムの解明のために化学的な結合している状態と結晶 構造の両方が調査されなければならない. 特に高配向 熱分解黒鉛(HOPG)の Edge 面の研究²⁰は Basal 面^{2.30} に比べ研究は少なく,黒鉛中の水素の挙動は Basal 面 や等方性黒鉛の研究が主である.表面からの水素の分 布を数十nmの深さ分解能で測定可能な反跳粒子検出

*高エネルギー物質科学専攻博士後期課程

**応用力学研究所

***高エネルギー物質科学専攻

法(ERD: Elastic Recoil Detection) は他の実験には 捉えられないわずかな水素分布の違いを検出できる方 法である.今回の研究は結晶異方性を持つ HOPG 中 の水素分布の結晶方位依存性を ERD 法を用いて解明 することを目的としている.

2. 実 験

低エネルギーイオン源はオリジン電気社製の TK-10C が使われた. イオン源から 8keV で加速され た重水素イオンは分析マグネットによって D₂⁺ のみ 抽出され試料に照射される. 偏向プレートによって ビームは照射領域の電流密度はほぼ一定に保たれる. 照射密度の不均一性は5%以下である.

Fig.1に ERD 測定における検出器の幾何学的配置 を示す. 照射による重水素の測定は 3MeV ⁴He⁺ を用





いた ERD 法でおこなわれた. タンデム加速器から 3MeV で加速された ⁴He⁺ は直径 1 mm のアパーチ ャーを通して入射角 $\alpha = 16^{\circ}$ で照射領域に達する. 前方散乱によって反跳された試料中の重水素原子は反 跳角 $\beta = 14^{\circ}$ のものを半導体検出器 (SSBD) で測定 した. 試料表面との弾性衝突によるヘリウム原子を検 出器に入るのを防ぐためにアブソーバーとしてアルミ ニウムとマイラーホイルを検出器の直前に置いている. この配置で得られる試料表面の深さ分解能は 50nm 程 度である.検出器の立体角は3.2x10⁻³sr,反跳微分断

Table 1	Graphite	samples	properties.
			F F

HOPG Highly Oriented Pyrolytic Graphite Pseudo-single crystal						
Manufactured by Union Carbide Corp.						
	mosaic spred (°)					
1.	ZYA grade	0.4 ± 0.1				
2.	ZYB grade	0.8 ± 0.2	₄ High			
3.	ZYD grade	1.2 ± 0.2	Quality			
4.	ZYH grade	3.5 ± 1.5				
Isotropic graphite						
Manufactured by Lu Carbone-Lorraine Corp.						
1.	2318 grade	9				



面積は Pázti らの文献値⁴⁾を参考にした.

ターゲット材料としては4種類のHOPGと等方性 黒鉛が使われた.HOPGは疑似黒鉛単結晶で最も黒鉛 化度の良いUNION CARBIDE 社製(USA)Grade ZYA,ZYB,ZYD,ZYHを,等方性黒鉛は細かい結晶 粒を持つLE CARBONE-LORRAINE 社製(France) Grade 2318を用いた.**Table 1**に試料に用いた黒鉛 の諸特性を示す.HOPGのBasal面は粘着テープでき れいな表面が得られるまで剥ぎ取った.Edge 面の処 理はSheroyen et al.の channeling実験⁵⁾を参考にした. Edge 面の機械的研磨をおこなわず,結晶に与える影 響が最も少ないと思われる乾燥酸素中の焼鈍をおこな い化学的な腐食による表面処理を施した.すべての試 料は残った不純物を取り除くために照射前に真空中で 1273Kで10分間焼鈍した.

3. 実験結果

Fig. 2 (a) (b) に Basal 面および等方性黒鉛に8keV D_2^+ 照射後の重水素の深さ分布^oを測定したものを示 す. ZYA の Basal面に存在する重水素の深さ分布は 深さ60nm をピークに100nm まで存在しており Monte Carlo プログラム TRIMcode の計算と良く一致した. ZYB, ZYD, ZYHの Basal 面でも同様な分布が見られ た. 等方性黒鉛での分布は Basal 面とは異なっている. 重水素は表面に局在しておらず深くなるほど濃度は減 少し,測定深さ限度である700nm を越えて存在して いるものと思われる. 黒鉛中の水素が飽和する 10^{22} D/m²以上の照射では重水素と炭素の原子比 (D/C) は等方性黒鉛で40%であり, Basal 面では80% 近くに達する.



Fig. 2 ERD spectra of graphite implanted with deuterium at R.T.. (a) HOPG basal plane, (b) Isotropic graphite.



Fig. 3 (a), (b), (c), (d) にそれぞれ ZYA, ZYB, ZYD, ZYH の Edge に照射後の重水素の深さ分布を示 す. いずれの照射においても edge 面に垂直 (c軸に垂 直) におこなっている. ZYA Edge 面の重水素は局在 せず,深さに対して一様に存在し, ZYB, ZYD, ZYH も同じ分布を示すことが明らかになった. また, D/C は配向性の高い ZYA が最も少なく, 4× 10^{22} D/m² 照射で10%以下であった. 重照射において は ZYH は ZYA の2倍ほど濃度を示す. **Fig. 4** に重水 素照射量に対する蓄積量をまとめたもの示す. Scherzer et al.²⁰が行ったの実験では Edge 面の水素分布は 表面に局在しており,我々はこれとは異なる結果を得 た. この分布の違いについては次節で考察する.

4.考察

過去の実験から黒鉛中の水素は分子として拡散す る"と考えられている.また,Kiyoshi et al.の水素 透過実験⁸⁰から HOPG の Basal 面を水素分子は通り抜 けることができない.等方性黒鉛ではバルク中に存在





する結晶粒界,気孔を通って水素分子は移動できるが, HOPG 中の水素分子は潜在する欠陥または Basal 面層 間を移動していると思われる. ERD 測定から得られ た結果はこのような構造の違いを反映したものと考え られる.

HOPG の Edge 面から照射をおこなった場合は重水

素の分布は深さに対して濃度はほぼ一定であった. Basal 面と異なる分布の原因として Basal 面に平行に 照射したため, channeling の寄与が考えられる. 確認 のため追加実験として Basal 面に対して 0°, 15°, 30° と角度を変化させて照射をおこなった. その結果いず れの照射角度でも同じ水素分布を示し照射角度依存性 はなかった. このことから,重水素の分布の広がりは Basal 層間を channeling したものではない.

Edge 面から照射において Scherzer et al. の実験と の分布の違いについて考察する. Scherzer et al. は Edge 面をダイヤモンドペーストを用いた表面研磨処 理をしている. Edge 面研磨によってEdge面表面付近 にはかなりの欠陥が残っており,そのため重水素はそ の欠陥にトラップし表面付近に局在したものと考えら れる.

5. 結 論

HOPG の Edge 面に重水素を照射すると重水素は深 さに対してほぼ一様分布で存在する明らかになった. これは HOPG の Basal 面の分布のしかたとは対照的 であり炭素六員環の存在が分子移動する水素に大きく 影響している. これから HOPG 中の水素分子は Basal 面層間を移動できると考えられる. また Edge 面の重 水素蓄積量は高品位の黒鉛(mosaic spread が小さい 黒鉛)ほど少ないことが明らかになった.今後の課題 として,その場観察によるEdge面に存在する水素の 拡散機構を明らかにする必要がある.

謝辞

本研究において多大なる助言を頂きました名古屋大 学工学部の田辺哲朗教授に心より感謝致します.

参考文献

- M.C Underwood, S.K. Erents and E.S. Hotston: J. Nucl. Mater., 93 & 94 (1980) 575-580
- 2) B.M.U. Scherzer, R. Behrisch, W. Eckstein et al.: J. Nucl. Mater., 63 (1976) 100-105
- 3) J. A. Sawicki : Fusion Tech., 14 (1988) 884-889
- 4) F. Pászti, E. Kótai, G. Mezey, A. Manuaba and L. Pócs : Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Research, B15 (1986) 486-491
- 5) D.Schroyen, M.Bruggman, I. Dezsi and G. Langouche : Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Research, **B15** (1986) 341-343
- H. Ohkubo, M. Takenaka, N. Tsukuda and E. Kuramoto: J. Nucl. Mater., 239 (1996) 236-240
- 7) B.M.U. Scherzer, J.Wang and W. Möller: Nucl. Instrum. and Methods in Phys. Research, **B45** (1990) 54-56
- T. Kiyoshi, T. Namba and M. Yamawaki: J. Nucl. Mater., 155-157 (1988) 230-233