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

電子線照射された高配向熱分解黒鉛の陽電子消滅寿 命測定法による研究

大窪, 秀明 九州大学大学院総合理工学研究科材料開発工学専攻

竹中, 稔 九州大学応用力学研究所

大沢,一人 九州大学大学院総合理工学研究科材料開発工学専攻

佃, 昇 九州大学大学院総合理工学研究科材料開発工学専攻

他

https://doi.org/10.15017/17422

出版情報:九州大学大学院総合理工学報告. 18(4), pp.313-315, 1997-03-01. 九州大学大学院総合理工 学研究科 バージョン:

権利関係:

電子線照射された高配向熱分解黒鉛の 陽電子消滅寿命測定法による研究

大 窪 秀 明*・竹 中 稔***・大 沢 一 人** 佃 昇**・蔵 元 英 一** (平成8年11月30日 受理)

Positron Annihilation Lifetime Study of Electron Irradiated HOPG

Hideaki OHKUBO*, Minoru TAKENAKA***, Kazuhito OHSAWA**, Noboru TSUKUDA** and Eiichi KURAMOTO**

Positron annihilation lifetime measurement has been performed for the HOPG (highly oriented pyrolytic graphite) irradiated with electrons at 77K. The positron lifetime for the unirradiated specimen was 202 psec, and was decomposed into two components, i.e. 156 psec (52.9%) and 244 psec (47.1%). By the electron irradiation the second lifetime increased to 278 psec (55.7%). Through the isochronal annealing up to 1000°C the second lifetime gradually increased to 335 psec, but the corresponding intensity decreased to 37.7%. Above 1000°C the second lifetime once showed a decreasing tendency, but again increased to 347 psec at 1600°C. This second increase in high temperature region might be due to the migration and the agglomeration of radiation-induced vacancies, but the first increase is not so clear, probaby is related with the agglomeration of self-interstitial atoms.

1. 緒 言

近年,核融合炉の炉内材料,特にプラズマ対向材料 としてグラファイトが脚光を浴びている.低乙材料 (乙は原子番号)で,しかも高温における諸特性が優 れていることがその理由である¹¹²⁾.しかし,プラズマ 粒子である水素がグラファイトの表面領域に吸着,ま たは脱着を繰り返す,いわゆる水素リサイクリングの 問題はプラズマの安定した閉じこめを阻害する重要な 問題である.この問題に基礎的に対処するためには, 水素のトラップサイトである試料中の格子欠陥などに 関する,原子レベルでの情報が必要不可欠である.本 稿では高配向熱分解黒鉛(HOPG:highly oriented pyrolytic graphite)中の照射欠陥に関するミクロ情報 を,陽電子消滅測定法により得ることを目的にしてい る.

2. 実 験

高配向熱分解黒鉛試料として最も完全度が高いと思 われる HOPG (UCC, ZYA)を寿命測定用に用いた. この他に PGCCL (Le Carbone-Lorraine)を角相関測 定用に用いた.これらの試料でも単結晶とは言えず, いわゆる結晶子の大きさは前者で約 50µm である. また, c-軸方向には, いわゆる積層不整 (stacking disorder) も存在していると考えなければならない. こ れらの欠陥の微視的構造に関してはまだ十分解明され てはいない.

電子線照射は京都大学大原子炉実験所の電子ライナ ックで28MeV, (4-6) x 10¹⁸e/cm², 77K の条件下で行 った.

陽電子消滅寿命測定は、²²Na 陽電子線源から陽電 子が放出されるのとほぼ同時に放出されたγ線 (1.28MeV) と、陽電子が試料中で電子と対消滅した 際放出されるγ線(0.511MeV)との時間差を測定し て,陽電子の寿命を得る測定手段である.対消滅の相 手の電子密度が高い時には寿命は短くなり、低い時に は長くなる、原子空孔サイトなどは後者の代表である. また、陽電子消滅角相関測定は、対消滅の際放出され る 2 本の γ 線 (0.511MeV) の角度依存性を測定して, 対消滅した電子の運動量分布を知る測定法である.図 1 (a), (b) にそれぞれの測定方法の概念図を示す. 寿命測定回路はいわゆる fast-slow coincidence circuit で、プローブとして BaF2 + Hamamatsu photo-tube (H3378)を使用している³⁾⁴⁾. 分解能曲線の半値幅は 約210psec である. 得られた寿命スペクトルを RESOLUTION, POSITRONFIT などの解析プログラ ムを用いて通常2成分に分解した.角相関測定は

^{*}高エネルギー物質科学専攻博士後期課程

^{**}高エネルギー物質科学専攻

^{***}応用力学研究所



Fig. 1 Principles of positron annihilation measurements, (a) lifetime measurement, (b) angular correlation measurement.

Cu⁶⁴ 線源(~1Ci), プローブとして NaI を用いて行われた.

実験結果と考察

図2(a), (b) に PGCCL に対してそれぞれ電子線 照射を行う前と後の角相関測定結果を示す. 測定条件 は P_z (電子の運動量の z 成分) // c-axis, すなわち, 2個のプローブを結ぶ線と c-axis が垂直になるよう に試料をセットする. 図2(a) において $\theta=0^{\circ}$ におい て見られる顕著な凹み ($\theta = \pm 4^{\circ}$ 付近のピーク) は π 電子との対消滅によるものである. すなわち, π電 子の運動量分布は試料の底面に垂直方向(c-axis 方 向) に伸びているので移動カウンターの位置が $\theta=0^{\circ}$ の位置から上下にある角度(θ=±4°)ずれたところ にピークが現れる.電子線照射後この凹み(或いは ピーク)は、図2(b)に示すように非常に浅く(或い は低く)なる.この原因は、照射によって導入された 原子空孔に陽電子が捕獲されて、そこで消滅している ことを示している. すなわち, 原子空孔位置ではπ電 子が存在しないことによる. 照射量をさらに増加すれ ば、凹みは完全に消えるものと思われるが、今回の照 射量では、一部の陽電子はマトリックス中で消滅してい ると思われるので,π電子との消滅が少し残っている.

図3に,電子線照射後の陽電子消滅寿命測定による, 室温から上の等時焼鈍回復実験結果を示す.寿命測定 はすべて室温である.

図中,非照射試料の寿命も記されているが,注目し なければならない点はすでに2成分に分解されている



Fig. 2 Results of the angular correlation measurements for the unirradiated PGCCL (a) and the electronirradiated PGCCL (28MeV, 6x10¹⁸e/cm², 77K) (b).

点である. これまでに1成分としている報告が多く, Shimotomai et al.⁵⁰ も HOPG のマトリックスは210 psec 1成分と報告している. 以前,本著者らも同じ ような結果を報告したが³⁰,詳しく解析してみると2 成分の方が正しいことが今回判明した. 第1成分,第 2 成分はそれぞれ156 psec (52.9%) と 244 psec (47.1%)で,1成分解析の結果は202 psec であった. 第2 成分がどのサイトに捕獲された陽電子の寿命であ るかが問題であるが,結晶子の境界, c-axis 方向の 積層不整などが考えられる.

電子線照射によって第2成分が寿命,強度共に増加 し、278 psec (55.7%) となった. Shimotomai et al. は、電子線照射された高配向熱分解黒鉛 (HOPG) 中 の原子空孔における陽電子寿命は、245 psec である と報告している.今回得られた278 psecという値は、 電子線のエネルギーが28MeV と高いため、若干カス ケード成分が含まれているために長いということも考 えられる.低エネルギー電子線照射をしてみる必要が ある.

次に、等時焼鈍温度の上昇と共に緩やかに寿命が伸



Fig. 3 Result of lifetime measurements for the electronirradiated HOPG (28MeV, 6x10¹⁸e/cm², 77K) during the isochronal annealing process above room temperature (the intensity (above), the lifetime (bottom)).

びて,強度は減少している.この挙動は,通常の金属 における同様の実験で見られる,原子空孔の移動集合 によるマイクロボイドの形成過程と類似している.一 方,Shimotomai et al.は中性子照射した HOPG 中の 原子空孔の移動する温度は~1200℃であると報告して いる.本実験においても1000℃を越えたところに再び 寿命の増加が見られるが,これがShimotomai et al.が 報告しているものと一致している.しかし、どちらの 場合にも強度がむしろ増加している点、通常のマイク ロボイドの成長過程と異なっている.以上、室温から 1000℃までの過程と、それ以上の過程の2つの過程に おいて起きている現象を明らかにしなければならない. もし、高温側を空孔の移動集合によるマイクロボイド 形成とすると、低温側は格子間原子の移動集合を考え なければならない.この場合、ループ状の欠陥と考え なければならないので,寿命が330 psec まで伸びる ことを説明できるかどうかが問題である.格子間原子 の移動は低温(Ic: 45-65K)において生じることは Iwata et al.[®] によって報告されている. 現在のとこ ろ, 高温側を空孔, 低温側を格子間原子の移動集合と いう可能性の方が高いと考えられるが、これを確かめ るには焼鈍過程における角相関測定を行う必要がある. これに関しては寿命計算も含めて今後の問題である.

謝辞

角相関測定において多大の援助を頂きました東北大 学金属材料研究所の長谷川助教授に心より感謝致しま す.

参考文献

- 田辺哲朗,丸山忠司,プラズマ・核融合学会誌,第69巻, 第5号(1993)415.
- 2) 高津英幸, 奥達男, 炭素, 第135巻 (1988) 286.
- E. Kuramoto, M. Takenaka, M. Hasegawa and T. Tanabe, J. Nucl. Mat., 179-181 (1991) 202.
- 截元英一, 佃 昇, 竹中 稔, 長谷川雅幸, 田辺哲朗, 九州大学総合理工学研究科報告, 第13卷, 第11号 (1991)
 23.
- 5) M. Shimotomai, T. Takahashi, M. Doyama and T. Iwata, Proc. 6th Int. Conf. on Positron Annihilation, Arlington (1982) 607.
- T. Iwata, T. Nihira and H. Matsuo, J. Phys. Soc. Japan, 33 (1972) 1060.