

# 巨視的及び微視的な材料試験を併用した 結晶粒界の力学的特性解明に関する研究

山形大学 大学院理工学研究科 機械システム工学分野

黒田 充紀

(平成 29 年度 一般研究開発助成 AF-2017018)

キーワード：マイクロ圧縮試験，結晶粒界の力学的特性，寸法効果，結晶塑性

## 1. 緒言

金属材料強化機構の一つである結晶粒微細化強化，すなわちホールペッチの法則は，結晶粒界が転位運動を阻害することで生じると考えられてきた．著者らはこれまでに，巨視的な材料試験や測定から，粒界は加工履歴や焼鈍条件等の違いに応じてその性質が変化することを示唆している<sup>1)</sup>．巨大ひずみ加工まま材では，結晶粒径とバウシinger効果挙動に大きな相関がないことから，粒界が転位運動の障壁にならない可能性を示してきた<sup>2)</sup>．近年では，マイクロメートルオーダーの試験片を対象としたマイクロ圧縮試験に関する研究が盛んに行われており<sup>3)~10)</sup>など，結晶粒界の力学的特性を直接的に評価することが可能となりつつある．しかしながら，既往のマイクロ圧縮試験には比較的高額な試験装置が用いられてきたこともあり，実験データの蓄積が十分とは言えず，粒界の力学的性質に関する学術的知見が確立するには至っていない．加工履歴や熱処理履歴が異なる粒界の力学的特性を解明することは，塑性加工性と強度とのバランスに優れた次世代の材料開発に大きな指針をもたらすと考えられる．

本研究では，まず，低コストにマイクロ圧縮試験が実施できる試験装置の開発を行う．その後，収束イオンビーム (FIB) 加工を用いて，高純度のアルミニウムからマイクロピラー試験片を作製し，単軸圧縮試験を実施する．粒界を含む双結晶試験片を用いて粒界の力学的性質を，粒界を含まず寸法のみ変化させた単結晶試験片により寸法効果現象の発現について調べた．

## 2. マイクロ圧縮試験装置の開発

マイクロメートルオーダーの寸法を有する試験片の単軸圧縮試験を行うためには，ナノインデントなどの市販の実験装置を応用することが一般的である<sup>3)~10)</sup>．これらの既製品としての装置は比較的高額であり，必ずしも導入が容易ではない．結晶粒とそれらの境界である粒界の力学的特性を個別に調べるためには，直接的な試験による実験データの蓄積が重要である．低コストでマイクロ圧縮試験が実現できる環境を整えればこの方面の研究が飛躍的に進むことが期待できる．ここでは，まず，低コストで高精度にマイクロ圧縮試験が実施できる装置の

開発を行った．本装置の基本構造は，先行研究<sup>11)</sup>を参考にした．図1に示すように，ロードセル上に設置した試験片を，直流電源装置の制御によって伸長させた積層圧電アクチュエータの先端に取り付けられたダイヤモンド圧子 (平坦円柱) で圧縮し，その時の荷重-アクチュエータ伸縮量関係を取得する．これにより，概ね市販装置の1/10程度のコストで十分な試験精度を有するマイクロ圧縮試験の実施が可能である．

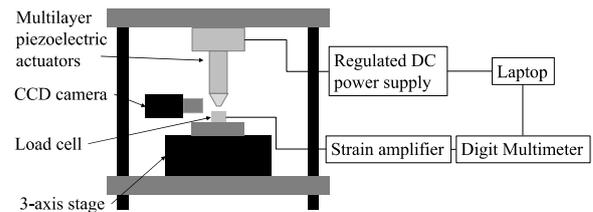


図1 自主開発したマイクロ圧縮試験装置の模式図．

本装置では，試験片の伸縮量を直接測定する仕組みは取り入れていない．アクチュエータと試験片の伸縮量を等価と仮定することで圧縮ひずみの算出を行う．この方法ではひずみ値を直接測定しないので，その算出方法と精度には注意が必要である．一般に，上下台座を用いて試験片を圧縮する古典的な単軸圧縮試験法においては，クロスヘッド移動量を試験片の伸縮量と見なしてしまうと，ひずみの測定精度が大幅に低下することが知られている<sup>12)</sup>．ここでは，実験によって得られた荷重-アクチュエータ伸縮量関係の生データに対して，式(1)，(2)<sup>13)</sup>を用いて，試験機剛性による変形の影響を除去し，ひずみ値の精度向上を図る．

$$u_{\text{real}} = u_{\text{exp}} - p \left( \frac{1}{k_t} - \frac{1}{k_s} \right) \quad (1)$$

$$k_s = \frac{EA_0}{l_0} \quad (2)$$

ここに， $u_{\text{real}}$ は試験片の正味変形量， $u_{\text{exp}}$ はアクチュエータの伸縮量， $p$ は圧縮試験荷重， $k_t$ は全体 (試験機及び試験片) の軸剛性， $k_s$ は試験片の弾性軸剛性， $E$ は試験片ヤング率， $A_0$ は試験片初期断面積， $l_0$ は試験片初期長さである．

### 3. 実験条件

#### 3・1 供試材

供試材は板厚 1.0 mm、純度 99.99%のアルミニウム板を用いた。圧延方向 (RD) 及びその面内直角方向 (TD) 210mm の板材内から、各方向 5mm の正方形板をワイヤーカット放電加工機により切り出した。マイクロピラー試験片作製時の容易な結晶方位測定と、圧縮試験時のアクチュエータと試験片との接触面摩擦の抑制のため、以下の手順で板材表面の平滑化処理を実施した。

- ① 耐水研磨紙を用いて、#1000, #1500, #2000 の順で機械研磨を行った。
- ② 2種類のアルミナ懸濁液 (1.0  $\mu\text{m}$ , 0.3  $\mu\text{m}$ ) を用いてバフによる鏡面研磨を行った。
- ③ 結晶粒を粗大化させるため、300°C、1時間で焼なましを実施した。
- ④ 仕上げ研磨として、過塩素酸とエタノールを 1:4 の割合で混合した電解液を-30°C まで冷却し、電解研磨を 2分間実施した。

#### 3・2 マイクロピラー試験片の作製

マイクロピラー試験片は、方位差が 25°以上となる隣り合う 2つの結晶粒から作製することを目標に、以下の手順に従い作業した。

- ① SEM/EBSD (JEOL JSM7600-FA) を用いて、供試材内の多数の結晶粒の形状 (板面上の 2次元形状の情報のみ取得可能) と Euler 角を測定する。
- ② 方位差が 25°以上の 1組の双結晶を候補として選定する。
- ③ その 1組の双結晶に対して、粒界がほぼ中心に来るように、FIB (JEOL JEM-9320FIB) を用いて、公称寸法比が X:Y:Z = 1:1:2 の四角柱状の試験片を切出す。X 方向、Y 方向の 1 辺の長さは 5  $\mu\text{m}$  を目標値とした。切出してみて初めて Z 方向の粒界の様子がわかる。粒界がほぼ Z 方向に沿って試験片を二分するように貫通していれば双結晶マイクロピラー試験片の作製は成功である。粒界が都合よく垂直 (Z 方向) に現れることは稀であり、多くの場合は角度を持って、試験片表面に達してしまう。この場合には②に戻って作業をやり直す。

作製に成功した双結晶マイクロピラー試験片の SEM 画像を図 2 に示す。粒界は試験片上面のほぼ中央に位置しており、高さ方向にはほぼ Z 方向に沿って現れている。これらのことから概ね粒界が試験片体積を 2分していると判断できる。双結晶マイクロピラーを構成する 2つの結晶粒の方位情報を表 1 に示す。 $\varphi$  は圧縮軸とすべり面法線方向とのなす角度、 $\lambda$  は圧縮軸とすべり方向とのなす角度を表している。

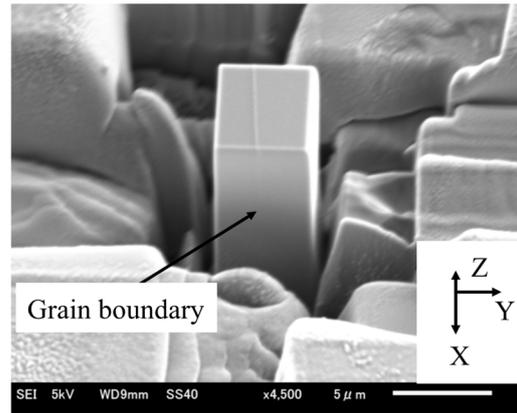


図 2 作製直後の双結晶マイクロピラー試験片 (“Pillar-cd”).

### 4. 実験結果と考察

#### 4・1 単結晶と粒界を含む双結晶ピラーの挙動

図 2 に示した双結晶マイクロピラー試験片 (“Pillar-cd”) とそれぞれの粒から作製した単結晶マイクロピラー試験片 (“Pillar-c”, “Pillar-d”) の公称応力-公称ひずみの関係を図 3 に示す。これらの試験片の変形後の SEM 画像を図 4 に示す。Pillar-c は局所的に単一すべりが生じており (図 4a), ひずみ硬化挙動は確認できない (図 3)。Pillar-d は Schmid factor 値 (表 1) からは、異なるすべり面での二重すべりが期待できるが、ひずみが 3%を過ぎたあたりからひずみ硬化挙動が見られる (図 3)。双結晶の Pillar-cd は、単結晶の Pillar-c, Pillar-d よりもやや高い初期降伏応力を呈し、ひずみ硬化は単結晶に比べて大きい。双結晶マイクロピラー試験の過去の実験研究では、大傾角粒界がひずみ硬化を増大させる効果を持つとするもの<sup>4)</sup>と、力学挙動に大きな影響を与えないとするもの<sup>9)</sup>に見解が分かれていた。本実験結果は、前者を支持している。高次勾配結晶塑性論<sup>14)</sup>は、粒界の存在によって幾何学的必要転位(GND)の密度に空間勾配が生じ、これに起因する長範囲内部応力が見かけのひずみ硬化を増大させるといふ予測を与えている<sup>15)</sup>。本実験結果はこの予測とも整合するものである。

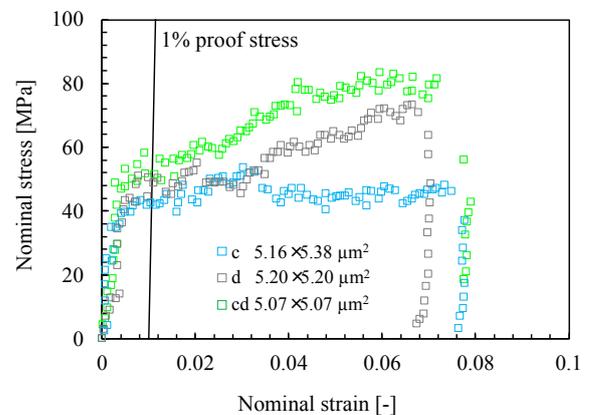


図 3 マイクロ単軸圧縮試験によって取得された公称応力-公称ひずみ関係。

表 1 作製したマイクロピラー試験片に関する測定値及び計算値

Specimen (Grain)		c			d		
Compression axis direction		[7 2 26]			[2 2 3]		
Euler angle (Bunge) ( $\psi_1, \phi, \psi_2$ )		(119.6°, 16.2°, 254.5°)			(125.3°, 42.0°, 223.2°)		
Specimen size (cross section)		5.16 $\mu\text{m}$ $\times$ 5.38 $\mu\text{m}$			5.20 $\mu\text{m}$ $\times$ 5.20 $\mu\text{m}$		
Slip plane	Slip direction	$\phi$ [degree]	$\lambda$ [degree]	Schmid factor	$\phi$ [degree]	$\lambda$ [degree]	Schmid factor
(111)	[110]	69.1	82.1	0.049	83.3	88.8	0.002
	[10 $\bar{1}$ ]		29.6	0.310		31.9	0.099
	[0 $\bar{1}$ 1]		43.0	0.261		29.5	0.102
$(\bar{1}11)$	[ $\bar{1}$ 10]	48.2	75.9	0.162	65.6	48.0	0.275
	[10 $\bar{1}$ ]		60.7	0.326		78.4	0.083
	[0 $\bar{1}$ 1]		43.0	0.488		29.5	0.359
$(1\bar{1}1)$	[ $\bar{1}$ 10]	63.8	75.9	0.107	63.6	48.0	0.298
	[10 $\bar{1}$ ]		29.6	0.384		31.9	0.379
	[0 $\bar{1}$ 1]		51.2	0.277		79.6	0.081
$(11\bar{1})$	[ $\bar{1}$ 10]	41.2	82.1	0.103	12.8	88.8	0.020
	[10 $\bar{1}$ ]		60.7	0.368		78.4	0.197
	[0 $\bar{1}$ 1]		51.2	0.471		79.6	0.176

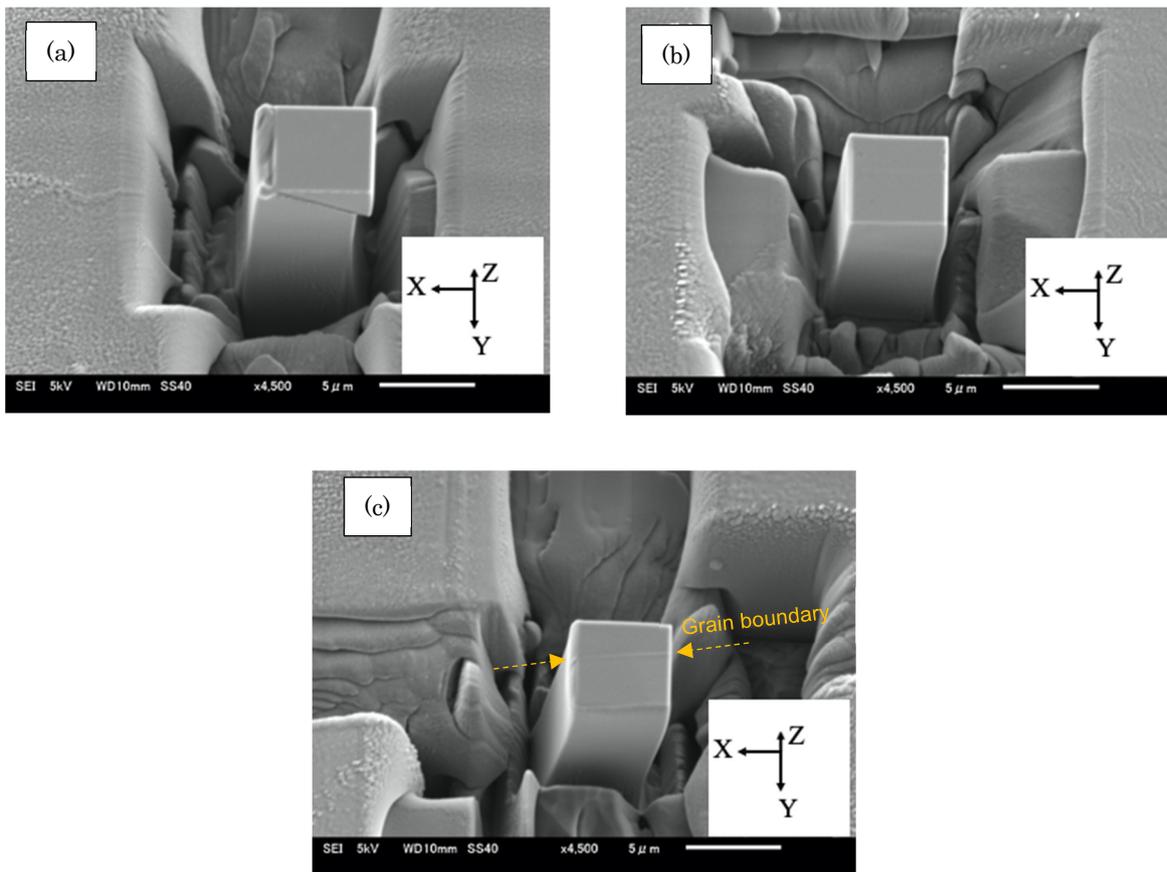


図 4 単軸圧縮試験後のマイクロピラー試験片 ; (a) Pillar-c, (b) Pillar-d, (c) Pillar-cd.

#### 4・2 降伏応力の試験片寸法依存性

前節の実験では、試験片の断面寸法を  $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$  に固定して粒界の影響を調べたが、本節では、単結晶を対象に断面寸法の違いによる流動応力の変化を調べる<sup>16)</sup>。

対象とした結晶粒は、オイラー角が  $(258.4^\circ, 70.3^\circ, 301.2^\circ)$  で、圧縮軸(Z)が  $[\bar{5} 3 2]$  と一致する。すべり系  $(1\bar{1}1)[10\bar{1}]$  で Schmid factor が 0.446 と突出して高く、このすべり系で単一すべりが期待されたが、実験結果はその通りとなった。

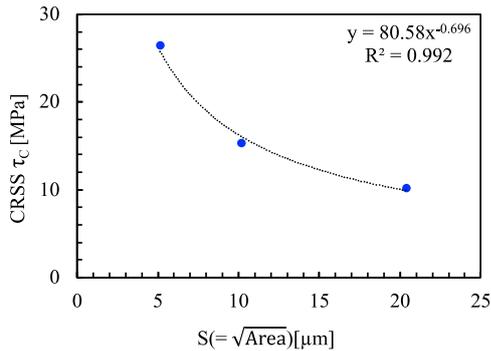


図5 CRSS と単結晶試験片の断面寸法の関係。

図5に、断面の一边が5, 10, 20 μm (グラフには初期断面積の平方根で表示) の試験片の(11̄1)[101̄]すべり系での臨界分解せん断応力(CRSS)(1%耐力時点の値)を示す。初期断面積が小さいほどCRSSは上昇しており、明瞭な寸法依存性が発現している。これらのプロットをべき乗則により近似したところ、指数は-0.696であった。同様の実験を実施した過去の研究における純アルミニウムの単一すべり試験片による指数は-0.761<sup>6)</sup>、-0.921<sup>7)</sup>であり、本試験結果はこれらに近似した結果となった。

## 5. 結言

本研究では、低コストでマイクロピラー圧縮試験が実施できる試験装置の開発を行い、純度99.99%のアルミニウムを用いて、結晶粒界の特性と寸法効果現象の発現について調査を行なった。

- 自主開発したマイクロ圧縮試験装置は、マイクロオーダーの微小試験片について、応力-ひずみ関係を良好に取得できることがわかった。
- 粒界を含む双結晶試験片から、粒界はひずみ硬化量を増大させる効果があることが示された。
- 試験片の断面寸法減少に伴う降伏強度の上昇をべき乗則により整理しとところ、得られた指数は先行研究と整合性のある結果となった。

既往の研究<sup>4),8),9)</sup>と本研究で扱っている粒界は、完全焼鈍あるいは結晶成長過程で生成された粒界である。室温で巨大ひずみ加工を施すと結晶粒が微細化されることが知られているが、そのように生成された粒界の性質はこれまで直接的に調べられていない。緒言でも述べたが、巨大ひずみ加工材では、結晶粒径とバウシinger効果挙動に大きな相関がないことから、粒界が転位運動の障壁にならない可能性が間接的に示されている。著者が追加で行った同様の試験<sup>17)</sup>でもこの知見を支持する結果が得られている。本研究で開発したマイクロ圧縮試験法を用いれば、巨大ひずみ加工で生成された粒界の特性を直接調べることができる。本研究の今後の課題は、生成過程の異なる粒界ごとの力学的性質を調べることである。

## 謝 辞

本研究は、公益財団法人天田財団一般研究開発助成(AF-2017018)により実施したものである。ここに記して深甚なる謝意を表す。試験機開発の基本構想は、山形大学教授 村澤剛氏のアイディアが元になっている。試験機的设计・作製には、職業能力開発総合大学校助教 小泉隆行氏に多大なる協力を得た。試験片の作製と試験の実施については、山形大学大学院生 小林星司氏 の努力によるところが大きい。ここに記して謝意を表する。

## 参考文献

- 1) T. Koizumi, K. Kuroda, Mater. Sci. Eng. A **710** (2018), 300-308.
- 2) T. Koizumi, K. Kuroda, Key Eng. Mater. **725** (2017), 202-207.
- 3) M.D. Uchic, D.M. Dimiduk, J.N. Florando, W.D. Nix, Science **305** (2004), 986-989.
- 4) K.S. Ng, A.H.W. Ngan, Philos. Mag. **89** (2009), 3013-3026.
- 5) 竹安崇一郎, 高田尚記, 鈴木飛鳥, 小橋眞, 軽金属 **68** (2018), 250-256.
- 6) D. Kiener, C. Motz, M. Rester, M. Jenko, G. Dehm, Mater. Sci. Eng. A **459** (2007), 262-272.
- 7) C.A. Volkert, E.T. Lilleodden, Philos. Mag. **86** (2006), 5567-5579.
- 8) N.V. Malyar, J.S. Micha, G. Dehm, C. Kirchlechner, Acta Mater. **129** (2017) 312-320.
- 9) A. Kunz, S. Pathak, J.R. Greer, Acta Mater. **59** (2011) 4416-4424.
- 10) N. Takata, S. Takeyasu, H. Li, A. Suzuki, M. Kobashi, Mater. Sci. Eng. A **772** (2020), 138710.
- 11) 足利谷 崇史, 佐竹 忠昭, 村澤 剛, 銅と銅合金 **59**(2020) (印刷中)
- 12) 小泉隆行, 黒田充紀, 銅と銅合金 **55** (2016), 27-31.
- 13) T. Koizumi, K. Kuroda, J. Phys.: Conf. Series **1063** (2018), 012167.
- 14) M. Kuroda, V. Tvergaard, J. Mech. Phys. Solids **56** (2008), 2573-2584.
- 15) M. Kuroda, J. Mech. Mater. Struct. **12** (2016), 193-218.
- 16) 小林星司, 小泉隆行, 村澤剛, 黒田充紀, 塑性加工連合講演会, 123-124 (2019.10.12~10.13, 日本大学津田沼キャンパス [悪天候により中止となったが発表の扱い])
- 17) 鹿勇太, 小泉隆行, 黒田充紀, 塑性加工連合講演会, 361-362 (2019.10.12~10.13, 日本大学津田沼キャンパス [悪天候により中止となったが発表の扱い])