

電子線照射したAl中の $^{57}\text{Co}$ のメスバウァースペクトルMossbauer Spectrum of  $^{57}\text{Co}$  in Electron Irradiated Aluminium

梅山伸二\*・佐々紘一\*・谷脇雅文\*\*

石田洋一\*・吉田博行\*\*\*

Shinji UMEYAMA, Koichi SASA, Masafumi TANIWAKI

Yoichi ISHIDA and Hiroyuki YOSHIDA

## 序

メスバウァースペクトルにより、金属中の不純物と点欠陥の相互作用を直接検出することができる。佐々等は、Al中の不純物Coと、急冷によって導入された空孔の相互作用をメスバウァースペクトルにより研究した<sup>1)~3)</sup>一方Vogl等のグループは、照射により形成されたAl中の格子間原子とCoの相互作用を詳細に研究したが<sup>4)~6)</sup>彼等は空孔とCoの相互作用は見出していない。照射損傷では、等量の格子間原子と空孔が形成されており、Vogl等の結果は空孔とCoの相互作用が極めて小さいことを示している。これは佐々等の実験結果とは一致しない。この点をより詳しく検討し、空孔-Co相互作用を解明するには、照射実験と急冷実験を比較することが必要である。単純な照射実験では、空孔の影響を直接検出することは不可能であり、空孔量を格子間原子量より多くしておくことが必要である。そのため、あらかじめ急冷により空孔を導入した試料に対して電子線照射する実験を行った。

## 実験方法

約2 MBqの $^{57}\text{Co}$ を含む板状試料を、99.999% Alと無担体 $^{57}\text{Co}$ より作製した。これに、照射前に次の3通りの処理を行った。

試料A 873 Kより徐冷。

試料B 873 Kより233 KのCaCl<sub>2</sub>水溶液中に急冷し、その後室温で10分間焼鈍。

試料C 773 Kより233 KのCaCl<sub>2</sub>水溶液中に急冷し、その後室温で10分間焼鈍。

試料B、Cでの室温焼鈍は、空孔-Co集合体を安定化させるための処理である。これらの試料を、京大原子炉実験所LINACにより、液体窒素温度で、28 MeV電

子を $6 \times 10^{18} \text{ cm}^{-2}$ 照射した。照射後300 Kまで等時焼鈍を行い、メスバウァースペクトルを測定した。測定は、試料をクライオスタット中に保持し、吸収体を駆動する方法で行った。焼鈍もクライオスタット中のヒーターを用いて行った。

## 実験結果および考察

図1に照射前後の各試料のスペクトルを示す。照射前、試料Aは固溶Coに対応する1本のピーク(Sピーク)を示す。試料B、CではSピークのほかに、空孔-Co集合体に対応するピーク<sup>1)~3)</sup>(Vピーク)が形成されている。急冷温度が高いほどVピークの量が多いことがわかる。照射後、試料Aのスペクトルは、Sピークと、格子間原子-Co集合体に対応するピーク<sup>4)~6)</sup>(Iピーク)の重ね合わせとなる。試料B、Cでは、スペクトルは、S、V、I各ピークの重ね合わせでは表せず、新しいピーク(Xピーク)が形成されたことを示している。Xピークは、SピークとVピークの間位置し、これまでAl中のCoの示すピークとしては報告されたことのないピークである。図2に、照射前に存在したVピークの量と、照射後のIピーク、Xピークの量の関係を示す。照射前のVピークの量が増加すると、Iピークは減少し、Vピークは増加することがわかる。このことから、Xピークが空孔と結びついたCoの新しい状態に対応していることがわかる。

図3に、試料Cの焼鈍によるスペクトルの変化を示す。図4は試料A、Cでの各ピークの強度の焼鈍による変化を示したものである。試料Aでは、200 Kまで大きな変化はなく、200~250 Kで急激にIピークが減少、消滅している。一方試料Cでは200 K以下で大きな変化が見られる。Xピークは150 Kで消滅し、Vピークが成長し175 Kで極大となり200 Kで減少する。この間Iピークはなだらかに減少していく。150~175 KでのVピークの大きな増加は、空孔が移動したことの直接的な証拠である。Al中の空孔移動の活性化エネルギー<sup>7)</sup>から計算す

\* 東京大学生産技術研究所 第4部

\*\* 北海道大学工学部

\*\*\* 京都大学原子炉実験所

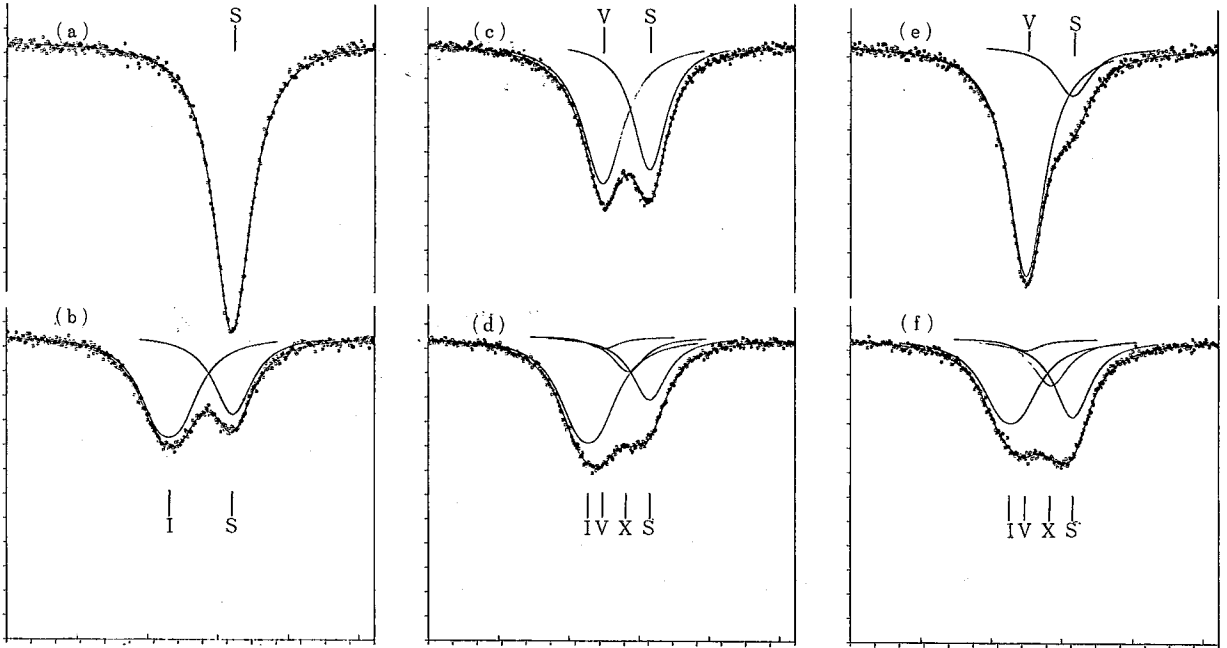


図1 照射前後での各試料のメスバウアー スペクトル  
 a) 試料A照射前, b) 同照射後, c) 試料B照射前,  
 d) 同照射後, e) 試料C照射前, f) 同照射後,  
 図中の記号については本文参照.

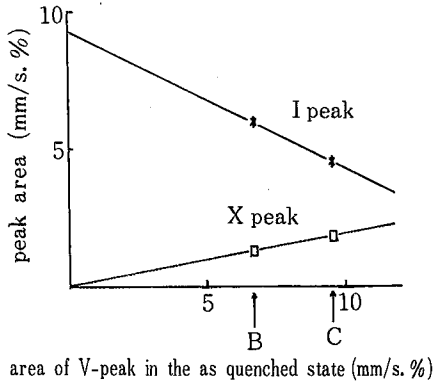


図2 照射後のIピーク, Xピークの強度と照射前のVピーク強度との関係, B, Cはそれぞれ試料B, 試料Cを示す.

ると、この温度範囲で単一空孔の長距離の移動は不可能であり、移動したのは複空孔ないしより大きな空孔集合体であろう。Vピークの増加と同時にXピークが消滅していることは、Xピークに対応する空孔-Co集合体が、移動してきた空孔を捕獲し、Vピークに対応する空孔-Co集合体に変化したことを示唆する。このことは、X

ピークが、Vピークよりも空孔数の少ない空孔-Co集合体に対応することを示している。

200 KでVピークが急速に減少することは急冷実験の結果とは非常に異なっている。急冷後の焼鈍では、Vピークはむしろ増加し、323 Kまでは減少しない<sup>1)</sup>。Vピークが減少する機構としては次の2つが考えられる。

- i) 空孔-Co集合体が解離し、空孔が格子間原子集合体と消滅する。
- ii) 格子間原子-Co集合体が解離し、格子間原子が移動して空孔-Co集合体中の空孔と消滅する。

不純物一点欠陥集合体の消滅過程は、両者の相互作用の大きさだけでなく、点欠陥の消滅場所の量とも関連する。相互作用が小さくとも、消滅場所がなければ、いったん解離した集合体は再結合する。したがって、機構を明らかにするためには消滅場所の量が重要である。急冷試料では空孔の消滅場所は極めて少ないが、照射試料には消滅場所としての格子間原子が多数含まれる。したがって、空孔-Co集合体が解離するとしても、空孔の消滅する速度には大きな差を生じる。格子間原子の消滅場所は急冷+照射の場合と、照射のみの場合と異なるが、その差

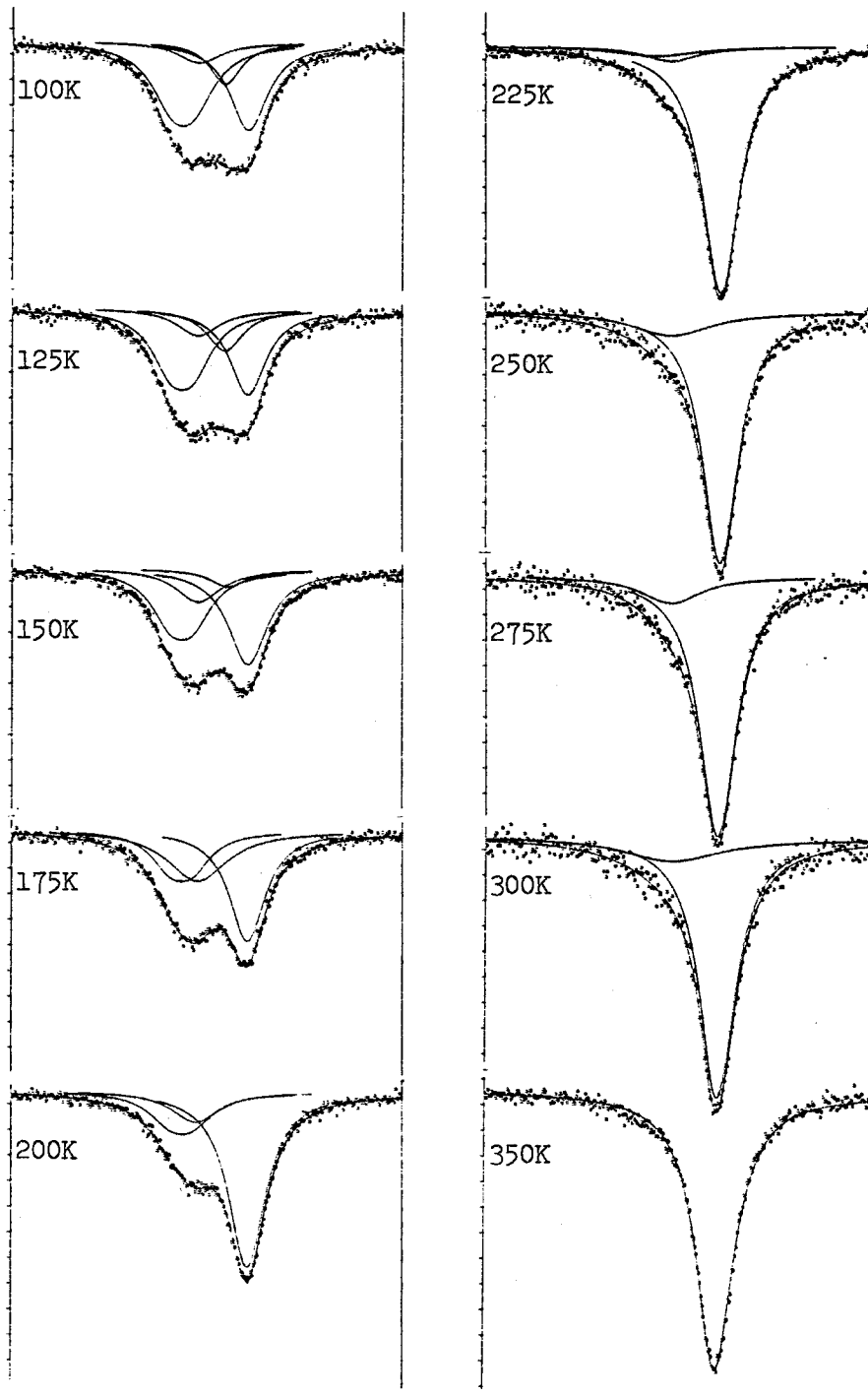


図3 試料Cの照射後の焼鈍によるスペクトル変化  
図中の温度は焼鈍温度(焼鈍時間各10分)

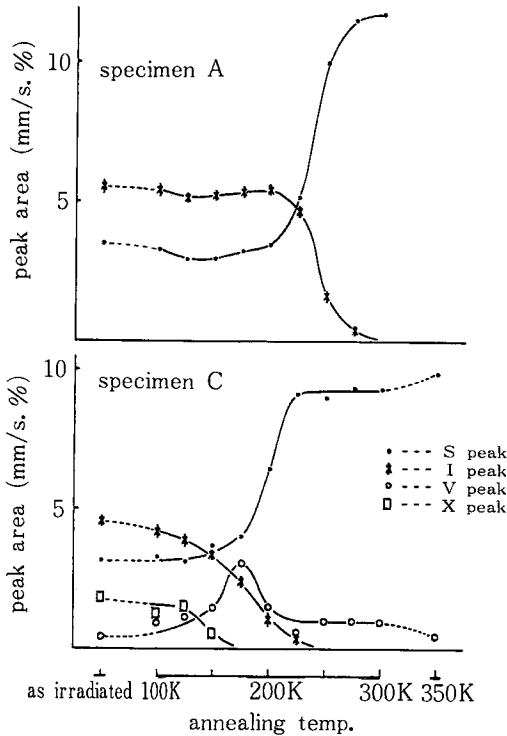


図4 試料A (上段) および試料C (下段) の焼鈍による各ピーク強度の変化

はさほど大きくない。したがって、格子間原子-Co 集合体が解離するならば、試料Aと試料CでIピークの減少の速度はあまり変わらないはずである。以上の点からVピークの減少機構としては、前記i)の機構がより確からしいと思われる。

総論

あらかじめ急冷して空孔を導入した試料を電子線照射することによって次の結果が得られた。

- 1) 急冷実験では得られなかった新しい空孔-Co 集合体を見出した。この集合体は少数個の空孔とCo が結合したものである。
- 2) 150 K ~ 175 K の温度範囲で、空孔が移動することの直接的な証拠が得られた。これは、回復過程の「空孔モデル」<sup>6)</sup> を支持するものである。
- 3) 空孔-Co 間の相互作用は必ずしも大きくなく、消滅場所の多い場合には解離しやすいことが示された。

(1981年2月9日受理)

文献

- 1) 佐々絨一, 後藤 博, 石田洋一, 加藤正夫, Scripta Met., 11 (1977) 1029
- 2) 佐々絨一, 後藤 博, 石田洋一, J. Physique, C2-559 (1979)
- 3) 佐々絨一, 博士論文 (1979) 東京大学
- 4) W. Mansel, G. Vogl, J. Phys. F7 (1977) 253
- 5) G. Vogl, W. Mansel, W. Vogl, Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, ed. by M. T. Robinson and F. W. Young (1975) 349
- 6) W. Mansel, H. Meyer, G. Vogl, Radi. Effects, 35 (1978) 69
- 7) K. Furukawa, J. Takamura, N. Kuwana, R. Tahara and M. Abe, J. Phys. Soc. Japan, 41 (1976) 1584
- 8) W. Schilling, J. Phys., F 3 (1973) 322

正誤表

(55年11月号)

頁	段	種別	正
523	右	図7の横軸と縦軸の ネームを入れ替える	縦軸 加工速度 (mg/min) 横軸 加工面あらさ ( $\mu\text{m}R\text{max}$ )