電子衝撃浮遊帯域精製装置の試作およびその性能*

増 本 剛** 田 村 良 雄**

Katashi Masumoto and Yoshio Tamura: An Apparatus for Floating Zone Melting of Refractory Metals by Electron Bombardment. An electron bombardment floating zone melting apparatus for the refractory metals, which was first built-up on trial in Japan (1960), is described. The operation and the performance are further described for the floating zone melting of W, Mo, Ta, Nb, Pt, Pd and Fe rods. The results obtained are as follows:

(1) By using emission control, by which the bombardment current is kept constant by automatically adjusting the filament temperature and bombardment voltage in "Temperature Limited characteristics", the floating zone melting of sintered specimens incurring a great deal of outgassing during melting was performed successfully.

(2) The purifying effect of floating zone melting was confirmed by residual resistance ratio measurements and, from the ratio values, it was made clear that the zone melted rods have been purified by vacuum distillation and zone refining. Namely, in the cases of 5 mm ϕ W and Mo rods three zone passed at zoning rate 3 mm/min in 1×10^{-5} torr, the ratio values have been decreased to 1/400 for W rod and to 1/150 for Mo rod respectively against the values of starting materials.

(3) By only one zoning, 5 mm ϕ W, Mo, Ta, Nb, Pt and Pd rods were found to be single crystals at 1~4 mm/min without seed crystals.

Moreover, 4 mm ϕ Nb single crystal was produced by using $\langle 100 \rangle$ seed crystal. Therefore, this apparatus could be used as a single crystal growing apparatus for refractory metals.

(Received May 16, 1968)

I. 緒 言

高純度金属をえる精製法の一つに、物理的偏析現象を利用した、るつぽ不要の浮遊帯域精製法があることはすでに周知のとおりである。

Calverley ら^{(1)~(3)}は、この浮遊帯域精製に対し電子衝撃による加熱法を応用し、これまで一般に行なわれてきた高周波加熱法にくらべて、さらに広範囲な高融点金属にまでこの精製法が利用できることを報告している。すなわち、試料を陽極として、W フィラメントからの熱電子を試料の加熱源に利用するもので、この熱電子流を集束することによって、少ない電力で被加熱材料中に巾の狭い溶融帯を作ることができ、容易に高融点金属の溶解が可能であること、高真空中で溶解を行なうため、帯域溶融精製効果の他に含有ガスの放出、揮発性不純物の蒸発による真空精製効果も期待できること、またさらに、高融点金属の単結晶成長も可能であることを述べている。したがって、著者らは高融点金属材料や活性なるつぽと反応しやすい金属材料の精製および単結晶作製の目的にはこの簡単な構造の試料陽極型電子衝撃浮遊帯域溶融が最適な方法と考え、本邦においてはじめて、この電子衝撃浮遊帯域精製装置を試作し、

実際に各種高融点金属の精製を試みた⁽⁴⁾。その結果、浮遊帯域溶融時にガス放出の多い焼結材のWおよびMoにおいては、溶融帯を保持することがかなり困難であることが知られた。そこで、本試作装置の陰極系および電子電流安定回路を改良した⁽⁵⁾が、さらに安定な浮遊帯溶融を行なうために、排気系および電子電流安定回路に再改良を加えて、焼結材のWおよびMoの浮遊帯域溶融を可能にした⁽⁶⁾。

本報告において、まず最終的改良を加えた試作電子衝撃浮遊帯域精製装置について記述し、ついで実際にこの装置を用い、浮遊帯域溶融した各種金属についての実験結果を述べる。

II. 試 作 装 置

本装置は **Photo. 1** に示すように、排気装置(A)、駆動装置(B)および溶解室(C)からなる浮遊帯域精製炉本体、駆動装置用制御回路が組み込まれている陰極電源装置(D)、陽極電源装置(E)、および真空計と電子電流安定回路が組み込まれている陽極電源制御盤から構成されている。

1. 浮 遊 帯 域 精 製 炉 本 体

排気装置を除く本体の構造は **Fig. 1** に示すとおりで、本装置においては陽極である試料(a)を固定し、陰極系(b)が移動する方式を採用してある。この方式は陽極移動方式と

** 金属材料技術研究所 (National Research Institute for Metals, Tokyo)

* 1961年4月本会東京大会、1964年10月本会富山大会、および1967年4月本会東京大会に発表

(1) M. Davis, A. Calverley and R.F. Lever: J. Appl. Phys., **27** (1956), 195.

(2) A. Calverley, M. Davis and R. F. Lever: J. Sci. Instr., **34** (1957), 142.

(3) F. E. Birbeck and A. Calverley: J. Sci. Instr., **36** (1959), 460.

† 国際電気株式会社に依頼。

(4) 増本, 田村, 遠藤: 1961年4月本会東京大会講演概要, p. 86.

(5) 増本, 田村, 須藤, 高橋: 1964年10月本会富山大会講演概要, p. 113.

(6) 田村, 増本: 1967年4月本会東京大会講演概要, p. 117.

比較して、熔融帯を振動から避け、また限られた溶解室中で最長の帯域熔融距離を持つことができる長所がある。

Photo.1 Overall view of electron bombardment (E.B.) floating zone refining apparatus (A) Vacuum unit (B) Cathode traversing unit (C) Floating zone melting chamber (D) Controller for traversing unit and cathode power supply unit (E) Anode power supply unit. (Emission current regulator, anode power controller and vacuum measuring unit are not shown)

溶解室(①および Photo.1 の C)は直径 350 mm, 奥行 250 mm の円筒形で、肉厚 10 mm の軟鋼製であり、その前面は円形の開閉扉になっている。直径 80 mm の水冷式覗き窓(c)がこの扉に二つと、溶解室側面に一つある。溶解室の内面は硬質クロームで鍍金されており、外側には銅の水冷管とベイヤング用のシーブヒーターが巻かれ、溶解室内は排気速度 400 L/sec の油拡散ポンプ、排気速度 250 L/min の回転ポンプ、および液体窒素コールドトラップからなる排気装置(Photo.1 の A)により、到達真空度 1×10^{-6} torr 以上、作業状態で 5×10^{-5} torr 以上の真空度を保つことができる。

試料支持用の上下両軸(d および e)は不銹鋼製で、先端の Mo 製チャック(f)により直径 3~10 mm, 長さ 250 mm までの試料(a)を取り付けることができる。これら上下両軸は浮遊帯域熔融法において種結晶を用いて単結晶を作製する場合や上下個々の試料をつき合せて溶解接続する場合などに備えて、それぞれ単独に軸方向の移動が可能である。また上部軸(d)には熔融帯の形や長さを調整するための上下に微動する直径制御機構(g)が付帯し、軸をハンドル(h)により 70 mm の距離上下に移動できる。下部軸(e)は直流モーター(i)により 0~100 rpm の回転ができる。浮遊帯域精製中、下部軸を回転させることは熔融帯の状態確認、熔融帯の攪拌、熔融帯と固体部との界面における不純

物の拡散促進、熔融帯内部の温度の均一化などに有効である。

① Floating zone melting chamber ② Leadscrew driving unit having two D.C. motors, one A.C. motor and a planet gear ③ Carrier for traversing cathode ④ Guide stand ⑤ Leadscrew

(a) Specimen (b) Cathode (c) Sight port (d) Upper chuck spindle (e) Lower chuck spindle (f) Molybdenum chuck (g) Chuck raising or lowering screw (h) Chuck raising or lowering handle (i) D.C. motor for lower chuck rotation (j) Lock-nut (k) Cathode supporting spindle (l) Wilson seal (m) Worm gear box (n) Fastening knob (o) Lock-nut (p) Blinker (q) Blinker operating knob

Fig.1 Side view of electron bombardment floating zone refining apparatus (Zone melting chamber shows sectional side view)

駆動装置(②および Photo.1 の B)には 2 個の直流モーターと 1 個の交流モーターが付属し、浮遊帯域精製用として、0~5 mm/min の連続可変速度と、早送り用として、180 mm/min の一定速度の二つの駆動機構を備えていて、駆動装置上部の陰極移動軸(k)支持部(③)により、ロックナット(j)で任意の位置に固定した陰極移動軸(k)先端の陰極(b)を上下に移動する。陰極移動軸(k)は二重管構造になっていて軸の先端まで水冷され、試料からの輻射熱による升温を防ぎ、ウィルソンシール(l)を保護している。またこの軸は平行移動用ガイド(④)によつて、試料(a)に対して平行度 $\pm 2/100$ mm 以内の精度で、最大 160 mm の移動が可能である。

2. 電源装置

本装置の電源回路図は Fig.2 に示すとおりで、陰極加熱用交流電源、熱電子加速用の直流高圧電源、電子電流安定

回路および過負荷保護回路からなっている。

陰極加熱用電源装置 (Photo.1 の D) は 14 V, 25 A の陰極

制御される。またとくにアーク放電による I_e の急激な増加に対しては、帰還電圧 $I_e \cdot R_2$ によつて、設定値に対する超過電圧のみが、出力電圧制御回路を経て、陽極供給電圧 E_b を制御し、さらに電流調整用直列抵抗 R_3 に流れる I_e に比例した電圧降下によつて、応答速度の速い制御を陽極電圧 E_a に与え、それぞれ放電持続電位を下げてアーク放電を防ぐ。 R_3 はまた炉の内部抵抗に比べて、通常十分大きな値をとるため、電流安定回路としても有効に動作し、常に安定な I_e をえることができる。

(E_a) Anode voltage (E_b) Anode supply voltage (I_e) Emission current (R_1) 80~800 Ω , 120 W (R_2) 100 Ω , 100 W (R_3) 0~8 k Ω , 120 W (T_1) Pri. 200 V, sec. 14 V, 25 A (T_2) Pri. 200 V, sec. 0~240 V, 5 A ($H.T.$) D.C. power supply 1~14 kV, 1 A (O.C.) Output voltage controller (M.I.) Meter-relay and impedance converter (S.R.) Saturable reactor Pri. 200 V, sec. 80~190 V, 3 A (F.R.) Feedback current regulator and reference voltage power supply (O.L.R.) Over load relay D.C. 25 mA

Fig.2 Schematic electrical circuit of electron bombardment floating zone refining apparatus

変圧器と手動式電圧調整器および自動電圧調整器を使用し、陰極に安定な電圧を供給する。自動電圧調整器は可飽和リアクター式で、その定格は入力電圧 (200 V) $\pm 10\%$ の変動率に対して、出力電圧のそれは $\pm 1\%$ 以下であり、この出力電圧は手動式切換回路と電子電流安定回路用入力によつて 80~190 V 変化させることができる。

陽極直流高压電源装置 (Photo.1 の E) は電子管による 3 相全波整流式で、出力電圧制御回路にサイクロトンのパルス位相方式を用いている。この電源装置の定格は出力電圧が 1~14 kV 可変で、出力電流は 1 A, リップル含有率は 5% 以下で、また入力電圧 (200 V) $\pm 10\%$ の変動率に対し出力電圧のそれは $\pm 1\%$ 以下に抑えられ、陰極電源と同様、外部電源の変動による影響を防ぎ、安定な電圧を陽極に供給する。

3. 電子電流安定回路

電子衝撃浮遊帯域溶融を行なう際、最も問題になる点は電子電流の安定性である。すなわち、溶融時に試料から放出されるガスはイオン化して陰極に衝突し、陰極の温度を上げて電子電流を増加させる。これを放置すると、アーク放電にまで発達して溶融は不可能となる。このような電子電流の増加は急激に起こるので、手動により電流を調整することはほとんど不可能であり、自動安定回路が絶対的に必要となる。

本装置に使用した電子電流安定回路は Fig.2 に示したとおりで、2 極管特性の温度制限領域 (飽和電流領域) で使用することを前提条件に設計されており、陽極および陰極両電圧制御方式が用いられている。すなわち、Fig.2 において、電子衝撃浮遊帯域溶融炉の内部抵抗変化にともなつて増減する電子電流 I_e は検出電圧 $I_e \cdot R_1$ によつて、常に陰極の自動電圧調整器に帰還され、陰極の温度を調整して、

4. 陰極系

本装置に使用した陰極系の構造を Fig.3 に示す。図中フィラメントは 0.5 mm ϕ の W 線を直径 16 mm の環状に焼鈍成形したものであり、上下 2 枚の熱電子集束板は厚さ 0.5 mm の Ta 製で、ともに中心部の孔の直径は 9 mm であり、

Fig.3 Cathode assembly

内側へ高さ約 3 mm 円錐状に絞り加工してある。この中心部での上下集束板の間隔は約 4 mm である。なお集束板以外の部分は不銹鋼製である。

耐火絶縁物としては耐放電特性や機械的強度の点から、ベリリヤ、ジルコニヤおよび雲母を実験的に選び使用した。

III. 実験結果および考察

1. 試作装置の性能試験

本電子衝撃浮遊帯域溶融炉の電気的特性は簡単な 2 極管の特性を持つていると考えられるが、実際の溶解条件を決定するには、その特性を知る必要がある。そこで Fig.2 における電子電流安定回路用の R_1 , R_2 および R_3 をそれぞれ短絡して、陽極電圧 E_a に対する電子電流 I_e と陰極電流 I_f の関係を測定した。陽極にはあらかじめ $0.5 \sim 1 \times 10^{-5}$

torr の高真空中で溶解した 5 mm ϕ の W 棒を陰極にはすでに述べた 0.5 mm ϕ の W フィラメントを使用し、測定にさきだつて、真空度 $3 \sim 5 \times 10^{-6}$ torr, 加熱温度 $2500^\circ \sim 3000^\circ \text{C}$ で、両極それぞれのガス出しを十分行なつた。

Fig. 4 はその測定結果で、予想どおりの 2 極管特性を示

Fig. 4 Electrical characteristics of electron bombardment floating zone refining apparatus

し、 E_a が 4.5 kV 以下では、 I_f が 19 A 以上に空間電荷領域が存在し、 I_e が I_f に依存しない部分が現われている。したがって、 I_f が 19 A 以上の広い範囲で、しかも温度制限領域で使用するためには、 E_a が 5 kV 以上であればよいことがわかる。またこの図から、5 mm ϕ の種々な金属試料に対しても消費電力 ($E_a \times I_e$) の相違を考慮して、最適な E_a を選定することができる。

つぎに Fig. 2 における R_1 , R_2 および R_3 を接続して、実際の浮遊帯域溶解時における電子電流 I_e の安定性について、それぞれ 5 mm ϕ の焼結材の W および Mo アーク溶解材の Mo 電子ビーム溶解材の Ta および Nb をそれぞれ試料として調べた。 I_e の安定度は、各試料ともに E_b を 5.5 ~ 6 kV, 真空度を $1 \sim 4 \times 10^{-5}$ torr, 陰極移動速度を 3 mm/min とし、長さ約 100 ~ 120 mm を浮遊帯域溶解する時間内における I_e と I_f の変化量 ΔI_e および ΔI_f を測定して判定した。その結果は Fig. 5 に示すとおりで、焼結材の W および Mo を試料としたときは、 I_f の変動率が 26 ~ 27 % に対して、 I_e の変動率は 5 ~ 6 % を示し、アーク溶解材の Mo を試料としたときは、 I_f の変動率が 25 % に対して、 I_e の変動率は 3.5 % を示している。またガス放出が少なく、しかもフィラメントへの蒸着の少ない試料の場合は、1 % 以内の安定度がえられることが知られる。しかし、Mo の場合は焼結材とアーク溶解材において、両者の I_f の変動率がほぼ同じ、すなわちフィラメントへの Mo の蒸着が

ほぼ同じであると考えられるにもかかわらず、 I_e の変動率が異なるのは、熔融帯からのガス放出状況に対する帰還回路の応答速度の影響がきいているためである。以上の結果から、本装置の電子電流の安定性は、陰極の温度を制御する定電流回路の採用により、ガス放出の多い試料でさえ、

Fig. 5 Variations of emission current I_e and filament current I_f during floating zone melting at zoning rate 3 mm/min

5 % 前後の変動率に抑えられることがわかった。

本装置製作後発表された Sell⁽⁷⁾ の理論的考察によると、2 極管特性の空間電荷領域と飽和電流領域の遷移部分で、定電流回路を使用すれば、“thermal coupling” によって、陰極の温度も制御され安定な電力がえられると報告されている。しかし本実験に示されたように、溶解時にフィラメントへの蒸着が多く、 I_f の変動率が大きい場合は、本装置に採用した前述の温度制限領域での陽極および陰極両電圧制御方式が最適と考えられる。

つぎに本装置の陰極系 (Fig. 3) により種々の金属を帯域熔融したとき要した電力を、Donald⁽⁸⁾ が理論的に算出した値と比較検討した。すなわち、Donald によると半径 R (cm) の棒状試料で熔融帯の長さを L (cm) とすると、帯域熔融に必要な電力 P は

$$P = 2\pi Re\sigma T_0^4 (6/5 + L/\lambda_0) \quad (1)$$

$$\text{ここで } \lambda_0 = (5kR/9e \cdot \sigma \cdot T_0^3)^{1/2} \quad (2)$$

で表わされる。ただし、 e は全輻射率 (%), σ はステファンボルツマン定数, k は熱伝導度 ($\text{cal}/^\circ\text{K} \cdot \text{cm} \cdot \text{sec}$), T_0 は融点 ($^\circ\text{K}$) である。また彼は実験に要した電力を P_{exp} としたとき、次式を用いると標準化条件 (直径 $2R=1$ cm, 熔融帯の長さ, $L=0.3$ cm) の電力 P_n がえられると述べている。

$$P_n = P_{\text{exp}} \cdot (2R)^{-3/2} [1 + 1/4 \lambda_{01} (1/R)^{1/2}] \quad (3)$$

ここで λ_{01} は (2) 式に各試料の T , e , k を代入して計算した λ_0 の値であり、 $W=2.2$ (cm), $Ta=2.0$, $Mo=2.8$, $Pt=4.1$, $Fe=5.4$ となる。そこで本実験においても $L=0.3$ cm (近似値) であるので、(3) 式に P_{exp} を直接代入して P_n を求めた。その結果は Fig. 6 に示すとおりである。図中には比較のため、これまでに各実験者^{(2)(9)~(12)} によつて報告された値も、 P_n を計算してあわせて載せてある。この図から著者

(7) H.G. Sell and W.M. Grimes : Rev. Sci. Instr., **35** (1964), 64.

(8) D.K. Donald : Rev. Sci. Instr., **32** (1961), 811.

らの結果が Donald 以外の各実験者の結果とよく一致していることがわかる。しかし、彼の計算値よりわずかに高い値

Fig. 6 Relation between calculated and experimental values in electron bombardment floating zone melting power as a function of temperature

を示している。これは彼が行なつた空間電荷領域での電力 P_{exp} と計算値とがよく一致している点から考えて、本実験が温度制限領域で行なわれたことによるものと思われる。

2. 浮遊帯域 溶 融 実 験

Photo. 2 Aspects of 0.5 mm ϕ tungsten wire filaments before and after E. B. floating zone melting for 5 mm ϕ tungsten rod as a starting material (a) Before refining (b) After one zone pass (c) After a second pass with a new filament (Zone refined distance about 100 mm long, the rate 3 mm/min)

- (9) W.R.Witzke : *Proc. First Symp. Electron Beam Melting*, Boston, (1959), p.73.
 (10) H.W.Schadler : *ibid*, p.51.
 (11) A.Lawley ; *ibid*, p.1.
 (12) J.A.Belk : *J.Less-Common Metals*, 1 (1959), 50.

(1) 精製効果

浮遊帯域精製実験はいずれも 5 mm ϕ の焼結材の W, Mo

Photo. 3 Aspects of E.B. floating zone melted (A) 5 mm ϕ tungsten rods (B) 5 mm ϕ tantalum rods (a) After one zone pass, (b) After three zone passes, (c) After five zone passes, at zoning rate 3 mm/min respectively

Fig. 7 Variation residual resistance ratio along 5 mm ϕ tungsten and molybdenum rods after three floating zone passes at zoning rate 3 mm/min in $1 \sim 5 \times 10^{-5}$ torr vacuum

および Pt アーク溶解材の Mo および Pd 電子ビーム溶解材の Ta および Nb 真空溶解材の Fe などについて行なつた。

は約 5×10^{-5} で、素材の 2×10^{-2} に比べて約 1/400 に、また同じ条件で帯域熔融した Mo の場合は $R_{4.2^\circ\text{K}}/R_{295^\circ\text{K}}$ = 約

Fig.8 Unit stereographic diagrams showing axes of floating zone melted (a) tungsten, (b) molybdenum and (c) tantalum (filled circle) and niobium (open circle)

精製条件は熔融帯移動速度を 1~4 mm/min, 熔融帯の長さ 3~4 mm, 帯域熔融回数を 1~10 回, 熔融距離を約 100 mm, 試料支持下部軸回転を 20~100 rpm, 真空度を $1 \sim 5 \times 10^{-5}$ torr とした。

焼結材の W および Mo を浮遊帯域熔融したときは、やはり前述の I_f の増加が最も大きく、また 1 回目の帯域熔融において、3 mm/min 以下の熔融帯移動速度では、実験の途中でフィラメントの交換が必要であつた。しかし 2 回目以後の帯域熔融においては 1 mm/min の遅い速度を選ぶことも可能であつた。このことは熔融中に、蒸発する W あるいは Mo がフィラメントに付着すること以外に試料からのガス放出とともに飛散する熔融金属粒子がフィラメントに付着することにより、フィラメントの太さが変化し、電子電流が不安定になるためである。Photo.2 はこの状況を示したもので、1 回目の帯域熔融後と、1 回帯域熔融した試料を新しいフィラメントで、さらに 1 回帯域熔融した 2 回熔融後の状態に明瞭な相違がみられる。また焼結材の Pt の場合も同様であつた。

一方電子ビーム溶解材の Ta および Nb においては、最初から 1 mm/min の遅い速度で帯域熔融を行なつても、ガス放出がほとんどないため、フィラメントは数回の帯域熔融の使用が可能であつた。またフィラメントへの蒸着の点のみから見ると、W, Mo, Pd および Fe は帯域熔融中かなり蒸発し、Ta および Nb と比較してフィラメントの寿命が短かつた。Photo.3 (A) および (B) はそれぞれ熔融帯移動速度 3 mm/min で (a) 1 回, (b) 3 回および (c) 5 回浮遊帯域熔融した 5 mm ϕ の W と Ta の外観を示す。

浮遊帯域熔融した試料の純度判定は液体 He 温度における残留電気抵抗を測定することによって行なつた。Fig.7 は W および Mo に対する測定結果で、3 mm/min の速度で 3 回帯域熔融した W の残留抵抗比

$$\left(\frac{\text{液体 He 温度における電気抵抗}}{\text{室温における電気抵抗}} = \frac{R_{4.2^\circ\text{K}}}{R_{295^\circ\text{K}}} \right)$$

($\times 2.5 \times \frac{1}{5}$)

Photo.4 A niobium single crystal grown from starting end of E.B. floating zone melted

(a) Polycrystalline starting material and (b) Single crystal (chemical polished by a solution of $\text{HF}:\text{HNO}_3=1:1$)

($\times 3 \times \frac{1}{5}$)

Photo.5 A niobium single crystal grown by E.B. floating zone melting using a seed crystal

(a) $\langle 100 \rangle$ seed single crystal and (b) Single crystal (chemical polished by a solution of $\text{HF}:\text{HNO}_3=1:1$)

2×10^{-4} で、素材の 3×10^{-2} に比較して約 1/150 に減少している。浮遊帯域熔融した試料の長さ方向に対する残留抵

抗比の分布からは帯域溶融精製の効果がみられるが、帯域溶融末端部への不純物の偏析が少ないことがわかる。したがって精製の効果は必ずしも帯域溶融のみによるのではなく、真空蒸溜精製の効果も同時に含まれていると思われる。

(2) 単結晶の作製

1~4 mm/min の速度で浮遊帯域溶融した W, Mo, Pt, Pd, Ta および Nb は 1 回の帯域溶融でほとんど溶融した全長にわたり単結晶になった。Photo. 4 は 5 mm ϕ の Nb を 3 mm/min の速度で 1 回帯域溶融した後、HF : HNO₃ = 1 : 1 の混合液で化学研磨した試料の帯域溶融開始端付近を拡大したもので、(a) 部は素材を (b) 部は帯域溶融した部分を示す。この写真から、溶融帯の移動開始と同時に単結晶が成長している様子がよくわかる。しかし単結晶が帯域溶融開始と同時に成長しない場合でも、溶融開始端から数 mm のところで単結晶となった。

Fig. 8 はえられた W, Mo, Ta および Nb 各単結晶の帯域溶融方向の方位をステレオ投影によつて示したものであるが、これから各金属特定の単結晶成長容易方位を知ることとはできなかった。

つぎに種付けによる Nb 単結晶作製を試みた。種結晶として、3 mm ϕ の Nb を 1 mm/min の速度で 1 回帯域溶融してえた $\langle 100 \rangle$ の単結晶を試料として 4 mm ϕ の電子ビーム溶解材を用い、最初両者を接触させそれぞれの両端を部分的に溶解し接続したのち、3 mm/min の速度で浮遊帯域溶融を行なつて単結晶を成長させた。その結果は Photo. 5 に示すとおりで、(a) が種結晶、(b) が種結晶から成長

した単結晶であり、所要の結晶方位をもつ単結晶をえる方法としても本装置が十分利用できることを知つた。

IV. 総 括

本邦においてはじめて高融点金属材料の精製用として、電子衝撃浮遊帯域精製装置を試作し、その性能試験を行ない、W, Mo, Pt, Pd, Ta, Nb および Fe 各金属の浮遊帯域溶融実験を行なつた。その結果はつぎのとおりである。

(1) 本装置の陽極電源として 1~14 kV, 1 A 陰極電源として 14 V, 25 A の容量のものを使用し、電子電流安定回路には温度制限特性の範囲で、陽極および陰極両電圧制御方式を採用し、Fig. 3 に示す陰極系を使用した結果、浮遊帯域溶融時に比較的气体放出が多い試料でも十分安定な帯域溶融を行なうことができた。

(2) 本装置を用いて浮遊帯域溶融した焼結材の W および Mo において、残留電気抵抗測定による純度判定を行なつた。すなわち、 1×10^{-5} torr の高真空中で、3 mm/min の速度で 3 回浮遊帯域溶融した W および Mo の残留電気抵抗比をそれぞれ素材のそれと比較すると、W の場合は 1/400 に、Mo の場合は 1/150 に残留電気抵抗比が減少し、明らかに精製効果が認められた。

(3) 浮遊帯域溶融した W, Mo, Pt, Pd, Ta および Nb は 1~4 mm/min の溶融帯移動速度で、1 回帯域溶融したのみでほとんど溶融全長にわたり単結晶になり、また種を利用した単結晶製作も可能で、本装置は高融点金属単結晶作製装置としても十分利用できることが知られた。