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

加藤 慎也^{1,*1} 大坪 啓視^{1,*2} 植木 智之² 岡田 達也²

¹徳島大学大学院先端技術科学教育部

²徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部

J. Japan Inst. Met. Mater. Vol. 77, No. 3 (2013), pp. 101–106

© 2013 The Japan Institute of Metals and Materials

Orientation of Initial-Stage Recrystallized Grain in Non-Uniformly Deformed Copper Single Crystal

Shinya Kato^{1,*1}, Keiji Ootsubo^{1,*2}, Tomoyuki Ueki² and Tatsuya Okada²

¹Graduate School of Advanced Technology and Science, The University of Tokushima, Tokushima 770-8506

²Institute of Technology and Science, The University of Tokushima, Tokushima 770-8506

The objective of the present study was to find the orientation relationship between a recrystallized grain at its initial stage and a deformation microstructure in a non-uniformly deformed copper single crystal.

A tensile strain of 25% was applied to a $\langle 110 \rangle$ copper single crystal sample in which shallow grooves were made at both side faces before the tensile test to promote non-uniform deformation. A thin disc specimen prepared from the deformed sample was annealed in a high vacuum. A scanning electron microscope (SEM)/electron backscatter diffraction (EBSD) method was used to analyze the orientations of deformed and annealed states.

There are two primary slip planes of the largest Schmid factor in a face-centered-cubic metal single crystal deformed along a $\langle 110 \rangle$ direction. In the present copper single crystal sample, both right-up and right-down band-like regions are formed in which either of the primary slips was activated. The arrangement of band-like regions on the overall sample surface was almost symmetrical. Between band-like regions, there were regions of patchy slip appearance, consisting of double-slip and single-slip areas. The band-like regions were rotated so that the slip directions moved towards the tensile axis. On the other hand, the rotation of patchy regions was relatively small.

In the disc specimen annealed at 833 K, a recrystallized region was formed at the boundary between band-like and patchy regions. The recrystallized region consisted of two types of recrystallized grains having a twin relationship each other. Both types of recrystallized grains had an $\langle 111 \rangle$ -rotated orientation relationship with the band-like region.

(Received October 12, 2012; Accepted December 18, 2012; Published March 1, 2013)

Keywords: copper, single crystal, tensile deformation, non-uniform deformation, recrystallization

1. 緒 言

一般的に再結晶は、周囲の変形マトリックスとは異なる変形を起こした不均一変形領域から優先的に起こることが知られている¹⁾。不均一変形領域には、変形帯や結晶粒界近傍、粗大な介在物の周辺部分などがある。変形・再結晶は多結晶材料の集合組織形成に深く関わっており、古くから研究されている。その主流となっている研究手法は、多結晶材料に圧延変形を与えて形成する変形組織と焼鈍後に得られる再結晶組織を解析し、それらの関係や形成メカニズムについて考察するものである。この手法の利点としては、得られたデータ

が直接、集合組織の制御に応用可能である点が挙げられる。反面、多結晶材料の圧延変形の複雑さのため、変形組織形成に関与しているすべり系の特定が容易ではない、という弱点も有している。再結晶粒の形成機構として、近年、再結晶粒の元になる、周囲と大きな方位差を持った微細領域は、変形組織中に潜在しているという説が有力となっており^{2,3)}、変形組織の解析がこれまで以上に重要性を増している。単結晶試験片に単純な引張変形を与える手法は、変形によって導入される転位の種類を制御しやすいという点では、多結晶材料に圧延変形を加える方法に比べて優れていると言える。

本研究においては、側面部に浅い溝加工を行った $\langle 110 \rangle$ 方位を有する銅単結晶に引張ひずみを与えて不均一変形を促進し、変形後の試験片から切り出した薄片試料を高真空中で焼鈍することにより再結晶粒の初期段階を捉え、その方位を解析することを目的とした。

面心立方金属の単結晶を $\langle 110 \rangle$ 方向に引張った場合、2つのすべり面上にそれぞれ2つ合計4つの、シュミット因子

*1 徳島大学大学院生 (Graduate Student, The University of Tokushima)

*2 徳島大学大学院生、現在：(株)神戸製鋼所 (Graduate Student, The University of Tokushima, Present address: Kobe Steel, Ltd.)

0.4 を持つすべり系が存在し、これらが変形を主に担う。Fig. 1 に観察面を $\{110\}$ とした場合の、これらのすべり面、すべり方向の配置を模式的に示す。すべり面は P1 および P2 であり、それぞれのすべり面上にすべり方向 D1, D3 および D2, D5 が存在している。

アルミニウム単結晶の場合は、引張変形開始時に、同じシュミット因子を持つ P1 および P2 のすべり面が同時に活動することではなく、必ずどちらか一方が活動を開始する。(実際には、先に活動した方を P1 と名付けている。)引張ひずみが 10% 程度を超えると、P2 すべりが帯状の領域を形成しつつ活動し始める。この P2 すべりによる不均一変形領域は、ひずみの増加に伴って幅が広がっていくこと、不均一変形領域と交わる P1 すべり帯が鋭く屈曲しないことなど、キンク帯とは異なる特徴を有するため、特殊な 2 次すべり帯 (SBSS: Special Band of Secondary Slip) と名付けられた^{4,5)}。

ところが、同じ方位を有する銅単結晶に引張変形を与えた場合、SBSS は明瞭には発達せず、試験片観察面は複雑な斑状のすべりの様相を呈する⁶⁾。この斑状変形組織は P1 と P2 すべりが同時に活動した 2 重すべり領域と P1 または P2 の一方のみが活動した単一すべり領域に細かく分かれている。また、銅においては、主すべり系のシュミット因子が 0.5 となる引張方位を有する単結晶においても、同一方位のアルミニウム単結晶のような明瞭なキンク帯⁷⁾は形成し難いことも分かっている。SBSS やキンク帯の形成の難易は、材料の積層欠陥エネルギーの相違とそれに起因する交差すべりの難易と関係しているものと考えられる。

Okada ら⁸⁾は主すべり系のシュミット因子が 0.5 である銅単結晶の表面にビッカース圧痕を付けた場合、引張変形に伴って圧痕を起点としてキンク帯が形成し、焼鈍によりキンク帯と変形マトリックスの境界から再結晶粒が形成することを見出した。これを受けて本研究では、 $\langle 110 \rangle$ 引張方位銅単結晶試験片の側面部に浅い溝を予め加工し、引張変形を与えた。ビッカース圧痕ではなく側面部の浅溝を採用した理由は、試験片の厚さ方向の変形を同一にするためである。また、浅溝を付けることにより、試験片に規模の大きな不均一変形を起こさせ、再結晶粒の優先形成サイトとなる、変形が

不連続な境界を導入することを企図した。

2. 実験方法

純度 99.99 mass% の無酸素銅を用い、ブリッジマン法によって長手方向 $\langle 110 \rangle$ 、 $\{110\}$ 板面を有する銅単結晶を育成した。その銅単結晶から、平行部側面に深さ 0.2 mm の溝を片側あたり 5 か所付けた $\langle 110 \rangle$ 引張単結晶試験片を放電加工により切り出した。Fig. 2(a) に試験片寸法を、Fig. 2(b) に試験片側面溝の寸法を示す。試験片 $\{110\}$ 観察面に対して、エメリー紙研磨、バフ研磨、電解研磨 (電解液: リン酸 30 vol%, エタノール 70 vol%) を順に行って表面を鏡面にした後、SEM (Scanning Electron Microscope)/ECP (Electron Channeling Pattern) 法によって方位を確認した。Fig. 3 に試験片の初期方位を示す。引張軸および板面法線が共に $\langle 110 \rangle$ となっていた。その後、室温において、ひずみ速度 $3.3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ で引張試験を行い、試験片に 25% ひずみを与えた後、表面を光学顕微鏡および SEM/EBSD (Electron Backscatter Diffraction) 法で観察した。使用した SEM は JEOL JSM6400 であり、EBSD システムは TSL 社製 OIM5.31 で

Fig. 2 Schematics of (a) single crystal sample and (b) shallow grooves on the right-side surface.

Fig. 1 Major slip systems in $\langle 110 \rangle \{110\}$ single crystal. P1 and P2 are slip planes, and D1, D3, D2 and D5 are slip directions.

Fig. 3 Stereograph of the initial orientation.

ある。

観察後の試験片を、放電加工により厚みが半分になるようにスライスした。その後、エメリー紙研磨で厚さ 0.3 mm 程度まで研磨し、放電加工により円盤状薄片試料を切り出すための概形(円盤状試料の外周の一部 0.8 mm を意図的に切り残している)を加工した。続いて、バフ研磨、電解研磨を行って表面を再び鏡面に仕上げた後、剃刀で切り残し部を切り離して、直径 3 mm、厚さ 0.3 mm の焼鈍用円盤状薄片試料を作製した。円盤状薄片試料を TEM 用加熱ステージにセットして高真空中で焼鈍を行い、その後 SEM/EBSD 法によって再結晶粒の探索を行った。焼鈍には、設定温度に達した直後に加熱を止める方法を用いた。最初の再結晶粒が得られるまで、第 1 回目の 360°C から、設定温度を 50°C ずつ順次上げて焼鈍と探索を繰り返した。得られた再結晶粒と周囲の組織の結晶方位を SEM/EBSD 法により解析した。

3. 結 果

3.1 変形組織

Fig. 4 に引張変形後の光学顕微鏡写真を示す。矢印は平行部側面の溝の位置を示している。試験片側面の溝を起点として帯状領域が形成していることが分かる。この領域は、左側面から右上がりおよび右下がり方向に、右側面から左上がりおよび左下がり方向に伸びているが、左側面からの右上がりおよび右側面からの左上がりの領域が、より成長していた。

Fig. 5 に Fig. 4 中に白実線枠で示した領域の SEM 写真を示す。この領域は試験片右側面に近いため、側面溝から左上がりに発達した帯状領域が優勢である。この SEM 写真中に

2 本見られる左上がりの帯状領域内には P1 すべり面に対応する右上がりのすべり帯のみが認められる。また、写真右端付近には、右側面溝から左下がりに形成した帯状領域が見られ、この領域内では P2 すべりのみの活動が認められる。本研究においては、試験片側面に浅い溝を加工することにより、引張変形によって SBSS が発達すると考えていたが、予想に反して、帯状領域の内部には P1 または P2 のみしか活動しておらず、側面部への溝の付加は、帯状変形マトリックス(DM)の形成を促進させる結果となった。また、帯状領域の間には、複雑な斑状の領域が存在しており、この斑状領域は、P1 および P2 すべりが同時に活動した 2 重すべり小領域と、P1 または P2 のすべりのみが発達した単一すべり小領域によって構成されていた。すなわち、この領域は、側面溝を加工しない<110>引張銅単結晶と同様のすべり組織となっている。この領域を斑状 2 次すべり領域(PASS: Patch Area of Secondary Slip)と呼ぶことにした。

Fig. 6 に Fig. 4 の黒破線枠領域における SEM/EBSD データに基づく逆極点図方位マップを示す。この方位マップにおいては、変形に伴う結晶回転を明瞭に示すため、引張軸方向の結晶方位をカラーキーに従って色付けして表示している。左側面からの右上がり DM (Fig. 6 中に Right-up DM として例示)と右側面からの左上がり DM (Fig. 6 中に Left-up DM として例示)の回転角度は、完全には同じでないことが両者の色の違いから見て取れる。また、帯状に発達した DM の間に存在する PASS はいずれの DM とも異なる方位であることが明らかである。加えて、Fig. 6 中に点線円で例示したように、PASS 内部には DM とよく似た方位を持つ細い帯状領域が形成していることが分かる。各領域における転位密度を反映していると考えられるイメージオリエンティ (IQ) 値を調べたところ PASS/DM 境界が、PASS 内部や DM に比べて IQ 値が低いことが分かった。これより、PASS/DM 境界付近に最も高密度に転位が蓄積していると

Fig. 4 Optical micrograph of the deformed sample. Short arrows show the positions of shallow grooves. SEM image of the small area (white solid line) and inverse pole figure orientation map of the large area (black broken line) are presented in Figs. 5 and 6, respectively.

Fig. 5 SEM image of slip bands in the small area bounded by white solid line in Fig. 4. DM and PASS are abbreviations of deformation matrix and patchy area of secondary slip, respectively.

考えられる. PASS 内部においては, IQ 値が低い領域と高い領域が見られた. これは PASS 内部に 2 重すべり小領域と, P1 または P2 のみが活動した単一すべり小領域が斑状に形成していたことに対応している.

変形に伴う各領域の回転方向と角度の相対的な比較を行うために, Fig. 7 に, P1 すべりのみが活動する左上がり DM, P2 すべりのみが活動する右上がり DM, および PASS のそれぞれ $50\ \mu\text{m} \times 50\ \mu\text{m}$ の領域における SEM/EBSD データから作成した $\langle 111 \rangle$ 極点図を, 試験片初期方位に重ねて示す. 回転軸は試験片板面法線 (Fig. 7 中の D4 軸) に近いと見

Fig. 6 Inverse pole figure orientation map of the large area bounded by black broken line in Fig. 4. Well-developed DM bands are shown. The circle shows a PASS where fine DM bands are observed.

Fig. 7 $\langle 111 \rangle$ pole figures of right-up DM, left-up DM and PASS superimposed on the initial orientation.

なすと, Fig. 7 の左下 $P\bar{2}$ 軸付近に例示したように, P1 すべりのみが活動する Left-up DM は初期方位に対して反時計回りに回転しており, P2 すべりのみが活動する Right-up DM は時計回りに回転していた. これらに対し, PASS の D4 軸回りの回転角度は小さい. この PASS においては, P1 および P2 すべりがほぼ同程度活動して 2 重すべりを起こしていたと考えられる.

Fig. 8 に以上の結果をまとめた変形組織の模式図を示す. 帯状 DM が左右の溝を起点として形成していた. また, 左右の DM で異なるすべり (P1 または P2) を選択しており, それぞれの帯状 DM が図中の矢印で示したような回転を起こすことで, 試験片全体として変形のバランスを取っていると考えられる. これは, 試験片左右側面部の溝のずれが変形後においても小さいこと (Fig. 4) から説明できる. また, 帯状 DM の間には PASS が形成していた. PASS 内部においても小領域ごとに異なる方位回転が起こっており, PASS 全体として結晶回転をバランスさせていると考えられる.

3.2 再結晶

TEM 加熱ステージを用いて円盤状試料の焼鈍を行った. Fig. 9(a) に第 1 回目の 360°C 焼鈍から数えて 5 回目の, 560°C 焼鈍を行った後の円盤状試料全体の逆極点図方位マップを示す. 円盤の上部に周囲から孤立した再結晶領域の形成を明瞭に確認することができる. Fig. 9(b) に孤立再結晶領域近傍をより細かいピッチで撮った SEM/EBSD データに基づく逆極点図方位マップを示す. なお, Fig. 9(a) および (b) は, Fig. 6 とは異なり, 試験片板面方向の結晶方位で色付けしている. Fig. 9(c) に Fig. 9(b) と同じ領域の IQ マップを示す. PASS と左上がり DM の境界において $50\ \mu\text{m}$ 程度の大きさの再結晶領域が形成していることが分かる. この再結晶領域には, 再結晶粒が 6 個形成していたが, Fig. 9(b) から分かるように, 方位としては 2 種類 (①, ③, ⑤タイプおよび②, ④, ⑥タイプ) しか存在せず, その 2 種類は

Fig. 8 Schematic to show the rotations of DM and PASS.

Fig. 9 (a) Inverse pole figure orientation map of the annealed specimen. (b) Magnified map of the rectangular area in (a). (c) Image quality map of (b). Thin red lines correspond to twin boundaries.

お互いに双晶関係であった. Fig. 9(c)では双晶境界を赤く色付けして表示している.

Fig. 10 に左上がり DM と再結晶粒①および再結晶粒②の $\langle 111 \rangle$ 極点図を示す. 再結晶粒①は, 左上がり DM に対して $\langle 111 \rangle$ 軸 ($P\bar{2}$ 軸) を回転軸として時計回りに 27° の回転関係を持っていた. また, 再結晶粒②は, 左上がり DM に対して同じ $\langle 111 \rangle$ 軸 ($P\bar{2}$ 軸) を回転軸として反時計回りに 33° の回転関係を持っていた.

4. 考 察

本研究において捉えられた, 初期段階の再結晶領域は, 圧延変形された多結晶中で報告されている初期段階の再結晶粒サイズよりもはるかに大きい⁹⁾. これは, 多結晶の場合, 再結晶粒が隣接する結晶粒との間に小角粒界を形成すると, その小角粒界部分の移動が実質的に止められてしまうのに対し

Fig. 10 Orientation relationship between left-up DM and two types of recrystallized grain.

て, 単結晶中に孤立して形成した再結晶粒は, 他の再結晶粒との衝突がない限り, 大角粒界の移動により成長できるためであると考えられる.

Fig. 9(c)から明らかなように, 本研究において見出された初期段階の再結晶領域は, 互いに双晶関係にある2種類の方位の再結晶粒から構成されている. また, 両者とも DM 方位に対して $\langle 111 \rangle$ 軸回りの回転関係を持っていた. この結果と類似した初期段階の再結晶領域は, 銅の $\langle 111 \rangle$ 軸引張単結晶を, 本研究と同じ手法で薄片化して焼鈍した際に出現することが報告されている¹⁰⁾. 本研究との相違は, 2種類の再結晶粒のうち1種類だけが変形マトリックスに対して低指数軸回りの回転関係を示している点である. これは, 変形マトリックスと低指数軸回りの回転関係を有する再結晶粒が最初に形成し, その成長の途中で双晶関係を持つ部分が形成したためだと考えられる^{11,12)}. 本研究の結果も, Fig. 9(b)のタイプ①または②の方位を持つ再結晶粒のうちどちらか一方 (両者とも DM に対して $\langle 111 \rangle$ 回転関係を持っていたので, どちらか一方には決定はできない) が先に形成し, その後形成した双晶部分もまた, 偶然, DM 方位と $\langle 111 \rangle$ 回転関係を持っていたと解釈できる. 変形組織の中から最初に現れる再結晶粒が, 必ず双晶のペアで出現するとは考えていない.

本研究において得られた再結晶粒は DM 方位に対して $\langle 111 \rangle$ 軸回りの回転関係を持っていた. $\langle 110 \rangle$ 引張単結晶の場合, 変形に伴う結晶回転は, Fig. 1 に示すように P1 面上のすべり D1, D3 の合成方向が引張軸に近づく, 試験片観察面法線の $\langle 110 \rangle$ 軸 ($D4$ 軸) 回りの反時計回転と, P2 面上のすべりによる $D4$ 軸回りの時計回転である. 従って, 変形に伴ってシュミット因子の高いこれらのすべり系から導入される転位だけでは, $\langle 111 \rangle$ 軸回りの再結晶粒の形成は説明できない. $\langle 110 \rangle$ 引張単結晶の場合, 他のすべり系のシュミット因子は 0 であるが, 変形帯が生じる場合, シュミット因子 0 のすべりも局所的に誘起されることが知られている¹³⁾. 今

後, DM と PASS の境界におけるこれらの付加的なすべりの活動状況を詳細に観察する必要がある。

5. 結 言

不均一変形を促進するために, 引張試験前に両側面に浅い溝をつけた<110>引張銅単結晶に 25% の引張ひずみを与えた。変形した試験片から切り出した薄片状試料を高真空中で焼鈍した。

左側面の浅い溝からは右上がりおよび右下がりの, 右側面においては左上がりおよび左下がりの帯状領域が, ほぼ左右対称に形成した。帯状領域内部では, シュミット因子 0.4 を持つ 2 つのすべり面のうち一方だけが活動しており, 試験片全体で左右対称に活動することにより, 結晶回転を打ち消し合っていた。帯状領域の間には斑状のすべりを呈する領域が存在し, 内部はシュミット因子 0.4 のすべり面 2 つが同時に活動する 2 重すべり小領域と, どちらか一方のみが活動する単一すべり小領域に細かく分かれていた。2 重すべり小領域の結晶回転は, 帯状領域(変形マトリックス)に比べて小さかった。

560°C で焼鈍した薄片状試料において, 帯状変形マトリックスと斑状領域の境界部に, 孤立した再結晶領域が形成した。その再結晶領域はお互いに双晶関係を持つ 2 種類の再結晶粒から構成されていた。両方の再結晶粒ともに変形マト

リックスに対して<111>軸回りの回転関係を持っていた。

本研究の一部は科学研究費補助金(基盤研究(C)課題番号 23560088)の支援の下に行われました。謝意を表します。

文 献

- 1) F. J. Humphreys and M. Hatherly: *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*, (Elsevier, Oxford, 2004) pp. 259–261.
- 2) F. J. Humphreys and M. Hatherly: *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*, (Elsevier, Oxford, 2004) p. 251.
- 3) F. J. Humphreys and M. Hatherly: *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*, (Elsevier, Oxford, 2004) pp. 257–259.
- 4) K. Kashihara, M. Tagami and F. Inoko: *Mater. Trans., JIM* **37** (1996) 564–571.
- 5) K. Kashihara, M. Tagami and F. Inoko: *Mater. Trans., JIM* **37** (1996) 572–578.
- 6) T. Okada, M. Utani, A. Osue, N. Fujii, M. Tagami and F. Inoko: *Mater. Trans.* **46** (2005) 602–607.
- 7) F. Inoko and K. Kashihara: *J. Japan Inst. Metals* **56** (1992) 361–370.
- 8) T. Okada, H. Kinoshita, M. Tagami and F. Inoko: *Mater. Trans.* **50** (2009) 446–452.
- 9) A. Yamamoto: *J. JILM* **60** (2010) 68–74.
- 10) T. Morikawa, H. Tai, M. Tagami, T. Okada and F. Inoko: *Collected Abstracts of the 2009 Autumn Meeting of the Japan Inst. Metals*, (2009) p. 202.
- 11) H. Gleiter: *Acta Metall.* **17** (1969) 1421–1428.
- 12) P. J. Goodhew: *Met. Sci.* **13** (1979) 108–112.
- 13) K. Higashida, J. Takamura and N. Narita: *Mater. Sci. Eng.* **81** (1986) 239–258.