

トピックス

X線マイクロトモグラフィーを用いた
凝固・結晶成長組織の3次元観察安田秀幸^{1*}, 大中逸雄¹, 土山 明², 中野 司³, 上杉健太郎⁴¹大阪大学大学院工学研究科, ²大阪大学大学院理学研究科,³産業技術総合研究所, ⁴高輝度光科学研究センター3D Observation of the Solidified Structures
by X-ray Micro Computerized TomographyHideyuki YASUDA¹, Itsuo OHNAKA¹, Akira TSUCHIYAMA²,
Tsukasa NAKANO³ and Kentaro UESUGI⁴¹Department of Adaptive Machine Systems Osaka University²Department of Earth and Space Science, Osaka University³Geological Survey of Japan, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology⁴Japan Synchrotron Radiation Research Institute

Abstract

The high flux density of the monochromatized and well-collimated X-ray and the high-resolution detector provide a new 3D observation tool for microstructures of metallic alloys and ceramics. The X-ray micro computerized tomography in BL47XU of SPring-8 (SP- μ CT) was applied to observe microstructures produced through the eutectic reaction for Sn-based alloys and an Al_2O_3 - Y_2O_3 oxide system. The constituent phases in the eutectic structures were three-dimensionally identified, in which the lamellar spacing ranged from several to 10 μm . Since the 3D structure of the unidirectionally solidified specimens contains history of the eutectic structure formation, the 3D structure obtained by SP- μ CT gives useful information to consider the microstructure evolution.

1. はじめに

材料に関連する分野では、mm オーダから nm オーダにわたり種々のイメージング技術が利用されている。単純に分類できるわけではないが、イメージングの目的は物体の形状観察と物質中の相分布である組織観察である。材料表面に形成された構造の観察では、比較的大きな被写界深度を有した走査型電子顕微鏡 (SEM) や共焦点型レーザ顕微鏡などが用いられる。

材料中の組織観察では数10 μm 以下の組織が大半であり、少なくとも μm オーダの分解能が求められる。さらに、材料を構成する相を判別できる分析能力も求められる。基本的には断面観察である光学顕微鏡、走査型電子顕微鏡 (SEM)、透過型電子顕微鏡 (TEM) が目的に合わせて利用されている。

一方、非破壊で物質内部の組織を3次元で観察できれば、相の分布やつながりや相同士の相関といった新しい情報を得ることができるので、有益である。しかし、多くの材料は可視光に不透明であり、複雑な形状の内部まで観察することは従来の観察手法では困難である。

また、試料の形状に敏感な現象を観察する場合も、非破壊で内部を観察することが求められる。例えば、破壊現象では試料表面と試料内部では応力がまったく異なるため、対象とする物質の形状を変えずに内部構造を観察することが必要不可欠である。このように、材料内部の構造・組織

を観察する手法は多様な研究で利用でき、内部構造を観察できるイメージング技術が求められている。

コンピュータトモグラフィー (CT) は非破壊で物質の内部構造を観察できる手法であり、X線トモグラフィー (X線 CT) は医療の分野をはじめとして様々な分野でもっとも応用されている。広く普及している X線 CT の分解能は 1 mm 程度であり、材料分野では製品の欠陥検出などのマクロな内部観察手段として利用されている。しかし、材料組織は μm オーダであり、顕微鏡の機能も求められるため、汎用の X線 CT の分解能では不十分であった。

近年、分解能を高めた X線マイクロトモグラフィー (μ CT) が開発されている。従来の X線 CT と同様に内部構造を観察できるだけでなく、顕微鏡としての機能も持ち合わせており、材料に関連した分野でも応用範囲は広がっている。 μ CT が応用された例にセル構造体 (多孔体、発泡体) の解析がある^{1,2)}。分解能 0.1 mm の μ CT を用いて、Al のセル構造体の 3次元構造を調べ、ポアーの特徴を評価している。さらに、3次元構造を力学特性のシミュレーションにも応用している。また、非金属 TiB_2 粒子を Al マトリックスに分散させた粒子分散型複合材料について、 TiB_2 粒子の分布を μ CT により測定した例もある³⁾。しかし、マイクロフォーカス X線を線源として用いた場合、X線の発生領域は数 μm の有限領域であるため分解能の向上には限界がある。また、白色 X線では物質内の濃度差

* 大阪大学大学院工学研究科知能・機能創成工学専攻 〒565-0871 吹田市山田丘 2-1
TEL: 06-6879-7475 FAX: 06-6879-7476 E-mail: yasuda@ams.eng.osaka-u.ac.jp

や密度差を検出する分析能力は低く、得られたデータの定量性が期待できない。そのため、材料の組織を観察するためには、分解能と分析能力の向上が望まれる。

放射光を利用してさらに高分解能で分析能力に優れた X 線 CT が実現されている⁴⁻⁶⁾。第三世代型の放射光施設では、10 keV 以上の硬 X 線領域で高輝度かつ高平行度の単色光が得られる。硬 X 線領域で高輝度光が得られるため、実用合金の多くを占める 3d 遷移金属や重い元素を含んだ材料でも十分な強度がある透過像を撮影することが可能になる。また、単色光で撮影をすればその X 線エネルギーに対する線吸収係数の 3 次元分布が得られるため、定量性、分析能力は向上する。さらに、平行度の高い X 線の透過像を高解像度の検出器で撮影すれば、発散光に比べて単純な取り扱いで精度の高い内部構造を再構成できる。このような利点を生かして、1 ボクセルサイズが $0.5 \mu\text{m}$ で再構成像が得られるマイクロ CT (以下、SP- μCT) も開発されている⁴⁾。このような μm オーダの分解能で分析能力も有した μCT は、材料中の組織を 3 次元で観察できる顕微鏡としての利用が可能になりつつある。

我々のグループでは、複数の相が相互に影響しながら非定常に成長する凝固・結晶成長過程の研究を進めている^{7,8)}。この非定常な成長過程を理解する上で、成長過程の履歴が残されている凝固組織を 3 次元で観察することは有益である。そこで、SPring-8 において SP- μCT を用いて凝固・結晶成長組織を 3 次元で観察することを試みている。本稿では SPring-8 共用ビームライン利用研究課題として行った共晶凝固と呼ばれる 2 相が協調しながら成長する凝固組織の 3 次元観察結果について報告する。

2. X 線マイクロ CT 装置と測定試料

2.1 マイクロ CT 装置の概略

本稿で紹介する SP- μCT は SPring-8 の BL47XU で行っており、ビームライン、装置の詳細は参考文献 9, 10) に述べられている。アンジュレーターからの放射光を二結晶分光器により単色化した X 線を用いており、X 線エネルギーの範囲は 7~35 keV 程度である。各相の吸収係数の差が大きく、コントラストを得ることができるように X 線エネルギーを選択している。例えば、Sn 系合金では Sn 相と他の相 (Pb, Bi) の間で十分なコントラストが得られるように、Sn の吸収端以下の X 線エネルギー (29 keV) を用いた。高輝度の単色光を利用できるためこのように高い分析能力が期待され、材料中の組織観察では大きな利点である。

透過像の撮影は、可視光変換型の高分解能検出器 (浜松ホトニクス社製 AA50 および C4880-10-14A) を用いた¹¹⁾。1000×1018 ピクセル (約 0.5 mm 角) の透過像をそれぞれ露光時間 0.5-2 秒で撮影した。プロジェクション数は 360 あるいは 750 である。また、屈折コントラストを排除するために試料と X 線検出器はできる限り近接させている。

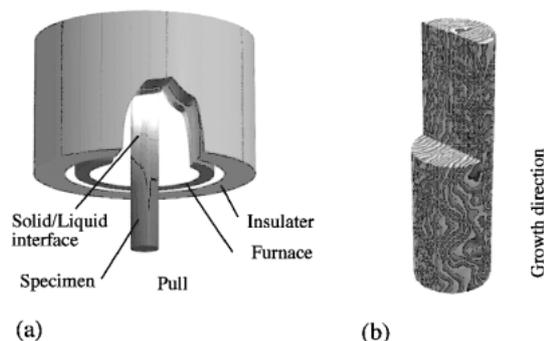


Figure 1. Schematic illustrations of (a) the unidirectional solidification and (b) the unidirectionally solidified specimen.

スライス像の再構成には畳み込み逆投影法 (Convolution Back-Projection method) を用いた^{12,13)}。得られる CT 像は最大 1000×1000 ピクセルで、1 画素のサイズは高さ方向も含めて $0.5 \times 0.5 \times 0.5 \mu\text{m}$ である。

2.2 一方向凝固試料

透過像の観察範囲は $500 \times 500 \mu\text{m}$ であり、測定試料は回転してもこの領域に収まる必要がある。また、より良質の再構成像を得ようとする、観察すべき組織のスケールに合わせて試料の大きさを調整する必要がある。Sn 系合金のように融点が低い系では Tayler Wire 法と呼ばれる紡糸法¹⁴⁾で数 $10 \mu\text{m}$ 径から数 $100 \mu\text{m}$ 径の試料を作製し、これらを一方向凝固して CT 観察試料とした。他の試料では、数 mm 径程度の一方向凝固した試料を放電加工、精密切断、研磨などにより観察に適した形状に加工した。

Fig. 1 (a) は一方向凝固プロセスの模式図である。加熱炉と冷却装置により作られる温度勾配下で試料を一定速度で降下させることにより、固相が一定方向に成長する。この方法では、成長速度、成長界面の温度勾配といった境界条件は実験パラメータとして制御可能であり、試料の長手方向が成長方向と一致している。**Fig. 1 (b)** に示した組織を一方向凝固した組織とすると、表面と断面組織から 2 つの相が層状に重なっている組織であることは容易に分かる。z 方向は結晶の成長方向と一致しており、この方向に組織の時間発展の情報が残されている。したがって、z 軸方向に各相がどのように連続しているかを把握できれば、成長過程を追跡することができる。

3 次元の観察が必要不可欠な観察対象と 2 次元 (断面) の観察で統計的に推定できる観察対象については参考文献 6) にまとめられている。例えば、一定の単純な形状を仮定できる物質が 3 次元に分布している場合では、十分なサンプル数の断面組織観察により、物体の大きさの分布や平均値を統計的に推定できることが示されており、組織解析手法に利用されている^{15,16)}。一方、分散して存在する物体についてその大きさと隣接する物体との距離の相関関係、あるいは物体のつながりや連続性に関する情報を得るには、3 次元観察が必要となる。このような連続性を調べ

るためにはCTは有効であり、これまでに文象花崗岩中の石英結晶の連続性が μ CTを使って議論されている¹⁷⁾。本稿で紹介する共晶組織の観察においてもCTを利用する理由は同じである。

3. 一方向凝固組織の3次元構造観察

3.1 協調成長による組織形成

複数の相が同時に成長する系の典型例である共晶反応は、多くの実用合金でも存在し、共晶反応を組織制御に積極的に利用している例も少なくない。共晶凝固過程では、成長する相同士は互いに影響を及ぼし合い、その結果として種々の特徴的な組織が形成される。**Fig. 2**は2種類の共晶組織のSEM像(反射電子像)である。いずれの写真も成長方向に垂直な断面組織である。Sn-Pb合金では、2相が層状に規則的に配列しており、規則共晶組織の典型である(**Fig. 2(a)**)。一方、 Al_2O_3 -YAG(イットリア-アルミナ-ガーネット)系では2相の界面は直線的であり、互いの相が複雑に絡んだ不規則共晶組織になっている(**Fig. 2(b)**)。いずれの凝固組織でも、2相が近接して存在する点は共通しているが、2相の配列パターンには顕著な差がある。

共晶系の凝固を説明する協調成長モデル(Coupled growth model)の模式図を**Fig. 3**に示す¹⁸⁾。**Fig. 3(a, b)**に成長のモフォロジーと状態図が示されているが、 α 相は成長に不要な成分Bを、 β 相は成分Aを液相に排出しながら成長する。界面前方の液相中の溶質濃度は**Fig. 3(c)**のようになり、2相が並んで成長すると成長方向に垂直な方向で溶質の交換が可能になる。成長界面の遠方に不要な元素を排出するのに比べて、隣接する2相間で溶質を交換する方が有利であり、2相は成長方向に並ぶ傾向がある。

2相間の溶質交換の観点では2相が近接すればするほど成長に有利である。一方、2相があまりに近接すると凸形状の凝固界面になるため界面エネルギーの寄与(曲率効果)が無視できなくなり、2相の間隔(ラメラ間隔)が小さくなるほど固相の成長は不利になる。その結果、ラメラ間隔は拡散による溶質交換と界面エネルギーのバランスにより決まる。モデルでは定常成長を仮定し、成長界面の温度 T_i 、共晶反応温度 T_e 、ラメラ間隔 λ 、成長速度 V の関係を次式のように導いている^{18,19)}。

$$T_i = T_e - \left[K_c \lambda V + \frac{K_r}{\lambda} \right] \quad (1)$$

ここで K_c 、 K_r は物性値で決まる定数である。右辺括弧内の第1項が溶質交換の因子であり、第2項が界面エネルギーの効果である。

Fig. 3(d)は式(1)から求められる成長界面温度とラメラの間隔の関係を示している。「定常状態でもっとも高い界面温度で成長できる形態」を選択基準にすると、式(1)よ

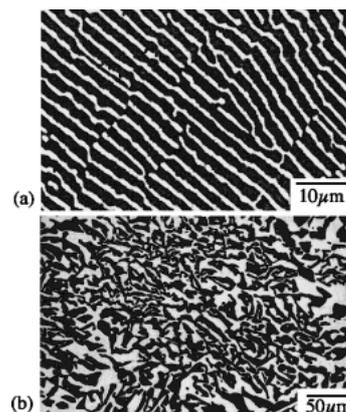


Figure 2. SEM images of the eutectic structures. (a) Sn-Pb and (b) Al_2O_3 -YAG systems. Cross sections are perpendicular to the growth direction.

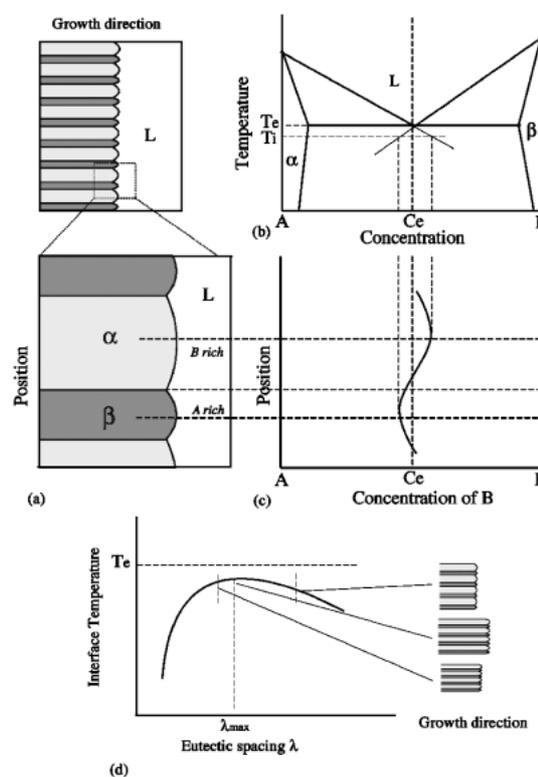


Figure 3. Coupled growth model for the eutectic systems. (a) morphology, (b) phase diagram, (c) concentration profile of the liquid phase at solidifying front, and (d) lamellar-spacing dependence of the interface temperature.

りラメラ間隔は成長速度の $-1/2$ 乗に比例する関係が導かれる。ラメラ間隔の平均値と成長速度には、一般的にこの関係が成立することが知られている。したがって、ラメラ間隔の平均値を考える範囲では、定常成長のモデルで十分な知見が得られる。

一方、実際の共晶組織を詳しく観察するとラメラ間隔は上記の界面温度最大の間隔付近に分布していることが明らかになっている²⁰⁾。さらに、平均的なラメラ間隔は同じ

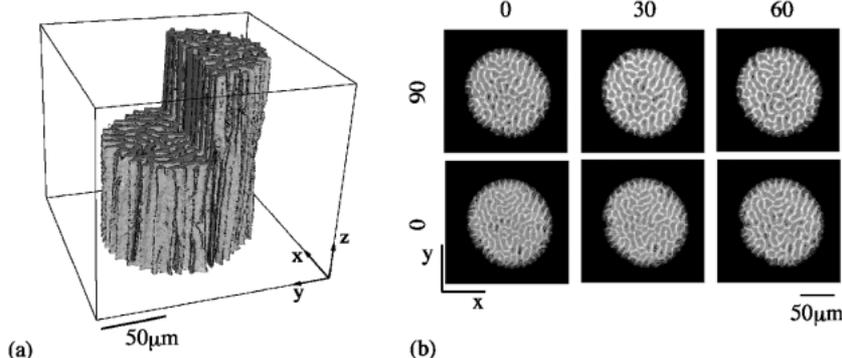


Figure 4. Reconstructed images of the Sn-26 at.%Pb eutectic structure (growth rate: 1 mm/h). (a) 3D image ($185 \times 185 \times 160$ mm) and (b) slice images in z direction (185×185 mm). Numbers indicate the z position of the cross sectional images in the 3D image.

でも、Fig. 2のように2相が作るパターンは多様である。このようなラメラ間隔の分布や多様な2相のパターンを理解するためには、「界面温度が最大になる」という基準が選択される過程を明らかにする必要がある。言い換えれば、各相がどのように協調しながら成長し、特徴的なパターンが形成されるかを知る必要がある。

3.2 Sn系合金共晶組織の3次元観察

Sn-Pb合金はFig. 2(a)で示されたようにSn相、Pb相が規則的に並んでおり、典型的な規則共晶組織である。2相のラメラ間隔も成長速度の $-1/2$ 乗に比例しており、協調成長モデルとよく一致することが知られている。

Sn-Pb合金(組成26 at.%Pb, 成長速度1 mm/h)の再構成像をFig. 4に示す。SP- μ CTの透過像の観察条件は、X線エネルギーがSnの吸収端より低い29 keV、プロジェクト数数が360である。組織を観察しやすいように水平(xy面)、垂直(zx面)の断面を一部露出し、Pb相を抽出した3次元像がFig. 4(a)である。成長方向はz方向であり、ラメラが下部から上部にむかって連続して成長している様子が分かる。この3次元像の最下部を基準にして、30 μ mごとのxy平面の断面像がFig. 4(b)である。白い部分がPb相であり、黒い部分がSn相である。Sn-Pb共晶組織のラメラ間隔は10 μ m程度の間隔であるが、このサイズの組織はSP- μ CTにより十分に再構成像で確認できている。したがってSEM観察像には及ばないが、組織観察が十分に行える分解能と分析能力がSP- μ CTにある。

xy断面の組織に注目するといずれの断面でも平均のラメラ間隔は変化せず、一見すると金太郎飴のように同じ組織のように見える。しかし、各スライス像を詳しく比較すると、局所的には同じラメラ配列は存在せず、2相が作るパターンのマクロな特徴が維持されているだけであることが分かる。

ラメラの変化に注目するため、スライス像の一部分を拡大したxy断面をFig. 5に示す。成長方向は紙面の裏から表である。横と縦の数字の和が相対的な成長距離である。

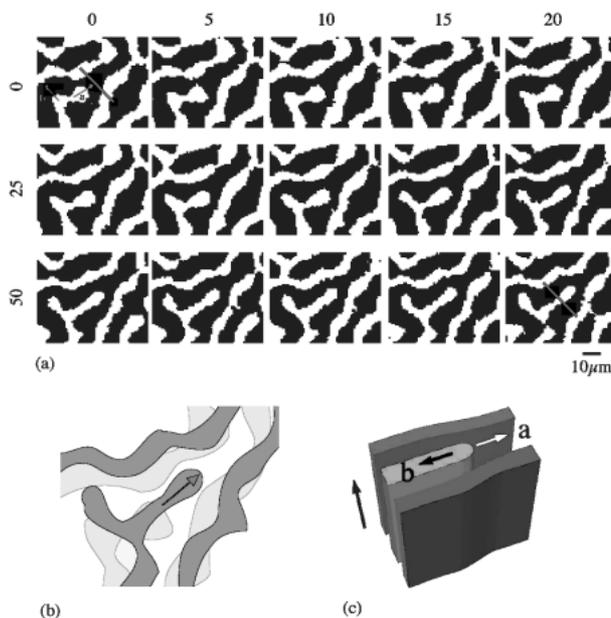


Figure 5. Reconstructed images of the lamella in the Sn-Pb regular eutectic alloy (growth rate: 1 mm/h). (a) cross sectional images of the xy plane, (b) lamella change, and (c) schematic illustration of the lamella change and the adjustment of the spacing. Numbers indicate the relative growth length in the vertical direction.

Pbラメラ(白の部分)に注目すると、右上のスライス像上に矢印で示したラメラの先端が成長するにもない他のラメラ間に進入していく様子が観察される(Fig. 5(c)でa方向)。また、左上方にも突起したラメラが形成され、左上方に伸び、他のラメラを曲がっている様子が観察される(Fig. 5(c)でb方向)。ラメラの先端が他のラメラにむかって進入する場合には局所的にラメラの間隔を縮めており、ラメラの先端が後退する場合には局所的に増大させる。このような配置のラメラの水平方向の成長によりラメラ間隔が調整される様子が試料の至る所で観察されている。このような共晶組織が安定して成長する理由として、

ラメラの進入や後退がラメラ間隔の調整機構として作用することが指摘されている¹⁸⁾。SP- μ CTによる3次元の組織観察では、指摘された機構が作用している様子が明瞭に観察され、その指摘の妥当性を確認できた。

3.3 Al_2O_3 -YAG 共晶組織の3次元観察

酸化物原料を溶解して一方向凝固することにより製造されるMGC材料(Melt Growth Composite Materials)は新しい高温材料の候補として注目されている²¹⁻²³⁾。この一方向凝固セラミックス(MGC材料)は共晶反応を利用して製造され、金属材料とセラミックス材料の優れた特性を兼ね備えた新しいタイプの材料である。例えば、 Al_2O_3 -YAG系MGC材料の場合、約360 MPaの高い強度が室温から融点(約2093 K)直下の2073 Kまで維持される。共晶反応による晶出する Al_2O_3 相とYAG相が鎖のように複雑に絡み合ったネットワーク構造を有した共晶組織が形成され、この構造が力学特性とも密接に結びついている。

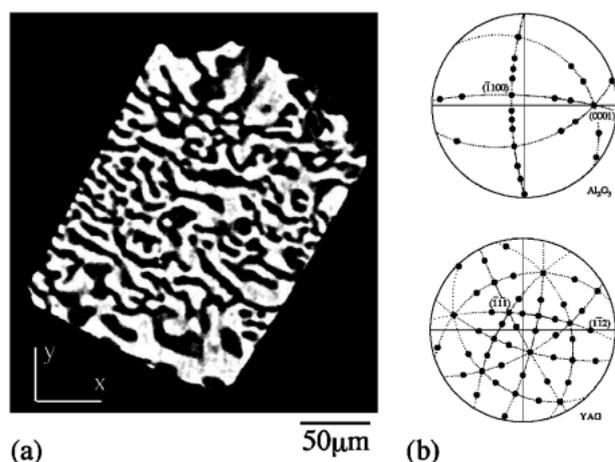


Figure 6. (a) Reconstructed image of the Al_2O_3 -YAG (Al_2O_3 -18.5 mol%, growth rate: 1 mm/h) eutectic structure (xy plane, 260 mm \times 285 mm), (b) crystal orientation of the Al_2O_3 and the YAG crystals.

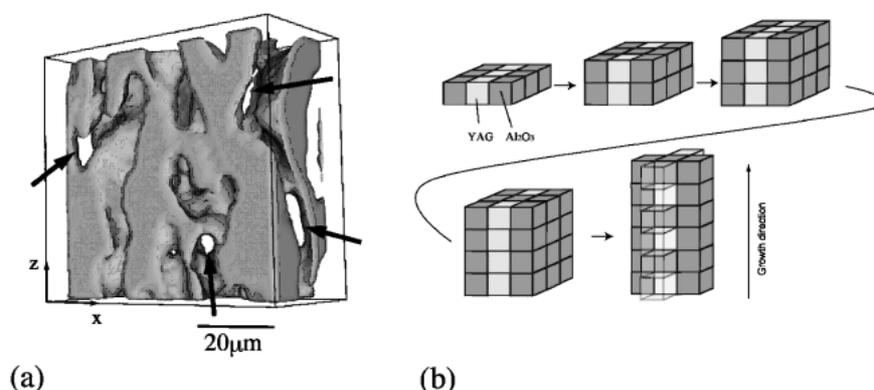


Figure 7. (a) 3D images of the Al_2O_3 -YAG eutectic structure (Al_2O_3 -18.5 mol%, growth rate: 1 mm/h) eutectic structure. (60 \times 28 \times 50 mm) and (b) formation of the network structure by sequence of the branching of Al_2O_3 and YAG phases.

これまでに Al_2O_3 -YAG系の一方向凝固共晶組織に関する研究が報告されている^{21,24-28)}。ラメラ間隔と成長速度の関係が、協調成長のモデルと一致すること、共晶組織が形成される組成範囲は金属合金系に比べて限られた範囲であることが明らかになっている。一方、ネットワーク構造の形成機構に関しては、2相が連続的に枝分かれすることにより3次元的に絡んだ構造が形成される簡単なモデルが提案されているが²⁸⁾、検証する実験データはなく形成機構には不明な点が多い。そこで、SP- μ CTを利用してこのネットワーク構造を3次元で観察することを行っている。

SP- μ CTを用いて再構成された Al_2O_3 -YAG共晶組織(Al_2O_3 -18.5 mol%, 成長速度0.5 mm/h)のスライス像(成長方向に垂直)をFig. 6(a)に示す。結晶成長した数mm径の試料から切断・研磨により観察用試料を作製した。X線エネルギーは25 keV、プロジェクション数は750の条件で透過像を観察した。白い部分がYAG相であり、黒い部分が Al_2O_3 である。 Al_2O_3 相とYAG相の結晶構造はそれぞれ六方晶と立方晶であり、4軸型ゴニオメータを用いて測定した Al_2O_3 相およびYAG相の面方位もFig. 6(b)に示した。

これまでに一方向凝固した Al_2O_3 -YAGの共晶組織では $(0001)_{\text{Al}_2\text{O}_3} // (1\bar{1}2)_{\text{YAG}}$, $[\bar{1}100]_{\text{Al}_2\text{O}_3} // [\bar{1}11]_{\text{YAG}}$ の方位関係があることが報告されている²⁹⁾。SP- μ CTの試料においても Al_2O_3 相とYAG相には同様の方位関係が存在していることが分かる(Figs. 6(b))。一方、スライス像では $(0001)_{\text{Al}_2\text{O}_3} // (1\bar{1}2)_{\text{YAG}}$ の方位関係に対応する2相界面はFig. 6(a)の断面ではほぼ上下方向になるが、再構成された断面組織においてこの方位関係に一致する界面は非常に少数である。Fig. 6の断面組織と結晶方位を比較すると、ラメラの長手方向は Al_2O_3 のc軸方向に近くなる傾向が見られる。したがって、 Al_2O_3 相とYAG相の界面は Al_2O_3 の結晶成長が影響していると考えられる。

SP- μ CTにより得られたデータからYAG相のみを抽出した3次元像をFig. 7(a)に示す。3次元像を適当な角度

から眺めると、矢印で示したように YAG 相のラメラに穴が空いている箇所が観察される。この部分は Al_2O_3 相が YAG 相を貫通してつながっていることになる。また、YAG 相がブリッジになった部分も観察され、この部分では YAG 相が Al_2O_3 相を貫通している。 Al_2O_3 相と YAG 相のラメラ形状の変化を解析すると、YAG の枝分かれと Al_2O_3 の枝分かれがほぼ同じ場所で交差するように交互に起こる結果、鎖状に 2 相が絡むネットワーク構造が形成されることが分かった (Fig. 7(b))。 Al_2O_3 相と YAG 相は Sn-Pb 系のような金属相に比べて、特定の結晶面が成長時に現れるファセット性が強い。その結果、Sn-Pb 系で観察されたようなラメラによる調整機構は働かず、枝分れのくり返しによる調整が起っていると考えられる。SP- μ CT はこのように断面観察では得られなかった成長過程に関する情報を提供することができ、有効な観察手段となっている。

4. まとめ

硬 X 線領域で高輝度単色光が得られる放射光 (Spring-8) と高分解能検出器を用いた SP- μ CT は、ミクロンオーダーの材料組織を観察するための分解能と分析能力を有しており、3 次元の組織観察に応用できた。

金属、セラミックスの結晶成長・凝固組織の 3 次元観察は、2 次元観察では得られなかった組織形成過程の情報を得ることができた。 Al_2O_3 -YAG 系のような複雑なネットワーク構造を把握することができ、結晶方位などを含めた定量的な組織形成機構を議論できるようになりつつある。本稿は非常に限られた研究分野で発展途上の課題について紹介したが、今後も多様な研究課題について SP- μ CT が応用されると考えられる。

謝辞

ここで紹介した実験結果は、大阪大学大学院工学研究科知能・機能創成工学専攻マテリアル・デバイス工学講座のメンバーと共同で行ったものである。また、 Al_2O_3 -YAG 共晶組織の方位解析は田中克志氏 (香川大学工学部) の協力で行った結果である。研究遂行に際してお世話いただいた方々に感謝いたします。最後に、この原稿を書く機会を与えていただいた編集委員会にもお礼を申し上げます。また、本稿に関してご意見、ご指摘などいただければ幸いです。

参考文献

- 1) A. Sassov, E. Cornelis and D. Van Dyck: *Werkstofftechnologie* **31**, 571 (2000).
- 2) O. B. Olurin, M. Arnold, C. Korner and R. F. Singer: *Mater. Sci. Eng. A* **328**, 334 (2002).
- 3) R. W. Hamilton, M. F. Forster, R. J. Dashwqod and P. D. Lee: *Scripta Mater.* **46**, 25 (2002).
- 4) K. Uesugi, A. Tsuchiyama, T. Nakano, T. Suzuki, Y. Yagi, N. Umetani and Y. Kohmura: *Proc. SPIE Conf.* **3772**, 214 (1999).
- 5) E. N. Landis, E. N. Nagy and D. T. Keane: *Engineering Fracture Mechanis.* (2002) in press.
- 6) L. Salvo, P. Cloetens, E. Marie, S. Zabler, J. J. Blandin, J. Y. Buffiere, W. Ludwig, E. Boller, D. Bellet and C. Josserond: *Nucl. Instr. And Meth. In Phys. Res. B.* (2002) in press.
- 7) K. Tokieda, H. Yasuda and I. Ohnaka: *Mater. Sci. Eng. A* **262**, 238 (1999).
- 8) H. Yasuda, N. Notake, K. Tokieda and I. Ohnaka: *J. Cryst. Growth* **210**, 637 (2000).
- 9) <http://www.spring8.or.jp/ENGLISH/facility/bl/SPring8BL/BL47XU/index.html>
- 10) K. Uesugi, Y. Suzuki, N. Yagi, A. Tsuchiyama and T. Nakano: *Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. A* **467-468**, 853 (2001).
- 11) H. Takano, Y. Suzuki, K. Uesugi, A. Takeuchi and N. Yagi: *Proceedings of SPIE* **4499**, 126 (2001).
- 12) 飯沼武: コンピュータ断層撮影法, 岩波講座情報科学21, 長尾真編「パターン認識と図形情報処理」, 岩波書店, 1983, pp. 179.
- 13) 中野司, 中島善人, 中村光一, 池田進: *地質学雑誌* **106**, 363 (2000).
- 14) G. T. Taylor: *Phys. Rev.* **23**, 655 (1924).
- 15) J. H. Han and D. Y. Kim: *Acta Mater.* **43**, 3182 (1995).
- 16) J. H. Han and D. Y. Kim: *Acta Mater.* **46**, 2021 (1998).
- 17) S. Ikeda, T. Nakano and Y. Nakashima: *Mineralogical Magazine* **64**, 945 (2000).
- 18) K. A. Jackson and J. D. Hunt: *Trans. Metall. Soc. AIME* **236**, 1129 (1966).
- 19) W. Kurz and D. J. Fisher: *Fundamentals of Solidification*, Trans. Tech. Pub., Switzerland, (1989).
- 20) J. Liu and R. Elliott: *Acta Mater.* **43**, 3111 (1995).
- 21) Y. Waku, N. Nakagawa, H. Ohtsubo, Y. Ohsora and Y. Kohtoku: *J. Jpn. Inst. Met.* **59**, 71 (1995).
- 22) Y. Waku, N. Nakagawa, T. Wakamoto, H. Ohtsubo, K. Shimizu and Y. Kohtoku: *Nature* **389**, 49 (1997).
- 23) 和久芳春: *金属* **69**, 798 (1999)
- 24) Y. Waku, N. Nakagawa, T. Wakamoto, H. Ohtsubo, K. Shimizu and Y. Kohtoku: *J. Mater. Sci.* **33**, 1217 (1998).
- 25) J. Echigoya, Y. Takabayashi, K. Sasaki, S. Hayashi and H. Suto: *Trans. JIM* **27**, 102 (1986).
- 26) A. Yoshikawa, B. M. Epelbaum, K. Hasegawa, S. D. Durbin and T. Fukuda: *J. Cryst. Growth* **205**, 305 (1999).
- 27) 水谷予志生, 安田秀幸, 大中逸雄, 前田亘洋, 和久芳春: *日本金属学会誌* **66**, 9 (2002).
- 28) Y. Mizutani, H. Yasuda, I. Ohnaka and Y. Waku: *J. Cryst. Growth* **244**, 384 (2002).
- 29) C. S. Frazer, E. C. Dickey and A. Sayir: *J. Cryst. Growth* **233**, 187 (2001).