

X線トポグラフィ (ラング法) の話

安 田 俊 — (鉱 床 部)

1 はじめに

X線トポグラフィという言葉は 読者にはあまり馴染みではないかもしれない。これは 比較的完全性の高い結晶の内部に存在する 転位 積層欠陥 成長縞 微小不純物などといった通常の光学的手段では見ることの出来ない種々の欠陥を X線を使って写真の形で見ることが出来るものである。

現在は多くの分野でさまざまな人工結晶が利用されているが そうした分野では研究にはもちろん結晶育成時のコントロールチェックや 得られた結晶の完全性のチェックなどにX線トポグラフィ法が広く利用されている。

X線トポグラフィを得る方法には 目的や使用する装置によって多くの方法が考案されているが⁽¹⁾ 今日もっとも広く利用されている LANG 法 (ラングカメラ) について簡単に紹介する。

なお 日本語では X線回折顕微法 (X-ray diffraction topography) というのが従来一般的であるが 最近では X線トポグラフィという場合も多いようである。

地質調査所では鉱物結晶の成長機構の研究上 結晶内部に残されている結晶成長時の情報を得る目的で購入され 目下稼動中である。

X線トポグラフィ 中でもラング法については 既に多くの専門書や解説書が出されており この小文はこれらを参考にして書かれたものである。

2 ラングカメラ

ラング法は 1958年英国 Bristol大学の Dr. A.R. LANG によって考え出された方法である。またこの方法によってX線トポグラフィを得るために考案され 市販されている装置を一般にラングカメラと呼んでいる。日本では 1961年理学電機KKによって最初に商品化された。

写真1と第1図がラングカメラの写真と原理図である。X線源は通常私たちがX線回折計に使用するものと異なり 分解能とX線強度の関係で微小焦点を使う。

微小焦点Xから出たX線は (第1図) スリット S_1 で $K\alpha_1, K\alpha_2$ による回折像の分離をよくするために発散角を制限される。通常 $10\sim 100\mu\text{m}$ 幅の 紙面に垂直なリボン状ビームとなって結晶Cに入射する。結晶の方位を適当にすることによって Bragg 条件を満たした方向に回折する 回折波はスリット S_2 を通って乾板Pに達する。スリット S_2 は 結晶を貫通した入射波のストッパーとしての役目もはたしている。

この様にして得られた結晶の断面写真を セクション

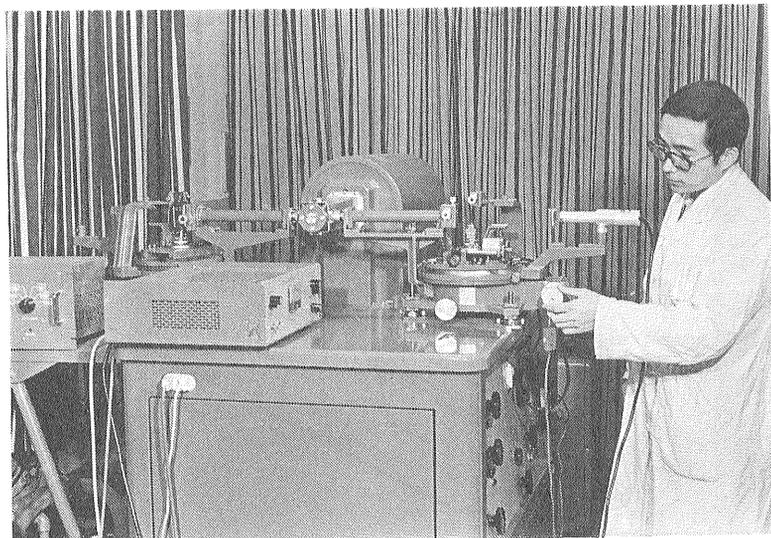
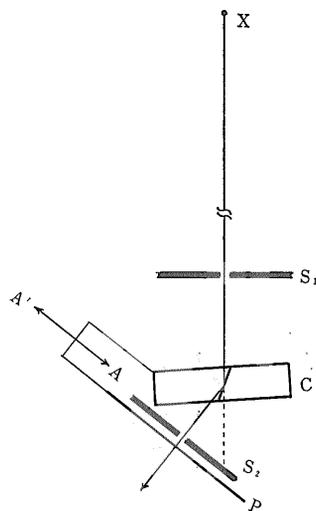


写真1 X線発生装置上のラングカメラ



第1図 ラングカメラの原理図

トポグラフと呼ぶ。光学系はこのままの状態 で 結晶と乾板を同じベースで図の矢印の方向(AA)に振動させると結晶の広い範囲を1枚の写真に撮ることが出来る。これをトラバーストポグラフと呼ぶが一般にこれをラング写真ともいう。

またカメラの分解能は 使用するX線源の波長や焦点サイズをはじめ種々の実験条件によって異なって来るが目安として広く市販されているラングカメラの数値を参考してみると およそ1~3 μm 位とみてよいであろう⁽²⁾。

3 トポグラフのコントラスト

ラング法によるX線トポグラフ上では 通常 転位や成長縞・点状不純物等の像は 結晶中のより完全性の高い部分に較べて強い反射波によって乾板上に記録される。欠陥部分がより強い反射をすると言うのは 一寸考えると不思議に思われる方もあるかも知れないが 欠陥と言っても ブラック条件をはずれるような大きなものではない。

私たちが 通常単一の単結晶と見ているものも理想的な原子配列をしているものではなく 多少のガタツキがあると考えられている。そして このような結晶と比較すると 一般的にはより完全な単結晶によるX線の反射強度は むしろ減少することが知られている。これは 消衰効果と言われるものの結果である。消衰効果と言うのは X線の反射にあずかる原子網面が完全に平行

になるにつれて 結晶内でのX線の干渉によってかえって通常の吸収以上にX線が弱められてしまう現象である。

このことから 完全性の高い結晶の中にある種の不完全性が存在すると それによってその付近の結晶格子に僅かな歪みが生じ その位置での消衰効果が弱められることによって まわりの完全性の高い部分より相対的にX線強度が増す こうして欠陥像のコントラストが生ずる。また 積層欠陥のような2次元的広がりをもつものの像は 波としてのX線と欠陥面とのかかわり合いから 干渉縞となって現れて来る。

このように X線トポグラフ上での欠陥像は 例えば医療用レントゲン写真のようにX線の吸収率の差異から内部が直接像としてとらえられるのとは異なり 結晶格子歪による反射波の強度変化や干渉縞としてとらえる間接的なものである。

4 撮影の実際

さて 実際に撮影となるとそう簡単なものではない。良いトポグラフを得るためには 試料の厚さはおのずから制限される。通常 試料の線吸収係数を μ 厚さをD とすると $\mu D \leq 1$ 程度がのぞましい。大雑把に言っても水晶のようなもので $\sim 1\text{mm}$ 位である。

そこで大きな結晶は適当な(hkl)を考慮しながらスライス状に切断しなければならないが 機械的に切断した場合には切断面に細かな割れ目が入り これが高いバックグラウンドとなって肝心な欠陥像を見えなくしてしまう。したがって最終的には溶剤による切断面のエッチングが必要である。

カメラには結晶を正しい位置にセットするためのX線検出器がついている。微動装置によって $K\alpha_1$ による回折線のみ検出器に入るよう結晶の目的とする(hkl)を理

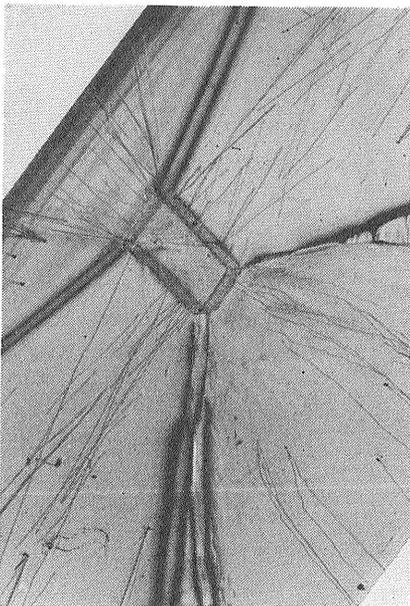
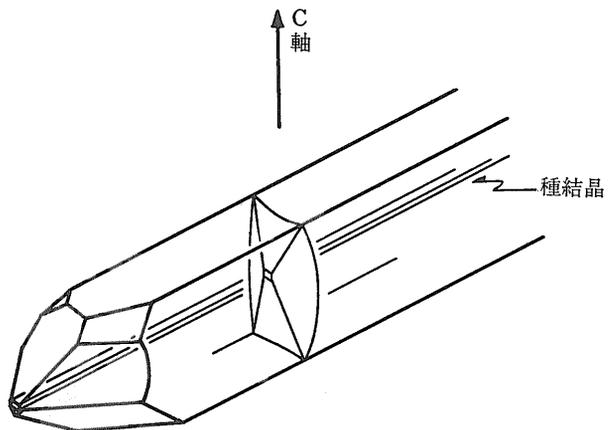


写真2 人工水晶 中央種結晶の大きさは約 $1 \times 2\text{mm}$, $\{10\bar{1}1\}$ 反射 (試料提供_日本電波KK)



第2図 人工水晶模式図 図のようにC軸に平行に切り出したものを試料としている

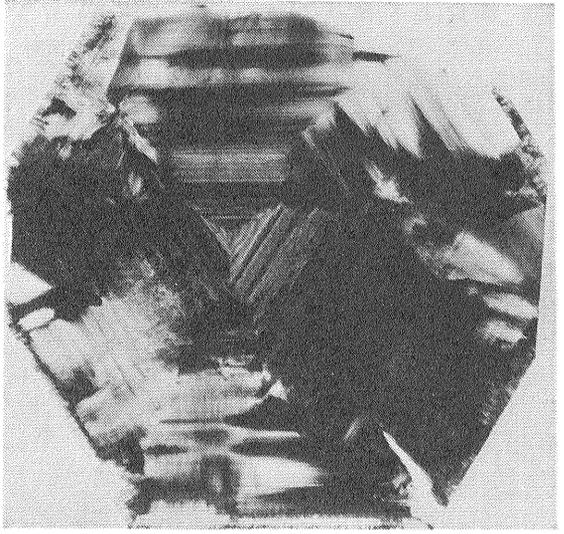
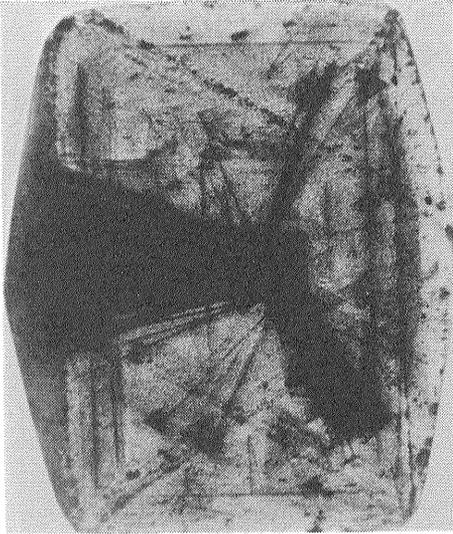


写真4 神岡鉱山産水晶 さしわたし約9mm $\{10\bar{1}0\}$ 反射
(試料提供 小出仁氏)

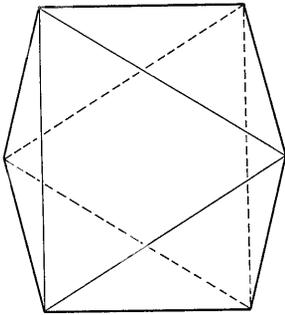


写真3
シベリヤ産ダイヤモンド
結晶の大きさは1mm弱
外形は付図の通り
 $\{111\}$ 反射
(試料提供 砂川一郎氏)

想的な位置にもっていく。

開封型微小焦点を使った場合 およそ1~4時間/1mm²の露出時間が必要である。

X線トポグラフを使って研究する場合 欠陥像を充分に拡大 (~100倍) しなければならないが X線を使っているためカメラの光学系内で直接に像を拡大して撮影することは出来ない。したがっていったん記録した後拡大しなければならないので 写真材料も充分吟味することが必要である。乾板は一般的には原子核乾板を使用するが X線感度を高めるために通常乳剤厚 50μm 程度のものを使う。このため暗室作業も通常とは多少異なった取扱いをしなければならない。

5 X線トポグラフ

このようにして撮影したX線トポグラフの例が以下の写真である。

写真2 人工水晶を第2図のように切り出した厚さ1mm 弱の板状試料である。中央付近にある長方形が種

結晶 その4隅から出ている帯状のものは 種結晶からそれぞれ上下左右方向に成長した growth sector の境界である。また細い線状のものは転位である。通常一度発生した転位は結晶表面まで伸びているが途中で切れているのは切断面と交差しているためである。その他 成長途中で取込まれた不純物 そこから発生した転位が 成長方向に伸びている様子も観察出来る。

写真3 これはシベリア産ダイヤモンドである。サイズの小さな8面体結晶なので切断することなくそのまま撮ったものである。結晶中央付近で発生した多量の転位が各成長面に向って伸びている様子がよくわかる。この結晶は表面構造との対応を見るため表面のエッチング処理をしていないので表面のキズが欠陥像を見にくくしている。

写真4 神岡鉱山産水晶をC面に平行に切り出した試料である 結晶の状態があまり良くないので細かいところはわからないが R面Z面境界のゆらぎと成長縞のおよその対応を見ることが出来る。この試料の場合部分的に白い所は完全性が高いためではなく 逆に結晶を固定した位置にブラック角が合っていないためである。

写真5 形が少しかわっているが長崎県奈留島産水晶の日本式双晶である。中央の接合面にはこれに添って大きな歪があり これに接する成長縞は他のそれに較べて大きく乱れている。この結晶も状態があまり良くなく通常の条件ではトポグラフが鮮明にならない。

6 転位とX線

ところで ラング法でとらえられた結晶の欠陥像は回折現象によるものであるから 使用する反射面を変えることによって 言い換えればX線の入射方向を変えるこ

写真5
長崎県奈留島産水晶の
日本式双晶 幅約
5mm, $\{10\bar{1}1\}$ 反射
(試料提供 砂川一郎
氏)

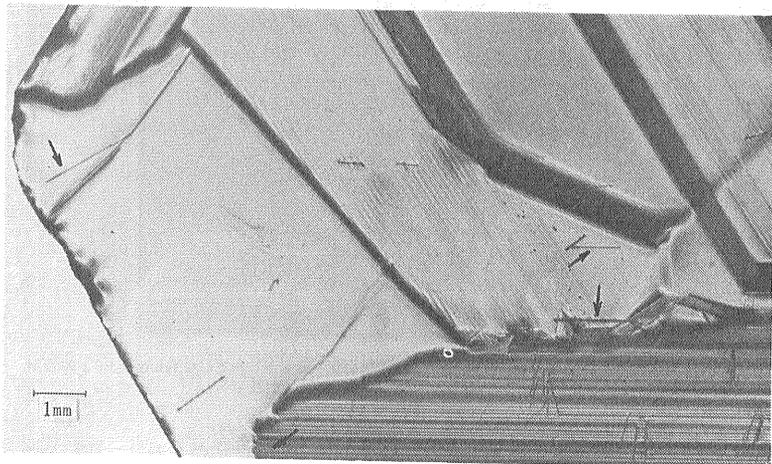
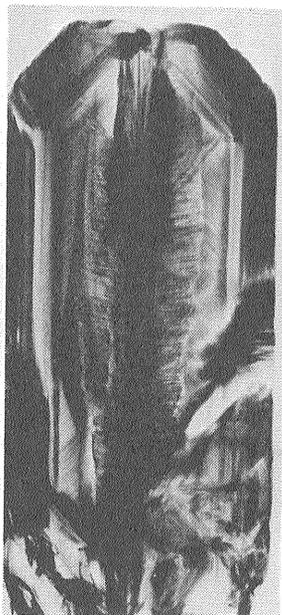


写真6 a

ブラジル水晶
矢印の位置の欠陥像に注意
a, $(1\bar{1}00)$
b, $(11\bar{2}0)$
c, $(10\bar{1}0)$ 反射
(試料提供 遠藤祐二氏)

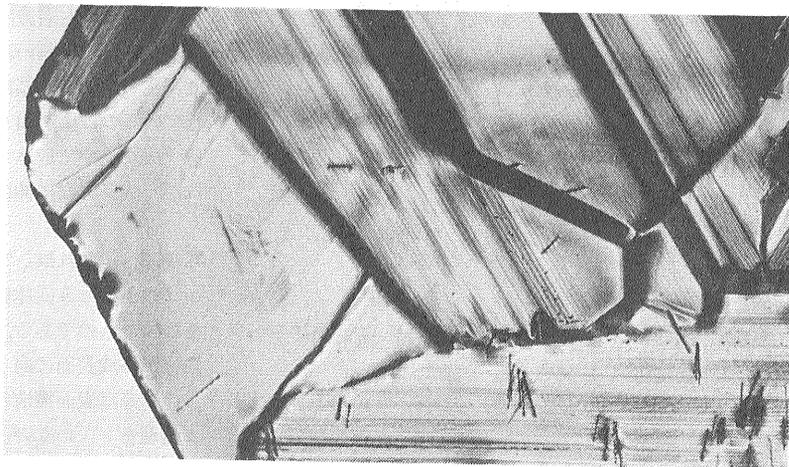


写真6 b

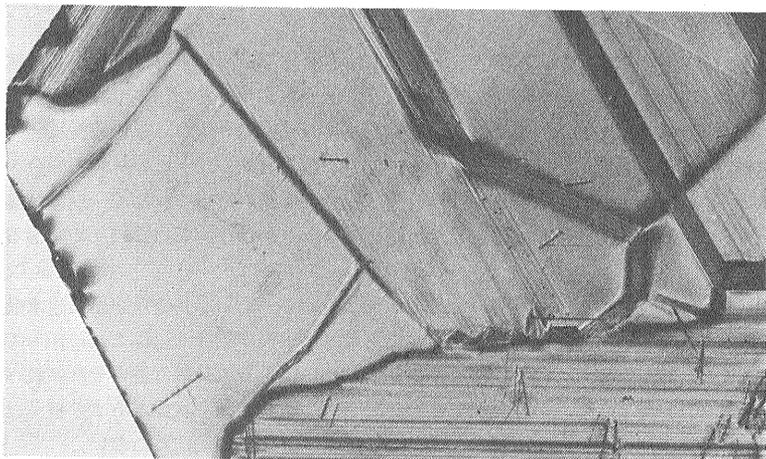


写真6 c

とによってそれに対応した変化をする。例えば写真6はある水晶の同一の場所を $(1\bar{1}00)$, $(11\bar{2}0)$, $(10\bar{1}0)$ の3つの反射面によつて撮影したものであるが 欠陥像が変化するばかりではなく 現われたり消えたりしているものもある (矢印)。

この様に X線トポグラフでは結晶内欠陥の3次元的分布を見るばかりではなく 回折の効果を利用した研究方法が大きな威力を発揮する。

ここでダイヤモンドを例にとつてこの様な研究の一つを概略説明するが その前に結晶転位とバーガースベクトルというものについて簡単に触れておこう。

6-1 転位とバーガースベクトル

第3図を見よう。これは結晶内でのある面にそつた2つの代表的なすべりを模式的に画いたものである。a)では右側から起つたすべりが左側に行進して行き c)では手前から奥へ向つて進行して行く。この時既にすべつた領域とまだすべていない領域の境界に太い線状の歪んだ状態が現れる (AA')。これを転位 (dislocation) と呼ぶ。

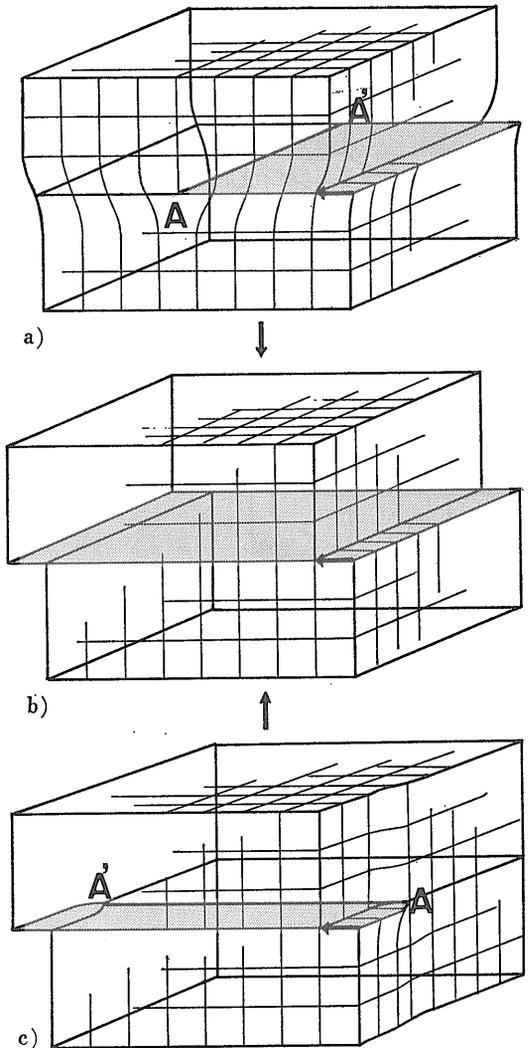
この様に転位がある面に添って動くことによって結晶内に相対的な格子の変位が起こる。この変位ベクトルをバーガースベクトル (Burgers vector) と呼ぶ。これは転位の性質を決める大切な量である。第3図では太い矢印で画かれている。

また a) c) 共にバーガースベクトルの方向は同じであるが 転位の方 (AA') は丁度 90° 異なっている。a)の様にバーガースベクトルと垂直になっている転位を刃状転位 (edge dislocation) c)の様にバーガースベクトルと平行になっている転位をらせん転位 (screw dislocation) と呼ぶ。

6-2 バーガースベクトルとX線

結晶転位の場合 このバーガースベクトルとX線の反射面との間には第4図の様な関係が存在する。この図は同一のバーガースベクトルに対してX線の反射面を変えると 転位像のコントラストが変化することを示している。つまり バーガースベクトルと平行な反射面では転位像のコントラストは零かほんの僅かしか観測されない。一方バーガースベクトルに垂直な反射面を使えばそのコントラストは最大となる。このことは第3図の格子の歪の方向にX線の入射方向を考慮すれば定性的に理解出来ることである。

実際には転位像のコントラストは撮影条件や現像処理上の影響が作用して簡単には決められないが この消滅

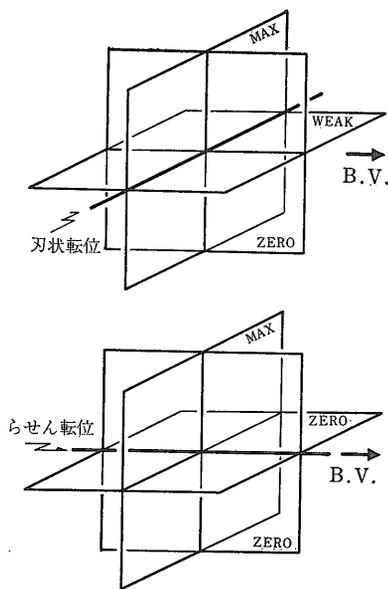


第3図 単純立方格子中のすべりの模式図 a)もc)もすべつた方向は同じであるが すべつた領域の広がり方は異なる どちらもすべりが完了すると b)の型になる。

則を使ってバーガースベクトルの方向を決めることはそう困難なことではない。

6-3 実際例

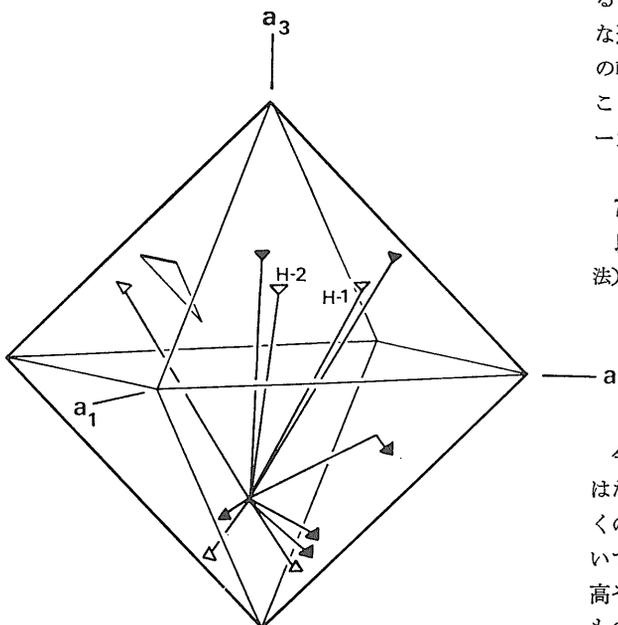
ラングによれば⁽⁴⁾ ダイヤモンドの転位のバーガースベクトルの方向は通常見られるものは $\langle 110 \rangle$ である。したがつて この場合 (111) 面上に顔を出している転位のバーガースベクトルの方向は 第5図に書かれている6方向の何れかにあると考えてよい。さらに 6-1で説明した転位とバーガースベクトルの関係から バーガースベクトルの方向がこの6方向の内 $[101]$, $[011]$, $[110]$



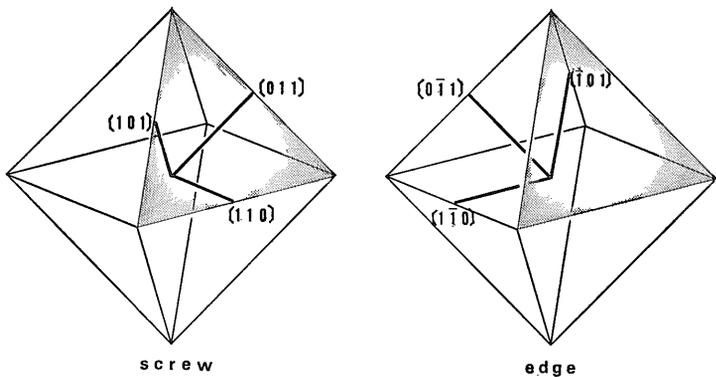
第4図 結晶内でのX線反射面と転位像のコントラストとの関係図 原図は文献3による。

のいずれかであればこの転位はらせん転位であり 同様にして $[\bar{1}01]$, $[0\bar{1}1]$, $[1\bar{1}0]$ のいずれかであれば 刃状転位であると考えてよい。

さて ここに例としてあげるダイヤモンドの結晶内部の転位の分布は 種々の反射面を使ったX線トポグラフの結果から およそ第6図のようになっている。



第6図 白ぬきの三角は手前 黒い三角は向う側の面にあるエッチピット



第5図 ダイヤモンドで通常パーガースペクトルのとりやすい方向は $\langle 110 \rangle$ である

ここで (111) 面に出ている H-1, H-2 と符号をつけた2本の転位についてみてみよう。6-2 で説明したことから (101) , (011) , (110) の3つの反射面を使って3枚のX線トポグラフを得る。この時いずれかの写真上で転位像が消えていれば この転位はその反射面に平行なパーガースペクトルの刃状転位であると考えてよい。写真7が3つの反射面によるX線トポグラフである。この3枚にはすべて2本の転位像が認められる。したがってらせん転位であると考えてよいが さらに注意して見ると H-1 は (a) H-2 は (b) で それぞれ像のコントラストが増しているのがわかる。これは6-2の説明から反射面とパーガースペクトルの方向が垂直である つまりパーガースペクトルは $[011]$, $[101]$ 方向であることを示している。そこで次に $[011]$, $[101]$ に平行な適当な反射面を選んでX線トポグラフを撮ると 2本の転位像は消滅則によって完全に消えてしまう(写真8), こうして H-1 は $[011]$ 方向 H-2 は $[101]$ 方向のパーガースペクトルのらせん転位であることがわかる⁽⁶⁾。

7 あとがき

以上簡単な解説であったがX線トポグラフィ (ラング法) の原理と応用例につき多少とも理解していただけたであろうか。

現在までX線トポグラフで研究されている天然鉱物はLANG を中心としたダイヤモンドをはじめ水晶 トパーズ 螢石など多種にのぼっている。

今日 国内産天然鉱物結晶の良質のものを入手するのはなかなか困難であるが 水晶については幸い比較的多くの産地から採集出来る。ここ数年こうした水晶について研究して来たが 当初の予想に反して一見完全性の高そうな結晶であってもX線トポグラフィには適さないものが多く この点結晶内部を良く研究出来るブラジル

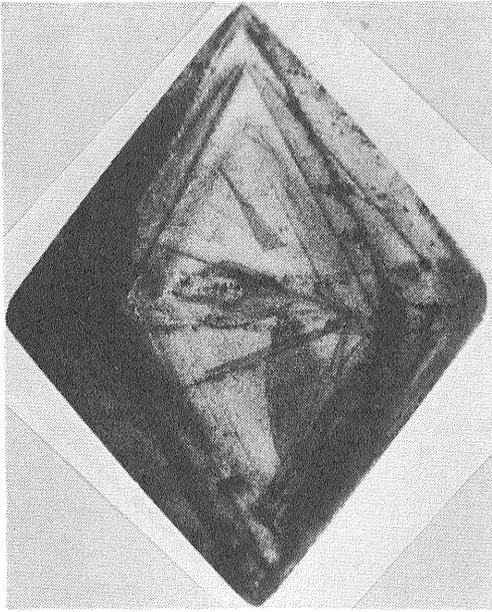


写真 7 a

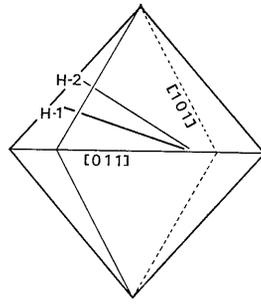


写真 7 a

写真 7
反射面はそれぞれ

- a) (0 2 2)
- b) $(\bar{2} 0 \bar{2})$
- c) $(\bar{2} \bar{2} 0)$

である
撮影条件がよくないので
b), c) は等価の面を使った

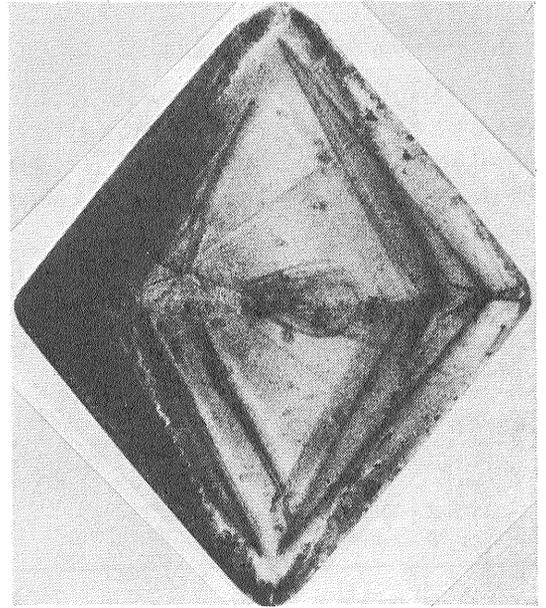


写真 7 b

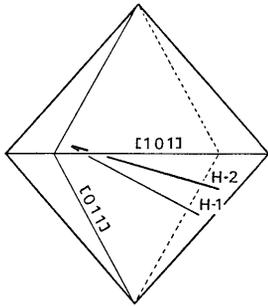


写真 7 b

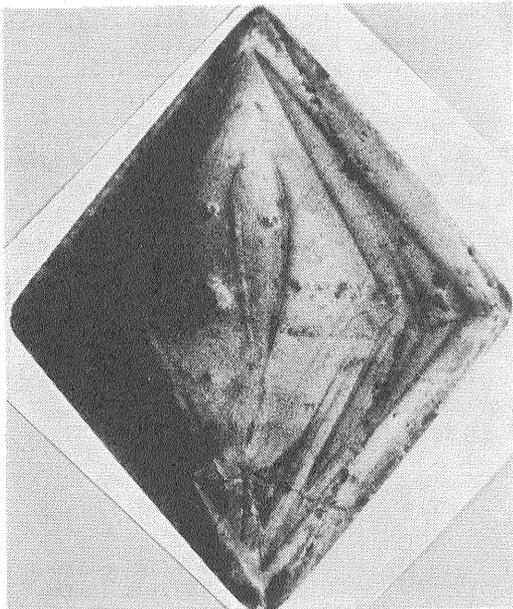


写真 7 c

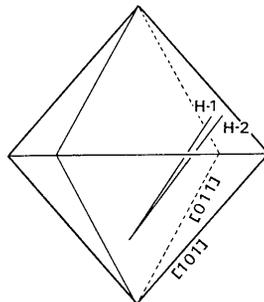


写真 7 c

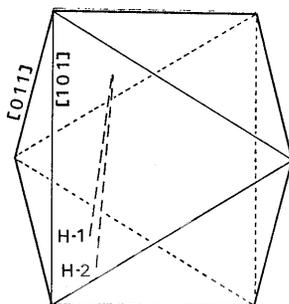
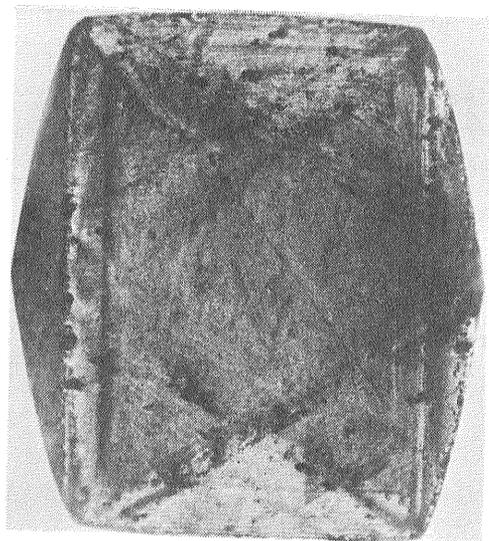


写真 8

(111) 反射 付図の点線の位置にある2本の
転位は 消滅則によって X 線トポグラフ上にそ
の像を現わさない

産水晶などとは大きく異なっている。若しかしてこの
点が日本産水晶の特徴の一つで “変動帯” という地質
環境はこんなところまで反映されているのかも知れな
いなどと空想したくなる。

ラング法は結晶内部を研究する上で比較的簡単で し
かも有効な方法である。X線トポグラフによって覗く
ことの出来る結晶内部にはまだ秘密がかくされているに
ちがいない。

引用文献

- 1 高良和武 菊田惺志：応用物理 36, 88, 1967
- 2 吉松 満：金属物理 7, 128, 1961

- 3 LANG, A. R.: *Crystal Growth*, p. 501, ed. P. Hartman,
North Holland, Amsterdam, 1973
- 4 LANG, A. R.: *The X-Ray Topography of Diamond,*
Physical Properties of Diamond, p. 69-114, ed. Berman,
Oxford Univ. Press, 1965
- 5 安田俊一・砂川一郎・塚本勝男：日本結晶成長学会誌 vol.
3 No. 3 p. 97, 1976

参考文献

- ・ 日本結晶学会誌13巻6号 [特集・X線トポグラフィ] 1971
- ・ 応用物理学会：第2回「X線回折 顕微鏡の基礎と応用」
講習会テキスト 1973
- ・ LANG, A. R.: *The Properties and Observation of Dis-*
locations, *Crystal Growth*, p. 444-512, ed. P. Hartman,
North Holland, Amsterdam, 1973

新刊紹介

地球科学の歩み

地球科学の歴史をひもとくことは 現代の地球科学の全体像を
把握して その発展内容を知るための鍵である。だが 古代
から現代にいたる地球科学の歴史を あらためて個々の文献から
探り出すことは 容易なわざではない。それに要する時間
を考えるだけでも 大変なことがわかる。地球科学史の総括
文献が求められるのは したがって 当然のことといわなくては
ならない。

本書は 地球科学史の研究での我が国の第一人者が 近代岩石
学・地球化学の分野のユニークな研究者と共同して 地球科学
史を分野ごとに 系統的に わかりやすく記述した 現代にふ
さわしい解説書である。

地球科学の歴史の研究は 他の分野に比較すると かなり遅れ

ていて 地球科学の全貌を見わたすような通史は ほとんどな
いといってもよい。この書が—そう光彩を放つ所以でもある。
第1章の“古代の地球観”から 第12章の“グローバル・テク
トニクス”にいたる本書全体の流れは 立体観さえ感じさせて
くれる。限定された紙数の中でのこの流れと史実・資料の豊
富さは この書の華であり 付録として 最新の「地球科学史
年表」がまとめられていること自体と それが一般科学技術
史・社会文化史との対照表になっていることは 親切以上にこ
の書の価値を高めている。
惜しむらくは 紙数である。このような解説書が再び書き改
められ 陽のめをみるのには かなりの年月が必要だけに
惜しまれるのである。

著 者 今井 功・片田 正人
発 行 年 1978年
発 行 所 共立出版株式会社
東京都文京区小日向4-6-19 (Tel. 03-947-2511)
サイズ等 A5版 206頁 図・写真 117葉 1,500円