

1. 緒言

近年、世界的に地球温暖化が大きな課題となっており、産業界に対して CO₂ 削減や、より一層の省エネルギーなどが強く要望されている。これらの問題の解決にはあらゆる技術分野について真摯な検討が不可欠であるが、特に素材の高強度化、軽量化、高機能化が最も直接的な効果があると期待されている。このような素材の高度化のためには、鋼をはじめ各種構造材料の特性を飛躍的に向上させる必要がある。しかし従来主流であった合金化による材料特性の改良は、レアメタルなど金属元素の供給不安定、およびリサイクル性の問題など多くの課題を抱えている。このため合金化に依らない素材開発が求められている。

合金化に依らない金属特性の開発法として組織材質制御加工が知られている。これは加工条件を厳密に制御することにより製品の組織変化、材質変化を自在に制御し、目標とする材質を創出する方法であり、超微細粒鋼や高張力鋼板の開発に役立てられてきた。しかしこれまでの方法は平均的な結晶粒径や組織分率を制御するものであり、個々の結晶構造を最適化するものではない。もし素材の用途に応じて個々の結晶粒の方位、形状、配置などを理想的構造に制御できれば、これまでに無い優れた特性の素材を開発できると期待される。例えば予め結晶構造（結晶粒径、結晶方位等）が判っている素材に厳密に制御されたひずみを導入し、正確な熱処理により再結晶を生じさせることにより、理論的に最適な結晶構造の素材を製造できると考えられる。すなわちこれまで組織材質制御加工において常識であったランダム性を極限まで排除することが出来れば、完全な結晶制御が実現できると考えられる。

この技術を実現するためには、与えられた加工条件（ひずみ、温度履歴）に対してどのような結晶構造の変化が生じるかを定量的に予測する必要がある。このためには

塑性加工による結晶変形、転位構造の発達、結晶内ひずみ分布、結晶回転などを明らかにすること

結晶構造・転位構造が再結晶の駆動力としていかに寄与するかを明らかにし、加工条件・熱処理条件と再結晶過程との関係を定量的に解明すること

再結晶粒の結晶方位を決定する要因を明らかにすること

の検討が必要である。

そこで本研究では、上記の課題の検討に向けた新しい実験手法および結晶塑性有限要素法解析を利用した理論的検討法を提案し、具体的な検討例について報告する。

2. 実験装置および実験方法

2.1 ナノフォーミング加工装置

図1に実験に用いたナノフォーミング装置の構成図、図2にその写真を示す。本装置は位置決め分解能 10nm の XY ステージおよび Z 軸ステージにより構成されている。Z 軸ステージには押し込み荷重を測定するためのロードセルがついており、その先端にダイヤモンド工具が取り付けられる。コンピュータでこれらのステージの動作及び押し込み荷重を制御しながら繰り返し工具形状を試験片に転写するシステムとなっている。加工状況は本体に設置した顕微鏡を通して CCD カメラにて観察しモニタにリアルタ

イムで表示する。またこれらの機構をコントロールするための専用プログラムを開発した。装置全体はクリーンブース中に設置されている。図3に実験に用いたナイフエッジ型のダイヤモンド工具を示す。材質は人造単結晶ダイヤモンドで先端角 90 度、幅 0.6mm の楔状をしている。工具刃先半径は 20nm 程度である。

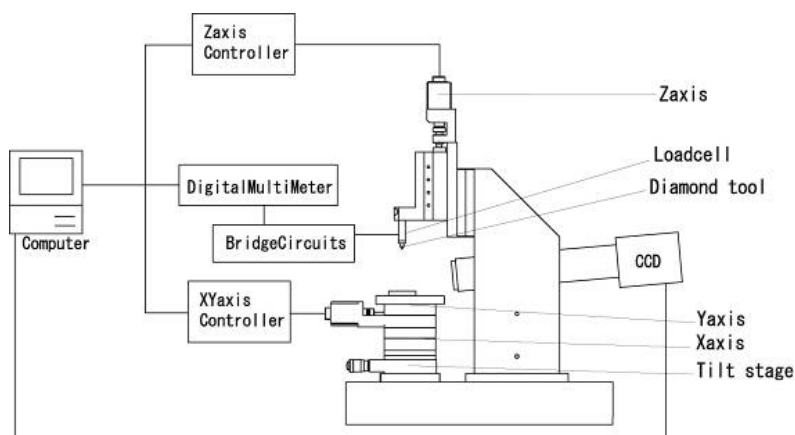


図1 微細塑性加工装置の構造図

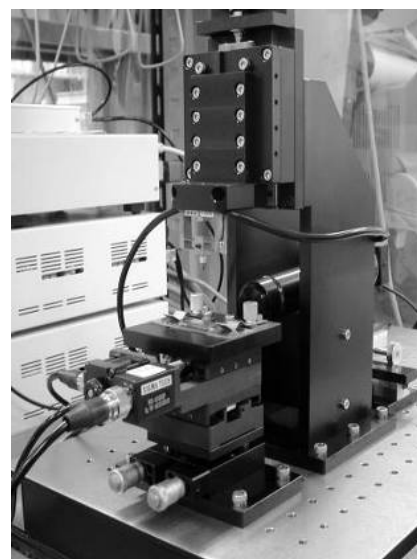


図2 微細塑性加工装置

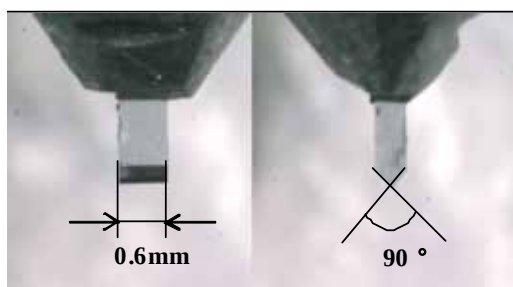


図3 ナイフエッジ工具

2.2 実験方法

試験片には単結晶純銅（純度 99.9%）を用いた。単結晶インゴットよりワイヤーカット加工機を用い

て 10mm × 10mm × 2mm の寸法に切り出し、その後、上面を化学研磨により加工変質層を除去し平坦に仕上げた。このとき試験片の上面が{001}面となるように、また辺が 100 方向と一致するように切り出した。この試験片をナノフォーミング装置のステージに固定し、試験片上面にナイフエッジ工具を 1N から 10N の荷重で押し込んだ。このときナイフエッジ工具の刃は図4に示すように試験片上面に平行かつ [100] 方向に平行とした。押し込み深さは数 μm なので工具幅 0.6mm は深さに対して十分に長く、ほぼ二次元変形が生じると考えられる。

いくつかの試験片は図5に示すように樹脂に埋め込み、押し込み痕に対して垂直に切断し、断面を研磨した後、FE-SEM (JEOL JSM-6301F) に搭載した EBSD 装置 (TSL MTI-VE1000SIT) で結晶方位を分析した。

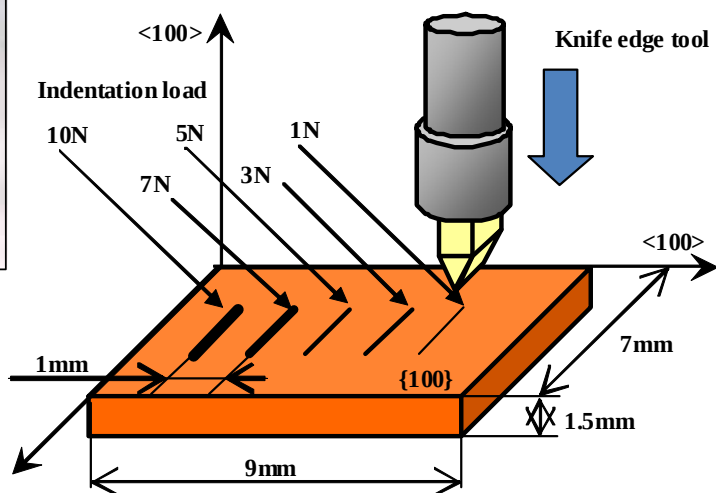


図4 試験片の切り出し方位およびナイフエッジ工具の方向

EBSD では図に示すように押し込み痕断面に垂直方向を ND 方向、試験片の表面に垂直な方向が RD 方向、試験片の横方向が TD 方向となるように設定した。

他の試験片については、図 6 に示す真空焼鈍炉にて 300 ～ 700 の温度で 1 時間焼鈍した。焼鈍終了時にはアルゴンガスを炉内に流し込み急速に冷却した。図 7 に焼鈍中の試験片の温度変化の例を示す。その後、試験片を上述の方法と同様に切断し、断面を EBSD で分析した。

表 1 に試験片番号と実験条件を示す。試験片 A は焼鈍せずに分析したもの。試験片 B,C,D は焼鈍により再結晶させた後分析したものである。

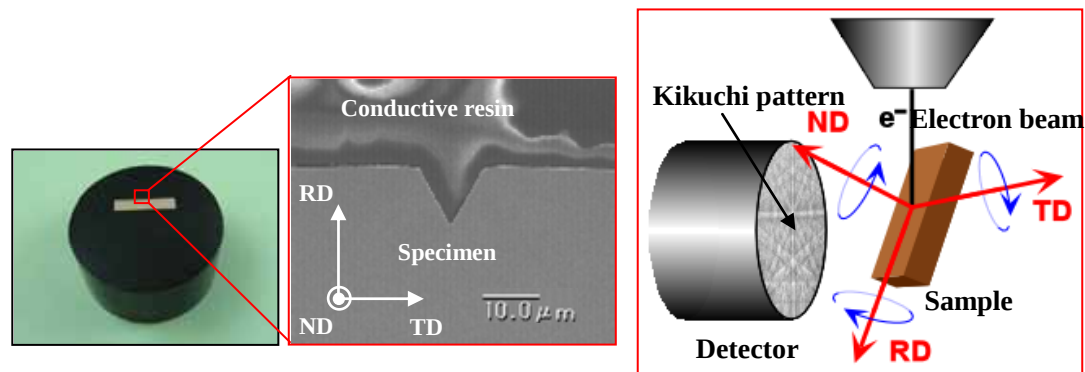


図 5 EBSD 分析用試験片および EBSD 分析の原理

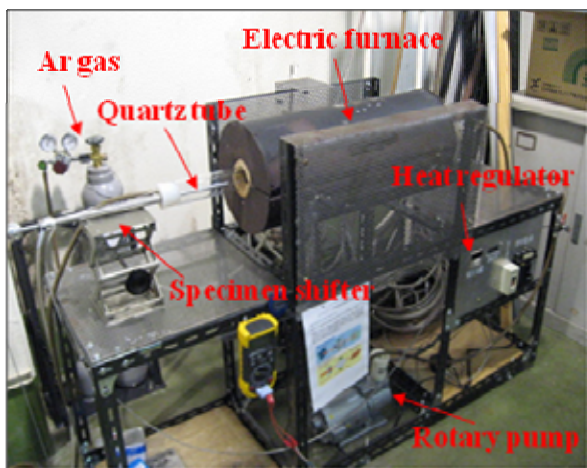


図 6 真空焼鈍炉

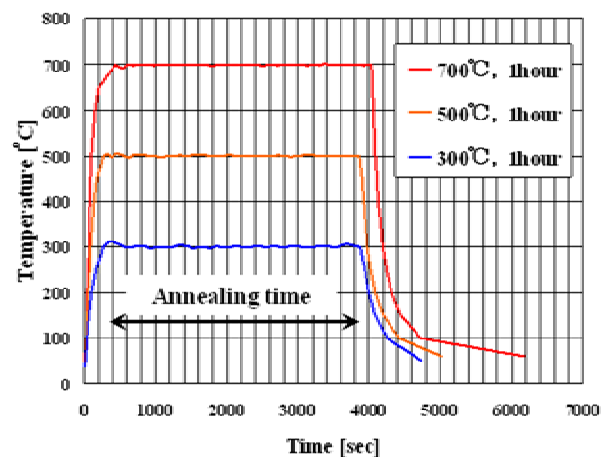


図 7 試験片の温度変化の例

表 1 実験条件の組み合わせ

Specimen	Indentation condition	Annealing condition
A	1N, 3N, 5N, 7N, 10N	$\circ$ 300 °C, 1hour $\circ$ 500 °C, 1hour $\circ$ 700 °C, 1hour
B	1N, 3N, 5N, 7N, 10N	
C	1N, 3N, 5N, 7N, 10N	
D	1N, 3N, 5N, 7N, 10N	

3．実験結果

3．1 微細押し込み加工した単結晶銅の変形分析

図 8 に押し込み痕断面の EBSD 分析結果の一例を示す。(a)は 5N で押し込んだもの、(b)は 10N で押し込んだものであり、それぞれの図の上部に描かれた水色の三角形が押し込み痕の断面を表している。押し込み荷重 5N の場合(a)では押し込み痕深さは約 $7\mu\text{m}$ 、押し込み荷重 10N の場合(b)では押し込み痕深さは約 $15\mu\text{m}$ であった。これに応じて分析領域もそれぞれ $35\mu\text{m}$ 角と $85\mu\text{m}$ 角とした。図 8 は色で ND 方向を向いている結晶面を表しており、図 8 にその色の示す結晶面を逆極点図で表してある。断面はもともと [100] 面を向いているため図の下半分では赤い色が大部分を占めているが、押し込み痕の周りは異なる結晶面方位のため異なる色が分布している。これは結晶の塑性変形によって結晶回転が生じたことを表している。色の異なる部分は押し込み痕からほぼ左右対称に放射状に伸びており、結晶の回転した領域が押し込み痕に対して対称に広がっていることがわかる。

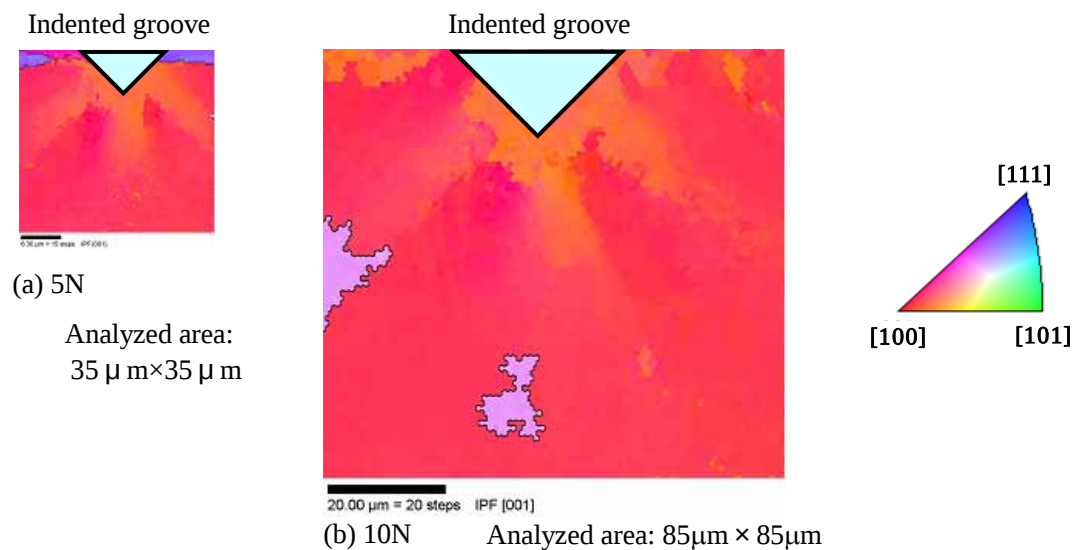


図 8 EBSD 分析により求めた押し込み痕断面の結晶方位 (ND 方向)

図 9 に結晶回転角の分布を示す。この図より押し込み痕周辺で大きな結晶回転が起きていることが分かる。また押し込み痕から真下および左右 45 度方向に回転角の大きい領域が広がっていることが分かる。すなわち真下と左右の 3 つの方向に結晶回転が起こり、その間の部分では結晶はあまり回転しないと考えられる。結晶回転が結晶の塑性ひずみに対応するわけではないが、結晶の滑り変形により結晶回転が生じることから、結晶の塑性変形が押し込み痕の真下方向と左右 45 度方向で大きく 2 つにわかれると考えられる。Zaafarani らは球頭圧子を単結晶純銅の (111) 面に押し込んだ場合の結晶回転を EBSD で測定し、押し込み痕上部に回転の大きい領域、押し込み痕下部に回転の小さい領域が生じることを示した⁽¹⁾。しかし Zaafarani らの実験では三次元的な変形が生じること、さらに圧子の角度が鈍いため鉛直方向圧縮による変形のみで結晶回転が生じにくい、などの傾向がある。このため本研究と同じように EBSD で押し込み痕断面を分析するにしても断面の切断位置の精度に影響され、また結晶の変形量・回転量が非常に小さく、塑性変形挙動を検討するには適していない。それに対して本実験では先端角の鋭いナイフエッジ工具を用いているため本質的に押し込み痕長手方向に均一な変形が生じ、EBSD 分析結果は切断位置の精度に依らないこと、また比較的結晶回転・せん断変形を起こし易い、など塑性変形挙動の分析に有効な手法と考えられる。

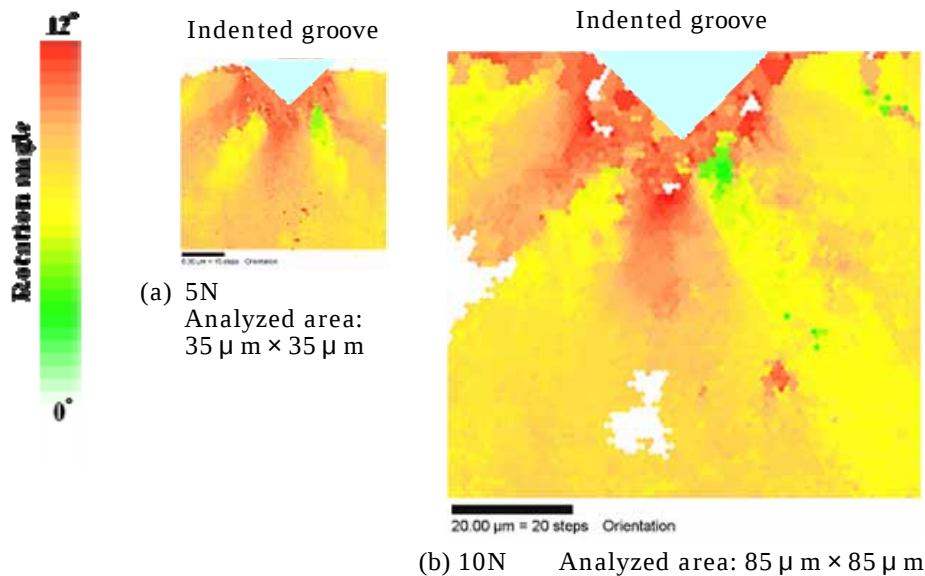


図9 EBSD 分析により求めた押込痕断面の結晶回転角

3.2 結晶塑性論に基づいた単結晶銅の変形解析

EBSD で結晶回転が測定できることを示したが、塑性変形量（塑性ひずみ）を測定することは困難である。EBSD 分析で IQ 値（Image Quality）が結晶のゆがみに依存するため、塑性ひずみ分布を反映するといわれているが、IQ 値から具体的なひずみテンソルを求めることは不可能である。

そこで以下に示す結晶塑性論に基づいた有限要素法を開発した。Taylor の研究⁽²⁾に基づき、一般に単結晶金属の塑性変形は結晶のすべり変形に起因すると説明されている⁽³⁾。さ

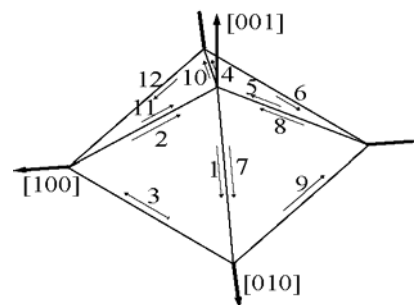


図10 FCC 結晶のすべり系

らに結晶のすべりは転位の運動により説明されることから、現在の転位論が構築された。すなわち結晶の塑性変形によるすべり変形を求めれば、結晶内の転位の挙動が検討できる。純銅のような fcc 結晶のすべり面は{111}面であり、結晶の対称性により4つのすべり面がある。またすべり方向は<110>であり、それがそれぞれのすべり面上に3つずつあるので 図10に示すように合計で12個のすべり系を有する。この材料に応力が働くと、これらのすべり系にはその方向に分解された剪断応力が働く。このとき材料に働く応力 σ と剪断応力 τ^k の関係は次式で表される。

$$\tau^k = p^k \sigma \quad (k=1,12) \quad \dots (1)$$

ここで k はすべり系を表す番号、 p^k はシュミット因子より構成されるテンソルである。シュミット則に基づくと、剪断力 τ^k が結晶の臨界剪断応力 τ_c を越えたときそのすべり系ですべり変形（マクロで見ると剪断変形）が生じることになる。このときのすべり変形速度（剪断速度）を $\dot{\gamma}^k$ とすると、結晶の塑性ひずみ速度は

$$D^p = p^k \dot{\gamma}^k \quad \dots (2)$$

となる。すなわち結晶の塑性ひずみはすべり面のすべり変形量 $\dot{\gamma}^k$ によって定まる。また塑性回転速度は

$$W^p = \omega^k \dot{\gamma}^k \quad \dots (3)$$

と表される。ここで ω^k はすべり面方位とすべり系の方向により定まるテンソルである。式(2)および式

(3)の D と W は結晶の幾何学的関係のみで定まる。この塑性回転 W^P と材料の剛体回転 W^* によって結晶格子の方位が変化する。すなわち

$$W = W^* - W^P \quad \dots (4)$$

が結晶回転速度となる。図9に見られた結晶方位の変化は、この結晶回転速度によるものと考えられる。すなわち実験より得られた結晶回転より式(3)を用いて $\dot{\gamma}^k$ を求めることができれば、式(2)により塑性ひずみ(速度)さらに転位の活動状況が求まることになる。

ところが式(4)では W の変数と $\dot{\gamma}^k$ の変数の数が合わないため実験結果から数式的に $\dot{\gamma}^k$ を求めることは不可能である。そこで有限要素法を用い、解析結果と実験結果を一致させることにより $\dot{\gamma}^k$ を求める方法が考えられる。上記のモデルに基づき、結晶すべり系のせん断降伏応力式を導入することにより、以下の構成式が導出される。

$$\dot{\sigma} = C^e : D - \sum_k S^k \dot{\gamma}^k \quad \dots (5)$$

ここで S^k は

$$S^k = (\omega^k \bullet \sigma - \sigma \bullet \omega^k) + C^e : p^k \quad \dots (6)$$

である。またSchmidt則を効率的に扱うためPan-Riceのモデルを適用する⁽⁴⁾。すなわちすべり変形速度 $\dot{\gamma}^k$ は以下の式に従い、そのすべり系に働く分解剪断応力 τ^k により定まるものとする。

$$\dot{\gamma}^k = \dot{\gamma}_0 \operatorname{sgn}(\tau^k) \left| \frac{\tau^k}{\tau_0^k} \right|^{\frac{1}{m}} \quad \dots (7)$$

これらの構成式をユーザーサブルーチンとしてABAQUS Explicitに導入し、fcc金属へのナイフエッジ工具の押込み加工について解析した。

図11に解析した有限要素法モデルを示す。8節点低減積分要素を用い、変形の対称性を仮定し左半分のみ解析した。図に示すように材料は立方体で、一片の長さが $10\mu\text{m}$ で、要素数24390個、節点数は27001個である。加工による要素のゆがみを抑えるためアダプティブメッシュを用いた。このモデルにおいて上面が(100)面、それぞれの辺は100方向に一致している。工具は先端角120度のナイフエッジ工具とし、刃が[100]方向に一致している。図12にナイフエッジ工具と結晶のすべり系との位置関係を模式的に示すが、ナイフエッジ工具の刃を通る面を対称面として左右に等価なすべり系が配置されている。本モデルを用い、ナイフエッジ工具を速度 $5\mu\text{m/sec}$ で鉛直方向に押し込み、押し込み深さ $1.5\mu\text{m}$ になるまでの変形を解析した。

図13に解析より求めた相当応力分布を示す。押し込み痕の面に垂直方向に大きな応力分布が広がっていることが分かる。この斜め方向に大きなひずみが生じると考えられる。図14にすべり系とすべり系のすべり量 γ の分布を示す。この図より押し込み痕周辺にすべり系の活動が大きな領域が発生し、また押し込み痕真下の深い部分にすべり系の活動が大きな領域が発生することが分かる。図15に結晶回転角分布を示すが、押し込み痕に接触する部分および押し込み痕下の深い部分に大きな回転域が見られる。

これらの解析結果はまだ十分ではないが、定性的には図9の実験結果と同様な傾向が見られる。今後解析技術の向上および材料パラメータの同定により実験結果との一致が可能と考えられる。さらに解析と実験との比較により、ナイフエッジ工具の押し込み加工における塑性ひずみ、活動すべり系のすべり変形、応力などが推定でき、転位構造や蓄積エネルギーなどの解明につながると考えられる。

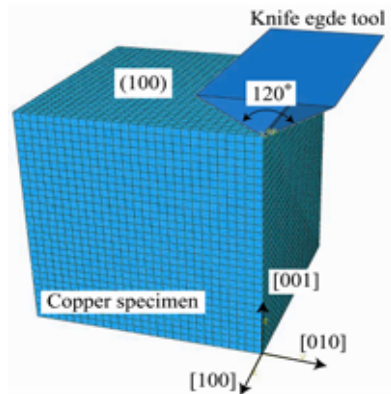


図 1.1 有限要素法解析モデル

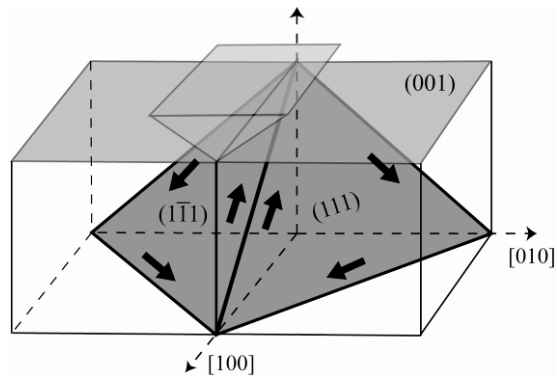


図 1.2 ナイフエッジ工具とすべり系の関係

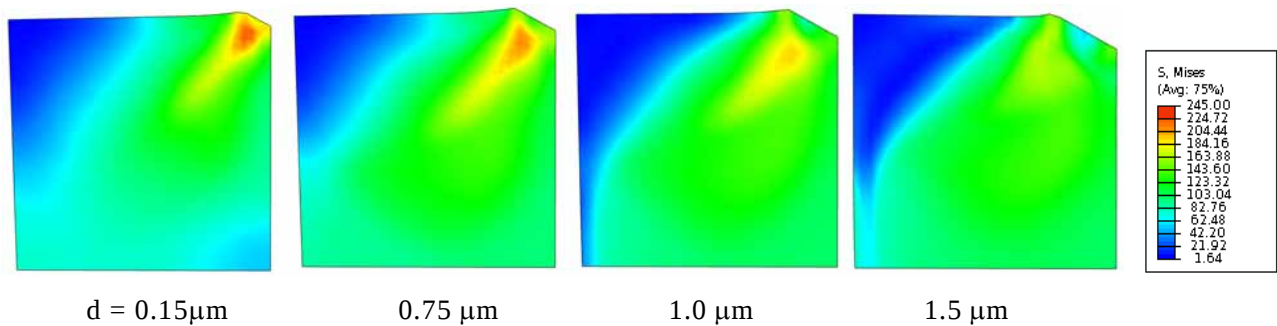


図 1.3 相当応力分布

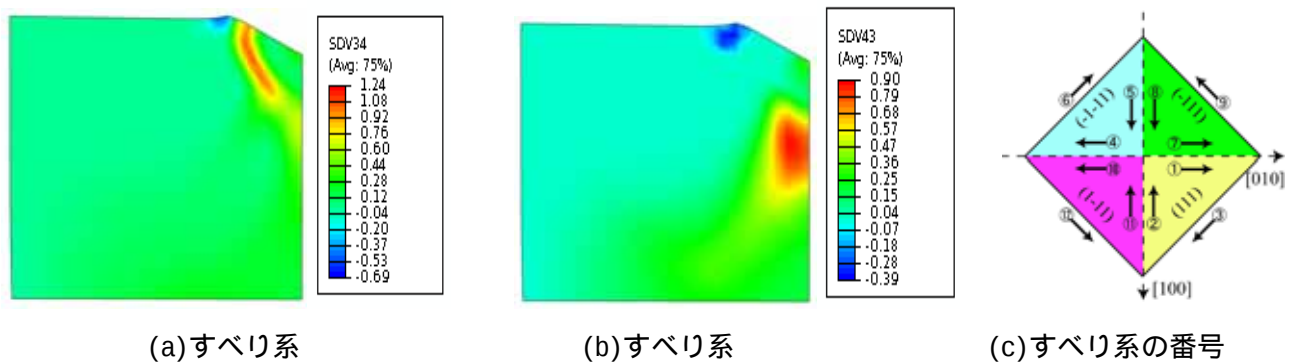


図 1.4 活動すべり系のすべり量分布

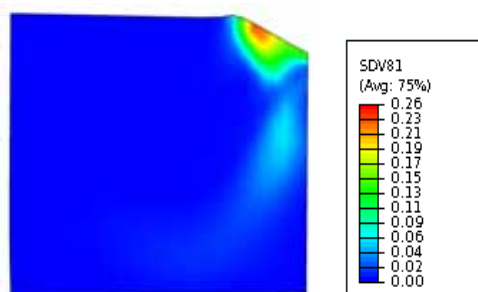


図 1.5 結晶回転角分布

3.3 焼鈍による単結晶純銅の静的再結晶

図 1.6 に微細塑性加工後に 700 °C で 1 時間焼鈍した試験片断面の EBSD 分析結果を示す。図中の水色の三角形は押し込み痕断面を表す。(a) では押し込み痕の下部に周りとは異なる色の塊が見えており、再結

晶核が発生した直後であることが判る。(b)では変形量が大きいため粒成長進んでおり、いくつかの結晶粒に分裂している。(c)ではさらに押し込み量が大きく、再結晶粒も大きく成長している。これらの再結晶粒はナイフエッジ工具の近傍より核生成し成長したように見受けられる。この部分は図9において大きな結晶回転が見られた位置であり、また図13において高い相当応力が生じた位置である。すなわち結晶回転もしくは相当応力が再結晶核の発生に関連していると推察される。

図17に焼鈍温度の違いによる再結晶状況の違いを示す。これらの試験片は押し込み荷重10Nで加工し、300、500、700で1時間焼鈍したものである。(a)では焼鈍温度が低いいためまだ再結晶の初期段階と考えられる。それに対して(b)では再結晶粒が大きく成長しているが多数の結晶粒に分かれている。ところが(c)では左右にほぼ同じ方位の大きな再結晶粒となっている。結晶粒の大きさの差が粒成長速度の違いを表しており、このようなデータを積み重ねることにより塑性変形と核発生・粒成長の駆動力との関係を明確にし、粒成長過程の定量的予測に繋がると考えられる。

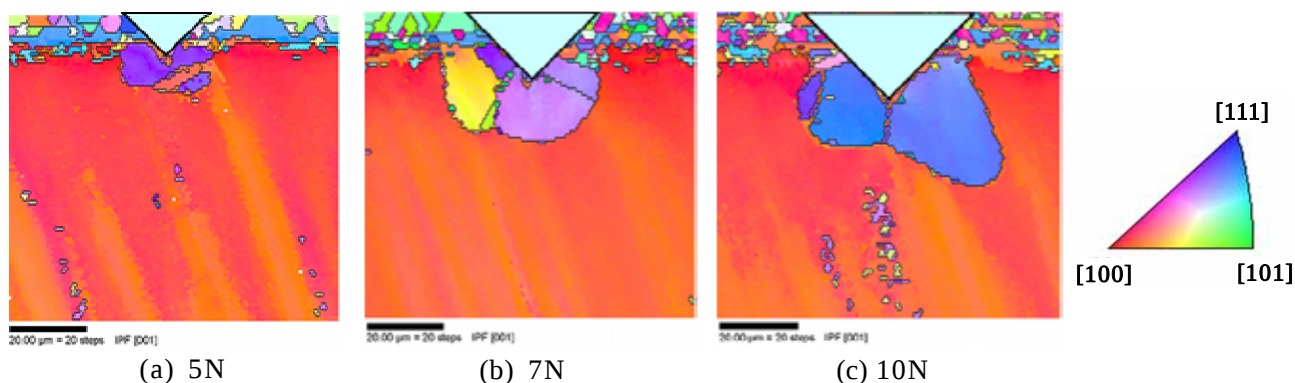


図16 焼鈍した試験片の押し込み痕断面のEBSD分析結果 (700 × 1時間焼鈍)

Analyzed area: 85 μm × 85 μm

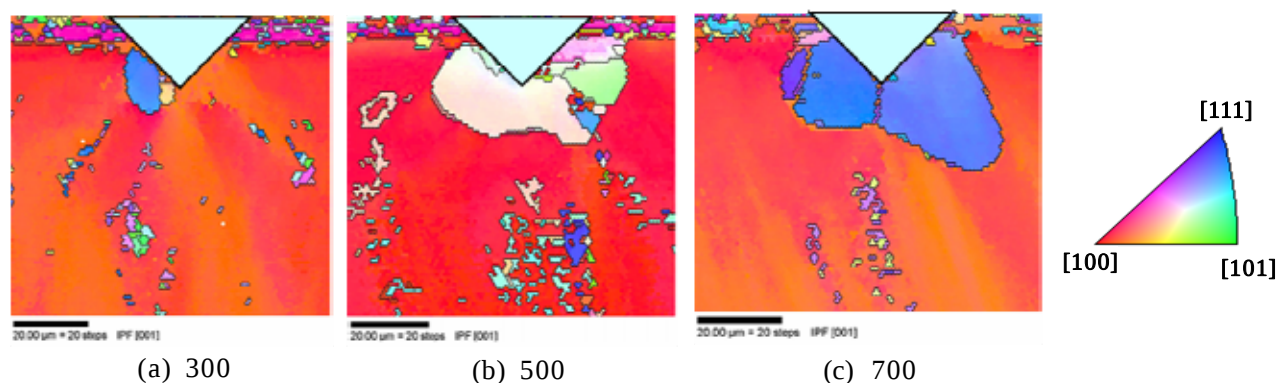


図17 焼鈍した試験片の押し込み痕断面のEBSD分析結果 (押し込み荷重10N、1時間焼鈍)

Analyzed area: 85 μm × 85 μm

図18に加工条件と熱処理温度の組み合わせに対する再結晶の発生状況を示す。全体的に加工荷重が大きい程低い温度で再結晶が生じ、逆に加工荷重が小さい場合再結晶温度が高くなることが分かる。このように全体的には一般の再結晶現象と同様の傾向が見られる。現状では再結晶速度、粒成長速度などを測定するだけの十分なデータは得られていないが、今後、本実験手法を活用しデータを増やすことにより、再結晶過程の詳細な検討が可能と考えられる。

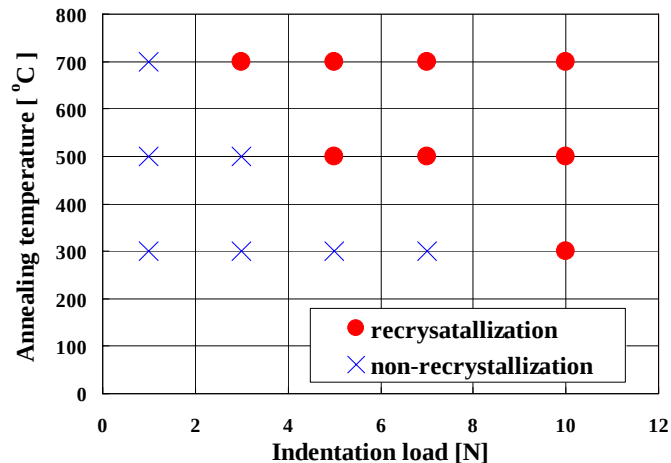


図 1 8 加工条件・熱処理条件に対する再結晶状況の変化

4. 考察

本実験では予め結晶方位が特定されている試験片を用い、正確に同一な塑性変形を与え、焼鈍時間も正確に一致させている。このため再結晶過程も均一になるはずであるが、以上の実験結果では平均的な傾向としては一般的な再結晶と同様な特徴が見られるものの、結晶方位、形状はバラバラであり規則性は見られない。再結晶過程が本質的に偶発的で不規則な現象ならば、加工条件をどのように調整しても特定の結晶方位に揃うことはありえないはずであるが、実際には熱間加工により集合組織が生じることが知られている。すなわち、再結晶過程には何かしら確定論的な因果関係があるはずであり、本実験のように素材、加工条件・熱処理条件を特定すれば再結晶過程に規則性が存在しなければならない。

本実験でこのような規則性が見られなかった理由として以下の原因が考えられる。

素材の不均一性：素材は単結晶純銅のインゴットよりワイヤーカットで切り出し、その後表面を化学研磨で仕上げ、加工変質層を除いている。このため理想的には試験片内の結晶構造はほぼ無ひずみで均一な状態であると考えられる。しかしながら、もし化学研磨で変質層が完全に切り除けていなければ、押し込み痕近傍の結晶のひずみは不均一であった可能性がある。さらに純銅試験片の不純物が影響することも考えられる。これらを解決するためには、単結晶インゴットの純度の向上、厳密な無ひずみ結晶の作成、試験片の加工方法の厳密化、加工変質層の評価、加工変質層の除去法の確立など、実験技術の向上が必要である。

加工条件・熱処理条件の不安定性：微細加工装置は分解能 10nm の高精度ステージにより構成されており、精密な加工制御が可能である。また押し込み用のナイフエッジ型ダイヤモンド工具も先端は鋭く均一に研磨されており、エッジ長手方向の不均一性はほとんどない。しかし、図 9 の像をみると、結晶の変形は厳密に左右対称ではなく、また IQ 値の分布にも不規則性が見られる。これは工具表面と材料との摩擦が左右で均一でなかったこと、工具剛性の不足により工具が僅かに傾いた可能性があること、素材の特性が不均一だったことが原因として考えられる。微細加工装置の高精度化・高剛性化による変形制御の厳密化、工具表面の潤滑性の向上により改善できると考えられる。

すべり変形の非唯一性：3.2 節で述べたように単結晶材料の変形は、一般にすべり変形モデルに基づいた結晶塑性理論で説明されている。ここで Schmidt 則に基づき分解剪断応力の大きなすべ

り系から活動を始めると仮定することにより、12 個のすべり系のうち最低 5 つの活動すべり系を定めることができるとされている。この解析を効率的に行うために開発されたのが Pan-Rice の提唱した粘性モデルであり、本研究の結晶塑性有限要素法解析でも使われている。そのため結晶塑性有限要素法解析では常に最適な活動すべり系（正しいすべり系）が選択されていると考えられる。しかしながら、もし Schmidt 則に幅があり、常に厳密に成り立つとは限らなければ、活動すべり系の選択方法は膨大に存在し、それによって多様な変形モードが存在することになる。すなわち全く同じ結晶材料、全く同じ境界条件で変形させても、ほんの僅かな材料特性のばらつきにより全く異なる変形（活動すべり系）が生じる可能性がある。活動すべり系が転位の運動を表しているので、同じ変形であってもさまざまな転位構造が存在しうることになる。これは塑性変形の唯一性、すなわちミクロ構造を確定論的に決定するかもしれない何通りものミクロ構造が偶発的に発生しうるか、という結晶塑性論の本質に関わる問題である。

再結晶過程の本質的偶然性：再結晶過程は一般に核生成・粒成長モデルにより説明されている。塑性変形により生じた転位網が形成するサブグレインが再結晶核になると考えれば、塑性変形に起因する静的再結晶過程を説明できる。実際の再結晶過程では沢山あるサブグレインから数個のみが再結晶粒に成長しているように見受けられることから、成長する再結晶核を定める機構が、再結晶粒の方位と配置を決定する要因と考えられる。結晶内に蓄積されたひずみエネルギーが粒成長の駆動力となるならば、それは転位網構造に依って定まるはずである。一方、もし転位構造以外の要因で再結晶核、粒成長が定まるならば、それを説明する新たな再結晶モデルの構築が必要である。

5 . 結言

組織材質予測手法の実現を目指し、静的再結晶機構の検討を行った。再結晶過程を厳密に検討するための実験方法として、結晶方位の明らかな単結晶純銅を試験片として用い加工実験・再結晶実験を行い、EBSD 分析により結晶変形挙動、再結晶挙動を分析する手法を提案した。さらに結晶塑性有限要素法を開発し、押し込み加工による単結晶金属の変形機構を検討する方法を示した。これらの実験と有限要素法解析とを比較することにより、再結晶過程と塑性変形との力学的関係が検討できることを示した。本研究では試験片の結晶方位および加工条件・熱処理条件を厳密に制御しているにも関わらず、再結晶過程に規則性は見られなかった。この原因について考察し、今後の研究の指針を示した。

謝辞

本研究は JFE21 世紀財団の研究助成により行った。記して謝意を表する。

文献

- (1) Zaafarani N., Raabe D., Singh R.N., Roters F., Zaefferer S., Three-dimensional investigation of the texture and microstructure below a nanoindent in a Cu single crystal using 3D EBSD and crystal plasticity finite element simulations, Acta Materialia, 54, (2006), pp.1863-1879.
- (2) G.I. Taylor: Plastic Strain in Metals, J. Inst. Metals, 62, pp.307-324 (1938)
- (3) 例えば高橋寛: 多結晶塑性論、コロナ社 (1999)
- (4) J. Pan, J.R. Rice: Int. J. Solids Structs, 19 (1983) 973.