

引張り変形中の In-situ X 線回折実験を用いた
バルクナノ銅中の転位増殖挙動の観察
**Observation on Multiplication Behavior of Dislocation in Bulk
Nano-Structured Copper Using In-situ X-Ray Diffraction Experiments**

宮嶋 陽司^a, 辻 伸泰^b, 足立 大樹^c
Yoji Miyajima^a, Nobuhiro Tsuji^b, Hiroki Adachi^c

^a東京工業大学, ^b京都大学, ^c兵庫県立大学
^aTokyo Institute of Technology, ^bKyoto University, ^cUniversity of Hyogo

本研究では、結晶粒径が 1 μm 未満であるバルクナノ Cu に対して引張変形中の In-situ X 線回折実験を行う事により、BNM の変形中転位増殖挙動を明らかにした。引張試験開始後、巨視的な弾性変形域で転位密度は約 $3.8 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ から約 $1.8 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ に減少し、巨視的な塑性変形開始後に増加して一定値 ($2.5 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$) に収束し、破断後に約 $2.0 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ に減少した。破断後、つまり応力徐荷後に転位密度が減少することから、バルクナノメタルの引張変形中の転位密度を測定する場合は、In-situ 実験を行う必要があることが判明した。

キーワード： In-situ X 線回折、バルクナノメタル、超微細粒、銅、引張試験、力学特性、その場転位密度測定、Williamson-Hall 法

背景と研究目的：

近年、通常与えることの出来ない巨大な塑性ひずみを多結晶金属材料に与える巨大ひずみ加工を用いることで、一般に使用されている結晶粒径が 10 μm 以上である構造用多結晶金属材料(粗大粒材)の結晶粒径を 1 μm 未満に超微細化したバルクナノメタル(BNM)を作製することが可能となった[1]。BNM は粗大粒材と比較して数倍の強度を持つが、合金元素の添加を必要としないため安価に作製することが出来るのみならず、合金元素の分離の必要がないためにリサイクル時に消費するエネルギーも小さい事が予想され、現在注目を集めている。

BNM の塑性変形機構には、一次元格子欠陥である転位が寄与している事は力学試験結果から分かっているものの、詳細な転位増殖機構の解明には成功していないのが現状である。そのため、力学試験結果に基づいて何種類かの力学モデルが提唱されているものの、金属の塑性変形中の組織観察は原理的に難しく、力学モデルの特定は不可能であった[2-5]。

しかしながら、我々が過去に BL19B2 でバルクナノアルミニウム(BNM-Al)を用いて行った実験(課題番号：2010B1786, 2012A1123)で、変形中 In-situ X 線回折実験が確立され、BNM-Al の引張変形中 In-situ 転位密度測定が可能となった。転位密度の In-situ 測定が可能となったことで、どの BNM の力学モデルが正しいかを特定する事が出来る可能性が出てきたのが現状である。

今回の研究では、FCC 金属のモデル材として用いられることの多いバルクナノ銅(BNM-Cu)に対して変形中 In-situ X 線回折実験を行った。銅合金は導電性材料として広く使われているが、合金元素が固溶することによる導電率減少が常に問題となってきた。しかし、BNM-Cu は合金元素を添加せずに高強度化が可能であるため、高導電性も同時に達成可能であることが予想され、次世代の高強度高導電性金属材料として期待されている。そのため本研究では、BNM-Cu に対して引張変形中の In-situ X 線回折実験を行う事により BNM の変形中転位増殖挙動を明らかにし、ひいては BNM-Cu の高強度高導電性金属材料としての実用化に向けた変形機構の解明も目的としている。

実験：

巨大ひずみ加工の一種である Equal-Channel Angular Pressing (ECAP)法を用いて、平均大角粒界間隔が 800 nm、平均粒界間隔が 400 nm の BNM-Cu を作製した。これらの結晶粒界は電子線後方散乱を用いて測定し、平均方位差 2°以上を粒界とし、方位差が 15°以上の粒界を大角粒界とした。

この試料から放電加工機を用いて、平行部長さ 20 mm, 幅 3 mm, 厚さ 0.3 mm の引張試験片を切り出し、BL46XU のゴニオメータ上に設置した小型引張試験機に取り付けた。

図 1 に引張試験中その場 X 線回折実験の模式図を示す。BNM-Cu の結晶粒径はサブミクロンであり、粗大粒材と比較して極めて小さいため X 線回折を行うとデバイゼラーリングを観察することになる。本実験においては透過法を用いており、幅 2 mm のスリットを引張方向と平行に設置したイメージングプレート (IP) にて複数の回折ピークを測定した。IP は引張開始と同時に試料からの距離を保ったまま引張方向と垂直方向に一定速度で移動させ、時間変化に伴う回折強度の変化を記録した。なお、引張速度のひずみ速度は $8.3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ である。入射光のエネルギーは 30 keV とし、観察された (111), (200), (220), (311), (222) 面の回折ピーク角度と半値幅 (FWHM : Full Width-Half Maximum) から、Williamson-Hall 法を用いて格子ひずみを求め、最終的に転位密度を算出した。

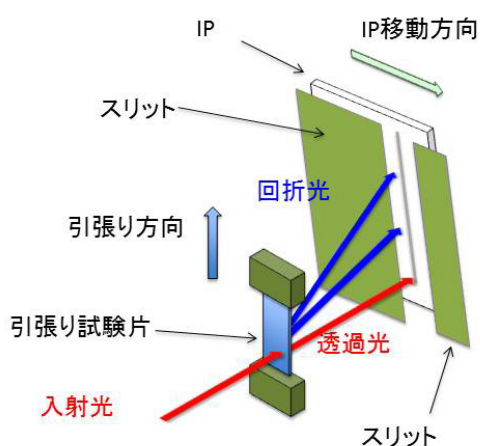


図 1. 実験の模式図

結果および考察：

本実験において BL46XU を用いた理由としては、純銅引張試験中に透過法を用いて測定する為、BL19B2 より輝度の高いアンジュレーター光源が必要であったためである。アンジュレーター光源を用いる場合は過去に BL19B2 で用いた入射ビームよりも平行性が高くなっているため、一部の結晶粒の回折スポットが強く現れ、デバイゼラーリングの測定に悪影響を及ぼす事が危惧されていたが、幸いその様な強い回折スポットは現れなかった。その為、アンジュレーター光源でも同様の測定系で In-situ X 線回折実験を行うことが可能であることが確認された。

図 2 に BNM-Cu の引張試験中転位密度変化を示す。引張試験開始後、巨視的な弾性変形中に転位密度が約 $3.8 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ から単調に減少し続け、公称ひずみ 0.01 程度で一定値 (約 $1.8 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$) に落ち着いているのがわかる。塑性変形が開始する公称ひずみ 0.02 程度以降で転位密度は約 $2.5 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ へと上昇した後一定値に収束している。その後、破断し試料にかかっている応力が徐荷される公称ひずみ 0.06 以降で転位密度が約 $2.0 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ に減少している。

この結果は、BNM-Al で行った変形中 In-situ X 線回折実験結果 (課題番号 : 2010B1786, 2012A1123) とは明確に異なっている。BNM-Al では、弾性変形中の転位密度の減少は観測されず、結晶粒径によって程度は異なるものの、塑性変形開始後に転位密度は上昇している。しかし、結晶粒径が $1 \mu\text{m}$ 未満の BNM-Al の場合も、破断後に転位密度が減少している。そのため、BNM の変形中の転位密度を測定したい場合は、In-situ で測定する必要がある、変形中 In-situ X 線回折実験が重要であることが再確認されることとなった。

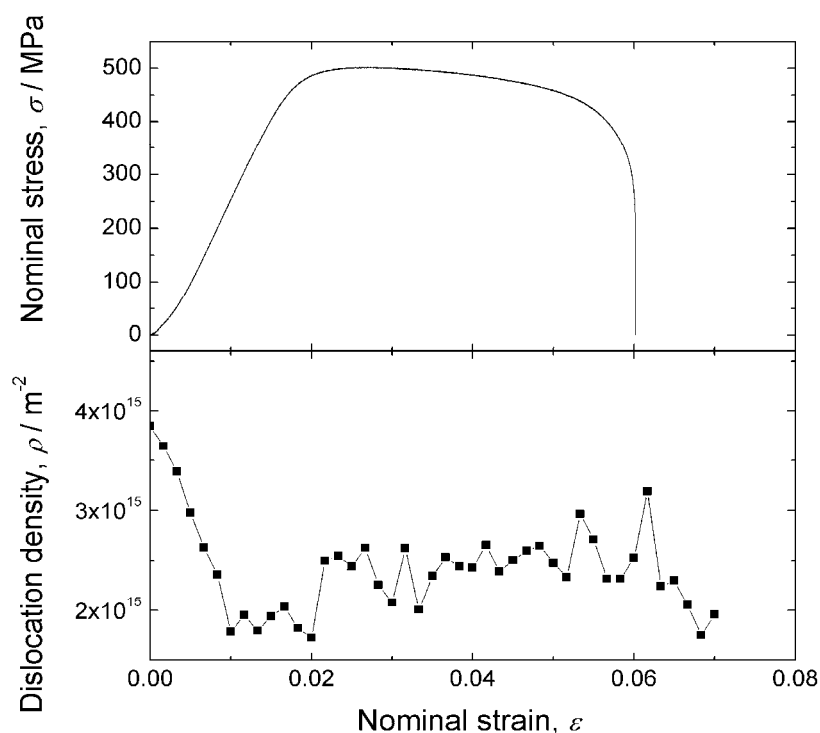


図 2. BNM-Cu の引張試験中その場転位密度測定結果

今回の測定結果より、結晶粒径が $1\ \mu\text{m}$ 未満という超微細粒を持つ BNM でも、元素によって引張試験中の転位密度変化が異なる事が判明した。特に、BNM-Cu の巨視的な弾性変形中に大幅な転位密度の変化が観察されたことは、過去に想定されていない現象であり、BNM の力学モデルの構築をすすめる上で極めて重要な実験事実になると考えられる。

今後の課題：

今後は、Al や Cu と同じ FCC 金属である Ni 等を用いて同様の In-situ X 線回折実験を行うことで、BNM-Al 型と BNM-Cu 型のどちらが BNM の典型的な転位密度変化を示しているかを明らかにする必要があると思われる。

参考文献：

- [1] A. Azushima et al., *CIRP Ann. Manuf. Technol.* **57**, 716 (2008).
- [2] E.O. Hall, *Proc. Phys. Soc. Sect. B* **64**, 747 (1951).
- [3] N.J. Petch, *J. Iron Steel Inst.* **174**, 25 (1953).
- [4] Y.M. Wang, et al., *Acta Mater.* **54**, 2715 (2006).
- [5] M. Kato, et al., *Mater. Trans.* **49**, 1278 (2008).