

UDC 669.715.017
548.313.4
539.122.173

アルミニウムにイオン打ち込みをした ^{57}Fe の メスバワースペクトル

Mössbauer Spectrum of ^{57}Fe Ion-implanted into Al Foil

佐々 絃一*・石田 洋一*・加藤 正夫*・金子象太郎**

Koichi SASSA, Yoichi ISHIDA, Masao KATO and Kumetaro KANEKO

1. ま え が き

金属結晶にイオン打ち込みを行なうと、結晶格子を構成する原子と衝突し多量の格子欠陥をつくる。打ち込む原子をメスバワー核に選ぶと、格子欠陥との相互作用や打ち込み時にできる中間相等の解析が可能と考えられる。これらは原子炉材料の照射損傷と似ていると考えられ、その基礎的な理解にも役立つであろう。

本実験ではメスバワー核として ^{57}Fe を選びアルミニウムにイオン打ち込みを行なった。

2. 実 験

イオン打ち込みに用いたのは、東大核研のアイソトープ分離器で加速電圧は 40 kV である。試料は 99.999% の Al を圧延と電解研磨で厚さ 15 μm のリボン状にした後 150°C×24 hr で歪取焼鈍を行なった。これを分離器のターゲットの位置においた円筒形の液体窒素容器にはりつけ冷やしながらか、 $3 \times 10^{16}/\text{cm}^2$ の打ち込みを行った。

メスバワー測定用試料は 1 cm×1 cm を 40 枚重ねたが、打ち込んだまま状態の測定のためこの作業は液体窒素中で行った。熱処理は室温×3 日以後は 100°C から 500°C まで 100°C おきに各 5 分真空封入して行った。メスバワー効果測定用の線源は Cu に拡散させた ^{57}Co で、測定は線源、試料とも液体窒素温度である。

3. 実 験 結 果

図 1a は打ち込んだままの試料のスペクトル、図 1b は Al-0.008% ^{57}Fe の焼鈍した試料のスペクトルである。横軸は鉄基準のドップラー速度 mm/sec で波高分析器のチャンネル番号もあわせて示す。チャンネルあたり 30 万カウント程度で規格化して示した。2 つのスペクトルを比較して、a には主要なピークとして固溶した ^{57}Fe のピークを 96 ch に含んでいるが、他にいくつかのピークが重って幅広いスペクトルを与えていることが分る。

図 2 はイオン打ち込み後各温度で焼鈍したスペクトルをデイクンボリエーションによって Al 中の固溶鉄の半

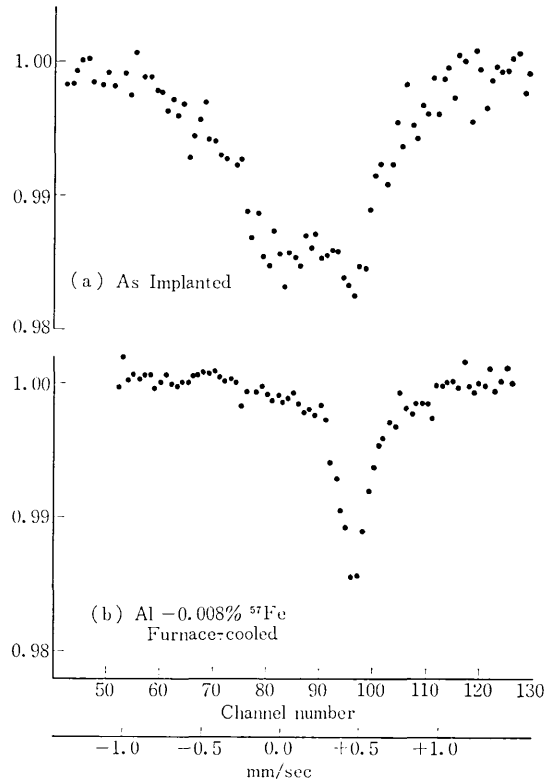


図 1

値幅 (0.22 mm/sec) をもつローレンツ型ピークの分布関数を求めたものである。

分布関数のいくつかの特徴を述べよう。

矢印で示した 96 ch のピークは固溶鉄のピークであり、このピークは 400°C 焼鈍まで大きくはっきりしているが、500°C では小さくなっている。このことは後述するように析出の挙動とあわせて Al-Fe 系の特徴として注目される。その他のピーク位置は Al-Fe 系合金で知られている中間相例えば $\text{FeAl}_6^{1)}$, $\text{Fe}_4\text{Al}_{13}^{2)}$, Fe_2Al_5 , $\text{FeAl}^{3)}$ 等のどのピーク位置とも一致しない。

打ち込み後 200°C 焼鈍までのスペクトルの変化は主として 80 ch 近傍のピーク分布とすそのぼんやりしたひろがりによっている。この分布のひろがりの傾向は、室温ですでに進行し 200°C 焼鈍で最も著しかった。

* 東京大学生産技術研究所 第 4 部

** 東京大学原子核研究所

4. 考 察

大別して2つの問題が考えられる。

1) イオン打ち込みの最初から存在した固溶以外の Fe 原子の状態と 2) その後の焼鈍で進行した変化とである。欠陥に関連したものがピークのどれに含まれているかも配慮する必要がある。

電子線照射や焼入凍結による種々の Al 希薄合金の電気抵抗実験によると 200°K 前後で残っている自由な空孔が動いて不純物原子につかまり、300~400°K でこの対がこわれ vacancy loop を作ると思われる (例えば⁴⁾)。空孔と対を作っている ⁵⁷Fe は恐らく小さなアイソマーシフトか四重極分裂を与えられる。上記の回復があるとすれば 200°C 焼鈍までの変化に含まれていることになる。しかし、イオン打ち込み時には局所的な温度の上昇や打ち込まれた ⁵⁷Fe 同志の干渉などを考えねばならず、このような単純な形での格子欠陥不純物相互作用のみでは説明できず、むしろ打ち込み時すでに2次欠陥が存在し ⁵⁷Fe 関係している可能性の方が高いと思われる。

次に焼鈍によって広がった分布のピークシフトの大きいことに注目したい。これらは単一のピークと考えるとシフトが大きすぎるので内部磁場分裂が考えられる。Fe-Al 系合金では Fe 原子の最近接位置に 50% 程度以上の Fe 原子が配位すると内部磁場を持つことが分っている⁵⁾⁶⁾。打ち込まれた ⁵⁷Fe は試料全体に対し約 0.01% に当たるが実際は打ち込み時極くせまい領域 (LSS 理論⁷⁾ では $\bar{R} \approx 200 \text{ \AA}$, $\Delta R \approx 70 \text{ \AA}$) に高濃度に存在する。従ってかなり高濃度の Fe クラスタが存在していると推量される。精しい解析は今後の研究に待たねばならないが、いずれにしても打ち込まれた Fe の状態は単純ではない。B, Sawicka et. al.⁸⁾ によれば Al に室温で ⁵⁷Fe をイオン打ち

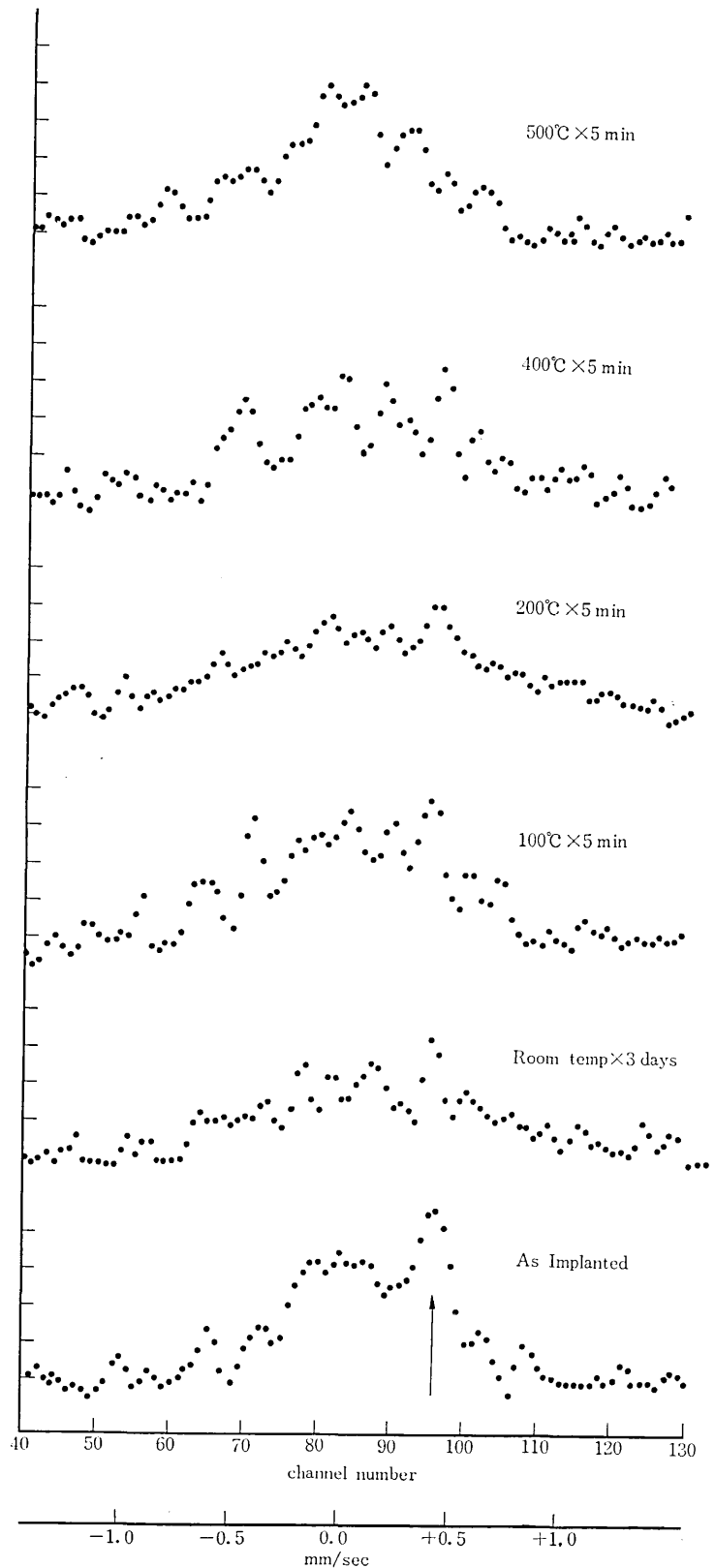
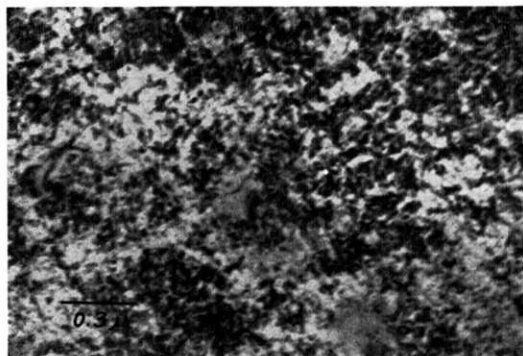
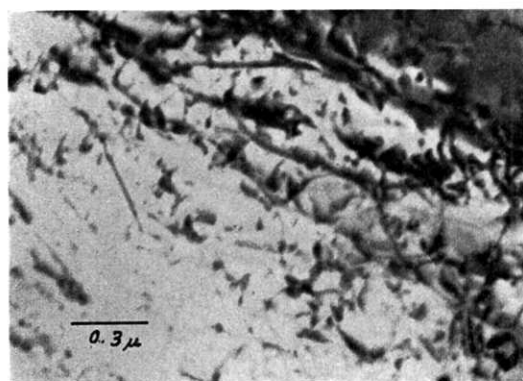


図 2



(a) 打ち込み後室温放置

(b) 500°C×5分加熱
写真 1

みしたメスパワー測定で対称なローレンツ曲線からなるスペクトルを得、これをランダムな置換位置にある Fe による四重極分裂としている。この対のピーク位置は本実験の固溶ピークと 80 ch 付近に当る。このスペクトルは 590°K×1/2 hr で変化せず本実験の結果と大いに異なる。打ち込み時の温度の違いが原因であろうが理由は明らかでない。しかし彼らのモデルは最近接位置に 10% 以上の Fe が常に必要であり、実際の打ち込みではただか数%なので正しくないと思われる。

400°C, 500°C 焼鈍のスペクトルは著しい変化を示し、

特に 500°C では固溶鉄のピークが逆に小さくなっているこの温度で切めて拡散律速の変化が始まったことを暗示する。Al-Fe 希薄合金のスプラットケールの実験⁹⁾¹⁰⁾でも同様の温度範囲で Fe₄Al₁₃ のオスワルド成長が見られるがこれらは Al 中での Fe の拡散が異常に遅いこと¹¹⁾と符号する。

写真 1 (a) はイオン打ち込み後室温放置した試料の透過電顕写真であるが、高密度の二次欠陥が観察される。

この欠陥は電顕内加熱に対し安定で約 500°C で始めて分解を始めた。これはスペクトルの大きく変化する温度とほぼ対応する。この温度は Al における普通の二次欠陥の分解する温度としては高く何かの形で Fe 原子を含み、拡散が遅いこと他に、欠陥を安定化していることが考えられる。

以上 Al 中にイオン打ち込みをした ⁵⁷Fe のスペクトルについて述べたが、スペクトルを単純化するために、今後打ち込まれる鉄原子同志の干渉を少くすることが望まれ、そのためには加速電圧を変化させて飛程のひろがり大きくすることを予定している。

おわりにイオン打ち込みを行うにあたり協力していただいた東大核研の田中仁市氏、ダイコンボリューションプログラムをお借りした井野助教授に感謝する。

(1973年11月12日受理)

参 考 文 献

- 1) C. A. Stickels et. al.: Meta. Trans. **2**, 2031 (1971)
- 2) R. S. Preston et. al.: Phys. rev. **3**(5), 1519 (1971)
- 3) V. V. Nemoshkalenko: Phys. stat. sol. **29**, 45 (1968)
- 4) S. Ceresara: Phyl. Mag. **10**, 893 (1964)
- 5) G. P. Huffman: J. Appl. Phys. **42**(4), 1606 (1971)
- 6) C. E. Jhonson et. al.: Proc. Phys. Soc. **81**, 1079 (1963)
- 7) J. Lidhard et. al.: Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. **33**, No. 14 (1963)
- 8) B. Sawicka: Phys. Stat. sol. (a) **18**, K85 (1973)
- 9) 三島, 石田, 加藤: 未発表
- 10) P. Furrer, H. Warlimont: Z. Metallkunde **64**, 237 (1973)
- 11) W. B. Allexander: Phys. rev. B **1**, 3274 (1970)

