

■ 金属のイオン照射損傷における電子励起効果

極低温放射線物性研究グループ ■ 岩 田 忠 夫 ■

Effects of Electron Excitation on Radiation Damage in FCC Metals

Tadao IWATA

Research Group for Low-Temperature Radiation Effects in Solids

It has been assumed for a long time that radiation damage in metals is due to elastic atomic collisions and effects of electron excitation are negligible in it. For irradiation of various heavy ions of ~ 100 MeV, however, we have found that an enormous radiation annealing of previously-produced interstitials and vacancies during subsequent irradiation occurs in Ni and Pt, where the effect of electron excitation is overwhelmingly larger than that of atomic collisions; while the effect of electron excitation is less important in Cu and Ag. This reflects the difference in electron-phonon interaction between the two groups.

1. はじめに

原子炉，核融合炉，粒子加速器，宇宙環境などにおいて用いられる固体材料は高エネルギーの中性子，各種のイオン，電子， γ 線の照射をうけて，多くの場合その性質が著しく劣化する。これを放射線損傷あるいは照射損傷という。ここでは，金属にイオンを照射したときに起こる照射損傷のうち，短時間の間に起こる電子励起および原子衝突について考える。中性子などを照射する場合も，その照射によって結晶格子点からはじき出される原子はイオンとなるから，そこから先はイオン照射の場合と同等である。

2. 電子励起と原子衝突

図1は，固体にイオンを照射したときの電子励起と原子衝突の様子を示したものである。

Niに100 MeVのIイオンを照射した場合を考えてみよう。Iイオンは，その進路に沿って連続的に電子

を励起し，そのとき電子群に与えるエネルギーは1Å当り約3 keVである。励起された電子のエネルギーは電子-電子衝突によって周囲の電子に伝播していくが，その緩和時間は 10^{-16} sのオーダーである。この電子のエネルギーは，格子原子群にも伝えられ，その電子-格子相互作用の緩和時間は 10^{-14} sのオーダーである。従って，励起された電子のエネルギーは，先ず周囲の電子系に急速に伝達され，電子系がかなり平衡に達した後に電子系から格子原子系にエネルギーが伝達され，終には熱になる，と考えられている。

100 MeV Iイオンは結晶格子点上の原子とも衝突し，エネルギーを伝達する。この原子衝突によるNiの格子原子へのエネルギー伝達は，最高86 MeVに達するが，そのエネルギー分布をみると低エネルギー伝達の確率が圧倒的に大きく，その確率は伝達されるエネルギーの2乗に逆比例する。伝達されたエネルギーがあるしきい値以上であると，その原子は格子点からはじき出される。はじき出された原子を1次はじき出し原子 (Primary Knock-on Atom, 略してPKA; 反

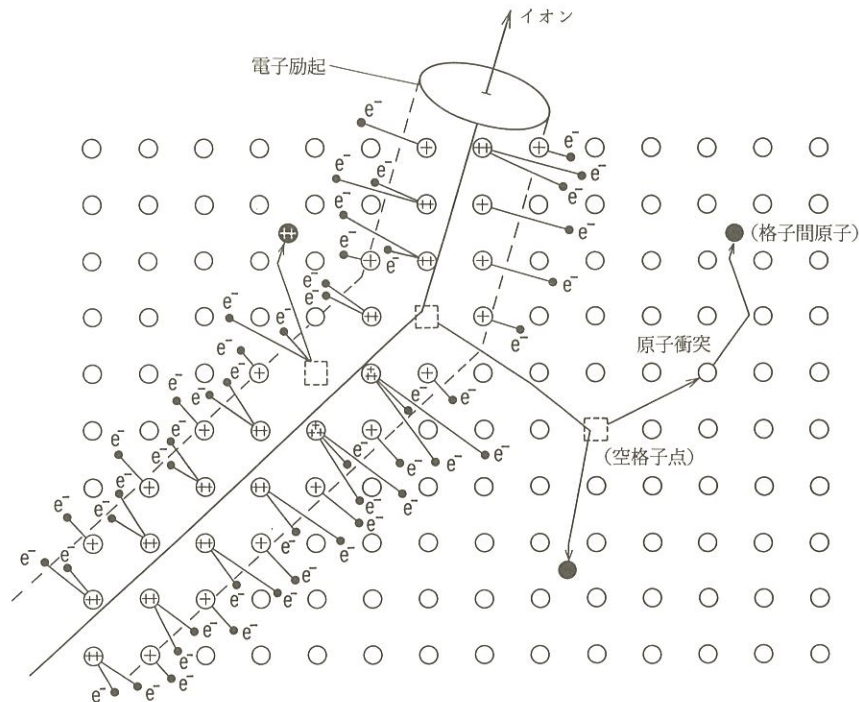


図1 固体のイオン照射における電子励起と原子衝突のモデル図。
入射イオンは、その進路に沿って連続的に高密度の電子励起を引き起こすと同時に、格子点上の原子と衝突し、その原子をはじき出す。はじき出された原子から原子衝突のカスケードが始まり、多数の格子間原子と空格子点がつくられる。

跳原子) という。この PKA から原子衝突による原子のはじき出しのカスケードが始まり、多数の格子欠陥が生成する。原子衝突により生成した PKA の平均エネルギーとして、格子欠陥生成の重みをつけたものが定義されているが、Ni に 100 MeV の I イオンを照射したときのそれは約 35 keV である。平均エネルギーが 35 keV の PKA は、そのエネルギーの一部を電子励起によって失うが、大部分は原子衝突による格子欠陥の生成に使い、結局 350 個程度の格子間原子と空格子点を生成する。この原子のはじき出しのカスケードは、一種の爆発に例えられる程のもので、はじき出された原子は単一の格子間原子として存在するものばかりでなく、2 あるいは 3 個の格子間原子の複合体になるものもある。PKA の誕生から始まる激しい原子-原子衝突は約 1×10^{-11} s 経過する間にほぼ終了し、欠陥生成が確定する。

従来、金属の照射損傷は原子衝突のみによって説明でき、電子励起の効果は無視できるとされてきた。し

かし、われわれは、FCC 金属について、タンデム加速器を利用して ~ 100 MeV 領域の重イオンによる照射損傷の実験をしているときに、予想もしていなかった大きな電子励起効果を発見した。以下、これについて述べる¹⁾。

3. 欠陥の熱アニーリング

短時間の、しかも非常に激しい固体内電子・原子衝突を真正面から実験的に分解して調べることは難しい。今のところ最も現実的な方法は、極低温で照射を行って生成した格子欠陥の移動や反応を凍結し、照射後あるいは照射を中断して、格子欠陥の種類や数を調べることである。丁度、大火災や台風の被害を、その最中ではなく鎮火後や台風通過後に、あるいは実際には不可能なことであるが火災や台風を一時停止させて、調べるようなものである。なお、ここでいう極低温とは、放射線照射による 1 ワット前後の発熱がある

場合のそれであって、一般に使われているものとは基準が異なる。多くの FCC 金属の場合には、それは 10 K 以下である。

イオン結晶や半導体では、欠陥の種類や数の測定に光吸収や電子スピン共鳴吸収がよく用いられる。一方、金属の欠陥の測定では、それに相当するものがなく、電気抵抗の増加がよく用いられる。電気抵抗の増加は、それだけでは欠陥の種類を決めることはできないが、欠陥の総数、従って原子のはじき出しの総数に比例し、また測定精度がよい点で、光吸収などより優れている。金属の欠陥の種類は、照射後の熱アニリングの測定によってある程度知ることができる。

極低温における放射線照射によって欠陥が生成し凍結されるが、照射後に温度を上昇させると、熱活性化により欠陥同士が反応し、欠陥の消滅や変態が起こる。これを熱アニリングによる回復という。FCC 金属では、通常 4 ないし 5 の温度領域において回復が起こる。この回復ステージに低温側より順に I, II, III, …と番号をつけている。電気抵抗は、照射によって増加し、熱アニリングによってもとに戻る。そして、極低温照射による抵抗増加を 100% として、それぞれの回復ステージの割合を表す。この割合は、照射粒子の種類、エネルギー及び照射量に依存する。

従来、FCC 金属の照射損傷の基礎研究では、それぞれの回復ステージと欠陥反応の同定、また欠陥の構造が主として調べられてきた。その中では、10 ~ 60 K の温度範囲で起こるステージ I 回復が最もよく研究され、そこでは単一の格子間原子が移動を始め、静止している空格子点のところで互いに再結合して消滅することが明らかにされている。即ち、ステージ I 回復の割合は、はじき出された全原子のうち単一の格子間原子として存在するものの割合を表す。格子間原子の複合体および空格子点の移動は、ステージ II より高温領域で起こる。

われわれは、FCC 金属にエネルギーの異なる各種のイオンを照射して、ステージ I 回復の割合を調べた。Ni に ~ 1 MeV の各種のイオンを照射したときのステージ I 回復の割合は、アメリカや西ドイツで既に得られていた ~ 1 MeV 電子照射と原子炉中性子照射の場合のものとともに、PKA 平均エネルギーの関数としてよく説明できた。即ち、これらの場合には原子衝突が照射損傷を支配している。しかし、Ni に ~ 100

MeV の各種のイオンを照射したときのステージ I 回復の割合は、これらのものとは全く異なり、PKA 平均エネルギーの関数としては表せなかった。そして意外にも、Ni のこれらのデータには、従来無視できるとされてきた電子励起の効果が大きく現れていることがわかった²⁾。図 2 に、Ni に各種のイオンを照射したときのステージ I 回復の割合を単位距離当りの電子励起量(電子的阻止能)の関数として示す。エネルギーが ~ 1 MeV のイオンの場合も、~ 100 MeV のイオンの場合も、1 つの曲線の上にきれいに乗っていることがわかる。これは何を意味するのであろうか。ステージ I 回復の割合には原子衝突の効果も含まれている筈であるが、電子に関するパラメータで全てが統一的にまとめられるということは電子励起の効果が圧倒的に大きいということの意味する。なお、図 2 ではそれぞれの照射による抵抗の増加を一定にして相互の比較を行っている。

FCC 金属の他のものについては、Pt が Ni と同様の結果を示した。しかし、Cu と Ag のステージ I 回復は、PKA 平均エネルギーの関数としてよく説明でき、電子励起の効果はほとんど無視できた。Al は、両者の中間にあった^{3,4)}。

Ni, Pt のグループと Cu, Ag のグループの相違を、周期律表で隣同士の元素である Ni と Cu について考えてみる。両者は、同一のイオン照射によって引き起

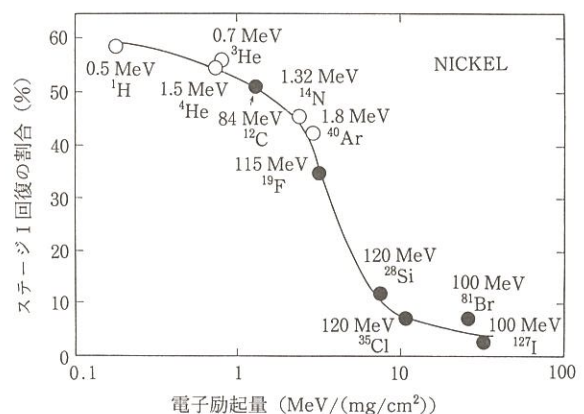


図 2 Ni のステージ I 回復の割合の電子励起量(電子的阻止能)依存性。

白丸は 1 MeV 付近の軽および重イオン照射後に、黒丸は 100 MeV 付近の重イオン照射後に測定したもの。これらが同一曲線に乗るということは原子衝突が無視できる、つまり電子励起の効果が圧倒的に大きいことを示している。

こされる電子励起と原子衝突のそれぞれの過程はほぼ同じである。重要な相違は、Niにおける電子-格子相互作用がCuにおけるそれよりも強いことである。このことは、d電子構造の相違、即ち、Niのフェルミ準位における電子状態密度がCuのそれの約10倍であることと密接に関係している。Niにおいては、電子励起によって電子系に与えられたエネルギーがこの強い電子-格子相互作用を通じて格子原子に効率よく伝達され、激しい格子原子のアジテーションによりステージI欠陥（即ち、ステージI領域の熱アニーリングによって消滅する単一の格子間原子と空格子点）の照射アニーリングを引き起こしたと推定される。ここで、照射アニーリングとは、先に生成している欠陥が後からの照射粒子によって消滅することをいう。つまり、電子励起効果で、それ以前につくられていた格子欠陥が消されるために、照射後にステージI回復を調べても、もう残り少なく、これがステージI回復の異常減少となって現れたのである。

4. 欠陥生成と照射アニーリング

ステージI回復は、100 MeV 付近の重イオン照射損傷を調べる最初の測定量としては適当であったが、原子衝突や電子励起に関しては間接的な情報しか与えない。より直接的な情報は、欠陥生成率の測定から得られる^{5,6)}。ステージI回復の測定は、火災の鎮火後あるいは台風通過後にその被害を調べるようなものである。それに対して、欠陥生成率の測定は、なんらかの方法で火災や台風をしばしば一時停止させ、その被害を刻々調べることに相当する。

簡単に、照射によるステージI欠陥の生成について考えてみよう。任意の粒子の照射に対して、ステージI欠陥の濃度を c_I 、照射量を ϕ とすると、欠陥生成率 $dc_I/d\phi$ は

$$dc_I/d\phi \approx \sigma_{d,I} - \sigma_{r,I}c_I$$

で与えられる。ここで、 $\sigma_{d,I}$ 、 $\sigma_{r,I}$ はそれぞれステージI欠陥の欠陥生成断面積、照射アニーリング断面積である。この2つの断面積がわかっているならば、任意の照射量に対して c_I が与えられる。全欠陥濃度を c とすると、 c_I/c がステージI回復の割合になる。

われわれは、FCC金属に各種のイオンを照射したときの欠陥生成率を照射量の関数として測定し、欠陥

生成断面積と照射アニーリング断面積を求めることを行っている。NiとCuに100 MeVのIイオンを照射したときのステージI欠陥に対する照射アニーリング断面積は次のようであった⁷⁾。

$$\sigma_{r,I}(\text{Ni}) = 6.5 \times 10^{-12} \text{cm}^2$$

$$\sigma_{r,I}(\text{Cu}) = 4.6 \times 10^{-13} \text{cm}^2$$

即ち、Niの照射アニーリング断面積がCuのそれより10倍も大きい。照射アニーリングには、原子衝突と電子励起の寄与があるわけであるが、この差は電子励起効果に対応する。従って、この測定値は、上述の電子-格子相互作用の強弱による説明が正しいことを定量的に裏付けるものである。

Cuに100 MeV Iイオンを照射したときのステージI欠陥の生成断面積は $\sigma_{d,I}(\text{Cu}) = 1.3 \times 10^{-16} \text{cm}^2$ であった。上の照射アニーリング断面積の約1/3500である。Niに100 MeV Iイオンを照射した場合には、照射アニーリング断面積があまりにも大きかったため、ステージI欠陥の生成断面積を精度よく求めることができなかった。

5. 今後の研究課題

最近の実験で、CuとAgの各種のイオン照射において欠陥生成がはっきりと2つの過程に分かれること、一方の欠陥生成断面積はPKA平均エネルギーの関数としてよく説明でき、原子衝突による欠陥生成であるが、他方の欠陥生成断面積は単位距離当りの電子励起量（電子的阻止能）のほぼ2乗に比例し、電子励起による欠陥生成であることが見いだされた⁸⁾。これは、照射イオンの進路に沿って電子励起によって生じた正イオン同士のクーロン反発力が欠陥生成の直接の原因になっていることを示唆する。この電子励起には、照射アニーリングに関連して前節までに述べてきた電子励起と電子-格子相互作用とは異なる側面が現れているように思われる。これは今後の研究課題の一つである。

現在、BCC金属についても~100 MeV重イオン照射における電子励起効果を調べるべく、タンデム加速器による照射実験の準備を進めている。Cr, Mo, WのグループとV, Nb, Taのグループは周期律表では隣同士であるが、d電子構造は全く異なる。少し離れたところには、同素変態を起こすFeがある。これら

の金属において電子励起効果がどのように異なるのか、特に V, Nb, Ta では常伝導状態と超伝導状態とでどのように異なるのかを明らかにしたい。

参考文献

- (1) 岩瀬彰宏, 岩田忠夫, 仁平猛:” 金属のイオン照射損傷における電子励起効果”, 日本物理学会誌 **48**, 274 (1993).
- (2) Iwase, A., Sasaki, S., Iwata, T. and Nihira, T., Phys. Rev. Lett. **58**, 2450 (1987).
- (3) Iwase, A., Iwata, T., Nihira, T. and Sasaki, S.,

Mater. Sci. Forum **97-99**, 605 (1992).

- (4) Iwase, A., Iwata, T., Nihira, T. and Sasaki, S., Rad. Effects and Defects Solids **124**, 117 (1992)
- (5) Iwata, T. and Iwase, A., Rad. Effects and Defects Solids **113**, 135 (1990).
- (6) Iwata, T. and Iwase, A., Nucl. Instr. Meth. **B61**, 436 (1991).
- (7) Iwase, A., Iwata, T., Sasaki, S. and Nihira, T., J. Phys. Soc. Jpn. **59**, 1451 (1990).
- (8) Iwase, A., Iwata, T. and Nihira, T., J. Phys. Soc. Jpn. **61**, 3878 (1992).

