

京都大学 大学院 ○ 中村 浩也
 京都大学 学生 畠山 敏也
 京都大学 工学部 橋本 敏
 京都大学 工学部 三浦 精

1. 序論

多結晶材では結晶粒界が機械的性質に大きな影響をおよぼすため結晶粒界に関する知識を得る必要がある。しかし粒界および隣接結晶の影響範囲はかなり広く、また粒界は応力方向に対し平行、垂直、その中間など様々な方向にあって変形に影響をおよぼす因子が多いため研究は困難を極めている。一方、双結晶では結晶方位の決定や方位制御が容易であり、特に結晶粒界を転位が通過するときの機構についてはTEM¹⁾などを用いた研究が行われている。このような研究により転位が粒界を横切る際に粒界転位を生じることが理論的に示されているが、実験的には半導体に関するものが多く金属の室温変形の研究はほとんどない。また粒界転位の影響を調べるには粒界に様々な角度から応力をかけてみる必要があるが、結晶粒界が引張り軸と垂直であるような場合の研究は報告されていない。さらに実在結晶では粒界三重線の影響も考慮する必要がある。

本研究ではCu-9at.%Alを用い $\Sigma = 3, 3, 9$ 三重結晶を育成し、この母結晶から双結晶および三重結晶を切りだして室温変形試験を行った。さらに粒界転位による方位差の変化について定式化して実験結果と比較し、三重結晶試験片については主に粒界三重線の影響による塑性不適合性の観点から定性的に考察を加えた。

2. 実験方法

純度99.999wt.%のCuおよびAlを用いてCu-9at.%Al合金三重結晶を育成した。育成の際、方位制御を行うため種結晶を用いて結晶粒間の相対方位関係が<0 1 1>軸傾角対称で、 $\Sigma = 3, 3, 9$ 粒界からなる三重結晶が得られるよう調整した。この母結晶より結晶の成長方向である<0 1 1>軸と55.3deg.を成し、 $\Sigma = 9$ 粒界をはさむ両結晶粒が結晶学的に鏡面対称になるようなスライスを放電加工により切り出した。Fig.1にスライス表面における各結晶粒の方位を示す。このスライスからFig.2に示すように双結晶試験片(SP1)と三重結晶試験片(SP2)を型抜き成型した。さらに試験片表面を鏡面に仕上げた後、ゲージ長さの変化を知るためにゲージ両端にけがき線を引いた。変形試験は室温、297±3K、ひずみ速度はSP1で 2.57×10^{-5} /sec., SP2で 3.12×10^{-5} /sec.の条件下Instron型試験機により行い、チャック部による変形の拘束を減じるためピンを介して負荷を与えた。変形試験中数回除荷をしながら塑性ひずみが約11%になる

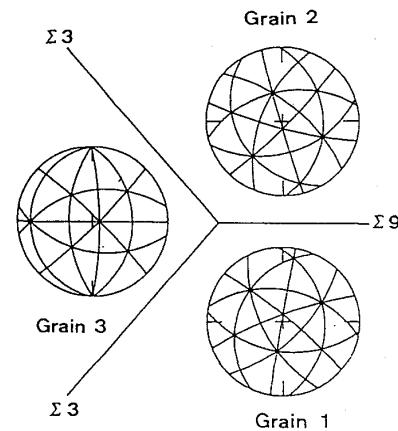


Fig.1 Stereographic projections of three grains in the tricrystal slice.

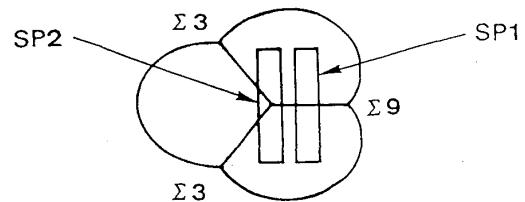


Fig.2 Tricrystal specimen and bicrystal specimen used for tensile test.

まで変形させた。除荷した際と試験後、X線背面反射ラウエ法により各結晶粒間の方位関係を測定した。

3. 実験結果

3-1. 双結晶

変形の初期には主すべり面の(1 1 I)の他に(1 I 1), (I 1 1)のすべり線が観察されたがそれらの密度は低く変形が進んだ段階でも特に増加しなかった。従ってこの双結晶は主すべり系の活動により主に塑性変形をしていると考えられる。変形の進行と共に試験片外形は粒界を境に試験片表面および側面からみて「く」の字型に折れ曲がるような形状となった(Fig.3)。この傾き角はひずみの増加と共に角度を増していく。

方位差の変化の測定は $\Sigma = 9$ 粒界上にX線を照射して得られたDiffract Spotを基に行った。塑性変形により両結晶粒には方位差が増加するような格子の回転が傾角対称軸の<0 1 1>軸回りに生じており、それに従って粒界構造が $\Sigma = 9$ から他の構造へ変化していた。測定結果を後に述べる計算値と併せてFig.4に示す。



Fig.3 A shape of bicrystal specimen after deformation.

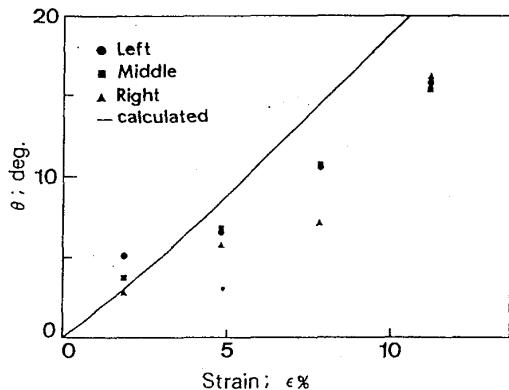
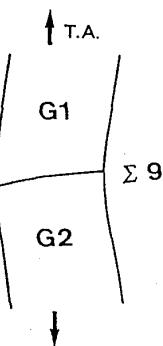
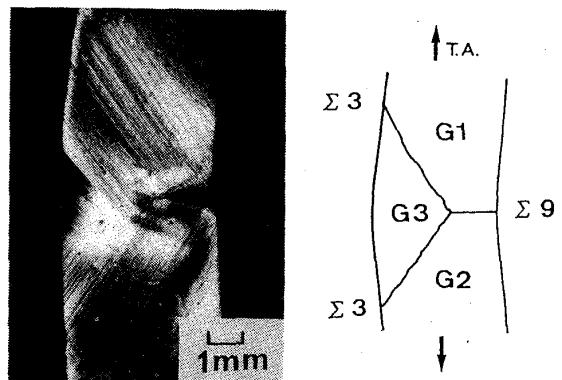
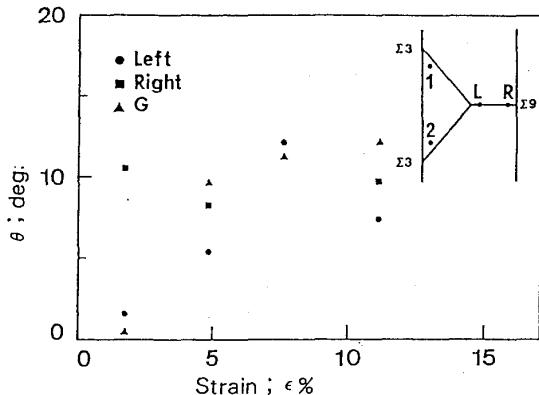
Fig.4 Strain(ϵ)-differential misorientation(θ) relationship of bicrystal specimen.

Fig.5 A shape of tricrystal specimen after deformation.

Fig.6 Strain(ϵ)-differential misorientation(θ) relationship of tricrystal specimen.
G is the misorientation between 1 and 2.

3 - 2. 三重結晶

三重結晶試験片は結晶粒G1,G2が双結晶試験片と同じ方位を持ちG3では引張軸が[1 0 0]となっている。変形初期にはG1,G2においては双結晶試験片と同様のすべり線が観察され、G3では中央部でわずかに4重すべりが見られたがすべり線密度は低かった。変形が進行するにつれG3内ではG1の近接領域においてはG1と同じすべり線が観察され、G2側も同じ状況となり最終的にG3は中央部に関してその両側が対称的な様相を呈した。試験片外形は双結晶同様、変形と共に $\Sigma=9$ 粒界とG3の中央部を境にしてすべり線と引張軸の角度が減少するようにな「く」の字型に屈曲した(Fig.5)。

方位差は変形初期には $\Sigma=9$ 粒界の試験片端部でかなり変化していたが三重線付近ではほとんど変化がなかった。変形が進むにつれ三重線付近でも方位差の変化が生じ、またG3内でもG1に近い領域とG2に近い領域の間で結晶の方位に差が認められた。G3内の格子の回転も<0 1 1>軸回りに生じ、G1の近接領域ではG1の結晶格子と同方向に、G2の近接領域ではG2と同方向に回転していた。Fig.6に $\Sigma=9$ 粒界およびG3内に生じた方位差の変化と伸びひずみの関係を示す。なお $\Sigma=3$ 粒界は変形の過程を通じて粒界構造はほぼ一定のままであった。

4. 考察

4 - 1. 双結晶

粒界転位による方位差の変化を考える。二次元モデルを用いると対称傾角粒界を有する双結晶は引張軸と粒界が垂直である場合、各結晶粒は粒界面に沿って対称に変形する。結晶粒内の格子転位が刃状転位であれば、G1内の格子転位 b_1 とG2内の格子転位 b_2 は粒界に向かって移動し、粒界上に粒界転位 b_r を生じる(Fig.7)。即ちバーガースペクトル保存の法則が成り立つ。

$$b_r = b_1 - b_2 \quad (1)$$

このような粒界転位が生じると対称傾角粒界の方位差は変化し、その変化角は次式で与えられる。

$$\Delta\theta = b_r / h \quad (2)$$

ここで、 h は粒界転位 b_r の間隔である。これらの式を用い双結晶の伸びひずみと方位差の変化の関係を定式化する。粒界と反応する転位のみについて考えるため双結晶モデルはすべり線がすべて粒界と交差するよう長さを限定し微小変形を考える(Fig.8)。初め引張軸方向にN個の格子転位があるとすればこの転位の引張軸方向の間隔 h_1 および線密度 ρ_1 は

$$\rho_1 = 1/h_1 = N/L \quad (3)$$

と表される。塑性変形してN個の格子転位があるとすればこの転位の引張軸方向の間隔 h_1 および線密度 ρ_1 は

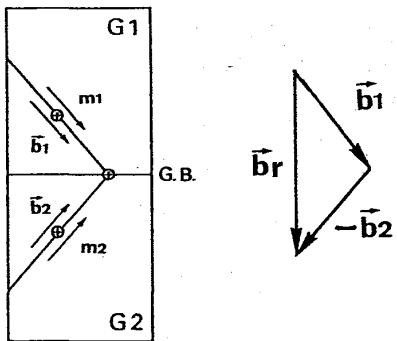


Fig. 7 Dislocation reaction in 2-dimension symmetrical tilt bicrystal.

位の間隔 h_r 、および粒界上での線密度 ρ_r は

$$\rho_r = 1/h_r = (N/2)/W \quad (4)$$

となる。ここで格子転位 b_1, b_2 は粒界に関し対称であるので b_1 の粒界に垂直な成分を $|b_{1\perp}|$ とすればこの粒界転位の大きさは $2|b_{1\perp}|$ となる。次に格子転位 b_1, b_2 が活動することにより生じる伸びひずみの増分 $\Delta\varepsilon$ は

$$\Delta\varepsilon = N |b_{1\perp}| / L = \rho_r |b_{1\perp}| \quad (5)$$

となる。従ってすべり面と粒界の成す角を α とすれば伸びひずみ ε と方位差の変化 θ の関係は

$$\int d\varepsilon = \int (1/2\tan\alpha) d\theta \quad (6)$$

により与えられる。ただし α は θ の関数である。

さて、この計算では理想的な状態を仮定しており転位のpile upや主すべり系以外の活動は考慮していない。また試験片の屈曲のために曲げモーメントが作用し粒界付近では格子の湾曲が生じることも予想される。さらに微視的にみれば変形が不均一であるため新たに生じた粒界転位の分布も不均一と考えられるが、この粒界転位は刃状転位であり climb 以外の機構では粒界上で動くことができない。従って変形により生じた粒界構造はかなり不均一と考えられ、Fig. 4で測定場所による変化角のばらつきがみられるのと実験値が計算値より多少小さくなつたのはこれらの理由によると考えられる。厳密な議論をするにはこのように様々な因子について考慮する必要があるが、実験値と計算値が一致する傾向を示していることは個々の転位の運動を考えることで macroscopic な結晶粒の挙動を定量的に扱うことができるということを示している。

4-2. 三重結晶

変形初期の表面観察によると結晶粒 G3 内のすべり線密度は低く、変形量は G1, G2 に比べ小さいと考えられる。G3 は 4 重すべりを起こす方位である [1 0 0] を引張軸に持つが、単一すべりに比べると多重すべりは起こりにくいため G3 は G1, G2 に比べて降伏が遅れ、三重線近傍の $\Sigma=9$ 粒界は変形の拘束を受けて方位差の変化角は試験片端部に比べ小さくなつたと考えられる。

$\Sigma=3$ 粒界は塑性の適合性が良いため変形の過程を通

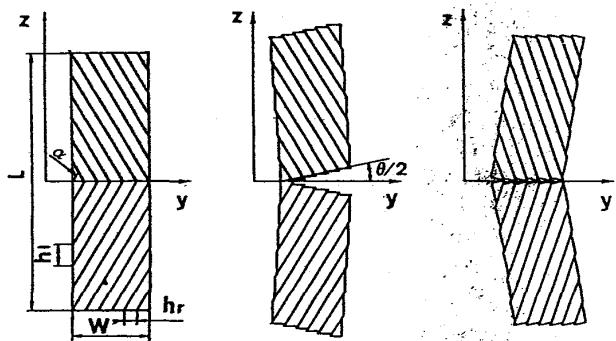


Fig. 8 Bicrystal model used to calculate the change of misorientation angle.

じて構造がほぼ不变である。この結果 G3 では G1, G2 の隣接領域がそれぞれ G1, G2 と類似した挙動を示し試験片全体では双結晶試験片に近い外観を呈する。しかし双結晶では $\Sigma=9$ 粒界上に生じる塑性不適合を結晶粒中の格子の回転で解消できるが、三重結晶では G3 が G1, G2 の変形を拘束するため塑性不適合を完全には解消できず内部応力が発生する。通常このような内部応力は二次すべり系の活動により緩和されるが、 $\Sigma=3$ 粒界の整合性がよく安定であるため塑性不適合の影響が G3 粒内におよび G3 では中央部に関し対称的な挙動を示したと考えられる。Rey や Zaoui^{2,3)} は粒界三重線の影響により粒内に異なる領域を生じさせる内部応力について報告している。このように三重結晶では結晶全体としての変形機構は個々の結晶粒の挙動や一個の隣接結晶粒のおよぼす影響を考慮するだけでは説明できない。三重結晶の変形挙動の解析は粒界三重線の影響を受ける内部応力を含めさらなる定量的な解析が必要である。

5. 結論

1) $\Sigma=9$ 双結晶で伸びひずみと方位差の変化の関係を定式化したところ実験値と理論値が良い一致を示した。このことより個々の転位の運動を考えることで結晶粒全体の挙動を定量的に扱うことができるということが解った。2) $\Sigma=3, 3, 9$ 三重結晶試験片は双結晶試験片と類似した外観を呈したが、粒界三重線の影響のため塑性不適合性を生じ、それによる内部応力のために $\Sigma=9$ 粒界の方位差の変化は独特な分布を示した。

References

1. Lee, T.C., Robertson, I.M., and Birnbaum, H.K., Phil. Mag. 62(1990), 131.
2. Zaoui, A., Modelling small deformations of polycrystals (edited by J. Gittus et al.)
3. Rey, C., and Zaoui, A., Grain boundary structure and related phenomena proceedings of JIMIS-4 (1986)
4. D'Anterroches, C., and Bourret, A., Phil. Mag. A49 (1984), 783
5. Bacmann, J.J., Gay, M.O., and de Tournemine, R., Scripta Met., 16(1982), 353.