九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

金属中の格子欠陥における陽電子消滅寿命

蔵元，英一
九州大学応用力学研究所

安部，博信
九州大学応用力学研究所

青野，泰久
日立製作所日立研究所

竹中，稔
九州大学応用力学研究所

他

https://doi.org/10.15017/17392

出版情報：九州大学大学院総合理工学報告. 17 (4), pp.409-419, 1996-03-01. Interdisciplinary Graduate School of Engineering Sciences, Kyushu University
バージョン：
権利関係：

九州大学大学院総合理工学研究科報告
第17巻 第4号 409-419頁 平成8年3月

Engineering Sciences Reports, Kyushu University
(KYUSHU DAIGAKU SOGORIKOGAKU KENKYUKA HOKOKU)
Vol. 17, No. 4 pp. 409-419 March 1996

金属中の格子欠陥における陽電子消滅寿命

蔵元英一[1)]・安部博信[1)]・青野泰久[2)]
竹中稔[1)]・堤哲男[1)]・長野修一[3)]
西和也[2)]・堀史説[4)]・上村祥史[5)]
河口隆[6)]・具嶋和也[7)]・木村学[5)]
上之康一郎[5)]

(平成7年11月30日 受理)

Positron Annihilation Lifetime at Defects in Metals

Eiichi KURAMOTO[1)], Hironobu ABE[1)], Yasushi AONO[2)], Minoru TAKENAKA[1)], Tetsuo TSUTSUMI[1)], Shuichi NAGANO[3)], Kazuya NISHI[2)], Fuminobu HORI[4)], Yasushi KAMIMURA[5)], Takashi KAWAGUCHI[6)], Kazuya GUSHIMA[7)], Manabu KIMURA[5)], Koichiro UENO[5)]

Since positron annihilation measurement is very useful to the study of defects in solids, many investigations have so far been performed for various crystals, especially metals and alloys. Atomic and electronic structures of various defects are, however, very complicated and have not been fully clarified yet and more detailed experiments and precise calculations are still needed. Vacancy and its clusters, dislocations and precipitates are main objects so far investigated and in this paper recent experimental and calculational results for vacancies in Fe and Fe-alloys and dislocations in Ni and Fe are described. Positron annihilation lifetime measurements for high-purity Fe and Fe-alloys irradiated with electrons at low temperature showed the fundamental behaviour of vacancies and the interaction between a vacancy and alloying elements. It was made clear that vacancies in Fe become mobile above 200K in Fe, but in the presence of various alloying elements the interaction behaviour between vacancies and alloying elements became important. Deformed Ni and Fe usually showed intermediate lifetime component between matrix and a vacancy. Positron lifetime calculation showed that this intermediate lifetime component does not correspond to a straight dislocation, but vacancies trapped at dislocation lines.

1. はじめに

陽電子消滅寿命測定法は，結晶中の欠陥，特に空孔タイプの欠陥のミクロ情報を得る上に非常に有効であるので，これまでに種々の結晶，特に金属に対しては多くの研究がなされてきた．しかし，未だ十分解明されたとは言えない状態にあり，実験的側面の充実に加えて寿命計算も可能な限り駆使して更に追求しなければならな現状である．これまでの経過を振り返ってみると，原子空孔の研究においては，低温で電子線照射して空孔を凍結し，等時焼鈍過程において空孔集合体を形成させて陽電子寿命の変化が現われた温度をもって，空孔の移動温度としてきた．この際，純粋の空孔の挙動が観察されるためには，試料が高純度であることが必須条件である．鉄の場合は C, O, N などの有害な不純物を appm オーダーまで減らさなければならない．このようにして空孔における陽電子寿命と移動温度が得られたが，次に寿命の計算との比較を行ってきた．陽電子の欠陥位置における寿命を計算するには，十分大きなモデル結晶中に欠陥周辺の原子配列を正しく再現しなければならない．このためには格子の緩和を行う必要があり，通常 EAM (embedded atom method) タイプポテンシャルを用いて行っている．この

[1)]九州大学応用力学研究所，[2)]日立製作所日立研究所，[3)]旭メディカル，[4)]大阪府立大学先端科学研究所，[5)]九州大学総合理工学研究科(院)，[6)]新日鉄，[7)]鉄道総合技術研究所

ようにして得られた原子配置に対して陽電子の寿命を計算するわけであるが，それには陽電子の感じるポテンシャルを与えなければならない．特に電子密度分布に関しては原子の波動関数の重ね合せにより構成している．このようにして陽電子の寿命が得られ実験値と比較する．これまでに原子空孔に関しては比較的良い一致が得られている．しかし，問題は転位に関する実験値と計算値が全く一致しないことである．これまでに変形した結晶における陽電子の寿命は，原子空孔位置における値よりも少し短い値が得られ，これが転位における陽電子の寿命であると考えられてきた．しかし，一方変形で導入された原子空孔が転位線上に付着して陽電子をトラップしている可能性も Doyama & Cotterill により考えられている[1]．また，バーガース・ベクトルの大きさの順に陽電子の寿命が伸びるという研究結果も Shirai らにより報告されており[2]．さらに詳細な研究が必要な段階にきている．以下このような流れについて順を追って述べて行く．

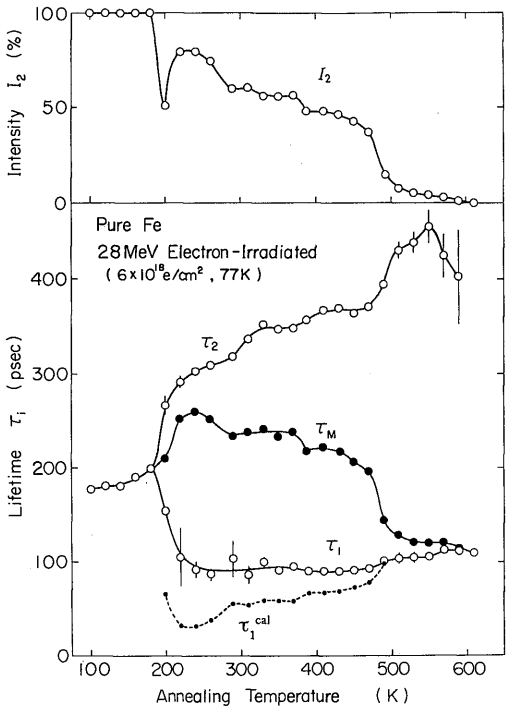

Fig. 1　Positron annihilation lifetime measurement of isochronal annealing process of Fe irradiated with electrons at low temperature

2. 原 子 空 孔

2.1 鉄および鉄合金

不純物の影響を極度に除くために高純度の水素中で浮遊帯溶融精製法により残留抵抗比約4000の高純度鉄を作製した．C, O, N などのガス不純物量は appm 程度以下と考えられる．高純度鉄に低温電子線照射（KURRILINAC28 MeV）により欠陥を導入し，陽電子消滅寿命測定法により等時焼鈍過程を追求した結果を図1に示す[3]．低温の寿命～175psec が原子空孔位置における陽電子の寿命である．200K 以上で原子空扉孔が移動してマイクロボイドを形成し寿命が著しく伸びている．回復直前には 400psec を越える値を示

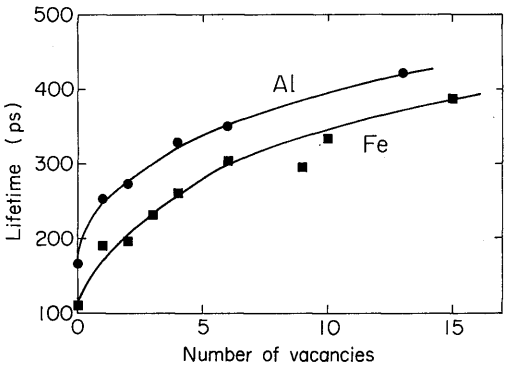

Fig. 2　Calculation of positron lifetime in vacancy clusters (microvoids) (after Puska et al.[4])

Table 1　Atomic size factor of various elements in Fe (after King et al.[5])

Alloy	Size factor (%)
Fe-Au	44.16
-Sb	36.40
-Mo	27.51
-Cu	17.53
-V	10.51
-Mn	4.81
-Ni	4.65
-Cr	4.36
-Co	1.54
-Si	−7.88

Atomic size factor $= (1/\Omega)(d\Omega/dc) = (3/a)(da/dc)$
Ω: atomic volume
c: solute concentration
a: lattice parameter

しているが，これは図2に示す Puska & Niminen の計算[4]によれば原子空孔を15個以上含むマイクロボイドに対応している．600K までにはほぼ回復が終了している．τ_1 の値はτ_1^{cal}（マイクロボイドのみが陽電子をトラップしているとした時の値，図中点線）よりも大きい．このことは転位ループのような中間寿命成分が存在していることを示している．

次に合金元素の影響についての実験結果について述べる．合金元素の特徴を表わす一つのパラメータとして表1にサイズ因子[5]を示す．この中から Cr, Cu, Si, Mo を選んで合金を作製し，純鉄と同様の実験を行った．合金作製においてもガス不純物の混入を極度に抑えるために，高純度の水素中でゾーンレベリング法により行った．

Fe-5% Cr 合金に対して純鉄と同様の実験を行った結果を図3に示す．純鉄と同様に 200K 付近から原子空孔の移動集合に対応する長寿命成分が現われている．これは Cr のサイズ因子が Fe とあまり違わないために原子空孔をトラップする効果が弱いためと考えられる．ただし，寿命の伸び，すなわちマイクロボイドの発達およびその強度（I_2）はともに純鉄の場合を下回る．これはわずかにオーバーサイズである Cr は，低温では二相分離して Fe マトリックス中にその集合体を形成する傾向にあり，原子空孔の一部はその過程に関与するためマイクロボイド形成が抑制されていると考えられる．詳細に関しては今後の課題である．

図4に Fe-0.02% Cu 合金の実験結果を示す[6)7)]．Cu は Fe マトリックス中では表1に示すようにかなりオーバーサイズであり，固溶量もわずかである．試料は急冷して強制固溶させてある．低温側で原子空孔の寿命が 160psec と純鉄の場合より明らかに短いが，これはすでに Cu 原子にトラップされているためと考えられる．これに関する計算結果は下に示す．さらに Cu 原子により原子空孔の移動が疎外された結果，280K からマイクロボイド形成が見られるが十分に発達する前に消滅し高温側は 150psec 程度の新しい寿

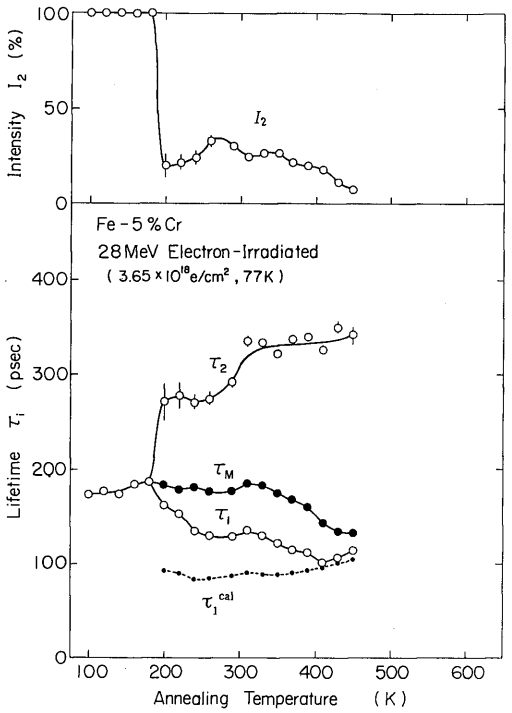

Fig. 3　Positron annihilation lifetime measurement of isochronal annealing process of Fe-5% Cr irradiated with electrons at low temperature

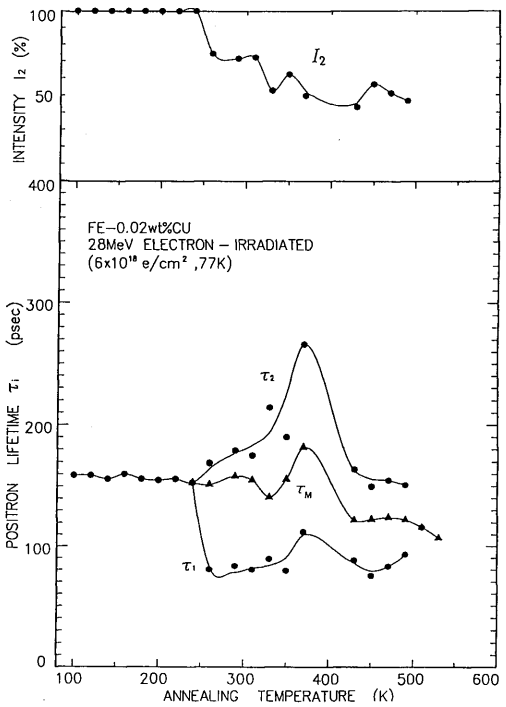

Fig. 4　Positron annihilation lifetime measurement of isochronal annealing process of Fe-0.02%Cu irradiated with electrons at low temperature

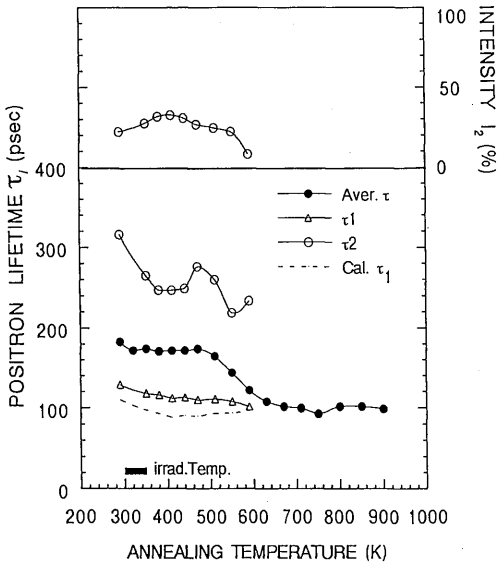

Fig. 5　Positron annihilation lifetime measurement of isochronal annealing process of Fe-0.02%Cu irradiated with neutrons

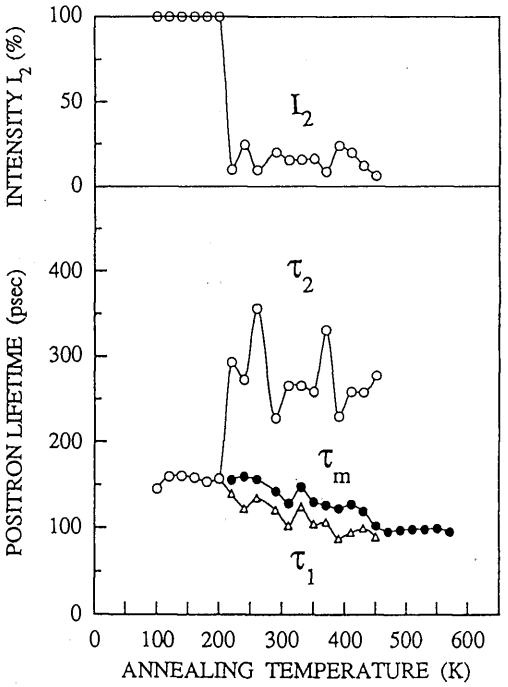

Fig. 6　Positron annihilation lifetime measurement of isochronal annealing process of Fe-0.017 % at Si irradiated with electrons at low temperature

命を示す．この過程には多くの重要な現象が含まれていると考えられている．低温では空子空孔と Cu 原子は共に過飽和な状態にあり，昇温とともに共析出過程を辿る．しかし，ここで問題となるのは Cu 原子はそれ自身では移動不可能であり，空孔との位置交換でのみ移動できることである．この結果必然的にマイクロボイド形成と Cu 原子の析出は競合過程となる．実験結果の解釈としては後者が優勢に立っていると見るのが妥当である．すなわち照射促進析出過程の初期過程を捕えていると考えられる．中性子照射した Fe-0.22 % Cu に対する室温以上の実験結果を図5に示す．照射中にすでに空孔が移動しておりマイクロボイドが存在しいるが，注目すべき点は昇温とともに寿命が一旦減少することであるが，これもやはり照射促進析出過程が進行しているためと考えられる．中性子照射の場合にはカスケード形成の結果，局所的な高い空孔密度に支えられて過程の進行が顕著になると考えられる．下がった寿命は Cu 集合体の中に取り込まれた空孔集合体に対応し，これらの空孔は Cu 集合体の安定構造への変態にも重要な役目を果たすものと考えられる．

図6に Fe-0.017at%Si 合金に関する低温電子線照射の結果を示す[8]．純鉄と同様に 200K を越すと空孔が移動開始し，Si にトラップされた残りの空孔はマイクロボイドを形成し長寿命成分が現われる．しかし，純鉄のように十分に発達することなく空孔を放出して消滅する．成長するには特定の優先されたマイクロボイドに不安定なものから放出された空孔の補給が不可欠であるが，Si のようなトラッピングセンターがあるとこの過程が断ち切られる．結果として空孔の流れが比較的近い温度範囲で二度起きていることになるが，このことを検証するのには電気抵抗の測定が有効である．空孔の流れによって微小な格子間原子集合体が消失するのが抵抗の減少として観測されるのが，**図7**に示すように純鉄のステージⅢのピークが Fe-0.017 at%Si 合金では二つに分かれている．低温側のピークが純鉄のステージⅢより少し低い温度に存在するのは，Si の存在により格子間原子集合体がより微小分散しているためと考えられる．図6で室温以上で再び寿命の伸びを見せるが，これは Si から解離した空孔の挙動である．しかし，すでに高温であり空孔数の総量も十分ではないためすぐに消滅の一途を辿る．同様の現

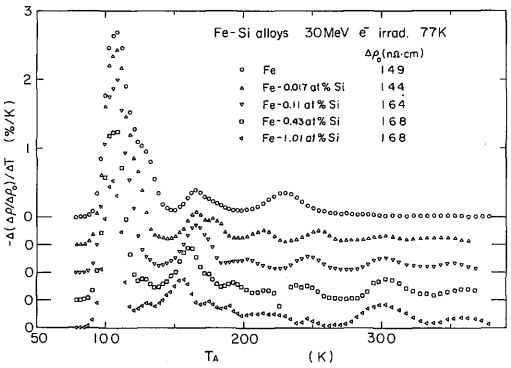

Fig. 7 Electrical resistivity measurement of isochronal annealing process of Fe-0.017 at % Si irradiated with electrons at low temperature

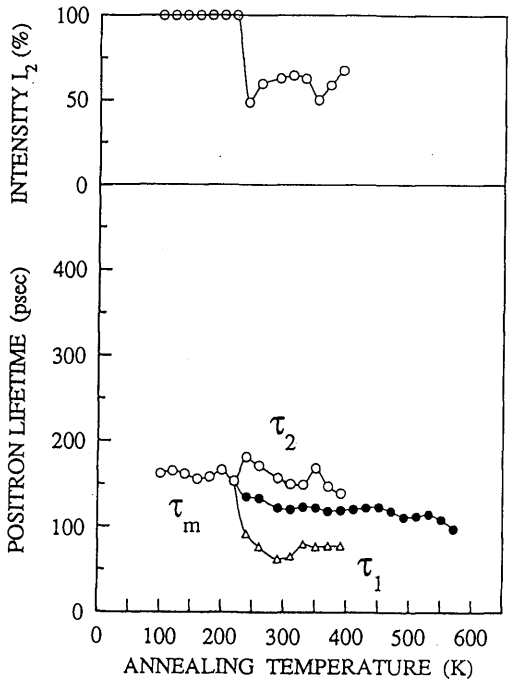

Fig. 8 Positron annihilation lifetime measurement of isochronal annealing process of Fe-0.065 % at Mo irradiated with electrons at low temperature

象が図8の Fe-0.065at%Mo 合金でも起こるが表1から分かるように Mo はかなりオーバーサイズであり，マイクロボイド形成はさらに抑制されることになる．つぎに鉄中の空孔に関する陽電子寿命計算の結果を示す．

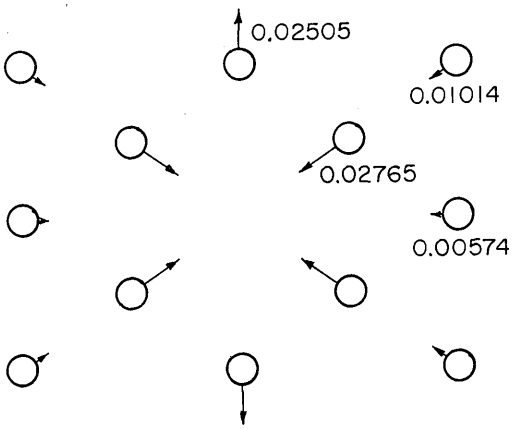

Fig. 9 Calculation of lattice relaxation around a vacancy in Fe (arrows show displacements of Fe atoms, 10 times magnified)

2.2 原子空孔における陽電子寿命計算

2.2.1 格子の緩和

陽電子の寿命計算に先だって欠陥周辺の格子の安定位置を決定しなければならない．それには十分に大きな鉄モデル結晶中に原子空孔を導入し，結晶全体を十分に緩和する．用いたポテンシャルは Finnis-Sinclair potential[9] である．原子空孔の形成エネルギーとして 1.83eV という値が得られ，妥当な値である．空孔周辺の格子は図9に示すように緩和しており，原子空孔の有効体積は緩和前に比べて約9％ほど減少している．

2.2.2 陽電子寿命計算

十分緩和された欠陥構造における陽電子の波動関数を求めるには，その場所において陽電子が感じるポテンシャルを求め，Schrödinger 方程式を解かなければならない．ここでは Puska & Nieminen の方法[4]に従って計算を進める．ポテンシャルは原子核，電子からのクーロンポテンシャルに陽電子，電子の相関ポテンシャルの和で与えられる．前者は原子の状態の電子密度分布（Herman & Skillman の波動関数表[10]から）を重ね合せて構成し，後者は Boronski & Nieminen[11] により与えられているものを用いた．Schrödinger 方程式を解くには Kimball-Shortley の方法[12]を用いた．

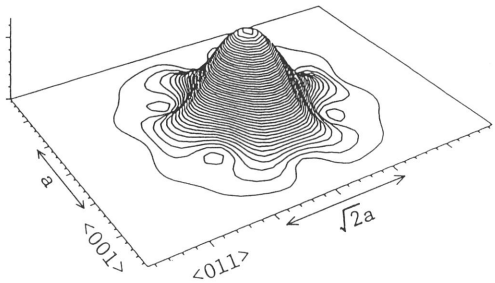

Fig. 10　Calculation of positron wave function at a vacancy in Fe

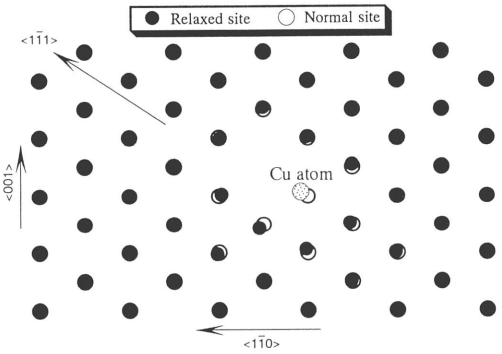

Fig. 11　Calculation of lattice relaxation around a vacancy-Cu complex in Fe

図10に鉄中の原子空孔位置において得られた陽電子の波動関数を示す．得られた寿命は，176 psec で格子の緩和をしない場合の値 187 psec より短くなっている[13]．実験値は 175psec 程度[3]であり，非常に良い一致といえる．次に鉄中の原子空孔が Cu 原子にトラップされた状態に対する同様の計算を行った結果について述べる．この場合の最重要課題は Fe と Cu の間の原子間ポテンシャルを求めることである．このために Fe[9]と Cu[14]のポテンシャルをベースにしてパラメータフィッティングにより求めた[15][16]．合わせた実験値は（i）heat of solution（−0.19eV，Baskes[17]より），（ii）サイズ因子（17.53%，（表1）），（iii）鉄中の原子空孔と Cu の結合エネルギー（0.14eV，Moslang[18]）の3つである．このポテンシャルを用いて得られた空孔—Cu 対の安定構造を図11に示す．Cu 原子が空孔の中心に向かって少し移動していることが分かる．次にこの状態に対する陽電子の波動関数を求めると図12のようになり，陽電子の寿命は純鉄の場合より減少して 168psec が得られた．これは図4に示す低温側の値に近い．Cu 原子を2個にした場合は 160psec という値が得られた．さらに増やすと徐々に減少すると考えられるが，図4の高温側の値はこのような空孔を巻き込んだ Cu 原子の微小集合体と考える

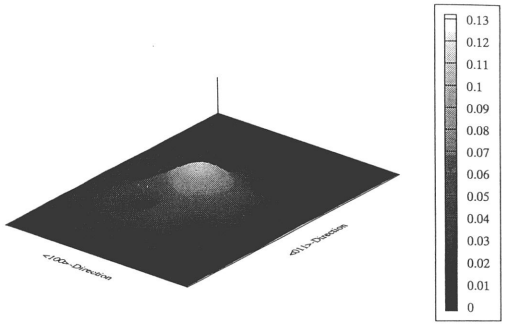

Fig. 12　Calculation of positron wave function at a vacancy-Cu complex in Fe

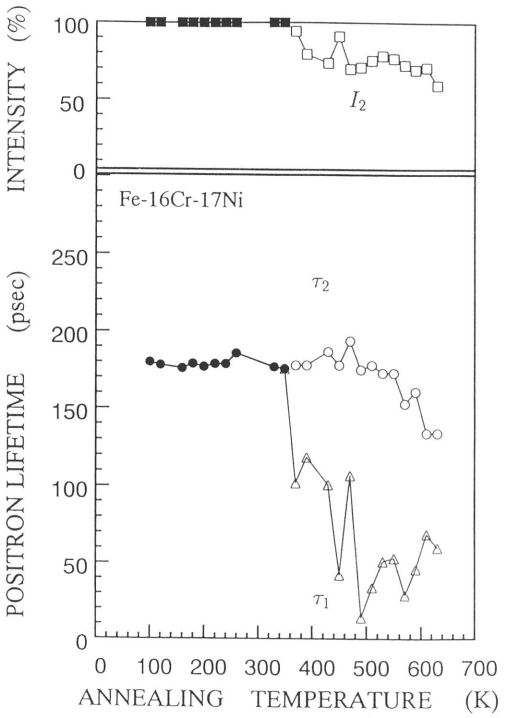

Fig. 13　Positron annihilation lifetime measurement of isochronal annealing process of Fe-16Cr-17Ni irradiated with electrons at low temperature

のが妥当である．すなわち前述したように照射促進析出過程の初期状態に当たる．

2.3 オーステナイト系合金

鉄合金でも bcc から fcc に変わると様相が一変する．図13に Fe-16Cr-17Ni に対して上述と同様の電子線照射をして陽電子寿命測定を行った結果を示す．決定的に異なる点は顕著な長寿命成分が現われないことである．これはこの合金の積層欠陥エネルギーが非常に低いために（～11 erg/cm^2 [19]）350K 付近で空孔が移動開始した後，マイクロボイドのような open structure よりも積層欠陥のような collapsed structure を主としてとる傾向があるためと考えられる．この合金における積層欠陥サイトの陽電子寿命は知られていないが，積層欠陥はバーガース・ベクトルの小さな転位に囲まれている点から空孔よりはかなり短いと考えられる．したがって実験で得られている寿命はマイクロボイド成分も少し含んだものと考えられる．次にこのような状況を変えるものとして Fe-16Cr-17Ni 合金に水素を 50appm ほど含ませた試料についての同様な実験結果を図14に示す．予想通り水素は空孔集合体のコラプスをかなり抑制してマイクロボイド成分が顕著に現れているのが分かる．もう一つの注目すべき点は低温側の原子空孔の寿命が水素を含んだ試料では 180psec から 150psec に減少していることである．この点をシミュレートして得られた陽電子の波動関数を図15に示す．ここで水素を空孔の中央に置いている場合が (b) である．実験をよく再現する寿命の値が得られている．

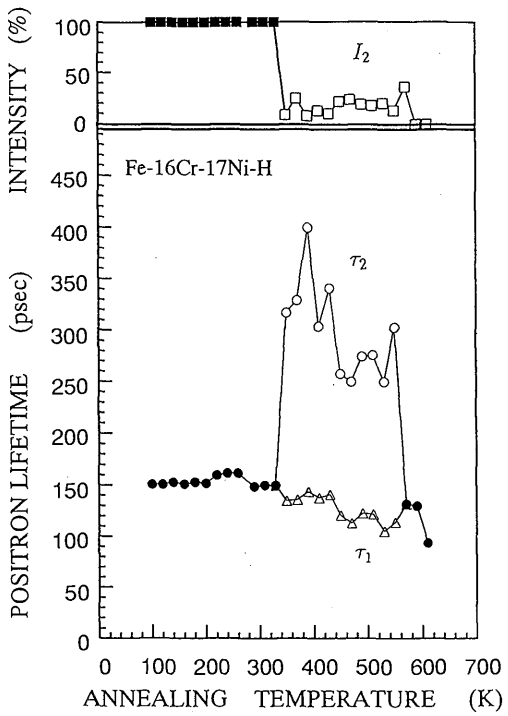

Fig. 14 Positron annihilation lifetime measurement of isochronal annealing process of Fe-16Cr-17Ni-50appmH irradiated with electrons at low temperature

3. 転　　位

3.1 Ni およびオーステナイト系合金

変形して転位を導入した試料に対する陽電子消滅寿

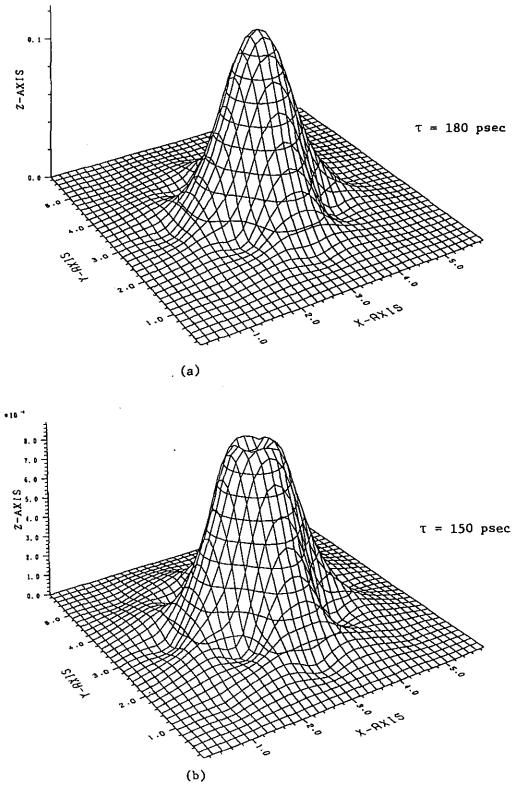

Fig. 15 Calculation of positron wave function at a vacancy in Ni ((a) vacancy only, (b) vacancy with a hydrogen atom at its center)

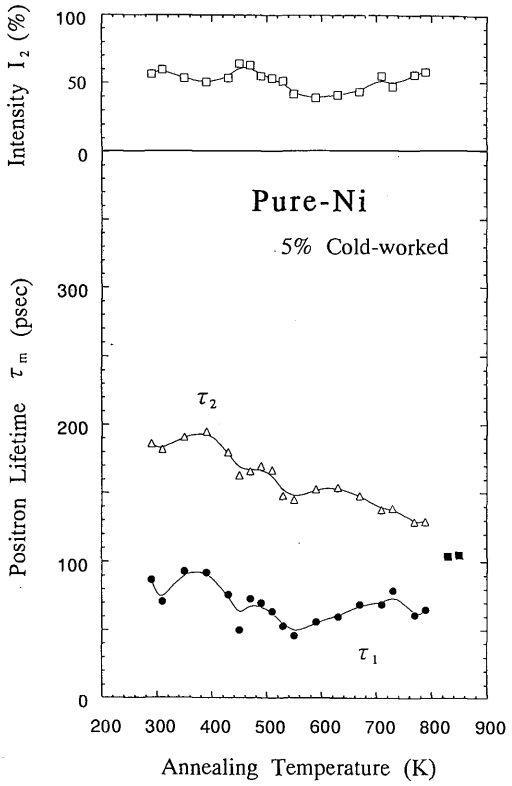

Fig. 16　Positron annihilation lifetime measurement of isochronal annealing process of 5% deformed Ni)

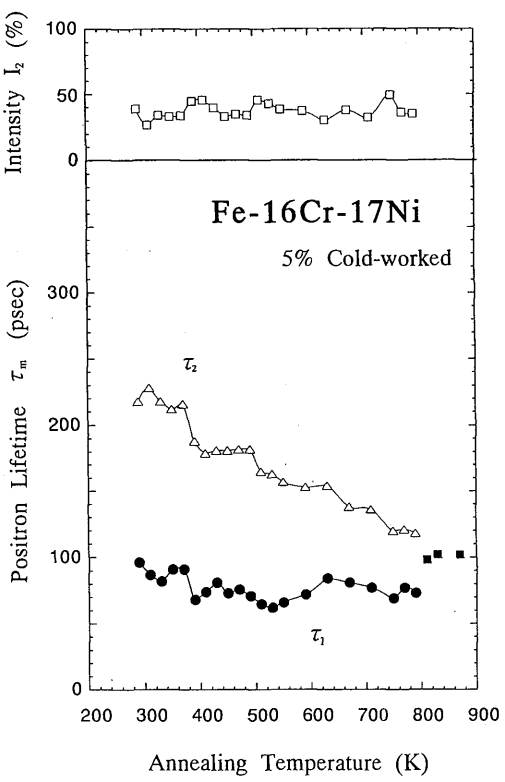

Fig. 17　Positron annihilation lifetime measurement of isochronal annealing process of 5% deformed Fe-16Cr-17Ni)

命測定実験について以下に述べる．図16，17にそれぞれ Ni, Fe-16Cr-17Ni を室温で 5 %圧延した後の等時焼純実験の結果を示す．試料中のガス不純物を極度に減らすために前述と同様の水素中溶解法により作製した．焼純温度の上昇とともに寿命がどちらの場合も徐々に下がっていくのが特徴的である．単純に刃状転位が陽電子をトラップすると考えるとほぼ一定でなければならない．したがってトラッピングセンターが替わっていると考えるのが妥当である．低温側で 200 psec あるいはそれを上回る寿命はコラプスしていない微小空孔集合体に対応していると考えられる．これは運動転位と林転位 (forest dislocation) のカッティングの結果形成されるジョグのドラッギング (dragging) により空孔が形成されるため起こる．空孔は比較的局在して形成されるので集合体を形成しやすいこと，転位との距離が近いので転位線にトラップされやすいことなどを考慮する必要がある．この際，転位線との結合エネルギーに関する情報が不可欠である．

3.1.1　Ni 中の刃状転位と微小空孔集合体

モデル Ni 結晶中に刃状転位と原子空孔を導入して十分緩和して結合エネルギーを求めた結果を図18に示す．用いた Ni の原子間ポテンシャルはやはり EAM タイプのもので[20]，刃状転位は十分緩和して得られた拡張転位である．空孔および複空孔はすべり面の直上の原子面上にあり，転位との相対距離を変えて逐次形成エネルギーを計算した．複空孔は転位線に垂直（すべり面内，すべり面に垂直），平行の 3 通りの場合について計算した．図18から分かるように結合エネルギーは単一空孔の場合は 0.7eV 程度であるが，複空孔の場合には 1eV を越すものもあり，トラップされている可能性は十分にある．単一空孔の場合には転位線に沿ったパイプ拡散が起きると考えられるので，複

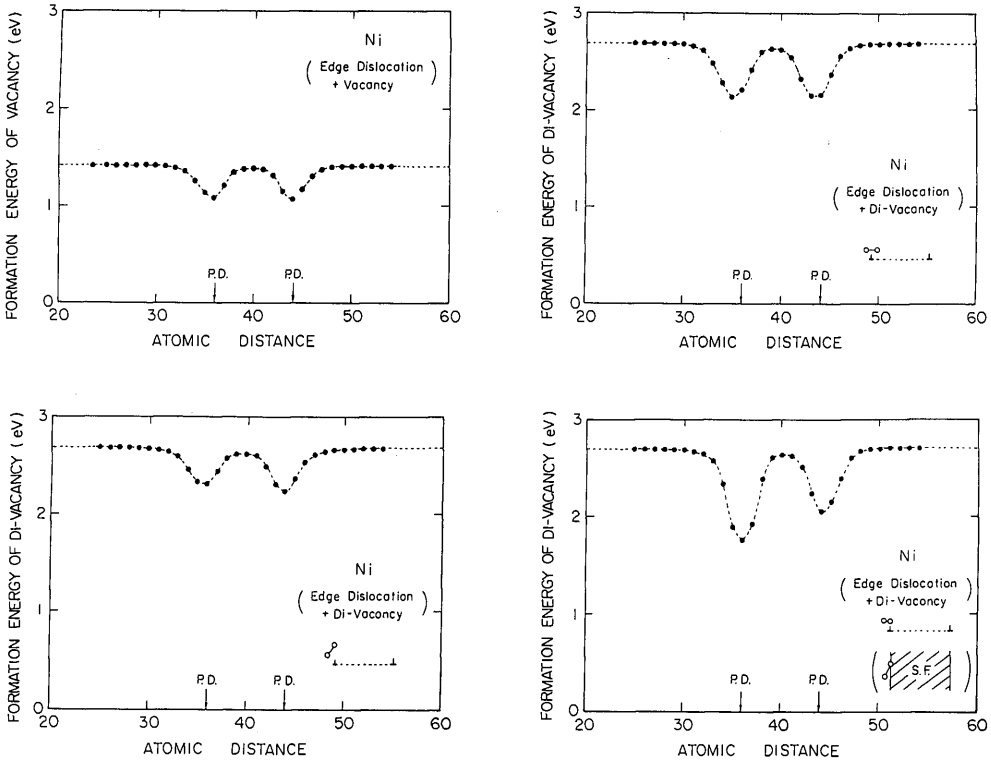

Fig. 18　Calculation of interaction energy between an extended edge dislocation and a vacancy and di-vacancy in Ni (defects are placed on the atomic plane just above a slip plane, and are sifted along a direction perpendicular to a dislocation line)

空孔の状態あるいはそれ以上の集合体で転位線に結合していると考えられる．

つぎにこれらのサイトにおける陽電子の寿命および基底状態のエネルギーを計算しなければならない．

3.1.2　陽電子寿命計算

上述と同様の方法で陽電子の寿命と基底状態のエネルギーを求めた結果を図19に示す．刃状転位およびジョグは陽電子に対して比較的浅いトラップ（shallow trap）であること，および陽電子の寿命は原子空孔におけるものよりもずっと短く，それぞれ 113psec, 119psec 程度であることが分かる．一方，転位線上の微小空孔集合体は陽電子に対して深いトラップ（deep trap）であること，マトリックス中の空孔よりも短いものがあることなどの結果が得られた．さらに現在転位線上の空孔の数を増やしてコラプスした構造のものまで調べているがマトリックスと空孔の中間寿命のもの，すなわち実験で観測されているものが得られると思われる．すなわち変形した試料の場合には単純に転位線における陽電子の寿命が得られるとは限らない点多くの問題を含んでいる．

3.2　鉄

変形した Fe に対してはこれまでに 165psec[21], 150psec[22] などの陽電子寿命が得られている．また，らせん転位が主に導入される低温変形（77K）の方が，刃状転位も半数程度占める室温変形より陽電子に対するトラッピングレートが大きいという報告もある[23]．この場合にも Ni の場合と同様の計算を行った結果を図20に示す．この場合にも刃状転位線やジョグは比較的浅いトラップで陽電子寿命も 117psec 程度と非常に短い．これに対して転位線上の原子空孔，複空孔は比較的深いトラップであり，寿命も 140, 150psec と実験で観測されているものが得られた[24]．鉄中の刃状転位と原子空孔の結合エネルギーを Ni の場合と同様に計算した結果を図21に示す．0.9eV 程度の値を示

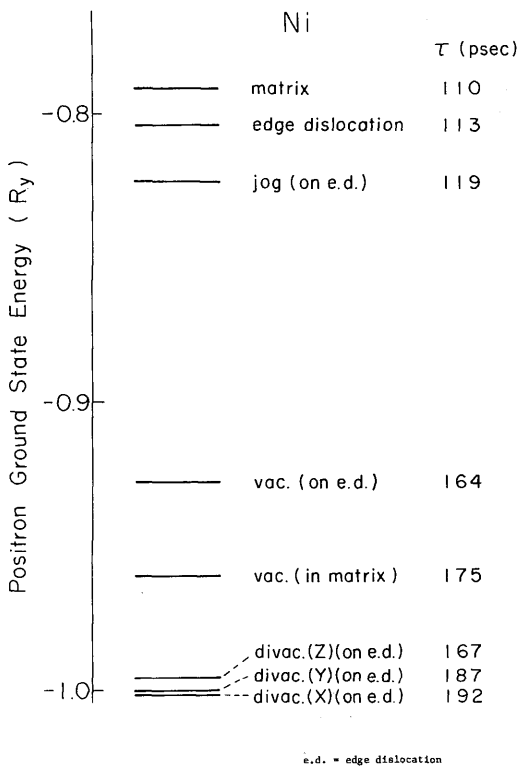

Fig. 19　Calculation of ground state energy and a lifetime of a positron at various defects in Ni

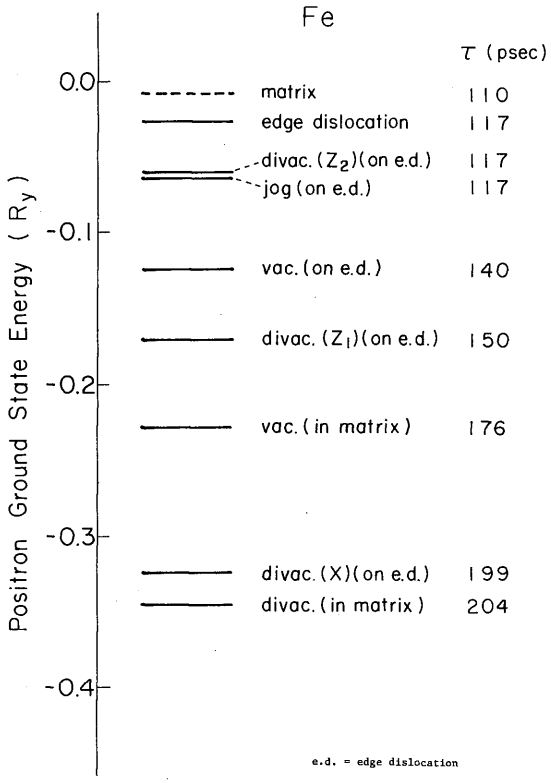

Fig. 20　Calculation of ground state energy and a lifetime of a positron at various defects in Fe

しており，トラップされる可能性は十分ある．複空孔の場合には転位線に垂直な場合にはコラプスしないが，平行に近い場合にはコラプスしてジョグに近い構造をとるため浅いトラップで短寿命になる．図20の中の divac. (Z_2) がそれに当たる．結局，Fe の場合にも刃状転位そのものにトラップされていると考えるよりは原子空孔が何らかの意味で絡んでいると考える方が妥当である．しかし，今後さらに詳細に研究を進めていく必要がある．

謝　辞

低温電子線照射の実験において多大の御協力を頂いた，京都大学原子炉実験所ライナック関係諸氏および，日本原子力研究所高崎研究所２号加速器関係諸氏に深く感謝の意を表します．また，陽電子寿命計算において重要なアドバイスを頂きました電総研の石橋章司博士に心から感謝の意を表します．

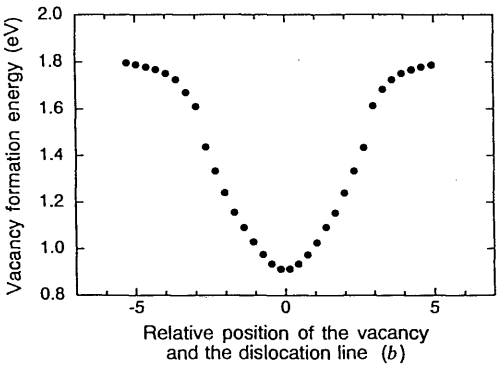

Fig. 21　Calculation of interaction energy between an edge dislocation and a vacancy in Fe (a vacancy is placed on the atomic plane just above a slip plane, and is sifted along a direction perpendicular to a dislocation line)

参 考 文 献

1) M. Doyama and R. J. Cotterill: Proc. 5th Int. Conf. on Positron Annihilation, Lake Yamanaka, (1979), 89.
2) Y. Shirai, K. Matsumoto, G. Kawaguchi and M. Yamaguchi: Mat. Sci. Forum, **105-110** (1992), 1225.
3) E. Kuramoto, S. Nagano, K. Nishi, K. Makii, Y. Aono and M. Takenaka: Mat. Sci. Forum, **105-110** (1992), 1125.
4) M. J. Puska and R. M. Nieminen: J. Phys. F. **13** (1983), 333.
5) H. W. King, J. Mat. Sci.: **1** (1966), 79.
6) F. Hori, M. Takenaka and E. Kuramoto: Scripta Metal. et Mater., **29** (1994), 243.
7) F. Hori, Y. Aixin, Y. Aono, M. Takenaka and E. Kuramoto: Mat. Sci. Forum, **175-178** (1995), 379.
8) T. Kawaguchi, F. Hori, Y. Kamimura, M. Takenaka, H. Abe and E. Kuramoto: Mat. Sci. Forum, **175-178** (1995), 419.
9) M. W. Finnis and J. E. Sinclair: Phil. Mag. A, **50** (1984), 45 (erratum: Phil. Mag. A, **53** (1986), 161).
10) F. Herman and S. Skillman: *Atomic Structure Calculations*, Prentice Hall Inc., (1963), 1.
11) E. Boronski and R. M. Nieminen: Phys. Rev. B, **346** (1986), 3820.
12) G. E. Kimball and G. H. Shortley: Phys. Rev., **45** (1934), 815.
13) Y. Kamimura, F. Hori, T. Tsutsumi and E. Kuramoto: Mat. Sci. Forum, **175-178** (1995), 403.
14) G. I. Ackland, G. Tichy, V. Vitek and M. W. Finnis: Phil. Mag. A, **56**, (1987), 735.
15) E. Kuramoto, F. Hori and T. Tsutsumi: *Strength of Materials*, ed. H. Oikawa et al., JIM, (1994), 93.
16) F. Hori, Y. Kamimura, T. Tsutsumi and E. Kuramoto: J. Nucl. Mat. (in press).
17) M. I. Baskes: Phys. Rev. B, **46** (1992), 2727.
18) A. Möslang, H. Graf, G. Balzev, E. Recknagel, A. Weidinger, Th. Wichert and R. I. Grynszpan: Phys. Rev. B, **27** (1983), 2674.
19) E. Hornbogen: *Physical Metallurgy*, ed. R. W. Cahn and P. Haasen, (1983), 1105.
20) F. Gao and D. J. Bacon: Phil. Mag. A, **67** (1993), 275.
21) P. Hautojarvi, J. Johansson, T. Judin, P. Moser, M. Puska, A. Vehanen and J. Yli-Kauppila: Proc. 5th Int. Conf. on Positron Annihilation, Lake Yamanaka, (1979), 737.
22) C. Hidalgo, G. Gonzalez-Doncel, S. Linderoth and J. San Juan: Phys. Rev. B, **13** (1992), 7017.
23) E. Kuramoto, Y. Aono, M. Takenaka and K. Kitajima: J. Phys. Soc. Japan, **52** (1983), 1098.
24) Y. Kamimura, T. Tsutsumi and E. Kuramoto: Phys. Rev. B, **52** (1995), 879.