單結晶による金屬の加工歪並びに變形の研究 (第 3 報) 細管 X 線管法による研究

吉 岡 正 三* 井 村 徹*

S. Yoshioka and T. Imura: The Study of Work-stress and Deformation of Metals in Single Crystal (III) Study by the Capillary X-ray Tube. The internal structure of Al single crystals was studied by means of the capillary X-ray tube newly designed by the authors. The change of the lattice structure according to the state of tension, recovering and recrystallization was progressively observed. The diffraction patterns were very characteristic: (a) in the case of back reflection, the patterns were composed of ellipses, which indicated the state of atomic planes nearly parallel to the apparent surface of specimen; (b) in the case of transmission, the patterns developed were very analogous to those by Kossel, and these patterns were thought to indicate the state of atomic arrangement in the direction nearly perpendicular to the surface of specimen.

The results of these patterns were as follows: (1) the quantitative measurement of lattice distortion became possible, which is thought impossible by the usual Laue method; (2) the value of d varied by the degree of deformation, but the order of the variation, e.g., the value of Δd and the sign ($\pm$) observed in each plane were both indefinite; (3) the effect of recovery by heating was clearly observed as the revival of the sharpness of reflection lines, but the complete restoration of initial sharpness could not be expected without the recrystallization by full annealing; (4) in the stage of this annealing "multiple type subdivision" of diffraction lines was observed.

(Received October 1, 1951)

I. 緒 言

金屬結晶の加工内部歪とか、その他組織變化は多結晶試料においては、どちらかといえば統計的な意味で扱われる程度定量化されてきている。しかるに單結晶試料においては、基本的重要性をもちながら從來の X 線の測定の結果ではなお基礎的資料において不足であつて、内部歪あるいは結晶構造の變化を單位構造の問題として定量的に取扱うことが困難であつた。この問題については現在多くの優れた學說が提唱されているけれども、端的に言えば、それらもすべて假説乃至臆説にすぎぬとも考えられるのである。最近著者等の設計製作になつた細管 X 線管球[†]は、格子常數の測定、單位結晶の方位變化、その他結晶の内部構造の變化の模様を観察する上に非常に優れた性能を有することが明らかになつたので、これによる研究結果が或いは上述のような困難を解決するの一端緒となり得れば幸と思ひ、ここにその結果について報告する。試料として Al 單結晶が用いられ、この加工、恢復、再結晶の各過程における X 線迴折圖形の變化から、金屬單結晶の變形時における加工歪の本質的な解明を意圖しているわけであるが、本報告はその端緒をなすものにすぎない。

さて、管球細管部の先端に貼られた對陰極銅箔から發散する特性 X 線は、試料板にあたつて透過迴折線としては黒、白双曲線からなる類似 Kossel 圖形を、背面反射像としては擬似橢圓圖形を與える[†]。そして前者は板面に直角

に近い面 (特に板面に直角に近く、引張方向に垂直に近い面重要)、後者は板面に平行に近い面の諸量の變化を見るに都合がよい。こゝでは透過、反射兩寫眞を各種状態でそれぞれ撮影して、上記研究を進めているので、今迄得られた成果の一部を述べることにする。

II. 實驗裝置並びに實驗方法

裝置は細管 X 線管球と呼ばれるものであつて、これについては先報[†]を参照されたい。要は細管先端に貼られた對陰極としての Cu 箔上に焦點を結ぶ如く電子レンズでしぼられた電子線は、箔に衝突してここを光源とする Cu 特性 X 線を出す。この發散 X 線は、對陰極前面に設置された試料たる Al 單結晶板に廣い角度範圍をもつて入射し、透過迴折像としては黒線、白線からなる類似 Kossel 圖形を、背面反射像としては、橢圓狀圖形からなる背面反射圖形をフィルム上に印する。試料としては再結晶法によつて作製した厚さ 0.1~0.5 mm の Al 單結晶板を用い、その方位は任意に成長させたものと、ある特定面例えば、(111), (110), (100) 等を板面に平行になるようにしたものがある。これ等の試料は支持器を兼ねた引張り裝置に裝着され、各種の引張り變形を受けた状態並びに種々の溫度で加工後 1 時間の焼鈍を受けた状態で撮影される。常用實驗條件の概略を下表 Table 1 に示す。圖形解析の際わかるが、對陰極-試料間距離測定、フィルムと細管軸との交點の規正に特に注意をほらう必要がある。前者については、支持器下部に附屬している副尺 1/100 讀みにて光學台上目盛りとの間に試料位置の規正ができるので、無歪試

* 浪速大學工學部

† 詳細は著者の内一名による本誌前報告“細管 X 線管球による類似 Kossel 圖形の出現とその應用について”を参照されたい。

料を撮影した際の試料位置と對陰極間、對陰極位置とフィルム間をこれで一應読みとり、面間距り d 計算を行う際補正計算を行い、以後試料位置はこの際のものを守るべく

Table 1 Photographing Conditions for the Copillary X-ray Tube in Common Use.

Method	Distance between Target and Sample	Distance between Target and Film	Thickness of Sample	Tube Current	Tube Voltage	Coil Current of Electro-magnetic Lens	Exposure	Size of Film
Transmission	1~3 mm	~100 mm	0.1~0.3 mm	0.1~0.8 mA	30~35KV	0.1~0.5 A	30~40 min	6.0cm×8.0 cm
Back Reflection	3~5 mm	100~150 mm	0.1~0.5 mm	0.3~1.0 mA	30~40KV	0.1~0.5 A	60~80 min	25cm×30 cm

する。後者については、やはり標準となる無歪試料の寫眞を撮影した際、フィルム中心圓孔と中を通る細管との關係位置を測定作圖し、フィルム面上この細管軸の交點を求め、以後一聯の實驗はすべてこの關係位置から交點を求め用いることとしている。一試料についての一聯の實驗には同一露出條件を守るべく注意され(特に透過法において) Table 1 からもわかる如く、對陰極直前方、後方にフィルムをおけば、試料厚さと、對陰極-試料間距離を適當に選定さえすれば、透過、背面反射兩寫眞が同時に撮影されることも特長で、引張り變形中の各種格子面の廻轉あるいは撓み状況を同時に知ることができる。

III. 圖形解析の原理と方法

1. 透過法の場合

細管軸に略々平行な試料中の格子面は、Bragg 角 θ をなす入射線を選び廻折を起して、細管軸をはさむ廻折條件をみたす同一種上下面の廻折像としてフィルム上に黒、白對應双曲線を二組印することになる。こゝでは、細管軸とフィルム面との交點 c をはさみ兩側に黒白線を印するようなこの種格子面が對象となる。(Fig. 1) c から一

Fig. 1 Relative Position of "Dark and Light" Lines in the Pseudo Kossel Pattern.

O: Source of diverging X-ray beam.

組の黒、白對應線への垂線の長さ S_1, S_2 他の一組へのその長さ S_1', S_2' とすれば、これは Bragg 角 θ と次の關係

$$\tan \theta_1 = S_1/L; \tan \theta_2 = S_2/L; \theta = (\theta_1 + \theta_2)/2;$$

(ここに L は試料-フィルム間距離であり、 S_1', S_2' についても全く同様關係がある)があるので、これから θ を求め、 $\lambda = 2d \sin \theta$ の式から d を計算し求めるのであるが、 S_1', S_2' を用いての d の値と、 S_1, S_2 を用いた d の

値の平均値はより確からしい値となる。そこで圖形の處理としては、我々の得た寫眞においては、フィルム中心部は黒化の反轉を起した如く白小圓に抜けていて、 c は求めや

すいので、 c を中心一對の双曲線に交わる圓弧を書く。この二双曲線それぞれについての交點を結ぶ線分の垂直二等分線は共に c を通り、 c からこの線と兩双曲線の交點迄の距離を測定すれば、前述の S_1, S_2 に相當するものが得られる。後は試料-フィルム間距離 L を測定(これは無歪試料を用いた際の d 計算の逆計算で補正される)すれば、 d の計算ができるわけである。

2. 背面反射法の場合

(1) 解析原理 Fig. 2 に示す如く光源 O から發散した

Fig. 2 A Scheme of Pattern Obtained by the Diverging Characteristic X-ray Produced by the Capillary X-ray Tube (back-reflection method).

X線は、單結晶板の廻折條件をみたす格子面で反射されてフィルム上に E, F を通る橢圓狀圖形 (E', F' を通る橢圓に E, E' 、及び F, F' 間等にあたる帶部を縁付したものである)を印する。この場合 ON を、 O より發散して板面部で反射される前記 X 線束の造る圓錐の軸とすると、 ON は橢圓狀圖形 EF を反射する格子面に垂直であるから、 $EF, CE, CF, t, h, \gamma, \delta$ 等の間には (C は O からフィルム面への垂線の足で、細管軸のフィルム面の交點のはず) 次の關係があることが知られている⁽¹⁾。

$$\tan(\gamma + \delta) = \{CE - EF/(t/h_2 + 2)\}/t \dots\dots\dots(1)$$

$$\tan(\gamma - \delta) = \{CF - EF/(t/h_2 + 2)\}/t \dots\dots\dots(2)$$

圖形解析操作から C, N が求められ、 EF, CE, CF 並びに t, h 等の量が與えられると、(1), (2) 式より γ, δ が計算出来なおこの γ と廻折角 θ の間には $\theta = \pi/2 - \gamma$ の關

(1) 例えば、T. Fujiwara, I. Takeshita, J. Sci. Hiroshima Univ. SA., 2 (1941), 93.

が、加工度 6~10% 間の若干の不規則偏差は二重なり

その他の原因によるものようである。なお結晶の方位決定と軸廻轉の詳細については、他日にゆづる。

(b) 面間距離の測定 變形時における試料内各格子面間距離の變化の測定は基本的な重要性をもっているにも拘らず、從來多結晶について、第一種、第二種内部應力なる名のもとに格子歪の測定が行われているにすぎない。この問題を単位構造の上で基本的に考えるならば、金屬結晶の歪みとは本質的には結晶格子と関連して考えなければならないことであつて、轉位論はこの點の解釋の上で一步をふみ出した優れた學說であるが、なお弾性、疲労、匄匄等の現象の説明には若干の疑義があるように思われる。この問題の究明には單結晶による研究がもつと進められなければならないのであるが、この研究はその方法上の困難さに加えて、從來の方法では多くの場合結果の解釋の自由度が大きすぎるために、決定的結論が得難かつたように見える。著者等が試みとして行つた細管々球による研究が、この難問の解決の一助になれば幸と思つて、ここに報告する次第である。勿論この方法によつても精度の點で背面反射法によるものは秀れていて、一般解析操作で小數點以下4桁目迄は望みうるが、類似 Kossel 像によるものは3桁目がせいぜ

若干變化をきたすにすぎない (Table 2) (Photo. 2) それはこの面に働く垂直應力が小さいためであらう。一方類似 Kossel 線は、引張り方向に近いような面が測定可能

Fig. 5 The Changes of Lattice Constants Versus Elongation Per Cent. The specimen is the same as that of Photo. 2. The scale of right side ordinate is of the curve (200), and that of left side is of the curve (111) and (11-1). The chain-lines indicate the normal values of each lattice constant.

な對應線として現われる場合もあり、これによる結果は、相當大きい變化が見られる。また他の格子面では變化量の相異が現われ、また面によつては (例えば Fig. 5 の例で

Table 2 The Lattice Constants Calculated from the Reflection Pattern.

No.	t	CE	CF	EF	h/2	α	$\tan(\gamma+\delta)$	$\tan(\gamma-\delta)$	$\gamma+\delta$	$\gamma-\delta$	γ	δ	θ	$\sin \theta$	d
1	79.20	47.25	40.80	88.05	4.02	4.057	0.54541	0.46392	28°36.5'	24°53.3'	26°44.9'	1°51.6'	63°15.1'	0.892989	0.7779
4	"	48.00	40.75	88.75	4.03	4.099	0.55431	0.46277	29°00'	24°50'	26°55'	2°05'	63°05'	0.891666	0.7790
6	"	46.90	42.00	88.90	4.00	4.078	0.54068	0.47881	28°24'	25°35.1'	26°59.5'	1°24.5'	63°00.4'	0.89106	0.7796
7	"	50.45	39.35	89.80	4.00	4.119	0.58499	0.44484	30°19.6'	23°58.9'	27°09.2'	3°10.4'	62°50.8'	0.889788	0.7807

$$\lambda_{k\beta_1} = 1.3893; \quad \alpha = \frac{EF}{t/h + 2}; \quad (hkl) = (333)$$

Photo. 3 Reflection Pattern of the Same Specimen as Photo. 2 Elongated 5.02% by Tension and Annealed for 1 hr at 300°.

Photo. 4 Same as Photo. 3, Provided that the Annealing Temperature is 650°.

いようであり、その點考慮して取扱われるべきである。背面反射法によると、(111)のほとんど板面に出ている試料の引張りにおいて、この(111)面間距離の變化は比較的小さく、小數點以下4桁目から、小數點以下3桁目において

は(111)面において)ある加工度(約8%)以上では面間隔に相違が認められず、その以前の變化の模様には若干の不規則性がある。Fig. 5はdの變化の模様を加工度に對しplotしてある。これだけの結果ではあまり定量的に立入つた結論は出せないが、要は面によりそのdの變化に差異が認められることであり、更に一般的にいえば、一般に歪みとして大雑把に考いられている格子の撓みは、異なる格子面上の分布では特性的に異なる量と符號とを負荷すべきもので、上の結果はこれを事實的に示唆するものように考えられる。これは多結晶試料での弾性歪力測定の基礎概念に反省を與える一資料となる

であらう。この様に變形の進むにつれ背面反射法寫眞の方にはまた加工度約5%から $K\alpha_1, K\alpha_2$ doubletの分離不明瞭になり、線廣散が相當起つて來て、一方楕圓狀圖形の線周に沿ひ強度分布に差異を生じてくる。詳細な觀察の下で

は、橢圓狀圖形の歪みとしてあるいは若干個の橢圓形の弧の集合が1個の橢圓狀圖形を形造る如くに現われ、線周に沿う更に小さい圖形歪も期待できるようであるが明確には今のところ申されぬ。これらは内部組織的なものすなわち迂りに沿う結晶微細構造例えば迂り阻止とか下部結晶 block の彎曲、回轉の様とも關係があろうが、それは變形機構に關する更に詳細な論の際にゆずる。

(c) 恢復、再結晶過程における圖形變化 加熱溫度、時間の影響を主として定性的に述べる。5% 引張り加工を與えた試料を 220°, 300°, 400°, 500°, 600°, 650° (各 $\pm 5^\circ$) の各溫度に1時間ずつ加熱した。加工直後背面反射寫眞では、元來無歪試料で大きく分離するはずの (511) 面の $K\alpha_1$, $K\alpha_2$ doublet の分離さえ充分認められないが、220° にて若干分離が認められ、300° では各線ともに分離は明瞭度を加える (Photo. 3)。400° 以後は (422) 面等他の分離間隔小さい面の迴折線にも分離が認められ始め、650° 1時間の焼鈍にもなると、線に若干の擴散を残すも、全體として分離は明瞭で、内部歪のほとんどが除かれた如くである* (Photo. 4)。しかし完全に變形前の如き線擴散の除かれるのは、この程度の加熱時間では充分でなく、再結晶が起つた場合に初めて望み得られることがわかつた。一般にかかる低加工度の單結晶試料では、所謂再結晶は容易に起らずに、圖形上 600° あたりから、擴散して幅をもつていた線が分裂して、比較的鮮鋭な(從つて歪の少い) doublet の重複した如き圖形となる。これは 650° 焼鈍で明瞭で、周

に沿い部分的に sharp な doublet が2重、あるいは3重に重なり、2あるいは3個の微細な結晶片がその方向の照射部で結晶地内にできていることが知られる。これは先に著者等が Laue法で、微細再結晶と假稱したものに對應すると思われる。類似 Kossel 像を使つた場合も略々同様なことが云えるようであり、その鮮銳度は再結晶を起して初めて完全に原狀に復する如くである。

V. 総 括

以上一應結果をまとめると、

(1) 格子面の迴轉について定量化が可能になり、變形初期には加工量と略々直線的關係が見出せるが、加工度が進むと必ずしもそうでない。

(2) 透過、背面反射兩法で、單結晶の色々な面の格子面間距離 d が同時に測定され得る。變形時の d の變化については、面によつて變化量がことなり、膨脹、收縮にあたる兩場合がある。同時に迴折線の擴散、及び強度偏折が認められ、反射寫眞では、 $K\alpha_1$, $K\alpha_2$ doublet の分離の明瞭な加工限界が見出された。

(3) 恢復、再結晶段階での圖形變化が觀察され、高温焼鈍で doublet の分離は良くなるが、完全に加工前の状態にかえるのは再結晶後である。

(4) 低度加工後の試料の焼鈍において、高温焼鈍で明瞭な重複型迴折線分裂が起り、この焼鈍時に微結晶の生育が見られるようである。

稿を了えるにあたり本實驗に好意をよせられた名古屋大學山下忠美氏に厚く感謝する。

* Photo. 3, 4と Photo. 2 の A 部を比較すれば(242)面の恢復がよくわかる。