

## 大きな金属単結晶の X 線トポグラフィ 第 1 報

X-ray Topography for Large Crystals (1)

高 正 植\*・片 岡 邦 郎\*・一 色 貞 文\*

Joungshik KO, Kunio KATAOKA and Sadabumi ISSHIKI

## 1. ま え が き

Bridgman 法あるいは歪焼純法によって大きな金属単結晶を育成した場合、数点の X 線ラウエ法 (反射法, 透過法) による局所的な所見から全体の試片を判定するか, または試片表面のマクロエッチ法による観察から結晶の内部状態までを推定し, その結晶性を大まかに推察するのが通常である. しかしながら, 試片が小さく薄い場合には適確な結晶性を判定する方法であるこれらの観察方法も, 試片全体と結晶内部状態を同時に観察し難く, 比較的厚く大きい試片への適用には限界をもつものである.

また, 融液から育成したアルミニウム, 錫等の金属単結晶, あるいは合金単結晶にしばしば現われる lineage 構造 (striation ともいう) のような不完全構造の研究にもマクロエッチ法, ミクロエッチ法, あるいは X 線ラウエ法が適用されるが, これらの方法はいずれも表面観察のみによるものであるから, 潜状期間をもつ striation の発生機構や発生後隣りあった subgrain が misorientation を増加させて行くような凝固過程の研究に十分なものとはいえない.

著者らは従来の細長いスリットを使用した長隙ラウエ法<sup>1)</sup>を改良し, 広幅長隙ラウエ法を開発した. この方法は広幅で長いスリットを使用することによって, 試片全体が照射 X 線ビームの中に置かれ, 試片全体の低指数面からの回折像を 1 枚のフィルムに記録する方法である. このようにして得られた回折像から, 比較的厚く (Al で 2 cm 厚, Cu, Fe で 2 mm 厚) 大きい金属単結晶の完全性を推定することができ, また, 金属結晶の凝固過程の考察も容易になし得ることを確認したが<sup>2)3)4)</sup>さらに, この方法の理論的な検討と適用範囲を決定するための実験を進めているので, この報告ではそのうち 2, 3 の適用例について述べる.

## 2. 実 験 方 法

透過 X 線トポグラフィを撮るための配置図は Fig. 1 に示す. 反射 X 線トポグラフィのための配置図は Fig. 1 と同様で, 試片とフィルムの位置を逆にすればよい. 本報

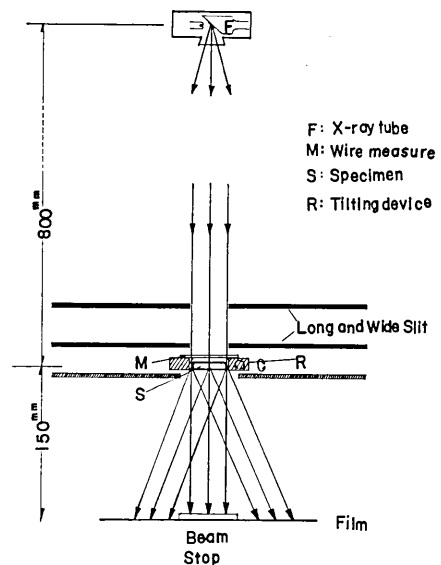


Fig. 1 Geometry of taking the X-ray transmission topograph of large metal crystals

告では透過トポグラフィのみについて述べ, 反射法は省略する. 広幅長隙スリットを使用した透過 X 線トポグラフィの方法の特徴はつぎの諸点である. 1) 連続 X 線の短波長を利用して比較的厚い金属試片の回折像を得るため工業用 X 線透過法装置を使用した. (加速電圧範囲 40~180 KV, 管電流 4 mA, 見かけの焦点寸法 1×1 mm) 2) ほぼ平行な X 線ビームを得るため, X 線焦点から試片までの距離を 80 cm とした. 3) 入射 X 線が試片全体を照射するように試片の大きさに見合う広幅長隙の鉛スリットを使用した (鉛スリット寸法: 1×50, 5×100, 10×130, 15×130 mm) 4) 試片とフィルム間距離を可変にし (5~20 cm), 分解能も上げられるようにした. 5) 2 cm 間隔の目盛線 (0.8 mmφ の Mo 線材) を試片上面に置き, 試片の透過像と回折像の対応づけを行なった. 6) 2 軸方向に各々 10° まで試片を傾斜できる装置を試作して, 観察に必要な回折像をフィルムに記録した. 7) フィルムは工業用 X 線フィルムの微粒子のものを使用した. その大きさは 84×152 mm のものである. 8) 露出時間が 10 分以内になるように加速電圧を選定した.

\* 東京大学生産技術研究所 第 1 部

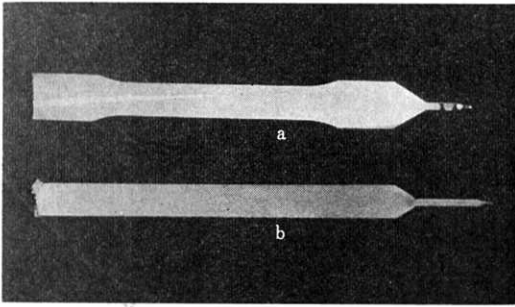


写真1 X線トポグラフの試片  
 a) Al-0.12% Zr 単結晶, 2箇所に stray crystal  
 が存在する。先端部は多結晶になっている。  
 b) 純アルミニウム単結晶 (99.997%)

### 3. 試片

試片の形状は写真1 a, bのように針状の先端部をもつ試験片型と短冊型のもので、寸法はおおの先端部を除いて  $3 \times 15 \times 120$ ,  $3 \times 10 \times 120$  mm である。アルミニウム合金試片は 99.997% の純アルミニウムに所定量の母合金を融解添加して鑄込み、圧延後上記の形状のものに作成したものである。単結晶の育成は磁製坩堝のアルミナ粉末の中に試片を埋込み、試片固定、炉移動方式の Bridgman 法によった。アルミニウム合金単結晶の組成はつぎのようなものである。Al-0.12% Zr, Al-0.1% V, Al-0.5% Cr, Al-0.5% Cu, Al-0.1% Ti, 99.997% の純アルミニウム等である。

### 4. 透過X線トポグラフと考察

i) 写真2は写真1 aの試片の透過X線トポグラフで

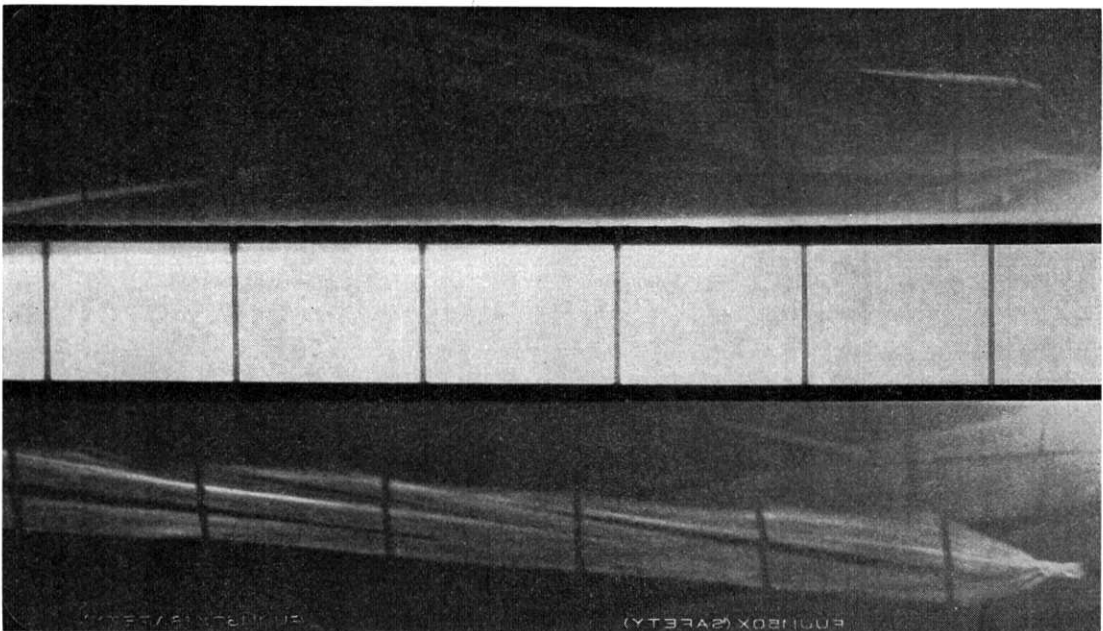


写真2 Al-0.12% Zr 単結晶 (写真1 a) の透過X線トポグラフ (200) 反射像  
 (80KV, 4mmA, 露出時間5分 試片-フィルム間距離 15cm)  
 (写真1 aに見える方向の裏側から撮られたもの)

ある。この試片は Al-0.12% Zr 組成の合金単結晶で、試片最高温度  $750^{\circ}\text{C}$ 、炉上昇速度  $1 \text{ mm/min}$  で育成されたもので上片右肩と下方の中央におおの一箇の stray crystal がマクロエッチで確認されるものである。写真中央には直接入射X線を防ぐためのストッパーの影と試片の透過像および、試片上面に置いた Mo 目盛線の像も同時に観察される。下方の回折像は (200) によるものであるが、この像にも Mo 目盛線による暗黒部が見える。これらの2組の標線像を比較することによって、回折像と、その回折像を生じた試片の位置とを対応づけることができる。他の回折面からの回折像も観察されるが、回折強度が弱いため (200) 反射像の考察には支障がない。この写真のように、ほぼ透過像と平行な回折像になるのは、結晶の成長方位と低指数面が入射X線ビームに対してなす角度によるが、試片を軸方向に傾斜することによって、低指数の回折像を任意に移動することができる。マクロ組織 (写真1 a) とこの写真を比較すると2つの stray crystal による回折像とこの結晶粒による試片全体の回折像中の欠けた部分の他に、約  $20'$  程度の misorientation をもつ2つの subgrain と数分程度の misorientation をもつ板状デンドライトの存在が認められる。一般に数度以上の方位差をなす結晶粒が存在する場合にマクロ組織として直視で認められるが、 $1^{\circ}$  以下の小傾角をなす Subgrain の存在はマイクロ組織として検鏡によって観察されている。また、このような方位差の測定は  $30'$  以上の場合にはラウエ法によって、それ以下のときは

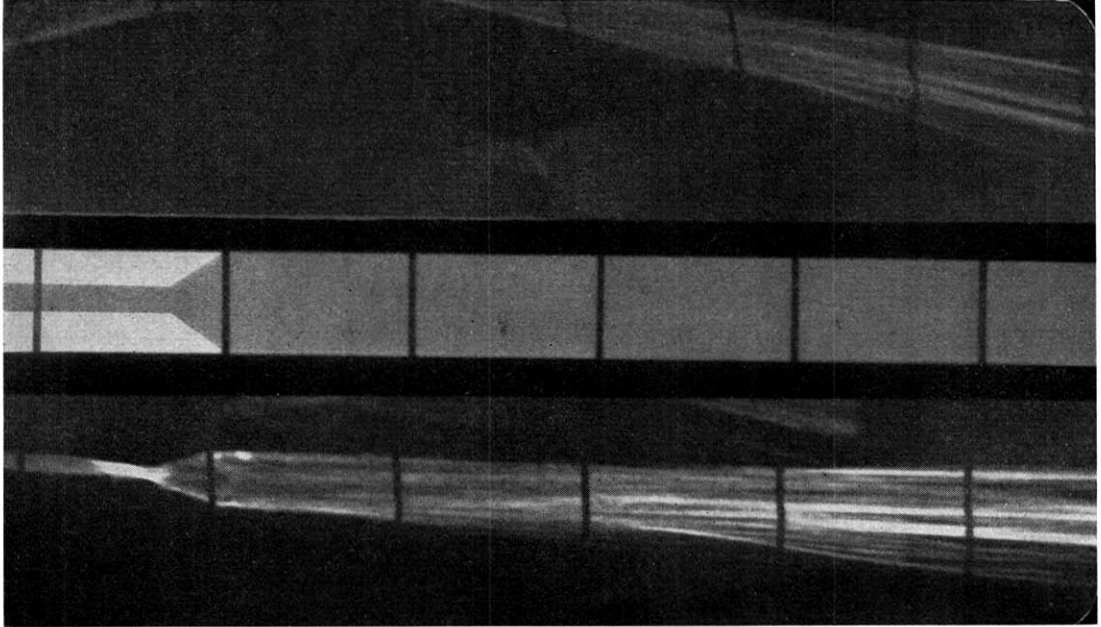


写真3 純アルミニウム (99.997%) 単結晶 (写真1 b) の透過X線トポグラフ (200) 反射像  
(80 KV, 4 mmA, 露出時間5分 試片-フィルム間距離 15 cm)

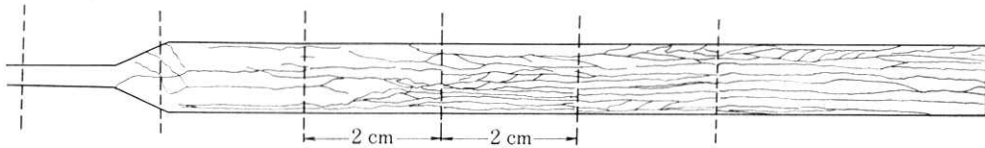


Fig. 2 Lineage structure of pure aluminium crystal

Berg-Barrett 法によって  $2'$  程度の精度で行なわれている。この写真によって、これらの方法の短所を補うことができる。すなわち、大傾角粒界をもつ結晶粒の存在と小傾角粒界をもつ subgrain まで、1枚の写真によって、結晶全体の様子を観察することができるとともに、数分の精度で、その方位差を測定しうることが確認される。

ii) 写真3は最高温度  $780^{\circ}\text{C}$ 、炉上昇速度  $1\text{ mm/min}$  の成長条件で育成した純度  $99.997\%$  のアルミニウム単結晶 (写真1 b) の透過X線トポグラフである。この試片の lineage 構造の検鏡観察をスケッチしたものは Fig. 2 に示した。中央部の透過像と (200) 反射像とを対応づけて考察することによって、成長過程としての lineage 構造を明らかにすることができる。1) 針状先端の根本部分が僅かにねじれながら成長したことを示す回折強度で他の部分より大きいのが認められる。2) striation の発生位置が明確でないが striation と認められるものから3本の回折線が見える。この3本の striation からの回折線は試片末端まで継続している。3) そのうち、上部の一本は3番目の目盛 (目盛間隔  $2\text{ cm}$ ) 付近で、

数本の細かい striation に枝分れしている。4) この部分で、また、新しい striation が発生している。5) 4番目の目盛を過ぎる頃さらに、試片全幅にわたって新しい striation が多発している。6) この辺でまた、枝分れが起こっている。7) 隣り合った subgrain が互に数分程度の misorientation をもつようになると striation として確認される。8) striation は結晶の成長が進行するにつれて、互に misorientation を大きくして行き、 $1\sim 2^{\circ}$  程度までの方位差をなすようになる。9) 方位差は一方向だけに大きく偏ることがある。10) lineage 構造の表面組織観察 (X線の入射方向の組織スケッチである Fig 2) と対応して、大同小異である。11) striation の幅は  $0.1\sim 0.8\text{ mm}$  である。

## 5. ま と め

以上、大きなアルミニウム合金単結晶の代表的な透過X線トポグラフを示したが、この他、数十本のアルミニウム合金単結晶の回折像の考察からつぎのようなことが結論される。

1) 著者らが開発した広幅長隙ラウエ法は比較的厚く

また、大きい金属単結晶の不完全性、とくに、凝固過程を研究するのに有効な方法であることが確認された。

2) ラウエ法、マクロ組織観察とともに結晶の判定に適切な方法であると考えられる。

3) 単結晶、bicrystal を使用して、機械的強度の試験をする場合に、動的過程の観察をする一方法となると思われる。

なお、理論的な検討と個々の適用例については続報として報告する予定である。(1973年5月4日受理)

## 参 考 文 献

- 1) 吉田: X線結晶学, 1943年 三省堂
- 2) 高正植, 片岡邦郎, 一色貞文: 第2回結晶成長国内会議講演予稿集, (1970) 73.
- 3) 高正植, 片岡邦郎, 一色貞文: 第3回結晶成長国内会議講演予稿集, (1971) 67.
- 4) J. Ko, K. Kataoka, S. Isshiki: Ninth International Congress of Crystallography. Collected Abstract (1972) 246.



## 東京大学生産技術研究所報告 刊行予告

第 23 卷 2 号 (英文)

棚 沢 一 郎・橋 藤 雄・落 合 淳 一 著

## DROPSWISE CONDENSATION (I)

滴状凝縮過程の研究(I)

滴状凝縮の全過程は、いくつかの不規則過程から構成されており、そのため膜状凝縮について行なわれてきたような、いわば連続的・規則的な考え方による解析を適用することはむずかしい。

著者らは、凝縮液滴の発生・成長・合体・離脱を基本とする滴状凝縮のサイクルをデジタル電子計算機によってシミュレートすることにより、滴状凝縮現象の複雑な機構を解明しようと試みた。

また滴状凝縮過程を大きく支配する液滴の成長過程は、液滴どうしの合体というきわめて不規則な現象を含んでいる。著者らは、この液滴の合体成長に考察を加え、合体成長を表わす二つのパラメータおよび凝縮面上での液滴の大きさの分布を知ることができれば、滴状凝縮時の熱伝達率を求めることができることを示した。

さらに著者らは、シミュレーション法による計算の基礎となるデータを得るための実験を行なった。すなわち、(i)凝縮面の表面温度および熱流束を正確に測定すること、(ii)非凝縮性気体の表面付近への蓄積を防止すること、の2点に十分な注意を払った実験を行ない、種々の条件下での滴状凝縮熱伝達率を測定した。

また、凝縮面を顕微鏡を通して観察し、高速写真撮影や瞬間写真撮影を行なって、液滴の大きさの分布とその変化、液滴の合体成長の速度、液滴の離脱時の限界半径などを求めた。

(1973年8月下旬発刊予定)