



Title	氷の単結晶によるX線二重反射に関する一観察
Author(s)	牛木, 久雄; USHIKI, Hisao; 吉田, 順五 他
Citation	低温科学. 物理篇, 25, 31-36
Issue Date	1967-12-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/18058
Type	departmental bulletin paper
File Information	25_p31-36.pdf



氷の単結晶による X 線二重反射に関する一観察*

牛 木 久 雄

(北海道大学大学院 理学研究科修士課程)

吉 田 順 五

(低温科学研究所 応用物理学部門)

(昭和 42 年 7 月受理)

I. ま え が き

厚さ 3~10 mm の氷の単結晶に Cu 対陰極からの X 線束をあて、ラウエ回折像を多数撮影した。ところがある場合に、投射 X 線から数 mm の距離はずれて投射 X 線と平行に進む回折 X 線がみいだされた。この回折 X 線は投射 X 線が結晶内で二重反射を起こした結果生じたものと考えられる。二重反射 X 線による回折像の強さや形は試料ごとにちがった。このことと、試料に用いた氷の成長条件や、試料に加えた熱処理の状況から、二重反射は氷の結晶欠陥と密接な関係にあると推定された。以下上記の現象について簡単に述べる。

II. 実 験

1. X 線 装 置

X 線装置の電源、制御装置は常温の部屋に据え、X 線管球と撮影装置だけを低温実験室内に置いた。X 線源には、Cu 対陰極の管球を用い、ラウエ回折像の撮影はもっとも簡単なラウエカメラによって行なった。コリメーターには、孔径 0.5 mm のものと 1 mm のものを用いた。いずれの場合にも線束の広がり度は 30' 程度であった。撮影用のフィルムには、工業用 200 番を用いた。

2. 試 料

成長条件を異にする二種類の氷の単結晶を試料として用いた。ひとつは、水道水をガラス容器に入れ、 -15°C の低温実験室で板状に凍らせたものである。厚さは 3 mm から 10 mm であった。この試料を人工試料と呼ぶ。他方はアラスカのジュノーの近くにあるメンデンホール氷河で採取し運んできた氷塊から切り出した単結晶である。これを天然試料と呼ぶことにする。

二種類の氷とも、長さ 15~20 mm の矩形断面の角柱に整形して試料とした。矩形断面の一辺の長さは 3~10 mm であった。人工試料は 20 箇、天然試料は 2 箇作製した。

3. 実 験

-15°C の低温実験室で上述の試料に、加速電圧 5~40 kV、陰極電流 20~40 mA の X 線

* 北海道大学低温科学研究所業績 第 832 号

を照射した。照射時間は試料の厚さや、試料とフィルムとの距離によってかえたが、ほとんどの場合5分から10分間の照射で良好なラウエ写真が得られた。

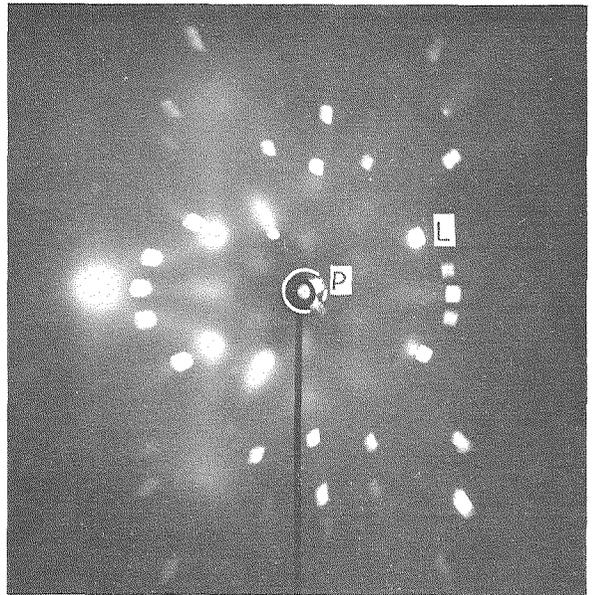
天然試料は、整形したままの試料でまずラウエ写真を取り、その後液体空气中に投入して多数の熱亀裂を生ぜしめ、はじめと同じ位置、同じ方位で再度ラウエ写真をとった。人工試料は整形したままのものだけを用いた。

III. 実験結果

第1図は、人工試料によるラウエ写真の一例である。多数のラウエ斑点及び散漫散乱像のほかに、投射 X 線遮蔽板の黒い影から顔を出した形で斑点 P がふたつみえる。便宜上、この斑点を P 斑点と呼ぶことにする。中心、すなわち投射 X 線の照射位置を示す遮蔽板陰影中の白点から、P 斑点の延びている方向をたどると濃いラウエ斑点 L がみつかる。この濃いラウエ斑点は特性 X 線 $\text{Cu } K_{\alpha}$ (1.54 \AA) によるものである。試料を回転させて $\text{Cu } K_{\alpha}$ の回折条件をはずすと、P 斑点は消える。このことから、P 斑点は特性 X 線によるラウエ斑点に付随して現われることが分る。他の一般のラウエ斑点に P 斑点が付随して現われることは観察されなかった。

写真の中央に書き入れた白円はラウエ斑点の存在限界を示すものである。使用した X 線の加速電圧 20 kV と、氷の結晶の最大結晶網面間隔 7.35 \AA 、及び試料とフィルムとの距離 3.4 cm からこの白円の半径は 2.5 mm と計算される。この白円内には本来ラウエ斑点は存在し得ないので、P 斑点はラウエ斑点ではない。加速電圧を下げたり、試料とフィルムとの距離(撮影距離) d を長くしてみたりして、ラウエ斑点の存在し得ない領域を拡げても、P 斑点には変化が起らなかった。

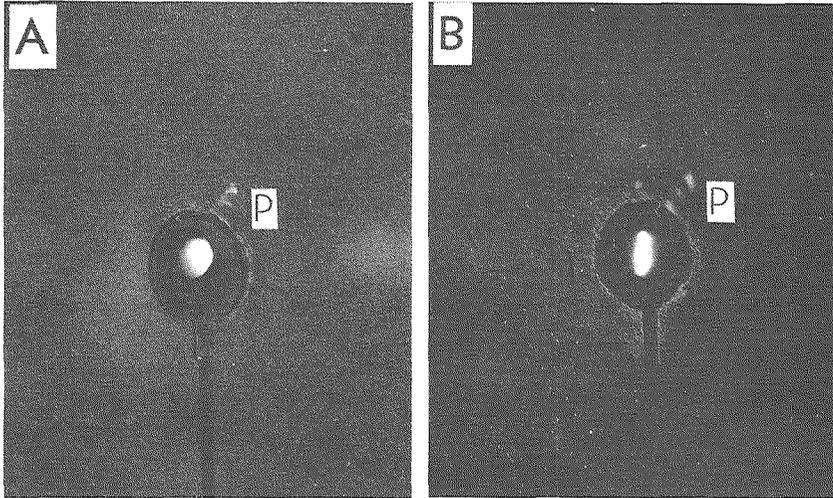
写真にみられるように、P 斑点はラウエ斑点に比べて構造がかなり乱れている。この乱れは場合によって異なる。第2図の写真では、P 斑点は中心を通る直線上に3箇のうすい斑点として並んでいる。第2図 A と B とのちがいは撮影距離 d をかえて撮影したことだけである。A の場合は $d = 3.4 \text{ cm}$ 、B の場合は $d = 11.4 \text{ cm}$ であった。



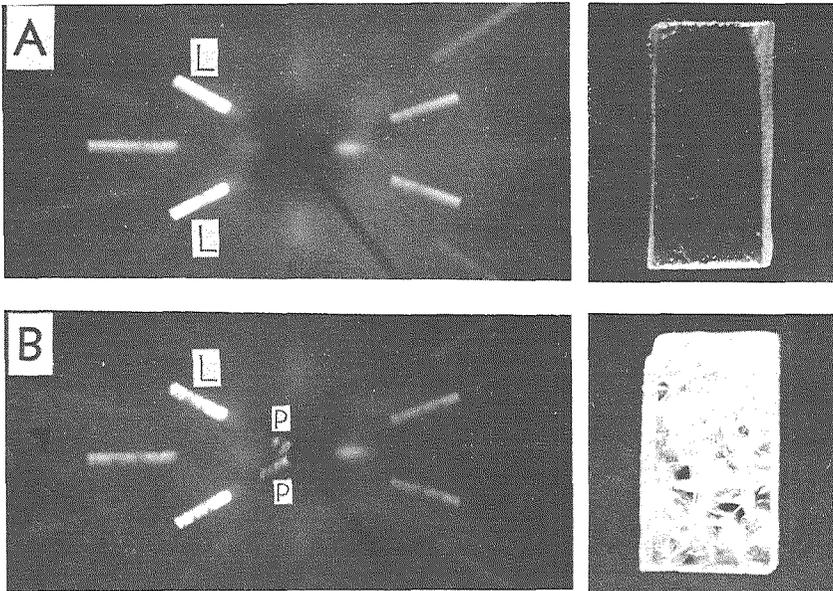
第1図 -15°C の低温実験室で水道水を凍らせて作った氷の単結晶のラウエ写真。中央に書き入れた白円内にはラウエ斑点は現われ得ない。P 斑点はこの白円の内側に現われている。加速電圧 20 kV、陰極電流 40 mA、結晶試料の厚さ 3 mm、試料とフィルムとの距離 3.4 cm、照射時間 10 分。(×1)

3 箇の P 斑点は d をこのようにかえても中心からの距離をほとんどかえない。ひと塊りになった構造の P 斑点の場合でも、 d によって P 斑点の中心からの距離や、像の大きさがかわることはない。このことから P 斑点が投射 X 線に平行に進む回折 X 線によって生ずることが分る。

人工試料は短時間に成長した氷の結晶である。したがって結晶はかなり欠陥の多いもので



第 2 図 3 箇の点となって現われた P 斑点。A は、結晶とフィルムとの距離 d を 3.4 cm にしたばあい。B は d を 11.4 cm にしたばあい。 d がかわっても P 斑点の位置はほとんどかわらない。加速電圧 20 kV、陰極電流 40 mA。(×3)



第 3 図 氷河からとった氷の単結晶 (右) と、それによるラウエ回折写真 (左)。A は熱亀裂をいれる前、B は熱亀裂をいれた後。B には P 斑点がみられるが、A には見えない。加速電圧 20 kV、陰極電流 40 mA。(×1)

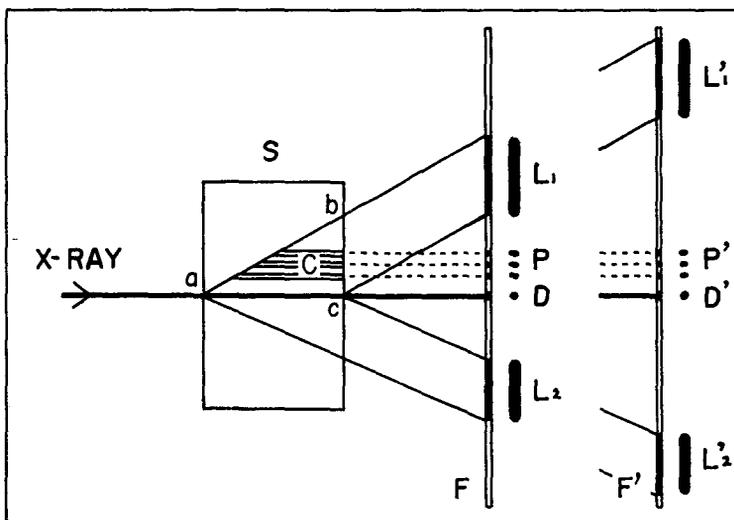
あるにちがいない。天然試料は、これに比して欠陥の少ないものと考えられる。

天然試料の場合は、先にも述べたように、熱亀裂を入れる前と後とでラウエ写真をとった。熱亀裂を入れれば結晶欠陥が増加し、P 斑点に変化が起ころうと予想されたからである。まず、天然試料を、特性 X 線のラウエ斑点が現われるいくつかの方位において写真をとった。そのあと液体空気中で試料に熱亀裂を生ぜしめ、前と同じいくつかの方位において写真をとった。その結果、熱亀裂をいれる前でも、ある方位では P 斑点が現われ、ある方位では現われないことがわかった。つまり、結晶欠陥の少ないと考えられるはじめの状態の天然試料には、特性 X 線を反射させても、P 斑点を生ぜしめないような結晶網面が存在するわけである。熱亀裂をいれると、前には現われなかった方位のいくつかでも P 斑点が現われるようになり、全体として P 斑点の現われる方位が増加した。

第 3 図 A と B とは、Cu $K\alpha$ の (01 $\bar{1}$ 2) 面による反射が起こるように天然試料の方位を調整してとったラウエ写真である。A は熱亀裂を入れる前にとったもの、B は熱亀裂を入れた後にとったものである。右端の写真には各々の試料の状況が示してある。L と印したラウエ斑点が Cu $K\alpha$ の (01 $\bar{1}$ 2) による反射である。写真 B では中心からこれらの斑点の方向にのびる P 斑点がみえるが、写真 A にはみえない。つまり (01 $\bar{1}$ 2) は、自然状態では、P 斑点を生ぜしめない結晶網面であったことになる。

IV. 考 察

P 斑点の生ずる機構を、上記の実験事実によって図式化したのが第 4 図である。S は結晶試料を表わす。投射 X 線は図のように試料を貫き、撮影距離の異なるフィルム面 F, F' の上に



第 4 図 P 斑点の発生機構を示す模式図。投射 X 線の特性 X 線は、結晶試料 S 内で第一次の回折を起し、ラウエ斑点 L_1 , L_1' をフィルム F, F' 上に生ぜしめる。第一次回折の X 線は試料内の C 領域 (三角形 abc の内部) で更に第二次の反射を起し、投射 X 線と平行に進んで P 斑点 P, P' を印す

Cu K_α の回折像を印す。フィルム面 F, F' のそれぞれの右にはフィルムを正面からみた場合の回折像の分布が示してある。L₁, L₁' 及び L₂, L₂' は Cu K_α によるラウエ斑点であり, D, D' は直射斑点である。P, P' は L₁, L₁' と相関をもつ P 斑点である。

実験によれば中心 D と P 斑点との距離は図のように撮影距離 d がかわって F から F' にフィルムが移動しても, 変化しない。すなわち P 斑点を生ぜしめる回折 X 線は点線で示すように投射 X 線に平行である。正面からフィルムをみると, フィルム面 F, F' の右に示したような斑点の分布が得られ, P 斑点は中心 D とラウエ斑点 L₁ を結ぶ線上に並ぶ。ラウエ斑点 L₁ の X 線と P 斑点の X 線, それに投射 X 線の三者は同一の平面にのっていることになる。したがって, 試料内の C と印した部分 (三角形 abc の内部) にはラウエ斑点 L₁ の X 線と P 斑点の X 線とが共存している。このことと, P 斑点の X 線が投射 X 線に平行であるということによって, 投射 X 線からの第一次の回折 X 線であるラウエ斑点 L₁ の回折 X 線が, 第一次の回折を起こした時と正に同じ条件で C の部分に於いて第二次の回折を起こし P 斑点を生ぜしめたと推定される。すなわち, P 斑点は特性 X 線 Cu K_α の同一結晶面による二重反射と解釈される。P 斑点が現われるか否かは, 熱亀裂の実験でも分るように, 結晶内の欠陥が多いか少ないかによる。結晶欠陥の作用機構は今のところ明らかでないが, P 斑点の構造が場合によりちがうことは, P 斑点が結晶欠陥の差異を敏感に反映することを示すものであろう。

結晶内二重反射である P 斑点を氷の結晶欠陥の研究に利用出来るかどうかは, より高い精度の実験によって明らかになるものと思われる。

Summary

A beam (0.5 or 1 mm in diameter) of white X-ray from Cu-target was passed through single crystals of ice and the diffracted X-rays were photographed in a cold room of -15°C . The crystals were 3 to 10 mm in thickness. Two types of crystals were used: crystals frozen from city water in the cold room and those brought from the Mendenhall Glacier in Alaska. Fig. 1 of the text shows an example of photographs taken with the city water crystals. Besides Laue spots and patterns of diffuse scattering, spots of irregular forms are found near the center of the film as indicated by the letter P. These spots are tentatively called P-spots. The P-spots were always located on the lines connecting the center of film and the strong Laue spots which were produced by diffracted Cu K_α . No change was seen in the shapes and positions of P-spots by changing the distance d between crystal and film. From these facts it is suggested that the P-spots were produced by the characteristic X-rays doubly reflected by the crystal and advancing in parallel with the direct beam. The P-spots differed in shape and structure from one sample to another, and Fig. 2 shows a case in which a P-spot separated into three specks. (Fig. 2 shows the same P-spot photographed at different distances d between crystal and film; $d=3.4$ cm in Photo. A and $d=11.4$ cm in Photo. B.)

A series of photographs were taken on the glacier crystal by mounting the crystal in such different positions that the characteristic Cu K_α produced Laue spots in each of

them. Then the crystal was dipped into liquid air and cracks were made to appear in it. The cracked crystal was mounted again in the same positions as before and photographs were taken. It was found that in some of the positions P-spots appeared only after the crystal was cracked. This suggests that the appearance of P-spots is enhanced by various strain or damage in the lattice of crystal, because the crystal is subjected to larger strains and damages in its lattice in the cracked state than in an uncracked crystal.