

He イオン注入 Al 試料からの He 再放出率の温度および注入量依存性

深堀, 智生
九州大学大学院総合理工学研究科エネルギー変換工学専攻

神田, 幸則
九州大学大学院総合理工学研究科エネルギー変換工学専攻

飛松, 浩樹
九州大学大学院総合理工学研究科エネルギー変換工学専攻

前田, 義文
九州大学大学院総合理工学研究科エネルギー変換工学専攻

他

<https://doi.org/10.15017/17646>

出版情報 : 九州大学大学院総合理工学報告. 7 (2), pp.277-283, 1986-01-01. 九州大学大学院総合理工学研究科
バージョン :
権利関係 :



He イオン注入 Al 試料からの He 再放出率の 温度および注入量依存性

深堀 智生*・神田 幸則・飛松 浩樹**

前田 義文**・山田 浩治***

(昭和60年9月30日 受理)

The Temperature and Dose Dependency of Helium Reemission Ratio from Helium-ion-implanted Aluminium Samples

Tokio FUKAHORI, Yukinori KANDA, Hiroki TOBIMATSU
Yoshifumi MAEDA and Koji YAMADA

It has been observed that blisters and flakes appear on a metal surface implanted He ions above a specific ion dose called the critical dose. At the appearance of the blister and flake, He gas responsible for them is released. There are many reports on the gas reemission with these deformations but there are few reports about it below the critical dose. In this report, temperature and dose dependencies of He reemission from He-ion-implanted Al samples have been studied. After He ions of 20 keV are implanted in Al samples, the samples are heated in vacuum at 400, 450, 475, and 500°C with holding time of 0.5, 1, and 2 hours. The numbers of He atoms remaining in the sample are measured by a He atom measurement system. The reemission ratios of the samples prepared at the given temperature and holding time have been obtained from comparison of the numbers of He ions implanted in the samples with the numbers of He atoms measured by the He atom measurement system. The reemission ratio rises with increasing temperature and holding time, and achieved at ~90 % with 500°C and 2 hours holding time. On dose dependency of the reemission ratio, it is constant up to 7×10^{14} He atoms and it increases rapidly above it.

1. 緒 論

核融合炉や高速炉に使用される金属材料は耐放射線特性が要求される。特に、核融合炉第一壁は強い高速中性子とプラズマからのイオン照射を受ける。これら両照射に共通して、材料中に生成または注入される He が金属材料の特性に大きな影響を与える問題がある。14 MeV 中性子を含む高速中性子に対しては H 又は He を発生するガス生成断面積が大きい。特に、高速中性子照射に伴って (n, α) 反応で生成される He は金属中での溶解度が低いため、金属材料の脆化に大きな影響を及ぼす。一方、プラズマと第一壁面との相互作用の中で、He 入射に由る金属表面の損傷は次の如き特徴的問題を有する。

He イオンを金属に注入した場合に起こる現象とし

てブリスタリング及びフレーキングが観察されている¹⁻³⁾。加速された He イオンは金属中でその飛程の深さに層状に分布することになる。ブリスタリング及びフレーキングはそれぞれ、注入された He が特定の場所に集合して、内部圧力が高まって金属表面の一部を押し上げて半球型のドームを形成するか、表面が一部剥がれてしまう現象である。したがって、内部圧力が一定値以上にならないと生起せず、これらの現象には照射量のしきい値がある。これをブリスタリングやフレーキングの臨界照射量という。両者の形成過程は幾つかのモデル⁴⁻⁶⁾で議論されると共に、He 再放出^{1-3,9)}に関する研究もなされている。しかし、この両現象は He イオン照射が臨界照射量以上で起こる特有のものである。中性子照射による He 生成は試料中に均一に分布するので、He イオン注入とは異なった He の分布である。ただし、金属中に存在する He の挙動は同一であるから、両者の共通の問題を考察対象とする場合には、He イオン注入を臨界照射量以下に

エネルギー変換工学専攻

* 同上博士課程

** 同上修士課程

*** 工学部応用原子核工学科

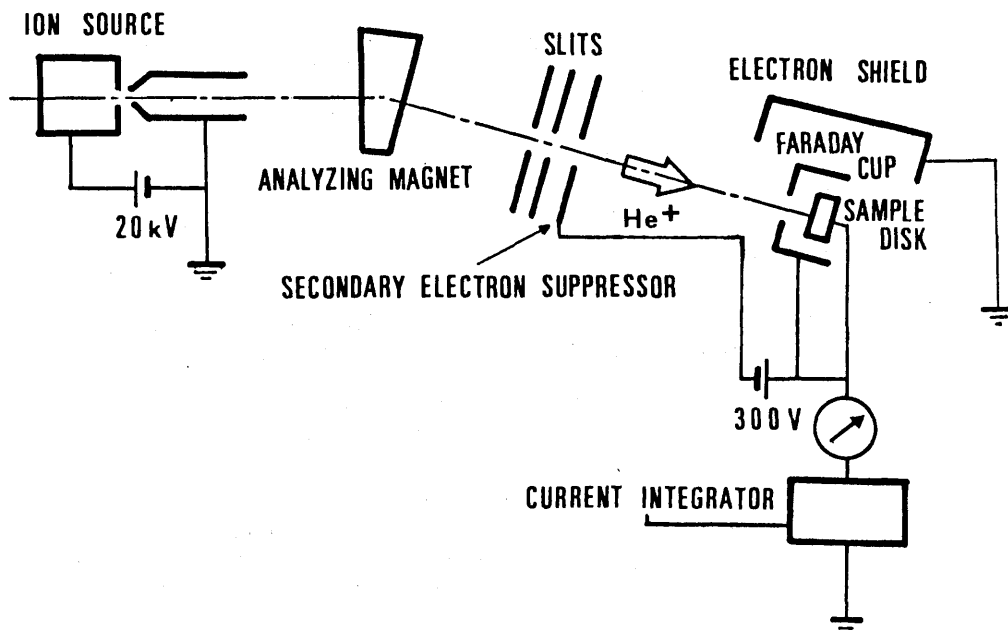


Fig. 1 Schematic diagram of the ion source and sample chamber used to prepare He-ion-implanted Al samples.

限定すればよい。この領域では拡散に関する測定の場合¹⁰⁾があるが、充分な研究は未だなされていない。

本研究では、金属中に存在する He の挙動を研究する目的で、He イオンを臨界照射量以下で注入した Al からの He 再放出率を測定する。He イオンの照射量及び試料の昇温による再放出率の依存性を調べる。

2. 実験

試料として市販の Al 板 (化学純度 99.6%, 厚さ 0.2 mm) を 8×8 mm の大きさに切り出して使用した。Al 試料はアルコール浴で超音波洗浄した。Fig. 1 に示すイオン源及びイオン照射用チェンバからなる He イオン照射装置を用いて、室温で 20 keV の He イオンを $3 \times 10^{14} \sim 7 \times 10^{14}$ He atoms の範囲内 5 種類の照射量で注入した。この照射量はおよそ $1 \times 10^{16} \sim 2 \times 10^{16}$ He atoms/cm² に相当し、Al 試料と He イオンの組み合わせにおける臨界照射量の 4×10^{17} He atoms/cm² の 20~40 分の 1 に相当する。したがって、この程度の照射量では、プリスタリング及びフレーキング等の表面変形は走査型電子顕微鏡の観察によっても認められなかった。これら 5 種の Al 試料を 1 セッ

トとし、8 セット作成した。イオンビームの直径は 2 mm ϕ 程度でビーム電流は $\sim 1 \mu\text{A}$ であった。He イオン照射中のイオン照射用チェンバ内の真空度は $\sim 5 \times 10^{-6}$ Torr. 程度であった。イオン・ビーム電流の測定は Fig. 1 に示す如く、充分な二次電子遮蔽を行ない正味の He イオン注入量の精度良い測定が可能な実験条件とする様配慮した。He イオン注入量の誤差は 0.4% である。その大部分は電流積分器の測定限界によるものである。個々の Al 試料へのイオン照射密度導出のために、イオン・ビームの各 Al 試料上のビーム・スポット形状を走査型電子顕微鏡で観察した。ただし、ビーム内の He イオン分布は一様と仮定して照射密度を求めた。

He を注入した Al 試料を赤外線ゴールド・イメージ炉を用いて真空中で一定温度、一定時間昇温した。しかし、1 セットは未処理の状態を調べるため昇温は行なわなかった。昇温の温度は 400, 450, 475 及び 500°C で保持時間は 0.5, 1.0, 及び 2.0 時間とした。昇温中の炉内の真空度は $3 \sim 7 \times 10^{-6}$ Torr. に保たれていた。1 セット 5 個の Al 試料に関して同一温度、同一時間の昇温を施した。また、昇温後の Al 試料の

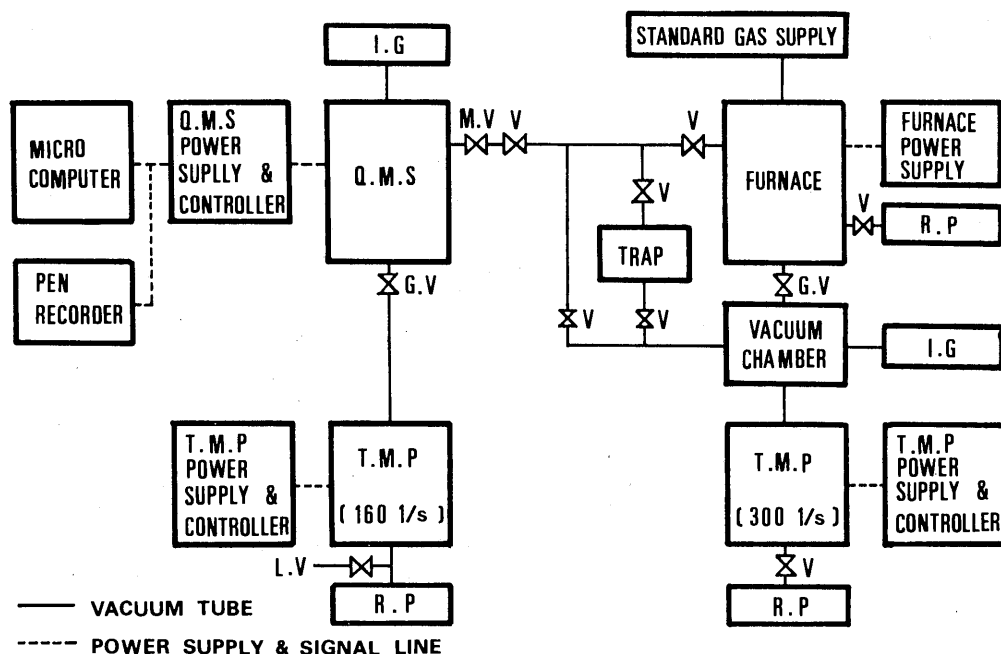


Fig. 2 Block diagram of the He atom measurement system.

表面を走査型電子顕微鏡で観察した。

He 原子測定装置によってそれぞれの Al 試料中に残留している He 数を測定した。He 原子測定装置については、既に報告¹⁾しているのでここでは概略を記述するにとどめる。Fig. 2 に He 原子測定装置の配置図を示す。装置は電気炉、四重極質量分析器、データ処理制御系、トラップ、標準ガス作成装置、真空系の6つの部分で構成されている。測定は次の手順で実施する。試料を電気炉に装着し炉内を真空に排気する。電気炉を真空系より孤立させた後、標準となる既知量の ^3He を標準ガス作成装置で作し、電気炉に導入する。電気炉に通電することにより試料を完全に蒸発させ、試料内部に捕獲されている He を放出させる。放出ガスには ^4He の他水素系のガスが含まれている。質量分析を行ない、質量数3及び4の測定を行なう。水素系のガスは質量数3のバックグラウンドとなりうる。したがって水素系のバックグラウンドガスをモレキュラ・シープスを用いたトラップによって除去し He を純化する。純化された ^3He 及び ^4He を含む試料ガスは四重極質量分析器に導入され、その質量ピークの出力をパーソナル・コンピュータに入力する。質量数3と4の質量ピークの比と既知の ^3He 数より ^4He

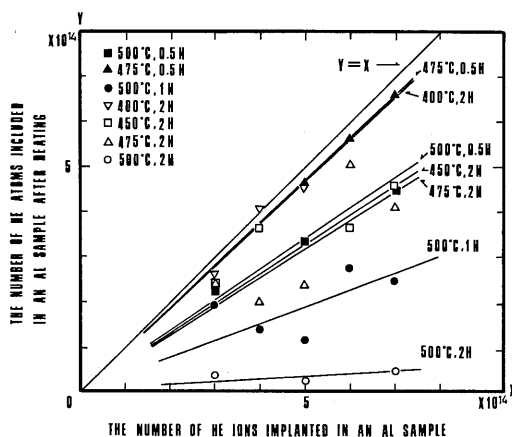


Fig. 3 Results of the number of He atoms measured in He-ion-implanted Al samples prepared by heating and holding at given values. The solid line $y = x$ shows that the number of He atoms released from the Al sample is equal to that of implanted He ions. The other lines are fitted ones to data with the least square method.

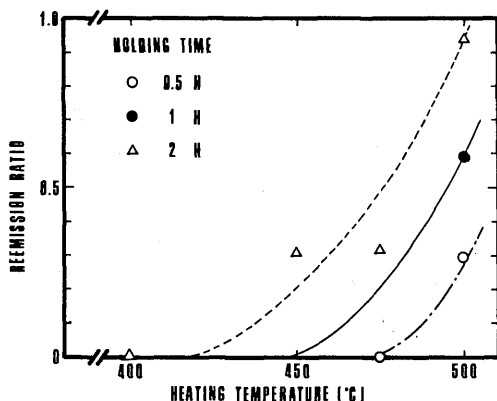


Fig. 4 Temperature and holding time dependencies of the reemission ratio. The open circles show heating for 0.5 hour, the filled circles for 1 hour, the triangles for 2 hours. The lines are for eye guide.

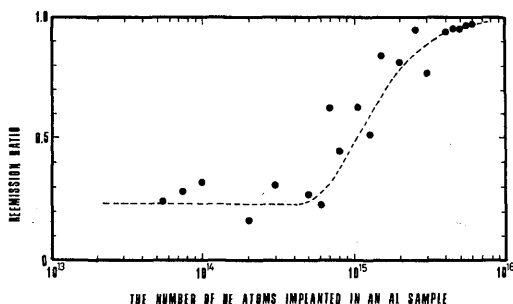


Fig. 5 Dose dependency of the reemission ratio. The line is for eye guide.

の絶対数を決定することができる。

再放出率の照射量依存性を調べるために前記と同種の試料を用い、昇温温度を 500°C、保持時間を 1 時間に固定して 5.5×10^{13} He atoms ~ 2×10^{15} He atoms の He を注入した試料の測定を行なった。

3. 結果と議論

Fig. 3 に 500°C、1 時間の昇温を行なった測定結果を示す。横軸はイオン電流の測定より求めた He イオン注入数、縦軸は He 原子測定装置による Al 試料中に残留していた He 数である。実線は $y=x$ の直線であり、He イオン注入数と残留 He 量が一致することを示している。Fig. 3 からわかるように残留 He 数は

実線の下に出ているので昇温処理によって He が放出していることがわかる。放出率を調べるために、測定データに直線を当てはめその傾きを残留率とした。

Fig. 3 中の実線は、当てはめた直線を示す。

昇温温度、保持時間に関する再放出率の変化を Fig. 4 に示す。横軸は昇温温度、縦軸は再放出率である。昇温温度が上昇するに従って、また保持時間が長くなるに従って再放出率は高くなっている。一定の保持時間の場合、再放出開始温度は保持時間が長いほど低い。500°C で 2 時間昇温した場合、注入量のほぼ 90 % の He が再放出されている。

再放出率の照射量依存性を見るために 5.5×10^{13} ~ 2×10^{15} He atoms の He を注入した試料を 500°C、1 時間昇温した。その測定結果を Fig. 5 に示す。横軸は照射量で、縦軸は再放出率である。 5.5×10^{13} ~ 7×10^{14} He atoms の間の再放出率はほぼ一定で、He 注入量に依存しないが、 7×10^{14} He atoms を越えると再放出率は照射量に従って増加している。再放出率は、 2×10^{15} He atoms の照射量の所で約 90 % に達している。

昇温後の Al 試料表面の走査型電子顕微鏡による観察結果を Fig. 6 に示す。昇温後の表面には多くの穴が観察され He はここから放出されたものと考えられる。未照射部分の表面は Fig. 6 (e) の右半分のように穴は観察されていない。He イオンを照射した領域内で、この穴が形成されている部分の割合は温度が高いほど大きい。その様子は Fig. 6 (a) (b) 及び (e) の比較から判る。また、同様にその割合は保持時間が長いほど大きい。その様子は Fig. 6 (c) (d) 及び (e) を比較すると明らかである。これらの傾向は前述の再放出率と一致する。また、個々の穴の大きさはどの温度でもほぼ同様である。従って、He の再放出量は穴の数に比例し 1 個の穴当りの He 放出量は同程度と考えられる。450°C 未満の昇温温度では 2 時間保持しても穴の形成は認められず、再放出も確認できなかった。

以上の表面観察を臨界照射量以上の He 照射により、プリスタリング及びフレーキングが起こった試料の走査型電子顕微鏡観察¹⁾と比較したのが、Fig. 7 である。Fig. 7 (a) と (b) の比較から、本報告の穴の大きさと前報告¹⁾のプリスターあるいはフレークの大きさは、やや穴の方が小さめであるが桁違いの差はない。穴とプリスター等の分布は、Fig. 6 の各写真と Fig. 7 (c) で比較できる。穴の分布は局所的で、温度上昇と

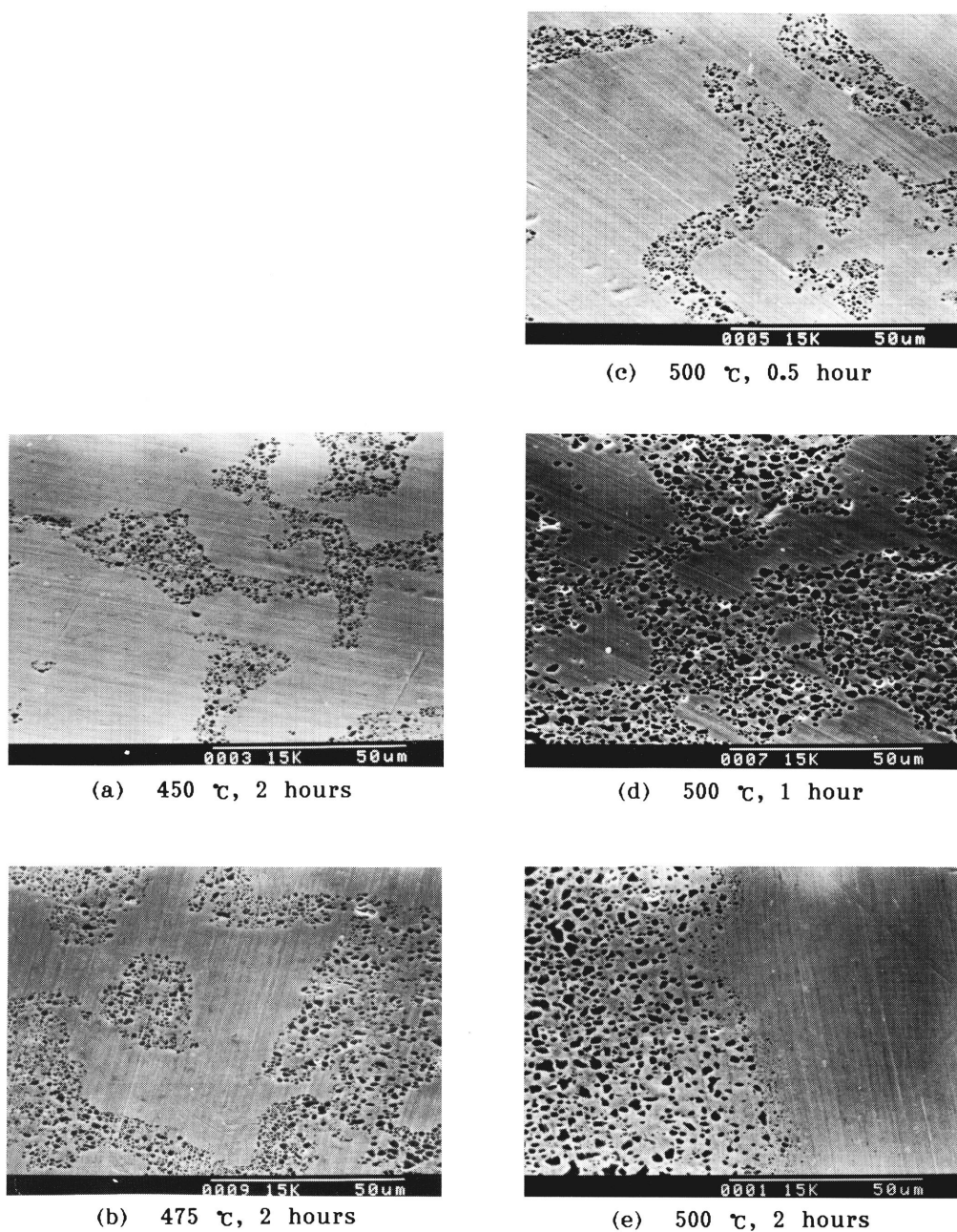
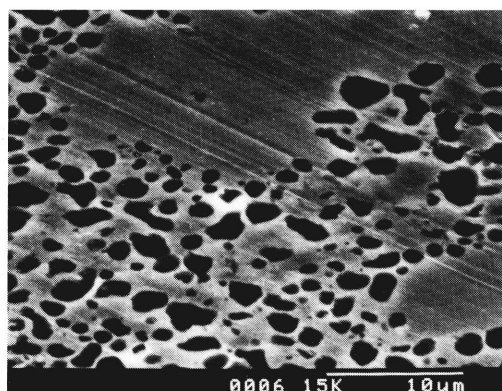
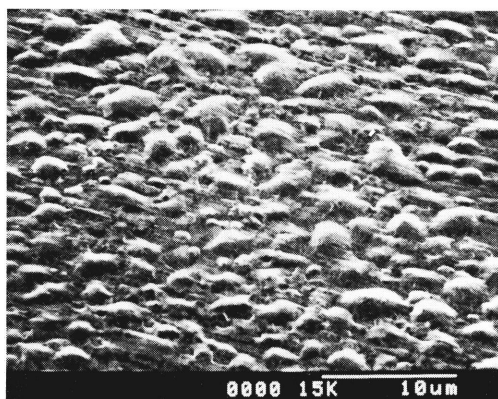


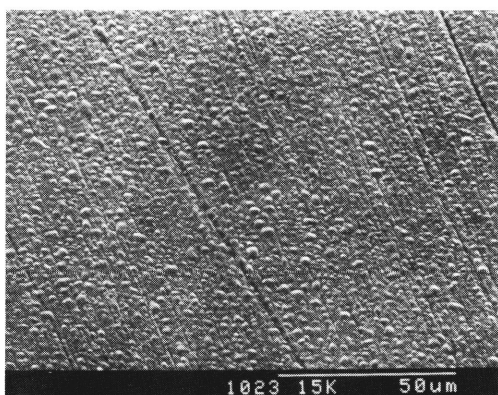
Fig. 6 Photographs of the sample surfaces prepared at conditions given for every one with a scanning electron microscope.



(a) Hole, 500 °C, 1 hour.



(b) Blister, no heating.



(c) Blister, no heating.

Fig. 7 Scanning electron microscope photographs of the sample surfaces comparing between holes and blisters appeared on the samples of the given experimental conditions, respectively.

共にその領域が広がって行く傾向にある。プリスター等は特に局在する傾向は見られず、一様に分布している。

注入 He の金属内での分布は He イオンの飛程の深さに層状に分散分布した初期状態から試料内を移動し、He 原子が捕獲され易い欠陥や転移の部分に集合すると考えられる。この He 原子の集合がプリスターを形成すると考えられる。臨界照射量以下の He 注入の場合も、同様の現象の後に再放出して穴を形成すると考えられる。しかし、両者の分布は一方が局在し、他方が一様で、He の拡散移動に伴う同様な現象とは理解し難い。加えて、一方は再放出で穴を残すのみであり、他方はプリスターの如き盛り上がりを示して放出する。昇温時の He 再放出が原子状で個々に放出するのではないことは穴の観察が裏付ける。以上の考察から、He 放出は共に原子が集合したガス状で起こるが、両者の内部圧力の差が濃度の違いによる金属表面状態の差がこの結果を導くものと考えられる。

本研究の Al 試料は市販の板から切り出したもので、焼純の処理をしていない。今後の課題は事前処理の違いによる関連現象の研究である。また、中性子照射の如く、均一に試料中に He が分布する場合の問題も重要である。

以上のことから、He の再放出が起こる過程は次のように考えることができる。He 注入時はほぼ一様に分布していた He 原子は、温度の上昇と共に移動を開始する。He 原子が捕獲されやすい部分、すなわち、He 原子の貯りやすい部分へ He が集中する。次第にその部分が成長し、試料表面へ達すると He の再放出が起こる。この過程はより低温でも起こっている可能性はあるが、急激な成長により試料表面へ He だまりが成長する以前に再び He が他の場所へ移動すると考えられる。

プリスタリングやフレーキング形成の臨界照射量以下の領域でも昇温することによって、表面変形が観察され、再放出が起こることがわかったので、核融合炉等の周期的に高温となり得る炉壁の構造材の設計は、注意深く行なわなければならない。また Al のみならず、構造材としての使用を考えられている物質について、さらに詳細な研究を行なって、基礎的な材料特性の資料を蓄積する必要がある。

本研究の一部は、文部省科学研究費補助金をうけて行なわれた。

参 考 文 献

- 1) T. Fukahori et al.; J. Nucl. Mater., **133&134** (1985) 277.
- 2) M. Saidoh et al.; J. Nucl. Mater., **96** (1981) 358.
- 3) K. L. Wilson and G. J. Thomas; J. Nucl. Mater., **63** (1976) 266.
- 4) J. H. Evans; J. Nucl. Mater., **61** (1976) 117.
- 5) J. H. Evans; J. Nucl. Mater., **68** (1977) 129.
- 6) J. H. Evans; J. Nucl. Mater., **93&94** (1980) 745.
- 7) P. B. Johnson and D. J. Mazey; J. Nucl. Mater., **111&112** (1982) 681.
- 8) B. Emmoth; Rad. Eff., **78** (1983) 365.
- 9) W. Bauer and G. J. Thomas; J. Nucl. Mater., **63** (1976) 299.
- 10) V. Sciani and P. Jung; Rad. Eff., **78** (1983) 87.
- 11) 深堀 智生 他; 総合理工学研究科報告, 第6巻第1号 (1984) 31.