

グラファイト中の欠陥の陽電子消滅測定

蔵元, 英一
九州大学応用力学研究所 : 教授

竹中, 稔
九州大学応用力学研究 : 文部技官

長谷川, 雅幸
東北大学東北大学金属材料研究所 : 助教授

<https://doi.org/10.15017/4743900>

出版情報 : 応用力学研究所所報. 68, pp.279-285, 1989-10. 九州大学応用力学研究所
バージョン :
権利関係 :



グラファイト中の欠陥の陽電子消滅測定

蔵 元 英 一[†] 竹 中 稔^{††}
長谷川 雅 幸^{†††}

概 要

各種グラファイトについて陽電子消滅寿命測定を行い構造との関連を調べた。又一部 γ - γ 角相関測定や照射効果についても調べた。その結果高配向性グラファイト (HOPG) が最も寿命が短かく (~ 220 psec), 等方性黒鉛 (~ 360 psec), ガラス状黒鉛 (~ 400 psec) の順に長くなっていることがわかった。又炭素繊維そのものは約 375 psec 程度であった。HOPG の C 軸に平行方向に測定した γ - γ 角相関曲線には $\theta \sim \pm 3$ mrad 付近にピークが存在しているが、電子線照射により次第に消滅していくことがわかった。照射で HOPG 中に導入された原子空孔中に陽電子がトラップされ寿命が伸びることが観察された。

Key words: Graphites, HOPG, Isotropic graphite, Glassy carbon, Positron annihilation lifetime measurement, γ - γ angular correlation curve, Electron irradiation, Vacancy

1. 序

近年、核融合炉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。原子番号が低く (いわゆる低 z 材) 高温における諸特性がすぐれていることがその理由である¹⁾。しかしプラズマ粒子である水素がグラファイトに吸着され又脱着されるためプラズマ閉じ込めに悪影響を及ぼすことは重大な問題である。この現象を理解するためには水素のトラップサイトになる試料中の微視的構造についての情報を得る必要がある。本稿では各種グラファイトについて陽電子消滅測定を行った結果について述べる。陽電子は物質中の空孔タイプの欠陥の検出効率が高いことはこれまでの長い研究で実証されてきている。ここでは主として寿命測定を行うが γ - γ 角相関測定も一部行う。又電子線照射で欠陥を導入しそれについての測定も一部行う。

[†] 九州大学教授, 応用力学研究所

^{††} 文部技官, 九州大学応用力学研究所

^{†††} 東北大学助教授, 東北大学金属材料研究所

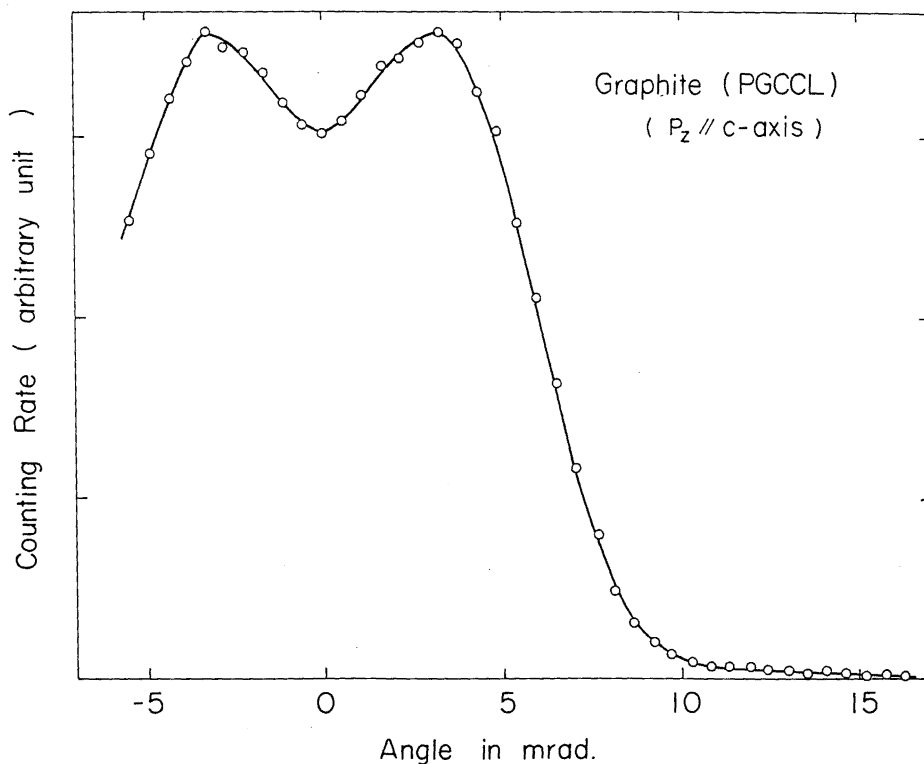


図1 HOPG型グラファイトの1つPGCCLの陽電子消滅角相関曲線($P_z \parallel c\text{-軸}$)

2. 実験

各種グラファイト試片(大きさ約 $10\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 1\text{ mm}^3$) 2枚ずつ用意し陽電子線源をはさんで寿命測定を行った。線源は薄いマイラー($3.6\text{ }\mu\text{m}$)に $^{22}\text{NaCl}$ をはさんだものを用いた。約 $10\text{ }\mu\text{Ci}$ である。ORTECシステムで組んだFAST-SLOW COINCIDENCE回路で分解能は約 235 psec である。一つの寿命スペクトルの全カウント数は $\sim 1.3 \times 10^6$ 程度である。デンマークのRisø国立研究所のEldrup等²⁾によって開発された'Resolution'プログラムを用いて二成分解析された。 $\gamma\text{-}\gamma$ 角相関測定は東北大金研大洗施設にて ^{64}Cu 陽電子線源($\sim 1.5\text{ Ci}$)を用いて行われた。又電子線照射は日本原子力研究所高崎研究所二号加速器(2.5 MeV , 77 K , $1 \times 10^{18}\text{ e/cm}^2$)にて行われた。

3. 結果および考察

図1に高配向性グラファイト (highly oriented pyrolytic graphite; HOPG) の1つであるPGCCLのC軸に平行に測定した $\gamma\text{-}\gamma$ 角相関曲線を示す。 θ が $\pm 3\text{ mrad}$ 付近にピークが見られることが特徴である。これはグラファイトの底面を形成している原子面間の結合にあずかっている π 電子からの寄与と考えられる。すなわち底面に垂直方向への運動量成分が多いために $\theta = 0$ からずれたところに $\gamma\text{-}\gamma$ 角相

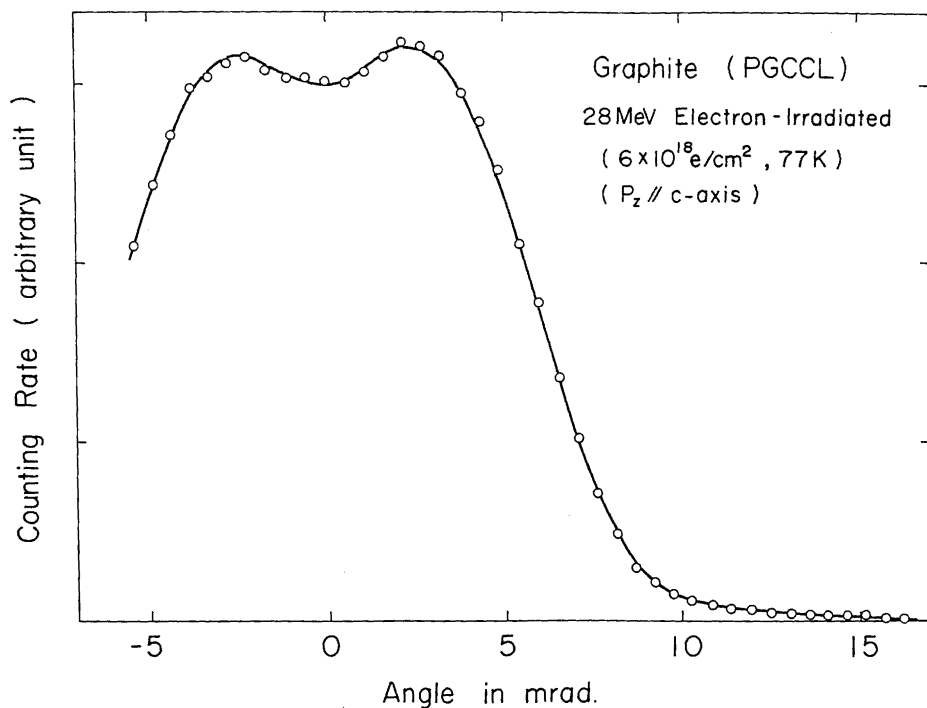


図2 電子線照射 (KURRI-LINAC 28 MeV, 77 K, $6 \times 10^{18} \text{ e/cm}^2$) された PGCCL の陽電子消滅角相関曲線 ($P_z \parallel c$ -軸)

関のピークが存在すると考えられる。この PGCCL に電子線照射 (28 MeV, 77 K, $6 \times 10^{18} \text{ e/cm}^2$) を行ってもう一度角相関測定を行った結果を図2に示す。非照射材に比べて二つのピークがあまり顕著でなくなっている。これは電子線照射で導入された原子空孔に陽電子の一部がトラップされそこで消滅するためである。すなわち原子空孔サイトには π 電子が存在しないと考えられるからである。

図3に HOPG 型グラファイトについての陽電子消滅寿命スペクトルを示す。PGCCL も同種のグラファイトである (HOPG…ユニオン・カーバイト社, PGCCL…ル・カーボン社)。2.5 MeV 電子線照射は原研高崎研2号加速器 (ダイナミトン) にて 77 K で $1 \times 10^{18} \text{ e/cm}^2$ まで行われた。又 28 MeV 電子線照射は京大原子炉ライナックにて 77 K で $6 \times 10^{18} \text{ e/cm}^2$ まで行われた。図4に各種等方性黒鉛の陽電子消滅寿命スペクトルを示す (ISO880, IG110…東洋炭素, ETP10…イビデン, HCB18S…日立化成)。図3に比べて傾斜が緩く、すなわち寿命が長くなっていることがわかる。図5に各種ガラス状カーボンの陽電子消滅寿命スペクトルを示す (GC-30…東海カーボン, SG シリーズ…昭和電工)。図4よりもさらに寿命が長くなっていることがわかる。図6に炭素繊維の陽電子消滅寿命スペクトルを示す。炭素繊維はピッチ系で線径約 $10 \mu\text{m}$ であり多数本束にして測定した。

表1に寿命解析の結果を示す。平均寿命 τ_m のみを示している。HOPG 型グラファイトが最も短い寿命を示し 210-225 psec 程度である。電子線照射により導入された原子空孔に陽電子がトラップされると

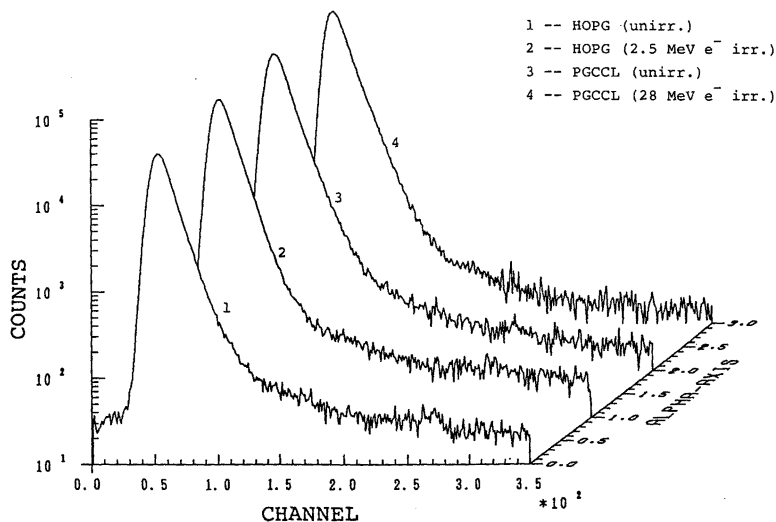


図3 HOPG型グラファイトの陽電子消滅寿命スペクトル

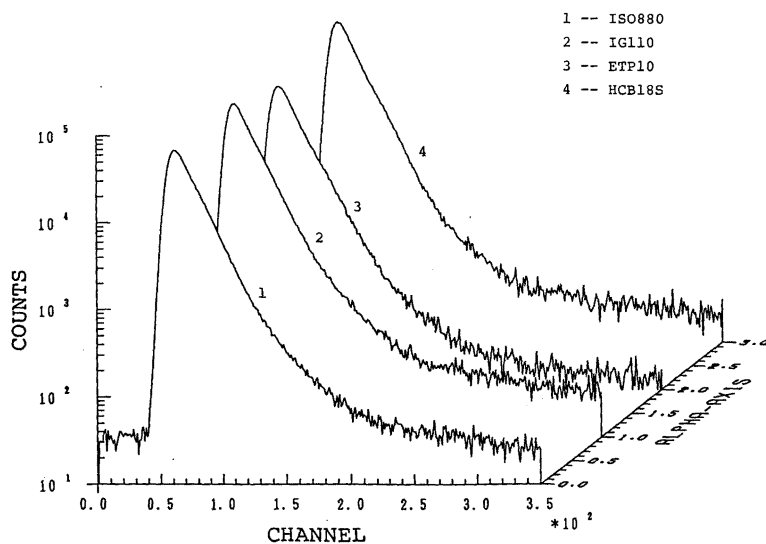


図4 各種等方性黒鉛の陽電子消滅寿命スペクトル

寿命が長くなることがわかる。下斗米等³⁾によると HOPG 中の原子空孔サイトにおける陽電子の寿命は 245 psec 程度になっている。マトリックスの寿命と近いために 'Resolution' プログラムで二成分に分れない。照射量を上げて saturation の状態に持っていけば原子空孔における寿命がわかる筈であるが今後の課題である。等方性黒鉛は ~360 psec 程度の寿命を示しているがこれは粒界における陽電子寿命と考えられる。かなり隙間があるために長くなっていると考えられる。すなわち二次元乱層構造を含むため

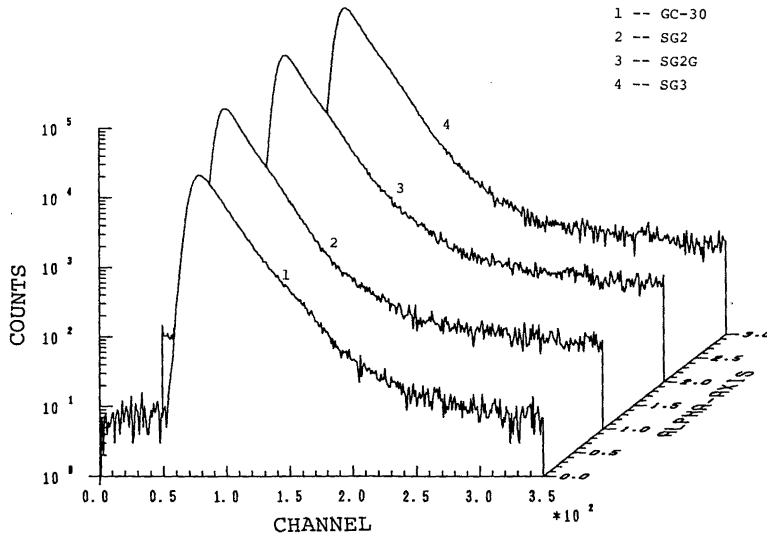


図5 各種ガラス状黒鉛の陽電子消滅寿命スペクトル

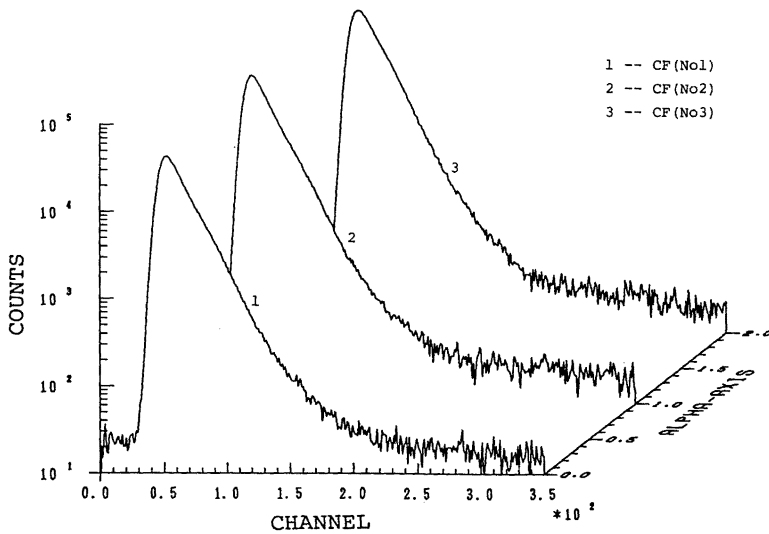


図6 炭素繊維の陽電子消滅寿命スペクトル

層間の隙間が存在しそこにおける寿命と考えられる。ガラス状カーボンではさらに寿命が長くなり GC-30 では 434.3 psec に達している。表面における寿命は bulk 中の約 2 倍であるという理論的計算もある⁴⁾ ガラス状カーボンの場合には内部表面での陽電子の消滅寿命と考えられる。炭素繊維の場合はマトリックスは易黒鉛化性炭素であるのでおそらく図 4 の等方性黒鉛と同程度か少し短か目の寿命を示す筈である。従って得られた値は bulk と表面の平均値と考えられる。二成分分離を試みているがまだ

表1 各種グラファイトの陽電子消滅寿命
Graphite Positron Annihilation Lifetime

Graphite	τ_m (psec)
HOPG (unirr)	210.5
HOPG (2.5 MeV e irr)	218.9
PGCCL (unirr)	225.9
PGCCL (28 MeV e irr)	233.3
ISO880	359.3
IG110	364.5
ETP10	367.4
HCB18S	359.1
GC-30	434.3
SG2	387.8
SG2G	408.9
SG3	390.8
CF (NO 1)	382.1
CF (NO 2)	375.1
CF (NO 3)	361.1

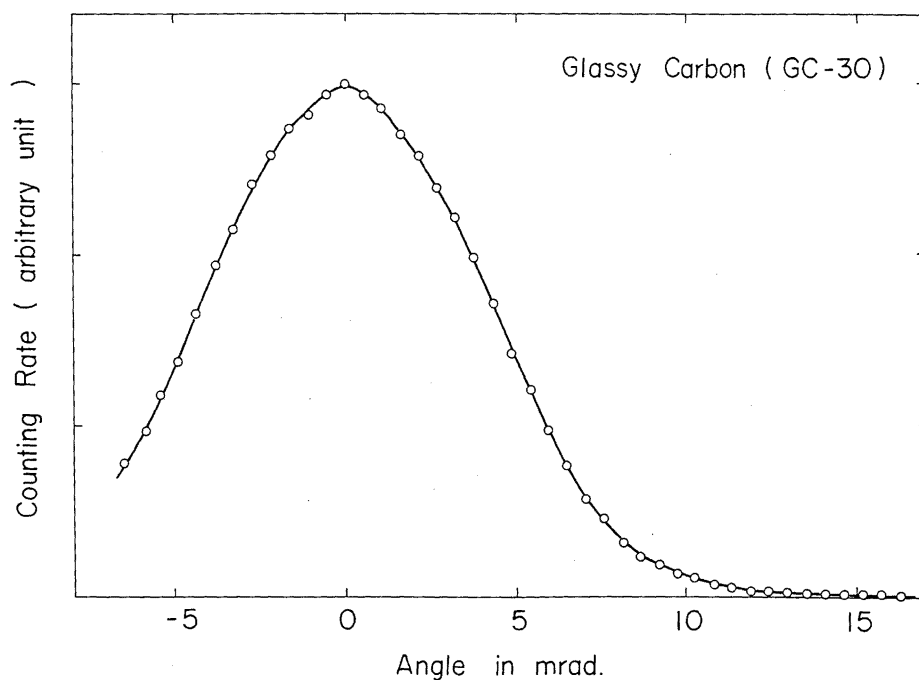


図7 ガラス状黒鉛 GC-30 の陽電子消滅寿命スペクトル

成功していない。

グラファイトの表面ではポジトロニウムが形成されているという報告もあるので⁵⁾，内部表面が多い

と考えられるガラス状カーボンで γ - γ 角相関測定を行った。その結果を図 7 に示すがポジトロニウム (P_s) 形成を示す narrow component は現われなかった。すなわち P_s を形成するほど大きな隙間ではないと考えられる。

今後、さらに照射実験を続ける予定である。又ガスの吸収の影響について調べていく予定である。

謝 辞

グラファイト試料の一部を提供していただきました大阪大学工学部田辺氏、九大総理工院生亀崎君、九大応力研吉田教授、および出光興産中研志熊氏、竹下氏に深く謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) 高津英幸, 奥 達雄, 炭素 No. 135 (1988) 286.
- 2) P. Kirkegaard, M. Eldrup, O. E. Mogensen and N. J. Pedersen, Computer Physics Communications, **23** (1981) 307.
- 3) M. Shimotomai, T. Takahashi, M. Doyama and T. Iwata, 'Positron Annihilation,' P. G. Coleman, S. C. Sharma, L. M. Diana (eds.), North-Holland Publishing Company, (1982) 635.
- 4) R. Paulin, R. Ripon and W. Brandt, Appl. Phys., **4** (1974) 343.

(平成元年 5 月 31 日 受理)