電子線回折法における臨界電圧の 温度・規則度依存性

友清芳二* 黒田光太郎** 江口鉄男***

1. はじめに

電子線回折において電子線の加速電圧を変化させてゆくと、結晶の厚さのいかにかわらず、ある特定の電圧である面からの反射強度が極端に弱くなってしまう現象がある⁽¹⁾。通常観測されるのはその面からの2次反射強度が弱くなる現象で、臨界電圧効果あるいは2次反射消滅効果とよばれている。臨界電圧効果は電子線回折における相対論的效果と動力学的多波効果によるもので、通常の電顕像の消衰縞あるいは回折図形中の菊池線を観測することにより確認することができる。臨界電圧効果を利用して純金属の低次の原子散乱因子の精密測定が可能なが指摘されて以来⁽²⁾、この効果は超高圧電顕の定量的応用例の1つとして注目されている。著者らは今までに純金属、銅合金および鉄合金の臨界電圧を測定し、臨界電圧効果が合金のDebye温度や格子点からの原子の静的変位量を求めるのに有効であることを明らかにしてきた^{(3)~(6)}。

本稿では臨界電圧の温度・規則度依存性に関する一般の特徴をのべるとともに、それをもとにどのような情報が得られるかを、応用例を示しながら紹介する。第2節では金属・合金の臨界電圧に影響をおよぼす因子について簡単に触れ、第3節で臨界電圧の温度依存性、第4節では短範囲規則度および長範囲規則度依存性について述べる。第5節では臨界電圧の高精度測定法について述べ、最後に、臨界電圧効果を金属学へ応用する上での問題点を整理してまとめとする。なお、臨界電圧効果一般についてはすでにすぐれた紹介⁽⁷⁾があるのでそれらを参照していただきたい。

2. 合金の臨界電圧

合金の臨界電圧の値がどのような因子に依存するかを知るために、ここでは o 、 g 、 $2g$ 反射を考慮した三波近似で話をすすめる。ただし、 o は透過波を表わし、 g は系統的反射列の中で最低次数の反射を表わす逆格子ベクトルである。2次反射($2g$ 反射)の臨界電圧 V_c はBragg条件を満足している $2g$ 反射の強度が最小になる電圧であり、次のように表わされる⁽⁷⁾。

$$V_c = \frac{m_0 c^2}{e} \left\{ \frac{g^2}{U_g \left(\frac{U_g}{U_{2g}} - \frac{U_{2g}}{U_g} \right)} - 1 \right\} \quad (1)$$

ここで m_0 、 e はそれぞれ電子の静止質量、電荷であり、 c は光速である。 U_g は相対論的效果を無視したときの g 反射の結晶構造因子であり、

$$U_g = \frac{1}{\pi v_0} \sum_j f_j \exp[-2\pi i(\mathbf{g} \cdot \mathbf{r}_j)] \quad (2)$$

で与えられる。ただし、 v_0 は単位胞の体積、 f_j は位置ベクトル $\mathbf{r}_j$ で表わされる単位胞内の j 格子点にある原子の散乱因子である。2元合金の平均原子散乱因子は、温度の効果まで含めると次のように表わされる⁽⁸⁾。

$$f = m_a f_a \exp(-B_a s^2) + m_b f_b \exp(-B_b s^2) \quad (3)$$

ここで f_a 、 f_b は a 、 b 原子の電子線に対する散乱因子、 m_a 、 m_b は a 、 b 原子のモル分率、 $s = \sin \theta / \lambda$ 、 θ はBragg角、 λ は電子線の波長である。 $\exp$ の項は a 、 b 原子に対する温度因子であるが、これらは厳密には互いに独立ではない。 B_a と B_b を分離するのは困難なので、実際には式(3)ではなく、次のような近似式がよく使われる⁽⁹⁾。

$$f = (m_a f_a + m_b f_b) \exp(-B s^2) \quad (4)$$

ただし、 B は次式で与えられる⁽¹⁰⁾。

$$B = \frac{8\pi^2}{3} \langle u^2 \rangle = \frac{8\pi^2}{3} \left\{ \langle u^2 \rangle_{th} + \langle u^2 \rangle_{st} \right\} \quad (5)$$

$\langle u^2 \rangle$ は平均格子点からの原子の変位の自乗平均であり、添字の th は熱振動による原子の熱的変位の寄与、 st は成分原子の大きさの差に起因する静的変位の寄与を表わしている。

* 九州大学講師；超高圧電子顕微鏡室

** ケースウエスタンリザーブ大学客員助教授；材料工学科

*** 九州大学教授；総合理工学研究科・材料開発工学専攻

Dependence of Critical Voltages in Electron Diffraction on Temperature and Degree of Order; Yoshitsugu Tomokiyo*, Kotaro Kuroda**, Tetsuo Eguchi*** (*Research Lab. of HVEM, Kyushu Univ. Fukuoka; **Case Western Reserve Univ., Cleveland, Ohio, USA; ***Graduate School of Engineering Sciences, Kyushu Univ. Fukuoka) 1981年9月7日受理

熱的変位の自乗平均 $\langle u^2 \rangle_{th}$ は Debye 温度 θ を使って次のように表わされる⁽¹⁰⁾.

$$\langle u^2 \rangle_{th} = \frac{9h^2T}{4\pi^2\mu k\theta^2} \left\{ \phi(x) + \frac{1}{4}x \right\} \quad (6)$$

ここで h は Planck の定数, k は Boltzmann 定数, $x = \theta/T$, T は絶対温度, μ は原子量 (合金の場合は平均原子量), $\phi(x)$ は Debye 関数である. 式 (6) の $\{\phi(x) + x/4\}$ は $1 + x^2/36 - x^4/3600 + \dots$ と展開でき, $x \leq 1$ では近似的に 1 とおける. つまり $T \geq \theta$ の高温領域では $\langle u^2 \rangle_{th}$ は温度 T に比例する. 一方, 合金の $\langle u^2 \rangle_{st}$ は合金内成分原子の配列状態にのみ依存する. したがって, ある一定の原子配列状態にある合金の $\langle u^2 \rangle$ は $T > \theta$ では T に比例して増加する. 以上の記述から明らかに合金の V_c は合金組成だけでなく, B 因子を通して温度や合金内の局所的原子配列にも左右されることがわかる. 合金の V_c を解析する場合原子散乱因子は $f = m_a f_a + m_b f_b$ で与えるとしても, パラメータとして B 因子が未知であるだけでなく, これは厳密に言えば合金の成分原子の種類によって異なる. つまり, 合金の V_c を解析して原子散乱因子や Debye 温度あるいは原子の静的変位などの情報を得ることは容易でないことがわかる. なお, V_c を実際に解析するには三波では近似が不十分で, 動力学的回折理論にもとづき多くの波を取り入れた計算を行う必要がある. その際, 高次の原子散乱因子には理論値⁽¹¹⁾を使い, 低次の原子散乱因子には純金属の V_c の実測値で補正した値を使うのがよい⁽⁶⁾. 次節では実験で得られた純 Cu および Cu 合金の V_c の温度依存性を示し, その解析例を紹介する.

3. 臨界電圧の温度依存性

純 Cu, Cu-Al および Cu-Au 合金で測定された 400 反射の V_c (以後 (400) V_c と略する) の温度依存性を図 1 に示す†. 図から明らかなように, 室温以上では V_c は温度とともにほぼ直線的に減少することがわかる. このことを利用して微小領域の試料温度, 例えば電子線照射による試料温度上昇の程度を知ることができる. Cu を例にとると, (400) V_c を ± 5 kV の誤差で測定すれば, ± 7.5 K の誤差で試料温度変化が推定できる. 後述するように, V_c の測定誤差が ± 1 kV 程度に減少すれば Cu の試料温度変化を ± 1.5 K の誤差で知ることも可能である. Al の (400) V_c のように温度依存性の大きな金属では検出温度の精度はさらに向上する.

次に V_c の温度依存性から合金の $\langle u^2 \rangle_{st}$ と $\langle u^2 \rangle_{th}$ または θ を求めることを考えてみる. 合金の平均原子散乱因子を与えれば, われわれは V_c の測定から $\langle u^2 \rangle$ を T の関数として求めることができる. 第 2 節で述べ

たように $T > \theta$ では $\langle u^2 \rangle$ は温度とともに直線的に変化し, 直線の勾配から θ が求められる. この直線関係を $T=0$ まで外挿したときの $\langle u^2 \rangle$ の値は純金属の場合は零となり, 合金の場合は $\langle u^2 \rangle_{st}$ となるはずである. もちろんこの解析方法は Debye 温度 θ が一定であるということが前提になっている. しかし, 実際には θ に多少温度依存性があるため, 上記の方法をいきなり適用することはできないことがわかる. 以下に, 解析の比較的容易な純金属を例にとりて θ の温度依存性が無視できないことを示す. 図 2 は 200 反射の原子散乱因子 f_{200} と Debye 温度 θ を少し変化させて計算した純 Cu の (400) V_c を実測値とともに示したものである. f_{200} を 1% 前後変化させたり, あるいは θ をこれまでに X 線測定など

図 1 Cu および Cu 合金における臨界電圧の温度依存性.

図 2 Cu に対する臨界電圧の計算値と実測値の比較.

† 熱電対による測定誤差も考慮した入射電子流による試料温度上昇は 15 K 以下であった.

で得られている合理的な値の範囲で変化させても V_c の計算値は測定値を再現することはできない. このような不一致は θ が試料温度に対して不変であるとしたことに起因していると考えられる. Cu の (440) V_c も高温ほど実測値と計算値の一致はよくない⁽¹²⁾. 純金属の θ が

図3 Cu および Al における Debye 温度の温度依存性. $C(T) = \theta(T)/\theta(T_0)$, 図中の破線は Paskin⁽¹⁷⁾, 一点鎖線は Marshall と Stuart⁽¹⁸⁾, 実線は Tolpadi⁽¹⁹⁾ の式から予想される値.

図4 Cu-14.9 原子% Au における原子の平均自乗変位 $\langle u^2 \rangle$ と温度の関係.

試料の温度により変化すると考え, 各温度で測定された V_c を再現するような Debye 温度 $\theta(T)$ を求め, これを室温 T_0 での値 $\theta(T_0)$ で規格化した値を $C(T)$ とし図3に示す. 図3 (a) は純 Cu の (400) V_c から求めた $C(T)$, 図3 (b) は純 Al の V_c の結果から求めた値⁽¹³⁾ と, 中性子線, X線回折により求められた値⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾ を示したものである. 図3に見られるように Debye 温度が試料温度によって変化する理由としては, まず格子振動の振動数分布に関する Debye 模型の近似性を考慮すべきであり⁽¹⁶⁾, はかに振動の非調和性に根拠を求める試みもなされている. 例えば熱膨張の効果や弾性定数の温度依存性を考慮した Paskin⁽¹⁷⁾, Marshall と Stuart⁽¹⁸⁾ および Tolpadi⁽¹⁹⁾ らの擬調和振動の考えによる式からは図3に示す値が予想されるが, 著者らの実測値とはなお隔たりがある. 振動の非調和性をもっと本質的に考慮すべきとも考えられるが⁽²⁰⁾, ここでは $C(T)$ の解釈にはあまり立ち入らず, V_c の温度依存性の解析に話をもちます.

図4は Cu-14.9 原子% Au の (400) V_c から求めた $\langle u^2 \rangle$ と T の関係を示したものである. 図中の○印は測定温度に対してプロットした $\langle u^2 \rangle$ の値であるが, ●印は純 Cu の $C(T)$ に見合う分だけ T 軸に平行移動したときの値である. すなわち, 純 Cu で得られた $C(T)$ と Cu 合金におけるそれとが等しいと仮定して $\langle u^2 \rangle$ の値を T 軸に平行に $\{C(T)\}^2 \cdot T - T_0$ だけずらして再プロットしたのが●印である. 新しい $\langle u^2 \rangle$ 対 T の直線の傾きと切片から室温における合金の Debye 温度 θ_0 と原子の静的変位の自乗平均 $\langle u^2 \rangle_{st}$ が求められる. 表1はこのような方法で求められた Cu-Au および Cu-Al 合金の $\langle u^2 \rangle_{st}$ と θ_0 である. 参考のために表には X線測定から求められた値⁽²¹⁾⁽²²⁾ と計算結果 (計算法およびパラメータ τ については後程紹介する) も示してある. V_c から求めた結果と他の方法から求めた結果との対応はほぼ合理的なものであり, $C(T)$ に対する上述のとり扱いが妥当であることが示唆される. この解析法は他の合金系にも十分適用できるとと思われる.

4. 臨界電圧の規則度依存性

(1) 短範囲規則度依存性

原子の配列状態に短範囲規則性を有する合金では,

表1 室温における合金の Debye 温度 θ_0 と原子の静的変位の自乗平均 $\langle u^2 \rangle_{st}$.

合 金	$\theta_0(298 \text{ K})$ (K)			$\langle u^2 \rangle_{st} (10^{-11} \text{ m})^2$		
	今回の結果	X 線	計算結果 ^(a)	今回の結果	X 線	計算結果 ^(a)
Cu-14.8 原子% Al	329	325 ^(b)	330 ($\tau=1.1$)	0.24	0.15 ^(b)	0.30
Cu- 4.9 原子% Au	319	—	317 ($\tau=1.8$)	0.45	—	0.43
Cu-14.9 原子% Au	308	(283) ^(c)	310 ($\tau=1.8$)	0.93	1.25 ^(c)	0.84

(a) 式(7), (8)による, (b) Houska と Averbach, 文献(21), (c) Coyle と Gale, 文献(22)

V_c は $\langle u^2 \rangle_{th}$ および $\langle u^2 \rangle_{st}$ の両方を通して短範囲規則度に依存する。最近, Shirley と Fisher は V_c におよぼす短範囲規則度の影響を理論的に考察している⁽²³⁾。まず彼等は合金の Debye 温度を次のように表わした。

$$\mu\theta^2 = m_a\mu_a\theta_a^2 + m_b\mu_b\theta_b^2 + (\tau-1)(1-\alpha_1)m_am_b(\mu_a\theta_a^2 + \mu_b\theta_b^2) \quad (7)$$

ここで μ_a, μ_b および θ_a, θ_b はそれぞれ a, b 原子の原子量と Debye 温度, τ は原子間力定数で無次元のパラメーターであり, $\tau=1$ は同種原子間力の算術平均を意味している。 α_1 は一般に α_1 で表わされる Warren-Cowley の短範囲規則度⁽¹⁰⁾で, $i=1$ の場合である。 τ, α_1 がわかれば純金属の Debye 温度を用いて合金の Debye 温度, さらに $\langle u^2 \rangle_{th}$ が評価できる。一方, $\langle u^2 \rangle_{st}$ は次のように表わされる⁽²³⁾。

$$\langle u^2 \rangle_{st} = G(m_a, \gamma, \eta, \alpha_1) \quad (8)$$

ただし, G の具体的関数形は複雑でありここでは省略する。ここで, γ は実験から決まるパラメーターで 1 に近い値をとる。 $\eta = d \ln a / d m_a$, a は格子定数である。なお, 表 1 に示した計算値は式(7)および(8)をもとに算出したものである。

次に, 短範囲規則度の変化が V_c にどの程度の変化を与えるかをしらべた例⁽⁶⁾を示す。表 2 は Cu-Al, Cu-Au 合金について, それぞれ 2 種類の温度における原子配列状態が室温まで凍結されたと考えたときの α_1 の値と室温の (400) V_c を示したものである。 ΔV_c は 2 種類の温度から焼入れた試料の V_c の差を表わす。わずかではあるが短範囲規則化により V_c が増加することがわかる。Cu-14.9 原子% Au の炉冷試料と焼入れ試料で測った V_c の差は 12 kV であり, 計算から期待される値の約半分である。Cu-5 原子% Au および Cu-15 原子% Al 合金では炉冷試料と焼入れ試料の間で V_c の差は検出されていない⁽⁶⁾。このように短範囲規則度変化による V_c の変化は非常に小さいので, V_c の測定から合金の短範囲規則状態をしらべるのは容易でないことがわかる。この点からも V_c の測定精度の向上が望まれる。

表 2 計算から予想される臨界電圧 (400) V_c の短範囲規則度 α_1 による変化。

合 金	焼入れ温度 (K)	短範囲規則度			V_c (kV)	ΔV_c (kV)	
		α_1	α_2	α_3			
Cu-15 原子%Al	423	-0.148	0.129	0.096	637	5	
	723	-0.113	0.113	0.096	632		
Cu- 5 原子%Au	473	-0.041	0.054	-0.002	540	3	
	1073	-0.025	0.044	-0.002	537		
Cu-15 原子%Au	473	-0.131	0.172	-0.007	447	11	23
	673	-0.106	0.156	-0.007	436	12	
	1073	-0.075	0.135	-0.007	424		
Cu-20 原子%Au	473	-0.179	0.234	-0.010	419	39	
	1073	-0.099	0.182	-0.010	380		

(2) 長範囲規則度依存性

すでに述べたように臨界電圧効果は動力学的多波効果によるものであり, 励起される反射系列の中に規則格子反射が存在すれば, V_c は当然長範囲規則度 S に依存すると考えられる。式(1)から明らかなように 2 次反射の V_c が正, すなわち V_c が存在するためには少なくとも $U_g > U_{2g}$ でなければならない。今 $2g, 4g, 6g, \dots$ が基本反射, $g, 3g, 5g, \dots$ が規則格子反射であるような系統反射を考える。そうすると U_g は規則格子反射, U_{2g} は基本反射に対応するので $U_g < U_{2g}$ となる。つまり規則合金では規則反射を含む系統反射での 2 次反射の V_c は存在しない。しかし基本反射の 4 次 ($4g$) あるいは規則格子反射の 5 次 ($5g$) 反射の V_c は式(1)に類似の式から推定すれば存在するはずである。 V_c の S 依存性は多波計算により調べることができる。大きな変化が期待される Cu_3Au の 400 反射の V_c は図 5 に示すように $S=0$ から $S=1$ になると約 160 kV 上昇する⁽²⁴⁾⁽²⁵⁾。しかし実際

図 5 Cu_3Au 合金の臨界電圧の規則度依存性。

にはその半分である約 80 kV の上昇しか検出されていない⁽²⁴⁾。Cu-Au 以外の規則合金の V_c が S の関数として計算されているが、多くの場合 V_c の S 依存性は Cu_3Au の場合よりもかなり小さい⁽²⁴⁾。また、 $5g$ の V_c の変化は $4g$ の場合のそれに比べて小さい。しかも、 $5g$ の反射強度は非常に弱く、実際に $5g$ の V_c を測定するのは困難である⁽²⁴⁾。

ところで、規則度 S の変化が規則格子反射の強度にのみ影響をおよぼすとする、式(1)から明らかなように、規則格子反射を含まないような基本反射系列の V_c は S に依存しないことになる。しかし、実際には格子定数や B 因子つまり $\langle u^2 \rangle$ が S に依存するので基本反射系列の V_c も S によって変化することが予想される。表 3 は著者らが Ni_3Fe 、 FeCo および Fe_3Al 規則合金の基本反射列の V_c を測定した結果⁽²⁶⁾ および他の研究者が求めた Cu_3Au ⁽²⁷⁾、 Ni_4Mo ⁽²⁴⁾ の結果を示したものである。例えば、 Ni_3Fe 合金の 111 反射系列には規則格子反射は存在しないが、222 反射の V_c は規則化により 8 kV 上昇する。すでに述べたように、規則度 S の変化は格子定数つまり g の大きさの S 依存性および $\langle u^2 \rangle$ の S 依存性を通して基本反射列の V_c に影響をおよぼす。この中で規則 - 不規則変態による格子定数変化は一般にごくわずかであり、高々 0.2% 程度である。したがって式(1)から明らかなように現在の V_c の測定誤差から見れば格子定数変化にともなう V_c の変化は無視できる。結局、 S による V_c の変化は主として $\langle u^2 \rangle$ の変化によるものとみてよい。

ところで、Fe, Co, Ni は原子の大きさが互いに似ているので $\langle u^2 \rangle_{\text{st}}$ の寄与は非常に小さいと考えられる。すなわち、 Ni_3Fe や FeCo 合金の V_c の S 依存性は近似的に $\langle u^2 \rangle_{\text{th}}$ あるいは θ の S 依存性とみなせる。表 3 には測定された V_c をもとに $\langle u^2 \rangle_{\text{st}} = 0$ を仮定して見積った θ が示してある。表から明らかなように、 Ni_3Fe の規則化にともなう V_c の 8 kV の上昇は θ の 20 K の上昇に対応する。この値は X 線測定による規則状態と不規則状態の θ の差 15 K⁽²⁸⁾ とくらべてほぼ妥当なものである。

FeCo 合金で規則化による V_c の変化が認められない原因はおそらく Fe と Co の原子の性質が互によく似ているので規則化による θ の変化が小さいためと思われる。最近、Shirley と Fisher は第 4 節の(1)で紹介した $\langle u^2 \rangle$ に関する理論的取扱いを長範囲規則合金にまで拡張している⁽²⁵⁾。Fox は同様の取扱いを B2 型規則合金である $\beta'\text{NiAl}$ と $\beta'\text{CoAl}$ に適用し、(220) V_c の組成依存性を説明している⁽²⁹⁾。Shirley と Fisher の理論計算の結果は図 5 でも明らかなように、 Cu_3Au の実測された V_c の S 依存性を十分に説明することはできない。その原因として彼等は規則状態と不規則状態とで原子散乱因子が異なるためではないかと解釈している。しかし、この点に関しては理論と実験の両面からさらに詳細に検討する必要があると思われる。

5. 臨界電圧の精密測定

前節までの記述で明らかなように、規則度による V_c の変化は一般に非常に小さい。したがって合金の規則状態に関する定量的情報を得ようとする場合は V_c が高精度で測定されなければならない。また、 V_c から試料の局部的温度を評価しようとするときは、その精度は V_c の測定精度にかかっている。ここでは V_c をより精密に測定しようとする最近の試みを簡単に紹介する。従来の V_c の測定法の中では、白黒の菊池線対の中央(ミドルライン)に現われる非対称なコントラストの逆転に注目する方法が最も精度が良いといわれている。この方法による測定誤差は通常 $\pm 5 \sim \pm 10$ kV 程度であり、金属試料の場合は歪や湾曲の影響を受けやすいので ± 5 kV 以内の誤差におさえることは容易でない。

最近、Humphreys ら⁽³⁰⁾ と著者ら⁽³¹⁾ は収束電子線を用いて V_c の測定精度の向上を計っている。この方法は従来金属試料では利用されていなかった $2g$ の回折ディスク中に現われる強度プロファイルに注目する方法である。

表 3 規則合金の臨界電圧と Debye 温度。

合 金	結 晶 形	臨 界 電 圧 V_c (kV)			Debye 温度 θ (K)	
		指 数	不 規 則	規 則	不 規 則	規 則
Ni_3Fe	L1_2	222	272 ± 5	280 ± 5	358	378
					393	408 ^(a)
					442	456 ^(b)
FeCo	B2	220	314 ± 6	314 ± 5	403	403
					—	361
					—	378
Fe_3Al	D0_3	220	—	342 ± 5	—	378
					—	—
					—	—
Cu_3Au	L1_2	222	166 ± 2	175 ± 3	297	308 ^(c)
Ni_4Mo	D1_a	400	460 ± 10	490 ± 5	—	— ^(d)

(a) X 線測定による, 文献(28), (b) 弾性定数測定による, 文献(28), (c) 文献(27), (d) 文献(24)

写真1 純 Cu の収束電子線回折ディスク, 423 K, 400 反射, 加速電圧は左からそれぞれ 520, 522, 523, 526 および 530 kV, $V_c \approx 523$ kV.

通常の平行電子線入射の場合の回折スポットは, 収束電子線を入射させるとある大きさを持ったディスクになる. 試料の厚さが一様であればそのディスクには平行入射におけるロッキング・カーブ⁽³²⁾に対応した縞状模様が現われる. $2g$ 反射が Bragg 条件を満足するように試料を設定したとき, $2g$ 回折ディスクの縞状模様には非対称なコントラストを持った 2 次の菊池線が重なっており, V_c の上下でその非対称性が逆転するのを利用して V_c を精度よく求めることができる.

写真1は純 Cu の 423 K における (400) 回折ディスクの例である. 加速電圧が V_c に近いとき Bragg 条件を正確に満足しているディスク中央では強度が低下して黒い帯状になっているが, コントラストの非対称性に注目すると V_c は 520 kV と 526 kV の間に存在することがわかる.

この方法を使うと, 条件が良い場合には金属試料で ± 1 kV の V_c 変化を検出することも可能である. V_c 付近では $2g$ 回折強度そのものが非常に弱いので蛍光板上での直接観察は容易でなく, 精度をあげようとすれば感度の良い画像増幅器を用いたり, ネガフィルムを測微光度計で解析したりする必要がある. また, V_c は非系統反射の影響を強くうけるので常に最適の回折条件を選ぶように注意しなければならない. この点に関して Humphreys らは加速電圧を変化させるかわりに, 加速電圧はある値に設定したまま試料の温度を徐々に変化させる方法を提案している. 良好な収束電子線回折ディスクを得ようとすれば電子線の照射面積を小さくしなければならないが, これは一方では試料の温度上昇や試料汚染を招くので注意を要する.

6. おわりに

合金の V_c の解析に必要な原子散乱因子については理論値がもっと正確になることはもちろん, 自由原子と固体との差, 純金属結晶と合金をつくった場合の差, さらに, 規則状態と不規則状態の差などに関する検討が今後必要である. そのためには特に合金に関する理論の整備と質のよいデータの蓄積が望まれる.

一般に V_c は温度に対して敏感であるから, 臨界電圧

効果は試料温度のチェックなどにもっと盛んに利用されるべきである. 一方, 温度の効果すなわち $\langle u^2 \rangle_{th}$ の寄与を実験的に小さくするには極低温で V_c を測定する方法がある. しかし, 実際には零点振動があるので $T=0$ でも $\langle u^2 \rangle_{th}=0$ とはならない.

規則合金の B 因子は, 厳密には副格子によってことなり, B_a と B_b は同じではない. 実験的に両者を独立に見積るには, 基本反射だけでなく規則格子反射の V_c を求めなければならないが, すでに述べたように規則格子反射 ($5g$) の V_c が測定困難なので, これは不可能である. いずれにしても f と B あるいは f_a と f_b の区別を V_c 測定からのみ行うのは困難であるから, 他の方法, 例えば菊池線交叉法⁽³³⁾や等厚干渉縞法⁽³⁴⁾などとの併用が有効だと思われる.

ここで紹介した合金に関する臨界電圧効果の応用例はまだ X 線回折による情報を越えていない. しかし臨界電圧効果は測定の対象がある程度限られているという欠点はあるものの, 超高压電顕を用いるので, 通常の拡大像観察と結びつけた微小領域の情報を得ることができるという特長をもっている. しかも, 臨界電圧は小さな試料で手軽に測定できる利点もある. さらに, 指数の異なる反射の V_c を測定すれば結晶の異方性に関する情報も得ることができるであろう. これらの点に着目し, 精密測定を行えば臨界電圧効果の金属学研究への応用はさらにひらけると思われる.

最後に, この報告をまとめるにあたって種々の有益なご指摘をいただいた松畑洋文氏および木下智見助教授に感謝致します.

文 献

- (1) F.Nagata and A.Fukuhara: Japan. J. Appl. Phys., **8**(1967), 1233.
- (2) D.Watanabe, R.Uyeda and A.Fukuhara: Acta Cryst., **A24**(1968), 580.
- (3) K.Kuroda, Y.Tomokiyo and T.Eguchi: Proc. 5th Int. Conf. on HVEM, Kyoto, (1977), 259.
- (4) K.Kuroda, Y.Tomokiyo and T.Eguchi: Proc. 9th Int. Cong. on EM, Toronto, Vol.1, (1978), 192.
- (5) K.Kuroda, Y.Tomokiyo and T.Eguchi: Proc. 6th Int. Conf. on HVEM, Antwerp, Vol.4, (1980), 112.

- (6) K.Kuroda, Y.Tomokiyo and T.Eguchi : Trans. JIM, **22**(1981), 535.
- (7) 例えば, 渡辺伝次郎: 日本金属学会会報, **14**(1975), 482.
- (8) C.G.Shirley, J.S.Lally, L.E.Thomas and R.M.Fisher : Acta Cryst., **A31** (1975), 174.
- (9) 例えば C. R. Houska and B. L. Averbach : J. Phys. Chem. Solids, **23**(1962), 1763.
- (10) 例えば B.E.Warren : *X-ray Diffraction*, Addison-Wesley Publishing Company, Massachusetts, (1969).
- (11) 例えば P.A.Doyle and P.S.Turner: Acta Cryst., **A24**(1968), 390.
- (12) A. Rocher and B. Jouffrey : *Proc. 8th Int. Cong. on EM*, Canbera, Vol.1, (1974), 344.
- (13) M.Fukamachi and T.Kikuchi : Japan. J. Appl. Phys., **14**(1975), 587.
- (14) D.L.McDonald : Acta Cryst., **23**(1967), 185.
- (15) R.E.Dingle and E.H.Medlin : Acta Cryst., **A28** (1972), 22.
- (16) N.F.Mott and H.Jones : *Properties of Metals and Alloys*, Oxford, (1936).
- (17) A.Paskin : Acta Cryst., **10**(1957), 667.
- (18) W.Marshall and R.N.Stuart : *Inelastic Scattering of Neutron in Solids and Liquids*, Vienna, I.A.E.A., (1961), 75.
- (19) S.Tolpadi : Indian J. Pure and Appl. Phys., **13** (1975), 504.
- (20) B. T. M. Willis and A. W. Pryor : *Thermal Vibrations in Crystallography*, Cambridge University Press, Cambridge, (1975), 122-174.
- (21) C.R.Houska and B.L.Averbach : J. Appl. Phys., **30**(1959), 1525.
- (22) R.A.Coyle and B.Gale : Acta Cryst., **8**(1955), 105.
- (23) C.G.Shirley and R.M.Fisher : Phil. Mag., **A39** (1979), 91.
- (24) R.Sinclair, M.J.Goringe and G.Thomas : Phil. Mag., **32**(1975), 501.
- (25) C.G.Shirley and R.M.Fisher : *Proc. 6th Int. Conf. on HVEM*, Antwerp, Vol.4, (1980), 88.
- (26) Y.Tomokiyo, K.Kuroda, H.Matsuhata and T.Eguchi : *Proc. 6th Int. Conf. on HVEM*, Antwerp, Vol.4, (1980), 108.
- (27) A.Rocher, R.Sinclair and G.Thomas : *Proc. 4th Int. Conf. on HVEM*, Toulouse, (1975), 125.
- (28) P.Turchi, Y.Calvayrac and F.Plicque : Phys. Status Solidi, (a) **45**(1978), 229.
- (29) A.G.Fox : *Proc. 6th Int. Conf. on HVEM*, Antwerp, Vol.4, (1980), 104.
- (30) J.R.Sellar, D.Imeson and C.J.Humphreys : Acta Cryst., **A36**(1980), 686.
- (31) 友清芳二, C.J.Humphreys : 日本電子顕微鏡学会第 36 回講演会予稿集, (1980), 247 ; 松畑洋文, 黒田光太郎, 友清芳二, 江口鉄男 : 同上 248. 友清芳二, 本間照康, 真鍋武志, 田中鉄士 : 日本電子顕微鏡学会第 37 回講演会予稿集, (1981), 84.
- (32) 例えば P.Hirsch, A.Howie, R.B.Nicholson, D.W.Pashley and M.J.Whelan : *Electron Microscopy of Thin Crystals*, Robert. Krieger Publishing Company, New York, (1977).
- (33) 例えば O.Terasaki, D.Watanabe and J.Gjønnes : *Proc. 5th Int. Conf. on HVEM*, Kyoto, (1977), 263.
- (34) 例えば, 木下智見, 向井俊夫 : 日本金属学会会報, **20**(1981), 370.

◆学協会だより◆

「日本流体力学会」発足

昭和 57 年 1 月 1 日, 「流体力学懇談会」は「日本流体力学会」と改称し, 学会としての活動に入った。

会 費 : 年額 5,000 円 入会金 : 1,000 円

申込先 : (223) 横浜市港北区日吉 4-1-1

慶応大学物理教室内 日本流体力学会

(電話 044-63-1111 内線 299)

溶接学会第 4 回国際シンポジウム

主題 : 溶接構造物の信頼性に対する基礎および実用面からのアプローチ

時 : 昭和 57 年 11 月 24 日 (水) ~ 26 日 (金)

所 : 箕面観光ホテル (大阪府箕面市箕面 1572)

照会先 : (101) 東京都千代田区神田佐久間町 1-11

溶接学会事務局

(電話 03-253-0488)