

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 29 日現在

機関番号：16101

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560088

研究課題名(和文) 単結晶応力測定を基盤とする変形・再結晶の新しい理解

研究課題名(英文) New understanding of deformation and recrystallization based on single-crystal stress measurement

研究代表者

岡田 達也 (Okada, Tatsuya)

徳島大学・ソシオテクノサイエンス研究部・教授

研究者番号：20281165

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円、(間接経費) 960,000円

研究成果の概要(和文)：<111>方位を持つアルミニウム単結晶試験片を対象に、高エネルギー放射光を利用して、単結晶内の応力/ひずみ分布を、無ひずみ、8%引張ひずみ、焼鈍後の3段階において測定した。育成した単結晶内部は、亜粒界で区切られた3つ程度の亜結晶粒に分かれていることが確認された。8%引張ひずみを与えた状態でも亜結晶粒界は解消せず、亜結晶粒内で5MPa程度の残留応力がランダムに分布していた。480℃焼鈍により形成された再結晶粒の結晶性は、無ひずみ状態での結晶性に比べてはるかに良いことが確認された。放射光を利用することで、高い分解能と精度で応力/ひずみ測定が可能であった。

研究成果の概要(英文)：The distribution of stress/strain in <111> aluminum single crystals was measured at as-grown, 8% tensile deformation, and post-deformation annealing stages, by using synchrotron radiation. A typical as-grown single crystal was composed of three sub-grains bounded by sub-boundaries. After 8% tensile deformation, the sub-grained structure remained. The residual stress approximately of 5MPa was randomly distributed in each sub-grain. The crystal quality of recrystallized grains formed after 753K annealing was better by far than that of the as-grown crystal. By using the synchrotron radiation, it was possible to measure the stress/strain with very high resolution and accuracy.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学，機械材料・材料力学

キーワード：残留応力 塑性変形 再結晶

1. 研究開始当初の背景

変形・再結晶は古くから広く知られている現象であり、長い研究の歴史を持っている。最近 20 年間に於いては、走査電子顕微鏡 (SEM) に電子線背面散乱回折 (EBSD) 解析装置を組み合わせた SEM/EBSD 法の普及により、変形・再結晶の金属組織学的な理解は急速に進化した。再結晶は塑性変形時に金属内部に導入された転位組織が焼鈍に伴って整理されることにより起こっているが、上に述べた金属組織学的な解析の進展に比べて、例えば、「再結晶が起こるには、転位組織の逆応力である残留応力がどの程度必要なのか？」といった、力学的な視点からの解析は進んでいないのが現状である。本研究は、引張変形に伴い、均一変形を起こすアルミニウム単結晶を用いて単結晶応力測定を行うことにより、再結晶に関する力学的な理解を進めることを目指したものである。

2. 研究の目的

本研究の主な目的を以下に挙げる。

- (1) 単結晶における信頼性の高い残留応力測定の手法を確立すること。特に、実験室 X 線および高エネルギー放射光を用いた場合の利害得失を比較すること。
- (2) 得られた残留応力のデータを焼鈍に伴う再結晶の実験結果と組み合わせ、変形・再結晶挙動の理解を導くこと。

3. 研究の方法

(1) 単結晶試験片の準備

純度 99.999wt.% のアルミニウムを黒鉛モールド内で融解し、長手方向に <111> 方位を有する種結晶の結晶方位を継がせる改良ブリッジマン法により、図 1 に示す単結晶試験片を育成した。試験片の平行部は直径 5mm、長さ 20mm の円柱である。モールド形状の工夫により試験片形状の単結晶を直接育成しているため、試験片には放電加工等の、ひずみ導入が懸念される加工は一切施していない。単結晶試験片育成後、573K で 3600s 間焼鈍を行っている。また、試験片表面に付着した、黒鉛モールドと試験片の固着を防止するために育成時に塗布していた窒化ボロン膜は、王水によるエッチングで除去している。



図 1 単結晶試験片の外観

(2) 引張試験

室温での引張試験は、インストロン型万能試験機またはインライン引張高温負荷装置を用いて行った。ひずみ速度は全ての引張試験において  $3 \times 10^{-4}$  /s である。引張ひずみは 8% とした。

(3) 焼鈍実験

引張変形を与えた試験片を、コンパクト電気炉またはインライン引張高温負荷装置中で焼鈍した。焼鈍温度は 480 (絶対温度融点の 80% に相当) とした。インライン引張高温負荷装置中での焼鈍は、ビームライン上に設置した 2 次元検出器でその場測定を行った。

表 1 試験片のひずみ測定段階と略称

試験片	段階	略称
A	無ひずみ	A-0
	8%引張	A-8
B	8%引張	B-8
	再結晶	B-R
C	無ひずみ	C-0
	8%引張	C-8
	再結晶	C-R
D	無ひずみ	D-0
	8%引張	D-8
	1 回目焼鈍後	D-A
	再結晶	D-R
E	再結晶過程	E-R

(4) 放射光応力測定

本研究の応力測定は SPring-8 ビームライン BL22XU における放射光 X 線を用いて透過法により行った。この理由は、研究成果の項でも述べるが、本研究で用いたアルミニウム単結晶内部が亜結晶粒界で区切られた亜結晶粒から構成されており、実験室 X 線ではそれぞれの亜結晶粒を分離して測定できる空間分解能が得られなかったためである。

単結晶応力測定法では、単色 X 線を用いて回折面間隔の変化から格子の垂直ひずみを測定する。測定した 6 つ以上の垂直ひずみから、結晶の弾性異方性を考慮して応力を決定した。単結晶試験片中央部の引張軸に垂直な {111} 面内のひずみ分布測定は、xyz ステージにより試験片を移動させて、ひずみスキャンニング法により行った。回折面は {440} 面を用いた。

(5) 試験片と実験条件

本研究で用いた試験片について、ひずみ測

定を行った段階に基づく略称を表 1 に示す．  
表 1 中で示された通り，試験片は A から E の 5 本であり，ひずみ測定を行った段階を無ひずみ(-0)，8%引張後(-8)，焼鈍後に再結晶していない段階(-A)，再結晶過程または再結晶後(-R)で区別した略号を付けている．

#### 4. 研究成果

無ひずみ，引張変形後，焼鈍後再結晶の 3 段階を同じ光学系で測定した試験片 C を主な例として，本研究により解明された事項を以下に述べる．

##### (1) 無ひずみ単結晶の内部組織

無ひずみ状態で測定した全ての試験片で，内部が亜結晶粒から構成されていることが確認された．試験片 C 中央部において 1 つの {440} 極について方位マッピングを行った結果を図 2 に示す．

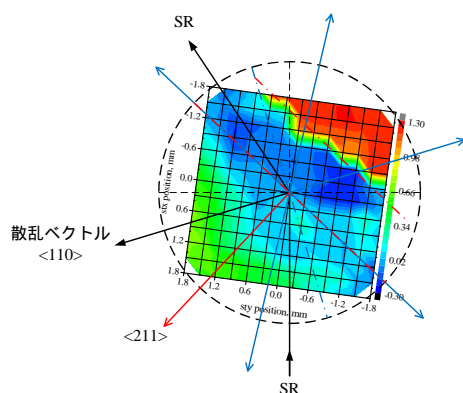


図 2 試験片 C 中央部における方位マップ  
(無ひずみ段階 C-0)

図 2 は，それぞれの測定位置で求めたピークポジションをプロットしたものである．図中には放射光 (SR) の方向，散乱ベクトルの方向，および，面内に位置する他の  $\langle 110 \rangle$  方向 (青矢印) に加えて， $\langle 112 \rangle$  方向 (赤矢印) を描いている．試験片内部が 3 つの領域，すなわち亜結晶粒に分かれていることが明瞭に認められる．これらの亜結晶粒間の結晶方位差は  $1.6^\circ$  であった．亜結晶粒間の境界面，すなわち亜結晶粒界は結晶成長方向に平行に連続していると仮定すれば，ある  $\{112\}$  面に沿っていることが分かった．単結晶成長時に結晶内部に導入される亜結晶粒がある低指数面をとる傾向は，亜結晶粒界が転位の低エネルギー配列で構成されることから考えて，十分に合理的なものであり，今後も追究を進めていきたい．

##### (2) 引張変形に伴う残留応力

$\langle 111 \rangle$  引張方位は均一変形方位なので，8% 引張ひずみを与えた後も結晶内部の方位に大きな変化はなく，試験片 C においても，変形後の方位マップは図 2 とよく似た様相を示していた．

無ひずみ試験片 C-0 の 6 つの極に対する全

ての測定値から求めた格子面間隔を  $d_0$  として，弾性異方性を考慮してひずみを計算し，ひずみ分布マップを求めた．その結果を図 3 に示す．

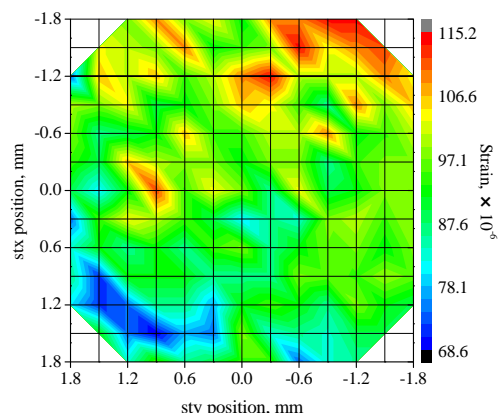


図 3 試験片 C 変形後のひずみ分布  
(8%引張段階 C-8)

ひずみの値が大きい領域と小さな領域が分布しているが，ひずみの大きさそのものは高々  $100 \times 10^{-6}$  程度である．弾性定数を掛けて残留応力を算出しても  $\pm 5 \text{ MPa}$  程度の値となった．これはアルミニウムの 0.2% 耐力と比べてもはるかに低い値である．次節においても述べるが，図 3 の変形組織においては再結晶に直接繋がるような高い残留応力を示す領域が観察されないにも関わらず，この試験片を焼鈍すると，再結晶粒が得られた．これは，均一変形方位の単結晶においては，再結晶の元となる領域は，変形帯などのマクロな不均一領域ではなく，ミクロな不均一，すなわち，すべり帯交切部に存在していることを示唆する重要な結果である．

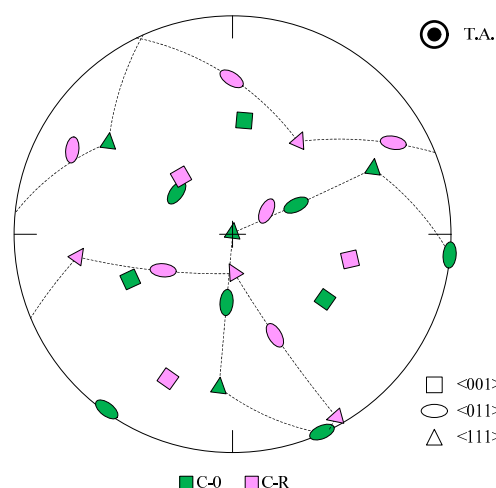


図 4 初期方位 (C-0) と再結晶粒方位 (C-R)

##### (3) 再結晶粒の結晶性

試験片 C を  $480^\circ \text{C}$  で 15 分間焼鈍したところ，再結晶が起こり，試験片中央部は完全に再結晶粒に置き換わった．試験片 C の初期方

位と再結晶粒の方位を示す極点図を図4に示す．低指数軸回りの回転関係は認められなかった．

試験片 C 中央位置の，無ひずみ，8%引張変形，再結晶の各段階におけるロッキングカーブを図5に示す．

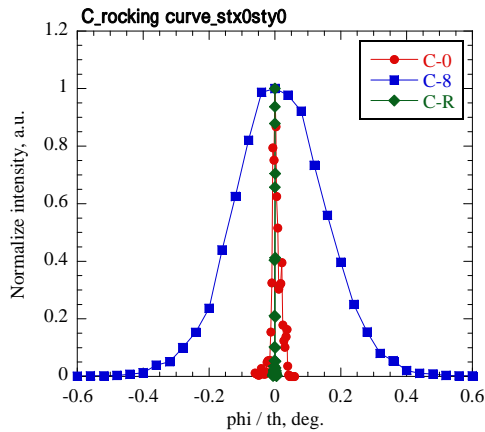


図5 無ひずみ (C-0), 8%引張 (C-8), 再結晶 (C-R) 段階のロッキングカーブプロファイル

図より 8%引張後のロッキングカーブプロファイルの半価幅が最も広いことが分かる．無ひずみ段階と比べると20倍になっていた．再結晶粒プロファイルの半価幅は，無ひずみ段階と比べて，12分の1程度であり，結晶性は良い順に，再結晶粒，無ひずみ段階，塑性変形後となっていた．

測定位置による回折角の変化は1/10000のケタが変化するだけであり，再結晶粒内には亜結晶粒界は認められない．また半価幅の変化量も1/10000のケタに収まっていることから，再結晶粒の結晶性は半導体シリコン (Si) 単結晶と同程度の良好さであることが分かった．

また，最近行った予備的な実験の結果，再結晶前の引張ひずみが大きいほど，再結晶粒の結晶性が(わずかであるが)悪くなることが判明した．これは，変形組織と再結晶粒の間に存在する結晶粒界が吸収することができる転位密度に限界があることを示唆していると考えられ，非常に興味深い．今後も引張ひずみの変化や，異なる引張方位での実験を行い，追究したいと考えている．なお，このような非常に微細な結晶性の良否を高精度で比較できたのは，SPring-8における放射光を用いたためである．

#### (4) 再結晶その場測定

試験片 E においては，8%の引張ひずみを与えた試験片をインライン引張高温負荷装置中で480℃焼鈍し，変形組織が再結晶粒に置き換わる過程を，2次元検出器 Pilatus 300K を用いてその場観察した．図6に揺動の1往復ごとに測定画像を重ね合わせた結果の一部を示す．

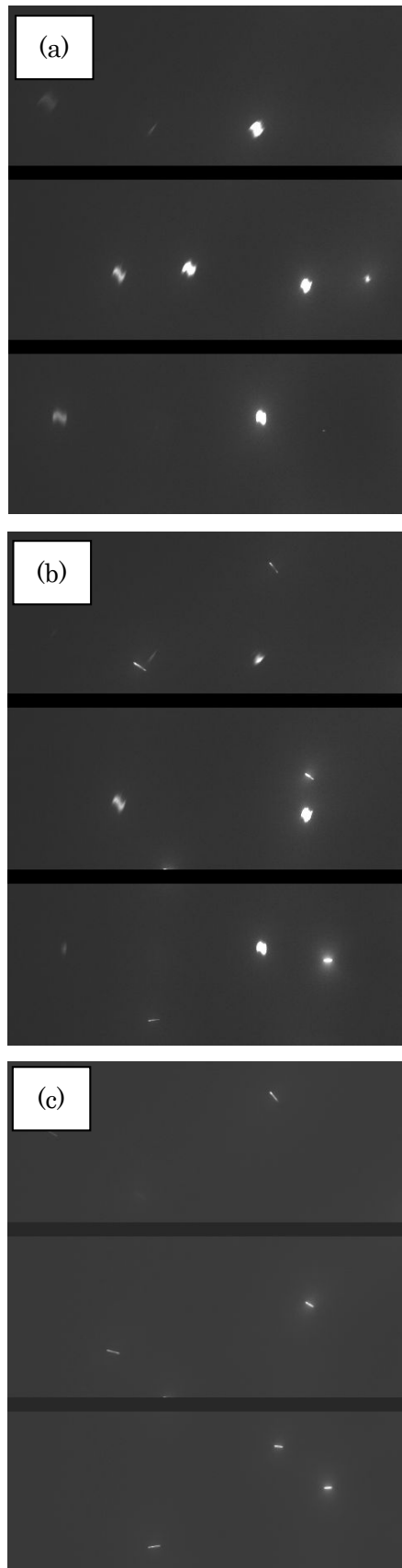


図6 2次元検出器で捉えた焼鈍中の回折斑点  
(a)変形組織，(b)変形組織と再結晶粒の混在，  
(c)再結晶粒

図 6(a)は変形組織からの回折斑点であり、丸く大きな斑点が変形組織の結晶性の悪さに対応している。分離しつつある斑点も認められる。加熱を始めてから 6.4 分後に対応する図 6(b)においては、(a)における変形組織からの回折斑点に加えて、新しい斑点が出現していることが分かる。新しい斑点は再結晶粒からのものであり、変形組織の回折斑点と比べてサイズが明らかに小さい。これは再結晶粒からのプロファイルの半価幅が、塑性変形段階と比べて 1/200 以下であるという結果とよく対応している。なお、再結晶粒からの回折斑点が細長くなっているのは、放射光の照射時に縦方向のスリットを絞っていないためである。図 6(c)に至ると、再結晶粒からの回折斑点しか存在しなくなり、変形組織は再結晶粒に完全に置き換わったことが明らかである。

今回試みた 2 次元検出器を用いた焼鈍その場観察により、結晶内部の再結晶の様相を動的に捉えることができるようになった。従来の顕微鏡的手法では、光学顕微鏡や走査電子顕微鏡によりバルク試験片表面の粒界移動を捉えることができた。また、透過電子顕微鏡では薄膜試料を用いて焼鈍に伴うその場観察を行うことができたが、今回の実験では、バルク試験片の内部変化をその場観察する手法を確立することができた。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 2 件)

Ayumi Shiro, Tatsuya Okada and Takahisa Shobu, Internal Residual Stress Measurements of Tensile-Deformed Aluminum Single Crystals using Synchrotron Radiation, Journal of Solid Mechanics and Materials Engineering, 査読有, Vol. 7, 2013, 79-91.  
DOI: 10.1299/jmmp.7.79

加藤慎也, 大坪啓視, 植木智之, 岡田達也, 不均一変形した銅単結晶における初期段階の再結晶粒方位, 日本金属学会誌, 査読有, 77 巻, 2013, 101-106.  
[https://www.jstage.jst.go.jp/article/jinstmet/77/3/77\\_101/\\_pdf](https://www.jstage.jst.go.jp/article/jinstmet/77/3/77_101/_pdf)

[学会発表](計 5 件)

Ayumi Shiro, In-Situ Observation of Recrystallization Process for Aluminum Single Crystals using Synchrotron Radiation, MECA SENS 2013, 2013.9.10-12, Crowne Plaza Hotel (Sydney Australia)

城 鮎美, アルミニウム単結晶における塑性変形中その場格子ひずみ測定, 日本材料学会第 47 回 X 線材料強度に関するシンポジウ

ム, 2013 年 7 月 18-19 日, 国立オリンピック記念青少年センター(東京都)

Ayumi Shiro, Relationship between residual stress and recrystallization in aluminum single crystal, The 9th International Conference of Residual Stresses (ICRS-9), 2012.10.7-9, Conference Center (Garmisch-Partenkirchen, Germany)

加藤慎也, 不均一変形した銅単結晶における初期段階の再結晶粒方位, 日本金属学会 2012 年秋期(第 151 回)大会, 2012 年 9 月 17-19 日, 愛媛大学(愛媛県)

城 鮎美, アルミニウム単結晶における残留応力と再結晶挙動に関する研究, 日本材料学会第 46 回 X 線材料強度に関するシンポジウム, 2012 年 7 月 5-6 日, 日本材料学会(京都府)

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

岡田 達也 (OKADA, Tatsuya)  
徳島大学・大学院ソウキウケンケン研究部・教授  
研究者番号: 20281165

##### (2) 研究分担者

英 崇夫 (HANABUSA, Takao)  
徳島大学・大学院ソウキウケンケン研究部・名誉教授  
研究者番号: 20035637

##### (3) 研究協力者

城 鮎美 (SHIRO, Ayumi)  
日本原子力研究開発機構・博士研究員  
研究者番号: 60707446

文屋 宏友 (BUNYA, Hiroto)  
徳島大学・大学院先端技術科学教育部・院生

加藤 慎也 (KATO, Shinya)  
徳島大学・大学院先端技術科学教育部・院生

河野 智哉 (KAWANO, Tomoya)  
徳島大学・大学院先端技術科学教育部・院生