Mg の 変 形 組 織 の 電 顕 観 察

吉 岡 正 三* 中 山 豊*

Shozo Yoshioka and Yutaka Nakayama: Electron-Microscope Studies of Deformed Mg. The distribution and behaviour of dislocations, and also the fine structure of mechanical twin in magnesium deformed at room temperature were studied by means of the transmission electron microscopy. The most striking feature of dislocations in deformed magnesium was that the dislocations piled up toward the grain boundary. Besides this, the entangled dislocations were found along the twin boundaries. From these phenomena, some inferences are made as to the probable trend of the work-hardening of polycrystalline magnesium deformed at room temperature.

* 大阪府立大学工学部 (College of Engineering, Uni-

versity of Osaka Prefecture, Sakai)

Evidence was found for the occasional separation of perfect dislocations into partial ones separated by a stacking fault. However, the loops of prismatic dislocations containing a stacking fault probably originated in the precipitation of vacancies could not be found even in magnesium severely deformed at room temperature and quenched magnesium.

(Received July 4, 1962)

I. 緒 言

稠密六方金属に関し、加工に伴う転位の挙動および積層欠陥などの電子顕微鏡による直接観察は、Zn⁽¹⁾⁽²⁾ および Cd⁽³⁾⁽⁴⁾ で散見するだけで、ほとんど系統だった研究は行なわれていない。

従来、稠密六方金属における加工硬化は、面心立方金属の容易に領域に似たものとして、簡単に取扱われ、単ににり変形のみから説明されてきた。しかし、これら金属の特長として、ある特定方位を有する試料では変形時、特に硬化が顕著にあらわれる領域ではにりのみならず、双晶変形をも行ない、その加工硬化は、面心立方金属の容易に領域に比して、複雑なようである。そこで、Zn, Cd, Mg などの稠密六方金属のうち、比較的加工硬化が顕著である Mg を試料として加工時における転位の挙動ならびに変形双晶の微細構造などを電子顕微鏡直接観察によつて調べ、硬化に寄与する要因を追究した。

II. 試 料 お よ び そ の 作 製 法

稠密六方金属は、面心立方および体心立方金属に比較して、対称度が低く異方性を有する。故に微量不純物が、その塑性変形に与える影響は大きい。そのため試料とした Mg は 99.99 % の高純度のものを使用した。

圧延などによつて所要の変形を与えた後、正磷酸、エチルアルコール 3:7 の比の電解研摩液で研摩し、直接観察用試料を、Bollmann 法⁽⁵⁾ によつて作製した。陰極にステンレス鋼を用い、電圧 4 V、電流密度 14 mA/cm²、液温 0~2°C の研摩条件の場合、最も満足すべき薄膜が得られた。

III. 加 工 に 伴 う 転 位 の 挙 動

冷間加工された Mg を直ちに電解研摩し、直接観察を行なつたが、すでに室温でも回復過程を経ているためか、W などの高融点金属に見受けられるような特長ある加工組織⁽⁶⁾ は観察されなかつた。

直接観察中、電子ビーム照射によつて、転移が移動するのがしばしば観察された。これは、試料薄膜が電子ビームによつて照射され、その結果照射部が局所的に加熱され、

これに伴う温度勾配により生じた応力ので、これらの転位が移動するものと考えられる。すなわち Photo.1 の矢印

Photo.1 Dislocations moved in the opposite direction in Mg. Note dislocations bowed out in the opposite sense.

で示されたように、互いに反対方向に移動している転位が見出されたが、これは同じ応力のもとで移動するのであるから、多分互いに反対符号を有する転位であると考えられる。

制限視野電子回折から、これらの転位はいずれも稠密六方金属の主にり系と一致して、(0001) 面内で $\langle 2\bar{1}10 \rangle$ 方位に移動しているのが確認された。

このように、電子ビーム照射によつて移動する転位のうち、時には不純物原子などによつて固着されていると考えられる転位によつて、その運動が阻害され、その部分で移動を停止する場合も観察された。また時として、Photo.2 (a)~(e) に示す如く、移動転位が結晶粒界に吸収され、消滅しているのが観察された。これは Photo.2 で観察される結晶粒界 A の構造および配置が、転位を吸収するのに好都合な場合であつて、特殊な場合と考えられる。しかしこのように、結晶粒界に転位が吸収される場合、粒界における転位密度は増大し、その結果、隣接結晶粒間の方位差が増大する。

しかし、一般の大傾角粒界は、その構成から考察されるように、転位吸収にはむしろ都合の悪い領域である。事実

- (1) A. Fourdeux, A. Berghezan and W. W. Webb: J. Appl. Phys., **31** (1960), 918.
- (2) A. Berghezan, A. Fourdeux and S. Amelinckx: Acta Met., **9** (1961), 464.
- (3) P. B. Price: J. Appl. Phys., **32** (1961), 1746.
- (4) P. B. Price: J. Appl. Phys., **32** (1961), 1750.
- (5) W. Bollmann: Phys. Rev., **103** (1956), 1588.
- (6) F. O. Jones: J. Less-Common Metals, **2** (1960), 163.

- (7) M. J. Whelan, P. B. Hirsch, R. W. Horn and W. Bollmann: Proc. Roy. Soc., **A204** (1957), 524.

Photo.3 に示す如く、転位が結晶粒界でその運動をさまたげられ、その結果一群の転位が結晶粒界において堆積し、

(a)

(b)

(c)

(d)

(e)

Photo.2 Sequence of photographs of the same area.

(a) 0 sec. (b) 15 secs.
(c) 30 secs. (d) 45 secs.
(e) 1 min.

Notice dislocation loops
sunk into the grain
boundary.

Photo.3 Dislocations piled up toward the grain boundary. Arrows indicate the grain boundary.

粒界には吸収されていないことが観察された。このように、転位が結晶粒界のごとき障害物によつて、その前進を阻止され堆積し、その逆応力によつて新しい転位の運動が抑えられる。

多結晶体の加工硬化の一因として、結晶粒界の存在が考えられてきた。結晶粒界自体の動的挙動⁽⁸⁾、或いは隣接結晶粒間の方位差などは勿論考慮せねばならぬが、結晶粒界が転位の運動、すなわち塑性変形の大きな障害物であることは明白である。多結晶体における硬化率が、平均結晶粒径に大きく左右される事実⁽⁹⁾は、上記の実験事実からも理解される。

しかし、一般に、 n 個の転位が応力 σ の下で、障害物に向つて押しつめられて停止していると、その先端には $n\sigma$ の程度の大きな応力集中が起ることが知られている。この応力緩和のため、堆積転位群の先端から隣接結晶粒内で新たに転位が発生し、迂りが伝播する場合は、面心立方格子を有するステンレス鋼の場合に観察されている⁽¹⁰⁾。このように面心立方格子の場合迂り面が4種あり、迂りを伝播するのにいずれか一つの迂り面が方位的にも好都合な場合が多い。しかし稠密六方金属では、室温近傍での主迂り面はただ一つしか存在せず、面心立方金属に比して隣接する結晶粒にまで迂りが伝播する機会は非常に少ないと考えられる。

事実、直接観察によつても、堆積転位群の先端から隣接結晶粒にまで迂りが伝播しているのは観察されなかつた。

このことから、六方晶金属では特に、堆積転位による応力場がほとんど一つの結晶粒に内包され、それが新しい転位の運動に対し大きな障害となるものと考えられる。

これ以外に、Photo.4 の矢印で示す如く、Cd の薄片結晶を電子顕微鏡の視野内で変形させたときに見出されたラセン転位のジョグによる転位ループ⁽⁴⁾らしきものが slip trace 内で観察された。このような転位ループが、新しい転位の運動に対する障害となることは考えられる。しかし、このような転位ループらしきものが slip trace 内などで観察された例は非常に少なく、その存在量からこれが Mg の硬化に大きく寄与しているとは考え難い。

このように、室温でほとんど単一迂り系のみで変形する Mg における硬化機構は、面心立方金属の如く、主迂り系に属する転位と、従属迂り系に属する転位との相互作用がほとんどなく、大ざっぱにいつて、結晶内部に存在する結晶粒界ならびに不純物原子などで固着されていると考えられる転位などの障害物によつて、転位の運動が一つの結晶粒に抑制されるためと考えられる。

なお、Mg の室温での変形に伴う転位の分布として注目すべきことは、ごく一部の結晶粒内で転位が六角形状転

(8) T.S.Ke: Phys. Rev., 71(1947), 533.

(9) G.V.Raynor: *The Physical Metallurgy of Magnesium and Its Alloys*, Pergamon Press (1959), 237.

(10) R.M.Fisher, A.Sziramae: *Symposium on Electron Metallography*, ASTM, (1959), 103.

位網を形成しているのを除き、多くの転位が迂り線の領域内と思われる部分で見出されることである。この現象は、

Photo.4 Dislocation loops inside the slip traces in Mg.

面心立方晶金属のうち、特に積層欠陥エネルギーの低い金属で比較的加工度の低い場合の転位の分布とよく類似している。

IV. 変形双晶

稠密六方金属における変形機構として、迂り以外に変形双晶が見逃しえない存在である。事実、直接観察で、室温で強加工された試料から、一つの結晶粒内を貫通している変形双晶が数多く見出された。制限視野電子回折から、これらの双晶はいずれも $\{10\bar{1}2\}$ 面での双晶であることが確認された。

稠密六方金属における変形双晶発生は、結晶方位に大きく依存するが⁽¹¹⁾、多結晶体では、繊維組織のごとく特別な場合を除くすれば、各結晶粒方位差から考察して、単結晶に比較して、双晶発生率は大きであつて、その上主迂り面 (0001) 面と異なり、 $\{10\bar{1}2\}$ 面は6種あり、この点からも、多結晶における双晶変形が変形機構に大きな因子となつていと思われる。さらに、稠密六方金属の変形双晶は、体心立方および面心立方金属におけるごとく、一定方向に一樣なせん断変形だけで形成されず、Fig.1に示す如く非常に複雑な原子移動を必要とする。

そこで、直接観察によつて双晶発生が如何に変形に寄与しているかを転位の挙動にからませ調べた。

その結果、Photo.5およびPhoto.6に示すごとく、双晶帯内で転位密度が高くなつていのが観察された。この理由として、双晶帯内での迂り面である底面が、Fig.1からも明らかなごとく、母格子側の底面とは方位が異なつて

おり、双晶発生後、母格子側よりは迂りやすい状態にある双晶帯内の底面で迂りを生じたものと思われる。

Fig.1 $(10\bar{1}2)$ twinning in magnesium.

Photo.5 Dislocation configuration inside the twin. Note high dislocation density inside the twin.

Photo.6 Dislocation configuration inside the twin in Mg.

-(11) P. W. Bakarian and C. H. Mathewson: Trans. AIME, 152 (1943), 218.

このように、稠密六方金属の塑性変形において、母格子内での迂りが困難な場合、まず双晶変形を起し、つぎに双晶帯内の底面が母格子側の底面に比較して、方位的に好都合な場合に、双晶帯内での迂りによって、それ以後の変形がある程度進行するものと考えられる。

さらに、Photo.7 に示すごとく、強加工された試料から、

Photo.7 Entangled dislocations along the twin boundary in heavily deformed Mg.

双晶境界近傍の母格子側でからみ合い複雑な形状を有する転位群が観察された。ここで、Photo.5 と Photo.7 とを比較すると、Photo.5 では、双晶帯内以外の領域ではほとんど転位が観察されないが、これは Photo.7 とはまったく逆の場合で、双晶帯内とそれ以外の領域ではその結晶方位が異なるため、双晶帯のみが Bragg 条件を満足しているためである。

また、300°C で 1 時間焼鈍した試料を軽く一度鎚打して、

Photo.8 Entangled dislocations along the twin boundary in lightly beaten Mg.

すなわち、Photo.5~7 の場合とは異なり、衝撃的に荷重を加えて変形双晶を生ぜしめ、これを直接観察した。その

結果、Photo.8 に示すごとく、ここでも双晶境界およびその先端でからみ合い複雑な形状を有する転位が見出された。

このように、Mg 多結晶体の変形双晶境界の母格子側で、からみ合い複雑な形状を有する転位群は、変形双晶の発生と密接な関係をもつものと推察されるが、稠密六方金属における双晶発生機構、および双晶帯と転位の相互作用などは未だ不明の点が多く、目下これらの点に関して追究中であるから、これら不明の点をより明白にすることができると思う。

V. 積 層 欠 陥

稠密六方金属における積層欠陥は、面心立方金属の場合とまったく同様に、最稠密面である底面に存在する完全転位が、エネルギー的により安定である部分転位に分解し、そこに積層欠陥を生ずる。

すなわち、底面に存在する完全転位 $a/3[11\bar{2}0]$ は

$$\frac{a}{3}[11\bar{2}0] \rightarrow \frac{a}{3}[10\bar{1}0] + \frac{a}{3}[01\bar{1}0]$$

の二つの部分転位に分解し、これらの部分転位の間に積層欠陥を生ずる。この部分転位は、積層欠陥を引きずって迂り運動を行なうことができる。

またこれ以外に、原子空孔が底面に板状に凝集し、それによって形成されるいわゆる Frank 型の積層欠陥も考えられる。ただこの場合、面心立方金属で低い積層欠陥エネルギーをもつ Au などで見出されたとき、単に最稠密面に原子空孔が凝集することにより生ずる積層欠陥は形成され難い。すなわち、稠密六方金属では、その最稠密面の積み重なりからも考察されるように、最稠密面の 1 原子面で原

Photo.9 Typical stacking fault bounded with partial dislocations in cold worked Mg.

子空孔の凝集を生じた場合、その部分では同種面が相対することになり、エネルギー的に非常に不安定であるため、原

子空孔の凝集以外にさらに余分の操作が必要である⁽²⁾。

上述の2通りの積層欠陥は、Al とほとんど同程度の高い積層欠陥エネルギーを持つと考えられていた Zn において、その存在が直接観察により確認されている⁽¹⁾⁽²⁾。そこで Zn と同程度の積層欠陥エネルギーを持つと考えられている Mg に関し、その積層欠陥が如何なる機構で形成されているかを確認するため、直接観察によって調べた。

その結果、冷間加工された試料から、Photo.9 および Photo.10 に示すごとく、積層欠陥の両端が部分転位によ

Photo.10 Typical stacking fault bounded with partial dislocations.

つて囲まれ、典型的な縞模様を示す積層欠陥像が見出された。これらは、いずれも完全転位の部分転位への分解により生じたものである。この部分転位の移動方向は、いずれも $\langle 2\bar{1}10 \rangle$ 方向であることが制限視野電子回折から確認された。ただ、その積層欠陥の幅が種々変動していた。例えば、Photo.9 に示すごとく結晶内で、その両端を有するもの、および Photo.10 で観察されるように、その一端が結晶粒界で終っている欠陥もあった。

このように、直接観察の結果、積層欠陥の幅は種々変動はしているが、試料の端、表面あるいは結晶粒界にその一端をもつものを除外して、その幅の分布を取ってみると、Fig.2 に示すごとく、平均値 ($1 \sim 2 \mu$) を中心に強いピークを有していることがわかった。

上述の底面で完全転位が二つ部分転位に分解し、その結果生ずる積層欠陥以外に、原子空孔の凝集の結果生ずると考えられる積層欠陥は、Mg の場合、圧延および引張りなどの種々の冷間加工を施した試料に関して、直接観察を行

なったが見受けられなかった。

さらに、原子空孔の凝集により生じたと考えられ、その

Fig.2 Histogram of the width of stacking faults in Mg.

周辺に刃状転位ループを伴う積層欠陥の有無を確認するため、直接観察しうる Mg の薄膜を、融点近くから 0°C に保った食塩水中に焼入れ、直ちに直接観察を行なった。しかし Mg の酸化防止のため封入した Ar ガス中に混入している微量の酸素、あるいは空気と Ar ガスの置換が不充分であつたためか、すでに酸化しており、直接観察しうる薄膜を、酸化せしめず焼入れることはできなかった。

そこで、さらにある程度の厚みを有する試料を焼入れ、直ちに電解研磨を行ない直接観察を行なったが、転位ループおよびそれに内包される積層欠陥はもちろん、部分転位による積層欠陥をも見出されなかった。

VI. 総 括

室温で変形された Mg の変形組織を、電子顕微鏡直接観察により調べ、得られた結果を要約するとつぎの通りである。

- (1) 室温における迂りは、ほとんど単一迂りであつて、(0001) 面に存在する転位の $\langle 2\bar{1}10 \rangle$ 方向への移動によって遂行される。
- (2) 変形双晶は主として $\{10\bar{1}2\}$ 面で生じ、双晶発生に附随して、新たに転位などの格子欠陥が導入されるであろう。また変形双晶発生後は、一部の双晶帯内の迂りが生じ、これによつてある程度変形が進行する。
- (3) 加工硬化は、ラセン転位のジョグによる転位ループ以外に、結晶粒界における転位の堆積にその主因がある。
- (4) 冷間加工された試料から、底面に存在する完全転位が二つの部分転位に分解し、その二つの部分転位の間に積層欠陥を形成しているのが認められた。

本研究を行なうにあたり、試料の一部を御提供下さった太陽機械製作所に厚く感謝の意を表する。