

© 1992 ISIJ

解 説

## 準結晶の機械的性質

竹 内 伸\*

## Mechanical Properties of Quasicrystals

Shin TAKEUCHI

## 1. はじめに

準結晶という新しいカテゴリーの物質が認知されてから約7年を経過した。初期の頃には、準結晶は液体急冷によってはじめて生成する準安定相であると考えられていたのであるが、その後、多数の合金系で熱力学的安定相としても準結晶が存在することが明らかになった。同時に、初期には多量に欠陥を含む極めて質の悪い試料しか得られなかったのであるが、近年は、安定相準結晶については結晶と同程度に良質の試料が得られるようになり、準結晶のさまざまな物性に関する研究が進展しつつある。機械的性質に関しては、比較的大きなバルク試料を必要とするため、まだ十分に実験が進んでいるとは言えないが、この小文では準結晶の簡単な紹介を含めて、これまでの研究の現状について記述する。

## 2. 準結晶とその種類

## 2.1 準結晶の基本構造

「準結晶」は以下のように逆格子によって定義される。すなわち、準結晶は“回折パターンが $\delta$ 関数の集合から成り、その逆格子点を記述する基本ベクトルの数が次元数よりも大きく、結晶では許されない回折対称性を有する物質”である。このような定義に合致する実格子の典型としてよく知られるようになると共に、実際の準結晶の基本格子とも見なされているのが、2次元のペンローズ格子とそれを拡張した3次元のペンローズ格子である。前者は英国の物理学者 Penrose によって1970年代の初めに考案された10回対称のパターンの1つで、Fig. 1に示すような2種類のひし形の単位胞で構成されたものである。このパターンが10回対称であるというのは、ある軸のまわりに $36^\circ$ ずつ回転することにより元のパターンに完全に一致するのではなく、 $36^\circ$ ずつ回転してもパターンとしての区別がつかないという意味においてである。無限に大きなペンローズ格子の回折パ

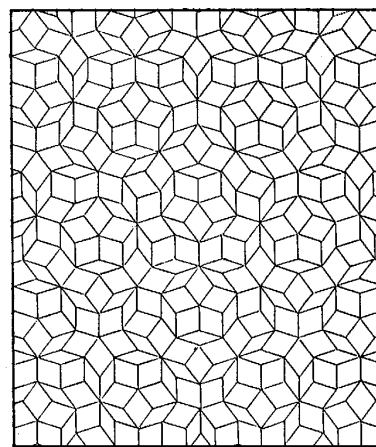


Fig. 1. Penrose pattern as a two-dimensional quasicrystalline lattice.

ターンは完全な10回対称である。

Penrose は収縮変換法という幾何学的方法を用いて Fig. 1 のペンローズ格子を作成したのであるが、この格子は、5次元超空間の立方格子の射影構造として得られることが明らかにされている。この射影法では、2次元の物理空間（または平行空間）と3次元の補空間（または直交空間）の2つの部分空間に分け、補空間のある領域（窓とよぶ）に属する格子点を物理空間に射影することによって2次元ペンローズ格子が得られる。3次元ペンローズ格子は6次元超空間の結晶格子の射影で得られ、Fig. 2に示す2種類の菱面体で構成される。これらの菱面体は立方体を対角線の方に伸ばしたり縮めたりすることによって得られる。各頂点に付されている数値は立体角を示し、全立体角（ $4\pi$ ）の $1/20$ が単位になっている。3次元ペンローズ格子は正20面体の対称性をもっている。

準結晶格子を超空間の結晶の射影で記述することの最大のメリットは、この格子の回折パターンが $\delta$ 関数の

平成4年4月28日受付 平成4年7月3日受理 (Received on Apr. 28, 1992; Accepted on July 3, 1992) (依頼解説)

\* 東京大学物性研究所所長 理博 (The Institute for Solid State Physics, The University of Tokyo, 7-22-1 Roppongi Minato-ku, Tokyo 106)

Key words: quasicrystal; mechanical properties; dislocation; plastic deformation; hardness; brittle fracture.

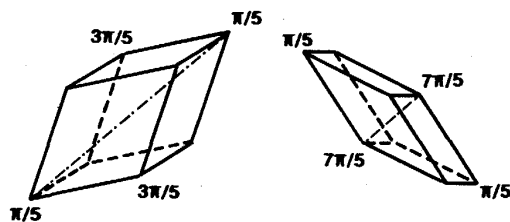


Fig. 2. Two kinds of rhombohedral unit cell constructing three-dimensional Penrose lattice. Numerals show solid angle of each vertex.

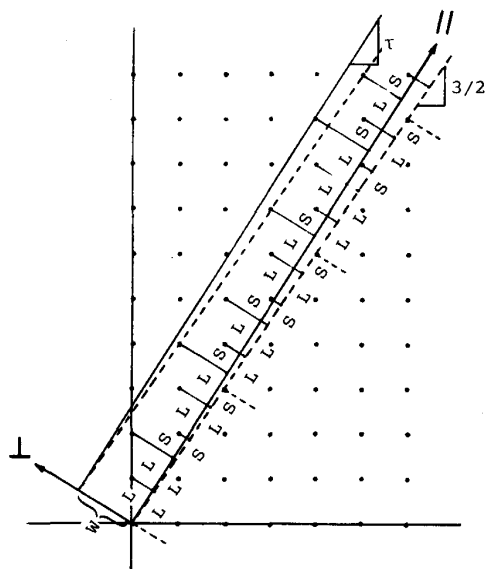


Fig. 3. Illustration of projection method to construct one-dimensional lattice from two-dimensional square lattice. // and  $\perp$  signs indicate parallel and perpendicular space, respectively, and  $W$  signifies the window in the perpendicular space. One obtains a quasiperiodic lattice (Fibonacci lattice) for the slope of  $\tau$  (golden mean), and a periodic lattice for the slope of  $3/2$ .

集合になることを保証し、それを計算することを可能にするからである。準結晶が発見されてから、準結晶と局所構造が類似している大きな単位胞の結晶が多数存在することが明らかになり、それらは近似結晶とよばれるのであるが、このような近似結晶構造の記述にも射影法が便利である。準結晶を得る場合には、射影の窓を規定するベクトルの傾斜が無理数であるのに対し、それを有理数で近似することによって近似結晶が得られるからである。準結晶と近似結晶の関係は、Fig. 3 に示すように、2次元の正方格子から1次元準周期格子(フィボナッチ格子とよばれる)を得る手続きによって直観的に理解することができる。すなわち、射影する実空間の傾きが黄金比  $\tau (\equiv (\sqrt{5}-1)/2 = 1.618\cdots)$  という無理数のときには1次元準周期結晶(フィボナッチ格子)が得られるが、 $\tau$  に近い有理数(図では  $3/2$ ) の場合にはフィボナッチ格子の近似結晶が得られるわけである。

Table 1. Examples of quasicrystalline alloys of various types. Underlined alloys are stable phase.

Phase	Alloy
I-phase	RT-type <u><math>\text{Al}_5\text{Li}_3\text{Cu}</math></u> , <u><math>\text{Ga}_{10}\text{Mg}_{18}\text{Zn}_{21}</math></u> , <u><math>\text{Mg}_{45}\text{Pd}_{14}\text{Al}_{41}</math></u> , $\text{Al}_6\text{Li}_3\text{Au}$ , $\text{Al}_{50}\text{Mg}_{35}\text{Ag}_{15}$ , $\text{Mg}_{32}(\text{Al}, \text{Zn})_{49}$ , $\text{Al}_5\text{Mg}_4\text{Cu}$
	MI(P)-type $\text{Al}_{72}\text{Mn}_{20}\text{Si}_8$ , $\text{Al}_{84}\text{Cr}_{16}$ , $\text{Al}_{72}\text{V}_{20}\text{Si}_8$ , $\text{Al}_{8.8}\text{Fe}_{3.7}\text{Ce}$ , $\text{Al}_{40}\text{Mn}_{25}\text{Cu}_{10}\text{Ge}_{25}$ , $\text{Pd}_{60}\text{U}_{20}\text{Si}_{20}$
	MI(F)-type <u><math>\text{Al}_{65}\text{Cu}_{20}\text{TM}_{15}</math></u> (TM: Fe, Ru, Os), <u><math>\text{Al}_{70}\text{Pd}_{20}\text{TM}_{10}</math></u> (TM: Mn, Re)
Decagonal phase	<u><math>\text{Al}_4\text{Mn}</math></u> , <u><math>\text{Al-TM}</math></u> (TM: Fe, Pd, Os), <u><math>\text{Al-Cr-Si}</math></u> , <u><math>\text{Al}_{70}\text{Co}_{15}\text{Ni}_{15}</math></u> , <u><math>\text{Al}_{65}\text{Co}_{20}\text{Cu}_{15}</math></u> , <u><math>\text{Al}_{75}\text{Pd}_{15}\text{TM}_{10}</math></u> (TM: Fe, Ru, Os)
Dodecagonal phase	$\text{Cr}_{71}\text{Ni}_{29}$ , $\text{V}_3\text{Ni}_2$ , $\text{V}_{15}\text{Ni}_{10}\text{Si}$
Octagonal phase	$\text{Cr}_5\text{Ni}_3\text{Si}_2$ , $\text{V}_{15}\text{Ni}_{10}\text{Si}$

準結晶の基本格子が与えられても、準結晶の原子構造がきまったわけではない。それは、各格子点にのみ原子が存在するわけではなく、複数の単位胞中にいろいろな形で原子が配位するからである。これを原子による格子のデコレーションという。準結晶格子へのデコレーションのし方にはいろいろありうるので、次節で述べるように、同一の対称性をもつ準結晶も種類分けできることがわかっている。

## 2.2 準結晶合金の種類

Table 1 にこれまでに見出された準結晶の種類とおもな合金系を表示した。まず、準結晶は3次元準結晶と2次元準結晶に大別される。前者は、その基本格子が3次元ペンローズ格子である正20面体相(Icosahedral phase, 以下ではI相と略記する)のみであるが、その格子への原子のデコレーションのし方の違いによって、マックイ20面体型(MI型)と菱形30面体型(RT型)に分類され、MI型はさらに単純格子型(P型)と面心格子型(F型)に分けられる。これらの構造の違いについては準結晶に関する総合報告を参照されたい<sup>1)</sup>。後者の2次元準結晶は、ある面に平行な面では2次元の準結晶格子を形成するが、それと垂直な方向にはそれが周期的に積層した構造をもつ。2次元準結晶として正10角形相(Decagonal phase), 正12角形相(Dodecagonal phase), 正8角形相(Octagonal phase)の3種類が報告されているが、後2者については全体が単相の準結晶試料はまだ得られておらず、相として充分確立しているとは言いがたい。それに対して正10角形相(以下D相と略記する)は多数の合金系で確立しており、この相にもいくつかの型があることがわかっている。

表中で下線を付した合金は熱力学的な安定相であり、高温まで準結晶相が安定である。いずれの相もAl合金が中心であるが、MI型のI相とD相には必ずかなりの濃度の遷移金属を含み、融点は1000 K以上の高温であるのに対し、RT型のI相はほとんど単純金属のみから成り、融点は800 K程度と比較的低温である。安定

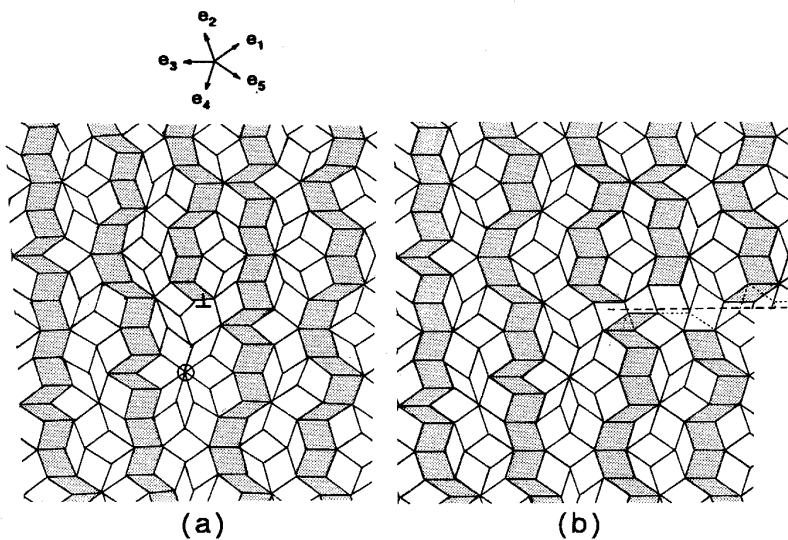


Fig. 4. (a) an example of dislocation in quasicrystalline lattice. (b) shows destruction of the lattice along the glide plane after gliding-off of the dislocation.

相の準結晶は高温で充分アニールできるため、一般に極めて良質の試料が得られる。

### 3. 準結晶中の転位と変形機構

準結晶中にも転位が存在する。Fig. 4 はペンローズ格子中のある原子面を途中まで抜き取ったのち、その部分をつき合わせて作った刃状転位である。ただし、その結果、その部分には元のペンローズ格子にはないパターンが生じている（例えば○印の格子点のまわり）。このような部分をフェイゾン（位相欠陥）とよび、準結晶特有の欠陥である。Fig. 4 の転位には原子面を抜き取った部分に多量のフェイゾンが形成されるので、この転位は準結晶格子にとっては部分転位なのである。準結晶格子の歪みには、射影法における多次元空間の格子歪みの内で、物理空間の歪み成分に対応するフォノン歪み（通常の結晶の歪みに対応する）成分と、補空間の歪みに対応するフェイゾン歪み成分が存在する。ここでは、塑性変形に関与するフォノン歪みおよびその伝播のみを問題にするので、フェイズンの存在を無視して議論する<sup>†</sup>。転位のフォノン歪み場を記述するバーガス・ベクトルは、結晶の場合と同様に、バーガス回路を用いて定義することができる。すなわち、転位のまわりの格子点をたどって一回りしたときの格子ベクトル（歪みのない格子で定義されたもの）の総和がバーガス・ベクトルである。Fig. 4 の格子ベクトルは図の上に示した  $e_1$  から  $e_5$  の 5 本存在するが、一回りするバーガス回路に対して

$$b = \sum_{i=1}^5 n_i e_i \dots \dots \dots (1)$$

がバーガス・ベクトルを与える。  $n_i$  はバーガス回路

<sup>†</sup> フェイゾンを含まない完全転位は、例えば転位を含む多次元超空間の結晶格子からの射影法で作ることができる。準結晶中の転位の幾何学の詳細については文献 2) を参照されたい。

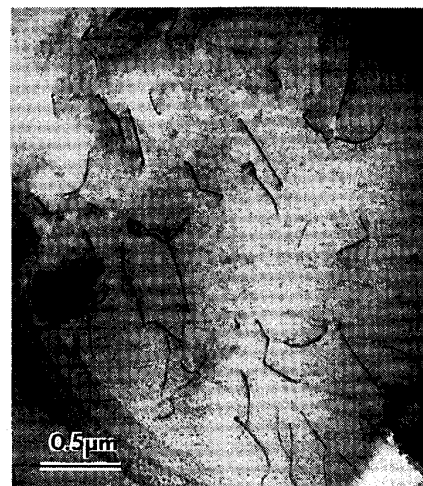


Photo. 1. Electron micrograph showing dislocations in Al-Ru-Cu I-phase.

に含まれる  $e_i$  の本数である。

このように、準結晶中にも結晶転位と同様の長距離の歪み場を伴った転位が存在する。準結晶も結晶と同様に電子顕微鏡像に回折コントラストが生じるので、転位線の存在は結晶転位と全く同様に電子顕微鏡で観察することができる<sup>3)</sup>。Photo. 1 は準結晶中の転位の電子顕微鏡像の例である。

準結晶中の転位が結晶転位と同様に長距離の歪み場をもつことから、試料に応力が加わると転位に力が作用する。かくして、準結晶の塑性変形は転位の移動で生じることがわかる。

しかし、結晶の場合と本質的に異なるのは、準結晶は結晶のように並進周期性がないので、転位のすべり運動に対して格子構造が保存されないことである。Fig. 4 (b) は、転位が右に移動したのちにはすべり面にそって格子が破壊されてしまう様子を示している。しかし、図

中に点線で示すように、すべった後に格子の組み替えが起これば単位胞充填構造を修復することが可能である。すなわち、原子拡散が生じる高温では準結晶中の転位も準結晶格子を破壊せずにすべり運動することが可能であるが、低温ではすべり面にそって格子を破壊するほど大きな力が転位に作用しないかぎりすべることができないのである。このことが、準結晶が硬くてもろい理由である。なお、結晶のマルテンサイト変態のような非拡散型の格子変態も準結晶では起こり得ない。

#### 4. 準結晶の機械的性質

##### 4.1 概要

上で述べたように、原子拡散を伴わないかぎり準結晶格子を保存する変形機構は存在しないので、当然、準結晶試料はきわめてもろい。準結晶が発見された当初は、液体急冷法によるリボン状の薄い試料しか得られなかったために、アモルファス金属と対比されて、特にそのもろさが強調される傾向があった。しかし、その後安定相準結晶がバルクの試料として得られるようになると、イオン結晶や半導体結晶のようにはもろくないということも認識されるようになった。

結晶であっても、シグマ相やある種のラーベス相のような複雑な結晶構造の金属間化合物では、転位が存在してもパイエルス・ポテンシャルが大きすぎて実際上ほとんど不動である。このような点では準結晶中の転位と同じであり、密な原子充填という点からもこれらの金属間化合物は準結晶と類似しており、準結晶の機械的性質も基本的には硬くてもろい金属間化合物と類似していると考えることができる。

じん性にはへき開性が問題になる。元来、密な充填の金属結晶では、構造の異方性が大きくないかぎりへき開性が悪い。I相のように極めて構造の対称性の高い準結晶には特に明確なへき開面は存在しない。Photo. 2は電子顕微鏡内の引張実験で観察されたI相準結晶のクラックの例であるが<sup>4)</sup>、各粒内をほとんどまっすぐに破面が進行しており、特定の面にそって割れるという傾向が見られない<sup>12)</sup>。D相のように異方的な準結晶の場合にも、明瞭なへき開面は存在しない。それは、局所的な原子充填という点から見るとD相も異方性の大きくない構造であることによっている。このように、準結晶はへき開性が良くないために、イオン結晶のようにはもろくない。じん性という観点からはセラミックス材料に近い感じである。

##### 4.2 硬さ

準結晶のビッカース硬さの測定結果をTable 2に示す。超ジュラルミンのビッカース硬さが150程度であることを考えると、Al合金としては準結晶は極めて硬

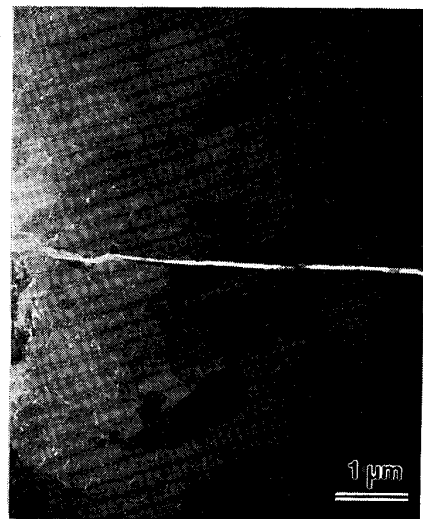


Photo. 2. A crack formed in a foil specimen of polycrystalline Al-Si-Mn I-phase by stretching the sample in an electron microscope.

Table 2. Vickers hardness number for various samples.

Sample	$H_V$	Ref. No.
Single- $Al_{57}Li_{32}Cu_{11}$ I-phase	520	6
Poly- $Al_{56}Li_{32}Cu_{12}$ R-phase	490	6
Poly- $Al_{70}Pd_{15}Mn_{15}$ I-phase	950	6
Single- $Al_7Pd_2Mn$ I-phase (2fold)	800	5
Single- $Al_7Pd_2Mn$ I-phase (3fold)	900	5
Single- $Al_7Pd_2Mn$ I-phase (5fold)	850	5
Poly- $Al_{68}Ru_{17}Cu_{15}$ I-phase	1070	6
Single- $Al_{70}Co_{15}Ni_{15}$ D-phase (Basal)	895	6
Single- $Al_{70}Co_{15}Ni_{15}$ D-phase (Prism)	960	6

い材料である。ちなみに、ビッカース硬さ1000という値はFe系アモルファス合金の硬さに相当する。しかし、この表の中のAl-Li-Cu R相という結晶の硬さも準結晶に近い値を示している。R相はフランク・カスパー相の1種で、Al-Li-Cu I相と組成が近く、このI相の近似結晶と見なせる金属間化合物である。準結晶の硬さはその近似結晶の硬さと同程度であるといえる。

Al-Ru-CuなどのMI型I相の硬さが約1000であるのに対し、RT型のAl-Li-Cu I相の硬さはその約1/2である。前者のグループが遷移金属を含み高融点であるのに対し、単純金属からなる後者は低融点であり、弾性的にも前者の方が硬いことが知られている。高圧実験から求められた圧縮率の値はAl-Ru-Cu I相で150 GPa、Al-Li-Cu I相で70 GPaである<sup>7)</sup>ことを考慮すると、弾性率で規格化した準結晶の硬さの値は、アモルファス金属の場合と同様に、ほぼ共通した値をもつ可能性が高い。ヤング率で規格化した硬さ $H_V/E$ の値はほぼ5%であると見なされ、アモルファス金属の場合の約6%という値<sup>8)</sup>に近い値である。

最近、 $Al_7Pd_2Mn$ 単準結晶について高温硬さの測定も

<sup>12)</sup> 最近の $Al_7Pd_2Mn$ 単準結晶に関する実験では、2回対称面にそって割れやすいという報告もある<sup>9)</sup>。

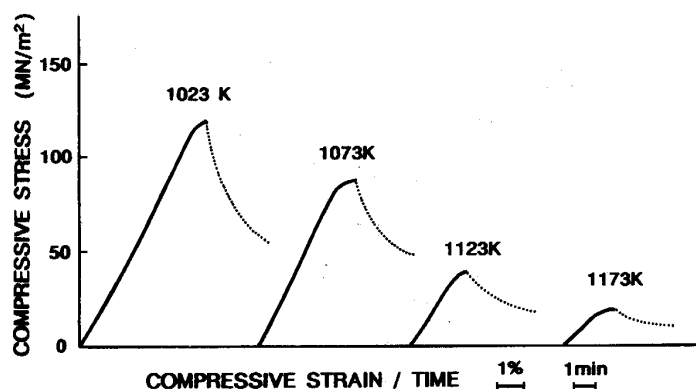


Fig. 5. Stress-strain curves of polycrystalline Al-Ru-Cu I-phase at various temperatures. Dotted curves show stress-relaxation curves after the yielding.

行われており、硬さは 700 K ぐらいまでは徐々に減少するが、それ以上の温度ではかなり急激に減少することが報告されている<sup>5)</sup>。

#### 4.3 変形応力

安定相 I 相の Al-Ru-Cu<sup>9)</sup> および Al-Pd-Mn<sup>10)</sup> の多結晶体について高温の圧縮実験が行われている。いずれも 900 K 以下の温度ではほとんど塑性変形を起こすことなく 500 MN/m<sup>2</sup> 程度の圧縮応力で破壊するが、900 K を超える温度では降伏を起こして塑性変形する。しかし、降伏後の応力増加が大きく、かなりの高温でも大きな圧縮歪みを生じることなく破壊する。試料が縦割れを起こすことも多く、3 軸応力の影響が大きいことを示している。ただし、融点近くの高温では定常的な変形状態が実現し、数 10% の圧縮歪みが得られる。

降伏後にクロスヘッドを停止させて応力緩和実験を行った例を Fig. 5 に示す。図の点線部分が応力緩和曲線であり、大きな緩和を示すことがわかる。すなわち、試料がかなり粘性的な流動を起こしていることを意味している。降伏応力の値を温度に対してプロットしたのが Fig. 6 である。データのばらつきが大きいのは、塑性変形にクラックの発生を伴うことに原因があるようである。

結晶の塑性歪み速度はアレニウス型の式で表されることが知られている。アレニウスの速度式の中の活性化エンタルピーや、その応力微分で定義される活性化体積の値は、変形応力の温度依存性と歪み速度依存性(応力緩和実験からも得られる)の実験結果を基にして求めることができる。結晶の塑性変形の場合には、アレニウスの式の前置因子(Pre-exponential factor)の値は、 $10^{-3} \sim 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  の歪み速度に対して  $10^6 \sim 10^{10} \text{ s}^{-1}$  の範囲である。しかし、Fig. 5 と Fig. 6 の結果を基に得られる前置因子の値は  $10^{30} \text{ s}^{-1}$  という大きな値になり、準結晶の変形を結晶のすべり過程と同様に解釈することを困難にしている<sup>9)</sup>。また、多結晶体準結晶の高温変形が転位のすべり運動によるかどうかとも実験的に確認されておらず、Fig. 6 のように実験データ自体の精度も悪いので、今後変形機構を解明するためには、単準結晶試料を用いた信頼性の高

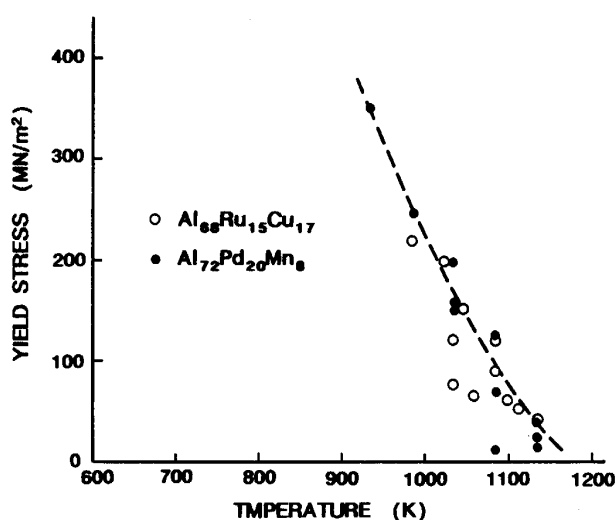


Fig. 6. Yield stresses plotted against temperature for two polycrystalline I-phase alloys of Al<sub>68</sub>Ru<sub>15</sub>Cu<sub>17</sub> and Al<sub>72</sub>Pd<sub>20</sub>Mn<sub>8</sub>.

い実験データと、変形過程のミクロな観察が必要である。

#### 4.4 その他

準結晶は室温では極めてもろいので、容易に微粉末を得ることができる。Al-Pd-Mn I 相を乳鉢で約 1 時間粉砕すると、Photo. 3 に見られるように、 $0.1 \mu\text{m}$  程度の不定形の微粉末になる<sup>11)</sup>。このような微粒子になっても正 20 面体相の構造が保たれるだけでなく、格子像観察の結果、完全性の高い準結晶であることが確認されている。

準結晶の硬い性質を利用して、準結晶微粒子を Al のマトリックス中に分散させた複合材料の開発が考えられる。そのような試みはすでに蔡らによって報告されている<sup>12)</sup>。

準結晶の弾性的な性質については、良質のバルク試料が得にくいこともあって、まだあまり実験が行われていない。その中で、小泉らは Al-Li-Cu I 相の単準結晶を用いて超音波実験を行い、低温において顕著な弾性異常を観測している<sup>13)</sup>。Fig. 7 に音速の温度依存性の結果を示す。元来、破線のように極低温で一定値に近づくの

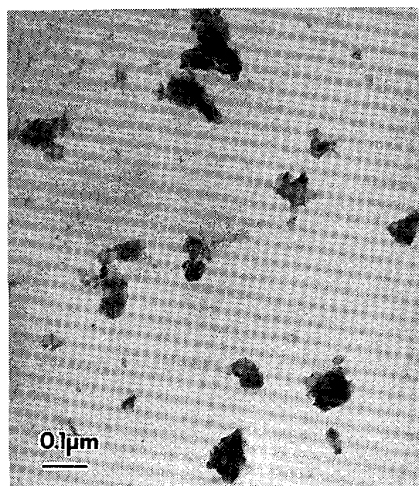


Photo. 3. Electron micrograph showing fine particles of Al-Pd-Mn I-phase produced by grinding bulk sample in a mortar.

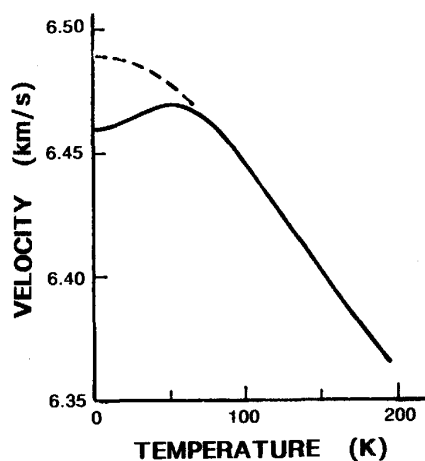


Fig. 7. Temperature dependence of longitudinal ultrasonic velocity in single-grained  $\text{Al}_6\text{Li}_4\text{Cu}$  I-phase.

が結晶の正常な挙動であるが、実験結果は 50 K 付近でピークを示したのちそれより低温で減少する。すなわち、試料の弾性が極低温で軟化することを示している。このような弾性異常は、応力下で生じる局所構造変化による応力緩和現象が原因と考えられ、温度範囲はずっと低い領域であるが、アモルファス物質では広く観察される現象である。アモルファス物質の場合は 2 準位系 (Two-level system) とよばれる欠陥の存在を仮定して説明されている<sup>14)</sup>。2 準位系は小さなポテンシャル障壁をはさんで 2 つの安定状態が存在する系で、応力によ

てそれらの状態間の遷移が生じて歪みに寄与する。それが弾性異常の原因と考えられている。Fig. 7 の結果も 2 準位系の存在を仮定することによって説明されているが、その実態は全く不明である。

## 5. おわりに

準結晶についてこれまで行われて来た機械的性質の概要について述べた。質の良い安定相としての準結晶が開発されてからまだ数年を経たばかりであり、機械的性質に限らず準結晶の基礎物性に関する本格的な研究はまだこれからという段階である。特に機械的性質の研究には大きなサイズの試料が多数必要なので、破壊じん性などに関する信頼性の高い実験データを得ることはなかなか困難である。しかし、最近では数 cm に及ぶ大きな単準結晶も作成できるようになったので<sup>15)</sup>、これから機械的性質についても急速に理解が進むものと期待される。

## 文 献

- 1) 特集“準結晶研究の発展”: 日本金属学会報, **29** (1990), p. 777
- 2) J. E. S. Socolar, T. C. Lubensky and P. J. Steinhardt: *Phys. Rev. B*, **34** (1986), p. 3345
- 3) 電子顕微鏡によって準結晶中の転位を観察した例として, K. Hiraga and M. Hirabayashi: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **26** (1987), p. L155  
Z. Zhang and K. Urban: *Philos. Mag.*, **60** (1989), p. 97
- 4) K. Suzuki, M. Ichihara, K. Kimura, S. Takeuchi and H. Ino: *Metallic and Semiconducting Glasses*, ed. by A. K. Bhatnagar (1987), p. 237 [Trans Tech Pub.]
- 5) 横山嘉彦, 蔡 安邦, 井上明久, 増本 健: 日本金属学会 1992 年春期大会講演概要 (1992), p. 223
- 6) S. Takeuchi, H. Iwanaga and T. Shibuya: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **30** (1991), p. 561
- 7) Y. Akahama, Y. Mori, M. Kobayashi, H. Kawamura, K. Kimura and S. Takeuchi: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **60** (1991), p. 1988
- 8) S. Takeuchi and K. Maeda: *Metallic and Semiconducting Glasses*, ed. by A. K. Bhatnagar (1987), p. 749 [Trans Tech Pub.]
- 9) T. Shibuya, T. Hashimoto and S. Takeuchi: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **29** (1990), p. L349
- 10) T. Hashimoto and S. Takeuchi: 未発表
- 11) M. Ichihara, K. Edagawa and S. Takeuchi: 未発表
- 12) 蔡 安邦, 金 星圭, 井上明久, 増本 健: 日本金属学会 1992 年春期大会講演概要 (1992), p. 222
- 13) H. Koizumi, T. Suzuki, K. Kimura and S. Takeuchi: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **60** (1991), p. 1173
- 14) S. Hunklinger and W. Arnold: *Physical Acoustics*, Vol. XII, ed. by W. P. Mason and R. N. Thurston (1976), p. 155 [Academic Press]
- 15) Y. Yokoyama, T. Miura, A. P. Tsai, A. Inoue and T. Masumoto: *Mater. Trans. JIM*, **33** (1992), p. 97