

JAERI-M

9930

中性子回折トポグラフィによる
結晶内部構造の直接観察

1982年2月

富満 広

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、お申しこしてください。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 Section, Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1982

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 いばらき印刷機

中性子回折トポグラフィによる結晶内部構造の直接観察

日本原子力研究所東海研究所物理部

富 満 広

(1982 年 1 月 8 日受理)

中性子回折トポグラフィ (NDT) の開発から応用まで、原研における10年間の研究成果をまとめたものである。主題は、Cu-5%Ge 単結晶の大型合金 (直径 3 cm, 長さ 10 cm) の中の Substructure (下部構造) が、NDT で明らかにされた様子を述べたものである。観察結果により、試料結晶は、成長方向 [110] に平行な (001) 層状構造の集合体であり、さらに各々の (001) 層状構造は中心の薄い (0.1mm 厚) (001) 層と、その両表面に厚い (100) 板や (010) 板が格子状に付着しているという下部構造をもつことが明らかにされた。得られた構造モデルは、回折強度計算によっても妥当性が支持された。同時に、簡明な結晶成長機構が示唆された。その他に、熱圧延した Ge 単結晶中の格子歪みの立体的分布を NDT で観察した例と、Si 双晶に関して等厚干渉縞や、双晶境界の整合性を高い精度と信頼性で観察した例を報告し、NDT 技法の威力と信頼性を示している。

Direct Observation of Crystal Texture
by Neutron Diffraction Topography

Hiroshi TOMIMITSU

Division of Physics,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received January 8, 1982)

This document reports the development and the applications of the neutron diffraction topography (NDT), which have been carried out at JAERI in these 10 years. This describes how the substructure of Cu-5%Ge single crystal of large-scale (3 cm in diameter and 10 cm in length) was revealed by the NDT-observation. It was discovered that the specimen crystal was made up from the layer-substructures parallel to (001) and to the [110] growth direction, and that each (001) layer-substructure mentioned above was further subdivided into the central thin sublayer parallel to (001) and thick plates of [100] and [010] directions, attached symmetrically to both sides of the central (001) sublayer with regular intervals. The model of the substructure described above was supported by the calculation of the diffraction intensities. The model of the layer-substructure described above, on the other hand, suggested a simple mechanism of crystal growth of the specimen.

This document also reports the NDT-observation of the three-dimensional distribution of the lattice strains within a hot-pressed Ge single crystal, and the equal thickness fringes and the coherent boundaries of a twinned Si crystal.

The powerfulness and the reliability of the NDT-technique were thus demonstrated.

Keywords; Neutron Diffraction, Topography, Cu-5%Ge, Substructure, Ge, Si, Twinned Crystal, Hot-press, Lattice Strain, Equal Thickness Fringe, Simultaneous Reflexion

目 次

第一章 序 論	1
第 1.1 節 本研究の目的と意義	1
1.1.1 結晶内部構造の直接観察法	1
1.1.2 回折トポグラフィの特徴	2
1.1.3 本研究の目的と意義	2
第 1.2 節 中性子回折トポグラフィ (NDT) の特徴	4
1.2.1 中性子の散乱振幅の特徴	4
1.2.2 結晶による中性子回折の特徴	5
1.2.3 トポグラフィ像のコントラストと分解能	6
1.2.4 NDT と XDT, TEM との特性比較	7
1.2.5 現在までに行なわれた NDT の応用例	8
第二章 NDT による Cu-5at%Ge 単結晶の下部組織の直接観察	10
第 2.1 節 序	10
第 2.2 節 試料結晶の特徴	10
第 2.3 節 NDT 実験の概要	13
2.3.1 はじめに	13
2.3.2 中性子線源	15
2.3.3 コリメーション	15
2.3.4 単色化	16
2.3.5 回折計	17
2.3.6 計測系	18
2.3.7 記録系	19
2.3.8 遮蔽系	20
第 2.4 節 NDT による観察結果	21
2.4.1 粗コリメータによる観察結果	21
2.4.2 精コリメータによる観察結果	28
2.4.3 一枚の (001) 層の観察	30
2.4.4 小片試料による詳細観察	33
2.4.5 二重像の詳細観察	37
2.4.6 Z 層に付着する部分の直接観察	42
第 2.5 節 XDT 像との比較	46
第 2.6 節 試料中の Ge 濃度分布の測定	47
第 2.7 節 Cu-5%Ge 試料の下部組織のモデル	48
第 2.8 節 二次消衰理論による像コントラストの解釈	50

2.8.1	はじめに	50
2.8.2	中性子光路の解析	50
2.8.3	二次消衰効果の導入	52
2.8.4	計算の結果と考察	56
2.8.5	まとめ	59
第2.9節	結果の考察	62
2.9.1	本研究で見出された下部組織の意味	62
2.9.2	成長機構について	63
2.9.3	格子定数のちがい	64
第2.10章	まとめ	66
第三章	その他の応用例	68
第3.1節	熱圧延したGe単結晶中の歪み場の観察	68
3.1.1	はじめに	68
3.1.2	実 験	68
3.1.3	試 料	69
3.1.4	結 果	70
(a)	全体的変化	70
(b)	波長の効果	72
(c)	コリメーションの効果	72
(d)	歪み場の立体配置	72
3.1.5	まとめ	75
第3.2節	シリコン双晶の観察	78
3.2.1	はじめに	78
3.2.2	シリコン双晶結晶	78
3.2.3	実 験	80
3.2.4	結果と解析	81
3.2.5	まとめ	84
第四章	結 言	87
	謝 辞	88
付 録	中性子トポグラフィにおける分解能の評価	90
(A)	入射波の特性による分解能	90
(B)	写真系固有の分解能	93
文 献		98
後 記		104

Contents

Ch.1	Introduction	1
\$1.	Intention and Significance of This Study	1
1.1.1	Methods of Direct Observation of Crystal Texture	1
1.1.2	Feature of Diffraction Topography	2
1.1.3	Intention and Significance of This Study	2
\$2.	Characteristics of Neutron Diffraction Topography (NDT)	4
1.2.1	Neutron Scattering Length	4
1.2.2	Neutron Diffraction by Crystals	5
1.2.3	Contrast and Resolution of Topographic Images	6
1.2.4	Comparison of NDT, XDT and TEM	7
1.2.5	Applications of NDT-Technique	8
Ch.2	Direct Observation of the Substructure of Cu-5%Ge Single Crystal by NDT	10
\$1.	Introduction	10
\$2.	Specimen Crystal	10
\$3.	Outline of the NDT-Experiment	13
2.3.1	Introduction	13
2.3.2	Neutron Source	15
2.3.3	Collimation	15
2.3.4	Monochromatization	16
2.3.5	Diffractionmeter	17
2.3.6	Counting System	18
2.3.7	Recording System	19
2.3.8	Shielding System	20
\$4.	Results of the NDT-Observation	21
2.4.1	Results of Observation with Rough-Collimating System	21
2.4.2	Results of Observation with Fine-Collimating System	28
2.4.3	Observation of a Single (001)-Layer	30
2.4.4	Detailed Observation of a Small-Cut Specimen	33
2.4.5	Detailed Observation of the Double-Contrast Image	37
2.4.6	Direct Observation of the Outer Parts Attaching to the Central "Z-Sublayer" in the (001)-Layer	42
\$5.	Comparison with the XDT-Observation	46
\$6.	Measurement of the Ge-Distribution within the Crystal	47
\$7.	Model of the Substructure of the Cu-5%Ge Single Crystal	48
\$8.	Interpretation of the Image-Contrast by the Secondary Extinction Theory	50
2.8.1	Introduction	50
2.8.2	Analysis of the Neutron Path	50
2.8.3	Introduction of the Secondary Extinction Theory	52
2.8.4	Results of the Calculation and Discussion	56
2.8.5	Summary	59

\$9. Discussions of the Results	62
2.9.1 Meaning of the Substructure Obtained through This Study ..	62
2.9.2 The Growth Mechanism of the Specimen Crystal	63
2.9.3 The Lattice Constants	64
\$10. Summary of Ch.2	66
Ch.3 Other Applications of NDT-Technique	68
\$1. Observation of the Strain Field within a Hot-Pressed Ge Single Crystal	68
3.1.1 Introduction	68
3.1.2 Experimental Procedure	68
3.1.3 Specimen Crystal	69
3.1.4 Results	70
(a) Change of NDT-Image of before-and-after the Hot-Press ..	70
(b) Effects of the Neutron Wavelength on the NDT-Image	72
(c) Effects of the Collimation on the NDT-Image	72
(d) Three-Dimensional Distribution of the Strain Field within the Specimen Crystal	72
3.1.5 Summary	75
\$2. Observation of the Twinned Si Crystal	78
3.2.1 Introduction	78
3.2.2 Twinned Si Crystal	78
3.2.3 Experimental Procedure	80
3.2.4 Results and Analyses	81
3.2.5 Summary	84
Ch.4 Conclusion	87
Acknowledgements	88
Appendix: Estimation of the Spacial Resolution in NDT	90
(A) Resolution by the Characteristics of the Incident Beam	90
(B) Intrinsic Resolution of the Photographing System	93
References	98
Remarks	104

第一章 序 論

第 1.1 節 本研究の目的と意義

1.1.1 結晶内部構造の直接観察法

今日まで、材料の開発に絶えざる努力がはらわれて来し、現在でも勿論そうである。特に近年、半導体工業からの要請に応じて高純度で結晶完全性の高い材料を製造する方法は急速に発展している。また、良質で大型の金属単結晶がブリッジマン法やチョコラルスキー法で容易に作製されるようになっている。¹⁰¹

これらの新しい材料の開発を側面から支えたのは、材料の純度と結晶完全性を適切に評価する方法の発展であったと言える。実際、1950 年代の透過電子顕微鏡法（以下 **TEM** と略称する）の実現や、それに続いて開発された X 線回折顕微法（X-Ray Diffraction Topography, 以下 **XDT**）の実現により、転位等の結晶欠陥の直接的な観察が可能になり、結晶の完全性を評価する方法が確立した観がある。しかも、これは、単に結晶の作製技術を発展させたのみでなく、一方でより完全性の高い結晶が提供されることにより完全結晶中での X 線回折に関する基礎的現象の研究を可能にし、他方で不完全な結晶中での波動場のふるまいの理論的研究、たとえば転位等の欠陥の結像の理論の発展を促がし、逆に **XDT** 技法の信頼性を確立させた。それと同時に、格子欠陥論や転位理論も大幅な進歩をとげた。¹⁰²

このように結晶の完全性を直接的に観察する手段の重要性は明らかであり、1960 年代前半の時点で、すでに、結晶欠陥や転位の直接観察手段と、それらがもたらした成果の例がとりまとめられている。^{103, 104} これらの方法を列挙すると、光学顕微鏡（**OM**）、赤外線顕微鏡（**IM**）や、電子顕微鏡（**EM**）、そして X 線回折トポグラフィ（**XDT**）である。この中で **OM** や **IM** は、**EM** や **XDT** が開発される前から用いられた観察手段である。しかし、これらによる観察は、試料の表面がそのまま、あるいは劈開、蒸着、化学腐食などを通じて行なわれる。特に結晶中の転位の観察のためには、デコレーションが必要である。デコレーション法は、可視光に透明な多くのイオン結晶中の転位線に Ag を折出させたり、Si 中の転位に Cu を折出させて赤外線顕微鏡で観察することにより内部観察を可能にし、多くの有益な結果を与えていた。この方法の原理は、透明なマトリックスの中の欠陥部分だけを不透明化して吸収像として観察するものである。しかし、デコレーションの過程そのものが、結晶欠陥と不純物原子との相互作用によるものであり、この方法から得られる結果は、ありのままの欠陥構造の直接観察という目的から外れる恐れがある。実際、不純物を導入する熱処理の過程で、ラセン転位が C climb を生ずるなどの例はよく知られている。^{104, 105}

他方、**EM** や **XDT** は回折効果によるコントラストを用いて観察するので、欠陥そのものに何らの処理を加えることなく、欠陥に付随する格子歪みの分布などを知ることができる。従って、本質的に結晶内部を、直接的にそして非破壊的に観察するという目的には最も適しているものである。

1.1.2 回折トポグラフィの特徴^{*)}

前節で述べたように、結晶内部を直接観察する方法の中でも、**TEM**と**XDT**は共通の特徴をもっている。それは波動場が結晶中で回折現象を生じ、その回折波の強度分布を写真法で二次元的に記録するという点である。

まず、回折現象に依るところから、結晶性の乱れ（原子配置の変位や、それに伴う格子歪み、および部分的な結晶方位のズレなど）を敏感に反映する。

また、これらの局所的な結晶性の乱れを忠実に二次元的に記録する。いくつかの互いに独立な方向でこの二次元投影図（トポグラフ）を作ることにより、結晶内の局所的な乱れの三次元的な分布に関する情報を得ることができる。更に、回折現象特有の性質として、回折を生じている格子面内の変位は検出されないので、これを利用して、たとえば指数の異なる反射によるトポグラフを幾枚か比較することにより、格子歪みの方位などの性質に関する知見を得ることができる。

以上のように回折トポグラフィは、結晶の不完全性（周期性の乱れ）を、デコレーションなどの処理を必要とせず、格子欠陥のあるがままを非破壊的に直接観察するのに、本質的に適しているといえる。この非破壊的に観察できるという点は、同一試料、同一欠陥の外的条件などの変化に応じた挙動を追跡研究するのに適している。

ところで同じように回折現象を利用した研究手段として、すでに古くから確立している通常の回折実験—構造解析法—との違いに、簡単に触れておく。¹⁰⁸

構造解析法は、規則的構造や、原子尺度での構造を平均的に研究する一大分野である。そこでは、逆格子空間をできるだけ完全に走査することにより結晶内原子配置を試料全体にわたって平均化した情報が得られる。勿論カウンターに入る線束の中には、結晶中のブラッグ反射能の局所的な分布や、ピーク位置の分布に関する情報が入っているわけであるが、それらは試料の全体積にわたって平均化されてしまい、局所的な性格は失われてしまう。かくして、平均的な構造の決定が行なわれる。

一方トポグラフィ実験では、回折波の断面内の局所的な反射強度分布を実空間内で走査することにより、結晶性の均一性の乱れを場所との対応をとりながら検出するものである。むしろ、個々の結晶性の乱れ（結晶欠陥）の観察を行うことがトポグラフィの特徴である。

1.1.3 本研究の目的と意義

すでに述べたように、物質内部の直接観察法の開発は材料開発、材料科学にとって重要な柱であり、その点では**TEM**や**XDT**などの回折トポグラフィの技法がすぐれた特徴をもっている。ところで、今日では結晶成長の工学的技術の開発は一応の発展をしているが、その基礎となる理学的レベルでの結晶成長の理解には、まだまだ残された問題が多い。¹⁰⁹むしろ“結晶成長はまだ系統立った学問体系の一部と認められていない”と慨嘆する意見もあるくらいである。¹¹⁰ このような事情から考えるならば、作製された結晶の完全性を検査したり（**XDT**）、個々の微小欠陥を詳細に観察したり（**TEM**）するだけでなく、もう少し巨視的立場からその下部組織（Substructure）を直接観察することが、非常に有用な情報を提供すると思われる。従来、こ

*) 文献 106, 107 を参考にした。

の方面の研究は不充分であった。その主な理由の一つに、適当な直接観察の手段がなかったことが挙げられよう。

我々は先に述べたような長所をもつ回折トポグラフィに、熱中性子を応用することにより、これらの要請に応え得る観察手段の開発を試みて来た。¹¹⁾それは、熱中性子の波長が格子面間隔程度で、通常の結晶性物質で回折現象を生じ易いことと、物質による吸収がX線や電子線に比べて格段に少なく、物質透過能が大きいからである。従って、可視光、X線や電子線での観察ができないような大型の結晶試料の、トポグラフィックな直接観察が可能となるわけである。我々はこの中性子回折トポグラフィ(**NDT**)を用いて、種々の銅合金の下部組織の直接観察を行い、上に述べた結晶成長の観点から興味ある結論を得ている。

本研究では、本章次節で**NDT**の特徴を、散乱振幅、回折理論、コントラスト、分解能について検討し、**XDT**や**TEM**と特性を比較すると共に、従来の応用例をまとめる。

第二章は本研究の主題である。**NDT**を主な手段として、Cu-5%Ge合金の大型単結晶の下部組織(Substructure)を詳細に観察して得られた構造モデルを報告し、結晶成長理論の観点から検討する。ここではまた、得られたモデルに二次消衰回折理論を適用して、トポグラフ像のコントラストを説明する。

第三章では、我々の**NDT**技法開発の基礎となった二つの仕事、すなわち熱圧延したGe単結晶中の歪み場の立体的観察の例と、Si双晶境界の観察例とを報告する。

そして第四章で本研究を総括し、**NDT**技法の可能性と今後の課題、発展方向を検討する。なお、付録において入射波の角度発散による分解能と、**NDT**特有の写真系による分解能を検討する。

第 1.2 節 中性子回折トポグラフィ (NDT) の特徴

1.2.1 中性子の散乱振幅の特徴^{*)}

中性子の基本的性質—すなわち、電子よりも質量が大きい、電氣的に中性で、磁気モーメントを有する—を反映して、中性子は物質との相互作用でX線や電子線にない特徴をもっている。

さて、中性子と物質との相互作用を示す量として、断面積 σ が一般に用いられる。 σ は中性子のエネルギーや標的元素の核種によって異った値を示し、その様子は「BNL レポート-235」およびその追補版に集大成されている。¹¹⁶ σ は大きく散乱断面積 σ_s と吸収断面積 σ_a とに分けられ、それぞれさらにいくつかの部分断面積に分けられるが、^{113, 117} 本研究の NDT で主に必要なものは入射時と同じエネルギーで散乱される弾性散乱の断面積である。

ところで回折論で用いる量は散乱断面積 σ_s 。そのものでなく、散乱振幅 b であり、両者の関係は次式で与えられる。

$$d\sigma_s/d\Omega = b b^* = |b|^2 \quad (1.2.1)$$

ここで Ω は立体角であり、左辺は微分散乱断面積といわれるもので、 σ_s の角度依存性を示している。^{**)} また、散乱振幅 b は一般に複素量であり、 b^* は b の共役量である。

散乱振幅に寄与するのは、標的核のポテンシャルによるフェルミ散乱、複合核をつくる共鳴散乱、および標的原子（核と電子）の磁気モーメントによる散乱の三種である。前二者によるものが核的散乱振幅 b_n を与え、後者が磁氣的散乱振幅 b_m を与える。

核的散乱振幅 b_n は、原子核の構造が明らかでないので厳密な理論式では表現されないが、光学における Breit-Wigner の分散理論¹¹⁸ の形式によって一定の議論がなされている。^{119~122} このような定性的議論の結果と、実験的な測定値とをまとめて、核的散乱振幅 b_n の特徴を次のようにまとめることができる。^{113, 114, 122, 123}

- ① b_n は元来複素量であるが、Cd や Gd など少数の例を除いて、実数で近似できる。
- ② b_n の値は実験的にしか求められないが、その結果によると、原子番号や質量数による規則性がなく、核種に依存して複雑に変化し、負の値を示すものもある。
- ③ b_n の大きさは一般に小さく、軽元素に対するX線の散乱振幅と同程度で、およそ 10^{-13} cm の程度である。
- ④ 中性子波長（約 10^{-8} cm）に比べて、散乱体である原子核のポテンシャルのおよぶ範囲（約 10^{-12} cm）が小さく、その結果 b_n は散乱角によらず一定で、 s 値（ $= \sin \theta / \lambda$ ）依存性が無い（ 2θ ：散乱角， λ ：波長）。

一方、中性子の磁氣的散乱の理論的とり扱いは、ボルン近似の範囲で行なわれ、Block, Schwinger, Halpern らによって計算されている。 b_m の主な特徴は次の通りである。¹²³

- ① b_m の大きさは、 b_n と同程度である。
- ② 核外電子分布を反映して、 b_m には散乱角依存性がある。

*) 文献 112~115 を参考にした。

**) 通常の中性子散乱実験は、この $d\sigma_s/d\Omega$ を Ω の関数として測定するものである。¹¹⁵

両者の合成振幅 b は次式で与えられる。

$$b = b_n + b_m \quad (1.2.2)$$

この結果、中性子が偏極していない場合には各々の散乱強度 $|b_n|^2$ と $|b_m|^2$ とを非干渉的に加え合わせて、合成の散乱強度（微分散乱断面積 $d\sigma_s/d\Omega$ ）を得る。一方偏極している場合には、対角項 $b_n \cdot b_m$ が打消し合わないので、可干渉的に加え合わされる。¹¹²

なお、本研究の範囲では核散乱振幅のみに着目する。

1.2.2 結晶による中性子回折の特徴

結晶性試料による中性子の回折現象は、X線や電子線の場合について発展させられている理論が、形式的にはそのまま適用される。本質的な特徴は、前項で述べた散乱振幅の性質の中に含まれている。

まず、空間格子の消滅則や、¹²⁴ 空間群の対称性による消滅則が、¹¹³ X線・電子線の場合と同様に利用できる。また、対象とする試料結晶の性質（完全度や厚さ）に応じて適当な回折理論を使いわけの必要があることも、**XDT** などの場合と同様である。^{106, 115, 125, 126} 完全度の高くない、体積の小さい結晶片の集合体（粉末など）に対しては、運動学的回折理論が適当である。一方、完全性の高い結晶においては、中性子も動力的回折効果を示し、^{127, 128} すでに種々のペンデル縞が観察されている（1.2.5 項および第三章第2節参照）。また、現実の結晶の多くは上記の二者の中間の性質を示し、モザイク構造に基づく消衰理論で説明される。¹²⁶ 本研究でも二次消衰理論によって、実験結果がよく説明される例が示される（第二章第2.8節）。

ところで**XDT**などでは、線吸収係数 μ と試料の厚さ t との積 $\mu \cdot t$ の値によって、動力的理論（ $\mu \cdot t$ 大）と運動学的理論（ $\mu \cdot t$ 小）とを使いわけることが通常行なわれており、実際にもよくあてはまる。これは、X線や電子線の場合には、線吸収係数が一般に大きいからであると思われる。一方、中性子の場合には次式、

$$Q = \lambda^3 \cdot N^2 \cdot F^2 / \sin 2\theta \quad (1.2.3)$$

で与えられる値 Q の方が、線吸収係数 μ よりも一般に大きいので、上述の $\mu \cdot t$ の値による識別は正確でない。*) ただし、上式の λ , N , F , θ はそれぞれ使用波長、単位胞の単位体積当りの数、構造因子、Bragg角である。

中性子の物質による吸収が一般に小さいということはさらに、本研究で示されるように大体積

*) 実際 Bacon らは、モザイク性結晶において中性子が回折される場合、運動学的理論が適用される条件として、

$$\mu < Q / 8 \eta \quad (1.2.4)$$

を与えている。^{122, 129} ただし、 η はモザイク性の程度を示す量で、本研究で用いるモザイク幅 β （第2.8.12式）を用いれば

$$\eta = 2 \sqrt{2 \ln 2} \beta \quad (1.2.5)$$

の関係にある。

の試料の内部観察に適しているという特徴に加えて、X線などでは実現されない“吸収がない場合の回折現象”の研究を可能にするものとして期待されている。¹³⁰

なお、前項で述べたように同位体非干渉性や、¹¹⁵核スピン非干渉性に基づく非干渉性散漫散乱が存在することも、^{115, 123}中性子回折の特徴である。勿論、温度散漫散乱は、X線などの場合と同様に存在する。しかし、**NDT**で有益なコントラストを生ずるのは、干渉性弾性散乱によるものである。

1.2.3 トポグラフィ像のコントラストと分解能

トポグラフィで情報を得る根拠は、試料結晶による回折線束の断面内での局所的な反射強度の分布である。^{106, 123, 131}試料全体が単一の完全結晶であっても、厚さに一定以上の変化があれば等厚干渉縞が現われる。また結晶が亜晶粒 (Subgrain) に分かれていれば、個々の亜晶粒はブラッグ条件に合っている (外れている) 程度に応じて強い (弱い) 反射強度を生ずるのでコントラストがつく。一方、偏極した中性子線束を用いると、一定方向に磁化した磁区のみ反射が生じるようにできる。

次に格子欠陥に伴う歪みに基づくコントラストがある。**XDT**の場合における Authier の解析によると、一つの欠陥から三種類の像が生じ、それらは運動学的像 (直接像)、動力学的像、中間像と分類される。^{132, 133}それぞれ試料の厚さや下地の完全性などの実験条件に応じて、その現われ方が異なることは確かめられている。**XDT**や**TEM**の場合には、動力学的な結像の理論^{134~136}が発展させられており、実験がよく説明されているが、^{137~139}**NDT**で支配的なのは、直接像 (運動学的像) である。この場合、完全結晶としての下地部分では動力学的な回折が生じ、従って一定の角度発散をもって入射する中性子線束のうちの極めてわずかの角度範囲 (ダーウィン幅) のもののみが反射強度を与え、残りの大部分の線束は試料を透過してしまう。他方、欠陥周辺では結晶性が乱されており、この透過波をもブラッグ反射してしまい、この分の回折強度が、下地の回折強度に局所的に付加されるので、欠陥像は回折強度増大として記録される。¹³¹
XDT、**TEM**でも線吸収係数 μ と試料厚さ t との積が小さい時は*) 直接像が観察されるが、 $\mu \cdot t$ が大きくなると“透過波”自体が吸収されてこの種の像は現われなくなる。

トポグラフィ実験で特に重要な因子は位置分解能であり、**NDT**では次のような要因で決定される。

第一に、試料に入射する中性子線束に角度発散があり、単色性もよくないので、回折波にも角度発散が生ずることになる。その様子の一例は附録Aで検討するが、回折波の角度発散を5'、試料～フィルム間の距離を1cmとすると、像は約14 μm に広がる。この理由による限界分解能は、コリメーターの発散角、結晶のモザイク幅、試料とフィルムとの距離 (回折角により制約される) など、実験条件に依存しており、次の写真系固有の分解能より小さくすることができる。
第二に、写真系の変換体の中で発生する r 線などが、放射状に発生することによって分解能に影響する。その様子は附録Bに示されているが、結果は20~30 μm 程度で、Bergerらの実験値とよく一致する。¹⁴⁰ なお、この写真系固有の位置分解能は、本質的に間接的な記録法による限り解決

*) **NDT** の場合、厳密には前項参照。

しにくい、飛程の短い二次放射線（ α 線など）を用いて記録することにより向上させる工夫も試みられている（第二章 2.3.7 項参照）。

第三は、欠陥像固有の広がりとも言えるもので、欠陥の“芯”自体は微小でも、その周辺の格子変位や格子歪みなどに広がりや伴っていることによる。直接像の場合について Schlenker が解析している。¹³¹ 彼は、直接像のコントラストが生じる条件として、完全結晶の下地中の欠陥に伴う局所的なブラッグ条件の外れ $\Delta\theta$ が、下地部分の回折の幅（ダーウィン幅） δ よりも大きい、ということをもとに、例えば転位線の像幅が消費距離に比例することを結論した。従って **NDT** では、同じ波長を用いる **XDT** に比べ、原子構造因子が小さいのでダーウィン幅が小さく、従って消費距離が大きく、転位像の幅は広がり、位置分解能は悪いことになる。一般の欠陥についても、同様の結論が得られている。^{131, 141}

以上のように、**NDT** の位置分解能は三つの要因で決定される。欠陥像の広がりやの例を除けば、現状では間接的な方式に依っている写真系に固有の分解能で制約されていると言える。

1.2.4 **NDT** と **XDT**、**TEM** との特性比較 ^{*}

NDT の特徴をより明らかにするために、類似の技法である **XDT**、**TEM** との特性の比較を行なう。

まず原子散乱因子の中に、使用する各々のプローブと物質との相互作用の特徴が集約されている。**X**線では、核外電子分布による散乱であり、散乱振幅の大きさは（原子内電子の数） $\times 10^{-13}$ cm 程度である。電子線では、核および電子の静電ポテンシャルとの相互作用が効くので、散乱振幅の大きさは大よそ 10^{-10} cm 程度である。また、**X**線、電子線いずれの散乱振幅も、原子番号に依存して規則的に大きくなり、かつ散乱角に依存して小さくなる。いずれも磁氣的散乱は無視される。一方、吸収は、中性子の場合よりはるかに大きい。

像コントラストの成因として、**TEM** では動力学的な像や中間的な像が支配的であり、**XDT** では試料の厚さに応じて直接像も現われる。

分解能は、それぞれの技法において著しく異なる。**NDT** では写真系で制約された。**XDT** では、記録フィルムの乳剤粒度で制限される。これらは直接的な像拡大はできない。一方 **TEM** では、直接的に数十万倍まで拡大され、分解能はレンズ系収差と使用波長で決定される。

それぞれの特性に応じて、観察対象に適・不適、得手・不得手が生じてくる。

TEM は、欠陥密度が高く薄い試料の中の個々の微小な欠陥を、高分解能で詳細に観察するのに最大の威力を発揮する。他方で、欠陥密度が低い試料では個々の欠陥を視野の中に捉えにくい。また、薄い試料では欠陥周辺の応力場が結晶表面で変調されるので注意を要する。¹⁴³ **XDT** では、**TEM** の場合よりも厚くて欠陥密度の低い試料を、広い視野で簡便に観察できる。しかしこの場合でも、試料の厚さは数百 μ m 程度が限界である。**NDT** では、試料の厚さは事実上制約がない。また欠陥の像幅も広いので、微小欠陥の個別観察よりも、**XDT** や **TEM** をもってしては全体を把握できないような大きいスケールの構造——亜晶粒分布、下部組織（Substructure）等々——の非破壊的観察に適している。なお、磁区の直接観察手段としても非常に有力である。

^{*} 文献 106, 107, 112, 114, 115, 122, 123, 142 を参考にした。

以上の議論を第 1.2.1 表にまとめた。このように、それぞれの特性に応じて、**NDT**、**XDT**、**TEM**は物質構造の非破壊的な直接観察手段として、それぞれに有力であり、相補的な役割を果たすものであると言えよう。

第 1.2.1 表 **NDT**、**XDT**、**TEM**の特性比較

方 法 名	NDT	XDT	TEM
プローブの名称	熱中性子	特性 X 線	加速電子
プローブのエネルギー	10^{-2} eV	10^4 eV	$10^5 \sim 10^6$ eV
プローブの波長	~ 1 Å	~ 1 Å	$\sim 10^{-2}$ Å (10^3 keV)
物質との相互作用	原子核によるフェルミ散乱 + 磁氣的散乱	核外電子によるトムソン散乱	原子核および電子の静電ポテンシャル散乱
散乱能の表式 ^{*)}	$\frac{1}{R} \cdot b$	$\frac{1}{R} \cdot \frac{e^2}{mc^2} \cdot f_x(\theta)$	$\frac{1}{R} \cdot \frac{me}{2h^2} \cdot \frac{z - f_x(\theta)}{(\sin \theta / \lambda)^2}$
上の表式の概略の大きさ (R = 1 cm とする)	$\sim 10^{-13}$ cm	$2.8 \times f_x(\theta) \times 10^{-13}$ cm	$2.4 \times (z - f_x(\theta)) \times 10^{-10}$ cm
主な像の種類	直接像	直接像 / 動力学的像	動力学的像
倍率 (拡大方式)	$\times 10^2$ (写真引伸し)	$\times 10^2$ (写真引伸し)	$\times 10^5$ (直接拡大)
記 録 方 式	変換体 + X 線フィルム	原子核乾板	専用フィルム
分解能の大きさ	~ 30 μ m	~ 3 μ m	10^{-4} μ m
そ の 要 因	記録系の固有値	乾板の乳剤粒度	電磁レンズ系の収差
試料の厚さ	10^4 μ m	10^2 μ m	10^0 μ m
視野の大きさ	5×5 cm ²	2×2 cm ²	倍率により $(10^{-4})^2$ cm ² 程度
得意とする観察対象	巨視的な構造 磁区分布	転位のバーガスベクトルなど	原子レベルの微小欠陥
適当な転位密度 / cm ²	(10^2 以下)	10^3 以下	10^4 以上

^{*)} 振幅 1 cm の波動が、一個の原子で散乱される場合に、散乱角 2θ の方向の距離 R の点において観測される振幅を示す表式。

1.2.5 現在までに行なわれた **NDT** の応用例

土井らは 1971 年、熱圧延で大きな格子歪みを導入した Ge 単結晶のトポグラフが、圧延を施す前に較べて特異なコントラストを生じることを観察した。彼らは、**XDT** によっても同様の事実を確認した。¹⁴⁴⁾

その後、Schlenkerらは Fe-3%Si 中の亜晶粒界や析出物を、それらの周辺に集中した歪み場を直接像のメカニズム (1.2.3 項参照) で検出することにより観察している。¹⁴⁵⁾ また、Michalecらが、振動中の水晶発振子を **NDT** で観察し、結晶中の定在波の分布を検出したのも、興味ある

^{*)} 本研究第三章第 3.1 節の仕事は、土井らのこの研究を発展させたものである。

応用例である。¹⁴⁶

転位線の観察も行なわれている。Schlenkerらは、厚さ 0.34 mm の Ge 単結晶の転位線や、Fe-2.5%Si 結晶の亜晶粒界の観察を行ない、**XDT** では動力学的な像が現われ、一方**NDT** では運動学的な像が得られることを確認した。^{131, 147} また Malgrange らは 1976 年、水晶中の転位線の**NDT** 像の幅と、Authier の解析した像幅の理論（直接像，1.2.3 項参照）とがよく一致することを見出し，“**NDT** は今や確立した技法である”と結論している。¹⁴⁸

第 1.2.2 項で述べたように、完全性の高い結晶においては、中性子線も動力学的な回折理論に従い、その結果いくつかの特徴的な挙動を示す。その一つにペンデル縞の出現があり、**XDT** や **EM** でもすでによく観察され、**XDT** では散乱因子の精密測定に応用されている。¹⁴⁹

菊田らは、楔角 $1^{\circ}59'$ をもつ Si の完全結晶のトポグラフをボロライドフィルムに記録した。¹⁵⁰ 写真には三本の縞が認められ、その間隔は計算値によく一致した。その後 Malgrange らも、楔角約 10° の Si 結晶について実験を行い、Rh 変換体と X 線フィルムを用いた写真系（第三章第 3.3 節参照）で、同じく等厚干渉縞を約 10 本記録した。¹⁴⁹

以上は**NDT** による観察例であるが、中性子の干渉現象自体はすでに Sippel らが、ディフракトメトリーで確認している。¹⁵¹ また Shull らは、この干渉効果を巧妙に利用して、Si や Ge の核散乱振幅を 5 桁の精度で測定した。^{128, 152~154}

NDT の大きな長所の一つ、物質透過能が大きいことを真に生かした応用が、最近試みられつつある。

一つの典型的な応用が、鉛を含む物質の研究である。最近 Baruchel らは天然の炭酸鉛 (PbCO_3) -Cerussite- の成長欠陥 (Growth Defect) の**NDT** 観察を行なって、成長帯 (Growth Band) の方位や、成長の履歴に関する知見を得ている。¹⁵⁵

先に述べたように（第 1.2.1 項）、中性子と物質との磁氣的相互作用は X 線や電子線に望み得ない独特のもので、磁性体研究に早くから応用されている*）

NDT で磁区分布を初めて観察したのは、細谷と安藤である。^{157~159, 161} 彼らは、完全性の高い Cr 単結晶のスピン密度波 (SDW) 分布を、それぞれの衛星反射によるトポグラフで確認して、磁区の大きさが $10^{-3} \sim 10^{-2} \text{ cm}^3$ であることを結論した。

Schlenker と Shull は、Fe-2.8 wt % Si や、Co-8 wt % Fe の単結晶の磁区分布と、磁場に対する挙動を、偏極中性子を用いた**NDT** で見事にとらえている。¹⁶⁰

*) **NDT** の磁性体研究への応用については、文献 156 参照。

第二章 NDT によるCu-5at%Ge 単結晶の下部組織の直接観察

第2.1節 序

ブリッジマン法で作製した銅合金の表面には、しばしば規則的な縞模様が見受けられる。その縞模様は、表面のみの凹凸の模様であるばかりでなく、結晶内の構造—下部組織 Substructure—の反映であることを強く示唆する。しかしながら、従来この縞模様はあまり重視されていなかった。むしろ偶然的なものとして扱われ、そしてその結晶は、表面に縞模様があっても、単結晶であるとして扱われて来た。

一方で、本試料のような固溶体合金の下部組織としてはリネージ (Lineage) やセル (Cellular) 構造とかの下部組織が観察されており、本試料に関して観察されたような層状下部組織は、従来報告もされていないし、ましてその存在は期待すらされていなかったものである。

一般に、従来の観察は、自然面であれ切断面であれ、その表面観察が専ら行なわれており、結晶内部の直接観察は行なわれたことはなかった。むしろ、このように目視観察される程度のスケールの構造を、直接観察する手段が存在しなかったから、当然のことでもあった。

ともあれ、個々の試料に関して、各々の著者が独自の下部組織のモデルを提唱して来た観がある。従って、それらは必ずしも、統一的、総合的に把握されていないように思われる。²⁰¹ その結果、結晶成長に関する議論も統一的なものになり難く、時として原子レベルの極めて詳細な考察を行っても、必ずしも説得力をもっていないように見える。

このような結晶成長の議論の現状を考える時、むしろ比較的巨視的な結晶内部の下部組織を、直接的に詳細に観察することが、結晶成長の研究に大きな示唆を与えることが期待される。この目的にはNDTが適しており、厚さ数 cm の金属結晶についても、多くの場合支障なく内部構造の直接観察が可能であり、TEMやXDTに期待し得ないスケールの対象を観察できるはずである。分解能が低いことが唯一の欠点と言えようが、これととも、観察対象のスケール (数百 μm ~ 1 mm) に較べれば、数十 μm 程度の分解能を実現することで克服されるはずの問題である。

本章においては、Cu-5%Ge単結晶のNDT観察の詳細と、その結果得られた重要な結論を述べる。その際、NDT技法として特徴ある技術や、本研究で新しく試みられた特徴的な技法についても報告する。

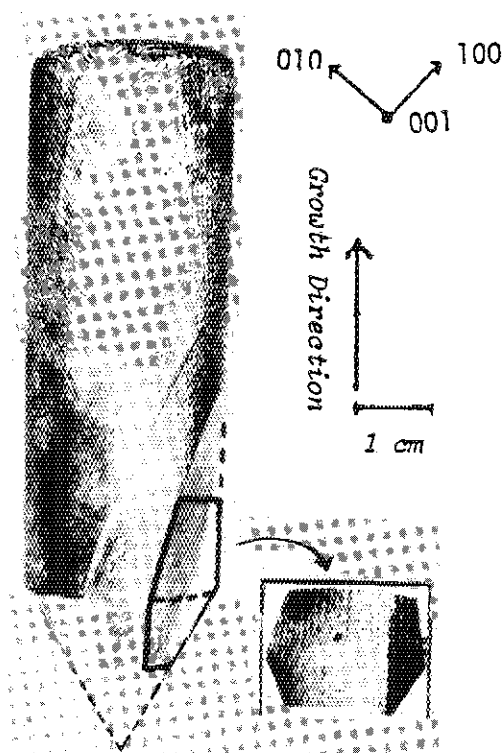
第2.2節 試料結晶の特徴

本実験で試料として用いた結晶は、Cu-5%Geの固溶体で単結晶として作られたものである。製法は、縦型のブリッジマン法で、底部を尖らせたグラファイト製のルツボが使用された。巨視的な成長方向は $[110]$ で、成長速度はおおよそ1 cm/hrであった。as-grown状態の寸法は、直径約3 cm、長さ約10 cmと、極めて大型の円柱状の結晶である。第2.2.1図に、方位図と共に試料結晶の外観の光学写真を示す。a図が大よその全体像であるが、最下端部は取扱中に大きな変形

を受け歪みが生じたので、観察の都合上、切除してあり、原形は破線の通りである。b 図は、下部に近い一部を切り出したもので、試料本体との位置関係は図に示す通りである。この小片の寸法は、およそ $15 \times 20 \times 5 \text{ mm}^3$ であり、後に試料と記録フィルムとの間の距離を短かくして、位置分解能を上げて詳細な観察を行うのに供される部分である。

a 図に見られるように、試料結晶の表面には規則正しく配列した、凹凸に富む縞模様が見られる。これらは方位的に三種類に分類され、表面のX線ラウエ写真により、結晶内の三種類の $\{100\}$ に平行な面が、結晶表面と交わって作る交線であることが推測された。これらの縞の間隔は、試料表面で $0.7 \sim 1 \text{ mm}$ の範囲であり、また凹凸の深さはおよそ 0.1 mm である。

なお、X線ラウエ写真ではさらに、各々の回折斑点が分裂することがあり、最大 2.5° くらいの大きさの結晶方位の misfitting が、部分的に生じていることがわかった。さらに、X線ビームの径を $50 \mu\text{m}$ に絞ったマイクロラウエ写真を撮ったところ^{*)}、各々の回折斑点は小さな斑点に分裂しており、これらの小斑点をつなぐかのようにストリークがのびていることがわかった。この事実は、本研究に使われる試料結晶がモザイク性に富み、各々のモザイクの粒界には、大きな格子歪みが存在することを示している。



第2.2.1図 試料結晶の光学写真

(a) 試料結晶の全体写真。成長方向は $[110]$ で、この写真は真横から $[001]$ 方向に見ている。表面に3種類の縞模様が見える（本文参照）。

(b) は、(a)の一部から切り出された小片試料。

*) X線マイクロラウエ写真は、理学電機KKの好意で行なわれた。

以上のことから本試料は、何らかの下部組織(Substructure)を有し、その周期はおよそ1mmの程度であることが推察される。本研究においては、初め直径約3 cmの as-grown 状態の結晶がそのまま **N D T** で観察され、後にb 図の小片で詳細観察が行なわれる。

第2.3節 NDT 実験の概要

2.3.1 はじめに

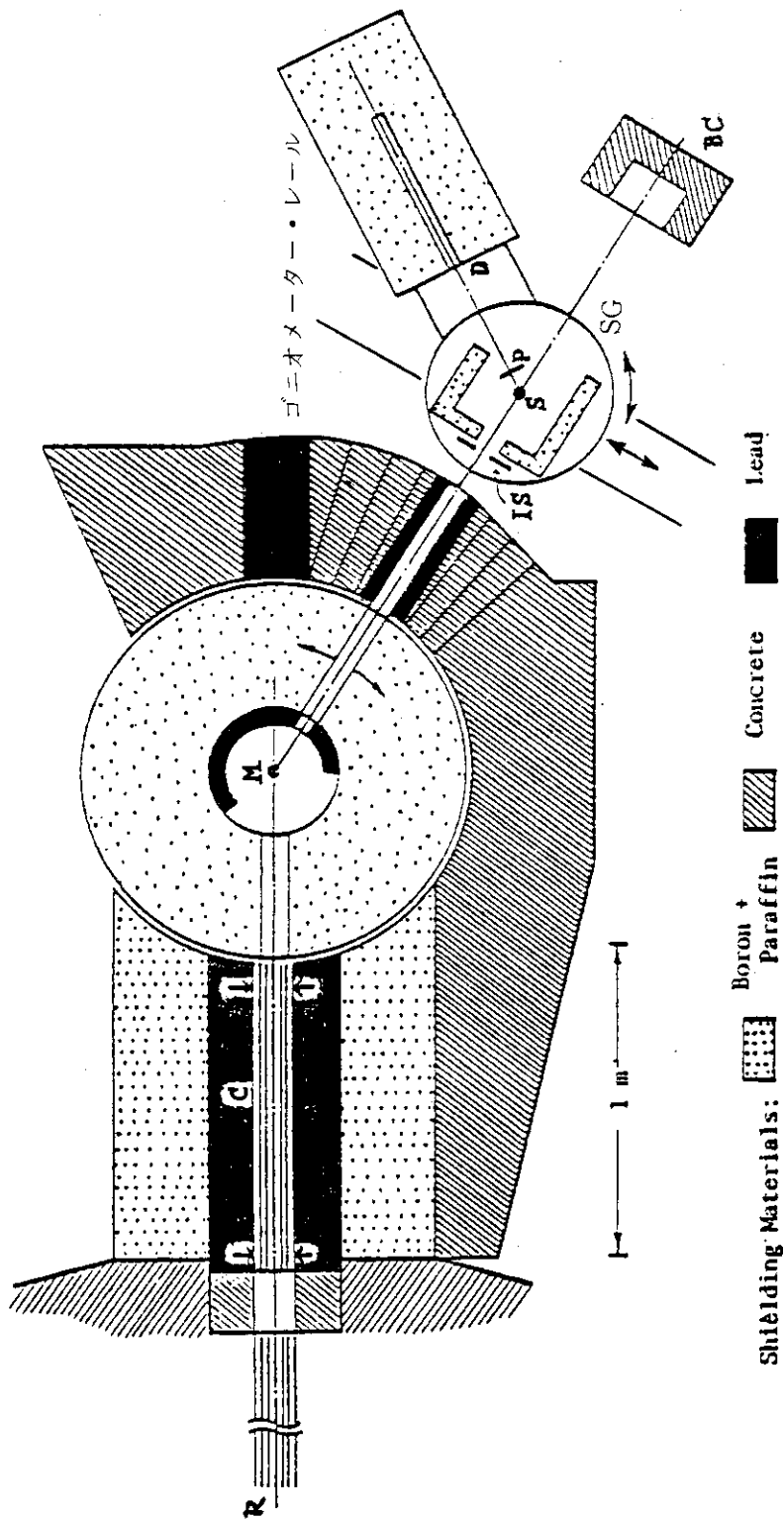
NDT 実験は、他の中性子回折実験と同様に、単色で平行性のよい熱中性子束を用いて行なわれる。従って通常の中性子回折実験の装置があれば、それに試料結晶を装着して、XDT と同じ要領で希望する反射面からの回折強度が最大となるように試料角を決め、透過波をカブらない範囲で写真系をできるだけ試料に近づけて設置すればよい。

さて、第2.3.1図に我々の用いた実験装置の平面図を示した。この図は床上1mにあるビームレベルでの水平断面図に相当し、中性子線束は水平面内を進行してゆく、つまり入射平面 (plane of incidence) は水平面である^{*)}。炉心(R)で発生した中性子は、熱平衡に達したあと、コリメーター(C)で角度発散を制限されて、モノクロメーター結晶(M)に入射する。モノクロメーター結晶のブラッグ反射で波長を選択された熱中性子は、入射スリット^{**) (IS)}で幅を制限された後、試料用ゴニオメーター(SG)上の試料結晶(S)に入射する。そこで再びブラッグ反射を生じて、回折波は検出器(D)で強度測定される。トポグラフ記録用の写真系(P)は、できるだけ試料結晶に近づけて設置される。回折に与からずに試料結晶を透過した線束は、ビームキャッチャー(BC)で吸収され、また実験に対するノイズや、実験者の健康の障害にならないよう、必要な線束径路以外は遮蔽される。

本節では、上記の各々のブロックの概要をまとめる。^{***)} なお、NDT 以外にも補助的にXDT、X線マイクロアナライザー、X線マイクロラウエ写真などが用いられたが、それらは本文中で記述される。

*) **) 本研究全体を通じて、入射平面 (入射波・回折波の波動ベクトルが作る平面) は水平である。
従って、入射スリットは鉛直に設置されており、鉛直な二枚のスリット片の間隔によって、試料入射波の幅が決定される。また、回折ベクトルもこの入射平面内にある。

***) 一般の中性子実験については、文献202が参考になる。



第2.3.1図 NDT実験装置図

原研JRR-2に設置され、本研究に使用した装置の平面配置図。

たゞし、R: 原子炉、C: コリメーター、M: モノクロメーター結晶、IS: 入射スリット、S: 試料結晶、P: 写真系、D: 検出器、BC: ビームキヤッチャー、IS, S, P, Dは、二軸のゴニオメーター (SG) 上に設置されている。なお、RとCの間に鉛シッターが設置してある。

2.3.2 中性子線源

中性子は種々の核反応で得られるので、放射性物質の α 線や加速器で加速された重水素などを適当な標的核に衝突させて中性子を発生することもできるが、^{203, 204} 最も一般的な線源は原子炉である。我々の用いた日本原子力研究所の研究用2号炉(JRR-2)は、²³⁵Uを90%以上に濃縮した合金燃料の連鎖反応を用いている。大切なのは線束密度であり、それは熱出力と共に増加し、炉心体積と共に減少する。JRR-2の炉心での線束密度は、“標準的”な値 10^{14} n/cm²・sec (10MW出力時)を示すが、冷却方式などを工夫して 10^{15} n/cm²・sec 程度を発生する“高線束炉”も世界にいくつか作られている。²⁰²

発生したばかりの中性子はエネルギーが高過ぎて(数MeV)、通常の回折実験には使えないので、適当な減速材と衝突させて大部分の運動エネルギーを失わせて、熱中性子化($\sim 10^{-2}$ eV)させられる。この減速の過程により、原子炉内の中性子束は減速材の温度において熱平衡になる。従って、炉内中性子の速度分布はMaxwell分布をなし、減速材の温度を $T^{\circ}\text{K}$ とすると、極大値 v_0 は $v_0 = (2k_B T/m)^{1/2}$ で与えられ(k_B : Boltzman定数, m : 中性子質量)。これを波長に換算して $T^{\circ}\text{K}$ における極大分布の値 λ_p は、

$$\lambda_p = h/m v_0 = h/\sqrt{2m k_B T} \quad (2.3.1)$$

で与えられる。²⁰² 我々が実験したJRR-2の場合、平衡温度が 50°C であるので、およそ $1.71\text{\AA}$ の波長の中性子が最大の分布をしていることになる。

大事なことは、このように減速して得られた中性子は広い波長分布をもっており、X線の場合の特性線の存在に比べると、むしろ連続分布である。この点は、今日注目を浴びて開発されつつあるS.O.R.のX線分布と事情が似ていると言える。²⁰⁵

炉内中性子を取り出す方式として、JRR-2では炉芯を直視する実験孔(径孔方式)であるが、この場合、高速中性子が混入して、実験に不都合な点がある。^{*}

2.3.3 コリメーション

原子炉が、白色の熱中性子の面光源であることから、分解能のよいトポグラフを得るにはコリメーションが重要である。これには通常、ソーラー型のスリットが用いられる。²⁰⁶ これは、熱中性子の吸収効率のよいCdをメッキしたうすい鉄板を、一定間隔で並べて、このチャンネルの範囲に中性子の角度発散を抑える方式である。通常の実験では発散角30分程度のコリメーターが用いられるが、NDTの場合は発散角をできるだけ抑える。我々はモノクロメーターとして、本研究の初めにはLiFやGe単結晶などの反射能の小さいものを用いたので、発散角が約25分と大きいコリメーターを用いて、試料入射単色波の強度を補った。後には、反射率の大きい熱分解黒鉛(Pyrolytic Graphite, 以下PG)の板(10cm×5cm×2mm厚)を入手したので、分

^{*} この点で、最近の原子炉では、炉芯の脇をかすめるように実験孔を配置したり(接線孔方式)、さらに数十mの長さのビーム・ガイド・チューブを併用したりして、高速中性子の混入を防ぐ工夫がなされている。²⁰²

第三章第3.2節の研究は、このような炉で行なわれた。

解能を上げる意味でも発散角 2.5 分の精コリメーターを用いた。これらの精・粗コリメーターによる実験結果のちがいは、次節 (2.4.2) で述べられる。

著者らの用いている装置では、モノクロメーター結晶の回転軸に正しく中性子線束が入射するよう、コリメーターの方位を $\pm 1^\circ$ 程度首振り制御できるようにしてある。第 2.3.1 図のコリメーター (C) の側面に付してある矢印がその運動方向を意味しており、その駆動は前後二ヶ所に設置されたパルスモーターで行なわれる。

コリメーターのスリット板の厚さはあまりうすくできないので、発散を抑えれば抑えるほど、通過する中性子線量も減るので、適当な選択が必要である。

なお、通常の回折実験では第 2.3.1 図の R ~ M 間の外に、M ~ S 間および S ~ D 間など、主要な線束径路には殆んどコリメーターを使用するが、²⁰²トポグラフ実験では局所的に入射線束密度に不均一があるのは望ましくないので、本図のように R ~ M 間のみに使用した。

2.3.4 単色化

原子炉内の中性子の速度分布は、前項で述べたようにマックスウェル分布をしているので、波長を選択する (単色化する) 必要がある。これには、大別して二つの方式があり、一つは単結晶のブラッグ反射による方式、他は機械的に一定速度の中性子だけを通過させる方式である。

後者の方式も、低速の中性子 (波長にして $5 \sim 20 \text{ \AA}$) を選択したり、 $\lambda/2$ の除去などの目的で実際に用いられるが、²⁰²我々は結晶モノクロメーター方式を用いた。

さて、結晶のブラッグ反射で単色化する方式は簡便なのでよく用いられている。しかしこの方式では、

$$2d \sin \theta = n \lambda_0 \quad (n = 1, 2, \dots,) \quad (2.3.2)$$

で与えられるブラッグ反射の条件式から明らかなように、反射の次数 n に対応して高次反射が生じ、 λ_0 を選択したつもりでも、一般的には $\lambda_0/2$, $\lambda_0/3$, $\dots$, λ_0/n の混入が避けられない。その際中性子特有の性質として、原子構造因子が s 値 ($\sin \theta / \lambda$) に対して一定であるため、もとの幅の広い波長分布をほとんどそのまま反映している強度が効いてくる。例えば λ_0 を $2 \text{ \AA}$ 程度に選ぶと $\lambda_0/2$ の方が強度が大きいという事態が生ずる。この不都合を避けるためには、先の機械的方式に依るか、モノクロメーター結晶と試料結晶の反射の指数をかえるなどの工夫が必要である。この後者の原理は、よく知られている“空間格子の消滅則”を利用するものである。たとえば、ダイヤモンド格子をもつ結晶をモノクロメーターとして使う場合、111 反射を選べば、222 反射が空間格子の対称性により消滅するので $\lambda_0/2$ が除去され、333 反射の $\lambda_0/3$ はもとの波長分布が弱いので無視できる場合があるわけである。このほかに、特定波長の中性子線のみを吸収させたり、逆に透過させたりする中性子フィルターの方式があり、実験の必要性に応じて利用されている。²⁰² 本研究では、高調波の混入に対しては、特別な対策は講じなかった。

試料に入射する中性子線束は、以上のコリメーターとモノクロメーターとで、その波長単色性と方向均一性が整えられるが、その程度によって情報の精度が左右されるので重要な部分である。一般的に、これらの条件 (中性子の波長と方向-運動量) を厳しく選別すればする程、有効な線束強度が減るので、実験精度は適当な妥協が必要である。回折実験では電氣的処理や計算処理で

雑音を除去したりして情報の質を上げることができる場合があっても、トポグラフ実験では得られた写真のコントラストとその分解能が全てを決定する要素が強いので、特別の注意が必要である。特に、試料に入射する中性子線束は、その断面内で一様であることが要請される。その意味で、モノクロメーター結晶に大きな亜晶粒分布があるような場合は、得られたトポグラフの解釈が不正確になる恐れがあるので避ける必要がある(2.4.1項参照)。

なお、モノクロメーター結晶とコリメーターの組み合わせにより位置分解能が決定される様子は附録Aで考察する。

2.3.5 回折計

試料を回折位置に設定するためのゴニオメーターは通常の回折実験に用いられるものがあれば十分で、カウンターアームの軸が 2θ だけ回転すると同時に、結晶軸が同じ方向に θ だけ回転する機能をもっている。結晶軸は更に、単独に回転できるようになっている必要がある(ω 回転軸)。

ところで、トポグラフィ実験の手順は次の通りである(第2.3.1図参照)。

- 1) 希望する波長の単色波を、モノクロメーター結晶のブラッグ反射で選ぶ。
- 2) 試料用ゴニオメーター(SG)を、床に敷設したレール上で移動して、上記単色波がSGの中心軸を通るようにする。
- 3) SGのカウンターを、目的とする反射のブラッグ角の2倍だけ振って回定する。
- 4) 試料結晶を手動で回転して、大まかなブラッグ反射の位置に固定する。
- 5) 上記のピーク位置の前後適当な範囲(数十分から数度の角度範囲)で、結晶だけを回転させ(ω -scan)、いわゆるロッキングカーブを作る。
- 6) このロッキングカーブ上のピーク位置など、目的とする角度位置に試料を固定する。
- 7) カウンターの計測値が減少しない範囲で、入射スリット(IS)を絞りを、透過波をかぶらない程度に写真系を試料に近づけて設置する。
- 8) 一定の時間露出したあと、フィルムを現像する。

なお、1)の単色化の段階でも、3)~6)と同様の操作がモノクロメーター用ゴニオメーターで行なわれるのは勿論である。また、通常は単色系と試料ゴニオ系とが機械的に連結されているので、上記第2)の操作は不用であるが、我々の装置では、両系を別々に入手、設置したのでこの操作が必要である。

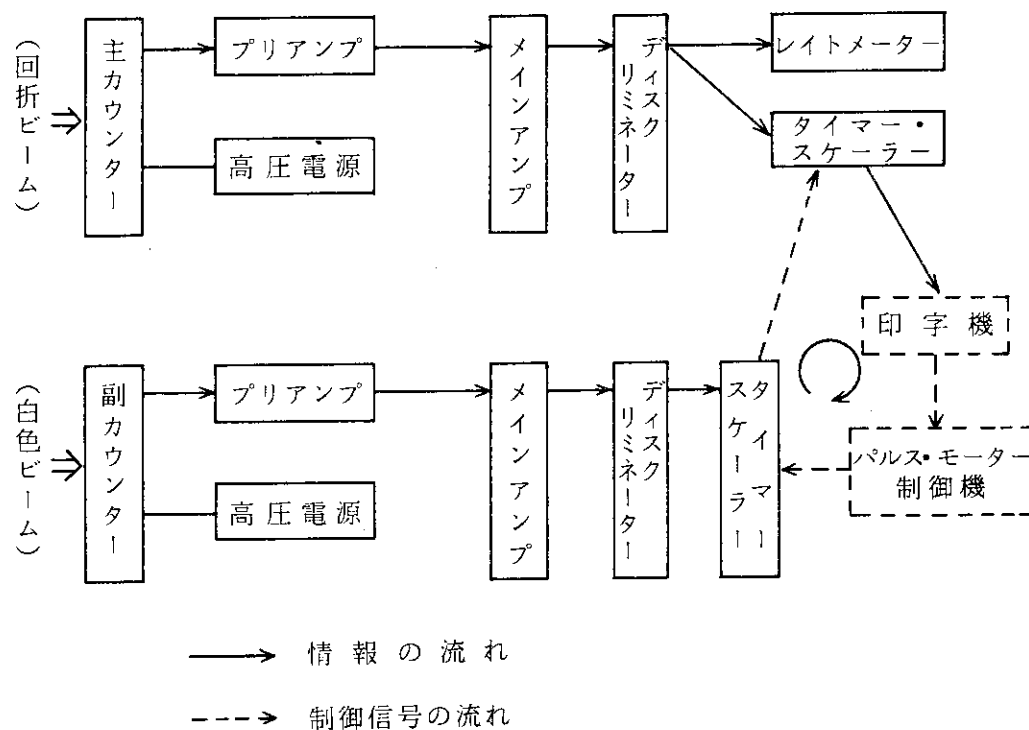
ところで、中性子実験においては殆んどの場合、信号強度が弱いので、強度測定には一点当たり数秒から数十秒の時間をかけて計測する。従って、たとえばロッキングカーブを作る場合にも、試料角を一定角度ずつ送ってはそこで駆動をとめて回折強度を測定するというstep-scan方式がとられる。我々の装置でも、試料角のみならず、試料ゴニオメーターの $\theta-2\theta$ 送り、モノクロ結晶角の送り、コリメーターの首振り(前後2ヶ所の送り、2.3.3項参照)というそれぞれの駆動に、パルスモーターを用いて、このstep-scanを行っている。各々のパルスモーターの駆動には、一台の電源を、スイッチで切替えて使用するようになしており、全体としては駆動→計測→記録というシーケンスを組んである(第2.3.2図参照)。

2.3.6 計測系

NDT 実験では通常、目的の反射の近辺でロッキングカーブを作って、その最大反射強度の試料角を設置するのに計測系を使用する。また、稀にはロッキングカーブの途中に試料角を設定することもある（例、第 2.4.5 項）。しかし、特別の計測系は必要とせず、むしろ通常の中性子回折実験より簡単な系を用いた。

例えば、第 2.3.2 図は、我々の使用している計測系の構成図である。上半分の主系列とほぼ同じ構成の副系列が下半分にあるが、これは一般に炉出力に変動があり、厳密な回折強度を得るためには試料入射前の中性子線量を副系列でモニターし、この計数が一定値に達した時に試料回折波の計数を測定するためのものである（モニター定計数法）。しかし、我々の実験では多くの場合、一定時間で計測する定時計数法で充分であった。

なお、我々の装置の場合、ロッキングカーブを作るのに便利のように、①試料角送り（パルスモーター使用）→②回折強度測定→③印刷→①というようなシーケンスを組めるようにしてあるが、最近の回折実験ではミニコンなどの制御で、もっと多重の複雑なシーケンスが組めるのに比べると、全く簡単なシステムで足りている。



第 2.3.2 図 測定系の構成図

信号計測用の主系列(上段)と、ほぼ同じ構成の副系列(下段)があり、炉出力の変動に伴う信号強度の変動を補正することが可能である（モニター定計数法）。

右端のループは、測定→印字→ギア送り→測定というシーケンスを行なわせる制御信号の流れを示す。

さて、中性子検出器としては通常型のBF₃ カウンターといわれるものを使用している。これは、(n, α) 反応を生ずる ¹⁰B を 95% 以上に濃縮（天然の存在比は 18.83%）した BF₃ ガスを封入したもので、直径 5 cm 長さ 50 cm 程度の円柱状の形をしている。この作動原理としては、¹⁰B(n, α)⁷Li で生じた α 線により、BF₃ ガス自体を電離させ、しかも高圧をかけて二次的電離を起す（ガス増幅）ようになっている。また、この二次電離作用と一次電離量とが比例するようにしてある（比例計算管）。

なお、モニター用の副検出器は線量の多い白色線を測定するので、²³⁵U を 95% に濃縮したフィッシュンチェンバー型のものをを用いた。設置場所は、モノクロメーター結晶の直前である。

2.3.7 記録系

XDT や **EM** と同様 **NDT** の情報は最終的にトポグラフという二次元の記録で与えられる。従ってこれの質の良否で、**NDT** 実験の成否が決まる場合もあるので重要である。現在の記録法としては、**XDT** や **EM** と同様、大別して二種類ある。一つは、フィルム上に写真として記録する方法で、これは一定の露出時間内の試料の状態を静的に、時間平均的に記録するものである。他の一つは、TV 系を使用して電氣的に二次元強度分布を表示する方法で、原理的に動的な *in-situ* 観察が可能である。いずれにしても、中性子の直接感光能力が極めて小さいので、種々の物質を用いて γ 線や光子、α 線、β 線を発生させて、それでフィルムを感光させたり、TV 系に信号を与える方式がとられる。この間接的な方法が必要な点が **XDT** や **EM** と比べて異っており、特に写真法の場合には、その限界分解能を左右している。

写真法として、現状では次のように三つの型がある。

- ① ⁶Li や ¹⁰B と ZnS などの中性子に敏感なシンチレーターと、市販のポロライドカメラを組み合わせると、非常に感度の高い写真系ができる。²⁰⁷ 通常の中性子回折実験の入射波なら数秒間、試料回折波でも数分の露出時間で充分である。この方法はしかし、シンチレーターの粒度と均一性がまだよくないので、分解能が悪く、あまり忠実な記録は期待できない。現状では、入射ビームの均一性のモニターや、本物のトポグラフを撮る前にビームトリミングの最適条件を決めるモニターとして有効である。
- ② Rh や Gd などの (n, β), (n, γ) 変換体と、X 線フィルムを組み合わせる方法は、感度は充分でなく永い露出時間を要するが、分解能は向上する。後に詳述する。
- ③ α 線を硝酸セルロース（セルロイド）や、ある種のプラスチックに当てて、化学腐食すると、α 線の飛程に沿って選択的に速く腐食が生じ、飛跡が検出できることは知られている。^{208,209} 近年、Saclay の Englander と、パリ大学の Malgrange らは、水晶中の転位像を記録する際に、この方法を応用した。¹⁴⁸ ⁶Li の (n, α) 反応で α 線を発生させて、硝酸セルロースに当て、その飛跡を KOH で腐食したものである。

NDT への TV 系の応用は、専ら O.R.N.L の Davidson らが行っており、種々の工夫や改良を加えながら、いくつかの応用例もある。²¹⁰⁻²¹² この方式は、計算機と組み合わせることにより、結果の表示を三次元的鳥瞰図にできるなど、本来的に *in-situ* 観察に適することと併せて、いくつかの長所を有している。

現状では分解能に難点があると思われるが、種々の過渡現象に着目するとき、威力を発揮する

可能性がある。

NDT の記録に際しては、これまで多くの場合、前述の写真法の②の方法が用いられている。この方式については、中性子ラジオグラフィ応用の観点から Berger らによってくわしくまとめられている。^{140 213} その結果、相対的な感度（フィルムの黒化速度）や、分解能の両面から、変換物質としてフィルムの前面に 10/1000 インチ厚の Rh 薄板を、後に 2/1000 インチ厚の Gd 箔を密着させる “10Rh-2Gd” の二重スクリーン法や、後面のみに Gd 箔を密着させる一重スクリーン法が実用的に好成績である。¹⁴⁰

我々も、当初 “10Rh-2Gd” 法を採ったが、モノクロメーター結晶を **PG** にかえて線束強度を上げてからは、専ら Gd 箔のみをフィルム背面におく方式によった。当然のことながら、変換過程の数と変換物質の厚さを減らす方が記録系固有の分解能をより向上させると思われる。従って、回折強度が強ければ、この方が望ましいわけである。さらに Au を含む試料のように、 γ 線を多く放射する試料の場合、フィルム前面のカブリが無視できないが、背面のみにトポグラフを記録して、現像終了後に前面乳剤を硝り落とすことにより S/N 比を上げることができる。

なお、使用するフィルムとしては、Kodak 社製の歯科用 X 線フィルム DF-57 が、コントラスト（硬度）や乳剤粒度の点で最適であり、本章の実験の全てに用いた。フィルムと Gd 箔は、アルミニウム製のカセットに収納、密着させて使用する。このカセットは、できるだけ純度のよいアルミニウムで、不純物が放射化していつまでも γ 線を発生しつづけることがないように配慮されている。形状としては、試料外形の大きさに合わせながらも、試料結晶とフィルムの距離をできるだけ短くするために、そして透過線束をかぶらないよう、できるだけ小さくする。我々は、大中小の各サイズ 2 ケずつ作って用いている。2 ケあれば、一枚のトポグラフを撮ってそのカセットや変換物質の残留放射能の減衰を待たずに、次のトポグラフに移れるから便利である。

なお、本実験における露出時間は、LiF や Ge モノクロメーターと 25' コリメーターのビーム系で 10~20 時間、**PG** モノクロメーターと 2.5' コリメーターの場合で 2~3 時間であった。

2.3.8 遮蔽系

遮蔽の要点は二つあり、一つは記録系やカウンターに不用中性子や γ 線が入るのを防ぐことであり、他の一つはそれらの不用放射線の発生を防ぐことである。第 2.3.1 図に、我々の用いた遮蔽体の配置と材質が、それらのスケールと共に示してある。

遮蔽体の材質としては、高速中性子は水素を含む物質（パラフィン、水等）で熱中性子化し、それを水素やホウ素(B)で吸収し、これらの過程で発生する γ 線は鉛で吸収することが普及している。また、空間的余裕がある場合にはコンクリートが有効で、1 m の厚さにつき、高速中性子や γ 線をそれぞれ 1/5000、1/20 に減らせる。²¹⁴ この方式によれば、上記の専用材質を用いる場合より構造も単純で、コストも安い。

なお、入射スリットなどのように狭い場所でも有効に遮蔽する必要がある場合には、Cd 板（1 mm 厚程度）と Pb 板を併用すればよいとされているが、散乱中性子も少なくない。

最近皆川らは、B 入りゴムを開発しており、²¹⁵ 我々も入射スリットに使用して好結果を得ている。厚さは 5 mm と少し厚いが、シールド効果がよく不用散乱も少ない。

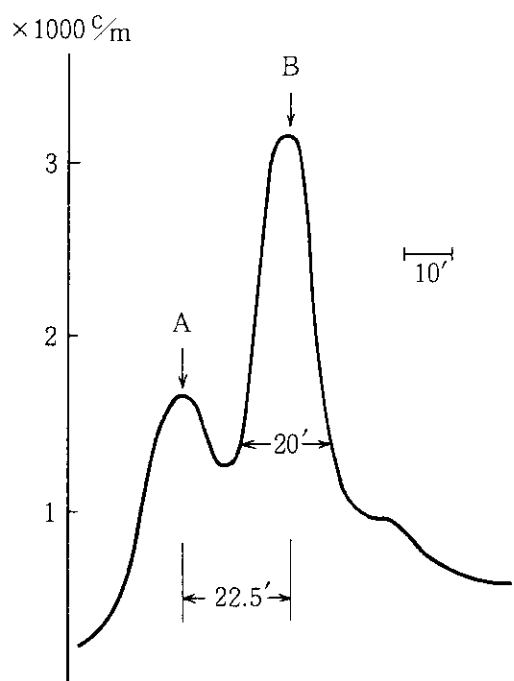
第2.4節 NDTによる観察結果

2.4.1 粗コリメーターによる観察結果

この実験の当初は、モノクロメーター結晶としてLiFとかGeのas-grownの単結晶が用いられた。これらの反射能はいずれも小さいので、実用的に実験を進めるためには、コリメーターを粗いものにして、試料に入射する単色中性子の線束密度をふやす必要があった。使用したコリメーターは、開き角約 $25'$ のソーラータイプのコリメーターである。

さて本章第2.2節で述べたように、試料として用いたCu-5%Ge単結晶は $\{100\}$ 層状下部組織をもつであろうと推察されていた。これを確認するために、成長方向に平行な (001) 面が、入射平面になるように試料を設置した。これはトポグラフ上で、 (001) 層を端視像(Edge-on Image)に見る、つまり (001) 面に沿って見る配置である。^{*}

第2.4.1図は、このような配置で、波長 $1.38\text{ \AA}$ 、220反射によるロッキングカーブである。縦軸が回折強度(c/m)、横軸 ω は試料方位角(分)である。カーブは、二つのピークA、Bを有し、その強度比はおおよそ $1:2$ であり、両者の角度開きは約 $23'$ である。それぞれのピークの半値幅は、おおよそ $20'$ である。なお、カーブBの右裾部が上っているのは、モノクロメーター結晶のLiFが部分的に二つのグレインに分かれているために生じたものである。



第2.4.1図

as-grown結晶の、220反射によるロッキングカーブ。 $25'$ コリメーター、LiFモノクロメーター使用で、 $1.38\text{ \AA}$ の波長を使用。約 $23'$ 離れた二つのピークA、Bが識別され、各々のピークの半値幅はおおよそ $20'$ である。

^{*} この端視法は、本章の研究でよく用いられる技法である。

さて、ピークA、Bの各々の角度位置に試料を固定してトポグラフを撮ると、それぞれ第2.4.2図a、bが得られた。^{*}これから、ピークAでは試料の約1/3が回折を生じ、ここで off-Bragg となっている残り2/3はピークBで on-Bragg となることがわかる。従ってまた、ロックイングカーブ(第2.4.1図)の二つのピーク値の比は、on-Braggになる部分の体積の比に起因するものであることがわかる。つまり、この試料結晶は、ほぼ1:2の体積比で、約23'の角度ズレを有する二部分に分かれていることが判明した。

これらの図はさらに、それぞれのトポグラフのコントラストが、水平な縞模様でできていることを示している。その水平縞の周期は、第2節で述べた表面の縞と同じく約1mmである。これらのことは、当初の推測通り、成長軸[110]に平行な(001)層の一群を端視の条件で見ていることの証左であると思われるが、後にさらに詳細に検討する。ここでは簡単な傍証的実験の結果を二つ加えておく。

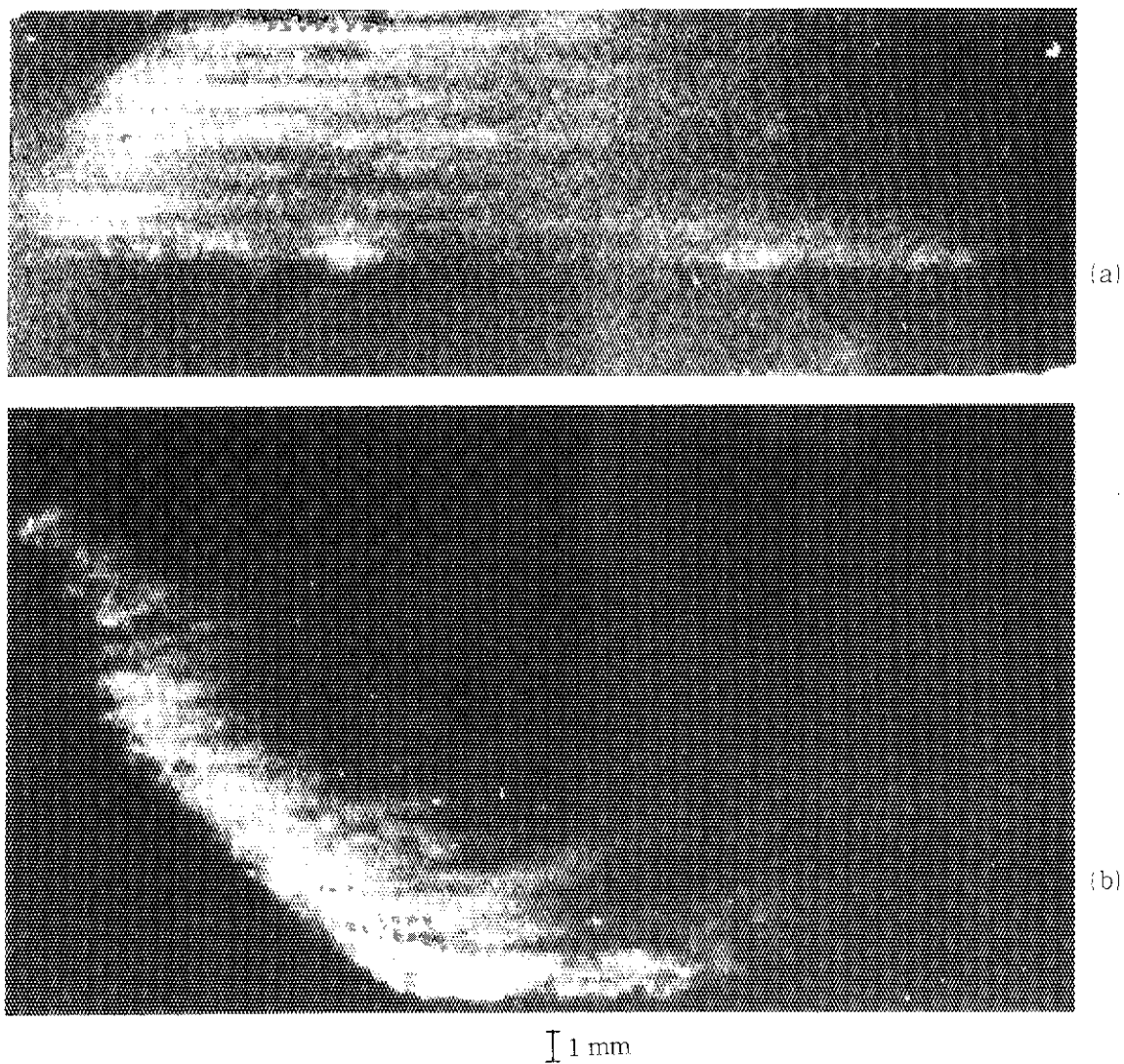
その一つは、反射面内回転の実験である。それは、第2.4.2図の場合のような、(001)層を端視像で見る配置から、220反射の条件を保ちながら、反射面の法線[110]のまわりに、この試料を一定角度だけ回転させて固定する。回転角約10°で撮ったトポグラフを、回転する前の端視の条件のトポグラフと比較した結果が、第2.4.3図に示してある。明らかに、回転前の水平縞パターン(a図)が、回転後ボケている(b図)ことがわかる。このことは、初め(001)層を端視像に見ていた配置から、回転によって各々の(001)層の像がトポグラフ上に重なり合って撮影された結果であると解釈される。

次に、いわゆるセクション・トポグラフ(断層撮影)の結果である。この技法はすでにXDTで活用されているもので、我々も熱圧延したGe単結晶のNDT観察(第三章第1節)で応用しており、²¹⁶ フランスのSchlenkerらは、as-grownの結晶のsub-grain分布の様子を簡単に評価する方法として実用している。¹⁴⁷ 第2.4.4図にその様子が示してある。すなわち、入射線束をスリットで細く絞って試料に入射させると、入射側表面Aから出口側表面Bに至る途中で回折を生じ、図のような三角形ABCを成して(Borrmann三角形)、その範囲内で波動場が進む。ここで、中性子の場合は特に散乱断面積が小さいので、結像に効くのは専ら入射線方向の径路AB間の散乱で、他の部分は散乱を生じないと考えられる(運動学的な仮定が成立する)。従って、得られるトポグラフは図の斜線部の投影図であり、いわば仮想的な断面図が試料を切断することなく、得られるわけである。従って、本試料で得られたセクショントポグラフ(第2.4.5図)で、右端は入射側表面、左側が出射側表面に対応する。従ってこの図から、水平な縞模様が入射側表面から出射側表面へ連続していることがわかる。このことは、問題にしている(001)層が確かに試料結晶内に連なっていることを示すものと理解される。同時に、各々の水平縞が回

* 本論文においては、すべてのトポグラフ写真は原画から直接に印画紙に焼きつけてあり、画面上で比較的白い部分に中性子やX線が多く到達していることを意味する。

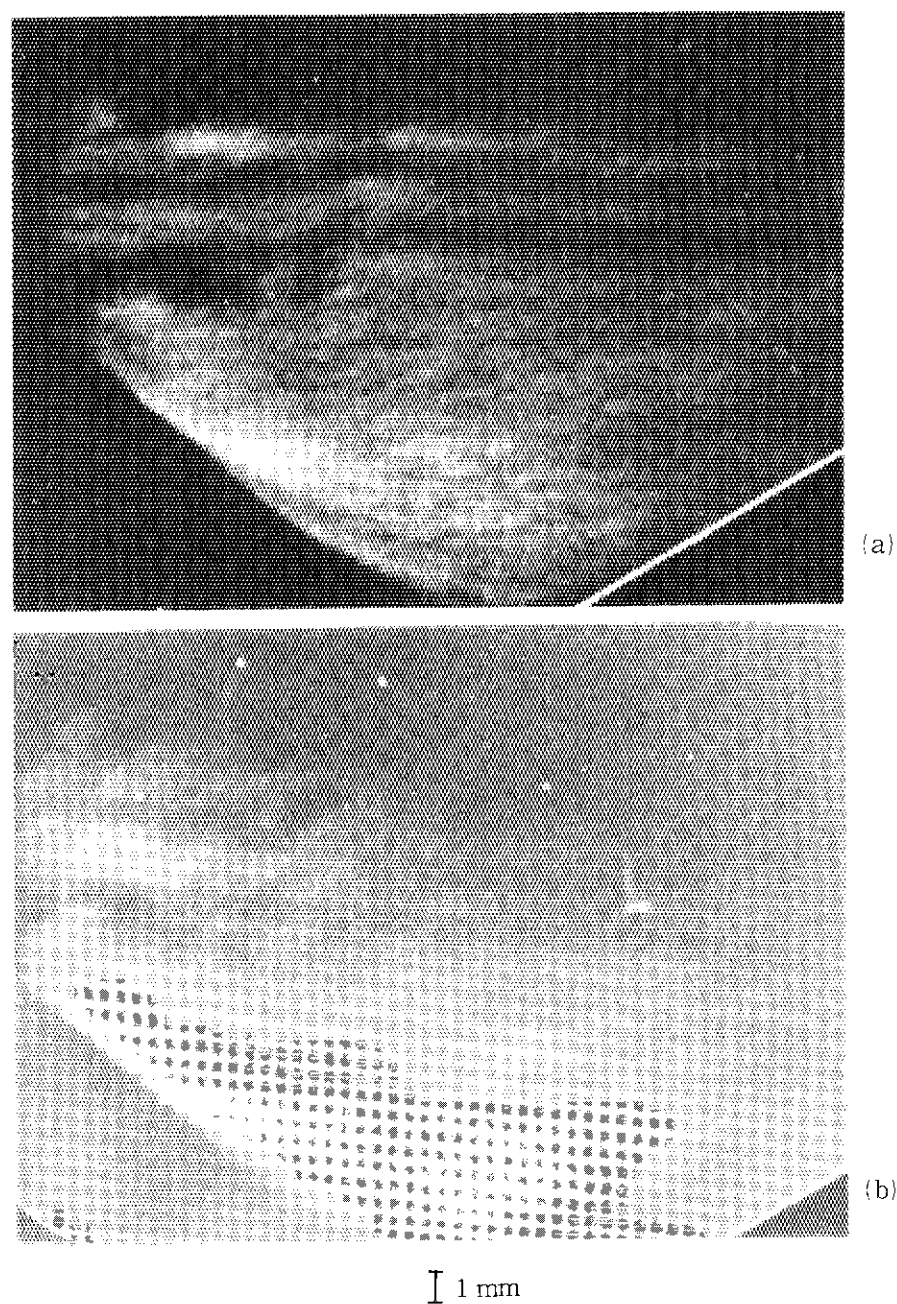
また、すべてのトポグラフは回折ベクトルが水平な入射平面内にある条件で撮影され、各々の図においても、回折ベクトルが水平方向になるように掲示されている。従って各々の図における scale-mark は縦方向のみが示してある。

以上の点は、本章のみでなく第三章においても該当する。



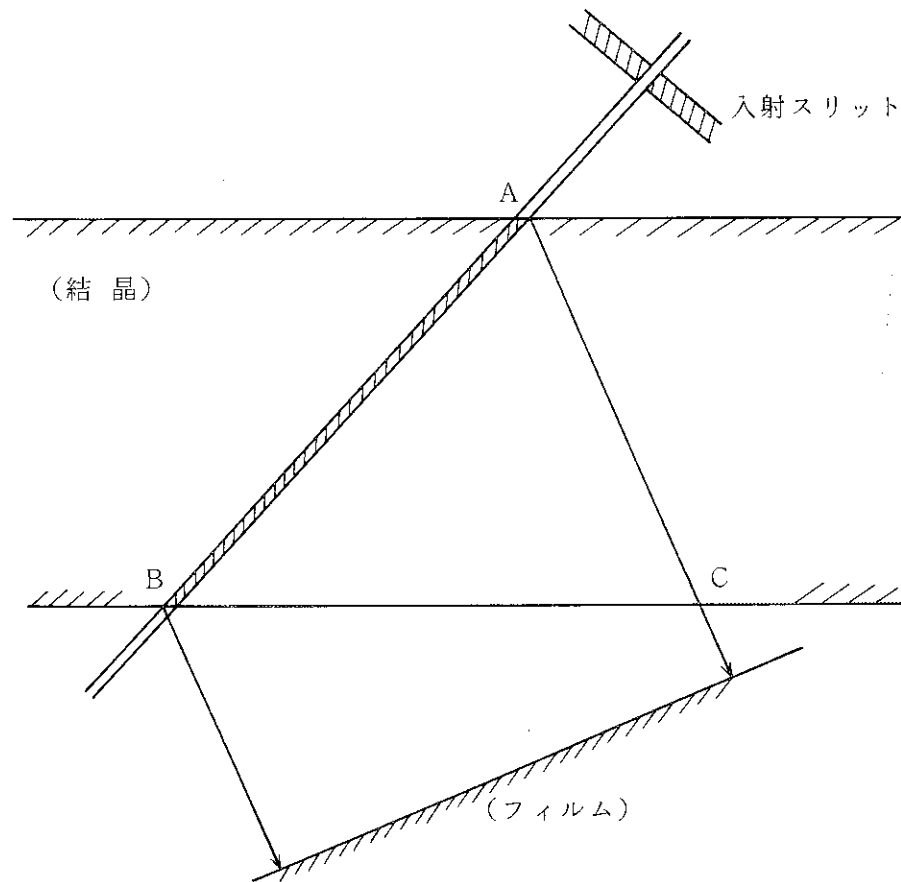
第2.4.2図 粗コリメーターによるトポグラフ

(a), (b) はそれぞれ, 第2.4.1図のピークA, Bの試料角で撮られた中性子回折トポグラフ。(a), (b) それぞれ試料の一部づつが写っており, 併せて試料全体に対応する。本文参照。

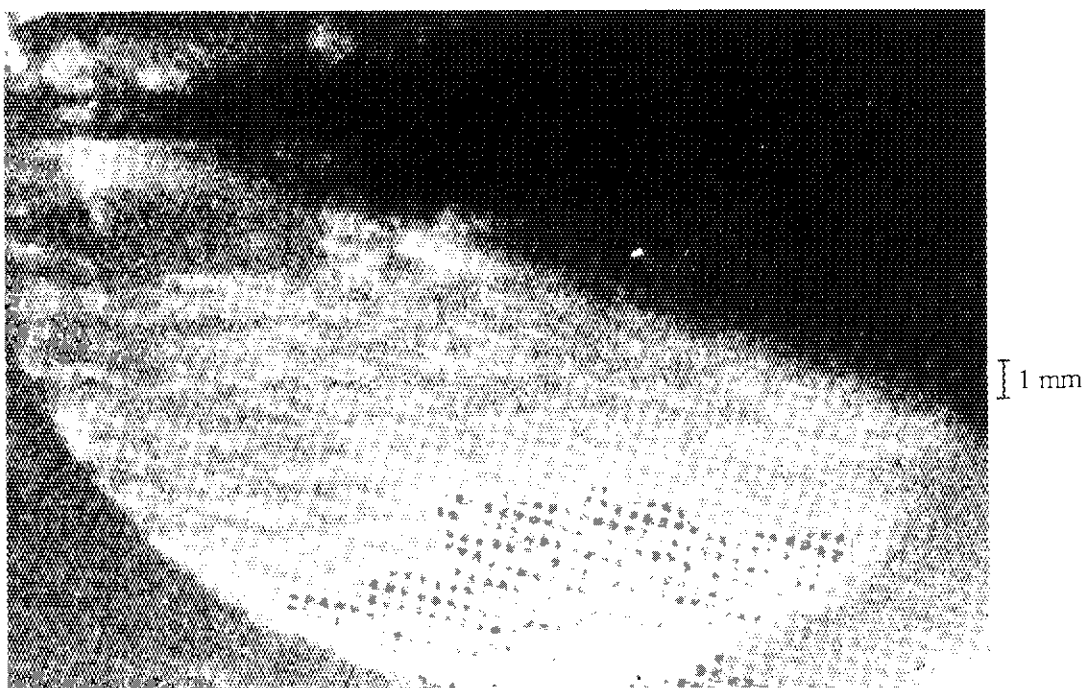


第2.4.3図

試料結晶の反射面内回転による像の変化。すなわち、 (001) 面を端視に見る配置a) (=第2.4.2図(b)) から、試料を反射面 (110) の面内で約 10° 回転してトポグラフを撮ると、(b)図のように水平な縞パターンがはっきり見えなくなる。 本文参照。



第 2.4.4 図 セクショントポグラフの配置図

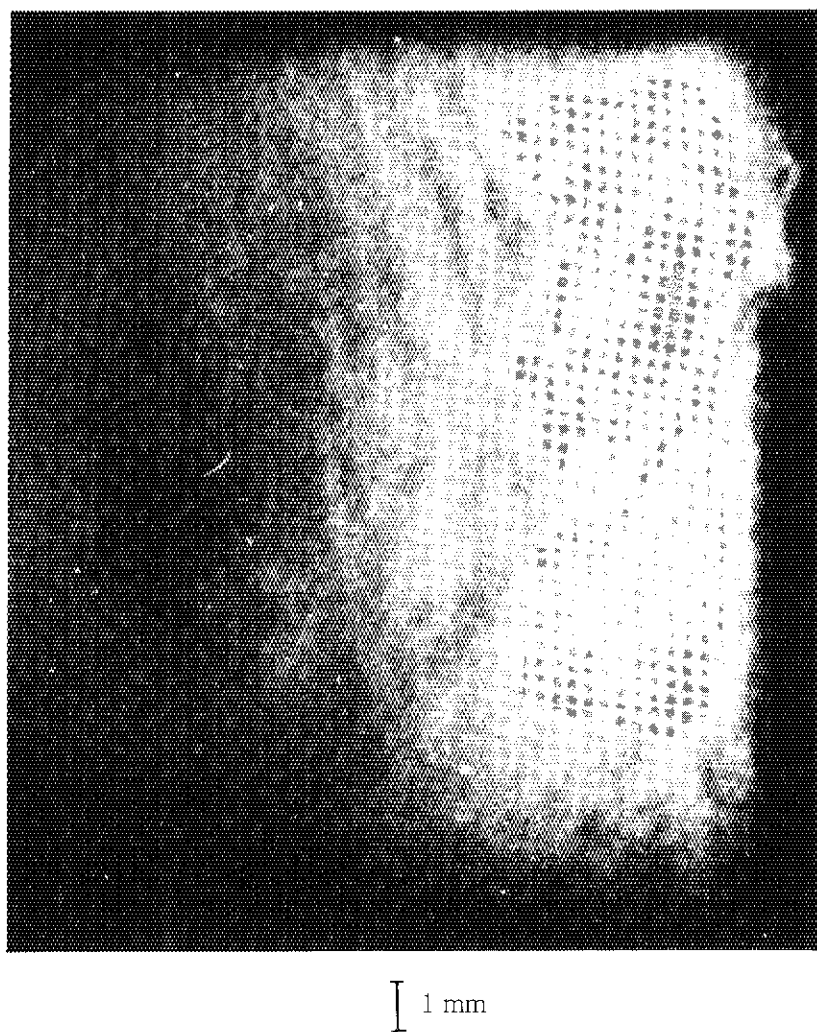


第 2.4.5 図 Cu-5%Ge試料のセクショントポグラフ

凸に富むことから(001)層が微細構造を有することが推察される。その実体は、次項以後に研究される。

次に、この試料の成長軸〔110〕を鉛直（つまり plane of incidence に垂直）に設置して、002 反射のトポグラフを撮った。その結果は第 2.4.6 図であるが、ここで特徴的なことは、互いに交叉する二種類の縞模様が見られることである。これらの縞の間の交角、および結晶軸に対する方位を解析してみると、それぞれの縞は、〔100〕および〔010〕方位によく対応していることがわかる。これは、(010)層や(100)層が(001)層と成す交線の方に等しいわけであるが、その実態は、第 2.4.5 図のセクショントポグラフで明らかになった(001)層の微細構造と共に、第 2.4.6 項で明らかにされる。

なお、第 2.4.6 図のトポグラフは、モノクロメーターとして Ge 単結晶の 111 反射が用いられた。コリメーターは 25' であり、使用波長は $1.38\text{\AA}$ であった。



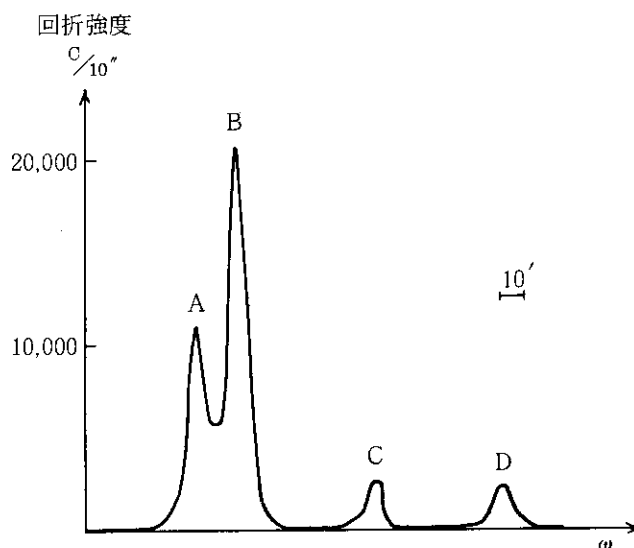
第2.4.6図 試料縦保持のトポグラフ
試料の成長軸〔110〕を鉛直に立てた配置で撮った、(002)反射のトポグラフ。25' コリメーター、Ge モノクロメーターにより、 $1.38 \text{ \AA}$ の波長を選択。露出は約30時間。

2.4.2 精コリメーターによる観察結果

熱分解黒鉛 (Pyrolytic Graphite, 以下 **PG** と略称) は, 中性子反射率が約 80% で 217 非弾性散乱も少なく, モノクロメーターに使えば S/N 比が大幅に改善されるので, よく使用されている。本実験でもこれを用い, ^{*}) 同時に像質を上げるべく, 開き角 $2.5'$ の精コリメーターを用いた。これはスリット板間隔約 0.7 mm で, 線束透過量は相当に落ちるのであるが, **PG** モノクロメーターと組み合わせた結果は, 前節までの LiF や Ge に粗コリメーター ($25'$) を組み合わせた場合より, 単色波の線束密度が増加した。

第 2.4.7 図は, 第 2.4.1 図と対比されるべきロッキングカーブで, 波長 $1.18\text{\AA}$, 220 反射を使用している。先にも見られた大ピーク A, B が分離よく再現されたのみでなく, 小ピーク C と D が現われている。これらの小ピークはそれぞれ, 大ピーク B からおよそ 1° および 2° ズレており, 強度は約 $1/10$ である。これらは, 前節の粗コリメーターの条件ではノイズに埋れていたものと解釈される。

それぞれのピーク A ~ D で撮られたトポグラフが, 第 2.4.8 図 a ~ d である。a, b は第 2.4.2 図と同様に多数の水平縞を示し, c, d は一本ずつの縞模様を与えている。すなわち, 一枚ずつの (001) 層がピーク B の層群から約 1° ずつ離れて存在することがわかる。さらにそれらは, 大ピーク B を与える層群のトポグラフ (b 図) で欠落している部分を埋めることがわかる。かくして, ピーク A ~ D に対応するトポグラフ a ~ d はそれぞれ, 相補的であること, つまり, 各々のトポグラフで off-Bragg のために欠落している部分を互いに埋め合うことがわかった。

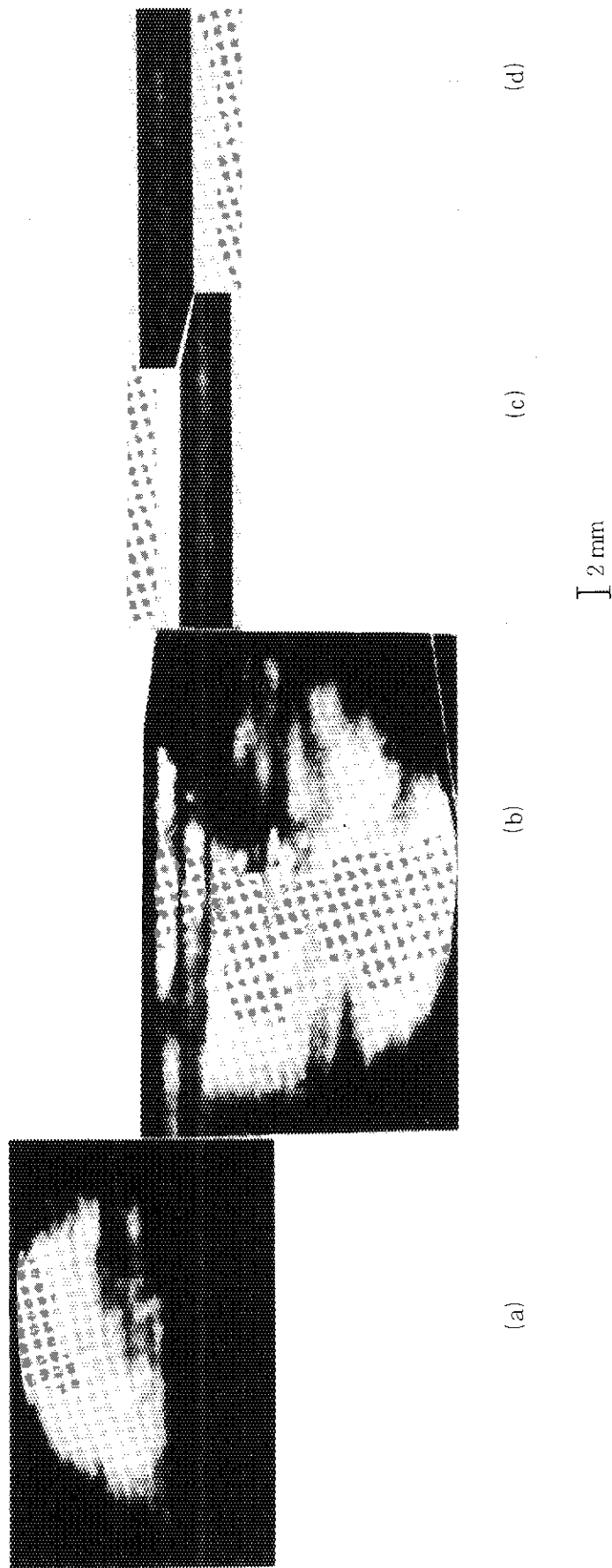


第 2.4.7 図 精コリメーター使用によるロッキングカーブ

PGモノクロメーターと, $2.5'$ コリメーターの組み合わせによる, 220 反射のロッキングカーブ。 S/N 比の向上により, 4つのピーク A ~ D が識別されるが, A, B は第 2.4.1 図のピーク A, B に対応している。波長 $1.18\text{\AA}$ 使用。

^{*}) 米国 Union Carbide 社製の PG で, 表面積は $7.5\text{ cm} \times 5\text{ cm}$, 厚さは 2 mm 。

c 軸のばらつきは, $0.4^\circ \pm 0.1^\circ$ (ZYA) である。

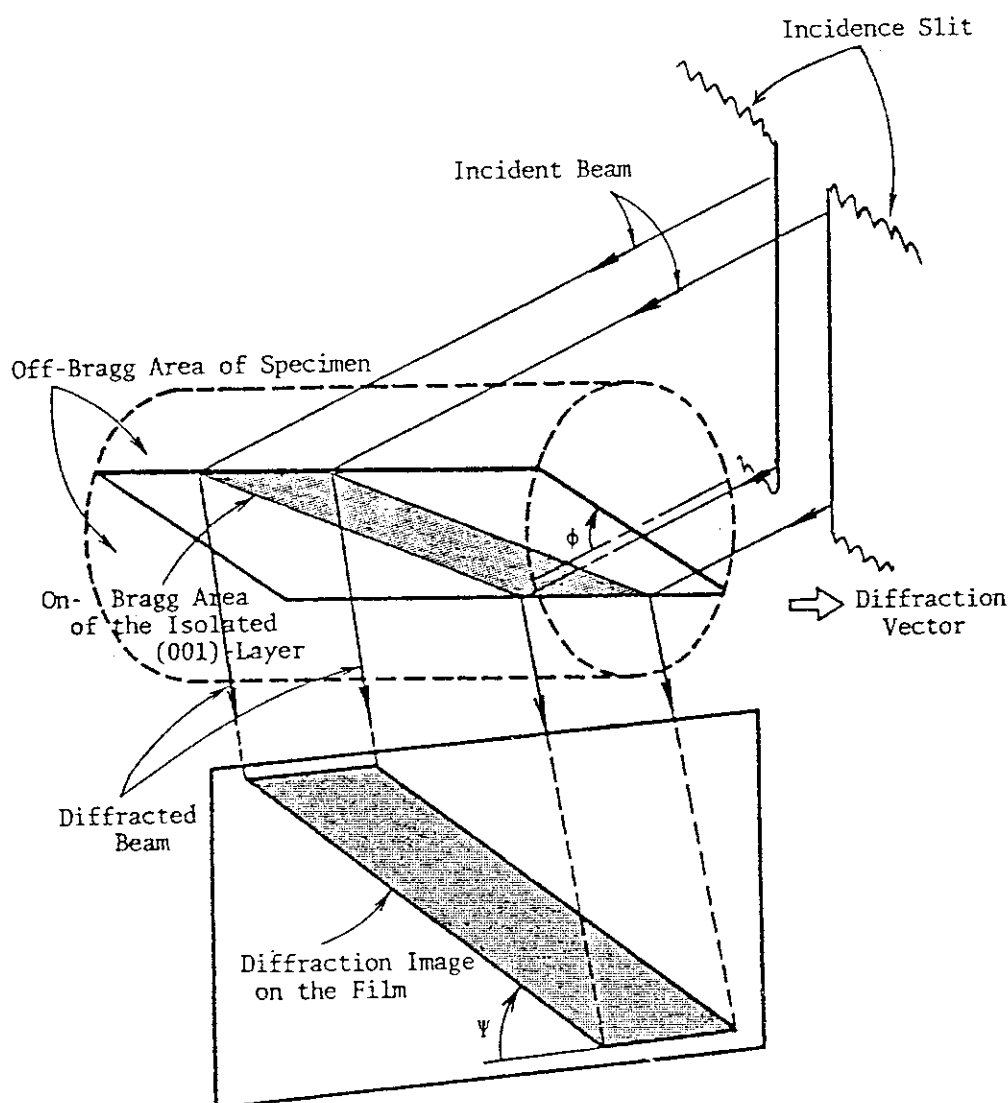


第2.4.8図 精コリメーター使用によるトポグラフ
前図のロッキングカーブの各々のピークで撮られたトポグラフ。(a)図は
ピークA, (b)図はピークBなどに対応する。露出は各々約3時間。

2.4.3 一枚の(001)層の観察

前項までの観察で、本試料が(001)に平行な層状下部組織を有するらしいことがわかった。本項では、他の層に比べて大きな角度ズレをもつ一枚の(001)層に着目して、それが確かに(001)に平行な層状板であることを確認する。

実験の方法は、まずロックングカーブ上の一つの小ピークD(第2.4.7図)に試料位置を設定する。試料は初め、(001)層が水平になるように、つまり入射平面になるようにしておき、その後順次第2.4.3図を得たのと同じようにして、結晶を成長軸[110]のまわりに $\Delta\phi = 15^\circ$ ずつの角度刻みで回転する。この様子は、第2.4.9図に示す通りである。第2.4.3図の場合とちがってここでは、入射スリットの幅は5mmに絞ってあるが、その理由は後に述べる。



第2.4.9図

次図のトポグラフの撮影条件の説明図。入射スリットを5mmに絞って、一層のみにon-Braggにした条件で、 $\phi = 0^\circ, 15^\circ, \dots$ と反射面内で試料を回転すると、トポグラフ上で傾角 ψ が現われる。

この実験で、各々の試料回転角 $\varphi = 0^\circ, 15^\circ, \dots$ において、ロックングカーブを作った後、小ピークDに固定してトポグラフを撮った。

さて、各々の試料回転角 φ の位置で撮ったトポグラフが第2.4.10図に示してある。この図から、

- ① 初め端視の条件 ($\varphi = 0$) では水平な一本の縞である像が、 φ の増大と共に次第に傾き(ψ)と広がり(w)とを示すようになること、および
 - ② その広がった像の中に、斜め方向の微細構造が見えること
- が、特徴的なこととしてはっきりわかる。

特に、①の事実を、第2.4.9図と対応づけて解析することにより、第2.4.8c, d 図や第2.4.10a 図の像が、本当に一枚の(001)層構造をもつことが確認される。すなわち、簡単な幾何学的考察から、試料回転角 φ とトポグラフ像の傾斜 ψ との間に、次の関係式が成り立つ。

$$\tan \psi = \tan \varphi / 2 \sin \theta_B \quad (2.4.1)$$

ただし、 θ_B は Bragg 角である。

この傾角 ψ の計算値と、各々のトポグラフ上での実測値とを比較すると、第2.4.1表のように、非常によく一致している。このことは、第2.4.1式を導くのに用いられた二つの仮定、

- 1) 回折条件が、運動学的理論の範囲であること、
- 2) 第2.4.10a 図の一本の縞模様が一枚の(001)層の端視像に対応しており、これが試料回転 φ で端視の条件から外れること

の正しさを示している。従って、本試料の下部組織が(001)に平行な層の積み重なりであるらしいという、前項までの観察結果が、この実験で確認されたことになる。なお、第2.4.9図から明らかのように、入射スリットが一定の狭い幅に設定してあるために、記録フィルムの範囲内で傾角 ψ が観察されること、仮に入射スリットが広ければ、フィルムには幅の広がった像が写るだけであろうことがわかる。

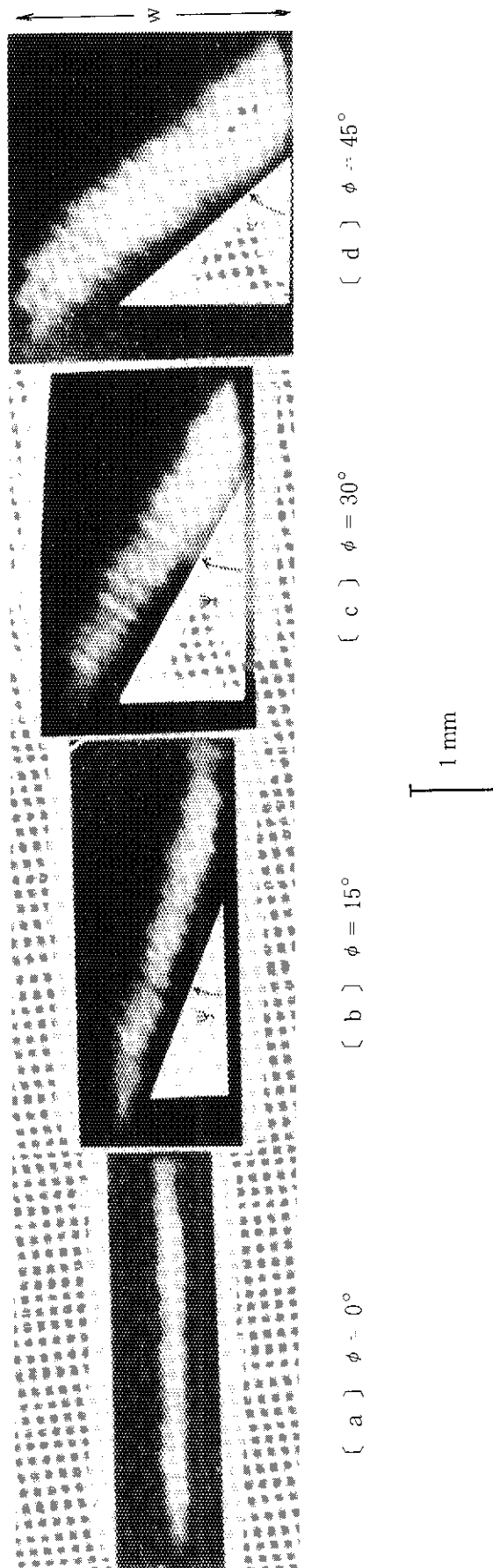
第2.4.1表 傾角 ψ の計算値と実測値の比較

$\psi \searrow \varphi =$	0°	15°	30°	45°
計 算 値 ^{*)}	0	17.0°	33.4°	48.8°
実 測 値	0	$\sim 17.0^\circ$	33.5°	$\sim 50.0^\circ$

*) 第2.4.1式にて計算した。ただし $\theta_B = 26^\circ$ である。

この実験ではさらに、傾いて広く写っている各々のトポグラフ像の中に、いずれも斜め方向の細かい構造が写っている。これは今までの観察(第2.4.6図など)に対応するものと思われるが、後に詳述される(2.4.6)。

以上の実験で、直径3cmの銅合金の下部組織を形成する(001)層の中の、厚さ約1mmの一枚の層のみに on-Bragg にし、その両側にある大部分の領域を off-Bragg にして、結果としてそこには物質が存在しないかのような条件で、一層のみの観察が行なわれた。これは、熱中性子の物質透過能が大きいことを活用した結果である。



第2.4.10図

前図で、 15° ずつ面内回転をして撮ったトポグラフ。

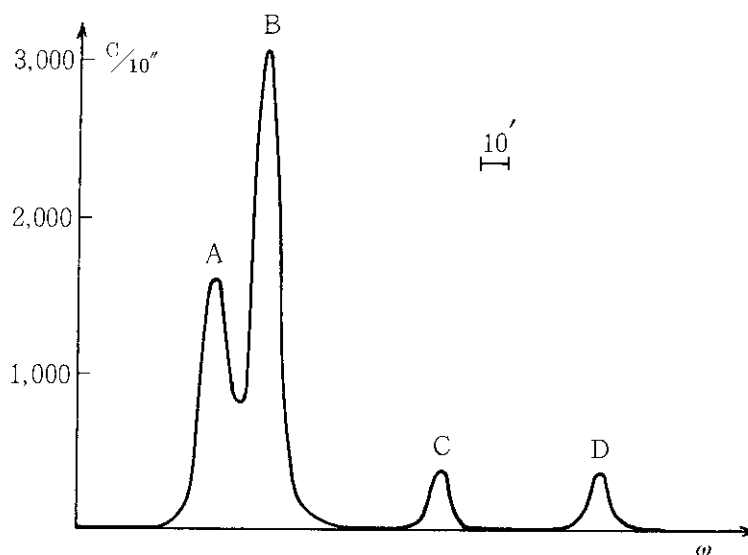
2.5' コリメーターとPGモノクロメーターの組み合わせで、 $1.12 \text{ \AA}$ の波長を使用。露出は (a) のみ 1 時間、他は 1.5 時間。

回転角 ϕ の増大と共に、傾角 ψ も増大し、微細構造も現われて来る。

2.4.4 小片試料による詳細観察

前項までの観察は、直径 3 cm、長さ 10 cm という作製したままの大型結晶について行なわれた。そのため、反射角などの実験条件にも依存するが、試料とフィルム間の距離は、ほぼ 2~3 cm であって、このため分解能は数百 μm であると思われる。この距離を短縮する一つの方法として、試料結晶の一部を切り出して小片を作った。それは、第 2.2.1 図に示されるように、試料下部に近い部分で、断面積は $15 \times 20 \text{ mm}^2$ 、厚さは一様でないが最大値は約 5 mm である。その結果、試料とフィルムの間の距離はおよそ 5 mm まで短縮することが可能となった。トポグラフの位置分解能は、この試料とフィルム間の距離に比例して悪くなる要素があるので、結果的に数十 μm にまで分解能は上ったものと思われる。

この小片試料を、これまでの多くの場合と同様に、成長方向に平行な (001) 層が水平になるように設置して作ったロックングカーブが、第 2.4.11 図に示してある。結果は、大型結晶の場合と同様な大小四つのピークを示している。なお、この時の使用波長は $1.18 \text{ \AA}$ で、**PG** モノクロ結晶と 2.5' コリメーターを使用し、反射面は (220) である。

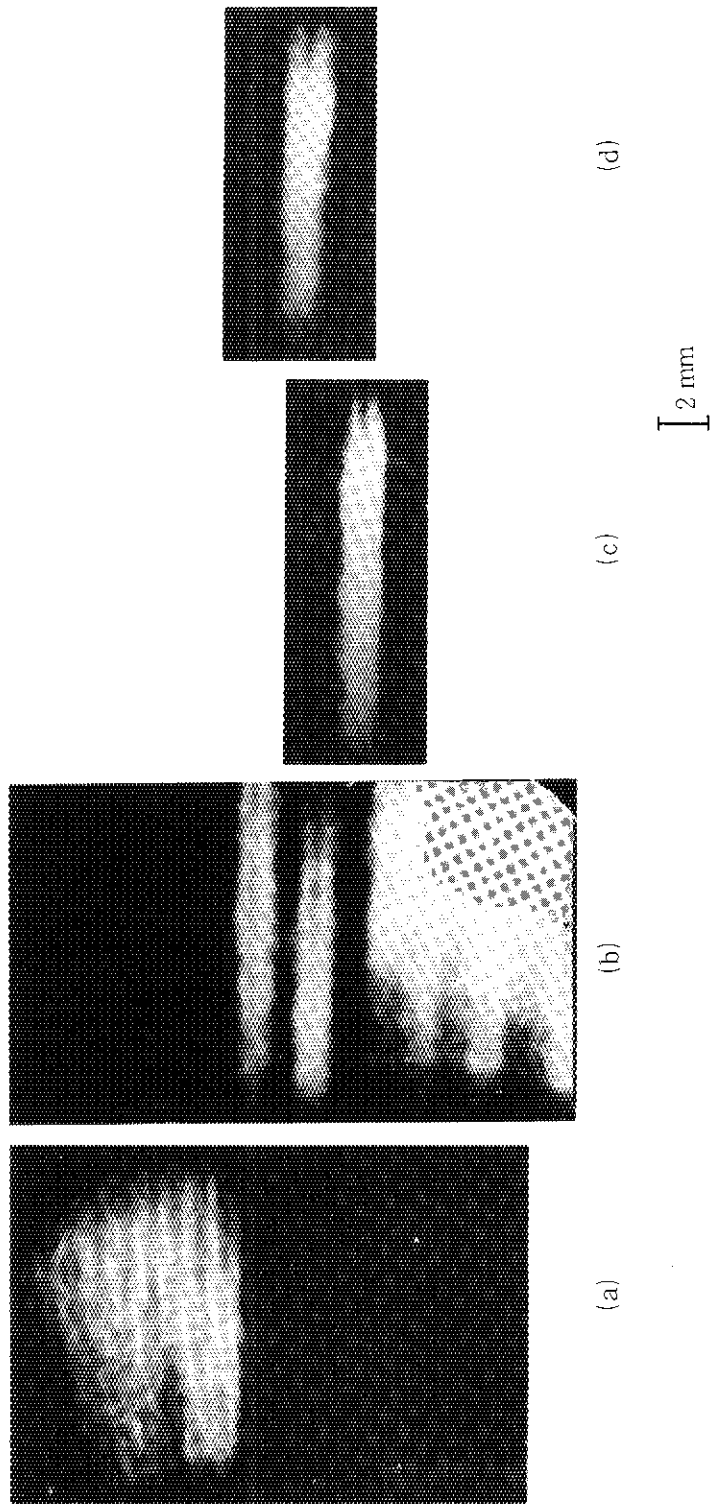


第 2.4.11 図

小片試料(第 2.2.1 図 b)のロックングカーブ。これは、as-grown 結晶のロックングカーブ(第 2.4.7 図)によく対応している。

ロックングカーブの各々のピーク位置で撮ったトポグラフが、第 2.4.12 図に掲げてある。これらも、大型試料のトポグラフ(第 2.4.8 図)によく対応して、それぞれのトポグラフは互いに相補的な性質を示している。

ただし、特徴的なことは、特に c 図や d 図で明らかのように、一つの層が二重像であることである。すなわち、第 2.4.8 図で一本の縞に見えたものが、ここでは縞の幅員方向に強-弱-強のコントラストを呈している。今まで、分解能が悪く分解できなかった三つの部分が試料とフィルムの間の距離が短縮されて分解能が上がり、よく分離されるようになったことの反映と思われる。かくして、一枚の (001) 層が大別して三つの部分からできていることが示唆される。一つは中心



第2.4.12図

前図の各ピーク位置により撮影されたトリグラフ。

それぞれの水平な縞が、二重像のコントラストを呈していることがわかる。

本文参照。

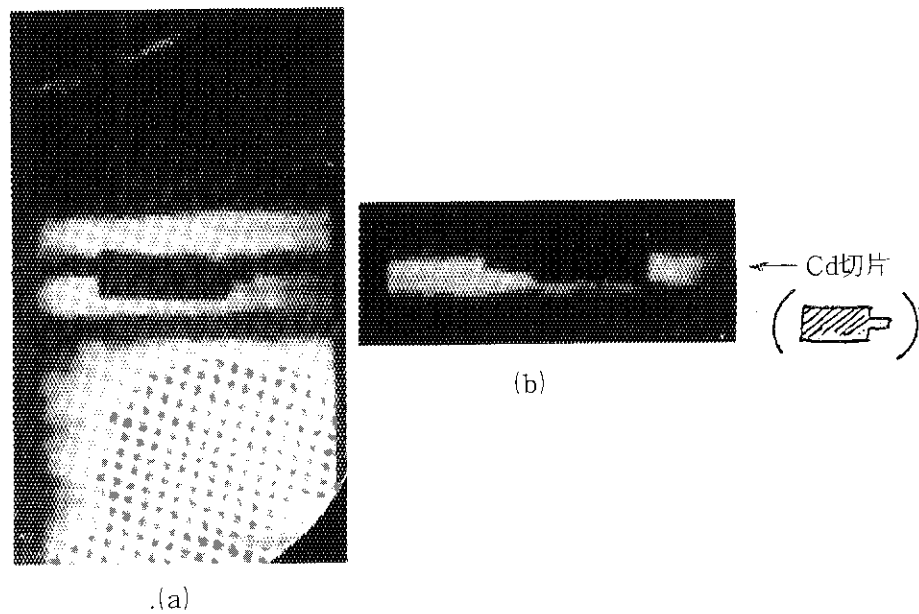
その他の撮影条件は、第2.4.8図と同じであるが、試料〜フィルム間の距離が約5 mmに短縮されたことにより分解能が向上している。

の層で、それはトポグラフ上でコントラストの弱い部分として、厚さ 0.1~0.2mm と見積られる。この中心層を、今後 Z 層と称する。この Z 層に比べ、その両側のコントラストの強い二つの部分は、厚さ 0.4~0.5mm である。

さらに注意深く第 2.4.12 図を観察することにより、一つの Z 軸に付随するコントラストの強い部分は、隣接する Z 層のそれと、大部分が重なり合うことがわかる。このことは、ビームの広がりによる像のボケの結果そう見えるのではなく、この層状下部組織の構造に起因する事実であることが後に明らかになる（第 2.4.6 項参照）。

次に、この強-弱-強のコントラストを呈する部分と表面縞の凹凸との対応を検証した。それは、試料の回折側表面の凹または凸の縞の部分に、Cd 板を刻んで作った指示小片を貼り付けて、第 2.4.12 図と同じ配置でトポグラフを撮ることで行なわれた。その結果、第 2.4.13 図に示すとおり、表面の凹の縞に対応する部分がトポグラフの弱いコントラストの部分（Z 層）に相当し、凸縞の部分が強いコントラストの部分に相当することがわかった。このことは、孤立した層のみでなく、A、B の大ピークに相当する一群の縞パターンの部分でも観察された。同時に、先に述べたように一つの凸縞が、その両側の凹縞（Z 層）に同時に付随することが確かめられた。

次項以後、以上の観察事実を基礎に、問題点を明らかにしつつ、この小片試料での観察について述べる。



第 2.4.13 図

試料表面の凹凸の縞と、トポグラフ上の二重像のコントラストの対応を検証する実験。試料結晶の出口側表面の一つの凸縞の部分に、小さいCd板製の切片を貼着してロッキングカーブのBのピーク（図(a)）と、Dのピーク位置（図b）でトポグラフを撮った。これより、

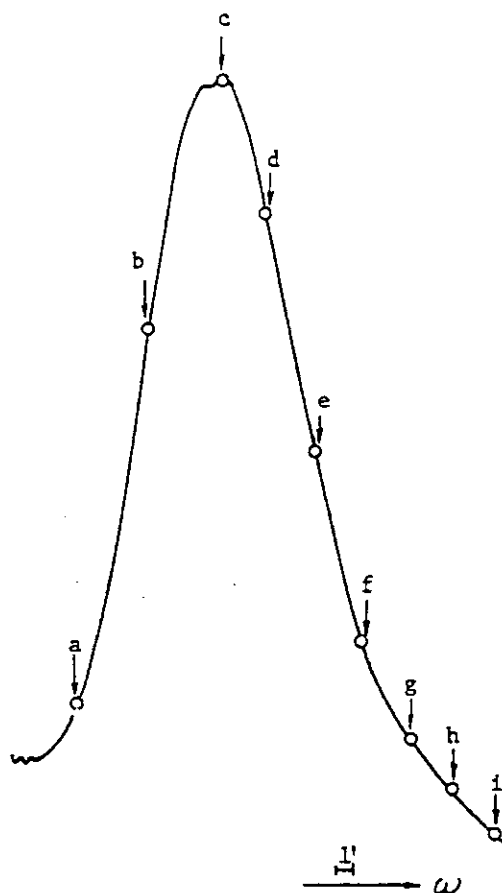
- ① 試料表面の凸縞のコントラストが大で凹縞のそれが小であること、さらに
- ② 一つの凸縞は、隣接する二つの(001)層のいずれにも帰属しているように見えること、が判明した。（本文参照）。

2.4.5 二重像の詳細観察

前項で見出された、一枚の(001)層が端視法で二重像を呈するという事実から、次のようないくつかの問題が生じる。

- ① 中心のコントラストの弱い部分(Z層)は、本当に実体があるのだろうか？いつ on-Bragg になるのだろうかという問題
- ② 一つの(001)層が二重像に見えるのは、どのような構造の反映であるのか？
- ③ 中心のZ層の両側のコントラストの強い部分が、隣接するZ層のそれと、空間的な位置を共有する(位置的に重複して見える)のはなぜか？

第①の疑問に対しては、次のようにして解明された。ロッキングカーブ上の一つの大ピークBのまわりで、入射角をわずかずつずらしてトポグラフを撮った($\Delta\omega$ -実験と略称する)。その様子をロッキングカーブの上で示したものが第2.4.14図である。これは、第2.4.11図の大ピークBの部分の拡大図に相当する。カーブ上の小さい矢印a~iで示されるように、ピーク位置から+方向(入射角の増大する方向)と-方向に、それぞれ3'ないし5'の刻みで入射角を外してある。なお、この時の試料設定の方位は、これまでの大部分の場合と同じく、(001)が入射平面になるようにしてあり、 $\Delta\omega$ は[001]軸のまわりの回転である。



第2.4.14図

一つのピークBの周辺で、3'~5'の角度で入射角をかえてトポグラフを撮る説明図。矢印a~iが、次図のトポグラフa~iを撮影した位置を示す。

第2.4.14図の矢印a～iで示される試料角で撮ったトポグラフが、第2.4.15図a～iに掲げてある。これらのトポグラフの像の見え方の、試料の方位角に依存した変化の様子を比較することにより、次のように指摘できる。

- 1) 最大ピーク位置(c図)では二重像であるが、
- 2) 試料への入射角を小さくする方向(負方向)に試料を外してゆくと(b図)、問題の二重性がより明瞭となる。更に外してゆくと(a図)、ついには二重像のまま off-Bragg となって像が写らなくなる。
- 3) 逆に、最大ピーク位置から正方向に外してゆくと、二重性が次第にボケてゆき(d, e, …図)、ついには一本の太い像となり二重性が消える(g図)。さらに外してゆくと、一本の像のまま off-Bragg となって像が消える。この時の試料方位角の on-Bragg 方位からのズレは約 $20'$ である。

このように、中心のZ層は常にコントラストが弱いのではなく、入射角が大きくなる方向(正方向)に試料角を外してゆくと、 $13'$ 程度外れた所で、その両側に付随する部分と同じ反射強度になることが、この実験から明らかにされた。もっとも、その時の反射強度は非常に弱い。

なお、第2.4.15図の実験だけでは、中心のZ層がその両側の部分に較べて、①格子定数が小さいのか、それとも②単に方位ズレがあるのか、が結論できない。このことは、次のようにして解明された。すなわち、試料結晶を第2.4.15図の場合の設定から、上下倒立させて実験した。

こうすると、②の方位ズレの場合は、ロッキングカーブ上で各ピーク位置の出方が、負側から正側へD, C, B, Aと逆転するのと同様に、負側 $13'$ の所で二重性のない太い一体像でトポグラフが得られるはずである。しかし、実際にピークBのまわりで同じ実験を行ってトポグラフを較べると、試料正立の場合と同じく、正側で二重性が消え一本像となった。従って、Z層はその両側の部分に較べて、格子定数が小さいということが、ブラッグ条件の式(第2.3.2式)を微分した形、

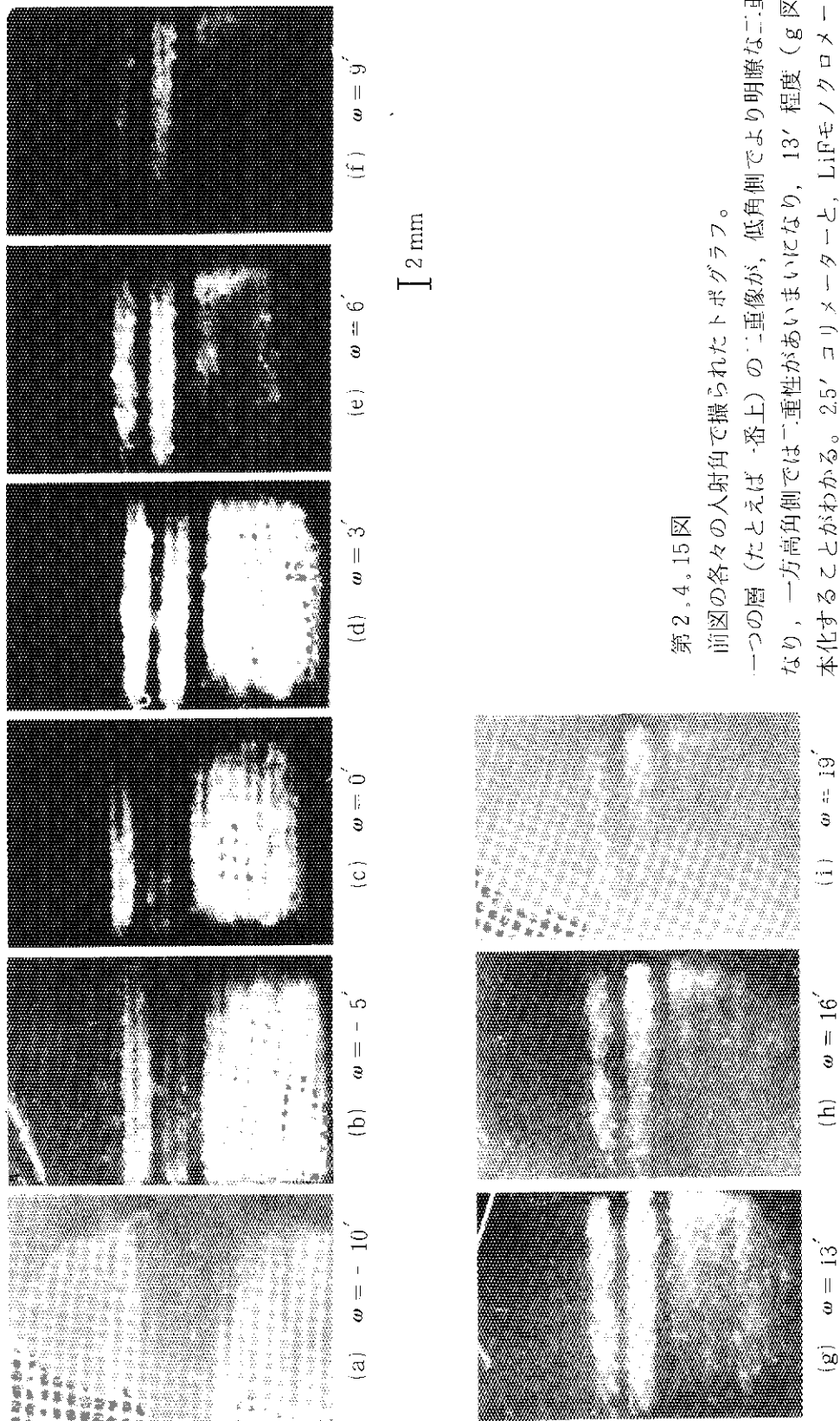
$$\Delta d/d = -\cot \theta \cdot \Delta \theta < 0 \quad (2.4.2)$$

を用いて結論される。*)

なお、上記の事実はピークBに限らず、他のピーク位置においても確認された。

これまでの観測事実をもとに、半定量的な模式図を示すと、第2.4.16図のようになる。図aは、縦軸に試料の〔001〕方向の位置を示し、中央部分がZ層に相当し、その上下の0.4～0.5mm厚の部分が、Z層に付随する部分に相当する。横軸は、ロッキングカーブの試料方位角 ω を意味しており、矢印の位置A, B……, Fは、第2.4.14図のその一部に相当する。従ってこの図は、一枚の(001)層を端視法で見た場合の、〔001〕方向の各部分が、試料方位角 ω に依存してどう変化しているかを、等高線で示すものである。図で、 w_1 はZ層の回折強度の半値幅を、 w_2 はZ層に付随する部分のそれを示す。また $\Delta \omega$ は、Z層とそれに付随する部分とでon-Bragg位置が異なることに対応するが、その値の詳細は第8節(2.8.4)で考察される。また、右端の太い矢印が連結されたものは、二重像の中心を示している。

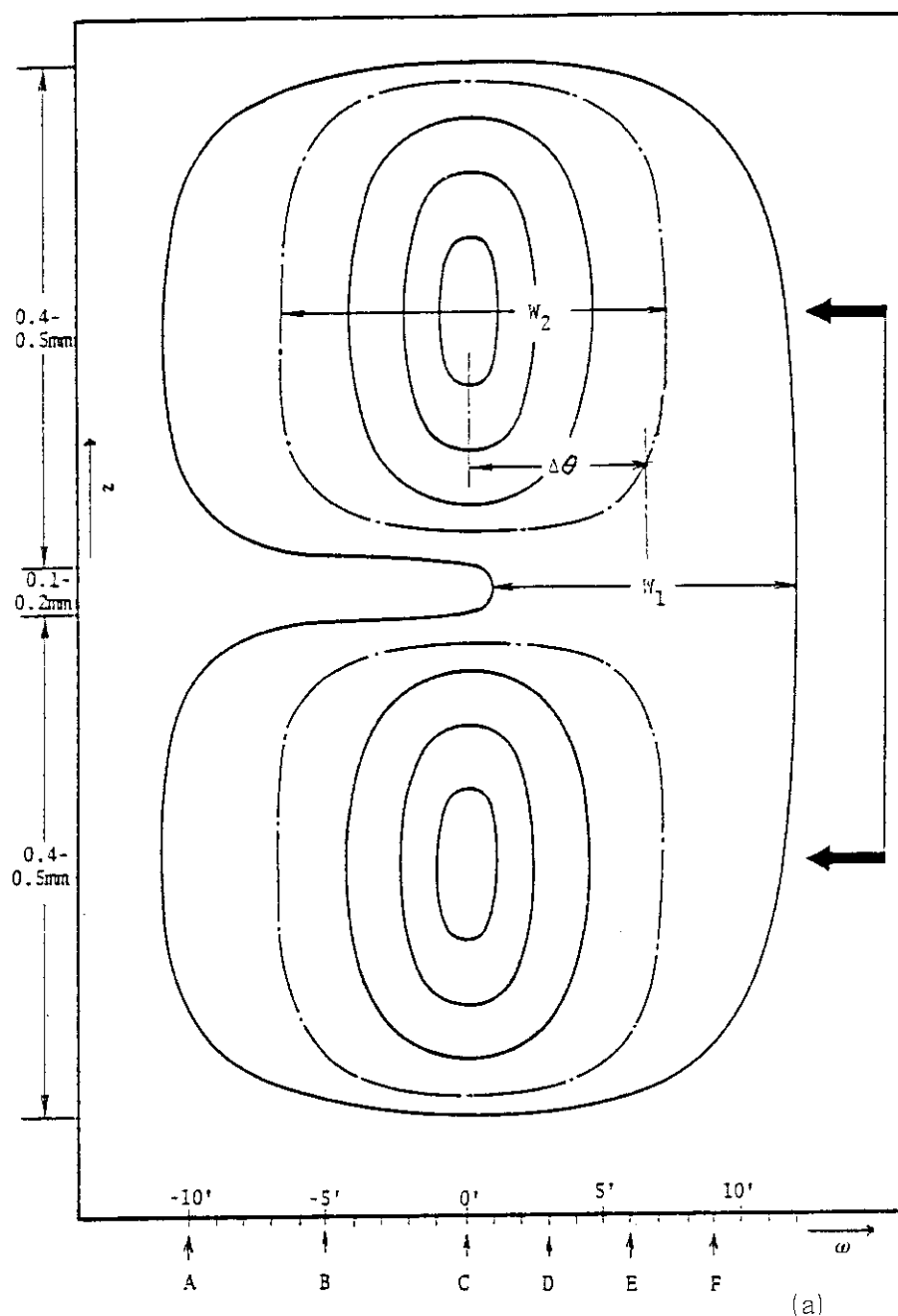
*) この第2.4.2式の $\Delta \theta$ がわかれば $\Delta d/d$ の値が見積られる。厳密には、第2.8.4項で考察されるように、両部分の回折曲線のピーク位置のちがひ($\Delta \omega$)が $\Delta \theta$ に相当する。いずれにしても、 $\Delta d/d \approx 10^{-3}$ 程度である。



第2.4.15図

前図の各々の入射角で撮られたトポグラフ。

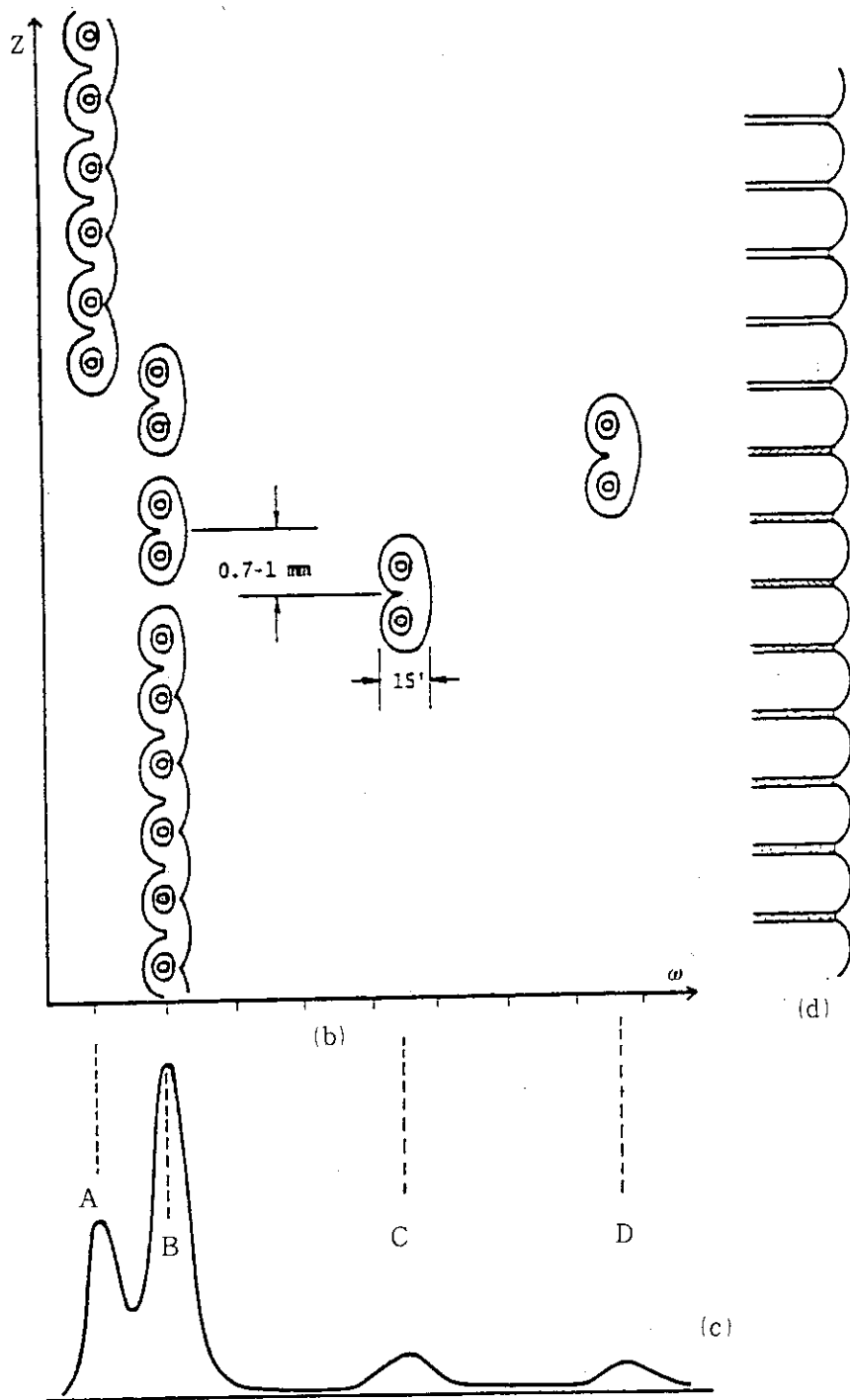
一つの層（たとえば一番上）の二重像が、低角側でより明瞭な二重像になり、一方高角側では二重性があいまいになり、13'程度（g図）で一本化する事がわかる。2.5' コリメーターと、LiFモノクロメーターの精密な組み合わせで、1.53 Åの波長を使用。露出は各々20時間。



第2.4.16図

(a) 一層の二重像のコントラストの変化(前図)を、横軸を試料回転角(ω)、縦軸を〔001〕方向の位置(z)として等強度曲線として表示した図。右端の二連結の矢印は強度の大きい部分を示し、二重像の原因となる。一点鎖線の曲線は、半値の位置を定性的に示している。また横軸のA~Fの位置は、第2.4.14図のa~fに対応し第2.4.15図のa~fのトポグラフが撮られた位置を示している。

(b) 図は、(a)と同じ考えの等強度曲線を、試料全体に普衍して描いたもの。参考のために、ロッキングカーブとの対応(c)、試料表面との対応(d)がつけてある。



a 図は一枚の (001) 層に対するものであるが、結晶全体にあてはめると b 図のようになる。a 図と同じく、縦軸は結晶の [001] 方向の位置を意味し、横軸は試料回転角 ω で通常のロッキングカーブ (c 図) の横軸と共通である。d 図に、結晶の表面の凹凸の縞模様との対応を掲げてある。ここで重要なことは、第 2.4.13 図で明らかにされているように、表面の凹縞が、中心の Z 層に対応しているということである。

b 図は、a 図のような等回折強度曲線を基本単位として、結晶全体の回折強度分布を説明する図が描けることを示している。その際第 2.4.12 図で指摘したように、Z 層に付随している二つの部分はそれぞれ隣接する Z 層のそれと空間的に重複するという事実が考慮されている。

以上のように、一つのピーク位置のまわりに微小角 ($3'$ ないし $5'$) で試料を回転し、それぞれの位置でトポグラフをとることで、0.1% 程度の格子定数のちがいを見出したことは重要なことである。しかも、領域的には厚さ 0.1~0.2mm の部分 (Z 層) と、厚さ 0.4~0.5mm の部分の比較であり、しかもそれぞれの回折強度が大きく異なる条件の下であり、通常の中性子回折実験では発見が困難であったろうと思われる。また、XDT では、個々のモザイク片の傾き分布やモザイク境界の強い歪みの反射強度に妨害されて、比較的巨視的な領域同士の格子定数の差異を見出すことは困難であったであろう (第 2.5.1 図参照)。

以上のことは、ロッキングカーブ (統計的な量) とトポグラフ (個別的な情報) とを有機的に結合させることによってより詳細な情報を得た、という意味で重要な意義をもつものと言える。

2.4.6 Z 層に付着する部分の直接観察

本項では、前項の冒頭で指摘した三つの問題点のうち、残された②と③について述べる。

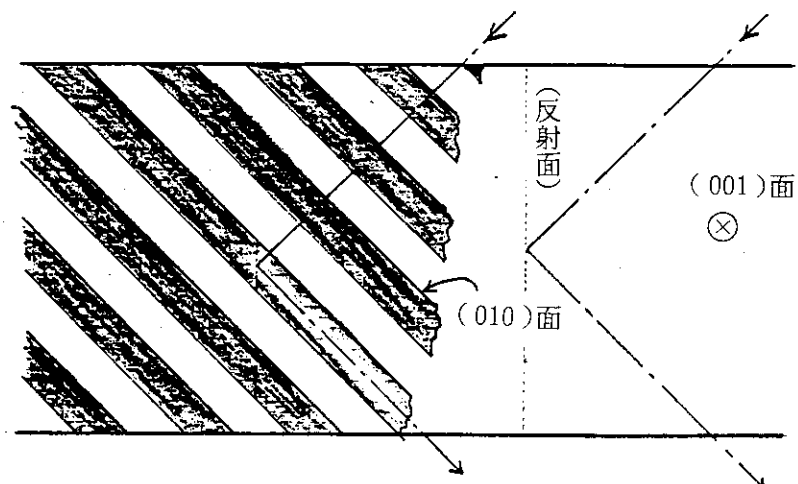
本実験の早くから、その存在の示唆されていた三種類の {001} 層のうち、前項までに確認されたのは、成長方向に平行な (001) 層だけである。従って残された (100) や (010) に平行なものが (001) 層の中央の Z 層に付随する部分に関係があるのではないか、という疑問が生ずる。

この点を明らかにするために、次のような条件で NDT を行った。まず、波長を約 $1.8\text{\AA}$ に選り、試料の 220 反射を用いる。このとき、ブラック角は 45° になる。従って、(001) 層を入射平面になるように試料を設置すると、ブラック角が 45° なので、入射線は一つの (100) 面に沿って進行し、回折線は残りの (010) 面に沿って進行することになる。従って、(010) に平行な層構造が存在すれば、それが端視像で見えることになる。このとき Z 層は端視像で見えているので、(001) 面と (010) 面とを同時に端視像で見るということになるので、この観察法を同時端視法と仮に名付ける。勿論、試料結晶を (001) 面内で 90° 回転すれば (010) 面の代わりに (100) 面が端視像で見られるはずである。これらの事情は、第 2.4.17 図に示してある。

なお、当然のことながら、この配置では $0.9\text{\AA}$ 波長に対する 440 反射の像も生じているが、端視像が見えるか否かについての事情は変わらないので問題ない。

さて、第 2.4.18 図が、同時端視法の条件でのロッキングカーブである。従来の場合に比べ、それぞれのピークの半値幅が広がっている (約 $24'$) ので、従来の大ピーク A と B とはよく分離されないが、角度ズレの大きい C と D とはよく分離されている。

三つのピーク位置 B, C, D で撮ったトポグラフが、第 2.4.19 図である。このトポグラフから明らかに次の事実が指摘できる。



第2.4.17図

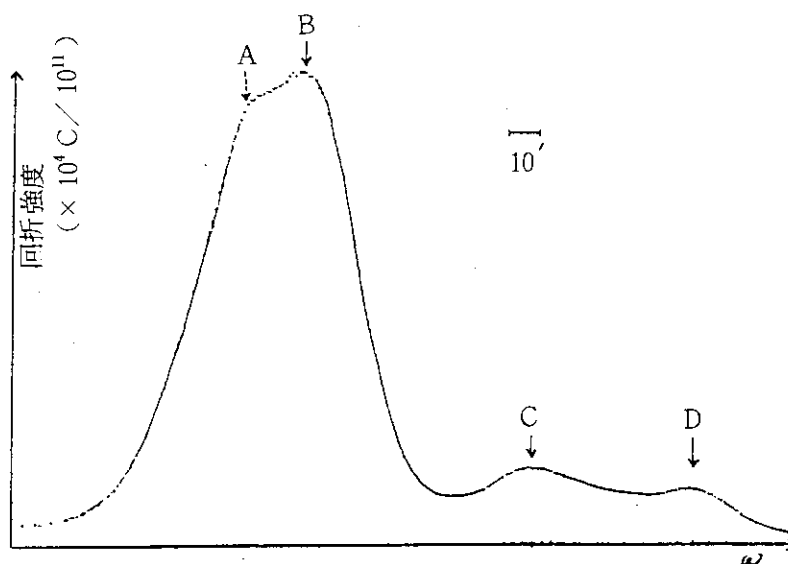
同時端視法の説明図。

本図は、一枚の(001)層を直上から見た図で、紙面が(001)面に相当する。

- ① 紙面を入射平面になるよう試料が設置してあるので、z層は端視の位置にあり、水平縞となる。
- ② 同時に、波長を $1.8 \text{ \AA}$ にして、220反射を行なわせると、ブラッグ角が約 45° となる。従って図で黒くぬりつぶされたような配置の板状構造(紙面に垂直)に対して、側面から入射した中性子波は、回折されて、この板に沿って進行する。かくして、この板状構造物も端視され、それは鉛直な縞に見えるはずである。

従って、①、②併せたトポグラフ像は、下駄の歯状になるはずである。

(第2.4.19図参照)



第2.4.18図

$\lambda = 1.8 \text{ \AA}$ による220反射のロッキングカーブ。第2.4.11図に対応するものであるが、半値幅が広がって、A、Bピークがよく分離されていない。ピークA、B、C、Dは、それぞれ第2.4.11図に対応するものである。

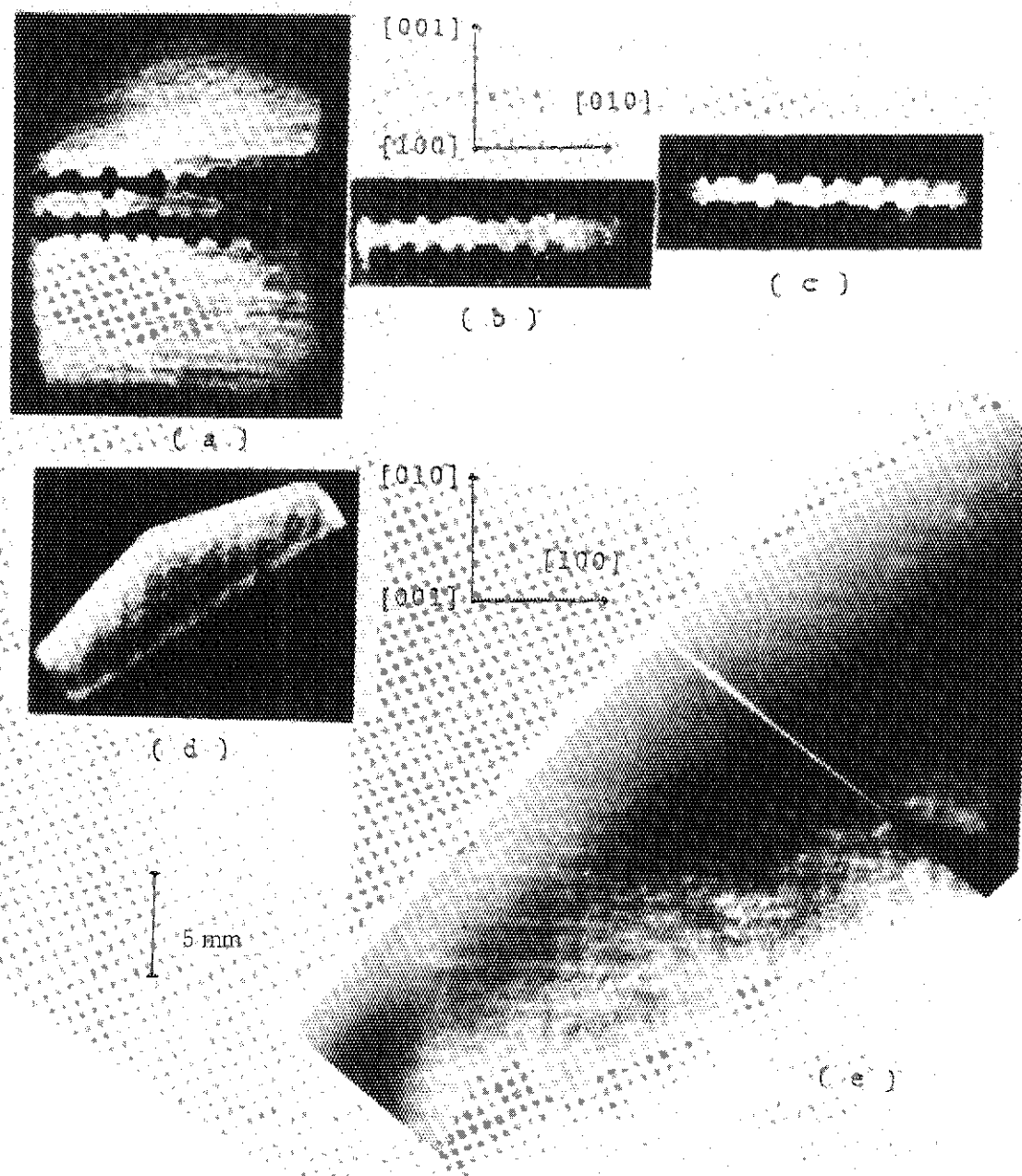
- 1) 従来と同じく、ロッキングカーブの各ピークに応じて相補的なトポグラフが得られる。
- 2) このとき、一枚の(001)層の中心のZ層に付随する部分は、予想通り端視像である。つまり連続しておらず周期的に下駄の歯のように存在する。これは、(010)に平行な層の端視像に相当するので、以後Y板と称する。同時に(100)に平行な層、X板も存在すると思われる。
- 3) 各(001)層の相補性は、このY板についても言える。つまり、凹凸の細かいところまで含めて、b図やc図の端視像に相当する部分がちょうど、a図で欠落している。つまり、各々の(001)層は厳密に相補的であると言える。
- 4) 一つのZ層に付随するY板は、Z層の両面に対称的に付着しており、ほぼ一定間隔で周期的に存在する。
- 5) たとえばc図の右の部分のように、必ずしも下駄の歯のような端視像に見えない所は、おそらくX板が存在するものと思われる。

上の第3の事実は、前項の冒頭の③で指摘した疑問を解明するものである。つまり、隣接する二板のZ層の間の領域は、それぞれのZ層の表面に付着するY板(またはX板)が、交互に存在して分け合っている。従って、第2.4.19図のように同時端視法で[100]方向に投影して見ると、各々のY板は分離されて見えるが、第2.4.15図などのように同時端視でない条件では、同一空間を異なるZ層に付随する部分が共有するように見えただけである。

第2.4.19d図は、この小片試料の(001)面を鉛直にして、(010)面を入射平面にして、同じく $1.8\text{\AA}$ の波長202反射で撮ったトポグラフである。紙面が(001)に平行であり、鉛直方向に見える縞模様が、(010)に平行なY板を端視像で見ているものである。この小片試料ではこの図のようにY板が多く、X板は殆んど認められないが、それは偶然のことで、水平縞として見えるはずのX板も同等の頻度で存在すると言える。すなわち、e図は、もとの大型試料をd図の条件と同じく(001)面を鉛直に立てて撮った同時端視法によるトポグラフであるが、縦方向の縞(Y板)と横方向の縞(X板)とが、全体としてはほぼ同等の頻度で見えている。なおe図は、入射スリットの幅を約1mmに絞って、一枚の(001)層を見ている。

以上のように、同時端視法の利用で、一枚の(001)層の中心のZ層の両面に付着する微細構造(Y板、X板)が明らかにされた。そこでは、一定の反射面の条件を保ちつつ、観察に都合のよい方向に回折波をとり出して投影図を得るために、中性子の波長が連続分布であるという、一般には短所として扱われる特徴が、むしろ長所として活用された例である。

一般に、面状あるいは層状構造の観察には、端視法が有力な技法であるが、二種類の層状構造を同時に端視像で見るには、特性X線を用いるXDTでは一般には実現が困難である。



第2.4.19図

同時端視法によるトポグラフ。

(a), (b), (c)は、小片試料のロッキングカーブ（前図）の三つのピーク B, C, D で撮った、 $1.8 \text{ \AA}$ 波長による 220 反射のトポグラフ。下駄の歯状の凹凸まで含めて相補的である。

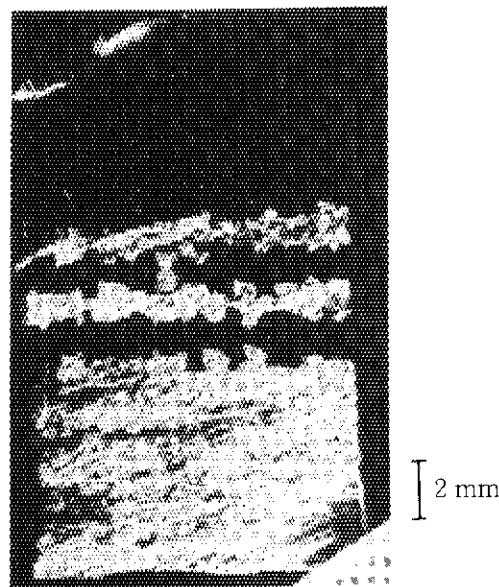
(d)は同じく小片試料の、(e)は as-grown の大型試料の、いずれも 202 反射のトポグラフ。この配置では X 板と Y 板が同時に端視されていて、格子状に見える。なお e 図は、入射スリットの幅約 1 mm のセクショントポグラフである。

第2.5節 XDT像との比較

今までのNDT観察と比べるため、NDTに用いた小片試料をXDT（表面反射法）で観察した。特に切断面をていねいに化学腐食した結晶表面を用いた。使用X線はCu-K α 線（波長 1.54 Å）で、220反射による表面反射法（ブラッグの場合）を用いた。

ロッキングカーブは、NDTの場合（第2.4.11図）と同じく四つのピークが現われたが、K α_1 とK α_2 のピークは分離されなかった。これは、モザイク性と歪みが強いことの反映であると解釈される。

得られたXDTの一例が第2.5.1図に示してあるが、これは透過法（ラウエの場合）で撮られNDT（第2.4.13図b）によく対応した層構造を呈している。上方に二層が孤立しており、下方には一群の層がある。



第2.5.1図 小片試料のX線回析トポグラフ

Cu-K α 線使用で、表面反射法による。これは、第2.4.11図のピークBで撮ったことに相当するが、NDTによる第2.4.12b図と同様に、下方の層群の上に二層が孤立して存在すること、各孤立層は下駄歯状の凹凸を有すること（第2.4.19図a参照）など、巨視的にはNDT像と対応する。しかし、画面は、モザイクブロック境界の像と思われる細かい線状の像でできている。ブロック境界に集中した歪みによる像と思われる。

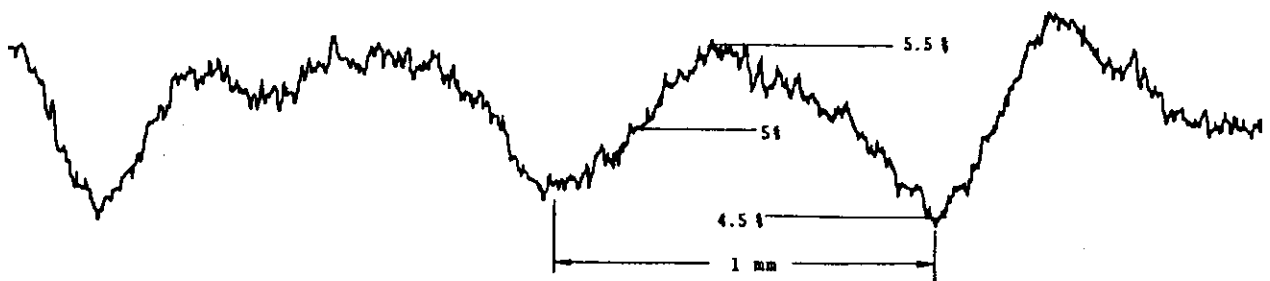
このXDTで特徴的なことは、それぞれの(001)層の二重像の性質があまり見られず、細かい線画のように粒界らしき部分のみが強く見えていることである。NDTに比べXDTでは、極めて表面に近い部分のみからの反射であり、しかもモザイク粒界に集中している歪み場が非常に強い反射強度を生じており、一方NDTでは、透過法により試料の全体積中の多くのモザイク片の統計的な寄与が反映している、という事情のちがいのためであろう。

第 2.6 節 試料中の Ge 濃度分布の測定

試料中の Ge 原子濃度分布を X 線マイクロアナライザー (XMA) で測定した。^{*}用いた電子線束は直径約 $100\ \mu\text{m}$ である。

試料は第 2.2.1 図 b の小片試料を切り出した際の別の小片である。結晶表面の凹凸の影響を避けるため、切断した平面をていねいに化学腐食して分析した。その際、この平面上の場所と結晶表面の凹凸とは、よく対応がとれている。電子線束は $\{001\}$ 方向に走査されたが、このことは、結晶の成長開始端から約 $3\ \text{cm}$ の所で、成長軸に垂直な方向に、各々の (001) 層から次の (001) 層への Ge 濃度分布を測定することに相当する。

結果は第 2.6.1 図に示した。これから、Ge 濃度は最大約 5.5% 、最小約 4.5% の範囲で周期的に分布しており、その周期は (001) 層の周期によく一致していることがわかる。また濃度最小を示す場所は、結晶表面の凹部分、つまり一枚の (001) 層の中心の Z 層に相当する部分であり、他方濃度最大を示すのは、これらの Z 層に挟まれた部分つまり、X 板や Y 板に相当する部分であった。



第 2.6.1 図 XMA による分析プロファイル

直径 $100\ \mu$ の電子線を試料表面に当て、 $\{001\}$ 方向に走査して Ge の特性 X 線の強度を測定したものである。表面縞との対応により、Z 層部分が最低濃度 (4.5%)、X 板や Y 板の部分が最高濃度 (5.5%) に対応することが判明した。

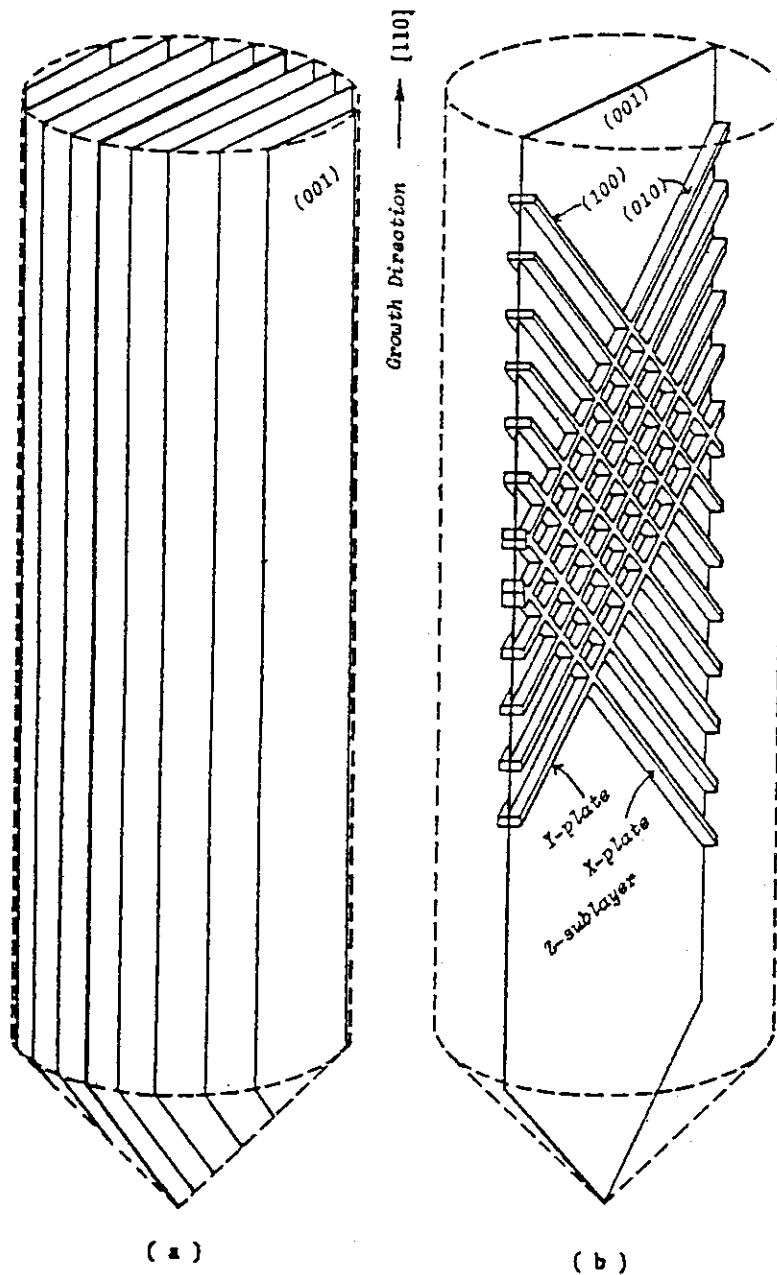
*) XMA 実験は、日本電子 K. K. の好意で JX-50A が使用された。

第 2.7 節 Cu-5% Ge 試料の下部組織のモデル

本章における前項までの観察結果をもとにして、Cu-5% Ge 単結晶の下部組織について、次のような構造モデルを記述することができる。

- (1) 本結晶はモザイク性に富んでいるが、巨視的な下部組織としては、成長方向〔110〕に平行な(001)層を構成単位とする層状の積み重なりでできている。その様子を模式的に表現すると、第 2.7.1 図 a のようになる。
 - (2) 各々の(001)層は結晶全体にわたって成長しており、それぞれの間隔、厚さはいずれもおよそ 1 mm である。また、お互いの方位は必ずしも全部そろっておらず、たとえば第 2.4.7 図のロッキングカーブに見られるように、〔001〕軸のまわりに最大 2.5° 程度の角度ズレが存在する。
 - (3) それぞれの(001)層は、更に多重構造をもっている。中心には、厚さ 0.1 ~ 0.2 mm の(001)に平行な層(Z 層)があり、その両側の面に対称的に(100)、(010)に平行板(X 板、Y 板)が、格子状に付着している(第 2.7.1 図 b)。
 - (4) 上記の X 板や Y 板は、部分的に、多少の不規則性があるが、結晶全体としては同等な頻度で存在していると見られる。各々の X 板や Y 板は、Z 層からの高さ、板の厚さ、各板間の空隙はいずれも 0.4 ~ 0.5 mm である。
 - (5) 一つの Z 層に付着する X 板や Y 板相互の間の空隙は、隣接する Z 層に付着する X 板や Y 板でちょうど充たされている。
 - (6) 結晶表面に見られる三種類の凹凸の縞との関係では、Z 層が成長方向に平行な凹縞-(001)面の跡-に対応し、これに直交する二種類の凸縞は X 板や Y 板を連ねてできるものに相当する。
 - (7) Ge 濃度分布との対応も明瞭で、Z 層は 4.5 % で最低、X 板、Y 板は 5.5 % で最大濃度の場所に対応している。
 - (8) 格子定数の点でも、Z 層と X 板、Y 板の間に相違が見られ、X 板、Y 板の部分では Z 層より相対的に約 0.1 % 程度、格子定数大きい。
 - (9) 試料角を少しずつ変えて撮った一連のトポグラフにおいて、像の見え方を観察すると、X 板、Y 板のロッキングカーブの半値幅の方が、Z 層のそれより大きいと思われる。
- このように、直径 3 cm におよぶ大型合金結晶の下部組織が、NDT を主な手段とする観察の結果、ほぼ完全に解明されたと言える。

次節においては、このようなモデルについて、回折論的にも納得できる結果が得られることを特に第 2.4.15 図の二重像の挙動に例をとって記述する。



第2.7.1図 試料結晶の下部組織のモデル

(a)は、本研究に用いられた結晶が、成長軸 $[110]$ に平行な (001) の指数をもつ層状下部組織を有することを示し、

(b)図は、各々の (001) 層が、中心のうすい層 (Z 層) の両表面に (100) や (010) の指数をもつ板状の微細構造 (X 板, Y 板) が付着する構造であることを示す。

第 2.8 節 二次消衰理論による像コントラストの解釈

2.8.1 はじめに

前節までに、本試料の NDT 観察の様子と、それから導かれる下部組織のモデルを記述した。本節では、本章 7 節で述べたモデルに基づいて行った回折論的な計算結果が、実験事実とよく符合することを示す。このことが逆に、モデルの妥当性を支持すると考えられる。特に第 2.4.15 図の二重像の出現とその挙動が、よく説明されることを示す。

そのために、まず中性子径路の幾何学的な考察を行い、積分強度の計算式を導出する (2.8.2 項)。

次に 2.8.3 項で、本研究の実験条件が、種々の回折理論のうち、運動学理論や動力学理論でなく、二次消衰理論を適用することが妥当であることを示し、この理論によるモノクロメーター結晶や試料結晶における反射能の表式を用意する。

最後に計算結果と実験とを比較検討し、結論を述べる。

2.8.2 中性子光路の解析

第 2.8.1 図に本実験における中性子線束の径路を示す。図で、C はコリメーター、M はモノクロメーター結晶、S は試料結晶、D はカウンターである (第 2.3.1 図参照)。ここでは、S、M においてそれぞれモザイク性が仮定されており、図中の破線はある特定のモザイク片の方位を示している。これに対して、結晶としての平均的方位は S、M それぞれ実線で示してある。C、M、S、D を結ぶ一点鎖線は、中性子線束の主要な径路 (C の中心軸に平行で、M や S の平均的方位に on-Bragg である) を示す。なお、S における二点鎖線は、試料結晶の (平均的) 方位を ω だけ off-Bragg にした場合を示しており、これはロッキングカーブを作る際の考察に用いられる。

ϕ_1 は中性子線束の主要径路からの外れ角、 η_j は平均方位からのモザイク片の傾き角、 θ_m 、 θ_s はそれぞれブラッグ角であるとする。

このような配置において、D に入る中性子積分反射強度は

$$I(\omega) = \iint d\phi_1 d\eta_m C(\phi_1) \cdot M(\eta_m) \cdot S(\eta_s) \quad (2.8.1)$$

で与えられる。ただし

$C(\phi_1) = \exp(-4 \ln 2 \phi_1^2 / \alpha^2)$: コリメーターの中心軸方向から ϕ_1 外れたビームの、コリメーター透過確率。これは、純幾何学的には三角分布であるが、全反射線を考慮すると、ガウス型の分布で近似してよいとされている。²¹⁸

$M(\eta_m)$: 平均波長 λ_0 に関して on-Bragg である平均的反射位置 (図の実線) から、角度 η_m だけ外れた場合のモノクロメーター結晶の反射能である。

$S(\eta_s)$: 同じく、平均位置から η_s だけ傾いた場合の試料結晶の反射能である。

幾何光学的な考察により、各々の角度パラメーターには次のような関係がある；

1) モノクロ結晶における、問題とするモザイク片への入射角と反射角が等しいことから

$$\theta_m + \phi_1 + \eta_m = \theta_m - \eta_m + \phi_2 \quad (2.8.2)$$

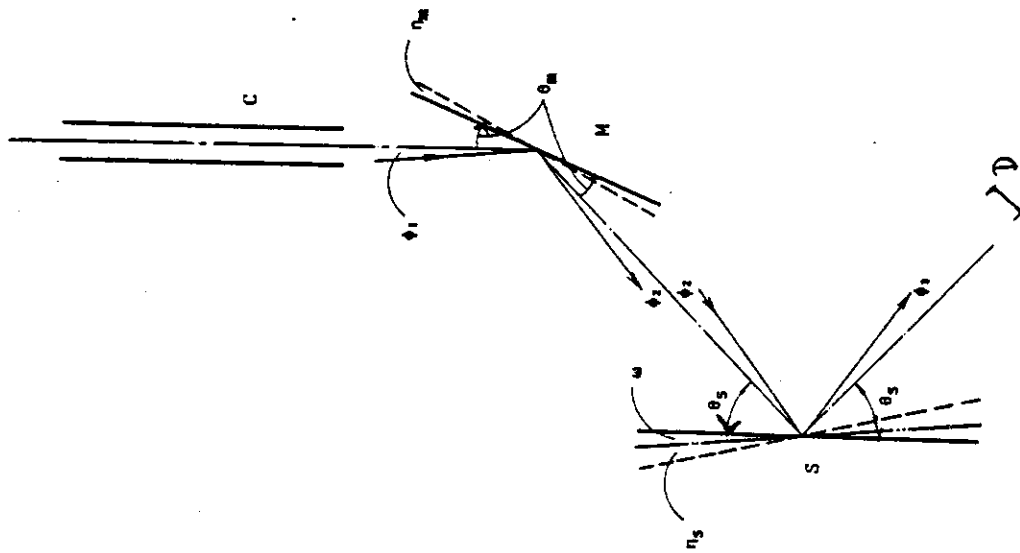
第2.8.1図 計算に用いられる角度パラメーター

- : 中心の径路 ($\phi_1 = \eta_m = \omega = 0$ で, λ_0 に対して),
 — : 試料を ω だけ回転させた時の一つの中性子回路,
 — : 波長 λ_0 に対して最大の回折強度を呈するモノクロメーター(M)や試料(S)の結晶位置,
 - - - : モノクロメーターや試料中の, 個々のモザイク片の傾き,
 - - - : 最大回折強度を呈する位置から, 試料角を ω だけ外した位置を意味する,

ただし,

- ϕ_i : λ_0 の波長の中性子が最大回折強度を生ずるような, 中心を通る径路からの個々の中性子径路の外れ ($i = 1, 2, 3$),
 η_i : モノクロメーター ($i = m$) や試料 ($i = s$) における個々のモザイク片の, 平均的な方位からの外れを表わす角度パラメーター,
 ω : 波長 λ_0 に対する試料の on-Bragg 位置からの外れを表わすパラメーター,
 θ_i : 波長 λ_0 に対するモノクロメーター ($i = m$) や試料 ($i = s$) のブラッグ角。

C, M, S : それぞれコレリメーター, モノクロメーター, 試料結晶を意味する (第2.6.1図参照)。



ただし、 θ_m はモノクロメーター結晶の Bragg 角である。

2) 同じく試料結晶における考察から

$$\theta_s + \phi_2 + \eta_s + \omega = \theta_s - \eta_s - \omega + \phi_3 \quad (2.8.3)$$

ただし、 θ_s は試料結晶の Bragg 角である。

3) 両者における反射波長が等しい条件より

$$\lambda = 2d_m \sin(\theta_m + \phi_1 + \eta_m) = 2d_s \sin(\theta_s - \eta_s - \omega + \phi_3) \quad (2.8.4)$$

ただし、 d_m, d_s はモノクロメーター結晶、試料結晶の反射面の面間隔である。

以上の関係式を整理することにより、(2.8.1) 式における変数を一つ減らす次の関係が得られる：

$$\eta_s = (a-1) \cdot \phi_1 + (a-2) \cdot \eta_m - \omega \quad (2.8.5)$$

ただし

$$a \equiv \tan \theta_m / \tan \theta_s \quad (2.8.6)$$

かくして、(2.8.1) 式の被積分関数の中の三変数のうち、 η_s が他の変数 ϕ_1, η_m で表現されたので、この二重積分は遂行できる。^{*})

なお、Caglioti らもすでに、ここに述べたものと同様の考察を行ない、(2.8.5) 式を得ている。²¹⁹ 彼らはさらに、(2.8.1) 式に相当する積分を行なっているが、その際の計算では、 $M(\eta_m)$ や $S(\eta_s)$ としてガウス型のモザイク分布 $W_i(\eta_i)$ ($i = m, s$) (後述の 2.8.12 式参照¹²⁶) のものを用いており、それは理想的に不完全な結晶に運動学的回折理論を適用する立場である。

本研究ではしかし、次項に述べるような根拠により、二次消衰効果を考慮した取扱いをする。^{**)}

2.8.3 二次消衰効果の導入

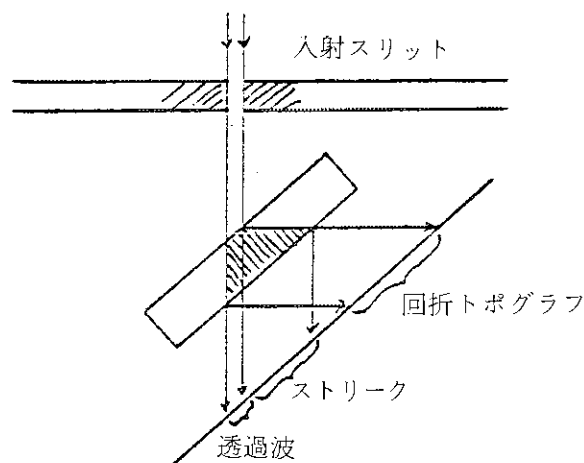
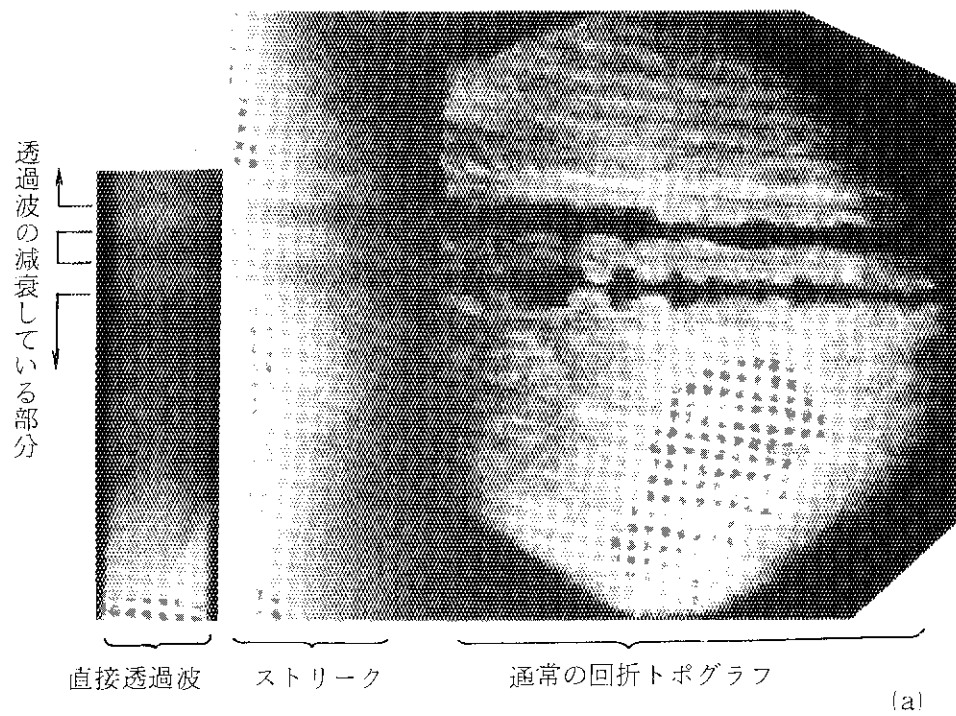
本章の実験においては、次のような理由から、二次消衰理論を適用するのが妥当であると言える。

① 第 2.8.2 図に示すように、本実験の条件は運動学的な仮定の範囲を越えていることが一つの理由である。すなわち、2.8.2 a 図は、小片試料を透過した直接波と回折波とを同一のフィルムに写した写真であり、その配置図は b 図に示してある。a 図の右の図は、通常の回折トポグラフで、ただ従来のそれと異なり b 図に示すように、一枚のフィルムに透過波 (a 図の左端) と回折波 (右端) を同時に受けるように配置したため、回折波を斜めに受けている。特徴的なことは、a 図の回折トポグラフの各々の (001) 層の像 (水平縞) に対応して、透過波の一部が回折線方向に、入射スリットの制限範囲を越えてストリークを生じていることである。このことは、いわゆるボルマン扇の中で回折波と透過波とが多重散乱を生じていることを示唆して (b 図の斜線部)、運動学的な仮定が成り立たないことを示している。なお、同様に直接波に

^{*}) なお、(2.8.1) 式中の $M(\eta_m)$ 、 $S(\eta_s)$ は、次項で具体的に与えられる。

^{**)} このような議論は、すでに国富らが一結晶 (モノクロメーター結晶のみ) の場合について行っている。

本研究では、それを二結晶の場合について行う。



第2.8.2図

運動学的な仮定からの外れを示すトポグラフ(a)と、それが撮影された配置図(b)。

(a)図の右側の写真は、第2.4.19 a図と全く同じ条件で撮られたトポグラフであるが、(b)に示すようにフィルムが回折線に対して約 45° 傾いているので、横方向に $\sqrt{2}$ 倍だけ拡大されて写っている。同じく(a)の左側には、入射スリットの影の部分にまで広がったストリーク(b図参照)が写り、同時に透過波の中に強度の減少が見られる。なお、透過波像の部分だけは露出時間が異っている。本文参照。

よるトポグラフでも、対応する部分での透過波の減衰が見られる。

- ② 他方で、本研究に用いた試料結晶は、第2節で述べたように、モザイク性に富み、また格子歪みも大きいと思われる。従って、動力学的な理論を適用することは不適當であろう。

以上のように、本試料に対しては現実的な結晶によく適用される二次消衰回折理論を用いることが妥当であると考えられる。¹²⁶ この理論の考え方は、結晶にモザイク構造という不完全性を仮定し、個々のモザイク片は動力学的効果を考える（一次消衰効果）必要がない程度に小さいが、それらのモザイク片の相互の傾きが小さい（理想不完全でない）ので、結晶の深い所にあるモザイク片に入射する線束は、浅い所にある方位の近いモザイク片で回折した分だけ減衰している、というものである。

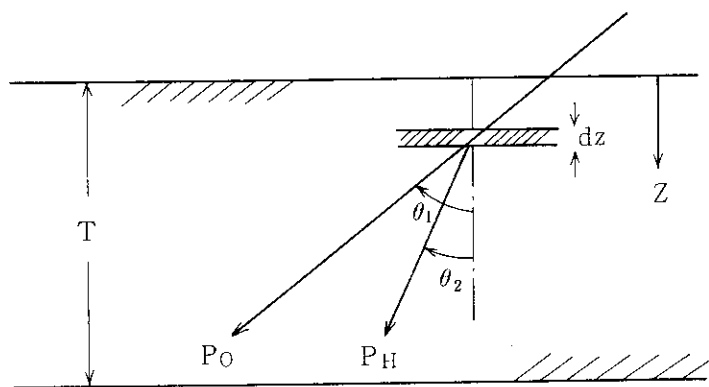
二次消衰効果の回折理論は Darwin^{221,222}によって与えられている。今、入射方向のエネルギー流を結晶の厚さ Z の関数として $P_O(Z)$ 、回折線のそれを $P_H(Z)$ とするとき、 $P_O(Z)$ が結晶中の厚さ dz の部分で、線吸収率 μ_0 、回折能 $G = Q \cdot W(\nu)$ によって失う分と、 $P_H(Z)$ の方から回折されて入り込んで来る分との間に、次の関係が成立している（第2.8.3図）。

$$\frac{dP_O(Z)}{dZ} = -\frac{\mu_0 + G}{\cos \theta_1} P_O(Z) + \frac{G}{\cos \theta_2} P_H(Z) \quad (2.8.7)$$

同様に、 $P_H(Z)$ に関しても次式が成立する。

$$\pm \frac{dP_H(Z)}{dZ} = \frac{G}{\cos \theta_1} P_O(Z) - \frac{\mu_0 + G}{\cos \theta_2} P_H(Z) \quad (2.8.8)$$

ただし、 $+$ はラウエの場合（透過法）、 $-$ はブラッグの場合（反射法）に対応する。



第2.8.3図

第2.8.7, 8の方程式の根拠となる図。特に、試料の実効的な厚さが、 $1/\cos \theta_1$ 、 $1/\cos \theta_2$ と変形されることを示す。

Darwinはすでに、上記二式の解を $P_H(Z)/P_O(O)$ (反射法の場合 $Z=O$, 透過法の場合 $Z=T$) の形で与えており、我々の (2.8.1) 式中の $M(\eta_m)$ や $S(\eta_s)$ は、それらの解の中の一つに、それぞれ該当するものがある。まず、モノクロメーター結晶の反射能 $M(\eta_m)$ は、対称的な反射法の場合に該当し、次式で与えられる。²²²

$$M(\eta_m) = (\mu_m + G_m - \sqrt{(\mu_m + G_m)^2 - G_m^2}) / G_m \quad (2.8.9)$$

ただし¹²²

$$G_m \equiv G_m(\eta_m) = Q_m \cdot W_m(\eta_m) \quad (2.8.10)$$

ここで Q_m は、次式で表わされる量である。¹²²

$$Q_m = \lambda^3 \cdot N_m^2 \cdot F_m^2 / \sin 2\theta_m \quad (2.8.11)$$

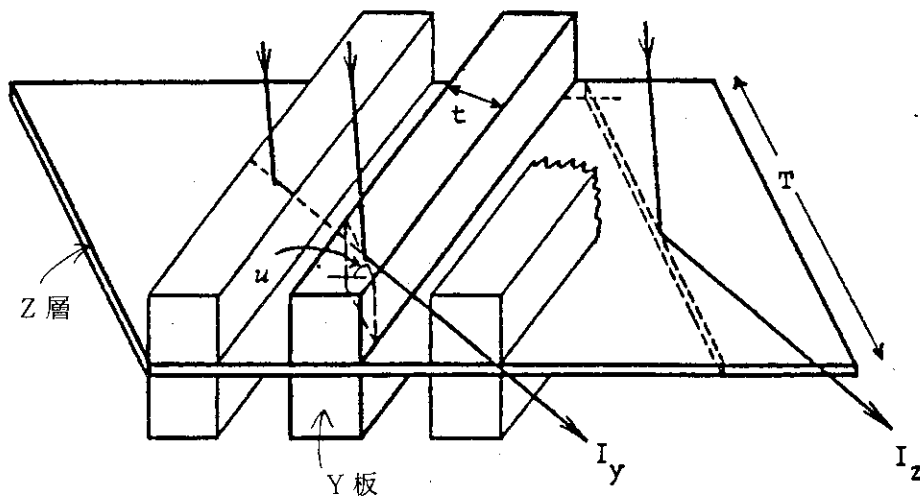
ただし、 λ は使用波長、 N_m はモノクロ結晶の単位胞の単位体積当りの数、 F_m は構造因子、 θ_m はブラッグ角である。また、結晶のモザイク分布 $W_m(\eta_m)$ は次式で与えられる。²²³

$$W_m(\eta_m) = \sqrt{4 \ln 2 / \pi} \beta_m^{-2} \cdot \exp(-4 \ln 2 \eta_m^2 / \beta_m^2) \quad (2.8.12)$$

ただし β_m は、このガウス型モザイク分布の半値幅である。

(2.8.10) から (2.8.12) に至る三式の添字 m をすべて同時に s に変えることにより、試料結晶におけるそれらの量が与えられるものである。

次に試料結晶に関しては、第 2.8.4 図に基づいて考える。



第 2.8.4 図

一枚の (001) 層の一部の鳥瞰図 (第 2.7.1 図 b 参照)。

この図から、中心の Z 層 (厚さ $T=5$ mm) に対しては対称的なラウエの場合、付着している Y 板に対しては非対称角 $u=45^\circ$ の非対称ラウエの場合に相当することがわかる。同時に、 I_y の計算 (第 2.8.18 式) で係数 5 が乗じてあるのは、図の I_y の進行方向に厚さ $t=0.5$ mm の Y 板が不連続に 5~6 枚存在することに基づくものであることがわかる。

まず、中心のZ層は“厚さ”がTに相当し、反射条件は対称的な透過法であり、この反射能を $S_Z(\eta_S)$ とすると、

$$S_Z(\eta_S) = \sinh(G_S \cdot T / \cos \theta_S) \cdot \exp(-(\mu_S + G_S) \cdot T / \cos \theta_S) \quad (2.8.13)$$

で与えられる。²²²

一方Y板は、図にあるように、自らの厚さtと等しい間隔をもって周期的に配列されている。そのうちの一枚に対する反射能を $S_Y(\eta_S)$ とすると、これは非対称性 $u = 45^\circ$ に相当する非対称な透過法であり、次式で与えられる。²²²

$$S_Y(\eta_S) = \frac{G_S}{\cos(\theta_S + u)} \cdot \frac{\sinh(\tau \cdot t)}{\tau} \cdot \exp \left\{ - \frac{(\mu_S + G_S) \cdot t \cdot \cos \theta_S \cdot \cos u}{\cos(\theta_S + u) \cdot \cos(\theta_S - u)} \right\} \quad (2.8.14)$$

ただし、

$$\tau = \frac{\{G_S^2 \cdot \cos(\theta_S + u) \cdot \cos(\theta_S - u) + (\mu_S + G_S)^2 \cdot \sin^2 \theta_S \cdot \sin^2 u\}^{1/2}}{\cos(\theta_S + u) \cdot \cos(\theta_S - u)} \quad (2.8.15)$$

であり、 $u = 45^\circ$ に相当する。なお、(2.8.9)式以後の μ_m や μ_S は、それぞれモノクロメーター結晶および試料結晶の線吸収係数である。

ところでX線の場合には、

$$\mu_0 \gg G, \quad G \cdot T \ll 1 \quad (2.8.16)$$

を仮定して、たとえば(2.8.13)式などを、近似的に簡単な形になおすことが行なわれることがある。¹²⁶ しかし中性子線の場合には、上記の初めの仮定が成り立たないことが多い。この事情はBaconらが詳細に検討しているが、^{122, 129} 本研究でも次項(第2.8.6図)で検討される。

2.8.4 計算の結果と考察

以上の方式により、LiFモノクロメーター結晶で、 $15.3 \text{ \AA}$ を選んだ場合の、一つの(001)層の端視像のコントラストを計算する。

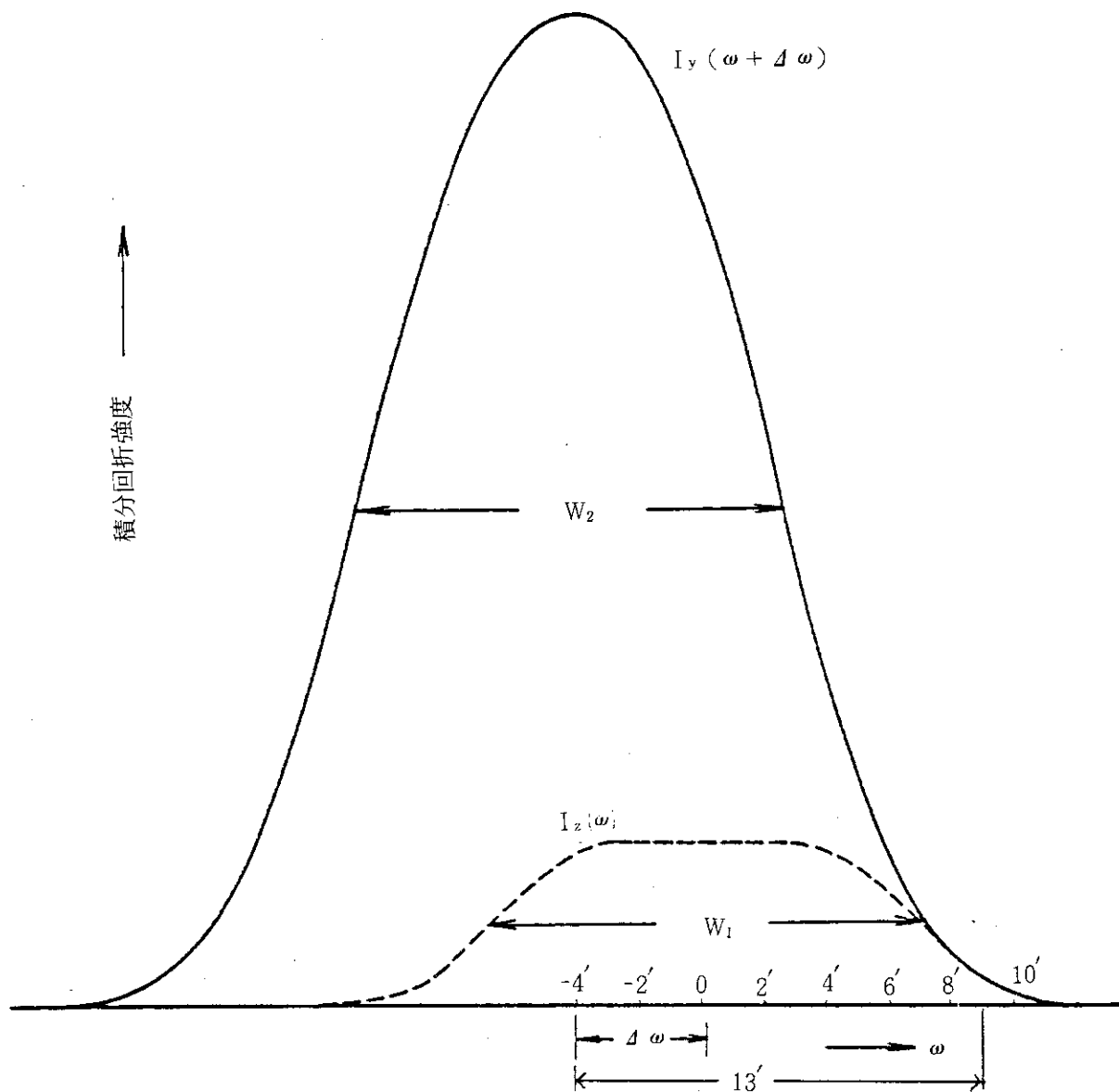
結果は第2.8.5図に示してある。本図で、 I_Z は、

$$I_Z(\omega) = \iint d\phi_1 d\eta_m C(\phi_1) \cdot M(\eta_m) \cdot S_Z(\eta_S) \quad (2.8.17)$$

で計算された、Z層に対するフィルムの単位面積当りの回折中性子の存在比率である。また I_Y は、

$$I_Y(\omega) = 5 \times \iint d\phi_1 d\eta_m C(\phi_1) \cdot M(\eta_m) \cdot S_Y(\eta_S) \quad (2.8.18)$$

で計算された、Y板のそれである。この(2.8.18)式で、乗数5がかっているのは第2.8.4図に示された通り、厚さ0.5 mmのY板による反射波が、Y板間の間隔が0.5 mmと大きいため干渉性を失ったものとして非干渉的に5枚分加算されるとする仮定によるものである。なおこの場



第2.8.5図 $I_z(\omega)$ と $I_y(\omega + \Delta\omega)$ の曲線。

それぞれ、第2.8.17式、18式から計算されたもので、トポグラフ上の単位面積当りの積分強度である。これは第2.4.16a図の横軸に沿って走査したことに相当し、第2.4.15図の二重像の変化をよく説明している。なお、 $\Delta\omega$ の値は、それぞれの曲線が $\omega = 13'$ の近辺で一致するようグラフの上で決定される。実際のロッキングカーブは、本図の I_y と I_z に厚みの比率を乗じた上で加算して得られる（本文2.8.21式参照）。

合、Y板間の空隙は、回折論的には off - Bragg であるが、実際には他のY板が詰まっているので、(2.8.15)式における線吸収係数は通常の値より 10 倍大きい値を用いて補正してある。ただしこの方法は厳密なものではなく、吸収を大きく見積る側に近似されている。

その他に用いられたパラメータの値は次の通り；

$$\lambda = 1.53 \text{ \AA}$$

$$\theta_m = 27.2^\circ, \quad \theta_s = 36.8^\circ$$

$$\alpha = 2', \quad \beta_m = 24', \quad \beta_s = 5' \text{ (Z 層)}, \quad \beta_s = 10' \text{ (Y 板)}^*)$$

$$T = 0.5 \text{ cm (Z 層の厚さ)}, \quad t = 0.05 \text{ cm (Y 板の厚さ)}$$

$$\mu_m = 0.625 \text{ cm}^{-1} \text{ }^{224}, \quad \mu_s = 0.188 \text{ cm}^{-1} \text{ }^{224} \text{ (Z 層)}, \quad \mu_s = 1.88 \text{ cm}^{-1} \text{ (Y 板)},$$

および

$$Q_m = \lambda^3 \cdot |F_m|^2 / v_m^2 \cdot \sin 2\theta_m = 0.0064 \text{ cm}^{-1}$$

$$Q_s = \lambda^3 \cdot |F_s|^2 / v_s^2 \cdot \sin 2\theta_s = 0.0158 \text{ cm}^{-1} \text{ (Y, Z 共通)}$$

ただし

$$\begin{cases} F_m = 6.657 \times 10^{-13} \times 2^{**}) = 1.33 \times 10^{-12} \\ F_s = 7.63 \times 10^{-13} \times 4^{***}) = 3.05 \times 10^{-12} \end{cases}$$

$$\begin{cases} v_m = c \cdot a^2 \cdot \sin 60^\circ = 34.98 \times 10^{-24} \text{ }^{225} \\ v_s = a^3 = 3.608^3 \times 10^{-24} = 46.97 \times 10^{-24} \text{ }^{225} \end{cases}$$

なお、図の $\Delta \omega_0 \simeq 4'$ は、 I_Z カーブと I_Y カーブの肩が、 ω の大きい所で一致するように、図から決められたものである。この要請は、第 2.4.5 項の 2.4.15 図の観察事実、 $\Delta \omega \simeq 13'$ で二重性が消失して一体像になる、ということに基づいている。この値は、 $\Delta \omega_0 = \Delta \theta$ であることから

$$\Delta d/d = -\cot \theta \cdot \Delta \theta = -\cot (36.8) \cdot \left(\frac{4}{60} \times \frac{\pi}{180} \right) = -0.0016 \quad (2.8.19)$$

から、

$$\Delta a/a = \Delta d/d = -0.16 \times 10^{-2} \quad (2.8.20)$$

に相当し、Ge 濃度分布による値とよく一致する（後述 2.9.3 項参照）。

なお、第 2.8.5 図の二つのカーブは、それぞれフィルム上の単位面積当りの回折波強度を与えるもので、実際に実験で得られるロッキングカーブを得るには、Z 層と X 板 Y 板の厚さの比を重みとして導入せねばならない。従って、実験値に対応するロッキングカーブは、

$$I(\omega) = 0.2 \times I_Z(\omega) + 0.8 \times I_Y(\omega + 4') \quad (2.8.21)$$

で与えられる。従って結果は、非対称的な I_Z の寄与が小さくなり、結果として I_Y 曲線そのも

*) β_s (Y 板) は、 $I_Y(\omega)$ の半値幅 (第 2.8.5 図の W_2) が、実験値約 $14'$ (第 2.4.11, 14 図) に合うよう決定された。次に β_s (Z 層) が、前者より小さいという条件で、第 2.4.15 図の変化に合わせて決定された。次項参照。

) *) 文献 202 の付表 1 による。

のの形に似てくることになり、実測値に近づく。

ちなみに、Bacon にならって式 (2.8.17) と式 (2.8.18) とにおいて、それぞれ $\omega = 0$ とし、 Q 値による変化を見ると、第 2.8.6 図のようになる。¹²² この図から明らかなことは、厚さ 0.5 mm の Y 板に対する I_Y の方は、 Q 値に対する比例関係がかなり保たれている。これは、運動学的な性質が強いことの現われであり、従って回折曲線 $I_Y(\omega)$ も、ガウス型分布をしており、Caglioti らの結論に似ている。²¹⁹

他方、 I_Z のカーブは、 $Q = 0.002$ の頃からすでに飽和現象を呈しており、厚さ^{*}の増す割りに回折強度がふえないという性質を示している。同時に、その回折カーブ $I_Z(\omega)$ (第 2.8.5 図) も、頂部が平坦になっており、運動学的な結論から著しく外れており、Bacon らの解析結果に似ている。^{122, 129}

第 2.8.5 図から明らかなように、試料角 ω が $\omega < 0$ から、 $\omega = 0$ (just on-Bragg) を経て $\omega > 0$ に変わる間に、一枚の (001) 層の edge-on 像が明瞭な二重像 $\rightarrow$ 二重像 $\rightarrow$ 一重像と変化する様子が示されている。これは、観察結果をよく説明するものである。(第 2.4.15 図)

言いかえると、本計算に用いられた以下の仮定が正しく成立つことを意味している。

- 1) (001) に平行な Z 層が試料中にわたって連続で、従って edge-on 配置の場合厚みが厚くなり、消衰効果の影響を大きく受ける。他方 Y 板においては、一枚一枚の厚みがうすく、しかもそれぞれが非干渉と見做せるだけの間隔 (0.5 mm) を置いて配置されており、消衰効果も殆んど受けない。これは、モデルの形態が正しいことを意味する。
- 2) Z 層と Y 板の間には格子定数のちがいがあり、従って、回折曲線のピーク位置をはさんで低角側から高角側へ試料角を振るとき、二重像から一重像へという非対称な変化をする原因である。
- 3) Z 層と Y 板の間にはモザイク性のちがいがあり、従って、Z 層の回折曲線の半値幅が、Y 板のそれより小さくなっている。実際の観察結果とも符合する。

以上のように、前節 (第 2.7 節) で記述した構造モデルが二次消衰効果を取り入れた回折理論により、よく説明された。

2.8.5 まとめ

本節の考察の結果を、本研究に関してまとめると次のようになる。

1) 格子定数について

第 2.8.5 図から、Z 層と Y 板の回折曲線のピーク位置の違いが見出され、その結果 Z 層と Y 板との相対的な格子定数の違いは、0.16 % 程度と結論された (第 2.8.20 式)。この結論は、両者の回折強度比が 20 倍以上もあるという事情から、本節のような計算と第 2.4.5 項の詳細なトポグラフ観察とを併用して初めて得られたものである。

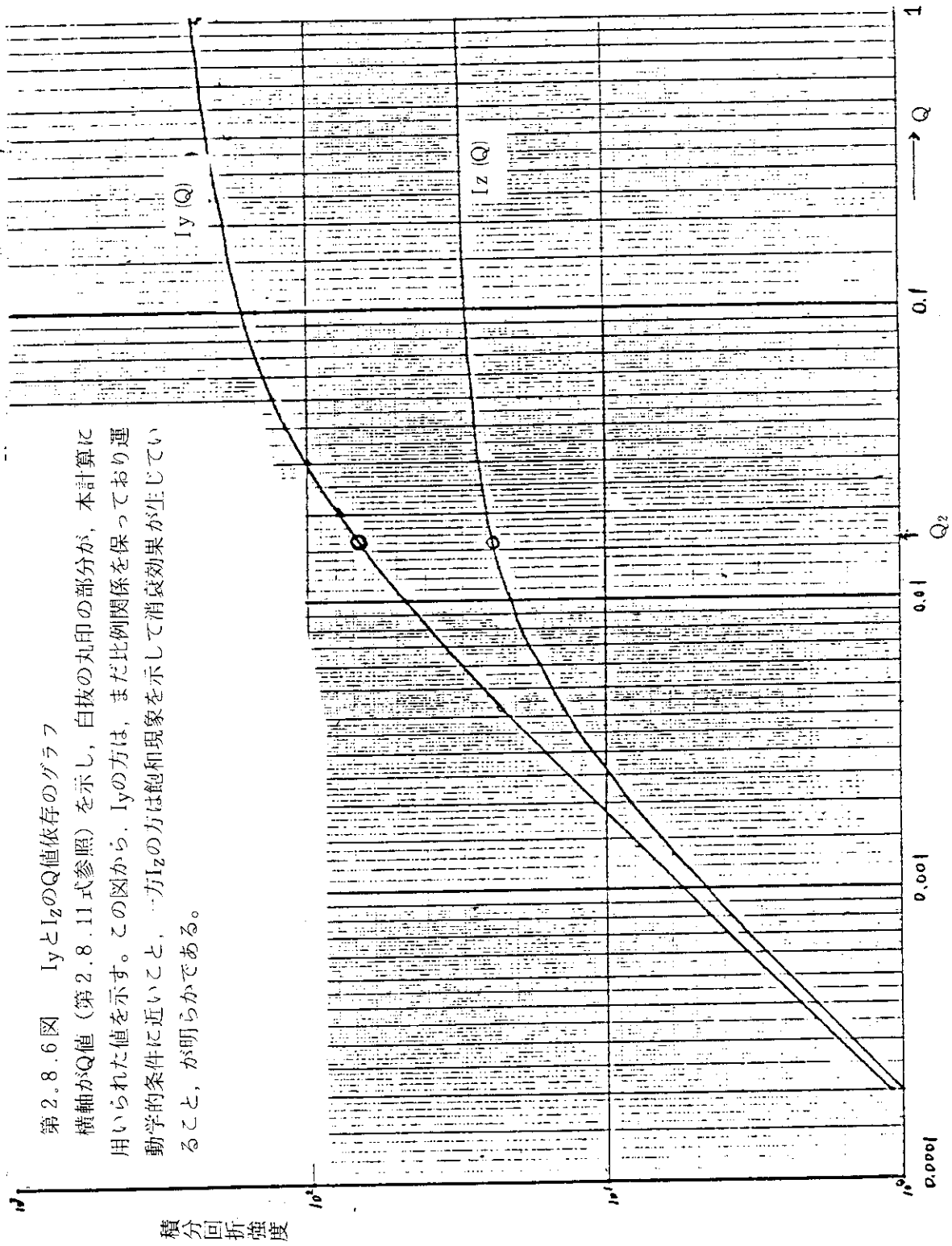
2) 二重像の成因は二つある。

一つは、Z 層と X 板、Y 板とでは、格子定数のちがいのために、on-Bragg になる角度がちがっている。しかしこれだけでは二重像にならない。それは、Z 層の強度が非常に小さいことも原因である。それは、Z 層が厚く二次消衰効果のために、厚さの割りに強度が弱く、他方、

* 積分強度 I_Z に対して、結晶の厚さと Q 値とは、効果が対称である。(cf (2.8.13) 式)

第2.8.6図 I_y と I_z の Q 値依存のグラフ

横軸が Q 値 (第2.8.11式参照) を示し、白抜の丸印の部分、本計算に用いられた値を示す。この図から、 I_y の方は、まだ比例関係を保っており運動学的条件に近いこと、一方 I_z の方は飽和現象を示して消衰効果が生じていることが明らかである。



Y板の方は、一枚当りの厚さが 0.5 mm とうすく、運動学理論的に体積（厚さ）と共に回折強度はふえてゆく。従って、全体積がふえても、一枚のY板による回折強度を（非干渉的に）積算するだけなので、この運動学理論的な性質は変わらない。

なお、上記二つの原因のうち、後者だけでも二重像が生じることになる。本試料のように、格子定数が違うことにより、on-Bragg の位置から試料角を+、-いずれかに外した場合に非対称性が現われた。

- 3) 回折強度の計算において、二次消衰効果の理論を適用することにより、第 2.4.5 項のような複雑な観察事実がうまく説明できた。

このことは逆に、第 2.7.1 図に示されるようなモデルが正しいということを支持するものと言えよう。

- 4) 本節の計算の中で、特に第 2.8.5 図の $I_Y(\omega)$ の計算を通じて、Y板のモザイク幅がおおよそ $10'$ であることが見積られた。同時にZ層のモザイク幅も $5'$ と見積られた。

第 2.9 節 結果の考察

2.9.1 本研究で見出された下部組織の意味

本章において前節までに述べた Cu-5%Ge 単結晶に関する下部組織 (Substructure) のモデルの特徴は、{100} 層状構造である。それは、成長方向に平行な (001) 層の積み重なりであり、さらに各々の (001) 層には、その両面に対称的に (100) や (010) に平行な板が付着している、という階層的な構造を有している (第 2.7.1 図)。

ところで、著者らが Cu-5%Ge 単結晶中に見出した、この {100} 層状下部組織は、この試料に特有、あるいは偶然的な現象ではないと思われる。それはすなわち、第 2.9.1 表に見られる通りである。実際この表は、種々の組織の銅合金について、表面縞の有無 (本章第 2.2 節参照)、および NDT 観察による平行な水平縞の出現 (第 4 節参照) について、その観察結果をまとめたものである。この表から明らかのように、問題とする {100} 層構造の端視像と見做される平行縞が観察されなかったのは、ブリッジマン (Br.) 製法およびチョコラルスキー (Cz.) 製法による純銅結晶と、Br. 製法による Cu-1%Aℓ 合金結晶のみである。従って、一定濃度以上の溶質原子を含む Br. 製の銅合金は、{100} 層状下部組織を有すると考えられる。同時に、NDT 観察による平行縞の出現と、結晶表面に観察される周期的な縞模様とは、正の相関を有することが明らかである。このように、問題にしている {100} 層状下部組織は、Cu-5%Ge 合金単結晶のみならず、多分に一般性を有するものであると考えられる。

第 2.9.1 表 各種銅合金の観察結果

○: あり, ×: なし

組 成	pure Cu		Aℓ			Ge				Cu ₃ Au
	(Cz.)	(Br.)	1%	5%	14%	0.5%	3%	5%	10%	
外 見 上 の 縞	×	×	×	○	?	○	○	○	○	○
トポグラフ上 の 縞	×	×	×	○	○	○	○	○	○	○

このような {100} 層状下部組織は、本試料の如き固溶体合金においては、従来報告されたことがない。

たとえば Rutter らは、Sn などに関する観察結果から、セル (Cellular) 構造を提唱している。²²⁶ これは、結晶の成長方向に平行な "Pencil" から成立っており、各々の pencil の境界は不純物が比較的多いというものである。²²⁷ 一方 Teghtsoonian と Chalmers は、同じく Sn に関する観察に基づいて、リニュージ (Lineage) 構造を提唱している。²²⁸ この結晶は、成長方向に平行な一組の棒状組織 (rod) から構成されており、各々の rod は成長方向を軸として互いに数度ずつ回転しているというものである。²²⁷

従って、本研究で得られた {100} 層状下部組織が、上記二者のいずれとも全く異っていることは明らかである。我々のモデルは、単に形態学的な (morphological) 観点から見れば、

“Cellular - Dendrite”と称される構造によく似ている。それは、Chalmersが提唱し、²²⁹ Bower らが Al-4.5%Cu の観察で、²³⁰ また Jin-Purdy が Fe-8%Ni の観察において確認したと報告しているものである。用いられた試料は、いずれも析出型であるが、表面の観察から板（層）状構造を見出している。

このように、合金の型のちがい（固溶体型か析出型か）や観察方法のちがい（NDTによる直接観察か表面観察か）もあるので、一概に同一視することは疑問がないわけではない。

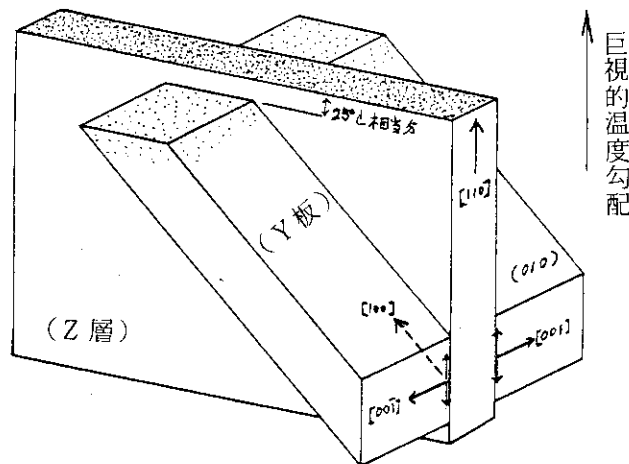
しかしながら、最近すべての下部組織を個別に論ずべきでなく、統一的な立場から基本的な機構を把握すべきであるという考え方が提唱されている。たとえば藤田は、セル構造も、リネージュも、そして、セルラードエンドライトも、すべてデンドライト（樹板状晶）を基礎において、統一的に把握することを提唱している。²⁰¹ 本研究の結果も、このような考察に従えば、セルラードエンドライトに相当すると考えられる。

一方鎌田は最近、本研究の観察事実が、融液成長に関して主流的な考え方とされている固液界面の荒さを基にした成長理論²³²では説明できないことを指摘している。^{233,234}

2.9.2 成長機構について

本研究で明らかにされた {100} 層状下部組織は、Cu-5%Ge合金の巨視的な成長に関して、次のようなメカニズムを示唆しているかのように思われる。そのメカニズムは、次の如きものである：

- ① まず、一定間隔（約 1 mm）を隔てて周期的に、巨視的な成長方向 [110] に平行で、(001) の指数をもつ Z 層が成長する。その厚さは約 0.1 ~ 0.2 mm である。
- ② 次に、各々の Z 層の両表面において対称的に、かつ Z 層に垂直に、やはり一定間隔をおいて、X 板と Y 板が成長する。
- ③ このとき、X 板（Y 板）の成長方向は、隣接する Z 層へ向かう [001] 成分と、Z 層に沿った [010]（[100]）とを併せもつ。この X 板（Y 板）の成長は、[001] 方向へは隣接する



第 2.9.1 図 本試料内の (001) 層の成長の模式図

初めに中心の Z 層が、巨視的な成長方向 [110] に成長し、次いで Z 層の両表面に対称に Y 板や X 板が成長するという機構を意味する。矢印が成長方向を意味する。点々の分布した面は、固液界面に相当する。

Z 層へ到達するまで (0.4 ~ 0.5 mm), そして [010] 方向へは, Z 層の成長に大略等しいと思われる。

上記の如き成長機構を, その途中図として示すと, 第 2.9.1 図のようになる。矢印は成長方向を意味するものである。

このメカニズムの推定の理由は, 次の通りである。

- i) 一つの Z 層の両表面において, X 板や Y 板が対称に存在すること。すなわち, 先に存在する Z 層の結晶学的な方位が, X 板や Y 板の方位と核形成, 周期を規制したということは考え易い。一方, Z 層が先に存在しなければ, 両表面の X 板や Y 板は元来独立なはずであり, 結果として方位がそろったり, ましてや対称的になったりすることは非常に考え難い。
- ii) Ge 濃度分布が, Z 層で低く, X 板や Y 板で高いということからも支持される。すなわち, 第 2.9.2 図に示される状態図^{*)}で見ると, Z 層 (Ge 濃度 4.5 %) は約 970 °C で凝固し, この段階でとり残された Ge 原子は, 約 25 °C 低い温度で凝固すると見られる X 板や Y 板 (5.5 % Ge) の中にとりこまれると考えられるからである。

上述の巨視的な成長機構を直接的に確認することは, 本研究の範囲ではできていない。このためには試料回折用のゴニオメーター上に電気炉を組み, 成長途中の結晶を観察するような工夫が必要であると思われるが, 中性子の透過能が高いので, 分解能をあまり落とさない (試料とフィルム間の距離を大きくしない) 工夫をすれば, 可能であると思われる。

2.9.3 格子定数のちがい

Z 層と X 板・Y 板との間に格子定数の相違があることは, 第 2.4.5 項 (第 2.4.15 図) の観察により示唆されていた。そして第 8 節の計算により, 両部分の格子定数の相対的な差異は, 0.16 % 程度であると結論された。

その成因については, Ge 濃度の偏りで説明できる。すなわち, 本章第 6 節 (第 2.6.1 図) で述べたように, Z 層部分は約 4.5 %, X 板, Y 板の部分は約 5.5 % の Ge 濃度を有している。従って, Pearson のデータによると Z 層部分の格子定数は 3.6222 Å, X 板, Y 板では 3.6255 Å²³⁷である。

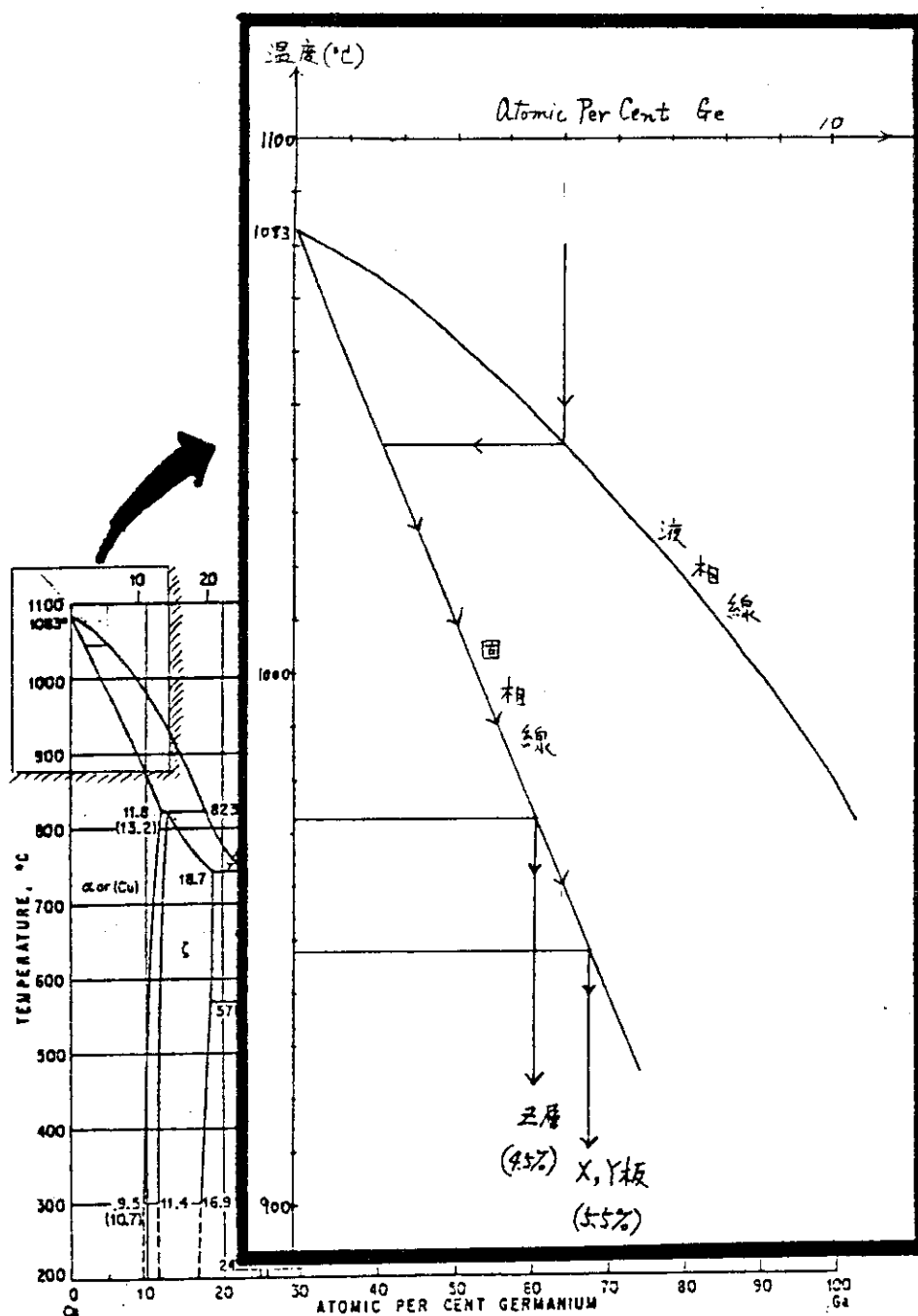
その結果, Z 層部分の格子定数は, X 板, Y 板のそれに較べて,

$$\Delta a/a = 0.0033 / 3.6255 \simeq 0.00091$$

だけ相対的に小さいことになる。実験精度を考慮するならば^{**)}, これは 2.8.4 項における結論 (第 2.8.20 式) と充分な一致を示していると考えられる。

*) 通常の状態図^{235, 236}の用法では, 特に本試料のような固溶体においては, この図のように二通りの濃度で分離固化することは導かれない。むしろ第 2.9.2 図は, 本研究の観察結果に基づく考え方を模式的に図示したものである。

**) 第 2.4.15 図のトポグラフのコントラストの変化から, 巨視的な on-Bragg 位置から +13' で一重像になると判定したこと, および第 2.8.5 図において $I_y(\omega)$, $I_z(\omega)$ のロッキングカーブを作る際, それぞれの部分のモザイク性 (β_s) の値のとり方に多少の任意性が存在すること, 以上二つの理由により, $\Delta\omega = 4'$ という見積り値 (第 2.8.19, 20 式) には, 多少の誤差が含まれていると思われる。



第 2.9.2 図 Cu-Ge 合金の状態図と凝固模式図

Cu-Ge 合金の状態図²³⁵によると、Ge 濃度 4.5% の Z 層は約 970°C で凝固し、5.5% の X 板・Y 板はそれより約 25°C 低くなってから凝固したことになる。太線枠内は、Hansen の図の一部を拡大して、この事情を模式的に示したものである。本文参照。

第 2.10 節 まとめ

本研究では、ブリッジマン法で作製した Cu-5% Ge 合金単結晶が主な試料として用いられた。また、そこで得られた結論の一般性を確認するために、Al, Si, Au, Ni 等を含む種々の銅合金も用いられた。

主に NDT を利用した直接観察により、Cu-5% Ge 合金単結晶の下部組織 (Substructure) が明らかにされた。X 線マイクロラウエ写真が補助的に用いられ、本試料がモザイク性と歪みに富むことが明らかにされた。また、X 線マイクロアナリシス (XMA) により、NDT で明らかにされた下部組織の周期とよく対応する Ge の濃度分布が存在することがわかった。NDT の像を確認するために撮られた XDT 写真も、大体において NDT の像とよく符合したが、反射法 (XDT) と透過法 (NDT) の違いによると思われる差異も見られた。

得られた下部組織のモデルは、成長方向 $[110]$ に平行な (001) の指数をもつ層の積み重なりである。各々の (001) 層には中心のうすい層 (Z 層) の両側の表面に格子状に、 (100) や (010) の指数をもつ板 (X 板, Y 板) が付着しているというものである。

この下部組織はさらに、中心の Z 層部分の Ge 濃度が低く、その両面に付着した X 板 Y 板の部分では Ge 濃度が高いことがわかった。また、X 板や Y 板の部分は Z 層に較べて約 0.1% だけ格子定数大きいことが観察されたが、それは Ge 濃度分布の差異に対応することがわかった。

本試料が上記のような下部組織を有するものとして、二次消衰効果を取り入れた回折強度計算を行ったところ、トポグラフ上の像がよく説明された。

上述の如き下部組織は、これまで直接観察された例はない。また、本試料の如き固溶体型合金においては、その存在さえ期待されていなかったものである。形態学的には、析出型合金 (Al-4.5% Cu, Fe-8% Ni など) で報告されている Cellular-Dendrite 構造によく似ている。このような意味から、最近藤田が提唱しているように、²⁰¹種々の型の合金に対して見出されている諸々の下部組織の多くを、樹板状晶 (Dendrite) に還元して統一的にとらえることの必要性を示唆するものと思われる。

本研究においては、上述の如き下部組織を直接的に明らかにするために NDT の様々の技法と長所が活用された。

まず、中性子の透過能の大きいことが活かされた。試料直径が 3 cm もあることのみならず、下部組織の単位となる一枚の (001) 層でさえ厚さ 1 mm あるので、XDT でその構造を直接観察することは不可能と思われる。また、30 枚ほどの (001) 層のうち、他から 1° 程度の角度のズレを有する一枚のみを観察できたのも、透過能が大きいことの結果である。

技法的にも、セクショントポグラフや、反射面内回転、および端視法が活用されたが、特に同時端視法は下部組織のモデルを直接的に確認するのに有用であった。これは、中性子波長分布が連続的であるということを長所として活かしたものである。

また、一つのブラッグピークの近辺でわずかな角度ずつ入射角をかえてトポグラフを撮ることにより、微小な部分 (Z 層) が、他の部分に対してわずかに格子定数が異なることが見出された。

以上のように、NDT のいくつかの長所と、技法的な工夫とを活かすことにより、結晶成長の議論に対して資するところ大きい下部組織モデルが得られた。

他方で、Z層やX板・Y板が周期的配列をもって成長する理由は、本研究の範囲では解明されなかった。成分比や成長方位を種々変えた試料を幅広く観察すると共に、理論的な検討を深める必要があると思われる。

第三章 その他の応用例

本章で述べる二つの応用例は、いずれも時間的には、第二章の研究より前になされた仕事である。それだけに、第二章の仕事に較べて分解能への配慮など技法的にも稚拙な点がある。しかしながら、NDTの物性研究への応用の可能性を確認した仕事（第3.1節）であり、また自然の条件での大きな楔角（双晶境界）による等厚干渉縞の観察など（第3.2節）、ここで紹介する意味をもっていると思われる。

第3.1節では、比較的大きなGe単結晶の中に人為的に大きな歪みを導入して、それがNDTでどのように検出されるかを検証した研究を述べる。そこでは、コリメーションや使用波長による像質の変化を見る基礎的な実験と共に、XDTで実用されていたいくつかの技法も応用されて、試料結晶内の歪み場の三次元的な分布の観察も試みられる。第2節では、Si双晶が試料に供され、双晶境界の一方のみにon-Braggにして、 40° という大きな楔角による等厚干渉縞を観察すると共に、双晶境界の両側に同時にon-Braggにして、そこでの可干渉性を検討したものである。

第3.1節 熱圧延したGe単結晶中の歪み場の観察

3.1.1 はじめに

この仕事は、原研3号炉（JRR-3）において、土井らによって試みられた研究¹⁴⁴を、XDTの諸技法を参考にして発展させたものである。

試料として、熱圧延（Hot-Press）で大きな歪みを導入したGe単結晶が用いられ、圧延の前後におけるトポグラフ像の変化から、試料中の歪み分布を検出したものである。ここにおいては、波長のちがいが像質に与える効果、コリメーションの効果、などが基礎的に点検されると共に、セクション・トポグラフやステレオ・ペアなどの技法が試みられ、Ge結晶内の歪み場の分布に対する一定の知見が得られた。その結果は、試料結晶をうすく切り出すことによって、XDTによっても追試して比較された。このように、この仕事そのものはすでにXDTで用いられていた技法を適用して、NDTの実用化の可能性を検証するような性格が強く、いわばNDTの試行の仕事である。

3.1.2 実験

装置全体の構成は第2.3.1図と本質的に同じである。

熱中性子線束源は、原研のJRR-3の水平実験孔H-7で、出力7MWの時、炉心部で $10^{13} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ 、第一コリメーター直前で $10^8 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ の熱中性子線束密度がある。

単色化には、モノクロメーター(M)として、 30° 程度のモザイク性をもつCu結晶やGe結晶が用いられ、 $1 \text{ \AA} \sim 2 \text{ \AA}$ の波長が選択された。

第一コリメーター (C_1) は、水平方向 $30'$ の発散を許し、第二コリメーター (C_2) は、主に $30'$ のものが用いられたが、 $5'$ のものも用いて、得られるトポグラフの像質が比較された。^{*})

C_1, C_2 とも Cd 製のソーラースリットで、 $5 \times 5 \text{ cm}^2$ の口径をもつが、我々の実験では、Cd 板で絞って、 $3 \times 3 \text{ cm}^2$ の線束断面積にし、無用の部分を中性子線が照射せぬよう配慮した。

上記の $C_1 \sim M \sim C_2$ の組み合わせにより、フィルムと試料との距離はおよそ 10 cm であるので、 $(+, -)$ 配置の場合の分解能は約 0.5 mm である。^{**)} また、試料直前の線束密度は、モノクロメーターに Cu の 111 反射を用いた場合、およそ $1.4 \times 10^5 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ (炉出力 7 MW) であった。

写真系 (P) のうち、変換系としては Berger による $10 \text{ Rh} - 2 \text{ Gd}$ を用いた。¹⁴⁰⁾ すでに第 2.3.7 項でも述べたが、 $1/100$ インチ厚の Rh 板、^{***)} X 線フィルム、 $1/500$ インチ厚の Gd 箔、^{****)} を、この順に試料側から並べたものである。

X 線フィルムとして、Fuji 工業用 X 線フィルム # 100 や # 200 が用いられ $3 \sim 30$ 時間の露出時間が必要であった。

なおこの他に、「 $^6\text{LiF} + \text{ZnS}$ 」のシンチレーターと、ポラロイドフィルムを組み合わせた写真系も試した。この場合、感度は 100 倍程度増すが、分解能の点で非実用的であった。トポグラフィの写真系では、感度が高くてもコントラストが硬調過ぎると、情報の正確な解釈が妨げられるので、多少感度が落ちてでも中間調の写真系が望ましいと思われる。

我々の用いた ($10 \text{ Rh} - 2 \text{ Gd}$) による写真系全体としての分解能は、およそ $40 \mu\text{m}$ であると見積られる。^{*****)}

3.1.3 試料

試料 (S) は、トランジスター用に作られた Ge 単結晶で少量のリンを含んでいる。試料の大きさは、第 3.1.1 図のように $15 \times 13 \times 8 \text{ mm}^3$ で、それぞれ $[\bar{1}10]$, $[111]$, $[11\bar{2}]$ 方位に切り出してある。

処理前のこの単結晶の中性子トポグラフを撮り、更に比較のために X 線振動トポグラフを撮ってから、熱圧延した。

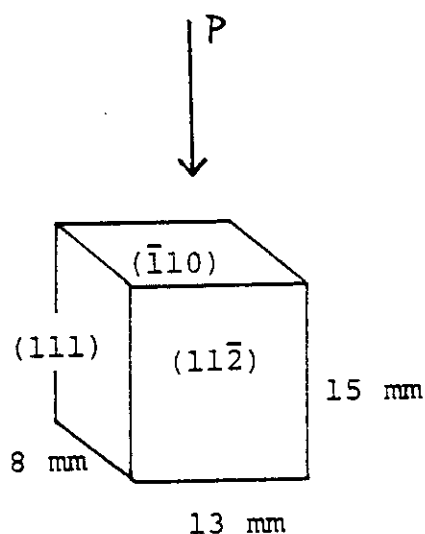
圧延は、観測にかかりやすい大きな歪みを作る目的で、 850°C において $75 \text{ kg} \cdot \text{cm}^{-2}$ の圧力が反射面 (111) に平行な $\langle 110 \rangle$ 方向に加えられた。試料の大きさ、方位、圧延方向などは図中に示した。

^{*}) 2.3.3 で述べたように、トポグラフィ実験では第一コリメーター (炉心とモノクロメーター結晶の間) のみが望ましいが、本実験は通常の回折実験装置を使用したので第二コリメーター (モノクロメーターと試料結晶の間) も使用されている。

^{***)} 見積りの詳細は附録 A 参照。

^{****)} ^{*****)} 東大物性研細谷教授の好意による。ただし Gd 箔は東北大平林研究室で作られたものである。

^{*****)} 見積りの詳細は附録 B 参照。



第 3.1.1 図 試料結晶の概形図

上面に当たる矢印は hot - press 方向を示す $(\bar{1}10)$ 。トポグラフを得た反射面は、図の側面の (111) であり、X 線トポグラフを得るために切断された面は、手前の $(11\bar{2})$ に平行な面である。

なお、この試料の厚さ 8 mm は、線吸収係数との積が 0.4 (波長 $1.0 \text{ \AA}$ の時) で、運動学理論適用の条件 $\mu \cdot t < 1$ を満足するので、得られるトポグラフは、多重反射・多重散乱の過程を考慮することなく、運動学的に解釈されることになる*)

3.1.4 結 果

(a) 全体的変化

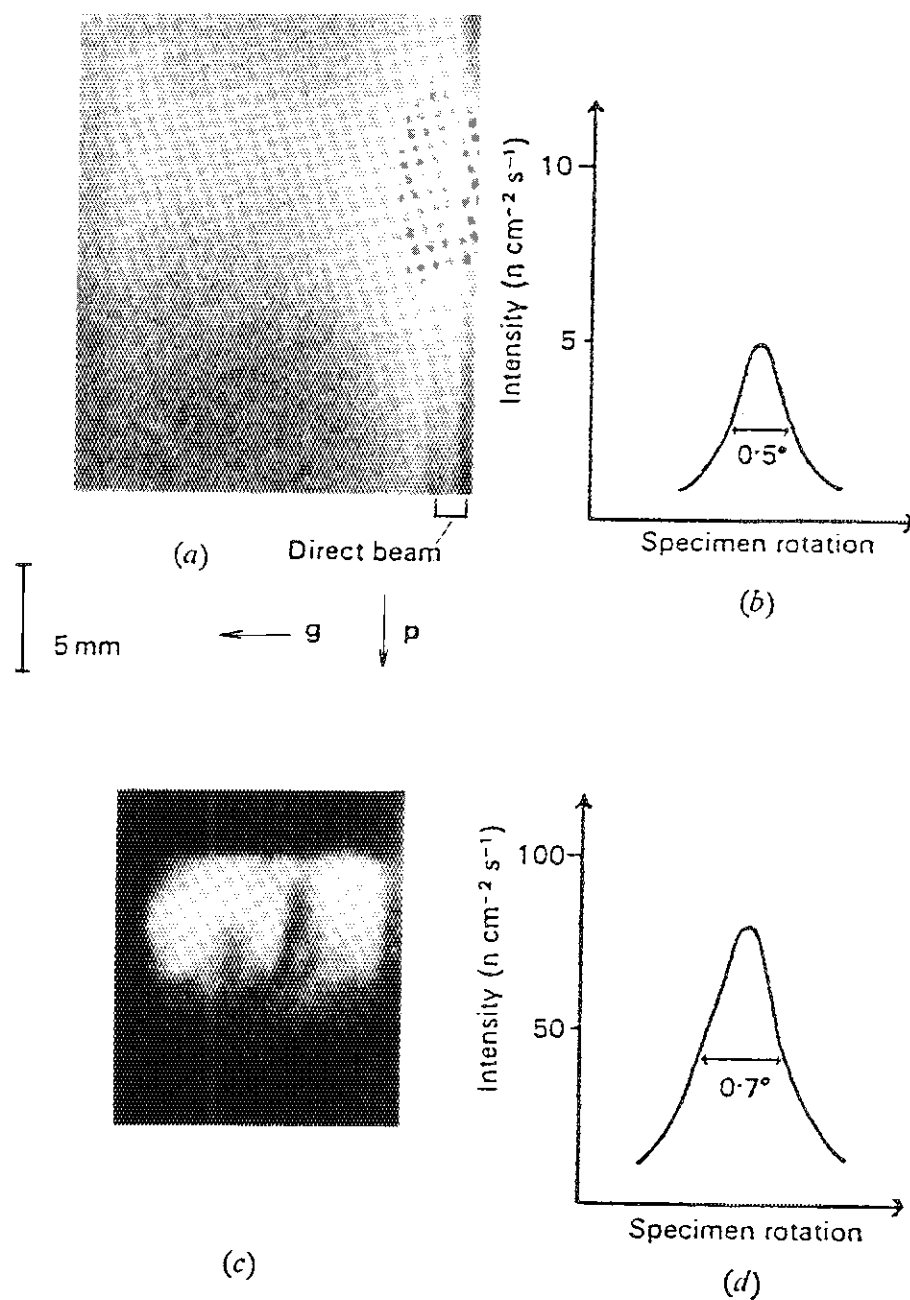
初めに、熱圧延による全体的なコントラストの変化を、第 3.1.2 図において比較した。ここに掲げられた 2 枚の中性子トポグラフは、共に (111) 反射面によるもので、その反射ベクトルは矢印 g で示されている。モノクロメーターには、Cu の 111 反射を用いてあり、使用波長は $1 \text{ \AA}$ で、波長の広がり $\Delta \lambda / \lambda$ は 1% 以下である。

(a) は、処理前の試料のトポグラフで、殆んど完全な単結晶であるため、全視野が単調に写っている。なお、右側の強いコントラストは、入射線が直接感光したもので無視される。

このトポグラフに対応する回折曲線 (ロッキングカーブ) は、(b) 図に示され、ピーク値は $5 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ (炉出力 7 MW) で約 $30'$ の半値幅を示しているが、この幅はもっぱらモノクロメーターのモザイク性によると思われる。

熱圧延後の Ge 結晶のロッキングカーブは (d) に示されているが、ピーク値が 16 倍、半値幅が 1.4 倍に増大しており、熱圧延の結果、結晶内部に大きな歪みが生じたことがわかる。すなわち、圧延後の試料のトポグラフ (c) において、大略圧延方向に沿った歪み場が、不均一に生じていることがわかる。

*) 厳密には、第 1.2.2 項参照。



第3.1.2図 熱圧延前後の比較

(a)は、圧延前の中性子トポグラフで、(b)はそのロックンクカーブ。(c)、(d)は圧延後のそれである。

なお、ピーク値の大小に応じて、(a) は30 時間、(c) は3 時間の露光時間を要した。

第3.1.2 図の (a) と (c) に見られた中性子トポグラフ上でのコントラストの変化は、X線法においても確かめられた。すなわち、第3.1.3 図は試料表面のX線振動トポグラフであるが、処理前の単調な画面 (a) が、圧延した後は多くの線状模様を見せ (b)、その模様の様子は、第3.1.2 図 (c) と同じ傾向である。なお、像の細部構造の有無は分解能のちがいによるものと思われる。

(b) 波長の効果

波長のちがいによる像質のちがいを、第3.1.4 図において比較した。

(a), (b) 及び (c) はいずれも111 反射の中性子トポグラフであるが、使用波長はそれぞれ $1.0 \text{ \AA}$ 、 $1.5 \text{ \AA}$ 及び $2.0 \text{ \AA}$ である。なお、モノクロメーターは $\text{Cu}(111)$ を用いた。ブラッグ角のちがいにより、試料見込み角はそれぞれちがうが、長波長によるトポグラフほど、細部までコントラストがついており、分解能がよいことがわかる。

X線トポグラフにおける線状欠陥の幅は、消衰距離 A_0 の程度であり、^{131,141} この A_0 の中に λ^{-1} の因子が含まれており、^{*)} ^{123,126} 従って長波長によるものほど欠陥像をシャープに見せるが、これと同様のことが中性子トポグラフにおいても成り立つものと思われる。

この波長効果により、以後の実験にはもっぱら $2.0 \text{ \AA}$ の波長を用いた。

(c) コリメーションの効果

炉内中性子がなだらかな波長分布をもつので、モノクロメーターにモザイク性がある場合、または試料の完全度が悪い場合には、コリメーションの精度がトポグラフの分解能に重要な役割りを果たす。

我々は試料直前のコリメーター (C_2) を、30' のものと 5' のものとを交互に用いて、その像質に与える効果を試した。結果は第3.1.5 図に示した。

(a) は30' コリメーターによるもので、(b) は5' コリメーターによる中性子トポグラフである。なお (a), (b) とともに、その他の条件は同じで、第一コリメーターは30'、モノクロメーターは30' のモザイク性をもつ Cu 結晶の (111) 反射面である。

このように、5' コリメーターによるトポグラフの方が、わずかながら分解能が向上し、比較的細部までコントラストを与えている。

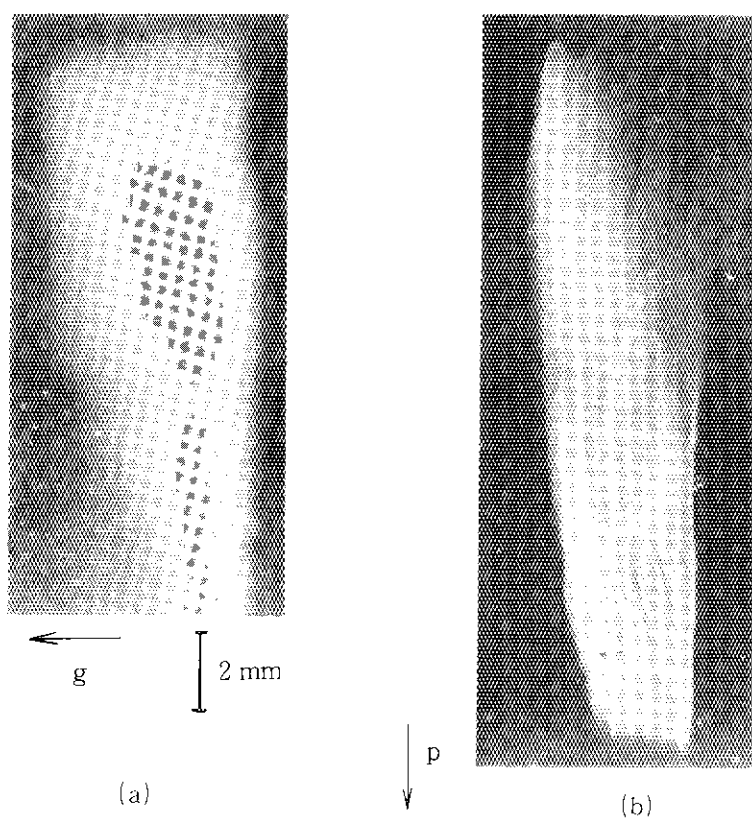
しかしながら、第二コリメーターの実際的な効果は、モノクロメーター結晶のモザイク性や試料結晶の完全度等の条件に依存すると考えられ、今の場合、第一コリメーターが30' のままであり、モノクロメーターのモザイク性も大きく、更に試料の完全度が悪いことなどのために、第二コリメーターの精度向上の効果が、結果的には減殺されたものと思われる。因みに、回折強度も、30' を5' に変えても殆んど減少しなかった。

(d) 歪み場の立体配置

試料内部における歪み場の立体配置を見るために、いくつかの技法を試みた。

第3.1.6 図の (a), (b) はいわゆるステレオ・ペアであり、それぞれ (111) および $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ 反射面によるトポグラフで、(c) 図にその撮影条件が示してある。たとえば、円で囲まれた部分の (a), (b) 両図における見え方のちがいは、(d) 図のような歪み分布を想定すれば説明できる。ただし、ここで斜

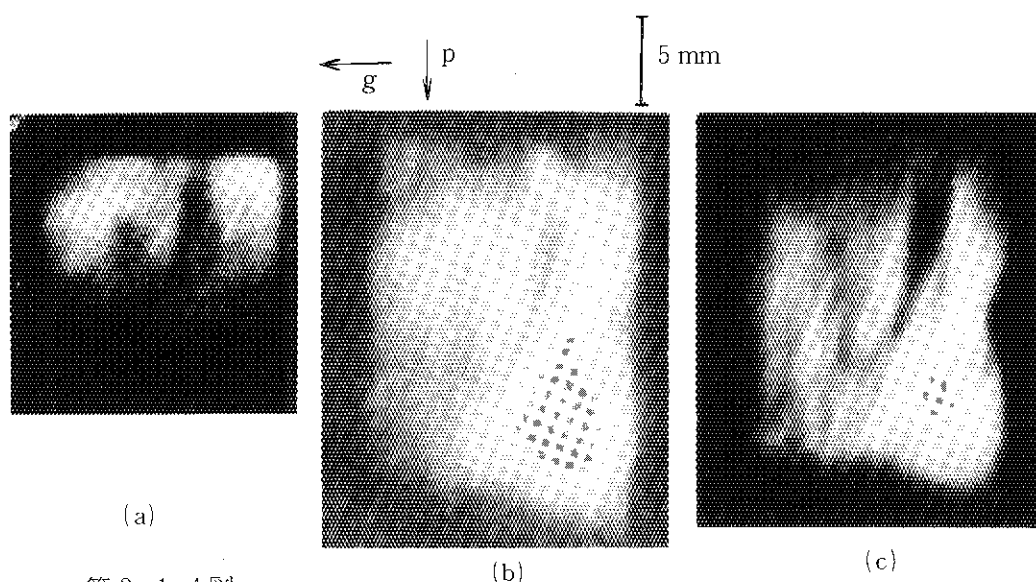
*) 後掲第3.2.2 式参照。



第 3.1.3 図

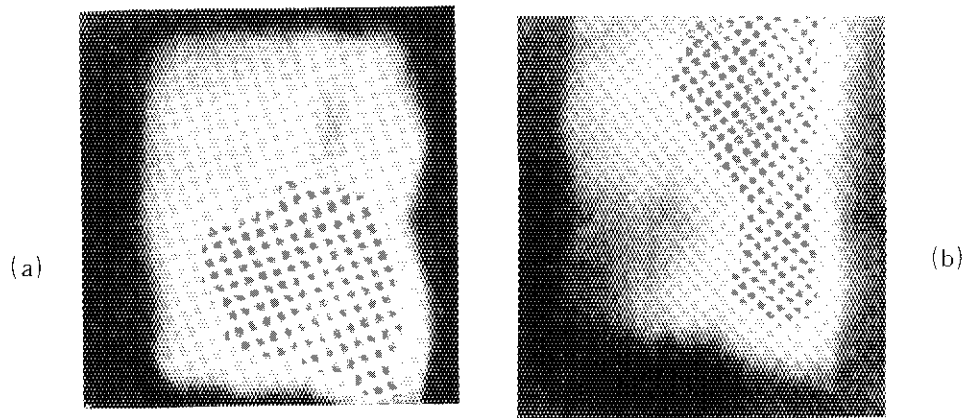
熱圧延の前後における試料表面のX線振動トポグラフ。

上図で、(a)が圧延前、(b)が圧延後、 g は反射ベクトル、 p は圧延方向を意味する。



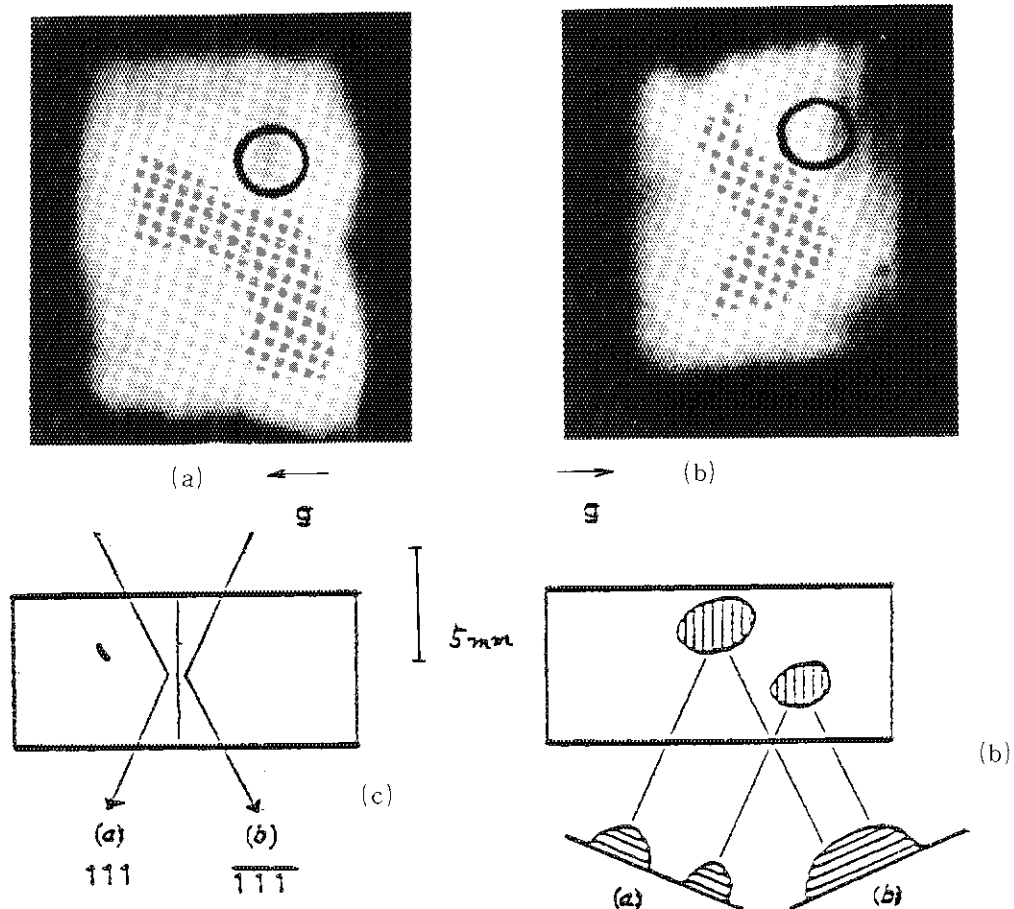
第 3.1.4 図

中性子線波長がトポグラフの像質に与える効果。(a), (b), (c) はそれぞれ $1.0 \text{ \AA}$, $1.5 \text{ \AA}$ および $2.0 \text{ \AA}$ を使用した 111 反射の中性子トポグラフであり、ブラッグ角はそれぞれ 8.8° , 13.3° , 17.8° である。なお第 1, 第 2 コリメーターはともに $30'$ を使用した。



第 3.1.5 図 像質に対するコリメーターの効果

この二枚の写真はいずれも $2.0\text{\AA}$ の中性子線による 111 トポグラフであるが、第 2 コリメーターの角度開きは、(a) で $30'$ 、(b) で $5'$ と使いわけた。なお、第 1 コリメーターの開き角およびモノクロメーターのモザイク角はいずれも $30'$ のものを使用した。



第 3.1.6 図 ステレオ・ペアのトポグラフ

(c) 図に示されるような (a)、(b) 二つの配置で、同一反射面の表反射 111 (a 図) と、裏反射 $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ (b 図) とを撮影することにより、試料内の歪み場の立体的分布に関する情報が得られる。たとえば、円で囲まれた部分のパターンのちがいは、(d) 図のような歪み分布によるものと解釈される。その他の殆んど差のない部分が多いのは、細かい歪み場がランダムに分布していることによると考えられる。

線部が歪みの強い部分を示し、この部分の歪み場が図に示したトポグラフ上で強度の高い白色のコントラストを作る。なお、(a)・(b)は試料の側面図に相当し、(c)・(d)は平面図に相当する方位関係にある。

第3.1.7図に示すような、いわゆるセクション・トポグラフ（断層投影図）も試みられた。²¹⁶すなわち、(a)図のように試料の直前にスリット（幅約0.5 mm）を置いて、試料の一部分のみに中性子線を入射させてトポグラフを撮影するのであるが、このとき運動学的な条件が満足させられているので、入射径路上にある(A)部（斜線部）のみが結像に寄与し、回折線径路である(B)部の情報は（二回以上の散乱過程が無視されるので）結像に寄与しない。

幅が約0.5 mmのCd製スリットを試料直前の種々の位置に設定して得られた強度曲線が(b)図である。横軸がスリット位置を意味する。

(c)～(e)の三枚のトポグラフは、(b)の曲線に矢印で示された三つの異なった場所にスリットを固定して得られたトポグラフである。

(c)～(e)の像のちがいは、(g)のような歪み場（斜線部）の空間的分布を仮定すれば説明できるが、これは図3.1.6(d)に示された分布と本質的に同等なものである。

なお(c)～(e)、いずれも(f)の対応部分に比べて回折線のないところが多く目立つが、これは(a)図で述べた(A)部分のみで(c)～(e)が結像されているのに対し、(f)は、(B)及び(C)部分の歪み場も強度を与えているためであると考えられ、運動学的な効果を裏づけるものである。

このように、圧延方向に沿った柱状の歪みが不均一に分布することが中性子トポグラフィから結論されるが、これはXDTによっても、ほぼ同様の結論が得られた。すなわち第3.1.8図は、(112)面に平行な面で（第3.1.1図参照）試料を薄片にし、化学腐食で約300 μm にまでうすくして得られたX線回折トポグラフである。なお、 $\text{MoK}\alpha$ 線（波長0.71 Å）が用いられ、(111)反射面による透過法である。

細部構造を除外すれば、歪みによるコントラストは、中性子トポグラフと殆んど同じである。

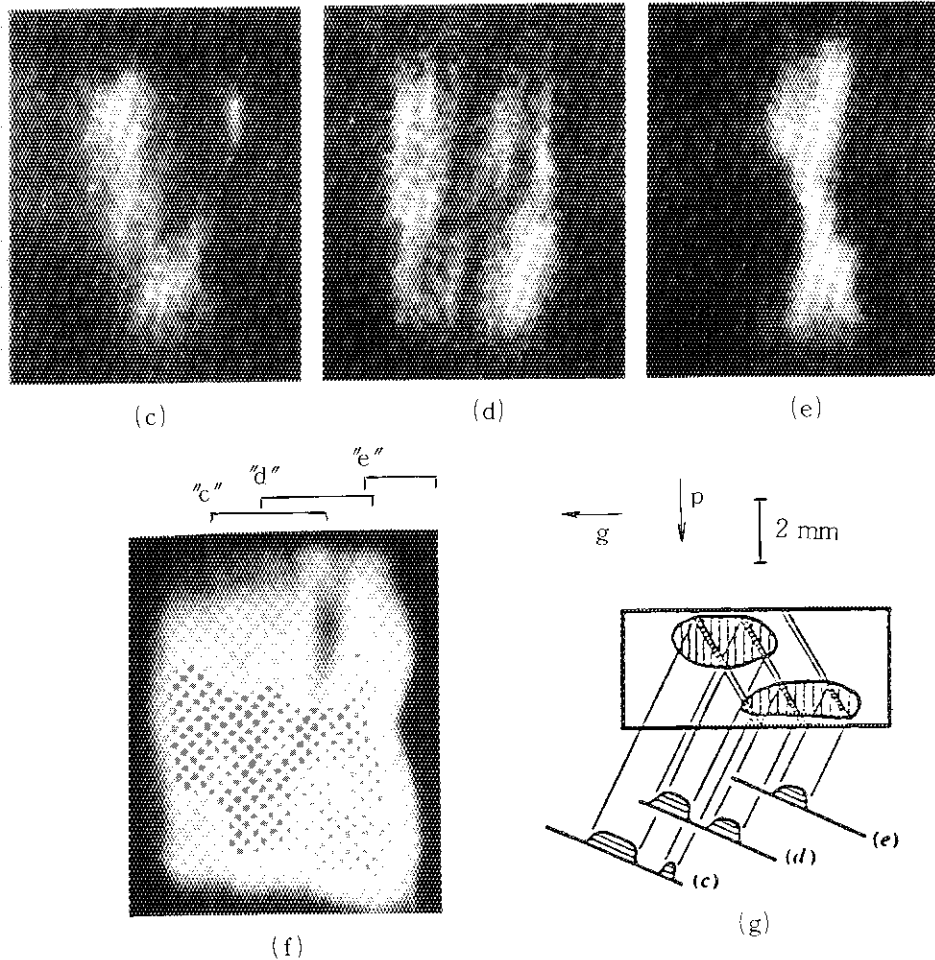
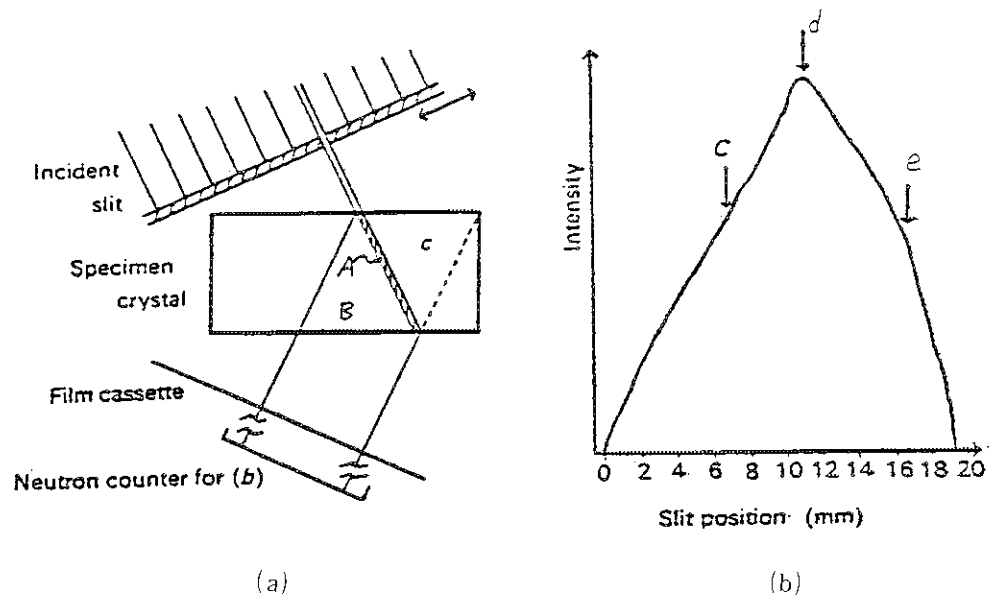
3.1.5 まとめ

原子炉の熱中性子を利用した中性子トポグラフィによって、厚さ8 mmのGe結晶内の歪み場が観察された。それは大よそ熱圧延方向に沿った柱状のもので、かなり不均一に分布しており、立体撮影や断層撮影の技法により、その空間的分布が解明された。

これらの結論は、試料結晶を約300 μm の厚さにして得られたX線トポグラフによって確認された。

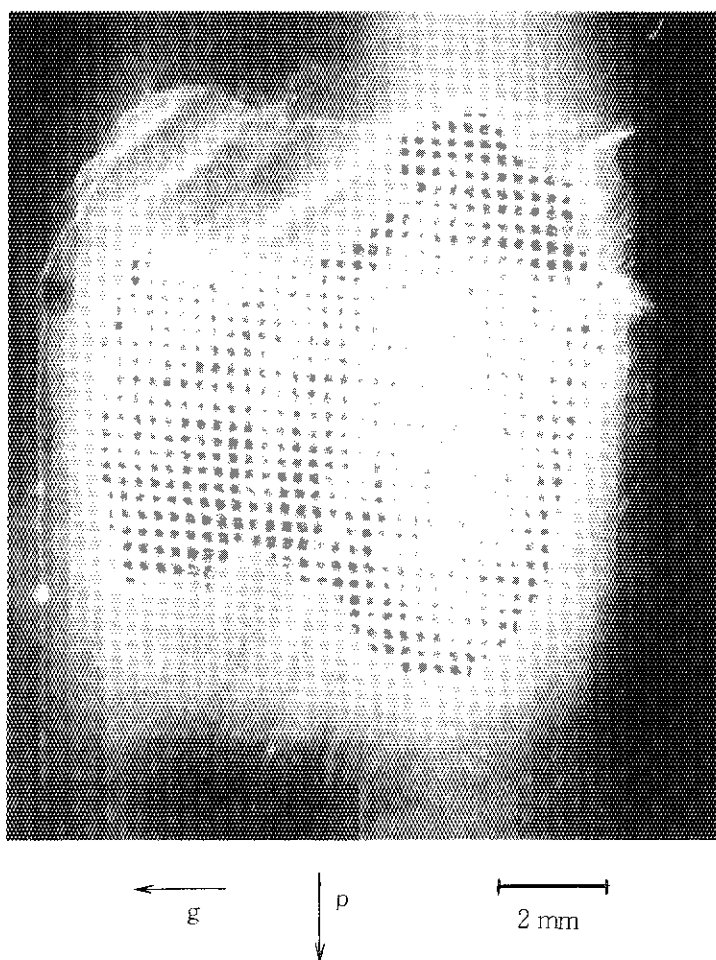
撮影されたすべての中性子トポグラフは、X線の場合と同様の判定基準に従って、運動学理論的な解釈が可能であった。

この実験により、今後さらに分解能を向上させる工夫をすれば、バルク材の中の構造観察などに実用化できることがわかった。



第 3.1.7 図 セクショントポグラフ (断層投影写真)

(a) に示す入射スリットを (b) に示す 3 点に設置して得られた三枚のセクショントポグラフが (c), (d), (e) であり, これらのトポグラフから, (g) のような歪み場の立体配置が結論される。2.0 Å, 111 反射。なお (f) は, (c), (d), (e) の各々が全体のトポグラフに占める位置関係を示している。



第3.1.8図 XDTによる追試
試料をうすくして得られたX線トポグラフ。MoK α (0.71 Å), 透過ラング法。厚さ300 μ 。

第 3.2 節 シリコン双晶の観察

3.2.1 はじめに

シリコン結晶は、現在ではその製作技術が進歩しており、直径 10 cm 程度までは、無転位に近い結晶が作られ、半導体素子の材料として市場に出されているが、まれには (111) 面を境界とする双晶が生ずることがある。

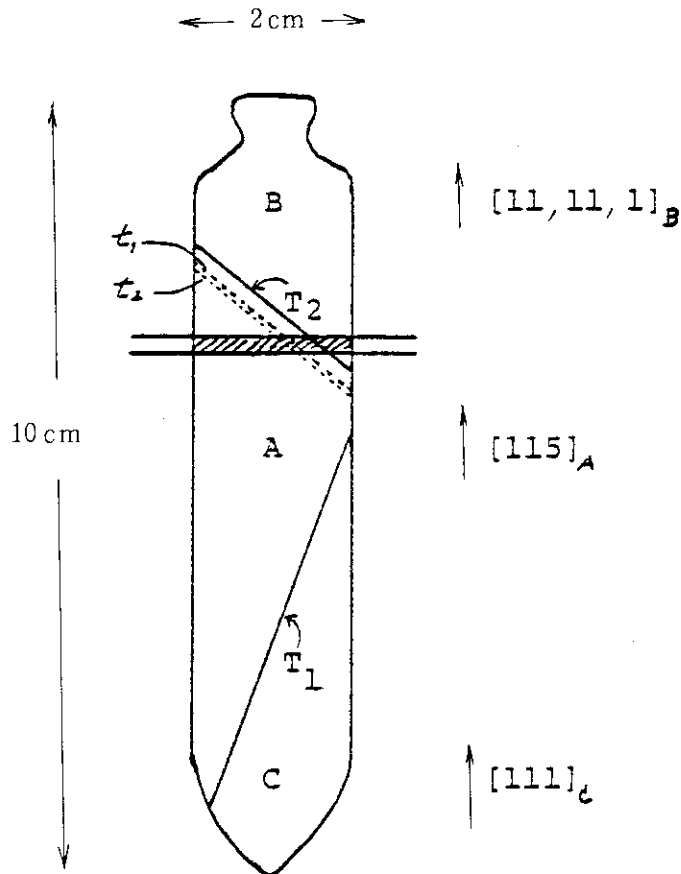
本実験は、そのような双晶境界 (Twin Boundary) を面欠陥と見做して、ここに不純物が析出するであろうとする、いわゆる鈴木効果³⁰²を確認すべき実験の一部分である。もっとも、この実験自体は、その鈴木効果の検証の段階まで至っておらず、NDTで、双晶界面に大きな楔角をもつ結晶における等厚干渉縞を観察することおよび、双晶結晶の性質の研究が主体となった。ところで、NDTで動力学理論的な挙動を検証する実験として、等厚干渉縞を見る研究は、すでにいくつか発表されているのは、序論で述べた通りであるが(第 1.2.5 項参照)、それらはいずれも、人工的に楔形に仕上げた結晶が試料として用いられていた。従って、楔角は非常に小さくなっており、しかも対称反射に近い条件が実現されている^{148,150}。我々の試料は、約 40° という大きな楔角をもつ双晶界をそのまま観察するために、従来の条件と少しく事情が異なるのである。一つは非対称であり、しかも楔角が 40° もあるということから、縞間隔を与える数式も従来の近似式は適用できないことがわかった。このような事情を反映して、我々のこの研究では中性子回折の動力的なふるまいを、等厚干渉縞を素材にして研究すると共に、シリコン双晶界の性質を研究する端緒となるべきものである。

この実験では更に、双晶面の“可干渉性”が研究された。つまり、(111) 双晶面を境に両領域は鏡映の関係にある。この双方の領域の結晶学的方位は従って、適当な変換マトリックスを用いてよみかえる必要がある。その結果、空間的に全く同一の方位が双晶界の両側で指数が異っており、片側が on-Bragg でも他の片側に適当な反射面が存在することは保証されないが、特別な場合には両側の領域が各々異った指数の反射面により、同時に同じ強度の反射を生ずることがある。この性質を利用して、境界の両側の双晶片が、結晶理論の通りに鏡映の関係を保って完全に接続している(これを可干渉と仮称する)のか、それとも何らかの理由で不完全に接続(非干渉)しているのかが、容易に検出されるはずである。

3.2.2 シリコン双晶結晶

as-grown の結晶は、チョコラルスキー法で作ったシリコン単結晶である。成長方向は、初め [111] 方位であり、直径は最大部分で約 2 cm、長さは約 10 cm である。

さて、第 3.2.1 図に示すように、[111] 成長した本結晶は、双晶境界 T_1 , T_2 を界して、三部分 C, A, B に区分される。Si で生じやすい双晶面は {111} である^{303,304} が、本結晶でも、 T_1 , T_2 はいずれも {111} の指数の双晶面である。



第3.2.1図 Si双晶結晶の全体図。

チョコラルスキー法で作製されたSi結晶は、初めC部分が成長し、双晶界T₁を経由してA部分が成長し、次いで双晶界T₂を経てBが成長したものである。破線で示した双晶界t₁, t₂はいずれもT₂と同じ指数で同じ性質の双晶界であるが、第三の界面(a)を伴って試料直径の途中で終るものである(第3.2.2図参照)。このうち、図の斜線部が切り出されて、試料に供された(第3.2.2図)。

さて、双晶面においては、原子配列が鏡映の関係であり、³⁰⁵ 従って座標系のよみかえも必要になる。これは、数学的には変換行列を作って、容易に行なわれる。^{*}この行列によると、C部分では[111]成長、双晶境界T₁を介したA部分では[115]成長、更にT₂を介したB部分では[11,11,1]成長ということになる。

*) C, A間では双晶境界が(111)面で、この面に対して鏡映の関係があることから、変換行列T_{CA}は

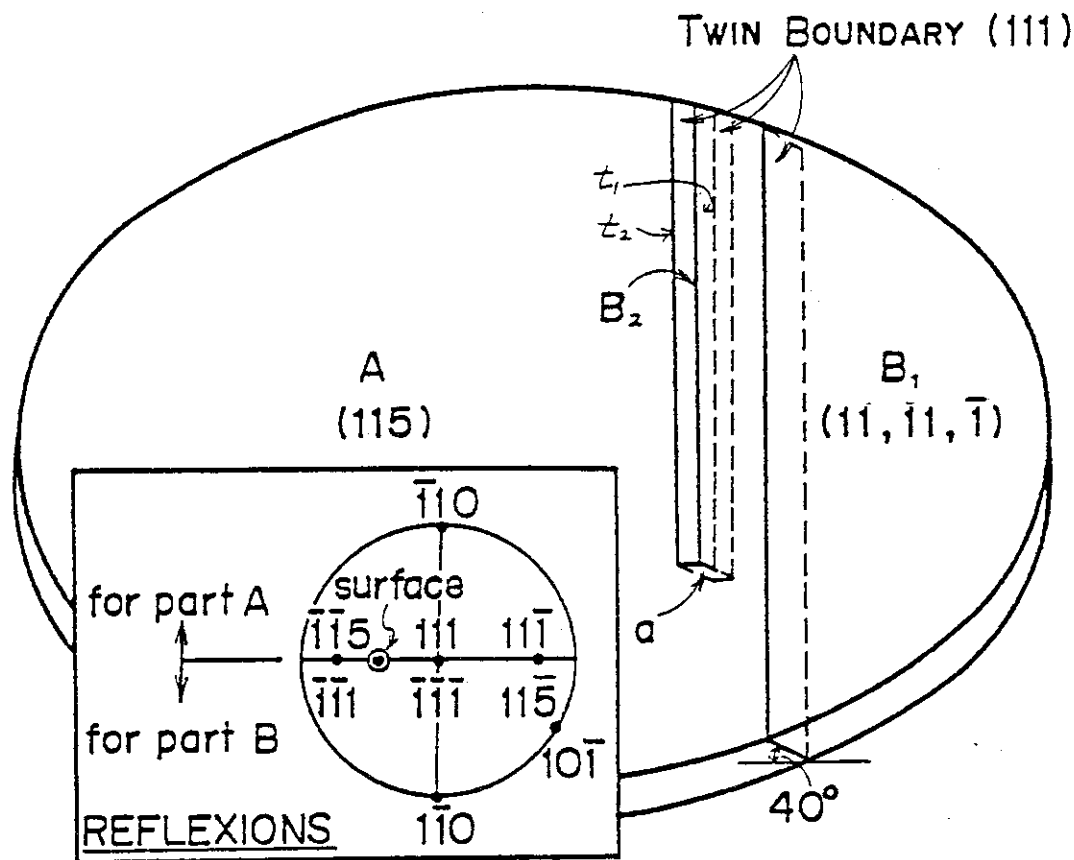
$$T_{CA} = \frac{1}{3} \begin{pmatrix} 1 & -2 & 2 \\ -2 & 1 & 2 \\ 2 & 2 & 1 \end{pmatrix} \quad (3.2.1)$$

で与えられる。同様に A, Bの間では双晶境界が(111)面で、

$$T_{AB} = \frac{1}{3} \begin{pmatrix} 1 & -2 & -2 \\ -2 & 1 & -2 \\ -2 & -2 & 1 \end{pmatrix} \quad (3.2.1')$$

である。P.84参照。

我々の用いた試料は、第 3.2.1 図に斜線で示したように、成長軸に垂直に切り出して、厚さ 1.33 mm に化学腐食したものである。これを拡大して示すと第 3.2.2 図である。この試料では、双晶境界 T_2 は試料表面と 40° という大きな角をなしており、この A 部分での表面の指数は $(115)_A$ 、B 部分の表面の指数は $(11, \bar{1}1, \bar{1})_B$ である。また、A 部分の一部には B と同じ方位をもつ双晶領域が入り込んでいる (B_2)。すなわち、A 部分の一部が三つの境界面 t_1, t_2, a で区切られている。このうちの二つ t_1, t_2 は、双晶境界 T_2 と全く同じ指数の境界であるが、残りの一つ a は、後に見るように欠陥を多く含む境界である。



第 3.2.2 図 試料概形図

前図の斜線部分を成長方向に垂直に切り出した円板状の試料で、化学腐食後の厚さ 1.3 mm、直径約 2 cm。双晶界 T_2 、 t_1 、 t_2 などは前図に対応し、表面と約 40° の角を成している。なお、 B_1 部分と B_2 部分とは同じ性質であり、 T_2 や t_1, t_2 を境界として A 部分と双晶の関係にある。

3.2.3 実験

この実験は、グルノーブルにあるラウエランジェバン研究所 (ILL) の高線束炉 (HFR) に設置された D 10 と称する回折計を用いて行なわれた。

この炉に関する詳細な紹介は他に譲るが、³⁰⁶ 特徴として

- ① 小体積の炉心で大出力を発生しており、結果として発生する線束密度が高いこと、

- ② ビームガイドチューブ方式で大まかな単色化を行なうと同時に、ビーム発散も10'程度におさえられていること
- ③ ビームとり出しが、炉心を直接見る方式でなく、接線方位にとり出しているため、速中性子の混入がない。このことと、②のガイドチューブにより100 m も炉心から離れた所で実験することと相俟って、 γ 線や不用中性子による雑音が極めて少ないこと、などが挙げられる。また、殆どどの装置は、精度よく表面を磨かれた大理石の床の上に設置され、計算機制御の下、高圧空気の圧力で浮上する仕組みになっていて、簡便に精度よく実験できるようになっている。このように、発散の少ない強い単色波を、雑音の少ない環境で精度よく使用できる利点は多くの人の認める所である。

使用したモノクロメーター結晶は、たんざく形のCu片を水平な軸のまわりにはり合わせて、回折した単色波が縦方向に収れんするようにしたものである。³⁰⁷ その002表面反射で、168 Åの波長を選択した。試料直前の中性子線束密度は、 $10^7 \text{ n/sec} \cdot \text{cm}^2$ と、非常に高い。ちなみに、第二章の実験に用いられたJRR-2に設置してあるトポグラフィ装置においては、線束密度はおおよそ $10^5 \text{ n/sec} \cdot \text{cm}^2$ である。

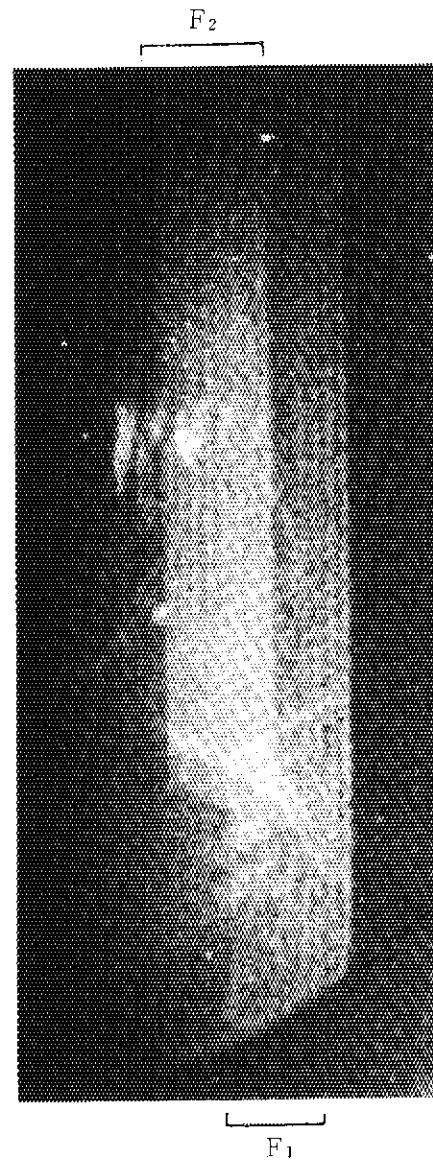
この装置によると、Siの完全結晶のロッキングカーブを作る場合も、1時間程度で180°なり360°のカーブを連続回転方式で、充分なS/N比で作れた。またトポグラフも、Kodak社製歯科用X線フィルムの背面にGd箔を密着させる方式で、一枚15時間程度で撮影された。なお、本実験においては、トポグラフのS/N比を上げるために、現像したフィルムの前面側（試料側）の乳剤を削り落とした。

3.2.4 結果と解析

初めに、A部分に対する11 $\bar{1}$ 反射のトポグラフを撮った。このとき、B部分には対応する反射が存在しないので、B₁およびB₂は何も写らない。この様子は第3.2.3図に示す通りであり、図中の破線は、B部分の外形を示す。

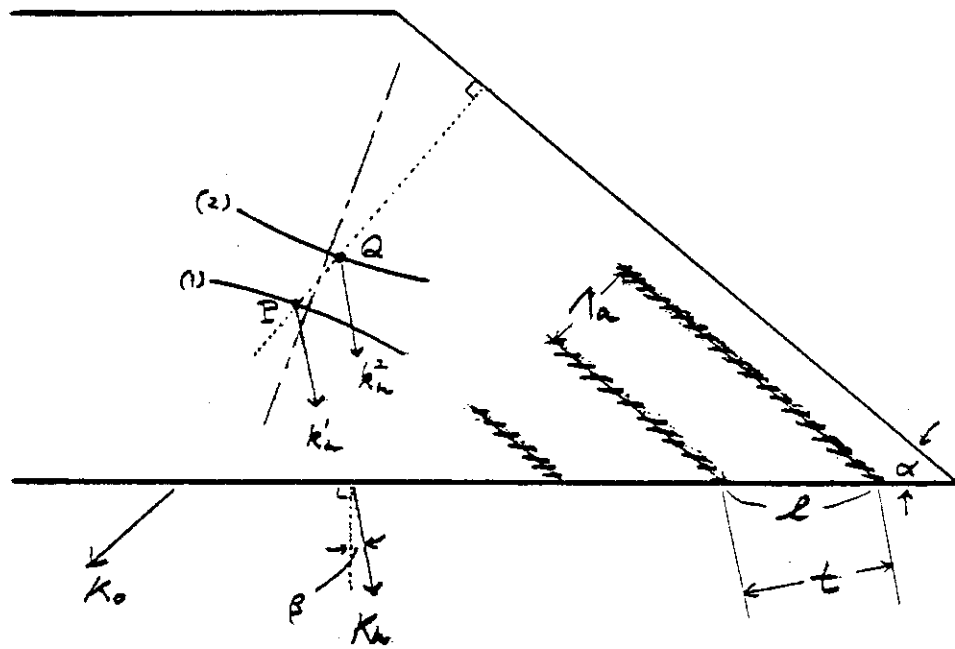
特徴的なことは、二種類の干渉縞が写っていることである（F₁の部分、F₂の部分）。このうちF₁の干渉縞は、双晶境界を境にしてB₁部分がoff-Braggのため物質が存在しないのと同じであり、従ってA部分が双晶境界で楔形に区切られたことにより発生したものである。F₁と一部重なって存在するF₂の干渉縞は、同様にB₂の部分がoff-Braggのために生じた等厚干渉縞である。縞間隔は、F₁、F₂とも約180 μmである。

さて、この場合の波動場においては、動力学的回折理論の帰結として、第3.2.4図のように4つの波動ベクトルが存在している。^{308,309} これは、（二波近似の場合に）分散面上の二つの伝波点 $\mathbf{k}_0^i$ と回折波 $\mathbf{k}_h^i$ とを生ずるためである。その結果、結晶内には四つの波動ベクトルの種々の組み合わせによる干渉が生ずることは動力学理論の重要な結論の一つである。そのうち、二つの回折波 $\mathbf{k}_h^1$ と $\mathbf{k}_h^2$ との間の干渉の結果、両波動ベクトルの差に垂直な方向、すなわち入射表面に平行に干渉縞が存在する。その様子は、第3.2.4図の中に平行線で示されるように、入射側の試料表面に振幅の節をもち、周期は一般に非対称の場合の消衰距離 Λ_a である。 Λ_a は、次式で与えられる。^{123,126}



第3.2.3図

A部分の $11\bar{1}$ 反射によるトポグラフ。このとき、 B_1 や B_2 には反射が生じないので、物質が存在しないのと同じでA部分の双晶界 T_1 の部分、および t_1 , t_2 で区切られる部分が楔形結晶（楔角約 40° ）になり、等厚干渉縞が観察される。像a, bについてはp.84 参照。



107,308

第3.2.4図 干渉縞の間隔を導く説明図。

結晶内には、左方に示すように反射面（一点鎖線）を対称軸とする分散面が描けて、入射側結晶面の法線との交点により二つの伝波点P, Qが存在する。それぞれに入射波ベクトルと回折波ベクトルが励起される。このうち、回折波ベクトル $k_h^{(1)}, k_h^{(2)}$ の差（表面法線に平行）に起因する干渉縞が、入射側結晶面に平行にできる（図右方の太線）。その間隔を Λ_a , 出口表面上の間隔を l とすると、フィルム上の間隔 t が与えられる（本文3.2.4式）。

$$\Lambda_a = \sqrt{r_0 \cdot r_h} \pi V / \lambda \cdot F_h \quad (3.2.2)$$

ここで、

r_0, r_h : 入射波および回折波が入射側結晶表面の法線となす方向余弦で、対称反射の場合は $r_0 = r_h = \cos \theta_B$ である。

V : 単位胞の体積,

λ : 使用波長,

$F_h = F_{11\bar{1}} = 4\sqrt{2} \cdot b \cdot \exp(-W_{11\bar{1}})$ は $11\bar{1}$ 反射に対する構造因子で、 b は Si の核散乱振幅, $\exp(-W_{11\bar{1}})$ は、 $11\bar{1}$ 反射のディバイワラー因子である。

このとき、回折線に垂直におかれたフィルム上の縞間隔 t は、試料結晶の出射側表面上の縞間隔 l の投影である。従って、

$$l = t / \sin \alpha \quad (3.2.3)$$

の関係を用いて、

$$t = \Lambda_a \cos \beta / \sin \alpha \quad (3.2.4)$$

の関係が得られる。¹²⁶ ここで、 $b = 4.15 \times 10^{-12} \text{ cm}$, ¹⁵³ および $\exp(-W_{11\bar{1}}) = 0.988$ ¹⁵³ を用いると、フィルム上の縞間隔の計算値として、 $t = 185 \text{ } \mu\text{m}$ が得られ、先の実測値とよく一致している。

なお、(3.2.4)式は一般的な関係式であるが、楔角 α が小さくて、対称反射の場合には、同式の因子を

$$\cos \beta / \sin \alpha \rightarrow \cos \theta_B / \tan \alpha \quad (3.2.5)$$

とおきかえることによって、従来用いられた関係式^{148,150}にまったく一致することがわかる。

次に、双晶界における可干渉性 (coherency) を点検する意味で、高次の $33\bar{3}$ 反射を用いてトポグラフを撮った (第3.2.5図)。この図では、先の $11\bar{1}$ トポグラフで欠落していた B_1 , B_2 部分もよく写っている。その原因は、A部分で $33\bar{3}$ 反射を生じる配置では、Bの部分で $11\bar{5}$ 反射を生ずるからである。すなわち、AとBの指数よみかえの変換行列 T_{AB} (3.2.1'式) を用いて

$$\frac{1}{3} [33\bar{3}]_A \begin{pmatrix} 1 & -2 & -2 \\ -2 & 1 & -2 \\ -2 & -2 & 1 \end{pmatrix} = [11\bar{5}]_B \quad (3.2.6)$$

であることから、A部分のベクトル $[33\bar{3}]_A$ とB部分のベクトル $[11\bar{5}]_B$ は、方位と長さが共に等しいことがわかる。

従って、同一の配置で、A部分で $33\bar{3}$ 反射が生じる時は、同時にB部分で $11\bar{5}$ 反射が生じることになる。しかも、このとき構造因子はどちらの部分でも $F_{11\bar{5}} = F_{33\bar{3}} = 4\sqrt{2}b$ で等しい。また、ブラッグ角がA, B双方で等しいので、ディバイワラー因子も等しい。

以上の理由で、Aと B_1 , B_2 の各部とはトポグラフ上で識別できないことがわかる。また、試料結晶全体にわたって厚さがほぼ均一なので、その他の等厚干渉縞が期待されないことは勿論である。

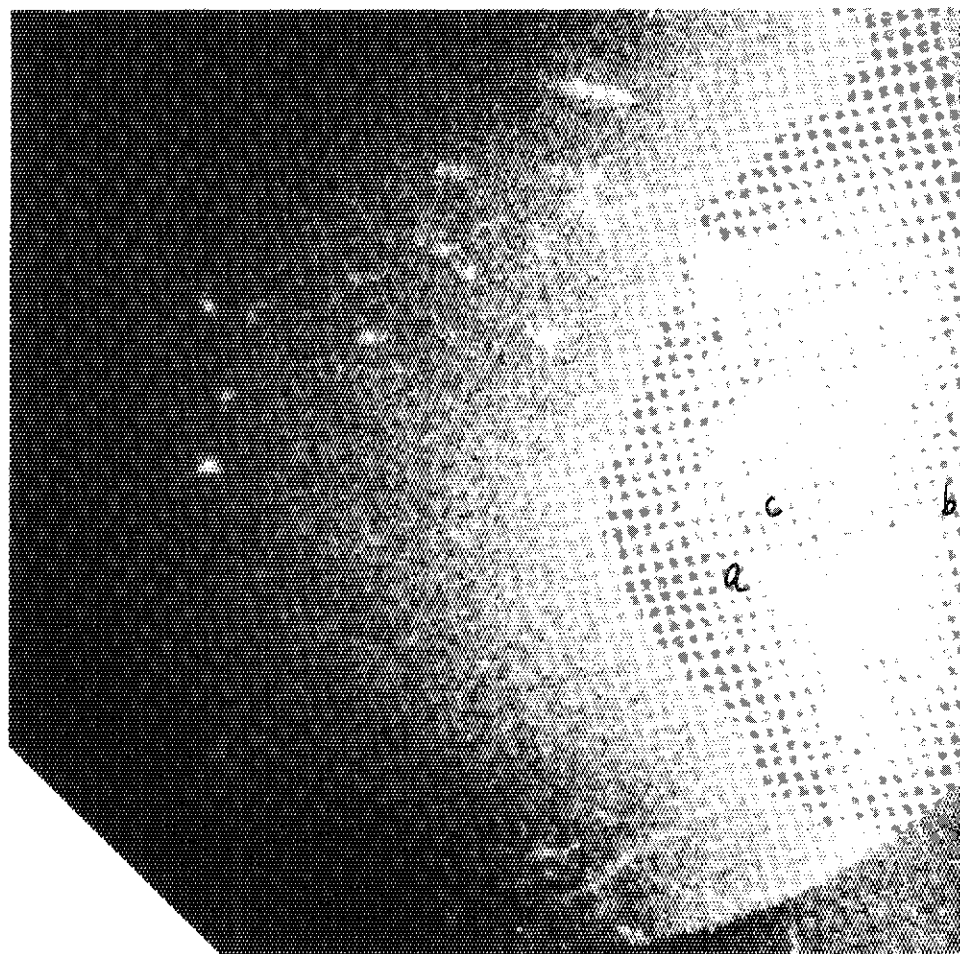
実際に第3.2.5図において、A, B_1 および B_2 の間に特別な強度差は見られず、各部分が可干渉的に接続していることがわかる。この性質は、更にうすく切出した別の試料において、XDTでも確認された。このように、たがいに双晶関係にある二つの寸法の大きい結晶が、双晶面を境界として光学的に可干渉であることを、直接的に実証した実験は例がなく、本研究で初めて得られた知見である。

他方、第3.2.3および5図において、いくつかの欠陥像が見られる (a, b, c など)。このうち、a は、A部分と B_2 部分を区切る境界の一つであるが、撮影されたすべてのトポグラフにおいてコントラストが得られた。このことは、a が t_1, t_2 のような正常な双晶境界の性質をもたない特異な境界であることから、格子歪みが集中していることが十分に考えられる。

b, c は、それぞれAおよび B_1 に存在するもので、恐らく転位線の像であると思われるが、確認はしていない。

3.2.5 まとめ

本研究では、Si 双晶の境界の性質がNDTで研究された。その結果、(111)の指数をもつ双晶界の両側は、可干渉的に接続していることがわかった。そして、 B_2 部分のように、途中で終っている双晶部分と、母体との間の三つの境界 (t_1, t_2 および a) のうち、一つの境界 (a)



第 3.2.5 図 同時反射によるトポグラフ

A部分の $3\bar{3}\bar{3}$ 反射を生じさせると、同時に B_1 や B_2 部分において $11\bar{5}$ 反射が生ずる。両方の反射強度が等しいので、双晶関係にある双方とも全く同じように写る。

以上のことは、厳密に成り立つので、トポグラフ画像の均一性から、A～ B_1 、 B_2 部分の可干渉性を判別できる。 本文参照。

には、格子歪みが集中していることがわかった。このように、双晶などの比較的巨視的な結晶構造の研究にNDTは適していることがわかった。

また本研究によって、楔角 40° という大きな傾角をもつ結晶において、等厚干渉縞が得られた。これは、ビームガイド方式で、線束の発散を抑える装置によってなしとげられたことである。因みに、同一試料を原研のJRR-2の装置を用いて、第二章の後半と同じく、2.5'のコリメーターとPGモノクロメーターの組み合わせで追試験したが、等厚干渉縞の一本一本の識別は非常に困難であった。

なお、中性子回折における反射の半値幅（ダーウィン幅）がX線の場合より一桁程度も小さいこと（1.2.3項参照）を考慮すれば、試料結晶の前にもう一つの完全結晶を用いて、双晶界の両側の部分の可干渉性を更に精度よく検証できよう。

第四章 結 言

回折トポグラフィが、結晶性物質の内部構造の直接観察に多大な威力を発揮し得ることは、**TEM**（透過電子顕微鏡）や**XDT**（X線回折トポグラフィ）の例で明らかである。

本研究は、プローブとして熱中性子を用いた**NDT**（中性子回折トポグラフィ）を開発し、その特徴を生かした応用を図ったものである。**NDT**の原理的な特徴は、熱中性子の物質との相互作用における特徴に起因する。それは第一章 1.2 節でまとめられたように、X線や電子線に較べて、物質（原子核）との相互作用の程度が弱く、吸収の程度も弱い。従って大型試料の観察に適しており、今日作製され得るすべての結晶性試料は、切り出す必要もなくそのまま非破壊的に観察可能であると言える。もう一つの特徴は、中性子が磁気モーメントを有することである。磁性体の直接観察は今や、**NDT**の独壇場である。偏極中性子を用いれば、更に有用である。このような特徴を有する**NDT**は、その観察対象に関して**TEM**や**XDT**と全く相補的であり、独自の応用領域を有するものである。

かかる原理的長所を有する**NDT**の回折論的な信頼性は、本研究を通じて明らかにされた。すなわち、従来から用いられていたペンデル縞の観察による照合という方法で、Si 双晶境界における約 40° という楔角結晶部分において、動力学的回折理論によく合致した周期をもつ等厚干渉縞が明瞭に観察された。また、Cu-5%Ge 合金単結晶の観察を通じて得られた下部組織のモデルに、二次消衰回折理論を適用することにより、二重像(第 2.4.5 項参照)など、積分回折強度の場所的な差異とその挙動がよく説明された。

一方、**XDT**像との照合が行なわれ、下部組織の構造が追認された。その際、X線の銅に対する透過能は小さいので、一断面に対する反射法のみが可能であった。従って、**XDT**像は極めて表面に近い部分のみの情報であり、透過法による**NDT**像とは異った像質であった。

本研究においては、いくつかの技法的な工夫が成功裡に試みられた。中でも、セクショントポグラフ（断層撮影法）はすでに**XDT**でも一定の目的で実用されているが、**NDT**では特に、試料中の任意の部分と回折方向に、仮想的な断面を設定して、その仮想的な“切口”を直接観察できるという点で、中性子の透過能の大きいことが典型的に生かされる。また、端視法（Edge-on View）は二次元的な広がりをもつ構造を観察するのに有力な技法であるが、本研究では特に、二つの独立した指数をもつ二次元構造を同時に端視法で観察することが行なわれた。この方法は、熱中性子の波長分布が広いことを利用して、必要な波長を任意に選び出すことによって実現されたもので、特性線を用いる一般の**XDT**では一般的には望み得ないものである。この同時端視法は、先に明らかにされた一つの二次元構造を基礎にして、別の二次元構造を観察し確認するのに非常に有効であった。また、巨視的なブラッグピークによるトポグラフ撮影のみでなく、そのピークの近辺で試料角をわずかずつ外してトポグラフを撮影することも、本試料のようにある程度複雑な下部組織を有する試料の観察においては有力であることがわかった。この技法の考え方は、ディフラクトメトリーとトポグラフィとを有機的に結合したものであり、**TEM**などで行なわれている制限視野回折の技法に対応する技法であると言える。

このようにして、人工的に大きな歪み場を与えた Ge 単結晶を用いて開発された **NDT** 技法（第三章 1 節）が、Cu - 5% Ge 合金単結晶の下部組織（Substructure）を、あますところなく明らかにするのに活用された（第二章）。その結論は、結晶成長の議論に相当の寄与をするものと思われる。すなわち、従来個別に提唱され議論されてきた種々の下部組織を、樹板状晶を基礎にして統一的に議論すべきであるという立場を支持するものと考えられる。

また、Si 双晶の観察（第三章 3.2 節）においては、大きな楔角をもつ結晶の非対称反射の場合について、等厚干渉縞の間隔の一般的な表式が用いられ、実測値と照合された。さらにこの双晶で 333 という高次反射を選ぶと、他の双晶片では同時に、115 という反射が全く同じ強さで生ずることが明らかにされ、この事実を利用して双晶境界の両側が可干渉的に連続していることが確認された。

以上のように、本研究を通じて **NDT** の威力と信頼性が実証された。今後、他の直接観察手段（**TEM**, **XDT** など）との相補的な特徴を生かして、研究手段としての一層の応用と発展が期待される。

その一つが、結晶の下部組織や、双晶、成長欠陥など、スケールの大きい構造の直接観察の分野にあることは明らかである。また一つは、磁性体研究への応用であることも明らかである。

特に、スケールの大きい対象を選ぶ場合、分解能への要請が緩和されて、**NDT** の長所が発揮され易くなる。同時に、T. V. 方式による観察も容易となり、応用範囲が広がることになる。

今後、ビームガイド方式を装着した高線束炉を用いて S/N 比を上げ、結像系の改善を行い、そして研究対象に応じた分解能を実現することにより、結晶性物質の内部構造の、非破壊的な直接観察に、**NDT** がかけがえのない力を発揮する可能性は大きい。

謝 辞

東京理科大学の高木佐知夫教授には、**XDT** の御指導をいただき、さらに **NDT** による本研究に対し 深い関心と激励をいただき、心から感謝します。

東京大学の藤本文範教授には、本研究に対する一貫した励ましと御指導、そして本論文の査読をしていただき、心から感謝します。

本論文の大部分は、著者が日本原子力研究所において 1971 年から 1980 年にかけて行った研究をまとめたものである。

この研究の主要な手段である **NDT** を先駆的に試み、開発され、その後も本研究に一貫して有益な助言と激励を下され、さらに本論文を詳細に査読して下さった土井健治博士に深く感謝します。

また、小沢国夫博士には、本論文をまとめるにあたり、種々の御配慮をいただき、深く感謝します。

鎌田耕治博士（現名古屋大学教授）には、本研究のために種々の試料結晶を提供していただき、また結晶成長の面で有益な指導と助言をいただき、心から感謝します。また、積分回折強度の計算において、精度のよい積分コード（ガウス 96 分点法）を紹介された千原順三博士にも感謝し

このようにして、人工的に大きな歪み場を与えた Ge 単結晶を用いて開発された **NDT** 技法（第三章 1 節）が、Cu-5% Ge 合金単結晶の下部組織（Substructure）を、あますところなく明らかにするのに活用された（第二章）。その結論は、結晶成長の議論に相当の寄与をするものと思われる。すなわち、従来個別に提唱され議論されてきた種々の下部組織を、樹板状晶を基礎にして統一的に議論すべきであるという立場を支持するものと考えられる。

また、Si 双晶の観察（第三章 3.2 節）においては、大きな楔角をもつ結晶の非対称反射の場合について、等厚干渉縞の間隔の一般的な表式が用いられ、実測値と照合された。さらにこの双晶で 333 という高次反射を選ぶと、他の双晶片では同時に、115 という反射が全く同じ強さで生ずることが明らかにされ、この事実を利用して双晶境界の両側が可干渉的に連続していることが確認された。

以上のように、本研究を通じて **NDT** の威力と信頼性が実証された。今後、他の直接観察手段（**TEM**, **XDT** など）との相補的な特徴を生かして、研究手段としての一層の応用と発展が期待される。

その一つが、結晶の下部組織や、双晶、成長欠陥など、スケールの大きい構造の直接観察の分野にあることは明らかである。また一つは、磁性体研究への応用であることも明らかである。

特に、スケールの大きい対象を選ぶ場合、分解能への要請が緩和されて、**NDT** の長所が発揮され易くなる。同時に、T. V. 方式による観察も容易となり、応用範囲が広がることになる。

今後、ビームガイド方式を装着した高線束炉を用いて S/N 比を上げ、結像系の改善を行い、そして研究対象に応じた分解能を実現することにより、結晶性物質の内部構造の、非破壊的な直接観察に、**NDT** がかけがえのない力を発揮する可能性は大きい。

謝 辞

東京理科大学の高木佐知夫教授には、**XDT** の御指導をいただき、さらに **NDT** による本研究に対し 深い関心と激励をいただき、心から感謝します。

東京大学の藤本文範教授には、本研究に対する一貫した励ましと御指導、そして本論文の査読をしていただき、心から感謝します。

本論文の大部分は、著者が日本原子力研究所において 1971 年から 1980 年にかけて行った研究をまとめたものである。

この研究の主要な手段である **NDT** を先駆的に試み、開発され、その後も本研究に一貫して有益な助言と激励を下さり、さらに本論文を詳細に査読して下さった土井健治博士に深く感謝します。

また、小沢国夫博士には、本論文をまとめるにあたり、種々の御配慮をいただき、深く感謝します。

鎌田耕治博士（現名古屋大学教授）には、本研究のために種々の試料結晶を提供していただき、また結晶成長の面で有益な指導と助言をいただき、心から感謝します。また、積分回折強度の計算において、精度のよい積分コード（ガウス 96 分点法）を紹介された千原順三博士にも感謝し

ます。

なお、X線出身の著者に、中性子実験の面で種々の援助と協力をして下さった固体物理系三研究室の皆様に深く感謝します。同時に、原子炉の順調な運転のために昼夜を分たず尽力しておられる JRR-2, JRR-3 管理課の皆様に感謝します。

なお、本研究の XMA の実験は日本電子昭島工場で、X線マイクロラウエ写真の実験は理学電機 K. K. で、それぞれ協力していただいたことを、併せて感謝します。

最後に、同学の士として著者と種々の有益な議論をし、また種々のトポグラフ写真を送って下さったフランス CNRS (グルノーブル) の M. Schlenker 博士、パリ大学の C. Malgrange 博士に対し、心から感謝します。

なお、本研究第三章第 3.2 節の実験の遂行においては、著者の実験申込を快よく受入られた ILL 当局、特に実際の実験遂行に多大の援助を下された C. Zeyen 氏、および経済的支援を下された「吉田科学技術財団」のお世話になりました。

附録 中性子トポグラフィにおける分解能の評価

A. 入射波の特性による分解能^{*)}

入射波に含まれる角度の広がり、これに対応した波長の広がりにより、試料中の微小部分の像が広がって記録されることにより分解能が落ちることを見積る。

第2.3.1図に示された基本構成のうち、原子炉、第1コリメーター及びモノクロメーターによって特性づけられる試料への入射波を吟味する。

次の四点を仮定する。

- 1) 原子炉内における熱中性子の速度分布は、Maxwell 則に従い、かつ単位時間当り炉壁から観測系に入射する割合は速度Vに比例するから、結局

$$f(\lambda) = \exp[-B^2/\lambda^2] / \lambda^5 \quad (A1)$$

が単位時間当り、波長 λ の熱中性子が第1コリメーターに入射する割合を与える。

- 2) 角度開き α をもつ第1コリメーターを通過した熱中性子は、モノクロメーター結晶表面の各点に均一な強度及び運動量分布をもって入射し、その主入射方向から ϕ だけ傾いた入射線の相対比率は、次の如き三角分布で与えられる。

$$\left. \begin{aligned} g(\phi) &= (1 - |\phi|/\alpha) \cdots \cdots |\phi| \leq \alpha \text{ のとき} \\ g(\phi) &= 0 \cdots \cdots |\phi| > \alpha \text{ のとき} \end{aligned} \right\} \quad (A2)$$

- 3) モノクロメーター結晶はモザイク性をもち、平均方向から η だけ傾いたモザイク小片の存在分率は、

$$h(\eta) = \exp[-\eta^2/2m] / \sqrt{2\pi m} \quad (A3)$$

で与えられる。²²³ ここでモザイク性の程度を表わす量としてmが用いられた。

- 4) 試料結晶は理想的に完全で、ブラッグ反射はブラッグ角においてのみ実現する。ただし、試料は十分薄いものとする。

モノクロメーターからの回折角が主方向より Δ だけ外れた波について考える(第A1図)。即ち、入射主方向からの角度外れ ϕ をもつ入射波が、傾き η をもつモザイク小片によって回折される場合である。

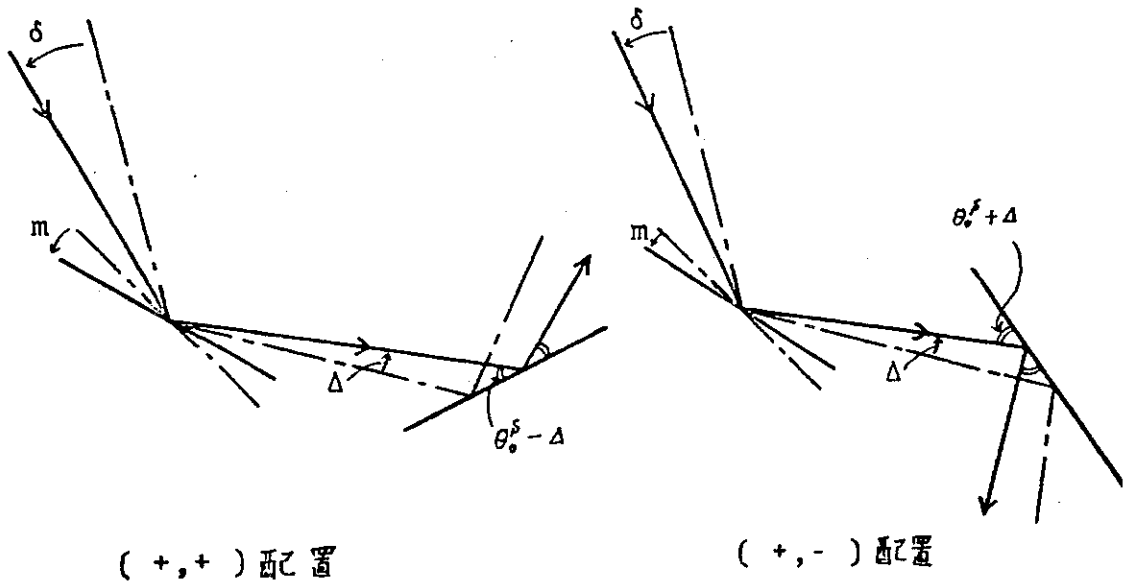
簡単な考察により主方向から Δ だけ外れて試料に入射して回折される波の強度は、 Δ のみの関数として一義的に決まる量 $\lambda_{\Delta}^{\pm}$ 、 $\phi_{\Delta}^{\pm}$ 及び $\eta_{\Delta}^{\pm}$ を用いて表わされ、^{**) これを $I^{\pm}(\Delta)$ とすると、適当な定数因子Aを用いて、}

$$I^{\pm}(\Delta) = A \cdot f(\lambda_{\Delta}^{\pm}) \cdot g(\phi_{\Delta}^{\pm}) \cdot h(\eta_{\Delta}^{\pm}) \quad (A4)$$

で表わされる。ここで関数 $f(\lambda)$ 、 $g(\phi)$ 、 $h(\eta)$ はそれぞれ(A1)、(A2)、(A3)式で与え

^{*)} 本考察は、特に第4の仮定により、運動学的な場合に適用される。

^{**) 土は、それぞれ+配置、-配置に対応する。}



第A.1図

モノクロメーターからの出射角が Δ だけ外れた単色波に対する角度の関係。一点鎖線が基準になる平均的な配置であり、実線が角度開き δ 、モザイク傾角 m によって基準の配置から Δ だけ外れたビームの径路を示す。 $+$ 配置、 $-$ 配置に伴ない、試料への入射角は $\theta_0^s - \Delta$ 、 $\theta_0^s + \Delta$ となる。

られ、変数 $\lambda_{\Delta}^{\pm}$ 、 $\phi_{\Delta}^{\pm}$ 、 $\eta_{\Delta}^{\pm}$ は

$$\lambda_{\Delta}^{\pm} = \lambda_0 (1 \mp \Delta \cdot \cot \theta_0^s) \quad (\text{A } 5)$$

$$\phi_{\Delta}^{\pm} = (1 \pm 2a) \cdot \Delta \quad (\text{A } 6)$$

$$\eta_{\Delta}^{\pm} = (1 \pm a) \cdot \Delta \quad (\text{A } 7)$$

ただし、 a は前述 (P. 52, 第2.8.6式) と同じく、

$$a \equiv \tan \theta^M / \tan \theta^s \quad (\text{A } 8)$$

である。

従って、結像ビームの強度分布 $I^{\pm}(\Delta)$ の性質は、(A 8) 式の a の値に支配される。

(A 6) 式、(A 7) 式から明らかに (+), (-) いずれの配置の場合も、 a を大きくとることが分解能の向上に役立つと思われる。

ここで角度分解能 Δ_0 を

$$\frac{I(\Delta_0/2) + I(-\Delta_0/2)}{I(0) + I(-\Delta_0)} = 0.7 \quad (\text{A } 9)$$

で定義すれば、 (α, m) のいくつかの組み合わせについて、(+), (-) 配置に伴い、次の如き値を得る (第A1表)。なお、最右欄の分解能は、試料とフィルムの距離を 10 cm とし、

$$\begin{aligned} (\text{分解能}) &= (\text{角度分解能}) \\ &\times (\text{試料} \cdot \text{フィルム間距離}) \end{aligned}$$

の関係を用いた。

我々の実験では、^{*}) 30'のコリメーターと、ロッキングカーブの半値幅が30'のモザイク性をもつCuモノクロメーターを用いて、(-)配置にしたので、 $a = 1.6$ で、分解能はおよそ 0.5 mm である。

第 A-1 表

配置	(α , m)	角度分解能	分解能
(+) 配置	(5' , 10')	} 5.0×10^{-4} rad	} 50 μ
	(5' , 30')		
	(30' , 10')	2.8×10^{-3} "	280 "
	(30' , 30')	3.1×10^{-3} "	310 "
(-) 配置	(5' , —)	1.5×10^{-3} "	150 "
	(30' , —)	9.2×10^{-3} "	920 "

*) 第三章第 1 節の研究である。

B. 写真系固有の分解能

中性子トポグラフィーの写真系は通常、フィルムの前後に変換系が介在するため、フィルム固有の分解能（専ら、乳剤粒度による）とは異った、写真系全体の分解能が考慮されねばならない。

これを考察するに際して、以下の6点を仮定する。

- 1) 中性子線は、写真系に垂直に入射し、吸収を受けながら直進し、変換体内の進路上の至る所で変換体原子に (n, γ) 反応を生ぜしめる。
- 2) γ 線は、変換体原子から球面波として発生し、吸収を受けながら発散し、フィルムの前後両面にある乳剤を感光させる。
- 3) フィルムの乳剤粒子は十分に細かく、従ってフィルム固有の分解能は考慮しなくてよいとする。
- 4) フィルムの感光については、乳剤の厚さ方向の黒化度分布を無視し、乳剤の半分の厚さの所における γ 線強度に比例した黒化度分布を考える。
- 5) フィルム中における中性子及び γ 線の吸収係数は、フィルム基材中と乳剤中とで同一であると考ええる。
- 6) 中性子線による直接感光は無視する。

以上の仮定のもとに、1本の線として入射した中性子線による γ 線の、フィルム乳剤面上の入射点からの距離の関数として強度分布を検討する。

なお、以下の考察で用いられている諸量は (B・1) 図に示されている。即ち、 D_i は厚さ、 μ_1^n , μ_1^γ はそれぞれ、中性子線及び γ 線の線吸収係数で、 $i = 1, 2, 3$ はそれぞれ、前面変換体、後面変換体及びフィルムに対する値であることを示す。また、フィルム乳剤の厚さは、前後面とも $2a$ であり、フィルム基材の厚さは b とする。

初めに、(B・2) 図の如き座標系をもとに、前面変換体で発生した γ 線による、前面乳剤の黒化度分布を求める。 I_0 の強度の中性子線が変換体表面の点 0 に入射する時、深さ x の点 P では、吸収の結果、

$$I_0 \cdot e^{-\mu_1^n x} \quad (B-1)$$

の強度になっており、この変換体の単位体積当りの γ 線発生率を R_1^* とすると、点 P 近傍の深さ $x \sim x + dx$ で発生する γ 線の強度は

$$I_0 \exp[-\mu_1^n x] R_1 dx \quad (B-2)$$

で与えられる。

*) R は、単位体積中の原子数 n 、そのうち (n, γ) 反応を行う核種の存在比 τ 、及びこの核種の

(n, γ) 反応の断面積である σ の積で、 $R = n \sigma \tau$ 、と与えられる。

なお、いくつかの核種 j が (n, γ) 反応を行うときは、 $R = n \sum_j \sigma_j \tau_j$ となる。

他方、P 点で発生した単位量の γ 線は、(B-2) 図の乳剤面上の点 Q において、球面波としての発散及び進行中に受ける吸収の結果、PQ に垂直な面で単位面積当り

$$\frac{\exp[-\mu_1^{\gamma}(D_1-x)C_1] \cdot \exp[-\mu_3^{\gamma}aC_1]}{4\pi(D_1-x+a)^2 \cdot (C_1)^2} \quad (B-3)$$

で表わされる強度をもつ。ただし、 C_1 なる量は

$$C_1 \left(\equiv \frac{1}{\cos \theta} \right) = \frac{\sqrt{(D_1-x+a)^2 + y^2}}{D_1-x+a} \quad (B-4)$$

である。乳剤面上 Q における単位面積当りの強度は、(B-3) 式に $\cos \theta = 1/C_1$ をかけて得られるから、結局、前面変換体の深さ $x \sim x+dx$ にある点 P の近傍で発生した γ 線による前面乳剤の黒化度分布は、(B-2)、(B-3) 両式の積を C_1 で除したもので与えられ、これを $I_1^1(x, y)dx$ とおくと、

$$I_1^1(x, y)dx = \frac{I_0 R_1}{4\pi} \cdot \frac{\exp[-\mu_1^n x] \cdot \exp[-\mu_1^{\gamma}(D_1-x)C_1] \cdot \exp[-\mu_3^{\gamma}aC_1]}{\{(D_1-x+a)^2 + y^2\} \cdot C_1} \quad (B-5)$$

で与えられる。従って、(B-5) 式を前面変換体のすべての深さについて和をとることにより前面変換体で発生した γ 線による前面乳剤の黒化度分布で与えられ、これを $I_1^1(y)$ と書くと、

$$I_1^1(y) = \frac{I_0 R_1}{4\pi} \int_0^{D_1} \frac{\exp[-\mu_1^n x] \cdot \exp[-\mu_1^{\gamma}(D_1-x)C_1] \cdot \exp[-\mu_3^{\gamma}aC_1]}{\{(D_1-x+a)^2 + y^2\} \cdot C_1} dx \quad (B-6)$$

である。ただし、上式中の C_1 は (B-4) 式で与えられる。

同様に後面乳剤の黒化度分布 $I_1^2(y)$ 、後面変換体による前面乳剤の黒化度分布 $I_2^1(y)$ 、後面乳剤の黒化度分布 $I_2^2(y)$ などを導出し、それらすべての和が総合的な黒化度分布を与え、これを $I(y)$ とすると、

$$I(y) = I_1^1(y) + I_1^2(y) + I_2^1(y) + I_2^2(y) \quad (B-7)$$

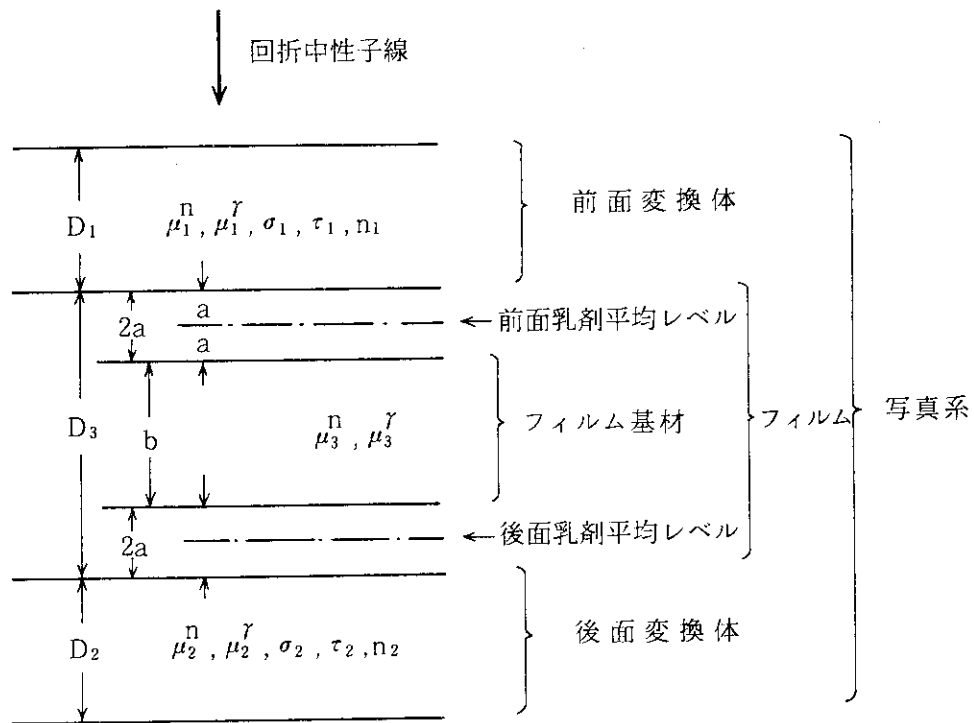
である。

今、(10Rh-2Gd) 変換系の場合について、Rh 板を前面においただけの場合 ($I_1^1(y) + I_1^2(y)$) と、後面の Gd 板だけによる場合 ($I_2^1(y) + I_2^2(y)$) とを計算してグラフ化すると、(B-3) 図が得られる。図の横軸 y は、乳剤面上の入射点からの距離であり、縦軸は任意の単位で示された黒化度 (γ 線強度) である。なお、2つの曲線の絶対値の違いは無視される。

ただし、上記の数値計算には、次の値が用いられた。

$$\begin{aligned} D_1 &= 0.025 \text{ cm}, \quad D_2 = 0.005 \text{ cm}, \quad D_3 = 0.02 \text{ cm}^{A1}, \quad a = 0.001 \text{ cm}^{A1}, \\ \mu_1^n &= 6.6 \text{ cm}^{-1 \text{ }^{224}}, \quad \mu_2^n = 576.3 \text{ cm}^{-1 \text{ }^{224}}, \\ \mu_1^{\gamma} &= 1.84 \text{ cm}^{-1 \text{ }^{A2}}, \quad \mu_2^{\gamma} = 3.68 \text{ cm}^{-1 \text{ }^{A2}}, \quad \mu_3^{\gamma} = 0.132 \text{ cm}^{-1 \text{ }^{A2}} \end{aligned}$$

この結果、(A-9) 式の判定基準を用いて、それぞれの場合の分解能として、Rh の場合で $44 \mu\text{m}$; Gd の場合で $32 \mu\text{m}$ を得た。従って、合成分解能は $40 \mu\text{m}$ 程度であると考えられ、



第B.1図

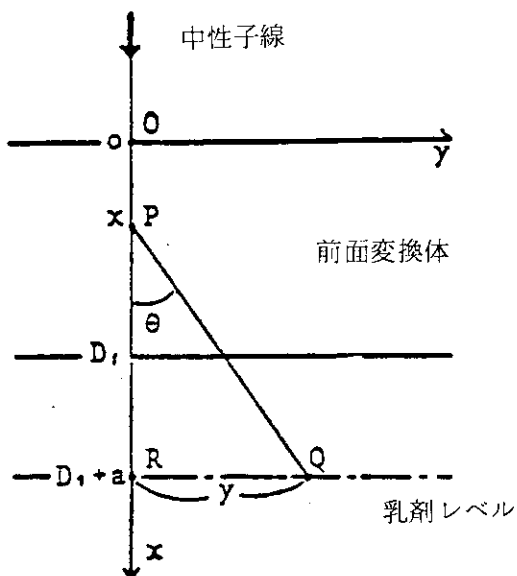
二重スクリーン変換系を用いた写真系の概念図

分解能の考察で使用する記号は、次の通りである。

D_i は変換体やフィルムの厚さ、 μ_i^n 、 μ_i^γ はそれぞれ、中性子及び γ 線の線吸収係数で、添字 i で物質が区別される。

$i = 1, 2, 3$ はそれぞれ、前面変換体、後面変換体及びフィルムに対する値である。また、フィルムの乳剤は前後両面にあり、いずれも厚さ $2a$ であるとし、乳剤の黒化度は乳剤の中間厚さの所（平均レベル）の γ 線強度（面密度）に比例するとして計算した。

なお、 Q_i の計算に使われる σ_i 、 τ_i 、 n_i はそれぞれ本文脚注を参照。



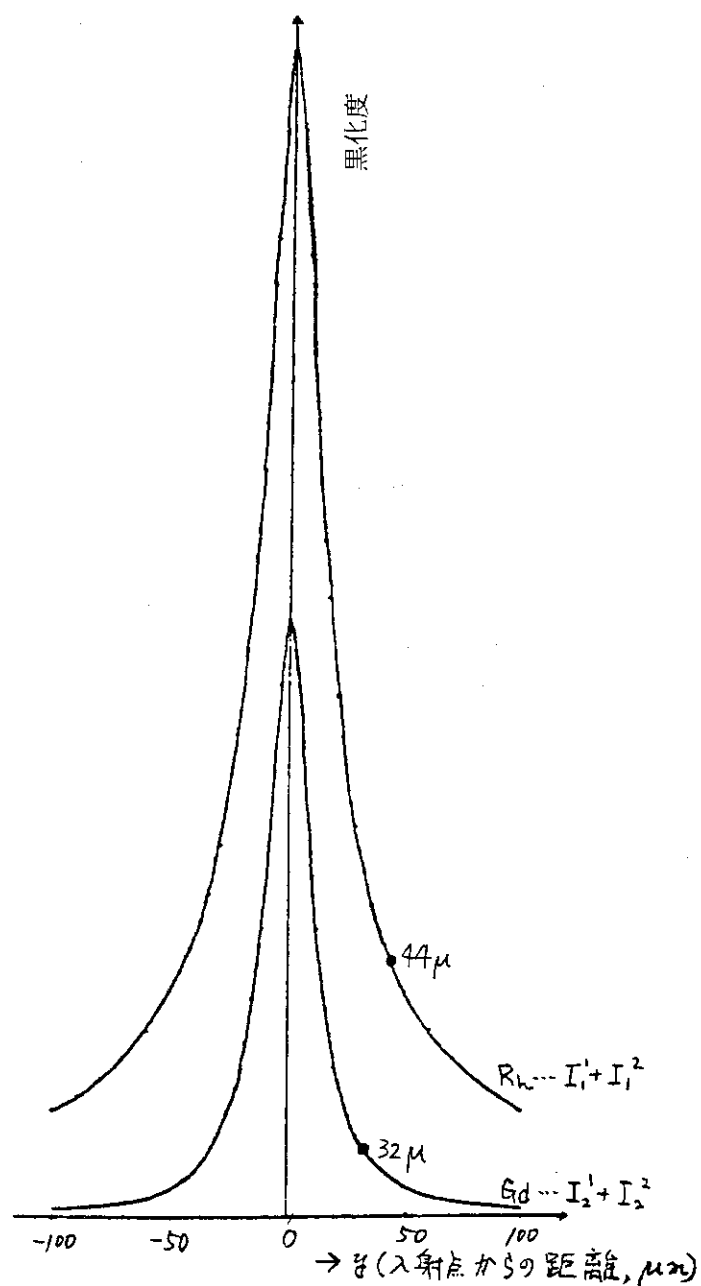
第B.2図

前面変換体による γ 線強度の、前面乳剤レベルにおける分布を求める座標系。

$a \rightarrow (D_3 - a)$ の置換により、後面乳剤の場合に対する座標系となる。

現状では A で考察した入射波の特性による分解能よりも小さいが、将来は無視できない値であると思われる。

なお、 γ 線がフィルムによって吸収を受ける結果、変換体から遠い方の乳剤の黒化度 ($I_1^2(y)$ 及び $I_2^1(y)$) は、いずれも、近い乳剤の黒化度の 1 パーセント程度であり、無視される。



第B.3図 変換体による像の広がり

本文(B6)式の $I_1^1(y)$ および $I_1^2(y)$, $I_2^1(y)$, $I_2^2(y)$ などにより求められたもので、10Rh(前面)のみの場合と、2Gd(後面)のみの場合に関して、1本の線として入射した中性子線が広がって記録される様子が示されている。パラメーターは本文参照。(A9)式により求められた分解能はそれぞれ44 μ , 32 μ で総合しておよそ40 μ であると思われる。

第一章の参考文献

- 101 種々の結晶成長技法については、たとえば
大川章哉：結晶成長（応用物理学選書 2，裳華房，東京，1977），p.225.
- 102 たとえば，
J. Friedel：Dislocations（Pergamon Press, Oxford, 1964）.
- 103 J.B. Newkirk and J.H. Wernick：Direct Observation of Imperfection in Crystals（Interscience Publ., N.Y., 1961）.
- 104 S. Amelinckx：The Direct Observation of Dislocations（Solid State Physics, suppl. 6, ed. by F. Seitz and D. Turnbull, Academic Press, N.Y., 1964）.
- 105 W.C. Dash：Dislocations and Mechanical Properties of Crystals（Wiley-Sons, N.Y., 1957）.
- 106 たとえば，
日本結晶学会誌 vol. 13 no.6（1971）がXDT特集号であり，基本的な解説と豊富な応用例が述べられている。
- 107 B.K. Tanner：X-Ray Diffraction Topography（Pergamon Press, Oxford, 1976）.
- 108 細谷資明：文献106のp.247.
- 109 大川章哉：文献101の序文.
- 110 桐山良一：日本結晶学会誌 vol. 16（1974），p.1.
- 111 A. Authier：X-Ray and Neutron Topography of Solution-Grown Crystals in Crystal Growth and Materials ch.II-3, (eds. E. Kaldis and H.J. Scheel, North-Holland, Amsterdam, 1977）.
- 112 三宅静雄：物質の原子的構造決定法（岩波講座現代物理学Ⅳ，東京，1954），第三章.
- 113 星埜禎男：中性子回折（新物理学進歩シリーズ，槇書店，東京，1964）.
- 114 柿木二郎：X線結晶学，上巻（仁田勇編，丸善，東京，1959），第1部 3章.
- 115 星埜禎男（編）：中性子回折（実験物理学講座22，共立，東京，1976），第1章および第2章.
- 116 BNL-Report 325, 2'nd ed. (1958), 3'rd ed. (1973).
- 117 D.J. Hughes：Neutron Cross Sections（Pergamon Press, Oxford, 1957）.
中性子断面積（産業図書，東京，1966）.
- 118 G. Breit and E. Wigner：Phys. Rev. 49 (1936), 519.
- 119 D.J. Hughes：Neutron Optics（Interscience Publ., N.Y., 1954）.
- 120 J.M. Blatt and V.F. Weisskopf：Theoretical Nuclear Physics（Wiley-Sons, N.Y., 1962），p.391.
- 121 N.F. Mott and H.S.W. Massey：The Theory of Atomic Collisions, 3'rd ed.,（Clarendon Press, Oxford, 1965），p.357.

- 122 G.E. Bacon : Neutron Diffraction, 2'nd ed. (Clarendon Press, Oxford, 1962).
- 123 M. Schlenker : Text book for the International Summer School on X-Ray Dynamical Theory and Topography (Limoges, 1975).
- 124 たとえば,
飯高洋一 : X線結晶学, 下巻 (仁田勇編, 丸善, 東京, 1961), p. 79.
- 125 P.P. Ewald : Acta Cryst. A35 (1979), 1.
- 126 三宅静雄 : X線の回折 (朝倉, 東京, 1969).
- 127 C. Stassis and J.A. Oberteuffer : Phys. Rev. B10 (1974), 5192.
- 128 C.G. Shull : J. Appl. Cryst. 6 (1973), 257.
- 129 G.E. Bacon and R.D. Lowde : Acta Cryst. 1 (1948), 203.
- 130 C.G. Shull : 第9回 国際結晶学会 (京都, 1972) における特別講演.
- 131 M. Schlenker and J. Baruchel : Proc. of the Neutron Diffraction Conf., Pettern, 1975 (RCN=Report 234, 1975), 487.
- 132 A. Authier : Advances in X-Ray Analysis, vol.9 (Plenum Press, N.Y., 1967), p.9.
- 133 A. Authier : Modern Diffraction and Imaging Techniques in Material Sciences (ed. by S. Amelinckx, et al, North-Holland Publ., Amsterdam, 1970), p.481.
- 134 S. Takagi : Acta Cryst. 15 (1962), 1311.
- 135 S. Takagi : J. Phys. Soc. Japan 26 (1969), 1239.
- 136 高木佐知夫 : 文献 106 の p.248.
- 137 F. Balibar and A. Authier : Phys. Stat. Sol. 21 (1967), 413.
- 138 Y. Epelboin : J. Appl. Cryst. 7 (1974), 372.
- 139 Y. Epelboin and A. Lifchitz : *ibid.* 7 (1974), 377.
- 140 H. Berger : Neutron Radiography, Methods, Capabilities and Applications (Elsevier, Amsterdam, 1965), ch.3.
- 141 A. Authier : J. de Physic 27 (1966), 57.
- 142 P.B. Hirsch, et al : Electron Microscopy of Thin Crystals (Butterworths, London, 1965).
- 143 S. Amelinckx : 文献 104 の p.381.
- 144 K. Doi, N. Minakawa, H. Motohashi and N. Masaki : J. appl. Crystallogr. 4 (1971), 528.
- 145 M. Schlenker, J. Baruchel, J.F. Petroff and W.B. Yelon : Appl. Phys. Letters 25 (1974), 382.
- 146 R. Michalec, P. Mikula, L. Sedlacova and B. Chalupa : J. appl. Crystallogr. 8 (1975), 345.

- 147 M. Schlenker, J. Baruchel, R. Perrier de la Bathie and S.A. Wilson :
J. Appl. Phys. 46 (1975), 2845.
- 148 C. Malgrange, et al : Phil. Mag. 33 (1976), 743.
- 149 H. Hattori, H. Kuriyama and N. Kato : J. Phys. Soc. Japan 20 (1965),
1047.
- 150 S. Kikuta, K. Kohra, N. Minakawa and K. Doi : J. Phys. Soc. Japan
31 (1971), 954.
- 151 D. Sippel, K. Kleinstuck and G.E.R. Schulze : Physics Letters 14
(1965), 174.
- 152 C.G. Shull : Phys. Rev. Letters 21 (1968), 1585.
- 153 C.G. Shull and J.A. Oberteuffer : *ibid.* 29 (1972), 871.
- 154 C.G. Shull and W.H. Shaw : Z. Naturforsch. 28a (1973), 657.
- 155 J. Baruchel, M. Schlenker, A. Zarka and J.F. Petroff : J. Crystal
Growth 44 (1978), 356.
- 156 M. Schlenker and J. Baruchel : J. Appl. Phys. 49 (1978), 1996.
- 157 M. Ando and S. Hosoya : Phy. Rev. Letters 29 (1972), 281.
- 158 細谷資明, 安藤正海 : 日本結晶学会誌 vol. 15 (1973), p. 327.
- 159 安藤正海, 細谷資明 : 固体物理 vol. 8 (1973), p. 489.
- 160 M. Schlenker and C.G. Shull : J. Appl. Phys. 44 (1973), 4181.
- 161 M. Ando and S. Hosoya : *ibid.* 49 (1978), 6045.

第二章の参考文献

- 201 藤田英一 : 固体の動力学Ⅱ (金属物性基礎講座 9, 丸善, 東京, 1978), p. 235.
- 202 星埜禎男 (編) : 中性子回折 (実験物理学講座 22; 共立, 東京, 1976), 第 3 ~ 5 章
- 203 D.P. Mitchel and P.N. Powers : Phys. Rev. 50 (1936), 486.
- 204 渡辺 昇 : 日本結晶学会誌 vol. 21 (1979), p. 151.
- 205 たとえば,
菊田惺志 : 日本結晶学会誌 vol. 18 (1976), p. 65.
- 206 W. Soller : Phys. Rev. 24 (1924), 158.
- 207 S.P. Wang, C.G. Shull and W.C. Phillips : Rev. Sci. Instrum. 33 (1962), 126.
- 208 たとえば,
阪上正信 : 粒子線トラックとその応用 (化学の領域選書 6, 南江堂, 東京, 1973).
- 209 H. Berger : Nuclear Techn. 19 (1973), 188.
- 210 J.B. Davidson : J. Appl. Crystallogr. 7 (1974), 356; Brookhaven Symp. Biology, No. 27 (1975).
- 211 J.B. Davidson, S.A. Werner and A.S. Arrot : AIP Conference Proceeding No. 18 (Magnetism and Magnetic Materials, 19'th Annual Conference, Boston, 1973), 358.
- 212 J.B. Davidson and A.L. Case : Int. Conf. Neutron Scattering, Gatlinburg, 1976.
- 213 島岡公司 : 日本結晶学会誌 vol. 7 (1965), p. 1.
- 214 放射線データブック (木村健二郎編, 地人書館, 東京, 1958) p. 194 など.
- 215 皆川宣明, 宇田川昂 : JAERI-M Report no. 7016 (1977).
- 216 A. Authier : X-Ray Optics (ed. by H.J. Queisser, Springer-Verlag, Berlin, 1977), ch. 5.
- 217 T. Riste and K. Otnes : Nuclear Instrum. and Meth. 75 (1969), 197.
- 218 V.L. Sailor, H.L. Foote Jr., H.H. Landon and R.E. Wood : Rev. scient. Instrum. 27 (1956), 26.
- 219 G. Caglioti, A. Paoletti and F.P. Ricci : Nucl. Instrum. and Meth. 9 (1960), 195.
- 220 N. Kunitomi, N. Sakamoto, Y. Hamaguchi and H. Betsuyaku : J. Phys. Soc. Japan 19 (1964), 2280.
- 221 C.G. Darwin : Phil. Mag. 27 (1914), 675.
- 222 C.G. Darwin : *ibid.* 43 (1922), 800.
- 223 W.H. Zachariasen : Theory of X-Ray Diffraction in Crystals (Dover, N.Y., 1967).

- 224 International Tables for X-ray Crystallography, vol.III, (Kynoch Press, Birmingham, 1962).
- 225 R.W.G. Wyckoff : Crystal Structure (Interscience Publ., N.Y., 1963).
- 226 J.W. Rutter and B. Chalmers : Can. J. Phys. 31 (1953), 15.
- 227 J.W. Christian : The Theory of Transformations in Metals and Alloys (Pergamon Press, Oxford, 1965), sect.67.
- 228 E. Teghtsoonian and B. Chalmers : Can. J. Phys. 30 (1952), 388.
- 229 B. Chalmers : Principles of Solidification (Wiley-Sons, N.Y., 1964), ch.5.
- 230 T.F. Bower, H.D. Brody and M.C. Flemings : Trans. TMS-AIME 236 (1966), 624.
- 231 I. Jin and G.R. Purdy : J. Crystal Growth 23 (1974), 29.
- 232 G.M. Gilmer and K.A. Jackson : in 1976 Crystal Growth and Materials, (E. Kaldis and H.J. Scheel, eds) (North-Holland, Amsterdam, 1977), p.80.
- 233 鎌田耕治 : 日本結晶成長学会誌 vol.7 (1980), p.1.
- 234 鎌田耕治, ほか : 日本物理学会 (1980年春, 東京), 口頭発表.
- 235 M. Hansen : Construction of Binary Alloys, 2'nd ed. (McGrow-Hill, N.Y., 1958), p.585.
- 236 清水要蔵 : 合金状態図の解説 (長崎誠三補訂; アグネ, 東京, 1964), p.16.
- 237 W.B. Pearson : Handbook of Lattice Spacings and Structures of Metals (Pergamon Press, London, 1956), p.579.

第三章の参考文献

- 301 A.R. Lang and M. Polcarova : Proc. Roy. Soc. (London) A285 (1965), 297.
- 302 H. Suzuki : Sci. Rep. Res. Inst. Tohoku Univ. A4 (1952).
- 303 R.W. Cahn : Advances in Physics, suppl. to Phil. Mag. 3 (1954), 262.
- 304 E.O. Hall : Twinning and Diffusionless Transformations in Metals (Butterworths, London, 1954).
- 305 鈴木秀次 : 転位論入門 (アグネ, 東京, 1967), 第10章.
- 306 たとえば,
船橋 達 : 日本物理学会誌 vol.30 (1975), p.485.
- 307 C. Zeyen : private communication.
- 308 R.W. James : Dynamical Theory of X-Ray Diffraction (Solid State Physics, vol.15, eds. F. Seitz and D. Turnbull, Academic Press, N.Y., 1963), p.213.
- 309 高良和武 : X線結晶学, 下巻 (仁田勇編, 丸善, 東京, 1961), p.849.

付録の参考文献

- A1 富士写真工業 K.K. のカタログによる。
- A2 J. Moteff : Nucleonics 13 (1955), 24.

後 記

本論文の研究結果をまとめて、以下に示した研究会あるいは学術誌に発表した。

<第一章に関するもの>

- 1 The Improvement of Resolution in Neutron Diffraction Topography;
10'th Int. Conf. of Crystallography (Amsterdam, 1975) 20.1-2.
(H. Tomimitsu)
- 2 中性子トポグラフについて ; JAERI-M Report 5829 (1974), 57.
(富満 広)
- 3 中性子線トポグラフィ ; 日本結晶学会誌 21 No.2 (1979),
「回折技術の進歩」特集号, p.181.
(富満 広)
- 4 中性子回折トポグラフィ ; 放射線 5 (1978), "放射線物理メモ"
(富満 広)
- 5 中性子トポグラフィの現状 ; 日本結晶学会誌 18 (1976), 41.
(富満 広)

<第二章に関するもの>

- 6 Neutron Diffraction Topographic Observation of the Layer-Substructure
in a Cu-5%Ge Single Crystal; Phil. Mag. 38 (1978), 483.
(H. Tomimitsu, K. Kamada and K. Doi)
- 7 Neutron Diffraction Topographic Observation of the {100}-Layer
Substructure in a Cu-5%Ge Single Crystal; *ibid.* 43 (1981), 469.
(H. Tomimitsu)
- 8 Observation of the {100}-Layer Substructures in a Cu-5%Ge Single
Crystal by Neutron Diffraction Topography; Sci. Rep. Res. Inst.
Tohoku Univ. A29 Suppl.1 (1981), 47.
(H. Tomimitsu and K. Doi)
- 9 Neutron Diffraction Topographic Observation of a Single Crystal of
Solid Solution of Cu-5%Ge Alloy; JAERI-M Report 7408 (1977), 88.
(H. Tomimitsu, K. Kamada and K. Doi)
- 10 Neutron Diffraction Topographic Observation of the Layer-Substructure
in Cu-5%Ge Single Crystal; *ibid.* 8009 (1978), 111.
(H. Tomimitsu, K. Kamada and K. Doi)
- 11 Neutron Diffraction Topographic Observation of Layer-Substructure
in Copper Alloys; *ibid.* 8719 (1980), 105.
(H. Tomimitsu, K. Kamada and K. Doi)

<第三章第1節に関するもの>

- 12 A Neutron Diffraction Topographic Observation of Strain Field in a Hot-Pressed Germanium Crystal; J. Appl. Crystallogr. 7 (1974), 59.
(H. Tomimitsu and K. Doi)
- 13 Neutron Diffraction Topography of Hot-Pressed Germanium Crystal; 9'th Int. Conf. Crystallography (Kyoto, 1972), XXII-40.
(K. Doi, N. Minakawa, H. Motohashi, N. Masaki and H. Tomimitsu)
- 14 中性子回折トポグラフィの試み ; 日本結晶学会誌 15 (1973), 333.
(富満 広)

<第三章第2節に関するもの>

- 15 Neutron Diffraction Topographic Observation of Twinned Silicon Crystal; Japan. J. Appl. Phys. 17 (1978), 591.
(H. Tomimitsu and C. Zeyen)
- 16 ILL-HFR の使用体験記 ; 日本結晶学会誌 19 (1978), 261.
(富満 広)