G.P.ゾーンの内部構造

(The Internal Structure of G.P. Zone)

J. B. Cohen*

訳 長村光造†

【概 要】

X線散漫散乱の解析の新しい方法を述べるが、この方法はクラスタリングおよび短範囲規則のどちらにも適用できる特徴をもっている。Al-Cu 合金中の G.P. I ゾーンの状態は単層と多層のゾーンの混り合いであることが明らかにされた。単層のゾーンは 100% の Cu 原子から成り、多層のゾーンは Al 原子を特に外側の層に含んでおり中心部分は 90~100% の Cu 原子が存在する。ゾーン中の Cu 原子は母相に近い最近接原子間距離を示す。ゾーンのまわりの Al 原子面は曲げられており、最近接面でその変位は Gerold のモデルより大きい。ゾーンから離れると急速に小さくなる。Al-Ag 合金では 443K (170°C) で形成された G.P. ゾーンは球状でなく八面体の形状を示し、ゾーン中に 68% の Ag 原子を含み規則化は起っていない。

1. 緒 言

材料科学の分野で一般に点および線欠陥はいろいろな物性を制御する重要な因子であると考えられているが、また組成的ゆらぎも同じように重要な役割を果たしている。ここでは主として金属について考えることにするが、例えば G.P. ゾーンのような場合には電子顕微鏡あるいは電界イオン顕微鏡を用いたときには少数のゾーンについての情報が得られるのみで統計的に十分であるとは言いがたい。その点散漫散乱法は特に有利な手段であるといえよう。合金中にクラスターが生じると入射ビームや Bragg ピークの近傍に余分の散漫な散乱が現われる。一方短範囲規則があると Bragg ピークの中間に付加的な散漫散乱強度が生ずる。長範囲規則が発達すると余分の反射が現われるようになる。合金中に組成的な変調構造があると一般的に Bragg 反射の近傍に小さなピーク

(サテライト)が現われるようになる。これらの原因による散乱強度のほとんどは微弱なものであり、固溶体中の randomness からのずれに敏感である。今後新しい高強度の X 線源が得られるようになればわずかに数十分の 1 パーセント程度の溶質原子を含む合金でも調べることができるようになるであろう。

金属は一般に稠密構造をとるので大きさの異なる溶質原子は平均の格子点から原子の配列にずれを生じさせる割合が大きい。このずれは特に入射ビームから十分離れたところで回折強度に影響を与えるので散漫散乱の研究からこれらの変位や局所的な規則性について研究することができる。過去 10 年間に散漫散乱を定量的に解析する方法が著しく進歩してきた。この分野での最近における取扱いについてまたアルミニウム合金中の G.P. ゾーンの内部構造についての実験結果を述べるのがこの稿の目的である。さらに電子顕微鏡、NMR、FIM および EXAFS 等の他の実験による結果についても触れる積りである。

2. 解 析 方 法

系にクラスターがある場合の散漫散乱強度を模式的に示すと図 1 のようになる。ここで次のようなことがわかる。

図 1 クラスタリングと原子変位が合金中にある場合、逆格子空間の $[h00]$ 方向に沿う X 線散漫散乱強度への種々の寄与を模式的に表わしている。

* Frank C. Engelhart Professor of Materials Science and Engineering, The Technological Institute, Northwestern University, Evanston, Ill. 60201, USA

† 京都大学助教授；工学部冶金学教室
1981 年 1 月 27 日受理

(1) I_{SRO} で示される強度は化学的な偏析によるものである。この散乱強度は Bragg ピークの近くで起り、かつ散乱角が増加したときに減少する散乱因子を補正すればこれらのピークはすべて同じ強度となる。

(2) 平均格子からの平均的な静的原子変位による寄与がありこれを hQ で示す。この寄与は逆格子空間で距離 h が大きくなるにつれ振幅が大きくなるように振動し、Bragg ピークのまわりで非対称である。

(3) 熱的および静的な平均二乗変位は h^2R で示される寄与を生ずる。この寄与は I_{SRO} と同じ領域にあるが、 I_{SRO} が h に依存しないのに較べて h^2 に比例して増加する。

以上に示したより高次の項もちろんあるがそれらは一般に強度が非常に弱いものである。ここで(2)、(3)の寄与は直射光の近くいわゆる小角散乱域で小さくなるが無視することはできない。もちろん I_{SRO} のみについての情報を記述するようなときにはこの小角域での散乱強度で十分である。他方 Bragg ピークのまわりからの情報には I_{SRO} および変位についての詳細な情報が含まれるので我々のグループで扱うのはこの領域である。図2は時効した Al-Ag 合金に対する Bragg ピークのまわりの散乱強度を示す。強度分布が非対称なのは変位つまり hQ の寄与によるものである。Al と Ag はサイズがほとんど違わないが、ある適当な角度範囲で検出され得るものである。このような散乱強度を解析するためには基本的に2通りの方法がある。1つはデータに直接モデルを合せる方法である。しかしこの場合には大きさ、形、組成等を変数としてモデルの中に入れることは非常に難しい。我々はこれらの寄与は逆格子空間で各々異な

図2 Al-5.02 原子%Ag 合金における 002 ピークのまわりの強度分布、ここで合金は 823 K (550°C) で 50.4 ks (14 h) 溶体化処理後水中焼入れし直ちに 383 K (110°C) で 50.4 ks (14 h) 時効された⁽⁸⁾。

る対称性と変化を示すのでまず最初にそれらを分離しておく方がよいと考える。単結晶を用い各寄与を分離するに必要な逆格子空間内の十分な領域を調べる。次に分離した寄与をどのように処理するか考察を進めて行くのが第2の方法である。この分離を行うために用いられる取扱いは2通りのやり方がある。Borrie-Sparks⁽¹⁾による第1の方法は各寄与の対称性にもとづくものである。しかしここでは分離とそれに引き続く解析のために逆格子空間内での散乱因子の変化は小さいと仮定している。散乱因子を含む項は正しく Q や R を表現する方程式の一部分であるため、この方法は次の場合にのみよい結果をもたらす。つまりサイズ項が小さくかつ短範囲規則度のみがある(クラスターは含まない)場合にはサイズ項と化学的效果を十分に分離することができる⁽²⁾。中性子を用いた研究では非常によい結果が得られている。というのは散乱因子は磁気的な寄与を含まなければ定数となるからである⁽³⁾。

我々はX線を用いた研究に上述したとは異なる取扱いを提唱している⁽⁴⁾。逆格子空間内のある点 h_1, h_2, h_3 での全弾性散漫散乱強度を I_D で表わすと、組成 c_A, c_B をもつ2元系では次のようになる。

$$\begin{aligned} \frac{I_D}{c_A c_B (f_A - f_B)^2} = & I_{\text{SRO}} + h_1 \eta Q_x^{\text{AA}} + h_1 \zeta Q_x^{\text{BB}} \\ & + h_2 \eta Q_y^{\text{AA}} + h_2 \zeta Q_y^{\text{BB}} + h_3 \eta Q_z^{\text{AA}} + h_3 \zeta Q_z^{\text{BB}} \\ & + h_1^2 \eta^2 R_x^{\text{AA}} + 2 h_1^2 \eta \zeta R_x^{\text{AB}} + h_1^2 \zeta^2 R_x^{\text{BB}} \\ & + h_2^2 \eta^2 R_y^{\text{AA}} + 2 h_2^2 \eta \zeta R_y^{\text{AB}} + h_2^2 \zeta^2 R_y^{\text{BB}} \\ & + h_3^2 \eta^2 R_z^{\text{AA}} + 2 h_3^2 \eta \zeta R_z^{\text{AB}} + h_3^2 \zeta^2 R_z^{\text{BB}} \\ & + h_1 h_2 \eta^2 S_{xy}^{\text{AA}} + 2 h_1 h_2 \eta \zeta S_{xy}^{\text{AB}} + h_1 h_2 \zeta^2 S_{xy}^{\text{BB}} \\ & + h_2 h_3 \eta^2 S_{yz}^{\text{AA}} + 2 h_2 h_3 \eta \zeta S_{yz}^{\text{AB}} + h_2 h_3 \zeta^2 S_{yz}^{\text{BB}} \\ & + h_3 h_1 \eta^2 S_{zx}^{\text{AA}} + 2 h_3 h_1 \eta \zeta S_{zx}^{\text{AB}} + h_3 h_1 \zeta^2 S_{zx}^{\text{BB}}. \quad (1) \end{aligned}$$

強度因子は次のようにフーリエ級数で与えられる(原子間ベクトルを $la_1 + ma_2 + na_3$ とする)。

$$\begin{aligned} Q_x^{\text{AA}} = & -2\pi \sum_l \sum_m \sum_n \left(\frac{c_A}{c_B} + \alpha_{lmn} \right) \langle x_{lmn}^{\text{AA}} \rangle \\ & \sin 2\pi h_1 l \cos 2\pi h_2 m \cos 2\pi h_3 n, \quad (2) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} R_x^{\text{AA}} = & 4\pi^2 \sum_l \sum_m \sum_n \left(\frac{c_A}{c_B} + \alpha_{lmn} \right) \langle x_0^{\text{A}} x_{lmn}^{\text{A}} \rangle \\ & \cos 2\pi h_1 l \cos 2\pi h_2 m \cos 2\pi h_3 n, \quad (3) \end{aligned}$$

$$I_{\text{SRO}} = \sum_l \sum_m \sum_n \alpha_{lmn} \cos 2\pi h_1 l \cos 2\pi h_2 m \cos 2\pi h_3 n, \quad (4)$$

$$\alpha_{lmn} = 1 - \frac{P_{lmn}^{\text{A|B}}}{c_B}. \quad (5)$$

$P_{lmn}^{\text{A|B}}$ はあるA原子から原子間ベクトル lmn 離れた位置にB原子を見出す確率である。

$$\eta = \frac{f_A}{f_A - f_B}, \quad \zeta = \frac{f_B}{f_A - f_B} \quad (6)$$

各寄与が分離されていると対応するフーリエ級数の係数は逆変換によって決められる。例えば平均格子(x^{AA} 等)からの各々 AA, BB 対の変位の x, y, z 成分が

決定される。S項は変位成分 x, y, z の積を含む項である。式(2)~(4)で定義された項はすべて周期性をもっている。散漫散乱強度は一連の h_1, h_2, h_3 の組について測定される。 Q_x^{AA} 等の成分は互いに同じかあるいは反対符号の値をもち、結果として線型方程式の組が Q_x^{AA} , Q_x^{BB} , Q_y^{AA} 等に対して解かれる。この取扱いは少々骨の折れるやっかいなものである。というのは最小二乗法のために少なくとも25個の逆格子点でデータが必要であるからである。この方法は一括して Fortran 言語で書かれ Digital Equipment Corporation PDP8-E 16K ミニコンピュータで計算できるようになっている。このミニコンは回折装置とさらに必要な電子回路につながれている。測定は自動化されており散漫散乱強度の解析は real time で行なわれる。

このプログラムは最初オペレーターとの対話から始められる。そこで種々の実験条件、散乱因子のような定数項や強度の分離を行なうのに必要とされる逆格子点の数が決められる。そうすると次に述べる操作が順次に各逆格子点で繰り返えされる。

強度因子がある逆格子点での絶対値と同じになるような h_1, h_2, h_3 のすべての組が各強度因子の対称性(単立方, BCC, FCC)を考慮してとり出される。とり出された逆格子点が高い対称性を示す方向にあると強度因子は1次独立ではなくなる場合がある。あるものは対称性より零になり、他のものは互いに等しい値をもつ場合がでてくる。このような関係を調べ後で強度解析をするときの条件にする。1組の h_1, h_2, h_3 の値が回折装置のプログラムへ組み込まれる。装置の角度範囲を越えるようなものは除外される。

式(1)で示されるような方程式の線形結合の行列要素を考えてみよう。各 h_1, h_2, h_3 逆格子点で方程式の係数が計算され行列の各要素にあてはめ記憶される。引き続き回折装置は次の対応する逆格子点に移動し測定を開始する。散乱強度は幾何学的因子によって補正され Laue 単位に変換される。行列がすべて詰められるとまず1次結合した要素が消去され次に残る要素は最小二乗法で決められる(この解析法の詳細と誤差解析については文献(4)を参照のこと)。

逆格子空間の最小体積中で各寄与の分離が行なわれると、 I_{SRO} , Q_x^{AA} 等は式(2)~(4)で与えられるように簡単なフーリエ級数で表わされるのでその逆変換が行なわれる。このようにして Q から変位についての情報が直ちに得られ、 I_{SRO} から Warren の短範囲規則パラメーター α_{lmn} が得られる。以上述べた方法により局所的偏析についての情報を得ることを試みることができる。この目的のため計算機シミュレーションを用いることにする⁽⁵⁾。計算機内に3次配列の4000~108000個の原子

を周期的境界条件のもとに置く。これらの原子を組み換えて実験誤差内で実測の α_{lmn} に合うように計算が続けられる。このシミュレーションの結果は手でもってあるいはソフトウェアで詳しく吟味される。文献(3)にはプログラムについての数学的な証明、種々の検証についての詳細が述べられている。また CoPt_3 についての FIM の実験結果との比較も行なわれた⁽⁶⁾。

最も重要な量は α_{lmn} であるがこのパラメーターを決めるため用いた最小二乗法はどうしても統計誤差を含む⁽⁷⁾。この種の実験結果が意味あるものかどうか検証する方法がある。たとえば式(5)から $\alpha_{000} \equiv 1$ であり、 I_{SRO} のフーリエ級数の第1項に相当し、逆格子空間内の一定体積中の全 I_{SRO} を表わしている。この値を ± 0.1 以内の精度で求めることは十分可能である。この精度から著しくはずれているような結果は信頼性がなくそれは寄生散乱や高次の項の不完全な補正あるいは化学的および変位からの寄与の分離が不完全であることによるものである。結果を検証する別の評価基準がある。たとえば後で議論する Al-1.7 原子%Cu 2 元系を考えてみよう。 α_{lmn} に対する最大の値は $1 - (1/0.987) \cong -0.017$ となる。これより非常に大きな負の値が得られたとすればその結果には問題がある。

3. 実験方法

この実験を成功させるため2つの大きな手がかりがある。まず最初に空気あるいは蛍光(不純物からのわずかな蛍光さえも)に起因する寄生散乱を最小にしなければならない。この目的のため我々は真空中に引けるような薄い Be 製の半球状のカバーで覆われた低温にも高温にもできる試料室を使用している。また固体検出器(SSD)もしばしば利用している。第2に通常の封入管を用いると実験は普通2~3週間時には数カ月かかる。封入管は時効するのでこのような長期間にわたっては安定であるといえないし、気圧が変化すると空気によるX線の吸収も変化する。このような効果を最小にするため試料からの計数値はモニターの計数値(普通 10^6 カウント)と比較して求められる。モニターはモノクロメーターと試料の間に置かれた薄片からの蛍光を見ている。ここで薄片は5~10%のX線を吸収する(フィルムからの Bragg 反射あるいはモニター用にX線管の他の窓を使用することは十分といえない)。

我々の実験方法をまとめると次のようになる。

- (1) 湾曲入射ビーム単色計およびビームモニターを使用している。
- (2) データは寄生散乱や分極のような幾何学的因子の補正がなされている。
- (3) 直射光の強度を測定しているので結果を絶対値

(たとえば electron units/atom)に変換できる。

(4) コンプトン散乱は計算によって差引かれている。

(5) もし必要であれば高次の TDS を計算して差引く。この項は Al 基および Fe 基の合金で非常に重要となる。また他の合金でも高温での測定の時重要となる。

4. 結 果

この分野での我々の結果の多くは、最近得られたものである。ここで要約しておくが詳細については原論文をみてほしい。

(1) Al-Ag⁽⁸⁾

散漫散乱の研究から G.P. ゾーンは 68 原子%の Ag を含む 8 面体形状のものであることが結論されている(図 3)。それ以前にはゾーンはほぼ球形であると考えられてきたが、今までに撮られた電子顕微鏡写真を詳しく調べても球状のゾーンを見出すことはできなかった。微小な歪コントラストを消去できる weak-beam 法を利用した新しい研究法が、この問題点の解決のために特に興味があるものとなる。

我々の結果は試料を 443 K (170°C) 以下で時効したとき明らかに散漫な余分の反射が現われるが、これはサイ

図 3 計算機シミュレーションから得られた Al-5.02 原子% Ag 合金の G.P. ゾーンの構造⁽⁸⁾。

ズ効果によるものである。この反射は温度を上げてゾーン中の Ag 濃度が減少するような温度範囲で消失する。ゾーン中の Ag 原子は文献(9)で考えられたようには規則化していないのは確かである。

原子の変位は距離と共に振動し、 P^{Ag-Al} に逆比例して変化する。この振動についての実験結果は点欠陥に対する理論的計算⁽¹⁰⁾と驚くほどよい一致を示す。この研究では α_{000} の値は必ずしもよくないが、これは高次の項に原因するものであった。

(2) Al-Cu⁽¹¹⁾

過去 30 年間にわたり多くの手段によりおびただしい研究がなされてきたにもかかわらず、この系のゾーンについてまだ多くの疑問が残されている。今までにはっきりしていることは次のようなものである。

(1) Cu 原子は {100} 面に偏析する。

(2) 隣り合う Al 原子面はゾーンに近づくように移動する。

自明となっていない事柄には次のようなものがある。

(1) ゾーン中の Cu 原子濃度(報告された値は 20~100% の間にある)。

(2) ゾーンからどれだけ離れた Al 原子面まで変位が及ぶか(文献にある値は 4~14.3 の間にある)。

(3) その縮みはどの程度の大きさか。

我々にとり、ゾーンによる強化機構を計算するためにも、状態図を理解するうえにも上述した点をはっきりさせる必要がある。

我々は室温で 12 年間時効した結晶で研究を行ったが、このような長い時間は熱平衡に達するために必要であったのではなく、適切な解析方法と技術を開発するためにかかったのである。ここで報告する結果は G.P. I についてのものである(京都大学の村上教授の学生であった松原英一郎君が、現在著者らの研究室において博士コースで短時間時効した場合および G.P. I から G.P. II への遷移について研究を行っている)。

Al-1.7 原子% Cu 合金についての研究結果を次に述べるが、ここで α_{000} は 0.995 ± 0.032 であり、最も大きな負の α_{lmn} は -0.026 であった。

(1) G.P. I の状態は単層および多層のゾーンの混合である。

(2) 単層のゾーンは 100% の Cu 原子から成っている。

(3) 多層のゾーンの中心で Cu 原子濃度は 90~100% であり、時々(100)面内に 30~50% の Al を含む場合がある(図 4 参照)。

(4) ゾーン中の Cu 原子間距離は純銅のそれよりも母相の距離に近い。

(5) 母相中の Cu 濃度は 0.1 原子% 以下である。

第1層

第2層

第3層

第4層

図4 計算機シミュレーションによる多層 G.P. (I) ゾーンの構造モデル。ここでゾーン中の(001)面に沿う原子の積み重なりが示されている。

(6) 周囲の(100)面はたわんでいる。

(7) 最近接の Al 面の変位は Gerold のモデル⁽¹²⁾より大きい。ゾーンから離れると、この変位は Gerold のモデルよりもっと急速に減少し、格子統計にもとづく計算結果と一致する。

以上述べた結果が、現在日本で行なわれている研究とよい一致を示すことが明らかになったことは、私にとって喜ばしいことである。東北大学の平野教授と阿部博士の FIM の研究、東京工大の高橋教授と里博士および京都大学吉田助教授の格子像の研究は G.P. I ゾーンの状

態が単層のゾーンのみでないことを支持しているように思われる。京都大学の高村教授と中村博士の NMR を用いた Cu 溶質の溶解度限に関する研究は我々が見出した母相中の低い溶質濃度の値を支持している。

EXAFS を用いた G.P. ゾーンについての研究が最近フランスで行なわれている⁽¹³⁾。しかし結果として得られたゾーンは 50% の Cu 原子を含むというモデルと観測された強度とは合っていない。そのモデルはもっと大きな強度を与えるはずである。ここで述べた散漫散乱の実験は高濃度の結晶性固溶体中の局所的な原子配列の研

究については EXAFS より感度のよい手法であることは明らかである。

〔謝 辞〕

ここで述べた研究を可能にすべく努力して下さった私の元の学生諸君に感謝の意を表したい。P.Gehlen 教授と J.Gragg 博士は計算機シミュレーションの方法を開発した。P.Georgopoulos 博士は我々の新しい解析法を考案した。一連の研究は米国の NSF の援助によるものである。X線の実験はノースウェスタン大学のX線部門で行なわれたが、一部は NSF の材料研究のプログラムを通して援助を受けたものである。

今度の日本訪問(1980年10月12日より11月9日)は日本学術振興会の招へいによるもので、同会に対して深謝致します。日本での滞在中、ホスト教授として非常に親切にして頂きました京都大学の村上教授に特に感謝の意を表します。長村助教授には滞在中親切にいただきました。また日本国内を旅行したときに多くの方々が私と意見を交換して下さいましたことを感謝致します。今度の訪問で本当にすばらしい実りの多い経験を持つことができました。また多くの新しい友人を得ることができました。最後にこの拙稿を日本に戻っておられる私の元の学生および同僚であった寺内助教授(関西学院大学)、早川助教授(鳥取大学)および森永講師(豊橋技科大学)に奉げたいと思います。

文 献

- (1) B.Borie and C.J.Sparks : Acta Crystallogr., **A27**(1971), 198.
- (2) J.E.Gragg, Jr., M.Hayakawa and J.B.Cohen: J.Appl.Crystallogr., **6**(1973), 59.
- (3) S.Lefevre, F.Bley, M.Bessiere, M.Fayard, M.Roth and J.B.Cohen : Acta Crystallogr., **A36**(1980), 1.
- (4) P. Georgopoulos and J. B. Cohen : J. Phys. Paris, C-7, Suppl.12, **38**(1977), 191.
- (5) J.E.Gragg, Jr., P. Bardhan and J.B.Cohen: *Critical Phenomena in Alloys, Magnets and Superconductors*, Eds. R. E. Mills, E. Ascher & R.I.Jaffee, McGraw-Hill, New York, (1971), p.309.
- (6) H. Berg, Jr. and J.B.Cohen : Acta Met., **21**(1973), 1579; *ibid.*, **21**(1973), 1589.
- (7) T. B. Wu : publication in preparation.
- (8) J.E.Gragg, Jr. and J.B.Cohen : Acta Met., **19**(1971), 507.
- (9) H. Auer and U. Gerold : Z. Metallk., **56**(1965), 240.
- (10) P. A. Flinn and A. A. Maradudin : Ann. Phys., **18**(1962), 81.
- (11) X. Auvray, P. Georgopoulos and J.B.Cohen: Acta Met., in Press.
- (12) V. Gerold : Z. Metallk., **45**(1954), 593; *ibid.*, **45**(1954), 599 ; Acta Crystallogr., **11**(1958), 234.
- (13) A. Fontaine, P. Lagarde, A. Naudon, C. Noguera, D. Raoux and D. Spanjaard : Phil. Mag., **40**(1979), 17.

＜新刊案内＞

化学者のための材料指針

渡辺信淳 佐伯健作 共編

化学実験室で実験の対象となる反応系が複雑になるにつれ、ガラス器具やガラス製品だけでは、反応装置が組み立てられない時代になってきた。編者がまえがきで述べているように、この本は、実験室で用いる反応装置の製作にあたり、どのような金属材料、高分子材料あるいは無機材料を選定したらよいかの指針を与えることを目的としている。

内容は、22章に分けられ、第1章には、金属および高分子材料の腐食の原理が簡潔に述べられている。以下、前半は暴される環境別に、また後半は目的別に材料の特性が記述されている。第2章から第8章までは、硫酸、亜硫酸、硝酸、亜硝酸、塩酸、リン酸、炭酸、臭素、臭化水素酸、フッ素、フッ酸用耐食材料、9・10章は、アルカリおよびアンモニア用耐食材料、11・12章は、尿素、有機酸、各種溶媒用耐食材料が述べられている。13章以降には、耐熱用、金属材料、

炭素材料、非鉄金属材料、高分子材料、更に耐摩耗用金属材料、セラミックス材料、高分子材料のほか、高分子構造材料、固体潤滑材料、電気抵抗材料などが記されている。

それぞれの専門家から見れば、食い足りないきらいがないでもないが、これだけの材料を網羅した材料選定の指針を300ページ程度の本にまとめるとすれば、現在作りうる良書の1つと言える。

化学工業における実際の装置材料が暴される環境は、きわめて複雑であり、また安全性にも格段の注意が必要であって、経済性を加味して、工業装置の材料選定の指針を与えることは、もとより本書の目的ではない。事故が生命にかかわることがない反応系である限り、新しい実験装置を組み立てようとする研究者が、装置材料を選定しようとする場合には、この本を参考にすれば間違いなかるう。(K.H)

〔A5判 320頁 1980年 3,300円 共立出版〕