



Title	タンタルの引張り変形組織の電子顕微鏡的研究
Author(s)	竹山, 太郎; Takeyama, Taro; 高橋, 平七郎 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 48, 173-185
Issue Date	1968-06-20
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/40870">https://hdl.handle.net/2115/40870</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	48_173-186.pdf



# タンタルの引張り変形組織の 電子顕微鏡的研究

竹山太郎\*

高橋平七郎\*

(昭和43年1月16日受理)

## Dislocation Structures of Deformed Tantalum by Electron Microscopy

Taro TAKEYAMA\*

Heishichiro TAKAHASHI\*

(Received January 16, 1968)

### Abstract

Commercial tantalum deformed in various strain at room temperature was studied by means of a transmission electron microscope. The dislocation configurations showed considerable differences between the furnace-cooled and quenched specimens. The former specimens showed numerous precipitates and helical dislocations together with dislocation loops.

Dislocations were produced from precipitates as a result of stress concentration and tangle with dislocation loops or precipitates. Therefore, it may be said that cell structures are developed in the early stage of deformation.

While, in the quenched specimens uniform dislocation distribution persist even under higher strains. In this case grain boundaries may act as dislocation sources.

### 1. 緒 言

塑性変形組織の電子顕微鏡的観察は変形機構や加工硬化機構の解明のために有力な方法である。これまで多くの研究は fcc 金属<sup>1,2)</sup> でなされてきたが、近年、Fe<sup>3)</sup>、Fe-Si 合金<sup>4)</sup>、Nb<sup>5)</sup>、V<sup>6)</sup>、Ta<sup>7)</sup>、W<sup>8)</sup> および Mo<sup>9)</sup> など bcc 金属についても同様に研究されてきた。しかし、これら bcc 金属はすべり系が複雑であり、また添加元素、とくに侵入型元素の含有によって、塑性による変形の挙動は一層複雑である。したがって、降伏現象や加工硬化に対し、不純物元素の挙動を明らかにするため、さらに多くの基礎的資料が要求されている。

変形に際し、不純物は転位の固着作用<sup>10)</sup>、運動する転位に対する摩擦<sup>11)</sup> および転位の増殖作用として重要な問題となっている。

\* 金属化学研究施設

\* Metals Research Institute.

また、変形による応力-歪み曲線図の硬化過程は転位の存在状態、密度などと密接な関係がある他、析出物その他の欠陥の有無によっても大きな影響を受ける。

本研究では市売の多結晶タンタルを用い、炉冷によって不純物を析出させた試料と、急冷によって不純物を固溶状態に保持した試料について、引張り変形による応力-歪み曲線図に従って種々の変形量に対応する組織の変化を電子顕微鏡で直接観察した。とくに不純物析出の影響が、転位の発生、転位の相互反応ならびにセル組織の形成などを与える影響について注目し、両試料の相異を明らかにした。

## 2. 実験方法

### 2-1 試料および熱処理

試料はビーム溶解した市販のボタン状タンタンを使用した。その分析値を Table 1 に示す。純度は約 99.8% である。この試料は約 100  $\mu$  の厚さまで冷間圧延した。加工率は 90% である。試料は圧延方向を長軸とし、長さ 50 mm、幅 3 mm の短冊状に切断したのち 2.5 mm の平行部をもった引張り試験片を作製した。この試料は  $2 \times 10^{-6}$  mmHg の真空度で不透明石英管中に封じ込んだのち、前もって 1,200°C に保持してある縦型炉の中に挿入し、1 時間加熱した後、-12°C の塩水中に急冷処理および毎分 60°C の冷却速度で炉中冷却処理を行なった。このような熱処理で試料は完全に再結晶している。また得られた結晶粒度はともに約 47  $\mu$  である。この試料は直ちに、インストロン型引張り試験機を用いて常温で変形した。変形速度は  $3.3 \times 10^{-4}$  毎秒である。

### 2-2 電子顕微鏡観察用薄膜試料作製

変形した引張り試験片は 3×4 mm の大きさに切断し電子顕微鏡で観察した。薄膜試料作製には、噴射研磨法と仕上げ研磨法を併用した<sup>12)</sup>。

その研磨条件は次の通りである。噴射研磨条件；硝酸 1 容，フッ酸 1 容，水 3 容の混液。

電圧 40 V，電流密度 1.2 Acm<sup>-2</sup>。仕上げ研磨条件；硫酸 1 容，フッ酸 1 容，水 3 容の混液。電流密度 0.4~2.1 Acm<sup>-2</sup>。薄膜試料作製後ただちに透過電子顕微鏡で観察した。加速電圧は 100 kV を用いた。

Table 1. Composition analysis of tantalum.

element	Concentration (wt. %)
H	0.001
O	0.11
C	0.023
N	0.001
Ni	0.003
Fe	0.011
Si	0.001
Cr	0.002
Nb	0.009
Cu	0.002
Ti	0.003

## 3. 実験結果

### 3-1 引張り試験結果

炉冷および急冷処理を行なった試料の応力-歪み曲線を Fig. 1 に示す。炉冷試料には降伏点降下がはっきり認められるが、急冷試料では明瞭な降伏点降下は観察されない。応力-歪み

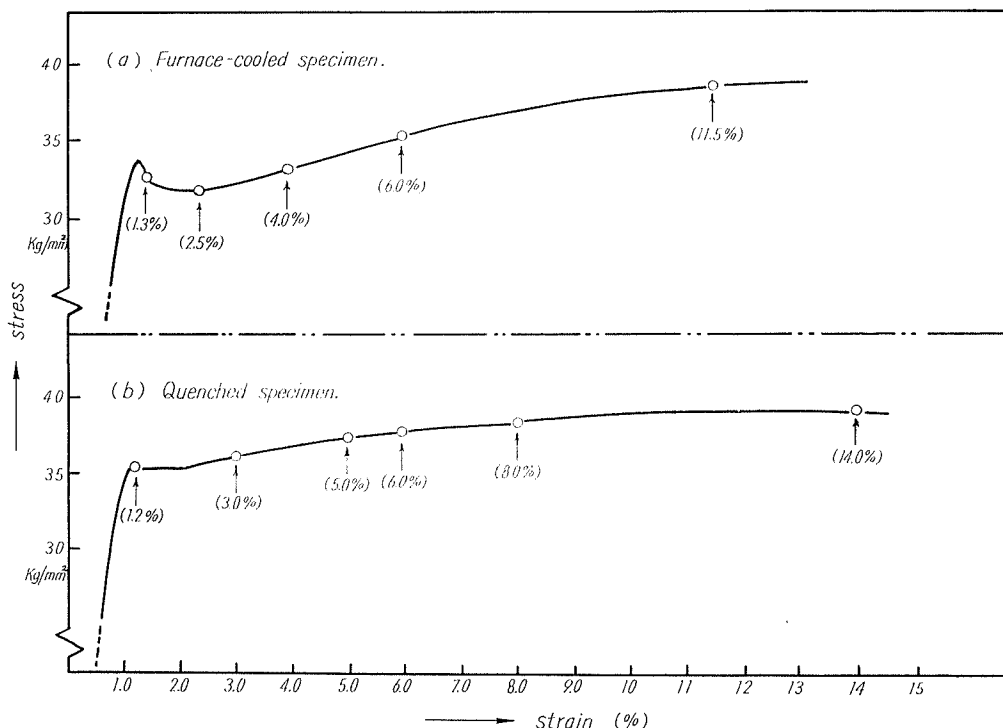


Fig. 1. Stress-strain curve of a commercial tantalum.  
(a) furnace-cooled specimen. (b) quenched specimen.

曲線図でみられるように、歪み量の増加に伴って約1%の降伏伸びに続いて加工硬化領域が生ずる。この領域における加工硬化率は急冷試料に比して炉冷試料の方が高い。これら応力-歪み曲線図に対応した変形試料の内部構造変化を透過電子顕鏡で観察した結果を次に示す。

### 3-2 炉冷試料の変形組織

1200°Cから炉冷したままの組織はFig. 2に示すごとく、不純物による析出の他に、転位ループも観察される。試料を1.3%変形した降伏直後の組織はFig. 3(a)および3(b)に示すごとく、析出物の近傍に転位の発生が認められる。すなわち、析出物は転位の発生源として作用していることを示している。析出物近傍の複雑にもつれた転位の他に、転位ループやヘリカル転位なども認められる。

この試料面はほぼ(111)面で、楕円形のループやヘリカル転位の並んでいる方向は、観察面上では $[\bar{1}\bar{1}2]$ 、および $[1\bar{2}1]$ である。ループの形状は試料の傾きによって変化するもので、単位ループを円形とすれば、その中心を通る軸の方向は $\langle 111 \rangle$ となる。すなわち、ループやヘリカル転位は(11 $\bar{1}$ )、および( $\bar{1}\bar{1}1$ )面上にのっているものと思われる。転位ループは刃状型転位であるが、格子間型か空孔型かについての実験は行なわなかった。しかしこの転位ループは類似した特性をもつ鉄<sup>13)</sup>、モリブテン<sup>14)</sup>などに報告されているものと同様な格子間型と類推される。

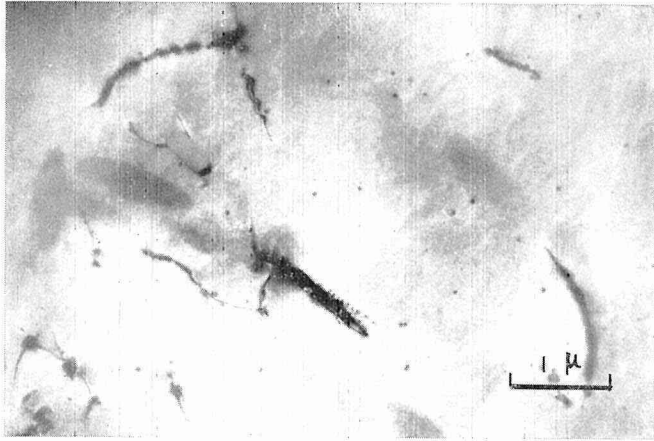
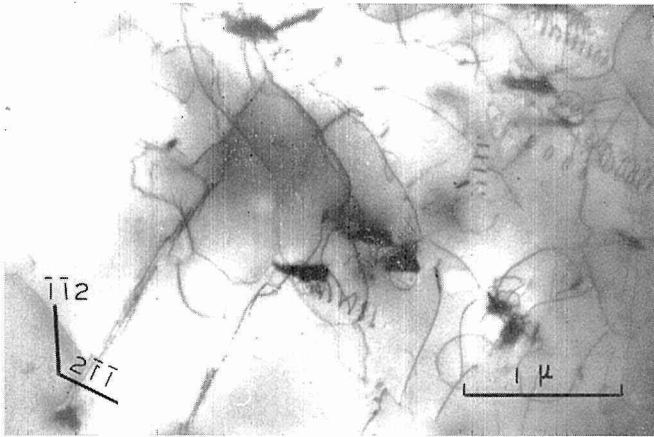
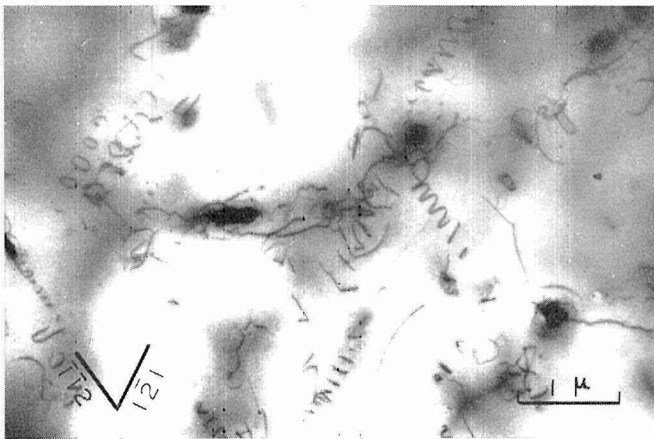


Fig. 2. A furnace-cooled structure.



(a)



(b)

Fig. 3 (a) and (b). Dislocation structure after 1.3% strain

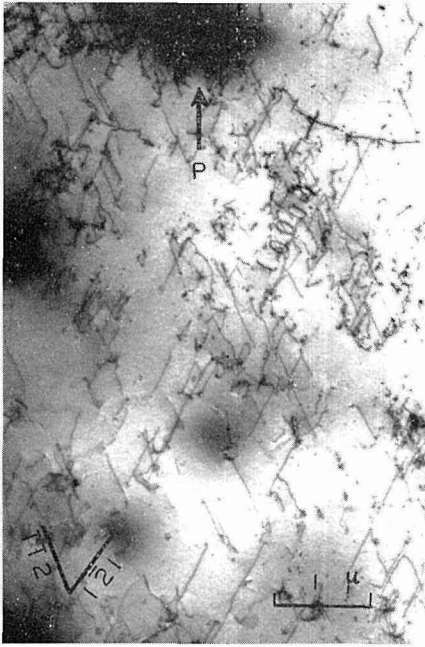


Fig. 4 (a). 4.0% strain.

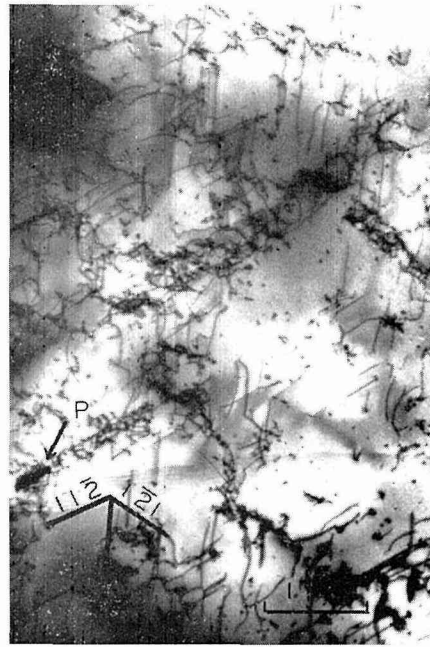


Fig. 4 (b). 4.0% strain.

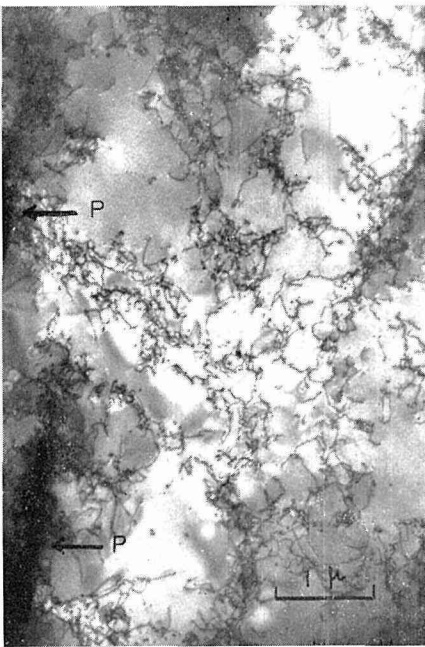


Fig. 5. 6.0% strain.

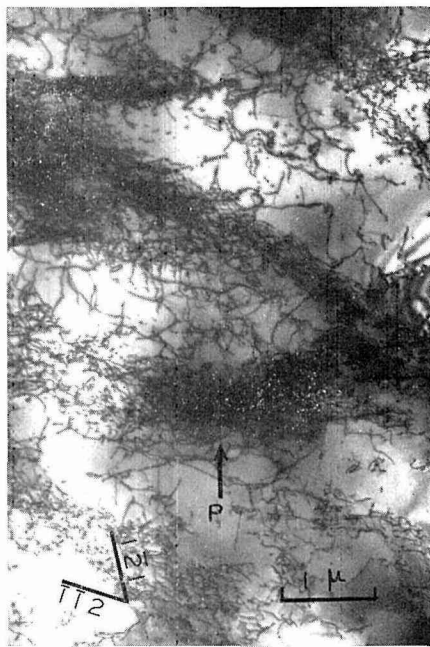


Fig. 6. 11.5% strain.

Fig. 4-6. Dislocation arrangements produced after various strain.

これら転位ループやヘリカル転位は冷却中に、析出物と地との熱膨張差によって形成されたものだろう。またループの大きさは、それを発生させた析出物の大きさにほぼ等しい(原理的に、発生応力は静水圧であるため、球状析出物を考えると析出直径の $\sqrt{2}$ に等しいものと考えられる)<sup>15)</sup>。

4% 歪みを与えたときの組織を Fig. 4 (a), 4 (b) に示す。転位密度は増大し(約  $7 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ ) 増殖が顕著に行なわれたことを示している。からみ合った転位が多くなり、とくに析出物の近傍で著しい。また Fig. 4 (b) に示すような、方向性をもってからみ合った転位群がみとめられた。試料面は (111) で、からみ合った転位群は、観察面上で、 $[\bar{1}\bar{2}1]$  および  $[11\bar{2}]$  の方向に認められる。記号、P は析出物を示す。この転位群の方向は  $a/2 [1\bar{1}1]$ , および,  $a/2 [\bar{1}\bar{1}1]$ , のバーガース、ベクトルに平行である。このことから、析出物から生ずる方向性を示す転位ループ列に、増殖した転位がからまることによって方向性をもった転位群を形成しているものと思われる。勿論この過程で2つ以上のすべり系の活動や交さすべりは、転位のからみ合の形成(タングル)を助長しているだろう。

更に加工度を増加する(6% 歪)と、転位密度の高い部分と比較的低い部分との区別は明瞭となり、セル組織を形成する(Fig. 5)。

ここでセル境界を形成する転位が析出物(P印)から生じているのが観察される。

この様に変形の進行につれ、主として析出物から発生した転位はからみ合い、次第にセル組織を形成する様になる。

歪み量を11.5%にすることによって、一層明瞭なセル組織を示す。これは Fig. 6 に観察されるように、転位網から構成されている。

同様な転位網の形成について、Mitchells<sup>16)</sup> がタンタル単結晶において報告している。これらの転位網は  $a/2 [111] + a/2 [\bar{1}\bar{1}1] \rightarrow a [001]$ , の反応<sup>17)</sup> によって生じたものと考えられる。

### 3-3 急冷試料の変形組織

急冷処理した場合、前節の試料と異なり、結晶粒内および粒界は Fig. 7 に示すごとく不純物の析出は全然観察されなかった。12% 変形した降伏点直後の組織では Fig. 8 に示すごとく結晶粒界から発生したと考えられる転位配列をしばしばみとめる。結晶粒 A と B を接合している粒界には2方向の転位コントラストが(↑印)認められる。

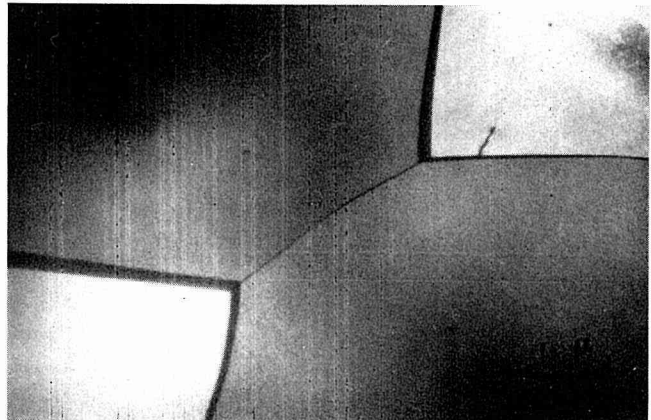


Fig. 7. A quenched structure.

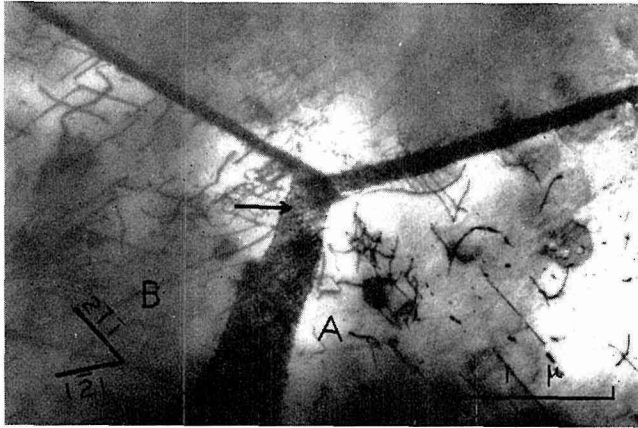


Fig. 8. 1.2% strain near a grain boundary.

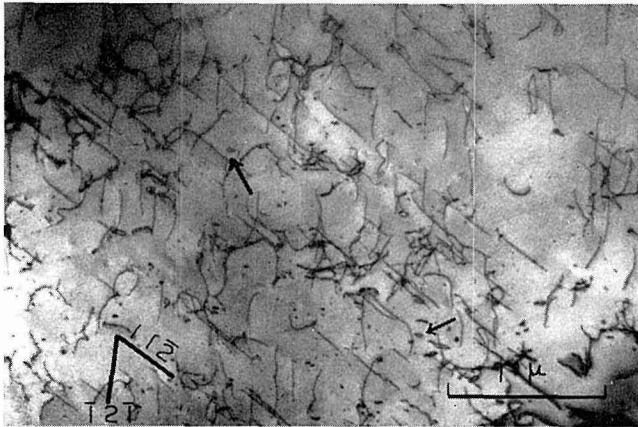


Fig. 9. 2.9% strain.

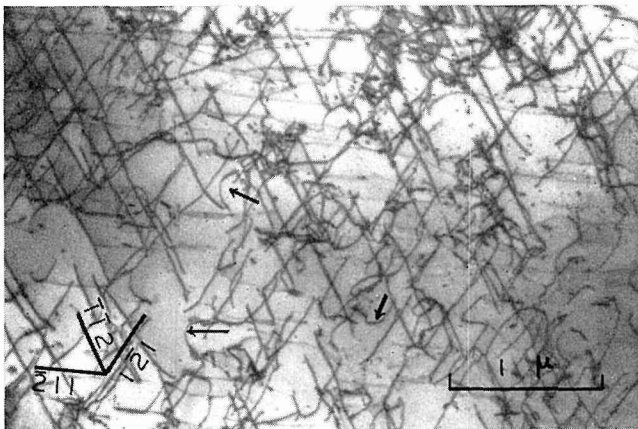
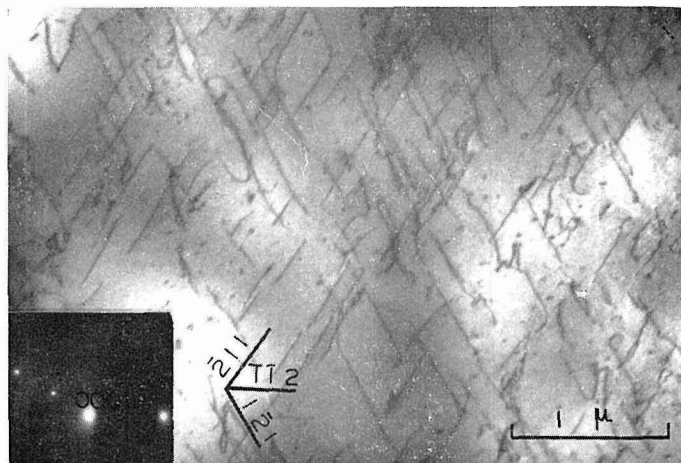
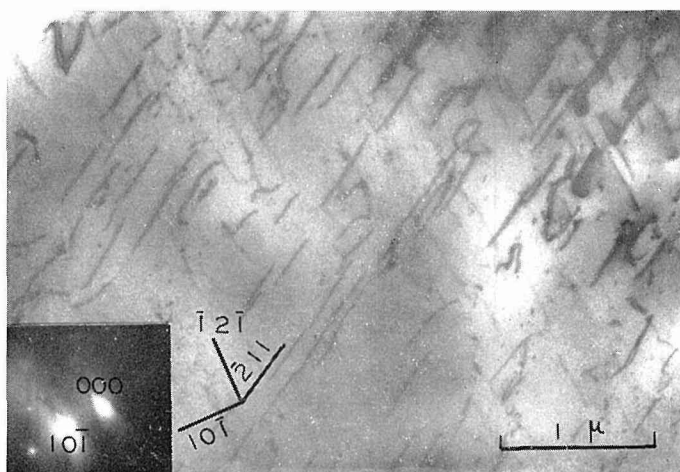


Fig. 10. 5.0% strain.

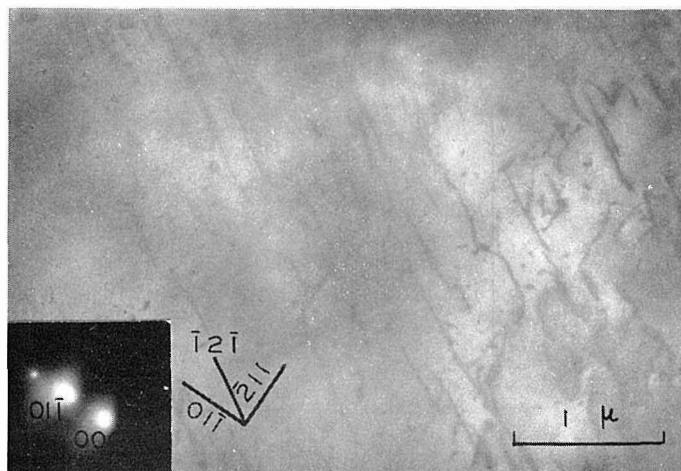
Fig. 8-10. Dislocation arrangements produced after various strain.



(a) taken in 112.



(b) taken in 101.



(c) taken in 011.

Fig. 11. Vanishing of dislocation images for  $g \cdot b = 0$ .

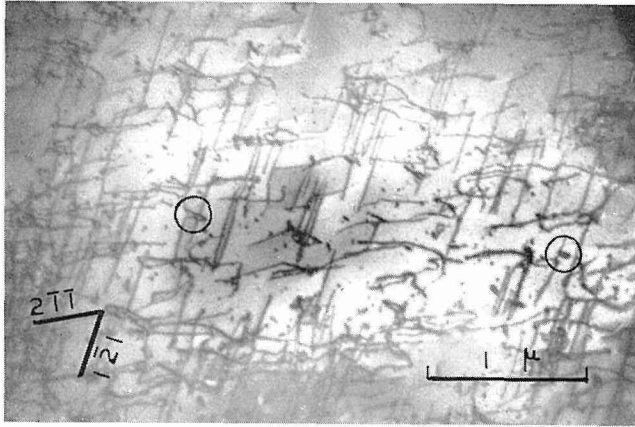


Fig. 12. 6.0% strain.

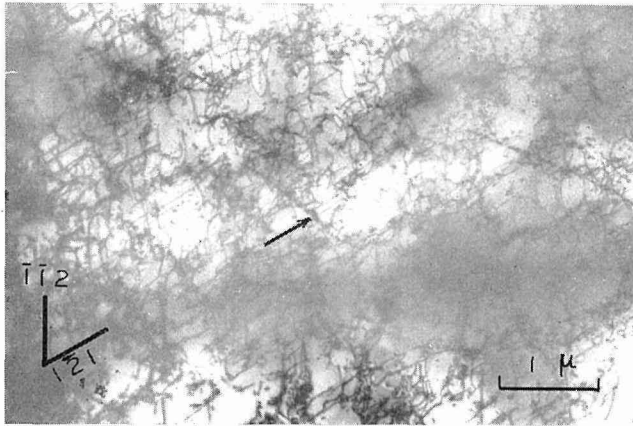


Fig. 13. 8.0% strain.

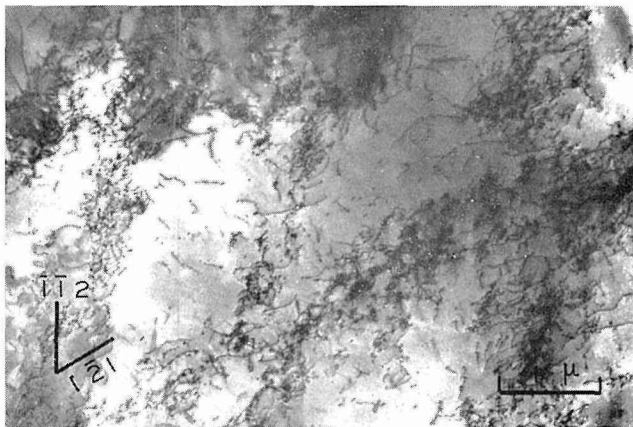


Fig. 14. 14.0% strain.

Fig. 12-14. Dislocation arrangements produced after various strain.

粒界上の  $[\bar{1}2\bar{1}]$  方向の転位は B 粒内に多数みとめられるが、ほぼ  $[2\bar{1}\bar{1}]$  方向の転位は A 粒にのみ認められる。

方向性をもった直線状の転位について、Fig. 11 (a), (b), (c) に示すごとく試料の傾斜によるコントラスト消滅の条件、すなわち  $g \cdot b = 0$  を求めてバーガースベクトルを決定した<sup>18)</sup>。その結果を Table 2 に示す。見掛け上  $[\bar{1}2\bar{1}]$ 、および  $[\bar{2}11]$  方向の転位は、それぞれ  $a/2 [1\bar{1}1]$  および  $a/2 [\bar{1}11]$ 、バーガース、ベクトルをもつ、らせん転位である。この組織は、Barbee ら<sup>19)</sup> がタンタルで観察したものと様に粒界転位源の活動によって生じたものだろう。Fig. 11 は 1.2% 変形を行なった組織の粒内の転位分布を示す。平行な 2 方向のらせん転位の他に転位ループや転位尖頭（カスプ）などが観察される。

2.9% 変形した組織の転位分布は、Fig. 9 に示す。2 つの  $[\bar{1}2\bar{1}]$  および  $[11\bar{2}]$  方向に平行な直線状のらせん転位および長く伸びた転位ループ (↑) が多く観察される。これは転位の交さによって形成されたものであろう。からみ合った転位はほとんど観察されない。5% (Fig. 10)~6% (Fig. 12) の変形では各所からみ合った転位が認められるようになるがまだ多くの転位は直線状のらせん成分の強い組織である。矢印で示したごとく、わん曲した転位も多く観察される。これはらせん転位の 2 重交さすべりによる増殖過程を示している<sup>20)</sup> と考えられる。変形の進行につれて転位の交さや交さすべりが活発になり、転位ループやカスプ等の形成が多くなって、転位のからみ合いが生じ転位密度も増大する。

Fig. 12 には刃状の双極転位が観察される (丸印)。これはらせん転位のジョグによって形成されたものだろう。他に多数の転位ループ (40~200Å) が観察される。8% の変形では Fig. 13 に示すごとく直線状のらせん転位もまた認められるが、からみ合った転位が増加し次第にセル組織を示す様になる。

14% 変形した組織を Fig. 14 に示す。Fig. 6 に示す炉冷試料と同様にセル組織を示しセル壁に転位網がみられる。

#### 4. 考 察

炉冷試料と急冷試料で応力-歪み曲線の相異が組織的にも異なった挙動を示すことが明らかにされた。

急冷した試料では不純物は固溶状態に保持されているため、結晶粒内、粒界ともに析出物が認められず炉冷試料のような効果はない。

しかしながら最初から結晶内に存在していると考えられる転位と (Fig. 13 矢印)、移動し

**Table 2.** Values of  $g \cdot b$  for Burgers vector determination.

$b$	$g \cdot b$		
	$g = \bar{1}\bar{1}2$	$g = 10\bar{1}$	$g = 01\bar{1}$
$1/2 [111]$	0	0	0
$1/2 [\bar{1}11]$	1	$\bar{1}$	0
$1/2 [\bar{1}\bar{1}1]$	2	$\bar{1}$	$\bar{1}$
$1/2 [1\bar{1}1]$	1	0	$\bar{1}$

た転位がもつれ合った様子がみられる。

最初から存在する転位が増殖源として作用することも考えられるが、この転位は不純物によって雰囲気を形成<sup>10)</sup>し固着され、むしろ応力集中の場である結晶粒界が Fig. 8 に示すごとく転位源として優先的に活動するだろう。

したがって転位の運動に要する応力は、固溶体効果を含む摩擦応力によって支配される。

それ故、この応力に近づくと粒界から自由転位が放出されるため顕著な降伏点降下を示さない。

炉冷試料では最初から存在している転位、ならびに粒界は優先析出の場となり、すべて強く固着されている。引張り変形によって応力が降伏点近くに到達すると、析出物はとくに応力が集中し、Fig. 2 に示すごとく新しい転位発生場となり転位は急激に増殖する。このため、

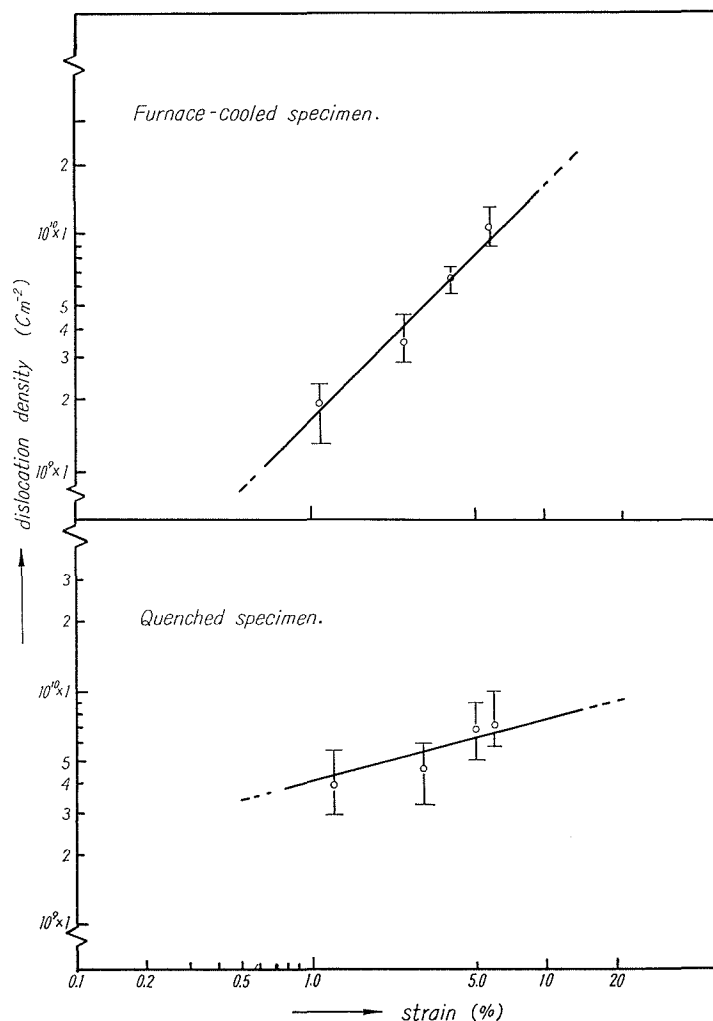


Fig. 15. Average dislocation density as a function of strain.

一時的な応力低下が期待され<sup>11)</sup>、巨視的に降伏点降下として観察される。この試料でみとめられる不純物析出は、酸素の含有量が多いことから、多分酸化物であろう<sup>21)</sup>。

変形にともなう転位密度の増加について、Fig. 15 に変形歪み量と転位密度の関係を示す。

転位密度は次式<sup>22)</sup>、 $N=(n_1/l_1+n_2/l_2)/t$ 、によって計算した。試料の厚さ ( $t$ ) として (110) 反射の消衰距離に基づいて<sup>18)</sup>、 $2,000 \text{ \AA}$  が得られた。この図から明らかなごとく、炉冷試料の方が急冷試料よりも転位の増殖する割合が大きい。これは前述した様に不純物析出の効果によるものとみられる。また転位密度の変化とともに、急冷、炉冷両試料を比較した場合、不純物の存在する状態によって組織変化が異なる。炉冷試料に観察される転位ループや析出物は運動する転位の障害となる。この強い抵抗力のために転位のからみ合を生じ、続いてセル組織への発達が早く行なわれる。

これに対して急冷試料では転位の移動に対する障害が少いため、セル組織の形成が遅くなる。転位のからみ合いは移動する転位の相互作用、すなわち切り合い、二重交さすべり過程で生ずる双極転位ループおよびジョグに転位がもつれることによって生ずるのであろう。このような変形による転位間の相互反応が生ずる過程では加工硬化の割合は低い。炉冷試料が急冷試料に対比して加工硬化の割合の高いのは (Fig. 1)、個々の転位の交さやその相互作用を中心とした短範囲応力場による効果<sup>23)</sup> よりも析出物やセル組織による長範囲応力場<sup>24)</sup> の方が転位の運動に対して一層強い抵抗力として作用していることを示している。

Torne らは同様な報告をニオブウムについて提出している<sup>25)</sup>。すなわち、種々の不純物を含んだ試料について研究した結果は、不純物を急冷、および炉冷処理によって固溶および析出させた効果と良く一致している。この様に同一試料でも含有している不純物の存在する状態によって転位の発生、増殖、および障害効果が非常に異なっていることがわかる。

なお  $a/2 \langle 111 \rangle$  バーガスベクトルのらせん転位が多く観察される。これは Fe-Si 合金で示されている<sup>26)</sup> のと同様に、刃状転位の速度がらせん転位より早いためである。

この様に多結晶金属における塑性変形中に含有する不純物は転位運動に複雑に影響している。また結晶粒界は変形過程において重要な場所であることが理解される。

## 5. 結 言

市販タンタルについて炉冷ならびに急冷した試料の応力-歪み曲線に対応する変形組織の変化過程を観察した。

(1) 炉冷試料では酸化物による多くの析出物が観察され、これが転位源として作用し、転位ループ、ヘリカル転位を発生している。

(2) 変形によって析出物は転位の増殖源として作用するほか、運動する転位の障害となりセル組織の形成を促進する。

(3) 急冷試料には不純物析出は認められない。析出物が存在していない場合は、結晶粒界が転位源として重要である。

(4) 急冷試料は変形量の高い所まで均一な転位分布を示し、セル組織の形成は遅くなる。

## 文 献

- 1) Hirsch, P. B.: The Relation between Structure and Mechanical Properties of Metals, Vol. II (London; H.M.S.O.) (1963) p. 40.
- 2) Howie, A.: Direct observation of Imperfections in Crystals, John Wiley & Sons, New York (London),
- 3) Brandon, D. G. and Nutting, J.: J. Iron. Steel Inst. 196 (1960), p. 160.
- 4) Kahn, H. and Giririfalco, L. A.: Acta Met., 14 (1966), p. 749.
- 5) Stiegler, J. O., Dubose, C. K. H., Read, R. E. and McHargue, C. J.: Acta Met.; 11 (1963), p. 851.
- 6) Edington, J.W. and Smallman, R. E.: Acta Met., 12 (1964), p. 1314.
- 7) Mcivor, I. D. and Dwen, W. S.: J. Less Common Metals, 4 (1962), p. 409.
- 8) Argon, A. S. and Maloof, S. R.: Acta Met., 14 (1966), p. 1449.
- 9) Lowley, A. and Gaigher, H. L.: Phil. Mag., 10 (1964), p. 15.
- 10) Cottrell, A. H.: Phys. Soc. London (1948).
- 11) Johnston, W. G. and Gilman, J. J.: J. Apply. Phys., 30 (1959), p. 129.
- 12) 竹山・八戸・佐藤: J. Electron Microscopy, 15 (1966), p. 269.
- 13) 茅野: 日本金属学会誌, 31 (1967), p. 316,
- 14) Lawley, A. and Gaigher, H. L.: Phil. Mag., 8 (1963), p. 1713.
- 15) Jones, D. A. and Mitchell, J. W.: Phil. Mag., 3 (1958), p. 1.
- 16) Spitzing, W. A. and Mitchell, T. E.: Acta Met., 14 (1966), p. 1311.
- 17) Thomas, G. and Washburn, J.: Electronmicroscopy and Strength of Crystals, John Wiley & Sons, Inc. (1963), p. 291.
- 18) Hirsch, P. B., Howie, A., Nicholson, P. B., Pashley, D. W. and Whelen, M. J.: Electron Microscopy of Thin Crystals, Butterworths, (1965), p. 263.
- 19) Barbee, T. W. Jr. and Hurggins, R. A.: Technical Report, No. 12, January (1965), Stanford University,
- 20) Low, J. R. Jr. and Turkalo, A. M.: Acta Met., 10 (1962), p. 215.
- 21) Barbee, T. W. Jr. and Hurggins, H. A.; Less-Common Metals, 8 (1965), p. 306.
- 22) 幸田成康: 金属物理学序論, p. 237, コロナ社.
- 23) Bailey, J. E. and Hirsch, J. B.: Phil. Mag., 5 (1960), p. 485.
- 24) Seeger, A.: Dislocations and mechanical Properties of Crystals, John Wiley & Sons, New York (1957), p. 243.
- 25) Van Torne, L. I. and Thomas, G.: Acta Met., 11 (1963), p. 881.
- 26) Low, J. R. Jr. and Turkalo, A. M.: Acta Met., 10 (1962), p. 215.