学会シンポジウム

双晶の成長過程と不完全性

Growth Process and Imperfection in Twinning Crystals

高野 幸雄 (Yukio Takano)*

西田 孝 (Takashi Nishida)*

1. 双晶の定義と擬対称

本シンポジウムに先立って行われた特別講演“擬対称について”で定永会長¹⁾の最近のオリジナルな研究成果を含めての総合講演を拝聴致しました。30年前に定永会長より「俺の名前は弁証法的だ」と伺いましたが、両もまた一なりと培われた私どもが、双晶もまた Single である、或いは単結晶と共通な数多くの性格をもつものであると報告させて頂くのもあながち偶然ではないと存じます。したがって私どもの話題提供も会長講演と表裏をなすもので御座います。

また、私どもの話題提供の後には2~5番の強打者が控えて居られますので、安心して多少の欠陥はあっても将来の鉱物学への夢をも折り込んだスペキュレーションに富んだお話をと念じて居ります。

鉱物の成長過程において、しばしばサブミニマム・コンディションの産物と称せられる双晶体が出来ることは皆様周知の通りです。双晶体も単結晶を基準とした場合の不完全な代物であることも申すまでもありません。その月並みなことを中心に論じても次元の低い話題提供に終る可能性が強いので、ここでは私どもが昭和46年の年会以来報告させて頂いているように、双晶体の対称要素は $\bar{2}$ (双晶面) と2 (双晶軸) だけでなく、単結晶と同じく $6 \cdot 4 \cdot 3$ および $\bar{6} \cdot 4 \cdot 3$ の対称要素 (主双晶軸) ももつことを前提として、これらを基準とした場合の成長過程ならびに不完全性について論じさせて頂きたく存じます。またこのように双晶体全体のそのままの対称性に注目した場合には、2 (双晶軸) の代りに双晶面内に含まれる2 (二等分双晶軸) が、双晶面とともに双晶体における基本的な対称要素となり、この2つを併せもつものを通常双晶 (狭

* 東京大学教養学部基礎科学科

第 1 表 通常双晶における双晶の型式

型式 名称 双晶面の種類と鉱物における実例

A. 透入双晶 主双晶軸に垂直な双晶面と、平行な 1 種以上の双晶面

$O_{h3}-4/t3t$ (48 個体) 灰十字沸石・方沸石・白榴石・ダイヤモンド

$D_{6h4}-6/ttm$ (12 個体) 螢石・方解石・菱沸石・方鉛鉱

$D_{3h3}-3/tt2$ (6 個体) ザンソフィライト

$D_{4h4}-4/ttm$ (8 個体) 錫石〔九連双晶〕

B. 重交叉双晶 主双晶軸に平行な 2 種以上の双晶面

$D_{4h3}-4/mtt$ (8 個体) 金紅石・灰十字沸石

$D_{2h2}-tmt$ (8 個体) 重十字沸石・灰十字沸石

$C_{2v2}-tt2$ (2 個体) 石膏〔透入型〕・鱗珪石・十字石〔60° 交叉型〕・水マンガ
ン鉱〔60° 交叉型〕

C. 立方補充双晶 立方双晶系において、1 種で 3 枚または 6 枚の交叉した双晶面

$O_{h2}-4/m3t$ (24 個体) 黄鉄鉱〔鉄十字双晶〕・ウルマン鉱・灰十字沸石

$O_{h1}-4/t3m$ (8 個体) ダイヤモンド・アウイン・灰十字沸石・四面安銅鉱・
方ホウ石

D. 交叉双晶 主双晶軸に平行な 1 種 2 枚以上の双晶面

$D_{6h2}-6/mtm$ (6 個体) 輝銅鉱 (130)・鱗珪石 (10 $\bar{1}$ 6)・金緑石・桜石・方ソー
ダ石・白鉛鉱・金紅石・硫砒鉄鉱

$D_{3h2}-3/mt$ (3 個体) アラレ石・毒重石

$C_{6v1}-6tm$ (6 個体) 砒四面銅鉱・四面安銅鉱・GaAs

$D_{4h2}-4/mtm$ (4 個体) 鱗珪石 (30 $\bar{3}$ 4)・硫砒鉄鉱 (錐状)・十字石〔90° 交叉〕
灰十字沸石

$C_{4v1}-4tm$ (4 個体) 氷長石

E. 二等分環状接触双晶 主双晶軸に 垂直な 1 種 1 枚 (または、たがいに 平行な
数枚) の双晶面

$D_{6h1}-6/tmm$ (2 個体) 閃亜鉛鉱・スピネル〔回転式〕

$D_{3h1}-3/tm2$ (2 個体) 方鉛鉱・スピネル〔反射式〕方解石 (10 $\bar{1}$ 1)・(10 $\bar{1}$ 0)・
(01 $\bar{1}$ 2)・(21 $\bar{3}$ 1)・方鉛鉱〔板状〕閃亜鉛鉱〔菱形十二面体の貫入式〕

F. 二等分接触双晶 主双晶軸を 有せず、二等分双晶軸を含む 1 種 1 枚 (または、
たがいに 平行な数枚) の双晶面

$D_{2h1}-tmm$ 異極鉱・糞化石

$C_{2v1}-tm2$ 錫石・金紅石 (1 $\bar{0}$ 1)・方解石 (21 $\bar{3}$ 1)・日本式双晶 (11 $\bar{2}$ 1)・輝石・
白雲母・マネバツハ双晶・石膏〔接触矢筈型・上下型〕

義の双晶)とさせて頂きました。石英や長石類など造岩鉱物の場合を除くほとんすべての鉱物の双晶はこの通常双晶に属します(第1表)。またこの表に示すように従来の接合面も双晶面と呼び戻すことによって、双晶面の種類とその組合せにしたがって、通常双晶を透入双晶(A)・重交叉双晶(B)・立方補充双晶(C)・交叉双晶(D)・二等分還状接触双晶(E)・二等分接触双晶(F)の6つのタイプに分けることが出来ます。このうちA~Dを貫入双晶、EとFを接触双晶と総称します。またDを両者の中間に介在するものとも考えることも出来ます。これら通常双晶に属する点群の数は28となります。

狭義の双晶は以上で閉じた形となりますが、これまで鉱物学の分野で双晶と呼んで来たものを包括するために、二等分双晶軸を含まない双晶面だけを双晶要素とする異常双晶(7点群)と、双晶面および普通の対称面を全く持たずに回転軸の組合せのみからなる擬双晶(12点群)を設けました。これらに属する鉱物の双晶は非常に限られていて、異常双晶における t (アルバイト双晶)と擬双晶における $6'22''$ (ドフィネ双晶)と $2'22''$ (カルスバッド双晶)の3点群が重要な点群といえましょう。なおブラジル双晶は異常双晶の $3t$ に属することになりますが、右水晶と左水晶は同種の結晶ではないと考えると、異種の結晶の規則集合、すなわち双晶ではないともいえましょう。

2. 自然科学の法則と双晶

最近、Sheftal³⁾(1971)は貫入双晶をなす複正四面体双晶の形成過程を7つの段階に分けてその成長機構を論じている。また、Pabst⁴⁾(1971)は黄鉄鉱の疑似双晶形態を、Mansfield⁵⁾・Bailey(1972)はカオリンの擬双晶連晶と二重双晶を論じている。私どもの定義した平行結晶・平行連晶・単結晶・共軸双晶・立方対角軸双晶・複軸双晶・単軸双晶および傾斜軸双晶も、それぞれの典型的なものはその特徴を有するが、現実の結晶規則的集合体に適用すると連続的であると考えた方がよい場合に数多く遭遇する。

昭和48年4月東京で開催された「多様体国際会議」のため来日されたR. Thom教授のカタストロフィズム・セオリー⁶⁾は、現在世界数理界の注目を浴びています。しかし、地質学の分野では抽象的ではあるが、G. Cuvier(1812)が地球上の生物が急激に交代する何回かの時期を目して、このカタストロフィズム・セオリーを唱えていたのです。

また、井尻正二⁷⁾(1973)は学会における最後の研究報告と前おきして、地質学における第1タイプと第2タイプの法則について論じました。第1タイプは力学・物理学・化学の因果律で代表されるように、規則的・普遍的でこれを何度繰り返しても変る

ことのない法則である。他方、第2タイプは哲学者ヘーゲルが経験科学の法則に触れて論じたもので、事象の内的必然性にしがたってその発展を必然的にとらえたものであるとしている。即ち、動物界において魚類から両棲類を経て、爬虫類に進化するのがこれに相当する。話を鉱物界に持ち込めば、面角一定・有理指数の法則は第1タイプであり、産地や産状によって晶相や晶癖が異なるのは第2タイプの法則に相当するといえましょう。また、双晶も単結晶と同じく点群で表現出来るのは第1タイプで、双晶となったとき単結晶と著しく異なる結晶成長が観測されるのは第2タイプとなります。

さらに新しいカタストロフィーのタイプにも、折り目型・しわ型・へそ型などとともに燕の尻尾型・蝶型など双晶を連想させる名称が多く、単結晶からの激変ないしは不連続な「破局」とも考えられます。

3. 双晶の不完全性とその研究史

部分的であれ双晶体に2および $\bar{2}$ 以外の要素を用いた報告としては、Friedel⁸⁾ (1904・1926)⁹⁾・Buerger¹⁰⁾ (1945)・Garrido¹¹⁾ (1949)・Cahn¹²⁾ (1953)・Holser¹³⁾ (1957)・Le Corre (1958)¹⁴⁾・Curien・Donnay¹⁵⁾ (1959)・Mokievskii・Shafranovskii¹⁶⁾ (1967)・Sheftal¹³⁾ (1972) などがあります。また、本邦においても伊藤貞市¹⁷⁾ (1938) が双晶空間群論を展開するに当たり、双晶面および双晶軸は双晶形態を簡単に記載するための一つの方法に過ぎないと、従来の双晶要素のあいまいさを早くも看破して居ります。

既に知られているように対称面とその面内にある二回対称軸（二等分双晶軸）の組合せは、この対称面に垂直なもう一つの対称面の存在を意味する。第1図に示すように、これら2つの対称面がいずれも普通の対称面の場合は勿論単結晶であるが、そのうちの 하나가双晶面である場合は接触双晶、二つが同種の双晶面の時は交叉双晶、二つが異種の双晶面の場合は貫入双晶となります。時間の都合で詳細は省略させて頂き

第1図 a, 接触双晶 (Contact Twin) b, 交叉双晶 (Cross Twin)
c, 貫入双晶 (Penetration Twin)

ますが、関心ある方は小著²⁾を御参照賜われればと存じます。

それでは何故このような双晶の記述方式があまり顧みられなかったかを考えてみましょう。一つは「面角一定の法則」の発見などで鉱物結晶の代表とも認識されて来た水晶だけがこの双晶法則とはほとんど全く関係のない数十通りもの双晶をなしていたからです。他の一つの理由としては、19世紀の後半まで新面の記載なども高く評価されるように軸率も有効数字5桁以上に記載されるのを常としていたことに帰因すると思います。つまり、結晶はその種によって常に固有の値を有するというを前提として鉱物の形態研究が行われていたのです。当時の結晶体に対する認識からいえば至上の手段であった筈で、“不完全”な双晶はその枠の外に追い出されたまま、現代を迎えたということになりましょう。

現代流の動的結晶学の立場からは、我々のいう常温・常圧は、個々の鉱物ないしは結晶にとって“完全状態”にもっとも近い条件を維持するための適温・適圧でない場合が大部分と申せましょう。逆にいえば我々の常温・常圧では、ある鉱物は常に“不完全な”双晶体、しかもそれが更に歪んだ数多くの要素をはらんで相見えるのも当然と申せましょう。

ここで自然界における TWINS の一つの例として、かつて同僚の大関和雄らがイモリについて実験した結果を引用させて頂きましょう。イモリの脚のつけ根に縦または横の傷をつけて傷口に雲母板をはさみ、この部分が治癒して2つに分れて成育する段階になったら雲母板を外します。この雲母板が体長に垂直にはさまれた時は、この板を鏡映面とする前後に並んだ一対の脚、すなわち、前方にⅡ～Ⅴ趾、後方では逆に前からⅤ～Ⅱ趾となります。他方、雲母板が体長に平行にはさまれた時には、左右に腹側を向い合せにした一対の脚が双方とも前向きにⅡ～Ⅴ趾と同じ向きで配列します。いずれの場合もアルバイト双晶など鏡映面だけの異常双晶に対応する現象と申せましょう。

4. 双 晶 の 発 生

M. J. Buerger¹⁰⁾によれば、双晶はその発生機構から growth twins, transformation twins, glide twins の三種に分類されるとしている。無論現実の双晶においてこのようにはっきり区別するのが困難な場合も多い。しかしここでは結晶成長という主題から考えて、一応 growth twin に話をしぼります。

growth twins の成因としては成長時における平衡からの accidental な外れによるものであり、これは特に核形成時代の過飽和度の高い状態で起りやすいと言われていた。いずれにせよ成長双晶の発生過程において、それが広い意味での結晶成長の途中の段階で発生することを考えれば、これが一般の結晶成長の諸現象と多くの共通の問題点を持つことは当然であろう。そして双晶自体が単結晶に比べて多くの格子欠陥

をその構造中に含み、又それを特徴とする不完全な結晶であることから、普通の結晶成長における問題点として取りあげられるものの中で、次のような課題、

- (1) 結晶中に生ずる dislocation の原因
- (2) 結晶成長における不純物の役割

といったものが重要な問題となり得る。

以下に結晶成長機構においても重要な課題である上記二つの問題について、双晶形成に直接関係する二三の例を紹介する。

(1) 双晶面附近の原子の配列状態などというのは、無論誰も直接に観察することは出来ない代物である。しかし双晶面というのは、規則正しく並んでいた原子の配列が急にその面を境にして別の方位に並ぶ境界面である。このような方位の異なる結晶体の境目は普通 grain boundary と呼ばれており、そこには何らかの dislocation がかならず存在するはずである。grain boundary という一般に互いの方位関係が irrational な場合が多いが、それが rational な関係にあり、結晶学的に意味のある方位関係を持つ場合に双晶と言われているわけである。

結晶中に生ずる dislocation が原因で双晶が出来る例で最も一般的なのは stacking fault による双晶であろう。これは一種の層状構造を持つ結晶に見られる現象であるが、特に closest packing における A, B, C 各 site の積み重ねからなる結晶構造は鉱物においても重要な基本構造であり、このような構造でしばしば起る積層不整は、双晶あるいは polytype と密接な関係を持っている。

その結晶形態から片状晶として知られるチタン酸バリウム (BaTiO_3) の結晶は perovskite 構造をとるが、(111) 面の原子の積み重ねを考えれば、A B C A B C A の積み重ねからなる一種の立方晶系型構造である。今この積み重ねの途中で五層目の B site にくるべき原子が積層不整を起し C site に付いてしまったとする。そしてその後はやはり同様の立方晶系型の積み重ねを続けるものとする。と結果的には A B C A C B A という図 2 のごとき積み重ねとなり、A 層を鏡面とする一つの双晶が出来上る。ここで双晶面を含む C A C という積み重ねは六方晶系型の構造を有し、他は立方晶系型である。このように成長時における misfit の発生は、双晶発生に密接に関係する。しかし成長双晶の発生が特

第2図 チタン酸バリウム (BaTiO_3) の双晶の [110] 軸投影図

に非平衡状態で起りやすく accidental なものであるとすると、例えばこのような misfit 発生の原因、頻度等に関する実験的研究をしようとしても、極めて扱いにくい困難なものであろう。実際そのような研究報告は非常に少ないのが実状である。

良く知られている センアエン鉱型構造とウルツ鉱型構造は、それぞれ前述の立方晶系型、六方晶系型の積層順序に相当しているが、これら両方の構造を取りうる ZnS , SiC には、古くから数多くの多型が知られている。このような構造で積層不整がマクロな order で入ればいわずのスピネル型回転双晶と言われる。多型の場合には、積層不整が単位胞の order で繰り返されるものであり、その積層不整の度合い及び入り方によって、多数の種類の多型が生ずる¹⁸⁾。 SiC は強い共有結合からなる硬度の高い結晶で、一般に固体転移を起しにくく成長時の結晶構造がそのまま凍結されたものと考えられている。積層不整が SiC の成長時に無秩序で入れば、disordered type の多型となり X 線の回折像には diffuse scattering が表われる。そしてこの diffuseness の強度、分布から stacking fault を統計的に扱いその確率を算出することは可能である。これは、双晶形成に対する別の方向からの一つの approach の方法であろう。

(2) 結晶成長と不純物との関係についての研究は、古くから成長速度の制御、それに伴う晶癖、晶相の変化に関連して数多く報告されている。しかし双晶と不純物に関する研究はやはり少ない。前述の BaTiO_3 のバタフライ型双晶の成因に関してはいくつもの報告がある^{19)~22)}。 Ti^{4+} の Pt^{4+} による置換、Fe, Mn の酸化物の混入等により不純物が明らかに双晶の数を増加させることが実験的に確かめられているが、これは、このような不純物が前記の積層不整を起させる有力な要因となっているのであろう。実際にはさらに、条件の不安定な核形成時における高温型 hexagonal BaTiO_3 の発生、又低温型→高温型転移による transformation twin の要素等が入っていて、かなり複雑なものであろう。

格子網面の定数が類似していたり又はその整数倍の関係にある二種の結晶が連晶する現象は昔から天然にも良く知られていた。透入連晶として知られるジルコン(ZrSiO_4)とゼノタイム(YPO_4)は好例である。又それがミクロの order で連晶すれば、正長石と曹長石が貫入し合っているベルト石構造及び逆ベルト石構造が挙げられる。人工的には、epitaxial growth として、異種の結晶を平行連晶させる方法が種々の目的で広く活用されている。

このような異種の結晶の連晶が、同種結晶の双晶形成に重要な役割をはたしている場合がある。diamond における一般的な双晶はいわゆる spinel 式双晶で (111) 面を双晶面として互いの個体が 60° 回転したものである。この種の双晶は成長時における凹入角効果も手伝って普通三角形の平面状結晶として天然に時々見出されている。しかし或る種の人工 diamond では、単結晶がむしろ稀で、ほとんどがこの方式の双晶のみからなる場合がある。このような試料を X 線で調べてみると、その異状反射が

ら diamond の格子定数とほぼ同じ面心立方格子から成る nickel 又は nikel carbide (Ni_3C) が diamond¹⁾と (111) 面を平行にして連晶していることが H. J. Grenville^{23, 24)} らによって確かめられた。この Ni 又は Ni_3C は、(111) 面上の格子間隔が diamond と非常に似ている所から graphite $\rightarrow$ diamond への転移に重要な役割をはたすと考えられているが、そればかりでなくこれらの不純物が (111) 双晶面に epitaxially に介在することによって diamond 双晶の成因に役かっていると考える K. Lonsdale²⁴⁾ 等の説は大変興味深い (第3図)。我々は最近天然産の diamond 双晶においても、同様の異状反射を認め、双晶との関係について現在研究を進めている所である²⁵⁾。

5. 双 晶 の 成 長

双晶の成長と切っても切れない関係にあるのが成長促進中心としての双晶の凹入角であろう。低い過飽和度のもとで結晶が連続的に成長していくための成長促進中心としての screw dislocation と共に凹入角効果による成長機構は、比較的高い過飽和度、過冷却度での双晶の成長の主役である。最初に双晶の凹入角による結晶成長として着目された Ge の dendrite はあまりにも有名である^{26) - 28)}。これは第4図のごとく (111) 面を双晶面とした大きな (111) 面からなる平面結晶で $[\bar{2}11]$ $[\bar{1}\bar{1}2]$ $[\bar{1}2\bar{1}]$ 方向にそれぞれの個体が (111) 面からなる爽角 141° をなす凹入角を三方向に持つ。この型の結晶は凹入角のある三方向へ急速に成長し、図の点線のごとき三角形になると凹入角はもうなくなり単なる polyhedral の結晶となってしまう。

しかしもし二枚の双晶面を持つ三連双晶の場合には、 $[\bar{1}21]$ $[\bar{1}12]$ $[\bar{2}11]$ 方向にも凹入角が出来るので六方向に同じ割合で成長し、凹入角が永久的な成長促進中心となり得る。

このような凹入角効果による結晶成長の天然の鉱物の例としては水晶の日本式双晶は好例である。同一の晶洞内で見いだされる単結晶と日本式双晶とを比較すれば、双晶特有の扁平な柱面の大きさは、ゆうに並みいる単結晶の柱面の一桁上の大きさである。

双晶体本来の形態上の特徴からすれば、双晶は多かれ少なかれ凹入角を有し、凹入角効果による結晶成長を期待することが出来る。しかし凹入角でさえあれば、どのような場合にも、このように効率のよい成長促進中心として働くのであろうか。実際には凹入角をなす結晶面がF面か、S面か、K面であるか、あるいは凹入角方向の成長速度と他方向の成長速度との関係、その他複雑な要素が錯綜しているから、その取り扱いには厳密な実験と入念な考察を必要とするであろう。

前述の BaTiO_3 の バタフライ 双晶 (爽角 $38^\circ 56'$) は第5図のごとく薄い二枚の (100) 板が羽のように大きく成長する。この双晶の $[\bar{1}10]$ 方向の成長も A 及び B にお

第3図

第4図

第5図

第6図

第3図 左は Ni 基盤と diamond twin, 右は Ni 基盤と加圧下の graphite との epitaxial growth の関係 (Lonsdale²⁴⁾ の図による)。

第4図 Germanium の双晶 (Wagner²⁷⁾ の図による)

第5図 二枚の双晶面からなる BaTiO₃ のバタフライ双晶

第6図 SiC の (0001) 面の成長模様, 直線部分は 双晶の他方の個体 (位相差顕微鏡写真, ×500)

ける複数の twin boundary による凹入角効果によってうまく説明されている²⁹⁾。しかしこの双晶の形態の特徴から、凹入角効果によって厚み方向にも、当然速い結晶成長が期待されるはずである。しかし実際には厚み方向の成長はC点まではA, Bによる凹入角効果ですみやかに成長するが、それ以後は成長しないで薄い (100) 板で留まっているのが普通であるらしい。すなわち、C点における凹入角は外側の二枚の結晶面で出来た間接的な見掛けの凹入角であり、このような場合には、成長促進中心として効率よく働かないらしい。しかし Devies³⁰⁾ らによる詳細な実験によると バタフライ

双晶の (100) 面の内側にはC部分を出発点とした growth layer が観察され、このような growth pattern は他の小結晶を (100) の各面に接触させるとその両面に出現する事が確かめられている。これは恐らく、AB両個体のC点における impinging によって構造上の欠陥が発生し、これが成長促進中心となっているのであろう。

このように双晶体において見かけ上凹入角ではあるが構造上お互いに incoherent な場合でもお互いの成長速度の差や、熱分布の違いによる膨張、収縮の不均一による歪み等が原因で impinging が起こり、そこが成長促進中心と成りうる 場合が以外と多いのではないかと思われる。第6図は SiC 双晶の凹入角部分における impinging による growth layer 発生の一例である。

文 献

- 1) 定永両一：日本鉱物学会昭和48年度年会特別講演(施東京大学)(1973)
- 2) 高野幸雄：双晶の分類—双晶点群一，古今書院，東京(1973)
- 3) Sheftal, N. N.: Soviet Physics-Cryst., 16, 322 (1971)
- 4) Pabst, A.: Amer. Miner., 56, 133 (1971)
- 5) Mansfield, C. F. and Baily, S. W.: Amer. Miner., 57, 411 (1972)
- 6) Thom, R.: Stabilité structurelle et morphogénèse, Essai d'une théorie générale des modèles, Benjamin. (1972)
- 7) 井尻正二：日本地質学会第81回年会講演，(於東北大学)(1973)
- 8) Friedel, G.: Etudes sur les Groupement Cristalline, Societe de theolier, L Imperimerie, 1 (1904)
- 9) Friedel, G.: Lecons de Cristallographie, Berger-Levzault, Paris. (1926)
- 10) Buerger, M. J.: Amer. Miner., 30, 469 (1945)
- 11) Garrido, J.: Acta Cryst., 2, 197 (1949)
- 12) Cahn, R. W.: Acta Metallur., 1, 50 (1953)
- 13) Holser, W. T.: Zeit. Krist., 110, 249 (1957)
- 14) Le Corre, Y.: Bull. Soc. franc., Minér. Crist., 81, 120 (1958)
- 15) Curien, H. and Donnay, J. D. H.: Amer. Miner., 44, 1067 (1959)
- 16) Mokievskii, V. A., Shafranovskii, I. I., Vovk, P. K. and Afanas'ev, I. I.: Soviet Physics-Cryst., 11, 477 (1967)
- 17) 伊藤貞市：岩鉱，20, 201 (1938)
- 18) Nishida, T.: Miner. Jour., 6, 216 (1971)
- 19) De Vries, R. C.: Jour. Am. Ceram. Soc., 42, 547 (1959)
- 20) 和久 茂：工化誌，64, 272 (1961)
- 21) 佐々木 宏：単結晶作成法，日本物理学会編，227 (1966)
- 22) Ainger, F. W. and Herbert, J. M.: Trans. Brit. Ceram. Soc., 58, 410 (1959)
- 23) Grenville-Wells, H. J. and Lonsdale, K.: Nature, 181, 758 (1958)
- 24) Lonsdale, K., Milledge, H. J. and Nave, E.: Min. Mag., 32, 185 (1959)

- 25) Nishida, T. and Takano, Y.: Sci. Paper Coll. Gen. Educ., Univ. Tokyo, **23**, 159 (1973)
- 26) Bennett, A. I. and Longini, R. L.: Physical Review, **116**, 53 (1959)
- 27) Wagner, R. S.: Acta Metallur., **8**, 168 (1960)
- 28) Hamilton, D. R. and Seidensticker, R. G.: Jour. Appl. Phys., **31**, 1165 (1960)
- 29) Waku, S.: Rev. Electr. Commun. Labo., **10**, 1 (1962)
- 30) De Vries, R. C. and Sears, G. W.: Jour. Chem. Phys., **34**, 616 (1961)
- 31) Cahn, R. W.: Advances in Physics, **3**, 363 (1954)
- 32) 小松 啓: 鉱物雑, **6**, 441 (1970)
- 33) 定永両一: 鉱物雑, **4**, 1 (1959)
- 34) 高野幸雄, 西田 孝: 鉱物雑, **8**, 94 (1966)
- 35) 高野幸雄, 西田 孝, 太田多禾夫: 岩鉱, **66**, 55 (1971)
- 36) 高野幸雄, 河原 昭, 西田 孝: 岩鉱, **66**, 237 (1971)