

電子顕微鏡等厚干渉縞法による規則粒界変位関係の精密解析

High-precision Analysis of the Coincidence Grain Boundary Displacement Relationship by the Extinction Contour Method

宮 沢 薫 一*・森

実*・石 田 洋 一*

Kun'ichi MIYAZAWA, Minoru MORI and Yoichi ISHIDA

1. はじめに

規則粒界に規定される電子線の共通回折条件では、ブラッグ反射位置から、ブラッグ角の1~2倍程度薄膜試料を傾斜させて回折が非常に弱く生じる条件（弱ビーム状態）で、暗視野像を観察すると、粒界の長範囲にわたってせまく並んだ等厚干渉縞が少しずつずれる現象が観察されることがある。図1は、(1 1 1)共通回折波を用いて、ステンレスの双晶境界を横切る等厚縞を発生させて観察した例である。丸印で囲んだ場所で、等厚縞が双晶境界の両側でわずかにくいちがっている。図2は、Cu-Ni合金のすべり線が形成されている場所を示しており、す

べり線の両側で、等厚縞が著しくずれていることが観察される。これらのコントラストは、粒界に単独の転位が存在する場合の像¹⁾や、不完全転位の等厚干渉縞の像²⁾とは明らかに異なる。原因は、粒界の両側の結晶粒が、正確な回折条件からわずかに変位しているためと考えられる。

本報では、2波近似の電子線回折理論による考察を行い、本現象についての理由づけを試みる。

2. 2波近似弱ビーム等厚干渉縞理論の剛体変位モデルへの適用

2波近似の動力学的回折理論によれば、等厚干渉縞は

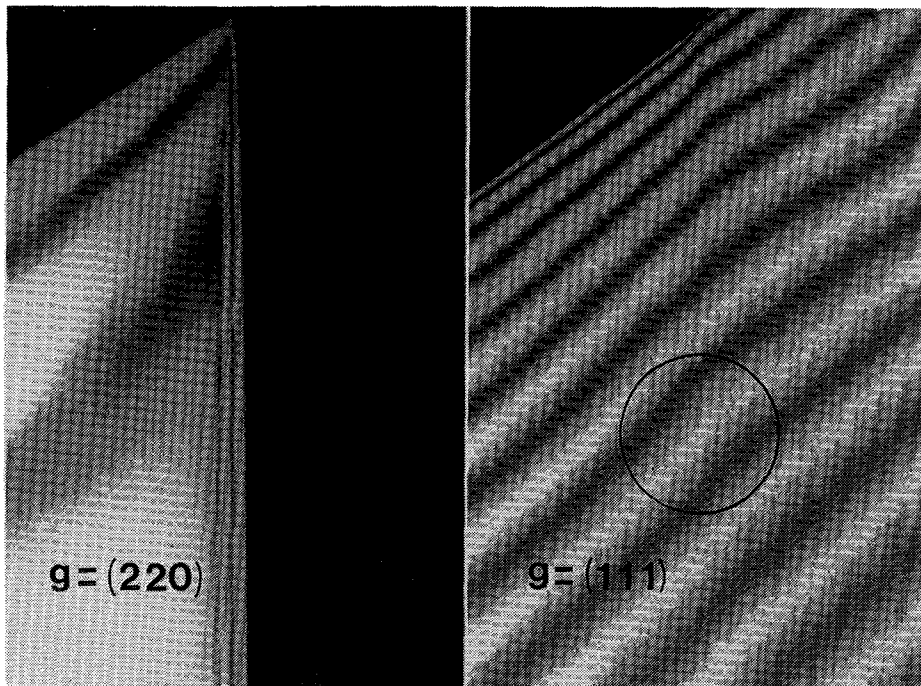


図1 SUS 316 ステンレス鋼の双晶境界暗視野像 丸印の中で(1 1 1)等厚縞がわずかにずれている。

* 東京大学生産技術研究所 第4部

研 究 速 報

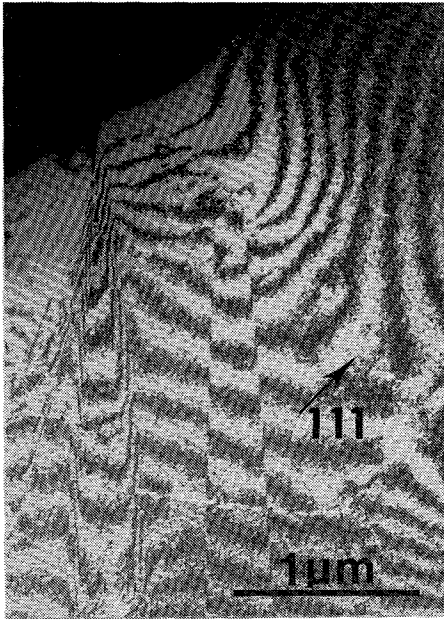


図2 Cu-30% Ni 合金の暗視野像
すべり線近傍で、著しい(1 1 1)等厚縞のずれが観察される。

膜厚方向に有効消衰距離 ξ_g^w で与えられる。³⁾

$$\xi_g^w = \xi_g / \sqrt{1 + s^2 \xi_g^2} \quad (1)$$

ξ_g は、逆格子点の指数 g をもつ回折波の消衰距離である。 s を回折線と反射球の交点と逆格子点 g とを結ぶベクトルとすると、 $|s|=s$ であり、 s は長さの逆数の次元をもち、偏差パラメータと呼ばれる。³⁾

多波効果が存在する場合、すなわち、低い次数の反射に対して、その系統反射が励起されていたり、また、対称性の高い方向からビームが入射していて、系統反射以外の強い低次の反射が励起されたりする場合は、2波近似で求められた電子線の消衰距離が減少することが知られており、著しい場合には、3/4 程度に減少する。³⁾

しかしながら、十分にブラッグ反射位置から試料を傾斜させることにより、他の反射の影響を無視できることが実験的に確認されている。

いま、図3に示したような粒界(規則粒界)を有するくさび形試料を考え、 g なる回折波が、粒界の両側で同時に励起されていることにする。この場合、両結晶粒で同種の等厚干渉縞を生じているが、共通回折条件から結晶粒がわずかに変位しているため、等厚縞の間隔が異なっている。簡単のため、結晶粒1での等厚縞の幅が結晶粒2での等厚縞の幅よりも少し広くて、粒界のすぐ両わきの点AとBとで両等厚縞が再び一致してしまった場合

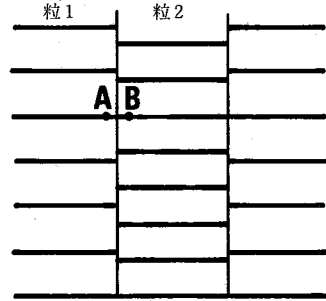


図3 粒界近傍での等厚縞のずれを示す模式図
紙面の下方が膜の端部

の例を示した。膜端から等厚縞の数を数えて、A, B 両点までの等厚縞のくいちがいの数 Δn は1である。 Δn 自身は符号つきの値である。

粒界の両側で、2つの結晶粒が剛体変位していると考えて一般的に議論すると、膜端からA, B 両点までの等厚縞の数の差 Δn は次のようになる。

$$\Delta n = t_1 / \xi_g^{w1} - t_2 / \xi_g^{w2} \quad (2)$$

ここで、 $w_i = s_i \xi_g$

t_1, t_2 は点A, Bでの入射ビームの方向 k_0 にそっての膜厚である。弱ビーム条件下 ($|s_i \xi_g| \gg 1$) では、 $\xi_g^{wi} \approx 1/s_i$ となるので、(2)は以下のように変形される。

$$\Delta n = t_1 s_1 - t_2 s_2 \quad (3)$$

膜厚と偏差パラメータをベクトル量で次のように定義する。

$$t_i // s_i // k_0$$

$$|t_i| = t_i, \quad |s_i| = s_i$$

$$\text{すると、(3)は、} \Delta n = t_1 \cdot s_1 - t_2 \cdot s_2 \quad (4)$$

と書ける。 $\Delta s \equiv s_1 - s_2$, $\Delta t \equiv t_1 - t_2$ なる量を定義して(4)を書き直すと、

$$\Delta n = (\Delta t - t_2) \cdot s_1 + t_2 \cdot (s_1 - s_2)$$

$$= \Delta t \cdot s_1 + t_2 \cdot \Delta s \quad (5)$$

A, B 両点における膜厚の差が大きいときは、(5)式を直接に解析する必要がある。ところが、 $|t_1| \approx |t_2|$, $|t_2| \gg |\Delta t|$ と考えてよい場合には、 Δn だけ等厚縞がずれる現象を、一方の結晶粒を基準にして考察できる。この場合、添字を省略して、

$$\Delta n = \Delta t \cdot s + t \cdot \Delta s \quad (6)$$

と書くことができる。(6)は、 $n = t \cdot s$ の微分量である。

(6)式の第1項は、剛体並進によって粒界近傍で膜厚に差が生じたためによる効果、第2項は、両結晶粒の共通回折面に方位差が生じたため、剛体回転による効果である。ほとんどの場合、第2項の寄与が重要である。これは、以下の議論から明らかである。

いま、Al 試料を想定して、 $|\Delta t| = 100 \text{ \AA}$, $|t| = 1000 \text{ \AA}$ の

研究速報
 明らになったので、本法を対応規則粒界転位への観察に適用できよう。特に、傾角粒界の透過電顕観察に有用である。

もとの、ブラッグが反射からのはずれの角度が、 $\Delta\theta_B = 0.5^\circ$ の場合について考える。(1 1 1) 反射を用いる場合、

$$s = \Delta\theta_B |g| = 3.8 \times 10^{-3} \text{ [\AA}^{-1}\text{]}$$

であるから、 $\Delta t \cdot s = 3.8 \times 10^{-1}$ (7)

したがって、(6) の第 1 項と第 2 項が同程度の値になる Δs の大きさは、 $\Delta s \approx |\Delta t \cdot s| / |t| = 3.8 \times 10^{-4} \text{ [\AA}^{-1}\text{]}$ (8)

そのため、両結晶粒の回折面がもつ方位のずれの大きさは、(8) より、 $\Delta\theta \sim 8.9 \times 10^{-4}$ ラジアン $\sim 0.05^\circ$

となる。すなわち、膜厚の変化よりも、回折面のわずかな方位差が干渉縞のくいちがいに大きな効果をもたらしていることがわかる。したがって、多くの場合、次の式を提出できよう。 $\Delta s = \Delta R g$ として

$$\Delta n = t \cdot \Delta R g \quad (9)$$

ここに ΔR は、両結晶粒の厳密な対応方位関係からのずれを表す方位行列である。数枚の弱ビーム写真があれば、 ΔR を決定することができる。

3. 対応規則粒界転位解析への応用

対応粒界上に存在する粒界転位は、粒界原子配列を解析するうえで重要な手がかりである。この規則粒界転位は、DSC 格子にもとづくパーガースペクトルをもつと考えられ、その決定が弱ビーム電顕法を利用する場合の大きなねらいである。規則粒界転位のネットワークの大きさや形状は、粒界構造理論を築くうえで不可欠であり、Bollmann の O 格子理論の検証という観点からも意味がある。

ネットワークの性質が変わると結晶粒方位関係も変化するが、⁴⁾ そのための方位関係のずれを正確に評価することは容易ではない。

しかしながら、前節までに述べた方法を用いれば、方位差を 1/1000 ラジアン程度の精度で測定できることが

ステンレス鋼を用いた観察では、(4 2 2) 反射まで、良い干渉像が得られることが実験的に確認されており、当方は $\Sigma 11$ までの規則粒界転位について本法を適用することができよう。

4. ま と め

弱ビーム条件下において、規則粒界近傍において等厚干渉縞のずれが観察され、しかもそれが単独の転位による変位場によってもたらされた現象ではなく、結晶粒界近傍の結晶粒同士の剛体変位に由来していると考えられる場合について、変位関係を解析するための式を提出した。その結果、等厚干渉縞のずれは、結晶粒間の剛体並進による効果よりも、剛体回転による回折面の方位関係のずれに大きく依存していること、しかも、本手法は、1/1000 ラジアン程度の角度分解能を有していることが明らかになった。(4 2 2) までの高次の回折波を用いれば、粒界近傍の特定部分における結晶粒変位関係を、 $\Sigma 11$ までの規則粒界について詳細に検討できる。

(1984 年 11 月 5 日受理)

参 考 文 献

- 1) 宮沢, 程, 斉藤, 森, 石田: 日本金属学会誌, 第 48 巻, 第 5 号 (1984), 455
- 2) 宮沢, 森, 石田: 生産研究, 第 36 巻, 第 8 号 (1984), 370
- 3) P. B. Hirsch, A. Howie, R. B. Nicholson, D. W. Pashley and M. J. Whelan: Electron Microscopy of Thin Crystals, Butterworths, London, (1965)
- 4) R. W. Balluffi, Y. Komen and T. Schober: Surface Science, 31 (1972), 68