



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	氷単結晶中の転位によるX線回折トポグラフ上の像のコントラスト
Author(s)	小黒, 貢; Oguro, Mitsugu
Citation	北海道大學工學部研究報告, 69, 137-146
Issue Date	1973-11-15
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41173
Type	departmental bulletin paper
File Information	69_137-146.pdf



氷単結晶中の転位による X 線回折 トポグラフ上の像のコントラスト

小 黒 貢*

(昭和 48 年 4 月 28 日受理)

Contrast of Images on X-Ray Topographs of Dislocations in Ice Single Crystals

Mitsugu OGURO

(Received April 28, 1973)

Abstract

Contrast of dislocation images on X-ray diffraction topographs were investigated in ice single crystals. Bimodal images obtained in topographs taken by diffracting planes of higher indices (Fig. 3) were interpreted by symmetrical dispositions of equal inclination contours of $\delta\theta$, which is the effective misorientation around a dislocation in ice (Fig. 5). The width of the images at different parts on curved dislocations for different diffracting planes (Fig. 2 and Fig. 3) were compared with theoretical values of the width L calculated by equation (5) in which $n=1$ was assumed. Good agreement between the observed and calculated values (Table II) proved the validity of the assumption $n=1$ which indicates that the lattice misorientation effective to form dislocation images on the topographs is approximately equal to the width of the rocking curve of the diffracted X-ray.

Limited accuracy of the present experiments which is caused by wider opening of slits for short exposure time failed to exhibit clear bimodal images for the case of $(10\bar{1}0)$ and $(2\bar{1}\bar{1}0)$, diffracting planes (Fig. 2 and Fig. 3), although it is clearly discernible in the (0002) diffracting plane (Fig. 1). Discrepancies between the observed and calculated values of the image width can be attributed also to the limited accuracy. It is anticipated that the variation in image width will be used as a qualitative indicator of impurity segregation along dislocation when the accuracy of measurements is improved.

1. ま え が き

X 線回折顕微法は、単結晶中の格子欠陥の場所的分布の様相を X 線の回折効果を利用して観する方法である。今日、この方法は物性研究に広く応用され、また工業的に育成された Si, Ge などの単結晶の完全性の検査にまで使われている。一方逆に Si や Ge の完全に近い結晶を利用して、種々の X 線回折理論の検証、転位その他の格子欠陥による回折像のコントラストの説明なども行われ、回折現象の研究に大きな貢献をしている。

我々の研究室では、氷単結晶の塑性の研究に用いるために転位密度の低い単結晶を育成することを目標とし、出来上った結晶の完全度をこの X 線回折顕微法を利用して調べてきた^{1,2)}。この方法は水の X 線の線吸収係数が小さいため、厚さ数ミリの試料まで透過法で使うことが出来、

* 応用物性学第一講座

氷に対しては極めて有効な方法である。例えば今日まで得られている転位密度の最も少ない (10^8cm^{-2}) 純氷では一本一本の転位線が区別でき、その走向やバーガス・ベクトルも容易に決定することができる。従って完全性のよい結晶の検査やそれを使っての転位の運動の研究に威力を発揮するばかりでなく、今後結晶成長の機構、中でも転位導入の機構を研究するためにも役立つことができる。その一部として既に我々は、上述のような転位を減少させた純氷の一部や NH_3 を固溶した* 氷単結晶中に同心円状の転位ループを発見した³⁾。今後このような不純物の転位密度や構造におよぼす影響をしらべたり、転位の発生や消滅の現象をしらべるためには、回折トポグラフの転位像についての詳細な解析を必要とする。

ここで報告するのは、完全に近い氷単結晶を利用して、氷の転位による X 線顕微回折像のコントラストと転位のまわりの歪場から理論的に予想される回折コントラストとを比較したものである。その結果は、簡単なモデルによって計算した氷結晶中の転位の歪場がある種の条件の下で得られる回折トポグラフの転位線の二重像を旨く説明できることを示している。そしてこのことから氷結晶の転位の回折像に関する基礎的知見が得られ、今後のトポグラフの分解能や像の解釈についての見通しを得ることが出来た。

2. 理論的背景

回折顕微法に関する理論については多くの研究があり、それらについては適切な解説⁴⁾や綜報⁵⁾もあるので、ここでは当面必要なことだけを簡単に述べることにする。

X 線回折顕微法による欠陥像のコントラストは、結晶中で格子欠陥のまわりの歪を受けている場所で X 線がどれだけブラッグ角からずれるかに依存する。一般にブラッグ角 θ からのずれ $\delta\theta$ は格子間隔 d の変化 Δd と格子面の回転 $\Delta\theta$ によって次式によって表現することができる。

$$\delta\theta = \Delta\theta + \frac{\Delta d}{d} \tan \theta \quad (1)$$

そこでこの $\delta\theta$ を転位のまわりの原子の変位と関係づけることができる。Authier⁵⁾によればそれは

$$\delta\theta = \frac{-1}{k \sin 2\theta} \frac{\partial(hu)}{\partial x_h} \quad (2)$$

ここで、

- h ; 逆格子ベクトル
- u ; 原子の変位
- x_h ; 反射方向の座標軸
- k ; $1/\lambda$
- θ ; ブラッグ角

となる。

透過回折の場合 (Laue case) において、回折トポグラフの上には *direct image*, *dynamical image* および *intermediary image* の三種類の回折像を生ずる⁶⁾ それらが生ずる機構は夫々次のようである。

(i) *direct image*; 転位の周囲の歪場で X 線の直接ビームが回折し、消衰効果の減少により強度が増大して出来る。電磁波動の取扱いは運動学的方法で記述できる。

* NH_3 と HF は氷結晶中に置換的に固溶され、それぞれ結晶格子中の水素結合に D 欠陥、L 欠陥と名付けられる配向欠陥を作ることはよく知られている。

(ii) *dynamical image*; 結晶中に入った X 線ビームの中、直接ビーム以外の部分、すなわち結晶内の多重反射ビームの作る Borrmann fan の中のビームが転位の周囲で回折して作る像。動力学的理論によってのみ理解される。

(iii) *intermediary image*; 転位によって切られた X 線の波動場が反射して再び結晶の完全な部分に入り新しい波動場を作るために生ずる像。

結晶の厚さ t が薄く、小さな線吸収係数 μ をもつ場合、すなわち $\mu t < 1$ の条件が成立するときは、*direct image* が強く現われることが知られている。そして *direct image* に寄与する転位のまわりの歪場は、effective misorientation $\delta\theta$ が、完全結晶のロッキングカーブの中の 1~2 倍より大きく、直接ビームの発散よりも小さくなるような領域に限られる。いま (2) 式を変形して $\delta\theta$ を転位のまわりの座標と反射面との座標で表現すると、effective misorientation は次式になる⁶⁾。

$$\delta\theta = - \left[(A_1^i - \tan \theta A_3^i) \left(A_3^i \frac{\partial u}{\partial x} + A_2^i \frac{\partial v}{\partial x} + A_3^i \frac{\partial w}{\partial x} \right) + (A_1^j - \tan \theta A_3^j) \left(A_3^j \frac{\partial u}{\partial y} + A_2^j \frac{\partial v}{\partial y} + A_3^j \frac{\partial w}{\partial y} \right) \right] \quad (3)$$

ここで、

$$A_j^i = \mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_j$$

\mathbf{e}_i ; 転位の座標に関係した単位ベクトル

\mathbf{e}_j ; 反射面の座標に関係した単位ベクトル

(3) 式に入る転位のまわりの原子の変位の x, y, z 成分は等方的物質の場合において、次式で表わされる。

$$\left. \begin{aligned} u &= \frac{b_e}{2\pi} \left[\tan^{-1} \frac{y}{x} + \frac{1}{2(1-\nu)} \frac{xy}{x^2+y^2} \right] \\ v &= \frac{-b_e}{8\pi(1-\nu)} \left[(1-2\nu) \ln(x^2+y^2) + \frac{x^2-y^2}{x^2+y^2} \right] \\ w &= \frac{b_s}{2\pi} \tan^{-1} \frac{y}{x} \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

ここで、

b_e ; バーガース・ベクトルの刃状成分

b_s ; バーガース・ベクトルのラセン成分

この式は、純粋の刃状転位では $w=0$ 、ラセン転位では $u=v=0$ となる。(4) 式を (3) 式に代入し、さらに転位線が結晶表面に平行であるときの A_j^i を代入して、左辺の $\delta\theta$ を完全結晶のロッキングカーブの中 d_h の n 倍、すなわち nd_h に等しいと置いて得られる式について x, y の関係を n の関数又は $\delta\theta$ の関数として算出すれば、転位線が xy 平面の原点を貫いているときの周囲の effective misorientation の等傾度線が得られる。またバーガース・ベクトルが結晶表面に平行なとき $y=0$ に対する x の値を出せば、それは転位像の中 L を与える次の式になる。

$$L = \left\{ \frac{b_s \cos \beta}{\pi} + \frac{b_e \sin \beta}{\pi} \left(1 + \frac{1}{2(1-\nu)} \right) \right\} \frac{1}{nd_h} \quad (5)$$

ここで、

$$d_h = \frac{1 + |\cos 2\theta|}{\sin 2\theta} \sqrt{\frac{|\gamma_0|}{r_h} \psi_h \psi_{\bar{h}}}$$

$$\psi_h = -\frac{e^2 \lambda^2 F_h}{mc^2 \pi V} = \frac{2\lambda \cos \theta}{(1 + |\cos 2\theta|) \xi_g}$$

β ; 入射面と転位線との間の角

ν ; ポアソン比

F_h ; 構造因子

V ; 単位格子の体積

$|r_0|/r_h$; 対称反射のとき 1

によって与えられる。 e, m, c は常用の記号である。

3. 実験方法

氷単結晶の製作には、三回蒸溜された蒸溜水を用いた。蒸溜の詳細な手順は次の通りである。

水道水 → 金属製蒸溜器 → イオン交換樹脂 → ミリポアフィルター (0.45 μ)
 → 石英製二段蒸溜器 → 蒸溜水

この蒸溜水を用いて、既に発表した特殊な Bridgman 法³⁾ で結晶を育成した。そして平均転位密度程度 10^2cm^{-2} の結晶からアルコールを腐食液とする無歪カッターで回折顕微法に使う試片を切り出した μt の値をできるだけ小さくするため、結晶の厚さを約 0.5 mm までアルコール研磨した後 n -ヘキサンでアルコールを洗い流した。この試片に昇華を防ぐため薄いマイラー膜をシリコンオイルで貼りつけ、それをゴニオヘッド上で自由に反射面を選べるように回転できる特殊な試片とりつけ台に入れて、ゴニオヘッド上に固定させた。使用したカメラは、理学電機 R-3、線源は封入管 (45 KV, 15 mA) $\text{MoK}\alpha_1$ で乾板は Ilford の原子核乾板 L-4 50 μ , G-5 50 μ を用いた。使った反射面と走査面の組み合わせは第 I 表のとおりである。

第 I 表 本実験に使った X 線の反射面とトポグラフの走査面の組み合わせ

Table I Combinations of the diffracting and scanning planes of the X-ray diffraction topography used for the present studies.

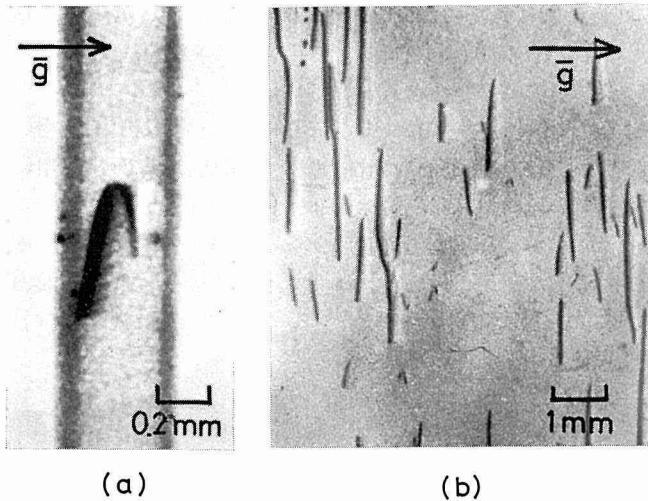
反射面	10 $\bar{1}$ 0	2020	3030	21 $\bar{1}$ 0	4 $\bar{2}$ 20	0002
走査面	0001					1010 or 1120

X 線回折顕微法の分解能をきめる大きな要素は線源の近くにおかれる第一スリットと試片の近くにおかれる第二スリットの開き巾である。この実験に於いては一つの試片中の特定の転位を異なる反射面を使って次々に何枚かのトポグラフをとる必要があるので、多少分解能を犠牲にして、露出時間の短縮を図った。第一スリットの開き巾は 0.1 mm 又は 0.4 mm とし、第二スリットのそれは 0.1-0.2 mm であった。トポグラフ撮影の標準的露出時間は、第一スリット、第二スリット共に 0.1 mm とし、反射面が $\{10\bar{1}0\}$, G-4 乾板の場合、約 1.5 hr/mm であり、第一スリット 0.4 mm 第二スリット 0.2 mm 反射面 $\{10\bar{1}0\}$, L-4 乾板の場合は約 10 min/mm に短縮された。スリット巾の影響はセクション・トポグラフでは著しいがトラバース・トポグラフでは余り大きくない。

4. 実験結果

4.1 転位による回折像

第 1 図の (a) は $\text{MoK}\alpha_1$ で反射面 (0002) でとったセクション・トポグラフである。これらの転位は前にも報告した³⁾ $c[0001]$ のバーガス・ベクトルを持ち、基底面 (0001) 上で同心円状のループを形成している転位ループの一部である。(a) の写真で黒く見えるところが *direct image* であり、縞模様になっているところが *intermediary image*, 白い影のように見えるのが *dynamical image* である。これらの image は (b) のような普通のラング法によるトポグラフ (traverse



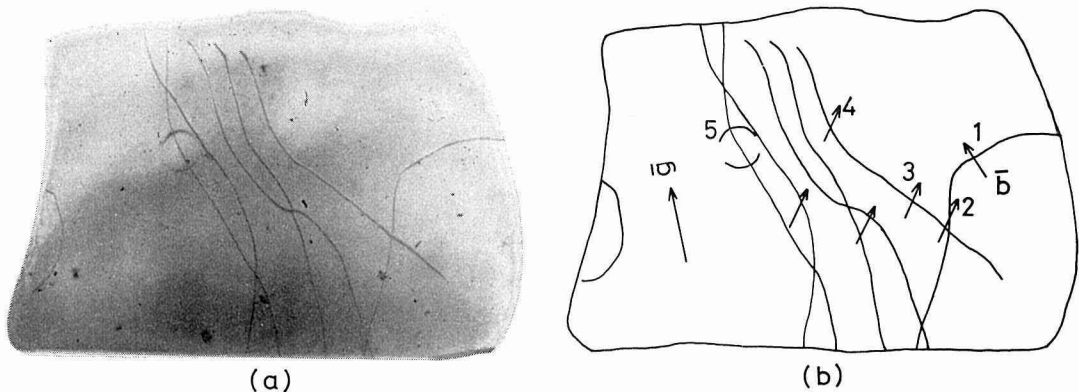
第1図 (a) 反射面(0002)によって撮影したバーガース・ベクトルが $c[0001]$ の転位のセクション・トポグラフ。(b) 同じ条件で同じ転位を撮影したトラバース・トポグラフ。試料はいずれも NH_3 をドーブした氷単結晶

Fig. 1 (a) A section topograph of a dislocation of $c[0001]$ Burgers vector taken by the (0002) diffracting plane. (b) A traverse topograph of dislocations of the same type as (a) taken under the same conditions. Specimens are both NH_3 doped ice single crystals.

topograph) においても、像がぼけているけれども認めることができる。ここで問題にするのは、この中の *direct image* の部分である。なおセクション・トポグラフにおいて両端が黒いのは $\mu t < 1$ の場合に起る周縁効果のせいである。

4.2 転位のバーガース・ベクトル

転位のバーガース・ベクトル \mathbf{b} は、反射面の法線ベクトル、すなわち反射ベクトル \mathbf{g} との間、ラセン転位にたいしては $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$ の条件があるとき、トポグラフ上の回折像が消滅するこ



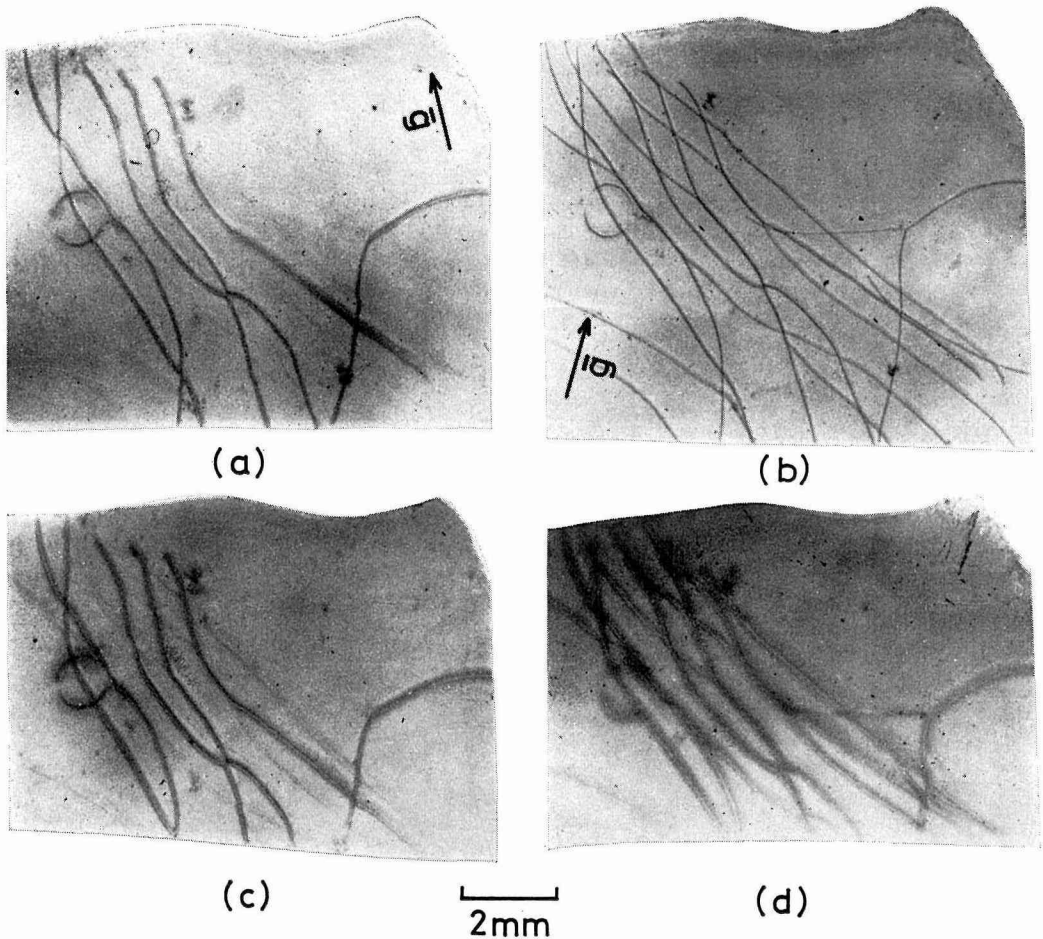
第2図 (a) 反射面(1010), 走査面(0001)で撮影した純氷単結晶の転位のトラバース・トポグラフ。(b) トポグラフ上の転位に番号をつけ、反射ベクトルの方向 \mathbf{g} を入れた図解。第3図および第II表参照。

Fig. 2 (a) A traverse topograph of dislocations in an ice single crystal taken by the (1010) diffracting and the (0001) scanning plane. (b) A drawing of the left topograph for indicating individual dislocations by numbers. Refer to topographs in Fig. 3 and numbers in Table II.

とを利用して決定できる。刃状転位にたいしてはこの消滅条件は $\mathbf{g} \times \mathbf{n} = 0$ (\mathbf{n} は転位線方向のベクトル) である。しかし、一般に混合転位にたいしてはこの両方を同時に満足できる反射面をえらぶことは出来ないから消滅は完全には行われぬ。

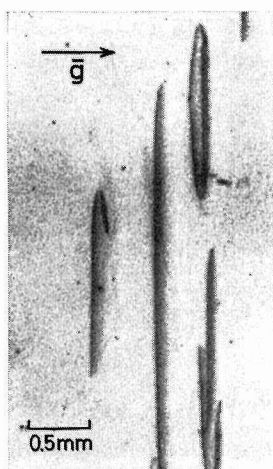
氷の場合、基底面内に \mathbf{b} を持つ完全転位 $a/3\langle 11\bar{2}0 \rangle$ は反射面 $\{10\bar{1}0\}$ を用いて決定でき、基底面内に \mathbf{b} を持たない転位 $c[0001]$ は反射面 (0002) , $\{10\bar{1}0\}$, $\{11\bar{2}0\}$ を用いて決定することができる。第2図(a)に $(10\bar{1}0)$ 反射でとった純氷のトポグラフを示した。ここにうつっている転位像を示した右側の図(b)に \mathbf{g} ベクトルとバーガース・ベクトル \mathbf{b} の方向を矢印で入れてある。すなわちこの図の中で番号①~④をつけられたトポグラフ上の転位は基底面内にバーガース・ベクトル $a/3\langle 11\bar{2}0 \rangle$ をもち⑤は基底面内から外れたバーガース・ベクトルを $c[0001]$ もっている。

4.3 転位線の二重線像と転位像の幅



第3図 第2図に現われた転位を同じ走査面で、異なる反射面を用いて撮ったトポグラフ。(a) $(20\bar{2}0)$, (b) $(2\bar{1}10)$, (c) $(30\bar{3}0)$, (d) $(4\bar{2}20)$ 。(a)と(c)では(b)と(d)に写っているいくつかの転位が見えないが、これはその転位のバーガース・ベクトル \mathbf{b} が $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$ の条件を満足しているからである。

Fig. 3 Traverse topographs of the same specimens as in Fig. 2 taken by different diffracting planes. (a) by $(20\bar{2}0)$, (b) by $(2\bar{1}10)$, (c) by $(30\bar{3}0)$ and (d) by $(4\bar{2}20)$. Some dislocations visible in (b) and (d) disappeared in (a) and (c) because they satisfied the condition $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$



第4図 第2図の転位5を反射面(0002), 走査面(10 $\bar{1}$ 0), によって撮影したトポグラフ。転位ループの一部を側面から眺めたことになる。

Fig. 4 A traverse topograph of a dislocation loop indicated by No. 5 in Fig. 2 (b). Taken by the (0002) diffracting plane and the (10 $\bar{1}$ 0) scanning plane.

第3図は第2図と同じ試片を反射面が(20 $\bar{2}$ 0), (30 $\bar{3}$ 0), (2 $\bar{1}$ 10), (4 $\bar{2}$ 20)でとったトポグラフである。ここで基底面内にバーガース・ベクトルをもつ転位①～④の転位線は, (20 $\bar{2}$ 0), (30 $\bar{3}$ 0), (4 $\bar{2}$ 20)で二重線像(bimodal image)になっているのがわかる。これと対照的に, バーガース・ベクトルが基底面になく, $\mathbf{b}=c[0001]$ をもつ転位ループは, 二重線像を示さない。しかし第4図のように, この転位ループを(0002)反射面, (10 $\bar{1}$ 0)走査面でとったトポグラフ, すなわちループを側面からとった場合には二重線が現われている。

全体的に, 転位線の幅は反射ベクトル \mathbf{g} が高次になる程大きくなっている。また同じバーガース・ベクトルをもつ転位線でもその巾はある部分では細く, 他の部分では太く, 転位線の向きによって変化している。これは(5)式からわかるように, 転位像の巾は, 転位線方向 \mathbf{n} と転

第II表 X 線回折トポグラフ上の転位像の巾の理論値と実測値の比較。 $\lambda=0.71\text{\AA}$, $a=4.52\text{\AA}$, $c=7.36\text{\AA}$, $\nu=1/3$, $n=1$ として計算。

Table II Comparison of calculated and observed values of the width of dislocation images on X-ray diffraction topographs with different diffracting planes.

Dislo. No.	反射面 β		10 $\bar{1}$ 0		20 $\bar{2}$ 0		30 $\bar{3}$ 0		2 $\bar{1}$ 10		4 $\bar{2}$ 20		0002	
	10 $\bar{1}$ 0	2 $\bar{1}$ 10	Calc.	Obs.	Calc.	Obs.	Calc.	Obs.	Calc.	Obs.	Calc.	Obs.	Calc.	Obs.
1	70°	40°	46 μ	37 μ	131 μ	140 μ	145 μ	195 μ	44 μ	54 μ	168 μ	230 μ	-	-
2	15	15	29	26	81	82	90	98	32	43	121	174	-	-
3	40	70	36	37	103	110	114	150	51	70	191	195	-	-
4	10	40	27	33	78	86	86	97	38	54	143	185	-	-
5	90		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	60 μ	53 μ
θ°	-		5.2		10.5		15.8		9.0		18.3		5.5	
$d_n \times 10^{-6}$	-		5.3		1.9		1.7		4.8		1.3		7.0	
$\xi\sigma(\mu)$	-		148		212		155		95		180		106	

$$MoK\alpha_1, \lambda=0.71\text{\AA} \quad n=1 \quad a=4.52\text{\AA} \quad c=7.36\text{\AA}$$

位のバーガース・ベクトル \mathbf{b} の間の角度の関係によって変化するためである。転位像の中は、この他に反射ベクトル \mathbf{g} 、バーガース・ベクトル \mathbf{b} の大きさ、波長 λ にも関係するが、これらは実験に使われた反射面、X線の波長および観察している転位のバーガース・ベクトルとして既知である。そこで第3図のような写真で一本の転位像の上のいろいろの場所、すなわち異なる β に対して像の中を実測し、(5)式による理論値と比較を行ってみた。この場合、転位像の中は乾板の上でコントラストの強い部分を顕微鏡で拡大して測った。また理論値は(5)式において $n=1$ として計算したものである。またロッキング・カーブの中 d_h は(5)式の但し書にある Ψ_h の計算において氷の消衰距離 ξ_g に夫々の反射面に対する計算値を使って算出した。この比較の結果は第II表にまとめてある。

5. 議 論

第II表をみるとわかるように、転位の *direct image* の中は、転位のまわりの *effective misorientation* によって計算した値と割合よく一致する。Authier によって与えられた転位のまわりの歪による *effective misorientation* の式を結晶表面に平行な刃状転位、ラセン転位について、すなわちそれぞれ $\beta=90^\circ$, $\beta=0^\circ$ の条件のもとで計算すると次式に示すように簡単になる。刃状転位にたいして

$$\delta\theta = \frac{b_e}{2\pi}(x-|y|\tan\theta) \left[\frac{1}{x^2+y^2} + \frac{1}{2(1-\nu)} \frac{x^2-y^2}{x^2+y^2} \right] \quad (6)$$

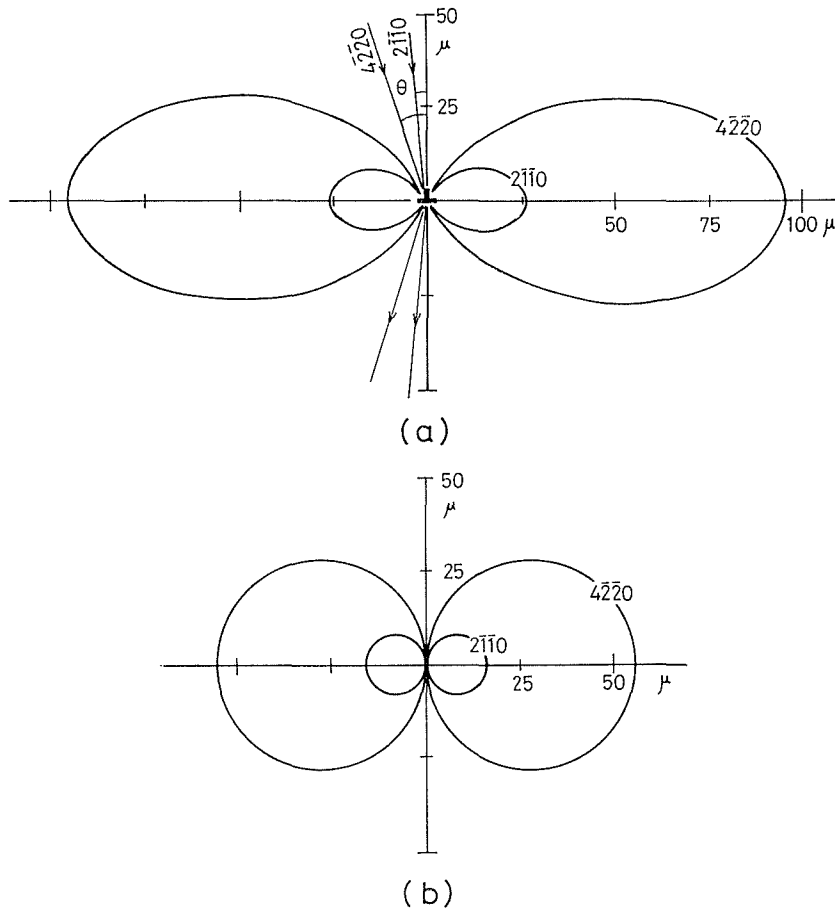
ラセン転位にたいして

$$\delta\theta = \frac{b_s}{2\pi} \frac{x}{x^2+y^2} \quad (7)$$

となる。刃状転位にたいする式は千川⁷⁾がCdSについての計算に使った式と同じになっている。これらの式は前述のAuthierの与えた一般式では $\delta\theta$ の計算が複雑になるため、純粹の刃状転位又はラセン転位について簡単化し、その周囲の歪場から $\delta\theta$ の等傾度線を転位を原点においた $x-y$ 座標上に描くためのものである。

$\delta\theta=d_h(n=1)$ になる等傾度線を、氷の転位 $\mathbf{b}=a/3\langle 11\bar{2}0 \rangle$ について計算した結果を第5図に示した。その模様は、刃状転位では楕円状に、ラセン転位では円になる。この等傾度線の内側の歪場が転位像のコントラストに寄与することになるが、反射面が高次になるほど *effective misorientation* の範囲が広がっていることがわかる。また転位の存在する原点の両側に対称形の *misorientation* を生じていることから、反射面を $(20\bar{2}0)$, $(30\bar{3}0)$, $(4\bar{2}20)$, (0002) にしてとったトポグラフで転位像が二重線になっていることをよく理解することができる。反射面が $(10\bar{1}0)$, $(2\bar{1}10)$ の場合にはこの両側の楕円又は円の拡がり小さく、トポグラフの分解能以下であるため、二重線としてうつらなかつたものと考えられる。

第II表に示したように転位線の中の実験値は計算値とかなりよく一致しているものもあるが、外れの大きいものもいくつかある。その一番の原因はトポグラフ上での転位線の中 L の測定精度にあると考えられる。転位像の周辺にはボケが存在し、その測定値に大きな誤差を生ずる。また、ある反射面の像については *dynamical image* の影響が入って、中の測定が精確でないものがある。一方 L の計算、あるいは *effective misorientation* の計算において、氷の結晶は弾性的に等方であると仮定している。この仮定は勿論正しくなく、氷の弾性率は結晶軸方向に対し10~30%の範囲で変る⁸⁾。この非等方性の影響の計算は複雑であるから今回は無視したわけであるが第II表の実験値と計算値の差の一部は、このことによっても説明できよう。



第5図 氷の結晶中のバーガス・ベクトル $a/3 \langle 11\bar{2}0 \rangle$ の転位について、式 (6) および (7) によって計算した effective misorientation $\delta\theta$ の等傾度線。 $\delta\theta = d_h$ とし、異なる反射面について計算。(a) 刃状転位、(b) らせん転位

Fig. 5 Contours of equal inclination of effective misorientation $\delta\theta = d_h$ calculated by equations (6) and (7) for different diffracting planes. (a) for the edge dislocation and (b) for the screw dislocation.

以上のような誤差の原因を考えた上で、この実験値と理論値が割合よく一致していることは 1~2 の任意の値をとるとされているパラメーター n の値に 1 を採用したこと、すなわち X 線回折トポグラフ上に転位像の生ずる原因である転位のまわりの歪場による effective misorientation $\delta\theta$ の大きさをロッキング・カーブの中と等しいとおいたことが正しいことを示している。

なお、この $\delta\theta$ の等傾度線の拡がり、他の物質、たとえば Si, Ge, CdS といった半導体よりもかなり大きく出ることが、 $\delta\theta$ の計算式に入っている消衰距離 ξ_0 が氷の場合は半導体のその数倍くらい大きいことが効いており、またバーガス・ベクトルの大きさも氷では他のものの倍くらいになることも効いているわけである。従って、実験条件のところ述べてのようにスリット巾をかなり開いた X 線を使ったにも拘らず、高次の反射面を使った場合には二重線像が明瞭に分解されたのである。このように像の中が広くでることは、X 線回折顕微鏡法を結晶の完全度検定に使う場合には、露出時間の短縮など有利な条件になると考えられる。また、結晶成長時における転位の発生、消滅のような現象を「その場観察」するのにも有利である。しかし、二本以上の

転位が近接していたり重っているような場合や転位密度が大きくなった場合の像の解釈には問題が生ずる。

純氷の単結晶中の転位による X 線回折トポグラフ上の像の中から我々は上述のように、 $n=1$ を結論した。これに対応する転位の周囲の弾性歪場の巾は第 5 図に示されているように低次の反射面でも $16\text{--}26\mu$ 程度の大きさがある。このことは転位の周囲のかなり広い範囲の歪場がトポグラフ上の転位像を作っていることを示している。そこで若しも氷単結晶中に不純物をドーブしたとき、それが転位像の巾に影響を及ぼすとすれば、それは転位線の周囲のかなり広い範囲に歪場を作るような偏析をしていなければならないことになる。合金などで知られている Cottrell 雰囲気の場合や転位と不純物が化学的に結びつけばこのような広い歪場分布を得る可能性がある。NaCl をドーブした結晶と NH_3 をドーブした結晶について転位像の巾に差違があるのは、この二つの不純物と転位の結合状態が全く異なることを示しているように思われる。また NH_3 をドーブした氷単結晶中に積層欠陥が発見された¹⁰⁾ ことは、後者の化学的相互作用の存在を裏づけるものである。前者の場合でも、不純物の分布形態を仮定して転位のまわりの歪場を計算し、構造因子の変化を考慮して、純氷の場合のように $\delta\theta$ を計算すれば、不純物の分布に関する知見が得られるであろう。しかし、不純物の分布については単に転位のまわりに分布しているばかりでなく、かなり不均一な分布をしているらしい証拠もある⁹⁾ ので、このような計算がそれ程有効であるとは思われない。むしろ、転位像の巾は転位線上の不純物分布の均一性や、不純物の種類による転位との相互作用の違いなどを定性的に探る手段として役立つであろう。

このようなことが可能になるためには、不純物の入った氷に対する転位像の巾が、純氷の場合と比べて、その誤差の範囲以上に変化しなくてはならない。この誤差の中、理論との差は第 II 表の結果に見るように平均 20%もある。またトポグラフ上の測定誤差も 10%くらいはある。従って、今後の問題として、この誤差を少くする必要がある。このためにはスリット巾をしぼって分解能をあげ、転位像の巾の測定も写真乾板上の濃度のピークを測って精度を上げることが要求されることになる。

謝 辞

本研究を行うにあたり熱心な御指導を頂いた応用物理学科東晃教授 および X 線のデータを提供して下さった六車二郎助教授に深く感謝意を表わすとともに、有益な御助言や御助力を頂いた NHK 放送科学基礎研究所千川純一博士、北海道教育大学中野嘉弘教授に感謝いたします。

文 献

- 1) 東 晃, 小黒 貢, 福田明治: 応用物理, 38 (1969), No. 6, p. 567.
- 2) Higashi, A., M. Oguro and A. Fukuda: J. Crystal Growth, 3, 4 (1968) p. 728.
- 3) Oguro M. and A. Higashi: Phil. Mag., 24 (1971) 189, p. 713.
- 4) 高良和武, 菊田惺志: 応用物理, 36 (1967) No. 2, p. 88.
- 5) Authier, A.: Modern Diffraction and Imaging Techniques in Material Science, ed. S. Amelinckx, R. Gevers, G. Remaut and J. Van Landuyt, North-Holland (1969) p. 481.
- 6) Authier, A.: Advances in X-ray Analysis, 9, Plenum Press, New York (1965) p. 1.
- 7) Chikawa, J.: J. Appl. Phys., 36 (1965) No. 11, p. 3469.
- 8) Fletcher, N. H.: The Chemical Physics of Ice, Cambridge Univ. Press (1970), p. 165
- 9) 小黒 貢: 未発表
- 10) Oguro M. and A. Higashi: Physics and Chemistry of Ice, Ed. E. Whalley, S. T. Jones and L. W. Gold Proc. International Symposium on Physics and Chemistry of Ice, Ottawa, 1972, The Royal Society of Canada 1973