銅単結晶の高温クリープ変形による 下部組織の3次元観察*

長谷川 正** 佐藤 洋*** 辛島 誠一**

Tadashi Hasegawa, Hiroshi Sato and Seiichi Karashima : Three-Dimensional Observation of the Substructure Developed during Creep Deformation of Copper Single Crystals. Structural changes in copper single crystals during high temperature creep deformation were investigated. Creep tests were performed in argon atmosphere at $745^{\circ}\text{C}=0.75 T_m$ and $880^{\circ}\text{C}=0.85 T_m$ (T_m : the melting temperature in Kelvin). After creep deformation, various observation surfaces were prepared by cutting the deformed crystals parallel to (1) the primary slip plane (111), (2) the $(\bar{1}01)$ plane on which deformation bands due to the primary slip are formed, and (3) the $(\bar{1}\bar{2}1)$ plane normal to the lattice rotation axis in the deformation band. Substructures were examined by means of the Berg-Barrett method using micro-focused Cu-K α radiation.

The results obtained are as follows: In the transient creep region, pillar-like subgrains elongating in the direction of $[\bar{1}\bar{2}1]$ have been observed. They are surrounded by sub-boundaries parallel to (111) and to $(\bar{1}01)$, which are twist and tilt boundaries, respectively. Spacings between the sub-boundaries were about $50\sim 100\mu$ at 880°C and $30\sim 50\mu$ at 745°C , and remained almost constant throughout the steady-state creep region. In the examination on the (111) plane, the crystal-lattice twisting about the $[\bar{1}\bar{2}1]$ axis was found with a period of about 10μ . The increase of the twisting was the most remarkable structural change during creep deformation.

In specimens crept for more than 50 hr at 880°C , very large subgrains ($300\sim 500\mu$) having small lattice misorientation were observed in some places. They may correspond to the regions where dynamical recovery occurred more conspicuously than their neighbourhood. This fact suggests that the high temperature creep is a heterogeneous process.

(Received July 10, 1968)

I. 緒 言

著者らは金属の高温変形機構を解明するための基礎資料を得る目的で、金属の高温クリープ変形に伴う組織変化を系統的に調べる一連の研究を行なっている。前報では、銅⁽¹⁾およびアルミニウム⁽²⁾の高温クリープ時における下部組織の形成を、主としてX線的に調べた結果について報告した。その結果を要約するとつぎのとおりである。単一方向系のはたらく方位の銅結晶では、瞬間伸び直後において変形帯方向に長く伸びたサブグレインが形成される。そして、その後の変形でこれがさらに方向に平行なサブバウンダリーで切れられ、四辺形状のサブグレインが認められた。一方、銅より積層欠陥エネルギーの大きなアルミニウムでも、変形初期においてはこのような四辺形状のサブグレインが認められた。しかし、そのようなサブバウンダリーはその後の変形においてきわめて動きやすく、定常クリープ領域においては、きわめて大きな多角形状の一層明瞭なサブグレインに発達した。

ところで、最近においても、電子顕微鏡透過観察⁽³⁾⁽⁴⁾⁽⁷⁾、腐食法⁽⁵⁾⁽⁶⁾⁽⁹⁾、X線法⁽³⁾⁽⁷⁾⁽⁸⁾などによつて、クリープ変形後の転位配列を調べたり、サブグレインの大きさや、その間の方位差などに注目した実験が行なわれている。しかしながら、Struttらの実験⁽⁹⁾を除けば、著者らの実験⁽¹⁾⁽²⁾をも含めて、これらの観察はいずれも試料表面に平行な薄膜、ないしは、試料表面においてのみ行なわれたものであり、下部組織形成の結晶方位学的な関係——たとえば、サブバウンダリーが形成される格子面、サブバウンダリーでの結晶回転軸など——についてはほとんど明らかにされていないのが現状である。

本研究の目的は、純銅の単結晶を用いて下部組織の形成を結晶方位学的に確かめること、および、従来の研究のような試料表面における一面観察のみではなく、変形した試

** 東北大学工学部金属材料工学科 (Department of Materials Science, Faculty of Engineering, Tohoku University, Sendai)

*** 東北大学大学院 (Graduate Student, Tohoku University, Sendai)

* 1967年4月本会東京大会に発表

(1) 辛島, 及川, 長谷川: 本誌, 31(1967), 782.

(2) 辛島, 長谷川, 横田: 本誌, 32(1968), 218.

(3) F. Garofalo, L. Zwell, A. S. Keh and S. Weissmann: Acta Met., 9(1961), 721.

(4) F. H.ammad and W. D. Nix: Trans. ASM, 59(1965), 94.

(5) J. L. Lytton, C. R. Barrett and O. D. Sherby: Trans. AIME, 233(1965), 1399.

(6) C. R. Barrett, W. D. Nix and O. D. Sherby: Trans. ASM, 59(1966), 3.

(7) G. J. Richardson, C. M. Sellars and M. J. McG. Tegart: Acta Met., 14(1966), 1225.

(8) 平, 中西, 川辺: 材料, 14(1965), 1007.

(9) V. P. Gupta and P. R. Strutt: Can. J. Phys., 45(1967), 1213.

(10) C. R. Barrett: Acta Met., 13(1965), 1088.

料から種々の格子面に平行な観察面を切り出して、それらの面上で組織を調べ、下部組織の形成を3次的に検討しようとするものである。

II. 試料ならびに実験方法

本研究に使用した素材は、電解銅(公称純度: 99.9%)を真空溶解後、鍛造圧延した厚さ5 mmの板である。これから、断面5 mm×12 mm、長さ200 mmの角材を切り出し、単結晶作製用素材とした。これを高純度黒鉛鋳型(0.015% 灰分)中に埋め込み、アルゴン雰囲気中で種つけ Bridgman 法によつて単結晶とした。このようにして得た単結晶を電解研摩的に成形し、Fig.1 に示すような試料を得た。左右

Fig.1 Dimension (in mm) of the test piece and the crystal orientation. The gauge part was shaped by electropolishing and holes for specimen holder were made by etching before creep test

の孔はクリープ試験機への取り付け用のもので、腐食法であけた。実験に用いた試料は、すべて Fig.1 に示すように単一方向がはたらきやすい方位のものである。また、1次方向面が試料表面に垂直で試料軸と45°をなし、1次方向面が試料表面に平行になっている。クリープ試験はアルゴン雰囲気中で、一定荷重をかけて行なつた。試験温度は745°Cおよび880°Cの2種類であり、これらはそれぞれ0.75 T_m , 0.85 T_m (T_m は融点の絶対温度)に相当する。荷重は定常クリープ速度が0.03%/hr程度になるように選定したが、1次方向面上の最初のせん断応力は745°Cでは180 g/mm², 880°Cでは80 g/mm²であつた。クリープ試験終了後はただちに炉をはずし、反応管を送風機で吹いて急冷した。高温域での冷却速度は約30°C/min程度であつた。

種々の変形量を与えたクリープ変形試料から無ひずみ切断器を用いて、1次方向面(111), および、1次変形帯形成面(101)に平行な観察面を切り出した。切断した試料の一例をPhoto.1に示す。

Photo.1 Macro-photograph of specimen cut electro-chemically

下部組織の観察にはBerg-Barrett法を用いた。この方法についてはすでに前報⁽¹⁾で詳述したが、本実験においては分解能を向上させるためにつぎのような点に注意した。すなわち、微小焦点のX線源(焦点の大きさ: 40 μ ×80 μ)を用い、ターゲットと試料とは出来るだけ離し(約600 mm)、試料と乾板とは出来るだけ近づけた(4~6 mm)。観察したのは、1次方向面(111), 1次変形帯形成面(101), および、変形帯形成の結晶回転軸に垂直な面(121)に平行な3種の観察面で、回折にはそれぞれ(111), (202), および(131)[†]反射を使用した。ところで、本法ではFig.2に示す入射X線

Fig.2 Two axes of specimen rotation in Berg-Barrett method

に垂直な α 軸まわりの格子回転の検出感度が最も高い。したがつて、必要に応じて試料を δ 軸まわりに回転して、組織観察を行なつた。

III. 実験結果

745°Cで得られたクリープ曲線の一部をFig.3に示す^{††}。クリープ曲線上の各点に相当するところまで変形した試料

Fig.3 Creep curve for the specimen crept at 745°C. Several specimens were crept up to each point indicated on the curve to observe substructure formation

について組織観察を行なつた。なお、880°Cの場合には、745°Cの場合にくらべて瞬間伸びが小さくなつてゐること以外は、両者のクリープ曲線にはほとんど違いは認められなかつた。以下、各観察面ごとにその組織学的特徴を述

[†] (131)面と(121)面とはともに[101]晶帯に属し、前者は後者に対して[101]軸のまわりに約10°傾いている。

^{††} 瞬間伸びの量、および、せん断段階での曲線の形がわずかに異なつてゐる点を除けば、各試料ともほぼ同様のクリープ曲線を示した。

べる。

1. $(1\bar{2}1)$ 面 観 察

880°C でクリープ変形したときの $(1\bar{2}1)$ 面の組織変化およびステレオ投影を用いて表わした観察面における方位関

Photo.2 Substructures on $(1\bar{2}1)$ plane obtained by $(1\bar{3}1)$ reflection in the specimen crept at 880°C for (a) 20 min ($\epsilon=2.1\%$), (b) 10 hr ($\epsilon=3.7\%$), and (c) 50 hr ($\epsilon=5.0\%$). Orientation relationship on the observation surface is shown by stereographic projection. In the figure, 111, $\bar{1}01$ and $1\bar{2}1$ represent the directions of normal to the primary slip plane, the primary slip direction, and the lattice rotation axis in deformation band, respectively

係を Photo.2 に示す。写真において、X線の入射方向は上から下への方向であり、これは以下の組織写真ですべて同様である。また、以下の説明で用いる“トレース”ということばは、結晶内部の格子面と試料表面との交線のことである。写真において白く現われている部分は、ちょうど Bragg 条件を満足している結晶領域であり、Bragg 条件からはずれるにしたがって像はうすくなってくる。

これらの写真からつぎのようなことがわかる。(1)

$(1\bar{2}1)$ 面においては、 $(\bar{1}01)$ 、 (111) 両トレースに平行なサブバウンダリーをもつ四辺形状のサブグレインが認められる。そして、これは比較の変形の初期においてすでに形成される。(2) 平均のサブグレインの大きさは、880°C では 50~100 μ 、745°C では 30~50 μ 程度のものが多い。また、この大きさは変形量が増してもほとんど変わらない。

2. $(\bar{1}01)$ 面 観 察

880°C で 20 min、745°C で 200 hr 変形した試料から得た (202) 回折写真を Photo.3 (a), (b) に示す。この面でみられるサブバウンダリーは、その方向が必ずしも特定の方向とは限らず、変形の進行に対しても系統的な変化はほとんど確認できなかった。しかしながら、全体の傾向としてはほぼ四辺形状のサブグレインに分かれており、サブバウンダリーは (111) 、 $(1\bar{2}1)$ 両トレースに平行なものが多いように思われる。

3. (111) 面 観 察

745°C および 880°C で変形した試料から得られた (111) 回折写真を Photo.4 (a) ~ (e) に示す。Photo.4 (d) は試料回転軸まわりに α を 6° ずつ変えながら、 1° の範囲にわたって各 α での回折像を同一乾板上に記録したものである。写真にみるように、 (111) 面の組織は他の面でみられた組織とは著しく異なっている。すなわち、四辺形状のサブグレインはあまりみられず、おもに $(\bar{1}01)$ トレース方向に長く伸びた縞状組織 (Photo.4 (a) の A) と、その縞を構成している入射ビームに平行な線状組織 (以下、ストリークと呼ぶ) とが認められる。なお、各縞状組織は 2 本ずつ対になつて現われているが、これらはそれぞれ $K\alpha_1$ 、 $K\alpha_2$ 線によるものである。

写真からつぎのことが結論される。(1) 縞状組織の間隔から、 (111) 面には Fig.4 に示すような、周期が 1000 μ 程度のマクロ的な格子うねりが存在するものと考えられる。しかし、Photo.4 (d) にみられる縞状組織の本数と露出回数とが一致していないことから、格子のうねりは連続的なものではなく、Fig.4 に示すように、ストリークの平均長さ 50 μ 程度の間隔でサブバウンダリーが存在しているものと考えられる。(2) 変形初期において、変形帯に沿って 1 列

Photo.3 Substructures on $(\bar{1}01)$ plane obtained by (202) reflection (a) 20 min ($\epsilon=2.1\%$), $T=880^\circ\text{C}$; (b) 200 hr ($\epsilon=8.1\%$), $T=745^\circ\text{C}$

にならんで現われていたストリーク (Photo.4 (a)) は、変形の進行につれて 1 本 1 本が明確になり、しかも、観察視野

全体にわたって比較的均一に分布するようになる。しかしながら、ストリークの幅および長さは変形量が増加しても

しかし、この点についてはそれ以上の実験および考察は行なっていない。

Photo. 4 Substructures on (111) plane obtained by (111) reflection. Photographs (a), (b) and (c) show the substructure change corresponding to the various stages in the specimen crept at 745 °C. (a) 1 hr ($\epsilon=4.6\%$), (b) 50 hr ($\epsilon=6.3\%$), (c) 200 hr ($\epsilon=8.1\%$). Photograph (d) is a composite Berg-Barrett micrograph, obtained by rotating the specimen intermittently about α -axis. 10 hr ($\epsilon=5.5\%$), $T=745^\circ\text{C}$. Photograph (e) shows substructure at 880 °C. 100 hr ($\epsilon=6.0\%$)

Fig. 4 Schematic representation of the lattice bending in primary slip plane, (111)

ほとんど変化していない(ストリークの幅 $\sim 10\mu$, 間隔 $\sim 10\mu$, 長さ $\sim 50\mu$)。 (3) 定常クリープ領域に入つて数 10 hr 以上経過した試料においては、ところどころに 300 $\sim$ 500 μ の大きなサブグレインが認められ (Photo. 4 (e) の B), しかし、その内部での格子うねりはその周囲にくらべて非常に小さかつた。そして、このようなサブグレインは、高い温度の 880 °C で変形したときに一層多く認められた。ところで、このような領域が変形を受けなかつたとは考えにくい。事実、変形初期においては、ほとんど均一に変形を受けているように思われる (Photo. 4 (a))。したがつて、そのような領域はその周囲よりも一層回復が進んだ領域と考えられる。これからわかるように、前報⁽¹⁾⁽²⁾でも述べたとおり、高温クリープ変形においては、変形や回復が場所的にかかなり不均一に進行している可能性があると思われる。

ところで、このようなストリーク状組織をよく検討するため、 θ 軸まわりに試料を回転しながら、(111) 面の組織を観察した。その一例を **Photo. 5** に示す。これらの写真からつぎのことがわかる。(1) Photo. 5 (b), (c), (d) にみるように、(121) トレースに対してそれぞれ 22°, 45°, 67° の方向から X 線が入射するように試料を回転した場合でも、ストリークは常に入射ビームに平行に現われる。そして、(121) トレース方向から X 線を入射した場合にくらべ、現われるストリークの長さはこの順番に長くなっている。ただし、いずれの場合も、縞状組織そのものの方向は常に (101) トレースに平行である。(2) (121) トレース方向に垂直に X 線を入射した場合には (Photo. 5 (e)), ストリーク状組織はもはや認められず、(101) トレース方向に長く伸びたサブグレインの存在が認められるのみである。それらサブグレインの幅は約 50 μ , 長さは数 100 μ にも達している。

以上の観察結果を模式的にかくと、**Fig. 5** のようになる。図中の矢印は X 線の入射方向である。Fig. 5 は 745 °C で変形した場合であるが、880 °C の場合にも、下部組織の大きさが大きいという点を除けば、本質的な差は認められなかつた。また、多くの試料について表面近くと結晶内部との組織を比較してみても、ほとんど差異は認められなかつた。

IV. 考 察

以上の観察結果から、クリープ変形によつて Fig.6 に示すような、(111)面と($\bar{1}01$)面上のサブバウンダリーによつ

高温変形によつて形成される明瞭なサブバウンダリーは、転位の迂り運動に対する障害物としてはたらくものと考えられる。ところでクリープ変形によつて試料側面 (Fig. 5 では斜線を入れた面に相当する) に現われる 迂り線を、

Fig.5 Schematic representation of substructure images obtained on each observation surface. The directions of the incident X-ray beam are shown by arrows

て囲まれた $[121]$ 方向に長く伸びたサブグレインが形成されると結論される†。

† 後に報告する腐食法の実験⁽¹¹⁾によれば、 $[121]$ 方向を切るサブバウンダリーは、必ずしも特定の低指数面上には存在していなかった。

Photo.5 Change in substructures on (111) plane with the rotation of specimen about δ -axis. 10 hr ($\epsilon=5.5\%$), $T=745^\circ\text{C}$. (a) $\delta=0^\circ$, (b) $\delta=22^\circ$, (c) $\delta=45^\circ$, (d) $\delta=67^\circ$, and (e) $\delta=90^\circ$. δ is an angle between the incident X-ray beam and the (121) -trace

Fig.6 Proposed model of subgrains due to creep deformation of copper single crystal. The subgrain is surrounded by tilt boundaries parallel to (101) and by twist boundaries parallel to (111) , elongating in the direction of $[121]$

光学顕微鏡で斜光により暗視野観察したところ、(111)トレースに平行な長さが数 100μ にも達する長い迂り線が多く観察された (Photo.6)。これは $[121]$ 方向を切るサブバウンダリーが、少なくとも 100μ 以下の間隔では存在しないことを意味する。このことは上述の X 線の結果とも矛盾しない。

つぎに、それらのサブバウンダリーの性質およびサブグレイン内部での格子のうねりについて考える。

1. サブバウンダリーの性質について

(111) 面上のサブバウンダリーが、1 次迂り面に平行に存在し、[111] 軸を回転軸とするねじれ境界 (twist bound-

ary) であることは、すでに報告したとおりである⁽¹⁾。

つぎに、 $(\bar{1}01)$ 面上のサブバウンダリーについて考えてみる。(111) 面観察においては、 $(1\bar{2}1)$ トレース方向に平行に X 線を入射したときには、回折像の現われる α の範囲は $2^\circ \sim 3^\circ$ であった。しかし、 $(\bar{1}01)$ トレース方向から入射したときには、像は視野全体にわたってかなり均一に現われ、 α の範囲は数 $10'$ 程度にすぎなかつた。また、前述したように、 α 軸まわりの角度分解能はそれと直角方向の分解能よりも大である。このような事実をもとにして、 $(\bar{1}01)$ 面上のサブバウンダリーの性質について考える。

まず、これが [121] 軸を回転軸とする傾角境界 (tilt boundary) であると仮定する。この場合には、 $(1\bar{2}1)$ トレース方向から X 線を入射したときの方が、 $(\bar{1}01)$ トレース方向から入射したときより、回折像の現われる α の範囲は大きくなるはずである。これは上記の実験事実と一致する。一方、これを $(\bar{1}01)$ 軸を回転軸とするねじれ境界と考えれば、上記の実験事実とはまったく逆の結果が予想される。 $(\bar{1}01)$ 面は 1 次迂りの変形帯が形成される面でもあるので、これを [121] 軸を回転軸とする傾角境界と考えるのが妥当であろう。

2. サブグレイン内部における格子のうねりについて

(111) 面観察では、常に入射ビームに平行なストリークが現われ、さらに変形の進行につれ、1 本 1 本が明確になり、また、視野全体にわたって均一に分布するようになった。このことから、(111) 面には見掛け上 [121] 軸を回転軸とするねじれ成分をもった格子うねりが存在し (Fig. 6)、その周期は 10μ 程度であろうと推定される。そして、変形の進行に伴う特徴的な変化は、このような格子うねりの増加であつた。さらに、 δ 軸 ([111] 軸) まわりに試料を回転しながら (111) 回折像をとると、 δ が増加するにつれストリークの数も多くなっているが (Photo. 5)、このことも Fig. 6 のような格子うねりからよく説明される。また、このような格子うねりを考えることは、 $(1\bar{2}1)$ トレース方向の場

Photo. 6 Dark-field micro-photograph of surface slip traces appearing during creep deformation from 7.9% to 8.2% at 745°C. Oblique illumination

合より、 $(\bar{1}01)$ トレース方向から X 線を入射したときの方が回折像が現われる α の範囲が狭いという実験事実にも矛盾しない。

このような格子うねりの成因については後ほど詳しく報告するが⁽¹¹⁾、おそらくは変形中にサブグレイン内に形成される小さな傾角境界の不規則な分布に起因するものと考えられる。また、このように考えると、ストリーク状の組織が (111) 面でのみ認められ、 $(\bar{1}01)$ 面では認められないという実験事実もうまく説明できる。

なお、室温で 6.4% 引張り変形を与えた試料の (111) 面観察においても、きわめて微細ではあるが、クリープ変形後と類似したストリーク状の組織が認められた。このことは、室温変形と高温クリープ変形とによる転位の分布状態が比較的似かよつたものであることを示唆している。

V. 総 括

高温クリープ変形した銅単結晶から種々の観察面を切り出し、Berg-Barrett 法によつてその組織を調べた。得られた結果はつぎのとおりである。

(1) 745°C で変形した試料では、880°C で変形したものにくらべて組織が微細であるという点を除けば、両変形温度における組織には大きな違いはない。

(2) せん移クリープ領域において、1 次迂り面 (111) に平行なねじれ境界と、1 次変形形成面 $(\bar{1}01)$ に平行な傾角境界とによつて囲まれた [121] 方向に長く伸びたサブグレインが形成される。それらサブバウンダリー間の間隔は、880°C で $50 \sim 100 \mu$ 、745°C で $30 \sim 50 \mu$ 程度であり、変形が進行してもその大きさはほとんど変化しない。

(3) サブグレイン内の (111) 面には、[121] 軸まわりのねじれ成分をもった周期的な格子うねりが存在し、うねりの周期は約 10μ 程度と推定される。そしてクリープ変形の進行に伴う組織変化としては、このようなねじれ成分をもった格子うねりの増加がもつとも特徴的であつた。

(4) 数 10 hr 以上クリープ変形したものでは、周囲よりも一層回復が進んでいると思われる $300 \sim 500 \mu$ 程度の大きなサブグレインが認められた。このことから、クリープ変形中における変形や回復は、場所的にかなり不均一に進行している可能性があると考えられる。

(11) 長谷川、長谷川、辛島：本誌，33 (1969)，185。