プローブ顕微鏡による多結晶チタンの塑性変形の微視的連続観察[†]

李 炎* 阿部 武治** 多田 直哉***

Continuous Observation of Tensile Deformation of Polycrystalline Titanium by Scanning Probe Microscope

by

Yan Li*, Takeji ABE** and Naoya TADA***

Change in the surface morphology during tensile plastic deformation of polycrystalline titanium with grain size of about $30\mu\text{m}$ is consecutively observed and measured by the scanning probe microscope. The results show that the surface deformation is mainly due to slip for the plastic strain less than 0.1. After that, a large amount of twins are formed and the second slip system becomes active, and accordingly the surface roughness increases. The roughness, the maximum height difference, and the averaged slope angle of the microscope surface profile increase with the applied tensile strain. The step height of the first slip lines increases, while the spacing between the slip lines decreases with the applied strain. Furthermore, the ratio of the step height to the spacing increases almost linearly with the applied strain. The angle between the slip lines and the load axis decreases due to the rotation of the crystal grain with the applied strain.

Key words : Plasticity, Polycrystalline titanium, Tensile deformation, Surface morphology, Slip, Twin

1 緒 言

チタンは機械構造用部材や生体材料などとしての用途をますます拡大しつつある。これに伴って、チタンに対しての研究も数多くなされているが、多結晶チタンの塑性変形に伴う結晶粒オーダーの微視的変形挙動やすべり変形、双晶変形などに対する観察や分析を行った研究は多くない。金属材料を塑性変形させると自由表面には表面あれが発生するが、これらの変形挙動は材料の微視的不均一性と材料の変形機構と密接に関係していることが、従来から触針式あらさ計を用いた測定により明らかにされている。^{1)~3)}したがって、塑性変形に伴う自由表面の変形挙動を詳細に調べることは多結晶金属の塑性変形の機構の解明に重要であると考えられる。ダイナミックフォースモード (DFM) 機能付きの原子間力顕微鏡 (AFM) を有する走査型プローブ顕微鏡 (SPM) は、高分解能を持つ一方で、3次元的情報を得ることができることから、定量的な3次元測定が可能となり、^{4)~5)}また分解能が高いことから、従来の研究よりもさらに小さなひずみにおけるマイクロメートルオーダーからナノオーダーに至る微小な変化を捕らえることができるものと考えられる。

そこで本論文では、走査型プローブ顕微鏡のダイナミックフォースモードを用い、多結晶チタンの単軸引張り変形に伴って自由表面に生じる塑性変形挙動の変化、すなわち表面あれ形状の変化、結晶粒の変化と結晶粒内におけるすべりと双晶の発生と進行などを連続観察し、マイクロレベルの表面あらさの変化やナノレベルのすべり線の段差の変化などを定量的に連続測定し、考察を加える。

2 実験方法

2.1 試験片および引張り試験

本研究に使用した材料は、厚さ1mm、純度99.5%の工業用Ti板である。引張り試験片はワイヤカットで切り出した。試験片寸法をFig. 1に示す。試験片の片面は耐水エメリーペーパーで#600から#2000まで研磨し、さらにコロイダルシリカを用いて鏡面までバフ研磨して、 $600^{\circ}\text{C} \times 1\text{h}$ 真空焼鈍後、電解研磨を加えた(電解研磨液は蒸留水25ml, メチルアルコール(95%)390ml, エチレングリコール(1.11)350ml, 過塩素酸(70%)35ml, 研磨条件はステンレス陰極, 電圧30~50V, 温度5~10 $^{\circ}\text{C}$)。Fig. 2に試験片表面の光学顕微鏡像を示している。切断法により求めた平均結晶粒径は約 $30\mu\text{m}$ である。

引張り前に試験片の中心部にマイクロビッカース硬度計を使って $500\mu\text{m} \times 500\mu\text{m}$ の領域に圧痕をつけた

Fig. 1. Specimen used for tensile test (unit : mm).

[†] 原稿受理 平成14年10月16日 Received Oct. 16, 2002

* 河南科技大学材料科学工程学院 中国471003 洛陽市, Inst. of Mat. Sci. & Eng., Henan Univ. of Sci. and Tech., Luoyang, 471003 China

** 正会員 津山工業高等専門学校 〒708-8509 津山市沼, Tsuyama National College of Tech., Numa, Tsuyama, 708-8509

*** 正会員 岡山大学工学部機械工学科 〒700-8530 岡山市津島中, Faculty of Eng., Okayama Univ., Tsushima-Naka, Okayama, 700-8530

Fig. 2. Optical micrographs of grains of polycrystalline titanium.

(Fig. 1 に黒い点で示す). これらを同一範囲を連続的に観察するためと、塑性ひずみを測定するための標点距離の目盛として用いた。

引張り試験は 5ton 万能試験機を使用した (津島製作所製オートグラフ DSS-5000 型)。クロスヘッドスピードは 0.5mm/min である。3 本の試験片をくびれまで引張り、応力-ひずみ線図を作成したが、これらはほぼ一致した。次に、プローブ顕微鏡観察用の試験片について、ひずみの各段階で中断し、試験片を SPM に装着して同一場所を連続的に観察と測定を行った。

2.2 プローブ顕微鏡と測定方法

2.2.1 プローブ顕微鏡 引張り前後の試験片表面形状観察と測定は、セイコーインスツルメンツ社製の走査型プローブ顕微鏡 (SPI3800N, SPA300HV) の原子間力顕微鏡、ダイナミックフォースモード (Dynamic Force Mode) を用いた。SPM の分解能は面内 0.3nm、垂直方向 0.01nm である。DFM モードは、カンチレバーを共振させ、カンチレバーの先端に固定した探針は試料表面を周期的にたたきながら走査する。検出器は探針と試料表面の引力、斥力を検出し、表面形状を測定する。

使用する走査範囲は標準 150μm であるが、最大 190μm まで測定できる。カンチレバーは凹凸が大きい試料に相応しいバネ定数 40N/m の SI-DF40 を用いた。試験片の平行部の中心をカンチレバーの先端にある探針の下に置くが、スキャンの方向は試料引張り軸に垂直な方向とした。走査周波数は走査範囲によって 0.1 ~ 0.5Hz を使い、大気中で測定した。

なお、測定領域を含めた広い範囲の観察には光学顕微鏡と共焦点走査型レーザ顕微鏡を用いた。

2.2.2 測定領域の表面あらしの測定 表面の微視的形状を表すパラメータとして、3 次元的な平均表面あらし R_{a3} 、最大表面凹凸差 H_f と平均傾斜角 α_3 を用いる。

表面の平均面あらし R_a は、JISB0601 で定義されている中心線平均あらしを、測定面領域に対して適用できるよう 3 次元的に拡張したものである。平均面あらしの定義は基準面から測定面までの偏差の絶対値を平均した値で表され、次式で与えられる。

$$R_{a3} = \frac{1}{S_0} \int_0^{y_l} \int_0^{x_l} |F(x, y) - z_0| dx dy \quad (1)$$

ここに、 S_0 は測定領域の表面積であり、 x_l 、 y_l はそれぞれ測定領域の範囲である。また、 z_0 は測定面 z 方向の高さの平均値である。

次に、表面最大凹凸差 H_f は、測定面全体における z 方向の高さの最大値 $H_{\max}$ と最小値 $H_{\min}$ の差であり、次式で与えられる。

$$H_f = H_{\max} - H_{\min} \quad (2)$$

平均傾斜角 α_3 は、山 (あるいは島) の平均半径の変化量の高さについての平均値 (の角度換算値) として与えられる。⁹⁾ここに、山というのは測定面を基準面に平行な平面で切断したとき、両者の交線で囲まれており、かつ切断面から上に出ている部分である。平均傾斜角 α_3 を求めるには、まず、ある高さ z での島の数 N と総面積 S_t を求め、これから山の平均断面積 $S_v = S_t/N$ を求める。次に、山が円であると仮定して、その半径の平均値 $R_v = (S_v/\pi)^{1/2}$ を求める。高さ z の平均半径 $R_v(z)$ を求め、微小高さ dz に対する $R_v(z)$ の変化量 $dR_v(z)$ を求める。これを全高さ H について平均し、その平均値を角度に換算した値が α_3 である。⁶⁾

$$\begin{aligned} \alpha_3 &= \arctan \left\{ \frac{1}{H} \int_0^H \left| \frac{dR_v(z)}{dz} \right| dz \right\} \\ &= \arctan \left\{ \frac{1}{H} \int_0^H \left| \frac{d}{dz} \sqrt{\frac{S_t(z)}{\pi * N(z)}} \right| dz \right\} \end{aligned} \quad (3)$$

同じ場所を測定できるように、走査範囲を最大値 190μm × 190μm に設定し、測定後 150μm × 150μm 範囲を選んで、同一場所がとれるまで、数回測定する。測定できた画像データは、単純な平面を基準に傾き補正 (1 次傾斜補正) を行った後、おのおの式 (1) ~ (3) を用いて表面の平均あらし、最大凹凸差および平均傾斜角を求める。3 回の平均値をとって、塑性ひずみの増加に伴うそれらの変化を求めた。

2.2.3 すべり線の段差の測定 すべり線の特徴を定量的に評価するために、ここでは隣接する 2 本のすべり線で作られる高低差 H_s と、すべり線の間隔 W_s を定義する。すなわち、Fig. 3 に模式的に示すように、測定面の画像データからすべり線に注目して、すべり線に垂直な断面 $L-L$ を切り出し、隣接するすべり線の高低差 H_s と間隔 W_s を測定する。

2.2.4 各結晶粒のひずみの測定方法 DFM 像では、測定領域の個々の結晶粒の粒界は明確でない場合もあり、結晶粒界図に基づく各結晶粒のひずみの測定は困

Fig. 3. Cross-sectional surface shape of slip-lines.

難である。そこで、光学顕微鏡像を用いて各結晶粒の荷重軸方向 (ε_x) および荷重軸に垂直な方向 (ε_y) のひずみを測定した。結晶粒のひずみの測定方法としては、粒毎に、各ひずみ段階の x 方向および y 方向の粒径の最大値と、それぞれの初期の最大値を測定し、これらから真ひずみを計算した。¹⁾

3 実験結果および考察

3・1 応力-ひずみ線図

Fig. 4 に、本実験に使用した多結晶チタンの真応力-真ひずみ線図を示す。○印は引張り試験を中断した負荷ひずみを表している。このとき、庄痕の標点間距離から求めた真ひずみはそれぞれ 0.02, 0.036, 0.056, 0.09, 0.12, 0.17, 0.23, 0.3 である。

3・2 ひずみの増加に伴う表面の微視的形状変化

初期からひずみ 0.3 までに、9 段階の試験片に対して同一場所について連続観察したが、塑性ひずみ 0.3 の試験片では表面凹凸の高低差がプローブ顕微鏡の z 方向の

Fig. 4. Stress-strain curve and measured points.

測定限度 $5\mu\text{m}$ を超えたので、定量的な測定はできなかった。したがって、初期からひずみ 0.23 までを観察した。

Fig. 5 は観察された DFM 像と 3 次元描画像の一例である。ここに、引張り軸方向は上下方向である (矢印)。Fig. 5 を見ると、表面あれの凹凸の位置はほとんど変化せず、高低差だけが負荷ひずみとともに増大していることがわかる。これは従来から触針式表面あらさ測定機でも認められたことであるが、²⁾より微視的なプローブ顕微鏡による観察においても成立していることが確認された。また、表面あれの形状の山頂と表面あれの形状の谷底は、ほとんど結晶粒界と結晶粒界の近くである。これは、表面あれの凹凸は主に結晶粒単位の変形不均一と密接に関係しており、結晶粒の傾きによって形成されることを示していると考えられる。

3・3 ひずみに伴う表面あらさの変化

測定範囲 $150 \times 150\mu\text{m}^2$ における表面の微視的形状に関連したパラメータの変化を Fig. 6 に示す。Fig. 6 の○印は最大表面凹凸差の変化、Fig. 6 の△印は平均面あらさの変化、Fig. 6 の□印は平均傾斜角度の変化である。ひずみの増加に伴って、これらの表面あらさパラメータはいずれも増加するが、初期からひずみ 0.09 以下では、ほぼ直線的に増加する。ひずみが 0.09 を超えた付近で、これらの増分が大きくなるが、これは双晶が増加するという観察結果に対応している。

3・4 ひずみの増加に伴う結晶粒の微視的变化

表面あれは結晶粒の回転や結晶粒内部での変形不均一性によって形成されていることが従来の研究で指摘されている。^{1)~3)}この点に関連して、ひずみの増加に伴って結晶粒の変化を調べた。ここでは、Fig. 5 (a) に示す破線に囲まれた部分を Fig. 7 に示すように拡大して詳細に観察した。Fig. 7 (a) は初期状態であり、Fig. 7 (b) はひず

Fig. 5. Surface morphology of polycrystalline titanium after tensile deformation observed by DFM.

Fig. 6. Surface height difference, surface roughness and averaged inclination angle (measured area: $150\mu\text{m} \times 150\mu\text{m}$).

みが0.02で結晶粒が認識できるとともに、結晶粒界近傍で短いすべり線が観察された。ひずみ0.056まで、変形の進行に伴って表面凹凸の高低差が増加するが、観察されるすべり線はほとんど変化していない (Fig. 7 (c), (d))。全体的には、いくつかの結晶粒に1次すべり線が結晶粒全体に現われたが、別の結晶粒では変形模様が全く見られなかった。双晶が随所に出るが、その多くはすべりが発生していない結晶粒であった。ひずみ0.09で、結晶粒CとDは各1本の双晶が現われた (Fig. 7(e))。ひずみ0.12では、結晶粒Cの双晶が成長し、新しい双晶がもう一本現われた (Fig. 7(f))。拡大して見ると、結晶粒Dの双晶内部に双晶面となす角度 54° の2次すべり線が観察され、網目模様が現われた。ひずみ0.17で結晶粒Aには2次すべりが、1次すべりと 90° の角度をなして

生じている。ひずみ0.23になると、結晶粒Bに2次すべりが生じ、結晶粒Cには双晶に平行なすべり線と、一定の角度をなすすべり線が現われた。ひずみ0.3では、網目模様とすべりのわん曲が多く認められ、結晶粒が引張り軸方向に沿って伸びている。

以上のようなひずみの増加に伴う結晶粒内部の微視的变化の概略を示すと Fig. 8 のようになると考えられる。図において、細い線は1次および2次すべり線を、太い線は双晶をそれぞれ表している。

3・5 ひずみに伴うすべり線の段差と間隔の変化

ここでは Fig. 3 に示した方法を用い、各ひずみで同一結晶粒の同じ場所に注目し、結晶粒内の1次すべりの段階の高低差とすべり線の間隔について調べた。その結果、ひずみの増加に伴ってすべり段差の高低差が増加する一方で、すべり線の間隔が狭くなることが認められた。そこで、Fig. 5 (a) に示す結晶粒の中で、主として1次すべりで変形している結晶粒A, B, 1, 8について、すべり線の段差 H_s とすべり線の間隔 W_s の変化をそれぞれ示すと Fig. 9 (a), (b) のようになる。

Fig. 8. Schematic diagram of surface pattern of plastic deformation in grain.

Fig. 7. Surface morphology of polycrystalline titanium after tensile deformation observed by DFM.

ところで, $1/W_s$ は単位面積あたりのすべり線の数を表している. したがって, H_s/W_s の比はすべりの強さを表わすと考えられる. そこで H_s/W_s の値を負荷ひずみに対して描くと Fig. 9 (c) ようになる. Fig. 9 (c) に比例関係が認められることから,

$$\varepsilon = k(H_s/W_s) \quad (4)$$

とおくことができる. このとき, k が一定となることは 1 次すべり変形の特徴と考えられる. 実験結果から式 (4) の係数 k を求めると, 結晶粒 A と 1 ではそれぞれ 4.2, 4.3 となり, 結晶粒 B と 8 ではそれぞれ 3.0, 2.3 となる.

3・6 ひずみの増加に伴う各結晶粒のひずみの変化

ここでは 2・2・4 項で述べた方法を用い, 測定範囲内の 20 個の結晶粒に対して負荷ひずみの増加に伴う結晶粒のひずみの変化を調べた. その結果を Fig. 10 に示す.

Fig. 10 から, 荷重軸方向の結晶粒のひずみ ε_x は結晶粒によってかなりばらつきが見られるが, それらの平均ひずみ (●印) は塑性ひずみの増加にほぼ比例して増加することがわかる. 一方, 荷重軸に垂直方向のひずみ ε_y の平均値 (▲印) はほぼ塑性ひずみの 1/2 の割合で減少している.

3・7 ひずみの増加に伴う 1 次すべり線と荷重軸のなす角度の変化

測定範囲にある 14 個結晶粒に注目し, ひずみの増加

に伴う, 粒内の主すべり線 (1 次すべり線) と荷重軸方向のなす角 θ の変化について調べた. その結果を Fig. 11 に示す. ここに, 図の記号 (番号) は Fig. 5 (a) に示す結晶粒の記号 (番号) に対応している. また, ◎印は平均値の変化を示している. Fig. 11 からわかるように, 結晶粒内のすべり線は, ひずみの増加に伴って荷重軸方向にゆるやかに回転する傾向が認められる.

以上述べたように, 本報告ではプローブ顕微鏡を中心とする観察によって, 多結晶チタンの微視的変形挙動の特徴について, いくつかの局面を明らかにした. これらの情報は, 多結晶体の変形挙動を解明し, たとえばこれを超微細加工などの諸問題に応用する基礎としても重要であると考えられる.

4 結 言

プローブ顕微鏡の原子間力顕微鏡を用いて多結晶チタンの単軸引張り変形における表面の微視的変形挙動を同一場所で詳細に連続的に観察した. 得られた主な結果をまとめると次の通りである.

- (1) 表面あれ凹凸の高低差はひずみの増加に伴って増大するが, 初期に形成した凹と凸の位置は変形の進行に伴って不変なままで谷と山になる.
- (2) 表面の平均あらさ, 表面最大凹凸差および平均傾斜角はひずみの増加に伴ってほぼ直線的に増加する. し

Fig. 9. Height difference and spacing between two adjacent slip lines inside grains versus applied strain.

Fig. 10. Change in strain of grains with applied strain.

Fig. 11. Distribution of angle between slip-line and loading direction (numbers show grains in Fig. 5 (a)).

かし、双晶変形が生じるとこれらの値が急に増加する傾向も認められた。

(3) 結晶粒内の1次すべり線の段差 H_s は、ひずみの増加に伴って増加するが、一方すべり線の間隔 W_s はひずみの増加に伴って減少する。これらの比 H_s/W_s はすべりの強さを表わすと考えられ、負荷ひずみにほぼ比例して増加することが認められた。

(4) 各結晶粒の負荷軸方向のひずみにはばらつきが生じるが、その平均値は負荷ひずみにほぼ比例して増加する。また、すべり線が荷重軸となす角はひずみとともに次第に減少する。

終わりに、引張り試験装置を製作された岡山大工学部機械工学科佐藤哲也技官、大学院生三木智宏君に謝意を表します。また、本研究に支援を受けた文部科学省科学研究費補助金、産学連携研究 (No.11792006, 1999-2001)

および基盤研究 ((C) (2) No.14550079-0012, 2002-2003) に感謝します。

参 考 文 献

- 1) 阿部武治, 野村 晃, 材料, **39**, 1248 (1990).
- 2) 阿部武治, 清水一郎, 西山大洋, 日本機械学会論文集, **A-57**, 2587 (1991).
- 3) 清水一郎, 阿部武治, 日本機械学会論文集, **A-60**, 2369 (1994).
- 4) Y. Nakai, Mat. Sci. Res. Int., **7**, 73 (2001).
- 5) T. Abe, Y. Li and N. Tada, Key Engineering Materials, **233-236**, 529 (2003).
- 6) セイコーインスツルメント(株), SPI3800, 取扱い説明書ソフトウェアガイドP [処理篇], 276 (1999).