

# 博士論文（要約）

TEMその場観察法を用いた  
粒界 転位相互作用に関する研究

近藤 隼



結晶性材料の塑性変形はその多くが一次元格子欠陥である転位のすべり運動により塑性変形が進行する。よって転位のすべり運動が塑性変形の素過程であり、材料変形中の転位挙動の解明が材料の機械特性を解明する上で重要となる。但し、変形中の転位挙動は他の格子欠陥の存在に強く影響を受ける。特に、実用的に用いられる構造材料は無数の結晶粒界を内包した多結晶体であることがほとんどであるため、粒界と転位の相互作用は材料設計をする上で非常に重要となる。従って、機械特性の向上を目指した材料開発の基礎・基盤を確立するためには変形中における粒界と転位の相互作用の本質的理解が必要不可欠である。しかし、転位はナノスケールの構造であることに加えて、変形中の転位挙動は動的な現象であるため、これまで相互作用過程を直接観察することは困難であった。また粒界-転位相互作用は粒界性格や転位性格に強く依存するため系統的な研究が求められていた。

近年、透過型電子顕微鏡(transmission electron microscope; TEM)を用いたその場観察手法の発達により、材料変形中の転位挙動の直接観察が可能となってきた。特に、TEM ナノインデンテーション法は試料中の任意の場所に局所応力を印加することが可能であり、TEM の限られた視野内においても転位挙動の観察が可能である。さらに、試料として任意の単一粒界を作製することが可能な双結晶法を用いることで、粒界性格を制御した系統的な研究が可能となる。

## 1. 単結晶における転位強

そこで本研究ではチタン酸ストロンチウム( $\text{SrTiO}_3$ )をモデル材料として、TEM ナノインデンテーション法及び双結晶法を組み合わせることで、粒界-転位相互作用過程の直接観察を行い、粒界-転位相互作用メカニズムを解明することを試みた。

本研究で用いる TEM ナノインデンテーション法は、透過型電子顕微鏡内でインデンターチップにより試料に応力を印加しすることで試料の局所的な変形を動的に捉えることが可能な手法である。これまでも TEM ナノインデンテーション法を用いて転位挙動を観察した報告は存在するが、個々の転位の動的挙動を捉えることができなかった。そこで本研究ではチタン酸ストロンチウムをモデル材料として使用し、また結像方法として転位線を明瞭に観察することが可能な暗視野法を採用することで、TEM ナノインデンテーション法を用いて個々の転位の動的挙動を直接観察する手法を確立することを試みた。実験では転位の導入、伝播及び消滅過程を明瞭に観察し、個々の転位の動的挙動の直接観察する手法を確立することに成功した。また、TEM の時間分解能と転位の移動度の関係性から、本実験で用いた材料は転位挙動を観察するためのモデル材料として適していることが分かった。さらに、動的観察から得られた結果と静的観察と組み合わせることで変形中の転位挙動を詳細にモデル化することに成功した。

本研究は粒界-転位相互作用に関する実験の予備実験を兼ねる。結晶粒界と格子転位の相互作用は転位性格を明確にした上で相互作用を検討しなければならない。また、実

際の塑性変形においては粒界と相互作用する転位は結晶粒内を伝播し粒界に到達するため、結晶粒内における材料変形中の転位の動的挙動も明らかにする必要がある。しかし、TEM ナノインデンテーションを行った際に導入される転位の性格や、本研究のモデル材料であるチタン酸ストロンチウムの結晶粒内での変形中の転位挙動については不明な点が多い。そこで本研究では結晶粒内のモデルとして単結晶試料を利用し、TEM ナノインデンテーションによって導入される転位の性格及び変形中の動的挙動を明らかにすることをもう一つの目的とした。ナノインデンテーションによって導入される転位はインデンターチップ挿入方向の力に対してシュミット因子が最大となるすべり系であった。また、応力印加過程において導入した転位の性格や動的挙動も判明した。これにより転位の性格を制御して粒界-転位相互作用に関する実験が可能となった。本実験により得られた知見は結晶粒内における変形中の転位挙動とみなすことができるため、以降の粒界-転位相互作用に関する実験において粒界と相互作用させる転位の制御に繋がると考えられる。

## 2. 小角ねじり粒界における転位配列

小角粒界は最も基本的な粒界であり、周期的に配列した転位によって構成される。小角粒界の傾角成分は周期的な刃状転位によって、ねじり成分はらせん転位ネットワークによって補償される。このため小角粒界の構造を決定するためには粒界面上の転位配列を明らかにする必要がある。小傾角粒界についてはこれまでに多数の報告が存在する一方、小角ねじり粒界における粒界面上のらせん転位ネットワークの構造に関する報告は少なく、粒界面上に形成される転位配列については不明な点が多い。そこで双結晶法を用いて作製したチタン酸ストロンチウム{100}小角ねじり粒界におけるらせん転位ネットワークに関して TEM を用いて粒界面を plan-view 方向から観察することで解析・検討した。

{100}小角ねじり粒界に導入される転位ネットワークは、転位線方向を<100>方向とするらせん転位によって構成されていることが分かった。らせん転位ネットワークの結合点においては転位は拡張しており、各転位セグメントは<110>方向に伸びたらせん転位である。但し、結合点における転位セグメントは部分転位であり、拡張した結合点の内部は積層欠陥が導入されていると考えられる。このことから結合点において4本の転位線が結合する場合に比べて、3本の転位線が結合した方がのエネルギー的に安定であることが示唆される。また本研究で作製した小角ねじり粒界には、実験誤差程度の傾角成分が含まれていた。そして傾角成分を補償する刃状転位は粒界面上に独立に存在しておらず、らせん転位ネットワークと転位反応を起こし混合転位として存在していた。このことから、転位反応によって転位芯のエネルギーが減少している可能性が示唆された。

## 3 小角粒界と格子転位の相互作用

ここでは得られた知見を利用して、最も基本的な粒界である小角粒界とらせん転位の相互作用メカニズムについて検討する。小角粒界は両結晶の相対方位差が小さいため、すべり面やバーガースベクトル、弾性的性質の不連続性が転位挙動に与える影響を最小化することが可能である。本研究では特に小傾角粒界と小角ねじり粒界を対象として実験を行い、比較・検討することで粒界-転位相互作用の粒界構造依存性の解明を試みる。本章では特に粒界転位の性格の差異による格子転位との相互作用への影響を議論した。

本実験ではTEMナノインデンテーション法及び双結晶法を組み合わせることでらせん転位と小角粒界の相互作用の動的観察を行い、粒界-転位相互作用の素過程の解明に成功した。実験では同様の回転角を有しているバイクリスタルを用いたにも関わらず、らせん転位とのそれぞれの粒界の相互作用過程は全く異なっていた。これは格子転位であるらせん転位と粒界転位との切り合いメカニズムの違いに起因する。小傾角粒界では切り合いによって格子転位上にはキंकが形成されるが、これは運動の妨げにはならない。一方、小角ねじり粒界の場合、粒界転位、格子転位共にらせん転位であるため、切り合いによって生じるのはらせん転位上のジョグである。らせん転位上のジョグは運動方向に対してすべり面を有していないため、転位の運動を大きく妨げる。これによって、小角ねじり粒界はらせん転位の伝播の妨げになったと考えられる。

また、小傾角粒界においてもらせん転位の運動を僅かに妨げる様子が観察された。小傾角粒界ではらせん転位が伝播する際に粒界刃状転位上のジョグとの転位反応を起こし、部分的に混合転位となる。そして、この転位反応によってらせん転位の転位芯が安定化され伝播を妨げていると考えられる。このように粒界-転位相互作用において粒界コア構造も転位の運動に影響することを実験的に確かめることに成功した。

#### 4. 大角粒界と格子転位の相互作用

前章では最も基本的な粒界である小角粒界について格子転位との相互作用を検討した。しかし、実際の多結晶体においては両結晶の相対方位差が比較的大きな大角粒界が多数を占めており、大角粒界と格子転位の相互作用は多結晶体における塑性変形に対して極めて大きな影響を持つ。小角粒界では相対方位差が小さいため粒界の不連続性が転位の運動に与える影響は小さいが、大角粒界ではすべり面やバーガースベクトル、弾性的性質が粒界を跨いで変化するため、粒界の不連続性が転位挙動に影響を与える可能性がある。加えて、大角粒界は粒界コアに特異な構造を有しているため、粒界コアの存在が転位挙動に影響する可能性も存在する。しかし、これまでの研究では材料変形中における大角粒界と格子転位の相互作用過程について実験的に解明することが困難であった。そこで本章ではTEMナノインデンテーション法を用いることで大角粒界と格子転位の相互作用過程の直接解明を試みた。さらに、小傾角粒界に対するTEMナノインデンテーション実験の結果と比較・検討し、相対方位差の差異や粒界コア構造が転位に与える影響について議論した。

大角粒界では大きな相対方位差に起因する粒界の不連続性が転位挙動に強い影響を及ぼしていた。特に格子転位が粒界を伝播する際に形成される残留転位の生成エネルギーは格子転位の運動に対するエネルギー障壁として振舞っていた。一方、粒界コア構造が転位挙動に与える影響についても明らかとなった。粒界においては転位は最小並進ベクトルより小さなバーガスベクトルを有する転位へ分解することができるため、粒界に取り込まれた転位は分解することで弾性ひずみエネルギーを低下させていた。これによって粒界コアは転位の運動に対するトラッピングサイトとして振舞い、転位の伝播を阻害していることが分かった。