純 Al 薄膜の引張破壊過程の透過電子顕微鏡内直接観察*

芳 井 熊 安** 多 賀 豊***
川 辺 秀 昭**** 山 田 朝 治**

Direct Observations of Crack Propagation within Electron Microscope during Extension of Pure Al Foils

by

Kumayasu YOSHII

(Faculty of Engineering, Osaka University, Suita)

Yutaka TAGA

(Toyota Motor Co., Ltd., Toyota)

Hideaki KAWABE and Tomoharu YAMADA

(Faculty of Engineering, Osaka University, Suita)

The process of crack propagation was continuously studied by extending thin foils of pure Al with pre-existing cell structures in an electron microscope. The dislocation structures near the fractured part of pure Al sheet specimens of 100μ thickness were also observed.

The results are summarized as follows ;

(1) When a crack propagates through the cell structures, thinning occurs in the cells lying in the direction of crack propagation due to the dislocations generated from the crack tip. However, pre-existing cell walls still remain in the thinned zone and become sharpened, and finally these cell walls attain the shape of low angle boundaries. Dislocations moving in the thinned zone are stopped at both sides of the zone and the cell walls with high dislocation density are formed there.

(2) The possible mechanisms of crack propagation in the thinned zone, in which the sharp boundaries and the dense dislocation arrays are remaining, are as follows ; (i) shear rupture by the generation of dislocations from the crack tip, (ii) coalescence of the microcracks with the main crack, and (iii) failure along the sharp boundary.

(3) Fracture teeth of less than several thousands angstroms thick are formed at the fractured parts of the sheet specimen. Well-defined low angle boundaries remain in the fracture teeth. In the still thicker parts near the root of fracture teeth, dislocation tangles or fine cell structures exist. The processes of formation of these structures can be explained from the direct observations of crack propagation.

(Received Oct. 2, 1974)

1 緒 言

金属材料の延性破壊現象が塑性変形と密接に結びついていることから、延性破壊過程において転位が重大な役割を演じると考えられ、従来から延性き裂発生、伝ばに対していくつかの転位機構が提案されている¹⁾。しかしこれらの機構は、fractography や光学顕微鏡観察からの予想であり、延性破壊の微視的機構は充分解明されているとはいえない。透過電子顕微鏡による下部

転位組織の観察をとおり、延性破壊機構を明らかにすることも必要と考えられる。

ところで最近では電子顕微鏡により、bulk 結晶内で起こるのと全く同種の現象を鏡体内で試料に起こさせ、現象の動的過程を連続的に直接記録し解析を行ない、結晶の降伏や加工硬化現象を解明しようとするのがすう勢となってきた。Au²⁾、Al³⁾ や Al-4%Cu³⁾、純 Al⁴⁾⁵⁾ および Fe⁶⁾ 単結晶、Ag や 18-8 不銹鋼などの金属薄膜の引張破壊過程の透過電顕内連続観察も行なわれており、電顕内連続観察が破壊機構解明に対しても有力な手段であることが明らかとなっている。

* 原稿受理 昭和49年10月2日

** 正 会 員 大阪大学工学部 吹田市山田上

*** トヨタ自動車工業(株) 豊田市トヨタ町

**** 大阪大学工学部 吹田市山田上

Al のような 積層欠陥 エネルギーの高い面心立方晶⁷⁾属では、加工硬化が進むにつれてセル組織が形成され、そのようなセル組織内をき裂は伝ばすると考えられる。そこで本報は、き裂伝ばとセル組織との関連性を容易に観察するため、引張変形によって生じたセル組織をもつ薄膜試験片を電顕内で引張破壊させ、き裂伝ば過程における転位挙動を直接観察し、さらに 100 μ 厚さの純 Al 多結晶板材の引張破断部近傍の転位組織観察も行ない、これらの結果をもとにして微視的な延性破壊過程を明らかにしようとするものである。

2 実験方法

2・1 電顕内引張用薄膜試験片作製法

用いた材料は 99.999 % Al である。電顕内引張用薄膜試験片は 2 種類あり、き裂伝ば過程の観察に焼なまし材薄膜試験片、またセル組織の挙動の観察に引張変形材薄膜試験片を用いた。約 100 μ の厚さの板材を 500°C $\times$ 2 hr で真空焼なましを行なった後、焼なまし材薄膜引張試験片の作製に供する。一方引張変形材薄膜試験片は、Fig. 1 の形状の試験片を成形した後焼なましを行ない、その試験片をインストロン引張試験機 (TT-CM-L 型) によりひずみ速度 2×10^{-4} /sec で引張り、破断した試験片の均一変形部から作製される。

これらの約 100 μ の厚さの板材を電解研磨により薄膜化するとともに研磨穴をあける。この研磨穴周辺部が電子線透過領域である。研磨穴をもつ薄膜から、電

Fig. 1. Dimensions of a tensile specimen (mm).

Fig. 2. Preparation of the thin tensile specimen for direct electron microscope observations. A indicates the final shape of the tensile specimen and B the region removed away by the electro-polishing.

顕内引張試験片を作製する方法を Fig. 2 に示す。ワセリンを塗ったガラス板上に薄膜をのせ、研磨穴を中心にしてほぼ 1 $\times$ 3 mm の矩形状にワセリンで覆う(A)。つぎに A 領域周辺 (B 部) を残し他の部分をワセリンで覆い、電解研磨を行ない B 領域を研磨し去る。研磨されず残った A 部のワセリンをリグロインで除去し、その後よく洗浄を行なう。このようにしてできるかぎりひずみのはいらないようにして採取した試料を、電顕内引張用試験片とした。

2・2 透過電顕内引張装置

純 Al 薄膜のき裂伝ば過程の直接観察には主として日本電子製 JEM-6AS (加速電圧 100 kV) を、またき裂伝ば過程におけるセル組織挙動の観察には、日立製 HU-500 (加速電圧 500 kV) を用いた。

JEM-6AS 電顕へ組込み可能なように試作した薄膜引張装置の概略を Fig. 3 に示す。従来から開発されてきた電顕内引張装置を变形方式から分類すれば、機械方式^{2,8,9)}と加熱方式^{10,11)}とに大別できる。本研究において試作した装置は、井村らの引張装置¹¹⁾と同一機構でステンレス線の熱膨張を利用してひずみを与える加熱方式で

Fig. 3. The device used for applying strain to foils within JEM-6AS electron microscope.

ある。装置は試料をとりつける 2 本のアーム①②、その支持部③④、二つの支持部に反撥力を与えるための円形バネ⑤、バネの働きを規制するために、コの字形に配置したステンレス線⑥などから成り立っている。アーム②は円すい状になっており、引張装置を電顕内の傾斜台に固定する働きをし、観察を所望の条件で行なえるようになっている。一方アーム①、支持台③は可動であり通常の引張試験機のクロスヘッド部に相当する。ステンレス線により充分板バネを締め付けた後、薄膜試験片を①②のアーム先端に接着する。引張時にはターミナル⑦を通して直流電流をステンレス線⑥に流す。ステンレス線は熱膨張し、膨張に応じたバネ⑤の復元力により支持台③は滑らかに移動し試料は引張変形をうける。

HU-500 電顕に装着される引張装置は、東大物性研において試作されたもので、引張力はやはりステンレ

ス線を介して加えられる。

写真の撮影は転位組織変化やき裂の進展に応じて、任意の位置で引張りを停止し行なった。

2・3 破断部近傍の観察

Fig. 1 に示す形状の試験片を引張破断した後、破断部から透過電顕観察用試料を切り出し、電解研磨を行わず直接破断部を、厚さ方向から HU-500 電顕により観察した。検鏡試料の採取は、破断部を中心に直径約 3 mm の部分をワセリンで覆い、薄膜引張試験片を切り出した方法と同一要領で行なった。

3 実験結果および考察

3・1 焼なまし材薄膜

純 Al 焼なまし材薄膜の引張り裂伝ば挙動は、超高圧電顕内連続観察によってすでに報告されている⁴⁾¹²⁾。本実験でも薄膜のき裂伝ば過程を把握するために、中央部に研磨穴をもち断面が楔形状の純 Al 焼なまし薄膜の、研磨穴周辺から徐々に厚い領域へ進展するき裂の伝ば過程を加速電圧 100 kV の電顕内で直接観察した。Fig. 4 は研磨穴周辺の応力集中により穴端部から進展したき裂を示している。穴近傍の 1000 Å 程度までの厚さ領域では、Aのごとく単一すべり面で容易にすべり破壊し直線的なき裂を生じるが、2000 Å 程度以上の膜厚領域では、き裂先端近傍からの多数の転位の発生と運動により、Bのごとく薄化領域が形成される。加速電圧 100 kV の電子線が透過しうる Al の試料厚さは、3000~4000 Å までであるので、超高圧電顕観察で得られているような、発生、運動した転位によるセル組織の形成は、き裂周辺にみられない。一方 Fig. 5 のように電子線が透過不能なほどに膜厚の大きい領域へき裂(A)が進展してきた場合は、き裂先端から発生し

Fig. 5. Crack propagation due to dislocations from the crack tip. A indicates the crack, B the dislocations generated from the crack tip and C the tangles of dislocations.

周辺の地へ運動する転位(B)が互いに絡み合った結果生じたと考えられる転位群(C)が、薄化領域両側に観察されるようになる。

充分厚さの薄くなった薄化領域内をき裂は伝ばするが、その伝ば法は純 Al、Ag や 18-8 不銹鋼の薄膜の超高圧電顕内連続観察結果と同様で、き裂先端から一つのすべり面上で最終的に発生した転位群によってすべり破断し、き裂が進展する場合と、微小き裂が発生した後成長して、主き裂と連結し、き裂が伝ばする場合が観察できた。

3・2 セル組織を有する薄膜

純 Al 板材を引張破断した試料の均一変形部（ひずみ約35%）の内部組織は、径が約 3 μm のセル組織状態であった。このようなセル組織内をき裂は伝ばしたと考えられる。そこでき裂伝ばとセル組織との関連性を観察するため、2・1 で述べたごとく引張変形によって生じた均一変形部から作製した薄膜試験片を、電顕内で引張破断した。このような組織は電顕観察におい

Fig. 4. Crack initiated at the edge of electropolished hole. A indicates the straight crack and B the thinned zone ahead of the crack.

て、比較的膜厚の大きい領域（約 3000 Å 以上）で存在し、それ以下の膜厚領域では転位の再配列が生じていた。したがって透過性能の大きい 500 kV 電顕を用いて、転位組織の再配列が生じていないような膜厚の大きい領域で、き裂伝ば過程中的セル組織の変化の様相を観察した。

Fig. 6 は、A で示されているようなセル組織の存在する領域へき裂が伝ばしてきた場合を示している。き裂先端付近での応力集中により B のごとく発生した多数の転位は、個々のセル内を運動し、バーガースベクトルが膜表面と大きく傾く多数の転位の活動により、セル内で薄化が進行する。またこれらの活動する転位は、周辺の膜厚の大きい領域に存在する転位群や応力こう配のため運動を止められ、互いに絡み合って薄化領域両側に、C のごとく新たに高転位密度の長いセル

Fig. 6. Crack propagation into the cell structures. A indicates the pre-existing cell structures, B and C the dislocations and tangles of dislocations generated from the crack tip, respectively.

Fig. 7. Thinned zone formed in the cell structures. A, A', B, and B' indicate the cell walls.

壁を形成する。Fig. 7 は、セル組織内の薄化状態を示している。き裂は左上方に位置し、右下方へ薄化領域が形成されている。薄化領域と交わっているセル壁は薄化前に存在していたもので、このことは、薄化が充分進行していない A や B のセル壁が、薄化をうけていない横の A' や B' のセル壁の延長であることから判断できる。さらに薄化が進行するとともに、これらのセル壁は線状化した。その一例が Fig. 8 (a) の A で、(b) はそのセル壁を中心に円で囲んだ領域の制限視野回折像である。回折像から、境界をはさむ粒の膜面方位は同一で粒間方位差が約 6° であることがわかり、この明りょうな境界は、転位間の平均距離が約 50 Å の小傾角粒界のようである。したがって薄化はき裂先端に存在する個々のセル内で生じ、薄化領域内のセル壁は、薄化の進行とともに明りょうで線状な小傾角粒界化するといえる。

(a) Electron micrograph of thinned zone. (b) Diffraction pattern in the region A.

Fig. 8. Residual cell wall in the thinned zone.

Fig. 9. Continuous observation of crack propagation along the remaining cell walls in the thinned zone in the sequence of (a) and (b). A indicates the cell wall in the thinned zone.

両側が高転位密度のセル壁によって囲まれ、内部に線状化した境界の存在する薄化領域内をき裂は伝ばした。その連続観察結果が Fig. 9 で、(a)は薄化領域と残存したセル壁Aを示し、(b)は(a)の薄化領域内を伝ばしたき裂を示している。(b)から、き裂はセル内では、焼なまし材において観察されたと同じようにすべり破断し伝ばするが、線状化した境界に達すると、境界に沿い進展し、それからさらに方向をかえてつぎのセル内へと伝ばしていることがわかる。純 Fe の 550℃における電頭内引張試験結果⁵⁾において、亜粒界の変形および亜粒界に沿ったき裂伝ば挙動が観察されているように、純 Al においてもせん断型のき裂伝ばだけでなく、小傾角化した境界に沿ってのき裂伝ばが生じるといえる。

3・3 バルク材のき裂との比較

以上のようなき裂伝ば挙動は、薄膜特有の現象であるという可能性がある。そこで厚さ 100 μ の純 Al 多結晶板材の引張破断部近傍の下部転位組織観察を行な

った。

純 Al 多結晶材を引張変形した場合、100 % 断面減少後破断した。き裂発生後除荷し、そのき裂部を 100 kV の透過電顕で厚さ方向から観察したのが Fig. 10 である。電子線透過可能なA部の fracture teeth と透過不能のB部とにわかれている。Fracture teeth の厚さを等厚干渉縞により測定した結果、厚さは破断端から電子線透過不能部に向かい徐々に増加し、約 5 000 Å にまで達していた。破断部に fracture teeth が形成されていることから、薄膜の場合と同様 bulk 板材においても、断面減少によってき裂伝ば直前には、超薄膜領域が形成され、その薄化領域内をき裂が伝ばしたと考えられる。

500 kV 電顕の大きい透過性能を利用すると、Aの fracture teeth 部はもちろんのことB部の内部組織をも容易に観察することができた。その一例を Fig. 11 に示す。Fracture teeth 部には転位はほとんど残存していなかったが、Aで示される明りょうで直線的な境界が 1.5~2 μ の間隔で並んでいる。B部の 5 000 Å 以上の厚さ領域では fracture teeth に残存していた境界

Fig. 10. Observation of the fractured part of the sheet specimen of pure Al by transmission electron microscope operating at 100 kV. A indicates the fracture teeth and B the region untransparent to electrons.

Fig. 11. Observation of the fractured part of the sheet specimen of pure Al by transmission electron microscope operating at 500 kV. A indicates the well-defined boundary, B the residual dislocations.

が続き、それらの境界間が高密度の転位状態にある。また $0.5\sim 1\mu$ の径をもつ微細化したセル組織もしばしば観察された。Fracture teeth に存在する線状の境界は、電頭内連続観察において、き裂伝ば前に存在していたセル壁が薄化とともに転位密度を減少し、安定な転位のみで構成される小傾角粒界になったものに対応するのであり、厚い部分での複雑な転位組織は、薄化領域形成、き裂伝ばのために活動した転位が互いに絡み合い、新たな転位壁を形成したり、微細なセル組織を形成した結果であろう。⁴⁾¹²⁾

Bulk の破断部近傍で観察される組織が、薄膜のき裂伝ば過程に生じる転位組織状態とよく類似していることから、薄膜において起きたき裂伝ば挙動に近いことが、bulk においても生じていると考えられる。

4 結 言

引張変形によって形成されたセル組織をもつ純 Al 薄膜を、透過電頭内引張試験機により変形させ、き裂伝ば過程を直接観察し、さらに 100μ 厚さの純 Al 板材の引張破断部の下部転位組織も調べた。その結果、次の事柄が明らかとなった。

(1) き裂がセル組織内を伝ばする場合、き裂先端あるいは近傍から発生する転位の運動により、き裂伝ば方向に存在するセル内で薄化が生じる。薄化領域内のセル壁は明らかに直線的となり、小傾角粒界に類似した形で残存する。薄化領域内を運動する転位は、応力こう配や他の転位群の障害によって薄化領域両側で運動を止められ、互いに絡み合ったりして、そこに高密度の転位壁が形成される。

(2) 両側が高密度の転位壁によって囲まれ、内部に線状化した境界の存在する薄化領域内をき裂は伝ばする。き裂が伝ばする方法は、き裂先端から転位の発生によりすべり破壊する場合、微小き裂が薄化領域内に発生、成長し、主き裂と連結する場合、薄化領域内に残存する境界に沿って伝ばする場合の三とおりが観察される。

(3) 純 Al 多結晶板材の破断部には、厚さ数千オン

グストローム以下の fracture teeth が形成されており、明りょうな小傾角粒界が残存している。Fracture teeth 根元近くの比較的膜厚の大きい領域では、高密度の転位群や微細なセル組織が観察される。これらの組織の形成過程は、薄膜のき裂伝ば挙動から充分予想できる。

本研究を遂行するに当たり貴重な助言を賜った東大物性研竹内伸助教授、超高压電頭の操作にご協力いただきました東大物性研鈴木邦夫氏、市原正樹氏に深謝の意を表する。

(昭和45年5月20日 日本材料学会第19期総会学術講演会；昭和46年5月21日 日本材料学会第20期総会学術講演会にて講演)

参 考 文 献

- 1) McLean, D. C., "Mechanical Properties of Metals", p. 224 (1962) Wiley, New York
- 2) Pashley, D. W., Proc. Roy. Soc., **A255**, 218 (1960).
- 3) Forsyth, P. J. E., and R. N. Wilson, J. Inst. Metals, **92**, 82 (1963-64).
- 4) Saka, H., and T. Imura, Japan. J. Appl. Phys., **9**, 1185 (1970).
- 5) 横井正良, 野原 晃, 湯川夏夫, 井村 徹, 上野武夫, 金属学会昭和48年度春季大会講演概要集, 35 (1973).
- 6) Bauer, R. W., R. H. Geiss, R. L. Lyles, and H. G. F. Wilsdorf, Z. Metallk., **63**, 525 (1972).
- 7) Honeycombe, R. W. K., "The Plastic Deformation of Metals", p. 80 (1968) Edward Arnold, New York
- 8) Saka, H., K. Noda, and T. Imura, J. Phys. Soc. Japan, **32**, 289 (1972).
- 9) Saka, H., K. Noda, and T. Imura, Japan. J. Appl. Phys., **11**, 1357 (1972).
- 10) Lehtinen, B., E. Broberg, and L. Dahné, J. Sci. Instrum., **44**, 289 (1967).
- 11) Saka, H., T. Imura, and N. Yukawa, Japan. J. Appl. Phys., **10**, 1 (1971).
- 12) 井村 徹, 第18回材料強度と破壊国内総合シンポジウム論文集, 9 (1973).