

対応方位関係をもつ珪素鉄双結晶の粒界形状

Serrations of Coincidence Grain Boundary in Silicon-Iron Bicrystals

石 田 洋 一*・劉 勝利*・今 村 淳**

Yoichi ISHIDA, Shyori RYU and Jyun IMAMURA

粒界構造に関する筆者¹⁻³⁾らの観察や解析は、これまで加工再結晶した多結晶試片や気相成長した結晶⁴⁾の粒界など、いわゆる“自然に存在する粒界”に関するものであった。この種の実験は対応粒界の存在頻度を知ることができる点で、重要なものであるが、粒界構造を解析するには不適當である。粒界構造を厳密に理解するためには、対応関係からの結晶方位のずれ、不純物濃度などの効果を一つ一つとりだして解析する必要があり、そのためにはあらかじめ結晶相互の方位関係を人工的に調整した双結晶をもちいて実験せねばならない。

この種の実験は技術的にきわめて難かしい。第一に結晶方位の制御は非常に精密になされねばならない。結晶方位が対応関係から 1° ずれるだけで、粒界転位列の間隔は透過電顕法で観察できる限度 ($\sim 100 \text{ \AA}$) まで狭まってしまう¹⁾。またこうしてできあがった双結晶中には粒界としては対応粒界一個しか存在しないのであるから、それを含んで厚さ 1μ 程度の金属薄膜を作成するのは決して容易なことではない。現在これらの難点はまだ十分

に克服されてはいない。

今回は第一報として、粗大結晶をつくりやすい珪素鉄について $\Sigma 9$ 対応粒界を含む双結晶を作成し、超高压電顕や走査電顕で観察した結果を報告する。粒界転位はみられなかったが、粒界構造に由来するとみられるジグザグ形状を観察した。

使用した珪素鉄は八幡製鉄製 Fe-3% Si 板⁵⁾で、板厚 2.3 mm の熱延板を 850°C 、5 時間水素気流中で焼鈍し、表面部分を両側から 0.4 mm ずつ研削して、厚さ 1.5 mm とした。これを 2~3% 引張り変形して、 900°C での温度勾配が $140^\circ\text{C}/\text{cm}$ の炉中を降下させて粗大粒を作成し、これらのうちで (110) が板面にほぼ平行な結晶粒を、W 字形に切り、両先端部分を両者が [110] のまわりに $39^\circ \pm 1^\circ$ 回転した関係になるようねじまげてから、再び温度勾配のある炉中を降下させて双結晶を作成したものである。

この結晶粒界は [110] 軸のまわりに 38.9° 回転した関係にある粒界 ($\Sigma 9$ 対応粒界) と考えられ粒界近傍の原子の配列は (110) 面で見ると Fig. 1

のようになっていることが予想される。すなわち粒界の方向によっては、お互いに直交する関係にある二種類の対応粒界 (対応格子点密度の高い結晶粒界) が複合してできあがっていると考えられる。 $\Sigma 9$ 対応粒界をこの実験で選んだのはこの粒界の Σ 値が [110] 回転の対応粒界のうちでは双晶粒界のそれを除けば最小で低エネルギー規則粒界とみられること、および Fe-0.75% Mn 合金の場合、それが天然に存在することが確認された⁶⁾ からである。対応粒界面の大きさは、対応格子点 (Fig. 1 の黒丸) の間隔が数 \AA 程度あるため、小さくても十数 \AA はある。この程度では電顕法では観察できない。しかし場所によっては μ 程度の大きさがあり、透過電顕で粒界のジグザグとして観察される場合があることは鉄マンガン合金の粒界につい

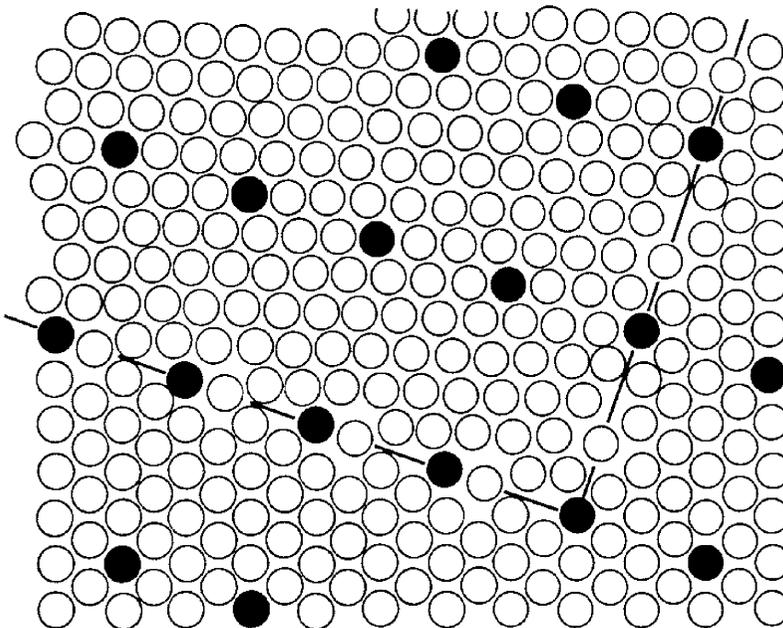


Fig. 1 Arrangement of atoms along a $\Sigma 9$ coincidence boundary (solid line). (110) is parallel to the surface of the paper. The boundary may consist of the two densely packed planes of the coincidence sites.

* 東京大学生産技術研究所 第 4 部

** 八幡製鉄 K.K. 東京研究所

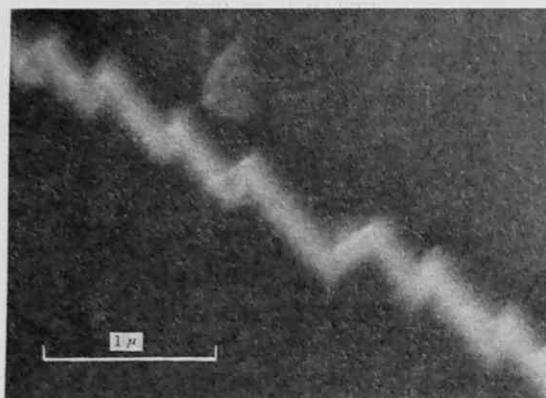


Photo. 1 Scanning micrograph of zig zag in a $\Sigma 9$ coincidence boundary of silicon-iron bicrystal. (110) parallel to the surface of the specimen.

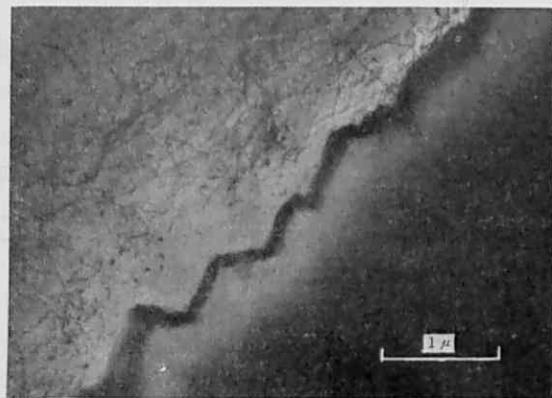


Photo. 2 Transmission micrograph of zig zag in a $\Sigma 9$ coincidence boundary of silicon-iron bicrystal.

てこれまでに報告した¹⁾。

Photo. 1 は (110) 面上の粒界トレースの走査電顕写真の 1 例である。白いジグザグの線は粒界のトレースである。電解研磨に際し、粒界が選択的に残り凸状になったために先端効果により二次電子放出量が多くて白くみえるわけである。電子線はこの写真では左方から 45° の角度で照射されており、写真自体も試料表面を 45° の傾きからみていることになる。二つの対応粒界面のトレースが互いに直交しているようにみえないのはこのためと考えられる。

Photo. 2 はこのような双結晶板をそのまま薄膜にして 1 MV 電顕で透過観察した一例である。粒界が 0.5μ の程度で、ジグザグに折れまがって見える。寸法からみて、Photo. 1 のジグザグと同種のものと考えられる。粒界のみかけの幅がせまいのは薄膜に対し、直交に近い角度ではいっているためと考えられる。ジグザグ形状が上述の 2 種の対応粒界面に由来すると考えるとこれは説明できる。粒界は全体に黒っぽくみえる。その一つの原因は粒界近傍が厚いためである。これはこの電解研磨の特徴で鉄マンガン合金でも同様な傾向が、ときにみられた。粒界のまわり $1 \sim 2 \mu$ 付近では、結晶は電解研磨の際、選択的に侵されるが、粒界のごく近傍 $0.1 \sim 0.2 \mu$ では逆に残されて突出している。このことは粒界が薄膜のヘリにつき当たるところで突出していることからわかる。走査電顕の写真 (Photo. 1) においても同様な突出がみられる。photo 2 で粒界が黒くみえるもうひとつの原因

として粒界上に膜状の析出物が連続的に存在することも考えられる。しかし形状からみて結晶方位性はみられず析出相が片方の結晶の特定面上に析出した場合⁶⁾とは違っている。粒界がジグザグになった原因はやはりこの対応粒界がもつ規則構造であると考えられる。

$\Sigma 9$ 対応粒界を透過電顕観察することができ、予想されたジグザグ構造をみるようになることができたが、主要目的である粒界転位の観察にはまだ成功していない。そのためには結晶方位をより精密に制御して転位間隔をひろげるようにしなければならないが、その前に粒界に黒い部分のない双結晶薄膜を作製するか、あるいは粒界移動をさせることにより、対応粒界を膜状析出物から引きはなしてやらねばならない。今後の課題である。

この研究にあたり終始協力いただき、超高压電顕および走査電顕使用の便も与えていただいた日本電子、田岡博士に感謝する。

(1969 年 10 月 1 日受理)

参 照 文 献

- 1) Y. ISHIDA, T. HASEGAWA and F. NAGATA: J. Appl. Phys. **40**, 2182 (1969)
- 2) Y. ISHIDA and T. HASEGAWA: Proceedings of International Conference on Quantitative Relations between Properties and Microstructure, Haifa, ISR-AEL, July, (1969)
- 3) 石田: 日本金属学会誌 **33** (1969) 1129
- 4) 石田, 金子: 生産研究 **21** (1969) 626
- 5) 今村: 日本金属学会第 59 回講演概要, 昭和 41 年 10 月.
- 6) K.N. Tu and D. Turnbull: Acta Met. **15**, 369 (1967)

