

ロッシェル塩結晶のX線トポグラフによる研究

酒 見 次 郎*

Jiro SAKAMI

X-Ray Topographic Study on Rochelle Salt Crystals

1. ま え が き

X線トポグラフィ（X線回折顕微法）は、X線の回折効果を利用して結晶の不完全性を調べる方法で、結晶内に存在する転位その他の欠陥やひずみなどの分布が直接観察できるので、単結晶の研究には極めて有用な方法とされている。

筆者は、ロッシェル塩結晶のピエゾラインについて研究してきたが、前回の研究^{1)~8)}によって、その成因は結晶の局所的な完全性にあるということが、ほぼ明らかになった。即ち、ロッシェル塩の結晶は一般に転位、すだれ、などの多くの欠陥を含み、大部分は不完全なものであるが、局所的には殆んど完全に近い小領域が存在していると考えられる。水で僅かに濡らした濾紙で繰り返し研磨することによって測られたこの完全に近い小領域の厚みは、 $10\mu\text{m}\sim 1000\mu\text{m}$ 位であることが分ったが、この小領域が etching などによって表面に出ると、この部分が外部から与えられた高周波電場によってよく励振され、もし励振電場の周波数が、その部分での厚みすべり振動の周波数と一致しておれば、ここから厚み方向に定在波が立ち、これが励振電場のエネルギーを共鳴吸収してピエゾラインを生ずるものと思われる。（このよく励振され、励振電場のエネルギーを共鳴吸収してピエゾラインを生じさせている、完全に近い小領域を“共鳴領域”と呼ぶ）

結晶内の不完全性は、X線トポグラフ（X線回折顕微写真）の中に白黒のコントラストとして直接見ることができるので、今回の研究は、このX線トポグラフによって共鳴点附近の結晶構造の特徴を捕え、前回までに得られたピエゾラインの成因についての考えを、一層明確なものにするために行なわれた。

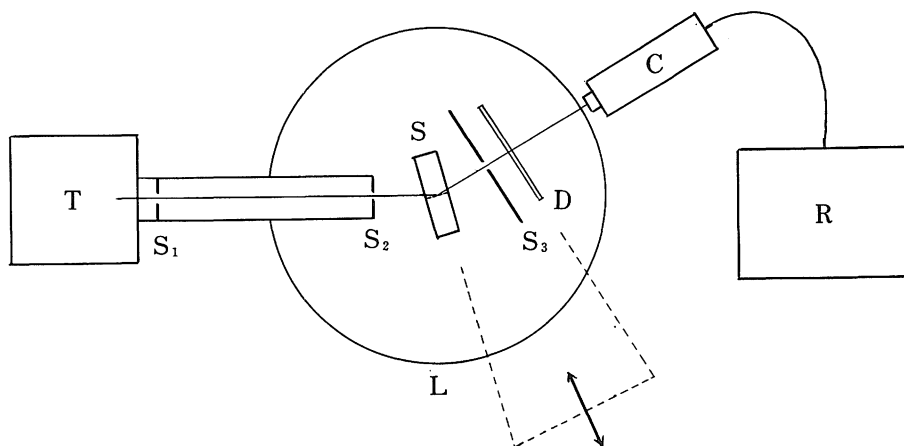
2. 実験方法

トポグラフの撮影方法は種々開発されているが、ここでは、点状焦点、特性X線を用いる Lang 法⁹⁾によった。ロッシェル塩結晶には多くの反射面があるが、(210) 面

が反射強度最大なのでこの面を用いた。試料としては板状結晶が用いられるが、その結晶板の面が(210)面に垂直であることが望ましいので、(210)面に垂直で且つ作製の容易な *c* 板結晶を用いた。*c* 板結晶は、前回の研究⁴⁾のときと同様に、*c* 板の種結晶を平行に積み重ねたガラス板の間に挿入し、これを恒温槽に入れられている飽和溶液の中に浸し、恒温槽の温度を1日に0.2度ずつ下げていくことによって育成された。用いられた試料は、この *c* 板結晶からカーボランダムとアルミナで研磨して作られた大きさ約 $3\times 4\text{cm}^2$ 、厚さ $1\sim 2\text{mm}$ の薄板であった。X線は、微小焦点X線管フィリップス 9404F1 (40kV \times 40mA) からの $\text{MoK}\alpha_1$ で、(210)面反射に対する 2θ は 7.4° であった。

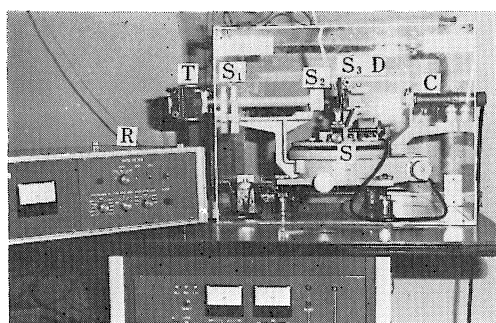
実験装置の図が、第1図に示されている。試料はゴニオメーターヘッドに *c* 面が鉛直になるように取り付けられているが、取り付けには結晶内に応力が生じないように、融点がロッシェル塩より僅かに低い mp. 50°C の固形パラフィンが用いられた。X線管Tから出たX線の線束は、幅 0.2mm の第1スリット S_1 、幅 0.1mm の第2スリット S_2 を通過した後、厚さ 0.1mm の帯状をなして試料Sに入射する。この線束は、試料の(210)面で、ブラッグの条件を満足する方向に反射されて写真乾板Dに達する。幅約 0.3mm の第3スリット S_3 は、試料で回折されず素通りしてくる強いX線を切るために試料と乾板の間に置かれている。また、このスリットの幅を狭くして回折X線の一部だけを取り出すようにすると、試料の一定の深さの層の断層写真を撮ることが出来る。このままの状態でもX線を照射すれば、第3スリットの幅をもったセクショントポグラフが得られるが、試料と乾板の相対位置を固定したままラングカメラの基板上で、入射X線に対して $90^\circ-\theta$ の方向に平行往復移動をさせると、広い範囲のトポグラフを撮ることが出来る。トポグラフは、タイプNサクラX線フィルムに記録された。入射X線に対する(210)面の角度の調整は、予め乾板の後ろの方に、X線の入射方向に対して 2θ の角をなして固定されているシンチレーションカウンターと、カウンターに入ったX線線量を指示するレートメー

* 島根大学教育学部物理学研究室



第1図 Lang 法によるX線トポグラフ撮影装置

T : X線管, S₁ : 第1スリット, S₂ : 第2スリット, S₃ : 第3スリット, S : 試料,
D : 乾板, C : シンチレーションカウンター, R : レートメーター, L : ラングカメラ



第2図 X線トポグラフの撮影装置

T : X線管, S₁・S₂・S₃ : スリット,
S : 試料, D : 乾板, C : シンチレーションカウンター, R : レートメーター

ターとによって行なわれた。操作時のX線管の出力は、35kV×25mAであり、また、試料の走査速度は1.34m/minであった。

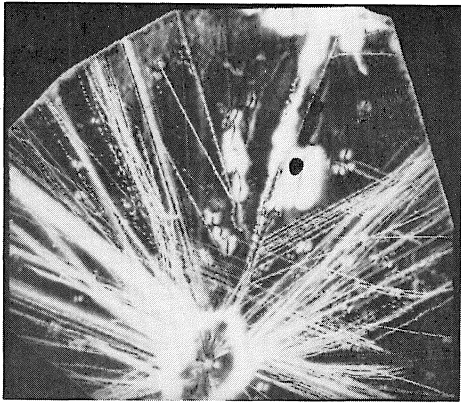
実際に使用された装置の写真が、第2図に示されている。

3. 実験結果と考察

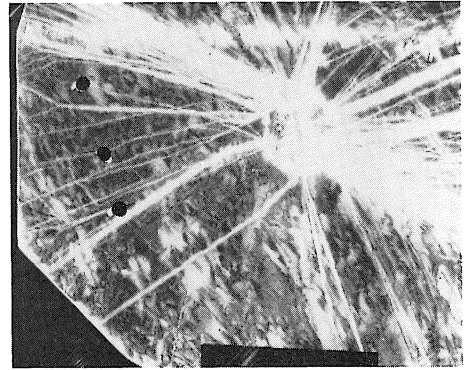
上の方法で撮られたX線トポグラフが第3図から第6図に示されている。写真の中で白く写っている部分はX線の当たったところで、反射強度が大である部分に対応し、結晶中の欠陥やひずみのある部分を表わしていると考えられる。写真の中に書きこまれている黒い丸印は、共鳴点の位置を示す。第3図の下辺中央の種結晶から、放射状に白い点の列が出ているが、これは転位から発達した「すだれ」であると思われる。また、a軸に平行な「すだれ」も見られる。ソーセージ状の白い像は、表面

処理の際、表面附近にできたひずみによるものと思われる。共鳴点附近には、殆んど「すだれ」は見られない。第4図は、僅かに水で濡らした濾紙の上で表面を擦って、表面附近のひずみを取り除いた試料のトポグラフである。第3図に見られるソーセージ状の像は、なくなっている。共鳴点の上方にある二つの相接して並んでいる白丸の像は、c軸に平行な「すだれ」の周りのひずみによるものと思われるが、共鳴点のある附近には白点は殆んど見られず、この領域が比較的結晶が完全であることを示している。この部分に微かに見られる「すだれ」は、像の鮮明さを比べてみると、表面から可成り深いところにあると思われる。共鳴点附近の特徴は、試料の温度をキュリー点の上あるいは下に保って撮った第5図のトポグラフにおいて一層明らかになる。ロッシェル塩には、-18°Cと24°Cの二つのキュリー点があり、結晶系はこれら二つのキュリー点の間では単斜晶系、外側では斜方晶系で、電気的にはそれぞれ強誘電相、常誘電相となる。第5図(a)は26°Cの常誘電相にある試料のトポグラフで、共鳴点附近の特徴は明らかではないが、同じ試料を19°C、18°Cの強誘電相で撮った第5図(b)、(c)では、共鳴点附近が明らかに他の部分と区別される一つの領域を作っていることが分かる。この領域が、1.で述べられた「共鳴領域」に相当するものと考えられる。共鳴点の一つが共鳴領域と周りの部分との境界上にあることは、励振の機構を考えると重要になってくることと思われる。

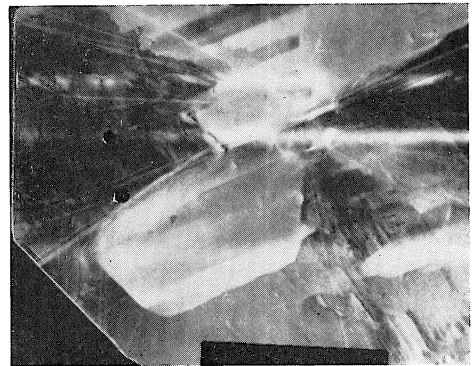
第6図は、研磨を繰り返すことによって0.45mmの厚さまで薄くした試料の強誘電相でのトポグラフで、共鳴領域が他の部分から境られている比較的完全な結晶の領



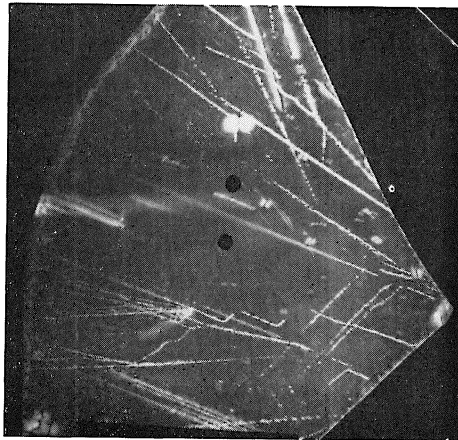
第3図 Lang 法によるX線トポグラフ
MoK α_1 , 210反射, $2\theta=7.4^\circ$, 35kV, 25mA, 露
出時間20時間, タイプNサクラX線フィルム



(a)



(b)



第4図 僅かに水で濡らした濾紙で表面を擦った試料の
トポグラフ

第3図に見られるようなソーセージ状の白
い像はなくなっている。共鳴点の附近には、
白点が少ない。

域であるという共鳴領域の特徴をよく表わしている。こ
れは試料が薄いため、共鳴領域が試料を厚み方向に貫通
していることによると思われる。

以上のように、X線トポグラフの観察から、ピエゾラ
インを生ずる共鳴領域は、ある境界によって境されてい
る比較的結晶の完全な小領域であるということが、一層
明らかになった。

4. あとがき

第3スリットの幅は、普通は回折X線束が全て通るよ
うにするが、2.でも述べたように、このスリットの幅を
狭くし、スリットの幅と位置を適当にすることによっ
て、試料の一定の深さの断層写真を撮ることができる。

今後、この方法を用いて共鳴領域が表面近くにあるこ
とを確かめたい。また、分解能を高くするために、X線



(c)

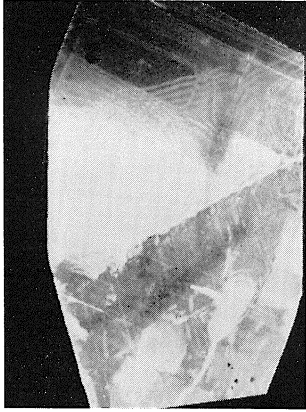
第5図 常電相と強電相におけるトポグラフ

(a) 26°C, (b) 19°C, (c) 18°C

共鳴点附近が他の部分と区別される一つ
の領域を作っている。

フィルムの代りに原子核乾板を用いて、共鳴領域の特徴
を更に詳しく調べていくつもりである。

共鳴領域の厚みは、米山由美子嬢によって根気強く測
られた。赤岸隆一君は、強電相でブロック状の像が出現
することを見出し、第5図のトポグラフは彼によって撮
られた。高柴弘樹君は、試料を入れる恒温槽を作って、
冬季における常電相でのトポグラフの撮影を容易にし、



第6図 薄い試料 (厚さ 0.45mm) の
強電相におけるトポグラフ
共鳴点附近は、他の部分から境されてい
る比較的完全な小領域であると思われる。

また第6図のトポグラフは同君による。協力頂いた理科
研究室の上記三君に感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) J. Sakami : Mem. Fac. Educ. Shimane Univ. **3**, 74 (1970)
- 2) J. Sakami : Mem. Fac. Educ. Shimane Univ. **4**, 1 (1970)
- 3) J. Sakami : Mem. Fac. Educ. Shimane Univ. **5**, 9 (1971)
- 4) J. Sahami : J. Phys. Soc. Japan **35**, 1460 (1973)
- 5) 酒見次郎 : 島根大学教育学部紀要 (自然科学編) **7**, 1 (1973)
- 6) J. Sakami : Physics Letters **50A**, 109 (1974)
- 7) 酒見次郎 : 島根大学教育学部紀要 (自然科学編) **9**, 1 (1975)
- 8) J. Sakami : J. Phys. Soc. Japan **40**, 1973 (1976)
- 9) A. R. Lang : J. appl. Phys. **29**, 597 (1958)