Cu-15 at% Al 単結晶の容易にり領域の 転位腐食孔による研究*

吉岡正三** 中山 豊** 伊藤太一郎***

Shozo Yoshioka, Yutaka Nakayama and Taichiro Ito: Dislocation Etch Pits of the Easy Glide of Cu-15 at% Al Single Crystals. The behavior and distribution of dislocations at the easy glide of Cu-15 at% Al single crystals have been investigated by means of the dislocation etching technique. Etching an undeformed crystal has revealed random dislocation forests having the density of $5 \times 10^6/\text{cm}^2$ and well-developed subboundaries. Because of the low stacking fault energy in this alloy, dislocations tend to be retained in their slip planes. Hence, a definite slip direction can be assigned to each array of dislocation etch pits. Secondary slips are detected at the very early region of the easy glide, which are thought to arise from the vicinity of the primary slip bands. As the deformation proceeds, the width of the primary slip bands grows and the region between the primary slip bands decreases. The narrower the region between slip bands, the more extensive the secondary slip activated there. Secondary slips are also detected in the interior of the wide primary slip band. Dislocation densities on the primary slip system and secondary systems are measured from the etch pit density, and it is found that at the end of the easy glide the dislocation density on the primary slip system is much higher than that on secondary slip systems.

(Received June 21, 1965)

I. 緒 言

面心立方金属の塑性に関する研究は、これまで多数の研究によって取扱われてきた。とくに、電子顕微鏡による金属薄膜透過観察は転位を直接観察できる利点のため、これまで仮定の上にたつて述べらることの多かった塑性の問題に大きな光明を与えた。しかし、観察領域の局在、薄膜化にともなう転位の再配列あるいは消滅などの影響が危惧されるため、実際の bulk 金属の問題を記述する場合に全く抵抗がないわけではなかった。最近高純度 Cu について、Young⁽¹⁾⁽²⁾、Livingston⁽³⁾ および Basinski⁽⁴⁾ らによつて、転位腐食法により、試料全面にわたる転位の挙動、配列、

分布などに関するかなり詳しい研究が行なわれ、金属結晶塑性の最も重要かつ基本的命題である加工硬化に関し新しい情報が与えられた。

これまで、面心立方金属あるいは合金の容易にり領域は 1 次にり系の転位の挙動のみによつて論じられることが多く、Seeger⁽⁵⁾ も 1 次にり系の転位のみによる変形を考え、1 次にり系の転位の障害物としても既在転位、あるいは転位群などを定性的に取扱つてに過ぎない。一方、Hirsch⁽⁶⁾ は 1 次にりの障害物として、1 次にりの転位に形成される dislocation dipole を考慮している。これらはいずれも 1 次にり転位の移動距離に関連するものであり、この点に関する研究が待たれるわけである。実験面上では、Meakin⁽⁷⁾ の Brass による研究では、1 次にり転位の移動距離は subgrain size よりもずっと大きいことを認めている。

** 大阪府立大学工学部 (College of Engineering, University of Osaka Prefecture, Sakai)

*** 大阪府立大学大学院 (Postgraduate Students, Research Division in Engineering, University of Osaka Prefecture, Sakai)

* 1965 年 4 月本会東京大会に発表

(1) F.W. Young: J. Appl. Phys., **32** (1962), 1815.

(2) F.W. Young: J. Appl. Phys., **33** (1963), 963.

(3) J.D. Livingston: Acta Met., **10** (1962), 229.

(4) Z. S. Basinski and S. J. Basinski: Phil. Mag., **9** (1964), 51.

(5) A. Seeger: *Dislocation and Mechanical Properties of Crystals*, Wiley, N. Y., (1957), p. 243.

(6) P. B. Hirsch: *Relation between the Structure and Mechanical Properties of Metals*, Her Majesty's Stationery Office, London, (1963), p. 40.

(7) J. Meakin and H. G. F. Wilsdorf: Trans. AIME, **218** (1960), 737.

一方、鈴木ら⁽⁸⁾、Basinskiら⁽⁴⁾が最近 Cu について、容易に領域で 2 次転り系の転位密度も 1 次転り系のそれと同じ程度に増加してゆくことを実験的に明らかにして以来、容易に領域における 2 次転り系の転位の挙動も無視できなくなり、容易に領域ですでに活性化される 2 次転り転位⁽⁷⁾⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾の挙動についても十分な知識が必要となった。

本研究で用いる Cu-15 at% Al では変形により、結晶内で増殖された転位が典型的な堆積型を取る⁽¹²⁾ことは衆知の事実である。したがって、転位腐食法によりきわめて初期の 2 次転りの発生を検知しうる。このことを利用して、本研究では、転位腐食法によつて変形の各段階で 1 次転りの伝播と 2 次転りの発生、増殖を観察し、容易に領域における変形様式を調べる。

II. 実験方法

Cu-15 at% Al 単結晶の作製法は前論文で述べた通りである。Fig. 1 に示す方位のものを長さ 30 mm づつ無歪的

Fig. 1 Crystal orientation.

に切断し、転位密度の減少をはかるため、真空中で 1000°C と 750°C で 1 hr づつ合計 30 回の繰返し焼鈍を行なった。表面の腐食孔観察の結果、matrix の転位密度は一般に subgrain の大きさに左右され、場所的な変動がかなり大きい、平均して $6 \times 10^5/\text{cm}^2$ の程度であつた。また、subgrain の平均の大きさは 1 次転りの転り方向を直径と考えれば、350 μ 程度であり、最小 20 μ 、最大 1000 μ 程度の大

きさのものを含んでいる。表面観察に基づく subgrain サイズの度数分布を Fig. 2 に示す。

Fig. 2 Histogram of subgrain size.

引張り試料は 20 mm の gauge length を持ち、断面積は $3.8 \times 0.8 \text{ mm}^2$ である。引張り変形に際し、試験機に試料をセットする場合に人為的な歪が入るのを防ぐため試料両端に接着剤を使つてチャックつかみ部を付けた。上端はチャックで掴み部を直接掴んだが下端は曲げなどの応力のかかるのをさけるため、チャックで掴まず掴み部に丸棒を通して、応力のかからない状態からクロスヘッドを移動させ変形を開始した。引張り変形は島津オートグラフ IS-2000 で、クロスヘッド下降速度 0.5 mm/min、したがって初期歪速度 $4.2 \times 10^{-4}/\text{sec}$ で行なつた。転位腐食孔観察用試料は変形を中断して、その度ごとに電解研磨、腐食を行なつた。

本研究では転位腐食液として、 H_2O 90, HCl 45, HAc 25, Br_2 0.5 を用い、腐食時間は 5~10 sec である。腐食孔観察は、光学顕微鏡 (直接倍率 $\times 1200$ まで) と電子顕微鏡による Ge シェドウ・カーボンレプリカ法を併用した。光学顕微鏡では 1 個 1 個の転位の分解限度はせいぜい 0.4~0.5

Table 1 Schmid factors for various slip systems.

Slip plane	Slip direction	Schmid factor
(111)	[101]	0.458
	[011]	0.312
	[110]	0.129
(111)	[011]	0.213
	[110]	0.360
	[101]	0.146
(111)	[011]	0.021
	[101]	0.139
	[110]	0.160
(111)	[011]	0.113
	[101]	0.347
	[110]	0.209

μ 程度であり、レプリカ法では 500 Å 程度まで分解可能である。

- (8) 鈴木, 丸川, 井村: 物理学会分科会予稿集, (1963), 151.
- (9) D. Avery and Backofen: Trans. AIME, **228** (1963), 835.
- (10) T. Koppenaal: Acta Met., **11** (1963), 537.
- (11) T. Mitchell and P. Thornton: Phil. Mag., **9** (1964), 315.
- (12) P. R. Swann and J. Nutting: J. Inst. Met., **90** (1961), 133.

試料の引張り軸方位を Fig.1 に、それぞれのり系での Schmid factor を Table 1 に示す。最も大きな Schmid factor を持つ $(11\bar{1})$ が 1 次り面 (primary slip plane), 以下 $(1\bar{1}1)$ が conjugate り面, $(1\bar{1}\bar{1})$ が交叉り面 (cross slip system), (111) が critical り面である。

試料表面 $(\bar{1}11)$ は, $[101]$, $[110]$ および $[01\bar{1}]$ の 3 り方向を含んでいる。1 次り面 $(11\bar{1})$ と $(\bar{1}11)$ との交線は $[101]$ 方向に一致し, 軸方位と 38° の角度をもっている。したがって, 変形によつて増殖された 1 次り系に属する転位に起因する腐食孔は $[101]$ 方向に配列する。同様に増殖された conjugate り面 $(1\bar{1}1)$ および critical り面 (111) に属する腐食孔はそれぞれ $[110]$ および $[01\bar{1}]$ 方向に配列する。

III. 結 果 お よ び 考 察

本実験に用いた Cu-15 at% Al 単結晶の分解せん断応力-分解せん断歪曲線を Fig. 3 に表わす。上部降伏点以上の

Fig.3 Typical stress-strain curve.

変形領域で変形を中断し, 転位の分布, 配列および密度など腐食孔観察によつて調べた後変形を繰り返した。比較のため 1 本の試料を変形を中断することなく直線硬化領域まで変形した。その結果, 容易り領域の終りでの歪量は両者の間で数%を越えることはなかった。

以下, 腐食孔の観察結果に基づいて述べる。

(1) 腐食孔による転位の分布の観察および転位の平均移動距離について

変形により結晶内で増殖された転位は, すべて堆積転位群として存在し, 表面観察では一例にならんだ堆積転位列あるいは列群としてすでに上部降伏点に達するまでの微小変形領域でも観察されるが, 本報告では上部降伏点以後の変形領域について議論する。

Photo.1(a)は, 変形前に as grown 転位に対応する腐食孔を出しておいて後, 上部降伏点まで変形して再び腐食したものである。したがって, 写真中大きな腐食孔は as grown の転位, あるいはその移動したあとの痕跡を現わし, 小さな列状にならんだ腐食孔は変形により増殖された転位に対応する。このような腐食孔列が集まってり帯を

形成している。本研究で用いたような方位と size を持つ試料では, 容易り領域のごく初期で, り帯は試料の両

Photo. 1 Primary slip bands. ($\times 300 \times 2/3$)

(a) Deformed to the upper yield point.

(b) Deformed additionally 0.05 shear strain.

端み部の近傍から伝播してくるというような事はなく, 試料全面に比較的一様に分布している。

この試料にさらに 0.05 のせん断歪を加え, もう一度腐食すると Photo.1 (a) と同一領域では, Photo.1(b) に示すごとくり帯の発生および増殖が認められた。この場合, 上部降伏点ですでに存在していた腐食孔列はり帯の中心部に存在し, 増殖された転位列はその両側, り帯の外方向に存在することがわかる。

変形が進むにつれてり帯はその数と巾を増してゆくが, り帯の巾の成長は一樣ではなく, 個々のり帯で著しい相違が認められた。一方, り線は試料の側面および裏面と連続しており, 試料厚みが 0.8 mm 程度であることから, り帯内の腐食孔密度, すなわち, 転位密度が試料内部と表面で大きな変動がないものと考えられる。1 次りのり帯を形成している堆積転位列内の隣接転位間の距離は, 光学顕微鏡ではすでに上部降伏点でも分解不可能なことが多いが, レプリカ法による電子顕微鏡観察では十分可能で, 容易り領域内の種々の段階で, 堆積転位列の先端部近傍を除いて 500~2000 Å の範囲にある。つぎにのべるように, 1 本のり帯のなかでのり線の間隔を測定して, り帯内の転位密度は $4 \sim 6 \times 10^8/\text{cm}^2$ 程度であることがわかった。ここで求めた転位の平均間隔および密度は, 容易り領域まで変形した多数の試料を透過電子顕微鏡観察した結果ともよく一致する。

種々の変形段階で、2次じり系の顕著に起つていない1次じり帯を高倍率でとつたものにつき、1次じり帯の巾とじり帯の

Fig. 4 Relation between the slip band width and the number of dislocation arrays in a slip band.

り帯を形成する堆積転位列数との関係を調べた結果、Fig. 4 のようになった。さらにこの方位と size の結晶について、種々の変形段階で、干涉顕微鏡およびレプリカ法により、じり帯の高さと巾から、それぞれのじり帯によつてなされるせん断歪が0.15~0.28の範囲にあり、じり帯の巾や試料の受けた歪量に影響されないことを確認した。以上の結果にもとづいて1次じり系の転位の平均移動距離を推定してみる。転位のバーガス・ベクトルを b 、じり帯内部の転位密度を ρ とすれば、じり帯あたりのせん断歪 γ は

$$\gamma = b \cdot l \cdot \rho$$

で表わされる。ここで $\gamma = 0.15 \sim 0.28$ 、平均をとつて $\rho = 5 \times 10^3 / \text{cm}^2$ 、 $b = 2.6 \times 10^{-8} \text{ cm}$ を代入すれば、それぞれの γ に対して、 $l = 115 \sim 215 \mu$ がえられる。じり線長さ L が $L = 4l$ で表わされるとすれば、 $L = 460 \sim 860 \mu$ となる。ここで求めた L の値はいずれも平均 subgrain size 350μ よりも大きい。このことは容易じり領域の応力下で、転位源から増殖された転位が subboundary を通過する場合があります。なお、Meakin⁽⁷⁾はCu-Zn単結晶の容易じり領域において、平均 subgrain size の約15倍のじり線長さをえている。

(2) 容易じり領域における2次じりについて

CuおよびCu合金で変形のごく初期から2次じりがすでに存在することがMeakin⁽⁷⁾、Avery⁽⁹⁾、Koppelaar⁽¹⁰⁾およびMitchell⁽¹¹⁾らにより確認されている。一方、Seeger⁽⁵⁾は低積層欠陥エネルギーを持つ合金における2次じりは、熱的に活性化される結果ではなくて、2次じり系の転位源が応力下で活性化されるものであると指摘している。この立場に立脚して、Averyら⁽⁹⁾は1次じり系の堆積転位の応力場が2次じり系の転位源を活性化すると考えた。いま、Photo. 2に示すような1列の1次じり系に属する堆積転

位が2次じり系(この場合 conjugate じり系)を活性化している場合を考えよう。この場合観察される1次じり系の転

Photo. 2 Secondary slip activated by a pileup of primary dislocations. ($\times 1200$)
 $\langle 101 \rangle$ indicates primary slip direction and
 $\langle 110 \rangle$ secondary slip direction.

位の平均間隔は $6000 \text{ \AA}$ 程度である。

Averyらは、2次じり系(conjugate じり系)の転位源を活性化するに要する1次じり系の堆積転位の平均間隔 h_p^{conj} を次式で与えた。

$$h_p^{\text{conj}} = \frac{0.5 \mu b}{\pi \tau_0 (1 - N_{\text{conj}} / N_p)}$$

ここで、 μ : せん断係数 ($4.2 \times 10^3 \text{ kg/mm}^2$)、 b : 転位のバーガスベクトル ($2.6 \times 10^{-8} \text{ cm}$)、 τ_0 : 1次じり系の臨界せん断応力 (1.55 kg/mm^2)、 N_p : 1次じり系の Schmid factor (0.458)、 N_{conj} : conjugate じり系の Schmid factor (0.360)で、それぞれの値を代入すると $h = 5100 \text{ \AA}$ となり、Photo. 2で得られた値とかなりよい一致をみる。

しかし、容易じり領域の初期に観察される2次じりのほとんどは Photo. 3のように1次じり帯の近傍から発生し

Photo. 3 Secondary slip at the upper yield point. ($\times 300 \times 2/3$)

ている可能性が強い。したがって、このような場合は、堆積転位列の応力のみならず、じり帯を形成する多くの転位群の応力場などを総合の見地から考慮しなければならないだろう。

変形がさらに進んでも隣接する1次じり帯の間隔が広い

場合には、**Photo.4(a)**のごとく、2次じりの発生、増殖が認められない。これに対し、**Photo.4(b)**では同一変形量

Photo.4 Slip band after 0.15 shear strain.
($\times 1200 \times 2/3$)

- (a) Primary slip band.
(b) Primary slip band and secondary slip.

(せん断歪 0.15) で **Photo.4(a)** と同程度の巾を持つじり帯であるが、隣接じり帯間隔が比較的小さい場合、1次じり系のじり帯で挟まれた領域で critical じり系に属すると考えられる2次じりが観察された。

容易じり領域の終りでは (せん断歪 0.25), **Photo.5(a)**のごとく、1次じり帯で挟まれた領域で2次じり (conjugate じり系) が顕著に観察され、この2次じりによつて、かえつて1次じりが誘発される場合が多い。さらに **Photo.5(b)**のように巾広い1次じり系のじり帯の内部では $[110]$ および $[0\bar{1}1]$ 方向の2次じりが観察される。かように、容易じり領域の後半での顕著な2次じりの活性化は、種々の因子を含んでいると考えられるが、その活性化に関し、現段階では明らかにできない。

しかし、いずれにせよ容易じり領域では、2次じりが隣接する1次じり帯をつきぬけて伝播してゆくような状態は観察されない。したがつて、容易じり領域における2次じり系の転位の移動距離はせいぜい1次じり帯の間隔の程度であろう。また堆積した2次じり系の転位列内の平均転位間隔は1次じり系のそれよりもかなり大きく、光学顕微鏡でも充分分解可能であつた。

さらに、直線硬化領域に入つて、せん断歪 0.55 の場合には、**Photo.6**で観察されるごとく、2次じりが顕著で、1次じり帯をつきぬけてつづいている可能性も考えられるような分布配列をとるようになる。

(3) 転位密度について

容易じり領域では、1次じり系のじり帯内の隣接転位間

Photo.5 Secondary slip after 0.25 shear strain.
($\times 1200 \times 2/3$)

- (a) Secondary slip in the region between primary slip bands.
(b) Secondary slip in the wide slip band.

Photo.6 Dislocation etch pits in the stage II.
Shear strain 0.55. ($\times 1200 \times 2/3$)

隔は $500 \sim 2000 \text{ \AA}$ で、じり帯内の転位密度も変形量に依存しないであろうことは前述した。したがつて、試料全域にわたる転位密度はじり帯が占める領域の割合に依存する度合いが大きいと考えられる。また、2次じり系の転位密度は場所的な変動が激しく量的な取扱いが困難であるが、1次じり系の転位密度とともに conjugate じり系の転位を表わすと考えられる $[110]$ 方向の転位密度と critical じり系に属すると考えられる $[0\bar{1}1]$ 方向の転位の密度を求めた結果を **Fig.5** に表わす。

容易じり領域の終りでの1次じり系の転位密度が $3 \times 10^8/\text{cm}^2$ 程度であるのに対して、2次じり系のそれは両者

を合わせて $4 \times 10^7/\text{cm}^2$ 程度である。鈴木⁽⁸⁾, Basinski ら⁽⁴⁾ が Cu 単結晶において、容易なり領域の終りで、1 次なり

Fig. 5 Relation between the dislocation density and the resolved shear strain.

系の転位密度と 2 次なり系のそれが同程度になるという興味ある結果をえているが、本実験では表面観察のみの結果であるので、これに関する詳細はつぎの機会にゆずりたい。

IV. ま と め

Cu-15 at% Al 単結晶の塑性変形を、表面転位 腐食孔観察によつて調べた結果を要約すると次のようになる。

(1) 容易なり領域での変形は主として 1 次なり系に属するなり帯の発生と成長によつてなされる。なり帯中の転位列数はなり帯の巾に比例し、転位列をなす転位の平均間隔は $500 \sim 2000 \text{ \AA}$ 程度である。

(2) 転位の平均移動距離は $115 \sim 215 \mu$ であり、これから計算される平均なり線長さは $460 \sim 860 \mu$ で subgrain size の上限と同程度の値である。

(3) 容易なり領域の初期に、2 次なり (conjugate なり系) が 1 次なり帯の近傍から発生するのが観察される。また、容易なり領域の後半で、1 次なり帯の巾が広くなり、1 次なり帯によつて挟まれる領域が狭くなると、それらの領域で 2 次なりが観察される。しかし 2 次なりの転位の移動距離は、容易なり領域ではせいぜい 1 次なり帯の間隔程度である。

(4) 1 次なり系および 2 次なり系の転位密度と変形量の間には、ほぼ比例関係がなりたつ。容易なり領域の終りで、1 次なり系の転位密度が $3 \times 10^8/\text{cm}^2$ 程度であるのに対し、2 次なり系のそれは $4 \times 10^7/\text{cm}^2$ 程度であつた。

終りにのぞみ、試料の一部を提供して下さつた日立造船株式会社上田実彦氏に厚く謝意を表します。