

氏 名	はせがわ まさゆき 長谷川 雅 幸
授 与 学 位	工 学 博 士
学位授与年月日	昭和53年1月11日
学位授与の根拠法規	学位規則第5条第2項
最 終 学 歴	昭和43年3月 東北大学大学院工学研究科原子核工学専攻修工課程 修了
学 位 論 文 題 目	材料試験炉を利用した陽電子消滅法による金属の電 子状態と照射損傷に関する研究
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 平林 真 東北大学教授 本間 敏夫 東北大学教授 諸住正太郎 東北大学教授 鈴木 謙爾

## 論 文 内 容 要 旨

陽電子消滅角相関法とは、物質内で熱化した陽電子と電子の対消滅の結果ほぼ正反対方向に放出される2本のガンマ線の角相関を調べる方法である。相関角と電子の運動量の間には1対1の対応関係が成立するので、物質中の電子の運動量分布を調べる手段として、この方法は重要である。特にこの方法は、高濃度合金などのように結晶周期性の乱れた系に対しても純金属と同様に電子状態の研究に適用できるという大きな特徴を持っている。さらに陽電子は原子空孔やボイドなどの格子欠陥に優先的に集まる傾向を持つので、この方法によって格子欠陥を非常に敏感に検出することもできる。

本研究では、日本原子力研究所の材料試験炉（JMTR）の炉内照射により、世界最高級の比

放射能を持つ陽電子線源 ( $^{64}\text{Cu}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ) を作製し、それを使って陽電子消滅角相関自動測定を行う一貫したシステムを確立した。

さらにこの強力な陽電子線源を使って、高い分解能をもつ単結晶用の測定装置を完成した。この装置を用い、銅-遷移金属合金の電子状態の研究、および  $^{58}\text{Co}$  内部線源法によるニッケルの照射損傷の研究を行った。本論文はこれらの研究結果をまとめたもので、全編 6 章よりなる。

第 I 章は序論であり、まず陽電子消滅法の特徴と本研究に関連のある分野の従来の研究を概説した。次いで陽電子消滅法の原理について述べ、本研究の目的と重要性とを述べた。

第 II 章は本研究で用いた陽電子消滅角相関の実験方法を述べたものである。

第 1 節では、材料試験炉を利用して陽電子線源を作成するための照射方法、キャプセル、使用機器、取扱い方法などについて述べた。 $^{64}\text{Cu}$ ,  $^{58}\text{Co}$  はそれぞれ水力ラビット、燃料領域照射孔を使って作製した。

第 2 節に、製作、使用した角相関測定装置（機械部分、低温測定用クライオスタット、電子回路、自動運転記録系）の構成、性能、調整法などを述べた。主な性能は以下の通りである。(i) 角度設定精度 ; 0.02 mrad 以上, (ii) アーム長さ ; 2 m, (iii) 二次元スリット法幾何学的分解能 ;  $0.63 \times 2.7$  mrad (FWHM), (iv) 測定温度 ; 室温および  $-165^\circ\text{C}$ , (v) 同時計数率分解時間 ; 30 ~ 50 nsec。

第 3 節に、直接測定される同時計数率に種々の補正を加えて角相関曲線を求める方法について述べた。

第 III 章は銅-ニッケル合金の電子状態についての研究を述べたものである。

第 1 節に、本研究の目的を述べた。すなわち、銅にニッケルを添加したときのフェルミ面の変化を系統的に調べ、伝導バンド状態の電子構造を解明するとともに、従来の陽電子消滅研究の結果の不一致を解決することが主な目的である。

第 3 節では、本研究に使用した単結晶試料の作製法、熱処理法、結晶方位について述べた。

第 4 節では、本研究により明らかとなった以下の実験結果を述べた。(i) フェルミ面の  $\langle 111 \rangle$  ネック半径は、ニッケル濃度に対してほぼ直線的に減少する。しかし、ネックはブリアン帯から離脱しない。(ii) ネックは、Cu - 70% Ni 合金の磁気変態でもほとんど変らない。(iii) 合金試料の  $\langle 001 \rangle$  カット、オフ角度はフェルミ面の  $\langle 001 \rangle$  半径に対応しない。

第 5 節で、フェルミ面のネック半径の組成依存性および電子構造について考察した。ネック半径についての実験から、この合金系においては、d 電子状態はもちろん、s, p 電子状態につい

ても、単純な剛体バンド模型では理解できないことが明らかとなった。さらにネック半径の組成依存性は、従来の平均 $t$ マトリックス法の計算結果と良く一致することが分った。従ってこの合金系の電子状態を理解するには、 $d$ 電子状態の効果を正しく考慮した模型によらなければならない。またネック半径の組成依存性を純ニッケルまで外挿することにより、従来実験的知見のなかった常磁性ニッケルのフェルミ面にもネックがあることを初めて明らかにし、この事は、バンド計算より予想される結果と合致することを示した。さらに合金試料では、フェルミ準位近傍にニッケルの $d$ 副バンド状態があらわれるために、 $\langle 001 \rangle$ カット・オフ角度と $\langle 001 \rangle$ 半径の間の対応関係が破れることを示した。

第IV章は銅-パラジウム合金の電子状態についての研究を述べたものである。

第1節に、この合金系の不規則状態および規則状態の電子構造に関する従来の研究を概説した。

第2節に本研究の目的を述べた。すなわち、第1の目的は、銅にパラジウムを添加したときのフェルミ面の変化を調べ、この合金系の $s$ 、 $p$ 電子状態を明らかにすることである。さらに決定されたフェルミ面と規則格子ブリルアン帯の相対位置関係、規則化に伴う角相関曲線の変化を調べることにより、長周期規則構造に対する理論の妥当性を明らかにすることが第2の目的である。

第3節に、単結晶試料の作製法、規則化熱処理およびX線回折より求めた規則度、長周期規則構造の周期などについて述べた。

第4節に、本研究により明らかとなった以下の実験結果を述べた。(i)フェルミ面の $\langle 111 \rangle$ 突起の半値幅は、15%Pd濃度まで組成とともに急激に減少する。しかし、それ以上の濃度では、半値幅は組成によらずほぼ一定の値となる。(ii)0~30%Pdの濃度範囲では、 $\langle 001 \rangle$ カット・オフ角度はフェルミ面の $\langle 001 \rangle$ 半径に対応し、濃度とともに低角度側にずれる。しかし、63%Pd合金では、 $\langle 001 \rangle$ カット・オフ角度は $\langle 001 \rangle$ 半径に対応しない。

(iii) $\langle 110 \rangle$ 半径は、Pd濃度とともにゆるやかに減少する。規則構造があらわれる組成領域では、 $\langle 110 \rangle$ 方向のフェルミ面は規則格子ブリルアン帯の極く近傍に位置する。(iv) $\text{Cu}_3\text{Au}$ 型規則構造をもつ15%Pd合金および1次元長周期規則構造をもつ19%Pd合金について、一次元スリット法で、規則化に伴うフェルミ面の変化を検出しようとしたが、角相関曲線に差異は認められなかった。

第5節に、本研究によりはじめて明らかにされた0~30%Pd合金のフェルミ面についての考察を述べた。パラジウムを添加するに従い、フェルミ面は一様に収縮し、約20%Pd濃度で、ネックはブリルアン帯から離脱する。このフェルミ面の組成変化は剛体バンド模型で良く理解出来る。しかし、30%以上のパラジウムを含む合金では、パラジウムの $d$ 副バンド状態がフェルミ

ミ準位に重なるように位置するため、もはや剛体バンド模型が適用できない。また63%Pd合金でもフェルミ面の $\langle 111 \rangle$ 方向に突起があることが明らかにされたが、これは純パラジウムにも同様の突起があることに対応する。不規則状態のフェルミ面は、 $\langle 110 \rangle$ 方向に平坦であり、 $110$ 型規則格子ブリルアン帯の極く近傍にあることが明らかにされた。これらの事は長周期規則構造の成因に対する従来の理論の基本仮定であったが、本研究によりはじめて実験的に確かめられた。しかし、もう1つの基本仮定である分裂した規則格子ブリルアン帯におけるバンド・ギャップの効果を検出することはできなかった。このことからバンド・ギャップの値は小さいことが示唆され、その値を推定した。

第V章はニッケルの高線量中性子照射効果についての研究を述べたものである。

第1節では、ニッケルの中性子照射効果、特にボイドに関する従来の研究の大略を述べた。

第2節には本研究の目的を述べた。すなわち、ニッケルの照射損傷の研究に、はじめて陽電子消滅法を適用するとともに、 $^{58}\text{Co}$ 内部線源法を確立させ、さらに照射によって生じた格子欠陥と陽電子との間の相互作用を解明することがその目的である。

第3節には、試料作製法、原子炉照射条件などについて述べた。

第4節に実験結果を述べた。高温(400~500°C)において、高線量( $1.7 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ )の高速中性子を照射したニッケル単結晶中では、陽電子がボイドや変位損傷に捕獲されることをはじめて見出した。さらに、焼鈍による角相関曲線の回復を調べ、ボイドの存在による角相関曲線の変化は、他の格子欠陥が存在する場合とくらべて非常に大きく、半値幅の変化は約30%にも達することを見出した。

第5節では、まず本研究の結果をもとに、陽電子とボイドとの間の相互作用について考察した。ボイドの発生による角相関曲線の変化量から、陽電子は、ボイド内面の表面ポテンシャルに捕獲されるのであって、ボイド内でポジトロニウムを形成することはほとんどないことを示した。またその表面捕獲ポテンシャルは、転位ループなどのそれとはほぼ同程度の大きさであることを推定した。また角相関曲線の回復挙動は、本研究と同程度の条件で行われた他の研究者による電子顕微鏡観察の結果と良く対応することを示した。このような新しい知見にもとづいて、陽電子消滅法が高線量の中性子照射をうけた原子炉材料の有力な非破壊検査手段になりうることを提案した。特に他の陽電子線源の場合には、陽電子の飛程が非常に短く、材料の表面近傍しか調べられないという欠点があるのに比べて、本研究ではじめて採用した $^{58}\text{Co}$ 内部線源法はすぐれていることを指摘した。

第VI章は総括であり、本研究によって得られた実験結果とそれらに対する考察をまとめたもの

である。

なお、上記の研究結果の大要は、次の論文として刊行された。

J . Phys . Soc . Japan , 37 ( 1974 ) 85  
.....第Ⅲ章

J : Phys : Soc : Japan , 43 ( 1977 ) 89  
.....第Ⅳ章

Radiation Effects , 21 ( 1974 ) 201  
.....第Ⅴ章

## 審査結果の要旨

陽電子消滅法は、陽電子が物質中の電子と対消滅する際に放射されるガンマ線を利用して、物質の電子状態や格子欠陥を研究する重要な方法である。近年、この方法の有効性が認識され、応用範囲が拡大するとともに、強力な陽電子線源と測定精度の向上が要求されてきた。著者は、高い中性子束密度をもつ日本原子力研究所試験炉の炉内照射によって強力な陽電子源となる放射性同位元素を作り、これを用いて二元系合金の電子状態、および金属の中性子照射損傷に関する研究を行った。本論文はこれらの成果をまとめたもので、全編6章よりなる。

第1章は序論であり、本研究の背景、目的、および意義を述べている。

第2章では、材料試験炉を利用する陽電子消滅角相関実験法について述べている。高い比放射能 ( $\sim 7 \text{ Ci/g}$ ) の  $^{64}\text{Cu}$  および  $^{58}\text{Co}$  を陽電子線源とし、高分解能の二次元スリット測定法を確立している。

第3章および第4章では、 $^{64}\text{Cu}$  を内部線源とする陽電子消滅法による銅-ニッケルおよび銅-パラジウム合金固溶体の電子状態に関する研究結果をそれぞれ述べている。両合金系の全組成領域にわたる単結晶試料の主要軸方位の測定から、フェルミ面の異方性とその組成依存性を初めて明らかにし、それらの電子状態の差違を解明している。また、銅-パラジウム合金については、規則状態におけるフェルミ面の測定にも成功している。これらの成果は、銅合金の物性を理解する上に貴重である。

第5章では、 $^{58}\text{Co}$  を内部線源とする陽電子消滅法を初めて用い、これによりニッケルに対する中性子照射効果を研究した結果を述べている。約  $400^\circ\text{C}$  において ( $10^{21} \text{ n/cm}^2$ ) の高速中性子を照射したニッケル中では、陽電子は空孔集合体や変位損傷に捕獲され消滅することを見出し、また焼鈍による回復過程を明らかにしている。この結果に基づいて、原子炉材料の非破壊検査への陽電子消滅法の応用を示唆している。

第6章は総括である。

以上要するに、本論文は材料試験炉を利用する陽電子消滅角相関実験法を確立し、これを用いて高濃度銅合金のフェルミ面、ならびにニッケルの中性子照射損傷について、従来の研究手段ではえられなかった重要な基礎的知見を加えたもので、原子核工学および金属物性学に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。