

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 13 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560852

研究課題名(和文) 透過電子顕微鏡その場インデンテーションによる粒界強化機構の解析

研究課題名(英文) Mechanical Characterization of grain boundary strengthening through TEM in-situ indentation

研究代表者

大村 孝仁(OHMURA, TAKAHITO)

独立行政法人物質・材料研究機構・構造材料ユニット・グループリーダー

研究者番号：40343884

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円、(間接経費) 1,140,000円

研究成果の概要(和文)：Fe-Si双結晶に対して透過電子顕微鏡その場圧縮変形を行った結果、粒内をすべり運動する転位が、粒界で堆積することなく隣接粒に伝播する様子が観察された。粒界において何らかの転位反応が起こっていることが示唆された。また、刃状転位とらせん転位がそれぞれ支配的に運動する挙動を明確に区別することに成功し、易動度に対応してらせん転位支配の場合に変形応力が高くなることを定量的に明確にした。降伏点が明確に発現し、その後、流動応力が低下する挙動に対しては、降伏後は転位密度が顕著に上昇した。これらの定量的な関係は、Johnston Gilmanモデルで定式化される挙動に良く合うことを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：TEM in-situ compression test was performed for Fe-Si bicrystal and revealed that dislocations passed through grain boundary without any pile-up. These results suggest that dislocation reaction occurs at grain boundary. We observed two types of dislocations of screw and edge during deformation. Load-displacement curves obtained with TEM observation shows that screw type dominant with lower mobility corresponds to higher flow stress. Another data shows obvious yield phenomenon and subsequently remarkable strain softening. In that case, dislocation density increases with strain after yielding. For the quantitative relationship between the flow stress and dislocation density is understood in the Johnston Gilman model

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・構造・機能材料

キーワード：ナノインデンテーション 転位 粒界 TEM 力学特性 結晶粒微細化強化

## 1. 研究開始当初の背景

粒界強化は、結晶粒径が小さくなると降伏強度や引張強度が上昇する挙動として知られており、学術的・工業的に極めて重要な知見である。これを記述する関係式として Hall-Petch の式[1,2]が広く受け入れられている。この Hall-Petch の関係は、実験から得られた経験式として示され、種々のモデルによってその機構の理解が試みられている。強化に寄与する主な機構モデルは、粒界が転位のすべり運動の障害となる挙動や、転位源として作用して転位間相互作用を促進する働きである。前者のモデルとしては転位のパイラップモデル、後者のモデルは転位源モデルと GN 転位モデルがそれぞれ示されている。いずれのモデルも、転位論を基に粒界との相互作用を論じており、その挙動は透過電子顕微鏡による転位組織観察などで検証されている。

一方、力学特性に関しては、従来研究ではマクロスケールでの評価が行われているのみで、単独の粒界が持つ効果を定量的に評価した例はほとんどない。これは、従来の実験手法には微小スケールの評価技術が無かったことが主な理由である。個々の粒界が持つ結晶方位差などの組織因子と力学挙動の対応を明確化し、その際の転位運動や転位組織の発達過程が明らかになれば、粒界強化機構の理解を飛躍的に加速させることができる。

この課題に対して申請者らは、ナノインデンテーション法を用いて $\alpha$ -Fe の単独粒界や Fe-Si 双結晶の粒界近傍における力学応答を直接評価する研究を行ってきた。粒界および粒内の変形挙動を示す荷重-変位曲線上には、塑性変形の開始に対応する不連続変形が発生する応力が粒界付近ではより低いことや、塑性変形の開始後は押し込み深さが粒界でより浅いことから粒界が変形抵抗になることを明らかにしている。また、TEM 内その場インデンテーションによる粒界近傍の転位組織観察では、粒界不付近で堆積する転位の様子が観察されている。

これらの挙動を同期して捉えることができれば、粒界における変形組織変化とそれに伴う力学応答(変形抵抗)の変化を明らかにすることができる。さらに、粒界性格の異なる試料などを用いることによって、粒界の幾何学的条件や粒界エネルギーと転位運動の関係、さらにはそれに伴う力学応答の違いを明らかにすることができ、粒界-転位相互作用の明確化とそれによる粒界強化機構の理解が飛躍的に進むと期待される。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、多結晶材料の強化機構において重要な粒界強化について、その素過程である転位-粒界相互作用をナノスケールの力学挙動解析と電子顕微鏡その場観察技術を組み合わせた新しい技術によって明らかにすることである。この技術は、透過電子

顕微鏡(TEM)内で変形を加えた際の力学応答を定量的に計測しながら組織観察をその場で行うことができる。これにより、転位が粒界に堆積するケースや沈み込むケースなど、様々な転位-粒界相互作用挙動とその際の変形抵抗の変化を定量的に明らかにすることができ、粒界強化機構の理解が加速されると期待される。

本研究では、TEM その場インデンテーション技術を bcc 金属双結晶に適用し、粒界付近の転位運動と力学応答との関係を明確化する。具体的には、 $\alpha$ -Fe 双結晶の $\langle 110 \rangle$ 軸対称傾角粒界を用い、FIB 加工で柱状サンプルを作成することによって、マイクロ圧縮試験を模擬した条件で応力の定量化を行う。方位差角などの粒界条件と FIB の切出し条件を変えることによる外力条件の組み合わせることにより、様々な条件下における塑性変形の開始時とその後の変形時における転位運動と力学応答の関係について明らかにする。

## 3. 研究の方法

TEM ナノインデンテーション設備は、物質・材料研究機構に既設の装置を用いる。材料は、 $\alpha$ -Fe 合金などの bcc 金属双結晶を試料とする。材料として $\alpha$ -Fe 合金を用いる理由は、bcc 金属は荷重-変位曲線上に塑性変形開始挙動が明確に現れることに加え、実用材料として最も重要であるためである。これらの試料に対して、FIB 加工により柱状サンプルを作成し、粒界位置と結晶方位を TEM で事前に解析したうえで、その場ナノインデンテーション測定を行って塑性変形開始挙動やその後の変形挙動を解析することによって、粒界の特徴と変形挙動の関係を明らかにする。

本研究で用いる TEM ナノインデンテーション装置は、圧入変形導入に用いるダイヤモンド圧子が 3 軸のピエゾアクチュエータの先端に装着されており、これらが TEM ホルダー内に収められている。圧子、サンプル、電子線の位置関係は図 3 に示す通りである。TEM 観察とインデンテーションは独立の制御系によって構成されており、両者の同期は TEM 像上に荷重-変位データを直接重ねることによって実現する。荷重-変位データを保存することによって、力学応答の解析はオフラインで行うことが可能である。

## 4. 研究成果

H23 年度は、Fe-3mass%Si 双結晶 ( $[110]$  共通回転軸  $\Sigma 5 1$  対象傾角粒界, 方位差角約  $23^\circ$ ) を対象とした局所力学解析において、粒界上の変形抵抗 (4.9 GPa) と粒内の変形抵抗 (5.0 GPa) が同程度である結果を得た。一方、IF 鋼では、粒内 (2.2 GPa) に対して粒界 (2.8 GPa) が 25%程度高い値を示した。両材料のマクロ強度は、Fe-Si が Hv=194 であるのに対して IF 鋼は Hv=72 であり、これは粒内の強度比とほぼ一致する。Fe-Si 双結晶

に対して透過電子顕微鏡その場圧縮変形を行った結果、粒内をすべり運動する転位組織が観察された。それらの転位は、粒界で堆積することなく、隣接粒に伝播する様子が観察された。それと同時に記録された荷重-変位の応答は、粒内を転位が伝播する際と粒界を通過する際において大きな差が確認されなかった。変形後の転位観察を詳細に行ったところ、同一の転位線が粒界を跨いで隣接する2つの結晶粒に存在する様子が観察された。結晶粒の幾何学的条件から、最も可能性の高いバーガースベクトルは  $a/2(111)$  または  $a/2(1-11)$  であるが、両結晶粒間には  $20^\circ$  以上の角度差があり、バーガースベクトル保存の法則により、両結晶において同一のバーガースベクトルを持ちえないことから、粒界において何らかの転位反応が起こっていることが示唆された。また、粒界における転位堆積が確認されなかったことから、この粒界における転位反応はエネルギー障壁の低いものと推察され、これにより大きな抵抗を生じることなく変形が進行したものと考察される。粒界における転位運動の障害が小さいことは、局所力学解析において得られた変形抵抗の測定値と整合する。すなわち、粒内と粒界が同程度の変形抵抗を示したことは、マトリクスに固溶した Si の固溶強化による強化因子が支配的であると考察した。

H24年度は、Fe-3mass%Si 双結晶（ $[110]$ 回転軸・51 対称傾角粒界、方位差角約  $23^\circ$ ）を用いた局所力学解析を行った。前年度実績において明らかにした粒界と転位の特異な相互作用をさらに理解するため、マトリクス内における転位運動と力学応答との関係について調べた。

bcc 結晶中の転位の易動度については、刃状転位に対してらせん転位が相対的に低いことが指摘されているが、外力との関係については不明な点が多い。Fe-3mass%Si 単結晶に対して、TEM in-situ 変形観察を行ったところ、刃状転位が支配的に運動する変形挙動と、らせん転位が支配的に運動する挙動を明確に区別することができた。刃状転位が支配的なケースでは、試料幅約 200nm を貫通する刃状転位が極めて高速度で運動する様子が観察された。一方、らせん転位が支配的なケースでは、運動速度が低い転位線が狭い間隔で分布し、粘性的に運動する様子が観察された。これら2つのケースに対応する変形応力を比較すると、刃状転位のケースがらせん転位のケースよりも低いことが定量的に示された。これらの結果は、これまで教科書的に理解されてきた bcc 結晶における転位易動度と流動応力の関係を定量的に示した重要な証拠である。粒界における転位反応では、すべり面を移行する交差すべりが素過程の一つとして考えられる。交差すべりはらせん転位のみが可能であるため、刃状転位とらせん転位の易動度の差がらせん成分の長さに深く関係すると考えられ、これが交差すべりの頻

度に影響すると推論されることから、転位の性格を考慮した粒界近傍の挙動を考慮することが重要であると考察した。

H25年度は、前年度までに行った Fe-Si における転位挙動の解析をさらに発展させて、転位運動およびその組織の発達と力学応答の関係解明を行った。粒界における転位反応として重要な交差すべり挙動を明確化するため、らせん転位の挙動に注目する必要がある。さらに、bcc では易動度の違いかららせん転位の挙動が支配的になるので、この点においてもらせん転位の解析は重要である。bcc 結晶中では、らせん転位の移動度が刃状転位よりも低いこととそれに起因して変形応力が高くなることを前年度の成果で示した。しかし、前年度の条件では、変形の進行に伴う転位密度変化が小さい条件での結果であり、実際のバルク材料では転位組織の発達による密度増加が発生する。外力によるひずみ速度一定条件の変形では、ひずみ速度に釣り合う条件因子として転位の移動速度の他に密度が重要である。試料条件を単純化するために、初期転位密度が低い IF 鋼を用いた TEM その場変形観察を行った。TEM 観察と同時に得られた応力-ひずみ曲線上には降伏点が明確に発現し、その後、流動応力は低下する傾向を示した。転位組織は、らせん転位が支配的で、降伏まではわずかに転位密度が上昇し、降伏後は密度の上昇速度が高くなった。力学応答と転位組織の発達を整理すると、降伏前は転位密度が低いために塑性変形でひずみを担うことができず、弾性変形が支配的になって応力も上昇するが、降伏後は転位密度の上昇に伴って移動速度が低くても変形が進行する条件に移行し、流動応力の低下につながったと考えられる。転位密度と流動応力の定量的な関係は、Johnston Gilman モデルで定式化される挙動に良く合うことがわかった。これらの挙動は、粒界における粒界-転位相互作用において、変形伝播のみならず、粒界転位源による転位密度変化を理解することも重要であることを示唆している。

## 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 8 件) すべて査読有

1. L. Zhang and T. Ohmura: "Plasticity initiation and evolution during nanoindentation of an iron-3% silicon single crystal", Phys. Rev. Lett., **112**, (2014) 145504.
2. L. Zhang, N. Sekido and T. Ohmura: "Direct observation of plastic softening with increasing dislocation density in

steel”, Mater. Sci. Eng., A, accepted

3. L. Zhang, T. Ohmura, K. Sekido, T. Hara, K. Nakajima, K. Tsuzaki: “Dislocation character transition and related mechanical response in a body centered cubic single crystal”, Scripta Mater., **67**, (2012) 388-391.
4. T. Ohmura, L. Zhang, K. Sekido and K. Tsuzaki: “Effects of lattice defects on indentation-induced plasticity initiation behavior in metals”, J. Mater. Res., **27** (2012) 1742-1749.
5. K. Sekido, T. Ohmura, T. Hara and K. Tsuzaki: “Effect of Dislocation Density on Initiation of Plastic Deformation on Fe-C Steels”, Mater. Trans., **53**, (2012) 907-912.
6. K. Sekido, T. Ohmura, L. Zhang, T. Hara and K. Tsuzaki: “The effect of interstitial carbon on the initiation of plastic deformation of steels”, Mater. Sci. Eng. A **530**, (2011) 396-401.
7. K. Sekido, T. Ohmura, T. Sawaguchi, M. Koyama, H.W. Park and K. Tsuzaki: “Nanoindentation/atomic force microscopy analysis of e-martensitic transformation and shape memory effect in Fe-28Mn-6Si-5Cr alloy”, Scripta Mater. **65**, (2011) 942-945.
8. Ling Zhang, Takahito Ohmura, Kaoru Sekido, Kiyomi Nakajima, Toru Hara and Kaneaki Tsuzaki: “Direct observation of plastic deformation in iron-3% silicon single crystal by in situ nanoindentation in transmission electron microscopy”, Scripta Mater. **64**, (2011)pp. 919-922.

[学会発表] (計 10 件)

1. 大村孝仁, 張鈴, 鈴木拓也, 関戸信彰, 津崎兼彰: 「固溶元素と転位の相互作用」、日本金属学会 2014 春季講演大会, 2014. 3. 21, 東京
2. 大村孝仁: 「局所力学挙動評価による粒界近傍の変形挙動解析」、日本鉄鋼協会自主フォーラム「鉄鋼材料の結晶界面物性とその制御」, 2013.11. 19, 東京
3. T. Ohmura: “Nano-scale Deformation Behavior of Metals Associated with Various Lattice Defects”, International Workshop on Advancing Materials

Performance from the Nanoscale, 2013. 6. 12, Xi'an

4. T. Ohmura: “Nanoindentation-induced deformation behavior of metals”, 1st Workshop of Science and Technology of Materials Science, 2013.5. 9, Gyeongsan
5. 大村孝仁: 「局所力学特性評価による粒界近傍の変形挙動解析」、日本鉄鋼協会 自主フォーラム「鉄鋼材料の結晶界面物性とその制御」 2013. 1. 17, 東京
6. T. Ohmura: “Advanced Techniques of Microstructural and Mechanical Characterization in Nano-scale for Structural Materials”, TNU-NIMS Workshop, 2013. 1. 9, Taipei
7. 大村孝仁: 「ナノインデンテーションによる降伏現象の素過程解析」、日本鉄鋼協会 計算工学による組織と特性予測 II 研究会, 2012. 6. 11, 東海市
8. 大村孝仁: 「鉄鋼材料の局所力学挙動解析による強化機構解析」、日本金属学会 2012 年春季大会, 2012.3. 28, 横浜
9. T. Ohmura: “Indentation-induced deformation behavior in the vicinity of grain boundary of Fe alloys, MS&T, Columbus, 2011. 10. 9, Ohio.
10. T. Ohmura: “Investigation on a fundamental deformation behavior through nanoindentation technique”, The Fourth International Indentation workshop, 2011. 7. 3, Seoul.

[図書・解説] (計 3 件)

1. 大村孝仁  
「ナノインデンテーション法による局所力学挙動解析」、軽金属, **63**, (2013) 65-72.
2. 大村孝仁  
「局所力学挙動解析による機械的特性の評価技術 ナノスケールからの変形機構の素過程に迫る」、塑性と加工, **54**, (2013) 886-890.
3. 大村孝仁: 「高強度マルテンサイト鋼の強化機構解析の新展開」、金属, **81**, (2011) 649-654.

[その他]

ホームページ等

<http://www.nims.go.jp/group/sdg/result.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

大村孝仁 (Takahito Ohmura)

独立行政法人 物質・材料研究機構

構造材料ユニット

グループリーダー

研究者番号：40343884