

粒界転位透過電顕像と計算像との比較による バーガースベクトルの決定(I)

Determination of Burgers Vector of Grain Boundary Dislocations by the Simulation of T.E.M. Images(I)

森 実*・石田 洋一**

Minoru MORI and Yoichi ISHIDA

1. はじめに

粒界転位のバーガース・ベクトルに関しては、すでに数多くの理論的解析がなされているが、¹⁻⁵⁾実験的には不十分であり、方位関係をコインシデンス(対応)関係に近く作成した双結晶粒界で転位像を解析した仕事⁶⁾がある程度である。粒界転位はコインシデンス粒界⁷⁾や、規則性が一方向に限定された⁸⁾準規則粒界でも粒界転位は存在できる。従って、例えば多結晶試料を透過電顕観察した時に見える粒界転位が、主にどんな種類のものであるかという事は、いまだに確認されていない。

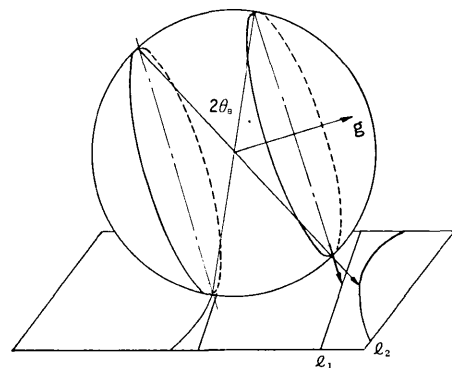
観察された転位がどのような種類のものかを知るためにはバーガース・ベクトルが同定されねばならないが粒界転位のバーガース・ベクトルは一般に格子転位のそれより小さく、また複雑であるために回折ベクトル(\mathbf{g})と転位による歪(\mathbf{R})が直交していなくても像がほとんど見られないような場合もあり、格子転位の場合のように像の有無で判定するような事はできない。従って可能なバーガース・ベクトルそれぞれについて電顕像を計算し、写真と比較して判定する方法が考えられる。この報告では像の計算方法及び計算に必要なパラメーターの求め方について述べる。像計算はHead et al. が格子転位及び積層欠陥に用いた方法⁹⁾を参考にした。この報告をまとめている時にHumbleとForwoodにより粒界転位解析の方法が発表された。¹⁰⁾従って像計算については手法の違いに重点をおいて説明する。

2. 像計算に必要な各種パラメーターの求め方

(1) 菊池線による結晶方位の測定

結晶方位を菊池線を使って精度よく求める方法は標準化されているが、作業に時間がかかり、本実験のように多くの回折写真を処理するためには簡便な方法が望まれる。そこで任意の方位の菊池線図の近似形をグラフィック・ディスプレイする事により、得られた回

折写真との比較を容易にし、電子線に平行な結晶方位を求めるようにした。



近似的菊池線の図示

l_1 : 近似的な菊池線

l_2 : 正しい菊池線

l_1 : 近似的な菊池線

l_2 : 正しい菊池線

図1 近似的菊池線の図示

菊池線は回折面(\mathbf{g})に対して $\pm(\pi/2 - \theta_B)$ の角度を持つ円錐面と投射面の交線として表われる。(図1)

$$\mathbf{g} \cdot \mathbf{r} = \pm |\mathbf{g}| |\mathbf{r}| \cos(\pi/2 - \theta_B) \dots\dots\dots (1)$$

$$\mathbf{r} = (x, y, z)$$

ここで θ_B はブラッグ角、投射面 $z=z_0$ との交線は双曲線である。

$$\left\{ \left(\frac{g_x}{\sqrt{g_x^2 + g_y^2}} x + \frac{g_y}{\sqrt{g_x^2 + g_y^2}} y \right) + \frac{\sqrt{g_x^2 + g_y^2} g_z}{g_x^2 + g_y^2 - g_z^2 \tan^2 \theta_B} \right. \\ \times \cos^2 \theta_B z_0 \left. \right\} - \frac{g_x^2 + g_y^2 + g_z^2}{g_x^2 + g_y^2 - g_z^2 \tan^2 \theta_B} \tan^2 \theta_B \\ \left(\frac{-g_y}{\sqrt{g_x^2 + g_y^2}} x + \frac{g_x}{\sqrt{g_x^2 + g_y^2}} y \right)^2 \\ = \frac{(g_x^2 + g_y^2 + g_z^2)^2}{(g_x^2 + g_y^2 - g_z^2 \tan^2 \theta_B)^2} \tan^2 \theta_B z_0^2 \dots\dots\dots (2)$$

この式をそのままディスプレイする事はディスプレイの性質上不向きであり、またブラッグ角は電子線の場合小さく、その上菊池線として回折写真に入ってくるものは $g_z \approx 0$ のものだけであるので、次のような近

*東京大学大学院生

**東京大学生産技術研究所 第4部

研究速報

似をし直線とする。(図1)

$$\mathbf{g} \cdot \mathbf{r} = \pm |\mathbf{g}| z_0 \cos(\pi/2 - \theta_B) \dots\dots\dots (3)$$

この式は正しい菊池線の示す円錐面と径 z_0 の球との交線である円を含む平面と投射面との交線である。

このような近似による誤差はアルミニウムの200KV菊池線図の場合 $g_z = 0$ とし、 \mathbf{g} の種類を(200)とした時、図の中心部で0.002%、中心から 5° のところでは0.38%程度であり、精度の必要な中心部では極めて良い近似であり、全体としても十分に良い近似である。図2はその1例である。

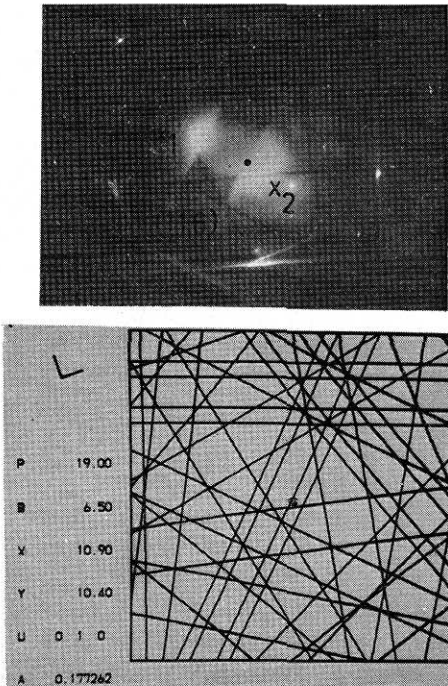


図2 図折像の菊池線(上)と菊池線のグラフィックディスプレイ(下)との比較例

(2) 結晶方位関係の計算

菊池線を用いた前節の方法で電子線の方位については 0.1° の精度で解析ができる。従って、同一の粒界を二方向から観察した時のこの電子線に平行な結晶方位を用いて、回転関係を計算すれば極めて信頼性のある値を得る事ができるはずである。さらに大角傾斜装置を用いると試料を $\pm 37^\circ$ 傾ける事ができ、この解析の精度が保証される。粒界の回転関係は例えば双晶関係のように、あらかじめ知られていれば、このような解析は不必要であるが、一般にはこの回転関係によって、粒界の性格を知り、可能なバーガース・ベクトルを選ぶ基準とするものである。

結晶粒A、Bに対し次のような変換マトリックスを考える。

$$M_A = \begin{pmatrix} B_{m_{A1}} \\ (B_{m_{A2}} - B_{m_{A1}}(B_{m_{A1}} \cdot B_{m_{A2}})) / |B_{m_{A1}} \times B_{m_{A2}}| \\ (B_{m_{A1}} \times B_{m_{A2}}) / |B_{m_{A1}} \times B_{m_{A2}}| \end{pmatrix} \dots\dots (4)$$

$B_{m_{A1}}$ は写真1における電子線に平行なA粒での結晶方位、 $B_{m_{A2}}$ は写真2のそれであり、B粒についても同様に M_B が求められる。B粒での結晶方位からA粒での結晶方位への変換マトリックスは

$$M = M_A^{-1} \cdot M_B \dots\dots\dots (5)$$

で与えられる。実際にはさらに $\sum_i B_{m_{Ai}} \cdot M B_{m_{Bi}}$ が最大になるような M を得て回転関係を求めている。

(3) 転位方向、粒界面方向及び試料表面方向の測定

観察方向の異なる明視野像2枚につき、転位像や粒界の試料表面との交叉線などの方向(a)を回折ベクトル(\mathbf{g})となす角度(α)として測定すると、これらの方位は次式で示される。(図3, 4, 5)

$$a = \{ (G - B_m(G \cdot B_m)) \cos \alpha + (B_m \times G) \sin \alpha \} / |B_m \times G| \dots\dots\dots (6)$$

$$\text{但し } G = \mathbf{g} / |\mathbf{g}|$$

$$C = a \times B_m$$

真の方向(d)は $d \cdot C_1 = d \cdot C_2 = 0$ より

$$d = C_1 \times C_2 / |C_1 \times C_2|$$

として得る事ができる。しかしこの測定は誤差が大きいので全ての明視野像について $\sum_i (C_i \cdot d)$ の値が最小となるようにbを求める。このようにして、粒界と試料面との交線方向、 d_{AB} , d_{BC} , d_{AC} , ..., 粒界3重線方向 d_{ABC} 、転位方向uが決まる。これらから粒界面の方向(G_n)、試料面の方向(F_n)が求まる。

$$\begin{aligned} G_{nAB} &= d_{AB} \times d_{ABC} / |d_{AB} \times d_{ABC}| \\ F_n &= d_{AB} \times d_{AC} / |d_{AB} \times d_{AC}| \end{aligned} \dots\dots (7)$$

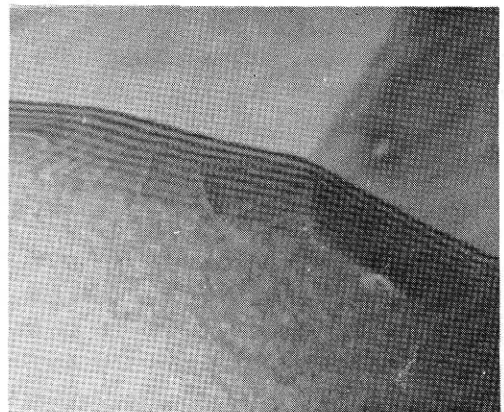


図3 透過電顕写真の1例

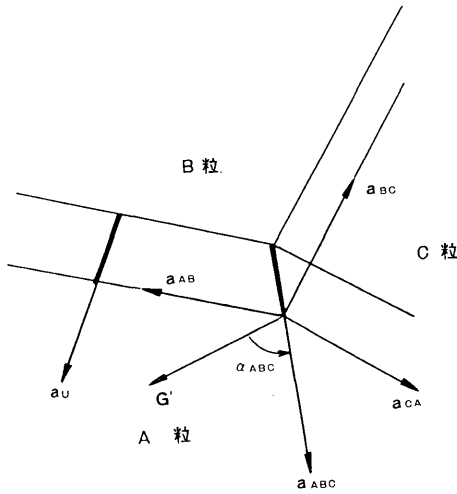
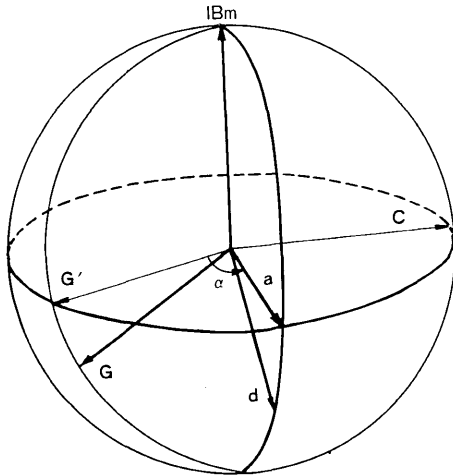


図4 みかけの角度や方向の測定方法



みかけの角と方位の関係

図5 みかけの角と方位の関係

3. 粒界転位像の計算

(I) 二波近似理論の基礎方程式

電子線は回折角度が小さいために平面波近似（コラム近似）が良く、透過波 T と回折波 S の変化は次式で表わされる。

$$\begin{aligned} \frac{dT}{dz} &= \pi i \left(\frac{1}{\xi_o} + \frac{i}{\xi_o'} \right) T + \pi i \left(\frac{1}{\xi_s} + \frac{i}{\xi_s'} \right) S \exp(2\pi i s z) \\ &\quad + 2\pi i g \cdot R \\ \frac{dS}{dz} &= \pi i \left(\frac{1}{\xi_o} + \frac{i}{\xi_o'} \right) S + \pi i \left(\frac{1}{\xi_s} + \frac{i}{\xi_s'} \right) T \exp \\ &\quad (-2\pi i s z - 2\pi i g \cdot R) \end{aligned} \quad \dots\dots(8)$$

ここで $1/\xi_o = V_o/K \cos \theta_B$

$1/\xi_s = V_s/K \cos \theta_B$ (ξ_s ; 消衰距離)

$$V_o = (h^2/2me\Omega) \int V(r) dr$$

$$V_s = (h^2/2me\Omega) \int V(r) \exp(2\pi i g \cdot R) dr$$

$$S = |g| \Delta \theta \quad (\Delta \theta; \text{ブラッグ角からのずれ})$$

K; 結晶中の電子の波長

$$R = \frac{1}{2\pi} \left[b\theta + b \times u \left\{ \frac{(1-2\nu)}{2(1-\nu)} \ln r + \frac{\cos 2\theta - \sin 2\theta}{4(1-\nu)} \right\} \right]$$

この R は格子転位の歪である。

(2) 計算方法と仮定

像計算は(8)式を Runge-Kutta 法で解くもので転位を直線とし、試料表面の影響を無視している。粒界で回折条件が変化するので、上方の粒で生じた回折波は下方の粒では透過波に戻らなくなる。粒界より下では従って新しい透過波を考える。つまり粒界では $T_B = T_A$, $S_B = 0$ とする。今のところヤング率の結晶方位依存性は無視しているが、これはアルミニウムを中心とした実験を行っているためである。また、粒界における歪みの緩和も無視している。透過電顕写真を撮る場合 Humble と Forwood¹⁰⁾ のように双晶関係の時には上下双方の粒を回折条件とする事は容易であるが、多くの場合これは困難が伴ない、多くの写真は片方の結晶のみが強く回折した条件で撮られている。従って、そのような場合のために粒界の片側では回折していないという条件の計算も行えるようにした。

4 むすび

以上、粒界転位透過電顕像の二波近似計算の方法を説明した。次報でこれによる計算例を示す。この計算には多くの仮定が含まれており、特に粒界における歪の緩和を無視した事は問題で今後の課題である。これを実験的に評価するため、現在軽い変形によって粒界に入った格子転位の像を調べている。各種パラメータの計算法、特にグラフィック・ディスプレイを用いた結晶方位解析の方法は作業が迅速で応用範囲が広い。

(1975年11月10日 受理)

参考文献

- 1) D. G. Brandon: Acta Met. 14 (1966) 1479
- 2) W. Ballman: Crystal Defects and Crystalline Interfaces (1970) Springer Berlin
- 3) P. H. Pumphrey and K. M. Bowkett: Scripta Met. 5 (1971) 365
- 4) Y. Ishida and M. Mclean: Phil. Mag. 27 (1973) 1125
- 5) H. Grimmer: Scripta Met. 8 (1974) 1221
- 6) R. W. Balluffi, Y. Komen and T. Schober: Surface Science 31 (1972) 68
- 7) R. W. Balluffi, T. Y. Tan: Scripta Met. 6 (1972) 43
- 8) P. H. Pumphrey: Scripta Met. 6 (1972) 107
- 9) A. K. Head et al: Computed Electron Micrographs and defect identification (1973) Noth-Holland
- 10) P. H. Humble and C. T. Forwood: Phil. Mag. 31 (1975) 1011
- 11) P. B. Hirsch et al: Electron Microscopy of thin crystals (1965) Butterworth, London.