引張方向の異なる変形銀双結晶の薄膜における 粒界予融解らしい現象[†]

吉川 貴士^{††} 猪子富久治

徳島大学工学部機械工学教室

J. Japan Inst. Metals, Vol. 59, No. 5 (1995), pp. 471-479

Grain Boundary Premelting-Like Behaviour in Thin Foils of Deformed Silver Bicrystals with Different Tensile Directions

Takashi Yoshikawa and Fukuji Inoko

Department of Mechanical Engineering, Faculty of Engineering, The University of Tokushima, Tokushima

In order to clarify the effect of activated slip systems on the grain boundary premelting-like behaviour in thin foils of two kinds of 99.999 mass% silver bicrystal specimens, which have the same grain boundary and different tensile directions, were prepared using a modified Bridgman method. They were deformed in tension to a strain of 0.3. TEM foils containing the grain boundary were prepared. They were then subjected to *in-situ* heating experiments in a 200 kV TEM. The melting of grain boundary occurred at lower temperatures in the bicrystals whose boundary planes are parallel to screw dislocations of the activated slip systems than in the bicrystals whose boundary planes are parallel to edge dislocations. The grain boundary premelting-like behaviour in silver bicrystals is similar to that in copper ones.

(Received November 17, 1994)

Keywords: activated slip system, edge dislocations pile-up, screw dislocations pile-up, recrystallized grain, in situ observation in transmission electron microscopy, grain boundary premelting

I. 結 言

猪子らは既に、塑性変形を与えた銅、ニッケルおよび黄銅の薄膜試料を透過型電子顕微鏡(TEM)内において昇温した場合、それぞれのバルク材の融点(T_M)の約半分の温度(約 $0.5 T_M$)という非常に低い温度において粒界予融解らしい現象[†]が生じることを報告⁽¹⁾⁻⁽³⁾した。また、剛性率は液体状態で零($G=0$)であるためか、少なくともアルミニウム、銅、ニッケルおよび黄銅について、それぞれのバルク材の融点に対する粒界の予融解温度(T_m)の比は、剛性率の異方性とほぼ等しい関係($T_m/T_M \approx G\langle 111 \rangle / G\langle 100 \rangle$)にあることも報告した⁽¹⁾。

以前より、金属材料の結晶粒界ではバルクと異なった構造上の遷移や不安定さをもつ可能性が認められており、金属結晶の粒界が粒内よりも先に融解(予融解)するかも知れないことが報告されている⁽⁴⁾。また、多くの研究者によって原子モデルによる計算、および実測実験によっても調べられている。例えば、原子モデルによる二次元および三次元における計算において

は、粒界がバルクの融点よりも低い温度(約 $0.7 T_M$)で予融解するという報告⁽⁵⁾⁻⁽⁷⁾がある。また、粒界の構造遷移は $0.5 T_M$ で生じるが、融解は融点直下まで生じないという報告⁽⁸⁾⁽⁹⁾もある。一方、実測実験において、古くは Chaudron ら⁽¹⁰⁾によってバルク材での予融解が報告されているが、不純物の影響の評価ができない⁽⁴⁾との見方もあり、融点と粒界予融解温度の差($T_M - T_m$)が温度計測器の誤差以内⁽¹¹⁾と判断されていたために、実験により予融解を示すことは困難であるとされていた。しかし、その後、Gricksman と Vold⁽¹²⁾は粒界、特に粒界の三重点におけるビスマスの粒界予融解現象を約 $0.95 T_M$ において TEM 内で観察している。

一方、近年では Balluffi ら⁽¹³⁾⁽¹⁴⁾は高純度多結晶アルミニウムを用いて TEM による詳細な実験を行っている。彼ら⁽¹³⁾は $\Sigma 5\langle 100 \rangle$ 粒界においては粒界予融解が生じず、 $\Sigma 5$ から少しずれた方位差の粒界が $0.94 T_M$ で部分的に一部が“割れた”と報告し、その原因は薄膜試料と試料をつかんでいるグリッパとの熱膨張の差によって生じる応力であると考察している。しかしながら、熱応力による“割れ”ならば、彼らの示したような断続的な割れになるかどうか疑問である。このことは、塑性変形を施さない薄膜試料の場合、粒界の予融解が生じないか、生じた場合でも点状であり、それ以上温度を上昇させても伝播しない傾向を示した Inoko と Yoshikawa⁽³⁾の結果と比較すると、Chan らの粒界⁽¹³⁾が局所的にひずみ(転位)を導入していたため

[†] 1993年10月日本金属学会秋期大会および1994年4月日本金属学会春期大会において一部発表

^{††} 徳島大学工学部文部省内地域研究員、現在：新居浜工業高等専門学校

^{†††} バルク材の融点より低い温度で粒界が融解すること。この場合の温度は、炉内の試料の平均的温度を示す。

の粒界予融解であるとも考えられる。その後、彼らは TEM 内において試料の融解した部分を留めて観察する目的で、アルミニウムを大気中 773 K ($0.83 T_M$) において 10 h (3.6×10^4 s) 焼鈍し、試料を酸化膜で覆った結果、 $0.999 T_M$ まで粒界転位が存在したこと、および粒界の融解はバルク材の融点直下まで生じないことを報告している⁽¹⁴⁾。猪子らもアルミニウム双結晶における粒界の融解は融点直下で生じることを報告⁽¹⁾⁽²⁾している。これに対し、Inoko ら⁽²⁾は塑性変形した銅薄膜の TEM 試料表面の酸化膜の厚さを減少すれば粒界予融解温度を低下させることを示している。

しかしながら、上記の原子モデルでの計算、および実測実験における粒界予融解についての報告は、ひずみのない粒界構造について調べたものであるのに対して、猪子らの粒界予融解らしい現象についての一連の報告⁽¹⁾⁻⁽³⁾はすべてバルク材において塑性ひずみ(圧延あるいは引張変形)を与えた後、薄膜化した粒界についてのものであるという大きな違いがある。

一般に、液体状態では固体状態からの遷移における体積膨張 (ΔV) はアルミニウムで $\Delta V = 6.4\%$ 、銅で $\Delta V = 4.1\%$ の増加に過ぎない。そのため塑性変形を加えることによって粒界近傍に導入された格子欠陥が非常に狭い領域の粒界部へ過飽和に侵入・集積すれば、粒界の予融解らしい現象を引き起こす可能性も考えられる⁽²⁾。

そこで、Inoko と Yoshikawa⁽¹⁵⁾ は粒界構造の影響を取り除き、粒界の予融解現象が粒界近傍に侵入・集積する転位の種類によってどのような影響を受けるかを調べるために、同一の旧粒界(変形前の巨視的な粒界構造および粒界をはさむ成分結晶の組合せが同じ)を持つ銅双結晶試料において活動すべり系の異なる試料を準備し、引張変形を与えた後、TEM 内で昇温その場観察することによって粒界の予融解温度を調べた。その結果、主にらせん転位が粒界へ侵入・集積した粒界は約 $0.5 T_M$ で予融解が生じ、刃状転位が主に侵入・集積した粒界は予融解がより高い温度で生じたり、予融解が起こるよりも低い温度において再結晶粒が生じて予融解しなかったりすることを報告した。

本研究では、銀において同一の粒界構造を持つ双結晶の引張方向が異なる試料を作製し、変形によって変化した粒界における予融解現象について調べ、銅双結晶⁽¹⁵⁾の場合と比較・検討する。ここで、銀の酸化膜は約 463 K で分解するため、酸化膜の影響のない予融解現象を調べられること、また、銀の積層欠陥エネルギー(約 20 mJ/m^2)は銅のもの(約 40 mJ/m^2)よりも低いので、転位は部分転位により分解しやすく、粒界での再結晶および予融解に影響を及ぼすことが期待できる。さらに、本研究に用いた銀双結晶と同一の双結晶試料を用いたひずみと再結晶に関する報告⁽¹⁶⁾とも比較し、変形と再結晶および予融解との関連性についても比較検討する。

II. 実験方法

板状の純度 99.999 mass% の銀双結晶を作製するために、横型修正ブリッジマン法⁽¹⁷⁾を用い、Fig. 1 に示す平板状 ($20 \text{ mm} \times 20 \text{ mm} \times 4 \text{ mm}$) の銀双結晶試料 No. 1 (B-P-I, B-N-I) および No. 2 (B-P-II, B-N-II) を作製(破線)した。さらに試料

Fig. 1 Schematic diagram of two kinds of tensile testing bicrystal specimens (B-P and B-N) with the same boundary structure and different tensile directions, which were prepared from a silver bicrystal shown by broken lines.

No. 1 については、Y-Z 平面に平行に 2 分割し、後方側を本研究に用い、前方側をバルク材のまま粒界近傍における再結晶粒の形成についての研究⁽¹⁶⁾に用いた。これらの双結晶から引張方向が粒界面(X-Z 平面)に対して平行(試料 B-P)および垂直方向(試料 B-N)の 2 種類の引張試料(平行部 $3.5 \times 3 \times 1.3$)を放電加工機により切り出し、電解研磨(研磨液: 6% シアン化カリウム水溶液)をして引張試験に供した。これら 2 種類の引張試料にそれぞれひずみ速度 $4.8 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ で 30% の引張ひずみを与え、粒界近傍において活動したすべり帯を光学顕微鏡(以降、光顕と略す)により観察した。その後、観察したすべり帯の組織と対応させるために、片側からエメリーペーパーにより薄膜化し、観察した試料の表面層の薄膜が残るように作製し、粒界部分が TEM 観察可能な試料片を Twin-Jet 法により作製した。これら試料片の引張変形後の内部組織を TEM (HITACHI H-800 200 kV) により観察し、その後、昇温その場観察しながら、粒界が融け始める融解温度を測定した。温度は TEM 内で測定した 99.99 mass% のアルミニウム単結晶の融点を 933 K として補正した。

III. 実験結果

1. 試料 No. 1 (B-P-I, B-N-I)

Fig. 2 に銀双結晶試料の No. 1 の初期方位および B-P-I および B-N-I の引張方向(T.D.)を示す。この双結晶における成分結晶 A は成分結晶 B を X 軸に近い軸まわりに 180° 回転した方位である。引張方向(T.D.)は、試料 B-P-I が粒界面に平行(Z 軸方向)であり、試料 B-N-I が粒界面に垂直(Y 軸方向)で

Fig. 2 Orientation relationship between component crystals A and B, and tensile directions in No. 1 specimens B-P-I and B-N-I.

ある。それゆえ、当然のことながら2種類の試料は同じ成分結晶AおよびBからなる双結晶であるが、引張変形によって粒界近傍では異なるすべり系が活動することが期待できる。それぞれの試料における成分結晶の主すべり系および2次すべり系のシュミット因子をTable 1に示し、その主すべり系の模式図をFig. 3に示す。これにより、2種類の試料における主すべり系のすべり面およびすべり方向がそれぞれ異なった関係を有していることがわかる。例えば、試料B-P-I (Fig. 3(a))の主すべり系はP1D1A[†]およびP1D1Bであり、それぞれ主す

Table 1 Slip systems and Schmid factors of component crystals A and B in two kinds of No. 1 bicrystal specimens B-P-I and B-N-I.

Specimen	B-P-I		B-N-I	
Crystal	A	B	A	B
Primary slip system and Schmid factor	P1D1A 0.50	P1D1B 0.49	P4D3A P4D6A 0.31	P4D2B 0.39
Secondary slip system and Schmid factor	P4D6A 0.44	P4D2B 0.42	P1D2A P3D2A 0.25	P1D5B 0.34

べり系が活動すると両成分結晶ともに粒界にはらせん成分の多い転位が粒界面に平行に侵入・集積し合う。しかしながら、試料B-N-I (同図b)は結晶Aではシュミット因子の値(m 値)が等しく、共面すべりである2つの主すべり系P4D2AおよびP4D6Aが活動すると、ともに混合転位が粒界へ侵入・集積し、結晶B側では主すべり系P4D2Bが活動すると刃状成分の多い転位が粒界面に平行に侵入・集積する試料となる。

しかしながら、実際に粒界近傍において活動したすべり系を理解するためには、弾性係数およびシュミット因子のみならず、応力伝達係数(N_{ij} 値)⁽¹⁸⁾⁽¹⁹⁾、塑性ひずみ適合性⁽¹⁸⁾⁻⁽²⁰⁾および変形に伴う結晶回転⁽²⁰⁾などの考慮が必要であることがわかっている。そこで、本研究の双結晶の変形ではこれらの因子も考慮して活動したすべり系の決定を行った。

Fig. 4(a)に30%引張変形後の試料B-P-Iにおけるうら面の粒界近傍の活動すべり帯の顕微鏡写真を示す。うら面においては両成分結晶ともマトリックス全域にわたって主すべり系P1D1A($m=0.50$)およびP1D1B($m=0.49$)が顕著に活動し、

Fig. 3 Schematic diagrams of Burgers vectors of the primary slip system in No. 1 specimens. (a) B-P-I and (b) B-N-I.

[†] P1D1AはFig. 2における結晶Aのすべり面P1およびすべり方向D1のすべり系を表す。

Fig. 4 Deformation structures near the grain boundary on the back face in No. 1 specimens B-P-I after tensile deformation at a strain of 0.30. (a) optical micrograph and (b) TEM image.

この結果、粒界へは両成分結晶とも主すべり系の顕著な活動による、らせん成分のかなり多い転位が粒界へ侵入・集積したとみなされる。

Fig. 4(a)で観察したうら面表面層の粒界近傍の変形組織との対応をつけるために、双結晶試料のおもて面側から薄膜化し、同じうら面の表面層の粒界近傍をTEM観察した結果の一例をFig. 4(b)に示す。Fig. 4(b)の観察領域は同図(a)における黒丸領域に相当し、かなり局所的ではあるが、平均的な粒界であるとみなせる。この領域はマクロ的(Fig. 4(a))には、主に主すべり系が顕著に活動した領域であり、主すべり系のらせ

ん転位が顕著に活動したとみなされる。このようにらせん転位が主に粒界へ侵入・集積したとみなせる試料B-P-Iにおける30%の引張変形後の粒界は、TEM観察(Fig. 4(b))においてもかなりの直線性を保っていることがわかる。さらに、粒内の転位組織はらせん転位が顕著に活動した場合にみられる、転位密度の高い領域と低い領域との境界に明確なセル壁を形成しないという特徴を持っていることがわかる。

この試料をTEM内において昇温その場観察し、加熱中、約780 K ($0.63 T_M$)で写真撮影し、940 K ($0.76 T_M$)まで昇温後、室温まで冷却した後のTEM写真をFig. 5(a)および(b)にそれぞれ示す。Fig. 4の組織観察した領域はFig. 5(a)において白丸で記した領域であり、同一視野写真であるが、倍率が異なる。試料B-P-Iは $0.63 T_M$ において粒界は融解を生じ始め、 $0.76 T_M$ まで昇温すると長さ約100 μm にも達した。また、同図(a)は加熱中に撮影したために、露出不足により組織観察は不可能であるが、粒界の融解は連続的な粒界(G.B.)において部分的に生じ始め、融解の進行に伴い予融解部がつながり(膜厚の薄い領域から生じるわけではない)、表面張力の影響のためか、融解部の幅は約1 μm 程度になった。

次に、試料B-N-Iの30%引張変形後のうら面における粒界近傍の活動すべり帯の光顕写真をFig. 6(a)に示す。なお、TEM写真(Fig. 6(b))と対応させるために光顕写真(同図(a))をうら焼きした。マクロ的(光顕観察)には結晶A側では主すべり系P4D3A ($m=0.31$)およびP4D6A ($m=0.31$)が粒界近傍からはほぼ全域にわたって均一に活動し、結晶B側では主すべり系P4D2B ($m=0.39$)、さらに、二次すべり系P1D5B ($m=0.34$)および隣接結晶Aの主すべり系P4D6Aとの N_{ij} 値が比較的大きいすべり系P1D6B ($m=0.26$, $N_{ij}=0.55$)も活動したとみなされる。さらに、ジュミット因子は比較的小さいすべり系P2D1B ($m=0.22$)が隣接結晶Aの主すべり系P4D3Aとの N_{ij} 値が比較的大きい($N_{ij}=0.59$)のために粒界近傍においてのみ活動したとみなされる。さらに、結晶A側ではP2D1Bとの N_{ij} 値がかなり大きいP2D4A ($N_{ij}=0.81$)がP2D1Bの活動に促されて、粒界近傍において局所的に活動したとみなされる。

これらの結果、試料B-N-Iのうら面においては、結晶A側では主すべり系P4D3AおよびP4D6Aの活動による混合成分の多い転位が、結晶B側では主すべり系P4D2Bの刃状成分に加え、P1D5BおよびP1D6Bによる刃状成分の多い転位が粒界に侵入・集積したものとみなせる。さらに、粒界近傍において局所的に活動したP2D4AおよびP2D1Bによるらせん成分のかなり多い転位も侵入・集積したとみなされる。

このように、試料B-P-Iと同じ成分結晶(同じ粒界)からなる銀双結晶試料B-N-Iにおいても、銅双結晶と同様⁽²⁴⁾に引張方向が異なると主すべり系が異なるだけでなく、粒界近傍において活動するすべり系および活動の仕方が異なった。

Fig. 6(a)において光顕観察したうら面表面層の粒界近傍の変形組織と対応させるために、試料B-P-Iと同様におもて面側から薄膜化し、うら面の表面層の粒界近傍をTEM観察(Fig. 6(b))した結果、粒界は試料B-P(Fig. 4(b))ほど直線性を保っていないことがわかる。また、あまり明確ではないが、結晶A側では左下がりの帯状のセル壁らしき転位組織が観察

† 一般に、双結晶の引張変形でらせん成分の大きい転位が粒界部で活動すると試料のおもて面とうら面で活動するすべり系が異なる⁽²⁰⁾。これは粒界面に垂直軸まわりの回転が生じ、表面層の粒界近傍において生じるせん断応力⁽²¹⁾⁽²²⁾の正・負が異なるために、隣接結晶の粒界近傍でのすべり系の活動に差ができるためである。しかし、刃状転位が粒界へ侵入・集積する場合は、おもて面からうら面まで、すなわち、おもて面とうら面において同じすべり系の活動となる⁽²³⁾。

Fig. 5 TEM images at lower magnification of Fig. 4(b). (a) at $0.63 T_M$ during heating and (b) after heating at $0.76 T_M$.

できる。結晶 B 側では所々に正方形に近いセルが形成しかけていることもわかる。このことは結晶 A 側へは刃状成分の多い転位の侵入・集積による帯状のセル組織が形成し、結晶 B 側ではらせん転位の活動による転位密度の高い領域と低い領域との境界が曖昧な転位組織を示しているとみなせる。したがって、Fig. 6(a)での判定どおり刃状成分の多い転位に加え、らせん成分の多い転位も粒界へ侵入・集積したことがわかる。

この試料を昇温その場観察しながら、加熱中に約 950 K ($0.77 T_M$) で Fig. 6(b) の同一視野写真 (倍率は異なる) を撮り、1023 K ($0.83 T_M$) まで昇温後、室温まで冷却した後の TEM 写真を Fig. 7((a) および (b)) にそれぞれ示す。Fig. 7(a) は加熱中の撮影によるため、組織は観察できないが、 $0.77 T_M$ において粒界の融解が生じ始めたことがわかる。その後 $0.83 T_M$ まで昇温しても粒界の融解部の長さは進展しなかった。これは 950 K ($0.77 T_M$) (Fig. 7(a)) においてすでに膜厚の厚い方 (下方) に再結晶粒 (R.G.) が形成したために、新しく形成した粒界 (N.G.B.) によって元の粒界の融解の進行は阻止されている。これは、ひずみを蓄えた元の粒界 (G.B.) がなくなったためである。また、Fig. 7(b) において結晶 B の粒内には正方形の明確なセルが形成していることがわかる。この試料 (B-N-I) は B-P-I に比べて転位が整列 (消滅、合体、再配列を含む) しやすいようで、それが予融解の開始を遅らせたのかも知れない。

このように、単一銀双結晶から切り出した、成分結晶 A および B が同じ方位関係を持つ粒界においても、引張方向を変えて変形 (30% の引張変形) を与え、粒界近傍で活動したすべり系が異なると、粒界構造および粒界近傍の転位の集積は変化した。そのため粒界が引張方向に平行である試料 (B-P-I) の粒界の融解開始温度 T_m は $0.63 T_M$ (長さ約 $100 \mu\text{m}$ にまでおよぶ) であり、一方、垂直方向の試料 (B-N-I) は $T_m \approx 0.77 T_M$

と異なった値を示した。

2. 試料 No. 2 (B-P-II, B-N-II)

Fig. 8 に試料 No. 2 の成分結晶 A および B の初期方位および B-P-II および B-N-II の引張方向 (T.D.) をそれぞれ示す。結晶 A は B を Y 軸に近い共通な $\langle 100 \rangle$ 軸のまわりに 20° 回転した方位関係を持つ。これらの試料の主すべり系および 2 次すべり系のシュミット因子を Table 2 に示す。また、試料 B-P-II および B-N-II のそれぞれの主すべり系の模式図を Fig. 9 に示す。試料 B-P-II および B-N-II ともに主すべり系が活動すると刃状成分の多い転位が粒界に侵入・集積するタイプである。

Fig. 10(a) に試料 B-P-II の 30% 引張変形後のおもて面における粒界近傍のすべり帯の光顕写真を示す。両成分結晶とも主すべり系 P1D1A ($m=0.46$) および P1D1B ($m=0.44$) が顕著に活動し、さらに、結晶 A 側では主すべり系とシュミット因子の値がほぼ等しく、隣接結晶の主すべり系 P1D1B との N_{ij} 値が大きい ($N_{ij}=0.88$) すべり系 P4D3A ($m=0.45$) も活動したとみなされる。また、結晶 B 側の粒界の近傍 (Fig. 10(a) の黒い領域) においては隣接結晶の P4D3A と応力伝達係数が大きく、シュミット因子も比較的大きい 2 次すべり系 P3D6B ($m=0.32$, $N_{ij}=0.74$) の著しい活動がみられる。これらすべり系の活動により、両成分結晶とも刃状成分の多い転位がより一層粒界へ侵入・集積したとみなされる。この観察した表面層の粒界近傍における変形後の TEM 組織を Fig. 10(b) に示す。光顕観察においては直線的である粒界が、TEM 観察するとかかなりウェーブしていることがわかる。この粒界に接して転位密度のかなり低いと判断される領域 (白い部分) が存在していることから、銅双結晶の場合⁽²⁵⁾と同様、刃状成分の多い転位が活動することによる粒界近傍の転位の再配列が生じた可能性がある。

Fig. 6 Deformation structures near the grain boundary on the back face in No. 1 specimen B-N-I after tensile deformation at a strain of 0.30. (a) optical micrograph of slip bands, (b) TEM image.

この試料をその場観察しながら 1000 K (0.81 T_M) まで昇温すると、膜厚の分厚い方からは再結晶粒 (R.G.) が形成し、薄い方からは融解・蒸発および昇華が生じた。しかしながら、再結晶粒と変形結晶との粒界 (N.G.B.) はもとより旧粒界 (G.B.) においても融解は生じなかった。

次に試料 B-N-II の場合、30% 引張変形後の光顕観察 (Fig. 11(a)) による粒界近傍における活動すべり系を調べてみると結晶 A 側では主すべり系 P4D3A ($m=0.49$) が広範囲において活動した。その後、変形の進行によって 2 次すべり系 P1D4A

Table 2 Slip systems and Schmid factors of component crystals A and B in two kinds of No. 2 bicrystal specimens B-P-II and B-N-II.

Specimen	B-P-II		B-N-II	
Crystal	A	B	A	B
Primary slip system and Schmid factor	P1D1A 0.46	P1D1B 0.44	P2D1A P4D3A 0.49	P3D6B 0.45
Secondary slip system and Schmid factor	P4D3A 0.45	P1D3B P3D2B 0.39	P1D4A 0.37	P1D1B P4D3B 0.43

($m=0.37$) が活動したとみなされる。しかしながら、粒界の極近傍においては隣接結晶の主すべり系 P3D6B ($m=0.45$) との N_{ij} 値が非常に大きい ($N_{ij}=0.91$) もう一つの主すべり系 P2D1A ($m=0.49$) が、顕著に活動したとみなされる。結晶 B 側においては明瞭なすべり帯の観察はできない主すべり系 P3D6B ($m=0.45$) が活動した。その後、約 10° 結晶回転が生じ (すべり帯の回転から判断)、2 次すべり系 P2D6B ($m=0.26$) が顕著に活動した。これは P3D6B のすべり帯が P2D6B のすべり帯のボケている領域において観察できることから判断できる。その結果、粒界へは結晶 A 側では P4D3A による刃状転位および P2D1A による刃状成分の多い混合転位が、結晶 B 側においても P3D6B および P2D6B による刃状成分の多い混合転位が主に侵入・集積したとみられる。

この観察面の表面層の粒界近傍における変形後の薄膜 TEM 写真を Fig. 11(b) に示す。この試料においても刃状成分の多い転位が顕著に粒界へ侵入・集積したために、変形によって粒界はすでにかなりウェーブし、転位密度の低いと判断される (白く見える) 部分が形成していることがわかる。組織観察後、970 K (0.79 T_M) まで昇温しても、粒内転位は整列したが、粒界の予融解は生じなかった (Fig. 11(c))。

このように試料 No. 2 (B-P-II および B-N-II) においては、引張方向が異なっても刃状成分の多い転位が顕著に侵入・集積した粒界であり、1000 K (0.81 T_M) あるいは 970 K (0.79 T_M) まで昇温しても粒界の融解は生じなかった。

IV. 考 察

銀双結晶試料 No. 1 および No. 2 のそれぞれ B-P および B-N の 30% 引張変形後、粒界近傍において活動したすべり系によって粒界へ侵入・集積する転位の種類、変形後の TEM 観察における粒界の状態および銀の融点に対する粒界予融解温度の比 (T_m/T_M) を Table 3 に示した。

ここで本研究に用いた試料 No. 1 の双結晶から切りだした 2 種類 (B-P-I および B-N-I) の引張試料を 30% 引張変形後、バルク材のまま焼鈍・再結晶化し、試料表面の粒界近傍において形成した再結晶粒について調べた結果、積層欠陥エネルギーがかなり低い銀においては双晶の形成が非常に顕著であったが、B-P-I および B-N-I とともに、粒界へらせん成分の多い転位が主に侵入・集積したことによるとみられる $\langle 111 \rangle$ 軸回転機構による再結晶粒が生じたことを報告⁽¹⁶⁾している。このことは試

† 銀の場合、TEM 内の真空度が約 1000 K において飽和蒸気圧となり、また、この温度においては蒸発および昇華を防ぐ酸化膜がすでに分解しているためにかなり膜厚の厚い領域にまで及んでいる (Fig. 10(c) の上側の白い領域)。

Fig. 7 TEM images at lower magnification of Fig. 6(b). (a) at $0.77 T_M$ during heating and (b) after heating at $0.83 T_M$.

Fig. 9 Schematic diagrams of Burgers vectors of the primary slip systems in No. 2 specimens. (a) B-P-II and (b) B-N-II.

Fig. 10 Optical micrograph of slip bands (a) and TEM image (b) near the grain boundary on the back face in No. 2 specimen B-P-II after tensile deformation at a strain of 0.30. (c) after heating at $0.81 T_M$ in the view of the same point of (b).

転位密度が 10^{17} m^{-2} 以上の部分は $0.5 T_M$ に近い温度になるとその部分は融解温度となっているものと考えている。もちろん $0.5 T_M$ は平均的な試料温度である。

V. 結 言

同一旧粒界構造を持つ銀双結晶において、引張方向が粒界面に対して平行(B-P)および垂直(B-N)の2種類の引張試料をとり、30%の引張変形を与え、薄膜化した後、TEM内で昇温することによって、粒界近傍において活動した活動すべり系の違いが、粒界の予融解らしい現象に及ぼす影響を調べた結果、次のことが明らかになった。

(1) 同一粒界でありながら、粒界近傍において活動するすべり系が異なれば、粒界が予融解する温度(T_m)は異なる。

(2) 粒界にらせん転位が顕著に侵入・集積する試料 B-P-I における粒界の予融解温度は $T_m = 0.63 T_M$ であり、結晶 A 側に混合転位およびらせん転位が、結晶 B 側に刃状転位およびらせん転位の多重すべりが粒界へ侵入・集積した試料 B-N-I においては $T_m = 0.77 T_M$ であった。この粒界ではバルクの再結晶において $\langle 111 \rangle$ 軸回転転機構の再結晶粒が生じた。

(3) 粒界に刃状転位が主に侵入・集積した試料 B-P-II および B-N-II においては $0.79 T_M$ および $0.81 T_M$ まで昇温しても粒界の予融解は生じなかった。ひずみ誘起移動しやすい粒界は融解しにくい。

Fig. 11 Optical micrograph of slip bands (a) and TEM image (b) near the grain boundary on the back face in No. 2 specimen B-N-II after tensile deformation at a strain of 0.30. (c) after heating at $0.79 T_M$ in the view of the same point of (b).

Table 3 Relationship between kind of dislocation of ASS mainly piled up to the grain boundary GB, morphology of GB after deformation and T_m/T_M in the specimens No. 1 (B-P-I and B-N-I) and No. 2 (B-P-II and B-N-II).

Ag bicrystal specimen		Kind of dislocation of ASS* mainly piled up to the GB		Morphology of GB after deformation	T_m/T_M
		Crystal A	Crystal B		
No. 1	B-P-I	Screw	Screw	Straight	0.63
	B-N-I	Edge and screw	Edge and screw	Wavy ($<0.5 \mu\text{m}$)	0.77
No. 2	B-P-II	Edge	Edge	Wavy ($<1 \mu\text{m}$)	>0.81
	B-N-II	Edge	Edge	Wavy ($<1 \mu\text{m}$)	>0.79

* ASS: Activated slip system.

T_m : Grain boundary premelting temperature.

T_M : Bulk melting point.

(4) 銅双結晶と同様、塑性変形した銀薄膜双結晶においてもらせん成分の多い転位が侵入・集積した粒界は、刃状成分のものよりも低い温度で粒界の融解が生じる。

文 献

- (1) 猪子富久治, 田上 稔, 吉川貴士: 日本金属学会誌, **54**(1990), 493.
- (2) F. Inoko, T. Hama, M. Tagami and T. Yoshikawa: Ultramicroscopy, **39**(1991), 118.
- (3) F. Inoko and T. Yoshikawa: *Proc. of Residual Stresses III*, Elsevier Applied Science, **2**(1992), 881.
- (4) A. R. Ubbelohde: *The Molten State of Matter*, John Wiley and Sons, Chichester, (1978), 310.
- (5) J. Q. Broughton and Woodcock: J. Phys. C, **11**(1978), 2743.
- (6) T. Nguyen, P. S. Ho, T. Kwok, C. Nitta and S. Yip: Phys. Rev. Lett., **57**(1986), 1919.
- (7) P. Deymier, A. Taiwo and G. Kalonji: Acta Metall., **35**(1987), 2719.
- (8) R. Kikuchi and J. W. Cahn: Phys. Rev., **B21**(1980), 1893.
- (9) G. Ciccotti, M. Guillope and V. Pontikis: Phys. Rev. B, **27**(1983), 5576.
- (10) G. Chaudron, P. Lacombe and N. Yannacquis: C. R. Acad. Sci., Paris, **226**(1948), 1372.
- (11) K. Clusius and L. A. K. Staveland: Z. Phys. Chem., **49B**(1941), 1.
- (12) M. E. Gricksman and C. L. Vold: Acta Metall., **15**(1967), 1409.
- (13) S. W. Chan, J. S. Liu and R. W. Balluffi: Scripta Metall., **19**(1985), 1251.
- (14) T. E. Hsieh and R. W. Balluffi: Acta Metall., **37**(1989), 1637.
- (15) F. Inoko and T. Yoshikawa: Materials Science Forum, **170-172**(1994), 77.
- (16) 吉川貴士, 猪子富久治: 日本金属学会誌, 投稿中.
- (17) 猪子富久治, 小林 実, 瀬島 淳, 巽 宏平, 飯井政博: 日本金属学会誌, **52**(1988), 1169.
- (18) J. D. Livingston and B. Chalmers: Acta Met., **5**(1957), 322.
- (19) J. J. Hauser and B. Chalmers: Acta Met., **9**(1961), 802.
- (20) 猪子富久治: 軽金属学会誌, **30**(1980), 512.
- (21) 猪子富久治: 日本金属学会会報, **31**(1992), 123.
- (22) F. Inoko, M. Kobayashi and S. Kawaguchi: Scripta Metall., **21**(1987), 1405.
- (23) F. Inoko, T. Fujita and K. Akizono: Scripta Metall., **21**(1987), 1399.
- (24) 吉川貴士, 猪子富久治: 日本金属学会誌, **58**(1994), 596.
- (25) 猪子富久治, 吉川貴士: 日本金属学会誌, **56**(1992), 262.
- (26) 猪子富久治: 日本金属学会会報, **33**(1994), 1505.