

轉位群を認知する二、三の試み

Some experiments on the recognition of the distribution of dislocations.

鹽田 信雄 (Nobuo SHIOTA)

Abstract:—Remarkable development on the theory of dislocation has given us quantitative information on the mechanism of the deformation and the recrystallization in metal crystals, however dislocations are too small to be observed directly, and so our evidence of their existence is obliged to be given by indirect way.

It is interesting to note that in the two-dimensional 'Crystal' of bubbles by Bragg and Nye, plastic glide occurs by the passage of dislocations along the directions of closest packing. Preliminary experiments on the recognition of the distribution of dislocations concerning to the mechanism of deformation are in progress and so the survey of our experiments is described in this report.

(1) 序 言

近年に於ける轉位論の著しい発展は、金属の變形及び再結晶に關聯する機構の解釈に定量的な基礎を與へると同時に最早、轉位の存在は假設としてではなく結晶中に現存する本質的なものとしての役割を帯びるに至つてゐる。然し乍ら僅か數原子距離程度の轉位は直接に見るべく余りに小さく、その存在証拠は最近迄總て間接的な手段に訴えなければならぬ状態であつた。此処に、Bragg 及び Nye⁽¹⁾ に依つて、變形は最稠密な方向に沿つての轉位の通過に依つて起ることに關する石鹼泡についての二次元“結晶”模型の研究は直接我々に轉位の存在を認知せしめたことに於て注目すべきであらう。尙變形された結晶が焼鈍に伴つて至のない微小結晶領域 (sub-boundary) を形成する恢復過程 (通常 polygonization と呼稱されてゐる) は總て轉位の移動、再配列に依つて生ずることの實驗的証拠一即ち轉位列の直接的認知が多數の研究者に依つて行はれ⁽²⁾、殆んど上述の考へが確定視^{*}されるに至つてゐる。本論に於ては結晶生長機構での轉位についてではなく、主として變形機構に關する轉位群を認知する實驗的な二、三の試みを行ひ、且つ継続中であるので取纏めて報告する次第である。

* Dunn の行つた Fe-Si 結晶での polygonization に伴ふ pits の連続性に幾分疑問がもたれるけれど。

(2) 實 験

a) 変形単結晶中の迂り帯と電気傳導⁽⁵⁾:

(特に溶質原子と変形結晶中の轉位)

完全に近い迄の脱ガス処理に依つても固体アルミニウム中には可成りの量の水素原子が結晶中に固溶されて Al の性質に複雑な影響を與へることが知られてゐる。⁽⁴⁾⁽⁵⁾ 例へば 100 gr. の結晶中に 10c.c の水素ガスを含有すると考へられる標準処女結晶では大凡 10^3 ケの Al 原子に 1 ケの割合で水素原子が存在することになつて、これは加工された結晶中で約 1,000 ケの中 1 ケの原子が轉位の中心附近に存在する確率に略々等しいことになる。この水素原子の量は母体格子の性質を左右するに充分なことが理論的に知られてゐる。⁽⁶⁾ 水素原子が何等かの原因に依つて故意に而も多量に含有された場合に於ては尚更である。此処で水素原子が果して結晶中で如何なる分布を行ひ且つ変形に如何なる効果を與へるかが問題になつてくる。著者は Keohler 及び Seitz⁽⁷⁾ に始まる轉位の分布密度を電気抵抗から計算する一聯の研究⁽⁸⁾ を考慮して水素ガスを飽和に近い迄含有する試料と比較的含有効果の少い (10^3 に 1 個) 二試料を單結晶化したものの抵抗を比較して検討を加へて見た。

Table. 1 に測定結果の一例を示す。即ち焼鈍された單結晶では水素原子の固溶する量

Table 1.

Treatment \ Kinds	Al	Al included hydrogen atoms
Annealed Specimen (Single Crystal)	2.37×10^{-6}	2.34×10^{-6}
Cold-Worked Specimen ($\div 80\%$)	2.82×10^{-6}	2.99×10^{-6}

The comparable values of the Electrical resistivity of pure aluminium and that including hydrogen atoms. (unit: ohm-cm)

の多い程抵抗は低く、変形量の増加に伴つて水素固溶量の多い試料の抵抗が極度に増加して居ることが認められる。このことは完全焼鈍結晶では大凡 10^4 ケ又はそれ以上の原子に 1 ケの割合で轉位が存在すると考られ、即ち轉位に何等かの作用を及ぼす水素原子の影響が小さく比較的多数発生した格子欠陥に水素原子が落込む効果を考慮する必要がある (Fig.1) 何故なら電気抵抗に関する電子散乱因子は欠陥箇所で急激に増加することが知られてゐ

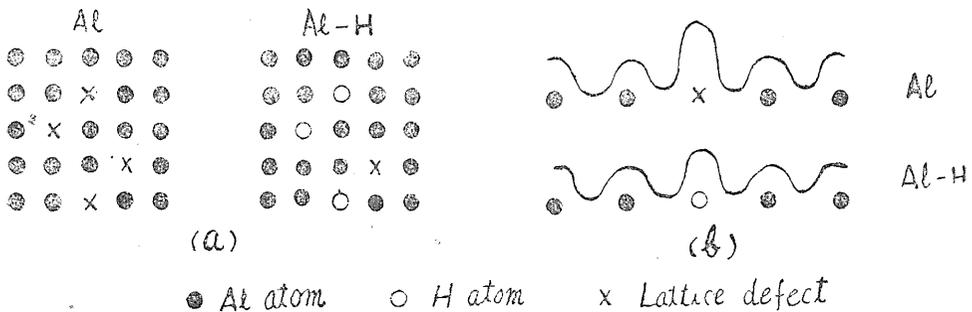


Fig. 1. Effect of hydrogen atom in both the lattice formation and the scattering property of free electron.

る。又変形に伴ふ比抵抗値の変化は Matthiesson の法則

$$\Delta\rho = \Delta\rho_{\text{thermal}} + \Delta\rho_{\text{dislocation}}$$

で表はされるから、加工量の増大に伴つて多量な水素固溶試料では特に水素原子が転位に又転位が水素原子に引つけられる効果が顕著になり⁽⁴⁾⁽⁵⁾ 変形ポテンシャルの増加、従つて電子散乱効果即ち $\Delta\rho_{\text{dislocation}}$ の値も大きくなるであらう。勿論中間の変形過程で上述の二結果が cancel される所がある筈であるがこれは極めて微弱な加工程度で起るものと考へられる。今 Fig. 2 (a) の如く, Seitz 一派⁽⁷⁾ の暗示と理論的検討に従つて, 転位抵抗が

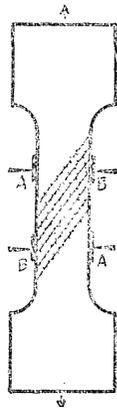


Fig. 2(a): Showing the asymmetry in electrical resistivity of a tensile specimen which occurs if the density of dislocations is greatest in the immediate vicinity of a slip band. Namely the electrical resistivity would be larger in going through the specimen using electrodes AA than it would be if electrodes BB were used. (After Koehler & Seitz.)



(b) Showing the equipotential curve in which electrodes PQ were used.

電場と向き方向との爲す角度への依存性から特に迂り帯近傍に存在する水素原子が転位の分布密度に及ぼす影響を可成り定量的に迄見出すことも可能な筈である。^{*} その時の電流密度分布の一例を Fig. 2 (b) に示しておく。又 Fig. 3. はその抵抗変化と迂り帯との関係曲線を示したものである。

b) 岩塩単結晶の迂り帯：

大抵の結晶は連続的でなく雪崩れて変形を生ずることは古くから知られてゐるが岩塩結晶でもクリープの場合⁽⁹⁾ と同様、一定外力に依つて應力が迂り帯近傍に集中する有様は弾性限を少し超えた荷重で光弾性実験に依つて不連続的な迂りの現象として既に観察されてゐる。⁽¹⁰⁾ 理想的には4分の一波長板で円偏光にして應力の不均一分布を精密に測定すべきであつたが、単色光源(水銀燈)が弱くて視野が暗くなる欠点があつたので直交=コルを用ひて焼鈍単結晶の一定外圧下に於ける連続的観察を行つた。圧力 80~100 gr/mm² 程度を加へて置くと、Fig. 4 (a) の数字の線の順に時間の経過と共に不連続的に変化してゆ

* 近く金属学会講演会にて発表の予定。

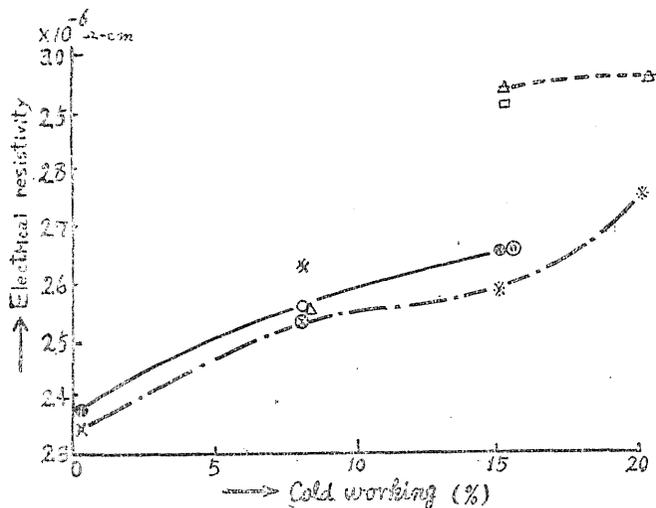


Fig. 3. Relation between electrical resistivity and cold working at various conditions. The surface of the specimen is (100) approximately.

- Al Single crystal
- parallel to the slip band
- △ Normal to the slip band
- ⊙ Parallel to the heavy line of double slip
- Crossing over the double slip
- × Al including hydrogen atom
- ⊗ Parallel to the slip band
- ※ Normal to the slip band
- ※ Parallel to the heavy line of double slip
- ☆ Crossing over the double slip

くのが認められる。勿論無加圧状態では視野は暗い。(試料の研磨は硝子面上での金剛砂と水の混液上で行った後酸化クロムのバフ仕上を行ひマイクロメータで精密に加圧面間距離を平行にすることが必要である。尙室内の湿氣に充分注意せぬと加圧に伴つて結晶の表面に所謂“汗かき”現象を呈して水滴を生ずる。) 差当つて Fig. 4 (a) 図に於て、應力

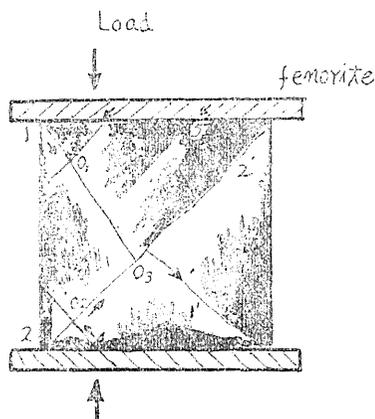
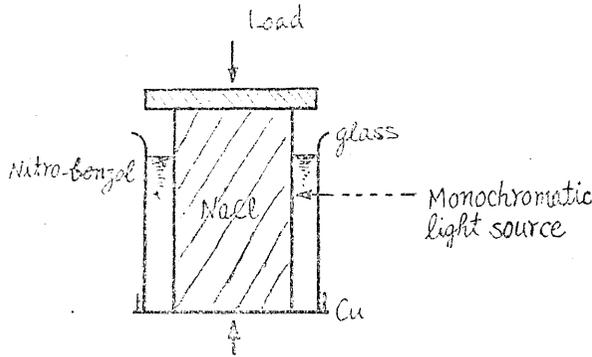


Fig. 4. (a) Showing the photo-elastic phenomenon in NaCl keeping the same load for a long time.

Fig. 4 (b)



が交叉集中する点でのせり帯の形成機構に関する検討は興味あるものと考へられる。即ち荷重を加へてゆくと視野が全面に亘つて幾分明くなるが圧力を約 90 gr/mm² 程度の一定に保持して置くと最初に結晶の隅から番号 1 及び 2 の順に輝線が現はれる。この輝線が O₁ 及び O₂ まで延びたとき (何れも附荷後数秒) 突然略々直角方向の表面から 3 及び 4 の輝線が現れる。この過程は輝線の横断箇所では殆んど見受けられる現象の様に想はれる。結晶の表面から而も最も應力の集中する結晶の隅端からせりの発達してゆく現象は既に著者に依つても前に報告されてゐるが⁽¹¹⁾、最初の輝線が横断箇所突然停止して他の結晶表面から内部に向つて傳播進行する轉位が何らかの格子の不規則箇所 (Sub-boundary, モザイク, ブロック等) で停止する結果、新たな轉位の運動が他の表面箇所より発生するものと考へられる。〔これは Nye⁽¹²⁾ の論文の緒言に於て Orowan⁽¹³⁾ によつてジグザグな曲折した変形として Kink band と呼称されてゐることを知つた。〕又ニトロベンゾール (沸点: 205°~211°C) が岩塩と同一の屈折率を以つてゐるから、Fig. 4 (b) の如くそれに岩塩を沈めて高温でのせり現象の測定及び歪力の消滅状況を検討することは興味あることであらう。何はともあれ、或る程度の確からしさを以つて、應力が増大して明るさを増してゆく過程での轉位分布状況を認知せんが爲には表面状況を拡大して見ることが極めて望ましい。尙結晶生長機構に関することであるが、岩塩単結晶を熔融移動坩堝法⁽¹²⁾ に依つて製作する過程に於て試料表面のみが僅かに單結晶化から残された熔融状態にある時に、電源を切つて炉の上端から坩堝を引上げると Fig. 5 に示される如き渦狀結晶の発達が偶然にも光学顕微鏡的に認められた。之は電子顕微鏡に依つて種々の結晶生長過程に認められた⁽¹¹⁾⁽²⁾⁽²¹⁾

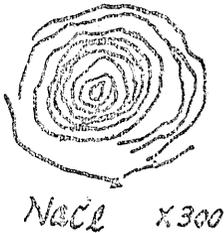


Fig. 5.
Layer formation on crystal of sodium chloride.

が偶然にも光学顕微鏡的に認められた。之は電子顕微鏡に依つて種々の結晶生長過程に認められた⁽¹¹⁾⁽²⁾⁽²¹⁾ ラセン狀 (screw) 轉位と刃狀 (edge) 轉位の交互繼承運動に依る所謂 "Prismatic dislocation" の形成と何等かの一致を有してゐる様に想はれる。

c) 塩化銀結晶の感光過程:

塩化銀結晶の感光過程が Ag⁺ イオンに依ることは Mott 及び Gurney の共著に詳述されてゐる。⁽¹⁴⁾ 即ち Fig. 6 に於て熱的擾亂の爲に生ずる可動的な固溶

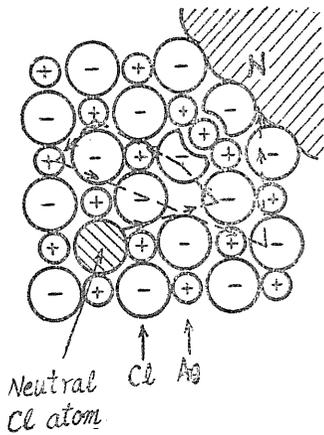


Fig. 6.

Schematic representation of the Gurney and Mott theory of the print out effect.

銀イオン B と同時に発生する空格子点 C は何れも傳導に充分な寄與を行ふ。この時一つの光子が塩素イオンから一電子を叩き出す爲にこの電子は後ろに中性の塩素原子を残して熱擾乱の下に結晶中を動き廻る。その彷徨過程で電子は金属銀の微片上に捕えられ、その結果固溶銀イオンの傳導に依つて中性化される様に金属銀微片(最初から存在すると考へられる)上に一個の“おとり”たる負の電荷を生じたことになる。換言すればこれに依つて金属銀微片の汚点上に一金属原子を加算したことになる。此の場合、定常電流を流して結晶を分解させることなく常に零に保つて適度な一定の電圧(数千ボルト)を断続的に結晶に加へることで光電子の彷徨を曲げて黒化する場所を變へる可能性のあることについての實驗的研究が Hayns 及び Shockley に依つて行はれた。⁽¹⁵⁾ この回路は戦時中からの rader に於ける発振管の發達に伴ひ 10^{-6} sec.

(数百~数千 M. C.) 程度の脈動電圧強出力(1 KW 以上)の發生に依つて成し遂げられてゐる。⁽¹⁶⁾ 我々は低電圧廻轉放電間隙法⁽¹⁶⁾による機械的發振回路を一時使用して實驗中であるが、上述の考へから迂り帯内での轉位上への電子捕獲の可能性が大きいことも同様に指摘される。之等の感光粒子はデオ硫酸ソーダ(ハイボ)で取除かれた後、メチルメタクリル-アルミニウム法に依つて蒸着又は Shadowing を行ひ、そのレプリカを電子顯微鏡に依つて撮影するのであるが顯微鏡の分解能($3 \mu = 3 \times 10^{-7}$ cm)と考へ合せて轉位の分布密度を精確に検討することは可成り困難な問題であることも想像される。その写真の一例は Fig. 7 (a) 及び (b) に示される。此の場合に (a) の黒色部分及び黒点は銀粒子の汚点の集合を表はし (b) の黒色環は恐らく、同一腐蝕(ハイボ)條件で銀粒子の劃然しない所、即ち感光過程の遅速、及び多寡に關聯するもの様である。

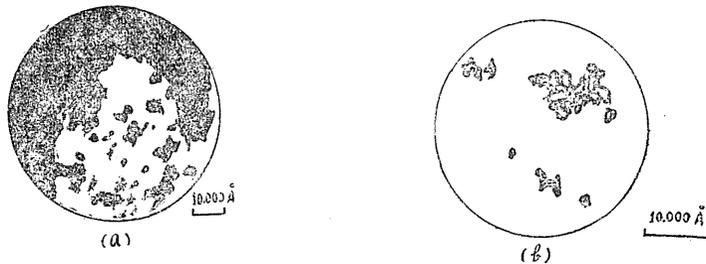


Fig. 7. Showing the silver specks as revealed by the electron microscope as the result of punching deformation after being exposed to the light source for 20 minutes. The centre (a) and the edge (b) of the specimen.

(5) 總括

以上、転位の分布密度を認識する手段として二、三の予備的な実験及び考察を加へたのであるが、その他、適当な低荷重、低温度で二元規則合金の箔箔実験に依つて規則格子の崩壊過程から線転位が通り帯内を通過する有様を検討する試みが二、三爲されつつある。⁽¹³⁾⁽¹⁷⁾ 然し乍ら尙一層簡単な而も核心的に転位を認知する手段は無いものであらうか。以上の様な線に沿つての集中的な実験から、より定量的な結晶の変形及び再結晶に関連した現象の究明される日も遠くはないであらう。終りに臨み、本研究への刺戟と実験は本学、岩村霽郎博士、松田正一氏並びに学習院大学理学部大川章哉氏の有益なる教示と御助力なくしては成し得られなかつた。此処に記して感謝の意を表し度い。

(昭和26年10月15日受付)

References:

- (1) W. L. Bragg & J. F. Nye: Proc. Roy. Soc. A150 (1947) 474
- (2) P. Lacombe: Rep. Conf. Strength. Solids. (1948) 92
R.W. Cahn: J. Inst. Metals 76 (1949) 121
C. G. Dunn: J. Metals Feb. (1951)
- (3) 金属談話会に一部報告
- (4) H. Iwamura & N. Shiota: J. Phys. Soc. Japan. 6 (1951) 227
- (5) 岩村: 應用物理 13 (1944) 7
- (6) A. H. Cottrell: Rep. Conf S. S. (1948) 30
- (7) J. S. Koehler & F. Seitz: J. App. Mech. Sept. (1947) A-217
- (8) J. S. Koehler: Phys. Rev. 75 (1949) 106
J. K. Mackenzie & E. H. Sondheimer: Phys. Rev. 77 (1950) 264
R. Landauer: Phys. Rev. 82 (1951) 520
- (9) M. Klassen-Nekludowa: Zeits. f. Phys. 55 (1929) 55
- (10) I. W. Obreimow & L. W. Schubnikoff: ibd. 41 (1921) 907
- (11) 塩田: 金属学会誌 15 (1951) 205
- (12) 塩田: 本誌 同巻
- (13) C. W. Bunn: Chem. Crystallography (1950)
鈴木平: 26年度金属学会春期講演
- (14) N. F. Mott & R. W. Gurney: Electronic Processes in Ionic Crystals (1940) 122
- (15) J. R. Haynes & W. Shockley: Rep. Conf. S. S. (1948) 151
- (16) F. S. Goucher, J. R. Haynes, W. A. Depp & E. J. Ryder: Bell. Syst. Tech. J. 25 (1946) 563
- (17) 大川章哉氏の实验私信による。
- (18) C. Orowan: Nature 149 (1942) 643
- (19) J. F. Nye: Proc. Roy. Soc. 198 (1949) 190
- (20) L. J. Griffin: Phil. Mag. 41 (1950) 196
- (21) I. M. Dawson & V. Vand: Nature 167 (1951) 476