Mg 薄膜における割れ進行の電顕観察

諸住正太郎* 菊地 勉夫* 幸田 成康*

Shotaro Morozumi, Michio Kikuchi and Shigeyasu Koda : Electron Microscope Observation of Crack Propagation in Magnesium Foils. A transmission electron microscope observation has been carried out on the crack propagation in 99.9% pure magnesium foils stretched at the inside and outside of an electron microscope. Optical and scanning electron microscope observations also have been made on fractured surfaces and cracks in holed-sheet test pieces. The results obtained are as follows :

(1) In many cases, cracking occurs at an edge of foils and is associated with the preceding slip on the basal plane. Then this initial crack, thought to be in the basal plane, changes its direction and takes a zigzag path in the deformed and thinned region ahead of the crack where heavy pile-ups of dislocations have been observed.

After this, the crack develops deviating largely from its initial direction.

(2) Sometimes, a large crack composed of two cleavage planes has been observed, for example, in a foil whose surface is pallerel to the (0001) basal plane.

(3) Cracks mentioned above can be explained by cleavage planes already reported.

(4) As a result of the heavy stress concentration due to crack propagation, the activation of slip, nucleation of a new crack, twin formation and crack propagation along the twin have been observed in adjacent grains, with grain-boundary sliding.

Nucleation of a new crack due to slip also has been observed at a distance from the tip of initial crack.

(5) The tip of crack often branches out in two fine non-crystallographic cracks which are thought to be at the top and bottom surfaces of the foil.

(6) In the holed-sheet test pieces, the mode of fracture changes from brittle to ductile according to the distance from the hole.

Dimples, in which smaller ones also have been observed, are measured to be in sizes comparable to the grain sizes.

(Received June 26, 1968)

I. ま え が き

Schmid⁽¹⁾およびSchieboldとSiebelら⁽²⁾が、Mgは(0001), {10 $\bar{1}$ 1}, {10 $\bar{1}$ 2} および {10 $\bar{1}$ 0} の各面においてへき開破壊を起こすと報告して以来、BakarianとMathewson⁽³⁾が{10 $\bar{1}$ 1}, Reed-HillとRobertson⁽⁴⁾が-190°Cにおいて{11 $\bar{2}$ 4}, 室温付近で{30 $\bar{3}$ 4}面および同じく室温で底面にはば垂直な圧縮応力によつて{11 $\bar{2}$ 4}面における破壊を観察している。Reed-HillとRobertson⁽⁴⁾はこの{30 $\bar{3}$ 4}はかつて{10 $\bar{1}$ 1}として報告されていた面であるとしているが、ごく最近 WonsiewiczとBackofen⁽⁵⁾も{10 $\bar{1}$ 1}と{10 $\bar{1}$ 3}面における破壊を観察している。Reed-Hillら⁽⁴⁾はまた、室温において、{10 $\bar{1}$ 4}または{10 $\bar{1}$ 5}面にそつての破壊を観察している。

以上は単結晶における破壊面であるが、多結晶では粒界にそつての破壊もみられる。

本実験では、以上のような Mg での破壊の様相を透過電顕による薄膜の破壊の進行を中心として、光顕や走査電顕を併用して Mg 多結晶における破壊に関する知見を得ようと試みた。

II. 実 験 方 法

透過電顕試料は、圧延および焼なましを行なつた約0.2 mm厚さの箔で、必要に応じてさらに10%圧延を行なつて用いた。窓枠法によつて電解研磨して得られた薄片を適当な大きさに切つて引張り試料とし、2種類の装置によつて引張り、破壊させた。装置の一つは電顕内に固定し、パネを締めつけているステンレス線を電流で加熱することによつて、パネの反発力で引張り力をあたえるが、機構上、力は完全な平行とはならず、いく分扇形となる。また試料を傾斜しえないという欠点があるが、連続観察が可能であつた。

他の装置は電顕外で人力によつてネジを回して、引張り力をあたえる方式であるから、変形や観察は断続的となるが電顕内で試料を傾斜させる利点がある。

これらいずれの場合も引張り速度の制御はむずかしく、

* 東北大学金属材料研究所 (The Research Institute for Iron, Steel and Other Metals, Tohoku University, Sendai)

(1) E. Schmid : Z. Elektrochem., **37** (1931), 447.

(2) E. Schiebold und G. Siebel : Z. Phys., **69** (1931), 458.

(3) P. W. Bakarian and C. H. Mathewson : Trans. AIME, **152** (1943), 226.

(4) R. E. Reed-Hill and W. D. Robertson : Acta Met., **5** (1957), 728.

(5) B. C. Wonsiewicz and W. A. Backofen : Trans. Met. Soc. AIME, **239** (1967), 1422.

その速度も測定しえなかつた。

走査電顕および光顕用の試料は圧延および焼なましした

Fig.1 Specimens (a) with and (b) without holes for optical and scanning electron microscopies

1 mm 厚さの板で、Fig.1 に示す形状をもち、有孔試験片では放電加工によって図示の孔を2~3個あけた。これらの有孔、無孔の試験片はインストロン引張り試験機によって、 2×10^{-3} mm/min の速度で引張り、破壊させた。試験片はある孔のところで完全に両断されるが、ほかの孔では割れが途中でとまっている。破面について走査電顕、割れについて光顕観察を行なつた。

薄膜における割れは、制限視野回折によってステレオ解析して、前述の既報の破壊面との対応を試みたが、それに用いた試料の大半は固定引張り装置によるものであり、解析に使った試料膜面は電子線に対して垂直にあるとみなされた。

III. 実 験 結 果

一様な厚さをもつ引張り用薄膜の作製はむずかしく、窓枠法による試料作製では試料周縁は薄くなり、不規則な凹凸がある。これに引張りをあたえると試料全体があまり変形しないうち膜端から割れが発生することになる。それに

Photo.1 Initial crack associated with slip at an edge of foil : Arrow indicates the end of the crack

加えて、引張り装置に試料を取付けたときおそらくパネを締めているステンレス線のゆるみや取扱いの不手際によると思われる割れの発生がみられた。そのような初期の割れの例を Photo.1 に示す。

このような割れが先在していると、その後の引張りにおいて観察が容易になる。この割れの先端には、それと同じ方向に薄くなつて見える部分がつづいている。このところは、試料を傾斜してみると多く転位が集積しており、すでにすべりを起こしていることがわかる。すなわち、割れに先行するすべりである。引張りを進めるとこのような割れが優先的に進行をはじめるが、ステレオ解析によるとこのような先行すべりは (0001) 面上のものであり、この割れも (0001) 面に平行な割れとみなされた。すなわち、Photo.1 の割れの方向は $[1\bar{3}20]$ である。

このような割れをもつ試料を引張ると、Photo.2 に示す

Photo.2 Zigzagging of fracture preceded by initial crack

ような割れの進行がみられる。すなわち、最初すべりにそつて進行していた割れは、すべりによってある程度薄くなつた膜内において、あるところからジグザクな形をとる。この試料の場合、試料表面は (1215) で最初の割れの方向すなわちすべりの方向は $[10\bar{1}0]$ とほぼ一致しているから、最初の割れはおそらく (0001) 面での割れであろう。その後の方向をかえた部分は、それぞれ $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ のトレースと一致するので、これらの割れは $\{10\bar{1}x\}$ 面における割れであると考えた。

この割れの先端には、さらに、非結晶学的な曲がつた細い割れがみられる。この試料をさらに引張つたとき、破壊はこの細い割れにそつて大きくそつて進行した。そのような割れの進行の連続的な観察例を Photo.3 に示す。

この写真の (a) は割れが最初の方向からそつていくところを示し、それが (b) ~ (d) と進行しているが、その先端に上記の細い2本の割れが先行しているのがわかる。これらの細い先行割れの根本が合体しながら割れの幅を増していくが、これらはおそらく試料膜の両表面において先行しているものと考えられた。

Photo.4 は割れ周辺の組織の一例を示す。最初の割れ進

行方向の前方では著しい変形をうけ、転位の集積がみられる。また、すべりによつて薄くなった部分において、割れ

Photo.3 Continuous observation, (a) to (d), of propagation of a crack deviated from its initial direction (arrow in (a))

Photo.4 (a) Typical aspect of the vicinity of crack, and (b) enlarged view of area A in (a): Pile-ups of dislocations ahead of the crack in the initial direction; deformed regions around the crack; and voids formed in the thinned area

に近いところに非常に小さいが、数多くのボイドがみられた (Photo.4 (b)). 割れは途中から大きくそれているが、その周辺部の狭い範囲および先端部においても塑性変形を行なっている。大きく最初方向からそれたこの割れは途中でさらに方向をかえているが、その点の前後が比較的直線的になっているのは、それぞれが結晶学的にはつきりとした面でのへき開によつて破壊を起こしているものと考えられる。すなわち、前の方が $(11\bar{2}4)$ 面、後の方が $(03\bar{3}4)$ 面でのへき開によると判断された。なお、最初方向は $[\bar{1}010]$ に向かつているからこれは (0001) か $(1\bar{2}14)$ 面における割れと解析しうるが、おそらく前者での破壊であろう。

Photo.5は直線的な二つの割れの合成による破壊の例である。この試料表面はほぼ (0001) 面とみなしうるもので、

Photo.5(a)において、膜端の同一個所から同時に $[11\bar{2}0]$ と $[10\bar{1}0]$ 方向に二つの細い割れが生じている。引張りの進行によつて、これらは(b)のように合体して一つの大きな割れとなつた。これはおそらく、前者が $(1\bar{1}0\ x)$ 面、後者が $(1\bar{2}14)$ 面での割れであつて、それらが膜端から合体しながら進んだものとみられる。

さて、割れが進んで粒界に達したときどのような挙動を示すかについてみよう。

割れの前における塑性変形が粒界に達すると、粒界付近に著しい応力集中を起こすが、その1部は、となりの結晶粒および同一粒内において他の変形機構を

活動させ、さらにその方位の如何によつて、Photo.6にみられるように、となりの結晶粒に剪断力をあたえて新しい割れを発生させる。

Photo.7は、結晶粒A内の割れが粒界に達したとき、その前方の結晶粒Bへの変形や割れの伝播よりも粒界にそつてのスライドによつて変形を進行させ、それがさらに方向をかえて他の結晶粒Cの変形へと移つていく例である。引張りの進行によつて粒界と結晶粒Cで

Photo.5 Typical crack composed of two cleavage planes: (a) before and (b) after cleft

のすべりの交差点から新しい割れが発生し、結晶粒C内を進むとともに粒界をつたわつて最初の割れと連結した、

Photo.6 Initiation of a new crack at a grain boundary by the crack propagation

Photo.7 Grain-boundary sliding due to the crack propagation, followed by slip deformation in grain C: Arrows indicate grain boundaries

Photo.8 Crack propagation along the inside of a twin

Photo.8 は粒界を進んだ割れが他の結晶内にまず双晶 ($\{10\bar{1}2\}$ 双晶) を形成し、そしてそれをつたわつての割れ (矢印) の進行がなされている例である。

薄膜試料を用いて観察した上記の現象は、引張り破壊させた板状試験片の表面にもみられる。すなわち、**Photo.9** (a) は孔から進行した割れの先端部を示す。割れが粒内および粒界をつたわっており、双晶の形成もみられる。また **Photo.9** (b) では、割れを伴う双晶が粒界でその進行を妨げられ、ふたたびその粒内へもどっているが、もしさらに応力を加えることによつて、この割れが成長するならば、この双晶にそつて同じく方向を変えて進行するだろう。

つぎに、走査電顕による破面観察結果を述べよう。

Photo.10 は破断した板状試験片の破断部付近の外観を示す。孔のない試験片 (a) は約 10% の伸び後に破壊しているが、有孔試験片 (b) は孔の付近で不均一な変形を示してから破壊している。すなわち、孔の近くは変形量が少な

く、横方向に遠ざかるほど多くなっている。また孔の付近をたて方向にはなれるとほとんど変形していない。これは孔のまわりで若干の変形を起こした後、孔のところから横方向に割れが進行したもので、孔の付近ほど脆性破壊の様相が強くなる傾向にある。**Photo.11** の走査電顕像もこの様相を示している。このような破面は、1~数個の結晶粒径の周期で凹凸がみられるが、それとは別に各結晶粒はその周縁が伸びて浅いくぼみを呈している。そのくぼみの度合は延性破壊になるほど強くあらわれているので、孔から遠いところではいわゆる dimple 模様となつている。それゆえ Mg における dimple の大きさは $\text{Ti}^{(6)}$ のときのように粒径に匹敵するものであることがわかる。

これらのくぼみの内部はさらに、もつと小さく浅いくぼ

(6) R. M. N. Pelloux and J. C. McMillan: Proc. First Intern. Conf. on Fracture (1966), 547.

Photo.9 Optical micrographs at the tops of cracks initiated at the hole in the specimen (b) in Fig.12

Photo.10 Photograph of fractured specimens with and without holes ($\times 2$)

(a) ($\times 300 \times \frac{2}{3}$) (b) ($\times 1000 \times \frac{2}{3}$)
(c) ($\times 1000 \times \frac{2}{3}$)

Photo.11 Scanning electron micrographs of fractured surface of the specimen (b) in Photo.11 : (a) Adjacent to the hole; (b) enlarged view of area A in (a); and (c) distant from the hole

みによつて仕切られている。これは同一結晶粒においても数多くの微細な割れが発生したことを示すものであろうが、前述のような割れの方向変換ということも寄与しているものと考えた。

なお、無孔板状試験片の破面近くの表面には孤立した割れが散見した。これは破断前にそれぞれ独立に形成されたものであつて、それらの一つまたはいくつかが合体したものが試料全体の破壊のもとになつたものと考えられる。この試験片では約10%の変形後に破断しているところから、10%の圧延を行なつた薄膜について引張りによる割れを電顕観察したところ、結晶学的なへき開面による割れに加えて、非常に曲がりくねつた非結晶学的な破壊部も多く存在した。

IV. 考 察

本実験において膜端からの最初の割れは、その先端にすべりが観察されたが、これは(0001)底面におけるすべりと思なされた。薄膜試料は多結晶であり、試料膜端における各結晶粒はいろいろな方位をもっているから、引張りによつてそれらのうち最もすべりを起こしやすい方位をもつ粒において、すべりが開始されたと考える。それゆえ多くの薄膜の場合(0001)面でのすべりを起こす粒が観察されるものと思われる。

観察された割れから、破壊面は(0001)、 $\{11\bar{2}4\}$ または $\{10\bar{1}\chi\}$ であろうと判断されたが、 χ の値を決定することはできなかった。それは一つには試料が薄膜であつて膜厚方向における割れの方向がわからないこと、また一つには、観察したこれら $\{10\bar{1}\chi\}$ 面の割れが存在した各結晶の表面がほぼ底面に近い方位のものであつたことによる。

ところで、現在まで報告されている破壊面のうち、底面またはそれに近い表面をもつ薄膜において、 $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ 方向の割れとして観察しうるものは(0001)および $\{11\bar{2}4\}$ 面の破壊であり、 $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ 方向のものとしては、(0001)および $\{10\bar{1}0\}$, $\{10\bar{1}1\}$, $\{10\bar{1}2\}$, $\{10\bar{1}3\}$, $\{10\bar{1}4\}$, $\{10\bar{1}5\}$, $\{30\bar{3}4\}$ など一群の $\{10\bar{1}\}$ 面の破壊である。これらのうち、膜端からはじまる最初の割れは多くの場合(0001)面におけるものとみられ、この面上でのすべりに引続いて起こる延性破壊であると思われる。その後割れは各特性面をつたわつて進行し、同一結晶粒内においても異なる面をつたわつていくから、巨視的な特性面の決定には十分な注意が必要である。

Photo.7 にみられたような、粒界にそつてかなり薄くまで変形しているのは、この部分が膜厚方向において拘束がないためのものと思われる。このような特殊性は、薄膜において観察された他の事象にもあてはまるが、塊状試料では多くの方位の異なる結晶粒で構成されているため、おた

がいに拘束しあつて変形が複雑化し、各所に応力集中個所を形成し割れの発生がみられるものと思われる。薄膜の引張りにおいても、かなり厚い部分に孤立した割れの発生を観察しているし、無孔試験片の破面近くに独立した小さい割れがみられた。このような応力集中個所は、Mg が六方晶で塑性的に異方性をもつ結晶であることが大きく影響していると思われる。

V. む す び

99.9% 純 Mg の薄膜を引張り破壊させ、透過電顕によつて割れの進行を観察した。また、光顕および走査電顕による有孔板状試験片の割れおよび破面の観察を併せて行ない、薄膜の結果と比較考察した。得られた結果はシノプシスに要約してあるとおりである。

なお、走査電顕観察は日本電子株式会社の御好意による。ここに厚く感謝の意を表す。