巨大ひずみ加工により作製された超微細粒銅の引張せん断試験での結晶粒の微細化と粗大化

松谷 亮輔* 宮嶋 陽司 尾中 晋

東京工業大学物質理工学院材料系

J. Japan Inst. Met. Mater. Vol. 82, No. 11 (2018), pp. 442-448
© 2018 The Japan Institute of Metals and Materials

Refinement and Coarsening of Grains Caused by Tensile-Shear Tests in Ultra-Fine Grained Cu Processed by Severe Plastic Deformation

Ryosuke Matsutani*, Yoji Miyajima and Susumu Onaka

Department of Materials Science and Engineering, School of Materials and Chemical Technology, Tokyo Institute of Technology, Yokohama 226-8502

Ultra-fine grained pure copper fabricated by equal-channel angular pressing was used as a sample. We made tensile-shear tests using specimens with notches cut from the sample and large shear deformation occurred between the notches. Microstructural changes between the notches caused by the large shear deformation were observed. Using micro scale lattices scribed on the surface of the specimen, we found both refinement and coarsening of grains caused by the large shear deformation. Although severe plastic deformation causes ultra-fine grained structure, it is known there is a limit of the grain refinement. The grain coarsening observed in the present study is considered to be the reason of the limit of the grain refinement caused by severe plastic deformation. [doi:10.2320/jinstmet.JAW201804]

(Received May 1, 2018; Accepted September 4, 2018; Published October 15, 2018)

Keywords: copper, ultra-fine grain, equal channel angular pressing (ECAP), microstructure, electron back scatter diffraction, grain refinement

1. 緒 言

巨大ひずみ加工は金属組織の結晶粒径を微細化し、加工硬化と結晶粒微細化強化によって金属の強度を上昇させる手法である。巨大ひずみ加工の代表例として繰り返し重ね圧延接合 (Accumulative roll bonding: ARB)、等径角度付き押し出し法 (Equal channel angular pressing: ECAP)、高圧ねじり加工 (High Pressing Torsion: HPT) 等の方法が挙げられる¹⁻³⁾。これらの巨大ひずみ加工によりサブミクロンの組織を持つ超微細粒 (Ultra-fine grain: UFG) 材を得ることが可能になった。強ひずみ加工による強度上昇により UFG 材の強度は、例えば銅については降伏応力が約 400 MPa となり、これは結晶粒径が 10 μm 程の粗大結晶粒を持つ焼鈍された多結晶粒材の値と比較して 4 倍程度となる⁴⁾。このように結晶粒が小さいほど、試料は高い強度を示す。

ECAP 加工は、加工前後で断面形状が一定のため、試料を破壊することなく繰り返し加工を行うことができる。しかし無限に加工を繰り返すことで結晶粒を際限なく微細化することはできず、純銅においては平均結晶粒径が約 0.2 μm から小さくならないとの報告がある⁴⁻⁶⁾。これまでに UFG 材の組織変化過程を解明するために、ナノスケールの結晶粒をもつ試

料に変形を加えると変形量の大きいせん断帯が発生しやすいことを利用し⁷⁾、せん断帯に対してその場 TEM 観察を行うことで大変形前後での組織観察が行われた⁸⁾。また引張試験片に 2 つの穴を空けることにより変形を集中させ、引張試験前後で TEM 観察を行うことで、室温下において、変形に伴い大角粒界で囲まれた結晶粒の粗大化を確認した報告もあるが⁹⁾、いずれも観察領域が数 μm 四方程度であることや、試料が薄膜の状態であることから組織変化全体の解明には至らず、微細化限界が存在する原因も完全には明らかになっていない。

本研究では純 Cu の UFG 材に室温で大きな塑性変形を加え、数十 μm 四方での同一領域における組織変化過程の観察を行うことで、UFG 材の組織変化過程の解明を試みる。観察方法として高い分解能でより広い領域の結晶方位についてバルク材でも測定可能な SEM/EBSD 法を用いることで、試験片形状のまま試験片表面の数百個の結晶粒のそれぞれの形状と方位を測定する。UFG 材の場合、通常のドックボーン型の試験片を用いた引張試験ではくびれが狭い領域に集中し早期に破断してしまうので¹⁰⁾、特殊形状の試験片を用いた引張せん断試験を行う。これは局所的なせん断変形を起こすことで、くびれの発生を抑制して大きな塑性変形を実現することが目的である。このようにせん断帯について、変形前後での同一領域 SEM/EBSD 観察を行うことで、巨大ひずみ加工の微細化限界と関連する興味深い実験結果が得られたので、その詳細を以下に記す。

* 東京工業大学大学院生 (Graduate Student, Tokyo Institute of Technology)

2. 実験方法

2.1 試験片作製

供試材として純度 99.99 mass% の銅を使用した。試料の初期形状は直径 10 mm で長さが 60 mm の棒状試料を用いた。この試料に対して硝酸溶液中で酸洗いをを行い表面の汚れを除去し、その後 873 K で 3.6 ks で焼鈍し再結晶組織を得た。その後 ECAP 加工を Route B_c で 8 回繰り返すことで 1 μm 以下の結晶粒を含む UFG 材を作製した。この棒状試料からドックボーン型の引張試験片をゲージ部分の長さと幅がそれぞれ 10 mm と 4 mm に、厚さが 0.7 mm となるように放電加工機で切り出した。ECAP 法により繰り返し加工された試料は引張試験を行った際に、ECAP 加工の最終せん断方向に沿ってせん断帯が発生しやすいとの報告¹¹⁾から、ドックボーン型試験片に切り欠きを加工することで変形が集中する領域を制御し、切り欠きに沿ったせん断帯を発生させることを目的として Fig. 1(a) に示すように試験片を加工した。また Fig. 1(a) で加工した切り欠き部分の拡大図を Fig. 1(b) に示す。

せん断帯内外での変形量を定量的に比較すること、加えて同一領域での観察の基準とする目的で、集束イオンビーム (Focused Ion Beam: FIB) (JEOL JIB-4500) を用いて正方形形状の格子を作製した。加工条件はビーム径を約 100 nm、ドーズ量を 0.5 nC/μm² とした。正方形格子形状については Fig. 1(c) に、試験片への加工位置については Fig. 1(a) に示す。Fig. 1(c) に示す A ~ D の 4 つの格子を用いて、それぞれの領域での組織観察と変形量の測定を行った。変形量については格子の右下の交点を原点として、他の 3 つの交点の座標を求め、変形に伴うそれらの座標の変化から求めた。

2.2 引張せん断試験

引張試験は引張圧縮試験機 (ミネベア株式会社 NMB TG-

50kN) で行った。試験条件はクロスヘッド移動速度を 0.5 mm/min (初期ひずみ速度: $8.3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$)、大気雰囲気下、室温とした。後にその詳細を記すように、Fig. 1(a) に示す試験片については、引張試験に伴い切り欠き部に沿った局所的なせん断変形が起きることで、せん断帯が発生した。

切り欠き付き試験片を用いた引張試験では、切り欠き部の存在から実際の断面積と異なるため、通常の公称応力-公称ひずみ曲線を作成できない。本研究では変形段階を区分する必要性から、見かけの応力 σ_{ap} と試験片全体の変形量 y を定義することで、見かけの応力-試験片全体の変形量曲線を作成した。見かけの応力 σ_{ap} については引張変形時の荷重 F 、切り欠き部を無視した試験片初期断面積 S を用いて下記の式で定義する。

$$\sigma_{ap} = F / S \quad (1)$$

試験片全体の変形量 y については、引張試験時のクロスヘッド変位を u_c 、変形前のゲージ長さを l_0 として下記の式で定義する。

$$y = u_c / l_0 \quad (2)$$

縦軸に見かけの応力 σ_{ap} 、横軸に試験片全体の変形量 y とした見かけの応力-変形量曲線を Fig. 2 に示す。Fig. 2 に示すように各変形段階での試料表面の組織を観察するため、 $y = 0.05, 0.07, 0.09$ で除荷を行った。

2.3 結晶粒の方位観察

変形前および引張せん断試験での各除荷段階において、FIB によって加工した正方形格子部分の組織を走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope: SEM) (JSM-7001F) を用いて観察を行った。観察面の結晶粒の方位測定は電子線後方散乱回析 (Electron Back Scatter Diffraction: EBSD) 法により行い、EBSD 測定のステップ間隔は 0.05 μm とした。

3. 結果および考察

3.1 2次電子像からの変形量の測定

3.1.1 変形の定量化

切り欠き付き試験片の表面に、FIB を用いて作製した格子

Fig. 1 (a) A schematic illustration showing the shape and size of a specimen with notches. A coordinate system for ECAP is also shown in (a). Two small black squares in (a) show areas processed by FIB. (b) Enlarged view of the notch. (c) The shape and size of lattices on the surface of the specimen scribed by FIB.

Fig. 2 Results of tensile-shear tests for a notched specimen showing the relationship between the apparent stress σ_{ap} and the amount of deformation y . The microstructural observation was made after unloading at $y = 0.05, 0.07$ and 0.09 .

領域を SEM により観察し、引張せん断試験前後での形状の変化から定量的な変形量を求めた。Fig. 3(a) と (b) はせん断帯に加工した格子の、変形前と $y=0.07$ で除荷した際の 2 次電子像である。このような正形状格子の変形から、格子内での変形が均一であると仮定し変位勾配 u_{ij} を求めた。その後、切り欠き付き試験片の 45° の切り欠きに沿った単純せん断変形の有無について調べるため、Fig. 3(c) に示すように反時計回りに $\theta = 0 \sim 90^\circ$ の座標変換を行った。Fig. 3(d) に $y=0.09$ で除荷した際に座標変換を行うことで得られた格子全体の変位勾配 u'_{ij} を示す。Fig. 3(d) に示すように、 θ の変化に伴う $u'_{1,1}$, $u'_{1,2}$, $u'_{2,1}$, $u'_{2,2}$ の 4 つの成分の比較を行ったところ、 $u'_{1,2}$ が $\theta = 40^\circ \sim 50^\circ$ で座標変換した際に最大となった。また、Table 1 に $\theta = 45^\circ$ として座標変換したときのそれぞれの変形段階での各成分の値を示す。Table 1 から $u'_{1,2}$ の値は他の成分と比較していずれの変形段階でも 10 倍の大きさとなっている。これらの結果から切り欠き付き試験片の引張せん断試験において、切り欠き部に発生したせん断帯は、 45° の切り欠きに沿った単純せん断変形によることが分かった。そこで $\theta = 45^\circ$ として座標変換したときの各成分の値を u'_{ij} とした。このとき $u'_{1,1}$, $u'_{1,2}$, $u'_{2,2}$ については $u'_{1,2}$ と比較して非常に小さいことから、 $u'_{1,2}$ のみを変形量として扱う。すなわちせん断量 γ_g を

$$\gamma_g = u'_{1,2} \quad (3)$$

と定義する。

3.1.2 せん断帯内外での変形量の比較

切り欠き付き試験片の引張せん断試験によってできたせん断帯と、それ以外のゲージ部分の変形量を、せん断量 γ_g を用いて比較した結果を Fig. 4 に示す。Fig. 4 が示すように $y = 0.05, 0.07, 0.09$ のときせん断帯ではそれぞれ $\gamma_g = 0.12, 0.39, 0.67$ 、せん断帯以外のゲージ部分では $\gamma_g = 0.02, 0.03, 0.05$ となった。このように、せん断帯ではせん断帯以外のゲージ部分と比較して約 10 倍の変形が起きていることが分かった。

これらの結果は、切り欠き付き試験片を用いた引張せん断試験を行うことによって、切り欠き部に発生したせん断帯を利用することで、通常の引張試験では達成できないような大変形を達成し、そのような変形前後での同一領域観察の成功を示す。

3.2 同一領域内での組織変化

3.2.1 平均結晶粒の変化

変形前後における同一領域での組織変化を調べるため、変形前と $y = 0.05, 0.07, 0.09$ での除荷後における格子領域について EBSD 法による表面組織観察を行った。Fig. 5(a) ~ (c) に各変形段階での格子領域について EBSD 法による測定の結果から得られた逆極点図マップを示す。また Fig. 5 には隣接測定点が $2^\circ \sim 15^\circ$ 未満の場合を小角粒界 (low-angle grain boundary: LAGB) として赤線で、 15° 以上の場合を大角粒界 (high-angle grain boundary: HAGB) として緑線でそれぞれの粒界を逆極点図マップと併せて表現し、FIB により作製した格子の溝については黒線で表現した。Fig. 5(a) の変形前と Fig. 5(b), (c) の変形後と比較すると、変形に伴い結晶粒が大きく変化しているのが観察できる。

結晶粒の大きさの変化について定量的に調べるため、Fig. 5 を基に、同一領域での変形に伴う平均結晶粒径 d_{ave} の変化を測定した。格子内の個々の結晶粒径 d を測定する際に、大角粒界のみに囲まれた領域を結晶粒と定義し結晶粒径 d_H を求める場合と、大角粒界もしくは小角粒界に囲まれた領域を結晶粒と定義し結晶粒径 d_L を求める 2 通りに分類した。平均結晶粒径については d_H から求めた d_{H-ave} と d_L から求めた d_{L-ave} についてそれぞれ調べた。測定領域については全ての格子 ABCD と、EBSD 法による測定を信頼性指数 (confidence

Fig. 3 SEM images of the lattices in the shear bands on the specimens (a) as ECAP and (b) after unloading at $y=0.07$. The components of the displacement gradient tensor u_{ij} were evaluated from the shape changes of the lattices for the coordinate systems with various values of θ shown in (c). (d) shows the amounts of u_{ij} as a function of θ at $y=0.09$.

Table 1 The values of the components of displacement gradient tensor as a function of the amount of deformation y for $\theta = 45^\circ$

	$y = 0.05$	$y = 0.07$	$y = 0.09$
$u'_{1,1}$	0.02	0.04	0.07
$u'_{1,2}$	0.13	0.4	0.67
$u'_{2,1}$	0.00	0.01	0.02
$u'_{2,2}$	0.01	0.01	0.02

Fig. 4 A comparison of shear amount γ_g between inside and outside of shear band.

Fig. 5 Inverse pole figure (IPF) maps showing crystal orientations, high-angle and low-angle grain boundaries (HAGB and LAGB) at the lattices scribed on the surface of the specimen for (a) $\gamma_g = 0$, (b) $\gamma_g = 0.12$, (c) $\gamma_g = 0.39$. The coordinate system of ECAP and the color code for IPF maps are also shown.

Table 2 The average grain sizes as a function of the amount of deformation γ calculated for lattices ABCD and D.

	Average grain size [μm]			
	lattice ABCD		lattice D	
	$d_{H\text{-ave}}$	$d_{L\text{-ave}}$	$d_{H\text{-ave}}$	$d_{L\text{-ave}}$
$\gamma = 0$	0.60	0.48	0.63	0.50
$\gamma = 0.05$	0.61	0.46	0.67	0.46
$\gamma = 0.07$	0.56	0.43	0.59	0.46
$\gamma = 0.09$	0.52	0.43	0.60	0.48

index: CI)で評価した精度が最も高い格子Dに対して行った。それぞれの領域での $d_{H\text{-ave}}$ と $d_{L\text{-ave}}$ の変化について Table 2 に示す。Table 2 から格子ABCDの領域における $d_{L\text{-ave}}$ のみ単調に小さくなったがその他は単調に小さくならず、平均結晶粒径が大きくなる変形段階が確認できた。 $d_{H\text{-ave}}$ と $d_{L\text{-ave}}$ のどちらも大きくなる変形段階が確認できたことから、粒界の方位差に関わらず、変形に伴い結晶粒が微細化のみならず粗大化することが示された。

3.2.2 粒径分布の変化

UFG材に大変形を加えた際に、同一領域での平均結晶粒径が大きくなる結果が得られたことは、変形に伴う結晶粒の粗大化の可能性を示す。そこで変形に伴う結晶粒の変化についてより詳細に調べるために、同一領域内でのそれぞれの変形段階における結晶粒の大きさとその個数について測定した。Fig. 6に格子ABCDにおける変形前後 ($\gamma_g = 0, 0.67$)での結晶粒の個数を d_H と d_L を用いて示す。Fig. 6(a)から d_H で分類された結晶粒数の変化については $0.1 \sim 0.2 \mu\text{m}$ と約 $1.0 \mu\text{m}$ の結晶粒数が変形に伴い増加していることが分かる。一方で、Fig. 6(b)から d_L で分類された場合については、約 $1.0 \mu\text{m}$ の結晶粒については減少し $0.3 \sim 0.5 \mu\text{m}$ の結晶粒数は変形に伴い増

Fig. 6 Examples of the variation of number of grains in lattice ABCD as a function of the grain size at (a) d_H and (b) d_L .

加したことから、変形に伴う結晶粒の微細化が示された。しかし $0.1 \sim 0.3 \mu\text{m}$ の結晶粒数については変形に伴い減少した。変形に伴い結晶粒が微細化するのみであれば、小さい結晶粒数のみが単調に増加すると予想できるが、Fig. 6の結果はいずれもそれとは異なる結果となった。前項で述べた平均結晶粒径の変化と併せて、UFG材の変形に伴う組織変化として粗大化が起きたことを示す結果を得た。

3.3 個々の結晶粒の変化

3.3.1 結晶粒の微細化

大変形下での同一領域観察によって確認できた平均結晶粒径と数密度の変化から、ECAP加工によって作製されたUFG材の組織は、更なる塑性変形により結晶粒が単純に微細化するのみならず、粗大化についても起きていることが示された。そこで本節では微細化と粗大化について詳細に調べるために、変形前後の同一の結晶粒もしくは結晶粒群の比較について述べる。ここでは大角粒界もしくは小角粒界に囲まれた領域を結晶粒と定義し議論する。

Fig. 5に示した逆極点図マップから、変形前後での個々の結晶粒を形状や方位、周囲の結晶粒の位置関係から判別し、その変形について観察した。その中でFig. 7に変形に伴い微細化した結晶粒の例を示す。微細化前の結晶粒を結晶粒“a”、結晶粒“a”の微細化後については2つの結晶粒を結晶粒“b-c”と呼称する。Fig. 7(a)に変形前の結晶粒“a”を、Fig. 7(b)に $\gamma_g = 0.39$ での結晶粒“b-c”の逆極点図と結晶粒界の形状をそれぞれ示す。また結晶粒の内部方位差について調べるために、変形前後での測定位置が可能な限り同一となるように、粒界三重点近傍の測定点を基準とし、その測定点間について方位差のラインスキャンを行った。結晶粒“a”と結晶粒“b-c”についてのラインスキャン結果をそれぞれFig. 7(c), (d)に示す。具体的な測定位置についてはFig. 7(a), (b)内に示す黒線部分である。ラインスキャンとして隣接測定間の方位差測定と、Fig. 7(a), (b)内に示す黒線部分の左端の測定点を原点とした各測定点との方位差測定の2通りを行った。ここで隣接測定間の方位差測定については結晶粒界の有無を、各測定点との方位差測定については結晶粒内部の全体の方位差を示している。

Fig. 7(a), (b)から、変形に伴いFig. 7(b)の矢印が示す位置で新たな小角粒界が形成され、結晶粒“a”が結晶粒“b-c”に

Fig. 7 Changes of IPF maps for the same region (a) before deformation ($\gamma_g = 0$) and (b) after deformation ($\gamma_g = 0.39$). The misorientation inside (c) the grain "a" at $\gamma_g = 0$ and (d) the grains "b-c" at $\gamma_g = 0.39$ were measured by line scanning of the black lines in the inverse pole figure maps.

微細化する様子が観察できた。ここで結晶粒 "a" については Fig. 7(c) から、結晶粒全体の方位差については 3° 程度であり隣接測定間の方位差についても全て 1° 未満との測定結果であるので、結晶粒内部の方位差も小さく、かつ粒界も存在しないことが分かる。一方で結晶粒 "b-c" については Fig. 7(d) から、全体の方位差は 17.2° となり、結晶粒 "a" と比較して方位差は広がる結果となった。また Fig. 7(d) の矢印が示す位置に 14.0° の局所的な方位差が存在しており、これは Fig. 7(b) の矢印で示した小角粒界の方位差そのものであることから、比較的大きな方位差を伴い結晶粒 "a" が結晶粒 "b-c" に微細化したことが分かった。

Fig. 7(a) ~ (d) が示す結晶粒の微細化は grain subdivision によるものである¹²⁻¹⁴⁾。本研究で観察した範囲内で比較的大きな粒径である $d > 0.5 \mu\text{m}$ の結晶粒について同様の現象により微細化される様子が観察できたが、 $d < 0.5 \mu\text{m}$ の結晶粒では観察できなかった。この組織変化の結晶粒径依存性については 3.2.2 で述べた結晶粒数の変化と次のような関係がある。

- $d > 0.5 \mu\text{m}$ の結晶粒は変形に伴い grain subdivision によって微細化され粒径が小さくなり、結果として Fig. 6(b) において約 $1.0 \mu\text{m}$ の結晶粒数が減少し、 $0.3 \sim 0.5 \mu\text{m}$ の結晶粒数が増加した。
- $d < 0.5 \mu\text{m}$ の結晶粒は内部に複数の転位源を持たないため、粒内の方位差が発生しにくく grain subdivision によって微細化されない¹⁵⁾。これにより比較的大きな $d > 0.5 \mu\text{m}$ の結晶粒が微細化されることで $0.3 \sim 0.5 \mu\text{m}$ の結晶粒数が増加した。

3.3.2 小角粒界の組織変化による結晶粒粗大化

前節と同様に大角粒界もしくは小角粒界に囲まれた領域を結晶粒と扱うとき、2つの結晶粒を隔てる小角粒界が、変形に伴い消失し結晶粒径が粗大化する過程を観察した。Fig. 5 の逆極点図マップ内において、結晶粒が粗大化する様子の一例を Fig. 7 と同様の手順で観察を行い、その結果を Fig. 8 に示す。粗大化前の2つの結晶粒を結晶粒 "d-e"、粗大化後の結

Fig. 8 Changes of IPF maps for the same region before and after deformation: (a) $\gamma_g = 0$; (b) $\gamma_g = 0.39$; (c) $\gamma_g = 0.67$. The misorientation inside the grains "d-e" at (d) $\gamma_g = 0$ and the grain "d" at (e) $\gamma_g = 0.39$ and (f) $\gamma_g = 0.67$ were measured by line scanning of the black lines in the inverse pole figure maps.

晶粒は結晶粒 "d" が粗大化したものとしてそれぞれ呼称する。Fig. 8(a) ~ (c) の逆極点図マップの比較から、変形前に存在していた Fig. 8(a) の矢印で示す箇所の小角粒界が、Fig. 8(b) では消滅していることが観察でき、結晶粒 "d-e" が結晶粒 "d" に粗大化する様子が確認できた。

Fig. 8(d) ~ (f) の方位差のラインスキャン結果を基に、結晶粒の粗大化に伴う内部方位の変化について調べた。Fig. 8(d) では矢印で示す位置に、隣接測定間で 5.5° の局所的な方位差が確認できた。これは Fig. 8(a) の矢印で示す位置の小角粒界の方位差そのものである。Fig. 8(e) では、変形が加えられることで隣接測定間の方位差はいずれも 2° 未満となり局所的な方位差が確認できなくなった。これは Fig. 8(b) で示された小角粒界の消失と対応する。一方で結晶粒全体の内部方位差の変化については、Fig. 8(d) では 8.5° であったが Fig. 8(e) では 16.9° となり、変形に伴い方位差が拡大した。

さらに大きな変形となった Fig. 8(c), (f) からは、変形前とは異なる位置での小角粒界の再形成の兆候が確認できた。Fig. 8(c) の○のシンボルで囲んだ位置に小角粒界が生じ始め、Fig. 8(f) からは隣接測定間で $1.5 \sim 1.8^\circ$ の方位差が複数の測定間で確認できる。一方で、結晶粒内部の方位差は 13.0° となり、Fig. 8(e) と比較して方位差が小さくなる結果となったが、結晶粒を構成する測定点全てと基準測定点の方位差を測定するエリアスキャンを行ったところ、結晶粒全体の内部方位差は最大で 18.0° となり結晶粒 "d-e" ($\gamma_g = 0.39$, 0.67 では結晶粒 "d") の全体の内部方位差は変形に伴い大きくなっていることが示された。Fig. 8(f) で結晶粒全体の内部方位差が小さくなった理由として、変形が進むことで形状が大きく変化し、粒界三

Fig. 9 Schematic illustrations of the process of grain coarsening shown in Fig. 8. (a) By emitting dislocation from the subgrain boundary by deformation, the grains “d-e” coarse to (b) the grain “d” due to the annihilation of the subgrain boundary. (c) and (d) show the relationship between the misorientation angle and the distance across the grain for the grains shown in (a) and (b), respectively. Schematic representation of dislocation distribution in grains is also given in (c) and (d).

重点を基準とした測定方法では位置の誤差が大きくなったことが挙げられる。

結晶粒 “d-e” から結晶粒 “d” への変形に伴う粗大化過程について、Fig. 9(a), (b) に結晶粒の模式図を、Fig. 9(c), (d) にラインスキャンの模式図を用いて示す。完全転位が結晶粒を横切り通り過ぎることによって起きる塑性変形自体は結晶粒の方位変化を伴わないことから、結晶粒内の方位変化は変形過程で結晶粒内に残った転位の配列の変化または密度変化によるものであると言える。このことから結晶粒内部の方位差を転位密度そのものとし、転位の分布を Fig. 9(c), (d) のラインスキャン結果と併せて模式的に示し、結晶粒の粗大化過程を以下の (1), (2) のように考察した。

- (1) Fig. 9(a), (c) において当初から存在している小角粒界は ECAP 加工の過程で形成された転位セルである。この転位セルがせん断変形を受けることで、それを構成する GN 転位が分散し、結果として小角粒界が消失した。
- (2) せん断変形により GN 転位が分散した結果、Fig. 9(d) に示すように結晶粒全体の転位密度が上昇した。この結果として Fig. 9(b) が示すように、小角粒界が消失し、結晶粒 “d-e” は、結晶粒 “d” に粗大化した。

上記の (1) と (2) で考察した粗大化過程は、Table 2 で示した d_{L-ave} が変形に伴い大きくなる現象の原因の一つだと考えられる。一方で大角粒界のみで囲まれた領域を結晶粒と定義する場合、Table 2 に示した d_{H-ave} が変形に伴い大きくなる現象については今節で述べた小角粒界の消失では説明できない。

次節では大角粒界に囲まれた結晶粒の粗大化について議論する。

3.4 大角粒界の組織変化による結晶粒粗大化

大角粒界のみで囲まれた領域を結晶粒と定義する場合について、Table 2 で示された d_{H-ave} が変形に伴い大きくなる変形段階が存在することや、Fig. 6(a) で約 $1.0 \mu\text{m}$ の結晶粒数が増加し、それよりも小さい結晶粒数が単調に増加しないことから、変形に伴い結晶粒が粗大化する場合があることが示されている。結晶粒径が粗大な場合と異なり、結晶粒がナノスケールの領域では、大角粒界は室温においても変形にともないその構造を変化させることが過去の研究で報告されている^{16,17)}。大角粒界の室温下での変形に伴う粒界移動についてはせん断応力との関連も示されており⁹⁾、本研究で観察された d_{H-ave} の変形に伴う粗大化や、Fig. 6(a) で示された結晶粒数の変化は、大きなせん断変形が加わったことにより大角粒界が移動し、結晶粒が粗大化したものと考えられる。今回の観察範囲内では各変形段階での組織変化が大きく、個々の結晶粒の比較により大角粒界の移動による結晶粒粗大化の現象を確実に示すケースは確認できなかった。

変形に伴う大角粒界の組織変化と小角粒界の組織変化はそのプロセスが異なるが、どちらも結果として結晶粒粗大化の原因となり、これらの現象が巨大ひずみ加工による微細化限界の要因であることが本研究により示された。

4. 結 言

ECAP 加工を 8 回行い作成された Cu の UFG 材から、切り欠き付き試験片を作製し、切り欠きによる局所変形が予想される領域に、FIB でミクロンスケールの格子を加工した。この試験片を用いて引張せん断試験を行い、変形前後での同一領域での組織観察により以下の知見を得た。

(1) 切り欠き付き試験片を用いることで、切り欠き部分に沿ったせん断帯を発生させることができた。FIB で加工した格子を用いてせん断帯内外のせん断量を比較したところ、せん断帯ではせん断帯外に比べ 10 倍のせん断量であることが分かった。切り欠き付き試験片を用いた引張せん断試験を行うことで、従来の引張試験では達成できなかった UFG 材の大変形下での SEM/EBSD 観察が可能となった。

(2) 変形前後の同一領域における d_{H-ave} と d_{L-ave} について、それぞれ大きくなる変形段階が観察された。また領域全体の結晶粒数についても、変形に伴い小さな結晶粒数は単調に増加しなかった。これらの観察結果は、UFG 材は結晶粒界の特性に関わらず、変形に伴う結晶粒の微細化のみならず粗大化についても起きることを示す結果である。

(3) 変形前後の個々の結晶粒を調べた結果、結晶粒が grain subdivision によって微細化される様子と、小角粒界を構成する転位セルの消失により粗大化する様子が観察できた。大角粒界で囲まれた結晶粒についても粗大化が示されていることから、結晶粒界の特性に関わらず、微細な結晶粒は室温において変形に伴い粗大化し、この粗大化現象が巨大ひずみ加工での結晶粒微細化限界の原因であると言える。

本研究は JSPS 科研費 JP16K06703 の助成を受けて実施したことを記し、謝意を表します。

文 献

- 1) Y. Saito, N. Tsuji, H. Utsunomiya, T. Sakai and R. G. Hong: *Scr. Mater.* **39**(1998) 1221-1227.
- 2) R. Z. Valiev, F. Chmelik, F. Bordeaux, G. Kapelski and B. Baudelet: *Scr. Metall. Mater.* **27**(1992) 855-860.
- 3) R. Z. Valiev, R. K. Islamgaliev and I. V. Alexandrov: *Prog. Mater. Sci.* **45**(2000) 103-189.
- 4) F. D. Torre, R. Lapovok, J. Sandlin, P. F. Thomson, C. H. J. Davies and E. V. Pereloma: *Acta Mater.* **52**(2004) 4819-4832.
- 5) C. X. Huang, H. J. Yang, S. D. Wu and Z. F. Zhang: *Mater. Sci. Forum* **584-586**(2008) 333-337.
- 6) A. Mishra, B. K. Kad, F. Gregori and M. A. Meyers: *Acta Mater.* **55**(2007) 13-28.
- 7) J. E. Carsley, A. Fisher, W. W. Milligan and E. C. Aifantis: *Metall. Mater. Trans. A* **29**(1998) 2261-2271.
- 8) R. Zhu, J. Zhou, H. Jiang and D. Zhang: *Mech. Mater.* **51**(2012) 29-42.
- 9) T. J. Rupert, D. S. Gianola, Y. Gan and K. J. Hemker: *Science* **326**(2009) 1686-1690.
- 10) S. Cheng, J. A. Spencer and W. W. Milligan: *Acta Mater.* **51**(2003) 4505-4518.
- 11) A. V. Panin, A. A. Panina and Y. F. Ivanov: *Mater. Sci. Eng. A* **486**(2008) 267-272.
- 12) D. A. Hughes, N. Hansen and D. J. Bammann: *Scr. Mater.* **48**(2003) 147-153.
- 13) N. Hansen and D. J. Jensen: *Philos. Trans. R. Soc. London Ser. A* **357**(1999) 1447-1469.
- 14) N. Hansen, R. F. Mehl and A. Medalist: *Metall. Mater. Trans. A* **32**(2001) 2917-2935.
- 15) T. Ohashi, M. Kawamukai and H. Zbib: *International Journal of Plasticity* **23**(2007) 897-914.
- 16) M. Jin, A. M. Minor and J. W. Morris Jr.: *Thin Solid Films* **515**(2007) 3202-3207.
- 17) M. Velasco, H. V. Swygenhoven and C. Brandl: *Scr. Mater.* **65**(2011) 151-154.