軽イオン照射による SiC の表面観察

阿藤 康郎*

(1979年 9月18日 受理)

Blistering and Flaking of SiC due to Light Ion Bombardment

By Yasuro ATO

KEYWORDS: CVD-SiC, Refel-SiC, scanning electron microscopy, blistering, flaking, radiation doses, energy dependence, blister skin thickness, erosion, light ion beam, silicon carbides, irradiation, radiation effects, temperature dependence

核融合炉の第1壁(ライナ, リミッタを含む)の候補材料として, 高融点金属, ステンレス鋼, Ni およびそれらの合金系と低原子番号セラミックスなどが調べられている。このうち, 不純物によるプラズマの放射損失低減, 低放射化, 高温運転化および安価などの観点から, 低原子番号セラミックスの適用性が指摘されている⁽¹⁾⁻⁽³⁾。この材料については軽イオンで照射された SiC と C のスパッタリングがほとんどで, SiC のブリストリングとフレーキングについての報告は少ない⁽⁴⁾⁽⁵⁾。そこで, 損耗率の最も大きな要因の1つであるこれらの現象について, 軽イオンで照射した SiC の走査型電子顕微鏡(SEM)による表面観察結果を上記の金属材料と対比して報告する。

1. 実験方法

本実験では RF 型重イオン加速器と試料室との間を差動排気することによって, ビーム照射中の真空度は $10 \sim 5 \times 10^{-9}$ Torr である。H₂⁺ と He⁺ イオンのビーム・エネルギーは 30~150 keV, ビームの直径は 0.5 mm ϕ , 照射量は $10^{17} \sim 8 \times 10^{18}$ ions/cm², ビーム電流密度は約 100 μ A/cm² であるが, ビームをスキヤニングしていないため, 照射領域の中心部でその密度は高く周辺部で低い。試料はビームが試料面へ直角に打ち込まれるように取り付けた。照射温度は室温と 700°C (光高温計で測温) である。in-situ による SEM 観察ではないため, 同一試料でも SEM 観察のたびに毎回照射位置を変えて照射した。

試料は 1 mm 厚さの C 板上に CVD 法で SiC を約 100 μ m の厚さに被覆した β -SiC の結晶構造を持つ数 10~

100 μ m の大きさの結晶粒の析出膜から出来ている。(CVD-SiC, 東芝セラミック製)。もう 1 つは反応焼結型 SiC (Refel-SiC) で, 1 mm 厚さの試料である。その構成は SiC: 88~92%, Si: 8~12% であって, 高温に焼成する過程で Si を注入して作られるが, 数% の free Si の残留は避けられない。(英国原子燃料公社製)。各試料は表面をダイヤモンド・ペースト(粒度 $\frac{1}{4} \mu$ m) で鏡面

仕上を行なった。

2. SEM による表面観察

100 keV の H₂⁺ イオンを室温で CVD-SiC に 7.0×10^{18} ions/cm² 照射すると, すでに多数のプリスタと一部プリスタの剝離が出現している。プリスタの密度は平均 5×10^6 /cm² であるが, プリスタの剝離した跡地にはすべて新しいプリスタが現れている。このような現象は多結晶 Nb に He⁺ イオンを 100 keV 以上のエネルギーで照射した場合も現れることが紹介されている⁽⁶⁾。剝離した跡地が比較的集合している領域とそうでない領域とが存在するが, これは結晶粒が数 10~100 μ m 程度の大きさであることおよび結晶粒の結晶方位に依存することも一因となる。上述の室温照射に対して, 100 keV の H₂⁺ イオンを CVD-SiC に 700°C で 4.8×10^{18} ions/cm² まで照射したとき出現したプリスタはほとんどすべて破裂または剝離し, プリスタの密度は平均 4×10^5 /cm² と減少した。

He⁺ イオンを照射した CVD-SiC および Refel-SiC の SEM による表面観察を Photo. 1(a)~(d) に示す。

100 keV の He⁺ イオンを CVD-SiC に室温で照射すると, Photo. 1(a) で見られるように, 同心円状に大小多数のプリスタならびに照射領域の中央部に広い面積(直径約 120 μ m)のフレークと同心円状の溝状フレークが出現した。これらのフレークした跡地は照射前の表面から第3層目に相当し, さらに局部的に多重剝離(表面から5層目まで)も見られる。このようなフレーキングは実験を繰り返しても出現した。金属材料についてブリストリングの解説⁽⁷⁾や機構⁽⁸⁾に関する報告もあるが, 現在, ブリストリングからフレーキングへと移行する過程はまだ明らかでない。Mo ではフレー

* 名古屋工業技術試験所(Govern. Ind. Res. Inst., Nagoya)

Photo. 1 SEM-micrographs of blistering and flaking on CVD-SiC and Refel-SiC after He⁺ ion bombardment with 100 keV

キングが16 ms以下の速さで出現すること⁽⁹⁾, また照射温度を高めても出現すること⁽¹⁰⁾が知られている。本実験ではHe⁺イオンを室温で照射しただけですでにフレーキングが出現している。

高温におけるHe⁺イオン照射では損傷が著しく, 700°CでCVD-SiCを100 keVのHe⁺イオン 9.5×10^{17} ions/cm²まで照射したとき, 照射領域全面に同心円状の3段ステップからなる大型フレーキングが出現した。このステップ状フレークの跡地にはこの照射線量ではまだプリスタは見られない。700°Cで 1.6×10^{18} ions/cm²の照射量では同心円状の5段ステップの大型フレーキングが出現し, フレークした跡地は1~5層からなる不定形な島が取り残されている。さらに, 700°Cで 3.2×10^{18} ions/cm²の照射量ではPhoto. 1(b)に見られるように, 同心円状の15段ステップの大型フレーキングが出現し, しかもこのフレークの跡地は海上の荒波をおもわせるようである。Behrischら⁽⁴⁾はRefel-SiCにH₂⁺イオンを高線量(9.9×10^{19} ions/cm²以上)で照射すると, プリスタが消失して荒れた表面になる

ことを観察している。同様な現象はRothら⁽¹¹⁾が多結晶のNbにHe⁺イオンを高線量(5×10^{19} ions/cm²)照射したときも出現している。このPhoto. 1(b)の中央近くで四角に囲んだ領域を拡大してPhoto. 1(c)に示したが, 12層からなる多重剝離はあたかも急峻な山脈地形を等高線で立体的に表示したようで, この1層の厚さはSEM観察によれば約0.6 μmであることから, CVD-SiCの損耗率は約 3×10^{-2} atoms/ionと評価できる。この値にはスパッタ率は加えていないが, 壁の寿命とともにプラズマに対する大きな不純物源になることが予想される。なお, このような多重剝離は316 SSでも見られる⁽¹²⁾。

Refel-SiCを室温で100 keVのH₂⁺イオンで照射した場合は, 上述のCVD-SiCにH₂⁺イオンを室温で照射した時と同様な傾向を示した。これに対して室温で100 keVのHe⁺イオンを照射した場合はPhoto. 1(d)で見られるように形成されるプリスタは不規則な形状もあるが, H₂⁺イオンを照射した場合とやはり同様な傾向を示した。ただし, プリスタの密度は平均 1.2×10^6 /

cm²である。この写真で約3 μ m以下の小さな不定形の鋭い穴がプリスタの数と同程度見られるが、これは Refel-SiC が反応焼結で作られた多孔質材料であることを示すものである。CVD-SiC のプリスタ密度に比べて約1/4以上も低いことは、この気孔のためにプリスタの形成が抑えられたようである。本来なら同一イオンによる照射で比較すべきであるが、CVD-SiC では He⁺ イオン照射によってフレーキングが現れるため、H₂⁺ イオン照射と比較した。

1: He⁺ (7, 20, 36 keV) → Mo⁽¹³⁾ ○: He⁺ (600 keV) → CVD-SiC⁽⁵⁾
 1: He⁺ (15 keV) → Mo⁽¹⁴⁾ +: He⁺ (400°C) → Mo⁽¹⁵⁾

Fig. 1 Critical doses for blistering in Mo, Nb and SiC as a function of H₂⁺ and He⁺ ion energy

Values of Be, Nb, Ni (poly.) and V are referred by Das et al.⁽¹⁷⁾

Fig. 2 Relations of blister size and blister skin thickness with He⁺ ion bombardment on CVD-SiC and Refel-SiC at room temperature

CVD-SiC と Refel-SiC についてプリスタを形成する臨界照射量のエネルギー依存性を金属材料のそれと対比して Fig. 1 に示す。図から SiC のそれは Mo や Nb などと同様な傾向を示すものの、このエネルギー領域では約1/4以下である。また、He⁺ イオン照射に対して H₂⁺ イオン照射の場合の臨界照射量は約1/2程度であることがわかった。さらに、Refel-SiC における臨界照射量は CVD-SiC のそれよりもやや高いといえる。

形成されるプリスタの大きさとプリスタの表皮の厚さとの関係を金属材料⁽¹⁷⁾と対比して Fig. 2 に示す。図から SiC の傾向は Nb のそれに近いことを示し、物質に依存するといえる。

3. まとめ

H₂⁺ および He⁺ イオン照射によって SiC に出現するプリスタリングとフレーキングを SEM で観察し、金属材料と比較した結果、①CVD-SiC は He⁺ イオンの室温照射でさえもフレーキングが出現し、700°C の高温照射ではステップ状のフレーキングと多重剥離が著しくなる。②Refel-SiC ではフレークは形成されないが、プリスタの密度は CVD-SiC に比べて約1/4低くなる。③プリスタの臨界照射量は Nb や Mo などの約1/2以下であるが、エネルギー依存性は同一傾向を示す。④SiC に形成されるプリスタの大きさとプリスタの表皮の厚さとの関係は Nb のそれに近い傾向を示した。

—参考文献—

- (1) ROVNER, L.H., HOPKINS, G.R.: *Nucl. Technol.*, 29, 274 (1976).
- (2) 五明由夫, 他: *JAERI-M* 6432, (1976).
- (3) BOHDANSKY, J., et al.: *J. Nucl. Mater.*, 76-77, 163 (1978).
- (4) BEHRISCH, R., et al.: *ibid.*, 60, 321 (1976).
- (5) ROVNER, L.H., CHEN, K.Y.: *ibid.*, 63, 307 (1976).
- (6) BEHRISCH, R.: *IAEA-CN-33/S2*, p 229 (1974).
- (7) 鎌田耕治: *原子力誌*, 17(10), 517 (1975).
- (8) 鎌田耕治, 東田 豊: *放射線*, 5, 33 (1978).
- (9) THOMAS, G.J., BAUER, W.: *J. Nucl. Mater.*, 63, 280 (1976).
- (10) BLEWER, R.S., LANGLEY, R.A.: *ibid.*, 63, 337 (1976).
- (11) ROTH, J., et al.: *ibid.*, 57, 365 (1975).
- (12) KAMINSKY, M., DAS, S.K.: *ibid.*, 76-77, 256 (1978).
- (13) ERENTS, H., MCCracken, G.M.: *Radiat. Eff.*, 18, 191 (1973).
- (14) VERBEEK, H., ECKSTEIN, W.: *"Applications of Ion Beams to Metals"*, 597 (1974), Plenum Corp.
- (15) BAUER, W., THOMAS, G.J.: *J. Nucl. Mater.*, 53, 127 (1974).
- (16) BEHRISCH, R., et al.: *Fusion Technol. (9th Symp.)*, 531 (1976), Pergamon Press.
- (17) DAS, S.K., et al.: *J. Nucl. Mater.*, 76-77, 215 (1978).