

JAERI-M  
89-071

FCC金属のイオン照射損傷  
における電子励起効果

1989年6月

岩瀬 彰宏

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division, Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1989

---

編集兼発行	日本原子力研究所
印 刷	日立高速印刷株式会社

FCC金属のイオン照射損傷における電子励起効果

日本原子力研究所東海研究所物理部

岩瀬 彰宏

(1989年5月17日受理)

FCC金属(A1, Cu, Ag, Ni)を液体ヘリウム温度において, 0.5~1.8MeVのH, He, N, Arイオン及び84~126MeVのC, F, Si, Cl, Br, Iイオンで照射した。照射後300Kまでのサーマルアニーリング実験を行い, 照射欠陥の回復スペクトルをアニーリング温度の関数として測定した。高エネルギー(~100MeV)重イオン照射したA1, Niでは, ステージIにおける欠陥回復量が著しく減少, あるいは消滅するという現象を見いだした。また, あらかじめ単純な欠陥をドーピングしておいたNiにおける, 100MeV Iイオンによるラディエーションアニーリングの実験データを照射中の欠陥の生成, 消滅を記述した新しいモデルに基づいて解析した結果, 非常に大きな欠陥消滅断面積の値を得た。これらの現象は, 照射イオンによる電子励起の大きさを表す電子的阻止能と大きく関連しており, さらに, 電子格子相互作用の小さいCu, Agにおいては観測されない。以上のことから, A1, Niにおいては, 高エネルギー重イオンによって高密度励起された電子のエネルギーが, 大きな電子格子相互作用を通じて格子系に有効に伝達され, 照射欠陥の一部を消滅させたものであると結論した。

Effect of Electron-Excitation on Radiation Damage  
in Ion-Irradiated FCC Metals

Akihiro IWASE

Department of Physics  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 17, 1989)

FCC metals(Al, Cu, Ag, Ni) were irradiated with 0.5-1.8 MeV H, He, N and Ar ions, and 84-126 MeV C, F, Si, Cl, Br and I ions at liquid helium temperatures. After the irradiations, thermal annealing experiments were performed up to 300 K. Anomalous reduction of Stage-I recovery was observed in Al and Ni irradiated with high-energy(~100 MeV) heavy ions.

Radiation annealing by 100 MeV I ions was studied in predoped Ni and Cu. The experimental results were analyzed by using a new model which describes the production and radiation annealing of two or more types of defects. The extraordinarily large cross sections for subthreshold recombination of Stage-I defects were obtained in Ni.

These results show that in Al and Ni, the energies transferred from the excited electrons to lattice through the electron-lattice interaction contribute to the annihilations of defects during irradiation.

Keywords: Radiation Damage, FCC Metals, Defect Recovery, Radiation Annealing, Electron Excitation, Electron-Lattice Interaction

## 目 次

1. 序 論	1
2. 実験方法	3
2.1 試料作製	3
2.2 イオン照射	3
2.2.1 加速器及び加速イオン, エネルギー	3
2.2.2 照射装置	4
2.3 照射中の電気抵抗測定	5
2.4 照射後のアニーリング実験	5
3. イオン照射によって導入された欠陥の熱的回復	11
3.1 緒 言	11
3.2 実 験	12
3.3 実験結果(1)－低エネルギーイオン照射における欠陥の回復－	13
3.4 実験結果(2)－高エネルギーイオン照射における欠陥の回復－	14
3.5 考 察	16
3.5.1 PKA エネルギースペクトルとPKA メディアンエネルギー	16
3.5.2 ステージ I における欠陥回復量のPKA メディアンエネルギー 依存性とエレクトロニックストップングパワー依存性	20
4. Ni と Cu の 100MeV Iodine 照射によるラディエーションアニーリング	60
4.1 緒 言	60
4.2 実 験	61
4.3 実験結果	62
4.4 解析及び考察	63
5. 結 論	72
謝 辞	73
参考文献	74
付 録 1 ラディエーションアニーリングを記述する連立微分方程式の解法	79
付 録 2 ラディエーションアニーリングのデータ解析における成分分離の方法	82
付 録 3 発表論文	86

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Experimental Procedure .....	3
2.1 Specimen Preparation .....	3
2.2 Ion Irradiation .....	3
2.2.1 Accelerators, Ions and Energy .....	3
2.2.2 Irradiation Facilities .....	4
2.3 Measurements of Electrical Resistivity during Irradiation .....	5
2.4 Annealing Experiments after Irradiation .....	5
3. Recovery of Defects Induced by Ion-Irradiation .....	11
3.1 Introductory Remarks .....	11
3.2 Experiments .....	12
3.3 Experimental Results(1)-Recovery of Defects for Low Energy Ion Irradiation- .....	13
3.4 Experimental Results(2)-Recovery of Defects for High Energy Ion Irradiation- .....	14
3.5 Discussion .....	16
3.5.1 PKA Energy Spectrum and PKA Median Energy .....	16
3.5.2 Dependence of Stage-I Recovery on PKA Median Energy and Electronic Stopping Power .....	20
4. Radiation Annealing by 100 MeV Iodine Ions in Ni and Cu .....	60
4.1 Introductory Remarks .....	60
4.2 Experiments .....	61
4.3 Experimental Results .....	62
4.4 Analysis and Discussion .....	63
5. Conclusion .....	72
Acknowledgements .....	73
References .....	74
Appendix 1 Solution of Simultaneous Differential Equation Describing Radiation Annealing .....	79
Appendix 2 Decomposition of Data into Some Components in Radiation Annealing Experiment .....	82
Appendix 3 Publications .....	86

## 1. 序 論

固体に放射線を照射した時に生ずる格子間原子、原子空孔及びその集合体の物理的挙動を研究するいわゆる照射損傷研究の分野においては、様々な放射線（ $\gamma$ 線、電子線、中性子、イオン）を用いて基礎から応用まで幅広い研究が行われてきた。基礎的な研究では、バルク試料中に単純な欠陥（フレンケル対）を一様に生成することのできる電子線照射が多く用いられ、特に、欠陥の熱運動を凍結する目的で行われた極低温電子線照射実験からは、格子間原子や原子空孔の物理的性質（格子間原子の形状、歪場、拡散エネルギー等）についての情報が、特に、FCC金属を中心に数多く得られている<sup>[1]</sup>。また、フレンケル対そのものの性質の研究に加えて、照射中の物性変化が照射量にどう依存するかを測定して、フレンケル対の生成過程や欠陥同士の相互作用による消滅（ラディエーションアニーリング）等を調べる、固体と電子線の動的な相互作用のプロセスに関する研究も行われている<sup>[2]</sup>。このような照射損傷の基礎研究は、原子炉を用いた中性子照射や加速器を用いたイオン照射によっても行われているが、得られた実験結果は電子線による結果と異なる場合が多い。中性子やイオンは固体の原子に与えるエネルギーが電子線に比べて格段に大きいため、固体の狭い領域に大きなエネルギーが集中的に散逸されることになる。このため、生成される欠陥も電子線の場合のように単純ではなく、複雑な形状となる。従って、得られる実験データも電子線照射の場合ほど明確ではなくなる。このような大きなエネルギーによるはじきだしの過程は、はじきだされた原子が次々と新たな原子をはじきだしていくことからはじきだしカスケード（displacement cascade）とよばれるが、照射粒子のエネルギーが固体内で高密度に散逸されるプロセスは物理的に興味あるものである。はじきだしカスケードによる損傷（カスケード損傷）生成のプロセスは照射粒子によってはじきだされる原子のエネルギー、いわゆる1次はじきだし原子エネルギー（PKAエネルギー）に大きく依存する。なぜならばPKAエネルギーによって散逸されるエネルギーの密度が決定されるからである。従ってカスケード損傷のプロセスの理解にはPKAエネルギーをパラメータとした実験が必要となる。イオン照射は中性子照射や電子線照射と違って、照射イオンのエネルギーや質量を幅広く変えることができるので、PKAエネルギースペクトルを大きくしかも系統的に変えることができる。従ってカスケード損傷の研究においてイオン照射は極めて有用なものとなる。もう一つのイオン照射の特徴は、電子線照射、中性子照射と比べて欠陥の生成率が極めて大きいことである。つまり、短時間で高濃度の欠陥を試料中に生成することができる。このことは、すでに生成された照射損傷と照射イオンとの相互作用や照射欠陥同士の相互作用を研究するのに適している。さらにイオン照射が電子線照射や中性子照射と大きく異なる点は、それが固体内の電子を励起することである。特に、100MeV程度のエネルギーのイオンになると、固体内で失われるイオンのエネルギーのうち殆どすべてが電子励起によるものである。また、固体内電子励起に費やされるエネルギーはイオンの軌道に沿って1Å当り1000-4000eVにもなり、いわゆる高密度電子励起が起こる。この電子励起が固体の照射損傷生成に及ぼす効果については、例えば、ガンマ線照射したアルカリハライドの色中心形成

であるとか<sup>[3]</sup>，核分裂生成物（fission fragment）による絶縁体等のトラック形成<sup>[4]</sup>という形で観測されているが，金属においては，照射損傷生成過程における電子励起の効果について30年以上も前にF. Seitzが議論しているものの<sup>[5]</sup>，非常に特殊な条件下（厚さ数十Åの超薄膜試料）における場合<sup>[6]</sup>を除いて実験的にとらえた例は今までにない，金属における照射損傷はもっぱら照射粒子と固体原子との弾性的相互作用によってのみ生成あるいは再結合するものとして実験結果の解析及び計算による照射損傷の評価が現在まで行われてきた。

以上のように，イオン照射による照射損傷は多くの特徴を有するが，一方欠点もある。それはイオンの飛程が金属中で小さいため，バルク試料を用いると照射損傷が試料表面に局在し，また照射イオンが試料内に蓄積して不純物としてふるまうことである。これらの欠点を克服するためには，イオンの飛程よりも十分薄い薄膜を試料として用いる必要がある。そこで我々は0.2-0.6 μmの厚さの金属薄膜を作製し，これを照射試料として，2MV Van de Graaff 加速器（加速エネルギー0.5-1.8MeV）とタンデム型静電加速器（加速エネルギー50-200 MeV）というエネルギーの大きく異なる2つの加速器を利用して，水素（H）から沃素（Iodine）までの多種のイオンによるFCC金属の照射損傷の研究を極低温（液体ヘリウム温度）における照射及び電気抵抗測定により行ってきた。その結果イオン照射に関する種々の物理量のPKAエネルギー依存性を得た。さらに，100MeV領域の高エネルギー重イオン照射においては，1MeV程度の低エネルギーイオンによる照射ではみられない，ステージIの回復が異常に減少あるいは消滅する，あるいはラディエーションアニリングの効果が非常に大きくなる，といった特異な現象をニッケル，アルミニウムにおいて発見し，これらの現象は，高エネルギー重イオンによる高密度電子励起が照射欠陥の再結合に寄与した結果であることを初めて明らかにした。

本論文では，今までに行ってきたFCC金属の照射損傷の研究のうち，特に，高エネルギー重イオンによる高密度電子励起が照射欠陥の消滅過程に及ぼす効果に関する実験結果を中心に報告する。まず第2章では薄膜試料作製，加速器による照射，測定方法等実験方法全般について記す。第3章では低エネルギー（0.5-1.8MeV）及び高エネルギー（84-126MeV）のイオンを液体ヘリウム温度で照射したアルミニウム（Al），銅（Cu），銀（Ag），ニッケル（Ni）薄膜の照射欠陥の回復ステージのPKAエネルギー依存性，エレクトロニックストップピングパワー依存性について論じ，電子格子相互作用の大きい金属においては，高エネルギー重イオンによる電子励起が照射欠陥のアサマルな再結合過程に大きな役割を演ずることを示す。そして，第4章ではこの電子励起の効果を定量的にとらえるために行ったラディエーションアニリング実験の結果について記す。そして，照射中の照射欠陥の生成，ラディエーションアニリングによる欠陥の選択的消滅を記述した新しいモデルによる実験結果の解析について述べることにする。



## 2. 実験方法

### 2.1 試料作製

第1章でも述べたように、イオン照射による照射損傷はイオンの飛程が小さいため、飛程よりも厚い試料を用いると損傷は試料表面近傍に局在し、また照射イオンは試料内に留まり不純物元素としてふるまう。入射イオンの影響を除き、試料中の照射損傷分布を一様なものにするためには、試料の厚さをイオンの飛程に対して十分に小さくし、イオンすべてが試料を通過するようにしなければならない(図2.1参照)。そこで本実験では真空蒸着法により0.2-0.6 $\mu\text{m}$ のAl, Cu, Ag, Ni薄膜を作製し照射試料として用いた。図2.2に蒸着試料及び基板の形状を示す。試料作製の手順は以下のとおりである。

まず、直径20mm、厚さ1.5mmのAl基板の表面をダイヤモンド研磨、及び電解研磨により十分平滑にした後、陽極酸化法によりAl基板表面に厚さ0.2 $\mu\text{m}$ 程度のAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>酸化膜を生成する。酸化膜の厚さはRBS(ラザフォードバックスキタリング)法により測定した。この薄い酸化膜は、電気抵抗測定用試料とAl基板とを電氣的に絶縁すると共に、液体ヘリウム温度に冷却されているAl基板と試料との間の熱接触をできるだけ良くし、照射中の試料の温度上昇を防ぐ、という2つの目的のために用いられる。この酸化膜上に銀または金の電極を蒸着し、次に電気抵抗測定用の試料を蒸着する。試料の蒸着は $2 \times 10^{-7}$  Torr以下の高真空中で、10kVの電子ビーム加熱により行った。蒸着源となる試料は、MRC(Material Research Corporation)から入手した99.999%純度のAl、Johnson Masseyから入手した99.999%純度のCu、Ag及び99.998%純度のNiである。膜厚は蒸着中には水晶振動子膜厚計でモニターし、蒸着後、試料基板のすぐ隣に置いておいたカバーガラスの蒸着前後の重さの変化から最終的な試料の厚さを決定した。最後に電圧、電流端子として直径0.1mmのCu線を銀(または金)電極に低温はんだで接着することにより試料が完成する。なお、測定した試料の電気抵抗を比抵抗値に換算するためには試料の形状因子(電圧端子間の長さ、試料の厚さ及び幅から決定される)の値が必要となる。形状因子は試料作製時に用いたステンレス製マスクの形状と試料の厚さから決定することができる。

### 2.2 イオン照射

#### 2.2.1 加速器及び加速イオン、エネルギー

本実験で用いたイオン加速器は日本原子力研究所に設置された2MV Van de Graaf加速器(High Voltage Engineering Corporation製)及びタンデム型静電加速器(National Electrostatics Corporation製)である。用いたイオン種とエネルギー範囲を各加速器にたいして表2.1に示す。

## 2.2.2 照射装置

各加速器には液体ヘリウム温度（4.2 K）において薄膜試料を照射し、照射中及び照射後試料温度を上げながら電気抵抗を測定する装置が設置されている。以下、これらの照射装置について説明する。

### (1) 極低温低エネルギーイオン照射装置

2MV Van de Graaff 加速器のセンターダクトに設置された照射装置である。概観を図 2.3 に示す。装置は液体ヘリウムクライオスタットとイオンビーム導入ダクトから成る。ビームダクトの中央部には、ダクトの真空を保つための真空排気装置と高真空中（ $10^{-8}$  Torr 台）におかれた試料が加速器側（ $\sim 5 \times 10^{-7}$  Torr）から汚染されないための液体窒素トラップが取り付けられている。またダクトにはイオンビームの形状をみるための石英板ビームビューアー、試料に当たるイオンビームの照射面積を決定するスリット（タンタル製、 $3 \text{ mm} \times 6 \text{ mm}$ ）及びビーム電流計測時に 2 次電子の影響を取り除くための 2 次電子サプレッサーが取り付けられている。

サプレッサーの電圧は液体ヘリウムクライオスタットに対して約  $-300 \text{ V}$  である。試料ホルダーは液体ヘリウムクライオスタットの中央部に、2 枚の液体ヘリウムシールドと 1 枚の液体窒素シールドによって囲まれている。試料ホルダーの裏面には金/鉄-クロメル熱電対が取り付けられており、イオン照射中、電気抵抗測定中の試料温度をモニターするのに用いる。また試料ホルダー直上の液体ヘリウムタンクの回りにはコンスタンタンヒーターが巻かれており、試料温度を上げる時に用いる。なお、温度を上げる時には、ニードルバルブを締めることによって上部液体ヘリウムタンクと下部タンク間の液体ヘリウムの移動を止めてから行う。クライオスタット内にはビームシャッターがあり、これを上下することにより照射時間をコントロールすることができる。クライオスタットは液体窒素トラップ付きの油拡散ポンプで真空排気し、液体ヘリウムが入った状態では  $10^{-8}$  Torr 台の真空度に保たれている。

### (2) 極低温高エネルギーイオン照射装置

タンデム加速器の第 2 重イオンターゲットルーム、H1 ビームラインに設置された照射装置である。概観を図 2.4 に示す。装置の構成は (1) の低エネルギーイオン照射装置とほぼ同じである。ビームビューアー、ファラデーカップ（ビームシャッター）は照射中の放射線レベルがターゲットルームにおいて高くなるため、制御室から遠隔操作できるようにしてある。ビームダクト上流にはマグネット式ビームスキャナーが取り付けられている。これはイオンビームを X, Y 2 方向に独立に  $0-50 \text{ Hz}$  の周波数で走査し、試料に一樣なビームを照射するためのものである。2 次電子サプレッサーの電圧は液体ヘリウムクライオスタットに対して  $-500 \text{ V}$  である。液体ヘリウムクライオスタットの構造は低エネルギーイオン照射装置と異なり、試料ホルダーは液体ヘリウムタンクの上部に位置する。試料を液体ヘリウム温度に保つ時には液体ヘリウムタンクに圧力を少し加え、試料ホルダー下部のヘリウムタンクに液体ヘリウムを押し上げる。照射後の試料温度上昇はニードルバルブを閉じ、試料ホルダー下部の液体ヘリウムタンクの回りのシーズヒーターに電流を流すことによって行う。クライオスタットの真空排気はターボ分子ポンプを用いて行い、液体

ヘリウムが入った状態での真空度は  $5 \times 10^{-9}$  Torr 以下である。

### 2.3 照射中の電気抵抗測定

本実験では、まず試料の電気抵抗の変化を照射量の関数として測定する。測定は照射欠陥が熱運動により拡散・反応するのを防ぐために、試料の温度を液体ヘリウム温度に保ったまま行う。加速器のビームレンズ系でイオンビームをデフォーカスしたり、あるいはビームスキャナーを用いてビームを走査することによりビームの強度分布を照射面積内で十分一様にした後、ビームビューアでこの一様性を確認する。そしてファラデーカップ（ビームシャッター）におけるビーム電流計測によりビーム電流値を調節した後、ファラデーカップ（ビームシャッター）を開いてイオンビームを試料に当てる。なおスリット、ファラデーカップ、試料におけるビーム電流の計測は電氣的に絶縁された各ビーム電流測定部を 1000 オームの標準抵抗を介してアースにおとし、イオン照射時の標準抵抗間の電圧降下をデジタルボルトメーターまたは DC アンプにより増幅した後、測定することによって行う。試料における照射領域は図 2.2 に破線で示している。イオンビームを一定時間照射した後ファラデーカップ（ビームシャッター）を閉じて照射をやめ、続いて電気抵抗の測定を行う。電気抵抗の測定は通常の 4 端子法で行う。電流値は 10 mA、電圧の測定感度は  $0.1 \mu\text{V}$  である。電気抵抗は電流の極性を変えて測定した 2 つの電圧値を平均することによって求められる。イオン照射時の試料温度は 2 MV Van de Graaff 加速器による照射では 6 K 以下、タンデム加速器による照射では 14 K 以下であった。電気抵抗測定時の試料温度は液体ヘリウム温度（4.2 K）である。電気抵抗の測定が終了すると再びファラデーカップ（ビームシャッター）を開きイオン照射を一定時間行う。以上の電気抵抗測定のプロセスは HP（ヒューレットパッカード）9825S デスクトップコンピュータと GPIB バスを用いたシステムにより自動化されている。

### 2.4 照射後のアニーリング実験

照射による電気抵抗の変化量がある値になり、照射中の電気抵抗測定実験が終了した後、試料温度を液体ヘリウム温度から 300 K まで上げることにより、電気抵抗がどのように回復するかをみる実験（いわゆるアニーリング実験）を行った。電気抵抗のアニーリング実験はパルスアニーリング法（アイソクロナル法）によっておこなうのが一般的である。しかし、試料温度をパルスのコントロールするのは実験的に困難であり、この困難さが実験データのばらつきの原因をもたらす。また測定に長時間要することもパルスアニーリング法の欠点である。そこで本実験では等速昇温法によるアニーリング実験を行った。測定の 1 例を図 2.5 に示す。まず、イオン照射前に試料温度を液体ヘリウム温度から 300 K まで一定速度で上昇させ、電気抵抗を温度の関数として測定する。液体ヘリウム温度において照射による電気抵抗変化の測定が終了した後、再び試料温度を液体ヘリウム温度から 300 K まで照射前の測定と同じ昇温速度で上昇させ、電気抵抗を温度の関数として測定する。結晶格子の熱振動と照射欠陥の電気抵抗への寄与が各温度で加算的であることから（いわゆるマラーセンの法則）、各温度において照

射前と照射後の電気抵抗の差が、その温度で試料中に残留している照射欠陥の濃度に対応するものと考えられる。なお、試料昇温はオックスフォード製PIDコントローラー(DTC-2)とスイープジェネレーター(SG-3)によりコントロールした。昇温速度は1.5 deg/minである。

表 2.1 本実験で用いた加速器とイオン種、及びエネルギー範囲

加 速 器	イオン種	エネ ルギ-範囲
2MV VdG 加 速 器	$^1\text{H}$ , $^3\text{He}$ , $^4\text{He}$ $^{14}\text{N}$ , $^{40}\text{Ar}$	0.5-1.82MeV
ダンデム加速器	$^{12}\text{C}$ , $^{19}\text{F}$ , $^{28}\text{Si}$ , $^{35}\text{Cl}$ , $^{81}\text{Br}$ , $^{127}\text{I}$	84-126MeV

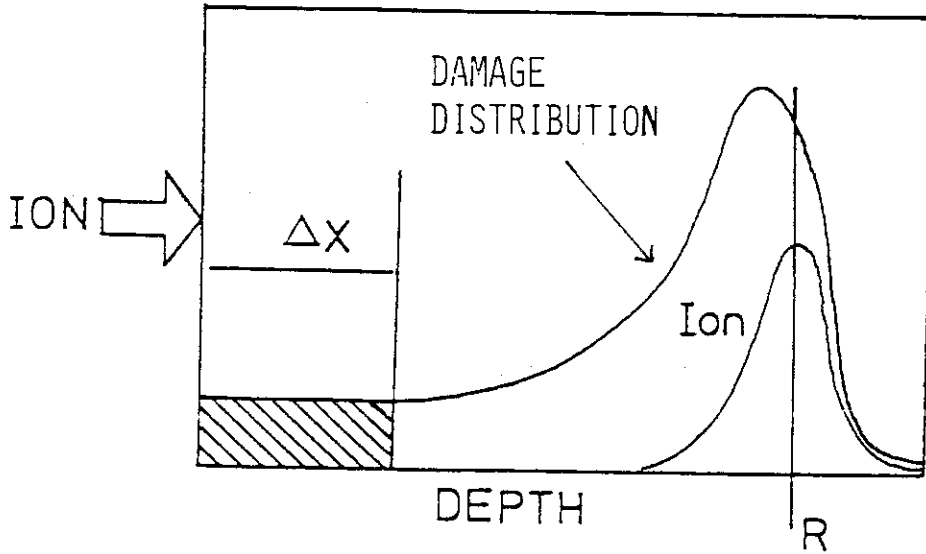


図 2.1 イオン照射によって作られる欠陥濃度の試料中における空間分布とイオンの分布。残留イオンの影響を取り除き、欠陥の濃度分布を試料中で一様にするためには、イオンの飛程  $R$  より小さい厚さ  $\Delta X$  を持つ薄膜試料を用いる必要がある。

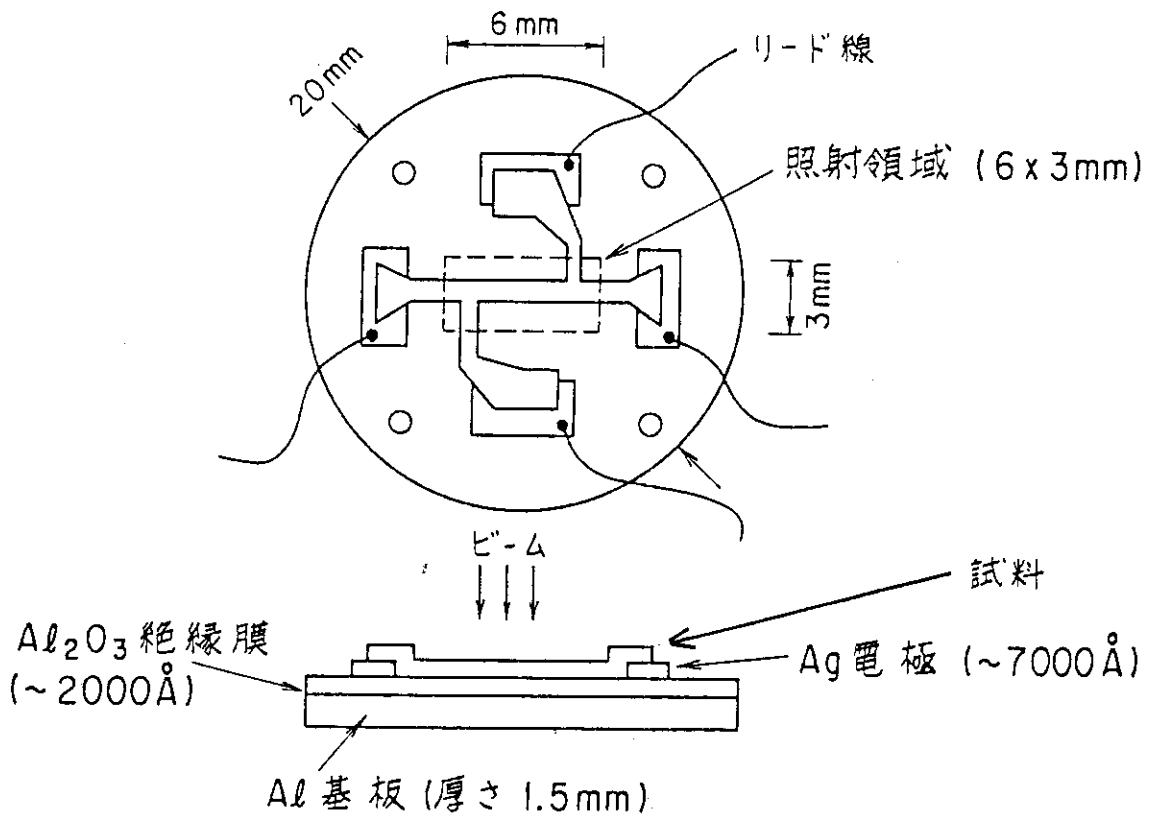


図 2.2 本実験に用いた薄膜試料及び基板の形状

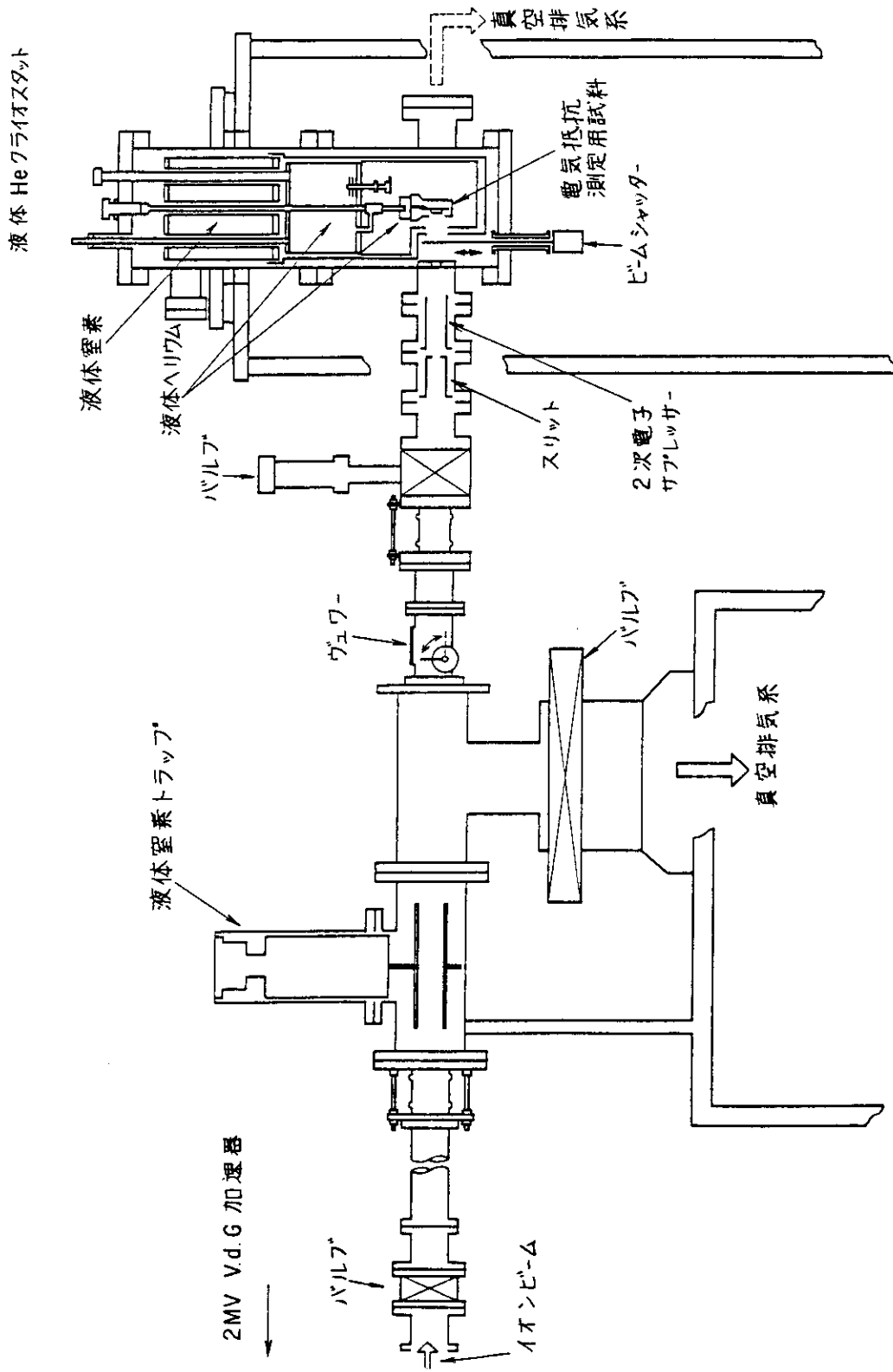


図 2.3 2MV Van de Graaff 加速器に設置された極低温低エネルギーイオン照射装置

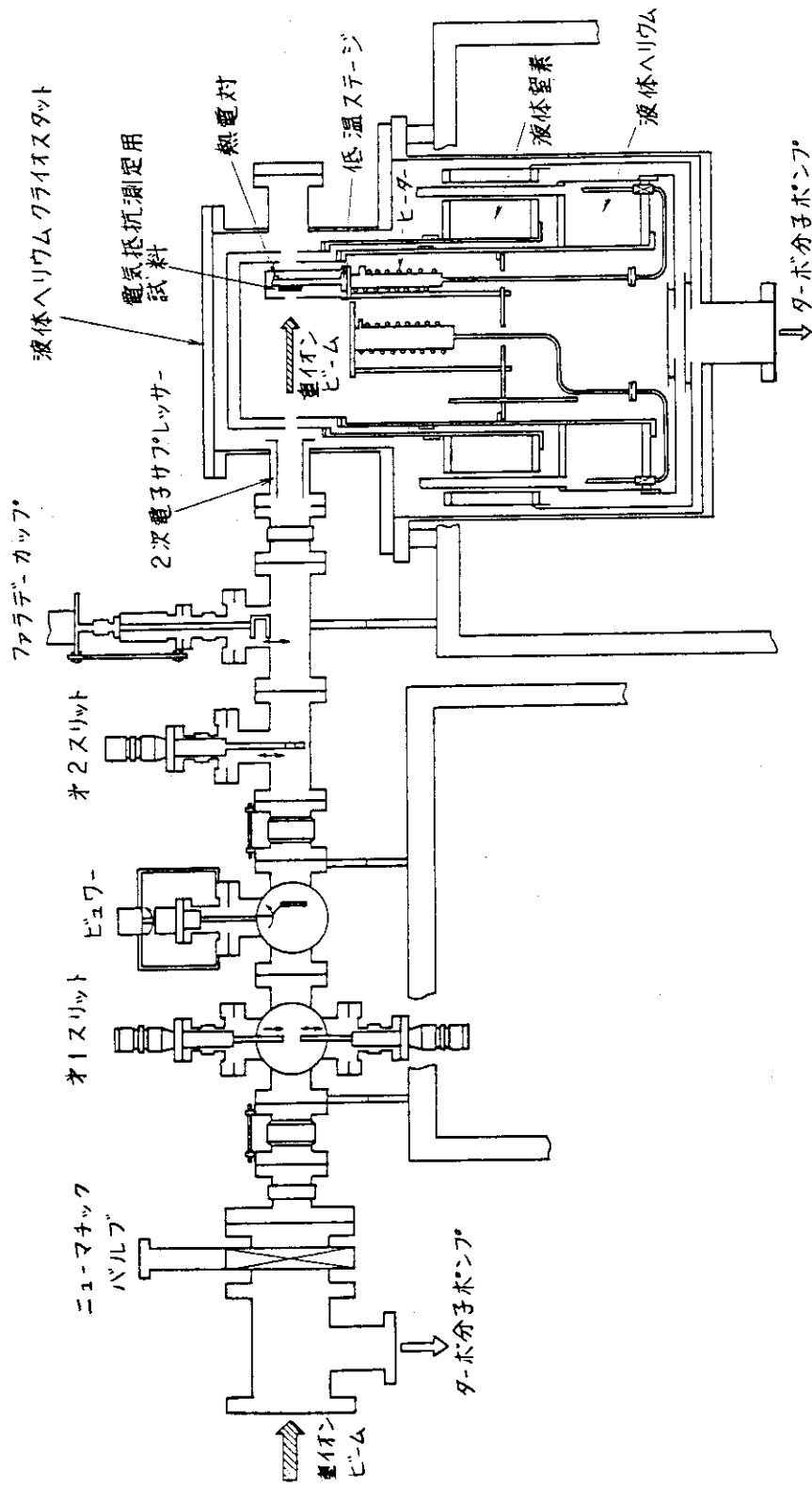


図 2.4 タンデム加速器第二重イオンターゲットルームに設置された  
極低温高エネルギーイオン照射装置

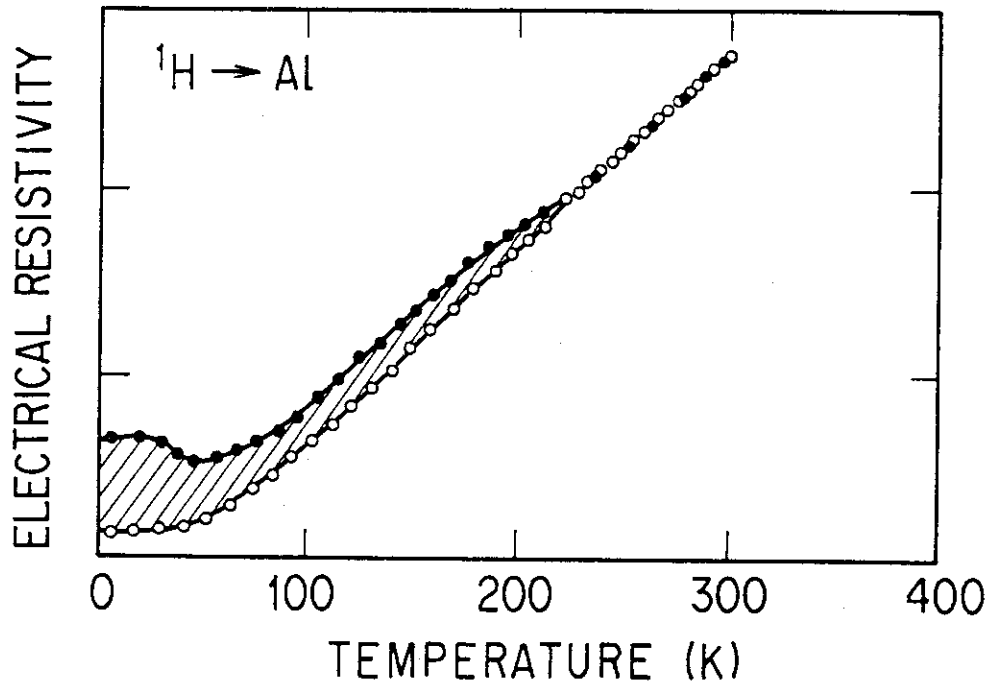


図 2.5 等速昇温法によるアニーリング実験の例。○は照射前，●は液体ヘリウム温度における照射の後の電気抵抗の温度依存性を示す。斜線の部分がアニーリングにより減少していく欠陥の濃度に対応する。



### 3. イオン照射によって導入された欠陥の熱的回復

#### 3.1 緒 言

放射線を照射した金属中の照射直後の格子間原子と原子空孔の空間分布（照射損傷の初期構造）は照射条件に大きく依存し、また、照射中における照射粒子とターゲット金属との相互作用がどのようなものであったかを知る上で重要な情報となる。金属中では照射欠陥、特に、格子間原子は非常に低温でも熱運動により拡散し、空孔と結合して消滅したり、欠陥の集合体を形成したりする。従って、照射欠陥の初期構造を正しくとらえるためには、導入された欠陥が熱運動によって拡散しない低温で照射を行うことが重要となる。そこで液体ヘリウム温度(4.2K)に試料を冷却した状態で照射を行い、照射後試料の温度を上昇させながら照射欠陥がどの温度で動き出すかを調べることによって欠陥の初期構造に関する情報を得ようとする実験、いわゆるアニーリング実験が主に電気抵抗の測定によって今まで数多く行われてきた<sup>[7]</sup>。電気抵抗は照射欠陥の存在に極めて敏感であり、高精度の測定ができる。反面、照射欠陥の空間分布に鈍感であるため、フレンケル対1個当りの電気抵抗寄与率がわかっているならば試料中のフレンケル欠陥の数（濃度）が求められることになる。従って、アニーリング実験においても、試料中の欠陥濃度を示す量として電気抵抗が多く使われている。アニーリング実験は、まず、電子線を照射したCuにおいて行われ、熱的運動による照射欠陥の消滅に伴う電気抵抗の減少がある特定の温度範囲でおこることがみだされた<sup>[8-11]</sup>。これを電気抵抗の回復ステージとよぶ。主な回復ステージは60K以下の低温で起こるステージI、室温付近のステージIII、そしてその中間の温度に現れるステージIIである。同じような回復ステージはCuと同じFCC金属であるPt, Al, Ag, Niにおいても見いだされている<sup>[12-20]</sup>。

ステージIは60K以下の低温領域に現れる大きな回復ステージであり、Cooperらによって1955年に見いだされ<sup>[8]</sup>、その後Cuの低温での回復ステージの物理的本質を明らかにする実験がCorbettらによって行なわれた<sup>[9-11]</sup>。さらにCorbettらはステージIがいくつかのサブステージにわかれることを見だし、それらのサブステージに低温側から順にステージIA, IB, IC, ID, IEと名前をつけた。そして、各サブステージの物理的な意味が以下のように明らかになった。

ステージ IA, IB, IC フレンケル近接対の再結合

ステージ ID 格子間原子の移動による対になっていた空孔との再結合  
(相関再結合)

ステージ IE 格子間原子の移動による空孔との非相関再結合

CuのステージIのサブステージの例を図3.1に示す<sup>[21]</sup>。Pt, Ag, Al, NiにおいてもCuのサブステージに対応してIA ~ IEと名前がつけられている。なお、Al, Ag, Niでは、Cu, Ptと異なりステージIAは見いだされていない。このステージに対応する近接フレンケル対の形状は、液体ヘリウム温度においても不安定なものであり、照射中に消滅したと考えら

れている。ステージⅢは照射欠陥の濃度が大きくなると低温側にシフトし、2次反応であることから、空孔の自由な拡散による格子間原子集合体との再結合であると考えられている。ステージⅡは金属によってはいくつかの明確なサブステージを持ち、はっきりした機構はわかっていないが、格子間原子集合体からの格子間原子の分離に伴う再結合によるものと考えられている。

以上は低照射量の電子線照射によって低濃度の簡単な欠陥を含む試料における場合である。照射欠陥回復の実験はその後中性子<sup>[22-26]</sup>、重陽子<sup>[27-30]</sup>、アルファ粒子<sup>[31-33]</sup>による極低温実験においても行われたが、回復のステージは電子線照射の場合と大きく異なる実験結果が得られた。主な相違点は次のとおりである。

- ① 中性子照射ではフレンケル近接対の再結合に伴う回復ステージ(I<sub>A</sub>, I<sub>B</sub>, I<sub>C</sub>)が電子線照射の場合と比べてずっと小さくなり、各回復の温度幅は広がる。
- ② 中性子照射ではステージI<sub>D</sub>における抵抗の回復量も電子線の場合より小さい。ステージIの温度領域より高温で生き残る欠陥数が多くなる。
- ③ 重水素、アルファ粒子照射における回復ステージの様子は電子線照射と中性子照射の場合のちょうど中間となる。

このような回復挙動の違いは、各照射において1次はじきだし原子(PKA)のエネルギーが異なり、それが照射欠陥の初期構造の違いをもたらしたためであると考えられている。しかし電子線照射や中性子照射ではPKAのエネルギーを大きく変えることはできない。イオン照射でも照射粒子の種類が1つだったり、エネルギー選択の幅が小さいと状況は同じである。従って、PKAのエネルギーを系統的に変化させて回復挙動がどのように変化していくかを調べる実験は上記の実験においては行われていない。

1970年代後半に入ってMerkleらアルゴン国立研究所のグループは、イオン照射においてイオン質量を大きく変えることができればPKAのエネルギースペクトルを系統的に変化させられることに着目し、水素からビスマスまでの多種のイオンを用いた照射実験を行った。そして欠陥生成率やラディエーションアニーリング、欠陥の回復におけるPKAエネルギー依存性に関する実験結果を得ている<sup>[34-40]</sup>。しかしMerkleらの実験ではイオンのエネルギーは100-900 keVと低く、イオンの飛程は用いた試料の厚さの半分位である。このような実験条件下では、第1章、第2章でもふれたように、イオンは不純物として試料中に残留し、また、照射欠陥の分布も試料中で不均一なものとなり、実験結果を定量的にとらえることを困難にする。

我々は水素から沃素(Iodine)までで、エネルギー範囲が0.5-126 MeVのイオンを用いることにより試料をイオンが完全に通過するような条件下で電気抵抗のアニーリング実験を行った。この実験条件により、試料中にはイオンは残留せず、欠陥の分布は試料中で一様となる。また、加速エネルギーの大きく異なる2つの加速器を利用して、イオンの質量だけでなくエネルギーを幅広く変えて実験を行ったのも本実験の特徴の一つである。

### 3.2 実 験

第2章で述べたように、アニーリング実験は等速昇温法によって行った。電気抵抗の回復ステージは昇温前に試料中に含まれる欠陥濃度に大きく依存する。従って回復ステージの照射イ

オン依存性をみるためには照射欠陥の初期濃度をそろえておく必要がある。そこで照射中試料の電気抵抗変化をモニターしながら、電気抵抗変化がある所定の値になった時照射を終了するようにして、各金属において照射欠陥の初期濃度がほぼ同じになるようにした。照射による電気抵抗変化を欠陥濃度に換算するためには、フレンケル対単位濃度当りの抵抗寄与率が必要である。ここでは電子線照射による電気抵抗変化とX線測定等から得られた表3.1の値を用いる<sup>[41,42]</sup>。

### 3.3 実験結果(1) - 低エネルギーイオン照射における欠陥の回復 -

Al, Cu, Ag, Niの各薄膜試料を0.5-1.8MeVの<sup>1</sup>H, <sup>3</sup>He, <sup>4</sup>He, <sup>14</sup>N, <sup>40</sup>Arの各イオンで極低温照射した後、300Kまで昇温した時の電気抵抗の回復曲線 $\Delta\rho/\Delta\rho_0$ 及び回復曲線をアニーリング温度Tの対数 $\log(T)$ で微分した値(最小二乗法により、微分すべき点の前後のデータ数点から求めた二次曲線を微分した値である)を $\log(T)$ の関数として図3.2(a)(b)から図3.5(a)(b)に示す。ここで $\Delta\rho_0$ は液体ヘリウム温度における試料の照射前と照射後の比抵抗の差であり、照射によって導入された欠陥の濃度に対応する。 $\Delta\rho$ は温度Tにおける照射前と照射後の比抵抗の差であり、温度Tにおいて試料中に残留する欠陥の濃度に対応する。従って、図3.2(a), 3.3(a), 3.4(a), 3.5(a)の縦軸の $\Delta\rho/\Delta\rho_0$ は照射によって導入された欠陥が温度Tにおいて残存する割合を意味している。実験に用いた各試料の厚さ、液体ヘリウム温度における比抵抗 $\rho_0$ 、照射イオン及びエネルギー $E_0$ 、照射による比抵抗の増加 $\Delta\rho_0$ 及び導入された照射欠陥の濃度C(0)を表3.2にまとめてリストした。なお、表3.2からわかるように実験によっては同一のイオン-金属の組合せで2回以上測定した場合もあるが、図3.2から3.5には図の簡略化のため代表的なものを1つ選んでプロットしてある。

本実験において得られた回復ステージの特徴と照射イオン依存性は次のとおりである。

- ① Al: 15-45KにステージIが現れる。ステージIは2つのサブステージにわかれており、20K付近のサブステージはステージI<sub>B</sub>、40K付近のサブステージはステージI<sub>D</sub>である。照射欠陥の初期濃度が大きいため、ステージI<sub>E</sub>はステージI<sub>D</sub>と区別できなくなっている。ステージI<sub>C</sub>は高濃度の欠陥を電子線で導入した試料の場合と同じく明確には現れない<sup>[43]</sup>。ステージI<sub>D</sub>の高温側に現れるステージはステージIIのサブステージの1つであり、ステージII<sub>1</sub>と呼ばれている。ステージIIのサブステージは他にも2つ現れる(ステージII<sub>2</sub>, II<sub>3</sub>)。これらステージIIのサブステージは中性子照射したAlや電子線により重照射したAlにおいても観測されるものである<sup>[22, 23, 43, 44]</sup>。150K付近からはステージIIIが現れ、300Kまでのアニーリングで導入された欠陥のほとんどすべてが回復する。以上の回復の挙動は、H, He, N, Arのいずれのイオンを照射した場合でもほぼ同じであり、照射イオン依存性はあまり顕著ではないが、イオンの質量が大きくなるにつれてステージI<sub>D</sub>は減少し、それに対してステージIIIが増加する傾向が見られる。
- ② Cu: Hイオンを照射したCuにおいては、15-20K付近にステージI<sub>A</sub>、30K付近にステージI<sub>B</sub>、40K付近にステージI<sub>D</sub>が現れる。ステージI<sub>C</sub>はAl同様明確には現れない。ステージIIIは250Kを中心に存在する。ステージIIにおける回復はステージIの終了した直後から連続的に起こり、ステージIIIに移行する。特に明確なサブステージは

存在しない。小さなサブステージのようなものが何か所かみられるが、再現性はなく、本質的なものとは思われない。以上のようなHイオン照射の場合の回復ステージは照射イオンの質量の増加と共に次のように変化してくる。

- (a) ステージⅠのサブステージⅠ<sub>A</sub>、Ⅰ<sub>B</sub>、Ⅰ<sub>D</sub>は照射イオンの質量の増加と共に低温側から減少していく。特にAr照射においてはステージⅠ<sub>A</sub>、Ⅰ<sub>B</sub>はほとんど消滅し、またステージⅠ<sub>D</sub>も大きく減少する。
- (b) ステージⅢはステージⅠとは反対に照射イオンの質量の増加と共に増大していく。300KにおいてはステージⅢの回復はまだ終了していないが、300Kにおける残留欠陥の割合はイオンによらずほぼ一定である。なおステージⅡにおける回復については明確な照射イオン依存性はない。
- ③ Ag：Hイオン照射した場合、20K付近にステージⅠ<sub>B</sub>が、30K付近にステージⅠ<sub>D</sub>が現れる。ステージⅢは200K付近に存在する。Cuの場合と同じく、照射イオンの質量の増加と共にステージⅠのサブステージは低温側から減少していく。その減少の割合はCuの場合より大きい。ステージⅢの照射イオン依存性はCuの場合ほど明確でない。300Kにおける欠陥残存量はイオンの質量が大きくなるほど大きい。
- ④ Ni：Hイオン照射した場合、25K付近にステージⅠ<sub>B</sub>、40K付近にステージⅠ<sub>C</sub>、60K付近にステージⅠ<sub>D</sub>がそれぞれ現れる。また、ステージⅡにはCuやAgの場合と異なり、明確なサブステージがいくつか現れる。ステージⅢは300Kより高温側で起こるため、本実験では観測されていない。照射イオンの質量の増加に伴い、ステージⅠのサブステージが低温側から減少していくのはCu、Agの場合と同じである。ステージⅡのサブステージは特にN、Ar照射の場合明確に4つ現れる。これは電子線や中性子をNiに照射した時にもみられるものである<sup>[19][22]</sup>。これらのサブステージは低温側からステージⅡ<sub>1</sub>、Ⅱ<sub>2</sub>、Ⅱ<sub>3</sub>、Ⅱ<sub>4</sub>と名付けられている。しかし、これらのサブステージの構造には明確な照射イオン依存性は認められない。

以上の実験結果から、低エネルギーイオン照射の場合、回復ステージの照射イオン依存性は主にステージⅠにおける回復に現れる、ということがわかる。Al、Cuにおいては、ステージⅢも明らかに照射イオン依存性を示すが、これはステージⅠで生き残った格子間原子がステージⅢの温度領域で自由に移動できる空孔と再結合したためと考えられるので、ステージⅠの照射イオン依存性と大きく関連している。そこで、ここではステージⅠの大きさ及び構造の照射イオン依存性に重点をおいて議論を進めることにする。

### 3.4 実験結果(2) - 高エネルギーイオン照射における欠陥の回復 -

Al、Cu、Ag、Niの各薄膜試料を84-126MeVの<sup>12</sup>C、<sup>19</sup>F、<sup>28</sup>Si、<sup>35</sup>Cl、<sup>81</sup>Br、<sup>127</sup>Iのイオンで極低温照射した後、300Kまで昇温した時の回復曲線 $\Delta\rho/\rho_0$ 及び回復曲線をアニリング温度Tの対数 $\log(T)$ で微分した値を $\log(T)$ に対してプロットしたものを図3.6から3.10に示す。なお、比較のために低エネルギーのH、Arイオンで照射した場合のデータも併せて示す。

実験に用いた各試料の厚さ，液体ヘリウム温度における比抵抗  $\rho_0$ ，照射イオン及びエネルギー  $E_0$ ，照射による比抵抗の増加  $\Delta\rho_0$  及び導入された照射欠陥の濃度  $C(0)$  を表 3.3 にまとめてリストした。

高エネルギーのイオンを照射した場合の回復ステージの特徴を，特に，低エネルギーイオン照射の場合と比較しながら金属別に挙げると次のようになる。

- ① Al : Cl 照射した場合，ステージ I<sub>B</sub> は低エネルギーイオン照射の時と比べて大きく減少するが，ステージ I<sub>D</sub> は低エネルギーの H イオン照射の場合と同程度の回復量を示す。ステージ II の各サブステージ，及びステージ III も低エネルギーイオン照射の場合と同程度に現れる。ステージ III が終了した段階で導入された欠陥の大部分は消滅する。

I イオン照射ではステージ I<sub>B</sub> はほとんど消滅し，ステージ I<sub>D</sub> も低エネルギーイオン照射や Cl イオン照射の場合と比べて大きく減少する。さらにステージ II<sub>1</sub> の減少も顕著にみられる。これに対してステージ III は，他のイオンによる照射の場合と比べて大きくなり，ステージ III の終了と共に照射欠陥の大部分が回復するのは他のイオンを照射した場合と同様である。ステージ II<sub>2</sub> 及び II<sub>3</sub> に関しては特に大きな特徴は認められない。

- ② Cu : C, Cl, I と照射イオンの質量が増加するに従ってステージ I のサブステージは低温側から減少していく。C, Cl 照射の回復ステージは低エネルギーの H と Ar イオン照射の場合のちょうど中間の構造を持つ。I 照射における回復ステージは，測定温度全体に渡って，ほぼ低エネルギーの Ar イオン照射の場合と同一である。

- ③ Ag : Cu の場合と同様，Cl, I と照射イオンの質量が増加していくに従ってステージ I は低温側から減少していく。Cl 照射における回復スペクトルは低エネルギーの H 及び Ar イオン照射の場合の中間の構造を持つ。I イオン照射における回復スペクトルは，測定温度全体にわたって，ほぼ低エネルギーの Ar イオン照射の場合と同一である。

- ④ Ni : この金属の場合，最も特徴的なことは，I 及び Br イオンを照射した場合ステージ I における回復がほとんど完全に消滅してしまうことである。さらに，ステージ I だけでなく，ステージ II のサブステージのうち低温側に現れるべきステージもほとんど認められない。Si 及び Cl イオンを照射した場合はステージ I<sub>D</sub> は少し現れるが，低エネルギーイオン照射の場合と比較すれば大きく減少している。一方ステージ II<sub>2</sub> は I, Br 照射の場合と異なり，明確に現れる。これに対して C イオン照射の場合は，低イオンの H イオン照射の場合と比較すると，サブステージ I<sub>B</sub>, I<sub>C</sub> はかなり減少するものの，ステージ I<sub>D</sub> は同程度の回復量を示し，ステージ II の各サブステージも低エネルギーイオン照射の場合と同様はっきりと現れる。F イオン照射における回復ステージはステージ I<sub>B</sub>, I<sub>C</sub>, I<sub>D</sub> 共低エネルギーの Ar イオン照射の場合よりも大きく減少するが，Si, Cl 照射の場合ほど著しくは減少しない。ステージ II の各サブステージも明確に観測される。

以上の実験結果から，高エネルギーイオン照射においては回復ステージの照射イオン依存性は Cu, Ag では低エネルギーイオン照射の場合と同様主にステージ I に，また，Al, Ni ではステージ I 及びステージ II の低温側において大きく現れることがわかる。

### 3.5 考 察

3.3, 3.4節で示したように, Al, Cu, Ag, Niの各金属の回復スペクトル, 特に, ステージIにおける回復の大きさや構造は照射イオンの種類に大きく依存している。0.5-1.8MeVの低エネルギーイオン照射の範囲では, ステージIの大きさや構造は入射イオンの質量と共に変化していくように見える。しかし, 高エネルギーのイオン照射の結果も考慮に入れた場合, 必ずしもそうとはいえなくなる。例えば, Cu, Agにおいて, ClとArはほぼ同じ質量 ( $M_1(\text{Cl})=35$ ,  $M_1(\text{Ar})=40$ )であるにもかかわらず, 高エネルギーのClイオンを照射した時の回復スペクトルは低エネルギーのArイオンを照射した場合と大きく異なり, むしろ  $M_1=127$ のIイオンを照射した場合の回復スペクトルが低エネルギーのArイオンを照射した場合とほぼ一致する。従って, 照射イオンの質量は回復スペクトルを記述するのに良いパラメーターとはいえない。照射イオンの質量やエネルギーによって大きく変化するパラメーターは1次はじきだし原子(PKA)のエネルギースペクトルである。第1章でも述べたように, 照射直後の欠陥の空間分布(初期構造)はPKAのエネルギースペクトルに大きく依存する。従って, 回復スペクトルもPKAエネルギースペクトルと共に系統的に変化するはずである。そこで次節ではPKAのエネルギーとステージIにおける回復がどう関連しているかをみていくことにする。

#### 3.5.1 PKAエネルギースペクトルとPKAメディアンエネルギー

イオン照射によるPKAのエネルギーは単色ではなく, はじきだしエネルギー  $E_d$  からヘッドオン衝突による最大エネルギー  $T_{\max}$  までの間に分布をもつ。分布の形は照射イオンとターゲット金属の原子との間の弾性衝突における微分散乱断面積によって決定される。 $E_d$  から  $T_{\max}$  までのエネルギー範囲に広がったPKAエネルギースペクトルそのものと回復ステージの構造とを対応させるのは非常に困難である。そこでここでは各イオンターゲット金属の組合せに対して, そのPKAエネルギースペクトルを良く代表する1つの量を用いて議論を進めることにする。PKAエネルギースペクトルを代表するエネルギーの値として最も簡単なものはPKAのエネルギーそのものの単純平均であり, 次式で表される。

$$\langle T \rangle = \int_{E_d}^{T_{\max}} T d\sigma(E, T) / \int_{E_d}^{T_{\max}} d\sigma(E, T) \quad \dots\dots\dots (3.1)$$

ここで  $d\sigma(E, T)$  はエネルギー  $E$  のイオンが固体中の原子に  $T$  のエネルギーを与えるような衝突の微分散乱断面積である。イオン照射の場合, 荷電粒子同士の衝突であるから, ほぼラザフォード散乱により記述される。(もちろんエネルギーが低くなれば電子の遮蔽が問題になってくるが簡単のためここでは考えない)。ラザフォード散乱では微分散乱断面積はイオンからターゲット原子に与えられるエネルギー, すなわちPKAのエネルギー  $T$  の平方に反比例する。

$$d\sigma_R(E, T) \propto dT/T^2 \quad \dots\dots\dots (3.2)$$

従ってPKAエネルギーの単純平均は簡単な計算により

$$\langle T \rangle = \log (T_{\max} / E_d) / (1/E_d - 1/T_{\max}) \quad \dots\dots\dots (3.3)$$

$T_{\max} = 4M_1 M_2 E / (M_1 + M_2)^2$  である。 $M_1, M_2$  はそれぞれ、照射イオン、ターゲット金属原子の質量である。本実験のエネルギー範囲では  $E_d \ll T_{\max}$  であるから  $\langle T \rangle$  は次のようになる。

$$\langle T \rangle = E_d \log (T_{\max} / E_d) \quad \dots\dots\dots (34)$$

$E_d$  はイオン種に関係なく金属によって決っている量である。イオンの種類やエネルギーによって決まる  $M_1$  や  $E$  は  $\log$  の項に入ってしまう、 $\langle T \rangle$  はこれらの量に敏感ではなくなる。つまり、照射イオンの質量やエネルギーを大きく変化させても、 $\langle T \rangle$  の値はあまり変わらないことになる。ところが、実際には図 3.2 から図 3.10 においてみられるように、照射イオンの質量、エネルギーに対して回復ステージの構造は敏感に変化する。従って、 $\langle T \rangle$  という量は PKA エネルギースペクトルを代表して記述する量としては不適當であることを意味する。このことはイオンとターゲット原子との微分散乱断面積が PKA エネルギー  $T$  の関数として  $1/T^2$  という非常に非対称な関数形を持っていることに由来する。ラザフォード散乱では前方散乱（即ち PKA エネルギー  $T$  の小さい散乱）の確率が圧倒的に大きい、この様な散乱によって生じる PKA はエネルギーが小さいため、エネルギーを失って停止するまでに作り出す欠陥の数は少ない。一方  $T$  の大きい散乱は確率が非常に小さいが、PKA エネルギーが大きいため作り出す欠陥数は大きい。電気抵抗による照射欠陥の回復ステージの測定においては、PKA そのものを測定しているのではなく、各 PKA が最終的に作り出す欠陥の総数をモニターしているわけであるから、PKA エネルギーそのものの単純平均では回復スペクトルの PKA エネルギー依存性を正しく記述できないのである。

そこでここでは、各 PKA によって最終的に生成される欠陥の数に着目した PKA エネルギースペクトルの代表値を用いることにする<sup>[36]</sup>。この代表値は PKA メディアンエネルギー（PKA Median Energy）とよばれるもので、 $T_{1/2}$  と書き、次式で定義される。

$$\int_{E_d}^{T_{1/2}} \nu(T) \frac{d\sigma(E, T)}{dT} dT = \frac{1}{2} \int_{E_d}^{T_{\max}} \nu(T) \frac{d\sigma(E, T)}{dT} dT \quad \dots\dots\dots (35)$$

ここで  $E_d$  は平均的はじきだしエネルギーであり、PKA エネルギーの下限である。 $d\sigma(E, T)/dT$  はイオンとターゲット原子との微分散乱断面積、そして  $\nu(T)$  はエネルギー  $T$  の PKA が生成する欠陥の数であり、損傷関数と呼ばれる。式 (3.5) の右辺はエネルギー  $E$  のイオンが試料中に作る欠陥数（正しくは欠陥濃度）の半分を意味する。左辺はエネルギーが  $T_{1/2}$  以下の PKA が作り出す欠陥数である。従って “ $T_{1/2}$  以下のエネルギーの PKA によって生成される欠陥数は、欠陥総数のちょうど半分である。” これが  $T_{1/2}$  の定義である。

さて、式 (3.5) を用いて  $T_{1/2}$  を各イオンターゲット金属の組合せに対して計算するためには、 $E_d, \nu(T), d\sigma(E, T)/dT$  の具体的な値や表式が必要となる。以下、本論文で  $T_{1/2}$  の計算に用いた  $E_d, \nu(T), d\sigma(E, T)/dT$  について説明する。

(1) 平均的はじきだしエネルギー  $E_d$

はじきだしエネルギーは P K A のはじきだされる方向に大きく依存する。従って  $E_d$  の値を求めるためにははじきだしエネルギーを各方位に対して知る必要がある。はじきだしエネルギーは電子線照射を用いて実験的に決定したり [45-49]，コンピュータシミュレーションによる方法で求められる [50-51]。しかし現在までには，ごく一部の金属においてのみ求められているにすぎない。一方 Lucasson は，はじきだしエネルギーの最小値と平均値の比は金属のある結晶形に対しては一定であるとして各金属における  $E_d$  の値を求めた [52]。これらの値は必ずしも決定的なものではないが，その後 Cu において行われたはじきだしエネルギーの方位依存性の精密な実験結果から計算される  $E_d$  の値 [48] と Lucasson によるもののが良く一致することから，ここでは Lucasson による値を  $E_d$  として用いる。表 3.4 に  $E_d$  の値を各金属に対して示す。

(2) 損傷関数  $\nu(T)$

$\nu(T)$  は剛体球衝突（等方散乱）の場合は次式によって与えられることが Kinchin, Pease によって示された [53]。

$$\nu(T) = \begin{cases} 0 & T < E_d \\ 1 & E_d \leq T < 2E_d \\ T/2E_d & 2E_d \leq T < A \text{ (KeV)} \\ A/2E_d & T \geq A \text{ (KeV)} \end{cases} \dots\dots\dots (36)$$

ここで A はターゲット金属の質量数である。上の式は，P K A のはじきだされる確率は P K A のエネルギー T によらず一定であり，T が A KeV 以上では P K A のエネルギーはすべて電子励起に費やされ，従ってターゲット原子との弾性衝突には寄与しない，という荒い仮定を前提としているため，このままではイオン照射の場合に適用できない。そこでイオン照射においては次式が損傷関数として現在標準的に使われている [54]。

$$\nu(T) = \begin{cases} 0 & T < E_d \\ 1 & E_d \leq T < 2E_d/\kappa \\ \kappa E_D/2E_d & T \geq 2E_d/\kappa \end{cases} \dots\dots\dots (37)$$

ここで  $\kappa$  は等方散乱の時 1 であり，前方散乱の確率が大きくなるにつれて 1 より小さくなる。Sigmund はべきポテンシャルを用いて輸送方程式を解き [55]，Robinson, Torrens は計算機シミュレーションから [56]，いずれも  $\kappa = 0.8$  という値を得ている。 $E_D$  は損傷エネルギー (Damage Energy) とよばれる量であり，P K A のエネルギーのうち，電子励起に費やされる部分を除いたもの，即ち，弾性衝突に費やされるエネルギーを意味する。 $E_D$  は Lindhard, Robinson により次式で与えられる [57][58]。

$$E_D = T / (1 + k g(\epsilon)) \dots\dots\dots (38)$$

ここで



$$g(\epsilon) = 3.4008 \epsilon^{1/6} + 0.40244 \epsilon^{3/4} + \epsilon \dots\dots\dots (3.9)$$

$$k = 0.1337 Z_2^{1/6} (Z_2/M_2)^{1/2}$$

である。

$\epsilon$  は PKA の reduced energy とよばれ、次式で与えられる。

$$\epsilon = T (86.931 Z_2^{7/3})^{-1} \dots\dots\dots (3.10)$$

ここで T は eV 単位である。

(3) 微分散乱断面積

イオン照射におけるイオンとターゲット原子との弾性的衝突は、荷電粒子間の衝突であるから基本的にはラザフォード散乱であるが、イオンが低エネルギーになった場合電子の遮蔽効果が無視できなくなる。そこで、ここでは Lindhard によって数値的に与えられ、Winterbon らによって解析的な近似式で表わされている Thomas-Fermi の遮蔽ポテンシャルによる断面積を用いる [59][60]。

$$d\sigma(E, T) = \pi a^2 dt f(t^{1/2}) / 2 t^{3/2} \dots\dots\dots (3.11)$$

ここで

$$t = \epsilon_0^2 T / T_{max}, \quad \epsilon_0 \text{ はエネルギー } E \text{ の入射イオンの reduced energy であり,}$$

$$\epsilon_0 = [M_2 E / (M_1 + M_2)] / (Z_1 Z_2 e^2 / a) \dots\dots\dots (3.12)$$

と書ける。

$a$  は遮蔽定数であり、

$$a = 0.468 (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{-1/2} (\text{\AA}) \dots\dots\dots (3.13)$$

と表される。

$Z_1$  はイオンの原子番号、 $Z_2$  はターゲット金属の原子番号である。

$f(t^{1/2})$  は次式で表される。

$$f(t^{1/2}) = \lambda t^{1/6} [1 + (2\lambda t^{2/3})^{2/3}]^{-3/2} \dots\dots\dots (3.14)$$

$$\lambda = 1.309$$

(4) 試料中のイオンの平均エネルギー  $\bar{E}$

式(3.11)で与えられた微分散乱断面積には、パラメーターの一つとしてイオンのエネルギーが含まれる。イオンは試料中でエネルギーを失っていくから一定ではない。しかし本実験の場合、入射エネルギー  $E_0$  に対して試料中で失うエネルギー  $\Delta E$  は十分小さい。そこで試料中のイオンの平均エネルギーを下式で与えて、これをイオンのエネルギーとして式(3.11)に代入することにする。

$$\bar{E} = E_0 - \Delta E / 2 \dots\dots\dots (3.15)$$

$\bar{E}$  はイオンに対するターゲット金属のストッピングパワーがイオンのエネルギーの関数として与えられていれば計算することができる。Al, Ag, Ni に対しては Northcliffe, Schilling によるエレクトロニックストッピングパワーの表の値<sup>[61]</sup>と Wilson らによる表式を用いて計算したニュークリアーストッピングパワーの値<sup>[62]</sup>を用いて  $\bar{E}$  を決定した。Cu に対しては,  $E/\text{amu} > 0.2 \text{ MeV}$  のイオンに対しては Ziegler のトータルストッピングパワーのグラフ<sup>[63]</sup>から値を読み取り,  $E/\text{amu} < 0.2 \text{ MeV}$  のイオンに対しては Lindhard らによって与えられたエレクトロニックストッピングパワーの式<sup>[64]</sup>と Wilson らによるニュークリアーストッピングパワーの式<sup>[62]</sup>により  $\bar{E}$  を決定した。

以上(1), (2), (3), (4)で与えられた式または値を用いれば, 式(3.5)から  $T_{1/2}$  を各イオン-ターゲット金属の組合せに対して求めることができる。

### 3.5.2 ステージ I における欠陥回復量の PKA メディアンエネルギー依存性と

#### エレクトロニックストッピングパワー依存性

ステージ I における欠陥の回復量は, 照射によって生成された欠陥のうち, 集合体等を形成せずに単独で自由に移動できる格子間原子の全欠陥数に対する割合を示すものである。そこでこの節では先ずステージ I における回復量が PKA のメディアンエネルギー  $T_{1/2}$  にどう依存するかをみる。表 3.5 及び 3.6 に, 式(3.5)を用いて計算した  $T_{1/2}$  とステージ I における欠陥回復量(%)を各イオンとターゲット金属の組合せについて示す。さらに, 後の議論のため, 各イオンに対するターゲット金属のエレクトロニックストッピングパワーの値についても表に示す。なお  $T_{1/2}$ , エレクトロニックストッピングパワーとも試料中のイオンの平均エネルギーに対するものである。ここで Cu と Ag のステージ I はそれぞれ 60 K, 40 K までに終了するとした。Ni, Al についてはステージ II の低温側のサブピークがステージ I の高温側に重なるためステージ I の分離が難しいが, ここでは 80 K 以下の回復が Ni におけるステージ I であるとした。また, Al ではステージ I の高温側に重なったステージ II の回復はステージ I における回復よりも十分小さいことと, 60 K までに終了する回復の量が明確であることから, 60 K 以下の回復が Al のステージ I における回復であるとする。

#### (1) 低エネルギーイオン照射の場合

図 3.1 I に低エネルギーイオン照射の場合のステージ I における欠陥回復量の PKA メディアンエネルギー  $T_{1/2}$  依存性を示す。この図から判る, ステージ I における回復量の  $T_{1/2}$  及びターゲット金属依存性で特徴的なことは次の通りである。

- ① どの金属においても, ステージ I の回復量は  $T_{1/2}$  の増加に対してスムーズに単調減少する。
- ② ほぼ同程度の初期欠陥濃度においてアニーリング実験を行った Al, Cu, Ag において, 同じ  $T_{1/2}$  に対しては, ターゲット金属原子の質量が大きくなるにつれてステージ I の回復量は減少する。なお Ni では他の金属と比べてステージ I の回復量が全体的に大きい, これは初期欠陥濃度が他の金属の場合の 1/2 程度と少ないためであろう。
- ③ ターゲット金属原子の質量の増加と共に, ステージ I の回復量の  $T_{1/2}$  依存性は強くなる。即ち,  $T_{1/2}$  が増加すると, より急激にステージ I の回復量は減少する。このこと

は、それぞれの金属において最も小さい $T_{1/2}$ を与えるHイオン照射の場合のステージIの回復量で、規格化した値をプロットすることにより、より明白になる(図3.12)。

次に、本実験の結果を中性子照射によるデータと比較する。回復ステージは初期欠陥濃度、従って、試料の温度を上げる前の、照射による電気抵抗の変化量 $\Delta\rho_0$ に大きく依存するので、比較をする場合同程度の $\Delta\rho_0$ の値を用いた実験データの間で行わねばならない。Agでは $\Delta\rho_0 = 408 \text{ n}\Omega\text{cm}$ <sup>[65]</sup>、Niでは $\Delta\rho_0 = 352 \text{ n}\Omega\text{cm}$ <sup>[66]</sup>、そしてCuでは $\Delta\rho_0 = 321 \text{ n}\Omega\text{cm}$ <sup>[65]</sup>という、本実験における $\Delta\rho_0$ と比較的近い条件で行った中性子照射におけるデータと比較する。Alに関しては、 $\Delta\rho_0 = 381 \text{ n}\Omega\text{cm}$ <sup>[66]</sup>及び $882 \text{ n}\Omega\text{cm}$ <sup>[65]</sup>という条件下で行った実験におけるステージIの回復量をプロットする。中性子照射において $T_{1/2}$ を計算するためには、中性子のエネルギースペクトルを正確に知る必要がある。Niについては、アルゴン国立研究所のCP型原子炉に設置された極低温照射装置において中性子エネルギースペクトルの精密測定が行われ、 $T_{1/2}$ が計算されている<sup>[67]</sup>。Al、Cu、Agについての $T_{1/2}$ は計算されていないが、文献<sup>[67]</sup>ではSi、Nbについての計算は行われている。原子炉照射の場合のように1 MeV程度の中性子と金属原子との衝突は弾性衝突によりほぼ記述される。従って、原子質量の近い金属において計算された $T_{1/2}$ の値を近似的に使うことができる。そこでCuの $T_{1/2}$ はNiの $T_{1/2}$ の値で、Alの $T_{1/2}$ はSiの $T_{1/2}$ の値で、またAgの $T_{1/2}$ はNbの $T_{1/2}$ の値でそれぞれ代用する。以上のデータをもとに中性子照射の場合のステージIの回復量を図3.11に併せてプロットした。これからステージIの $T_{1/2}$ 依存性に関する4番目の特徴として

- ④ どの金属においても、本実験におけるステージIの欠陥回復量と中性子照射のデータは、 $T_{1/2}$ の関数としてプロットすると良く一致する。

以上、低エネルギー(0.5-1.8 MeV)のイオン照射を行ったAl、Cu、Ag、NiのステージIにおける回復量の $T_{1/2}$ 依存性について4つの特徴を挙げた。これらの物理的意味については、以下のように説明できる。

PKAのエネルギーが大きくなると、1つのPKAから作られるはじきだしのカスケード(displacement cascade)内で多数のはじきだしが局所的に起こるようになる。(displacement spike<sup>[68]</sup>とよばれる)。また、原子に伝わるエネルギーがはじきだしエネルギー以下である場合でも、カスケード内で局所的に格子振動が励起される。(thermal spike<sup>[5]</sup>とよばれる)。その結果、はじきだしカスケード内で生成される格子間原子と空孔は再結合して消滅する確率が大きくなる。以上のような現象は、1つのはじきだしカスケードに対してだけでなく、すでに生成されている照射欠陥と、新たに照射されたイオンにより作られたPKAによるはじきだしカスケードとの相互作用の過程においても起こる。すなわち、PKAによって励起されたdisplacement spikeやthermal spikeにより、それまで安定に存在していたフレンケル対の再結合が促進されるのである。再結合は、集合体を形成するなどして安定化していない、単独で存在する格子間原子と空孔、特にフレンケル近接対において優先的に起こる。これらは格子振動に対してより不安定なためである。PKAエネルギーの増加に伴ってspikeの効果も増大し、イオン照

射中に消滅する単独格子間原子の数は増加することになる。従ってイオン照射後、昇温前において試料中に残存している単独格子間原子の数の割合は減少する。ステージ I の回復量は単独で存在する自由な格子間原子の数の割合を表すものであるから、ステージ I の回復量も P K A エネルギーの増加と共に減少するのである。また、照射中の消滅が格子振動に対してより不安定なフレンケル近接対から優先的に起こることは、図 3.2 ~ 3.5 からわかるように、P K A エネルギーの増加と共にステージ I の低温側のサブステージから順に減少していく、という実験事実によって示されている。以上のようなはじきだしカスケード内の spike 効果による照射中の欠陥の消滅は、ターゲット金属原子の質量が大きいほど起こる確率が高い。それは、同じエネルギーの P K A で比較するとターゲット金属原子の質量が大きくなるにつれて P K A の平均自由行程が短くなり、P K A のエネルギーの散逸される領域がより小さくなり、従って spike 効果が大きくなるためである。その結果、ステージ I の減少の割合はターゲット金属の原子質量と共に大きくなる。Al の場合は、P K A のエネルギーが大きくなっても P K A の平均自由行程はそれほど小さくならず、従って散逸エネルギー密度も大きくなり、spike 効果は他の重い金属のように効果的でない。これが Al において回復ステージが照射イオンにあまり依存しない理由である。

イオン照射中の欠陥（単独格子間原子）の消滅を示すステージ I の回復量の減少が P K A メディアンエネルギー  $T_{1/2}$  で良く記述することができて、さらに、イオンと異なって、電子励起を起こさない中性子による照射の実験データと良く一致するということから、次の結論が導かれる。

“1 MeV 程度の低エネルギーイオン照射の場合、照射中に起こっている照射欠陥の消滅は、イオンとターゲット金属との弾性的相互作用に基づくエネルギーの局所的散逸による結果である。”

## (2) 高エネルギーイオン照射の場合

図 3.1 3(a)~(d)に、高エネルギーイオン照射におけるステージ I の欠陥回復量の P K A メディアンエネルギー  $T_{1/2}$  依存性を金属別にプロットした。比較のため、低エネルギーイオン照射におけるデータも併せて示す。図から判るように、Cu, Ag の場合は、高エネルギー照射におけるステージ I の回復量は低エネルギーイオン照射の場合と全く同じ  $T_{1/2}$  依存性を示す。従って、この 2 つの金属では C, Cl, I とイオンを変えることによってステージ I が減少するのは、低エネルギーイオン照射の場合と同じく、照射イオンと金属原子との弾性的相互作用によって照射中の欠陥消滅が起こるためであると考えられる。これに対して Al, Ni の場合は、高エネルギーイオン照射におけるステージ I 回復量の  $T_{1/2}$  依存性は低エネルギーイオン照射の場合と大きく異なる。同じ  $T_{1/2}$  の値の所で比較すると、高エネルギーイオン照射におけるステージ I 回復量は低エネルギーイオン照射における結果より小さくなり、照射イオンの質量が増加すると両者の差はより広がる。低エネルギーイオン照射や Cu, Ag の高エネルギーイオン照射においてはステージ I の回復量の照射イオン依存性を非常に良く記述したパラメーター  $T_{1/2}$  は、Al, Ni の高エネルギーイオン照射ではもはやそうではない。従って、イオンと金属原子との弾性的相互作用

以外の要因が高エネルギーイオン照射したAl, NiのステージIの回復量を大きく減少させたと考えられる。

ステージIの回復量が大きく減少した原因としてまず考えられるのは、高エネルギー重イオンによる発熱で照射中試料全体の温度がステージIの回復の現れる温度以上に上昇したのではないかと、いうことである。もし、イオンビームによる発熱がステージIの回復量の減少、消滅をもたらしたのならば、イオンビームによって試料部分に供給される熱量とステージI回復量との間には大きな相関が見られるはずである。そこで表3.7にはNiの各イオン照射において、イオンのエネルギー $E_0$ 、イオンビーム電流の平均値 $\bar{I}$ 及びイオンビームによって単位時間中に試料部分に供給される熱量 $P = E_0 \times \bar{I}$ とステージIにおける欠陥回復量を示す。表から判るように、イオンによる熱量とステージIの回復量には相関は見られない。例えば、ステージIの回復が大きく現れる84 MeVのCイオン照射の場合、イオンビームが300 mWの熱量をもたらしているのに対し、ステージIの消滅したBr, Iイオン照射では90-130 mWと、Cイオン照射の場合と比べて1/3程度の熱量である。このことは、イオンビームによる試料の発熱及び温度上昇によってステージの回復量が減少したのではないことを示している。さらに、以下のような簡単な熱計算によっても照射中の試料の温度上昇が僅かなものであることを知ることができる。

図3.14は高エネルギーイオン照射時に用いた試料ホルダー部分の形状を示したものである。Aは試料薄膜、BはAl基板、CはCuでできた試料ホルダー、Dは熱電対、Eは液体ヘリウムタンク、そしてFは液体ヘリウム温度のサーマルシールドである。高エネルギーイオンを照射中、熱電対の示した温度は12 K以下であった。Al基板、Cuホルダーの厚さと熱伝導率の値を用いれば、次式により定常的な熱の流れが起きている場合の試料の温度を大ざっぱに見積ることができる(試料薄膜とAl基板の間には $Al_2O_3$ の絶縁膜がある。この層に関しては、Cu, Alよりも1-2桁小さい熱伝導率が予想されるが<sup>[69]</sup>、層の厚さは約2000 Åであり、Cuホルダー、Al基板の厚さよりも4桁小さい。従って、この層の熱抵抗への寄与は無視できる。)

$$T - T_0 = LQ / KA \quad \dots\dots\dots (3.16)$$

ここで、Tは試料温度、KはCuホルダー及びAl基板の熱伝導率、LはAl基板+Cuホルダーの厚さ、 $T_0$ は熱電対部分の温度、Aは照射面積、そしてQは単位時間にイオンビームによって試料に供給された熱量である。 $T_0 < 12 K$ ,  $L = 0.3 + 0.15 \text{ cm}$ ,  $Q = 0.1 \text{ W}$  (これは $3 \text{ mm} \times 6 \text{ mm}$ のスリットを通して1 particle nAの100 MeV Iイオンビームを照射した場合の値である。),  $A = 0.3 \times 0.6 \text{ cm}^2$ , そして $K = 0.2 \text{ W/cm/deg}$  (これはAl, Cuにおいて10 K付近で測定された熱伝導率のうち、最も小さい値である<sup>[70]</sup>。)を上式に代入することにより、試料の温度Tと $T_0$ との差は、

$$T - T_0 \leq 1.5 \text{ deg} \quad \dots\dots\dots (3.17)$$

であることが判る。AlのステージIは主として15 K以上、NiのステージIは主として20 K以上に現れるので、このような僅かな温度上昇はNi, AlのステージIの回復に影響

を及ぼすことはない。

以上の議論から、高エネルギー重イオン照射したAl, NiにおいてステージIが著しく減少、或は消滅したのは、一個一個のイオンとターゲット金属との相互作用による効果であると結論できる。

さて、100MeV領域の高エネルギー重イオンがターゲット金属に与える効果のうち、1MeV領域の低エネルギーイオンや中性子と大きく異なる点は、それが金属内の電子を高密度に励起することである。電子励起の大きさを示す量はエレクトロニックストッピングパワーである。そこで、イオンによる電子励起がステージIの回復量の減少に寄与しているかどうかをみるためにNiにおいてステージIの回復量をエレクトロニックストッピングパワーに対してプロットしてみた(図3.15)。エレクトロニックストッピングパワーの値は表3.5, 3.6に与えてある。エレクトロニックストッピングパワーの増加につれてステージI回復量が減少していく。そして図3.13(d)と3.15から、NiにおけるステージI回復量の照射イオン依存性は、PKAメディアンエネルギー $T_{1/2}$ よりもエレクトロニックストッピングパワーによって、はるかに良く記述できることがわかる。従って、図3.15は、イオンによる電子励起が高エネルギー重イオン照射したNiのステージIの減少に大きな寄与をしていることを示している。もちろん、高エネルギーイオン照射の場合も、低エネルギーイオン照射の時と同じようにイオンと金属原子との弾性的相互作用もステージIの減少に寄与するはずである。ここで、近似的に電子励起と弾性的相互作用のステージIに対する寄与が加算的であると考え。つまり、図3.13(a)~(d)で同じ $T_{1/2}$ の所での低エネルギーイオン照射におけるステージIの回復量と、高エネルギーイオン照射における回復量との差が電子励起によるステージIの減少分であるとする。図3.16に電子励起によるものと思われるステージIの減少分をエレクトロニックストッピングパワーの関数としてプロットした。Cu, Agでは、エレクトロニックストッピングパワーが増加しても電子励起によるステージIの減少はみられない。これに対して、Ni, Alではエレクトロニックストッピングパワーがある値を越えると、ステージIの回復量が急激に減少する。Ni, Alにおける実験結果は、これらの金属において電子励起の大きさがある値を越えると、単独で存在する格子間原子(これは本来ならば照射後のアニーリング実験においてステージIの温度領域で回復すべきものである)がイオン照射中に電子励起の効果で消滅していることを示している。照射欠陥の一部が電子励起によって消滅するということは、励起された電子のエネルギーが格子系へ伝達され、原子の運動(格子系の励起)が起こされたことを示すものである。そしてイオンによる電子励起が大きいほど格子系へ伝達されるエネルギーも大きくなり、従って、大きな格子系の励起が起こることも実験結果から判る。Niの場合、Cイオンによる電子励起は大きなものでなく、引き起こされる格子系の励起(原子の運動)も欠陥の消滅をもたらすほど大きくない。よって、ステージIへの電子励起の影響はみられない。Fイオンでは励起電子のエネルギーの格子系への伝達により、主にフレンケル近接対の消滅が促進される。そしてBr, Iイオンでは、それによる電子励起が大きいので、格子系への伝達エネルギーも大きく、それによって引き起こされる原子の運動は、単独で存在する格子間原子を消滅させるだけでなく、より安定な格子間原子集

合体の一部までをも消滅させる。そのため、Br, I イオン照射では、ステージ I の回復がほとんどなくなるだけでなく、ステージ II の低温側のサブステージも消滅する。Al においても電子励起の効果がステージ I の減少として現れることから、励起電子系から伝達されたエネルギーが格子系の励起を起こしたことがわかるが、その大きさは Ni の場合と比較すると小さい。ところが Cu, Ag の場合、電子励起による照射欠陥の消滅は殆ど起こらない。これは励起電子系から格子系へ伝達されたエネルギーが照射欠陥を消滅させるほどの大きな格子系の励起を起こさなかったことを意味している。従って、次に明らかにすべきことは

- ① 励起電子系からのエネルギー伝達によって格子系の励起（原子の運動）が起こるメカニズムは何か？
- ② 励起電子系から伝達されたエネルギーによる格子系の励起の大きさが金属の種類に依存するのはなぜか？

ということである。

高エネルギー重イオンにより励起された電子から格子系へのエネルギー伝達については、古くから核分裂生成物 (fission fragment) による絶縁体中のトラック形成の研究過程においていろいろなメカニズムのモデルが提案されている [4][71-74]。さらに近年、高エネルギーイオンによる凝集ガス、アルカリハライド、酸化物等に見られる非常に大きなスパッタリング率を、トラック形成について提案されたモデルを用いて説明しようとする試みが成されている [75]。

提案されたモデルのうち主なものは、(1)イオン爆発モデル (ion explosion model) [4][71] と (2)熱スパイクモデル [72-74] である。(1)は照射イオンの飛跡に沿って電子が励起、電離されるため、残された原子は正の電荷を持つことになり、クーロン力によって爆発的に反発し合う結果、原子の運動が引き起こされるというものである。(2)はイオンによって励起された電子系のエネルギーが電子格子相互作用によって格子系に伝達され、格子振動を励起しイオンの軌道に沿って局所的な温度上昇が起こるため原子の運動が促進される、というものである。

上のモデルを用いて本実験の結果を説明できるかどうかを考察してみる。まず(1)のイオン爆発モデルについて考える。このモデルを金属に応用する場合、電子が励起されることにより原子間ポテンシャルが変化し、そのために原子の移動が起こると考えられる。ポテンシャルの変化はどのような種類の電子がどのくらい励起されるかに依存する。ここで電子励起の効果が大きく現れた Ni と殆ど現れなかった Cu について比較する。この2つの金属は周期律表で隣同士であり、各原子に対する電子の個数や配置 (s 電子, d 電子等それぞれの数) もほぼ等しい。また、エネルギーの等しい同一のイオンに対するエレクトロニックストッピングパワーもほぼ同じである。以上のことから、イオンによる電子励起の初期状態は Ni, Cu ではほぼ等しいと考えられる。従って、電子励起による原子間ポテンシャルの変化も同程度と期待され、このモデルでは、Ni と Cu における実験結果の大きな違いを説明することができない。(Seitz は、金属の原子同士が短距離で及ぼし合う力は d 電子に大きく支配されるので、もし、d 電子を多く有した金属において d 電子が多数

励起された場合、原子間の力が大きく変化して原子の運動が生じる可能性がある、としている。そしてd電子を各原子において10個持つCuをその例として挙げている〔5〕。しかし、本実験ではCuにおいて電子励起の効果は殆ど現れない。)

イオンによって励起された電子はその後まず他の伝導電子と衝突を繰り返しながらエネルギーを失っていき、電子系が格子系に比べて高い温度での平衡状態に達すると考えられる。次にこの熱い電子系のエネルギーが電子格子相互作用により格子系に伝達され、格子の振動、局所的な格子温度の上昇を引き起こす。これが〔2〕の熱スパイクモデルに相当するものである。このモデルにおいて重要なパラメータは各金属における電子格子相互作用の大きさである。電子格子相互作用の大きさは電子がフォノンによって、あるいはフォノンが電子によって散乱される大きさによって決定される。ここでは格子熱伝導率(lattice thermal conductivity)から求められる電子格子相互作用を考えることにする。金属の熱伝導率は電子によるものとフォノンによるものと和で表されるが、合金化し、しかも十分焼鈍して転位を除いた金属の熱伝導率を低温で測定することにより、格子熱伝導率のうち電子格子相互作用による項 $k_{pe}$ を分離して求めることができる〔76〕。 $k_{pe}$ の逆数(熱抵抗)を $W_{pe}$ とすると $W_{pe}$ は $(\theta/T)^2$ に比例する。 $T$ は温度、 $\theta$ はデバイ温度である。そして $(\theta/T)^2$ の係数

$$W_0 = \lim_{T \rightarrow 0} [W_{pe}(T)(T/\theta)^2] \dots\dots\dots (3.18)$$

が電子格子相互作用の大きさを表す量となる〔77〕。

Butler, Williamsは格子熱伝導率の実験結果を解析して各種金属の $W_0$ の値を求め、理論的に評価された値と良く一致することを示している〔77〕(表3.8, 図3.17)。表3.8, 図3.17から判るように、FCC金属における電子格子相互作用はCu, Agでは小さくPd, Ptでは大きい。Alはその中間である。電子格子相互作用の大きさ $W_0$ をフェルミ面における電子の状態密度 $N(0)$ でプロットしたのが図3.18である。 $N(0)$ が大きいと $W_0$ が大きくなる傾向のあることが判る。Niの $W_0$ の値は文献〔77〕に示されていない。しかし、Niの $N(0)$ は電子比熱の係数 $\gamma$ からPdとPtとの中間の値をとる〔78〕。従って、Niでは周期律表で同じ族に属するPd, Pt同様大きな電子格子相互作用が期待できる。

さて、これら各金属における電子格子相互作用の大きさとステージIの減少として現われる電子励起の効果とは大きく関係している。電子格子相互作用の大きい金属ほど電子励起効果が大きく現れるのである。このことから図3.16に示される実験結果は次のように説明することができる。

Niでは大きな電子格子相互作用のために、電子間の相互作用によるエネルギー拡散と比べて励起電子系から格子系へのエネルギー伝達が早く起こり、このためイオンビームの軌道に沿った狭い領域にエネルギーが伝達されることになる。その結果局所的な格子振動(局所的な温度上昇)が励起され、照射欠陥の一部が消滅したのである。一方、Cu, Agでは電子格子相互作用が小さいので、励起電子系のエネルギーは空間的に拡散した後格子系に伝達される。このため励起される格子振動は照射欠陥を消滅させるほど大きなものにはならず、従って、ステージIの回復量は電子励起の影響をうけなかったと考えられる。



本実験では、格子振動に対して極めて不安定な格子間原子をプローブとして、金属における小さな電子格子相互作用によるわずかな格子振動をとらえたものであり、金属の照射損傷において照射イオンによる電子励起が重要な役割を演ずることを初めて示したものである。

表 3.1 各金属におけるフレンケル対1 at.%の濃度当りの電気抵抗寄与率  
[41, 42]

金 属	Al	Cu	Ag	Ni
$\rho_F (\mu\Omega\text{cm})$	3.9	2.0	2.1	6.0

表 3.2 (1) 試料の厚さ, 液体ヘリウム温度における比抵抗  $\rho_0$ , 照射イオン種, エネルギー  $E_0$ , 照射による比抵抗増加量  $\Delta\rho_0$ , 及び照射により導入された欠陥の濃度  $C(0)$  (低エネルギーイオン照射の場合)

試料	厚さ ( $\mu\text{m}$ )	液体He 温度にお ける比抵抗 $\rho_0$ ( $\Omega\text{cm}$ )	照射イオン	エネルギー $E_0$ (MeV)	照射による 抵抗増加 $\Delta\rho_0$ ( $\Omega\text{cm}$ )	照射欠陥 濃度 $C(0)$
Al	0.209	$2.95 \times 10^{-7}$	$^1\text{H}$	0.52	$5.72 \times 10^{-7}$	$1.47 \times 10^{-3}$
Al	0.209	$2.84 \times 10^{-7}$	$^4\text{He}$	1.54	$5.69 \times 10^{-7}$	$1.46 \times 10^{-3}$
Al	0.209	$4.58 \times 10^{-7}$	$^{14}\text{N}$	1.04	$6.28 \times 10^{-7}$	$1.61 \times 10^{-3}$
Al	0.209	$2.86 \times 10^{-7}$	$^{40}\text{Ar}$	1.43	$5.66 \times 10^{-7}$	$1.45 \times 10^{-3}$
Cu	0.221	$3.15 \times 10^{-7}$	$^1\text{H}$	0.54	$3.05 \times 10^{-7}$	$1.53 \times 10^{-3}$
Cu	0.213	$3.71 \times 10^{-7}$	$^1\text{H}$	1.01	$3.35 \times 10^{-7}$	$1.68 \times 10^{-3}$
Cu	0.196	$2.61 \times 10^{-7}$	$^4\text{He}$	0.60	$2.89 \times 10^{-7}$	$1.45 \times 10^{-3}$
Cu	0.218	$2.00 \times 10^{-7}$	$^4\text{He}$	1.50	$2.86 \times 10^{-7}$	$1.43 \times 10^{-3}$
Cu	0.195	$3.31 \times 10^{-7}$	$^{14}\text{N}$	1.30	$3.29 \times 10^{-7}$	$1.65 \times 10^{-3}$
Cu	0.199	$4.75 \times 10^{-7}$	$^{40}\text{Ar}$	1.80	$3.43 \times 10^{-7}$	$1.72 \times 10^{-3}$

表 3.2 (2) 試料の厚さ, 液体ヘリウム温度における比抵抗  $\rho_0$ , 照射イオン種, エネルギー  $E_0$ , 照射による比抵抗増加量  $\Delta\rho_0$ , 及び照射により導入された欠陥の濃度  $C(0)$  (低エネルギーイオン照射の場合)

試料	厚さ ( $\mu\text{m}$ )	液体He温度にお ける比抵抗 $\rho_0$ ( $\Omega\text{cm}$ )	照射イオン	エネルギー $E_0$ (MeV)	照射による 抵抗増加 $\Delta\rho_0$ ( $\Omega\text{cm}$ )	照射欠陥 濃度 $C(0)$
Ag	0.242	$2.47 \times 10^{-7}$	$^1\text{H}$	0.50	$2.73 \times 10^{-7}$	$1.30 \times 10^{-3}$
Ag	0.247	$2.70 \times 10^{-7}$	$^1\text{H}$	1.50	$3.02 \times 10^{-7}$	$1.44 \times 10^{-3}$
Ag	0.247	$2.49 \times 10^{-7}$	$^4\text{He}$	0.70	$2.94 \times 10^{-7}$	$1.40 \times 10^{-3}$
Ag	0.242	$2.44 \times 10^{-7}$	$^4\text{He}$	1.30	$2.45 \times 10^{-7}$	$1.17 \times 10^{-3}$
Ag	0.261	$2.48 \times 10^{-7}$	$^4\text{He}$	1.50	$3.20 \times 10^{-7}$	$1.52 \times 10^{-3}$
Ag	0.247	$2.52 \times 10^{-7}$	$^4\text{He}$	1.60	$3.00 \times 10^{-7}$	$1.43 \times 10^{-3}$
Ag	0.242	$2.75 \times 10^{-7}$	$^{14}\text{N}$	1.30	$3.05 \times 10^{-7}$	$1.45 \times 10^{-3}$
Ag	0.242	$2.99 \times 10^{-7}$	$^{40}\text{Ar}$	1.82	$3.06 \times 10^{-7}$	$1.46 \times 10^{-3}$
Ni	0.240	$2.70 \times 10^{-6}$	$^1\text{H}$	0.50	$5.05 \times 10^{-7}$	$8.42 \times 10^{-4}$
Ni	0.240	$2.74 \times 10^{-6}$	$^3\text{He}$	0.70	$5.10 \times 10^{-7}$	$8.50 \times 10^{-4}$
Ni	0.240	$2.68 \times 10^{-6}$	$^4\text{He}$	1.50	$5.07 \times 10^{-7}$	$8.45 \times 10^{-4}$
Ni	0.232	$2.79 \times 10^{-6}$	$^{14}\text{N}$	1.30	$4.95 \times 10^{-7}$	$8.25 \times 10^{-4}$
Ni	0.232	$2.86 \times 10^{-6}$	$^{40}\text{Ar}$	1.80	$5.09 \times 10^{-7}$	$8.48 \times 10^{-4}$

表 3.3 試料の厚さ, 液体ヘリウム温度における比抵抗  $\rho_0$ , 照射イオン種, エネルギー  $E_0$ , 照射による比抵抗増加量  $\Delta\rho_0$ , 及び照射により導入された欠陥の濃度  $C(0)$  (高エネルギーイオン照射の場合)

試料	厚さ ( $\mu\text{m}$ )	液体He 温度にお ける比抵抗 $\rho_0$ ( $\Omega\text{cm}$ )	照射イオン	エネルギー $E_0$ (MeV)	照射による 抵抗増加 $\Delta\rho_0$ ( $\Omega\text{cm}$ )	照射欠陥 濃度 $C(0)$
Al	0.620	$1.83 \times 10^{-7}$	$^{35}\text{Cl}$	90	$5.43 \times 10^{-7}$	$1.39 \times 10^{-3}$
Al	0.551	$1.50 \times 10^{-7}$	$^{127}\text{I}$	100	$5.05 \times 10^{-7}$	$1.29 \times 10^{-3}$
Cu	0.237	$2.63 \times 10^{-7}$	$^{12}\text{C}$	84	$2.42 \times 10^{-7}$	$1.21 \times 10^{-3}$
Cu	0.195	$3.16 \times 10^{-7}$	$^{35}\text{Cl}$	126	$3.12 \times 10^{-7}$	$1.56 \times 10^{-3}$
Cu	0.203	$1.76 \times 10^{-7}$	$^{127}\text{I}$	120	$3.03 \times 10^{-7}$	$1.52 \times 10^{-3}$
Ag	0.245	$2.45 \times 10^{-7}$	$^{35}\text{Cl}$	120	$3.01 \times 10^{-7}$	$1.43 \times 10^{-3}$
Ag	0.243	$1.83 \times 10^{-7}$	$^{127}\text{I}$	120	$2.92 \times 10^{-7}$	$1.39 \times 10^{-3}$
Ni	0.239	$2.59 \times 10^{-6}$	$^{12}\text{C}$	84	$4.99 \times 10^{-7}$	$8.32 \times 10^{-4}$
Ni	0.245	$2.89 \times 10^{-6}$	$^{19}\text{F}$	115	$4.98 \times 10^{-7}$	$8.30 \times 10^{-4}$
Ni	0.256	$3.05 \times 10^{-6}$	$^{28}\text{Si}$	120	$4.98 \times 10^{-7}$	$8.30 \times 10^{-4}$
Ni	0.241	$2.98 \times 10^{-6}$	$^{35}\text{Cl}$	120	$4.28 \times 10^{-7}$	$7.13 \times 10^{-4}$
Ni	0.251	$2.65 \times 10^{-6}$	$^{81}\text{Br}$	100	$5.03 \times 10^{-7}$	$8.38 \times 10^{-4}$
Ni	0.253	$2.62 \times 10^{-6}$	$^{127}\text{I}$	100	$7.17 \times 10^{-7}$	$1.20 \times 10^{-3}$

表 3.4 各金属における平均的はじきだしエネルギー  $E_d$  [52]

金 属	Al	Cu	Ag	Ni
$E_d$	27 eV	29 eV	39 eV	33 eV

表 3.5 各金属-イオンの組合せに対するイオンのエネルギー  $E_0$ , 試料中のイオンの平均エネルギー  $\bar{E}$ , PKAメディアンエネルギー  $T_{1/2}$ , エレクトロニックストッピングパワー  $S_e$  及びステージ I 回復量 (低エネルギーイオン照射の場合)

試料	イオン	エネルギー $E_0$ (MeV)	平均エネルギー $\bar{E}$ (MeV)	$T_{1/2}$ (KeV)	$S_e$ (MeV/(mg/cm <sup>2</sup> ))	ステージ I 回復量 (%)
Al	<sup>1</sup> H	0.52	0.51	0.66	0.26	44
Al	<sup>4</sup> He	1.54	1.51	1.27	1.11	43
Al	<sup>14</sup> N	1.04	0.92	3.35	4.02	39
Al	<sup>40</sup> Ar	1.43	1.27	10.9	5.06	37
Cu	<sup>1</sup> H	0.54	0.52	0.61	0.16	46
Cu	<sup>1</sup> H	1.01	1.00	0.78	0.12	45
Cu	<sup>4</sup> He	0.60	0.54	1.48	0.65	43
Cu	<sup>4</sup> He	1.50	1.43	1.83	0.67	42
Cu	<sup>14</sup> N	1.30	1.12	7.14	2.04	32
Cu	<sup>40</sup> Ar	1.80	1.48	28.9	3.45	24
Ag	<sup>1</sup> H	0.50	0.48	0.58	0.14	27
Ag	<sup>1</sup> H	1.50	1.49	0.91	0.08	23
Ag	<sup>4</sup> He	0.70	0.62	1.66	0.62	21
Ag	<sup>4</sup> He	1.30	1.23	2.00	0.59	20
Ag	<sup>4</sup> He	1.50	1.42	2.14	0.57	20
Ag	<sup>4</sup> He	1.60	1.53	2.10	0.56	20
Ag	<sup>14</sup> N	1.30	1.06	9.12	1.87	14
Ag	<sup>40</sup> Ar	1.82	1.49	42.5	2.31	8
Ni	<sup>1</sup> H	0.50	0.48	0.64	0.18	58
Ni	<sup>3</sup> He	0.70	0.61	1.40	0.80	56
Ni	<sup>4</sup> He	1.50	1.42	1.94	0.74	55
Ni	<sup>14</sup> N	1.32	1.07	7.21	2.41	46
Ni	<sup>40</sup> Ar	1.80	1.46	28.4	2.94	42

表 3.6 各金属-イオンの組合せに対するイオンのエネルギー  $E_0$ , 試料中のイオンの平均エネルギー  $\bar{E}$ , PKAメディアンエネルギー  $T_{1/2}$ , エレクトロニックストッピングパワー  $Se$  及びステージ1回復量(高エネルギーイオン照射の場合)

試料	イオン	エネルギー $E_0$ (MeV)	平均エネルギー $\bar{E}$ (MeV)	$T_{1/2}$ (KeV)	$Se$ (MeV/(mg/cm <sup>2</sup> ))	ステージ1 回復量 (%)
Al	<sup>35</sup> Cl	90	88.7	2.28	15.1	35
Al	<sup>127</sup> I	100	96.5	9.56	46.3	19
Cu	<sup>12</sup> C	84	83.9	3.45	1.10	39
Cu	<sup>35</sup> Cl	126	125.1	6.37	10.3	32
Cu	<sup>127</sup> I	120	117.0	32.9	33.1	21
Ag	<sup>35</sup> Cl	120	118.9	13.8	8.42	13
Ag	<sup>127</sup> I	120	116.5	73.9	27.2	7
Ni	<sup>12</sup> C	84	83.9	3.49	1.32	51
Ni	<sup>19</sup> F	115	114.7	4.05	3.13	35
Ni	<sup>28</sup> Si	120	119.1	5.27	7.48	12
Ni	<sup>35</sup> Cl	120	118.8	6.36	11.2	7
Ni	<sup>81</sup> Br	100	97.1	17.8	26.0	7
Ni	<sup>127</sup> I	100	96.3	34.4	32.2	3

表 3.7 Niの各イオン照射における、イオンのエネルギー  $E_0$ 、イオンビーム電流の平均値  $\bar{I}$ 、イオンビームにより単位時間に試料に与えられる熱量  $P$ 、及びステージ I における欠陥回復量

イオン	エネルギー $E_0$ (MeV)	ビーム電流の 平均値 $\bar{I}$ (particle nA)	熱 量 $P$ (mW)	ステージ I 回復量 (%)
$^1\text{H}$	0.5	4 1.5	2 1	5 8
$^3\text{He}$	0.7	2 1.3	1 5	5 6
$^4\text{He}$	1.5	2 8.1	4 2	5 5
$^{14}\text{N}$	1.3 2	6.0	7.9	4 6
$^{40}\text{Ar}$	1.8	1.9	3.4	4 2
$^{12}\text{C}$	8 4	3.6	3 0 2	5 1
$^{19}\text{F}$	1 1 5	1.6	1 8 4	3 5
$^{28}\text{Si}$	1 2 0	1.0	1 2 0	1 2
$^{35}\text{Cl}$	1 2 0	1.0	1 2 0	7
$^{81}\text{Br}$	1 0 0	1.3	1 3 0	7
$^{127}\text{I}$	1 0 0	0.9	9 0	3

表 3.8 各種金属における電子格子相互作用の大きさを表す熱抵抗  $W_0$  の実験値と計算値  
(文献 [77] から引用)

Element	$\theta_D$ (K)	$\langle \omega^{-1} \rangle^{-1}$ (K)	$\Omega_0 V^3$ (Å)	N(states/eV)	$\lambda$	Experimental		Experimental technique*	$W_0$
						$W_0$ (cmK/W)	$W_0$		
Cu	342	210	2.27	0.13	0.14±0.04	0.0047±0.0014		A	0.018±0.006
Ag	228	140	2.57	0.13	0.10±0.04	0.009 ±0.0014		A	0.014±0.006
Au	165	169	2.57	0.14	0.14±0.04	0.012 ±0.004		A	0.036±0.01
Be	1160	(0.6 $\theta_D$ )	2.00	0.040	0.23	0.0037		A	0.0078
Be						0.0028		B	
Al	430	265	2.55	0.20	0.43	0.058 ±0.005		A	0.096
Al						0.054		B	
Ga	320	(0.6 $\theta_D$ )	2.70	0.091	0.40	0.018		A	0.042
Ga						0.014		B	
In	112	80	2.90	0.20	0.83	0.15 ±0.06		A	0.24
In						0.084		B	
Sn	200	110	3.00	0.22	0.72	0.26		A	0.18
Sn						0.067		B	
Nb	277	182	2.62	0.84	0.97	0.43		A	0.98
Ta	260	153	2.62	0.75	0.69	0.22 ±0.06		A	0.56
Ta						0.54 ±0.24		C	
Mo	460	261	2.50	0.27	0.44	0.10 ±0.04		C	0.12
W	388	219	2.51	0.15	0.28	0.013		B	0.042
W						0.023 ±0.009		C	
W						0.007		D	
Fe	470	283	2.27	(0.76)	(0.17)	0.12 ±0.03		C	(0.12)
Pd	283	182	2.45	1.17	(0.29)	0.40 ±0.08		A	0.38
Pt	234	(0.6 $\theta_D$ )	2.47	0.86	(0.27)	0.15 ±0.08		A	0.24

\* A, low-T alloying; B, low-Tmagnetothermal resistance; intermediate-T alloying; D, intermediate-Tmagnetothermal resistance.



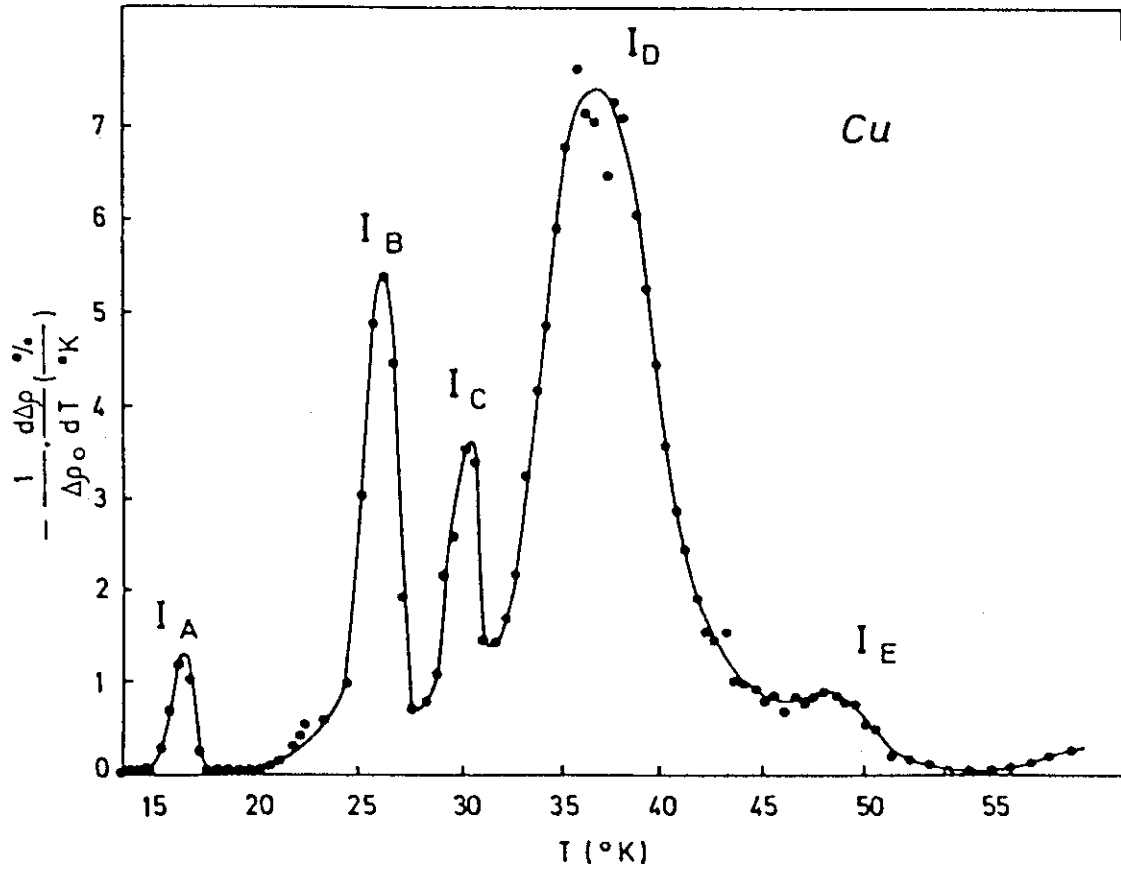


図 3.1 極低温電子線照射における Cu のステージ I のサブステージ [21]

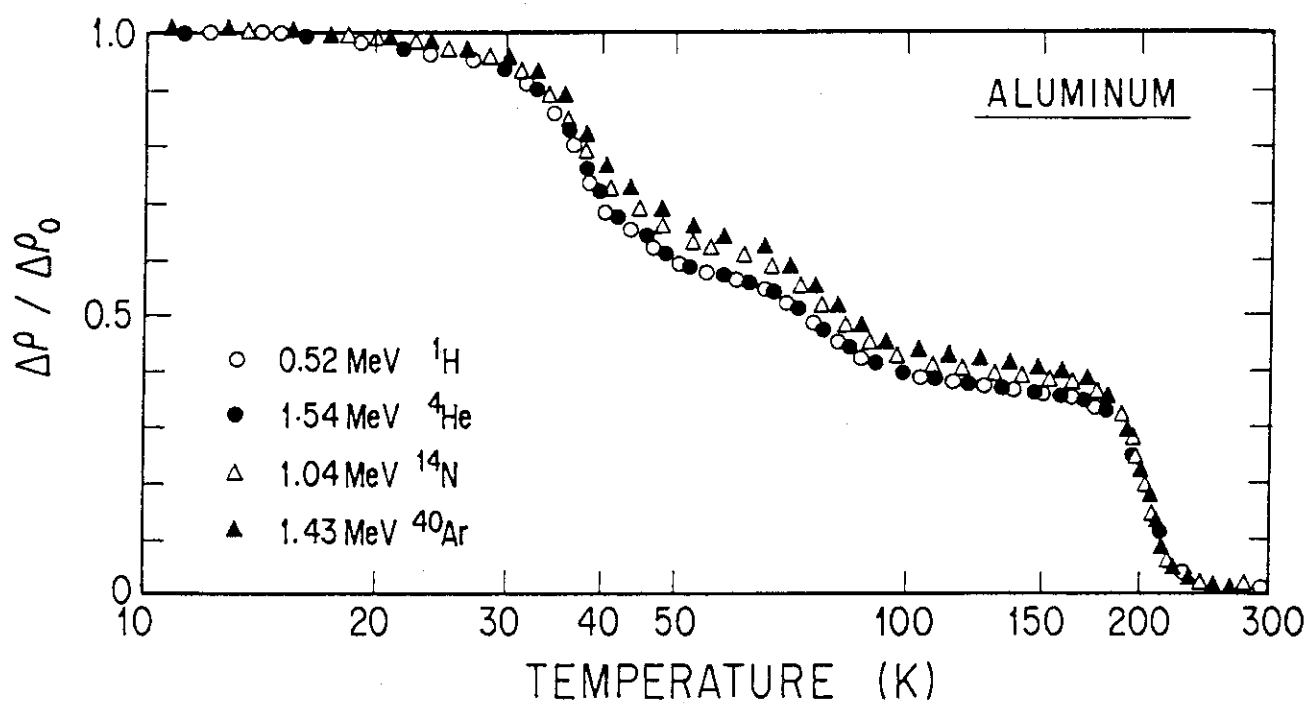


図 3.2(a) 低エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線  $\Delta\rho / \Delta\rho_0$  のアニーリング温度依存性 (Aluminum)

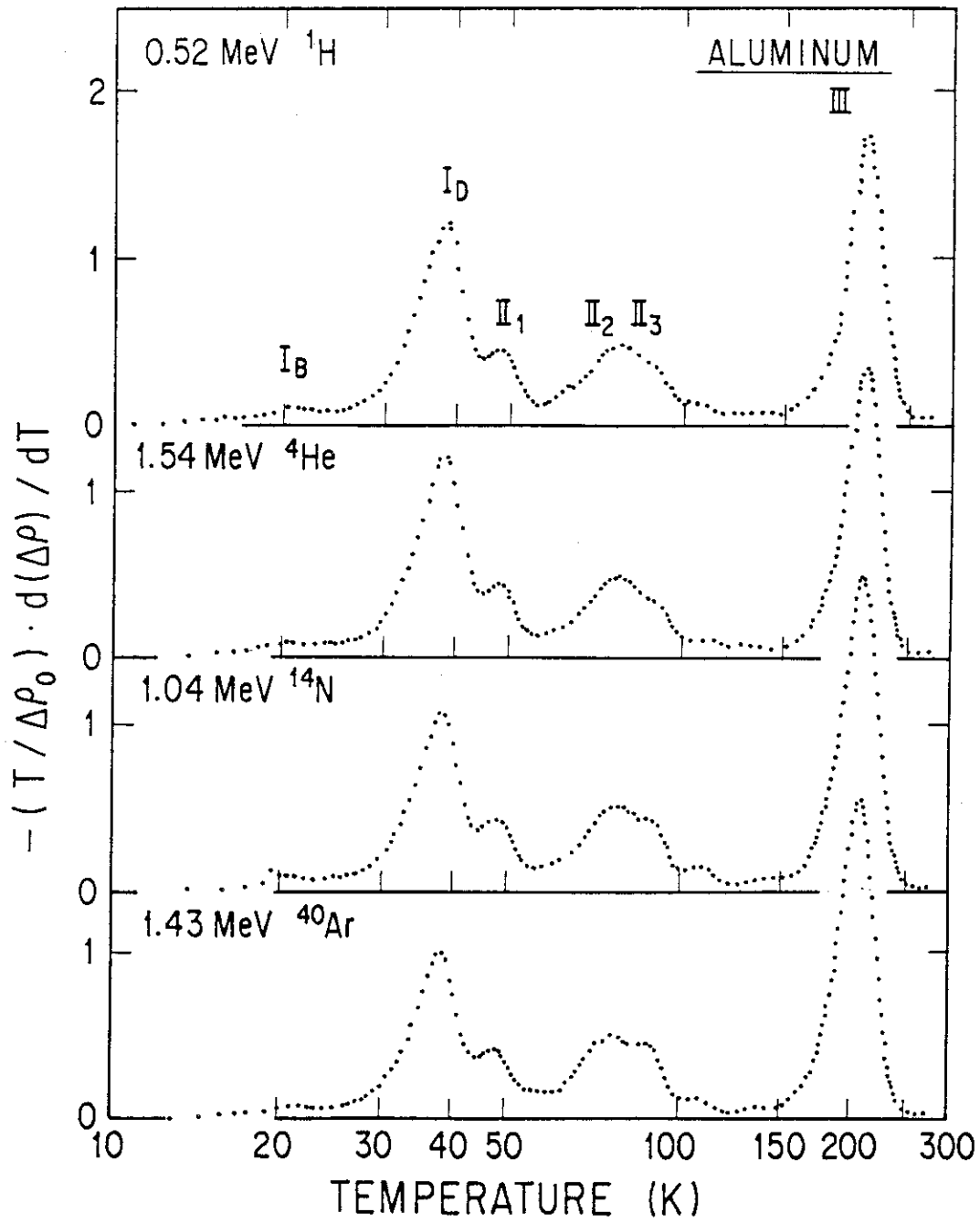


図 3.2 (b) 低エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線をアニーリング温度  $T$  の対数  $\log(T)$  で微分した  $-(T/\Delta\rho_0) \cdot d(\Delta\rho)/dT$  の  $T$  依存性 (Aluminum)

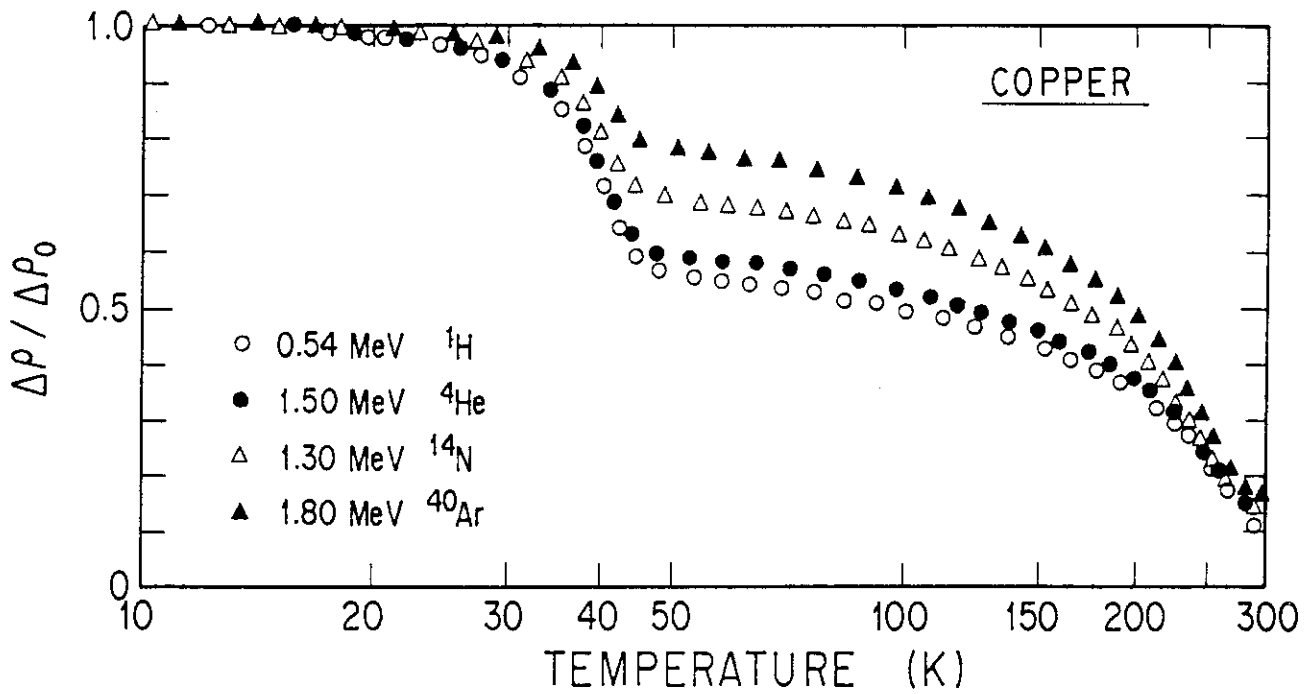


図 3.3(a) 低エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線  $\Delta\rho/\Delta\rho_0$  のアニーリング温度依存性 (Copper)

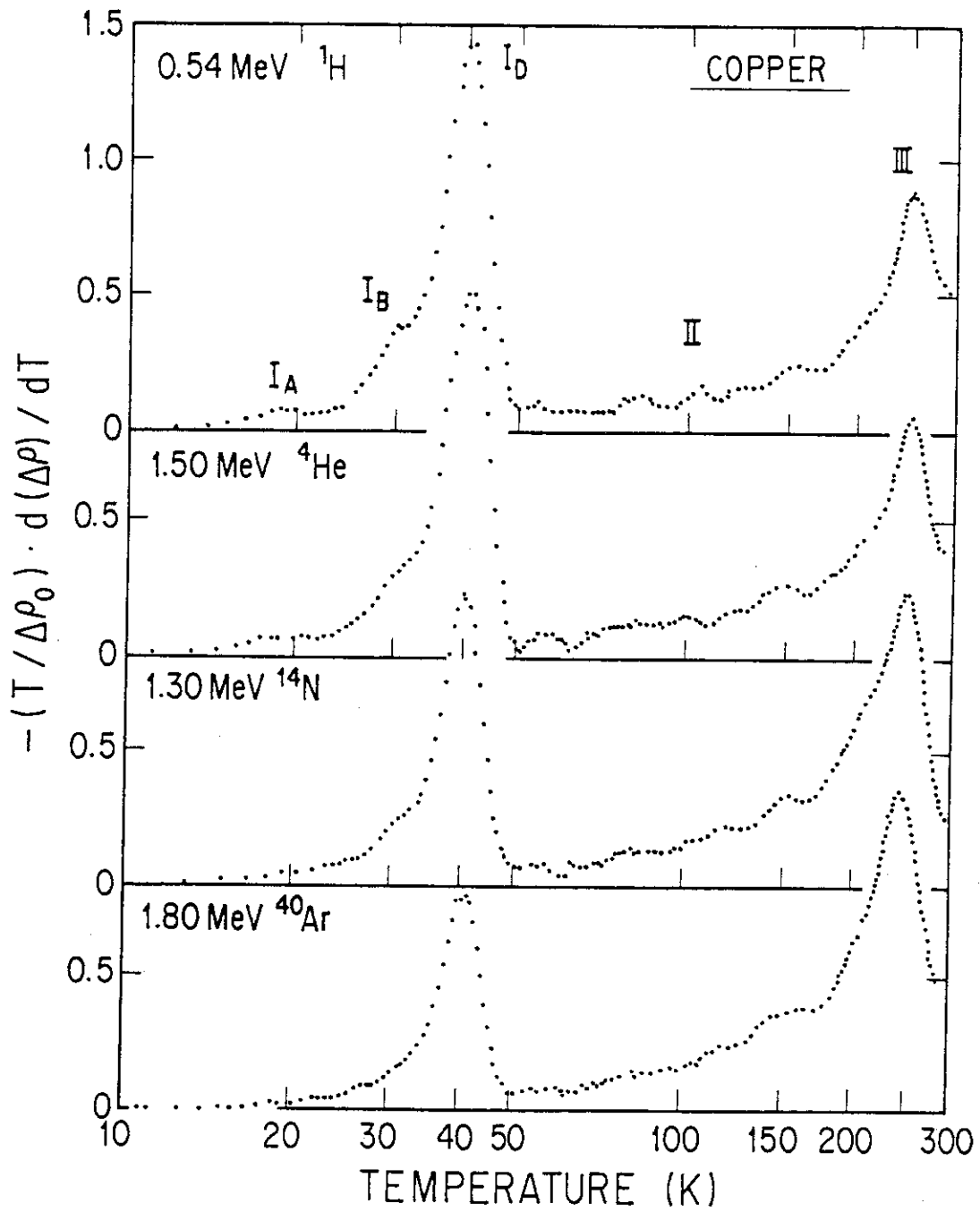


図 3.3(b) 低エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線をアニーリング温度  $T$  の対数  $\log(T)$  で微分した  $-(T/\Delta\rho_0) \cdot d(\Delta\rho)/dT$  の  $T$  依存性 (Copper)

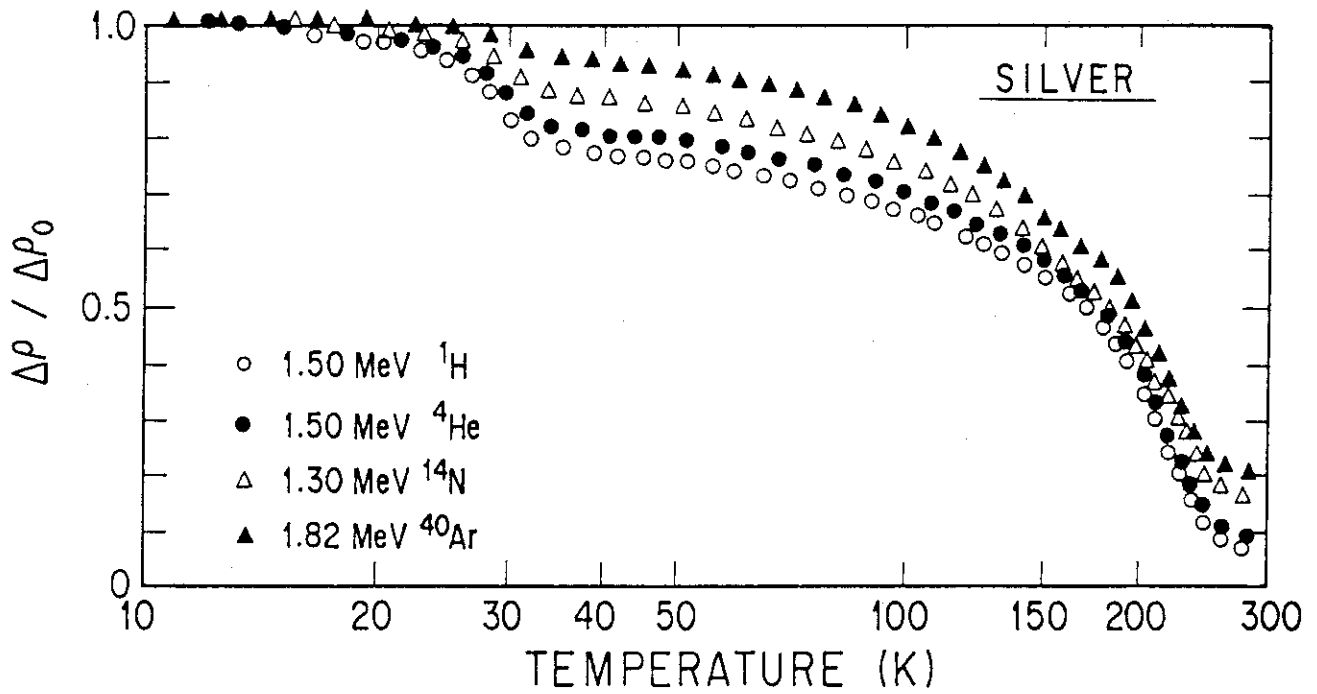


図 3.4(a) 低エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線  $\Delta\rho/\Delta\rho_0$  のアニーリング温度依存性 (Silver)

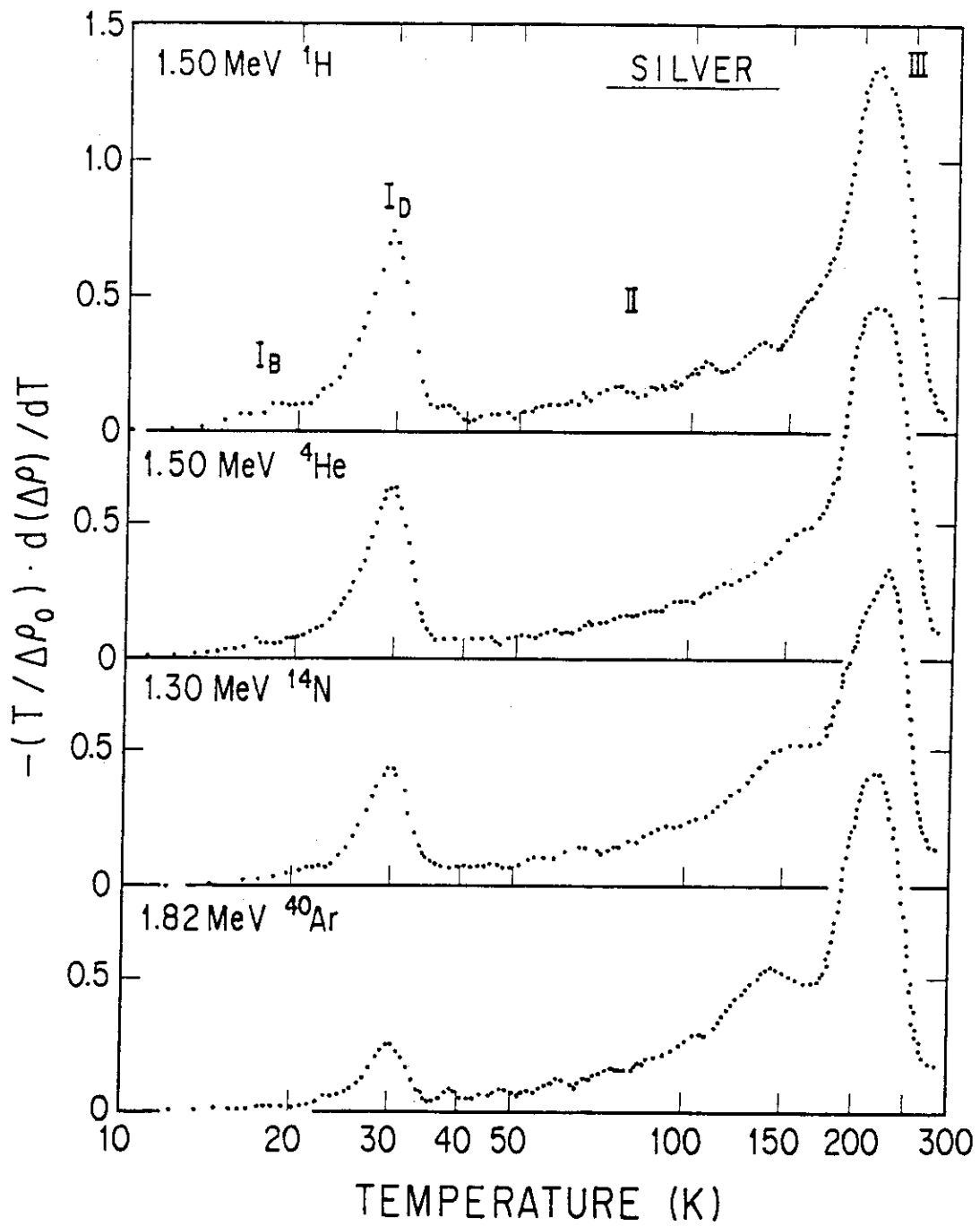


図 3.4(b) 低エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線をアニーリング温度  $T$  の対数  $\log(T)$  で微分した  $-(T/\Delta\rho_0) \cdot d(\Delta\rho)/dT$  の  $T$  依存性 (Silver)

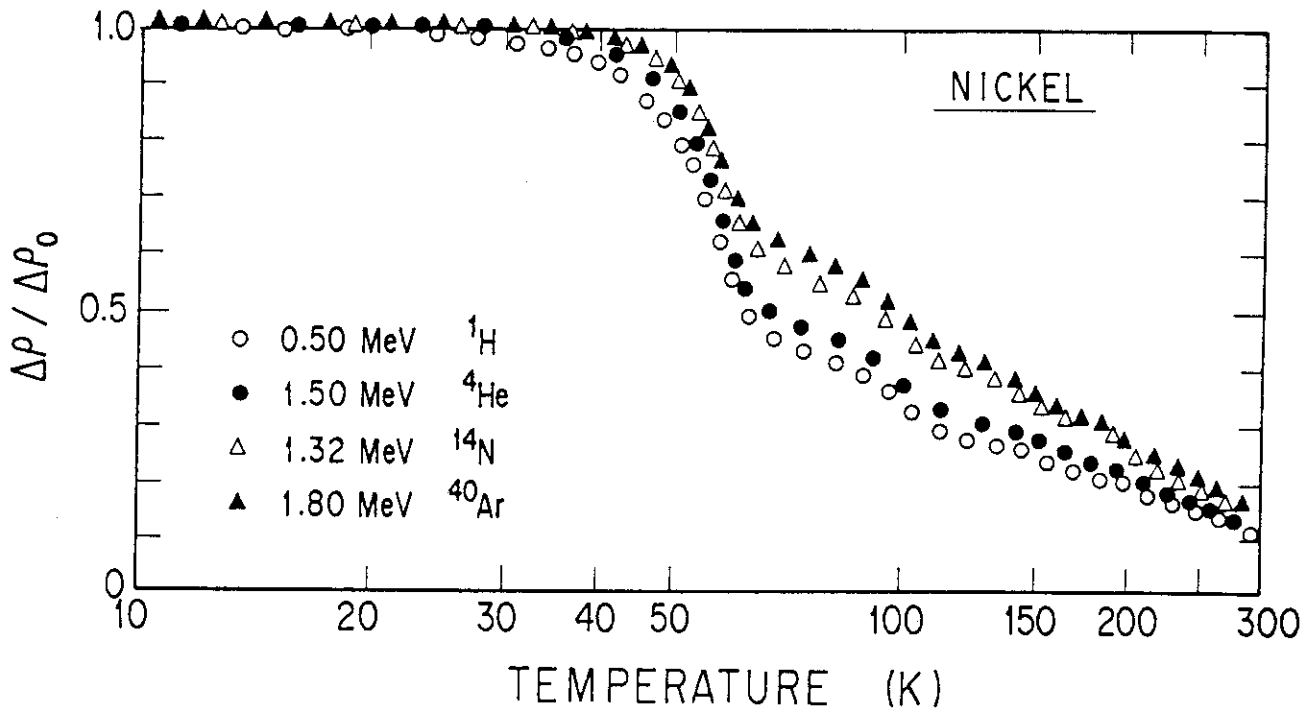


図 3.5(a) 低エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線  
 $\Delta\rho / \Delta\rho_0$  のアニーリング温度依存性 (Nickel)



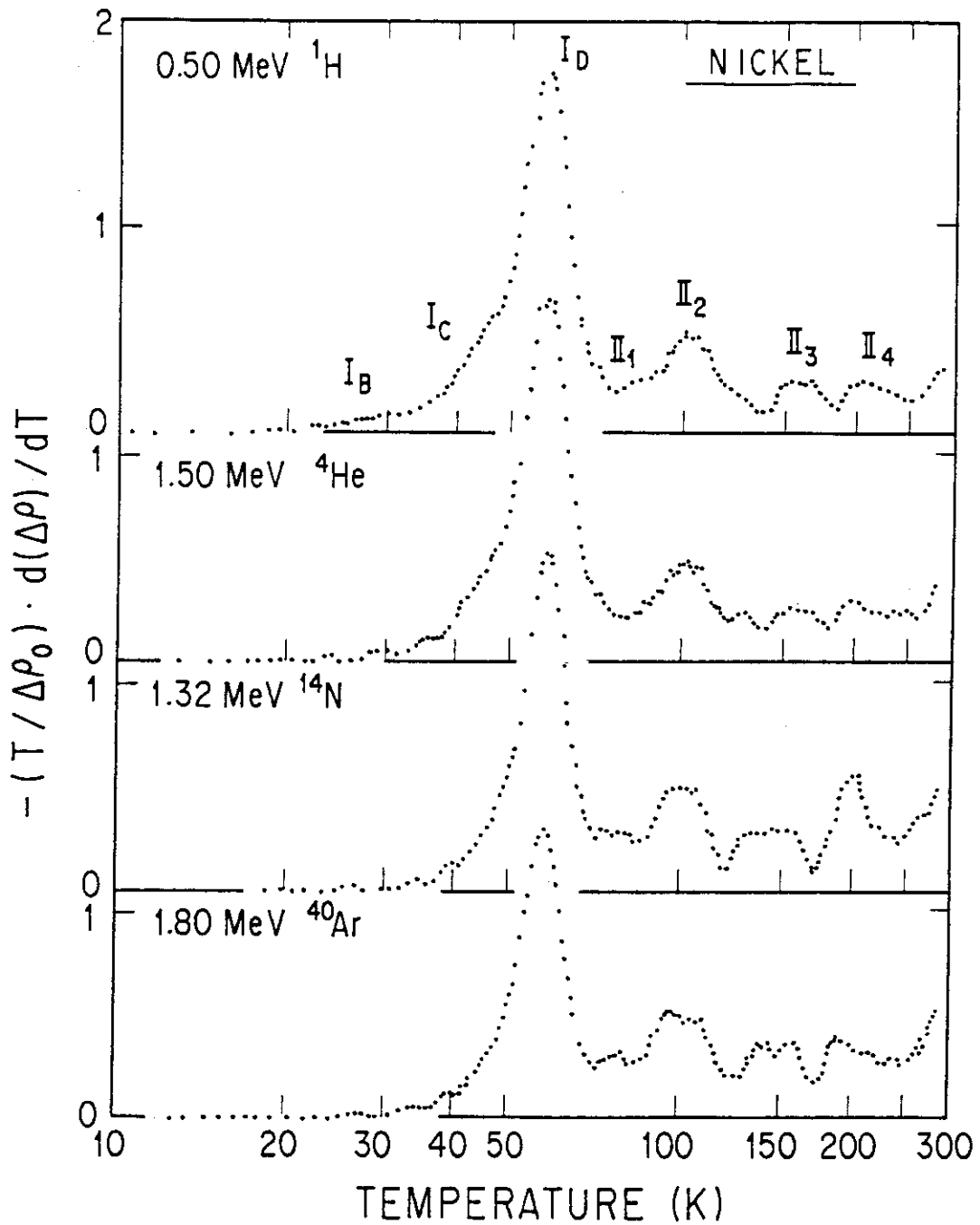


図 3.5 (b) 低エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線をアニーリング  
 温度  $T$  の対数  $\log(T)$  で微分した  $-\left(\frac{T}{\Delta\rho_0}\right) \frac{d(\Delta\rho)}{dT}$  の  $T$  依存性  
 (Nickel)

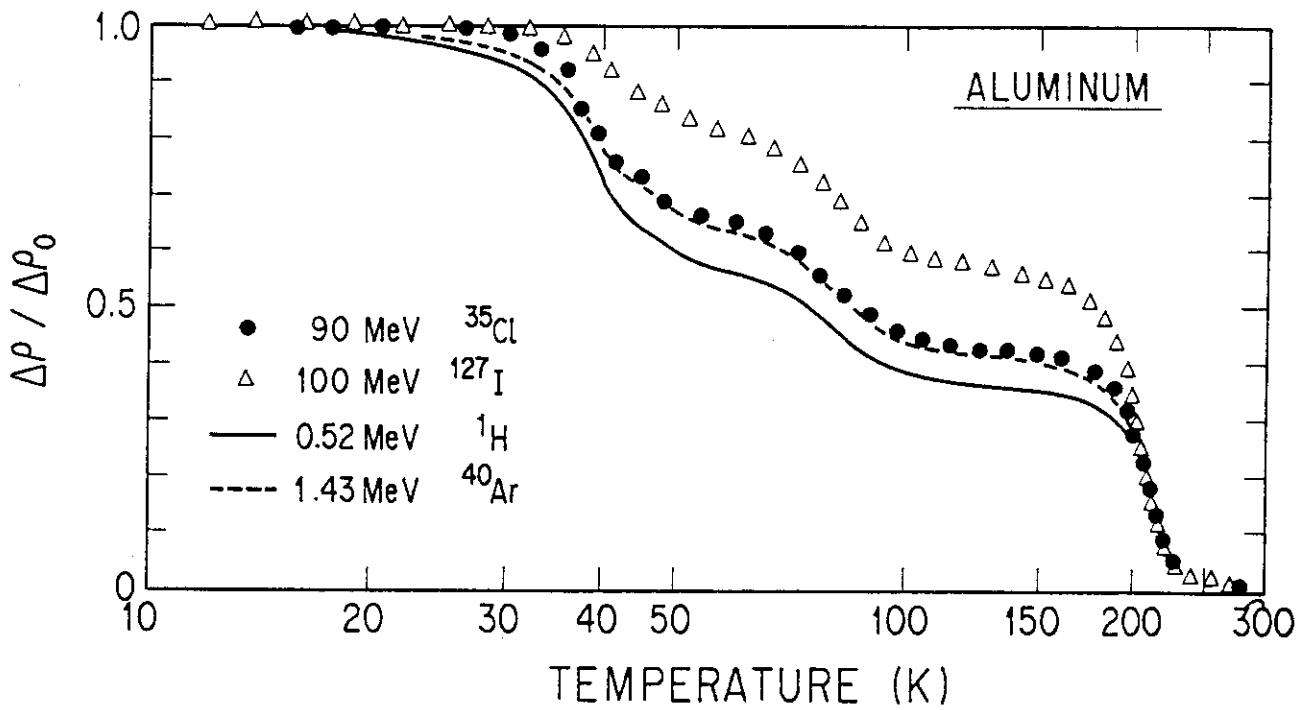


図 3.6(a) 高エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線  $\Delta\rho/\Delta\rho_0$  のアニーリング温度依存性(Aluminum) 比較のため、低エネルギーのH, Arイオン照射におけるデータも示す。

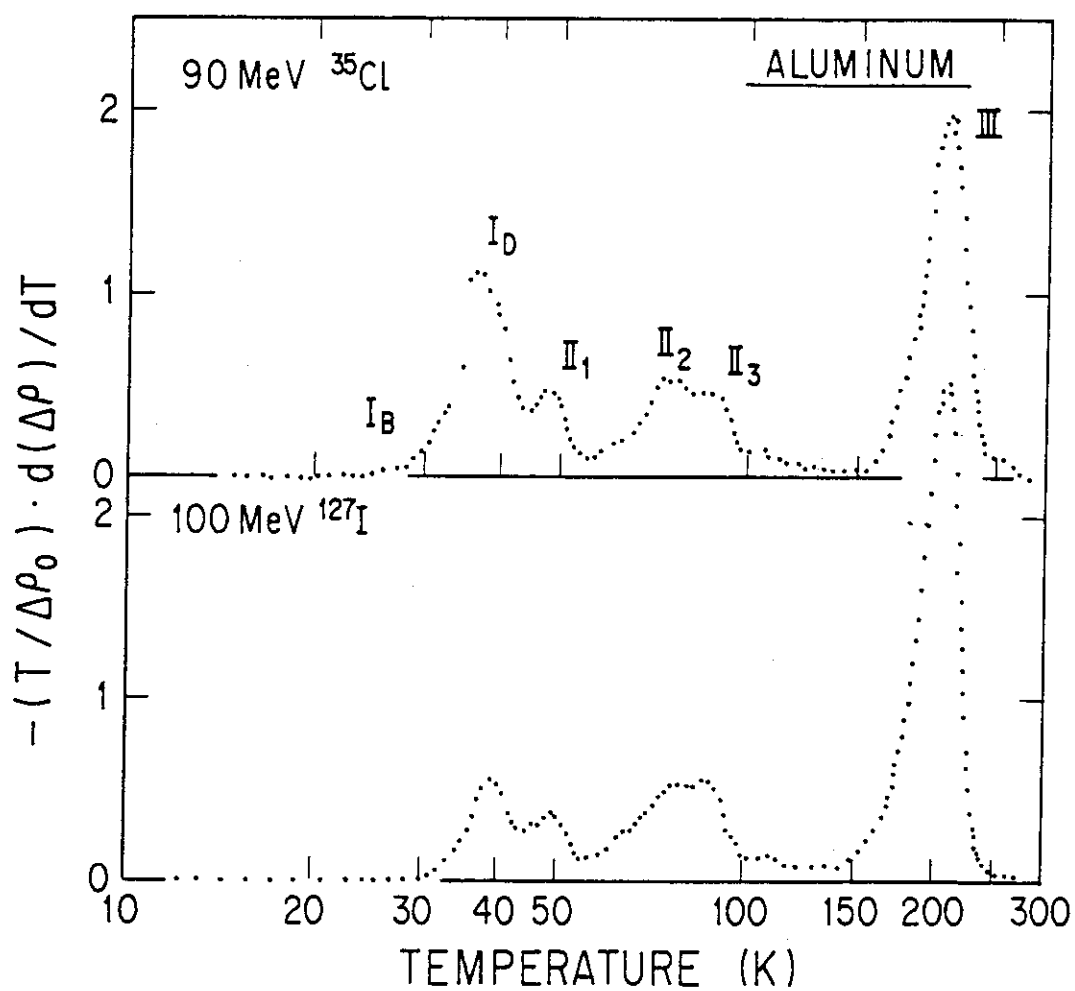


図 3. 6(b) 高エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線をアニーリング温度  $T$  の対数  $\log(T)$  で微分した  $-(T/\Delta\rho_0) \cdot d(\Delta\rho)/dT$  の  $T$  依存性 (Aluminum)

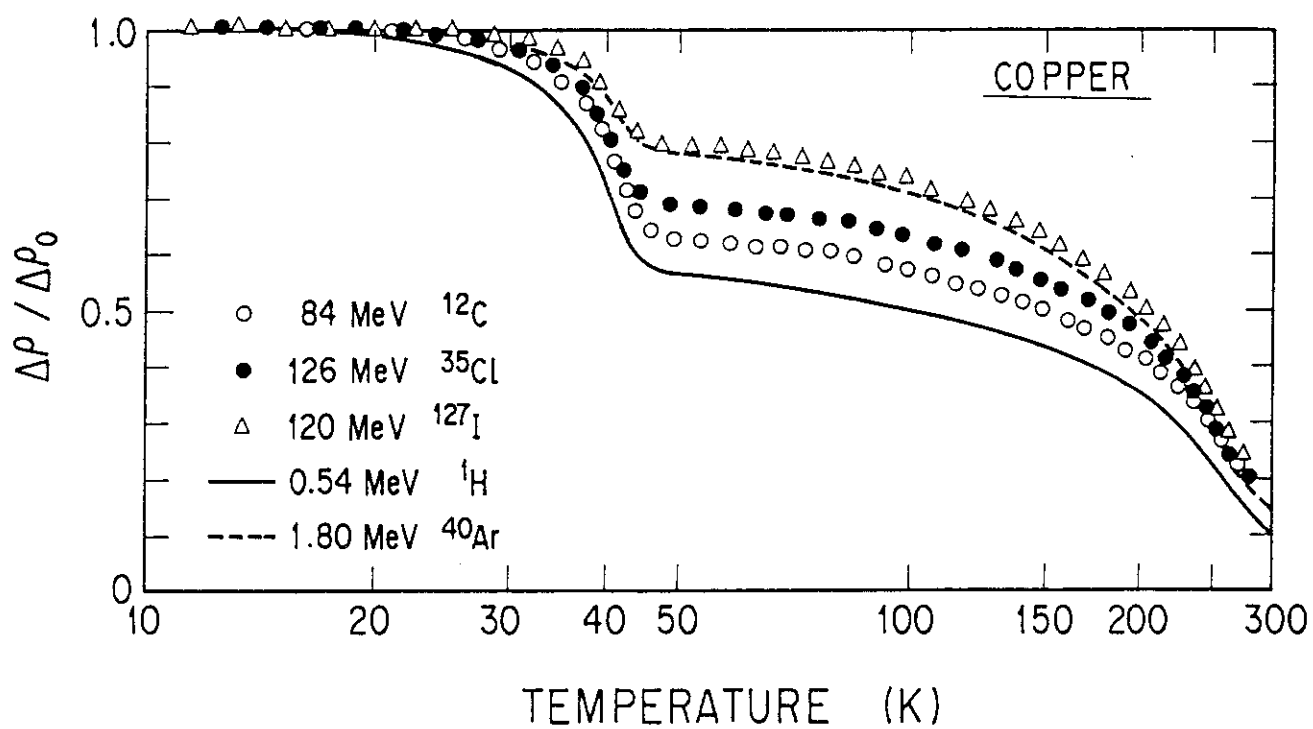


図 3.7(a) 高エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線  $\Delta\rho/\Delta\rho_0$  のアニーリング温度依存性(Copper) 比較のため、低エネルギーのH, Arイオン照射におけるデータも示す。

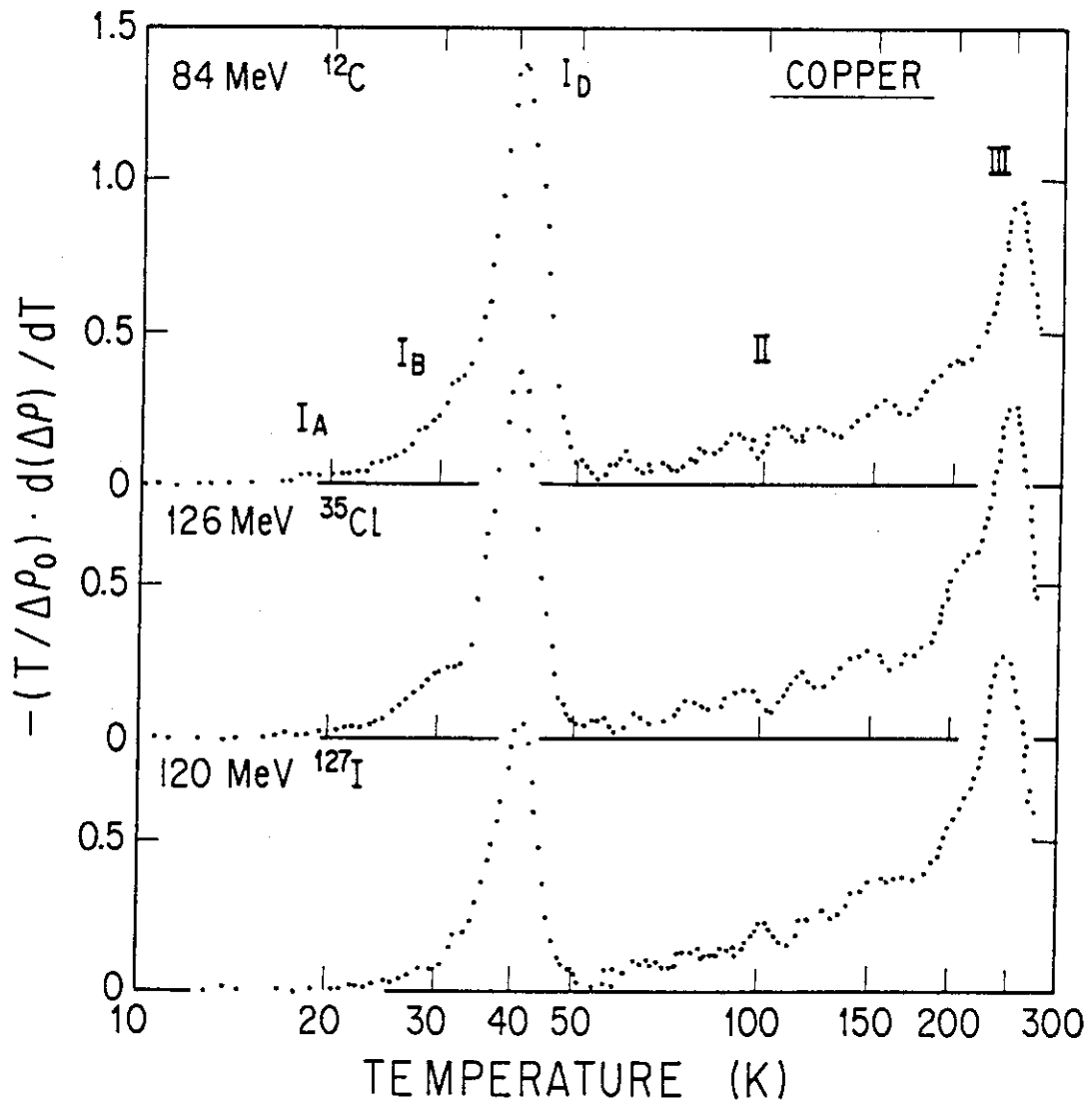


図 3.7 (b) 高エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線をアニーリング温度  $T$  の対数  $\log(T)$  で微分した  $-(T/\Delta\rho_0) \cdot d(\Delta\rho) / dT$  の  $T$  依存性 (Copper)

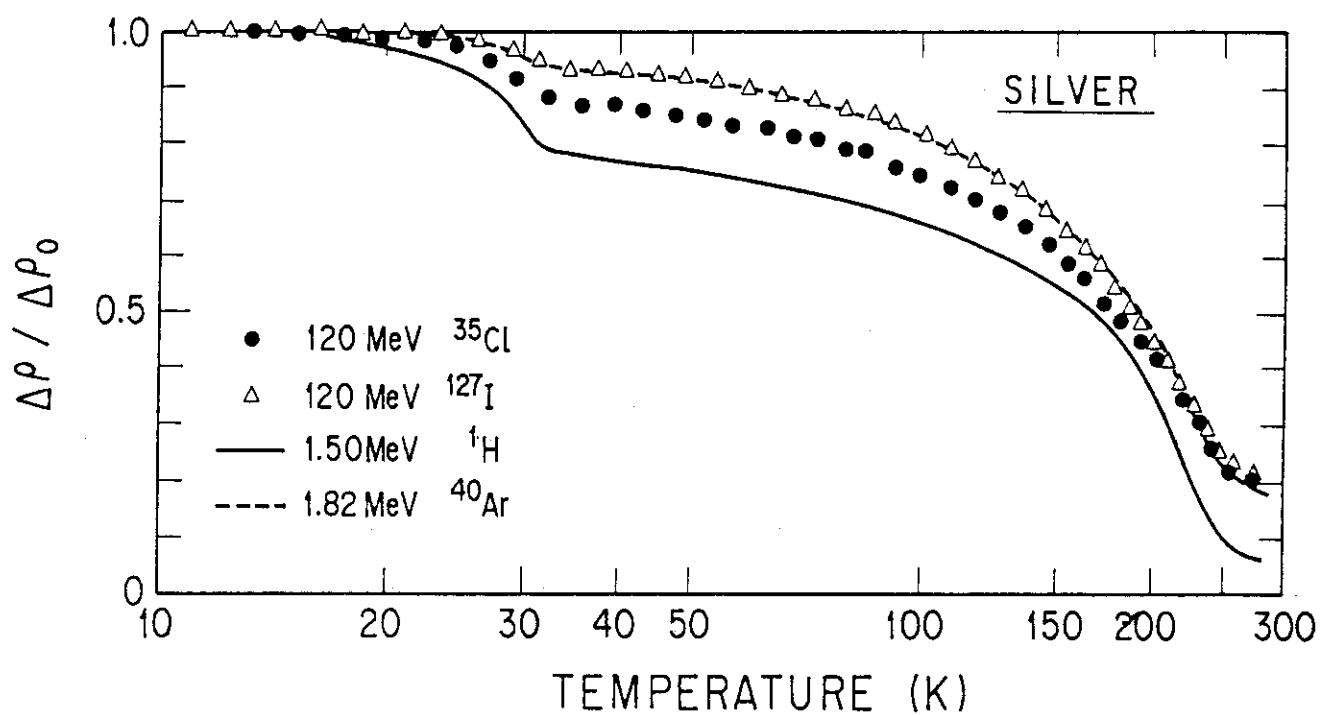


図 3.8(a) 高エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線  $\Delta\rho/\Delta\rho_0$  のアニーリング温度依存性(Silver) 比較のため、低エネルギーのH, Arイオン照射におけるデータも示す。

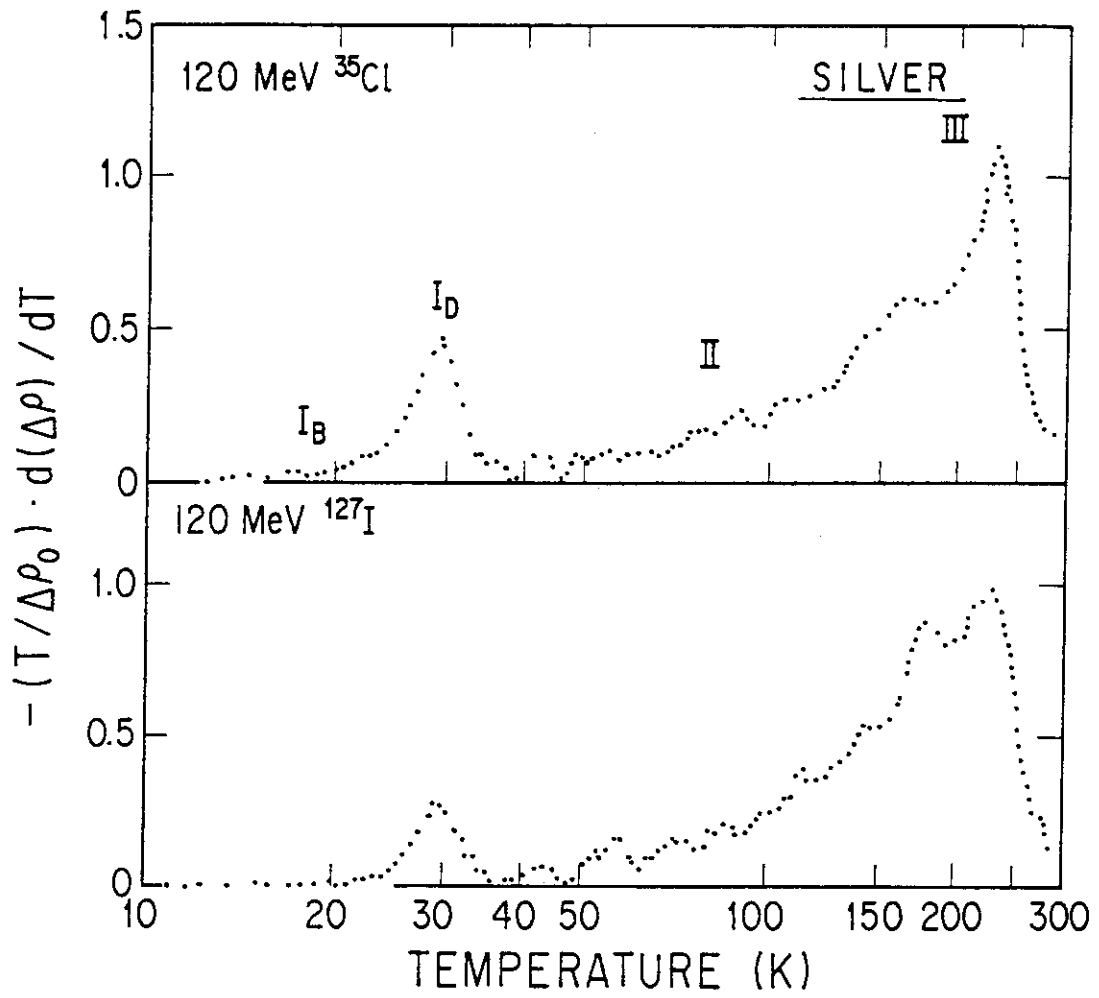


図 3.8 (b) 高エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線をアニーリング温度  $T$  の対数  $\log(T)$  で微分した  $-(T/\Delta\rho_0) \cdot d(\Delta\rho) / dT$  の  $T$  依存性 (Silver)

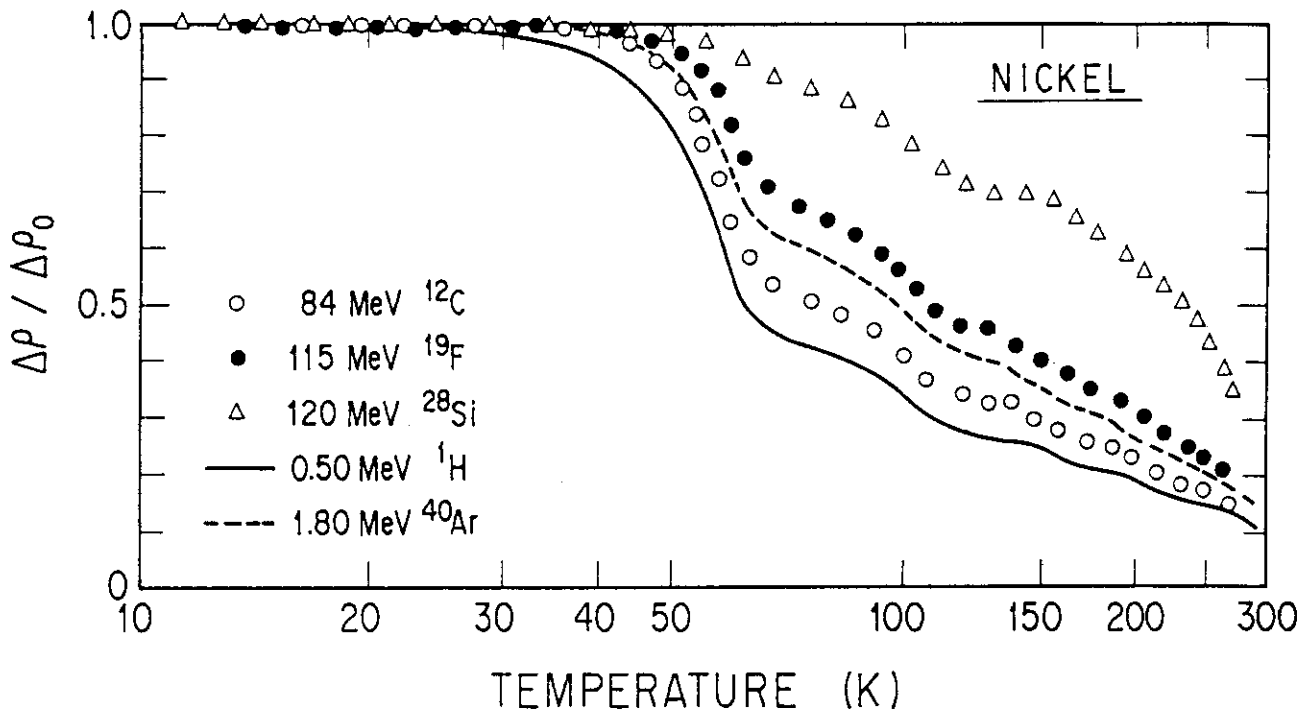


図 3.9(a) 高エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線  $\Delta\rho/\Delta\rho_0$  のアニーリング温度依存性(Nickel) 比較のため、低エネルギーのH, Arイオン照射におけるデータも示す。



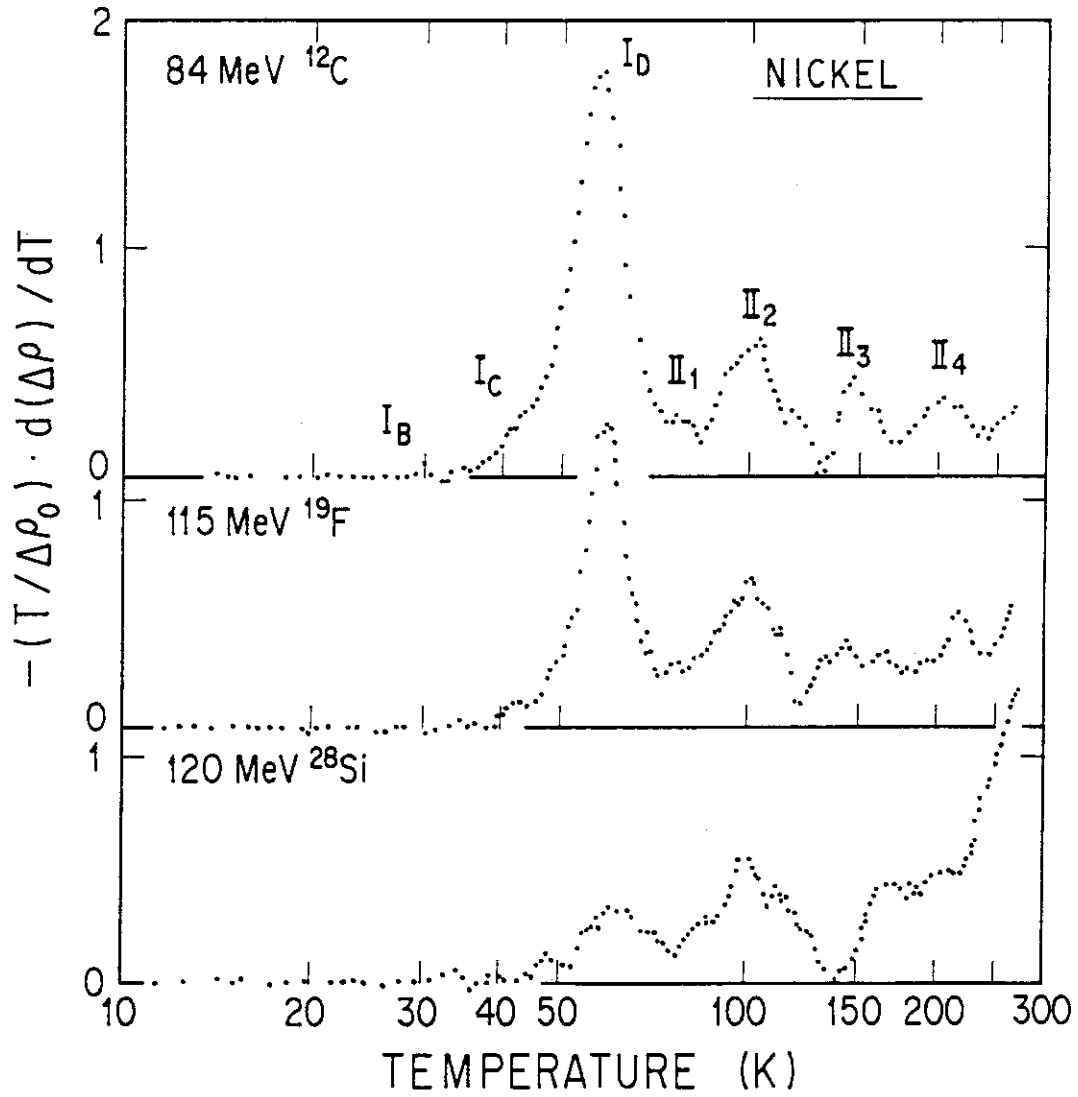


図 3.9(b) 高エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線をアニーリング  
 温度  $T$  の対数  $\log(T)$  で微分した  $-(T/\Delta\rho_0) \cdot d(\Delta\rho)/dT$  の  $T$  依存性  
 (Nickel)

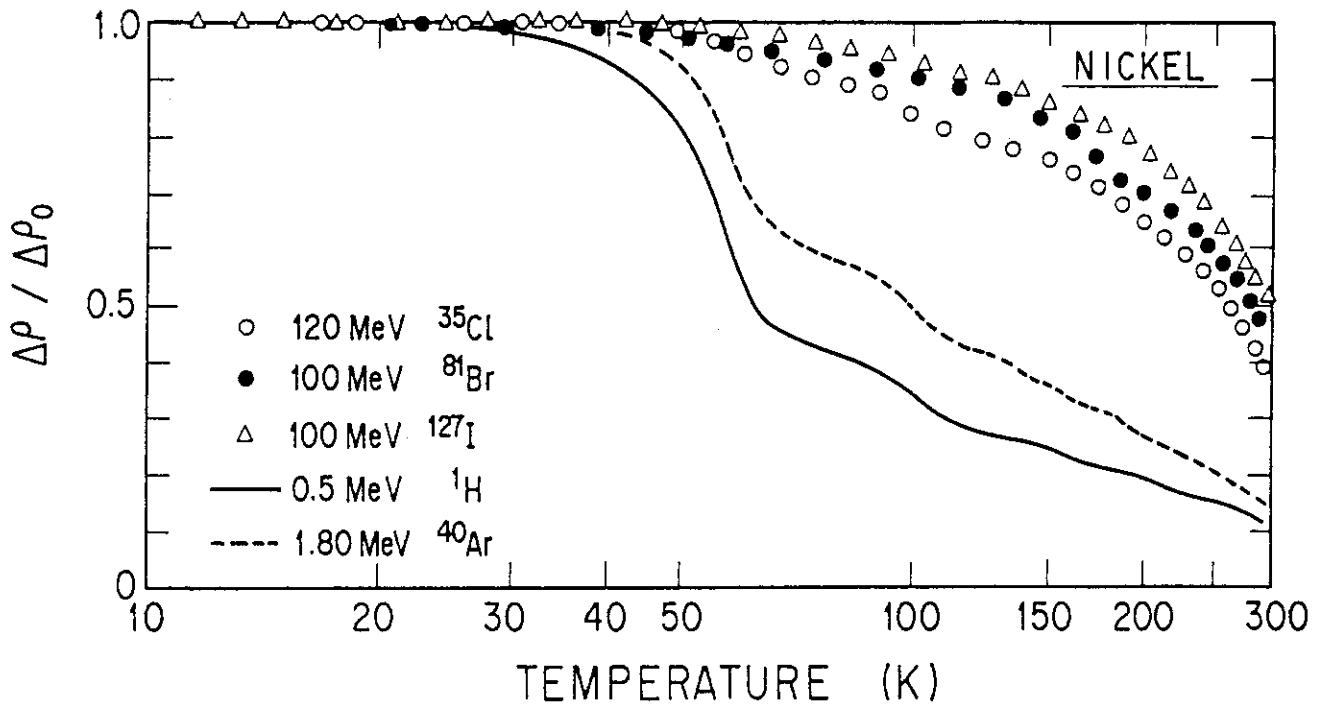


図 3.10(a) 高エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線  $\Delta\rho / \Delta\rho_0$  の  
 アニール温度依存性(Nickel) 比較のため、低エネルギーのH,  
 Ar イオン照射におけるデータも示す。

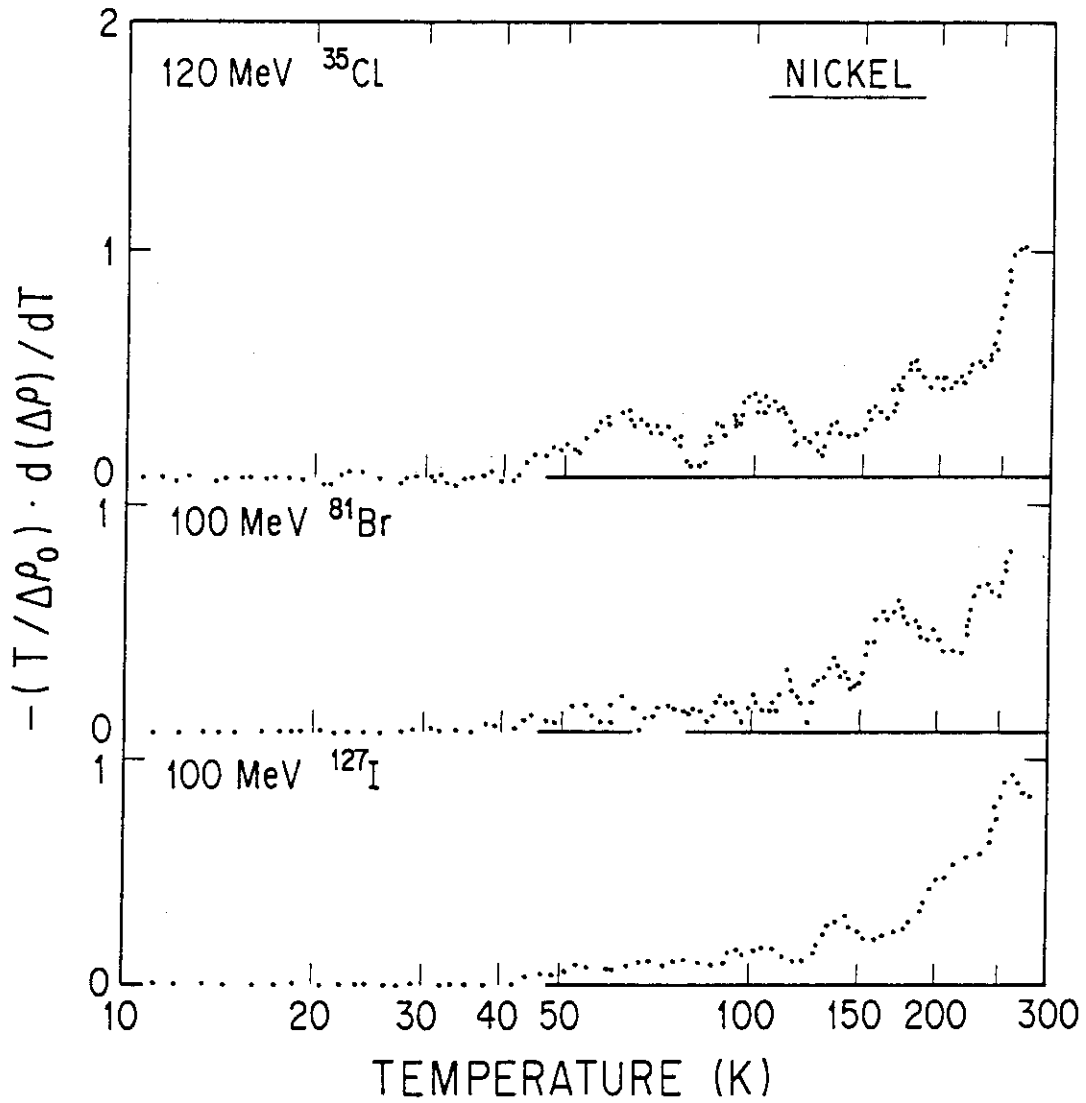


図 3.1 0(b) 高エネルギーイオン照射における電気抵抗の回復曲線をアニーリング温度  $T$  の対数  $\log(T)$  で微分した  $-(T/\Delta\rho_0) \cdot d(\Delta\rho)/dT$  の  $T$  依存性 (Nickel)

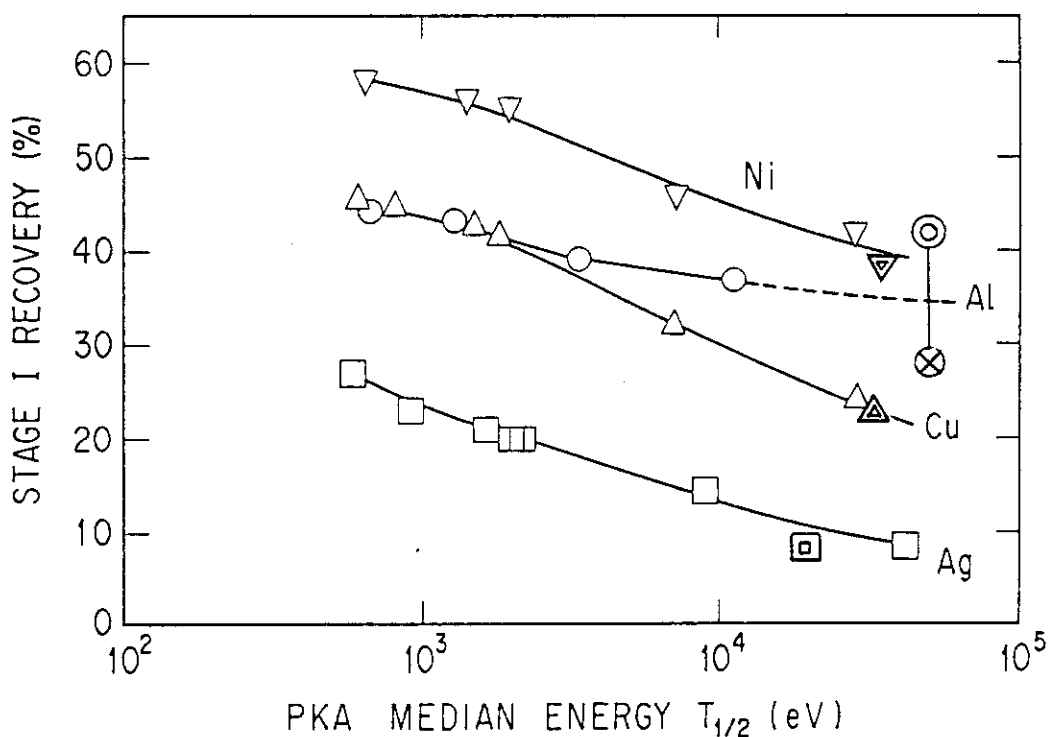


図 3.1.1 低エネルギーイオン照射におけるステージ I 回復量の  $T_{1/2}$  依存性。  
 ○, △, □, ▽ が本実験における結果である。なお, 比較のために, 原子炉による中性子照射における以下のデータを示す。Cu については  $\Delta\rho_0 = 321 \text{ n}\Omega\text{cm}$  におけるデータ (△) [65], Ag については  $\Delta\rho_0 = 408 \text{ n}\Omega\text{cm}$  におけるデータ (□) [65], Ni については  $\Delta\rho_0 = 352 \text{ n}\Omega\text{cm}$  におけるデータ (▽) [66]。なお, Al については  $\Delta\rho = 381 \text{ n}\Omega\text{cm}$  におけるデータ (○) [66], 及び  $\Delta\rho_0 = 882 \text{ n}\Omega\text{cm}$  におけるデータ (⊗) [65]。

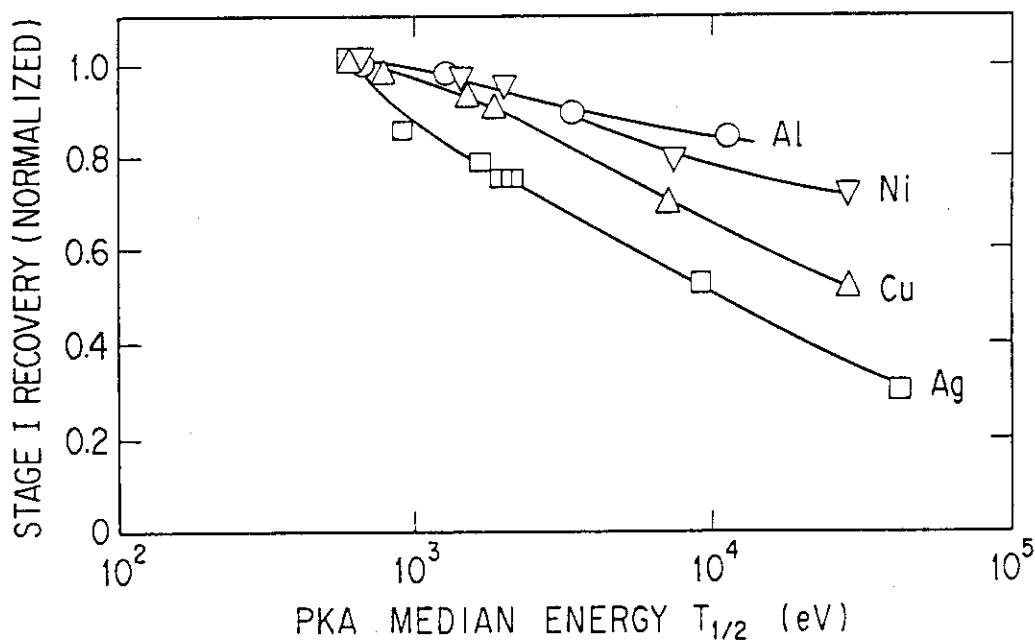


図 3.1.2 低エネルギーイオン照射におけるステージ I 回復量 (Hイオン照射の場合の回復量でノーマライズした値) の  $T_{1/2}$  依存性

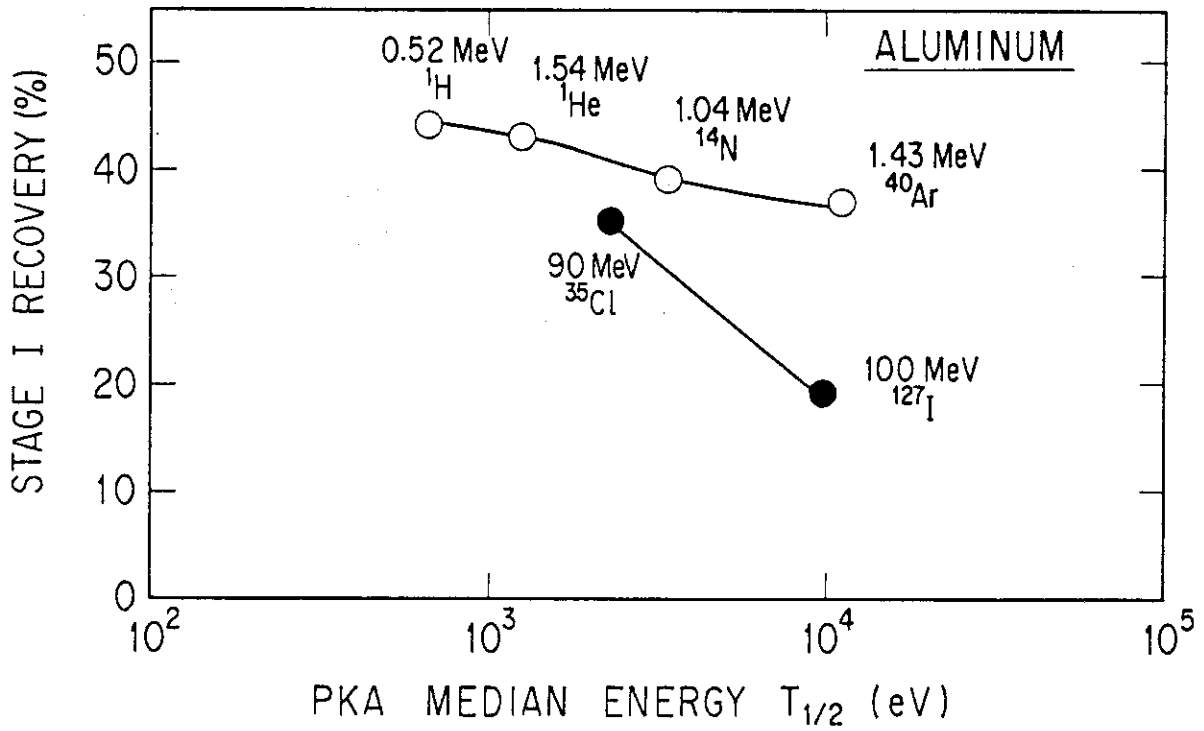


図 3.1 3(a) ステージ I 回復量の  $T_{1/2}$  依存性。○は低エネルギーイオン照射の場合、●は高エネルギーイオン照射の場合のデータである (Aluminum)

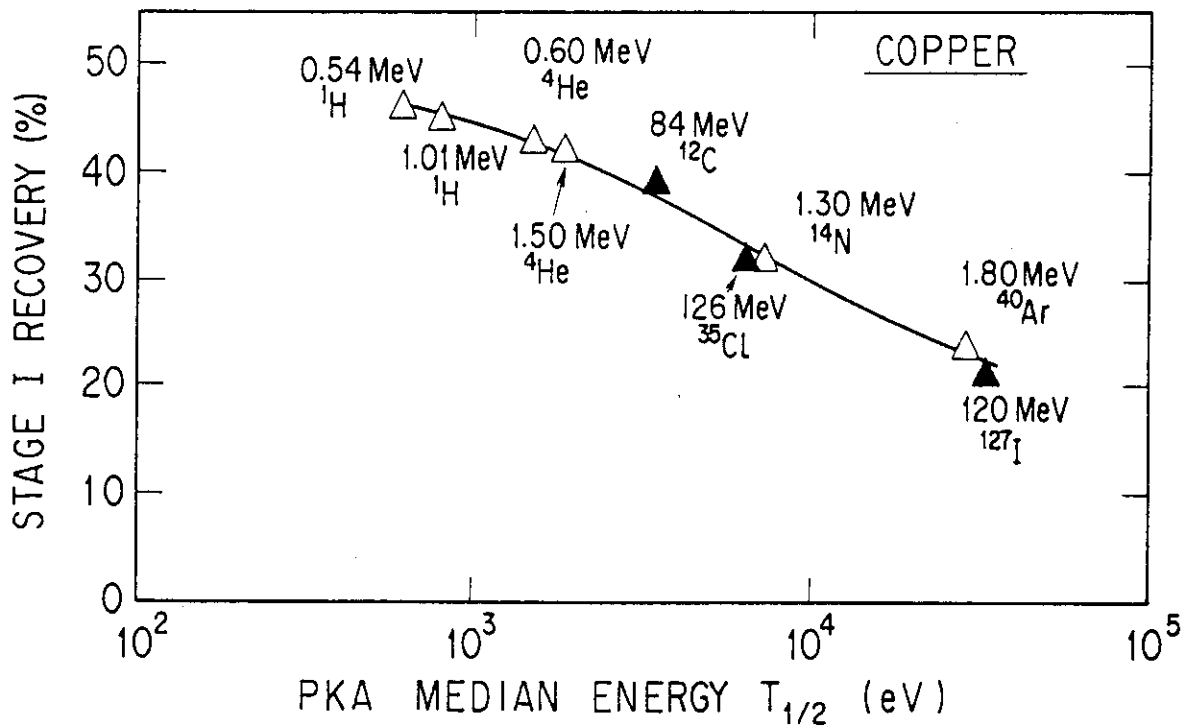


図 3.1 3(b) ステージ I 回復量の  $T_{1/2}$  依存性。△は低エネルギーイオン照射の場合、▲は高エネルギーイオン照射の場合のデータである (Copper)

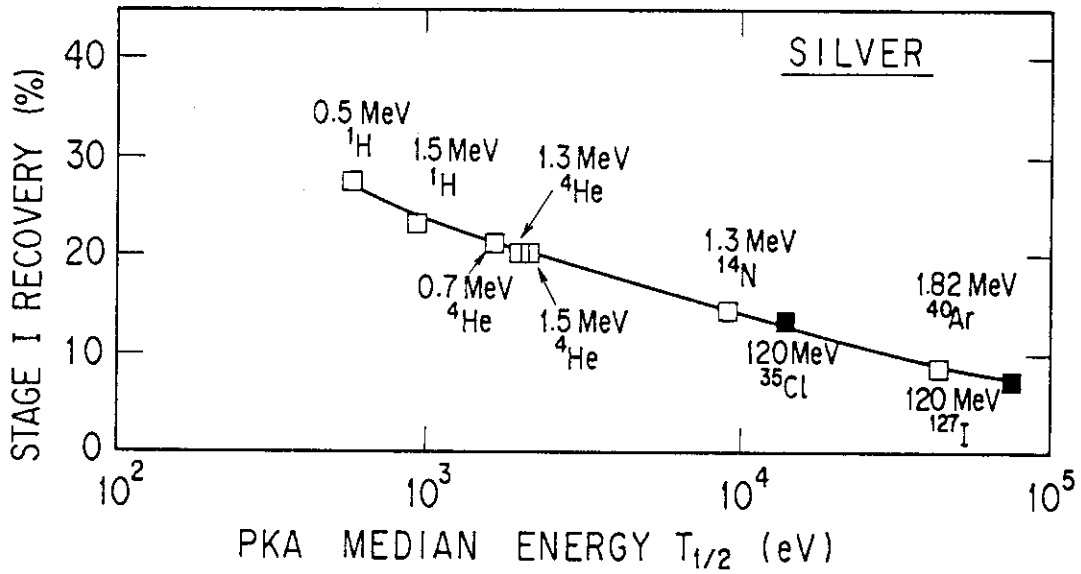


図 3.1 3(c) ステージ I 回復量の  $T_{1/2}$  依存性。□は低エネルギーイオン照射の場合、  
 ■は高エネルギーイオン照射の場合のデータである。(Silver)

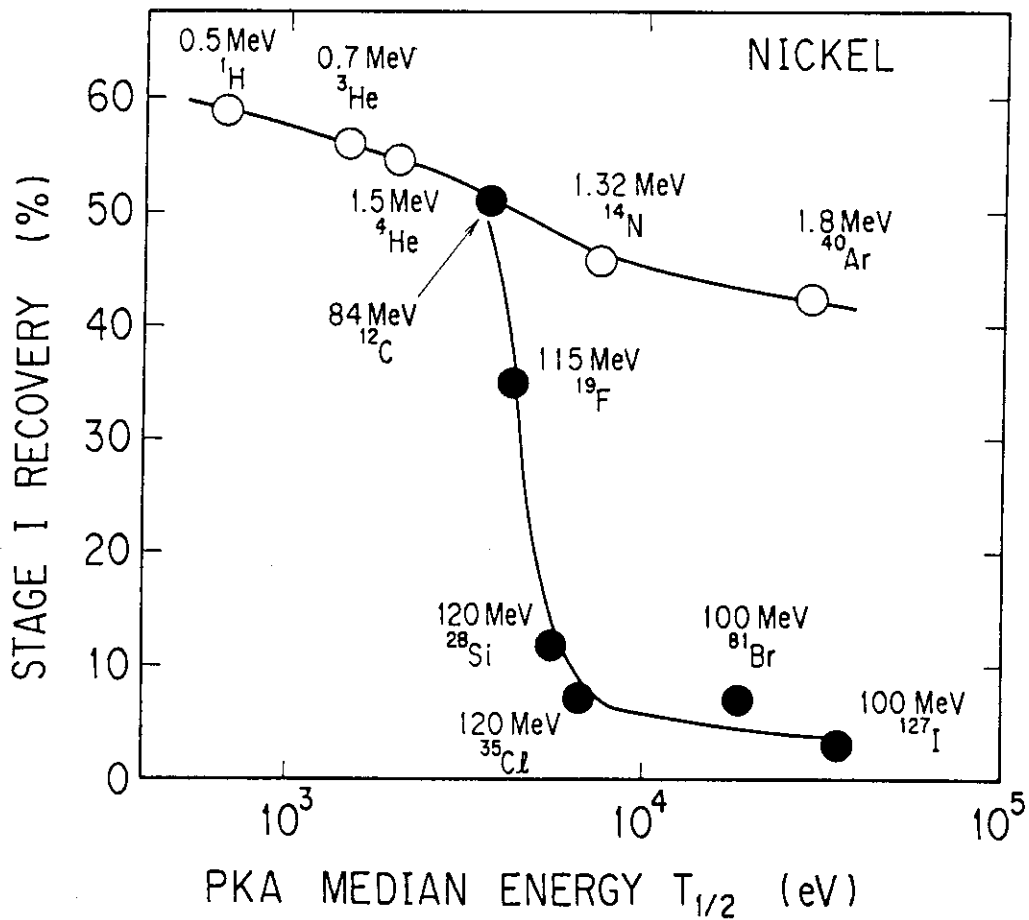


図 3.1 3(d) ステージ I 回復量の  $T_{1/2}$  依存性。○は低エネルギーイオン照射の場合、  
 ●は高エネルギーイオン照射の場合のデータである。(Nickel)

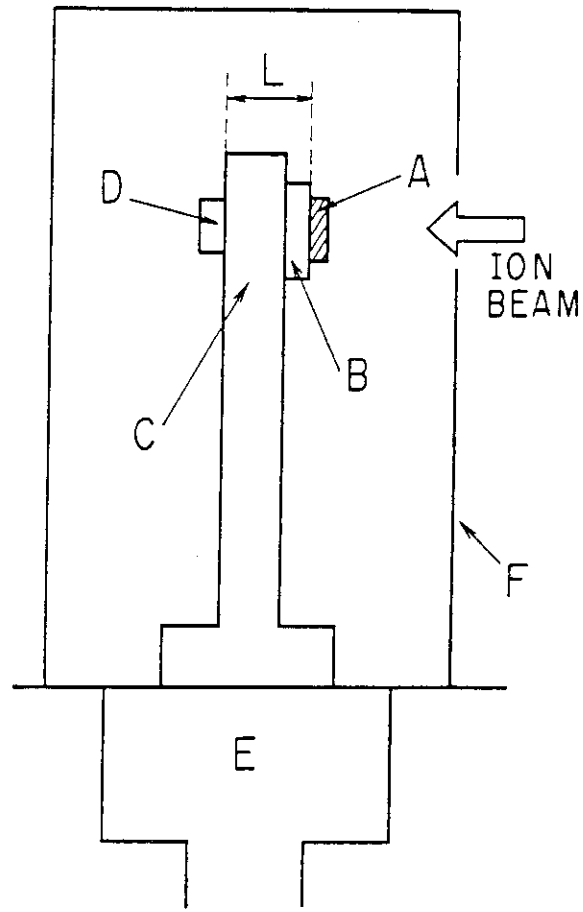


図 3.1 4 高エネルギー重イオン照射に用いた試料ホルダー部分の形状  
 A : 試料薄膜, B : Al 基板, C : Cu の試料ホルダー, D : 熱電対,  
 E : 液体ヘリウムタンク, F : 液体ヘリウム温度のサーマルシールド

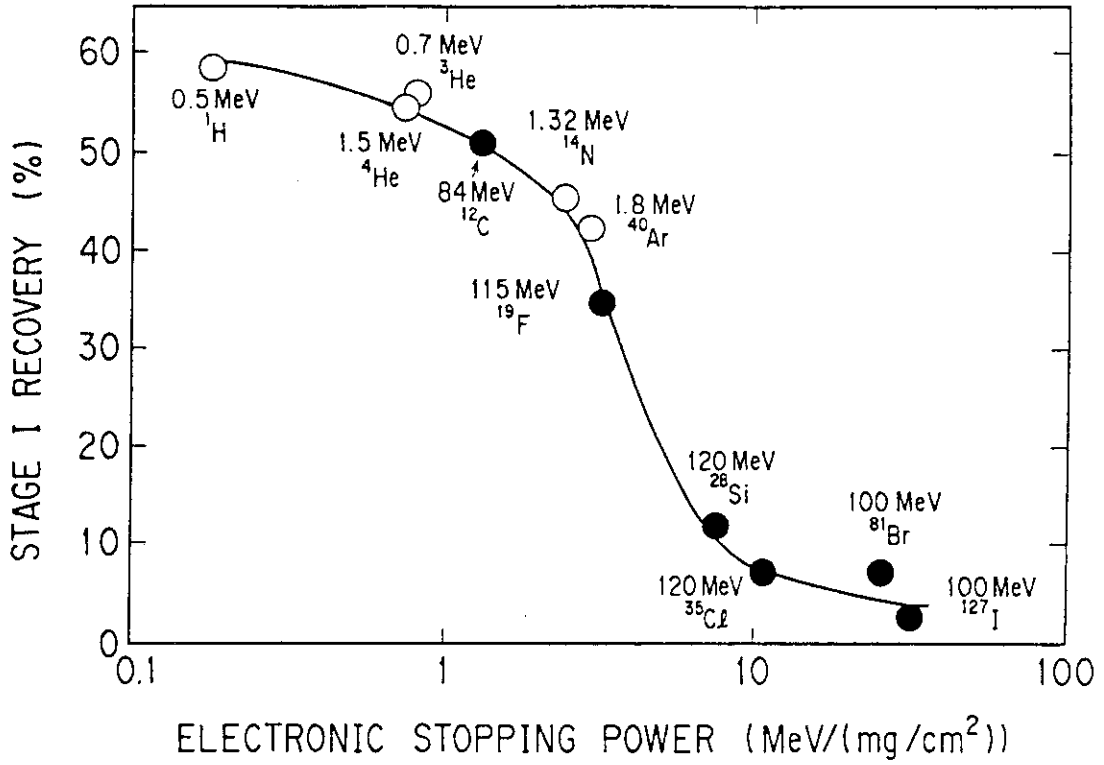


図 3.15 Ni におけるステージ I 回復量のエレクトロニックストッピングパワー依存性

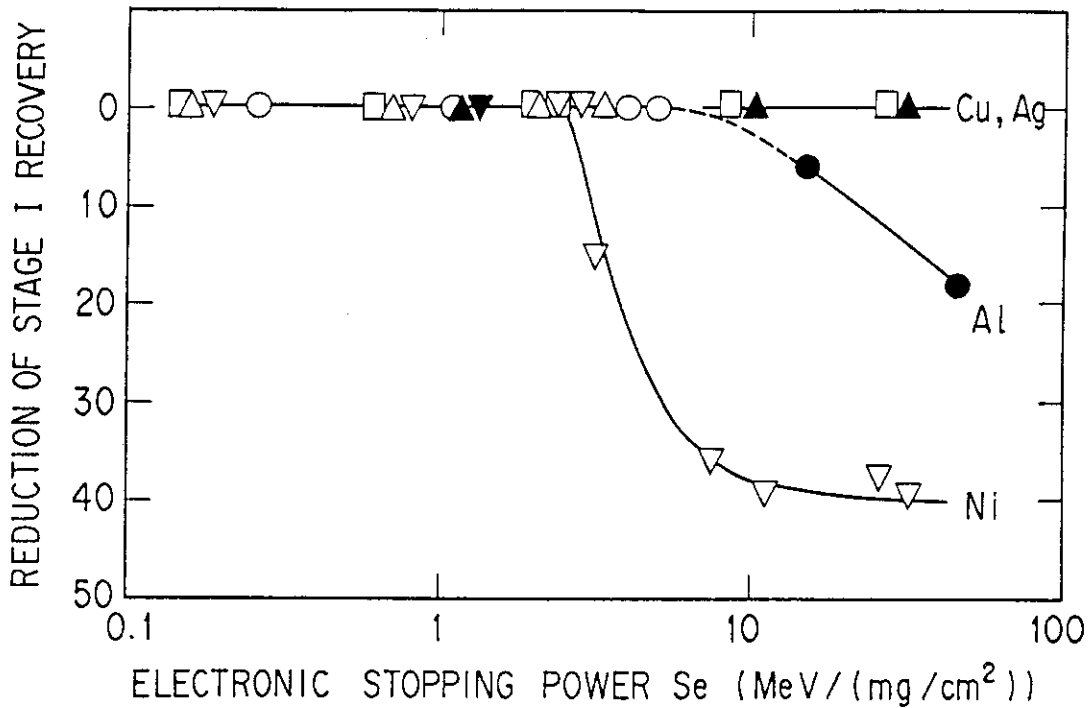


図 3.16 電子励起によるステージ I 回復の減少量のエレクトロニックストッピングパワー依存性



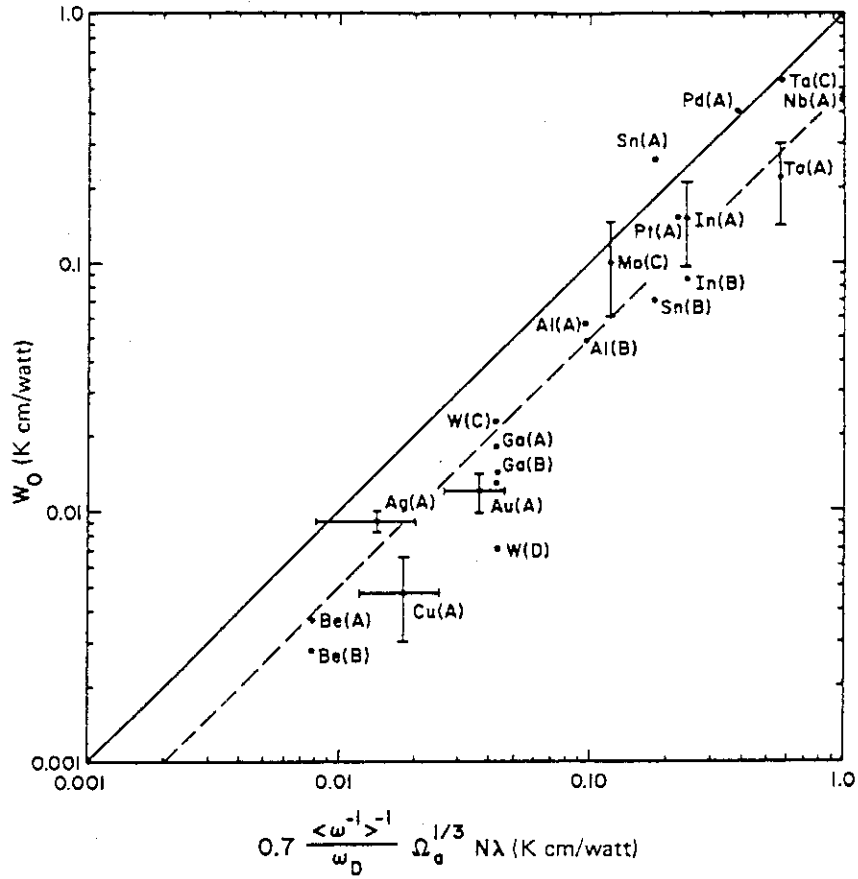


図 3.17  $W_0$ の実験値（縦軸）と計算値（横軸）（文献[77]から引用）

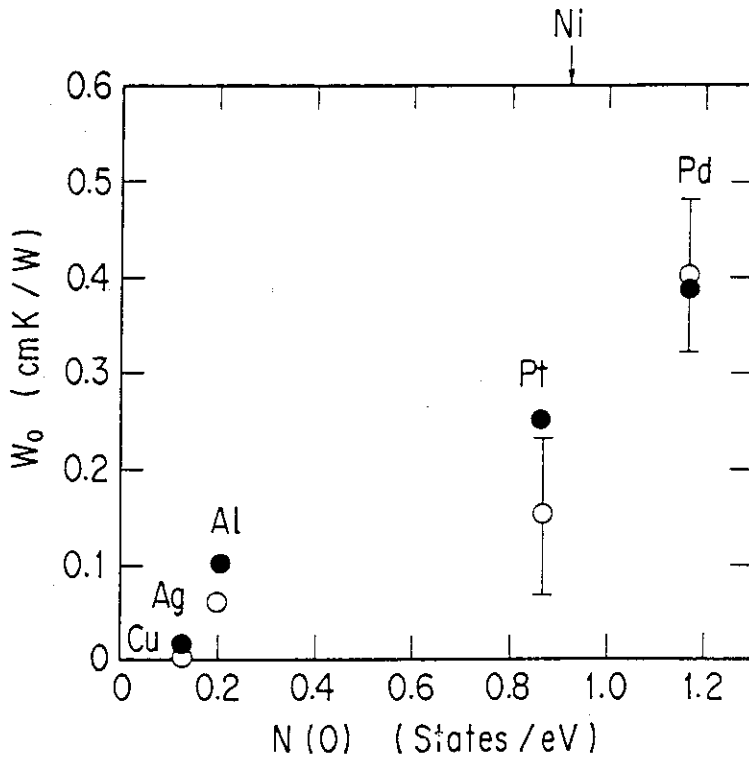


図 3.18 フェルミ面における状態密度  $N(0)$  と電子格子相互作用の強さを示す熱抵抗  $W_0$  [77]  
 ○は実験から求めた値，●は計算値である。Ni の  $N(0)$  は Pd と Pt の間の値をとるため、大きな電子格子相互作用が期待される。

## 4. NiとCuの100MeV Iodine照射によるラディエーションアニーリング

### 4.1 緒 言

前章において、Al, Cu, Ag, Ni 中の照射欠陥が極低温でのイオン照射中に消滅する現象について示し、低エネルギーイオン照射(0.5-1.8MeV)では、弾性的相互作用を通じてイオンからターゲット金属中に散逸されたエネルギーが、また、Ni, Alを高エネルギー重イオン照射した場合には、イオンによる高密度電子励起が、この現象を支配していることを明らかにした。極低温における照射であるにもかかわらず照射欠陥が照射中に消滅する現象はイオン照射だけではなく電子線による照射においても観測されており、ラディエーションアニーリングとよばれている〔79-83〕。これに対して極低温照射によって試料中に導入された欠陥が試料の温度上昇によって消滅していく現象をサーマルアニーリングとよんでいる。両者は物理的にはっきりと区別されるべき現象である。ラディエーションアニーリングには2つの過程があり、その1つは自発的再結合(spontaneous recombination)によるアニーリング、もう1つは、subthreshold効果によるアニーリングである。金属中の格子間原子(または空孔)の周辺のある領域に空孔(または格子間原子)が入ると熱的な運動を伴わなくとも再結合してしまう。この領域は金属によって決っており、その体積を再結合体積(recombination volume)とよんでいる。照射中に生成された格子間原子(空孔)が、すでに生成されている空孔(格子間原子)の再結合領域内に入ると再結合して消滅する。これが自発的再結合によるラディエーションアニーリングである。一方、イオンからターゲット金属原子に与えられたエネルギーがはじきだしエネルギー以上の時はフレンケル対が形成されるが、はじきだしエネルギー以下のエネルギーでも、それが既に生成されている格子間原子またはその周辺の原子に与えられた時、格子振動が引き起こされることによって再結合の生じる場合がある。これをはじきだしエネルギー(threshold energy)以下で起こるアニーリングであるため、subthreshold効果によるラディエーションアニーリングとよんでいる。照射中にラディエーションアニーリングの起きていることは、照射量が大きくなると試料中に導入される欠陥量が照射量に比例しなくなり、欠陥量が飽和していく現象がみられることから明らかであるが、この飽和現象からだけではラディエーションアニーリングの2つの過程を分離してとらえることはできない。高照射領域における照射欠陥量の飽和現象を観測した実験は電子線、中性子、及びイオン照射によるものが非常に多く報告されているが〔79-92〕〔35〕〔38〕、そのうちの大部分が、自発的再結合によるラディエーションアニーリングのみが照射中に起きていると仮定して実験データを解析している。その結果求められた再結合体積は照射粒子の種類に依存する。電子線照射による再結合体積は小さく、中性子照射による再結合体積は大きくなる〔2〕。ところが再結合体積はその値が金属によって決まる量であるから、実験で求められた再結合体積は本来の定義による正しい再結合体積の値を与えるものではなく、subthreshold効果によるラディエーションアニーリングを含んだものであるといえる。

ラディエーションアニーリングの2つの過程を分離する実験は電子線照射によって行われている〔79-83〕。その結果電子線照射では、subthreshold効果によるラディエーションアニーリングによりフレンケル近接対が再結合を起こして消滅していることが判った。また、電子線照射の場合、subthreshold効果による欠陥消滅の断面積は自発的再結合による欠陥消滅の断面積とほぼ同程度である。

これに対して1-100MeVのイオン照射では第3章に示した実験結果によれば、subthreshold効果によるラディエーションアニーリングは近接フレンケル対に対応するステージ $I_A \sim I_C$ だけでなく、ステージ $I_D$ にもその影響を及ぼしている。さらに、Al, Niの高エネルギー重イオン照射においては、ステージIIの低温側のサブステージまでもがラディエーションアニーリングの影響を受ける。これはイオン照射ではsubthreshold効果による欠陥消滅の断面積が非常に大きいことを示すものである。しかもこのsubthreshold効果にはイオンによる電子励起が大きな寄与をしている場合があることも第3章において示されている。

本実験では、照射イオンとして100MeVのIodineイオン、ターゲット金属にNi, Cuを選んで、ラディエーションアニーリングによる欠陥消滅の断面積を定量的に測定する実験を行った。Iodineイオンを照射イオンとして選んだ理由は、このイオンに対する各ターゲット金属の電気ロニックストップパワーが、本研究で用いることのできるイオンのうち、最も大きい値であること、いいかえれば、Iイオンが電子励起を最も大きく引き起こすことのできるイオンであるからである。また、Cu, Niをターゲット金属として選んだ理由は、この2つの金属が周期律表において隣同士であり、原子番号 $Z_2$ や質量数 $M_2$ がほぼ等しく、従って、イオンと金属原子との弾性的相互作用に基づく照射損傷の各パラメーター及び電気ロニックストップパワーがほぼ等しくなるからである。一方、電子格子相互作用の大きさは2つの金属で大きく異なる。従って、実験結果がNiとCuでもし大きく異なれば、その差はIodineイオンの電子励起が電子格子相互作用を通してラディエーションアニーリングに及ぼした効果を捕らえているといえることができる。

実験データは、照射中の欠陥の生成とラディエーションアニーリングによる消滅とを記述した連立微分方程式を用いて解析した。

## 4.2 実 験

次の3種類の実験をCu, Niについてそれぞれ行った。

- ① 液体ヘリウム温度において84MeVのCイオンで試料を照射し、照射による電気抵抗変化を照射量の関数として測定する。所定の欠陥量が試料中に導入されたら試料を300Kまで等速昇温し、アニーリング実験を行う。
- ② 液体ヘリウム温度において84MeVのCイオンで試料を照射し、照射による電気抵抗変化を照射量の関数として測定する。所定の欠陥量が試料中に導入された後試料を液体ヘリウム温度に保ったまま引続き100MeVのIイオン照射を行い、照射による電気抵抗変化を照射量の関数として測定する。最後に300Kまでのアニーリング実験を行う。
- ③ 液体ヘリウム温度において100MeVのIイオンで試料を照射し、照射による電気抵抗変化

を照射量の関数として測定する。

Cイオン照射は本研究で用いた高エネルギーイオンの中で最も小さいPKAエネルギーを与えるものであり、比較的簡単な形状の欠陥を試料中に導入する手段として用いている。これに対して100MeV Iイオン照射の目的は、Cイオンによって導入された欠陥がラディエーションアニーリングにより照射中にどのように消滅していくかを見るためのものである。なおIイオンはCイオン照射によって導入された欠陥を消滅させると同時に、自らも欠陥生成を行う。Iイオンによる欠陥生成はラディエーションアニーリングの効果を測定する時には差し引かれるべきものである。そこで③の実験を行い、Iイオンによる欠陥生成の照射量依存性をあらかじめ求めておくのである。また、①の実験はCイオンのみ照射した場合の欠陥の構造を知るために行う。実験①で得られた回復ステージと実験②で得られた回復ステージとを比較することにより、Iイオンによるラディエーションアニーリングが回復ステージに及ぼす効果を知ることができる。以上のことから上の3種類の実験のうち、主たるものは②の実験である。実験②における、試料の厚さ、84MeV Cイオンによる電気抵抗変化 $\Delta\rho_0$ 、Cイオンによって試料中に導入された欠陥濃度 $C(0)$ 、Iイオンの照射量 $\Phi$ について表4.1に示した。なお、 $C(0)$ を求める時に用いたフレンケル対単位濃度当りの電気抵抗寄与率は表3.1に示される値である。

#### 4.3 実験結果

図4.1(a), (b)は、Ni, Cuそれぞれに対してCイオン照射とそれに引き続いて行ったIイオン照射における電気抵抗変化を各イオンの照射量の関数として示したものである。Iイオン照射による電気抵抗変化の照射量依存性は、Cイオンによって比較的簡単な欠陥を前もって導入しておいたNiとCuでは大きく異なることが判る。Niでは、Cイオンによって試料中に導入された欠陥の半分近くがIイオン照射の初期に消滅してしまう。一方、Cuでは、Iイオン照射により電気抵抗は減少することなく増加を続ける。なお図にはIイオンのみを照射した場合の電気抵抗変化の照射量依存性についても示している。これは4.2節で述べた実験③の結果である。

図4.2(a), (b)には、Ni, Cuそれぞれに対して84MeV Cイオンを照射した後行ったアニーリング実験における回復曲線 $\Delta\rho/\Delta\rho_0$ 及び回復曲線の $\log(T)$  ( $T$ はアニーリング温度)による微分値、及び84MeV Cイオン照射と、それに引き続いて行ったIイオン照射の後行ったアニーリング実験における回復曲線とその $\log(T)$ による微分値を示している。Iイオン照射を行わなかった時の回復ステージと行った時の回復ステージとを比較することにより、Iイオン照射が回復ステージに与える効果について知ることができる。ここで、 $\Delta\rho_0$ はCイオン照射による試料の電気抵抗増加量を表している。

Iイオン照射が各回復ステージに与える効果は次の通りである。

- (1) Niの場合：ステージIはIイオン照射により大きく減少する。さらにステージIIのサブステージのうち、 $\sim 200$  K以下に現れるサブステージの減少も明確である。
- (2) Cuの場合：ステージIの回復のうち、35 K以下における回復はIイオン照射によって少し減少するが、ステージI全体における欠陥回復量はIイオンによってほとんど

変化しない。また、ステージⅡ及びⅢにおける回復量はIイオン照射によって大きく増加する。

#### 4.4 解析及び考察

以上のように、Iイオン照射が回復ステージに与える効果は、NiとCuとでは大きく異なっている。また各金属においても、各回復ステージに現れるIイオン照射効果は異なる。Iイオン照射によって大きく減少するステージがある一方、あまり変化しないステージ、そして反対にIイオン照射によって増加するステージがある。回復の各(サブ)ステージは照射欠陥の各形状に対応するものである。従ってこのことはイオン照射で生じたいろいろな形状の欠陥がIイオン照射によってそれぞれ異なる確率で消滅していることを意味するものである。そこで次のような仮定に基づくモデルを用いて実験結果を解析する。

- ① Cイオン及びIイオン照射によっていろいろな形状の欠陥が生ずるとする。各形状をインデックスjで表すことにする。各欠陥形状はそれぞれの回復ステージ(サブステージ)に対応するものである。
- ② Iイオン照射中に、jで表される各形状の欠陥はそれぞれ異なった確率で、subthreshold効果によるラディエーションアニーリングで消滅する。消滅断面積を $\sigma_{rj}$ で表す。
- ③ Iイオンは既に存在している欠陥を消滅させると同時に、自らも欠陥生成を行う。形状jの欠陥をIイオンが生成する断面積を $\sigma_{dj}$ で表す。
- ④ 欠陥はIイオン照射中にsubthreshold効果によって消滅すると共に自発的再結合によっても消滅する。再結合体積を $v_0$ とする。なお、 $v_0$ の単位は原子体積(無次元)である。欠陥濃度は再結合体積が重なり合わない程度に低いものとする。

今、照射によって生成される欠陥の形状が3種類である場合を特に考えて上の①, ②, ③, ④に示した状況を表す連立微分方程式をたてると以下のようなになる。

$$\begin{aligned} dC_1/d\Phi &= \sigma_{d1}(1-2v_0C) - \sigma_{r1}C_1 \\ dC_2/d\Phi &= \sigma_{d2}(1-2v_0C) - \sigma_{r2}C_2 \quad \dots\dots\dots (4.1) \\ dC_3/d\Phi &= \sigma_{d3}(1-2v_0C), \end{aligned}$$

ここで1, 2, 3は欠陥の形状を表すインデックスである。 $C_1, C_2, C_3$ はそれぞれの形状の欠陥の濃度であり、 $C$ は全濃度である。すなわち、

$$C = C_1 + C_2 + C_3 \quad \dots\dots\dots (4.2)$$

$\Phi$ はIイオンの照射量、 $\sigma_{d1}, \sigma_{d2}, \sigma_{d3}$ はIイオンがそれぞれの形状の欠陥を生成する断面積である。インデックス1と2で表される形状の欠陥は、Iイオンのsubthreshold効果に対して不安定であり、それぞれ $\sigma_{r1}, \sigma_{r2}$ という断面積でIイオン照射中に消滅していくとする。一方インデックス3で表される形状の欠陥は格子振動に対して安定であり、subthreshold効果によっては消滅せずに、自発的再結合によってのみ消滅するものとしている。4.1節で述べたように、本実験のエネルギー領域におけるイオン照射ではsubthreshold効果による欠陥消滅の断面積は非常に大きいと期待される。そこで微分方程式(4.1)を条件 $\sigma_{r1} \gg 2v_0\sigma_{d1}, \sigma_{r2} \gg 2v_0\sigma_{d2}$ のもとで解くとその解は以下のようなになる(微分方程式の解法については付録

1を参照のこと)。

$$C_1 = \left[ -\frac{\sigma_{d1}}{\sigma_{r1}} + C_1(0) \right] \exp \left[ -(\sigma_{r1} + 2 v_0 \sigma_{d1}) \Phi \right] + \frac{\sigma_{d1}}{\sigma_{r1}} \exp \left[ -2 v_0 \sigma_{d3} \Phi \right],$$

$$C_2 = \left[ \frac{\sigma_{d1}}{\sigma_{r1}} + \frac{\sigma_{d2}}{\sigma_{r2}} \right] - \left[ \frac{\sigma_{d2}}{\sigma_{r2}} - C_2(0) \right] \exp \left[ -(\sigma_{r2} + 2 v_0 \sigma_{d2}) \Phi \right]$$

$$- \frac{\sigma_{d1}}{\sigma_{r1}} \exp \left[ -2 v_0 \sigma_{d3} \Phi \right], \quad \dots \dots \dots (4.3)$$

$$C_3 = \left[ \frac{1}{2 v_0} - \frac{\sigma_{d1}}{\sigma_{r1}} - \frac{\sigma_{d2}}{\sigma_{r2}} \right]$$

$$- \left[ \frac{1}{2 v_0} - \frac{\sigma_{d1}}{\sigma_{r1}} - \frac{\sigma_{d2}}{\sigma_{r2}} - C_3(0) \right] \exp \left[ -2 v_0 \sigma_{d3} \Phi \right],$$

ここで  $C_1(0)$ ,  $C_2(0)$ ,  $C_3(0)$  は I イオンを照射する前に C イオンで前もって導入されていた各形状にたいする欠陥濃度であり、微分方程式 (4.1) の初期条件を与える。式 (4.3) の和  $C = C_1 + C_2 + C_3$  を I イオンの照射量で微分することにより、I イオン照射中の欠陥濃度の照射量に対する変化率は以下のようなになる。

$$dC/d\Phi \cong \left[ \sigma_{d1} - \sigma_{r1} C_1(0) \right] \exp \left[ -(\sigma_{r1} + 2 v_0 \sigma_{d1}) \Phi \right]$$

$$+ \left[ \sigma_{d2} - \sigma_{r2} C_2(0) \right] \exp \left[ -(\sigma_{r2} + 2 v_0 \sigma_{d2}) \Phi \right] \quad \dots \dots \dots (4.4)$$

$$+ \sigma_{d3} \exp \left[ -2 v_0 \sigma_{d3} \Phi \right].$$

式 (4.4) において  $C_1(0) = C_2(0) = C_3(0) = 0$  とおくと、それは C イオンによって欠陥を前もって導入しない場合の欠陥生成率を与える。

$$[dC/d\Phi]_{undoped} = \sigma_{d1} \exp \left[ -(\sigma_{r1} + 2 v_0 \sigma_{d1}) \Phi \right]$$

$$+ \sigma_{d2} \exp \left[ -(\sigma_{r2} + 2 v_0 \sigma_{d2}) \Phi \right] \quad \dots \dots \dots (4.5)$$

$$+ \sigma_{d3} \exp \left[ -2 v_0 \sigma_{d3} \Phi \right]$$

これは 4.2 節の冒頭に述べた実験③から得られるものである。

式 (4.4) と (4.5) の差をとると、

$$\Delta (dC/d\Phi) = [dC/d\Phi] - [dC/d\Phi]_{undoped}$$

$$= -\sigma_{r1} C_1(0) \exp \left[ -\sigma_{r1} \Phi \right] - \sigma_{r2} C_2(0) \exp \left[ -\sigma_{r2} \Phi \right]. \quad \dots \dots \dots (4.6)$$

ここで  $\sigma_{r1}$ ,  $\sigma_{r2}$  に対して  $2 v_0 \sigma_{d1}$ ,  $2 v_0 \sigma_{d2}$  は小さいものとして省略した。

以上は I イオンによる subthreshold 効果に対して不安定な欠陥が 2 種類 ( $j=1, 2$ ) ある場合の解であった。この解を n 種類の不安定な欠陥が存在する場合に対して一般化することは容易であり、その場合の解は以下のようなになる。

$$\Delta (dC/d\Phi) = -\sum_{j=1}^n \sigma_{rj} C_j(0) \exp \left[ -\sigma_{rj} \Phi \right]. \quad \dots \dots \dots (4.7)$$

フレンケル対 1 対あたりの比抵抗を  $\rho_F$  とすると  $\Delta \rho = C \rho_F$  であるから、

$$-\Delta (d(\Delta \rho)/d\Phi) = -\Delta (dC/d\Phi) \rho_F \quad \dots \dots \dots (4.8)$$

と書ける。ここで  $\Delta\rho$  は I イオンの照射量が  $\Phi$  の時の電気抵抗から照射前の電気抵抗を差し引いたものであり、試料中に存在する欠陥濃度に比例する。

図 4.3(a), (b)には、 $-\Delta(d(\Delta\rho)/d\Phi)$  の値を log スケールで I イオンの照射量に対してプロットしたものである。図 4.3(a)で●は実験値であり、図の 3 本の直線の和が曲線を与える。この曲線は実験値を非常に良く再現している。このことは、微分方程式の解から求めた式(4.7)で  $n=3$  とした場合、実験結果をよく表わすものであるといえる。同様に Cu の場合は式(4.6)が実験結果を良く表すものであることが図 4.3(b)に示されている(実験結果を各成分に分離する方法については、付録 2 を参照のこと)。

図 4.3(a), (b)の各直線の傾きから  $\sigma_{rj}$  の値が求められ、各直線を  $\Phi \rightarrow 0$  に外挿した値から  $\sigma_{rj}C_j(0)$  が、従って  $C_j(0)$  が求められる。 $C(0)$  は C イオンによって導入した欠陥の全濃度であり、C イオン照射による電気抵抗の増加から求めることのできる量である。 $C_j(0)$  と  $C(0)$  との比、 $C_j(0)/C(0)$  は C イオンによって導入された欠陥のうち、インデックス  $j$  で示される形状の欠陥の割合である。C イオンを照射した後(I イオン照射は行わないで)アニーリング実験を行った試料の回復曲線  $\Delta\rho/\Delta\rho_0$  と  $C_j(0)/C(0)$  の値を比較することにより、 $j$  で示される形状の欠陥は、I イオン照射を行わない時には、何度から何度までの温度範囲で熱的に回復する欠陥であるかを知ることができる。そしてこの形状の欠陥がどの回復ステージに対応するものであるかを求めることができるのである。このようにして求めた各形状の欠陥に対する  $\sigma_{rj}$  及び対応する熱的回復の温度範囲と回復ステージをまとめたのが表 4.2 である。表 4.2 の解析結果を用いれば、図 4.2(a), (b)で示された I イオン照射の各回復ステージへの効果を以下のように非常に良く説明することができる。

- ① Ni の場合： I イオン照射によってステージ I が大きく減少するのはステージ I に対応する欠陥(単独格子間原子)に対する subthreshold 効果の消滅断面積が  $(6.5 \sim 1.4) \times 10^{-13} \text{cm}^2$  と非常に大きいためである。そしてステージ II のうち 210K 以下のサブステージに対応する欠陥に対しても  $2.2 \times 10^{-13} \text{cm}^2$  の消滅断面積で subthreshold 効果による消滅が起こる。その結果、210K 以下のステージ II のサブステージが I イオン照射により減少するのである。
- ② Cu の場合：ステージ I に対応する欠陥(単独格子間原子)に対する消滅断面積は Ni の場合よりも 1桁ほど小さい。従ってステージ I における I イオン照射の subthreshold 効果による減少は、I イオン照射によって生成される単独格子間原子によるステージ I の増加とちょうどつりあって、その結果、I イオンによってステージ I の回復量はあまり変化しなかったと考えられる。また、ステージ II 及び III に対応する欠陥に対する消滅断面積は小さいため、この形状の欠陥においては、I イオン照射中に消滅する量よりも生成される量の方が多くなる。その結果ステージ II, III は I イオン照射により増加する。

なお、図 4.3(a), (b)及び式(4.7)から期待されるように、I イオン照射中の電気抵抗測定がもっと I イオン照射量の大きい領域まで行われたならば、図 4.3(a), (b)において、実験データは I イオン照射量の大きいところで、より多くの直線に分離される可能性がある。これらの直線は、より小さい消滅断面積を与えるものである。本実験においては I イオンの照射量はそれ

ほど大きくないので、表 4.2 の最後のインデックスで示される形状の欠陥 (Ni で  $j=3$ , Cu で  $j=2$ ) の消滅断面積は、何種類かの形状の欠陥に対する消滅断面積の平均値を表している。また、Cu においては、 $j=2$  に対する消滅断面積  $\sigma_{r2}$  は小さいため、 $\sigma_{r2} \gg 2v_0\sigma_{d2}$  の条件を満足していない可能性がある。従って、表 4.2 において示された  $\sigma_{r2}$  には自発的再結合による消滅断面積  $2v_0\sigma_{d2}$  もかなりの割合で含んでいると考えられる。

表 4.2 で与えられた結果を図で示したものが図 4.4 である。図では 100 MeV I イオンビームの周辺の格子振動の大きさとその領域を示している。図に表した各領域の“温度”は、I イオン照射による各ステージの回復量の変化から求めたものであって、もちろん熱平衡における温度を意味するものではない。I イオンビーム周辺の照射欠陥がある短い時間に、I イオンにより励起された格子振動から受けた影響が、図に示された“温度”において熱平衡におかれた時に受ける影響と等しい、ということの意味するものである。従って、図の“温度”は、I イオンにより励起された格子振動の大きさとその持続時間の積に相当するものであると考えられる。図 4.4 から、Ni と Cu では I イオンによる格子振動の励起の大きさやその領域が著しく異なることが判る。

4.1 節でもふれたが、Ni と Cu は周期表において隣同士であり、原子番号、質量数がほぼ等しいことから、イオンとターゲット金属との弾性的相互作用は両金属でそれほど差がない。従って、ラディエーションアニーリングが弾性的相互作用により起こるならば、消滅断面積も Ni と Cu で同程度の値が得られるはずである。ところが実験結果によれば、消滅断面積は Ni と Cu では大きく異なる。特に、ステージ I に対応する欠陥に関しては 1 桁以上 Ni における断面積の方が大きい。エレクトロニックストップピングパワーの大きさから、I イオンによる電子励起の大きさは Ni と Cu ではほぼ同じである。よって、両金属のラディエーションアニーリングの大きな違いは電子格子相互作用の差によるものである。Ni における大きな消滅断面積は、Cu に比べて大きい電子格子相互作用を通じて、励起された電子のエネルギーが有効に格子系に伝わり、大きな格子振動を引き起こした結果であると考えられる。

本実験は、金属におけるラディエーションアニーリングに対する電子励起の寄与をはじめて定量的に求めたものである。



表 4.1 ラディエーションアニーリング実験における試料の厚さ, 84 MeV C イオンによる電気抵抗変化量  $\Delta \rho_0$ , C イオンによって試料中に導入された欠陥濃度  $C(0)$  及び I イオン照射量  $\Phi$

試料	厚さ ( $\mu\text{m}$ )	C イオンによる 抵抗増加量 $\Delta \rho_0$ ( $\Omega\text{cm}$ )	欠陥初期濃度 $C(0)$	I 照射量 $\Phi$ ( $\text{cm}^{-2}$ )
Ni	0.269	$4.7 \times 10^{-7}$	$7.9 \times 10^{-4}$	$7.6 \times 10^{12}$
Cu	0.236	$2.7 \times 10^{-7}$	$8.6 \times 10^{-4}$	$1.5 \times 10^{13}$

表 4.2 各形状の欠陥に対する, subthreshold 効果による消滅断面積  $\sigma_{rj}$ , 初期欠陥濃度にしめる割合  $C_j(0)/C(0)$  及び対応する欠陥回復の温度領域と回復ステージ. なお Cu の  $j=2$  に対する消滅断面積の値は自発的再結合による消滅断面積を含んでいる。

specimen	j	$\sigma_{rj}$ ( $\text{cm}^2$ )	$C_j(0)/C(0)$ (%)	thermal annealing stage (temperature region)
Ni	1	$6.5 \times 10^{-12}$	20	stage-I <sub>B</sub> and I <sub>C</sub> ( $T < 55\text{K}$ )
	2	$1.4 \times 10^{-12}$	24	stage-I <sub>D+E</sub> ( $55\text{K} < T < 65\text{K}$ )
	3	$2.2 \times 10^{-13}$	35	stage-II ( $65\text{K} < T < 210\text{K}$ )
Cu	1	$4.6 \times 10^{-13}$	27	stage-I ( $T < 42\text{K}$ )
	2	* $5.3 \times 10^{-14}$	67	stage-II and III ( $42\text{K} < T$ )

\* This value corresponds not to  $\sigma_{r2}$  but to  $\sigma_{r2} + 2v_0\sigma_{d2}$ .

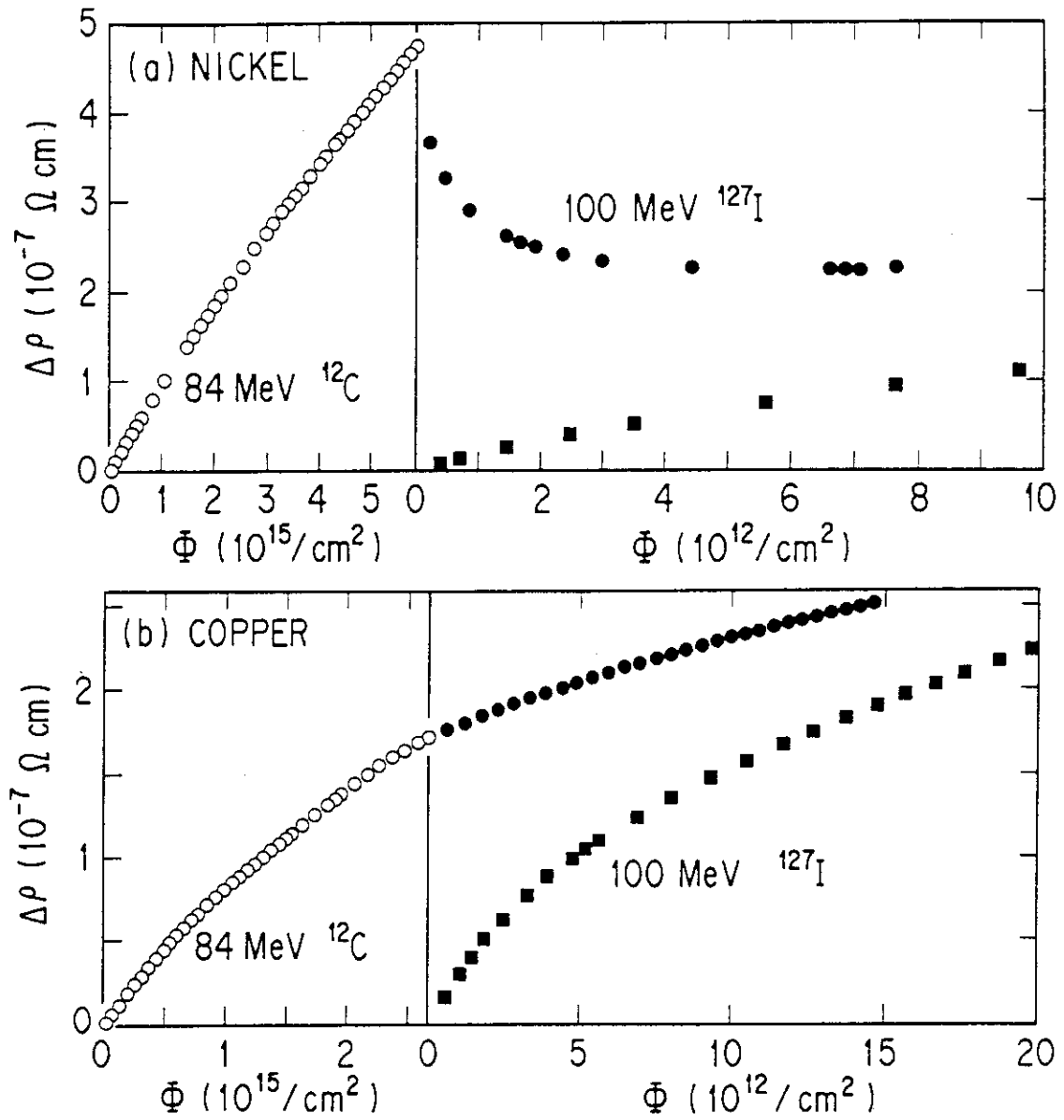


図 4.1 (a)Ni, (b)Cuにおける, 84MeV Cイオン照射中, 及びCイオン照射後ひき  
 続いて行った Iイオン照射中の電気抵抗変化のイオン照射量依存性  
 (○及び●)  
 なお, ■はCイオンを照射しない場合の Iイオン照射における電気抵抗変化  
 を示している。

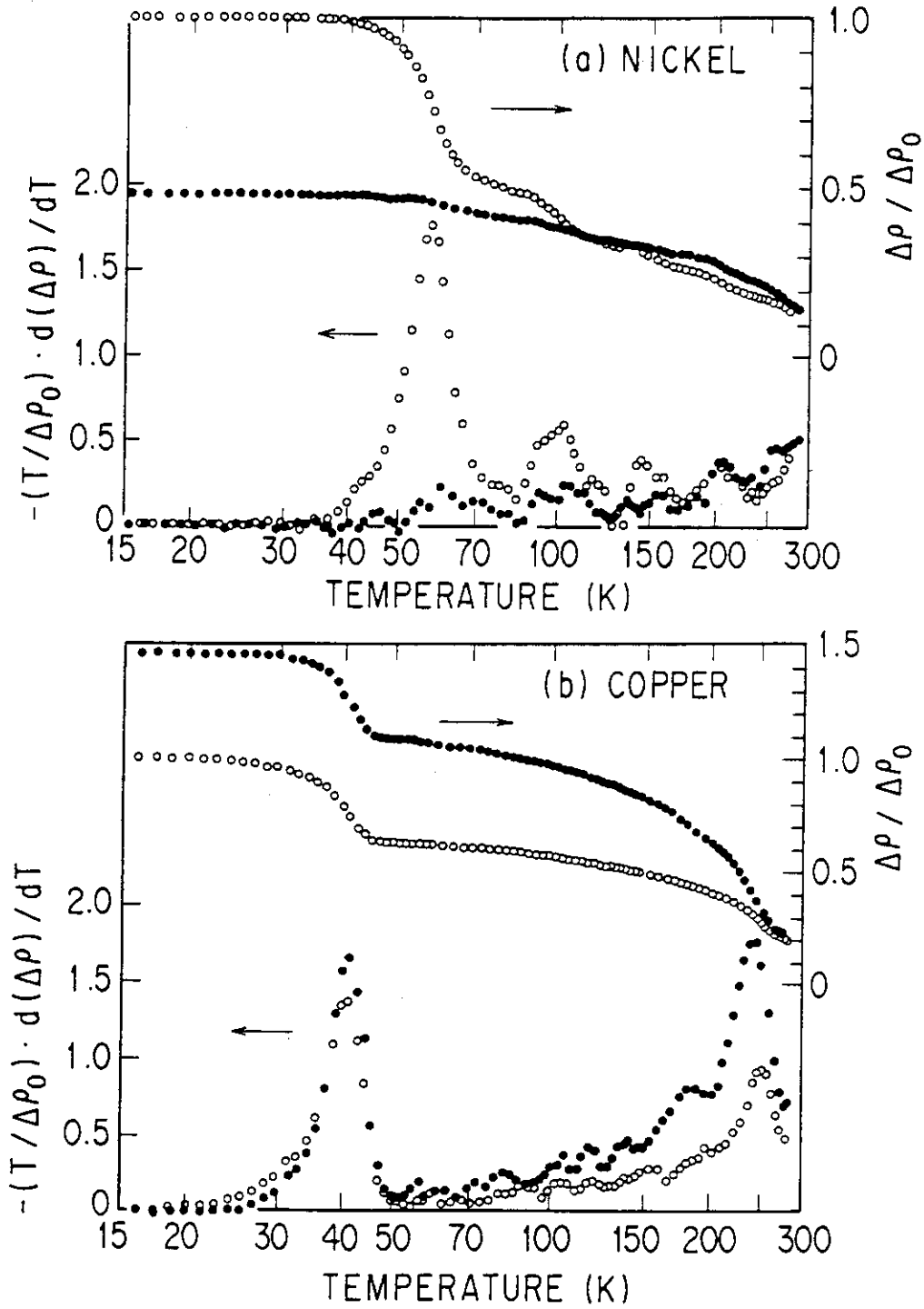


図 4.2 84MeV Cイオン照射後(○), 及び84MeV Cイオン+100MeV Iイオン照射後(●)の電気抵抗の回復曲線  $\Delta\rho / \Delta\rho_0$  及びその温度微分

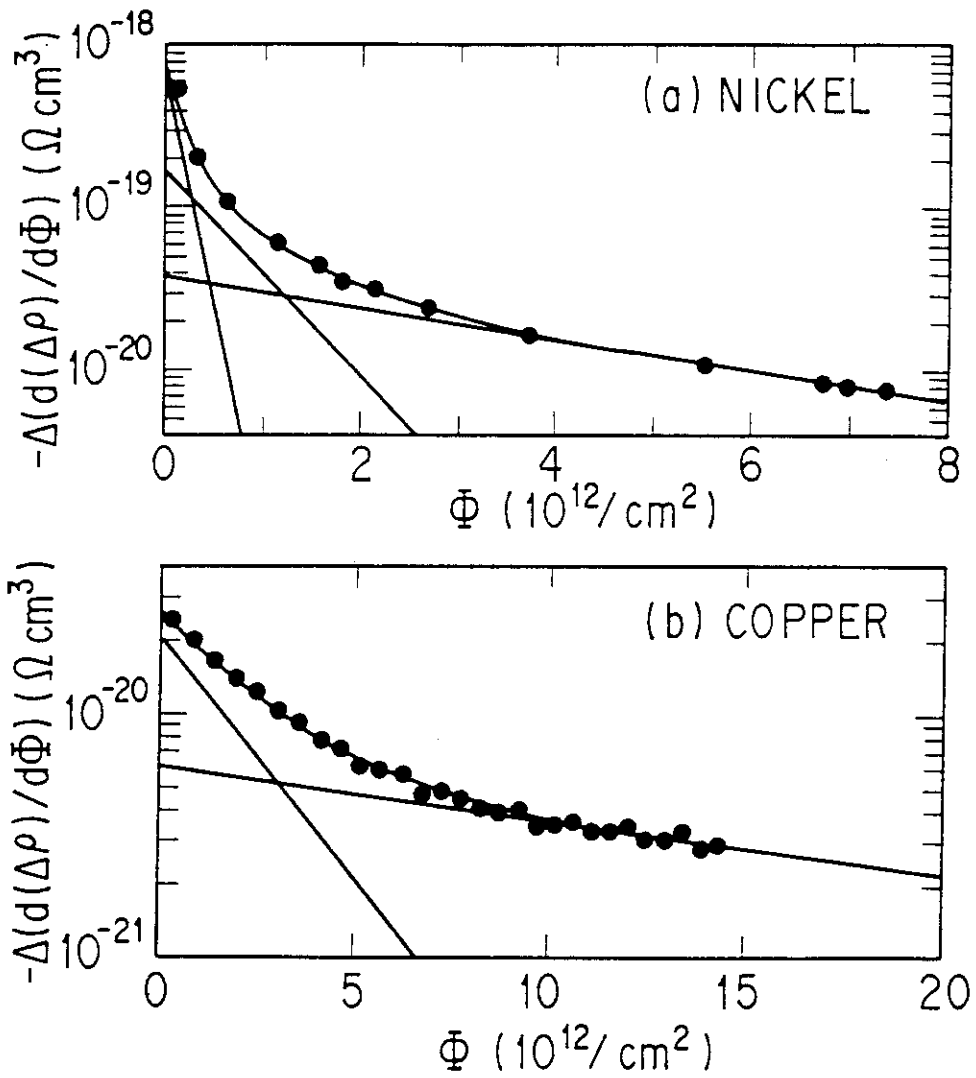
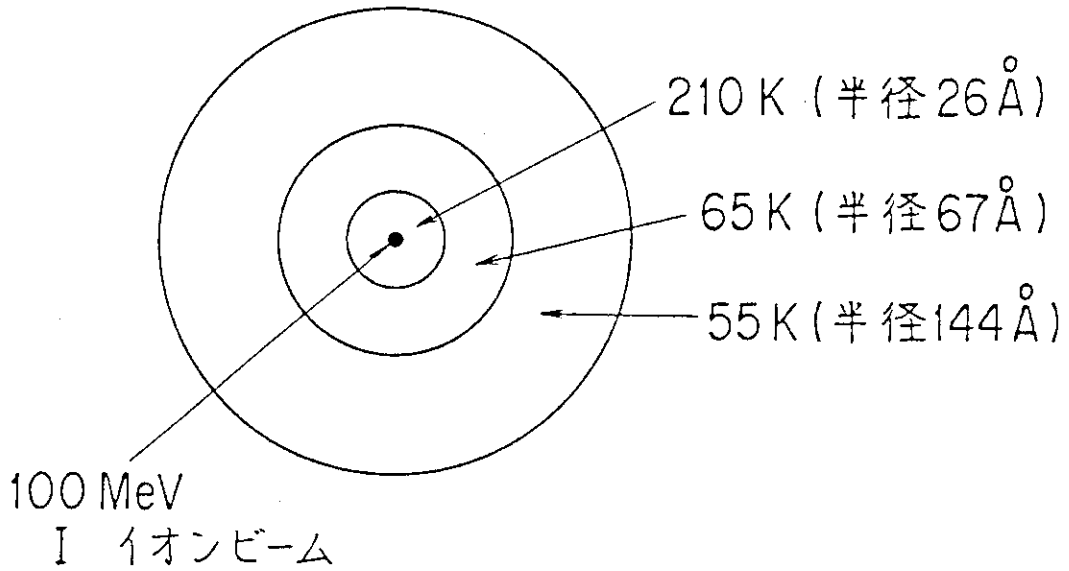


図 4.3  $-\Delta(d(\Delta\rho)/d\Phi)$  の I イオン照射量依存性。縦軸は log スケールでプロットしている。● は実験データ，曲線は Ni の場合， 図に示される 3 本の直線の和であり， Cu の場合， 2 本の直線の和である。

(a) Ni



(b) Cu

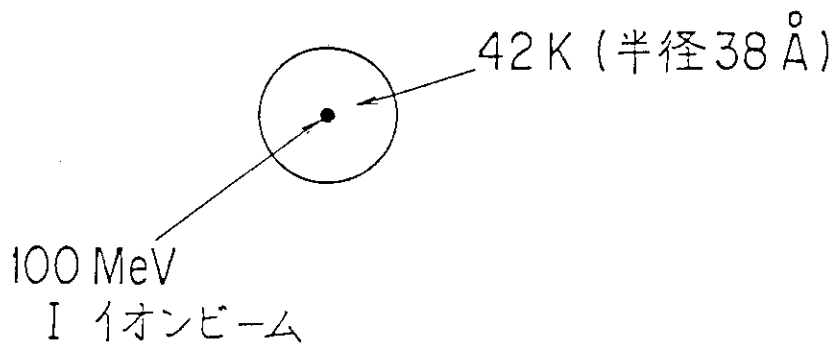


図 4.4 100 MeV の I イオン照射によって励起されるイオンビーム周辺の格子振動の大きさとその領域。(a) は Ni の場合、(b) は Cu の場合である。  
 図中の“温度”については本文参照のこと。

## 5. 結 論

- (1) 液体ヘリウム温度で 0.5-126MeV の種々のイオンを照射した FCC 金属 (Al, Cu, Ag, Ni) において 300K までのアニーリング実験を行い, 照射欠陥の回復ステージ, 特に, ステージ I における欠陥回復量やサブステージ構造における PKA エネルギー依存性, エレクトロニックストッピングパワー依存性について考察した結果, 以下の結論を得た。
- ① 低エネルギー (~1MeV) のイオン照射では, 照射イオンとターゲット金属との弾性的相互作用によるエネルギーの局所的散逸の結果, 照射中に欠陥の消滅が起こる。イオンによる電子励起の寄与はみられない。
  - ② 高エネルギー (~100MeV) の重イオンを照射した Ni, Al においてみいだされたステージ I の大きな減少や消滅は, 高エネルギー重イオンにより電子の高密度励起に費やされたエネルギーが電子格子相互作用を通じて局所的に格子系に伝達され, 格子振動が誘起された結果, 欠陥の消滅が促進されたためである。
  - ③ Cu, Ag では Ni, Al と比較して電子格子相互作用が弱いため, イオンによる電子励起が回復ステージに及ぼす効果は小さく, 高エネルギー重イオン照射中の欠陥消滅は, 低エネルギーイオン照射の場合と同じく, イオンと金属との弾性的相互作用によって支配される。
- (2) アニーリング実験により見いだされた電子励起による欠陥消滅を定量的にとらえるために, 単純な欠陥をあらかじめドーブしておいた Ni, Cu において 100MeV I イオンによるラディエーションアニーリングの実験を行い, 照射中の欠陥の生成, 消滅を記述した新しいモデルに基づく解析により, 各回復ステージに対応する欠陥に対して subthreshold 効果による欠陥消滅断面積を求めた。その結果, ステージ I に対応する欠陥に対する消滅断面積が Ni の場合  $(1.4 \sim 6.5) \times 10^{-12} \text{cm}^2$ , Cu の場合  $4.6 \times 10^{-13} \text{cm}^2$  という値を得た。Ni と Cu において弾性的相互作用に関するパラメーターはほぼ同じであり, 従って弾性的相互作用によるラディエーションアニーリングも差がないと考えられる。Ni と Cu における消滅断面積の大きな違いは, Ni における電子格子相互作用が Cu と比べて大きいこと, 励起された電子から格子系へのエネルギー伝達が Ni において Cu よりも有効に行われ, 欠陥の消滅に電子励起が大きな寄与をしたことを定量的に示すものである。

従来, 金属における照射損傷はすべて照射粒子と金属との弾性的相互作用により記述できるものとされてきた。金属における電子格子相互作用は非常に小さいため, 電子励起の寄与は無視できると考えられていたのである。

本研究は, イオンによる電子励起が照射中の欠陥消滅過程 (ラディエーションアニーリング) に大きな影響を及ぼすことを実験的にはじめて明らかにしたものであり, 本研究で得られた結果は, 高エネルギー粒子と金属の相互作用の研究に関する基礎的分野から, 今まで弾性的相互作用のみを考慮にいて損傷評価を行ってきた工学的損傷研究分野に至るまで, 幅広い研究分野に対して大きなインパクトを与えるものと期待される。

## 謝 辞

本論文をまとめるにあたり、東京大学理学部 二宮敏行教授の御指導を賜りました。心より感謝致します。

本研究は日本原子力研究所物理部固体物理第2研究室長 岩田忠夫博士の御指導と有益な議論により遂行することができたものです。また、本論文をまとめるにあたっては同様の御指導と援助を頂きました。心より感謝致します。

本研究の遂行にあたり、物理部固体物理第2研究室（現大型放射光特別チーム）佐々木茂美博士、茨城大学工学部 仁平猛助教授にはタンデム加速器、2MVVdG加速器において共同で実験を行っていただき、また、有益な議論に参加していただきました。深く感謝致します。

本研究における加速器による極低温照射実験は、物理部加速器管理室の小林千明室長、丸山倫夫前室長（現高崎研究所放射線高度利用研究推進室長）をはじめとする加速器管理室の皆様のご協力により遂行できたものです。深く感謝致します。

本研究の遂行にあたっては、物理部固体物理第2研究室、固体物理第1研究室、及び原子分子物理研究室の皆様から御援助、御激励をいただきました。感謝いたします。

## 参 考 文 献

- [1] For Example; Proceedings of the International Conference on Vacancies and Interstitials in Metals, Julich, Germany, September 1968 (North-Holland, 1970).  
 Proceedings of the International Conference on Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, Gatrinburg, Tenn., USA, October 1975, USERDA CONF-751006-P1, P2, 1976.  
 Proceedings of the International Conference on the Properties of Atomic Defects in Metals, Argonne National Laboratory, USA, October 1976, J. Nucl. Mater. 69&70 (1978).  
 Proceedings of the International Conference on Point Defects and Defect Interactions in Metals, Tokyo, Japan November 16-20, 1981 (Univ. Tokyo Press, 1982).  
 Proceedings of the International Conference on Vacancies and Interstitials in Metals and Alloys, Berlin 1986, Material Science Forum 15-18 (1987).
- [2] H.J. Wollenberger, in Vacancies and Interstitials in Metals (North-Holland, Amsterdam, 1970) p.255.
- [3] For Example; E. Sander and W.A. Sibley, Point Defects in Solids eds. by J.H. Grawford. Jr., and L.M. Slifkin (Plenum New York, 1972) vol.1, p.201.
- [4] For Example; R.L. Fleischer, P.B. Price and R.M. Walker, in Nuclear Tracks in Solids (Univ. California Press, Berkeley, 1975).
- [5] F. Seitz and J.S. Koehler, in Solid State Physics (Academic, New York, 1956) vol.2, pp.305-448.
- [6] A.N. Goland and A. Paskin, J. Appl. Phys. 35 2188 (1964).
- [7] W. Schilling, G. Burger, K. Isebeck and H. Wenzl, in Vacancies and Interstitials in Metals (North-Holland, Amsterdam, 1970) p.255.
- [8] H.G. Cooper, J.S. Koehler and J.M. Marx, Phys. Rev. 97 (1955) 599.
- [9] J.W. Corbett, R.B. Smith and R.M. Walker, Phys. Rev. 114 (1959) 1452.
- [10] J.W. Corbett, R.B. Smith and R.M. Walker, Phys. Rev. 114 (1959) 1460.
- [11] J.W. Corbett and R.M. Walker, Phys. Rev. 110 (1958) 767.
- [12] W. Bauer and W.F. Goepfinger, Phys. Rev. 154 (1967) 588.
- [13] H.I. Dawson, G.W. Iseler and J.W. Kauffmann, Lattice Defects and Their Interactions (Gordon and Breach New York, 1967) p.681.



- [14] H.M. Simpson, T.N. O'Neil, A.B. Pruitt, W.E. Faust and R.L. Chaplin, Phys. Letters, 27A (1968) 559.
- [15] R.L. Chaplin and H.M. Simpson, Phys. Rev. 163 (1967) 587.
- [16] C.L. Snead and P.E. Shearin, Phys. Rev. 140 (1965) A1781.
- [17] A. Sosin and K.R. Garr, Phys. Rev. 161 (1967) 664.
- [18] F.W. Wiffen, C.L. Snead and J.W. Kauffmann, Phys. Letters, 23 (1966) 22.
- [19] J.L. Oddou, Thesis University of Grenoble, France (1967).
- [20] P. Peretto, J.L. Oddou, C. Minier-Cassayre, D. Dautreppe and P. Moser, Phys. Stat. Sol. 16 (1966) 281.
- [21] C.L. Snead, F.W. Wiffen and J.W. Kauffman, Phys. Rev. 164 (1967) 900.
- [22] G. Burger, Thesis, Technische Hochschule München, Germany (1965).
- [23] G. Burger, K. Isebeck, J. Vökl, W. Schilling and H. Wenzl, Z. Angew. Phys. 22 (1967) 452.
- [24] G. Burger, K. Isebeck, J. Vökl and H. Wenzl, J. Appl. Phys. 36 (1965) 3356.
- [25] R.R. Coltman, C.E. Klabunde, D.L. McDonald and J.K. Redman, J. Appl. Phys. 33 (1962) 3509.
- [26] P. Peretto, Thesis C.E.N. Grenoble, France (1967).
- [27] J.J. Jackson and K. Herschbach, Phys. Rev. 164 (1967) 951.
- [28] G.D. Magnuson, W. Palmer and J.S. Koehler, Phys. Rev. 109 (1958) 1990.
- [29] K. Herschbach and J.J. Jackson, Phys. Rev. 158 (1967) 661.
- [30] K. Herschbach, Phys. Rev. 130 (1963) 554.
- [31] E. Klement and H. Wenzl, Z. Angew. Phys. 24 (1968) 182.
- [32] T.H. Blewitt, R.R. Coltman, C.E. Klabunde and J.K. Redman, ORNL Report 3017 (1960).
- [33] D. Meissner, Diplomarbeit Technische Hochschule Munich (1963).
- [34] K.L. Merkle, R.S. Averback and R. Benedek, Phys. Rev. Lett. 38 (1977) 424.
- [35] R.S. Averback and K.L. Merkle, Phys. Rev. B16 (1977) 3860.
- [36] R.S. Averback, R. Benedek and K.L. Merkle, Phys. Rev. B18 (1978) 4156.
- [37] R.S. Averback, R. Benedek and K.L. Merkle, J. Nucl. Mater. 75 (1978) 162.
- [38] R.S. Averback, K.L. Merkle and L.J. Thompson, Radiat. Eff. 51 (1980) 91.

- [39] R.S. Averback, R. Benedek, K.L. Merkle, J. Sprinkle and L.J. Thompson, *J. Nucl. Mater.* 113 (1983) 211.
- [40] R.S. Averback, *J. Nucl. Mater.* 108&109 (1982) 33.
- [41] P. Ehrhart and W. Schilling, *Phys. Rev.* B8 (1978) 2604.
- [42] F.W. Young, Jr., *J. Nucl. Mater.* 69&70 (1978) 310.
- [43] W. Sassin, Thesis, Technische Hochschule Aachen, Germany (1969).
- [44] G. Burger, K. Isebeck, H. Meissner, W. Schilling and H. Wenzl, *Phys. Letters* 20 (1966) 124.
- [45] P. Jung and W. Schilling, *Phys. Rev.* B5 (1972) 2046.
- [46] P. Jung, R.L. Chaplin, H.J. Fenzl, K. Reichelt and P. Wombacher, *Phys. Rev.* B8 (1973) 553.
- [47] P. Vajda, *Rev. Mod. Phys.* 49 (1977) 481.
- [48] W.E. King, K.L. Merkle and M. Meshii, *Phys. Rev.* B23 (1981) 6319.
- [49] W.E. King, R. Benedek, K.L. Merkle and M. Meshii, in *Proceedings of the International Conference on Point Defects and Defect Interactions in Metals* (Univ. Tokyo Press, 1982) p.789.
- [50] C. Erginsoy, G.H. Vineyard and A. Englert, *Phys. Rev.* 133 (1964) A595.
- [51] J.B. Gibson, A.N. Goland, M. Milgram and G.H. Vineyard, *Phys. Rev.* 120 (1960) 1229.
- [52] P. Lucasson, in *Proceedings of the International Conference on Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals*, USERDA CONF-751006-p1, vol.1 (1976) p.42.
- [53] G.H. Kinchin and R.S. Pease, *Rep. Prog. Phys.* 18 (1955) 1.
- [54] M.J. Norgett, M.T. Robinson and I.M. Torrens, *Nucl. Eng. Design* 33 (1975) 50.
- [55] P. Sigmund, *Radiat. Eff.* 1 (1969) 15.
- [56] M.T. Robinson and I.M. Torrens, *Phys. Rev.* B9 (1974) 5008.
- [57] J. Lindhard, V. Nielsen, M. Scharff and P.V. Thomsen, *Kgl. Dan. Vidensk. Selsk. Mat.-fys. Medd.* 33 (1963) No.10.
- [58] M.T. Robinson, in *Nuclear Fusion Reactors*, British Nuclear Energy Society, London (1970) 364.
- [59] J. Lindhard, V. Nielsen, and M. Scharff, *Kgl. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. -fys. Medd.* 36 (1968) No. 10.
- [60] K.B. Winterbon, P. Sigmund and J.B. Sanders, *Kgl. Dan. Vidensk. Selsk. Mat.-fys. Medd.* 37 (1972) No. 14.
- [61] L.C. Northcliffe and R.F. Schilling, *Nucl. Data Tables*, 7 (1970) 233.

- [62] W.D. Wilson, L.G. Haggmark and J.P. Biersack, Phys. Rev. B15 (1977) 2458.
- [63] J.F. Ziegler, Handbook of Stopping Cross-Sections for Energetic Ions in All Elements, (Pergamon, 1980).
- [64] J. Lindhard and M. Scharff, Phys. Rev. 124 (1961) 128.
- [65] M. Nakagawa, K. Böning, P. Rosner and G. Vogl, Phys. Rev B16 (1977) 5285.
- [66] J.A. Horak and T.H. Blewitt, J. Nucl. Mater. 49 (1973/74) 161.
- [67] M.A. Kirk and L.R. Greenwood, J. Nucl. Mater. 80 (1979) 159.
- [68] J.A. Brinkman, J. Appl. Phys. 25 (1954) 961.
- [69] Y.S. Touloukian, R.W. Powell, C.Y. Ho and P.G. Klemens, "Thermal Conductivity (Nonmetallic Solids)" Thermophysical Properties of Matter, The TPRC Data Series, Vol. 2, (IFI/Plenum, New York-Washington, 1970).
- [70] Y.S. Touloukian, R.W. Powell, C.Y. Ho and P.G. Klemens, "Thermal Conductivity (Metallic Elements and Alloys)" Thermophysical Properties of Matter, The TPRC Data Series, Vol. 1, (IFI/Plenum, New York- Washington, 1970).
- [71] R.L. Fleischer, P.B. Price and R.M. Walker, J. Appl. Phys. 36 (1965) 3645.
- [72] G. Bonfiglioli, A. Ferro and A. Mojoni, J. Appl. Phys. 32 (1961) 2499.
- [73] L.T. Chadderton and H.M. Montagu-Pollock, Proc. Roy. Soc. A274 (1963) 239.
- [74] L.T. Chadderton, D.V. Morgan, I. McC. Torrens and D. Van. Vliet, Phil. Mag. 13 (1966) 185.
- [75] for example:  
 W.L. Brown, L.J. Lanzerotti, J.M. Poate and W.M. Augustyniak, Phys. Rev. Lett. 40 (1978) 1027.  
 W.L. Brown, W.M. Augustyniak, E. Brody, B. Cooper, L.J. Lanzerotti, A. Ramirez, R. Evatt and R.E. Johnson, Nucl. Instrum. & Methods 170 (1980) 321.  
 R.W. Ollerhead, J. Böttiger, J.A. Davies, J. L'ecuyer, H.K. Haugen and N. Matsunami, Rad. Eff. 49 (1980) 203.  
 J. Böttiger, J.A. Davies, J. L'ecuyer, N. Matsunami and R. Ollerhead, Rad. Eff. 49 (1980) 119.
- [76] P.G. Klemens, Handbuch der Physik, edited by S. Flugge (Springer-Verlag, Berlin, 1956) Vol. 14 pp.198-281.

- [77] W.H. Butler and R.K. Williams, Phys. Rev. B18 (1978) 6483.
- [78] C.K. Kittel, Introduction to Solid State Physics.
- [79] F. Dworschak, Chr. Lehmann, H. Schuster, H. Wollenberger and J. Wurm, in Proceedings of the International Conference on Solid State Physics Research with Accelerators, BNL Report-50083 (1967) p.327.
- [80] G. Duesing, W. Sassin, W. Schilling and H. Hemmerich, Crystal Lattice Defects 1 (1969) 55.
- [81] G. Duesing, H. Hemmerich, W. Sassin and W. Schilling, Crystal Lattice Defects 1 (1970) 135.
- [82] J. Dural, J. Ardonceau and J.C. Jousset, J. Phys. (Paris) 38 (1977) 1007.
- [83] D. Meissner and W. Schilling, Z. Naturforsch. A26 (1971) 502.
- [84] R.C. Birtcher, R.S. Averbach and T.H. Blewitt, J. Nucl. Mater. 75 (1978) 167.
- [85] G. Burger, H. Meissner, and W. Schilling, Phys. Stat. Sol. 4 (1964) 281.
- [86] J.A. Horak and T.H. Blewitt, Phys. Stat. Sol. (a)9 (1972) 721.
- [87] P. Vajda and M. Biget, Phys. Stat. Sol. (a)23 (1974) 251.
- [88] M. Biget, R. Rizk, P. Vajda and A. Bessis, Solid State Commun. 16 (1975) 949.
- [89] O. Dimitrov, C. Dimitrov, P. Rosner and K. Böning, Radiat. Eff. 30 (1976) 135.
- [90] M. Nakagawa, W. Mansel, K. Böning, P. Rosner and G. Vogl, Phys. Rev. B19 (1979) 742.
- [91] R.R. Coltman, Jr., C.E. Klabunde and J.M. Williams, J. Nucl. Mater 99 (1981) 284.
- [92] A. Dunlop, B.M. Pande, K. Böning, P. Rosner and H.E. Schaefer, J. Nucl. Mater. 108&109 (1982) 83.

付録1 ラディエーションアニーリングを記述する連立微分方程式の解法

ここでは本文の式(4.1)の近似解(4.3)の導出について述べる。

解くべき連立方程式は、

$$dC_1/d\Phi = \sigma_{d1} [1 - 2v_0(C_1 + C_2 + C_3)] - \sigma_{r1}C_1 \dots\dots\dots (A1-1)$$

$$dC_2/d\Phi = \sigma_{d2} [1 - 2v_0(C_1 + C_2 + C_3)] - \sigma_{r2}C_2 \dots\dots\dots (A1-2)$$

$$dC_3/d\Phi = \sigma_{d3} [1 - 2v_0(C_1 + C_2 + C_3)] \dots\dots\dots (A1-3)$$

総欠陥量をCとすると、

$$C = C_1 + C_2 + C_3 \dots\dots\dots (A1-4)$$

ここでC<sub>j</sub>は index jで指定される形状の欠陥の濃度、σ<sub>dj</sub>は欠陥jの生成断面積、σ<sub>rj</sub>は欠陥jの subthreshold 効果による欠陥消滅断面積である。v<sub>0</sub>は再結合体積、Φは単位面積あたりの照射量である。

方程式A1-1, A1-2, A1-3を初期条件C<sub>j</sub>(Φ=0)=C<sub>j</sub>(0)(j=1, 2, 3), C(0)=C<sub>1</sub>(0)+C<sub>2</sub>(0)+C<sub>3</sub>(0)のもとで解くことにする。さらに、subthreshold 効果による欠陥の消滅断面積σ<sub>rj</sub>が自発的再結合による消滅断面積2v<sub>0</sub>σ<sub>dj</sub>に比べて十分大きい場合、即ち

$$\sigma_{rj} \gg 2v_0\sigma_{dj} \quad (j = 1, 2) \dots\dots\dots (A1-5)$$

における近似解を求めることにする。

A1-1, A1-2, A1-3を変形すると、

$$[d/d\Phi + (2v_0\sigma_{d1} + \sigma_{r1})] C_1 + 2v_0\sigma_{d1}C_2 + 2v_0\sigma_{d1}C_3 = \sigma_{d1} \dots\dots\dots (A1-6)$$

$$2v_0\sigma_{d2}C_1 + [d/d\Phi + (2v_0\sigma_{d2} + \sigma_{r2})] C_2 + 2v_0\sigma_{d2}C_3 = \sigma_{d2} \dots\dots\dots (A1-7)$$

$$2v_0\sigma_{d3}C_1 + 2v_0\sigma_{d3}C_2 + [d/d\Phi + 2v_0\sigma_{d3}] C_3 = \sigma_{d3} \dots\dots\dots (A1-8)$$

A1-6~A1-8からC<sub>3</sub>を消去する。まずA1-6, A1-7からC<sub>3</sub>を消去すると、

$$[\sigma_{d2}d/d\Phi + \sigma_{d2}\sigma_{r1}] C_1 - [\sigma_{d1}d/d\Phi + \sigma_{d1}\sigma_{r2}] C_2 = 0 \dots\dots\dots (A1-9)$$

同様にA1-7, A1-8からC<sub>3</sub>を消去すると、

$$2v_0\sigma_{d2}dC_1/d\Phi + [d^2/d\Phi^2 + \{2v_0(\sigma_{d2} + \sigma_{d3}) + \sigma_{r2}\} d/d\Phi + 2v_0\sigma_{r2}\sigma_{d3}] C_2 = 0 \dots\dots (A1-10)$$

さらにA1-9, A1-10からC<sub>2</sub>を消去すると、

$$d^3C_1/d\Phi^3 + [2v_0(\sigma_{d1} + \sigma_{d2} + \sigma_{d3}) + \sigma_{r1} + \sigma_{r2}] d^2C_1/d\Phi^2 + \{ [2v_0(\sigma_{d2} + \sigma_{d3}) + \sigma_{r2}] \sigma_{r1} + 2v_0\sigma_{r2}\sigma_{d3} + 2v_0\sigma_{d1}\sigma_{r2} \} dC_1/d\Phi + 2v_0\sigma_{r1}\sigma_{r2}\sigma_{d3}C_1 = 0 \dots\dots\dots (A1-11)$$

A1-11はC<sub>1</sub>に関する3次の斉次式であるから、その解は、

$$C_1 = A_1 \exp[-k_1\Phi] + A_2 \exp[-k_2\Phi] + A_3 \exp[-k_3\Phi] \dots\dots\dots (A1-12)$$

と書ける。ただし-k<sub>j</sub>(j=1, 2, 3)は下の3次方程式の解である。

$$\lambda^3 + [\sigma_{r1} + \sigma_{r2} + 2v_0(\sigma_{d1} + \sigma_{d2} + \sigma_{d3})] \lambda^2 + [\sigma_{r1}\sigma_{r2} + 2\sigma_{r1}(\sigma_{d2} + \sigma_{d3})v_0 + 2\sigma_{r2}(\sigma_{d1} + \sigma_{d3})v_0] \lambda + 2v_0\sigma_{r1}\sigma_{r2}\sigma_{d3} = 0 \dots\dots\dots (A1-13)$$

A1-1 から,

$$C = 1/2 v_0 - [ 1/2 v_0 \sigma_{d1} ] [ dC_1/d\phi + \sigma_{r1} C_1 ] \dots\dots\dots (A1-14)$$

ただし  $C=C_1+C_2+C_3$  である。また, A1-1 に A1-2, A1-3 を加えると,

$$dC/d\phi = \sigma_d [ 1 - 2 v_0 ( C_1 + C_2 + C_3 ) ] - \sigma_{r1} C_1 - \sigma_{r2} C_2 \dots\dots\dots (A1-15)$$

但し

$$\sigma_d = \sigma_{d1} + \sigma_{d2} + \sigma_{d3} \dots\dots\dots (A1-16)$$

A1-14 に A1-12 を代入すると,

$$C = 1/2 v_0 + ( 1/2 v_0 \sigma_{d1} ) [ ( k_1 - \sigma_{r1} ) A_1 \exp(-k_1\phi) + ( k_2 - \sigma_{r1} ) A_2 \exp(-k_2\phi) + ( k_3 - \sigma_{r1} ) A_3 \exp(-k_3\phi) ] \dots\dots\dots (A1-17)$$

A1-17 を  $\phi$  で微分した後  $\phi=0$  とおいた時の値と A1-15 で  $\phi=0$  とおいた値は一致する。

即ち,

$$\begin{aligned} & (-1/2 v_0 \sigma_{d1}) [ k_1 ( k_1 - \sigma_{r1} ) A_1 + k_2 ( k_2 - \sigma_{r1} ) A_2 + k_3 ( k_3 - \sigma_{r1} ) A_3 ] \\ & = \sigma_{d1} [ 1 - 2 v_0 ( C_1(0) + C_2(0) + C_3(0) ) ] - \sigma_{r1} C_1(0) - \sigma_{r2} C_2(0) \dots\dots\dots (A1-18) \end{aligned}$$

A1-12 で  $\phi=0$  とおくと,

$$C_1(0) = A_1 + A_2 + A_3 \dots\dots\dots (A1-19)$$

A1-12 を  $\phi$  で微分した後  $\phi=0$  とおいた時の値と A1-1 で  $\phi=0$  とおいた値は一致する。

即ち,

$$\begin{aligned} & -k_1 A_1 - k_2 A_2 - k_3 A_3 \\ & = \sigma_{d1} [ 1 - 2 v_0 ( C_1(0) + C_2(0) + C_3(0) ) ] - \sigma_{r1} C_1(0) \dots\dots\dots (A1-20) \end{aligned}$$

A1-18, A1-19, A1-20 は  $A_1, A_2, A_3$  に関する 3 元 1 次方程式であるから, A1-13 の解  $k_1, k_2, k_3$  が判れば  $A_1, A_2, A_3$  が求められる。  $A_1, A_2, A_3$  が求められれば  $C_1, C_2, C_3$  は次のようにして計算できる。

A1-3 に A1-17 を代入すると,

$$\begin{aligned} dC_3/d\phi & = [ -\sigma_{d3}/\sigma_{d1} ] [ ( k_1 - \sigma_{r1} ) A_1 \exp(-k_1\phi) + ( k_2 - \sigma_{r1} ) A_2 \exp(-k_2\phi) \\ & + ( k_3 - \sigma_{r1} ) A_3 \exp(-k_3\phi) ] \dots\dots\dots (A1-21) \end{aligned}$$

A1-21 を  $\phi$  で積分して初期条件  $C_3(0)$  を用いると,

$$\begin{aligned} C_3 & = C_3(0) + ( \sigma_{d3}/\sigma_{d1} ) [ A_1 ( \sigma_{r1} - k_1 ) ( 1 - \exp(-k_1\phi) ) / k_1 \\ & + A_2 ( \sigma_{r1} - k_2 ) ( 1 - \exp(-k_2\phi) ) / k_2 + A_3 ( \sigma_{r1} - k_3 ) ( 1 - \exp(-k_3\phi) ) / k_3 ] \\ & \dots\dots\dots (A1-22) \end{aligned}$$

A1-17, A1-12, A1-22 から  $C_2$  も求められて,

$$\begin{aligned} C_2 & = C - C_1 - C_3 \\ & = C_2(0) \\ & + [ 1 + \sigma_{d3}(k_1 - \sigma_{r1})/\sigma_{d1}k_1 - (k_1 - \sigma_{r1})/2v_0\sigma_{d1} ] A_1 ( 1 - \exp(-k_1\phi) ) \\ & + [ 1 + \sigma_{d3}(k_2 - \sigma_{r1})/\sigma_{d1}k_2 - (k_2 - \sigma_{r1})/2v_0\sigma_{d1} ] A_2 ( 1 - \exp(-k_2\phi) ) \\ & + [ 1 + \sigma_{d3}(k_3 - \sigma_{r1})/\sigma_{d1}k_3 - (k_3 - \sigma_{r1})/2v_0\sigma_{d1} ] A_3 ( 1 - \exp(-k_3\phi) ) \\ & \dots\dots\dots (A1-23) \end{aligned}$$

以上により,  $k_j (j=1, 2, 3)$  が判れば  $A_j$  が求められ, 従って,  $C_j$  の解が陽に求められる。

$k_j (j=1, 2, 3)$  は一般には 3 次方程式 A1-13 の解として与えられるが, ここで (A1-5) の条件

を用いることにする。

A-13 の  $\lambda$  の係数に

$$4(\sigma_{d1}\sigma_{d2} + \sigma_{d2}\sigma_{d3} + \sigma_{d3}\sigma_{d1})v_0^2 \dots\dots\dots (A1-24)$$

を加えてみると、

$$\sigma_{r1} \{ [\sigma_{r2} + 2v_0(\sigma_{d2} + \sigma_{d3})] + [2v_0\sigma_{d1}/\sigma_{r1}] \sigma_{r2} + [2v_0\sigma_{d1}/\sigma_{r1}] 2v_0(\sigma_{d2} + \sigma_{d3}) \} \\ + \sigma_{r2} \{ 2v_0\sigma_{d3} + [2v_0\sigma_{d2}/\sigma_{r2}] 2v_0\sigma_{d3} \} \dots\dots\dots (A1-25)$$

となる。ここで  $\sim$  の項が加えられたものである。ところが(A1-5)の条件から、加えられた項は他の項と比較して十分小さいことが判る。次に A1-13 の定数項に

$$4(\sigma_{r1}\sigma_{d2}\sigma_{d3}v_0^2 + \sigma_{r2}\sigma_{d3}\sigma_{d1}v_0^2 + 2\sigma_{d1}\sigma_{d2}\sigma_{d3}v_0^3) \dots\dots\dots (A1-26)$$

を加えると、

$$2\sigma_{r1}\sigma_{r2}\sigma_{d3}v_0 \cdot \\ [1 + (2v_0\sigma_{d1}/\sigma_{r1}) + (2v_0\sigma_{d2}/\sigma_{r2}) + (2v_0\sigma_{d1}/\sigma_{r1})(2v_0\sigma_{d2}/\sigma_{r2})] \dots\dots\dots (A1-27)$$

となる。 $\sim$  が加えられた項である。(A1-5)の条件から、加えられた項は他の項と比較して十分小さい。さて、A1-13 に上の 2 つの項(A1-24), (A1-26) を  $\lambda$  の係数及び定数項にそれぞれ加えた時、A1-13 は次式になる。

$$[\lambda + (\sigma_{r1} + 2v_0\sigma_{d1})][\lambda + (\sigma_{r2} + 2v_0\sigma_{d2})][\lambda + 2v_0\sigma_{d3}] = 0 \dots\dots\dots (A1-28)$$

以上のことから(A1-5)の条件のもとでは、A1-13 の解は A1-12 の  $k_1, k_2, k_3$  に対しては次のようになる。

$$k_1 = \sigma_{r1} + 2v_0\sigma_{d1} \\ k_2 = \sigma_{r2} + 2v_0\sigma_{d2} \dots\dots\dots (A1-29) \\ k_3 = 2v_0\sigma_{d3}$$

A1-29, A1-18~20 から  $A_1, A_2, A_3$  が求められる。これらを A1-12, A1-22, A1-23 に代入して、さらに(A1-5)の条件を用いることにより、 $C_1, C_2, C_3$  が本文中の式(4.3)のように得られる。

付録2 ラディエーションアニーリングのデータ解析における成分分離の方法

ここではラディエーションアニーリングの実験データを本文中の式(4.7)を用いて解析する過程について述べる。

subthreshold recoil eventに対して不安定な形状の欠陥が3種類ある場合、本文の式(4.7)は次のようになる。(ρ<sub>F</sub>をかけて電気抵抗の変化の式に直しておく)

$$-\Delta(d(\Delta\rho)/d\Phi) = \rho_F [\sigma_{r1}C_1(0)\exp(-\sigma_{r1}\Phi) + \sigma_{r2}C_2(0)\exp(-\sigma_{r2}\Phi) + \sigma_{r3}C_3(0)\exp(-\sigma_{r3}\Phi)] \quad \text{..... (A2-1)}$$

図A2.1はCイオンによって欠陥をドープしたNiにおいて100MeV Iイオン照射量Φに対する-Δ(d(Δρ)/dΦ)の対数をΦに対してプロットしたものである。式(A2-1)において、第3項に比べて第1, 第2項はΦに対して早く減衰してしまうため、Φの大きい時、(A2-1)は次のように書ける。

$$-\Delta(d(\Delta\rho)/d\Phi) = \rho_F\sigma_{r3}C_3(0)\exp(-\sigma_{r3}\Phi) \quad \text{..... (A2-2)}$$

(A2-2)の対数をとると、

$$\log[-\Delta(d(\Delta\rho)/d\Phi)] = \log[\rho_F\sigma_{r3}C_3(0)] - \sigma_{r3}\Phi \quad \text{..... (A2-3)}$$

図A2.1でΦの大きいところで直線部分が現れるが、これは式(A2-3)で表されるものであると考えられる。従ってこの直線の傾きと、Φ=0の値からσ<sub>r3</sub>とC<sub>3</sub>(0)が求められることになる。求められたρ<sub>F</sub>σ<sub>r3</sub>C<sub>3</sub>(0)exp(-σ<sub>r3</sub>Φ)を(A2-1)から差し引くと、

$$-\Delta(d(\Delta\rho)/d\Phi) - \rho_F\sigma_{r3}C_3(0)\exp(-\sigma_{r3}\Phi) = \rho_F [\sigma_{r1}C_1(0)\exp(-\sigma_{r1}\Phi) + \sigma_{r2}C_2(0)\exp(-\sigma_{r2}\Phi)] \quad \text{..... (A2-4)}$$

(A2-4)の左辺の値の対数をΦに対してプロットしたものが図A2.2である。式(A2-4)においてΦの大きい時、

$$\log[-\Delta(d(\Delta\rho)/d\Phi) - \rho_F\sigma_{r3}C_3(0)\exp(-\sigma_{r3}\Phi)] \longrightarrow \log[\rho_F\sigma_{r2}C_2(0)] - \sigma_{r2}\Phi \quad \text{..... (A2-5)}$$

これは図A2.2の直線部分を表す式である。従って、この直線の傾きとΦ→0の値からσ<sub>r2</sub>とC<sub>2</sub>(0)が求められる。式(A2-4)から、求められたρ<sub>F</sub>σ<sub>r2</sub>C<sub>2</sub>(0)exp(-σ<sub>r2</sub>Φ)を差し引くと、

$$-\Delta(d(\Delta\rho)/d\Phi) - \rho_F\sigma_{r3}C_3(0)\exp(-\sigma_{r3}\Phi) - \rho_F\sigma_{r2}C_2(0)\exp(-\sigma_{r2}\Phi) = \rho_F\sigma_{r1}C_1(0)\exp(-\sigma_{r1}\Phi) \quad \text{..... (A2-6)}$$

式(A2-6)の左辺の対数をΦに対してプロットしたものが図A2.3である。図A2.3の直線が式(A2-6)の対数を表すと考えられるので、σ<sub>r1</sub>, C<sub>1</sub>(0)が求められる。以上のプロセスから、Niの場合、subthreshold recoil eventに対して不安定な形状の欠陥が3種類であることが判り、各々に対してσ<sub>rj</sub>, C<sub>j</sub>(0)が求められることが判る。

銅の場合も全く同様である。この場合、-Δ(d(Δρ)/dΦ)の対数をΦに対してプロットした図A2.4でΦの大きい所に現れる直線部分(ρ<sub>F</sub>σ<sub>r2</sub>C<sub>2</sub>(0)exp(-σ<sub>r2</sub>Φ)を表す)を差し引いた、

$$-\Delta(d(\Delta\rho)/d\Phi) - \rho_F\sigma_{r2}C_2(0)\exp(-\sigma_{r2}\Phi) \quad \text{..... (A2-7)}$$

の対数はΦに対して一本の直線となる(図A2.5)。従って銅の場合、subthreshold recoi



event に対して不安定な欠陥は 2 種類であることが判り、各々に対して  $\sigma_{rj}, C_j(0)$  が求められる。

以上のようにして求められた  $\sigma_{rj}, C_j(0)$  を本文中の表 4.2 に示してある。

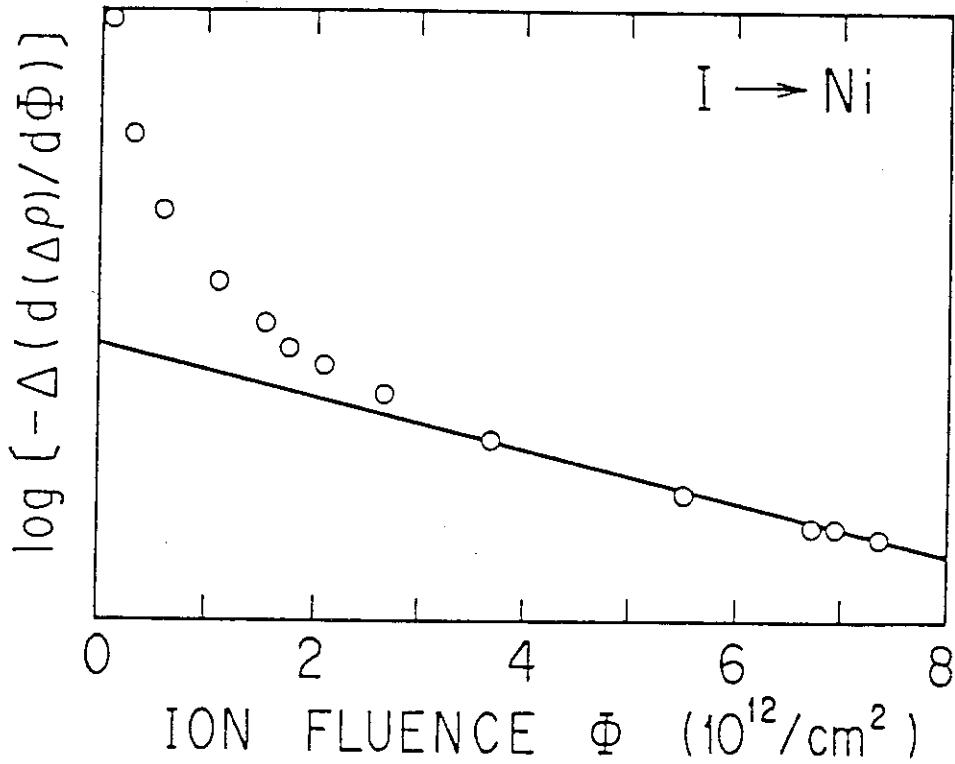


図 A 2.1  $-\Delta(d(\Delta\rho)/d\Phi)$  の I イオン照射量依存性 (Ni の場合)  
縦軸は log スケールでプロットしてある。

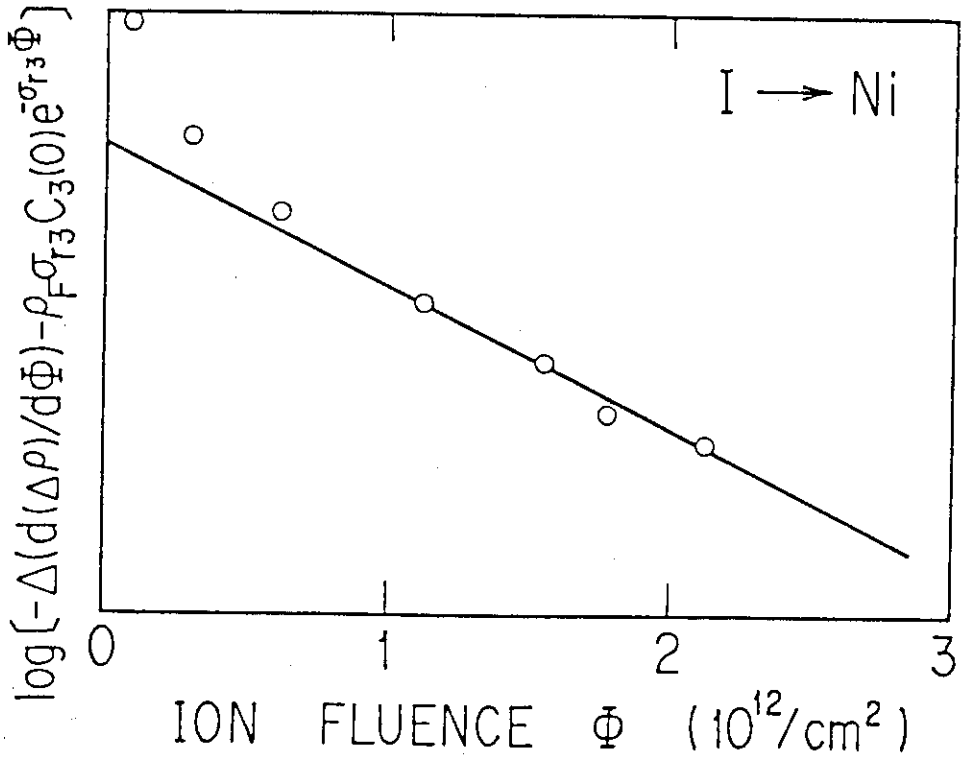


図 A 2.2  $\log [-\Delta(d(\Delta\rho)/d\Phi) - \rho_F \sigma_{r3} C_3(0) \exp(-\sigma_{r3}\Phi)]$   
 の I イオン照射量依存性 (Ni の場合)

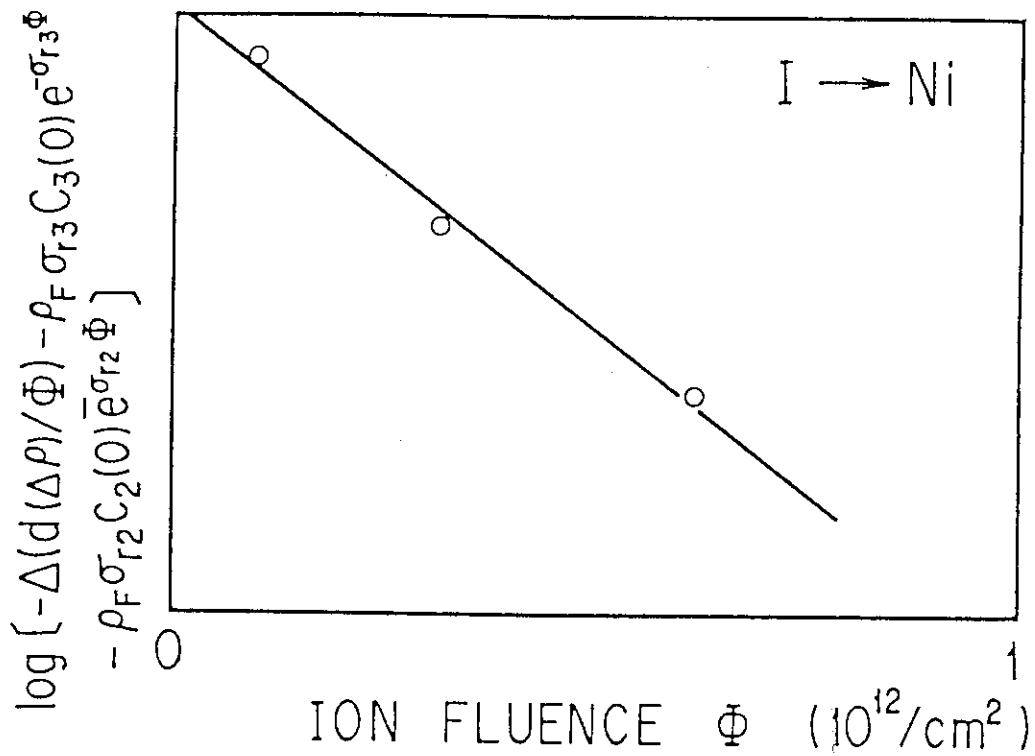
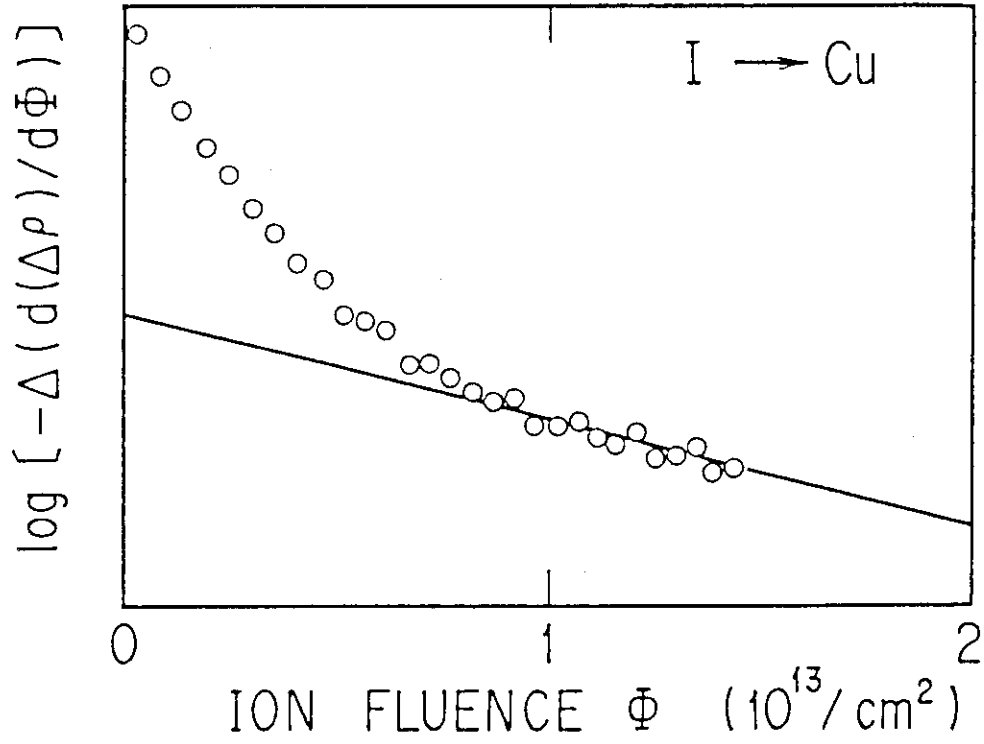
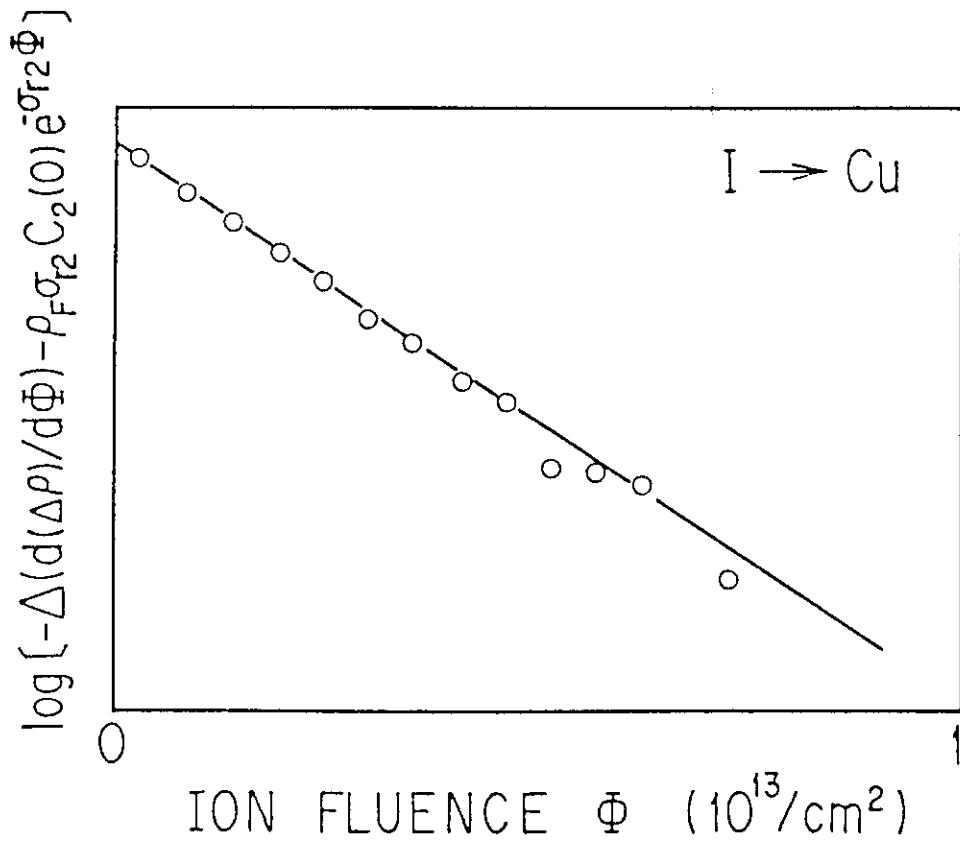


図 A 2.3  $\log [-\Delta(d(\Delta\rho)/d\Phi) - \rho_F \sigma_{r3} C_3(0) \exp(-\sigma_{r3}\Phi) - \rho_F \sigma_{r2} C_2(0) \exp(-\sigma_{r2}\Phi)]$   
 の I イオン照射量依存性 (Ni の場合)



図A.2.4  $-\Delta(d(\Delta\rho)/d\Phi)$  の I イオン照射量依存性 (Cu の場合)  
縦軸は log スケールでプロットしてある。



図A.2.5  $\log [-\Delta(d(\Delta\rho)/d\Phi) - \rho_F \sigma_{r2} C_2(0) \exp(-\sigma_{r2} \Phi)]$   
の I イオン照射量依存性 (Cu の場合)

## 付録3 発表論文

本研究の成果は以下の学術雑誌に発表した。

本論文第3章のうち, Ni, Cuに関する部分については,

Anomalous Reduction of Stage-I Recovery in Nickel Irradiated with Heavy Ions in the Energy Range 100-120MeV.

A. Iwase, S. Sasaki, T. Iwata and T. Nihira,

Phys. Rev. Lett. 58 2450 (1987).

本論文第3章のうち, Niの低エネルギーイオン照射に関する部分については,

Defect Production and Recovery in Nickel Irradiated with Energetic Ions.

A. Iwase, S. Sasaki, T. Iwata and T. Nihira,

J. Nucl. Mater. 141-143 786 (1986).

本論文第4章全体に対しては,

Radiation Annealing in Nickel and Copper by 100MeV Iodine Ion Irradiation.

Phys. Rev. B に投稿中である。

本論文第3章全体に対しては,

Phys. Rev. B に投稿予定である。

また, 本論文に関連したものとして,

Calorimetric Measurements of Stopping Power of Al and Ni for Cl and C Ions

A. Iwase, S. Sasaki, T. Iwata and T. Nihira,

J. Phys. Soc. Jpn. 54 1750 (1985).

Defect Production by Energetic Heavy Ions in Aluminum and Copper.

A. Iwase, S. Sasaki, T. Iwata and T. Nihira,

J. Nucl. Mater. 133/134 365 (1985)

Defect Production and Defect Saturation Behavior in Nickel Irradiated with Heavy Ions in the Energy Range 84-120MeV.

A. Iwase, S. Sasaki, T. Iwata and T. Nihira,

J. Nucl. Mater. 155-157 1188 (1988).

また, 本研究全体をレビューしたものとして,

Damage Production and Annealing in Ion-Irradiated FCC Metals.

T. Iwata and A. Iwase, Radiat. Eff に掲載予定。