

超高圧電子顕微鏡を用いた転位セル形成初期における転位の3次元構造解析

研究代表者 鹿児島大学大学院理工学研究科機械工学専攻 助教 定松 直

1. 緒言

現代において、構造用材料として多量に使用されている「鉄鋼材料」の更なる高機能化・高張力化・高延性化は構造物やプラント、自動車等の輸送機器の安全性・信頼性向上、省エネルギー化において不可欠である。そのためには結晶性材料の力学的特性発現のメカニズムを根本から理解する必要がある。昨今の日本に於いて、様々なプロジェクトが走り、活発な研究・開発がなされている。しかし、現在において多結晶材料の力学特性を精度よく予測し開発につなげるような手法は確立されていない。その原因の一端は結晶の強度を議論するための基礎的研究の不足にある。鉄鋼材料を含めた結晶性材料の力学特性の予測を困難にしている要因は多結晶材料の微視的構造の階層性にある。結晶性材料の力学的性質はマルチスケールな階層構造に依存する。例えば、ミリオオーダーレベルでいえば試験片形状、マイクロオーダーでは結晶粒系や結晶方位、メゾスケールオーダーでは転位の運動・増殖過程、ナノオーダーでは添加元素の拡散などである。これらを連続的につなげることが力学的性質予測のためには不可欠であるが、これら異なるスケール間をつなぐような理論は存在していないばかりか、各スケールにおいてマクロな力学特性に影響を与えている因子は何か？という比較的単純な問題に関しても未知な領域が多い。

結晶性材料の塑性変形は転位の運動が支配する現象である。したがって、転位の運動を予測することができなければ、塑性変形を真に理解したとは言えない。転位がすべり運動をすることで、転位が通過したすべり面領域にはその転位のバーガースベクトル分の変位が生まれる。また、転位は塑性変形の進行と共に増殖し、密度が増加する。この転位の増加が転位の運動障害となり、加工硬化が発現する。つまり、転位の運動を予測するためには、運動障害となる転位の増殖過程の解明が必要である。転位の増殖過程予測を困難にしている要因として、転位はその増殖に伴ってランダムに増加するのではなく、このスケールでも転位セルと呼ばれる微細構造を形成しながら増殖していくということが挙げられる。この転位セルの形成過程はこれまで、FCC結晶において、種々の研究者が提唱してきたモデルがある。例えば、Seeger¹⁾はローマーコットレルの不動転位に集積したらせん転位が交差迂りを起こし、逆符号のバーガースベクトルを持つ転位と反応して消滅する。その際に交差迂り面に形成された刃状転位対が小傾角粒界を形成し、これがセル壁になるというモデルを考えた。一方で、Hirsh^{2),3)}は強加工したアルミニウム中の転位観察を行い、セル壁内部の転位を直接観察した。そこで、転位が網目状のネットワーク構造をとっていることから、転位セルは転位がエネルギー的に安定配列した結果、形成されたと考えた。また、Kuhlmann

は 2 つの転位セル形成モデルを提唱している。1 つは転位と点欠陥の相互作用によって転位セルが形成されると予想した。これは主すべり面上の転位が空孔と相互作用し、スーパージョグやプリズマティックループを形成し、動きにくくなり、フランクリード源として活動する。その相互作用は点欠陥密度が低くなるまで続き、セル壁はこのとき形成されるとした⁴⁾。もう 1 つは、平行な主すべり面上にある、異なったバーガースベクトルを持つ 2 つの転位が拡張する過程において、一部で交差迂りを起こし、互いに他のすべり面に移動し、合体することで、六角形状のネットワークが出来、このとき交差迂り面上の刃状転位により傾角粒界が形成されるという Seeger のモデルを拡張したようなモデルである⁵⁾。

このように FCC 構造を有する結晶においては、転位直接観察により、転位セルの形成モデルが提唱されてきたが、BCC 構造を有する結晶、とりわけ、鉄鋼材料において転位を直接観察し、転位セルの形成モデルを提唱した例はかなり少ない。この理由は大きく 3 つある。第一に、フェライト系鉄鋼材料は磁性があり、そもそも転位の観察が困難であること。第二に、FCC 結晶は、すべり面が $\{111\}$ の 4 面、すべり方向（バーガースベクトル）が $a/2\langle 110 \rangle$ の 6 方向、その組み合わせで 12 個のすべり系しかないのに対し、BCC 結晶はすべり面として提唱されている面が $\{110\}$ 、 $\{112\}$ 、 $\{123\}$ と多数あり、48 個のすべり系が存在し、らせん転位が容易に交差迂りを起こしてそのすべり面が変化すること。第三に、転位はマイクロメートルオーダーのスケールを持つ格子欠陥であるため、従来の電子顕微鏡では観察できる膜厚が非常に薄く、その全体像を捉えることが難しいということである。

そこで、本研究では、第三の問題について、我々のグループで確立した超高压電子顕微鏡法と電子エネルギー損失分光法を組み合わせた厚膜試料中の転位観察手法⁶⁾を用いて克服を試みる。また、第二の問題は転位の 3 次元観察を行うことで解決し、第一の問題は 3 次元観察中の種々の調整を全手動で行うことで克服することを試みた。それにより、BCC 構造金属の代表として純鉄を採用し、引張変形に伴い発達する転位組織について、そのすべり面とすべり方向を決定することを第一の目的とし、第二の目的を、その結果より、転位セルの形成過程初期段階をモデル化することとした。

2. 実験方法

2-1. TEM 試料作成方法

本研究では、供試材として、よく焼鈍された純度 99.99% の工業用純鉄を用いた。バルク板より、図 1 に示す寸法で、放電加工機を用いて、小型の引張試験片を作成した。この試験片平行部にひずみ測定のための圧痕を 2mm 間隔で付与した。この試験片を小型の引張試験機（島津製 EZ-S）を用いて、種々のひずみに達するまで引張試験を行った。その後、圧痕の間隔により、平行部の各位置でのひずみを算出した。さらに平行部を TEM サンプル作成用のディスクパンチを用いて、 $\phi 3\text{mm}$ に打ち抜いた。

打ち抜き後の試料について、エメリー紙を用いた湿式研磨，アルミナ粉を用いたバフ研磨により， $70\ \mu\text{m}$ ～ $100\ \mu\text{m}$ の厚さになるよう研磨を行った。

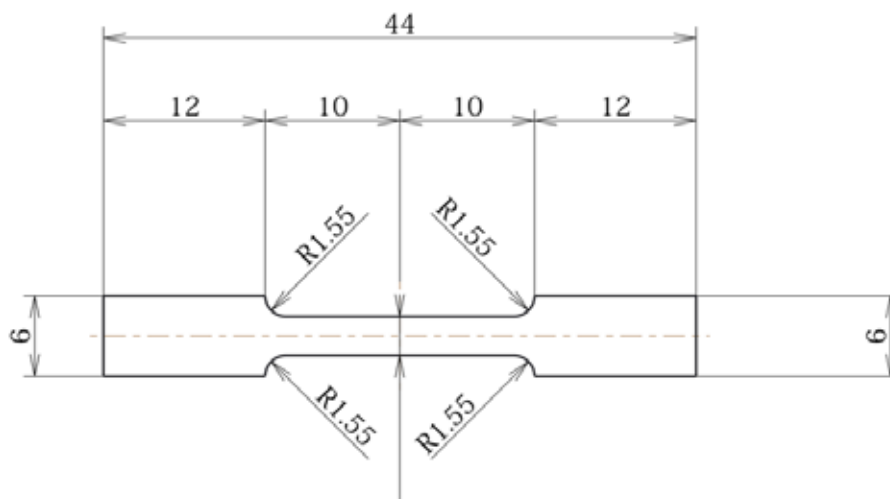


図1 引張試験片寸法

最終仕上げとして，ツイングレット電解研磨装置（Fischione 社製 Model 120）を用いて，電解研磨を行い，最終 TEM サンプルとした．電解液は 10% 酢酸エタノール液を用いた．

2-2. 超高压電子顕微鏡観察

2-1 で作成した TEM 試料を九州大学超顕微研究解析センター所有の超高压電子顕微鏡，JEM-1300NEF を用いて観察を行った．観察時の加速電圧は 1250kV とした．すべり面決定のために，試料を TEM 内で傾斜させ，数度毎に撮像を行う，連続傾斜観察を行った．さらに，転位のバーガースベクトル決定のため，消滅実験を行った．その結果より，観察した転位の性格決定を行った．

3. 結果および考察

3-1. 付与ひずみと転位セル組織発達過程の関係

はじめに，種々のひずみを付与した試料中の転位組織の 2 次元観察を行い，付与したひずみと転位セル組織の発達過程の関係性について調査を行った．

図 2 に，付与ひずみが 0%，2%，5%，10%における転位組織の観察例を示す．いずれも明視野である．変形を与えていない 0%については転位密度が非常に低く，それぞれの転位の絡まり合いも少ないが，2%変形ではすでに転位密度の高い領域と転位密度の低い領域に分かれており，転位セルの形成が始まっていることがわかる．さらに，5%，10%のひずみが大きくなるに伴って，転位セルが発達し，非常に分厚いセル

壁を構成していることがわかる。5%と10%では転位セルの大きさに明確な差異が見られないことから、5%ひずみ程度で転位セルの大きさは飽和することが予想される。

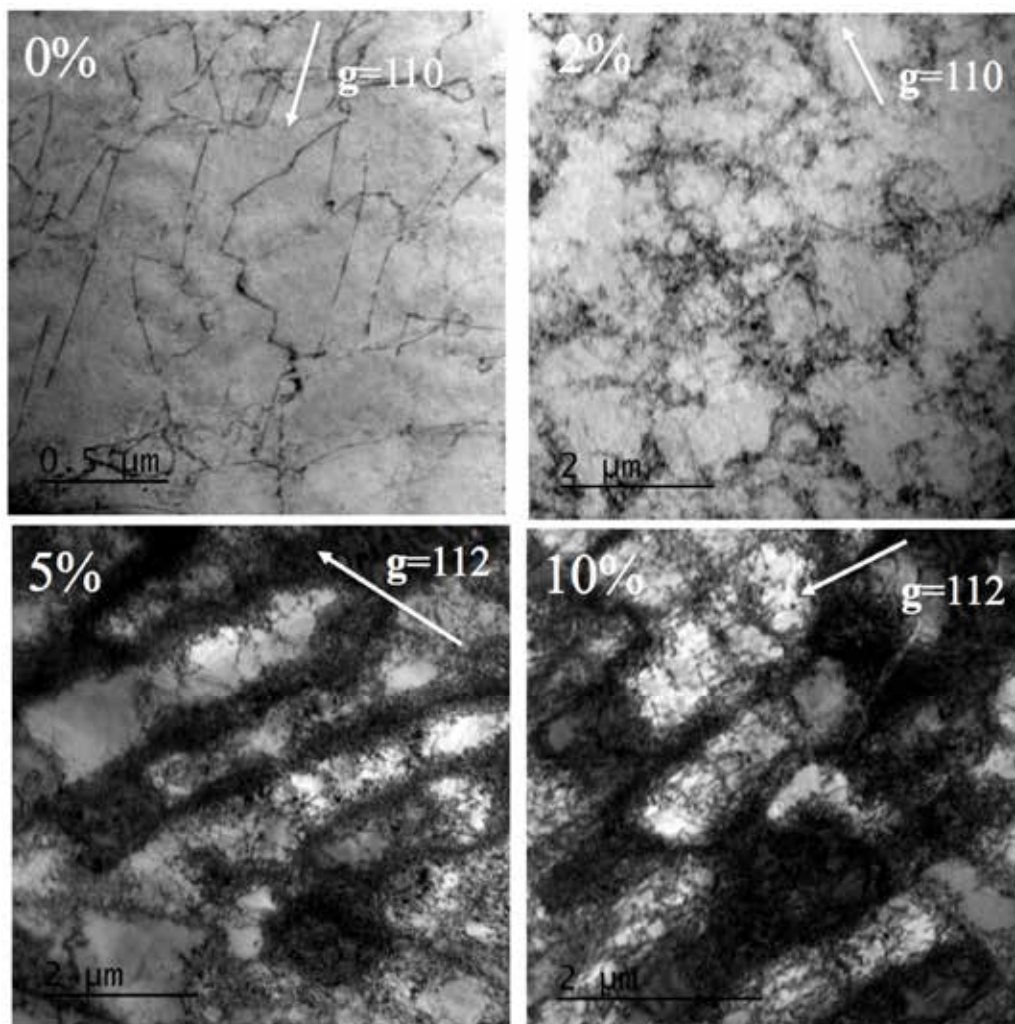


図2 引張変形に伴う純鉄中転位セルの発達過程

Kehらは数百 ppm の炭素を含む純鉄において、付与ひずみと転位セルの大きさについて調査を行った⁶⁾。その結果、転位セルは塑性ひずみが5%程度より顕著に発達し、10%変形に至る頃にはセルの大きさが1μm程度で飽和するという結果を導いた。本研究においても、同様に5%程度から転位セルが発達しはじめ、その後飽和するという点で結果は一致した。しかし、転位セルのサイズを測定したところ、本研究ではその平均値は0.5μmとなった。この原因は、超高圧電子顕微鏡を用いて厚い試料を観察しているため、転位セル壁が試料に対して傾斜した状態で存在する場合、非常に厚く観察されてしまうため、実際の転位セルサイズよりも小さく見積もってしまったものと考えられる。

本節の結果より、三次元観察を行うひずみ値を転位セル形成が始まる2%前後と定

めた。

3-2. 2%ひずみを付与した試料中転位組織の3次元観察結果

本節では、2%変形させた試料中の転位構造解析の結果について述べる。まず、図3に、本試料の低倍率での明視野像を示す。

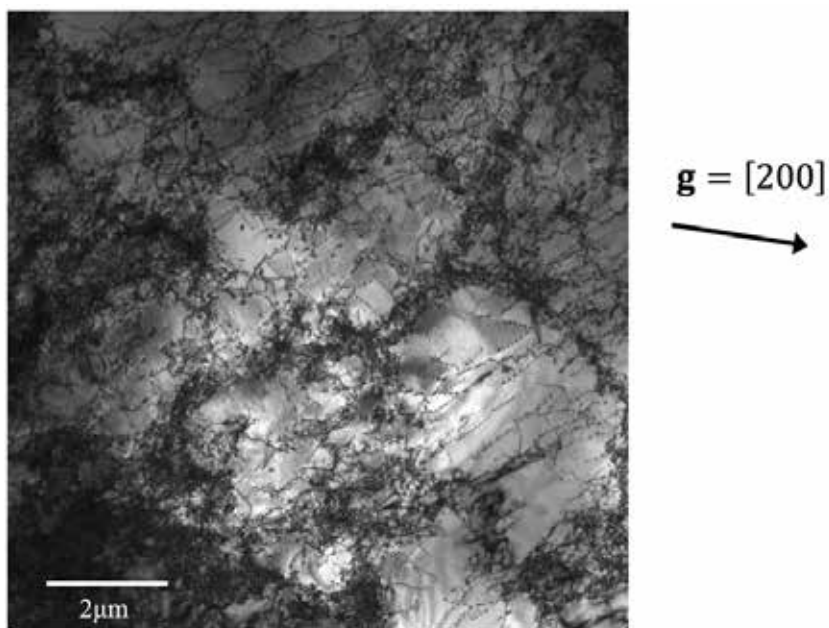


図3 2%ひずみを与えた試料の広域観察像

この結果より、前節で述べた通り、このひずみ量において、転位密度の高い領域と低い領域に分かれており、転位セルの形成が始まっていることがわかる。図2における2%のものよりも転位密度が高く見えるが、これは試料膜厚がさらに厚いこと、反射ベクトルを $\mathbf{g}=[200]$ としていることで、より多くの転位が視野内に観察されているためである。この試料において、転位セル壁となるであろう、転位が密集している部分を拡大し、連続傾斜観察を行った。解析領域の明視野像を図4に示す。

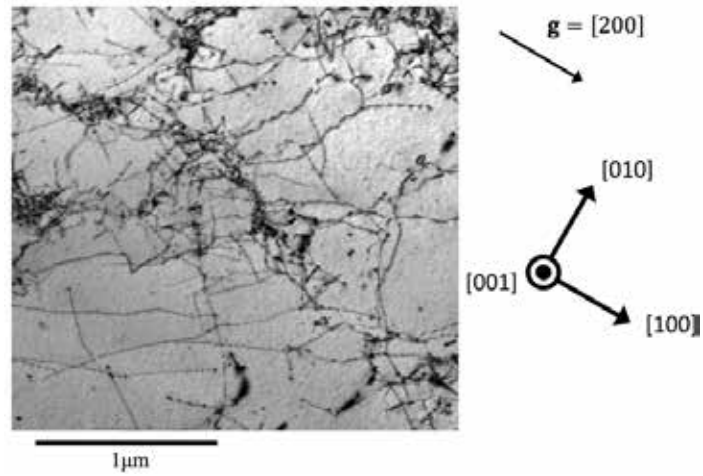


図 4 解析領域の明視野像

さらに、この領域について、連続傾斜観察を行った。その結果の一部を図 5 に示す。連続傾斜観察は±41 度の範囲で試料を TEM 内で傾斜し、約 2 度毎に撮像を行った。

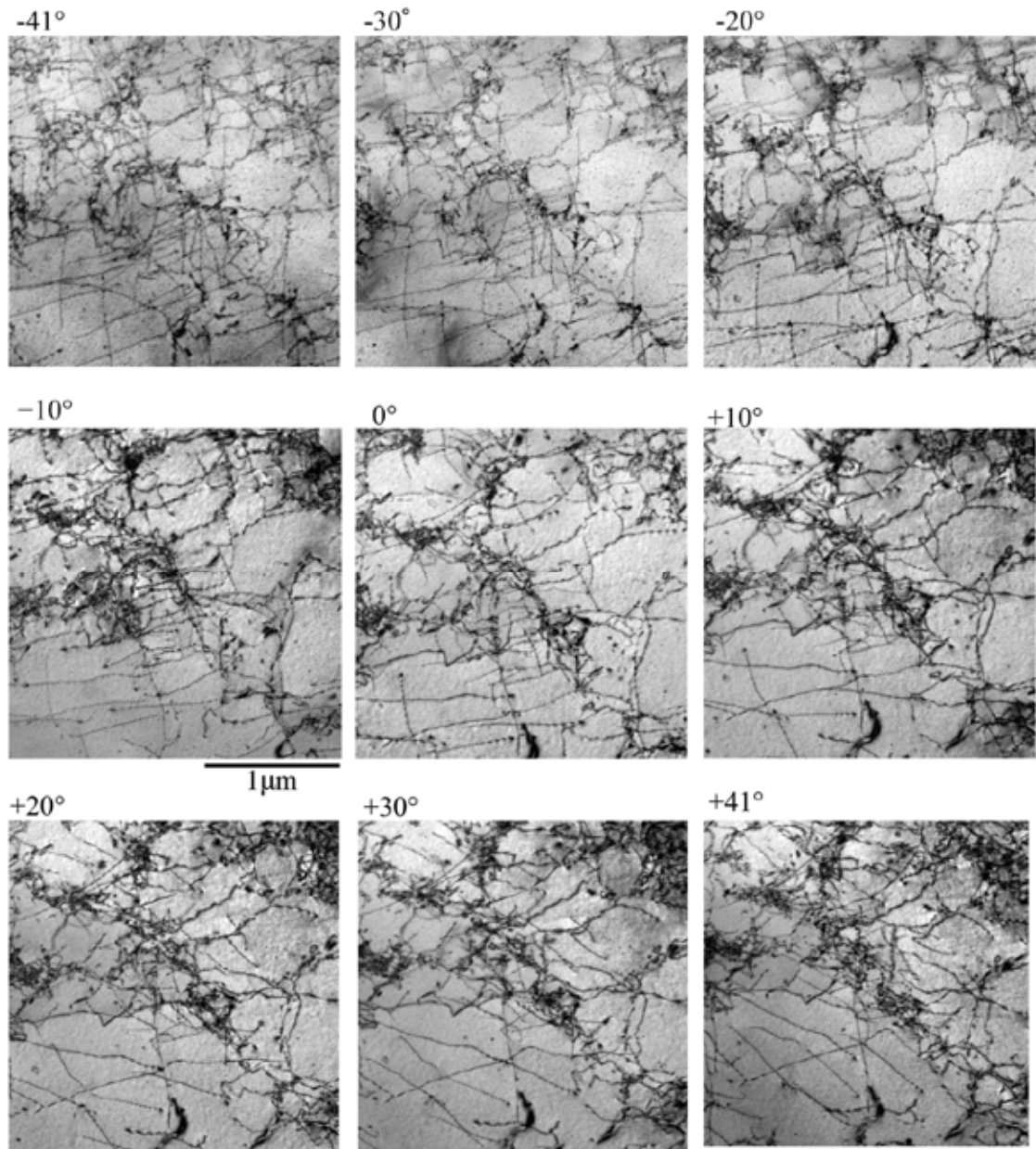


図 5 連続傾斜観察のスナップショット

3次元観察を行うことで、2次元観察では不可能な転位の奥行き方向の分布、構造を知ることができる。この結果より、すべり面の決定を行った。

さらに、バーガースベクトルを決定するために行った、消滅実験の結果について述べる。消滅実験の結果を図 6 に示す。消滅実験は転位の持つバーガースベクトル \mathbf{b} と観察で励起する反射ベクトル \mathbf{g} とが直交するとき、転位のコントラストが消失、あるいは薄くなる現象を利用してバーガースベクトルを決定するという手法である。

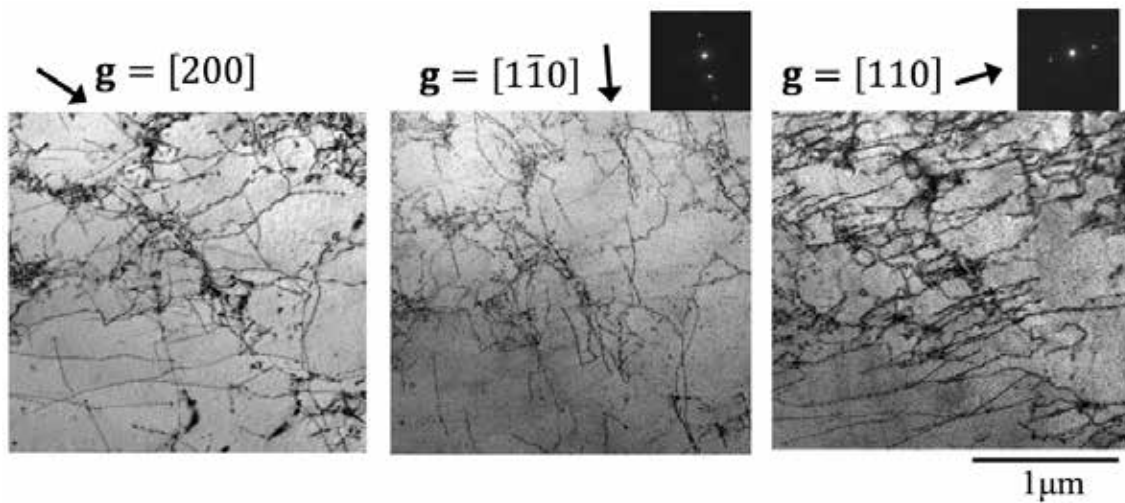


図6 消滅実験結果

図6では $\mathbf{g}=[200]$, $\mathbf{g}=[1\bar{1}0]$, $\mathbf{g}=[110]$ の3つの反射ベクトルにおける明視野像を示している. BCC 構造における可動転位のバーガースベクトルは, $\mathbf{b}=\frac{a}{2}[111]$, $\mathbf{b}=\frac{a}{2}[1\bar{1}1]$, $\mathbf{b}=\frac{a}{2}[\bar{1}11]$, $\mathbf{b}=\frac{a}{2}[11\bar{1}]$ の4つである. 従って, $\mathbf{g}=[200]$ の場合はこれらすべての \mathbf{b} を持つ転位を観察することができる. 反射ベクトルが $\mathbf{g}=[1\bar{1}0]$ の場合は, この \mathbf{g} に垂直なバーガースベクトル $\mathbf{b}=\frac{a}{2}[111]$, $\mathbf{b}=\frac{a}{2}[11\bar{1}]$ を持つ転位が観察されず, $\mathbf{g}=[110]$ の場合には, $\mathbf{b}=\frac{a}{2}[1\bar{1}1]$, $\mathbf{b}=\frac{a}{2}[\bar{1}11]$ の転位が観察されない.

3-3. 転位の構造解析結果

3-2 において示した結果を基に, 転位の構造解析を行った. すべり面, バーガースベクトル, それぞれを色分けして図7, 図8に示す.

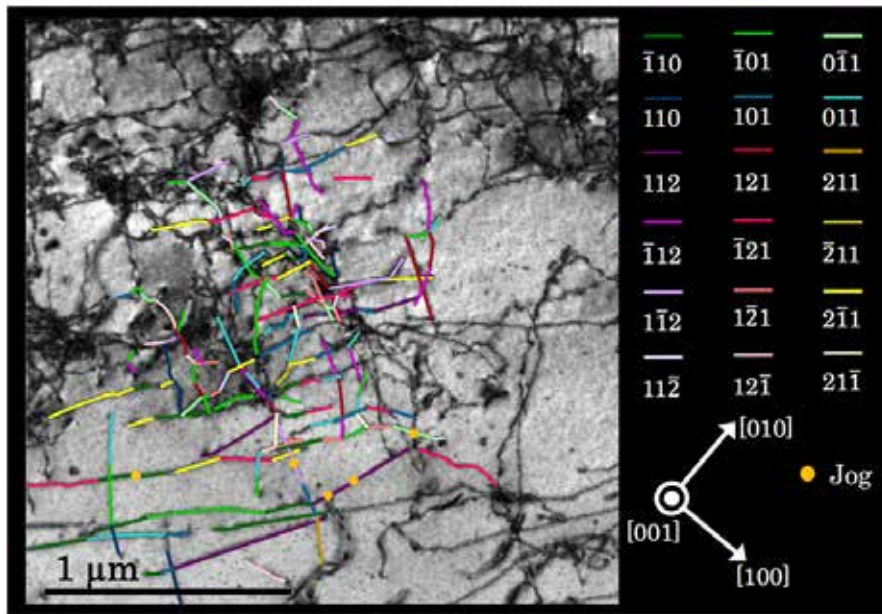


図7 すべり面解析結果

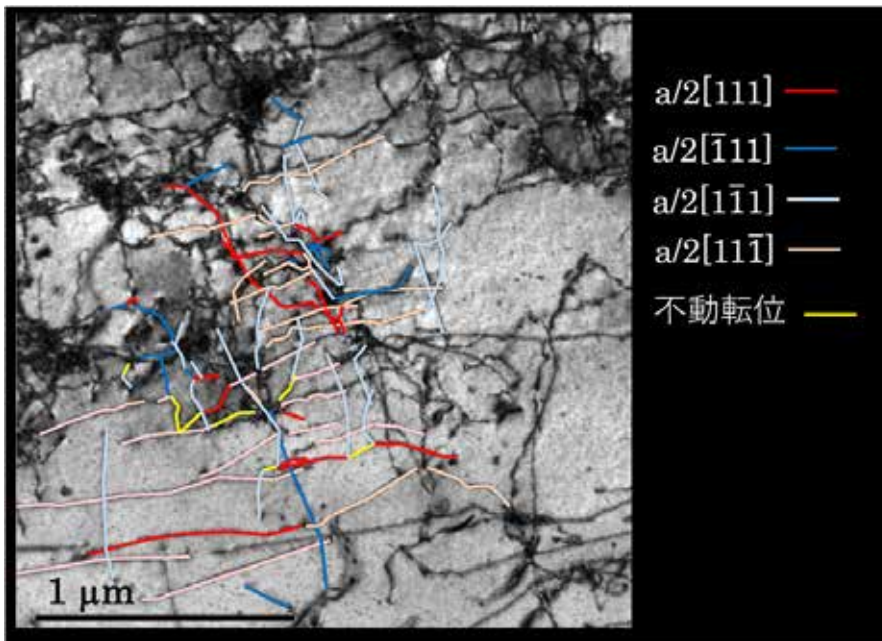


図8 バーガースベクトル解析結果

図7にはすべり面の解析結果を示しており、すべり面毎に色分けされている。この結果より、一本の転位線でも複数のすべり面にまたがって存在している様子がみてとれ、純鉄中の転位は複雑な交差起りを起こしながら運動しているということが分かる。図8はバーガースベクトルの解析結果であるが、視野に対して上下方向に伸びる転位は、 $\mathbf{b}=\mathbf{a}/2[1\bar{1}1]$, $\mathbf{b}=\mathbf{a}/2[\bar{1}11]$ の転位であり、左右に伸びる転位は $\mathbf{b}=\mathbf{a}/2[11\bar{1}]$, $\mathbf{b}=\mathbf{a}/2[111]$

を持つ転位である傾向にあるように見える。この理由については次節で述べる。また、複雑に転位が絡み合っているため、転位反応も頻繁に起きているかと予想されたが、転位反応を起こしている箇所は少なく、図 8 において解析した範囲では黄色の線で示した部分のみが転位反応を起こして不動転位化していることが分かった。BCC 結晶における、転位反応による不動転位形成は例えば、 $a/2[\bar{1}11] + a/2[\bar{1}\bar{1}\bar{1}] = -a[100]$ のようにして起こる。今回の解析では転位密集部分の解析が困難で未だ解析が追いついていない状況であるため、不動転位の密度はさらに上昇する可能性はある。

3-4. 転位セル壁を形成する転位の特徴とセル形成機構

今回、観察、解析した転位構造から、転位セル壁を構成する転位の性格について考察を行う。

転位はバーガスベクトルと転位線のなす方向により刃状転位、混合転位、らせん転位に分類される。刃状転位は転位線とバーガスベクトルのなす角度が 90 度、らせん転位は 0 度、混合転位はそれ以外である。混合転位の中でも転位線とバーガスベクトルのなす角度が 0 度に近いものはらせん成分の多い転位、なす角度 45 度でらせん成分と刃状成分が同一であり、なす角度が 90 度に近いものは刃状成分が多いものとなる。今回の観察では 3 次元観察を行っているため、転位線の方角を正確に把握することができ、解析した転位の性格を精度良く求めることができる。図 9 に転位線とバーガスベクトルのなす角度を 10 度毎に色分けした図を示す。

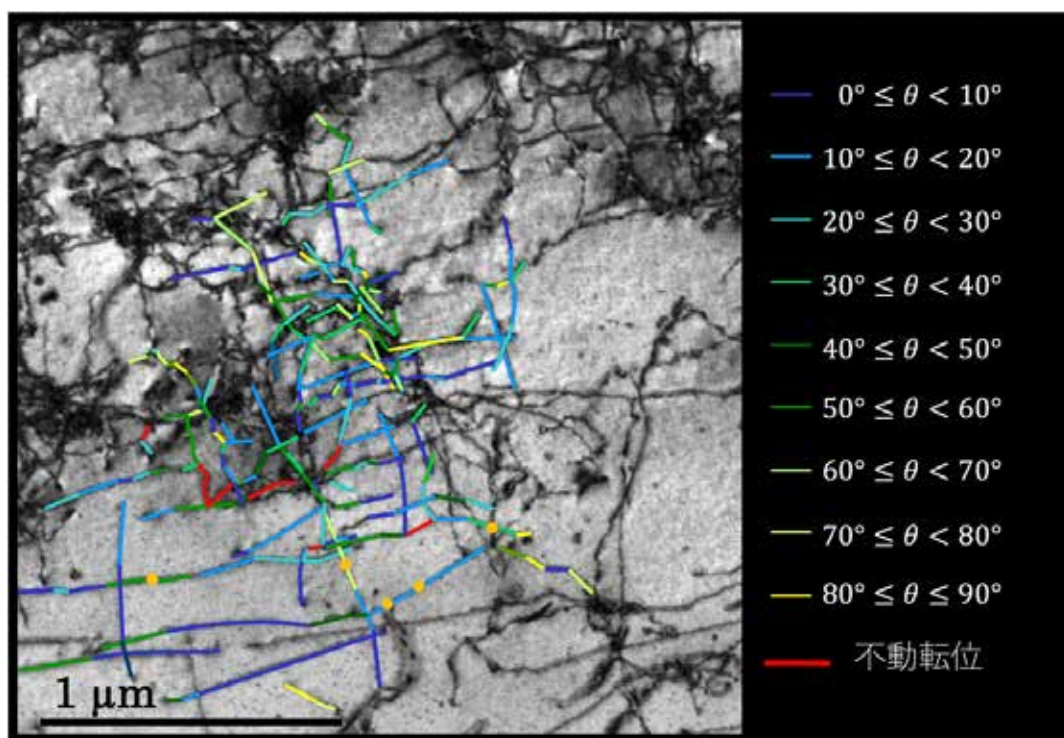


図 9 転位線とバーガスベクトルのなす角度

図 9 のオレンジ色の丸はジョグ部を表している。この図から、転位セル壁が形成すると思われる転位密集領域では波状成分を多く持つ転位が多く、転位密度が粗な領域では、らせん成分を多く持つ転位が多いということが分かる。純鉄中の転位はらせん転位のパイエルスポテンシャルが高いため、らせん転位が多く存在していると考えられてきたが、今回の結果はそれを覆すもので、刃状転位成分を多く持つ転位も存在していることが明らかとなった。

また、この結果より、緒言で述べた FCC における 4 つの転位セル形成機構との比較を行う。まず、Seeger の理論であるが、今回、セル壁近傍には刃状成分の強い転位は存在しているものの、それが交差迂り及び交差迂り部分での消滅では無いと思われる。次に Hirsh の理論であるが、今回のような引張変形はその引張変形中に無数の転位が高速で移動する。そのような状況において、常にエネルギーを再安定するように転位が配列しながら運動するとは考えにくい、さらにエネルギーが安定化するのであれば転位反応を頻繁に起こし、ネットワークを組んでいるはずであるが、今回の観察結果において転位反応は少なく、転位は「絡まり合って」存在していることが多いことがわかった。Kuhlmann の理論については、スーパージョグらしきものは確認できるものの、それが転位源として働いている様子はなく、さらに、転位の拡張は純鉄の場合、積層欠陥エネルギーが非常に高いため、起こりにくく、BCC 中の転位セル形成機構として適応することが出来ないと考えられる。つまり、新たな転位セル形成機構の提唱が必要であるということが分かった。

本研究の解析結果を踏まえた上で、現時点で言えることは、転位セルは偶発的に絡み合った転位同士がタングル化することで形成されるということである。なぜ、その場所でそのように絡みあったのかを明らかにするためには、応力負荷方向と転位の運動を考える必要があると思われる、今後の研究課題である。

4. 結言

本研究では、純鉄に引張変形を加え、転位セルの形成初期段階においてその転位構造の 3 次元構造について超高圧電子顕微鏡を用いることで解析を試みた。その結果、以下の結言を得た。

- ・引張変形の伴う転位セルの発達過程を観察したところ、2%ひずみからセルの形成が始まり、そのサイズは $0.5\mu\text{m}$ 程度で飽和することが示唆された。
- ・全手動で超高圧電子顕微鏡を操作することにより、純鉄中転位の三次元構造解析が可能であることが分かった。
- ・三次元観察の結果、転位は複雑な交差すべり構造をしており、複数のすべり面に渡って存在していることが分かった。
- ・観察された転位の性格を解析したところ、転位セル壁が形成されると思われる転位密度の高い領域では刃状転位密度が高く、その他の領域ではらせん転位が多いこと

がわかった.

- 今回の観察結果より, 従来提唱されていた FCC における転位セル形成機構について検討を行ったが, どのモデルにも当てはまらないものだった.
- 今回の観察結果より推測される転位セル形成過程は, 偶発的に絡み合った転位がタングル化し, 転位セル壁を構成するというものである.

謝辞

本研究は公益財団法人 JFE21 世紀財団の研究助成によって実施されたものであり, ここに深く感謝申し上げます.

参考文献

- 1). A. Seeger, Dislocations and Mechanical Properties of Crystals, (1956) Johy Wiley, New York, p.243
- 2). P. B. Hirsch, R.W. Home, and M.J. Whelan, Phil. Mag., 1, p.677, (1956).
- 3). P. B. Hirsch, Internal Stresses and Fatigue in Metals, (1959) Elsevier, New York, p.139
- 4). D. Kuhlmann-Wilsdorf, R. Maddin and H.G.F. Wilsdorf, Am. Soc. Metals. Symposium on Strengthening Mechanism in Solids, (1962), p. 137
- 5). S. Sadamatsu, M. Tanaka, K. Higashida, S. Matsumura, Ultramicroscopy, Vol. 162, (2016), p10
- 6). A. S. Keh, S. Weissmann, Electron Microscopy and Strength of Crystals, (1963), p.231