α-AI2O3中の照射欠陥の陽電子消滅測定によ る研究

蔵元, 英一 九州大学大学院総合理工学研究科高エネルギー物質科学専攻 : 応用力学研究所

青野, 泰久 九州大学大学院総合理工学研究科高エネルギー物質科学専攻:応用力学研究所

竹中, 稔 九州大学大学院総合理工学研究科高エネルギー物質科学専攻 : 応用力学研究所

https://doi.org/10.15017/17150

出版情報:九州大学大学院総合理工学報告.11(2), pp.201-205, 1989-09-01.九州大学大学院総合理工 学研究科 バージョン:

権利関係:

α-Al₂O₃中の照射欠陥の陽電子消滅測定による研究

蔵 元 英 一*・青 野 泰 久*・竹 中 稔* (平成元年5月31日受理)

Positron Annihilation Study of Radiation Defects in *a* -Al₂O₃

Eiichi KURAMOTO, Yasuhisa AONO and Minoru TAKENAKA*

Positron annihilation studies have been performed for the radiation-induced defects in α -Al₂O₃ specimens. Before irradiation polycrystals of α -Al₂O₃ showed positron annihilation lifetime about 125 psec. But this value was increased by 60 MeV O⁶⁺ ion irradiation to about 155 psec. This is considered to be corresponding to positron lifetime at O-vacancy sites. But, this lifetime disappeared gradually in the period of several months probably because of recombination of vacancies and interstitial atoms at room temperature. On the other hand, it was found that in single crystals positron lifetime before irradiation is between these two values. This is probably due to lack of oxygen atoms in single crystals in the fabrication process and it already has Ovacancies in the matrix before irradiation.

1. 緒 言

近年各種セラミックスに対する研究が盛んに行われ ているがこれはこの材料が構造材、あるいは機能材と して優れた特性を発揮する可能性を持っているからで ある.ここでは主として構造材として有用と考えられ る α-Al₂O₃(以下単に Al₂O₃と記す)中の照射欠陥を 研究する、現在この材料は実験用トカマク装置のトー ラスの一部に電気抵抗を増加させるためのいわゆるセ ラミックブレークとして用いられている。従って核融 合炉実現へ向けて研究が進むにつれて高エネルギーの 荷電粒子、中性子等による照射効果、照射劣化等が問 題になることは必至である. 照射効果は基礎的には構 成原子がはじき出される現象であり、この格子中の原 子欠損、すなわち原子空孔の研究には陽電子消滅測定 法が有用な手段であることは金属における過去20年の 研究が示している通りである. ここでは Al2O3 の試料 に高エネルギーの酸素イオンを照射して陽電子消滅測 定を行った結果について述べる.

2. 実 験

Al2O3の試料としては多結晶(焼結材)と単結晶の

*高エネルギー物質科学専攻 応用力学研究所

両方を用意した. 試料サイズ約 10mm×10mm×1mm^t 程度に切断し陽電子消滅寿命測定には2枚づつ用意し た. 切断は機械的に行われたため歪除去を 1200℃, 15hr 空気中で焼鈍することにより行った. 照射は九 大理学部タンデム加速器にて 60MeV O⁶⁺ イオンを室 温で照射することにより行った.又一部京大原子炉 (KUR) 低温照射も行った. 陽電子消滅寿命測定は ²²NaCl を薄いマイラー(3.6µm)に狭んだものを陽 電子線源(~10Ci)とし,ORTEC 社製各種モデュー ルで FAST-SLOW COINCIDENCE 回路を組み, RCA 社製の光電子増倍管 C 31024 を用いて行った. %Co 標準線源で測定した分解能曲線の半値幅は 235psec であった. Fig.1 にその回路図を示す. 一部陽電子消 滅角相関測定も行ったが、これは東北大金研大洗施設 にて ⁶⁴Cu 線源 (~1.6Ci) を用いて行われた. 測定温 度はいずれも室温である.陽電子消滅寿命スペクトル 'Resolution' プログラムを用いて主として二成分解析 された.

3. 結果および考察

Fig. 2 に 60MeV O⁶⁺ イオンで照射された時の Al₂O₃ 中の損傷の深さ分布と侵入イオンの深さ分布を TRIM3D コード¹¹で計算した結果を示す. 共に 23μm の



POSITRON LIFETIME MEASUREMENT

Fig. 1 Electronic circuit for positron annihilation lifetime measurement and ²²Na positron source



Fig. 2 Damage distribution and injected oxygen distribution in Al2O3 calculated by TRIM3D code

深さにまで亘っている.²²NaCl から放出された陽電子 は通常の固体試料で表面から 100µm 以上侵入すること が知られているが,途中にトラッピングセンターが高 密度で存在すればそこでトラップされると考えられる. 本実験の場合 O イオンの照射量は 2.37×10¹⁴/cm² で ありこれにより形成される損傷量はピーク近傍で約 0.003dpa にあたる.室温照射中に原子空孔と格子間 原子の再結合が特にカスケード中である程度生じたと してもこの損傷量は陽電子をトラップするのに十分な 量であると考えられる.打ち込んだ酸素量はピーク付 近で約 10appm であり損傷量に比べてはるかに少ない. Fig. 3 に多結晶(焼結) Al2O3 につき照射前と照射



Fig. 3 Positron annihilation lifetime spectra (before and after irradiation) for Al2O3 polycrystal

後の陽電子消滅寿命スペクトルを示す. 照射後の方が 少し傾斜が緩くなっている, すなわち寿命が長くなっ ているのが分かる. これは原子空孔が導入されそこに 陽電子がトラップされ消滅しているからである.

Table 1 に各種 Al₂O₃ について寿命測定を行った結 果を示す. sample 1 は東芝多結晶 Al₂O₃ (焼結材) で あり照射により寿命が 121 psec から 151 psec に伸び

	unirr.		irr. (60MeV 0 ⁶⁺		
Sample 1 (poly)	121 ps		151 ps	1156 ps (0.30%)	$2.37 \text{ x} 10^{14}/\text{cm}^2$
Sample 1 (poly) (90 days later)			134 ps	1463 ps (0.14%)	"
Sample 1 (poly) (160 days later)			125 ps	—	"
Sample 2 (poly)	128 ps	819 ps (0.10%)	138 ps	861 ps (0.13%)	$1.87 \text{ x} 10^{14}/\text{cm}^2$
Sample 3 (single)	158 ps		157 ps	760 ps (0.29%)	"
Sample 4 (single)	141 ps	_	149 ps		$3.75 \text{ x}10^{14}/\text{cm}^2$
Sample 5 (single)	135 ps	_			

Table 1 Positron Annhilation Lifetime Measurements for Al2O3

	unirr.		irr. (KUR, 6 x10 ¹⁶ n/cm ² , 20K)	
Sample 6 (poly)	128 ps	819 ps (0.10%)	136 ps	_
Sample 6 (poly) (45 days later)			127 ps	—
Sample 7 (poly)	138 ps	988 ps (1.37%)	139 ps	822 ps (1.40%)

ている.長寿命成分が0.3%存在しており o-P。(オル ソポジトロニウム)の可能性もあるが量が少ないので ここではあえて問題とはしない、しかしこの照射試料 を90日、160日と室温に保持している間に寿命スペク トルに変化が生じていることが分かる、すなわち照射 による変化が次第に消えている。おそらく陽電子をト ラップしていた原子空孔が格子間原子との再結合によ り消滅したものと思われる.最近の跡部等²¹による低 温中性子照射した Al2O3 に対する光吸収の実験から酸 素の原子空孔についての情報(すなわち F⁺, F セン ター等)が得られており、これらは200℃~300℃で移 動消滅しているのが観察されている.従って本実験の 場合は再結合と考える方が良いと思われる. AI 原子 も同然はじきだされているわけであるが Al2O3 中では AI サブ格子はシィが空位であるためそこにはじき出さ れた AI はすぐ落ち込むと考えられる. 従って寿命ス ペクトルには変化が表われないと考えられる.

sample 2 は同じく東芝製多結晶 Al2O3 であるが違 うロッドである. 照射後の寿命が sample 1 の場合ほ ど伸びていないがこれは照射量が少ないために飽和条 件に達せずマトリックスとの平均になっているためと 考えられる. sample 3 は単結晶であるが驚くべきこ とに寿命が 158psec と長い. 野口等³によって測定さ れた結果とほぼ等しい値である. さらに驚くべきこと は照射によって寿命変化が見られないことである. こ れは単結晶の場合にははじめから酸素欠損(酸素原子 空孔)が存在していると考える以外に解決の仕様がな い. 焼結材の方が酸素供給が十分であり Al2O3 マトリ ックス中での陽電子の真の寿命~125spec が出ている と考えられる. 単結晶中での酸素原子空孔量は試料に よって異なると考えられるので他の単結晶 (sample 4, sample 5, 共に京セラ製, 5の方が高純度 three nine up) についても測定してみた. 寿命が短かくなって いくことは酸素欠損量が少ないことに対応していると 考えられる. 照射すると酸素原子空孔が導入されて寿 命が伸びていることが分かる.

sample 6 は sample 2 と同じ試料であり中性子照射 (KUR, 20K, 1×10^{17} n/cm²) でも同様に酸素原子空孔 を導入することによる陽電子の寿命増加が見られる. ただ損傷量が $\geq 10^{-4}$ dpa と小さいために原子空孔の寿 命~155spec までは伸びていない. 室温保持により回 復してゆくことは同様である. sample 7 は店頭で見 られる京セラ fine ceramics であるがこの場合は多結 晶でも陽電子寿命が長く酸素欠損が存在していること がわかる.

Fig. 4, 5, 6, 7, に陽電子消滅角相関測定の結果を示



Fig. 4 Positron annihilation angular correlation curve for Al₂O₃ single crystal



Fig. 5 Positron annihilation angular correlation curve for 60 MeV O ion irradiated Al2O3 polycrystal

す. 測定の機会が少なかったため同一試料につき照射 前後の対応がついていない. 照射試料も照射後時間を 経過して寿命の回復が完了した後の角相関測定である ため酸素原子空孔による陽電子捕獲から来る幅の減少 は見られていない. 4本の曲線とも半値幅は 11.8mradである. Fig. 4 は sample 4 照射前, Fig. 5 は sample 1 (160日後), Fig. 6 は sample 6 (45日後), Fig. 7 は sample 7 中性子照射試料である. 角相関測 定を行ったもう一つの目的はポジトロニウム (P_s) 形 成の有無を調べることである. イオン結晶ではFセン ター中で P_s が形成されることが Dupasquier⁴⁾ によっ て指摘されている. 金属では著者等^{5.6)}によりマイク ロボイド中で P_s 形成が起きていることが示されてい



Fig. 6 Positron annihilation angular correlation curve for neutron-irradiated Al₂O₃ polycrystal (Toshiba)



Fig. 7 Positron annihilation angular correlation curve for neutron-irradiated Al2O3 polycrystal (Kyocera)

る. **Fig. 4**-7 では顕著な P_s 形成を示す narrow component は見られない. **Fig. 4** の単結晶が僅かに中央 部に突起があり P_s 形成を示しているようにも見える. 十分な照射を受けた試料について照射直後に測定する 必要がある.

今後,単結晶を酸素中熱処理して酸素欠損量のコン トロールを行い寿命変化を測定することが不可欠であ る.又角相関測定も行わなければならない.

謝 辞

タンデム照射実験において同実験室御手洗博士,黒 柳教授に多大のお世話をいただきましたことに深く感 謝致します.又単結晶試料の一部 (sample 3)を使わ せていただきましたことを総理工材料開発専攻栗下博 士および吉永教授に深く感謝致します.又角相関測定 の際多大のお世話をいただいた東北大金研長谷川助教 授に深く感謝致します.

参考文献

1) J. P. Biersack and L. G. Haggmark, Nucl. Inst. Met., 174 (1980), 257.

2) K. Atobe, N. Nishimoto and M. Nakagawa, Phys. Stat. Sol.

(a), 89 (1985), 155.

- M. Noguchi, T. Mitsuhashi, T. Chiba, T. Tanaka and N. Tsuda, J. Phys. Soc. Japan, 32 (1972), 1242.
- A. Dupasquier, Proc. Int. Sch. Phys. 'Enrico Fermi', Positron Solid-State Physics, (1983), 510.
- 5) E. Kuramoto, K. Kitajima and M. Hasegawa, Phys. Lett., **86A** (1981), 311.
- E. Kuramoto, N. Kikuchi, D. Irisawa, M. Takenaka and M. Hasegawa, Proc. 8th Int. Conf. Positron Annihilation, Gent, (1989), 446.