

## 転位線が存在するNi中の空孔集合過程の陽電子をプローブとした研究

大村, 雅一  
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

竹中, 稔  
九州大学応用力学研究所

大沢, 一人  
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

他

<https://doi.org/10.15017/17471>

---

出版情報：九州大学大学院総合理工学報告. 20 (3), pp.275-279, 1998-12-01. 九州大学大学院総合理工学研究科  
バージョン：  
権利関係：

# 転位線が存在する Ni 中の空孔集合過程の 陽電子をプローブとした研究

大村 雅一\*・竹中 稔\*\*・大沢 一人\*\*  
安部 博信\*\*・蔵元 英一\*\*

(平成10年8月28日受理)

## Positron Annihilation Study of Vacancy Clusters in Ni with Dislocation Lines

Masakazu OHMURA\*, Minoru TAKENAKA\*\*, Kazuhito OHSAWA\*\*,  
Hironobu ABE\*\* and Eiichi KURAMOTO\*\*

Although the positron lifetime depends on the defect status in the solids, many features on the intermediate lifetime between matrix and a single vacancy are left unknown in various crystals. One example of such defects is a collapsed type vacancy cluster like a stacking fault tetrahedron (SFT), and in the present study attempts have been performed to clarify these aspects in Ni. Positron lifetime calculations were carried out for various SFTs obtained in model Ni lattice through complete relaxation process. Shorter lifetimes (130psec - 150psec) than a single vacancy was obtained for the SFTs which have larger sizes than  $V_{15}$ . In these SFTs which have larger sizes than  $V_{15}$ . In these SFTs the positron trapping occurs at four corners of SFTs and positrons are not trapped at six stair-rod dislocations. Comparison with the experimental result obtained after low temperature electron irradiation for Ni and deformed Ni was made and a good agreement was obtained.

固体中の陽電子の寿命は固体内の欠陥の状態に敏感に依存しているが、マトリックスと単一原子空孔の間のいわゆる中間寿命を示す欠陥、例えば潰れた形態を有する空孔集合体、転位などについてこれまでに不明な点が多く、本研究ではこの点に関して実験、計算両面から集中的に研究が行われた。マイクロボイドのように単一原子空孔における陽電子の寿命を超えて増加する場合と異なり、これらの欠陥においては比較的短い寿命を示すため実験結果を解釈するためには詳細な計算が必要である。Ni 中の積層欠陥四面体 (SFT: stacking fault tetrahedra)、転位あるいはその複合体などに関して寿命計算と実験が行われ、130psec-150psec の比較的短い値を示すことが明らかになった。また SFT に陽電子がトラップされる際、6本の稜を構成している stair-rod dislocation ではなく、4つの頂点にトラップされていることが明らかになった。これらの計算結果を低温電子線照射後の陽電子消滅寿命測定結果と比較し良い一致を得た。

### 1. 序

陽電子は結晶中に侵入すると欠陥、特に空孔タイプの欠陥にトラップされて消滅し、一般にマトリックスよりも長い寿命を示すので、陽電子消滅測定法は欠陥

の同定の有効な手段として近年広く用いられてきた。この際基本となるのはマトリックスにおける寿命と単一原子空孔における寿命である。一般に金属においてはこの2つの差は明確に区別可能である。たとえば Fe ではマトリックスは110psec、単一原子空孔では175psec である<sup>1-5)</sup>。他の欠陥あるいは欠陥集合体における陽電子の寿命は原子空孔よりも上あるいは下である。長いものはマイクロボイドのように空体積が大きいもので、潰れた形態を有する空孔集合体、転位などは原子空孔と同程度とこれまで考えられてきたが、最近この点に関する詳しい研究がすすみ、かなり短い値をとることが次第に明らかになってきた。その最大の理由は、変形で導入された欠陥はある程度の温度で焼鈍した後は転位線のみであると考えてきたが、実際には変形で発生した原子空孔は転位線上で複合体を形成し簡単には消滅していないことによる。また空孔集合体、たとえば積層欠陥四面体などの構造に関する詳しいシミュレーションが十分行われていなかったことも正しい判断を難しくしていた。最近電子論の進歩により原子間ポテンシャルの精度も向上し、それとともに計算機の能力が飛躍的に進歩したため、かなり複雑な欠陥集合体のシミュレーションも可能になってきた。このようにして決定された欠陥構造に対して、陽電子の寿命計算が可能になってきたため、ようやく実験と計算の比較が可能な段階に達したといえる。陽電子寿命の

\*総合理工学研究科高エネルギー物質科学専攻修士課程 (現: 日立電線) \*\*応用力学研究所

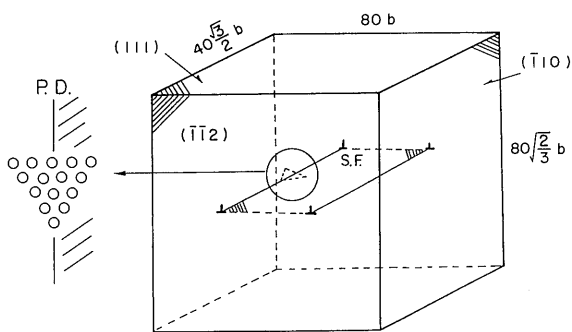


Fig. 1 Model Ni lattice for the determination of defect structures.

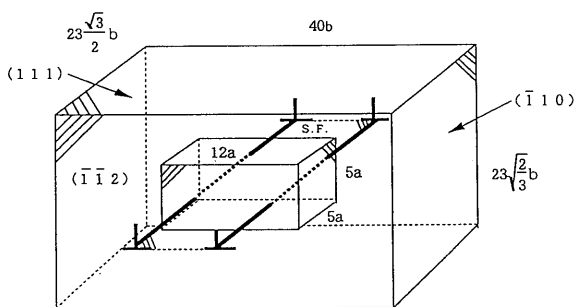


Fig. 2 Region for the determination of positron wavefunction.

計算は最近では s, p 電子系物質では第一原理計算によっても行われてきているが, Fe や Ni などの s, p, d 電子系物質のしかも転位のような extended defect では依然として困難である. したがって原子重ね合わせ法のような近似法が用いられている. 本研究では Ni 中の積層欠陥四面体 (SFT: stacking fault tetrahedra), 転位線あるいはそれらの複合体などの構造を決定し, そこにおける陽電子寿命をもとめ低温照射実験結果との比較を試みる<sup>4-7)</sup>.

## 2. 計算方法

欠陥構造を決定するために近年よく用いられている EAM (embedded atom method) タイプのポテンシャルを用いた. 用いたモデル結晶は Fig. 1 に示すように固定境界条件が問題にならないように十分な大きさを保証するものである. 静的方法にて十分な緩和を行い得られた欠陥の安定構造に対して陽電子の寿命を計算する. 本来は欠陥と陽電子を同時に含んだ結晶の緩和を行うべきであるが, そのためには第一原理計算を行わなければならない. しかし現時点では Ni の大きな結晶について行うのは困難である. 従って empirical potential を用いて格子緩和と陽電子寿命計算の 2 段階に分けて計算を行わざるを得ない現状である<sup>10)</sup>. 寿命計算は陽電子に対するシュレーディンガー方程式を解くことが中心になるが, 陽電子の感じるポテンシ

ルの項でクーロン項以外の相関ポテンシャルの部分の問題になる. 陽電子は単独で存在するので交換項は考えなくても良い. 相関ポテンシャルの項は LDA (local density approximation) に基づいた表式を用いている<sup>8,9)</sup>.

Ni 中の拡張した刃状転位における陽電子寿命計算に用いた結晶のサイズを図 2 に示す. 陽電子の波動関数を計算するには単位胞の一边を 10 等分して, 1000 個のメッシュに分割するためあまり大きな領域では計算が難しく Fig. 2 の中心部程度の大きさに対して行う. この部分に陽電子の感じるポテンシャルを構築するためにその外側の領域が必要になる. 基底状態の陽電子の波動関数, すなわち陽電子密度が求まれば電子密度との積から消滅速度が得られ, その逆数から陽電子の寿命が得られる. 消滅速度を求める際に相関効果に起因する enhancement factor を乗じなければならないが d 電子に対するこの値は計算が困難なので, パラメータ化して Ni のマトリックスの寿命 110psec が得られるように決定した.

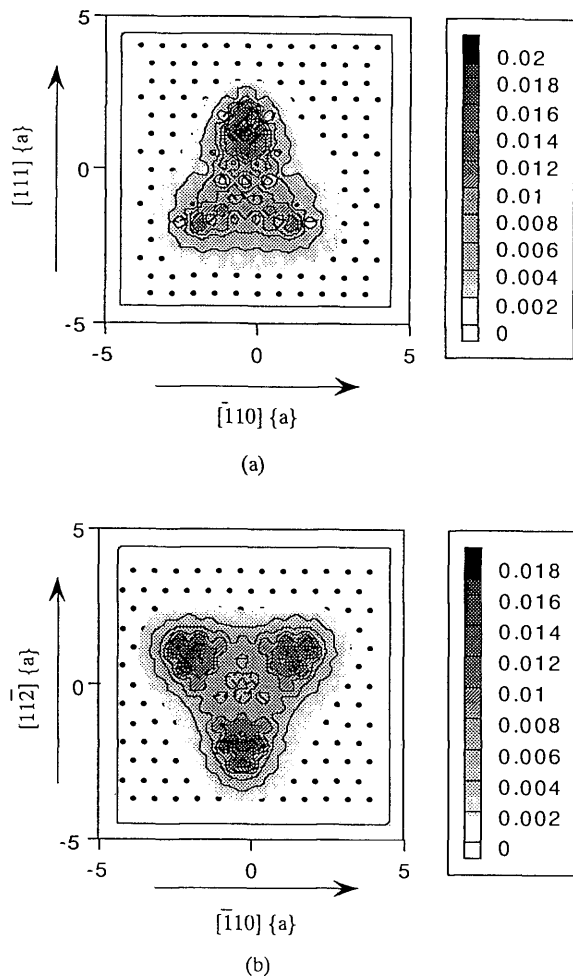
## 3. 計算結果と考察

### 3.1 転位線上に並んだ原子空孔

Ni 中の刃状転位は拡張しており, 転位線と原子空孔が共存している場合には, 原子空孔は一本の部分転位の上に並ぶ場合と部分転位の上で 2 次元集合体を形成する場合の両方が考えられる. 一列に並ぶ場合を考えてみると並ぶ数がある個数以上になるとつぶれてジョグになる結果が得られた. 静的な計算であるのでつぶれていない構造 (open structure) とつぶれた構造 (collapsed structure) のエネルギーを比較して安定構造を決定しなければならない. 動的計算を行うことが将来望まれる. 静的な比較から並ぶ原子空孔が 8 個を越すと collapsed structure の方が安定であることが判明した. この場合には拡張転位のジョグに変換することになる. 問題は陽電子の寿命で open structure の場合には単一原子空孔程度の値を示すが, つぶれてジョグになるとマトリックスに近い短い値になる. 中間の陽電子寿命は見られない. したがって中間寿命はこの配置からは得られず 2 次元集合体などから得られると考えられる.

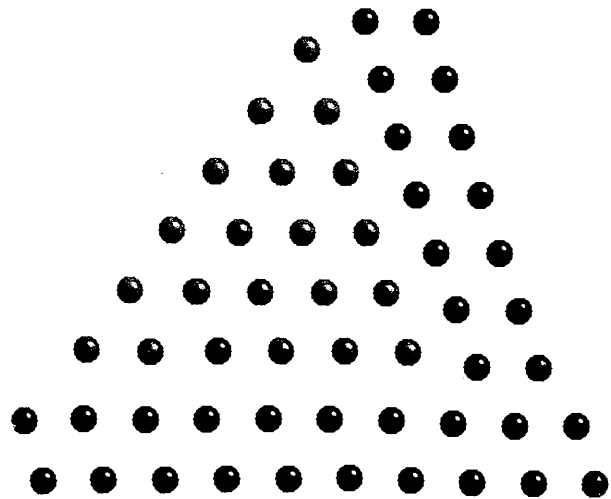
### 3.2 積層欠陥四面体

マトリックス中と部分転位線上の積層欠陥四面体の場合を詳しく調べてみる. {111} 面上に 3 角形に原子空孔を配置し十分緩和すると空孔数がある値を超すとつぶれた形態, すなわち積層欠陥四面体の方が安定になることが明らかになった. それに伴って陽電子寿命も大きく減少し, 130psec-150psec の中間寿命が出現する. 部分転位線上の積層欠陥四面体の場合  $V_{15}$  か

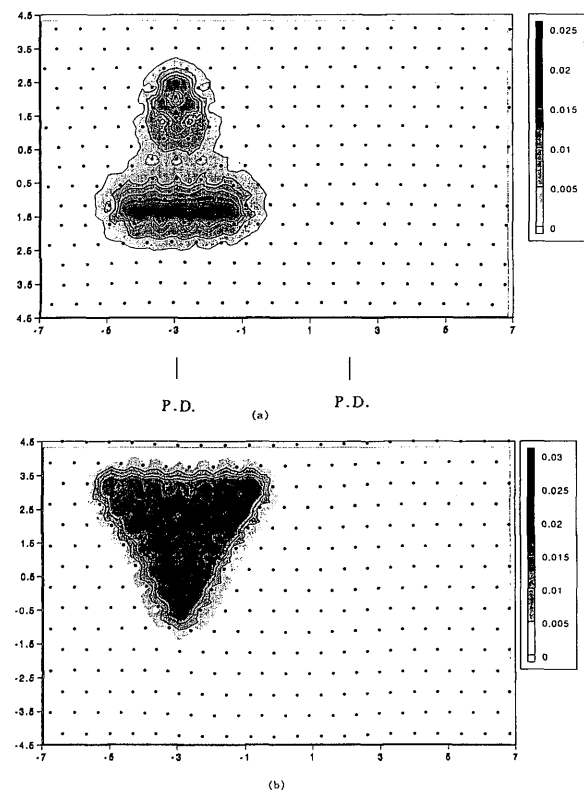


**Fig. 3** Wavefunction of a positron trapped in SFT ( $V_{28}$ ) in Ni matrix, (a) front view ( $\{112\}$  cross section), and (b) top view ( $\{111\}$  cross section).

ら、またマトリックス中の積層欠陥四面体の場合  $V_{28}$  から中間寿命を与える。これらの中間寿命を示す場合に陽電子は積層欠陥四面体のどの位置で消滅しているかを調べることは非常に重要である。Fig. 3 にマトリックス中の積層欠陥四面体  $V_{28}$  にトラップされた陽電子の波動関数の様子を示す。これから分かるように陽電子は積層欠陥四面体の4つの頂点に主に局在していることが分かる。この結果はこれまで陽電子は積層欠陥四面体の6つの稜線を構成する6本の stair-rod dislocation にトラップされると考えられていたことと対照的である<sup>11)</sup>。その理由を調べるために stair-rod dislocation の垂直断面上の原子配列を Fig. 4 に示す。この転位の Burgers vector は  $b/3$  と小さいこともあり、あまり隙間がないことが分かる。したがって陽電子の強いトラップサイトにはなり得ない。Fig. 5 に部分転位線上の積層欠陥四面体  $V_{28}$  にトラップされた陽電子の波動関数の様子を示す。マトリックス中の場合と少し異なり、転位の周辺の歪みのために積層欠陥四面体の対称性が崩れていることに起因して、波動



**Fig. 4** Atomic configuration on a vertical plane to one of the six stair-rod dislocations connecting neighboring two corners of a SFT in Ni.



**Fig. 5** Wavefunction of a positron trapped in SFT ( $V_{28}$ ) on a partial dislocation of an extended edge dislocation in Ni, (a) front view ( $\{112\}$  cross section), and (b) top view ( $\{111\}$  cross section)

関数がすべり面  $\{111\}$  から遠い頂点とそれに対置する底面に多く局在していることが分かる。陽電子により欠陥を同定する際に重要なことは、陽電子の寿命と もう一つ基底状態のエネルギー、言い換えれば結合エネルギー (binding energy) である。この値が小さい場合には陽電子寿命の低温測定が不可欠である。積層欠陥四面体の場合は単一原子空孔の場合よりは小さい

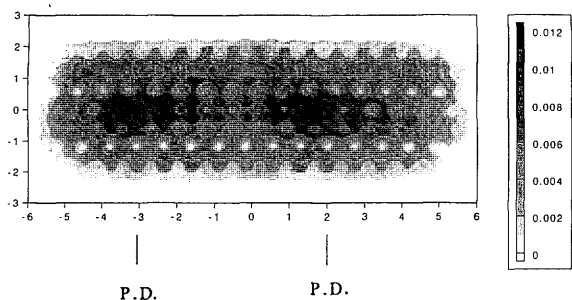


Fig. 6. Wavefunction of a positron trapped at an extended edge dislocation in Ni.

Lifetime and Binding Energy for a Positron in Ni

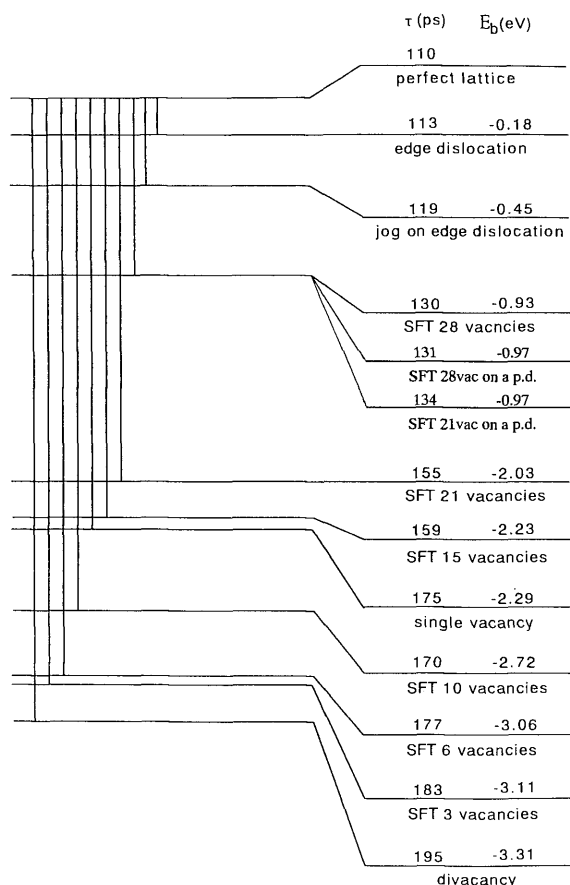


Fig. 7 Results of positron lifetime calculation at various defects in Ni.

が 1eV 程度の値を示し、室温でも観測にかかると考えられる。

3.3 転位, ジョグなど

拡張した刃状転位にトラップされた陽電子の波動関数の広がりを Fig. 6 に示す。比較のために部分転位線上の単一原子空孔の場合も示す。陽電子は拡張転位線全体に広がってトラップされているが、原子空孔の場合は局在していることが分かる。陽電子寿命は 113psec と非常に短くマトリックスとあまり差がない。

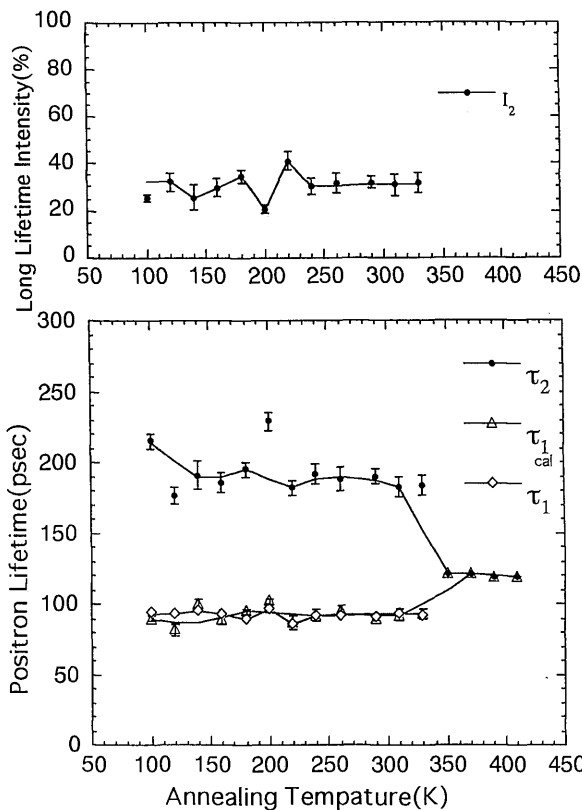


Fig. 8 Isochronal annealing experiment due to positron annihilation lifetime measurement for Ni irradiated by 2.5MeV electrons to a dose of  $1 \times 10^{18} \text{e/cm}^2$  at 77K.

したがって結合エネルギーも非常に小さく低温でないトラップの様子が観察されないことになる。この点は転位線は原子空孔と同等の強さ、陽電子寿命をもつトラッピングセンターであるとしてきた従来の考えと非常に大きく異なる点である。原因は変形後の実験から転位線における陽電子のトラッピングの挙動が得られたと考えてきた点にあり、原子空孔等が残存しているために分離が不十分であったことを再考慮しなければならない。ジョグの場合も非常に短い寿命を与えている。これらをまとめて Fig. 7 に示す。

4. 電子線照射実験

低温電子線照射 ( $2.5\text{MeV} \cdot 1 \times 10^{18} \text{e/cm}^2$ , 77K) した Ni に対して陽電子消滅寿命測定法により等時焼鈍回復実験を行った結果を Fig. 8 に示す。低温では単一原子空孔に対応する値を示しているが、室温付近で空孔の移動開始とともに変化している様子が分かる。すなわち積層欠陥四面体等の空孔集合体を形成して陽電子寿命の減少が見られる。空孔の転位線への移動の様子を調べるために、室温で 5% 変形した後 800K で 20 分焼鈍して変形で導入された空孔を除去した後、低温電子線照射した試料に対して同様の実験を行った結果

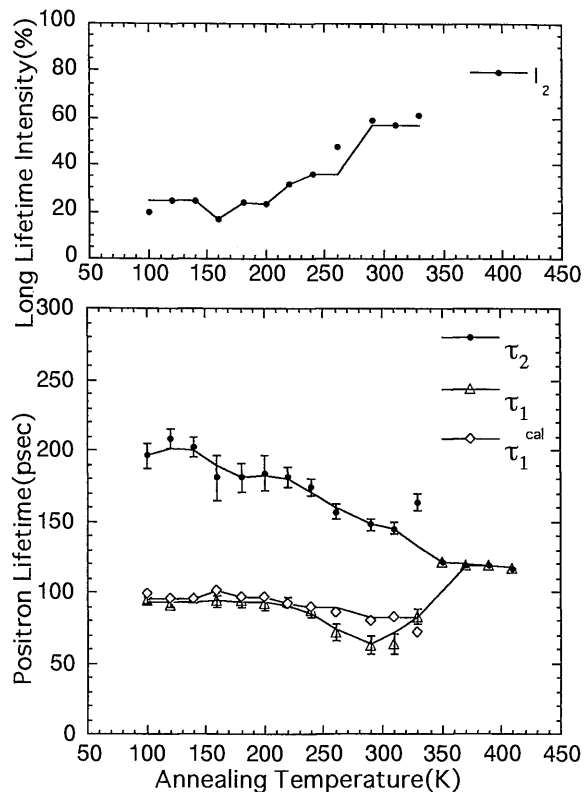


Fig. 9 Isochronal annealing experiment due to positron annihilation lifetime measurement for Ni 5% deformed at room temperature (with 800K annealing for 20 min) and irradiated by 2.5 MeV electrons to a dose of  $1 \times 10^{18} \text{e}/\text{cm}^2$  at 77K.

を Fig. 9 に示す。転位を導入していない場合に比べて低い温度から変化が生じていることが分かる。このことは転位線近傍に形成された原子空孔が比較的低温域で短距離の移動を行い転位線上に集合体を形成したためと考えられる。130-150 psec の寿命を示していることから、上述の計算の中の積層欠陥四面体に対応するものと考えられるが、今後さらに詳しい研究が必要である。

## 5. ま と め

Ni 中の原子空孔およびその集合体、特に積層欠陥四面体に対する陽電子寿命計算を行い、単一原子空孔

に対する値よりも短い値が得られることを示した。陽電子は積層欠陥四面体の4つの頂点に捕獲され6本の stair-rod dislocation には捕獲されないことを示した。拡張した刃状転位線上の積層欠陥四面体の場合にも同様の計算を行い転位の周囲の歪み場によって対称性が崩れるもののやはり短い寿命が得られることを示した。低温電子線照射した Ni 試料および変形によって転位を導入した後同様の電子線照射をした Ni 試料の陽電子消滅寿命測定結果から、これらの計算結果を裏付ける実験結果が得られた。

## 6. 謝 辞

低温電子線照射において日本原子力研究所高崎研究所の2号加速器のスタッフの方々にご多大お世話になりました。深く感謝の意を表します。

## 参 考 文 献

- 1) P. Hautojärvi, 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.
- 2) E. Kuramoto, S. Nagano, K. Nishi, K. Makii, Y. Aono and M. Takenaka, Mat. Sci. Forum 105-110 (1992) 1125.
- 3) Y. Kamimura, T. Tsutsumi and E. Kuramoto, Phys. Rev. B52 (1995) 879. (erratum: Phys. Rev. B54 (1996) 12595).
- 4) E. Kuramoto, H. Abe, M. Takenaka, F. Hori, Y. Kamimura, M. Kimura and K. Ueno, J. Nucl. Mat. 239 (1996) 54.
- 5) 蔵元英一, まてりあ, 第35巻, 第2号 (1995) 110.
- 6) K. Ueno, M. Ohmura, M. Kimura, Y. Kamimura, M. Takenaka, T. Tsutsumi, K. Ohsawa, H. Abe and E. Kuramoto, Mat. Sci. Forum, 255-257 (1997) 430.
- 7) T. Nguy, C. Corbel, A. Barbu and P. Moser, Mat. Sci. Forum 15-18 (1987) 675.
- 8) M.J. Puska and R.M. Nieminen, J. Phys. F 13 (1983) 333.
- 9) E. Boronski and R.M. Nieminen, Phys. Rev. B346 (1986) 3820.
- 10) F. Gao, D. I. Bacon and G. I. Ackland, Phil. Mag. A 67 (1993) 275.
- 11) Y. Shirai, K. Matsumoto, G. Kawaguchi and M. Yamaguchi, Mat. Sci. Forum 105-110 (1992) 1225.