

コロイド結晶成長における固液界面形態が与える粒界偏析の変化

The Effect of the Morphology of the Solid/Liquid Interface on Impurity Partitioning Behaviours during Colloidal Polycrystallization

胡素梦, °野澤純, 郭素霞, 小泉晴比古, 藤原航三, 宇田聡

Tohoku Univ. IMR, Sumeng Hu, °Jun Nozawa, Suxia Guo, Haruhiko Koizumi, Kozo Fujiwara, Satoshi Uda

E-mail: nozawa@imr.tohoku.ac.jp

結晶粒界は多結晶体の物性や化学的性質を決定する重要な要素であり, 特に不純物の粒界への偏析は材料の機械強度や耐腐食性などに大きな影響を与えるため, これまで多くの研究がなされている. 我々のグループでは, この粒界偏析の詳細なメカニズムを, コロイド結晶を用いて明らかにする研究を行っている. これまで, 結晶成長中に粒界に取り込まれる不純物の濃度が結晶の成長速度, 粒界を形成す結晶粒同士の角度に依存する事を明らかにした (Hu *et al.*, *Crystal Growth and Design* 15 (2015) 5685-5692). これらの結果は, コロイド結晶の利点である1粒子レベルでのその場観察によって明らかにされた. この観察の中で, 粒界が融液に露出する場所では結晶に常に凹みが形成している事が明らかとなった (Fig. 1). 本発表では, 固液界面に形成された凹みが粒界偏析に与える影響について議論する.

コロイド粒子としてPolystyreneを用い, 結晶には500nm, 不純物には粒径の異なる粒子 (粒径 560, 600, 700nm) を用いた. 700nm については蛍光粒子も併用した. 溶液の蒸発に伴う体積分率の上昇を利用して結晶化させ, その様子を光学顕微鏡で観察した.

結晶成長に伴う融液中の不純物分布の時間変化を Fig. 2 (a) に示す. 図左下に粒界(GB)を伴う結晶が右上に向かって成長している (i). およそ30分成長した後が(iv)となる. Fig. 2(b)は融液部分を(i)中の黄色線で示すように分割し, その中に含まれる不純物数をプロットしたものである. 横軸は粒界からの位置を示し, 奥行きは経過時間を示している. この図から明らかなように, 成長初期には均質に分布していた不純物粒子が, 時間の経過とともに凹みの形成された融液部分 (横軸 $x=0$ 近辺) の不純物濃度が上昇している. 固液界面に形成された凹みに, 結晶成長に伴って融液中の不純物が濃集する事が示された.

ここで, 図1に示すように凹みの形状は粒界毎に異なるため, 凹みの面積 (黄色部分) をパラメータとして, 粒界に取り込まれた不純物濃度との関連を調べた. その結果, 凹みの面積が大きくなる程, 粒界における不純物濃度も高くなる事が明らかになった (Fig. 3). 面積が大きくなるほど不純物を濃集する効果が大きくなる結果が得られた. 凹みの形成原理については, 粒界と結晶粒の界面張力の兼ね合いによって決まると考えているが, コロイド結晶における界面張力については諸説あるため, 今後さらなる実験結果を基にした詳細な議論が必要である.

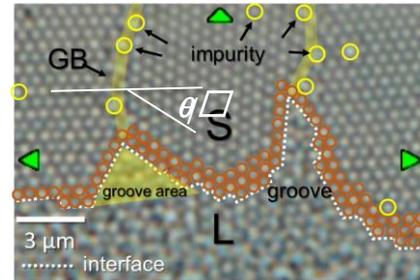


図1 固液界面に形成された凹み

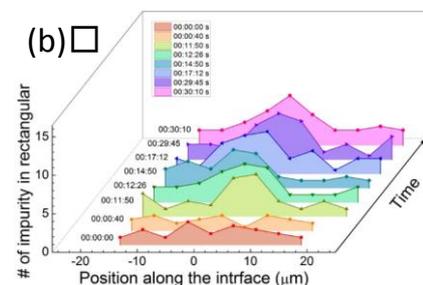
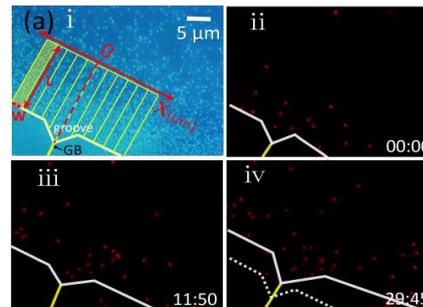


図2 (a) 融液中の不純物分布 (b) 不純物分布の経時変化

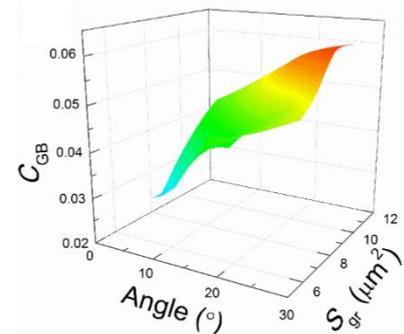


図3 粒界の角度, 凹みの面積に対する粒界の不純物濃度