

アコースティックエミッション法による NaCl 結晶中の転位運動解析

白岩 隆行

東京大学大学院工学系研究科マテリアル工学専攻

概要

本研究は、製塩産業や医薬品分野など、多岐にわたる産業で基礎物質として利用される NaCl 単結晶を対象とし、その変形および破壊の微視的メカニズムを解明することを目的とする。特に、材料の品質や性能を最終的に左右する転位やき裂といった結晶欠陥の発生と進展挙動を理解することは極めて重要である。この目的を達成するため、本研究では、デジタルマイクロスコープを用いたその場観察とアコースティック・エミッション (AE) 法を組み合わせ、異なるひずみ速度条件下および応力緩和過程における NaCl 単結晶の圧縮試験を実施した。

実験の結果、NaCl 単結晶の圧縮変形においては、へき開破壊とすべり変形が主要な変形モードであることが確認された。材料内部の局所的なエネルギー解放現象によって発生する弾性波である AE 信号は、これらの変形過程を鋭敏に捉えることに成功した。AE 信号の発生源位置標定解析の結果は、観察されたへき開き裂の発生位置と良好な一致を示した。荷重-変位曲線には明瞭なひずみ速度依存性が観察され、より低いひずみ速度では延性的な挙動が増す傾向が見られた。AE 信号の RMS 電圧は、応力-時間曲線における荷重低下時に突発的な上昇を示し、これは局所的なき裂進展あるいは集団的なすべり運動に対応するものと考えられる。さらに、巨視的なき裂進展が観察されない応力緩和試験の荷重保持中においても、微小な AE イベントが検出された。このことは、荷重保持中にも転位運動に起因する微視的なすべり変形が継続していることを示唆している。応力緩和曲線から導出された応力指数 m^* は、転位速度の応力感受性に関する知見を与える。本研究は、その場観察と AE 法を組み合わせた手法が、NaCl の複雑な変形・破壊ダイナミクスの評価に有効であることを実証した。得られた知見は、NaCl の基礎的な機械的特性の理解を深めるものであり、製塩プロセスの最適化、結晶品質 (例えば、粒度や形状) の制御、さらには塩の新たな産業応用を探る上で不可欠な基盤情報となる。これらの成果に基づく今後の研究は、高品質な塩の製造技術の向上や、他のイオン結晶性材料の力学挙動理解にも貢献することが期待される。

1. 研究目的

塩化ナトリウム (NaCl) は、一般的には食塩として広く知られているが、その用途は食品加工や調味料に留まらず、医薬品の製造プロセスや化学工業における基礎原料としても極めて重要な位置を占めている^[1]。これらの応用分野において、NaCl 結晶の粒度、形状、純度といった品質特性に加え、機械的強度や安定性などの物理的特性を精密に制御することは、最終製品の性能や製造プロセスの効率に直接的な影響を与えるため、極めて

重要である。NaCl 結晶の機械的特性は、結晶成長過程やその後の粉碎、造粒、輸送、貯蔵といった様々なプロセス中に導入される「転位」と呼ばれる線状の結晶格子欠陥や、その他の微視的欠陥の密度および分布状態に大きく左右される^[2, 3]。例えば、転位の存在は結晶の塑性変形能を高める一方で、高密度に集積した場合には応力集中を引き起こし、き裂発生の起点となり得る。

しかしながら、NaCl 結晶内部における転位の動的な挙動、特にナノメートルからマイクロメートルの微小領域で、

ナノ秒からマイクロ秒という極めて短い時間スケールで発生する素過程については、従来の観察技術では直接的に捉えることが困難であった。そのため、その詳細なメカニズムには未解明な点が多く残されているのが現状である。古典的な塑性変形に関する研究は数多く存在するものの^[4, 5], 材料が実際に負荷を受けて変形あるいは破壊に至るまさにその瞬間の微視的イベントを高時間分解能で捉え、それをマクロな力学応答と結びつける研究は依然として挑戦的な課題である。

このような背景のもと、本研究グループでは、材料内部の微視的な変形や破壊現象を動的かつ高感度に検出する手法として、アコースティック・エミッション(AE)法と、その場観察技術を組み合わせた評価アプローチの開発に取り組んできた。AE法は、材料が変形したり微小なき裂を発生させたりする際に、局所的に蓄えられたひずみエネルギーが弾性波(AE波)として放出される現象を利用するものであり、極めて微小なイベントの発生を非破壊的に検知できるという特徴を持つ^[6, 7]。

本研究の主たる目的は、このAE法とデジタルマイクロスコープによるその場観察技術をNaCl単結晶の力学試験(圧縮試験および応力緩和試験)に適用し、力学的負荷下における微視的変形挙動を詳細に解析することにある。具体的には、異なるひずみ速度条件下での変形挙動とAE発生特性の相関、さらには応力緩和過程におけるAE発生源の同定を通じて、NaCl単結晶の塑性変形および破壊の微視的メカニズムを明らかにすることを目指す。これにより、高品質な製塩技術の開発や、食品・医薬品分野における塩の新たな応用展開に繋がる可能性のある基礎的知見を獲得することが期待される。本研究はまた、塩関連技術の革新と持続可能な社会への貢献という広範な目標にも合致するものである。

2. 研究方法

2.1 供試材

本研究では、約 $10 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$ の寸法を持つNaCl単結晶を供試材として用いた。NaClは面心立方格子構造を有する代表的なイオン結晶であり、室温付近では主に $\{110\}$ 面をすべり面、 $\langle 011 \rangle$ 方向をすべり方向とする $\{110\}\langle 011 \rangle$ すべり系が活動し、へき開破壊は $\{100\}$ 面で生じることが知られている^[5]。圧縮試験における荷重軸は、結晶の $\langle 100 \rangle$ 方位に設定した(Fig. 1)。この方位を選択した理由は、複数の $\{110\}\langle 011 \rangle$ すべり系に対して等価なせん断応力がかかるため、比較的均質な塑性変形を促進し、単一のすべり系のみが極端に活動することによる早期の局所変形や破壊を抑制し、すべり変形に起因する現象を観察しやすくするためである。

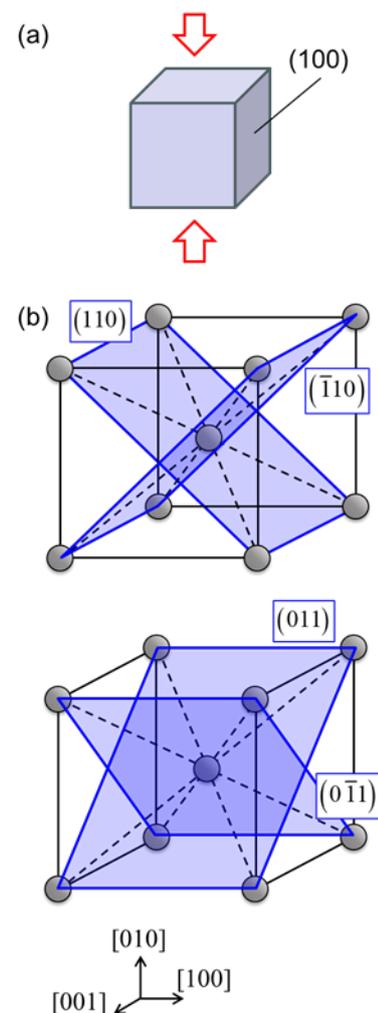


Fig. 1 (a) Schematic illustration of the $\langle 100 \rangle$ uniaxial compressive loading applied to the NaCl single crystal. (b) Crystallographic representation of the primary slip systems, $\{110\}\langle 011 \rangle$, in the NaCl crystal structure.

2. 2 圧縮試験装置

圧縮試験には、最大荷重容量 50 kN の直流(DC)モータ駆動型試験機を使用した。近年の多くの万能試験機は交流(AC)サーボモータによって駆動されているが、これらの AC モータおよびその制御系は、インバータ制御などに伴い高周波の電氣的ノイズを発生させることが多く、これが微弱な AE 信号の検出において大きな障害となる場合がある。本研究で使用した旧型の DC モータ駆動試験機(オートグラフ AG-5000C, 島津製作所)は、このような高周波ノイズの発生が比較的少ないという利点があり、高感度な AE 計測に適していると判断した。一方でこの装置には、応力緩和試験などにおける精密な変位制御、特にステップ状の変位付与や一定変位保持を実現する機能がない。そこで Arduino マイクロコントローラとマイクロサーボモータを組み合わせた簡易的な変位制御システムを自作した(Fig. 2)。このシステムを試験機のクロスヘッド駆動機構に接続し、プログラムに基づいて目的の変位プロファイルを与えることを可能とした。

2. 3 圧縮試験・応力緩和試験

初期の一連の圧縮試験は、0.5 mm/min のクロスヘッド速度で実施した。その後、ひずみ速度が変形挙動および AE 発生特性に与える影響を調査するため、クロスヘッド速度を 0.01 mm/min に大幅に低下させた条件でも試験を行った。また塑性変形と微視的破壊が混在して発生する場合、それぞれの現象に起因する AE 信号を分離同定することは容易ではない。特に、転位運動に由来する AE 信号をより明確に捉えることを目的として、応力緩和試験を実施した。具体的な手順として、まず試料に一定量の圧縮変位(公称ひずみ 0.5%に相当する0.05 mm)を与え、その後クロスヘッドの変位を 100 秒間一定に保持した。この保持期間中に、応力の時間的变化(緩和)と AE 発生挙動を詳細に計測した。この負荷と保持のサイクルを繰り返し、段階的に試料の全ひずみを増加させた。

2. 4 その場観察

試験中の試料側面からの変形様相(すべり線の発生、き裂の発生・進展など)をリアルタイムで観察し記録するため、キーエンス社製デジタルマイクロスコープ VHX-8000 を試験装置に設置した。これにより、変形中の表面状態の変化を詳細に捉えることが可能となった。

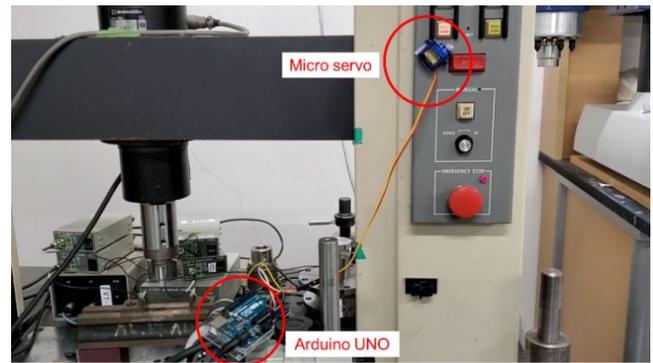


Fig. 2 Photograph of the Autograph AG-5000C compression testing machine, retrofitted with a custom-developed displacement control unit employing an Arduino UNO microcontroller and a micro servo motor for precise displacement steps and holding periods.

2. 5 AE 計測

AE 計測には、複数の M304A 型 AE センサ(富士セラミックス)を用いた。このセンサは共振型であり、センサハウジング内にプリアンプを内蔵しているため、非常に高い感度を有する。実際の圧縮試験における治具へのセンサ取り付け例と試験全体の様子を Fig. 3 に示す。AE センサは、音響的結合を良好に保つため、シアノアクリレート系瞬間接着剤を用いて圧縮治具に直接固定した。

センサで検出された AE 信号は、専用のアンプで増幅された後、連続波形計測装置(Continuous Wave Memory, CWM)を用いてサンプリングレート 10 MHz によって連続的にデジタルデータとして記録された。記録された AE 波形データに対しては、試験機由来の低周波機械的ノイズを除去するために 100 kHz のデジタルハイパスフィルタ処理を施した。AE イベントとして認識するための閾値は 60 dB に設定した。

イオン結晶である NaCl では、転位運動に伴う荷電や圧電効果様の応答により電氣的ノイズが発生する可能性も考慮し、圧縮治具の絶縁処理など、ノイズ低減策にも注意を払った。

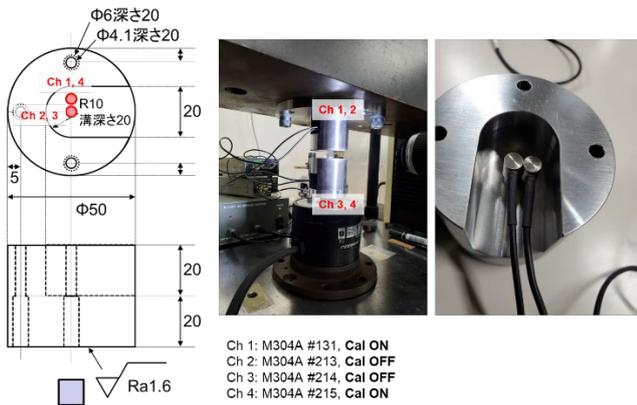


Fig. 3 Details of the acoustic emission (AE) sensor (M304A, Fuji Ceramics) installation on the compression jig, including a schematic of the jig (left), a photograph of the AE sensors mounted on the jig within the testing machine (center), a close-up of the sensors (right), and AE channel assignments.

3. 研究結果

3. 1 圧縮試験(クロスヘッド速度:0.5 mm/min)

3. 1. 1 変形挙動と破壊形態

クロスヘッド速度 0.5 mm/min で NaCl 単結晶を圧縮した際に得られた代表的な応力-時間曲線, および対応する AE 信号の RMS 電圧-時間曲線を **Fig. 4** に示す。応力は, 時間の経過 (すなわち変位の増加) に伴って概ね上昇するが, その過程で複数回にわたり急激な応力低下 (Load drop) が観察された。またデジタルマイクロスコープによるその場観察の結果を **Fig. 5** に示す。明瞭なへき開面 ($\{100\}$ 面と特定) と, 複数のすべり線が確認された。観察されたすべり線の角度は, NaCl の主たるすべり系である $\{110\}\langle 011\rangle$ すべり系から予測される $\{110\}$ すべり面の表面トレースとよく一致しており, 塑性変形がこのすべり系で進行したことを強く示唆している。これらの観察結果から, この条件下での圧縮変形中には, へき開破壊とすべり変形が同時に, あるいは相互作用しながら進行していたものと考えられる。

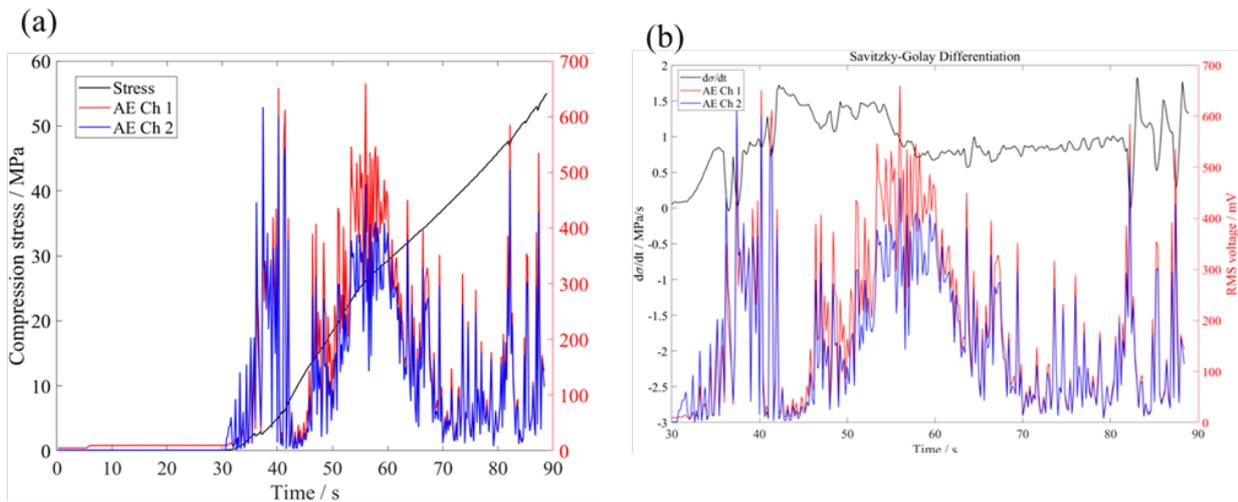


Fig. 4 (a) Typical stress-time profile (black line) and simultaneously recorded acoustic emission root mean square (AE RMS) voltage (red/blue lines for different channels) during compression of an NaCl single crystal at a crosshead speed of 0.5 mm/min. (b) Time derivative of stress ($d\sigma/dt$) (black line) plotted with AE RMS voltage, showing correlation between stress drops and AE bursts.

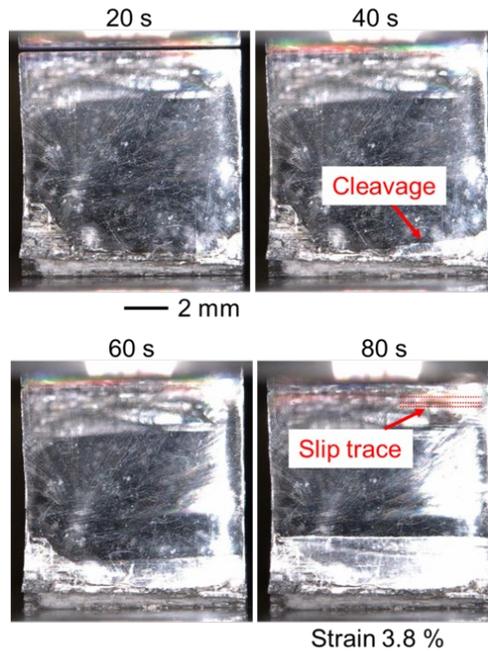


Fig. 5 Sequential digital microscope images of the NaCl specimen surface taken at different time points (20 s, 40 s, 60 s, 80 s) during compression at 0.5 mm/min, illustrating the development of cleavage cracks and slip traces. The final image corresponds to a nominal strain of 3.8%.

3. 1. 2 AE 発生挙動

AE の RMS 電圧は、**Fig. 4** に示されるように、応力-時間曲線における応力低下の発生と時間的に非常によく対応を示した。すなわち、応力が急激に低下する際に、突発的で活動度の高い AE が発生することが明らかになった。2 チャンネルの AE センサを用いて一次元的な AE 発生源位置標定を行った結果を **Fig. 6** に示す。

この図から、AE イベントは試料全体から発生しているものの、特に振幅の大きなイベント群は、試験後に観察された主要なへき開破壊が生じたと推定される位置、あるいはその近傍に集中していることが判明した。この事実は、観測された高振幅の AE イベントが、主としてへき開破壊の進展に伴って発生したものであることを強く支持している。

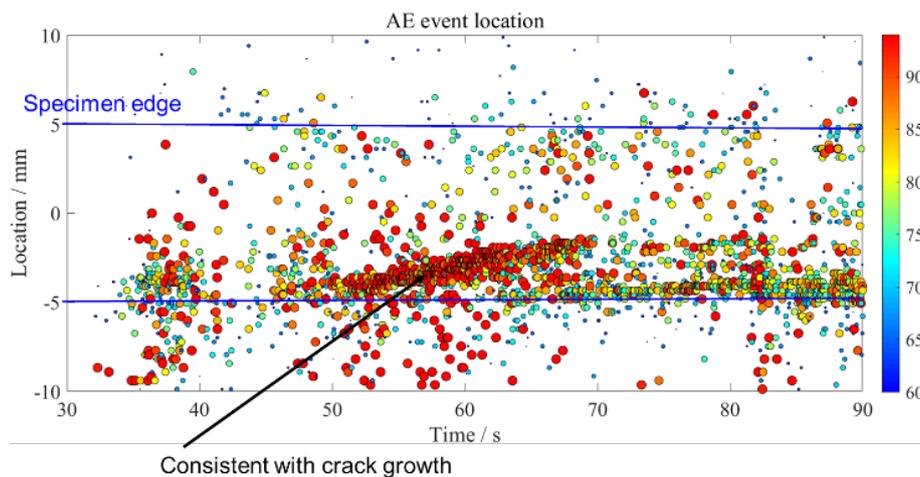


Fig. 6 One-dimensional acoustic emission (AE) source location results plotted against time for the compression test at 0.5 mm/min. The color scale represents AE amplitude. AE events are concentrated in regions consistent with observed crack growth, and specimen edges are indicated.

3. 2 圧縮試験(クロスヘッド速度:0.01 mm/min)

3. 2. 1 変形挙動とひずみ速度依存性

クロスヘッド速度を 0.01 mm/min に低下させて圧縮試験を行った際の代表的な応力-時間曲線を Fig. 7 に示す。0.5 mm/min の試験結果 (Fig. 4) と比較すると、応力の上昇はより緩やかになり、個々の応力低下の規模も相対的に小さくなる傾向が見られた。全体として、材料はより延性的な挙動を示したと言える。このことから、荷重-変位挙動には明瞭なひずみ速度依存性が認められた。

試験中のその場観察では、高ひずみ速度の場合と同様にへき開破壊とすべり線が観察されたが、これらの破壊形態にひずみ速度の違いによる顕著な差異を見出すことは、今回の観察範囲では困難であった。

3. 2. 2 AE 発生挙動

低いひずみ速度条件下においても、AE の RMS 電圧は、荷重低下時に突発的に上昇するという、高ひずみ速度試験と同様の挙動を示した (Fig. 8)。この結果は、荷重低下イベントが、ひずみ速度によらず、局所的なき裂(へき開)の進展、あるいは大規模なすべり帯の活動といった不連続な変形イベントに対応することを示唆している。

突発的なピーク部分を除いた RMS 曲線のベースライン(連続型 AE に相当する可能性のある部分)について

評価を行ったところ、このベースラインレベルは試験の進行中ほとんど変化しないことが分かった (Fig. 9)。このことから、もし転位の連続的なすべり運動に起因する AE が発生しているとすれば、それは以下の二つの可能性が考えられる。すなわち、(1) 検出された突発型 AE イベントの中に個々のイベントとして分離できない形で含まれている、あるいは(2) その信号強度が非常に微弱であり、現在の計測システムのノイズレベル以下に埋もれてしまっていて検出できていない、という可能性である。

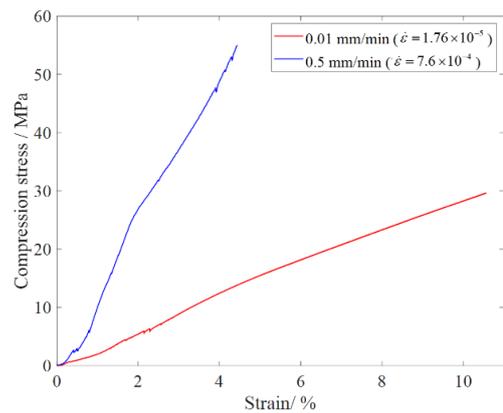


Fig. 7 Comparison of engineering stress-strain curves for NaCl single crystals compressed at two different crosshead speeds: 0.5 mm/min (blue line, nominal strain rate $\dot{\epsilon} \approx 7.6 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$) and 0.01 mm/min (red line, nominal strain rate $\dot{\epsilon} \approx 1.76 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$), demonstrating strain rate sensitivity.

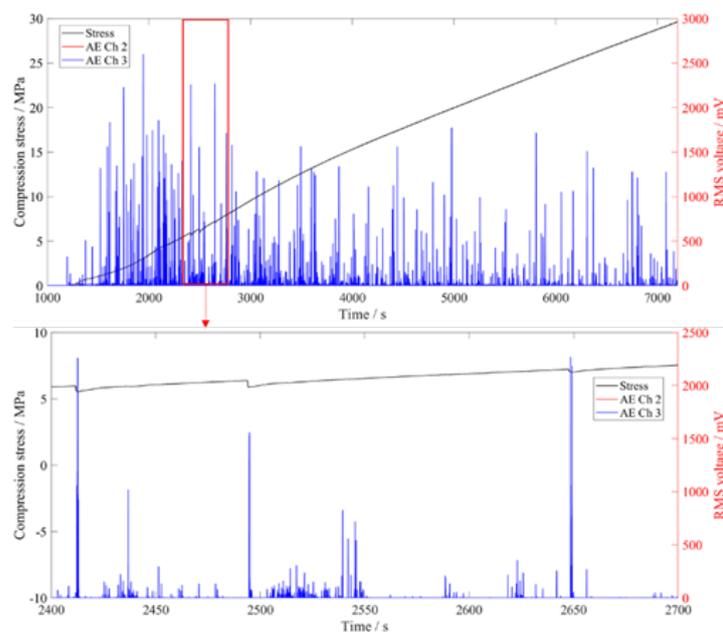


Fig. 8 Stress-time profile (black line) and AE RMS voltage (blue lines for different channels) during compression at a low crosshead speed of 0.01 mm/min (top panel). The bottom panel shows an expanded view of a selected time interval, highlighting the correlation between small stress drops and AE bursts.

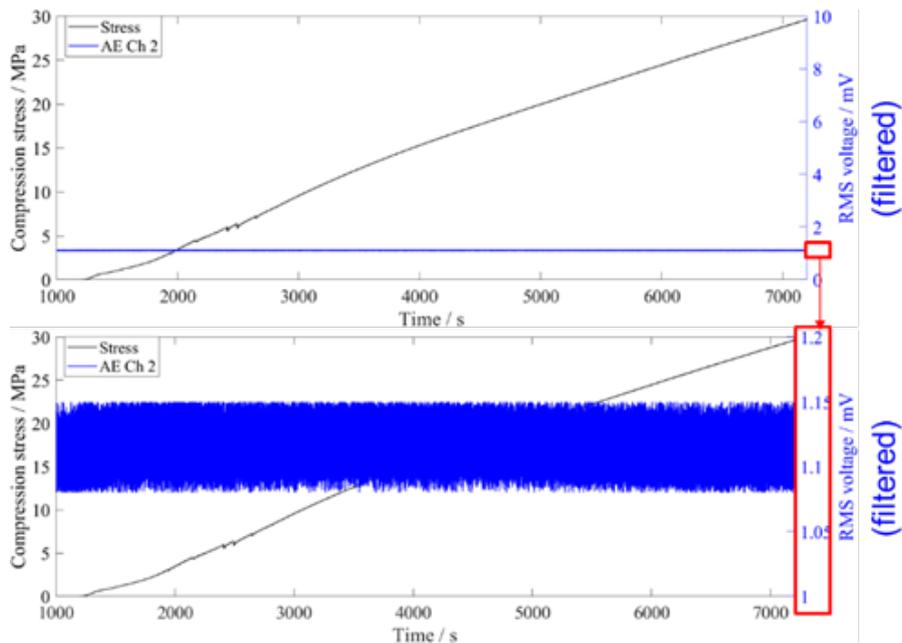


Fig. 9 Filtered AE RMS voltage signal from one channel (blue line) plotted with the stress-time curve (black line) for the 0.01 mm/min compression test. The top panel shows the entire test duration, and the bottom panel shows an expanded view of the AE RMS baseline, which remains relatively constant.

3. 3 応力緩和試験

3. 3. 1 応力緩和挙動

ステップ状に圧縮変位を与え、各ステップで 100 秒間変位を一定に保持した際の応力緩和挙動の全体像を **Fig. 10** に示す。各変位保持期間において、応力は時間経過とともに徐々に低下した。この応力緩和の量は、全ひずみ(サイクル数)が増加するにつれて大きくなる傾向が見られた。**Fig. 11** には、応力緩和初期(サイクル 1)と後期(サイクル 24)における応力緩和曲線の詳細を示す。

荷重保持中におけるデジタルマイクロスコープによるその場観察では、新たなき裂の発生や既存き裂の進展は確認されなかった。この事実は、荷重保持中に観測される AE が、巨視的なへき開破壊の進展に起因するものではないことを強く示唆している。

3. 3. 2 応力緩和挙動

圧縮変位を与えている負荷中には、前述の連続圧縮試験と同様に活発な AE が発生した。一方、変位を一定に保持する応力緩和期間に入ると、AE の発生頻度および RMS 電圧は急激に低下した(**Fig. 12**)。

しかしながら、AE の発生が完全に停止するわけではなく、荷重保持中にも散発的な突発型 AE イベントが少数ながら検出された(**Fig. 13**)。これらの AE イベントの振幅は、負荷中に発生する AE と比較して小さいものが多かった。

3. 3. 3 応力指数 m^* の算出

応力緩和曲線を用いて、転位の応力感受性を示すパラメータである応力指数 m^* の値を算出した。 m^* 値の算出には、応力緩和曲線に対するフィッティングが行われた(フィッティング例を **Fig. 14** に示す)。算出された m^* 値は、サイクル(ひずみレベル)によって変動し、ある応力域でピークを持つような挙動を示した。その絶対値は、いくつかの金属材料で報告されている値と同程度のオーダーであった(**Fig. 14**)。

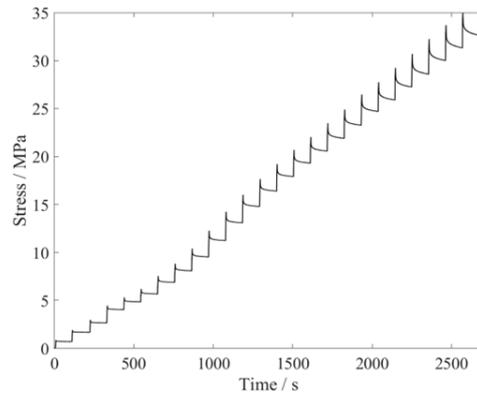


Fig. 10 Complete stress-time history for a stress relaxation test performed on an NaCl single crystal, illustrating the incremental loading steps followed by 100-second holding periods for stress relaxation.

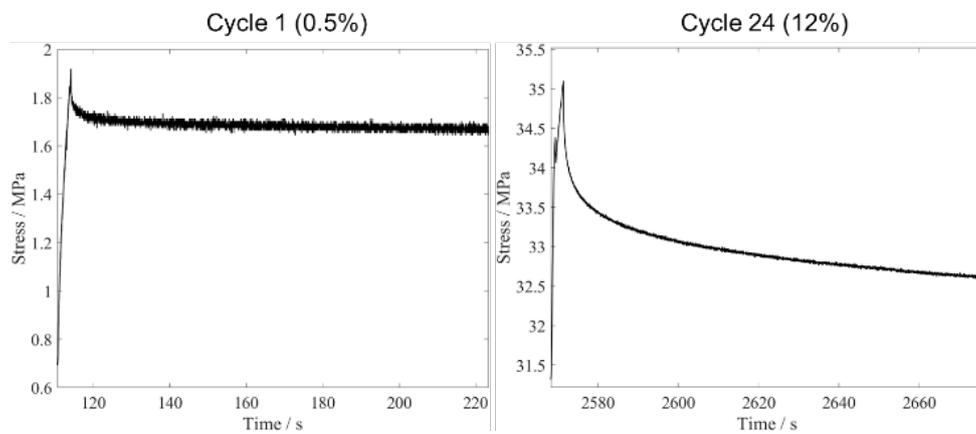


Fig. 11 Detailed stress relaxation profiles observed during the first holding period (Cycle 1, ~0.5% nominal strain, left panel) and the 24th holding period (Cycle 24, ~12% nominal strain, right panel) of the stress relaxation test.

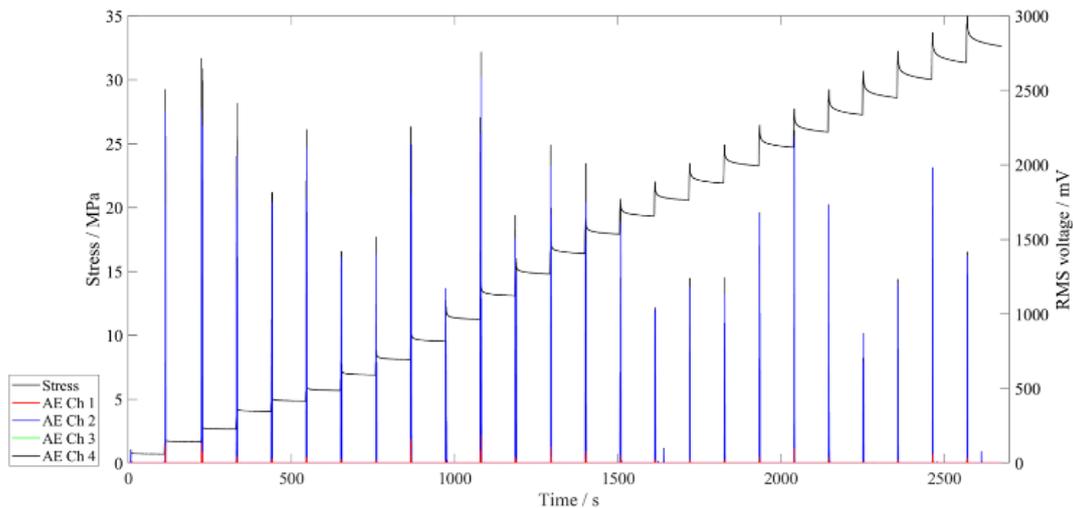


Fig. 12 Overview of the stress-time profile (black line) and multi-channel AE RMS voltage (colored lines) during the entire stress relaxation test, indicating that significant AE activity is primarily concentrated during the loading phases.

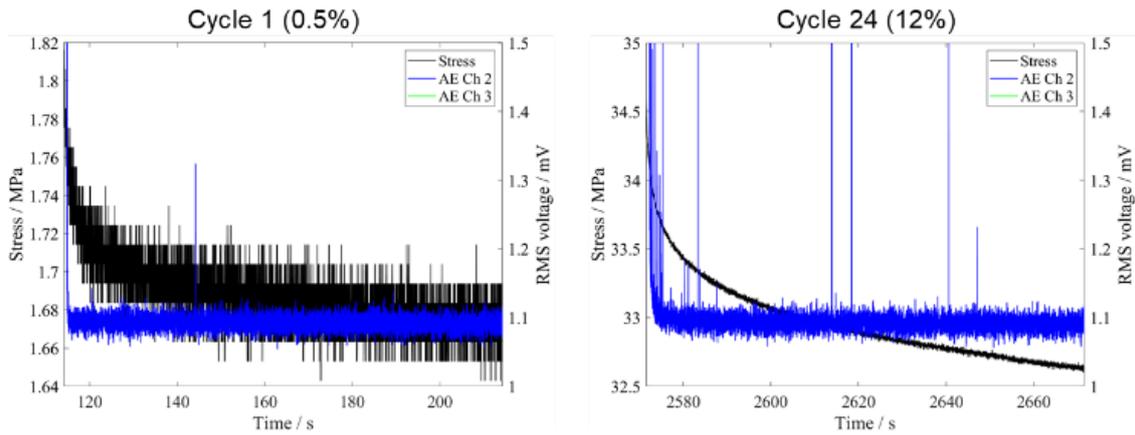


Fig. 13 Close-up views of the stress (black line) and AE RMS voltage (blue/green lines) during stress relaxation periods at an early stage (Cycle 1, left panel) and a later stage (Cycle 24, right panel), illustrating the detection of sporadic AE events during load holding.

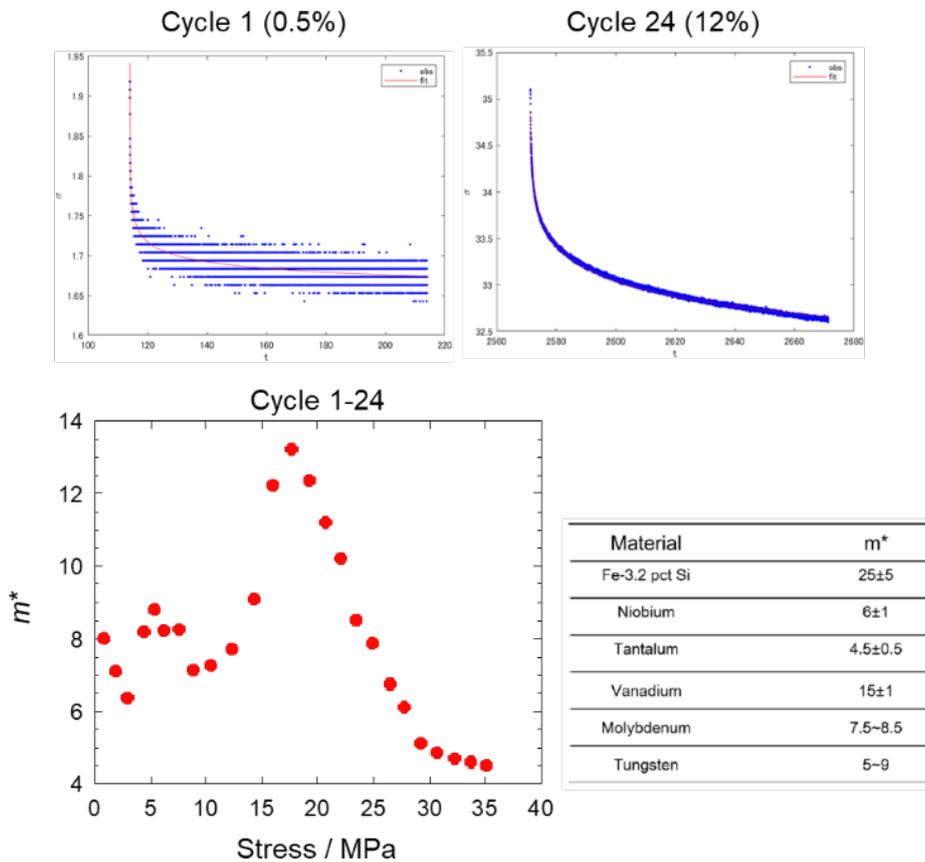


Fig. 14 Determination of the stress exponent m^* . Top panels show examples of fitting observed stress relaxation data (blue dots) with a theoretical model (red line) for Cycle 1 (left) and Cycle 24 (right). The bottom left panel plots the calculated m^* values against the stress at the beginning of each relaxation period for Cycles 1-24. The bottom right table lists typical m^* values for various metallic materials for reference.

4. 考察

4.1 NaCl 単結晶の圧縮変形と AE 発生源の同定

本研究で観察された NaCl 単結晶の圧縮変形挙動は、{100}へき開面におけるへき開破壊と、{110}<011>すべり系による塑性変形が、複雑に相互作用しながら進行する過程であると解釈できる。

AE 法は、これらの異なる変形・破壊モードを区別して評価する上で有効な手段となり得る。応力-時間曲線に見られる複数の急激な応力低下は、主に{100}へき開面におけるき裂の発生およびその不安定な進展に対応すると考えられる。この際、AE RMS 電圧が突発的に大きく上昇し、さらに AE 発生源位置標定結果がき裂発生位置と良好な一致を示したことから、観測された高振幅の突発型 AE の主たる発生源はへき開破壊であると結論付けられる。へき開破壊は、き裂先端での高い応力集中が解放される際に大きな弾性エネルギーを短時間に放出するため、結果として高エネルギーの AE を発生させると考えられる。AE 振幅分布において高振幅側に飽和が見られたことも、この解釈を支持する。

一方、すべり変形に伴う AE 信号の特定は、より困難な課題である。理論的には、転位の集団的な運動、転位が結晶格子内の障害物（例えば他の転位や不純物原子）を乗り越える際のジャンプ、あるいは転位の消滅や増殖といった素過程で、微小な弾性波が放出される可能性がある^[7]。本研究で観察された明瞭なすべり線は、広範な転位活動が生じていたことを示している。

連続型 AE に相当する可能性のある RMS 電圧のベースラインレベルが試験中にほとんど変化しなかったという事実は、いくつかの可能性を示唆する。もし、連続的な転位運動からの AE が存在するとしても、その信号強度が非常に小さく、計測系のノイズレベルに埋もれてしまっている可能性が考えられる。あるいは、個々の転位運動が非常に間欠的であり、観測上は多数の微小な突発型 AE として現れているものの、個々のイベントが小さすぎて閾値にかからないか、あるいは他の大きなイベントに隠されてしまっている可能性も否定できない。

応力緩和試験において、巨視的なき裂進展が観察されない状況下でも AE イベントが検出されたことは、これらの AE がすべり変形（すなわち転位運動）に起因する可能性を強く示唆している。応力緩和現象そのものが、

弾性ひずみが塑性ひずみに置換される過程であり、その駆動力は材料内部の有効応力を受けた転位の運動である。したがって、荷重保持中に検出された AE は、微視的な転位の活動、例えば転位の蓄積と崩壊、新たなすべり帯の活性化、あるいは既存のすべり帯内での転位の再配列などに関連していると考えられる。しかしながら、現状ではこれらの応力緩和中に観測された AE イベントの数が少なく、その詳細な発生メカニズムの特定や、AE パラメータと転位ダイナミクスとの定量的な関係付けには至っていない。

4.2 ひずみ速度の影響

荷重-変位曲線に観察された明瞭なひずみ速度依存性は、NaCl のようなイオン結晶における転位運動が熱活性化過程であること^[8]、およびき裂の発生・進展速度も印加される応力速度（ひずみ速度）に影響されることを反映していると考えられる。

ひずみ速度が低い場合には、応力の上昇が緩やかであるため、転位が熱エネルギーの助けを借りて障害物を乗り越えたり、応力集中が塑性変形によって緩和されたりするための時間がより多く与えられる。これにより、材料は巨視的な破壊に至るまでにより大きな塑性変形を示すことが可能になると考えられる。また、仮にき裂が発生した場合でも、その進展が相対的に安定に進む可能性があり、これが個々の応力低下の規模の減少に繋がったのかもしれない。

AE 発生挙動に関しては、ひずみ速度が低下すると、単位時間あたりの AE イベント数は減少する傾向が見られたが、個々の AE イベントの性質（例えば振幅や周波数特性）がひずみ速度によってどのように変化するかについては、より詳細な波形解析と統計的な検討が必要である。

4.3 応力緩和試験における AE 挙動と応力指数 m^*

応力緩和試験中に観測された AE イベントは、前述の通り、すべり変形に伴うものである可能性が高い。応力指数 m^* は、材料中の転位速度 v が有効応力 τ_{eff} に対して、 $v = A(\tau_{\text{eff}})^{m^*}$ (A は定数) という経験的なべき乗則に従うと仮定した場合の、応力に対する転位速度の感受性を示す重要なパラメータである^[8, 9]。 m^* 値が大きいほど、転位速度は応力の変化に対して敏感に変化することを意味する。応力緩和試験では、試験片の

全長が一定に保たれるため、内部で進行する塑性変形 ($\dot{\epsilon}_p$) は弾性ひずみの減少 ($\dot{\sigma}/E$, E はヤング率) と等しくなり、 $\dot{\epsilon}_p = -\dot{\sigma}/E$ と表される。一方、塑性ひずみ速度は、可動転位密度 ρ_m 、バーガースベクトル b 、平均転位速度 v を用いて、 $\dot{\epsilon}_p = \rho_m b v$ (Orowan の式) と記述される。

これらの関係式と上記の転位速度式を組み合わせることで、応力緩和曲線 ($d\sigma/dt$ vs σ) の傾きから m^* 値を実験的に求めることができる。この手法は、金属材料をはじめとする様々な結晶材料の塑性変形機構を調べるための常套手段の一つである^{9, 10)}。この m^* 値は、塩の結晶がどの程度の応力で、どれくらいの速さで変形し始めるか (あるいは変形を続けるか) という、塩の「流れやすさ」や「壊れにくさ」を微視的な転位のレベルで特徴づける指標となる。例えば、製塩プロセスにおける結晶同士の圧密や、輸送中の衝撃による結晶の変形・破壊などを考える上で、このような基礎的な物性値の理解は重要となる。

本研究で得られた m^* 値と、応力緩和中に発生した AE イベントの特性 (発生頻度、振幅、周波数など) を詳細に対応付けることができれば、転位の集団的なダイナミクスに関するより深い知見が得られると期待される。例えば、特定の m^* 値を示す変形段階で特有の AE 信号パターンが観察されるか、あるいは AE イベントの発生率が応力緩和率 ($d\sigma/dt$) と直接的な相関を示すか、といった点を詳細に検討する必要がある。 m^* 値自体が応力レベルやひずみ履歴に依存して変化することは、変形に伴う転位構造の発達 (例えば、転位セルの形成や転位密度の変化) や、活動するすべり系の変化などを反映している可能性があり、これらの微視的構造変化と AE 特性の関連を明らかにすることも興味深いテーマである。

4. 4 塩産業との関連性および広範な意義

本研究で得られた NaCl の基礎的な力学挙動に関する知見は、塩産業における様々な課題解決や技術革新、さらにはより広範な材料科学の分野に対しても貢献し得るポテンシャルを秘めている。海水から良質な塩を効率

的に製造する技術の改善・応用、そして塩の新たな価値を見出す研究は、国内塩産業の発展と持続可能な社会の構築に向けて極めて重要である。

製塩プロセスにおいては、晶析工程で得られた塩の結晶が、その後の乾燥、粉碎、篩過、輸送、貯蔵といった様々な単位操作を経る。これらの過程で、結晶は機械的な力を受け、割れや摩損、あるいは圧密による固結 (ケーキング) といった問題が生じることがある。本研究で明らかにした NaCl 結晶のへき開破壊のしやすさ、すべり変形による塑性流動の特性、そしてそれらがひずみ速度にどのように依存するかといった情報は、これらの問題を軽減し、プロセスを最適化するための基礎データとなる。

例えば、粉碎工程においては、エネルギー効率よく目的の粒度分布を得るために、結晶の破壊モード (へき開破壊が支配的なのか、あるいは塑性変形後の延性破壊的な挙動も関与するのか) を理解することが重要である。また、輸送中や貯蔵中の衝撃や圧力による結晶の凝集や固結は、製品の流動性を損ない品質を低下させる。これらの現象は、結晶同士の接触点における微小な塑性変形や破壊、そして再結晶化などが複雑に関与すると考えられており、本研究で得られたような単結晶レベルでの変形・破壊メカニズムの知見は、これらの問題の発生メカニズム解明と対策立案に貢献し得る。AE 法自体も、これらのプロセス中の異常検知や品質管理ツールとして応用できる可能性がある。

食塩製品には、その用途に応じて様々な形態 (粉末、顆粒、固形など) がある。例えば、固形塩 (塩タブレットや家畜用岩塩など) を製造する際の圧縮成形プロセスでは、結晶の塑性変形能と破壊靱性が重要となる。本研究で評価した m^* 値のようなパラメータは、結晶の「流れやすさ」や「固まりやすさ」を定量的に評価する一助となり、より高品質で機械的に安定な成形体の設計指針を与える可能性がある。

また、最終製品のハンドリング性、例えば袋詰めされた塩の流動性や、タブレットの欠けにくさなども、個々の結晶の機械的特性と密接に関連している。これらの品質を向上させるためには、結晶レベルでの変形・破壊挙動の理解が不可欠である。

塩は古くから調味料や保存料として利用されてきたが、その基礎物性に関する深い理解は、これまで知られていなかった新たな機能性や応用分野を開拓するきっかけとなり得る。例えば、イオン結晶特有の電氣的・光学的特性と力学特性の関連性を明らかにすることで、センサ材料や光学材料としての応用の道が開けるかもしれない。本研究で着目した転位挙動は、これらの物性にも影響を与えるため、その制御指針を得る上で重要である。

NaCl は、イオン結晶のモデル物質として、材料科学の分野で広く研究対象とされてきた。本研究で用いられた AE 法と微視的その場観察を組み合わせた評価手法や、得られた変形・破壊メカニズムに関する知見は、他のアルカリハライド結晶や、より複雑なセラミックス材料、地殻構成鉱物などの力学特性評価や破壊現象解明にも応用可能である。これらの材料は、構造材料、電子材料、地質学的重要性など、それぞれ異なる分野で鍵となる役割を担っており、本研究成果の波及効果は大きいと考えられる。総じて、本研究は NaCl というありふれた物質の奥深い力学挙動の一端を明らかにするものであり、その成果は、塩産業における製造プロセスの効率化や製品品質の向上に留まらず、材料科学全体の深化、さらには塩の新たな価値創造に繋がる可能性を秘めている。

5. 今後の課題

本研究を進めるにあたり、いくつかの限界点も認識された。まず、各試験条件における試験数が必ずしも十分とは言えず、特にへき開破壊のような確率論的な要素を含む現象については、その発生応力や AE パターンにばらつきが生じる可能性がある。再現性を確認し、統計的に信頼性の高い結論を得るためには、今後さらに試験数を増やす必要がある。

また、へき開破壊の発生は、試料の結晶方位のわずかなずれや、表面状態（微小な傷やクラックの存在）、内部の微小な介在物や格子欠陥の分布など、試料形状や初期状態の微妙な違いに敏感である可能性も考慮しなければならない。これらの要因が結果に与える影響を定量的に評価することも今後の課題と言える。

AE パラメータ（例えば、周波数成分、立ち上がり時間、継続時間など）と、具体的な微視的メカニズム（例えば、特定のすべり系の活動様式、き裂の発生段階と

き裂の進展段階の区別など）との間のより詳細な対応関係を明らかにするためには、AE 波形のより高度な信号処理技術（例えば、モーメントテンソル解析など）の導入や、より高分解能なその場観察技術との連携が有効であると考えられる。

6. 結論

本研究では、NaCl 単結晶の圧縮変形および応力緩和過程における微視的変形・破壊挙動を、AE 法、デジタルマイクロスコープによるその場観察、および力学試験を組み合わせることで詳細に解析した。その結果、以下の主要な知見が得られた。

- NaCl 単結晶の圧縮変形においては、主に{100}面におけるへき開破壊と、{110}<011>すべり系によるすべり変形が複合的に発生する。高振幅の突発型 AE は、主としてへき開破壊の発生および進展に対応し、AE 発生源位置標定結果もこれとよく一致した。また、観察されたすべり線の角度は、{110}すべり面の表面トレースと整合的であった。
- 荷重-変位曲線には明瞭なひずみ速度依存性が見られ、ひずみ速度の低下とともに、より延性的な挙動を示す傾向が確認された。AE の RMS 電圧は、ひずみ速度の大小に関わらず、応力-時間曲線上の荷重低下時に突発的な上昇を示した。
- 連続型 AE に相当する RMS 電圧のベースラインレベルは、試験の進行中に大きな変化を示さなかった。このことから、転位の連続的なすべり運動に起因する AE は、現在の計測条件下ではノイズレベル以下であるか、あるいは個別の突発型 AE として観測されている可能性が示唆された。
- 応力緩和試験において、巨視的なき裂進展が観察されない荷重保持期間中にも、微小な AE イベントが検出された。これは、微視的なすべり変形（転位運動）が応力緩和中も継続していることを示唆しており、この過程から応力指数 m^* が算出された。
- より微弱な AE 信号を高感度に捉えるための SN 比の向上、および特にへき開破壊のような確率論的現象の統計的信頼性を高めるための試験数の増加が、今後の重要な課題として認識された。

これらの結果は、NaCl 単結晶の基礎的な変形・破壊メカニズムの理解を深める上で貴重な知見を提供す

るものであり、将来的には製塩プロセスにおける品質管理や、関連するイオン結晶材料の力学特性評価、さらには新たな材料設計にも貢献しうると考えられる。

7. 文献

1. Westphal, G. "Sodium Chloride." in Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Wiley-VCH, 2023.
2. Hull, D., & Bacon, D. J. (2011). Introduction to Dislocations (5th ed.). Butterworth-Heinemann.
3. Cottrell, A. H. (1953). Dislocations and Plastic Flow in Crystals. Oxford University Press.
4. Gilman, J. J. (1969). Micromechanics of Flow in Solids. McGraw-Hill.
5. Sprackling, M. T. (1976). The Plastic Deformation of Simple Ionic Crystals. Academic Press.
6. 日本非破壊検査協会 (編). (2006). アコースティック・エミッション試験 I . 日本非破壊検査協会.
7. Grosse, C. U., & Ohtsu, M. (Eds.). (2008). Acoustic Emission Testing. Springer.
8. Johnston, W. G., & Gilman, J. J. (1959). Dislocation Velocities, Dislocation Densities, and Plastic Flow in Lithium Fluoride Crystals. Journal of Applied Physics, 30(2), 129–144.
9. Sargent, G. A. (1969). Stress Relaxation and Thermal Activation in Niobium. Acta Metallurgica, 17(3), 269-275.
10. Li, J. C. M. (1967). Dislocation Dynamics in Deformation and Recovery. Canadian Journal of Physics, 45(2), 493-509.

Analysis of Dislocation Motion in NaCl Crystals by Acoustic Emission Method

Takayuki Shiraiwa

Department of Materials Engineering, School of Engineering, The University of Tokyo

Summary

Sodium chloride (NaCl) is vital across industries, where its mechanical properties, governed by defects like dislocations, are critical. This study aimed to elucidate the microscopic deformation and fracture mechanisms in NaCl single crystals under mechanical loading. A combined approach of in-situ digital microscopy and Acoustic Emission (AE) analysis was employed during uniaxial compression and stress relaxation tests at varying strain rates.

NaCl single crystals (approx. $10 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$) were compressed along the $\langle 100 \rangle$ axis. A DC motor-driven testing machine with a custom Arduino-based displacement control system was used. AE signals were captured using resonant M304A sensors and recorded at 10 MHz, while surface deformation was monitored with a Keyence VHX-8000 microscope. Compression tests (0.5 mm/min and 0.01 mm/min) showed stress-time curves with load drops corresponding to AE RMS voltage bursts. Deformation involved $\{100\}$ cleavage and $\{110\}\langle 011 \rangle$ slip. AE source location linked high-amplitude events to cleavage. Strain rate sensitivity was evident. The constant baseline AE RMS during continuous deformation suggested that AE from sustained dislocation glide was either very low or masked. Stress relaxation tests, with stepwise loading and 100-second holds, aimed to isolate AE from dislocation motion. No macroscopic crack growth occurred during holds, yet sporadic, small-amplitude AE events were detected, indicating microscopic slip. The stress exponent, m^* , derived from relaxation curves, was comparable to values for some metals.

This research demonstrates the utility of combined in-situ observation and AE for characterizing NaCl's deformation dynamics. High-amplitude AE is primarily linked to cleavage, while subtle AE during stress relaxation likely stems from dislocation activity. These insights are crucial for optimizing salt production, controlling crystal quality, and ensuring stability during industrial handling. Future work includes enhancing AE signal detection and further correlating AE with dislocation parameters like m^* .