

溶融金属の陽電子消滅

森田善一郎*

鉄や銅などの有用金属は、それらの原料鉱石から高温での製錬工程を経て溶融状態でとり出されることが多い。したがって金属製造工程での反応や現象の解明やプロセス制御のためには、溶融状態における冶金物質の性状を把握しておく必要があり、筆者の研究室でもこのような認識のもとに、溶融状態での製錬反応ならびに溶融金属の物性に関する研究を工学的立場から実施している。後者つまり溶融金属の物性に関する研究としては、密度、粘性、表面張力、電気抵抗、拡散、中性子回折、X線回折、陽電子消滅などの測定ないしは実験と、それらの現象論的理論が中心であるが、本稿では、最近筆者の研究室（森田教授、喜多助手、上田技官）と京都大学理学部物理学教室遠藤研究室と共同で実施している溶融金属・合金の陽電子消滅に関するものを取りあげ、簡単に紹介したい。

陽電子はよく知られているように素粒子の一種で、電子の反粒子である。実験室的には核崩壊のときに出てくるが、この場合の陽電子の放出される速度は速く〔たとえば ^{22}Na の場合最高 0.54 MeV, すなわち光速の87% ($2.6 \times 10^{10} \text{cm/sec}$)〕, これが入ると電子やイオンと衝突し、きわめて短時間 (10^{-12} 秒程度) でエネルギーを失い、運動エネルギーは kT 程度にまで下がる。 (k : ボルツマン定数, T : 絶対温度) 陽電子は正に荷電した金属中のイオンも正に荷電しているため、金属中では、陽電子はイオンからクーロン相互作用による斥力を受けながら移動し、最終的には電子と衝突して消滅し、2本の γ 線となる。この際エネルギー保存の法則と運動量保存の法則が成立するが、前述のように陽電子は電子と衝突する前に

すでに速度を失い、電子にくらべて非常に遅くなっているため、消滅時の陽電子の運動量、運動エネルギーは通常は無視し得る。つまり陽電子と電子が対消滅したときに放出される2本の γ 線の全運動量は消滅した電子の運動量に等しく、したがって金属に陽電子を入れて消滅して出てくる γ 線の運動量分布を測定することにより、金属中の電子運動量分布が求められる。

このような陽電子の性質を使って、金属や合金の固体ならびに液体状態における電子状態に関する情報を得るための研究がなされている。溶融金属の場合についていえば、液体状態では固体状態と異なり、イオンが時間的・空間的にためらめに配列しているため伝導電子が散乱される確率が増え、このためフェルミ面がボケる。この“ボケ”を測定しようとして多くの実験がなされている。

次に測定方法について簡単にふれておこう。前述の対消滅によって放射される2本の γ 線の運動量を求めるために、通常2つのスリットを通して同時に入ってくる γ 線の同時計測を行い、その計測数 $N(\theta)$ を角度 θ の関数として求める。図1はこの原理図を示したもので、

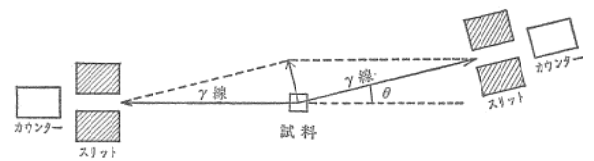
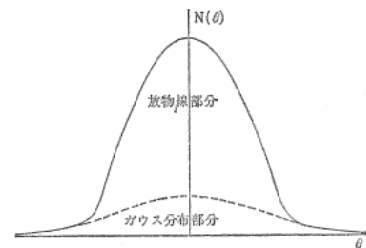
図1 陽電子消滅 (γ - γ 角度相関) の原理図

図2 陽電子消滅角度相関曲線

* 森田善一郎 (Zen-ichiro MORITA), 大阪大学工学部冶金工学科, 教授, 工学博士, 鉄冶金学, 冶金物理化学, 液体金属物性

$N(\theta)$ と θ の関係を陽電子消滅角度相関曲線または $r-r$ 角度相関曲線と呼んでいる。この角度相関曲線は、図2に示すように、自由電子（伝導電子）との対消滅による放物線部分と、価電子（閉殻電子）との対消滅による巾のひろいガウス分布部分からなっている。したがってこの全角度相関曲線の形状から金属中の電子状態に関する情報が得られる。

さてフェルミエネルギー近傍に d バンドのある遷移金属や貴金属では、角度相関曲線に d 電子を反映すると思われる前述のガウス分布部分が大きく現われる。一方価電子に d 電子をもたない金属の $N(\theta)$ は、自由電子近似から期待される放物線型の対消滅による部分がほとんどで、高角度側に拡がった内殻電子との対消滅による部分は非常に小さい。

我々は京都大学理学部物理学教室遠藤研究室と共同で、鉄族遷移金属を含む溶融合金の電子状態に関する研究の第1段階として、Fe, Ni, Au などの遷移金属や貴金属に d 電子をもたない Ge を添加することにより、 $N(\theta)$ がどのように変化していくかを、とくに d 電子との対消滅に注目しながら調べている。この種の実験は、高温でしかも試料が液体であるので、測定はきわめて難しく、高度な技術を要する。そこで我々は遠藤研究室と共同で高温液体金属用

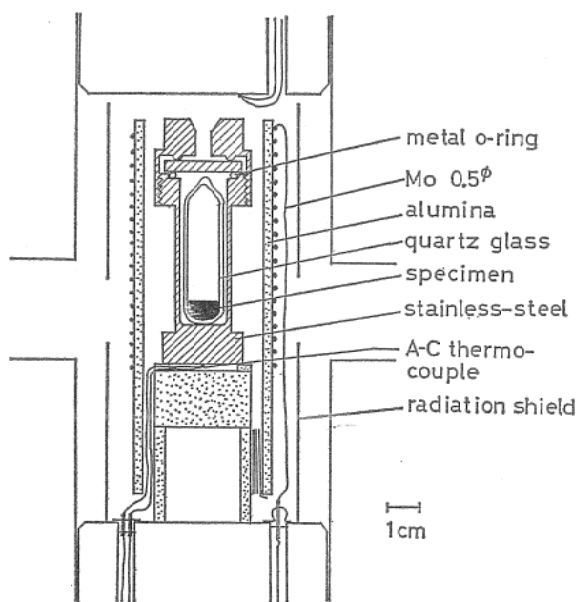


図3 高温液体金属用陽電子消滅実験装置

陽電子消滅装置を試作した。図3はこの装置を示したもので、現在東北大学金属材料研究所大洗施設に設置され、全国共同利用研究に供されている。なおこの装置の分解能は 1 m rad である。陽電子源としては普通 ^{22}Na がよく使われているが、我々の研究では、原研大洗材料試験炉 (JMTR) で Ni 箔を中性子照射し、Ni 箔中に作られた ^{58}Co を用いている。すなわち所定濃度の合金試料とともに線源 (Ni 箔) を石英管に真空封入後さらに全体を金属中空 O リングを用いたステンレス製容器に封入し、モリブデンヒーターで加熱融解させるいわゆる内部線源法により、溶融合金試料の $N(\theta)$ を測定している。

図4、図5および図6は、それぞれ溶融 Fe-Ge, Ni-Ge, および Au-Ge 合金について我々が最近行った測定結果の一例を示したもので、これらの図には参考のために多結晶、純金属に対する値をもあわせて示してあり、またこれらの図は各曲線下の面積が等しくなるように規格化してある。Fe や Ni に Ge を 50~70% 加えると、いずれも多結晶 Fe や Ni にみられる $3d$ 電子を反映すると思われる巾の広い成分がほとんどみられず、ほぼ多結晶 Ge と類似な曲線となっている。またこれら溶融 Fe-Ge, Ni-Ge 合金のあいだの $N(\theta)$ の違いは非常に小さい。一方 Au-Ge 合金では、図6にみられるように

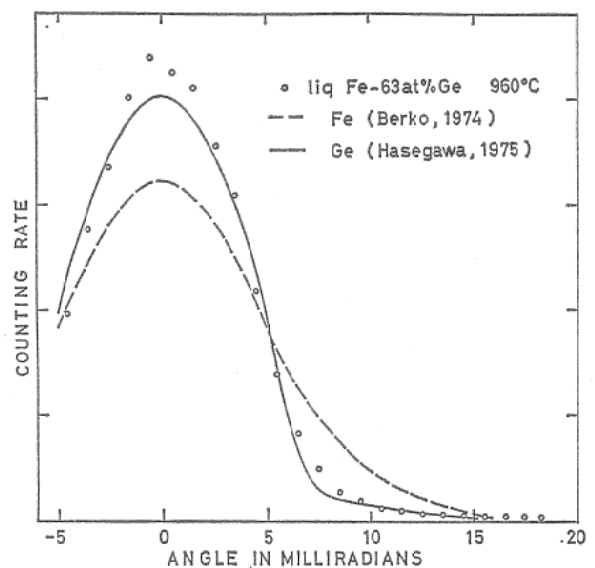


図4 溶融 Fe-63 at% Ge 合金および多結晶 Fe, Ge の $N(\theta)$

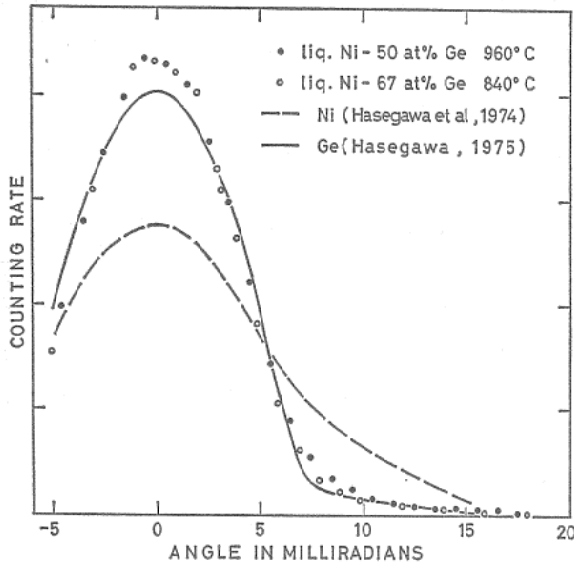


図5 熔融 Ni-Ge 合金および多結晶 Ni, Ge の $N(\theta)$

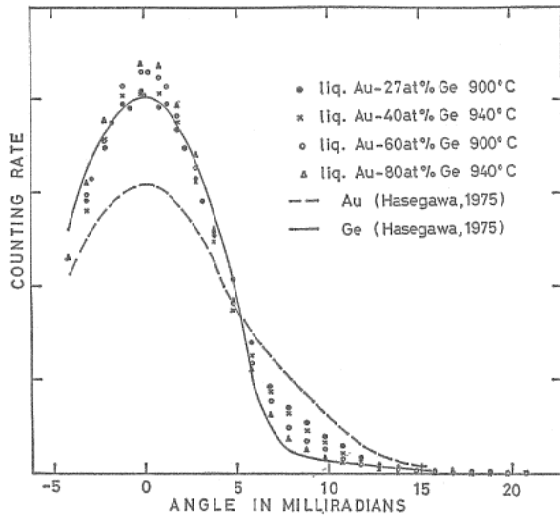


図6 熔融 Au-Ge 合金および多結晶 Au, Ge の $N(\theta)$

$N(\theta)$ は Au 濃度の低い場合には Ge と類似した曲線を示すが, Au 濃度の増加とともに高角度での $N(\theta)$ が次第に増加していく. この傾向は, 前述の熔融 Fe-Ge, Ni-Ge 合金系で Fe, Ni 濃度が増加しても高角度成分があまり増加しないことと対照的である. そこでこれらの合金系のあいだの相違をみるために, 各合金系の $\theta = 9 \text{ m rad}$ での $N(\theta)$ の値の Ge 濃度に対する変化を示したのが図7である. さて自由電子近似で求めたフェルミ運動量に対応する角度 θ_F は Ge : 6.8 m rad ($Z = 4$), Ni : 5.3 m rad ($Z = 1$), 6.7 m rad ($Z = 2$) Fe : 5.2 m rad ($Z = 1$), 6.5 m rad ($Z = 2$),

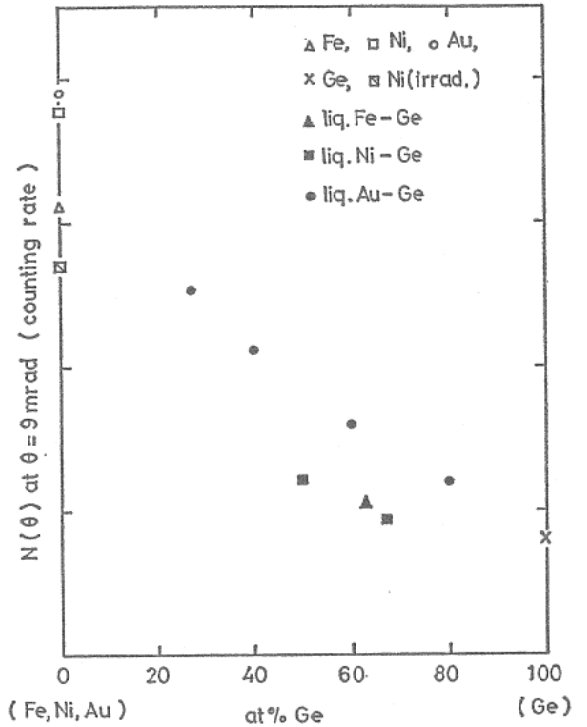


図7 熔融 Fe-Ge, Ni-Ge, Au-Ge 合金の $N(\theta = 9 \text{ m rad})$ と Ge 濃度との関係

Au : 4.5 m rad ($Z = 1$) である. (Z は価電子数) したがって装置の角度分解能と陽電子の熱エネルギーによる $N(\theta)$ への寄与を考慮に入れても $\theta = 9 \text{ m rad}$ では価電子との対消滅による部分はほとんどなく, $N(\theta)$ の大部分は d 電子との対消滅によるものと考えられる. 図7には参考のために多結晶 Ge, Au, Ni, Fe の結果をあわせて示してあるが, この図から明らかのように, 熔融 Au-Ge 合金系と熔融 Fe-Ge, Ni-Ge 合金系では $N(\theta = 9 \text{ m rad})$ の濃度依存性に大きな違いがみられる.

この原因としては次の2つが考えられる.

(1) d 電子波動関数の変化

d 電子をもつ原子間の平均原子間距離が Ge の添加によって拡げられ, d 電子波動関数の拡がり方が変化することが考えられる. 熔融 Fe-Ge, Ni-Ge 合金系の場合, 熔融 Au-Ge 合金系に比べてこの効果が著しいことは, 原子容 v の違いで理解できる. すなわち Ge を 1 としたときの v は Au : 0.85 , Fe : 0.56 , Ni : 0.53 となり, とくに Fe や Ni では著しく小さい.

Ge の添加によって d 電子をもつ原子間の距離が拡がることおよび Ge の $s \cdot p$ 電子による

d 電子のスクリーニング（遮蔽）の効果により d 電子状態が著しく変化することは、X線光電子分光や帯磁率の測定からも知られている。

(2) 陽電子波動関数の変化

陽電子は正の電荷をもつためにイオンから斥力を受ける。このとき陽電子が原子の内部へどの程度入り込むかは各原子によって異なり、フェルミ縮退している電子系での電子の感じるポテンシャルとは異なった陽電子に対するポテンシャルの考慮が必要である。

さらに、二元合金系での濃度のゆらぎに関係した陽電子の選択的消滅や、不規則系での陽電子波動関数の局在化の問題がある。さらに、液体金属中での極めて短時間のイオンの運動を考えると、溶融合金での高角度における $N(\theta)$ の大きな濃度依存性は、イオン系の構造が陽電子の対消滅過程に及ぼす影響だけでは説明できず、 d 電子波動関数の変化の違いを反映しているものと思われる。

以上、溶融金属の陽電子消滅について、我々

の最近行った研究を中心に紹介したが、この研究は我々にとってはまだ緒についたところである。これを工学的立場から評価されるようにするためには、さらに多くの実用金属・合金ないしはそれに近い合金系について測定を実施しなければならない。たとえば金属の中でも最も我々と関係の深い鉄鋼などを対象とするには1600°C以上の高温が必要であるが、現在のところこのような高温下での測定は技術的にきわめて困難なため、このような合金系についての測定例はない。我々はこのような系についての測定を可能にすべく現在もなお測定技術の向上、改良に取り組んではいるが、日暮れて道遠しの感がある。この困難を克服して測定に成功し、その結果が我々の手で一日も早く明らかにできるよう念願しているこの頃である。最後に擱筆するにあたり、従来経験のみにもとづくまことに泥くさい学問体系とみられがちな冶金工学の中でも、このような物理的手法を必要とする分野のあることをご理解いただければ望外の幸せである。