

## 金〔110〕傾角粒界原子配列の解析 (I)

## —高分解能電顕による観察—

Analysis of Atomic Configuration at the {110} Tilt Boundaries of Gold (I)

—Observation by High Resolution Electron Microscopy—

市野瀬 英 喜\*・田 中 真 一\*・石 田 洋 一\*

Hideki ICHINOSE Shinichi TANAKA and Yoichi ISHIDA

## 1. 序

高分解能電子顕微鏡による構造像 (structure image) が、金属の粒界原子配列の解析に有力な手段であることはすでに前報等で明らかにしたとおりである。<sup>1)~3)</sup> 構造像解析は現在の電子顕微鏡の分解能の限界に挑戦するものであるだけに解析に当たっては画像処理の応用、結像理論にそった計算像との対比およびシュミレートした原子配列との比較など後続の速報で述べるように多角的な努力が要求される。構造像はしかし、これがないと粒界構造の解析ができないというわけではない。粒界における周期構造の有無、弾性歪みの大小、それに、粒界面の曲直等の情報は比較的容易に得られるが、これから粒界構造を理解することができる。本報ではこのような情報も含めて金〔110〕傾角粒界の解析を行った。

## 2. 試料の作成

前報<sup>1),2)</sup>と同様に{110}面を鏡面仕上げた岩塩をFig. 1のような蒸着装置中に入れ、680 K、 $10^{-3}$  Paで金を蒸着した。こうして得られた金薄膜をカーボンで補強したマイクロメッシュにすくい上げて観察に供した。試料の厚さは10~20nmであり、岩塩とのエピタキシーにより〔110〕軸を回転軸とする傾角粒界が多数存在する。

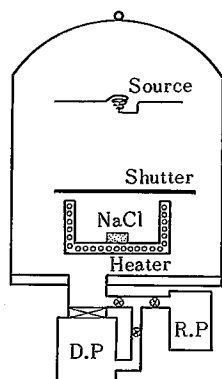


Fig. 1 蒸着装置の模式図

## 3. 電顕構造像の観察

使用した電子顕微鏡は東北大学金研のJEM-1200型超高圧高分解能電子顕微鏡(Cs=11mm, Cc=5.3mm, 加速電圧1000kV)および日本電子JEM-200CX(Cs=1.2mm, Cc=1.4mm, 加速電圧200kV)である。構造像の観察に当たっては、4つの{111}回折波、2つの{200}回折波、および透過波の7波が結像に寄与するように絞りの大きさを選んである。結像に寄与すべき回折波(フーリエ成分)の数は原理的には多いほど良いが、現在の電顕の性能では7波がほぼ上限である。写真の撮影時にはJEM-1200は30nmのステップで、JEM-200CXは、3nmのステップで、いずれもシェッラーフォーカスの付近で $4f$ を変えながら行った。

## 4. 結 果

## (1) 各種粒界の頻度分布

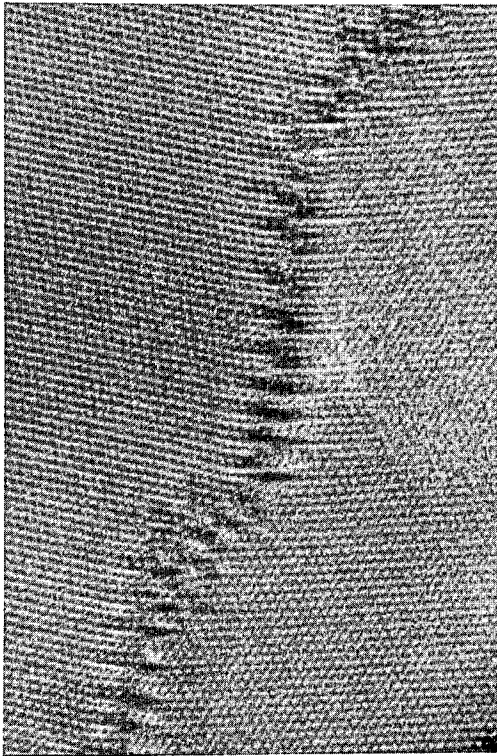
本実験における試料はバルク材より切り出したものではないために粒界の存在する頻度や試料中の分布が現実の材料に比べて偏っている。353例について各種粒界の出現頻度を調べたのが第1表である。最も多いのは小角粒界で、約50%を占め、以下 $\Sigma 3$ 対応粒界、 $\Sigma 11$ 対応粒界の順に小さくなっている。このような出現頻度分布は〔110〕回転軸におけるエネルギーカプスの深さの順序と一致している。<sup>4)</sup>

## (2) 小 角 粒 界

Fig. 2は小角粒界の格子像の1例である。転位の弾性論に基づいて提唱されたBurgersのモデル<sup>5)</sup>によれば、小角粒界の最大傾角は15度付近までであり、これ以上大きな回転角では転位のコアが重なってしまうので、もはや粒界を転位列で記述することは適当でないといわれているが、写真のように15度を越えても粒界は幾何学的には転位列で構成されている。Fig. 2の粒界はいくつかのセグメントに分かれているがこれはバーガスベクトルの異なる転位が並んでいるためである。

小角粒界において興味あるもう1つの構造はFig. 3の例である。これは回転角8度の小角粒界である。弾性論に従えば、転位列はバーガスベクトルで垂直な方向に並ぶはずであるが、ここでは転位列は右側の結晶の稠

\* 東京大学生産技術研究所 第4部

Fig. 2  $\theta = 16.5^\circ$ の小角粒界 (IMV)

密面である  $\{111\}$  面上に並ぶような配列になっている。転位芯のエネルギー緩和がこの傾角ですでに起こっていることを示唆するものである。

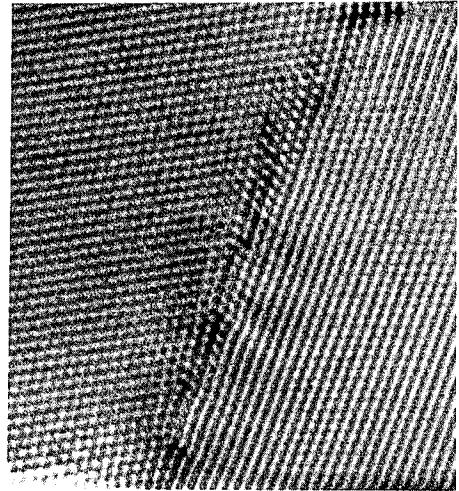
### (3) $\Sigma 3$ および $\Sigma 11$ 対応粒界

Fig. 4 の(A) は通称整合双晶境界と呼ばれる  $\{111\}$  面を粒界面とする  $\Sigma 3$  対応粒界, Fig. 4 (B) は  $\{112\}$  面を粒界面とする同じ  $\Sigma 3$  対応粒界で非整合双晶境界と呼ばれている粒界, そして Fig. 4 (C) は  $\Sigma 11$  対応粒界である。  $\Sigma 3$  粒界は小角粒界と同じく  $\{110\}$  軸回転の粒界では最もエネルギーの低い粒界であり  $\Sigma 11$  はその次に低エネルギーの粒界である。これらの粒界の特徴は直線的なことである。 Brandon<sup>5)</sup> によれば, それぞれ Fig. 5 のような周期構造をもつことによって低エネルギー粒界が実現されることになっており, その場合粒界トレースは当然直線となる。 Fig. 4 の写真はこれが大筋においては支持するものであり, 少なくとも  $\Sigma$  値の低い対応粒界においては, 原子配列の細部はともかくとしても,<sup>2), 3)</sup> これら低エネルギー粒界の記述に対応粒界モデルが有効であることを示すものであるといえよう。

### (4) $\Sigma 17$ 対応粒界と粒界転位

Fig. 6 は回転角約  $84^\circ$  で  $\Sigma 17$  対応粒界よりも  $2.8$  度

small angle	172	48.7 %
coherent twin	120	34.0 %
incoherent twin	13	3.7 %
$\Sigma 11$	5	1.4 %
close packed plane	15	4.2 %
large angle	7	2.0 %
random	21	5.9 %
total	353	100 %

Fig. 3 傾角  $8^\circ$  の小角粒界. 転位が右側の結晶の  $\{111\}$  面に沿って並んでいる. (200 kV).

程度回転角の小さい粒界である。粒界はほとんどの部分が曲線となっており,  $\Sigma$  値の小さい粒界が全く直線的であったのとは様相を異にしている。中央部における粒界の折れ曲がりには Fig. 7 に示すように  $b = a/68 \cdot [811]$  なるバースベクトルをもつ粒界転位の芯構造に対応するものでこれが  $\{111\}$  面にして 5 原子面おきに並ぶことによって準周期構造が生じていることがわかる。

### (5) $\Sigma 19$ 対応粒界

$\Sigma$  値のさらに大きな  $\Sigma 19$  対応方位関係をみたす粒界の 1 例が Fig. 8 である。粒界が対応粒界モデルに従うものならば, Fig. 9 (b) の左半分のような配列が周期的にくり返され, 粒界は  $\{331\}$  面に平行なはずであるが, ここではそのような配列は見られない。むしろ片方の結晶の  $\{111\}$  面に平行なセグメントが小さなステップで繋がって巨視的には曲線的な粒界を形成している。 Fig. 9 (a) も同じく  $\Sigma 19$  の対応方位関係をみたす粒界の例であるが, もし対応粒界モデルによる原子配列が

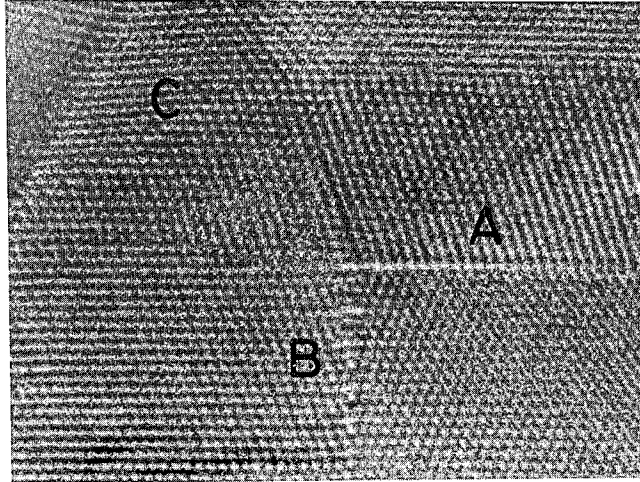


Fig. 4 A:  $\Sigma 3$  整合双晶境界 B:  $\Sigma 3$  非整合双晶境界 C:  $\Sigma 11$  対応粒界 (IMV)

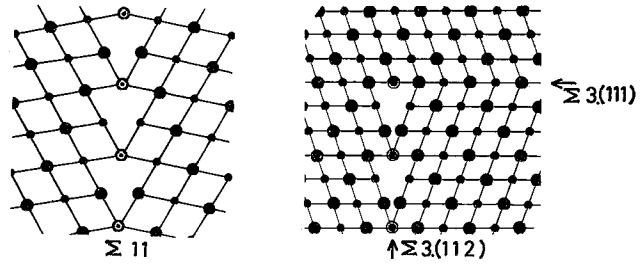


Fig. 5 双晶と $\Sigma 11$ 対応粒界の $\{110\}$ 面格子パターン

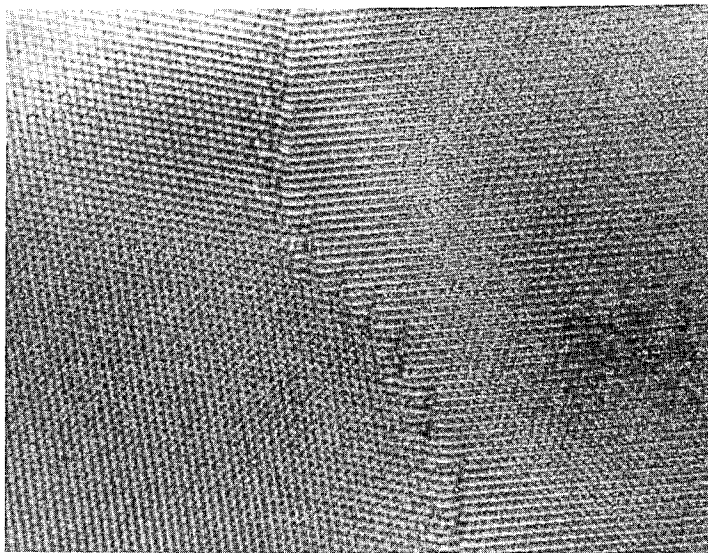


Fig. 6 傾角が $2.8^\circ$ ,  $\Sigma 17$ 対応方位関係からはずれた粒界.  $\{111\}$ 面5面おきの芯構造をもつ粒界転位による歪み模様がみえる. (200 kV)

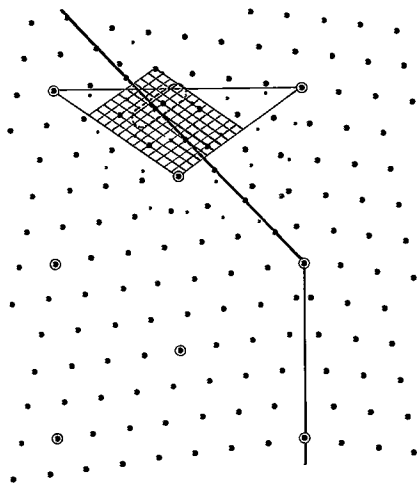


Fig. 7 Fig. 6の粒界転位の芯構造が破線内の格子点一致で示されている。 $\Sigma 17$ 対応粒界の対応格子プロット

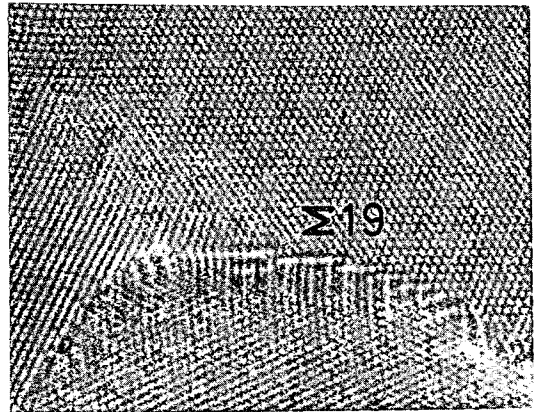
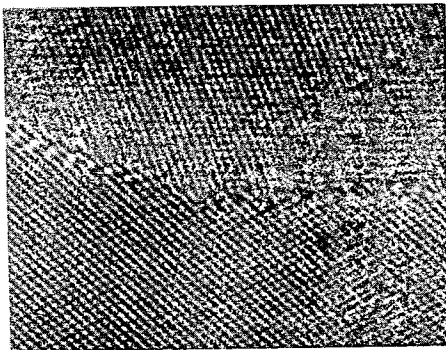
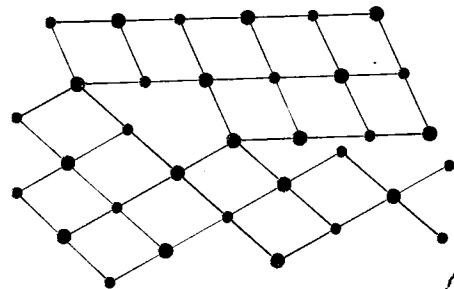


Fig. 8  $\Sigma 19$ 対応粒界。粒界面は本来の $\{331\}$ 面ではなく $\{111\}$ 面を粒界面とする小さなセグメントが繋って巨視的には曲がった粒界となっている。



(a)



(b)

Fig. 9 (a)  $\Sigma 19$ 対応粒界。粒界面が途中で最稠密対応格子点 $\{331\}$ から最稠密原子面 $\{111\}$ に変わっている。(IMV) (b) 同構造図

最も低エネルギーの配列であるならば粒界は同図左半分のような $\{331\}$ 面に沿った配列が直線的に続くはずであるが、粒界は途中で折れ曲がり、上例の結晶の $\{111\}$ 面が粒界面として選ばれている。この程度の $\Sigma$ 値では最稠密対応格子面よりも最稠密原子面の方が粒界面としてエネルギー的に有利ということであろう。

謝辞 本観察に当たりご援助いただいた東北大学の辛島精一教授、平林 真教授、平賀賢二助教授および JEOL KK に感謝いたします。(1980年4月17日受理)

#### 参考文献

- 1) 石田洋一, 市野瀬英喜, 生産研究 29 (1977) 666
- 2) 市野瀬英喜, 石田洋一, 森 実, 生産研究 30 (1978) 456
- 3) 市野瀬英喜, 石田洋一, 森 実, 日本金属学会誌 43 (1979) 1056
- 4) Hasson, G and Goux, C; Scripta Met. 5 (1971) 889
- 5) Burgers, J. M.; Proc. Phys. Soc. Lond. 52 (1940) 23  
Burgers, J. M.; Proc. Roy. Acad. Sci. Amsterdam 42 (1939) 293, 378
- 6) Brandon, D. G., Ralph, B., Ranganathan S and Wald, M. S. Acta. Met. 12 (1964) 813