

(22) Cu_3Au 合金の秩序領域の時間的成長過程

東工大・理・応物 橋 本 巍 洲
石 田 義 明

§1. 緒 言

Cu_3Au 合金は、 $T_c = 390^\circ\text{C}$ で Cu および Au 原子が無秩序配列へと相転移する合金であり、無秩序状態 (D- 状態) より秩序状態 (O- 状態) への遷移時間は、非常に長いことが知られている¹⁾。我々はこの相転移の遷移過程を明らかにするため、 T_c 以上の温度で焼鈍し、D- 状態した試料の焼鈍温度を T_c 以下に数分間で変化し、試料の X 線回折実験や電気抵抗値の急冷後の焼鈍時間依存等の観測を行い報告した²⁾。とくに X 線回折実験では、O- 状態に特徴的な (110) 超格子線の、線巾の急冷後の焼鈍時間 (t) 依存性を求めた。この線巾 $B(110)$ は秩序領域の平均半径 $\bar{D}$ との間に

$$B(hkl) = K(hkl) \cdot \lambda / (\bar{D} \cdot \cos \theta) \quad (1)$$

の関係が成立することが知られている。(1)式を用いて実験結果を解析した結果、

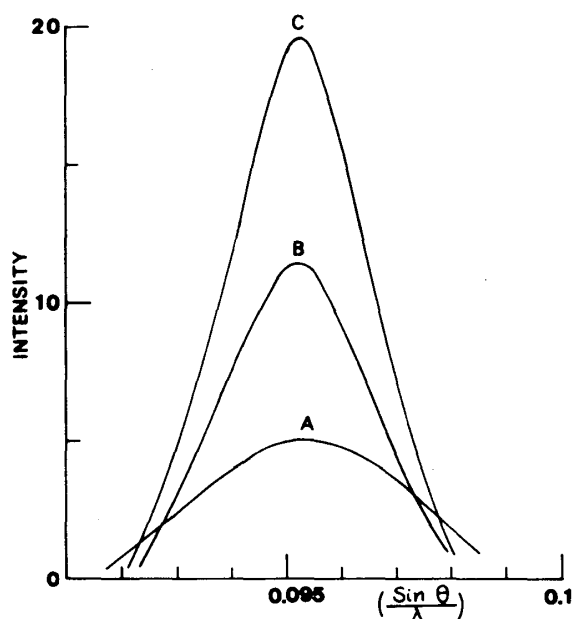
$$\bar{D} \propto \sqrt{t} \quad (2)$$

となることが明らかとなったが、このような $\bar{D}$ の t 依存は、TDGL 模型を用いてこのような遷移過程を理論的に研究した川崎-Gunton 等の結果³⁾と非常に良く一致することを明らかにした。

本研究では、この線巾のみならず線形、および、反射強度の t 依存についても川崎等の理論³⁾と比較を行い、理論の妥当性、適用限界等についての考察を本研究では行う。

§2. 実験結果および考察

500 $^\circ\text{C}$ で焼鈍し、無秩序配列した Cu_3Au 合金の焼鈍温度を、 T_c 以下の温度 (T_2) に急変し焼鈍を続行する。この試料の X 線回折実験を行い、秩序化に伴って出現する (110) 超格子線の T_2 での焼鈍経過時間 (t) 依存を求める。第 1 図に (110) 線の典型的な t 依存例として $T_2 = 351^\circ\text{C}$ の場合を示す。



第1図 (110) 超格子線の焼鈍時間依存性。 $T_2 = 351^\circ\text{C}$ の場合における (A) $t = 21$ 分, (B) $t = 37$ 分, (C) $t = 71$ 分の線形を例示する。

この (110) 線の線形および強度と川崎等の理論との比較は次の様に行う。川崎等によって求められた二体の相関関数 $C(r, t)$ を Fourier 変換して、構造因子 $S(Q, t)$ を求め、実験結果と比較する。比較に際して次の様な配慮を行った。TDGL 模型では $\bar{D}$ と t の間には、

$$D(t) = \sqrt{2Lt} \quad (3)$$

の関係がある。一方、第2図に示すような実験結果からは、 $\bar{D}$ と t の間に次式の関係

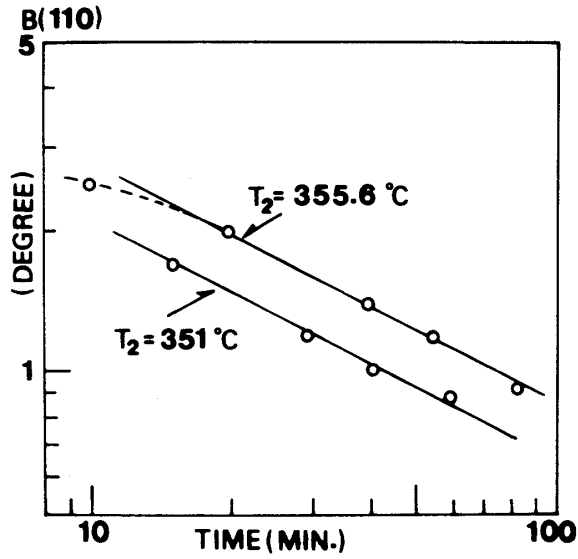
$$\bar{D}^2(t) - D_0^2 = 2\alpha t \quad (4)$$

が導かれる。したがって、比較に際しては、

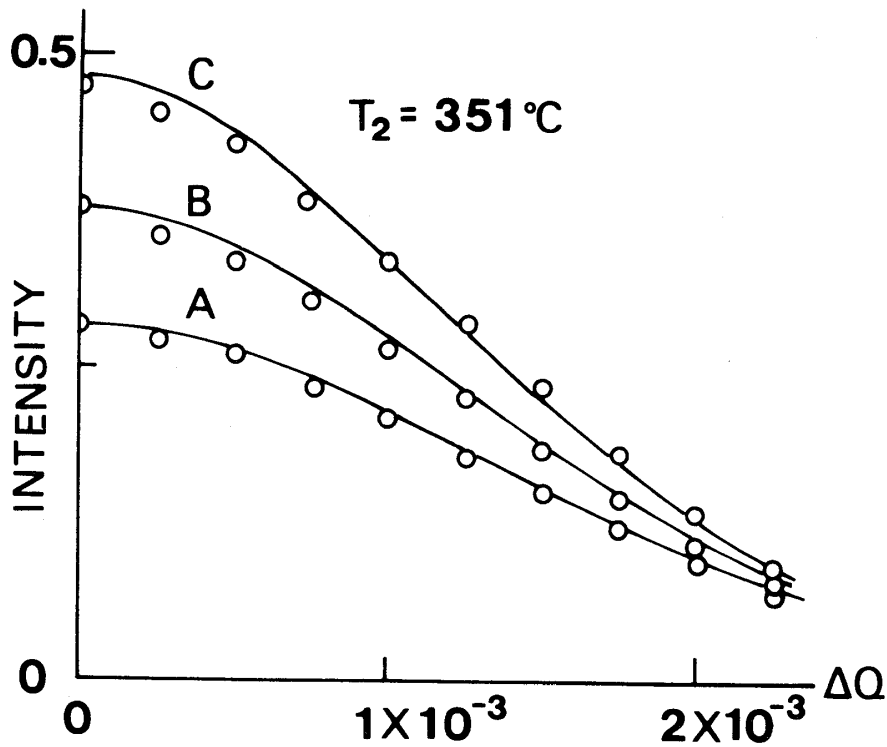
$$D(t) = \sqrt{2L(t+t_0)} \quad (5)$$

なる t_0 を導入し、焼鈍の時間 t を $t+t_0$ に変えねばならない。また、線形を比較するためには、第3図に示した実験で得られた線形の横軸 $Q \{ \equiv (\sin \theta / \lambda) \}$ に合わせる様に TDGL の結果の横軸 $\tilde{Q}$ をスケールする必要がある、この Q と $\tilde{Q}$ との間の関係が、

$$\tilde{Q} = \sqrt{2L(t+t_0)} Q \quad (6)$$



第2図 (110)超格子線の線巾 B
(110)の焼鈍時間依存性。



第2図 (110)回折線の線形の実験値と理論値との比較。実線は川崎等³⁾の理論を用いた計算曲線、白丸は実験値である。A, B, Cは焼鈍経過時間が (A) 37分 (B) 52分 (C) 71分の結果である。なお、横軸の ΔQ は、(110) 反射角を θ_0 とした時、

$$\Delta Q \equiv |(\sin \theta / \lambda) - (\sin \theta_0 / \lambda)| \quad \text{を用いている。}$$

であるようにスケールした。

第3図に $T_2 = 351^\circ\text{C}$ に急冷後, (A) 37分, (B) 52分, および(C) 71分間焼鈍した場合の(110)回折線と理論値との比較を示してある。この系列での L と t_0 を実験に合う様を選んでやると, 理論値は図に示すように実験結果と非常によく一致する。同様な比較を $T_2 = 355.6^\circ\text{C}$, $T_2 = 349^\circ\text{C}$ の系列についても行ったが, t が ~ 30 分から120分程度のデータではよい一致が得られた。しかしながら, t が ~ 30 分から ~ 120 分の領域から, ずればずれる程, 実験結果と理論計算結果の一致度はどんどん悪くなる。

一方, 川崎等の理論は, 初期の秩序化の過程を除いた過渡期に適用可能なものであり, さらに, 互に位相の異った秩序領域の間の相互作用が弱い領域に適用出来るものである。したがって, Cu_3Au 合金において, 上記条件をほぼ完全に満すのが, ~ 30 分 $< t < 120$ 分の領域, $\bar{D}$ に直すと $30 \text{ \AA} < \bar{D} < \sim 150 \text{ \AA}$ の領域であり, この領域での過渡過程を川崎等の理論はよく記述していると考えてよい。

次に, 選ばれたパラメター L および t_0 について考察してみる。得られた t_0 および L を用いて D_0 を計算すると ~ 30 格子と得られたが, これは実験値の ~ 2.5 倍程度の値であり, 一応もっともな値と考えられる。しかしながら, L の温度依存性に関しては, 実験と比較して意味ある結果が得られなかった。これは, 線形は非常に精度良く求められるが, 強度測定に関しては $\sim 8\%$ 程度の実験誤差があり, これが上記の原因かも知れない。もう少し T_2 を巾広く変化させると, 有意な L が決定されるのかも知れない。

研究を御支援して戴いた倉田財団に感謝する。

参考文献

- 1) E. Nagy and I. Nagy: J. Phys. Chem. Solids 23 (1962) 1605.
- 2) T. Hashimoto, K. Nishimura, and Y. Takeuchi: J. Phys. Soc. Japan 45 (1978) 1127.
- 3) K. Kawasaki, M. C. Yalabik and J.D. Gunton: Phys. Rev. A17 (1978) 455.