

論 文

アルミニウム表面近傍における 重水素の捕獲と拡散

園 部 勝・多 々 静 夫・芦 田 完*
渡 辺 国 昭*・池 野 進**

富山大学工学部

*富山大学トリチウム科学センター

**富山大学地域共同研究センター

〒930 富山市五福3190

Trapped State and Diffusion of Deuterium in Subsurface Region of Aluminum.

Masaru SONOBE, Shizuo TADA, Kan ASHIDA*
Kuniaki WATANABE*, Susumu IKENO**

Faculty of Engineering, Toyama University

*Tritium Research Center, Toyama University

**Research and Development Center, Toyama University

Gofuku 3190, Toyama 930, Japan

(Received December 25, 1989)

Abstract

Aluminum/aluminum alloy is a promising material for vacuum components in D-T burning experimental devices owing to its low activation toward 14 MeV neutrons, low outgassing and other features. Prior to its application, however, fundamental interactions between aluminum and fuel (deuterium and tritium) must be understood in regard to tritium inventory, fuel recycling, and environmental safety. For this purpose, a study was made of trapped states and diffusion of deuterium implanted into aluminum using computer-aided x-ray photoelectron spectroscopy (XPS) and secondary ion mass spectroscopy (SIMS). Following deuterium ion implantation (5 keV), a new secondary ion peak, AlD^+ , was detected in the SIMS spectra, indicating deuterium atoms to be directly trapped on aluminum atoms.

Changes in the profiles of implanted D atoms in sample at a given temperature were examined by shape analysis using diffusion controll model. The diffusion coefficients of deuterium were determined from changes in depth profiles as about 10^{-16} (at R.T.) and 10^{-14} [cm²/sec] (at 70°C). These value are 4 to 8 orders of magnitude lower than those for Fe or Ni; thus alminum alloys should be superior to tritium in thermonuclear devices than Fe-based materials such as stainless steel.

1. 緒 言

核融合炉材料は、様々な過酷な条件を満たさなくてはならないが、炉システムの保守・管理の点からは低誘導放射化材料であることが強く望まれる。種々の低誘導放射化材料の中でアルミニウム合金は低ガス放出特性を有するため真空材料として有望視されている¹⁾。但し、炉システムの真空材料としてアルミニウム合金を使用するためには、燃料(重水素およびトリチウム)の有効利用および環境保全の観点から、アルミニウム合金におけるトリチウムの吸着、溶解、拡散、透過等を明らかにしておく必要がある。

各種アルミニウム合金での上記の現象を解明するには、まずアルミニウムそのものに関する水素同位体の表面被服率や溶解度、捕獲種、拡散係数および表面再結合係数など数多くの知見が不可欠である。ところがアルミニウム中における水素の拡散係数は²⁾そのほとんどが高温領域(400°C以上)において測定されたもので室温付近でのデータはほとんどない³⁾。さらに燃料である水素同位体のアルミニウム合金からの出入は必ず表面を通して行われるため、燃料のインベントリーやリサイクリングを評価するためには表面近傍における水素同位体の溶解度、拡散挙動を明らかにする必要がある。このため本報ではアルミニウムに重水素イオンを注入し、軟X線光電子分光装置(XPS)、二次イオン質量分析装置(SIMS)、昇温脱離法(TDS)を用いて表面近傍における重水素の溶解度、捕獲種および拡散挙動に関する検討を行った結果について述べる。

2. 実 験

2-1. 試料および装置

試料としてマテリアルリサーチ社製の板状アルミニウム(純度99.9995%)を用いた。このアルミニウムを25×2.5×0.5mmに切り出した後アセトンで脱脂し、XPS - SIMS 装置に附属しているステンレス製の試料ホルダーにタンタル箔を介して点溶接した。試料表面は250°Cに通電加熱しながらアルゴンイオンエッチング法により清浄化した⁴⁾。試料温度はタンタル箔に点溶接した Pt-Pt/Rh(13%)熱電対により測定した。なお、アルゴンイオンエッチングは、アルゴンの導入圧力を 5×10^{-5} Torr, 加速電圧を 5 kV とし、約10×10mmの範囲について行った。試料表面の状態分析のための XPS 及び SIMS のプローブはそれぞれ

Mg-K α 及び Ar⁺ である。

2-2. 測定

アルミニウムへの重水素の注入はイオン銃を用いて行った。なお、イオンは試料表面に対して約60度の角度で入射した。重水素イオンの注入は、重水素の導入圧力を 5×10^{-5} Torr, 加速電圧を 5 kV とし、約 3×3 mmの範囲に対して行い、注入時間は30分とした。重水素イオン注入時のイオン電流量は $3 \mu\text{A}$ であり、注入量は約 1×10^{18} D-atom/cm² である。

SIMS により、イオン注入した重水素の捕獲種と重水素の深さ分布の測定を行った。この際、アルゴンの導入圧力を 2×10^{-5} Torr, 加速電圧を 5 kV, サンプリング領域は 5×5 mm とした。

上記とは別に、アルミニウム表面での重水素の飽和挙動を測定するために重水素イオンを注入しながらアルゴンをプローブとして SIMS 測定を行った。この際、重水素の導入圧力を 5×10^{-6} Torr, アルゴンの導入圧力を 5×10^{-6} Torr, 加速電圧を 5 kV とし、表面約 5×5 mmの範囲で重水素の注入および測定を行った。さらに、イオン注入によりアルミニウム中に捕獲された重水素の量を調べるために、イオン注入後、重水素の昇温脱離スペクトルを測定した。昇温脱離スペクトルの測定には四重極質量分析装置を用い、試料の昇温速度は $100^\circ\text{C}/\text{min}$ とした。

2-3. データ処理システム

材料中の水素の分布状態を調べる方法として、例えば、高速粒子(\sim MeV)を材料表面に入射させて散乱イオンのエネルギー分光を行うことにより散乱に寄与した原子に関する情報を間接的に得るラザフォード後方散乱分光(RBS)や、入射粒子により反跳された表面原子のエネルギー分光を行う弾性反跳粒子検出法(ERD)等がある。しかしながら、これらの測定方法では高速粒子を利用するためのイオン加速器を要し装置が大がかりなものとなるに関わらず、深さ方向の分解能(depth resolution)が30nm程度であるため材料内部の情報を得ることができず、表面近傍の情報を得にくい。また、水素同位体の捕獲種に関する情報も得られない。SIMS と XPS を併用する測定では、材料表面の状態分析と入射粒子によりスパッターされた元素イオンあるいは分子イオンを直接観測できるので材料表面近傍および水素同位体の捕獲種に関する情報を得ることができる。しかしながら、アルミニウム-水素系では、XPS 測定の雑音/信号比(S/N 比)が小さく、SIMS 測定では信号の経時変化を調べるために膨大な量のデータを処理する必要があり、実験は必ずしも容易ではない。この点を解消するため、本報ではマイクロコンピュータによるデータ処理システムを新たに開発した。即ち、XPS 測定では信号強度を積算することにより S/N 比の向上を、さらに SIMS 測定では注目する二次イオンの信号強度の経時変化を real-time で演算・加工できるようにした。

3. 結果

3-1. 試料表面の清浄化

Fig. 1-(a)および(b)は、それぞれアルゴンイオンエッチングによる清浄化前後でのXPSスペクトルである。図中の横軸は電子の結合エネルギー、縦軸は計数率を表わしている。

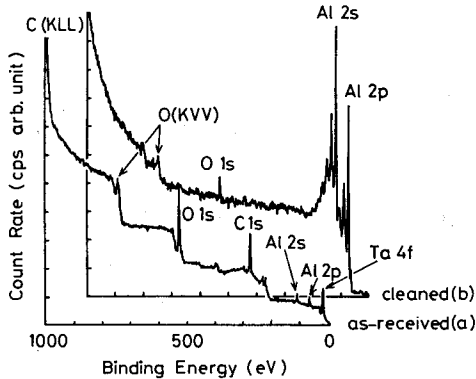


Fig. 1. XPS Spectra : (a) as received surface, (b) Ar-ion etched surface

清浄化前のXPSスペクトルにはアルミニウムの他に酸素、炭素、タンタルの信号が観測された。ここで、観測された炭素は表面に吸着した炭化水素、脂質等、酸素は吸着酸素および表面酸化層、タンタルは熱電対を取り付ける際に使用したタンタル箔によるものである。未処理のアルミニウム表面ではアルミニウムと酸素の表面存在比はAl:O=1:1であったが、清浄化後のスペクトルではAl:O=24:1となり、清浄化されていることが知られる。なお清浄化後に表面に存在する微量の酸素は炭素が観測されていないことから表面に吸着した残留ガス(H₂O)と考えられる。

3-2. 重水素の捕獲種

Fig. 2-(a)および(b)は清浄化されたアルミニウム表面に重水素イオンを注入する前後のSIMSスペクトルの一例である。なお、SIMSスペクトル中の各信号の強度は母材の

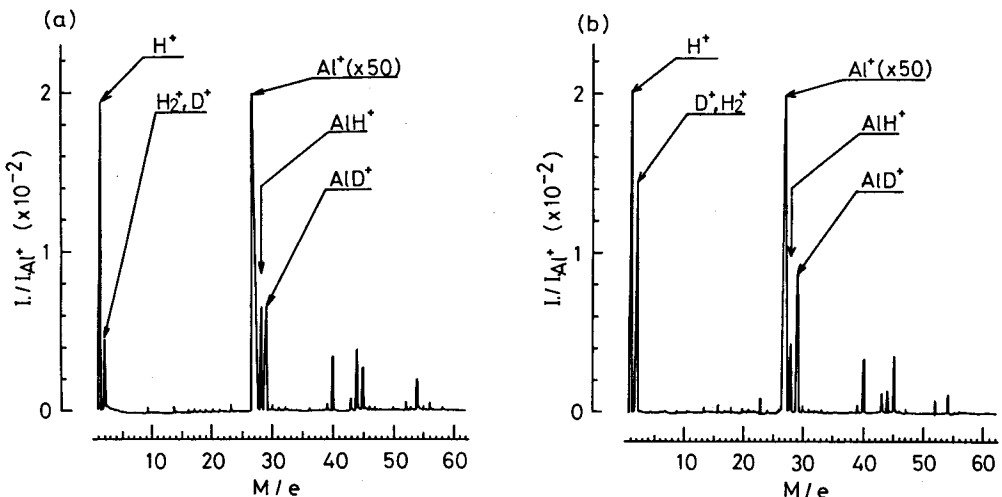


Fig. 2. SIMS Spectra for etched surface : (a) before D-implantation, (b) after D-implantation

ルミニウムの信号強度を基準とした相対強度で評価した(以下, 単に「信号強度」と記述する)。図中の横軸は質量数, 縦軸は信号強度である。重水素注入前の SIMS スペクトル (Fig. 2 - (a)) には母材であるアルミニウム ($Al^+, M/e=27$) と残留ガスの水素 ($H^+, M/e=1$), プロブであるアルゴン ($Ar^+, M/e=40$) の二次イオンピークが観測され, その他に D^+ ($M/e=2$), AlH^+ ($M/e=28$), AlD^+ ($M/e=29$), $AlOH^+$ ($M/e=43$), $AlOD^+$ ($M/e=44$) が観測された。なお重水素関連の二次イオンピーク (D^+ , AlD^+ , $AlOD^+$) が観測されるのは, 同一の試料を用いて重水素イオンの注入放出実験を行った痕跡が残っているためである。一方, 重水素注入後のスペクトル (Fig. 2 - (b)) には注入前と比較して D^+ ($M/e=2$) および AlD^+ ($M/e=29$) の信号強度が明瞭に増加し, アルミニウムに捕獲された重水素が検出されたことを示している。Fig. 3 はイオン注入により打ち込まれた重水素の昇温脱離スペクトルの一例である。図中縦軸は重水素の放出速度, 横軸は温度である。この昇温脱離スペクトルから, 重水素の脱離量は 6.6×10^{14} D-atom と計算された。

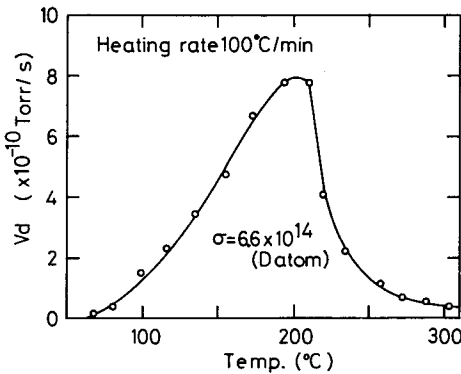


Fig. 3. Thermal desorption spectrum of D_2 (Heating rate $100^\circ C/min$)

3-3. 重水素飽和挙動

Fig. 4 は重水素をイオン注入しながら同時にアルゴンをプロブとして SIMS 測定を行った結果を表わしている。図中の横軸は照射の時間および量, 縦軸は AlD^+ の信号強度である。図よりアルミニウム表面における AlD^+ の信号強度は重水素イオンの照射量の増加と共に大きくなり, その後一定値となることが知られる。さらに, このような飽和値には温度依存性が存在することも知られた。

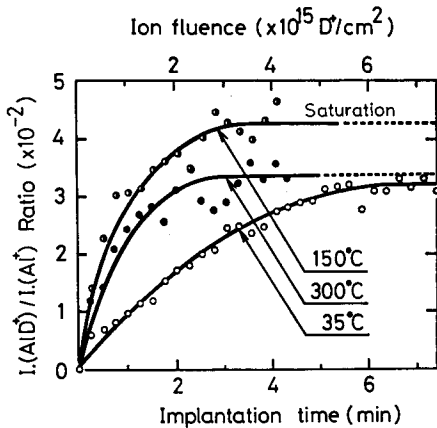


Fig. 4. Surface saturation curves of implanted D

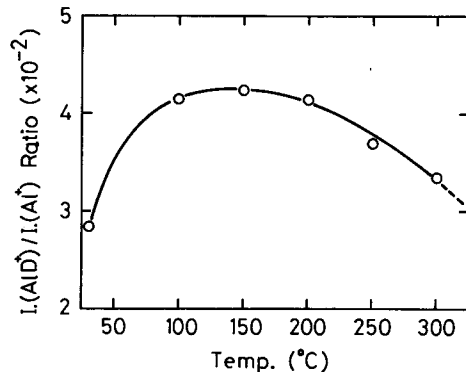


Fig. 5. Variation of D-saturation concentration with implantation temperature.

この飽和値の温度依存性を Fig. 5 に示す。この図から飽和値は150°C付近に最大値を持つことがわかる。

3-4. 重水素深さ分布

Fig. 6 (a), (b)および(c)は室温で重水素イオンを注入し、注入直後、3時間後、および42時間後にアルミニウム中の重水素の深さ分布を測定した結果を表わしている。図中の縦軸はAID⁺の信号強度、横軸はエッチング時間および深さである。この際、アルミニウムのエッチング速度(深さ)は、以下の式を用いて計算した。

$$L = \frac{I \times Y \times M_{Al} \times t}{e \times S \times \rho \times 6.02 \times 10^{23}} \quad (1)$$

ここでLは深さ[cm]、Iはアルゴンイオンエッチング中のイオン電流(2.1×10^{-6} [A]), Yは入射アルゴンイオンによるアルミニウム原子のスパッタ収率(2 Al-atom/incident ion)⁵⁾, M_{Al}はアルミニウムの原子量(27), tはエッチング時間[sec], eは電気素量(1.6×10^{-19} [c]), Sはエッチング面積($0.15 \times 0.15 \times \pi$ [cm²]), ρはアルミニウムの比重(2.7 [g/cm³])である。図中には比較のために注入直後の深さ分布を破線で書き込み、コンピュータシミュレーションで求めた深さ分布を実線で書き込んだ。このコンピュータシミュレーションについては考察で説明する。

重水素イオンの注入直後の深さ分布(Fig. 6 (a))は表面から100nmまで一定の信号強度値を示し、それ以降は深さとともに減少して約300nmでバックグラウンド値となった。注入後室温で3時間放置した後の深さ分布(Fig. 6 (b))は100nm付近から表面に向け

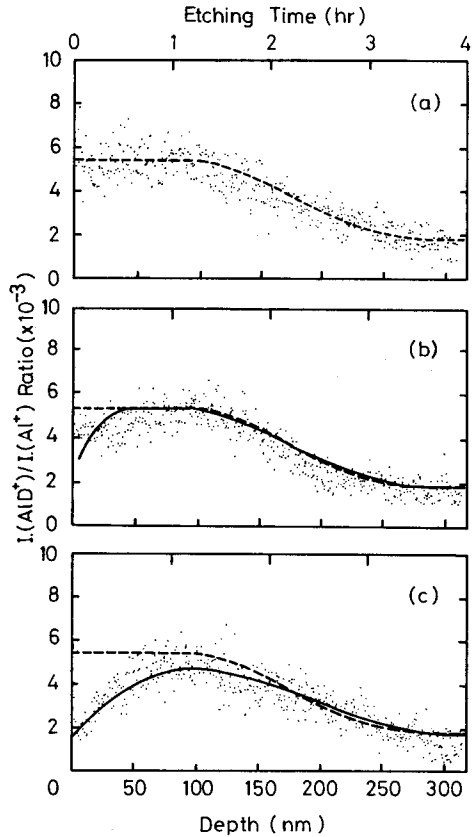


Fig. 6. Depth profile of D (dashed line: eye guide, solid line: calculation) : (a) just after implantation, (b) after being kept for 3 hrs at room temperature, (c) after being kept for 42hrs at room temperature

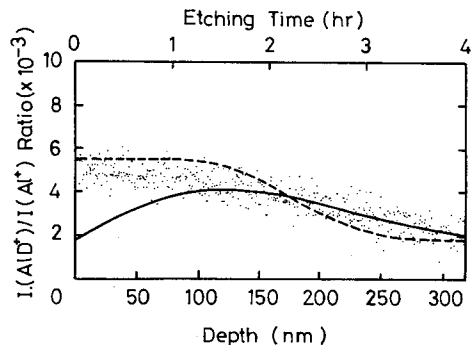


Fig. 7. Depth profile of D after being kept for 1hr at 70°C (dashed line: eye guide, solid line: calculation)

て強度の減少がみられる他は注入直後とあまり変化していなかった。一方、注入後に室温で42時間放置した後の深さ分布(Fig. 6-(c))は注入直後の深さ分布と比較して200nm付近から表面にかけて信号強度の減少がみられ、逆に200nmから300nmの範囲では全体的に信号強度が増加することが知られた。

Fig. 7は重水素注入後70°Cで1時間等温保持した後室温に冷却して測定した重水素の深さ分布である。図中の横軸、縦軸、実線、破線の各意味はFig. 6と同じである。AID⁺の信号強度は100nm付近まではほぼ一定値を示し、以降300nm付近までなだらかに信号強度が減少していった。即ち、分布の様子はFig. 6-(a)と同様であるが、全体的に信号強度が減少し、室温42時間放置後(Fig. 6-(c))と同様に200nmから300nmにかけての信号強度の増加が見られた。

4. 考察

4-1. 重水素の存在状態と捕獲種

重水素イオンの注入後、SIMS スペクトルには重水素に関係した二次イオンピークとしてAID⁺が観測され、Al₂D⁺(M/e=31)、AlD₂⁺(M/e=56)は観測されなかった。一般に、SIMS測定では材料の構成元素および材料表面の分子種が最も大きな信号強度で(parent peakとして)観測される⁶⁾。従って、注入された重水素は注入域の表面層内で広く分散し、1個のアルミニウム原子が1個の重水素原子の捕獲種となっていると考えられる(この状態を以降AIDと記す)。さらに、捕獲重水素(AID)の濃度は重水素イオン注入量の増加に伴って増加し、やがて一定値になる傾向を示す(Fig. 4)。Fig. 8は、本実験条件下で重水素イオンを注入した際、重水素イオンが衝突を繰り返しやがてアルミニウム中に捕獲されるまでをモンテカルロシミュレーション(TRIMコード⁷⁾)により計算した結果を示している。図中実線は重水素濃度、点線はしきい値を越えるエネルギーがアルミニウム格子中に与えられた場合、はじき出し等による照射欠陥が生成されるとした場合の欠陥濃度を表している。このシミュレーションによれば、D₂⁺イオンのアルミニウム中での飛程はおよそ50nm、さらに表面近傍に照射欠陥がより多く生成されることが知られる。この様な照射欠陥は新たな水素の捕獲サイトになると考えられるので⁸⁾、シミュレーション結果を考慮すると、イオン注入当初のAID⁺の信号強度の増加は、アルミニウムの正常格子中に捕獲された重水素の濃度の増加に加えて、一部は照射欠陥の生成蓄積に対応しているものと解釈される。一方、表面におけるAID⁺の信号強度の飽和

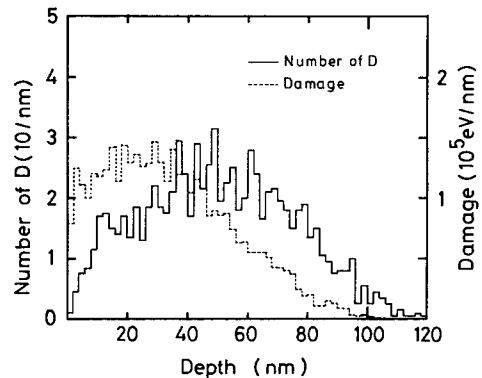


Fig. 8. Depth profile of D-concentration with TRIM code

値はアルミニウムの温度により異なり、飽和値の温度依存性は Fig. 5 に示した通り150°C付近で最大値となった。アルミニウム中への水素の溶解は吸熱反応であり、水素の溶解度は温度の上昇と共に増加することが知られている⁹⁾。他方、アルミニウム中の照射欠陥は温度の上昇と共に減少することが知られている¹⁰⁾。また、アルミニウムは水素を化学吸着しないため¹¹⁾AID という化学種は不安定であり、温度の上昇と共に解離する事が考えられる。これらのことを考慮すると、150°Cで飽和値が最大となるのは、150°C以下の温度領域ではアルミニウム中の水素の溶解度が増加し、一方、150°C以上の温度領域では照射欠陥濃度が減少もしくはAIDが解離するためであると定性的に説明できる。

4-2. 重水素濃度

昇温脱離によってアルミニウム中にイオン注入された重水素がすべて脱離したものとすると、SIMS 測定における AID の深さ方向の分布における AID⁺/Al⁺比を下式により近似的にアルミニウム中の重水素濃度に変換できる。

$$D/Al = \frac{N_d \times M_{Al}}{S \times R \times \rho \times 6.02 \times 10^{23}} \quad (2)$$

ここで、(2)式中の N_d は昇温によって脱離してきた重水素の個数 (6.6×10^{14} [D-atom]), M_{Al} はアルミニウムの原子量 (27), S は重水素イオンの注入範囲 ($0.15 \times 0.15 \times \pi$ [cm²]), R は重水素が分布している深さ ($\sim 150 \times 10^{-7}$ [cm]), ρ はアルミニウムの比重 (2.7 [g/cm³]) である。この式から D/Al を計算すると D/Al ~ 0.01 となった。アルミニウム中における平衡水素固溶濃度は室温付近で $0.1 \sim 0.3$ cc (STP) / 100g (Al) 程度、即ち H/Al ($2.4 \sim 7.2$) $\times 10^{-5}$ であり、得られた値は 3 桁程度大きい。このことから逆に Fig. 2 (a), (b) で観測された AlH⁺ の二次イオンピークは SIMS 測定中にも装置中に存在する残留ガスである水素の影響を受けていることが考えられ、アルミニウム中に於ける水素同位体の濃度は AlH⁺ で評価でき、微量の水素に関しては殆ど無視できる。Kamada¹²⁾ らによれば高速 (25 keV) の水素イオンをアルミニウム中に照射した時の水素濃度は H/Al = $0.3 \sim 0.01$ 程度に達し、このような状況下ではアルミニウム中には水素バブルが生成される。本研究においては、重水素はアルミニウムに直接捕獲された状態で観測されており、アルミニウム格子中で D₂ 分子が生成される以前の捕獲種が観測されているものと考えられる。本研究と Kamada らの結果のどちらの場合においてもイオン注入された水素同位体の飽和濃度値は平衡固溶濃度値よりも高く、数 keV のエネルギーをもった水素同位体が存在する場所に用いられるアルミニウムのインベントリーは、飛程の範囲内において従来よりもはるかに高い水素濃度で評価する必要がある。

4-3. 深さ分布

Fig. 6 –(a)で見られたように、注入直後 Fig. 8 の計算機シミュレーションと他の計算方法¹²⁾によれば重水素イオン (D_2^+) の飛程はおおよそ50~70nm であるが、Fig. 6 (a)に示した結果によれば重水素はこの計算飛程の約2倍もの深さまで一定の濃度値で分布している。これは、用いたイオン銃で発生した重水素イオン中に D^+ が存在しているため、 D_2^+ イオンの場合の2倍の深さまで重水素イオンが打ち込まれたためと考えられる。一方、イオン注入された重水素の分布に関して、測定 (Fig. 6 –(a)) と計算結果 (Fig. 8 実線) は異なり、測定結果には表面に向けての重水素の濃度減少が見られなかった。これは計算機シミュレーションの結果を考慮すると (Fig. 8), アルミニウム表面に生成する照射欠陥が新たな重水素の捕獲サイトになっているためと考えられる。

重水素イオンの注入後、室温で3時間放置した後 (Fig. 6 –(b)) の深さ分布は100nm 付近から表面に向けて強度の減少がみられ、42時間放置した後 (Fig. 6 –(c)) の深さ分布は80nm 付近から表面近傍に強度の減少と100nm から300nm の範囲における全体的な強度減少が観測された。水素イオン注入時の放出過程を評価するため Doyle¹³⁾ により提唱された無次元の輸送因子, W , は注入水素と放出水素量が釣り合っている際、再放出過程が拡散律速であるのかあるいは再結合律速であるのかを判定する指標となり、(3)式で表わされる。なお、 $W > 1$ の場合は拡散律速、 $W < 1$ の場合は再結合律速と判定される。

$$W = R(\phi Kr)^{1/2} / D \quad (3)$$

(3)式中 R は重水素イオンの飛程であり、注入直後の深さ分布から50~100[nm]である。また入射粒子束, ϕ , は 5.3×10^{14} [D-atoms/cm²·sec] である。表面再結合係数, Kr , として Kamada ら¹⁴⁾ の実測値 ($Kr = 1 \times 10^{-28}$ [cm⁴/sec]) を用いた。従って、拡散係数が 1.1×10^{-12} [cm²/sec] 以下ならば拡散律速、この値以上ならば表面再結合律速と評価できる。ここで、本研究における注入重水素の深さ分布の変化は、拡散律速過程によるものとして以下のような拡散モデルで数値解析を行った¹⁵⁾。即ち、Fick の第一法則によると、単位面積を通過する拡散物質 (ここでは重水素) の移送速度, F , は濃度勾配と拡散係数に比例し、(4)式で表わされる。

$$F = -D \frac{\partial C}{\partial x} \quad (4)$$

この時、Fig. 9 中の拡散物質が微小時間 Δt の間に面 R を通過して深さ x に入ってくる量 q_R は(5)式の形で近似され(6)式のように書き直される。同様に面 S を通過して出ていく量 q_S は(7)式の形に近似される。

$$q_R = D \frac{C(x-\Delta x, t) - C(x, t)}{\Delta x} \Delta t \quad (6)$$

$$q_S = -D \frac{C(x, t) - C(x+\Delta x, t)}{\Delta x} \Delta t \quad (7)$$

全体として深さ, x , における重水素の Δt 時間後の濃度 $C(x, t+\Delta t)$ は q_R と q_S を単位深さ, Δx , で割り $C(x, t)$ に加えて, (8)式として表わされる。

$$C(x, t+\Delta t) = C(x, t) + D \frac{C(x-\Delta x, t) - 2C(x, t) + C(x+\Delta x, t)}{\Delta x^2} \Delta t \quad (8)$$

重水素注入直後の分布を $C(x, 0)$ に代入し, 境界条件として表面濃度を $C(0, t) = 0$ として深さ分布を逐次的に計算した。室温における測定結果を再現できるように拡散係数を選ぶと, 拡散係数は $\sim 1 \times 10^{-16} [\text{cm}^2/\text{sec}]$ となる。計算の結果を Fig. 6-(b), (c) 中に実線で示した。さらに, 70°C での測定結果 (Fig. 7) を同様に解析すると, 拡散係数は $\sim 10^{-14} [\text{cm}^2/\text{sec}]$ となった。これら計算で得られた拡散係数の値は, 重水素イオン注入時のものではないが, 試料の表面方向への重水素の移動を評価している点では, Doyle の輸送因子, W , から見積った値と比較できるものと考えられる。即ち, 先に輸送因子, W , から評価した放出過程の遷移する拡散係数 ($1.1 \times 10^{-12} [\text{cm}^2/\text{sec}]$) よりも本報の重水素の拡散係数は数桁小さく, 深さ分布の変化は拡散によつた仮定は妥当なものであると結論できる。また, 室温での拡散モデルによる計算結果は表面から 70nm 程度までの濃度減少など実験結果をよく再現することができた。 70°C での計算結果も 100~300nm の範囲では濃度勾配を再現することができたが, 表面から 100nm の範囲で不一致がみられた。XPS 測定によれば重水素イオンの注入後, 試料表面に 1 nm 程度のアルミニウム酸化物層が形成されていることが知られた。一般に, このような酸化物層は拡散障壁となることが知られている¹⁷⁾。従つて, 70°C において実験結果と計算結果が一致しないのはアルミニウム表面の酸化物層により, 表面方向への拡散が阻害されたためと考えられる。このような酸化物層の影響に関しては, 今後定量的に調べる必要がある。

室温と 70°C で得られた拡散係数からの高温

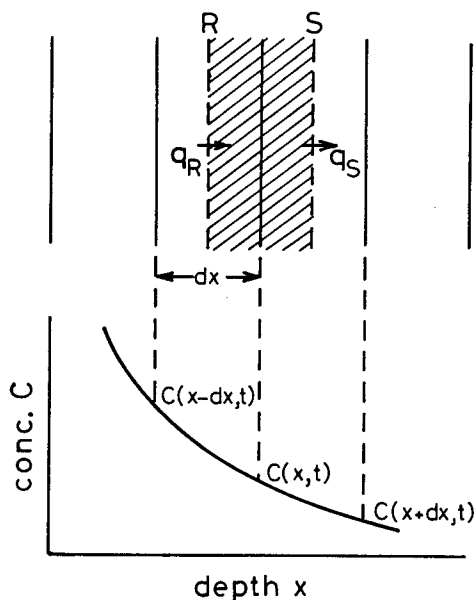


Fig. 9. Schematic model for numerical analysis

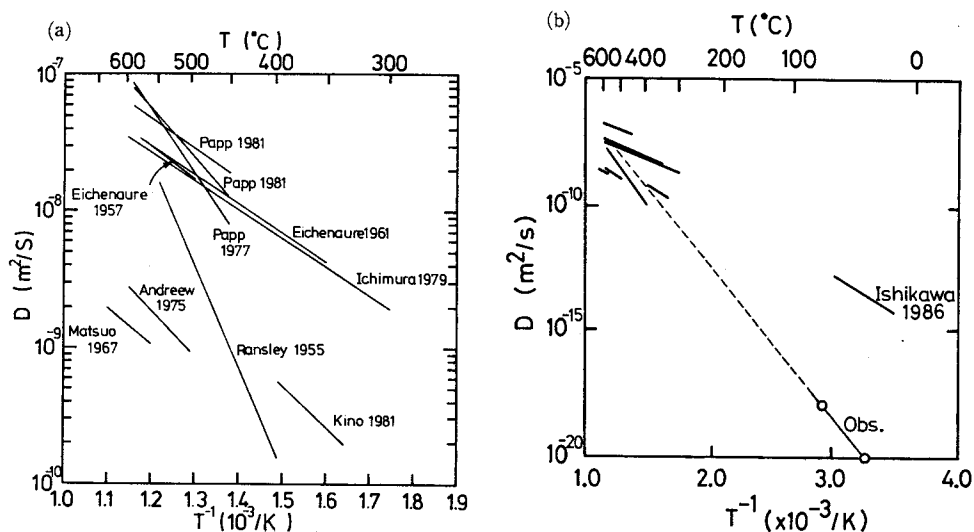


Fig. 10. Hydrogen diffusion data in Al : (a) near M.P. region, (b) at lower temperature region

表面方向への拡散が阻害されたためと考えられる。このような酸化物層の影響に関しては、今後定量的に調べる必要がある。

室温と70°Cで得られた拡散係数からの高温領域(400°C以上)への外挿値は従来からの報告とほぼ一致する (Fig. 10)。なお、報告されている拡散係数の値が大きくばらついている原因は測定方法の相違、水素の存在状態(固溶あるいは気泡等)、格子欠陥の影響等、種々の因子の影響が考えられるが現在明確な解釈はなされておらず、この点に関しては今後詳細な研究が必要と考えられる。しかしながら、室温での拡散係数の値は Fe, Ni 中での水素の拡散係数 (Fe : $10^{-8} \sim 10^{-12}$, Ni : $\sim 10^{-9}$ [cm²/sec])¹⁶⁾ の値と比較して数桁小さく、バルク全体で見るときには水素の固溶濃度は $H/Al = (2.4 \sim 7.2) \times 10^{-5}$ と十分小さいためアルミニウムは燃料であるトリチウムの閉じ込め材料として優れていると考えられる。

5. ま と め

新たに開発したデータ処理システムを使用した XPS - SIMS 測定により精度の高い表面分析が可能となり、数 nm 程度の分解能を有する水素同位体の深さ分布と捕獲種の同定ができた。その結果、従来測定例の無かった室温付近におけるアルミニウム表面近傍での重水素の挙動に関し、以下の知見を得た。

1. イオン注入された重水素はアルミニウムに直接捕獲され、AID の状態で存在している。
2. 注入された重水素の一部はアルミニウム表面 (~50nm) に生成される照射欠陥に捕獲される。
3. イオン注入によって打ち込まれた重水素の飽和濃度は、平衡水素固溶濃度よりも数

桁高く、 $D/Al \sim 0.01$ と見積られた。

4. 室温でのアルミニウム中の重水素の拡散係数は Fe, Ni 等よりも小さく数桁低い $\sim 1 \times 10^{-16} [\text{cm}^2/\text{sec}]$ と見積られ, Al 合金は燃料であるトリチウムの閉じ込め材料として優れている。

文 献

- 1) 例えば, 石丸 肇, 堀越 源一, 箕田 和之, 入沢 敏夫, 真 空, **22**(1979)373 ; 毛利 衛, 前田 滋, 小田桐 均, 橋場 正男, 山科 俊郎, 石丸 肇, 真 空, **24**(1981)153 ; 成島 勝也, 石丸 肇, 真 空, **26**(1983)353
- 2) 例えば, M. Nakashima, M. Saeki, Y. Aratono, E. Tachikawa, J. Nucl. Mater., **116**(1983)141 ; 松尾 茂, 平田 俊也, 日本金属学会誌, **31**(1967)590 ; W. Eichenauer, K. Hattenbach, A. Pebler, Z. Metall., **52**(1961)H10 ; 市村 稔, 今林 守, 早川政弘, 日本金属学会誌, **31**(1967)590
- 3) T. Ishikawa, R. B. McLellan, Acta Metall., **34**(1986)1091
- 4) C. W. B. Martinson, S. A. Flodstrom, Surface Science, **80**(1979)306
- 5) R. Behrisch, "Topics in Applied Physics, Sputtering by Particle Bombardment I", (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 47, 1981), 168
- 6) A. Benninghoven, C. A. Evans, Jr., R. A. Powell, R. Shimizu, H. A. Storms, "Chemical Physics, Secondary Ion Mass Spectrometry SIMSII", (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 9, 1979), 116
- 7) J. P. Biersack, L. G. Haggmark, Nucl. Inst. Methods., **174**(1980)257
- 8) T. Tanabe, M. Takeo, S. Imoto, J. Nucl. Mater., **162-164**(1989)1077
- 9) 金属便覧, 日本金属学会編, 丸善(株), (1971)1149
- 10) 鈴木 秀次, "実験物理学講座11, 格子欠陥", 共立出版(株) (1978)578
- 11) O. Nishikawa, T. Yoshimura, M. Shibata, Surface Science, **124**(1983)440
- 12) 鎌田 耕治, 相良 明男, 真 空, **30**(1987)163
- 13) H. E. Shi ϕ tt, Radiation Effects, **6** (1970)107
- 14) B. L. Doyle, J. Nucl. Mater., **111 & 112**(1982)628
- 15) K. Kamada, A. Sagara, N. Sugiyama, S. Yamaguchi, J. Nucl. Mater., **128 & 129**(1984)664
- 16) J. Crank, "The mathematics of diffusion", Oxford (1975)142
- 17) R. M. Alire, S. A. Steward, L. Bellamy, C. Griffith, Proc. Tritium Technology in Fission and Isotopic Applications, Dayton, OHIO (1980)98
- 18) G. Alefeld, J. Volkl, "Topics in Applied Physics, Hydrogen in Metals I", (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 28, 1981), 327