

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	ECAP加工により作製されたFCC超微細粒金属における大きなせん断変形による結晶粒微細化および粗大化
Title(English)	
著者(和文)	松谷亮輔
Author(English)	Ryosuke Matsutani
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11953号, 授与年月日:2021年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:尾中 晋,寺田 芳弘,木村 好里,稲邑 朋也,中田 伸生
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11953号, Conferred date:2021/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Type(English)	Doctoral Thesis

ECAP 加工により作製された FCC 超微細粒金属における
大きなせん断変形による結晶粒微細化および粗大化

東京工業大学

物質理工学院

松谷 亮輔

2021 年 3 月

目次

第1章 序論	1
1. 1 研究の背景	1
1. 2 従来の研究概要	3
1. 2. 1 As-ECAP 材のせん断変形の特徴	4
1. 2. 2 強ひずみ加工における結晶粒微細化限界	5
1. 2. 3 結晶方位解析による組織変化評価	6
1. 3 本研究の目的	10
1. 4 本論文の構成	10
参考文献	12
第2章 単純せん断変形による同一領域での超微細結晶粒の微細化と粗大化	15
2. 1 緒言	15
2. 2 実験方法	15
2. 2. 1 試験片作製	15
2. 2. 2 引張試験と組織観察	16
2. 3 せん断帯内外での変形量の測定	20
2. 4 単純せん断変形に伴う組織変化	24
2. 4. 1 平均結晶粒径の変化	24
2. 4. 2 結晶粒微細化	25
2. 4. 3 結晶粒粗大化	26
2. 5 結言	35
参考文献	36

第3章 結晶方位の対数角を用いた表現とそれによる格子湾曲テンソルの評価	37
3.1 緒言	37
3.2 対数角について	37
3.2.1 対数関数の意味	37
3.2.2 対数角の概要	41
3.3 結晶内での位置の変化による方位の変化	42
3.4 Axis/Angle ペアーで示される方位回転の対数角	45
3.5 結言	46
参考文献	47
第4章 単純せん断変形後に微細化または粗大化した結晶粒の方位変化評価	48
4.1 緒言	48
4.2 実験方法	49
4.3 実験結果	52
4.4 対数角による結晶粒内方位差の解析	59
4.4.1 変形に伴う結晶粒内での位置による対数角の変化	59
4.4.2 転位密度テンソルによる解析	60
4.5 考察	67
4.6 結言	69
参考文献	70
第5章 単純せん断と純粋せん断が超微細粒材の破断伸びに及ぼす影響	71
5.1 緒言	71
5.2 実験方法	72

5. 3	三次元画像相関法による試験片の変形の解析	74
5. 3. 1	試験片の破断伸び	74
5. 3. 2	試験片に加えられたせん断ひずみの解析	74
5. 3. 3	試験片の板厚変化の解析	77
5. 4	に加えられたせん断ひずみの分布の解析	83
5. 5	考察	87
5. 6	結言	89
	参考文献	90
第6章	結論	91
6. 1	本論文の総括	93
6. 2	今後の展望	93
	本博士論文に関係した投稿論文	94
	謝辞	96

第1章 序論

1. 1 研究の背景

金属材料は社会の様々な場所で幅広く使用されており、その性能の向上は多種多様な分野に恩恵をもたらす。中でも金属材料が多く用いられている構造材料では、強度・延性・靱性の力学的特性と総称される性能が要求されており、これら三要素のバランスが良い材料が求められている。例えば構造用材料としては不向きな例として、ガラスは靱性が低いため硬いが脆く、ゴムは延性が高いが強度が低いことが挙げられる。また、一般的に強度・延性・靱性はトレードオフの関係にあり、金属材料においても高強度化を図る際には引張延性の低下や、ほとんどの金属ガラスのように脆性的な破壊を引き起こす問題がある^{1, 2)}。このような金属材料の力学的特性を向上する方法として、結晶粒微細化による方法が多く研究されている。結晶粒微細化は、材料全体での粒界の占める割合が増えることで、それらが転位の動きを止める障害としての役割と、き裂が進む障害としての役割の両方が期待でき^{3, 4)}、高強度化と高靱性化を達成することができる優れた方法であるといえる。

結晶粒微細化の方法について強ひずみ加工(Severe Plastic Deformation: SPD)という方法が考案され、1 μm 以下の結晶粒をもつ超微細粒(Ultra-fine grained: UFG)材のバルクでの作製が可能となった⁵⁾。現在までの間に、代表的なこれらの加工方法として繰り返し重ね圧延接合 (Accumulative roll bonding: ARB)⁶⁾、等径角度付き押し出し法 (Equal channel angular pressing: ECAP)^{7, 8)}、高圧ねじり加工 (High Pressing Torsion: HPT)⁹⁾等の方法が考案されており、これらの方法により試料を破壊することなく大量のひずみを導入することで結晶粒を微細化することが可能となった。SPDにより作製されたUFG材の力学的特性として、結晶粒が非常に小さいため高い強度をもつが、一つの結晶粒内部に多くの転位が蓄積できないため、多くのUFG材は降伏後すぐに塑性不安定域に入り、その局所変形下においては、転位のすべりによる変形が起きにくい

場合に生じるせん断帯がその変形の多くを担う。中でも As-ECAP 材により作製された板状試験片に対して引張変形を加えた場合、ECAP 加工の最終せん断方向 (shear direction: ECAP-SD) に沿ってせん断帯が優先的に形成され、これに沿って破断するといった、他には無い特徴を持つ。

SPD による結晶粒微細化過程については grain subdivision^{10, 11)}として理解されている。grain subdivision とは塑性変形に伴い結晶粒内部の転位が再配列し、それらが新たな境界を形成することで結晶粒を細分化する組織変化過程を指す。grain subdivision により結晶粒を1 μm 以下まで微細化することが可能であるが、SPD によりひずみを加え続けることで際限なく微細化することはできず、それらには限界が存在する。このような SPD の微細化限界は試料や加工方法により程度は異なるが、多くの条件で報告されている。結晶粒微細化限界の原因の一例として、UFG 材にせん断変形を加えた際に引き起こされる grain boundary migration が、結晶粒の大きさを変え、それに伴い結晶粒が粗大化すると報告がある。しかし、grain boundary migration による結晶粒粗大化過程については、grain subdivision による微細化過程とは異なり、金属材料の組織変化を理解する上で重要な転位組織との関連を説明した報告は少ない。更に粒界移動による結晶粒粗大化を厳密に示すためには、grain emerging model¹²⁾と呼ばれる変形による試料内部に存在する結晶粒のせり上がりとの区別の必要性から立体的な結晶粒の形状を測定する必要があるため観察が難しく、十分に結晶粒粗大化過程について説明しているとは言い難い。

先に触れたように、金属材料の組織変化過程を明らかにするためには、塑性変形に伴う転位組織の変化を調べることが必要となる。転位組織の状態を明らかにする方法の一つとして、塑性変形により結晶内に転位組織が形成された際にその状態に応じて方位が場所により変化することを利用し、転位の分布を明らかにする方法がある。これらの理論的な研究は60年以上前から行われているが、広範囲における転位組織

の評価に用いられ始めたのは、SEM/EBSD (Scanning Electron Microscope/Electron Back Scattered Diffraction) 法の発展の後である。特に近年の SEM/EBSD 法の性能向上により分解能が数十ナノオーダーとなったことで、SEM/EBSD 法による超微細結晶粒内の局所的な結晶方位測定についても可能となり、これらの理論的な研究を応用した UFG 材の変形に伴う転位組織変化の解明の下地は整っている状況であるといえる。一方で SEM/EBSD 法による観察から転位の分布を評価する手法は必ずしも明示されているとは言えない。よって、UFG 材の結晶粒粗大化過程を示す上で、SEM/EBSD により得られた方位情報から、材料組織内の転位組織を明らかにする方法を確立することは有益であると言える。

SEM/EBSD 法による観察は、試料をバルク形状のまま観察することができるため観察試料に大きく変形を加えた上での観察が可能であり、また観察領域が広範囲であることから組織の全体的な変化を捉えることができる。よって、これらの特性を生かした変形前後における同一領域観察を容易に行うことができるため、より詳細な組織変化の評価が可能となる。すなわち UFG 材の塑性変形に伴う結晶粒粗大化現象の観察に適しており、実際に上述の粒界移動による結晶粒粗大化についてはこの SEM/EBSD 法による観察を用いて報告されている。

以上より、本論文では強ひずみ加工における微細化限界の要因として挙げられる結晶粒粗大化現象について FCC 金属を対象に調査する。観察においては As-ECAP 材特有のせん断帯形成の特性を利用した変形前後における同一領域での SEM/EBSD 法による観察を行う。またその際 SEM/EBSD 法から得られた結晶方位情報を基に転位組織を評価する方法を提案する。

1. 2 従来の研究概要

本論文では、引張試験における ECAP 加工特有のせん断変形を活用することで変

形前後における同一領域での組織観察を試みる。また、組織観察における結晶方位の解析手法として SEM/EBSD 法から得られた結晶方位情報を基に、対数角を用いた格子湾曲テンソルによる解析を提案する。よって、以下の分類で従来研究をまとめる。

- As-ECAP 材のせん断変形の特徴

As-ECAP 材の引張試験時に発生するせん断帯について、その特徴の概要を述べる。

- 強ひずみ加工における結晶粒微細化限界

強ひずみ加工における結晶粒微細化限界についての過去の研究概要を述べる。

- 結晶方位解析による組織変化評価

結晶方位変化と組織変化の関係と、結晶方位を対数角により評価する方法について過去の研究概要を述べる。

1. 2. 1 As-ECAP 材のせん断変形の特徴

金属材料の引張試験において、その試験片の局所変形過程は組織の結晶粒径により異なる。結晶粒が微細なものほど塑性不安定領域でせん断帯が発現し、引張軸に対して 45° の方向での破断に近づく。この破壊形態について Zhang と Eckert¹³⁾ は引張試験での応力状態を示すモール円に *ellipse criterion* を適用することで主応力とせん断応力の関係を説明し、結晶粒径によってこれらの応力の関係が変化し破断形状に影響を及ぼすことを報告した。更に、Fang ら¹⁴⁾ はこの関係を適用することで、As-ECAP 材においては引張方向に対して約 45° の方向でせん断破壊することを示している。Orlov と Vinogradov¹⁵⁾ は局所変形下におけるせん断帯の形成について、引張応力により大きさ 10 mm 程度のせん断帯が ECAP 加工の最終せん断方向に沿って優先的に形成されることで、それに沿った方向で破断することを示している。このように、As-ECAP 材の板状試験片は引張試験の局所変形時において、ECAP 加工の最終せ

ん断方向に沿ってせん断帯を形成し、破断に至る特徴を持つ。

薄板状試験片に対して板の表面に平行な力のみで引張る場合について、引張力が板の表面に平行な面に存在するため、板の厚さ方向に作用する力が存在せず、平面応力状態にあるといえる。このような平面応力状態において、 x_1-x_2 直交座標系における単純せん断変形は変位勾配テンソル $u_{i,j}$ を用いて

$$u_{i,j} = \begin{pmatrix} 0 & a \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (1-1)$$

と示すことができ、純せん断変形については

$$u_{i,j} = \begin{pmatrix} 0 & b \\ b & 0 \end{pmatrix} \quad (1-2)$$

と示すことができる。またこれらの面内せん断変形は x_1-x_2 直交座標系ではそれぞれ Fig. 1-1 のように示すことができる。Segal^{16, 17)} はこれらのせん断変形を用いて、UFG 材の引張試験での局所変形過程について次のように説明している。

- (1) 試験片面内領域での純せん断変形の発生。
- (2) ある領域において純せん断変形から単純せん断変形への変形モードが推移。
- (3) その領域に応力が集中し、単純せん断変形がより支配的となる。
- (4) 更にその領域で応力が集中し、せん断帯が発達する。

すなわち、上記の過程により単純せん断変形がひずみの局所化を促進し、せん断帯を発達させるとしている。

1. 2. 2 強ひずみ加工における結晶粒微細化限界

ARB, ECAP や HPT などに代表される強ひずみ加工は、バルク材試料に非常に大きなひずみを加えることが可能であり、grain subdivision によって結晶粒を1 μm 以下まで微細化することが可能である。一方で、これらの加工方法によってひずみを加え続けることで、結晶粒を際限なく微細化することはできない。例えば純 Cu の ECAP 加

工においては 8 回の加工により平均結晶粒径が 0.2~0.3 μm 程度となり, それ以上は小さくならないといった報告がある.¹⁸⁻²¹⁾ これらの報告については Fig. 1-2 にまとめた.

このような SPD における微細化限界について, Pippin¹⁹⁾らは単純せん断変形により誘起される grain boundary migration²⁵⁾との関係を報告している. また, Renk ら²⁶⁾と Kapp ら²⁷⁾は変形前後での同一の結晶粒について SEM/EBSD による観察を行うことで, grain boundary migration による結晶粒粗大化現象について観察したと述べている. 一方で変形に伴い表面にあらたな結晶粒の部分がせり出す grain-emerging model¹²⁾と grain boundary migration 呼ばれる現象の区別は, 試料の表面観察のみを行うだけでは難しく, これらの報告^{26,27)}はそれについての明確な言及を行っていない.

結晶粒粗大化の他の原因としては, 加工中の動的再結晶についても報告されている. Kawasaki²⁸⁾らは高純度の Al を用いた ECAP による加工においては, 一定以上の加工で多くの粗大な再結晶粒が発生することを報告した. 高純度の試料以外についても Al6082 合金を用いた引張試験において, TEM 観察により微細な再結晶粒が観察されている²⁹⁾.

1. 2. 3 結晶方位解析による組織変化評価

結晶方位を EBSD などで測定することで, 材料の塑性変形の様相を明らかにすることができる. 例えば, 結晶中に塑性変形により転位組織が形成されると, その転位の状態に応じて結晶内の位置による方位の変化がおきる. このような方位の場所による変化から塑性変形後の転位組織の状態を明らかにする試みとしては, 代表的な研究として Nye³⁰⁾によるものが挙げられる. この研究は結晶中での方位の場所による変化を格子湾曲テンソル $\mathbf{\kappa}$ として評価すれば, 結晶中の転位密度を定量的に議論できることを報告している. 格子湾曲テンソル $\mathbf{\kappa}$ については $x_1-x_2-x_3$ 直交座標系における, 結晶内での位置の変化 δx_j に伴う x_i 軸回りの方位変化の角度 $\delta\phi_i$ を $\kappa_{ij} = \delta\phi_i / \delta x_j$ とまとめたも

のである。

x_i 軸回りの方位変化の角度 $\delta\phi_i$ については Pantleon³¹⁾ や He ら³²⁾ が、結晶方位変化が単位ベクトル n_i 周りの回転角 $\Delta\Phi$ で示される場合 n_i と $\Delta\Phi$ の積 $\Delta\Phi n_i$ もベクトルであり、その成分 $\Delta\Phi n_i$ が回転角の x_i 軸回りの成分であると報告している。しかし、Euler 角のように異なる軸回りでの連続回転では、回転する軸の順番が異なると、それぞれの軸での回転角度が同じでも連続回転の結果は異なる。これらの報告^{31, 32)} には $\Delta\Phi n_i$ が回転角の成分であるとみなせる理由は明記されていない。

結晶の方位はある基準座標に対しての回転行列 \mathbf{R} で記述することができる。これを活用して林ら³³⁾ と Onaka と Hayashi^{34, 35)} は、 \mathbf{R} の対数 $\ln \mathbf{R}$ が

$$\ln \mathbf{R} = \begin{pmatrix} 0 & -\omega_3 & \omega_2 \\ \omega_3 & 0 & -\omega_1 \\ -\omega_2 & \omega_1 & 0 \end{pmatrix} \quad (1-3)$$

と示すことができ、この三つの実数成分が特性角度とみなせるとして、それらを対数角 ω_i と呼んだ。更に、Hayashi と Onaka³⁶⁾ は刃状転位が特定の軸回りにもたらす方位変化について対数角を用いて評価し、塑性変形に伴う転位の活動について報告している。

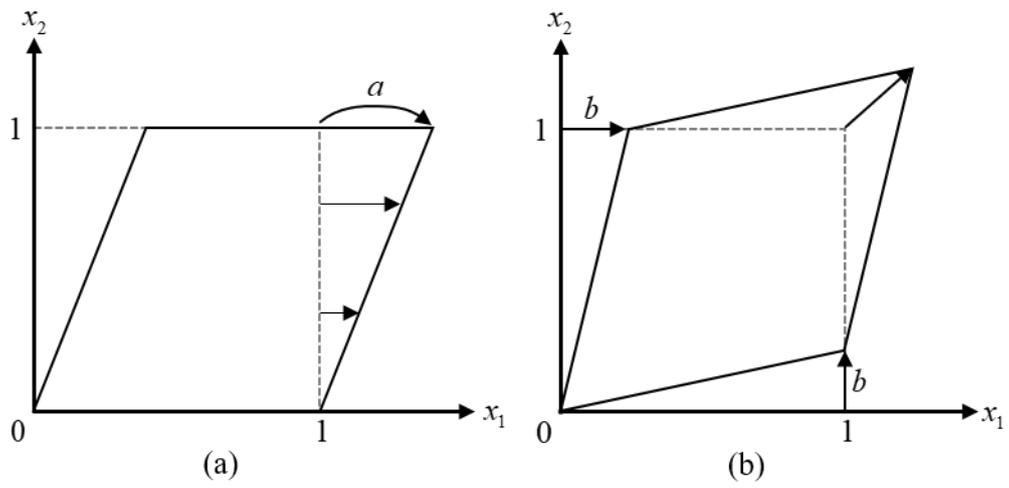


Fig. 1-1 Schematic illustrations of (a) simple shear deformation and (b) pure shear deformation.

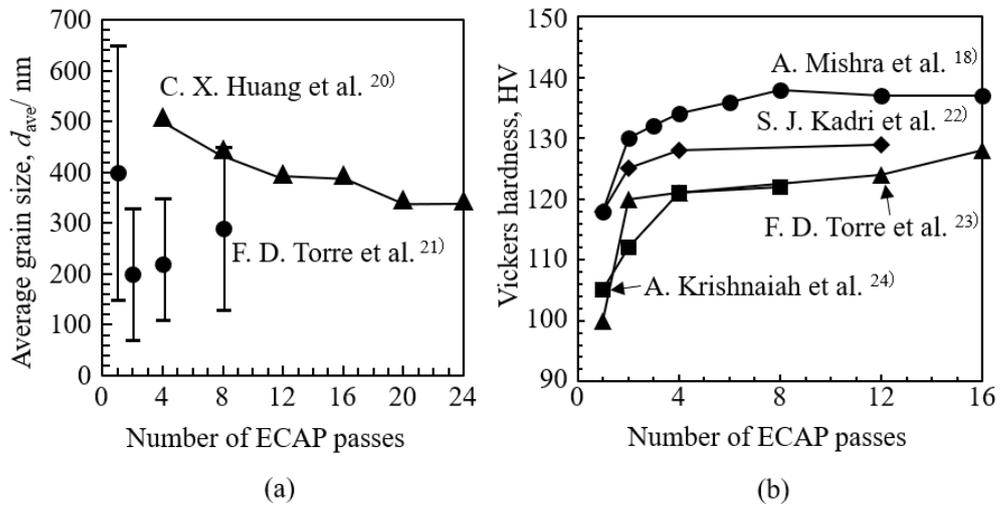


Fig. 1-2 Plot of (a) average grain size and (b) hardness as a function of ECAP passes.

1. 3 本研究の目的

本研究では, UFG 材の単純せん断変形前後における同一領域での SEM/EBSD 法による観察を行い, SPD における結晶粒微細化限界の原因を明らかにする. 試料として FCC 金属の As-ECAP 材の切り欠き付き引張試験片を用いることで, せん断帯の発生領域を制御することによる同一領域観察を行う. 加えて SEM/EBSD 法から得られた結晶方位情報について, 観察領域内での方位差を対数角により解析し, それにより格子湾曲テンソルを表現する方法について述べる. 更に, この方法を用いて単純せん断変形に伴う個々の結晶粒の組織変化について解析する.

1. 4 本論文の構成

本研究では UFG 材の単純せん断変形による組織変化を観察することで, SPD における結晶粒微細化限界の原因の解明を試みた. 第2章では超微細粒 Cu の引張試験片側面に切り欠きを加えたことによるせん断帯への影響を示すとともに, 引張試験前後におけるせん断帯内の同一領域内での結晶粒微細化および粗大化現象の発生を確認した. 第3章では, 対数角と Nye の格子湾曲テンソルの関係について示した. 第4章では第2章と同形状の超微細粒 Al の試験片を用いて, 単純せん断変形による同一結晶粒の方位変化について対数角を用いた解析を行い, 結晶粒微細化・粗大化過程について議論した. 第5章では, 第2章で得られた切り欠きのせん断変形への影響を基に, 新たな形状の引張試験片を用いて, 単純せん断変形と純粋せん断変形が超微細粒 Cu の破断伸びに及ぼす影響を調べた. 以下に, 具体的な各章の内容を示す.

第1章 「序論」

研究の背景と過去の研究についてまとめ, 本研究の目的を示した.

第2章 「単純せん断変形による同一領域での超微細結晶粒の微細化と粗大化」

ECAP 加工により作製した UFG-Pure Cu を用いて、引張試験前後での組織観察を行う。その際に側面に切り欠きを加工した薄板状試験片を用いることで、狭い領域に単純せん断変形を集中させ、そこでの変形前後における同一領域観察を SEM/EBSD 法により行う。このように UFG 材に大きなひずみを加えた際の組織変化を観察し、単純せん断変形による結晶粒の微細化・粗大化について調べる。

第3章 「結晶方位の対数角を用いた表現とそれによる格子湾曲テンソルの評価」

格子湾曲テンソル $\kappa_{ij} = \delta\phi_i / \delta x_j$ が、位置の変化 Δx_j に伴う方位回転 ΔR の対数角 $\Delta\omega_i$ を用いることで、 x_j から $x_j + \Delta x_j$ での平均的な格子湾曲テンソル $\kappa_{ij} = \Delta\omega_i / \Delta x_j$ となることを示す。

第4章 「単純せん断変形後に微細化および粗大化した結晶粒の方位変化評価」

ECAP 加工により作製した UFG-Pure Al を用いて、第2章での実験方法と同様の方法で組織観察を行う。SEM/EBSD 法により得られた結晶方位について対数角による解析を行うことで格子湾曲テンソルを導出し、それにより単純せん断変形による結晶粒内の転位密度テンソルの変化を評価した。結晶粒内の対数角により表現した方位差の変化や転位密度テンソルの各成分の値を比較することで、単純せん断変形による結晶粒の微細化あるいは粗大化過程について明らかにする。

第5章 「単純せん断と純粋せん断が超微細粒材の破断伸びに及ぼす影響」

第2章で用いた試験片形状が As-ECAP 材のせん断帯形成過程に与えた知見を基に、広範囲で純粋せん断変形が発生するような形状の試験片を用い、単純せん断変形と純粋せん断変形が UFG-Pure Cu 材の引張試験における破断伸びに与える影響を調べる。

第6章 「結論」

第2章から第5章までの内容について、総括を行い、今後の展望について述べる。

参考文献

- 1) Y. Wang, M. Chen, F. Zhou and E. Ma: *NATURE*, **419** (2002) 912-915.
- 2) J. J. Lewandowski, M. Shazly and A. S. Nouri: *Scripta Mater.*, **54** (2006) 337-341.
- 3) P. J. E. Forsyth: *Acta Met.*, **11** (1963) 703-715.
- 4) 田中敬介: *日本機械学会論文集 A*, **54** (1988) 1-7.
- 5) A. Azushima, R. Kopp, A. Korhonen, D.Y. Yang, F. Micari, G. D. Lahoti, P. Groche, J. Yanagimoto, N. Tsuji, A. Rosochowski and A. Yanagida: *CIRP Ann.-Manuf. Technol.*, **57**(2008) 716-735.
- 6) Y. Saito, N. Tsuji, H. Utsunomiya, T. Sakai and R.G. Hong: *Scripta Mater.*, **39** (1998) 1221-1227.
- 7) R. Z. Valiev, R. K. Islamgaliev and I. V. Alexandrov: *Prog. Mater. Sci.*, **45** (2000) 103-189.
- 8) V. M. Segal: *Mater. Sci. Eng. A*, **197** (1995) 157-164.
- 9) G. Sakaia, Z. Horita and T. G. Langdon: *Mater. Sci. Eng. A*, **393** (2005) 344-351.
- 10) N. Hansen and D. Juul Jensen: *Trans. R. Soc. Lond. A*, **357** (1999), 1447-1469.
- 11) N. Hansen: *Mater. Trans. A*, **32** (2001) 2917-2935.
- 12) R. C. Gigkins: *J. Mater. Sci.*, **13** (1978) 1926-1936.
- 13) Z. F. Zhang and J. Eckert: *Phys. Rev. Lett.*, **94** (2005) 094301.
- 14) D. R. Fang, Q. Q. Duan, N. Q. Zhao, J. J. Li, S. D. Wu and Z. F. Zhang: *Mater. Sci. Eng. A*, **459** (2007) 137-144.
- 15) D. Orlov and A. Vinogradov: *Mater. Sci. Eng. A*, **530** (2011) 174-182.
- 16) V. M. Segal: *Mater. Sci. Eng. A*, **338** (2002) 331-344.
- 17) V. M. Segal: *Mater. Sci. Eng. A*, **406** (2005) 205-216.
- 18) A. Mishra, B. K. Kad, F. Gregori, M.A. Meyers: *Acta Mater.*, **55** (2007), 13-28.

- 19) R. Pippan, S. Scheriau, A. Taylor, M. Hafok, A. Hohenwarter and A. Bachmaier: *Annu. Rev. Mater. Res.*, **40** (2010) 319–343.
- 21) F. D. Torea, R. Lapovok, J. Sandlin, P. F. Thomson, C. H. J. Davies and E. V. Pereloma: *Acta Mater.*, **52** (2004) 4819-4832.
- 22) S. J. Kadri and K. T. Hartwig In: Horita Z, editor.: *Nanomaterials by severe plastic deformation. Proceedings of NanoSPD3*, Fukuoka, Japan, (2005) p. 349.
- 23) X. Z. Liao, A. R. Kilmametov, R. Z. Valiev, H. Gao, X. Li and A. K. Mukherjee AK, J. F. Bingert and Y. T. Zhu: *Appl. Phys. Lett.*, **88** (2006) 021909.
- 24) A. Krishnaiah, U. Chakkingal, P. Venugopal In: Horita Z, editor. *Nanomaterials by severe plastic deformation. Proceedings of NanoSPD3*, Fukuoka, Japan, (2005) p. 733.
- 25) T. J. Rupert, D. S. Gianola, Y. Gan and K. J. Hemker: *Science*, **326** (2009), 1686–90.
- 26) O. Renk, A. Hohenwarter, S. Wurster and R. Pippan: *Acta Mater.*, **77** (2014) 401-410.
- 27) M.W. Kapp, T. Kremmer, C. Motz, B. Yang and R. Pippan: *Acta Mater.*, **125** (2017) 351-358.
- 28) M. Kawasaki, Z. Horita and T. G. Langdon: *Mater. Sci. Eng. A*, **524** (2009) 143-150.
- 29) I. Sabirov, Y. Estrin, M. R. Barnett, I. Timokhin and P. D. Hodgson: *Acta Mater.*, **56** (2008) 2223-2230.
- 30) J. F. Nye: *Acta Metall.*, **1** (1953) 153-162.
- 31) W. Pantleon: *Scr. Mater.*, **58** (2008) 994-997.
- 32) W. He, W. Ma and W. Pantleon: *Mater. Sci. Eng. A*, **494** (2008) 21-27.
- 33) K. Hayashi, M. Osada, Y. Kurosu, Y. Miyajima and S. Onaka: *Mater. Trans.*, **57** (2016) 507-512.
- 34) S. Onaka and K. Hayashi: *J. Math. Chem.*, **54** (2016) 1686-1695.
- 35) S. Onaka and K. Hayashi: *Scanning*, **2017** (2017) 4893956.

36) K. Hayashi and S. Onaka: *Mater. Trans.*, **59** (2018) 386-392.

第2章 単純せん断変形による同一領域での超微細結晶粒の微細化と粗大化

2. 1 緒言

SPD の一種である ECAP 加工により作製した金属材料の中でも熱処理等を行わない材料(As-ECAP 材)については、薄板状試験片に引張変形を加えた際に、局所変形下で ECAP 加工の最終せん断方向に沿ってせん断帯が優先的に形成する特徴を持つ^{1,2)}。また、単純せん断変形が一旦発生すると、応力がその領域に集中し、せん断帯が狭い領域に集中する^{3,4)}。すなわち、試験片の形状によっては意図した領域に単純せん断変形を誘起し、その領域における変形前後での同一領域観察が可能となると考えられる。

SPD により金属材料に大きなひずみを加えることで結晶粒を微細化し、1 μm 以下の結晶粒を得ることが可能である一方で、ひずみを加え続けても際限なく結晶粒を微細化することはできず、限界が存在する^{5,6)}。このような結晶粒微細化限界について明らかにする上で、変形前後における同一領域の組織を比較する方法は有用であり⁷⁾、上述の As-ECAP 材のせん断変形特性を利用した観察手法を用いることで塑性変形に伴う結晶粒粗大化減少について直接観察できる可能性がある。

本章では FCC 金属の一つである Pure-Cu の UFG 材を用いて、SEM/EBSD 法による変形前後での同一領域観察により UFG 材の塑性変形に伴う組織変化を明らかにし、微細化限界の要因について考察する。また引張試験には側面に切り欠きを加えた薄板状試験片を用いることで任意の領域での大きな単純せん断変形を引き起こし、その領域での同一領域観察を試みる。

2. 2 実験方法

2. 2. 1 試験片作製

供試材として純度 99.99 at % の Cu を使用した。試料の初期形状は直径 10 mm、長

さ 60 mm の棒状試料とした。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同幅がそれぞれ 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。引張試験片形状は Fig. 2-1(a)とし、ECAP-SD に沿って変形が集中するように切り欠きを加工した。また Fig. 2-1 (a)で加工した切り欠き部分の拡大図を Fig. 2-1(b)に示す。

せん断帯内外での変形量の測定および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 Fig. 2-1(c)に示すような正方形の格子を Fig. 2-1(a)に示す位置に作製した。加工条件についてはビーム径を約 100 nm, ドーズ量を 0.5 nC/μm²とした。変形量については格子の右下のけがき線交点を原点として、他の 3 つの交点の座標を求め、変形に伴うそれらの交点の座標の変化から求めた。

2. 2. 2 引張試験と組織観察

引張試験は引張試験機 (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。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、みかけの応力 σ_{ap} とみかけのひずみ ε_{ap} を定義することで、みかけの応力-ひずみ曲線を作成した。みかけの応力 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 として

$$\sigma_{ap} = F / S \quad (2-1)$$

とした。みかけのひずみ ε_{ap} は、引張試験時のクロスヘッド変位を u_c , 変形前の試験片

のゲージ長さを l_0 として

$$\varepsilon_{ap} = u_c / l_0 \quad (2-2)$$

とした. Fig. 2-2 に縦軸にみかけの応力 σ_{ap} , 横軸にみかけのひずみ ε_{ap} とした σ_{ap} — ε_{ap} 曲線を示す. UTS (ultimate tensile strength) 以降については切り欠きの間にせん断帯が発生した. そこでの組織観察を行うため, $\varepsilon_{ap} = 0.05, 0.07, 0.09$ で除荷を行った.

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について走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope: SEM) (JSM-7001F) を用いた観察を行った. 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 $0.05 \mu\text{m}$ とした.

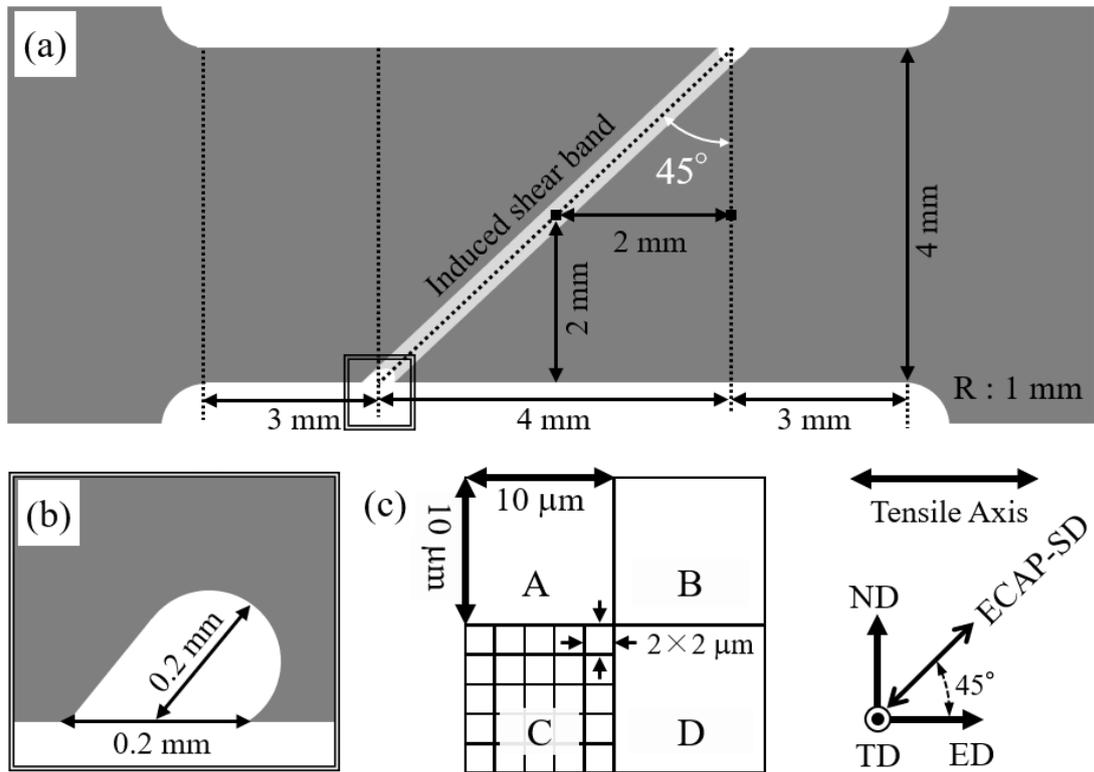


Fig. 2-1 (a) A schematic illustration showing the shape and size of a specimen with notches. A coordinate system for ECAP is also shown in (a). Two small black squares in (a) show areas processed by FIB. (b) Enlarged view of the notch. (c) The shape and size of lattices on the surface of the specimen scribed by FIB.

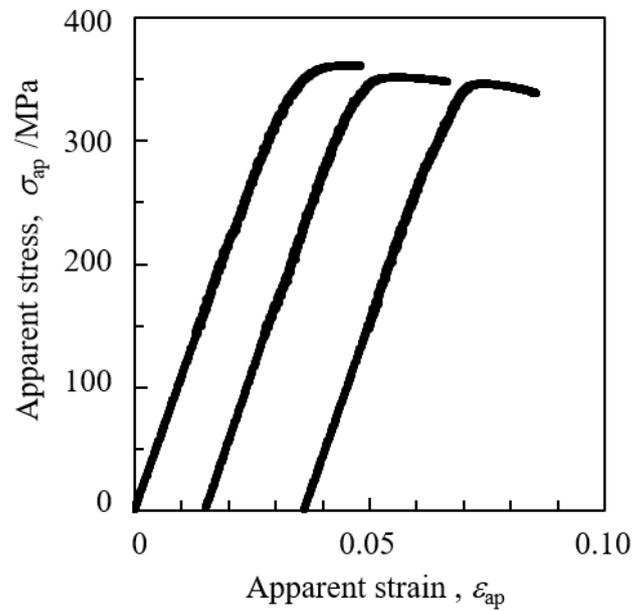


Fig. 2-2 Results of tensile-shear tests for a notched specimen showing the relationship between the apparent stress σ_{ap} and apparent strain ϵ_{ap} . The microstructural observation was made after unloading at $\epsilon_{ap} = 0.05, 0.07$ and 0.09 .

2. 3 せん断帯の内外での変形量の測定

切り欠き付き試験片の表面に FIB を用いて作製した格子を SEM により観察し、引張試験前後での形状の変化から変形量を求めた。Fig. 2-3(a), (b)はせん断帯に加工した格子の、試験前と $\varepsilon_{ap} = 0.07$ での2次電子像である。格子内での変形が均一であると仮定して、格子内での平均的な変位勾配テンソル u_{ij} を求めた。次に、Fig. 2-3(c)に示すように、先ほど得られた変位勾配テンソル u_{ij} に対して反時計回りの $\theta = 0 \sim 90^\circ$ の座標変換を行うことで、Fig. 2-1(a)に示した切り欠き間における変形の様相を評価した。Fig. 2-3(d)に全格子における $\varepsilon_{ap} = 0.09$ で除荷した際に座標変換を行うことで得られた変位勾配 u'_{ij} を示す。Fig. 2-3(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。また比較のため、Table 2-1 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 2-1 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。これらの結果は切り欠き付き試験片の引張試験において、切り欠き間に発生したせん断帯は、ECAP 加工の最終せん断方向に沿った単純せん断変形により生じたことを明確に示すものである。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} と定義し、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、 $u'_{2,1}$ のみを変形量として扱った。すなわちせん断量 γ については

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

と定義し議論を行う。

Table 2-1 The values of the components of displacement gradient tensor as a function of the amount of deformation ε_{ap} for $\theta = 45^\circ$

	$\varepsilon_{ap} = 0.05$	$\varepsilon_{ap} = 0.07$	$\varepsilon_{ap} = 0.09$
$u'_{1,1}$	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. 2-4 に切り欠き間で発生したせん断帯と、それ以外の領域でのせん断量 γ について比較した結果を示す。 $\varepsilon_{ap} = 0.05, 0.07, 0.09$ において、せん断帯ではそれぞれ $\gamma = 0.12, 0.39, 0.67$, となり、それ以外の領域では $\gamma = 0.02, 0.03, 0.05$ となった。 すなわち、これらの結果はせん断帯以外のゲージ部分の約 10 倍の変形がせん断帯では起きていることを示す。

以上より、格子内における変形量の評価から、切り欠き付き試験片を用いた引張試験を行うことで、切り欠きの間の領域で大きな単純せん断変形が発生したことによってせん断帯を誘起したことが分かった。 すなわち切り欠き付き試験片を用いることで、大きなひずみを任意の領域に集中させ、そこでの変形前後における同一領域観察が可能となったと言える。

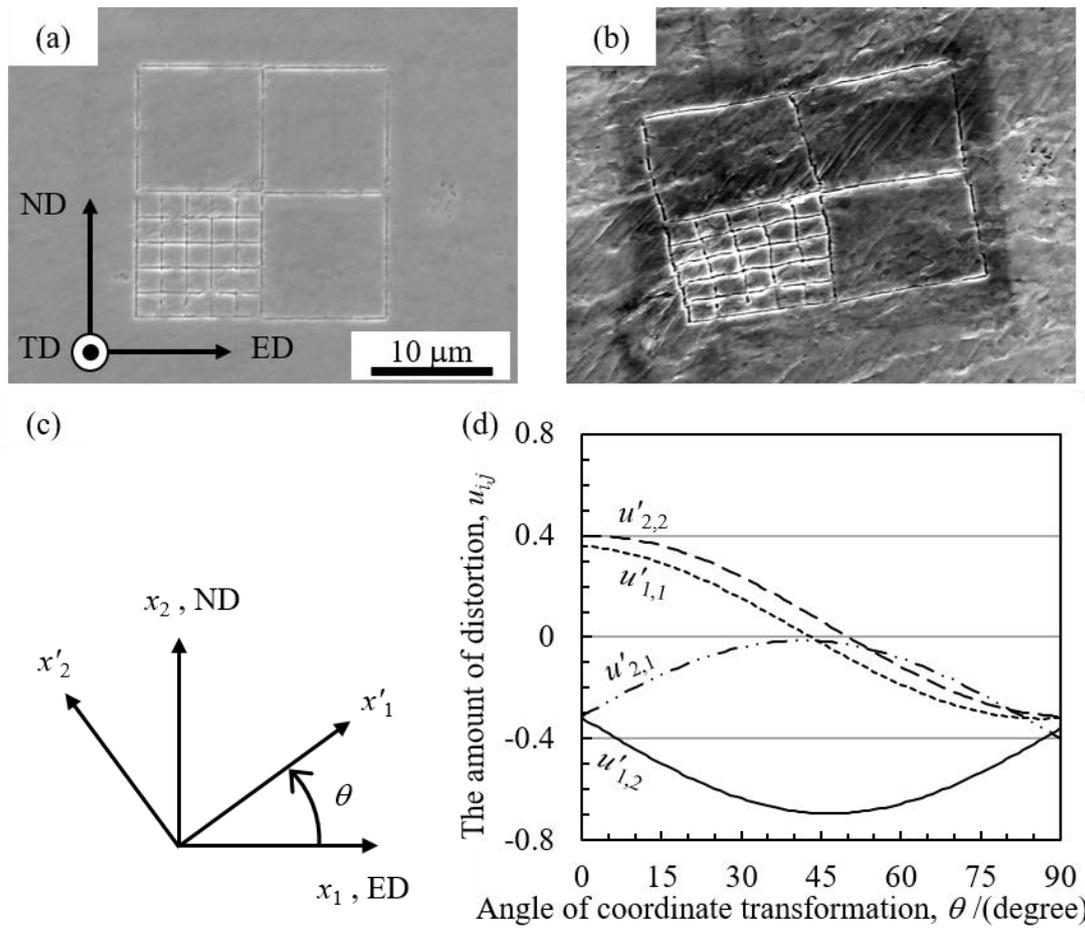


Fig. 2-3 SEM images of the lattices in the shear bands on the specimens (a) as ECAP and (b) after unloading at $\epsilon_{ap} = 0.07$. The components of the displacement gradient tensor u_{ij} were evaluated from the shape changes of the lattices for the coordinate systems with various values of θ shown in (c). (d) shows the amounts of u_{ij} as a function of θ at $\epsilon_{ap} = 0.09$.

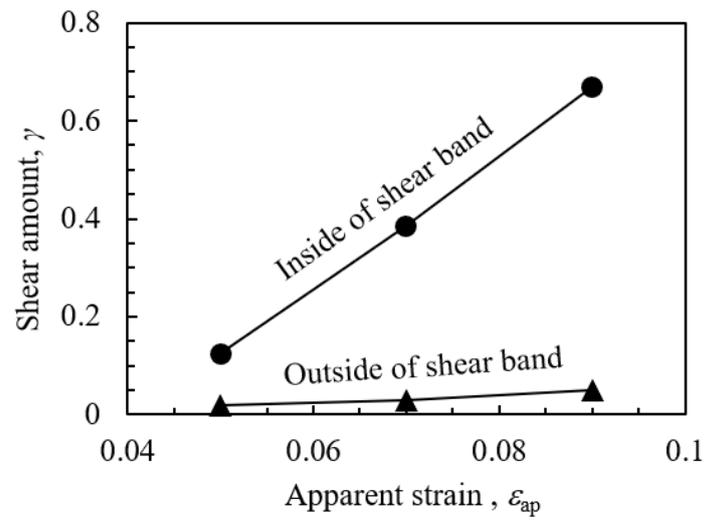


Fig. 2-4 A comparison of shear amount γ between inside and outside of shear band.

2. 4 単純せん断変形に伴う組織変化

2. 4. 1 平均結晶粒径の変化

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 $\varepsilon_{ap} = 0.05, 0.07, 0.09$ 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. 2-5(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 (inverse pole figure: IPF) マップを示す。また Fig. 2-5 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 IPF マップと併せて表現し、更に 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. 2-5(a)と Fig. 2-5(b), (c)を比較すると、大きな単純せん断変形に伴い結晶粒の方位や形状が大きく変化しているのが観察できる。一方で本研究で加えたひずみの範囲内では大角粒界と小角粒界の割合については Fig. 2-6 に示すように明確な変化は確認できなかった。

結晶粒の大きさの変化について定量的に調べるため、Fig. 2-5 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 を求める二通りに分類した。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 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-ave} と d_{L-ave} の変化について Table 2-2 に示す。Table 2-2 から格子 ABCD の領域における d_{L-ave} のみ単調に小さくなったが、その他は平均結晶粒径が大きくなる変形段階が存在した。変形段階によっては d_{H-ave} と d_{L-ave} の両方が大きくなる場合があることは、結晶粒界の定義に関わらず、変形に伴う結晶粒

の粗大化を示している。

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

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

2. 4. 2 結晶粒微細化

前項での同一領域観察から得られた平均結晶粒径の変化についての結果は、観察領域内での単純せん断変形による結晶粒の微細化と粗大化が発生した可能性を示す。そこで、本項では変形前後での同一結晶粒もしくは結晶粒群の比較を行うことで、これらの現象について有無について議論する。また議論においては、結晶粒を大角粒界もしくは小角粒界に囲まれた領域と定義する。

Fig. 2-5 に示した IPF 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、その変化について観察した。その中で変形に伴い微細化した結晶粒の例を Fig. 2-7 に示す。Fig. 2-7(a), (b)に示すように、微細化前の結晶粒を結晶粒 a 、微細化後については結晶粒 a_1 , a_2 とそれぞれ呼称する。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 および結晶粒 a1, a2 についてのラインスキャンの結果をそれぞれ Fig. 2-7(c), (d)に示す。また具体的な測定位置について, Fig. 2-7(a), (b)内に黒線で示した。方位差のラインスキャンについては隣接測定間の方位差測定と, Fig. 2-7(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二通りの測定を行った。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。

これらの結晶粒は, Fig. 2-7(b)の矢印で示す位置において, 変形によって結晶粒 a 内での grain subdivision⁸⁻¹⁰⁾による転位壁の形成により微細化したと考えられる。引張試験前の結晶粒 a における結晶粒全体の方位差については, Fig. 2-7(c)に示すように 3°程度であり, 隣接測定間の方位差についても全て 1°未満であることから, 結晶粒内部での方位差も小さく, かつ粒界も存在しない状態であると言える。一方で Fig. 2-7(d)から, 結晶粒 a1, a2 のラインスキャン部分での全体の方位差は 17.2°となっており, 大きな単純せん断変形により同一領域での方位差が明らかに大きくなったと言える。また Fig. 2-7(d)の矢印が示す位置では隣接測定間での方位差の勾配が非常に大きくなっており, これは前述の Fig. 2-7(b)の矢印で示す位置における変形によって形成された転位壁と対応していると言える。

2. 4. 3 結晶粒粗大化

本項でも前項と同様に, 大角粒界もしくは小角粒界に囲まれた領域を結晶粒として扱った。このとき Fig. 2-5 において二つの結晶粒を隔てる小角粒界が, 変形によって消失することで結晶粒が粗大化する様子を観察した。そこで Fig. 2-7 と同様に, この結晶粒が粗大化する様子について観察した。その結果について Fig. 2-8 に示す。Fig. 2-8 に示すように, 粗大化前の結晶粒をそれぞれ結晶粒 b1, b2 とし, 粗大化後の結晶粒

を結晶粒 b としてそれぞれ呼称する。これらの結晶粒の粗大化については、Fig. 2-8(a)～(c)の IPF マップの比較から、変形前に存在していた Fig. 2-8(a)の矢印の位置にあった小角粒界が Fig. 2-8(b)では消滅したことが原因であることが分かる。

次に Fig. 2-8(d)～(f)が示す結晶粒の粗大化に伴う内部方位の変化から、小角粒界の消滅過程について考察した。試験前には Fig. 2-8(a)の矢印で示す位置に小角粒界が存在し、その隣接測定間の方位差については Fig. 2-8(d)内の矢印が示すように 5.5° であることが分かる。しかし、Fig. 2-8(e)に示すように、変形によって隣接測定間の方位差はどの領域でも 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. 2-8(b)で示された小角粒界の消失と対応しており、また前項の小角粒界形成による局所的な方位差の増加と対照的な結果を示していると言える。一方で粗大化後の結晶粒 b 内の全体の方位差については、Fig. 2-8(d)では 8.5° であったが Fig. 2-8(e)では 16.9° となり、変形により方位差が増加する結果となった。これについては Fig. 2-7 で示した結晶粒内の全体の方位差の変化と同様の結果であると言える。

更に変形が進むと Fig. 2-8(c)の○で示す位置に一部で小角粒界が生じ始め、Fig. 2-8(f)からは 2° に近い値の隣接測定間での方位差が複数の測定間で確認できる。このように、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。一方で、結晶粒内部の方位差は 13.0° となり、Fig. 2-8(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 b1 と b2 ($\gamma = 0.39, 0.67$ では結晶粒 b) 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. 2-9(f)で結晶粒内の全体の方位差が小さく示され原因として、変形が進むことで形状が大きく変化することで、粒界三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 b1, b2 から結晶粒 b への変形に伴う粗大化過程について、Fig. 2-9(a), (b)

に結晶粒の模式図を, Fig. 2-9(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. 2-9(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. 2-9(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壁である. これにより区切られた隣接領域において, 塑性変形によりそれぞれの領域内で GN 転位が増加することで領域内での結晶回転を引き起こした.
- (2) それぞれの領域での GN 転位の増加による結晶方位変化は, 転位壁による局所的な方位差を減少させた. これにより領域間を隔てていた境界が消失し, 結晶粒が粗大化した. それぞれの領域内で GN 転位の増加は Fig. 2-9(d)に示すような結晶粒内全体の方位差の増加として確認できる.

上記の(1)と(2)で考察した粗大化過程は, Table 2-2 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 2-2 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. 従って大角粒界の変化に伴う結晶粒粗大化現象についても本章で扱った観察領域内に存在する可能性がある. 序論で述べたように, 大角粒界の変化に伴う結晶粒粗大化については塑性変形に伴う grain boundary migration^{6, 7, 11)}や動的再結晶^{12, 13)}が考えられるが, 本章で行った観察方法では試料表面観察のみが可能であることから, それらの現象について判別するこ

とができなかった。

本章で述べた変形に伴う小角粒界の消滅と、先行研究により示されている大角粒界に囲まれた結晶粒の **grain boundary migration** による粗大化は異なる現象であり、どちらも結果として結晶粒粗大化の原因となりえる。また、結晶粒界の消滅による結晶粒粗大化は表面の観察のみでそれを示すことができるため、本章で示された観察結果は UFG 材の塑性変形による結晶粒粗大化を十分に示すものだと言える。

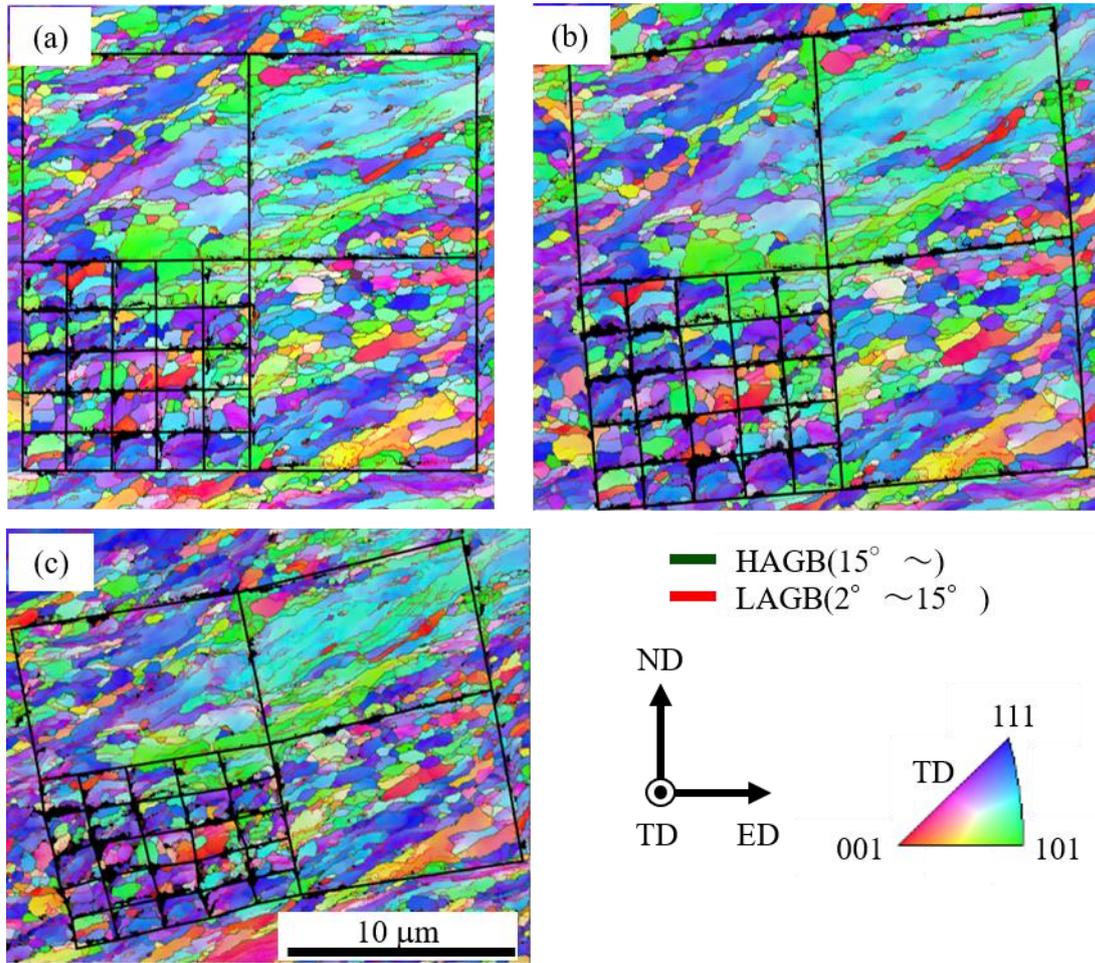


Fig. 2-5 Inverse pole figure (IPF) maps showing crystal orientations, high-angle and low-angle grain boundaries (HAGB and LAGB) at the lattices scribed on the surface of the specimen for (a) $\gamma=0$, (b) $\gamma=0.12$, (c) $\gamma=0.39$. The coordinate system of ECAP and the color code for IPF maps are also shown.

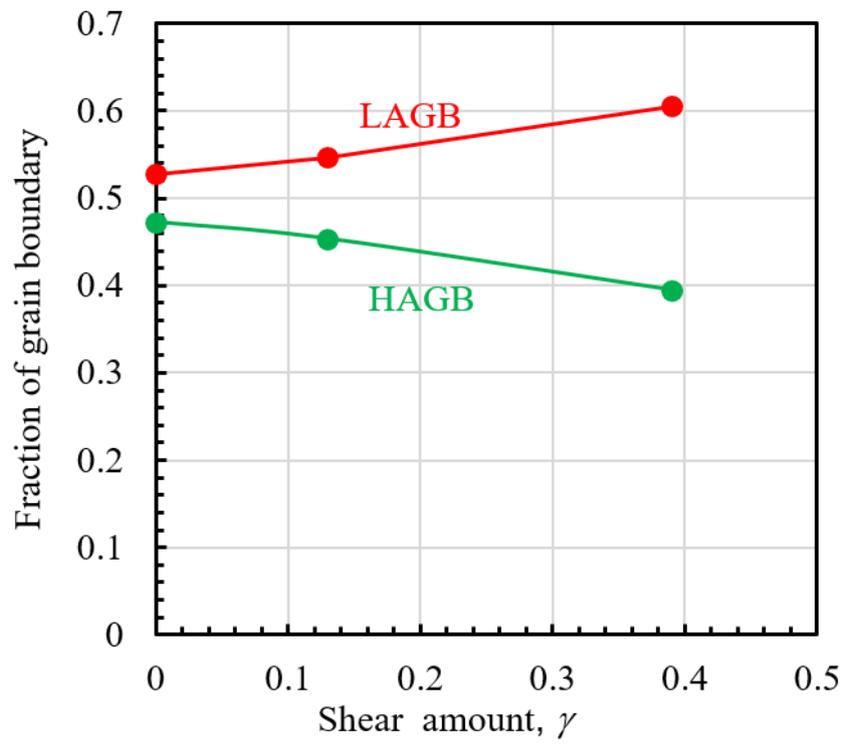


Fig. 2-6 Changes in the fraction of HAGB and LAGB during simple shear deformation.

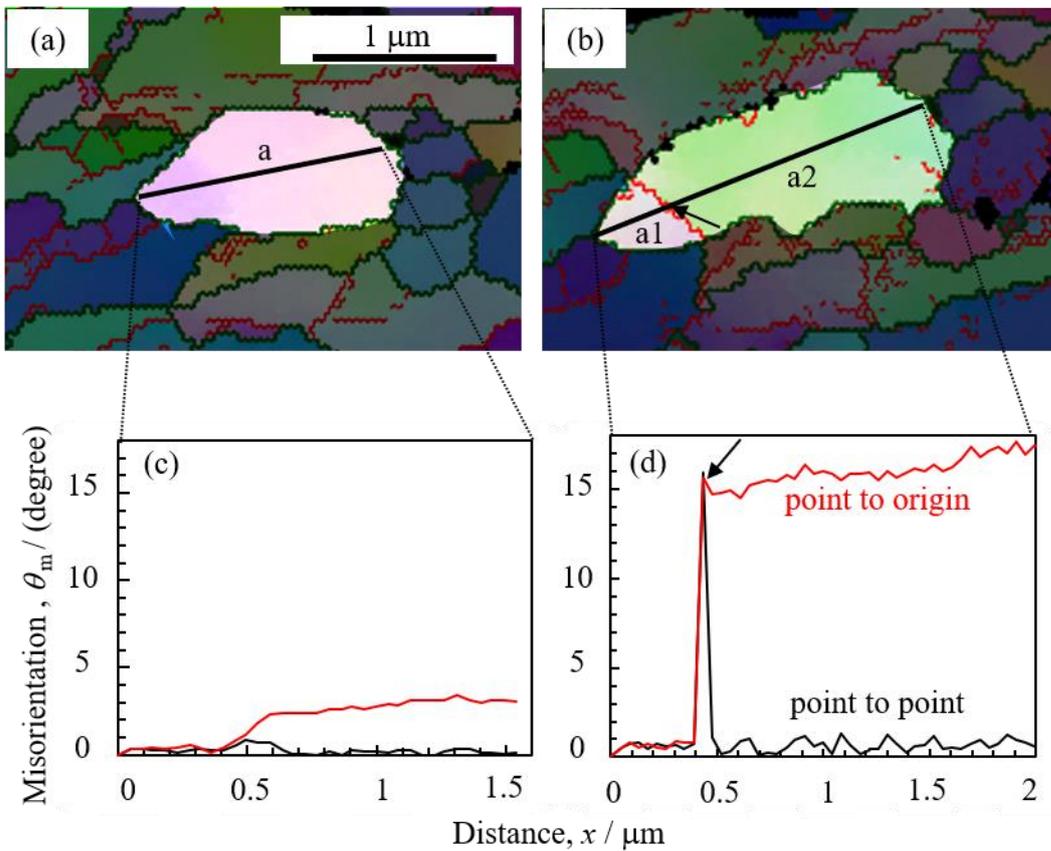


Fig. 2-7 Changes of IPF maps for the same region (a) before deformation ($\gamma=0$) and (b) after deformation ($\gamma=0.39$). The misorientation inside (c) the grain “a” at $\gamma=0$ and (d) the grains “a1” and “a2” at $\gamma=0.39$ were measured by line scanning of the black lines in the inverse pole figure maps.

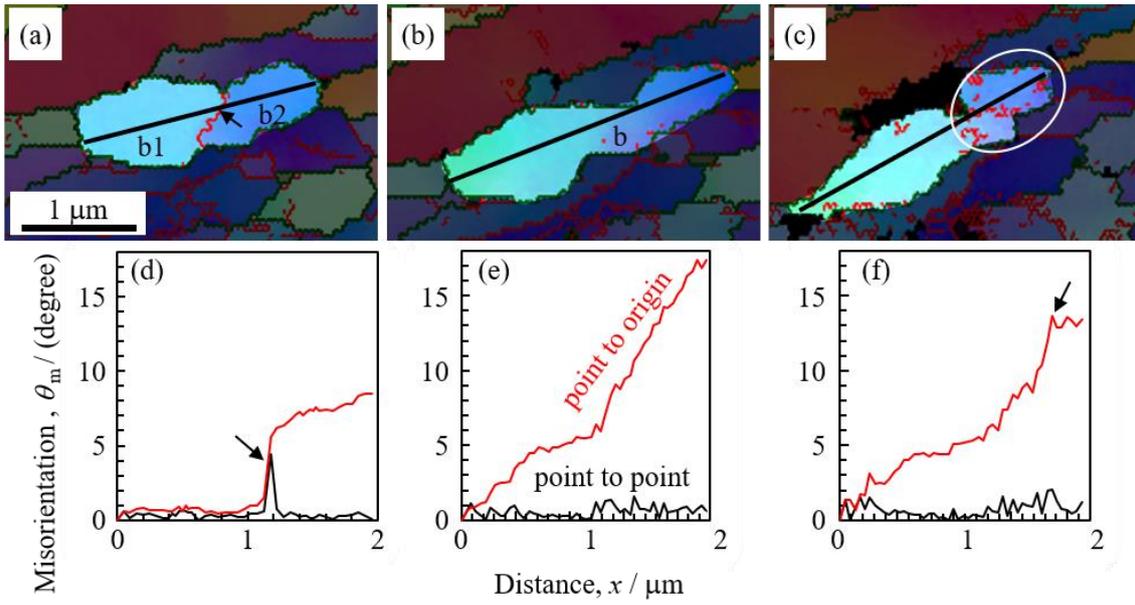


Fig. 2-8 Changes of IPF maps for the same region before and after deformation: (a) $\gamma=0$; (b) $\gamma=0.39$; (c) $\gamma=0.67$. The misorientation inside the grains “b1” and “b2” at (d) $\gamma=0$ and the grain “b” at (e) $\gamma=0.39$ and (f) $\gamma=0.67$ were measured by line scanning of the black lines in the inverse pole figure maps.

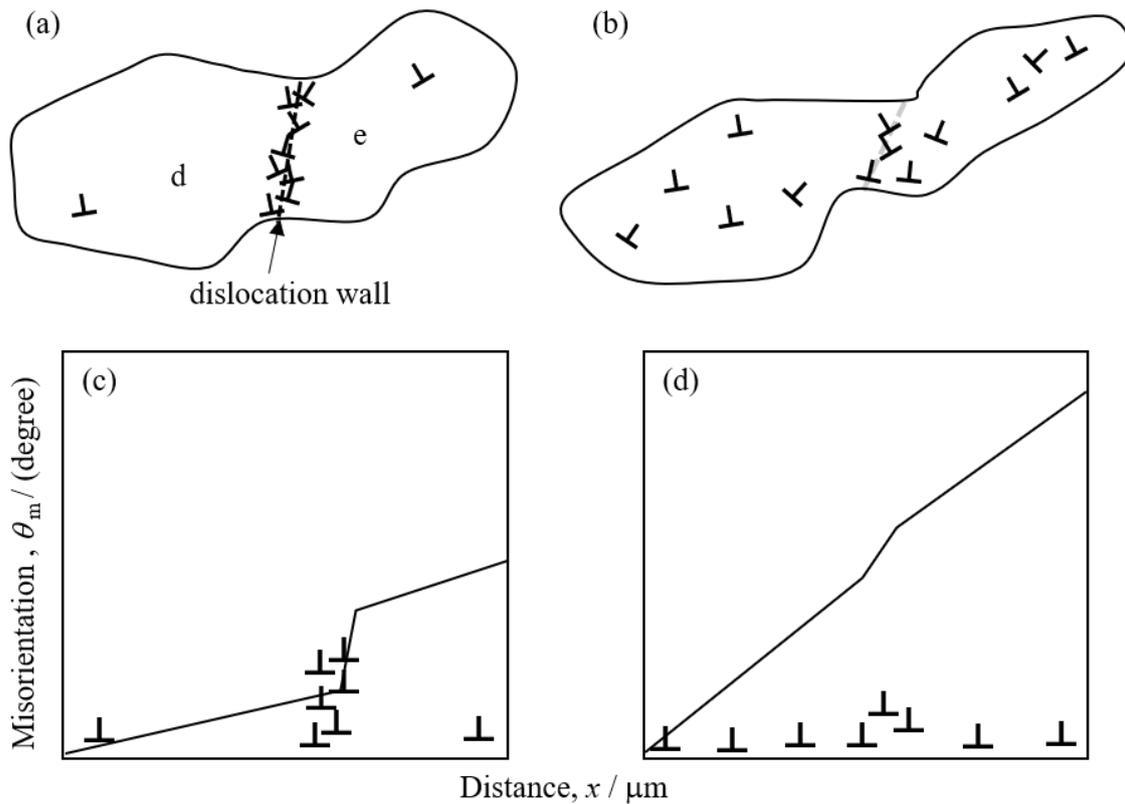


Fig. 2-9 Schematic illustrations of the process of grain coarsening shown in Fig. 2-8. (a) By emitting dislocation from the subgrain boundary by deformation, the grains “b1” and “b2” coarse to (b) the grain “b” due to the annihilation of the subgrain boundary. (c) and (d) show the relationship between the misorientation angle and the distance across the grain for the grains show in (a) and (b), respectively. Schematic representation of dislocation distribution in grains is also given in (c) and (d).

2. 5 結言

ECAP-8 passes, Route Bcにより作成された Cu の As-ECAP 材から, 切り欠き付き試験片を作製し, 切り欠きによるせん断帯形成が予想される領域に, FIB でマイクロスケールの格子を加工した. この試験片を用いて引張試験を行い, 変形前後での同一領域における SEM/EBSD 法による組織観察を行うことで以下の知見を得た.

- (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 倍の単純せん断量であることが分かった. この結果は, 切り欠き付き試験片を用いることで, 大きな単純せん断変形がおきた領域での SEM/EBSD 法による変形前後同一領域観察が可能であることを示す.
- (2) 大きな単純せん断変形がおきた領域において, 変形前後での同一領域における平均結晶粒径を測定したところ, 結晶粒の定義に関わらず変形段階によっては平均結晶粒径が増加した. この結果は, 超微細結晶粒は単純せん断変形により微細化と粗大化の両方が起きることを示すものである.
- (3) 個々の結晶粒の観察結果から, 結晶粒が grain subdivision によって微細化される様子と, 小角粒界の消滅により粗大化する様子について同一領域内において確認した. 一方で, 大角粒界で囲まれた結晶粒の粗大化過程については明確に識別することはできなかった.

参考文献

- 1) D. R. Fang, Q. Q. Dua, N. Q. Zhao, J. J. Li, S.D. Wu and Z. F. Zhang: *Sci. Eng. A*, **459** (2007) 137-144.
- 2) D. Orlov and A. Vinogradov: *Mater. Sci. Eng. A*, **530** (2011) 174-182.
- 3) V. M. Segal: *Mater. Sci. Eng. A*, **338** (2002) 331-344.
- 4) V. M. Segal: *Mater. Sci. Eng. A*, **406** (2005) 205-216.
- 5) A. Mishra, B. K. Kad, F. Gregori, M.A. Meyers: *Acta Mater.*, **55** (2007), 13-28.
- 6) R. Pippan, S. Scheriau, A. Taylor, M. Hafok, A. Hohenwarter and A. Bachmaier: *Annu. Rev. Mater. Res.*, **40** (2010) 319–343.
- 7) M.W. Kapp, T. Kremmer, C. Motz, B. Yang and R. Pippan: *Acta Mater.*, **125** (2017) 351-358.
- 8) N. Hansen and D. J. Jensen: *Trans. R. Soc. Lond. A*, **357** (1999) 1447-1469.
- 9) N. Hansen: *Mater. Trans. A*, **32** (2001) 2917-2935.
- 10) D. A. Hughes, N. Hansen and D. J. Bammann: *Scripta Mater.*, **48** (2003) 147-153.
- 11) O. Renk, A. Hohenwarter, S. Wurster and R. Pippan: *Acta Mater.*, **77** (2014) 401-410.
- 12) M. Kawasaki, Z. Horita and T. G. Langdon: *Mater. Sci. Eng. A*, **524** (2009) 143-150.
- 13) I. Sabirov, Y. Estrin, M. R. Barnett, I. Timokhin and P. D. Hodgson: *Acta Mater.*, **56** (2008) 2223-2230.

第3章 結晶方位の対数角を用いた表現とそれによる格子湾曲テンソルの評価

3. 1 緒言

第2章で SEM/EBSD 法から得られた組織変化について、より詳細な議論を行うためには、結晶内での塑性変形の進展や不均一性、つまり転位の運動や分布を調べる必要がある。結晶中の転位密度を定量的に議論する方法として、Nye¹⁾は結晶中での方位の場所による方位の変化を格子湾曲テンソル (Lattice Curvature Tensor) κ ($\kappa_{ij} = \delta\phi_i / \delta x_j$)により評価する方法を記している。Pantleon²⁾や Heら³⁾は、格子湾曲テンソルにおける回転角の x_i 軸回りの成分として $\Delta\Phi n_i$ を示しているが、序論でも述べたようにその理由については明確にされていない。このように、SEM/EBSD 法から得られるデータから格子湾曲テンソルを求める方法が必ずしも明確にされているわけではない。

本章では林ら⁴⁾と Onaka と Hayashi^{5, 6)}が報告している対数角 ω_i を用いて、位置の変化 Δx_j とそれに伴う方位回転 ΔR の対数角 $\Delta\omega_i$ の関係が、 x_j から $x_j + \Delta x_j$ での平均的な格子湾曲テンソル $\kappa_{ij} = \Delta\omega_i / \Delta x_j$ となることを明らかにし、SEM/EBSD 法から得られた結晶方位から格子湾曲テンソルを求める方法について明示する。

3. 2 対数角について

3. 2. 1 対数関数の意味

対数角の概要を記すに先立ち、対数の意味についてまとめる。よく知られているように、実数 x について、 x とその指数関数 $\exp x$ の間の関係は

$$\exp x = 1 + x + \frac{x^2}{2!} + \frac{x^3}{3!} + \frac{x^4}{4!} + \dots = \lim_{p \rightarrow \infty} \left(1 + \frac{x}{p} \right)^p \quad (3-1)$$

と書かれる。この関係は、 $y = \exp x$ ($y > 0$) とすると対数関数を使って、

$$y = \lim_{p \rightarrow \infty} \left(1 + \frac{\ln y}{p} \right)^p \quad (3-2)$$

となるが、 N を十分大きな正の整数とすれば、この式より

$$y \approx \left(1 + \frac{\ln y}{N} \right)^N \quad (3-3)$$

を得る。この式(3-3)を使うと、変形を記述するための種々の変数についてより良い理解を得ることができる。Fig. 3-1は、棒状物体の長手方向に沿った変形を考えるための模式図であり、変形前の初期長さが L_0 の状態が上に、均一な変形によって L_0 が $L = L_0 + \Delta L$ へと変化した後の状態が下に示されている。この状況について、公称ひずみ e の定義は $e = \Delta L / L_0$ である。また、変形前後での物体の長さの比に注目するストレッチ λ の定義は

$$\lambda = L / L_0 = (L_0 + \Delta L) / L_0 \quad (3-4)$$

であるので、 $\lambda > 0$ なる λ は公称ひずみ e と $\lambda = 1 + e$ なる関係を持つ。式(3-3)より

$$\lambda \approx \left(1 + \frac{\ln \lambda}{N} \right)^N \quad (3-5a)$$

を得て、この式は式(3-4)より

$$L \approx L_0 \left(1 + \frac{\ln \lambda}{N} \right)^N \quad (3-5b)$$

と書ける。対数ひずみ ε の定義は

$$\varepsilon = \ln(1 + e) = \ln \lambda \quad (3-6)$$

であるので、 L_0 , L そして ε の間の関係はこの式と式(3-5b)より十分大きな正の整数 N を使って、

$$L \approx L_0 \left(1 + \frac{\varepsilon}{N} \right)^N \quad (3-7)$$

と書くことができる.

式(3-7)は, 大きな変形の場合に合理的なひずみである対数ひずみの意味をよく示している. つまり, $|\varepsilon| \ll 1$ とは限らない大きな変形の場合にも, その変形を N 回の変形に分け, そのそれぞれに ε / N なる微小ひずみを加えたと考えれば, 変形に伴い物体の長さが徐々に変化することも考慮して, 変形全体のひずみを $\varepsilon = (\varepsilon / N) \times N$ として考慮できる. これが, 式(3-7)で与えられる対数ひずみ ε についての解釈である. 式(3-5a)についても, λ が変形をそのまま記述する値であることに対して, その対数 $\ln \lambda$ はその変形の程度を示す特性値と解釈することができる.

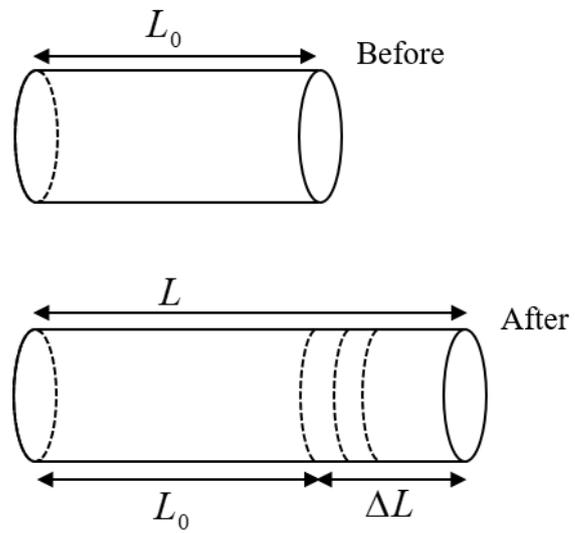


Fig. 3-1 Schematic illustration showing one-dimensional deformation of a bar. The lengths L_0 and $L = L_0 + \Delta L$ are those before and after the deformation.

3. 2. 2 対数角の概要

三次直交行列である \mathbf{R} とその対数 $\ln \mathbf{R}$ のあいだの関係は、 \mathbf{E} を三次単位行列として、式(3-2)を数から行列に拡張した

$$\mathbf{R} = \lim_{p \rightarrow \infty} \left(\mathbf{E} + \frac{\ln \mathbf{R}}{p} \right)^p \quad (3-8)$$

で表現できる。 $\ln \mathbf{R}$ は実数を要素とする三次の歪対称行列になり、対数角 ω_i はその要素として以下の様に定義されている。

$$\ln \mathbf{R} = \begin{pmatrix} 0 & -\omega_3 & \omega_2 \\ \omega_3 & 0 & -\omega_1 \\ -\omega_2 & \omega_1 & 0 \end{pmatrix} \quad (3-9)$$

\mathbf{R} から $\ln \mathbf{R}$ を計算する具体的な方法については本論文でも後に記す。3. 2. 1のときと同じく、 N を十分大きな正の整数とすれば、式(3-8)より

$$\mathbf{R} \approx \left(\mathbf{E} + \frac{\ln \mathbf{R}}{N} \right)^N \quad (3-10)$$

を得るが、式(3-10)を使ってこの関係を

$$\mathbf{R} \approx (\delta \mathbf{R})^N, \quad (3-11a)$$

$$\delta \mathbf{R} = \mathbf{E} + \left(\frac{\ln \mathbf{R}}{N} \right) = \begin{pmatrix} 1 & -(\omega_3/N) & (\omega_2/N) \\ (\omega_3/N) & 1 & -(\omega_1/N) \\ -(\omega_2/N) & (\omega_1/N) & 1 \end{pmatrix}, \quad (3-11b)$$

と書き直す。すると、対数ひずみ ε のときと同じように、対数角 ω_i の意味がわかりやすくなる。

まず、十分大きな N に対して $|\omega_i/N| \ll 1$ となるため、式(3-11b)の第三辺は $\delta \mathbf{R}$ が微小角度の回転であることを意味する。この $\delta \mathbf{R}$ は、 x_1 軸回りに角度 ω_1/N 、 x_2 軸回りに角度 ω_2/N 、そして x_3 軸回りに角度 ω_3/N という三つの連続回転と解釈でき、どの軸回

りの回転角度も微小であるため、どのような順番での連続回転であっても、それらの回転行列の積は要素の二次以上の項を無視することで式(3-11b)の第三辺になる。また、式(3-11a)は、 $\delta\mathbf{R}$ の N 乗、すなわち $\delta\mathbf{R}$ の N 回連続する変換が \mathbf{R} による変換と同じになることを意味している。よって、対数 $\ln \mathbf{R}$ の要素である対数角 ω_i は、各軸回りの回転角度を微小量に分割して交互に回転を繰り返すという意味において、 \mathbf{R} の ω_i 軸回りの回転角度であり、 \mathbf{R} の特性角度とみなせる。

3. 3 結晶内での位置の変化による方位の変化

Fig. 3-2 に示すように、位置の x_i から $x_i + \Delta x_i$ への変化に伴い、結晶の方位が $\Delta\mathbf{R}$ だけ変化したとする。そして、この変化 $\Delta\mathbf{R}$ を、 $\Delta\mathbf{R} \approx (\delta\mathbf{R})^N$ と $\delta\mathbf{R}$ なる微小回転が N 回連続したものとみなす。これは、 x_i と $x_i + \Delta x_i$ のあいだでの方位変化 $\Delta\mathbf{R}$ を均一とみなした結果であるので、この考え方のもと、 N 分割された位置の変化分 $\delta x_i = \Delta x_i / N$ に対する方位変化が $\delta\mathbf{R}$ となる。Fig. 3-2 に示されているように、微小な角度の回転 $\delta\mathbf{R}$ における x_i 軸回りの回転角度を $\delta\phi_i$ とし、 $\Delta\mathbf{R}$ の対数角を $\Delta\omega_i$ とすれば、式(3-9)と(3-11b)からわかるように、

$$\delta\phi_i = \Delta\omega_i / N \quad (3-12)$$

となる。よって、位置の変化分 δx_i と方位の変化分 $\delta\phi_i$ のあいだの関係は

$$\delta\phi_i / \delta x_j = \Delta\omega_i / \Delta x_j \quad (3-13)$$

と書ける。つまり、 δx_i から $\delta x_i + \Delta x_i$ への変化にともなう方位変化 $\Delta\mathbf{R}$ の対数角 $\Delta\omega_i$ を求めれば、これらの結果からそこでの平均的な格子湾曲テンソル $\boldsymbol{\kappa}$ は

$$\kappa_{ij} = \Delta\omega_i / \Delta x_j \quad (3-14a)$$

つまり

$$\boldsymbol{\kappa} = \begin{pmatrix} \Delta\omega_1 / \Delta x_1 & \Delta\omega_1 / \Delta x_2 & \Delta\omega_1 / \Delta x_3 \\ \Delta\omega_2 / \Delta x_1 & \Delta\omega_2 / \Delta x_2 & \Delta\omega_2 / \Delta x_3 \\ \Delta\omega_3 / \Delta x_1 & \Delta\omega_3 / \Delta x_2 & \Delta\omega_3 / \Delta x_3 \end{pmatrix} \quad (3-14b)$$

となる。

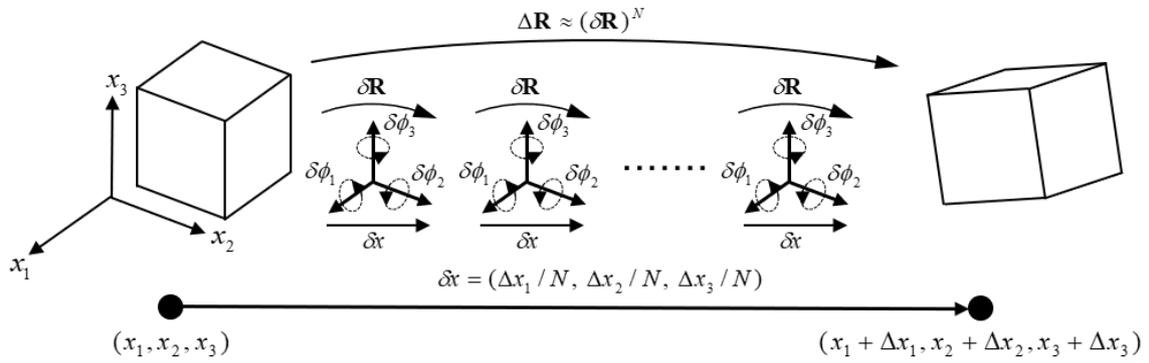


Fig. 3-2 The change in a crystal orientation as much as $\Delta \mathbf{R}$ with the change in a position from (x_1, x_2, x_3) to $(x_1 + \Delta x_1, x_2 + \Delta x_2, x_3 + \Delta x_3)$. $\delta \mathbf{R}$ is a small-angle rotation which satisfies $\Delta \mathbf{R} \approx (\delta \mathbf{R})^N$ where N is a sufficiently large positive integer. The relationship $\Delta \mathbf{R} \approx (\delta \mathbf{R})^N$ means that the N times continuous rotations of $\delta \mathbf{R}$ with an interval of $\delta \mathbf{x} = (\Delta x_1 / N, \Delta x_2 / N, \Delta x_3 / N)$ is equivalent to $\Delta \mathbf{R}$. The angles $\delta \phi_i$ are the small rotation angles of $\delta \mathbf{R}$ around the x_i axis.

3. 4. Axis/Angle ペア一で示される方位回転の対数角

ベクトル n_i 周りの角度 Φ ($0 \leq \Phi \leq \pi$) の回転に対応する回転行列 \mathbf{R} は

$$\mathbf{R} = \begin{pmatrix} (1-n_1^2)\cos\Phi + n_1^2 & n_1n_2(1-\cos\Phi) - n_3\sin\Phi & n_3n_1(1-\cos\Phi) + n_2\sin\Phi \\ n_1n_2(1-\cos\Phi) + n_3\sin\Phi & (1-n_1^2)\cos\Phi + n_2^2 & n_2n_3(1-\cos\Phi) - n_1\sin\Phi \\ n_3n_1(1-\cos\Phi) - n_2\sin\Phi & n_2n_3(1-\cos\Phi) + n_1\sin\Phi & (1-n_3^2)\cos\Phi + n_3^2 \end{pmatrix} \quad (3-15)$$

となる。この式より、 Φ が微小回転 $\delta\Phi \ll 1$ の場合の回転行列 $\delta\mathbf{R}$ は

$\sin \delta\Phi \approx \delta\Phi$, $\cos \delta\Phi \approx 1$ と近似して、

$$\delta\mathbf{R} = \begin{pmatrix} 1 & -\delta\Phi n_3 & \delta\Phi n_2 \\ \delta\Phi n_3 & 1 & -\delta\Phi n_1 \\ -\delta\Phi n_2 & \delta\Phi n_1 & 1 \end{pmatrix} \quad (3-16)$$

となることが分かる。このとき、もとの回転軸、単位ベクトル n_i 周りのもとの、

$$\delta\Phi = \Phi / N \quad (3-17)$$

なる微小回転を N 回繰り返したと考えれば、式(3-11a)と同じく、 \mathbf{R} と $\delta\mathbf{R}$ のあいだの関係は $\mathbf{R} \approx (\delta\mathbf{R})^N$ となるので、式(3-9), (3-11b), (3-16)から、式(3-15)の \mathbf{R} の対数 $\ln \mathbf{R}$ は

$$\ln \mathbf{R} = \begin{pmatrix} 0 & -\Phi n_3 & \Phi n_2 \\ \Phi n_3 & 0 & -\Phi n_1 \\ -\Phi n_2 & \Phi n_1 & 0 \end{pmatrix} \quad (3-18)$$

であり、 \mathbf{R} の対数角 ω_i は

$$\omega_i = \Phi n_i \quad (3-19)$$

であることがわかる。誤解のないように付け加えれば、式(3-15)で示される \mathbf{R} の回転角 Φ が微小な値でなくとも、その対数 $\ln \mathbf{R}$ は式(3-18)で与えられる。以上より、単位ベクトル n_i とその軸回りの回転角 Φ という axis/angle ペア一で表現される回転行列の対数角 ω_i は、それらの積 Φn_i に等しいことがわかる。よって、Pantleon や He らが記しているように、結晶方位変化の回転角が $\Delta\Phi$ の場合、 n_i と $\Delta\Phi$ の積 $\Delta\Phi n_i$ は、対数角 ω_i と同じように、細かく分割した角度の総和という意味で、各軸回りの回転の成分とみなせ、これを使っ

て格子湾曲テンソル $\boldsymbol{\kappa}$ を評価することができる。

回転行列 \mathbf{R} のその対数 $\ln \mathbf{R}$ のあいだの関係は、式(3-15)と(3-18)からわかるように、 \mathbf{R} の転置行列を ${}^t\mathbf{R}$ として、

$$\ln \mathbf{R} = \frac{\Phi}{2 \sin \Phi} (\mathbf{R} - {}^t\mathbf{R}) \quad (3-20)$$

と書けることが分かる。この式が成立する証明は文献⁷⁾にも記されている。また、 $\text{Tr} \mathbf{R}$ を \mathbf{R} の固有和として、 Φ は

$$\cos \Phi = (\text{Tr} \mathbf{R} - 1) / 2 \quad (3-21)$$

より求めることができる⁸⁾。一般に、行列の対数は対角化に始まる手続きで決定され、**Mathematica** 等の最近の数式処理ソフトウェアには行列の対数を求めるためのコマンドが実装されている。しかし、回転行列 \mathbf{R} の対数 $\ln \mathbf{R}$ については、式(3-20)と(3-21)がその値を計算するために有用になる。

5. 6 結言

回転行列 \mathbf{R} の対数 $\ln \mathbf{R}$ の要素である対数角 ω_i を使って、結晶粒内での方位変化の測定結果から格子湾曲テンソル $\boldsymbol{\kappa}$ を求めるための操作を考察した。 Δx_i だけの位置の変化にともなう方位の変化が $\Delta \mathbf{R}$ である場合、 $\Delta \mathbf{R}$ の対数角 $\Delta \omega_i$ を使って、そこでの平均的な格子湾曲テンソルは $\kappa_{ij} = \Delta \omega_i / \Delta x_j$ となる。結晶回転が単位ベクトル n_i 周りの回転角 $\Delta \Phi$ で示される場合、この回転の対数角は $\Delta \omega_i = \Delta \Phi n_i$ となるため、 $\Delta \omega_i$ と同じく $\Delta \Phi n_i$ もこの回転の x_i 軸回りの成分とみなせる。

参考文献

- 1) J. F. Nye: *Acta Metall.*, **1** (1953) 153-162.
- 2) W. Pantleon: *Scr. Mater.*, **58** (2008) 994-997.
- 3) W. He, W. Ma and W. Pantleon: *Mater. Sci. Eng. A*, **494** (2008) 21-27.
- 4) K. Hayashi, M. Osada, Y. Kurosu, Y. Miyajima and S. Onaka: *J. Japan Inst. Met. Mater.*, **79** (2015) 9-15.
- 5) S. Onaka and K. Hayashi: *J. Math. Chem.*, **54** (2016) 1686-1695.
- 6) S. Onaka and K. Hayashi: *Scanning*, **2017** (2017) 4893956.
- 7) A. Morawiec: *Orientations and Rotations, Computations in Crystallographic Textures*, (Springer, New York, 2004) p. 63.
- 8) H. Grimmer: *Acta Cryst. A*, **40** (1984) 108-112.

第4章 単純せん断変形後に微細化および粗大化した結晶粒の方位変化評価

4.1 緒言

第2章では、UFG材の塑性変形に伴う組織変化過程について、単純せん断変形前後における同一領域でのSEM/EBSD法による観察より、結晶粒界の形成と消滅が同一領域内、同一変形段階で発生することを明らかにした。第3章においては、SEM/EBSD法により得られた結晶方位について対数角による解析を行うことで、領域内の格子湾曲テンソルを明らかにする具体的な手順を示した。

第2章で明らかにしたように、UFG材に塑性変形が加えられた際に、結晶粒の微細化と粗大化が同時に発生するという事は、すなわちSPDにより試料に大きなひずみが加えられた際にも結晶粒の微細化と粗大化が発生し、これがSPDに結晶粒微細化限界が存在する理由であるといえる。このような組織変化についてより明らかにする上で、塑性変形による転位組織の変化を調べることは重要である。結晶粒微細化についてはgrain subdivisionとして明らかにされている一方で、第2章で述べた結晶粒界の消滅による粗大化については十分に示されているとは言えない。しかし、SEM/EBSD法により得られた結晶方位から領域内のGN転位の分布を評価する方法は確立しており、同一領域でのSEM/EBSD法による観察からこのような組織変化過程について、明らかにする下地は整っているとと言える。また、これまでにAjisakaら¹⁾やHayashiら²⁾が方位変化の評価方法として対数角そのものを用いたように、塑性変形に伴う結晶粒内の方位変化を従来とは異なる表現方法で評価することで、結晶粒界の消滅の原因について明らかにできる可能性がある。

本章では、第2章と同様の方法による実験および観察をAl(A1070)のUFG材に対して行い、他のFCC金属材料における結晶粒界消滅による粗大化を調べる。またSEM/EBSD法により得られた結晶方位について対数角による解析を行うことで、結晶粒内におけるGN転位の分布を評価し、UFG材の塑性変形に伴う組織変化過程を明

らかにする.

4. 2 実験方法

供試材として工業用純 Al(A1070, 純度 99.7 mass%)を使用した. 試料の初期形状は直径 10 mm, 長さ 60 mm の棒状とした. 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 673 K で 7.2 ks で焼鈍し再結晶組織を得た. その後 ECAP 加工を Route Bc で 8 回繰り返して 1 μm 以下の結晶粒を含む UFG 材を作製した. 引張試験片の形状は Fig. 2-1(a), (b)と同形状とした. 一方, FIB による試料表面への加工条件はビーム径を約 100 nm, ドーズ量を 0.7 nC/ μm^2 とし, 加工する格子形状については Fig. 4-1 に示す形状とした. 格子の加工については Fig. 2-1(a)で示したせん断変形領域内のみとした.

引張試験についても, 2. 2. 2と同様の条件で行った. また, 本章でも断面形状が一定でない試験片を用いているため, 式(2-1)と(2-2)によるみかけの応力 σ_{ap} とみかけのひずみ ε_{ap} を用いた評価を行った. これにより得られたみかけの応力—ひずみ曲線を Fig. 4-2 に示す. また, SEM/EBSD 法による観察を行うため, $\varepsilon_{\text{ap}} = 0.03, 0.05, 0.07$ での除荷を行った. SEM/EBSD 法による観察についても 2. 2. 2と同様の方法および条件で行った.

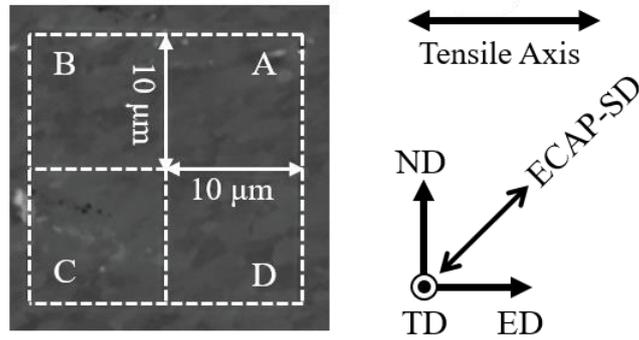


Fig. 4-1 The white broken lines show the schematic shape of the FIB-scribed lattices. The coordinate axes of ECAP (TD: transverse direction, ND: normal direction, ED: extrusion direction, ECAP-SD: shear direction of final ECAP) are also shown.

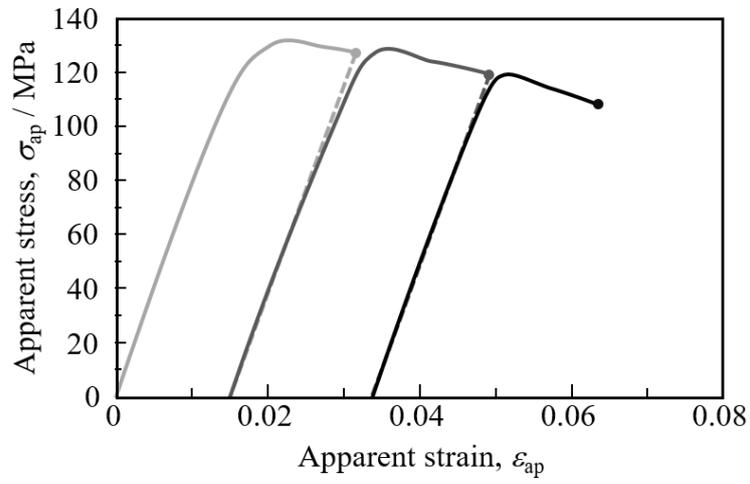


Fig. 4-2 $\sigma_{ap}-\varepsilon_{ap}$ curve for the tensile test of the notched specimen. The specimen was unloaded at $\varepsilon_{ap} = 0.03, 0.05$ and 0.07 .

4. 3 実験結果

本章においても第2章と同様に、FIBにより加工した格子内における変形について評価するため、 $\varepsilon_{ap} = 0.03, 0.05, 0.07$ における各格子内の平均的な変位勾配テンソルについて Fig. 4-3(a), (b)に示すような SEM 像の比較から評価した。変形の評価については2. 3と同様に、Fig. 4-3(c)に示すような試験片の切り欠きに沿った x'_2 - x'_3 座標系に基づく変位勾配テンソル u'_{ij} ($u'_{2,2}, u'_{2,3}, u'_{3,2}, u'_{3,3}$)により格子の変形量を評価した。この評価により、全ての格子における $u'_{3,2}$ が他の成分と比べて約 10 倍の大きさであることが分かり、2章における純 Cu と同様の結果となることを確認した。すなわち、純 Al についても切り欠き付き試験片を用いることで、切り欠きの間の領域で大きな単純せん断変形を発生させたと言える。そこで本章においてはせん断量 γ について

$$\gamma = u'_{3,2} \quad (4-1)$$

と定義し議論を行う。Table 4-1 に示すように各変形段階における各格子にせん断量 γ の大きな差は無く、 $\varepsilon_{ap} = 0.07$ における各格子での γ はいずれも約 0.6 となる。ECAP-1pass あたりの単純せん断変形量は 2 であることから^{3, 4)}、 $\varepsilon_{ap} = 0.07$ での切り欠き付き試験片のせん断帯における単純せん断変形は、ECAP-1pass あたりの単純せん断変形量の 30%に相当するといえる。

Table 4-1. The shear amount γ of each lattice at $\varepsilon_{ap} = 0.03, 0.05$ and 0.07

	$\varepsilon_{ap} = 0.03$	$\varepsilon_{ap} = 0.05$	$\varepsilon_{ap} = 0.07$
A	0.09	0.39	0.60
B	0.10	0.35	0.57
C	0.11	0.34	0.59
D	0.10	0.39	0.61

引張試験前および $\varepsilon_{ap} = 0.03, 0.05, 0.07$ での、SEM/EBSD法による格子内の観察により得られたIPFマップについてFig. 4-4に示す。これらのIPFマップ内にはFig. 2-5と同様にHAGBとLAGBに加え、加工した格子の位置についても示した。Fig. 4-4の各変形段階におけるIPFマップの比較から、引張試験により結晶粒の形状や方位の変化が起きていることが分かる。一方で、Fig. 4-5(a)に引張試験に伴う全格子内での平均結晶粒径の変化を示すように、このような結晶粒の変化に関わらず、変形に伴う平均結晶粒径の著しい減少は確認できず、一部の変形段階では平均結晶粒径の増加についても確認した。これは、第2章で述べたような変形前後における同一領域内での結晶粒の微細化と粗大化が同時に発生していることによるものであると言える。また、単純せん断塑性変形による大角粒界と小角粒界の占める割合の変化についてはFig. 4-5(b)に示すように、Cuにと同様に加えたひずみの範囲内では著しい変化については確認できなかった。

次に、個々の結晶粒について観察を行った結果、格子Dにおいて変形前後での同一結晶粒グループ内における結晶粒の粗大化と微細化を確認した。この結晶粒グループのIPFマップについてFig. 4-6に示す。引張試験前についてはFig. 4-6(a)に示すように、結晶粒cとdは約 5° の方位差からなるLAGBによって互いに隔てられている。格子内の変形が進むにつれ、Fig. 4-6(b), (c)に示すように、このLAGBの方位差は徐々に減少した。最終的には $\gamma = 0.61$ において、結晶粒c, d間の方位差は 2° 以下にまで減少し、LAGBの消滅により粗大化した。一方、結晶粒dの内部では格子内の変形に伴って方位差が増加し、 $\gamma = 0.39$ においてはFig. 4-6(c)に示すように、新たなLAGBの発生により結晶粒dは結晶粒d1とd2に微細化された。

このようにAlを扱った本章においても、Cuを扱った2章で述べたような単純せん断変形による結晶粒界の形成と消滅を同一領域で確認することができ、FCC金属については材料の特性によらず同様の現象が起きることが示唆された。しかし、UFG材の

塑性変形に伴う結晶粒粗大化の原因として他に指摘されている grain boundary migration⁵⁻⁹⁾や動的再結晶^{10, 11)}については、観察した領域内では明確に特定することができなかった。

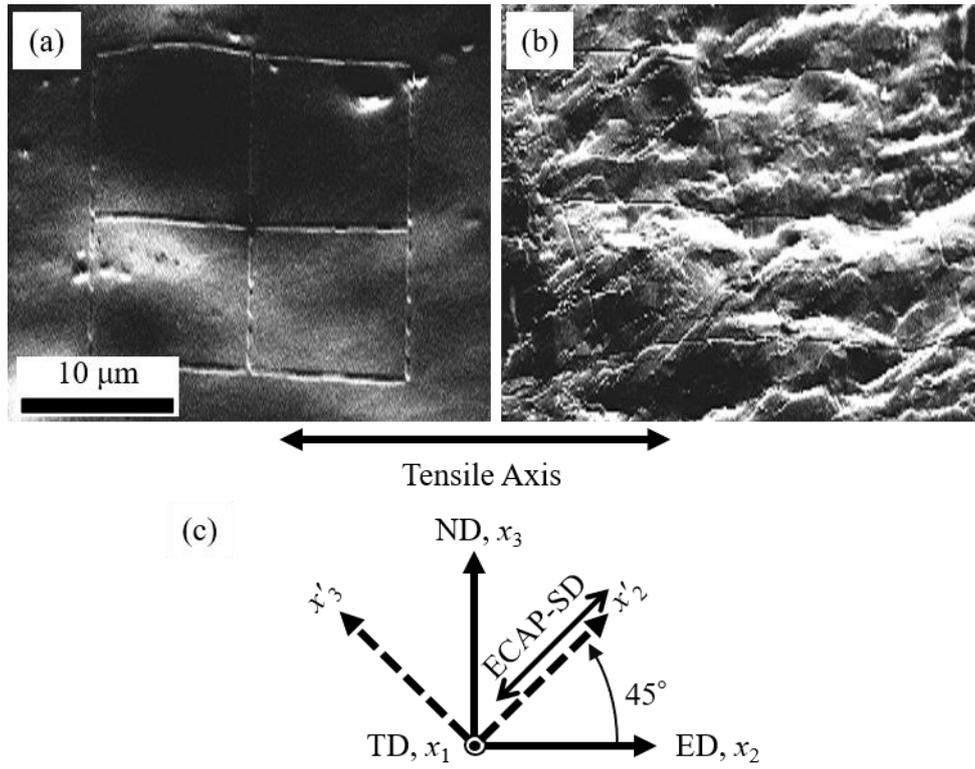


Fig. 4-3 SEM images of the lattices inside a shear band (a) after ECAP and (b) after unloading at $\varepsilon_{ap} = 0.07$. (c) Relationship between the sample coordinate system and orthogonal coordinate system (x_1 - x_2 - x_3). The x_1 - x'_2 - x'_3 coordinate system was transformed with a counterclockwise rotation of 45° around the TD axis.

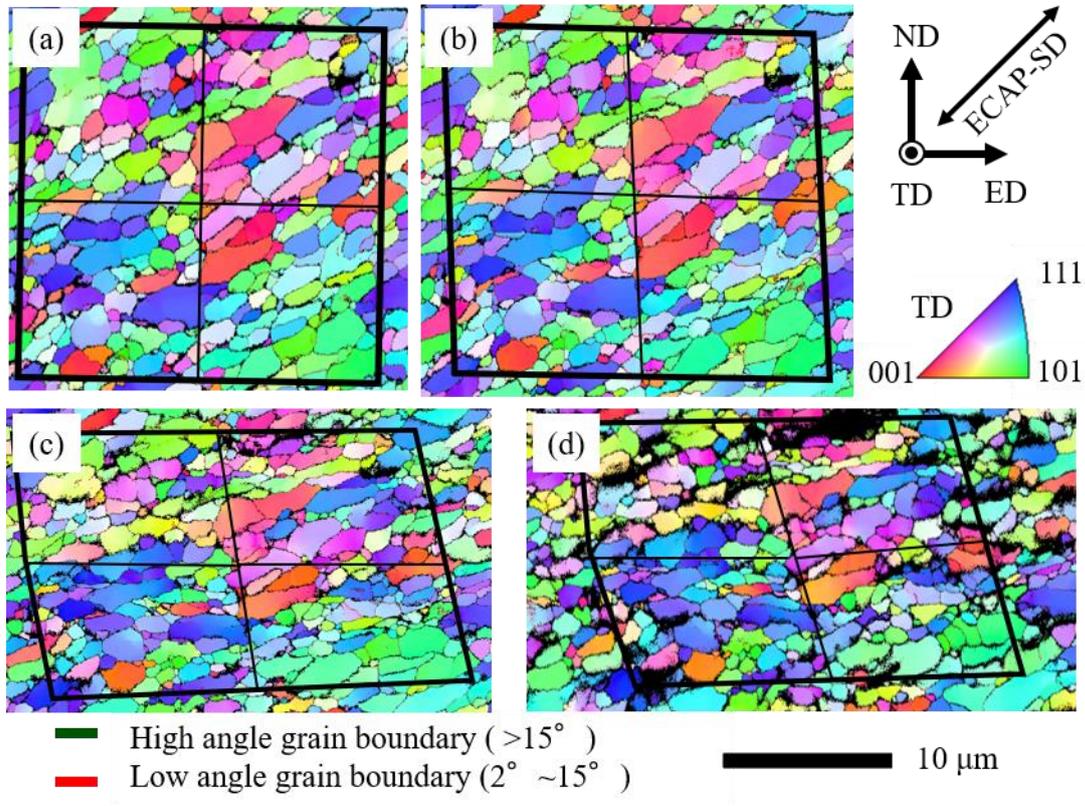


Fig. 4-4 IPF maps showing crystal orientations with HAGBs and LAGBs (a) before the tensile test and at (b) $\epsilon_{ap} = 0.03$, (c) $\epsilon_{ap} = 0.05$, and (d) $\epsilon_{ap} = 0.07$. The black lines represent the FIB-scribed lattices. The sample coordinate system and color code of the IPF maps are also shown.

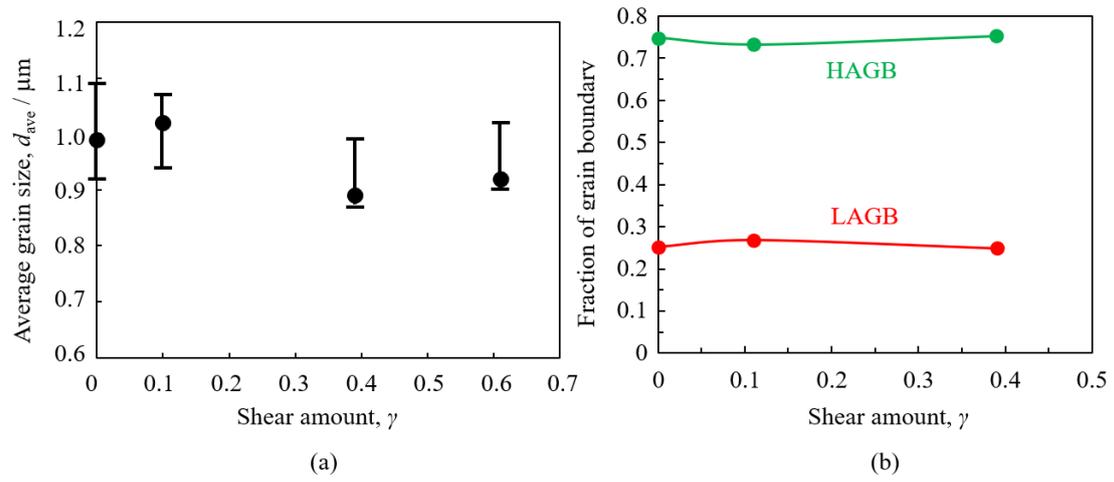


Fig. 4-5 (a) Average grain size and (b) changes in the fraction of HAGB and LAGB at each deformation stage.

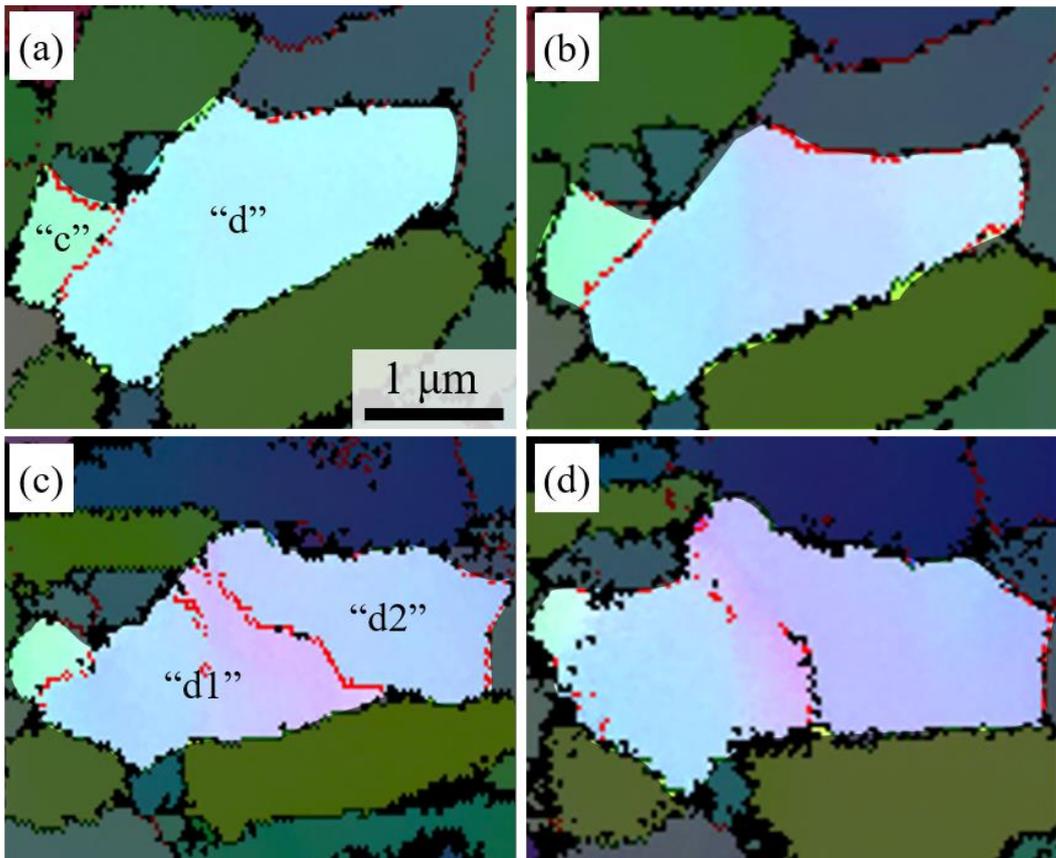


Fig. 4-6 IPF maps for grains “c” and “d” (a) before the tensile test and at (b) $\gamma = 0.10$, (c) $\gamma = 0.39$, and (d) $\gamma = 0.61$. These grains are in lattice “D” in Fig. 4-1.

4. 4 対数角による結晶粒内方位差の解析

4. 4. 1 変形に伴う結晶粒内での位置による対数角の変化

本章においては第3章で述べた対数角による解析を用いて、変形に伴う結晶方位の変化について評価を行った。同一領域における変形前後の結晶方位の変化を対数角解析により評価する上で、対数角は基準となる直交座標系に対する回転行列 \mathbf{R} を基に表現しているため、変形の前後での観察における基準座標系が同一であることが必要である。しかし本研究では各変形段階において、観察や試験を行う度に試料を SEM ホルダから着脱していることから、各変形段階での基準座標系が変化している可能性がある。このような理由から、本研究では、変形前後における結晶方位を単純に比較することはできない。そこで各変形段階において基準となる測定点を設け、その測定点から他の測定点との方位差を対数角により表現した。この方法は同一変形段階での結晶粒内または結晶粒群内での結晶方位の変化を示すため、基準座標系のずれを考慮する必要がない。そのため、変形前後での同一結晶粒内または結晶粒群内での変形に伴う結晶方位の変化を、位置の変化に応じた対数角の変化 $\Delta\omega_i$ から評価することができる。加えて、基準点を設定する際に変形前後で同一の基準点とすることで、変形に伴う結晶方位変化をより明確に評価することができる。

Fig. 4-7 は上述の対数角による解析方法を用いて、Fig. 4-6 に示した結晶粒 c と d の結晶内の方位差を試料座標系を基にした $\Delta\omega_i$ により示したものである。変形前後で同じ位置を特定することは非常に困難であるため、各変形段階における IPF マップ上の結晶粒 c の図心を便宜的に同じ位置とみなし、基準となる測定点での結晶方位としている。ここで、結晶粒 c の図心を基準点としたのは、変形に伴う結晶粒 a の形状や結晶方位の変化が比較的小さいことが理由である。

Fig. 4-7 での変形に伴う隣接する領域間の $\Delta\omega_i$ を比較することで、結晶粒 c, d における結晶粒界の形成と消滅過程をより詳細に議論することが可能である。そこで Fig. 4-7 に示すように、結晶粒 d ($\gamma = 0.39, 0.61$ では d1, d2) の結晶粒界を基準として3つの

領域に分けた。次に、結晶粒 c とこれらの領域について、隣接する領域間の $\Delta\omega_i$ の変化を評価した。この結果 $\gamma=0.39$ における結晶粒 d 内での新たな結晶粒界の形成については、結晶粒 b の中央領域と右側領域での $\Delta\omega_1$ と $\Delta\omega_2$ の増加によるものであることが分かった。更に、 $\gamma=0.61$ での結晶粒 c と d を隔てる結晶粒界の消滅は、結晶粒 c と結晶粒 d の左側領域における $\Delta\omega_1$ が減少したことに起因していることがわかった。これらの結果は結晶粒 c, d における結晶粒界の形成と消滅について、どちらも x_1 軸回りの結晶方位の変化が大きく関与していることを示唆していた。この理由としては切り欠きによる板面内単純せん断変形の発生が挙げられる。Fig. 4-7 に示すように、切り欠きにより誘起される x_2 - x_3 面での板内単純せん断変形は、 x_1 軸回りでの大きな回転をもたらすため、それに応じて x_1 軸回りでの結晶方位変化が誘起されたと考えられる。

4. 4. 2 転位密度テンソルによる解析

3章では場所に応じて変化する $\Delta\omega_i$ から格子湾曲テンソルを表現する方法について述べた。Nye¹²⁾は体積中の格子湾曲テンソルと GN 転位の分布の関係についてクロネッカーのデルタ δ_{ij} を用い、次のような Nye の転位密度テンソル α_{ij} により示した¹²⁾。

$$\alpha_{ij} = \kappa_{ji} - \delta_{ij}\kappa_{ij} \quad (4-2)$$

ここでの δ_{ij} についてはクロネッカーのデルタであり、 α_{ij} の非対角成分は刃状転位における GND の密度を与える。Fig. 4-8 にこのような具体的な状況として、 x_2 と $x_2 + \Delta x_2$ の間に x_2 軸と平行なバーガースベクトル b を有する刃状転位が存在する場合の x_1 軸回りにおける結晶方位の変化を模式的に示した。すなわち、2点間における $\Delta\omega_i$ を用いて、そこでの平均的な GN 転位の密度 ρ_{ij} ($i \neq j$) はそれぞれ対応する転位密度テンソル α_{ij} から次のように示すことができる¹²⁾。

$$\rho_{ij} = \alpha_{ij} / b \quad (4-3)$$

すなわち、式(3-14b)、(4-2)と(4-3)から ρ_{ij} の非対角成分についてはバーガスベクトル b を用いて次のように示される。

$$\rho_{ji} = \frac{\Delta\omega_i}{\Delta x_j} \frac{1}{b} (i \neq j) \quad (4-4)$$

ここで式(4-3)と式(4-4)については添え字 i, j の順序が異なることに注意する必要がある。式(4-4)より求められた転位密度については、バーガスベクトルが常に基準直交座標系と並行であると仮定し、FCC金属材料のすべり系である $\{111\}\langle 110 \rangle$ によるバーガスベクトルのベクトル方向を基準としていないため、正確な値とはならないものの、大きさの程度については評価することができる。

本研究における試料表面(x_2 - x_3 面)でのSEM/EBSD法による結晶方位測定から、転位密度テンソルの非対角成分の内、平面内成分($\rho_{12}, \rho_{13}, \rho_{23}, \rho_{32}$)について解析することが可能である。そこで、結晶粒 d 内では測定点間 Δx_i に存在する刃状転位のバーガスベクトルが、常に座標軸 x_i に平行であると仮定して、そこでの $\alpha_{21}, \alpha_{31}, \alpha_{32}, \alpha_{23}$ にそれぞれ対応する転位密度 $\rho_{12}, \rho_{13}, \rho_{23}, \rho_{32}$ について次の手順により導出した。

- (1) Fig. 4-7に示した結晶粒 d 内における $\Delta\omega_i$ の分布の5次多項式曲面への近似を行う。
- (2) 得られた式を偏微分することで、位置の変化 δx_j に対する $\delta\omega_i$ を得る。
- (3) バーガスベクトル $b = 0.286\text{nm}$ として式(4-3)より $\rho_{12}, \rho_{13}, \rho_{23}, \rho_{32}$ を導出する。

手順(1)において、 $\gamma = 0.39$ における結晶粒 d 全体の $\Delta\omega_i$ の分布を近似した際、良好な結果は得られなかった。この理由として、近似した領域には結晶粒界が含まれており、その場所での方位差の勾配が大きいことが挙げられる。そこで、Fig. 4-7で示した3つの領域に分け、それぞれの領域での近似を行った。一方、同様に結晶粒 d 内に結晶粒界が存在する $\gamma = 0.61$ では、中央領域の測定点が十分でないため近似することができなかった。

Fig. 4-9 と, Fig. 4-10 に結晶粒 d における $\gamma=0.10$ と $\gamma=0.39$ での転位密度 ρ_{21} , ρ_{23} , ρ_{31} , ρ_{32} について示す. 引張試験前はいずれの転位密度についても 10^{14} m^{-2} 以下であり, 引張試験後は $10^{14} \sim 10^{15} \text{ m}^{-2}$ の範囲内となった. これらの結果は, UFG 材料の TEM¹³⁾ や XRD (X-ray diffraction)¹⁴⁾ による転位密度の測定と一致しており, 妥当な結果であるといえる.

Fig. 4-9 と Fig. 4-10 に示すように, 変形時に伴い, 結晶粒 d 内での転位密度が増加し, また結晶粒界近傍で転位密度の一部の成分が非常に高くなっていることが分かる. 更に Fig. 4-10 からは, 結晶粒 d 内で形成された結晶粒界の左側と右側では転位密度の各成分の値とそれらの分布がそれぞれ大きく異なることが分かる. このような結晶粒 d 内における転位の分布は, 塑性変形に伴い同一の結晶粒内において場所により異なるすべり系が活動したことによる, それらの方位差を補うのため GNDs の分布を示す^{15, 16)}. このようなすべり系の活動は結晶粒微細化過程との関連が報告されており, すなわち, Fig. 4-10 は結晶粒 d 内の結晶粒微細化過程における, 塑性変形により形成された転位壁を構成する GNDs について転位密度テンソルにより明らかにしたものであると言える.

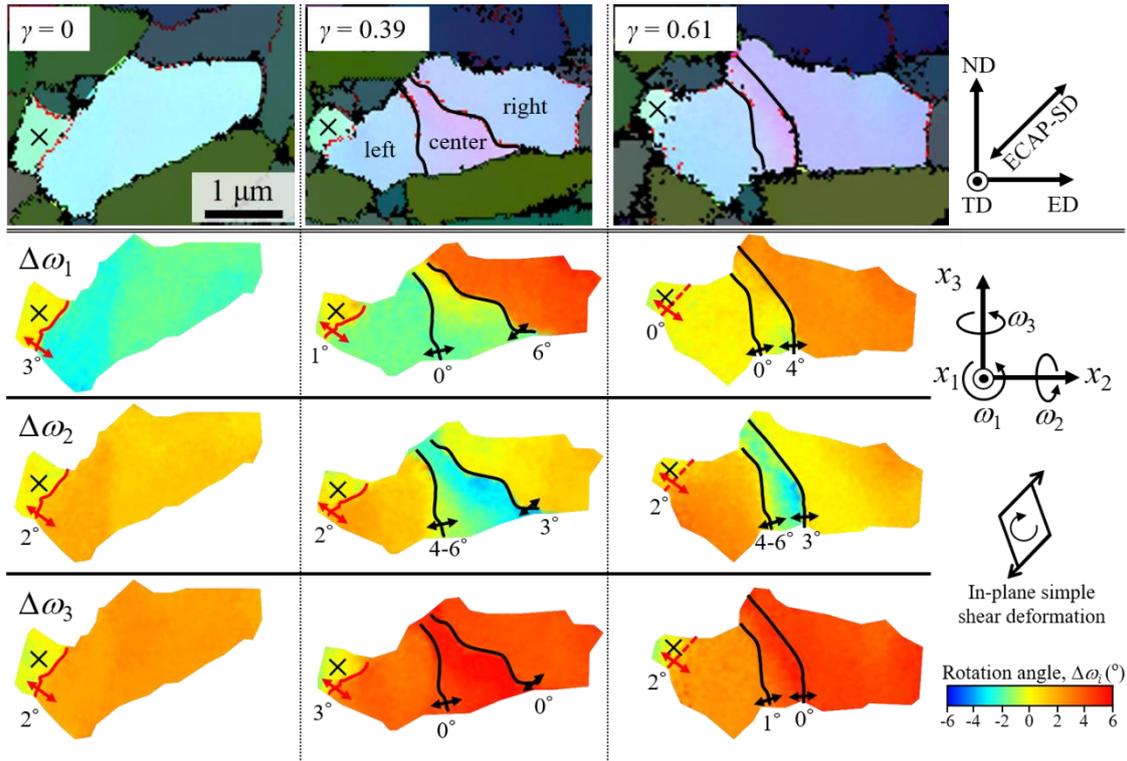


Fig. 4-7 IPF maps and log-angle maps for grains “c” and “d” (“d1” and “d2” at $\gamma = 0.39$ and 0.61). The “X” mark in each IPF map represents the reference crystal orientation for log-angle analysis at each deformation stage. The IPF maps at $\gamma = 0.39$ and 0.61 show that grains “d1” and “d2” were divided into three regions with respect to LAGBs. In the log-angle maps, the LAGBs and boundaries of the regions are indicated by red and black lines, respectively. At $\gamma = 0.61$, the red dashed lines represent the position of the original LAGB between grains “c” and “d”. The double-headed arrows in log-angle maps for grains show the typical value of the difference of the log angles between adjacent regions.

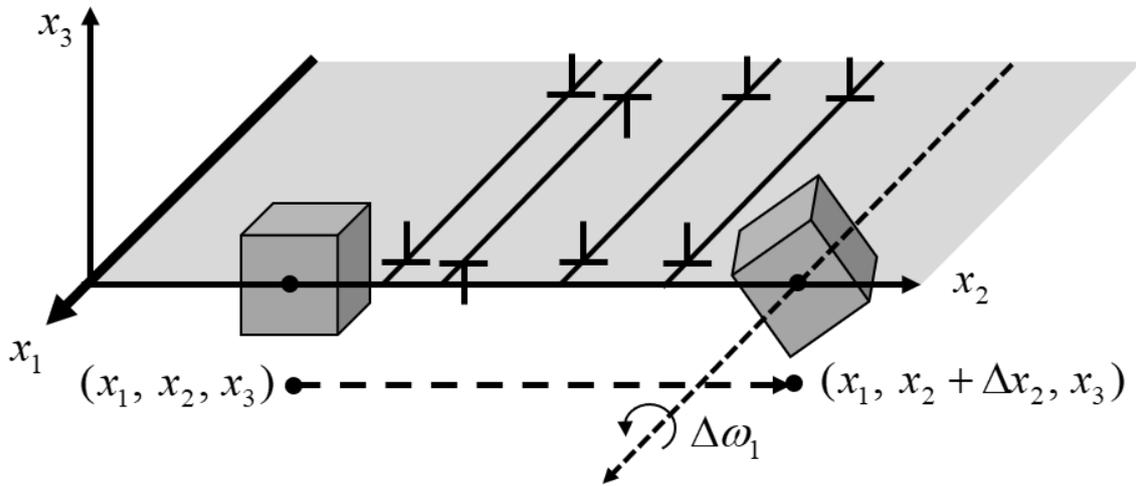


Fig. 4-8 Schematic illustration showing the change in a crystal orientation with the change in a position from (x_1, x_2, x_3) to $(x_1, x_2 + \Delta x_2, x_3)$. The dislocations between two measurement points cause a crystal orientation change around x_1 axis.

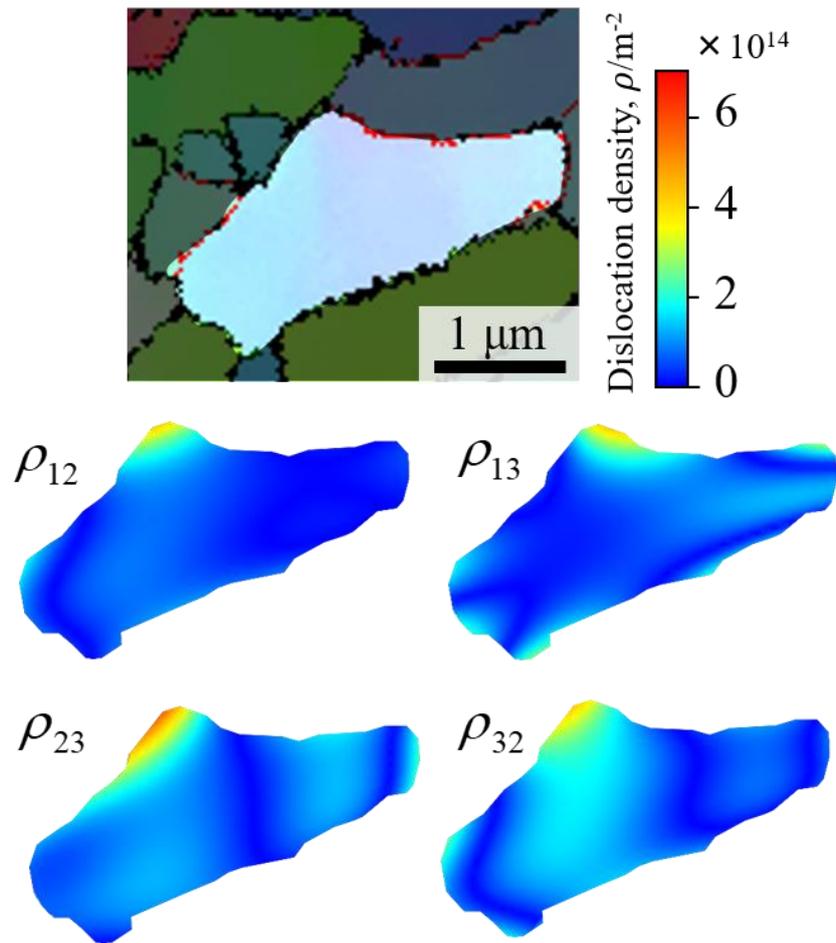


Fig. 4-9 Maps of IPF and dislocation density tensor ρ_{12} , ρ_{13} , ρ_{23} , and ρ_{32} for grain "d" at $\gamma = 0.10$.

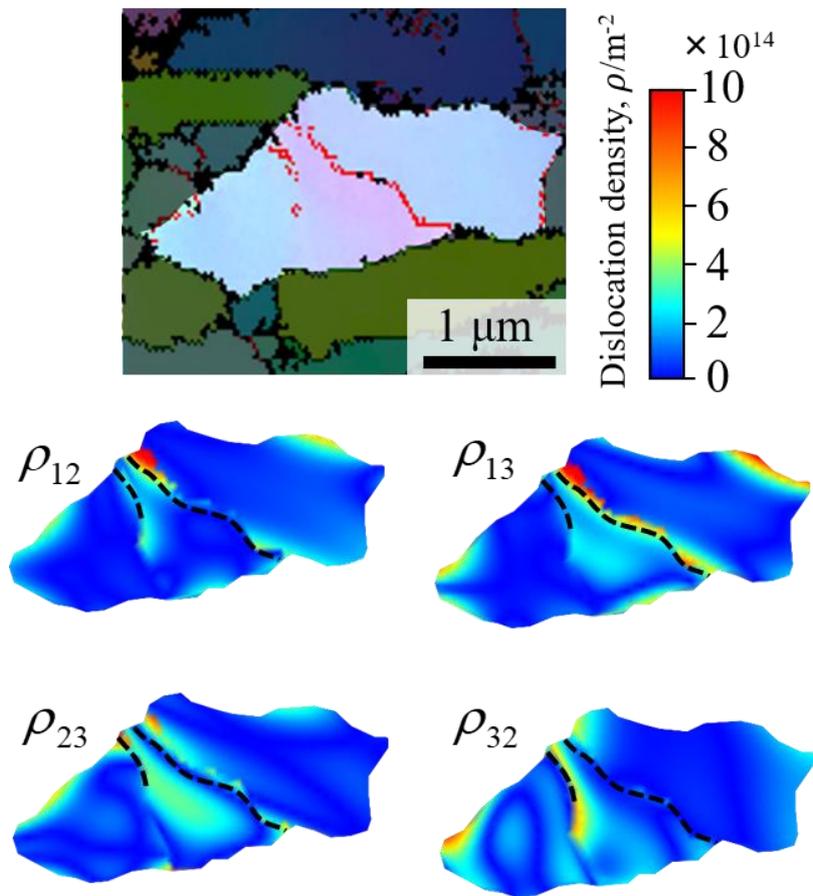


Fig. 4-10 Maps of IPF and dislocation density tensor ρ_{12} , ρ_{13} , ρ_{23} , and ρ_{32} for grains “d1” and “d2” at $\gamma = 0.39$. The broken black lines in maps of dislocation density tensor show the position of LAGBs.

4. 5 考察

Fig. 4-11 は、結晶粒 c, d の微細化および粗大化過程と、それらの内部における転位密度を示す模式図である。Fig. 4-11(a)に示すように、引張試験前については ECAP 加工の際の結晶粒微細化により、結晶粒 c, d がサブバウンダリーにより隔てられており、結晶粒内部の転位密度は低い状態である。その後の引張変形に伴い、結晶粒 d 内では異なるすべり系が活動し、異なるバーガースベクトルを持つ GN 転位が結晶粒内で増加する。結果的に、Fig. 4-11(b)に示すようにこれらの GN 転位は結晶粒 d 内に転位壁を形成し、結晶粒 d は結晶粒 d1 と d2 に微細化される。

4. 4. 1において、結晶粒 c, d を隔てる小角粒界の消滅は、 x_1 軸回りでの結晶方位変化によるものであると述べたが、これは転位壁を構成する一部の転位が離脱したためであると考えられる。理想的な単純せん断変形の下、すなわち周囲の結晶粒による拘束などが存在せず、結晶粒全体が均一に変形する場合については、加えられる単純せん断変形に応じた転位のすべり系のみが活動するが、実際が多結晶材は周囲の結晶粒の影響を受け、また結晶の方位や大きさも変形の終始を通じて同じではないため結晶粒内で不均一な変形が生じる。これにより加えられる変形中に転位の活動するすべり系が変わる余地は十分にあると考えられる。結晶粒 c, d の粗大化過程については、Fig. 4-11(c)に示すように、不均一な変形により局所的に結晶粒 c, d を隔てる転位壁を離脱するようなすべり系の活動が起きることで、一部の転位が転位壁を離脱したと解釈することができる。一方でこれらの転位の活動は、マクロ的には面内せん断変形の影響を受けているため、結果として x_1 軸回りでの結晶回転として観察されたと考えられる。

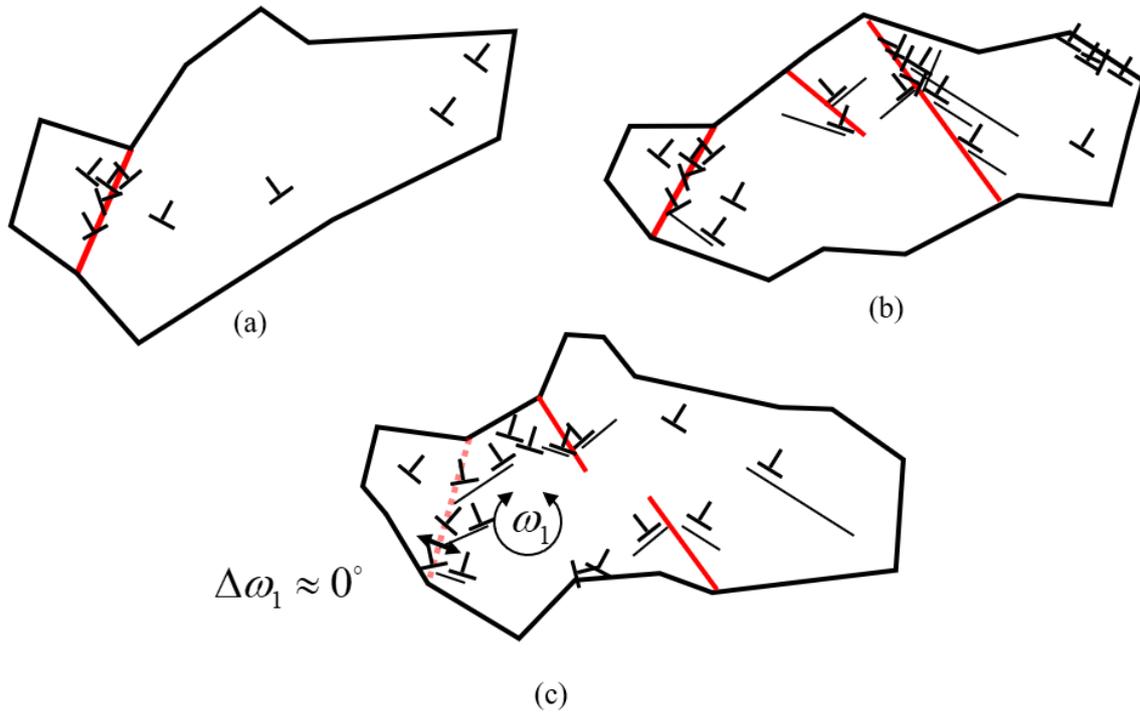


Fig. 4-11 Schematic illustration of microstructural evolution for grains “c”, “d”, “d1” and “d2”. (a) Before the tensile test ($\gamma=0$). (b) $\gamma=0.39$. (c) $\gamma=0.61$. The red lines show LAGBs. The broken red line shows the position of the original LAGB.

4. 6 結言

本研究では、単純せん断変形に伴う UFG-pure Al の組織変化を SEM/EBSD 法により観察し、その結果について下記のようにまとめた。

- (1) 変形前後における同一結晶粒において、結晶粒界の発生・消滅による結晶粒微細化と粗大化がそれぞれ観察された。
- (2) SEM/EBSD 法により変形に伴う結晶粒の方位変化を調べた。それらの方位変化について対数角による評価を行った結果、結晶粒内における方位変化は板面内単純せん断変形の影響を大きく受けていることを明らかにした。
- (3) 対数角による方位変化の解析は結晶粒内における転位密度テンソルの平面内成分について明らかにした。これにより、変形に伴う結晶粒内での不均一な GN 転位の増加を明らかにすることができた。このような GN 転位の不均一な分布は結晶粒内での異なるすべり系の活動によるものであり、その結果として結晶粒内に転位壁が形成され、結晶粒が微細化したと考えられる。
- (4) 対数角による解析は、単純せん断変形による x_1 軸回りの結晶回転に伴い、GND による結晶粒界の形成のみならず、隣接領域間での方位差の減少についても引き起こしていることが示唆された。この方位差の減少が、結晶粒界の消滅の原因となっていると考えられる。

参考文献

- 1) Y. Ajisaka, Y. Miyajima and S. Onaka: *J. Jpn. Inst. Met.*, **80** (2016) 553-561.
- 2) K. Hayashi and S. Onaka: *Mater. Trans.*, **59** (2018) 386-392.
- 3) R. Z. Valiev, R. K. Islamgaliev and I. V. Alexandrov: *Prog. Mater. Sci.*, **45** (2000) 103-189.
- 4) W. Z. Han, H. J. Yang, X. H. An, R. Q. Yang, S. X. Li, S. D. Wu and Z. F. Zhang: *Acta Mater.*, **57** (2009) 1132-1146.
- 5) M. Jina, A. M. Minorb and J. W. Morris Jr.: *Thin Solid Films*, **515** (2007), 3202-3207.
- 6) T. J. Rupert, D. S. Gianola, Y. Gan and K. J. Hemker: *Science*, **326** (2009) 1686-90.
- 7) M. Velasco, H. Van Swygenhoven and C. Brandl: *Scripta Mater.*, **65** (2011), 151-154.
- 8) O. Renk, A. Hohenwarter, S. Wurster and R. Pippan: *Acta Mater.*, **77** (2014) 401-410.
- 9) M. W. Kapp, T. Kremmer, C. Motz, B. Yang and R. Pippan: *Acta Mater.*, **125** (2017) 351-358.
- 10) Y. Iwahashi, Z. Horita, M. Nemoto and T. G. Langdon: *Acta Mater.*, **46** (1998) 3317-3331.
- 11) D. R. Fang, Q. Q. Dua, N. Q. Zhao, J. J. Li, S.D. Wu and Z. F. Zhang: *Sci. Eng. A*, **459** (2007) 137-144.
- 12) J. F. Nye: *Acta Metall.*, **1** (1953) 153-162.
- 13) Y. Miyajima, M. Mitsuhashi, S. Hata, H. Nakashima and N. Tsuji: *Mater. Sci. Eng. A*, **528** (2010) 776-779.
- 14) H. Adachi, Y. Miyajima, M. Sato and N. Tsuji: *Mater. Trans.*, **56** (2015) 671-678.
- 15) B. Bay, N. Hansen, D. A. Hughes and D. Kuhlmann-Wilsdorf: *Acta Metall. Mater.*, **40** (1992) 205-219.
- 16) D. A. Hughes and N. Hansen: *Acta Mater.*, **45** (1997) 3871-3886.

第5章 単純せん断と純粋せん断が超微細粒材の破断伸びに及ぼす影響

5.1 緒言

第2章と第4章では、As-ECAP材のせん断帯形成過程の特性を利用し、切り欠き付き試験片を用いることで、ECAP-SDに沿った領域に単純せん断変形を集中させた。本章では、第2章と第4章とは異なる形状の切り欠きを薄板状の試験片側面へ加工し、それにより純粋せん断変形を広範囲で誘起させることで、As-ECAP材における破断伸び向上を試みる。

序論で述べたようにUFG材は高強度・低延性という特徴を持つ¹⁻⁵⁾。この低延性の原因としては、塑性変形早期で局所変形が発生し、せん断帯が狭い領域に集中することが挙げられる⁶⁻⁸⁾。せん断帯の局在化過程について、Segal^{9, 10)}は純粋せん断から単純せん断変形への変形モードの移行をその原因として挙げており、単純せん断変形が支配的になることで狭い領域に応力が集中し、早期に破断するとしている。すなわち、単純せん断変形の発達を抑制し、純粋せん断変形を広範囲で誘起させることは、局所変形早期におけるせん断帯の局在化を妨げ、引張試験における破断を遅延させる可能性があることを意味する。

これまでの研究では、SPD加工後での熱処理や、他元素の添加による機械的特性向上の試みは行われてきた^{6, 7, 11)}、一般的に試料側面への加工は強度の低下やせん断帯の早期発生を招くため、それを機械的特性向上に用いた研究は少ない。しかし第2章と第4章で行った研究は、切り欠き付き試験片を用いることでAs-ECAP材のせん断変形のモードを制御できることを示しており、この結果はECAP-SDと交差する方向への単純せん断変形を誘起することで、広範囲での純粋せん断変形を引き起こす可能性を示唆している。

本章では純粋せん断変形を広範囲で誘起させるための新たな試験片形状について提案し、UFG材における単純せん断変形と純粋せん断変形が破断伸びに及ぼす

影響について調べる。

5. 2 実験方法

本章では第2章で用いた試料と同様の pure-Cu (ECAP, 8 passes, Route Bc)を用いた。第2章と第4章ではECAP-SDに沿った単純せん断変形を誘起させるために、Fig. 2-1 に示したような試験片を用いたが、本章では、広範囲での板面内純粋せん断変形を誘起させるため、Fig. 5-1(a)に示す形状の試験片に半涙的状の溝を加えた試験片を用いた。Fig. 5-1(b)にこの形状について加えた溝の拡大図とともに示した。Fig. 5-1(b)に示すように、溝については ECAP-SD と面内で交差する方向で単純せん断変形が発生するような形状とした。これは ECAP-SD に沿った方向とそれと交差する方向において、同変形時における同領域での二種類の単純せん断変形の発生による、広範囲での純粋せん断変形の誘起を目的としている。本章においては Fig. 5-1(a)の形状の試験片を溝無し試験片、Fig. 5-1(b)の形状の試験片を溝付き試験片と呼称する

引張試験は、引張試験機 (ミネベア NMB TG-50kN) を用い、初期ひずみ速度 $8.3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ で室温下での条件で行った。引張試験中の変形量を定量化するために、試験片の表面 (TD 面) に微細なモザイクパターンをスプレーにより塗装し、それをデジタル画像相関法 (Digital Image Correlation: DIC) により評価した。DIC では2台のカメラを用い、2 fps (Frame per Second)での動画撮影を行った。2台のカメラを用いることで、視差による3次元変位¹²⁾を測定することができ、本章では、試験片の観察面に対して法線方向の変位を測定することで引張試験中の板厚減少を評価した。これらの画像は、ARAMIS (GOM GmbH)を用いた解析を行った。ここで用いたカメラについては解像度が 18.3 pixel/mm であり、それらの焦点距離は 1500 mm である。

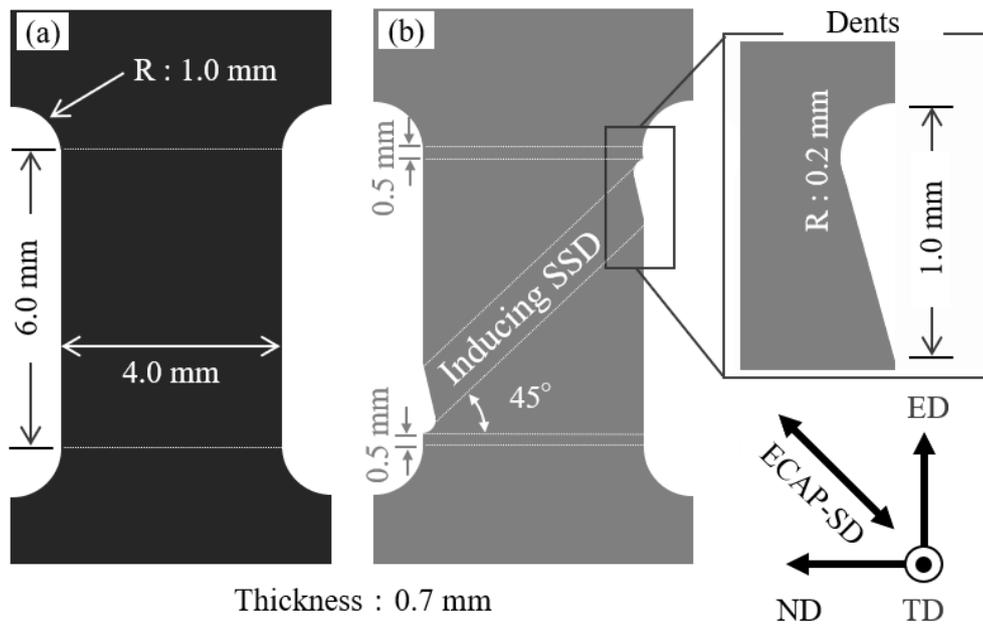


Fig. 5-1 Schematics of the specimen shapes. The coordinate axes of ECAP (TD: transverse direction, ND: normal direction, ED: extrusion direction, ECAP-SD: shear direction of final ECAP) are also shown. (a) The undented specimen. (b) The dented specimen, which had semi-teardrop-shaped dents on both sides. An enlarged view of the dent is also shown. The two dents are intended to produce simple shear deformation (SSD) in the region shown by the white dashed lines.

5. 3 三次元画像相関法による試験片の変形の解析

5. 3. 1 試験片の破断伸び

第2章や第4章で用いた試験片と同様に、溝付き試験片は断面積が不均一であるため、応力-ひずみ曲線を評価することは困難である。そこで本章においても比較のため、溝無しおよび溝付き試験片について、みかけの応力 σ_{ap} とひずみ ε_{ap} による力学的特性の評価を行った。ここでは、みかけの応力 σ_{ap} については式(2-1)を用いたが、みかけひずみ ε_{ap} については、DIC で測定した引張方向に沿ったゲージ内での変位 u_{DIC} を用いて

$$\varepsilon_{ap} = u_{DIC} / l_0 \quad (5-1)$$

とした。 l_0 は試験片のゲージ部の初期長さである。各試験片の破断伸びの評価については、各試験片の破断点での ε_{ap} について破断伸び ε_{ap-f} として比較を行った。 Fig. 5-2(a), (b)に $\sigma_{ap}-\varepsilon_{ap}$ 曲線と ε_{ap-f} の結果をそれぞれ示す。 Fig. 5-2(a)に示すように、どちらの形状の試験片についても UTS は 415~430MPa であり、溝の加工による強度の低下は確認されなかった。一方、 Fig. 5-2(b)に示すように、破断伸びについては溝付き試験片の方が溝無し試験片より良好な結果を示した。すなわち、本章で行ったような試験片の側面への溝の加工は、強度を低下させることなく、破断伸びを増加させることが可能な手法であるといえる。

5. 3. 2 試験片に加えられたせん断ひずみの解析

Fig. 5-5 に示した各試験片における局所変形過程について調べるため、引張試験中に DIC により試験片表面のひずみの測定を行った。本章においては、試料座標系から TD 軸を中心に反時計回りに 45°回転させた座標系を基準直交座標系 $x_1-x_2-x_3$ とし、その座標系におけるせん断ひずみ ε_{12} を用いて溝が局所変形に与える影響を評価した。 Fig. 5-3(a), (b)については、局所変形初期 ($\varepsilon_{ap} = 0.060$) におけるそれぞれの

試験片での ε_{12} を示している。Fig. 5-3(a)において二本の黒破線で示すように、溝無し試験片の ε_{12} が大きくなる領域、すなわちせん断ひずみが大きくなる領域は、おおよそ ECAP-SD に沿うことが分かる。一方、Fig. 5-3(b)に示すように、溝付き試験片では、ECAP-SD と交差する方向に沿ったせん断ひずみ大きい領域が存在する。更に、第 2 章や第 4 章で扱った試験片とは異なり、溝付き試験片はより広い凹みにより単純せん断変形を誘起するため、大きなせん断ひずみが発生する領域は広範囲に及ぶ。しかし、5. 2. 2で述べた我々の予想とは異なり、大きなせん断ひずみが発生した領域は必ずしも二つの溝の間に存在しなかった。この領域と引張軸のなす角は、 45° よりも大きく、これは溝無し試験片についても同様であった。これらの角度が 45° よりも大きい理由については、引張方向への応力による影響であると考えられる^{8,13)}。

次に、これらの試験片における変形をより定量的に評価するために、せん断ひずみ ε_{12} の要素となる変位勾配テンソルの成分 $u_{1,2}$ と $u_{2,1}$ について評価した。せん断ひずみ ε_{12} については

$$\varepsilon_{12} \approx (u_{1,2} + u_{2,1}) / 2 \quad (5-2)$$

より評価することができる。Fig. 5-3(c)～(f)は溝無しおよび溝付き試験片において、それぞれの局所変形の初期段階における $u_{1,2}$ と $u_{2,1}$ を示している。Fig. 5-3(c), (e)の比較から、溝無し試験片では $u_{1,2}$ よりも $u_{2,1}$ の方が大きいことが分かる。すなわち、溝無し試験片は局所変形の初期段階において、ECAP-SD に沿った領域で $u_{2,1}$ によるせん断ひずみが集中したといえる。これに対して、Fig. 5-3(d), (f)は、溝付き試験片の $u_{1,2}$ と $u_{2,1}$ は同程度であることを示しており、更にFig. 5-3(c), (d)から、溝付き試験片の $u_{1,2}$ が溝無し試験片のそれより溝の間において明らかに大きいことが分かる。これは、溝の加工により ECAP-SD 方向のみならず、それらの間に単純せん断変形を誘起したことを示している。一方、Fig. 5-3(e), (f)の $u_{2,1}$ についての比較から、溝付き試験片の $u_{2,1}$ は溝無し試験片のそれより小さいことが分かる。よって、これらの結果から溝付き試験片

では、ECAP-SD と交差する方向に沿った大きな単純せん断変形を誘起させ、更に ECAP-SD と併せて二方向での単純せん断変形が発生していたといえる。

Fig. 5-4 に局所変形初期 ($\epsilon_{ap} = 0.155$) においても Fig. 3 と同様に、溝無しおよび溝付き試験片のせん断ひずみ ϵ'_{12} と、変位勾配テンソルの成分 $u_{1,2}$ と $u_{2,1}$ についてまとめた。Fig. 5-4(a) に示すように、溝無し試験片では、局所変形初期と同様に ECAP-SD に沿った大きなせん断帯が発生おり、それは Fig. 5-4(e) から $u_{2,1}$ によるものであることが分かる。Fig. 5-4(c) において、一部の領域では大きな $u_{1,2}$ が確認できるが、これは試験片のつかみ部の拘束に起因するものと考えられる。溝付き試験片では Fig. 5-4(b) に示すように、Fig. 5-3(b) で示した局所変形の初期段階とは異なり、ECAP-SD に沿った狭い領域でせん断ひずみが集中している。これらの結果は、局所変形後期では試験片の形状に関わらず、ECAP-SD に沿った領域においてせん断ひずみの集中が起きたことを示す。ここでの溝付き試験片の特徴としては、溝無し試験片のせん断ひずみと比較して小さい傾向であることと、 $u_{1,2}$ が広範囲に及んでいることが挙げられる。

Fig. 5-3, 5-4 における変位勾配テンソルの成分 $u_{1,2}$ と $u_{2,1}$ の結果から、局所変形の各段階でのせん断変形様相について次の様に述べることができる。局所変形の初期段階では、溝付き試験片の $u_{1,2}$ と $u_{2,1}$ が広範囲で同程度の値を示すことから、純粋せん断による変形が支配的であり、溝無し試験片では $u_{2,1}$ が大きいことから単純せん断による変形が支配的であるといえる。純粋せん断変形は引張軸に対して対称的な変形をもたらすが、単純せん断変形は非対称な変形が生じることから、これが支配的になると応力集中と局所的な変形が促進され、破断に至る^{9, 10)}。すなわち純粋せん断変形が支配的になることで、変形や応力集中の局在化を抑制を可能にし、試験片の破壊を遅らせることができる。溝付き試験片は局所変形の初期段階での広範囲における純粋せん断変形の発生が、破断伸びの向上に寄与したことを示唆している。

5. 3. 3 試験片の板厚変化の解析

板面内での純粋せん断変形あるいは単純せん断変形については板厚減少を伴わない変形であるが、せん断帯の局在化の進行は多数の微小せん断帯を発達させ、試験片の板厚減少を引き起こす¹⁴⁾。すなわち、引張試験に伴う板厚減少の程度を調べることでせん断帯の局在化の程度を調べることができる。

2台のカメラを用いた DIC により、視差を利用することで三次元での変位を測定可能となり¹²⁾、本章ではこれを用いた試験片の板厚変化の評価を行った。板厚の変化量については、試料の厚み方向 (x_3 軸) に沿った変位 ΔL として評価した。ここでの変位 ΔL は試験片の厚さの変化量の半分に相当する。これは、塑性変形時に x_3 軸に沿った試験片の中心が一定に保たれているため、上面と裏面で対称的な板厚減少が起きると考えられるためである。 x_3 軸の正方向は、試験片の上面については内側から外側へ方向である。したがって、板厚減少に伴い ΔL は減少する。

いずれの試験片についても、UTS までの均一変形においては、試料のすべての部分で ΔL の値に大きな差はなかった。そこで UTS における x_3 軸方向での試料表面位置を $L = 0$ とし、その後の塑性変形に伴う L の変化を調べた。局所変形下においては L の減少が最も大きい領域とせん断ひずみが最も大きい場所は対応しており、ここでの L の変化分について ΔL_z とした。この ΔL_z と UTS 後のみかけひずみの増加量 ε_{ap-UTS} との関係について Fig. 5-5 に示した。Fig. 5-5 に示すように、局所変形初期では試験片の形状の違いは ΔL_z についての有意差をもたらさない。しかし、溝付き試験片では $\varepsilon_{ap-UTS} = 0.1$ 程度で ΔL_z の変化が溝無し試験片と比較して緩やかになる傾向があり、 $\Delta L_z = -0.9$ mm での比較では溝無し試験片の ε_{ap-UTS} が 0.155, 0.168 であるのに対して溝付き試験片は 0.121, 0.125 となっており、少ない板厚減少で同じ伸びを達成していることが分かる。この溝付き試験片における局所変形後期での板厚の減少については、局所変形初期において純粋せん断変形が誘起されたことにより、せん断帯の局在化

が遅延されたことを示す結果の一つであるといえる。

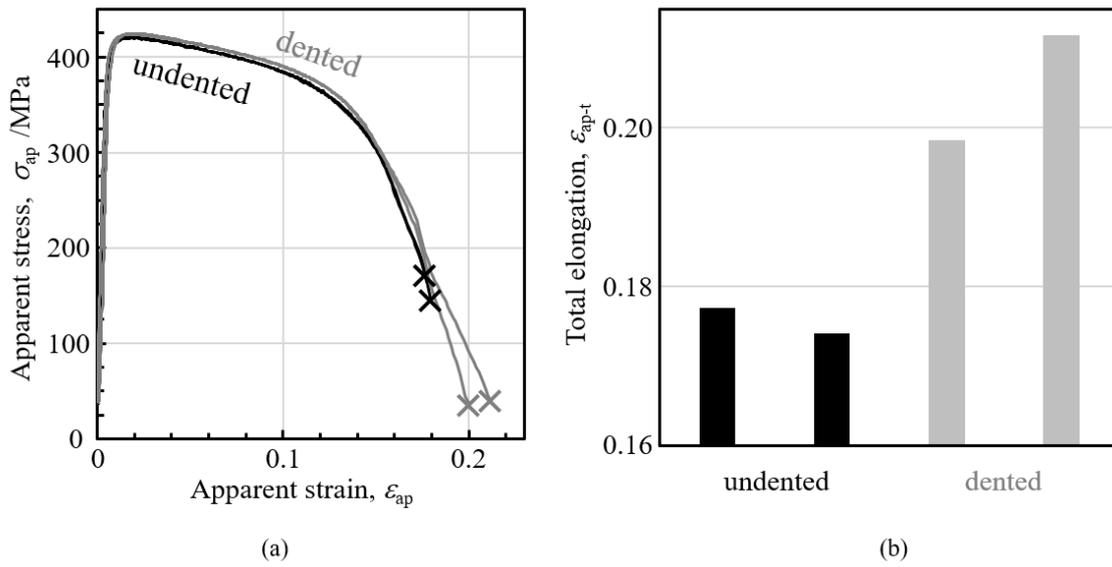


Fig. 5-2 (a) Tensile results of the undented and dented specimens, showing the relationship between the apparent stress σ_{ap} and strain ϵ_{ap} . The “X” marks are the fracture points of each specimen. (b) Total elongation ϵ_{ap-t} of the undented and dented specimens.

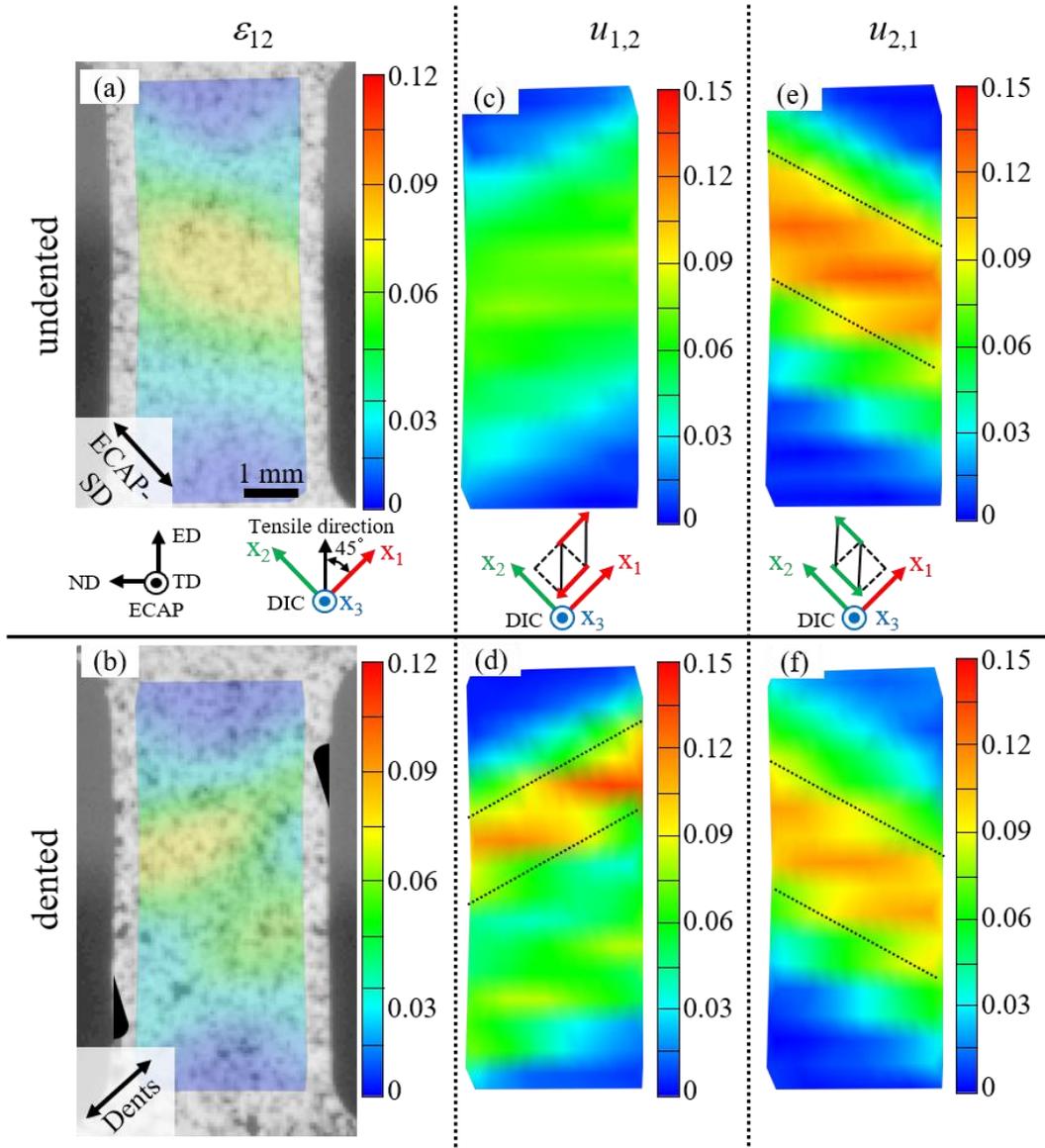


Fig. 5-3 Maps of shear deformation on the surface during the initial stage of local deformation ($\varepsilon_{ap} = 0.060$). The coordinate systems of ECAP and DIC are also shown. (a) and (b) show ε_{12} in the undented and dented specimens, respectively. (b) shows the initial position of dents and the direction of simple shear deformation caused by the dents. (c) and (d) show $u_{1,2}$ in the undented and dented specimens, respectively. (e) and (f) show $u_{2,1}$ in the undented and dented specimens, respectively. (c) and (e) show schematics of simple shear deformation described by $u_{1,2}$ and $u_{2,1}$, respectively.

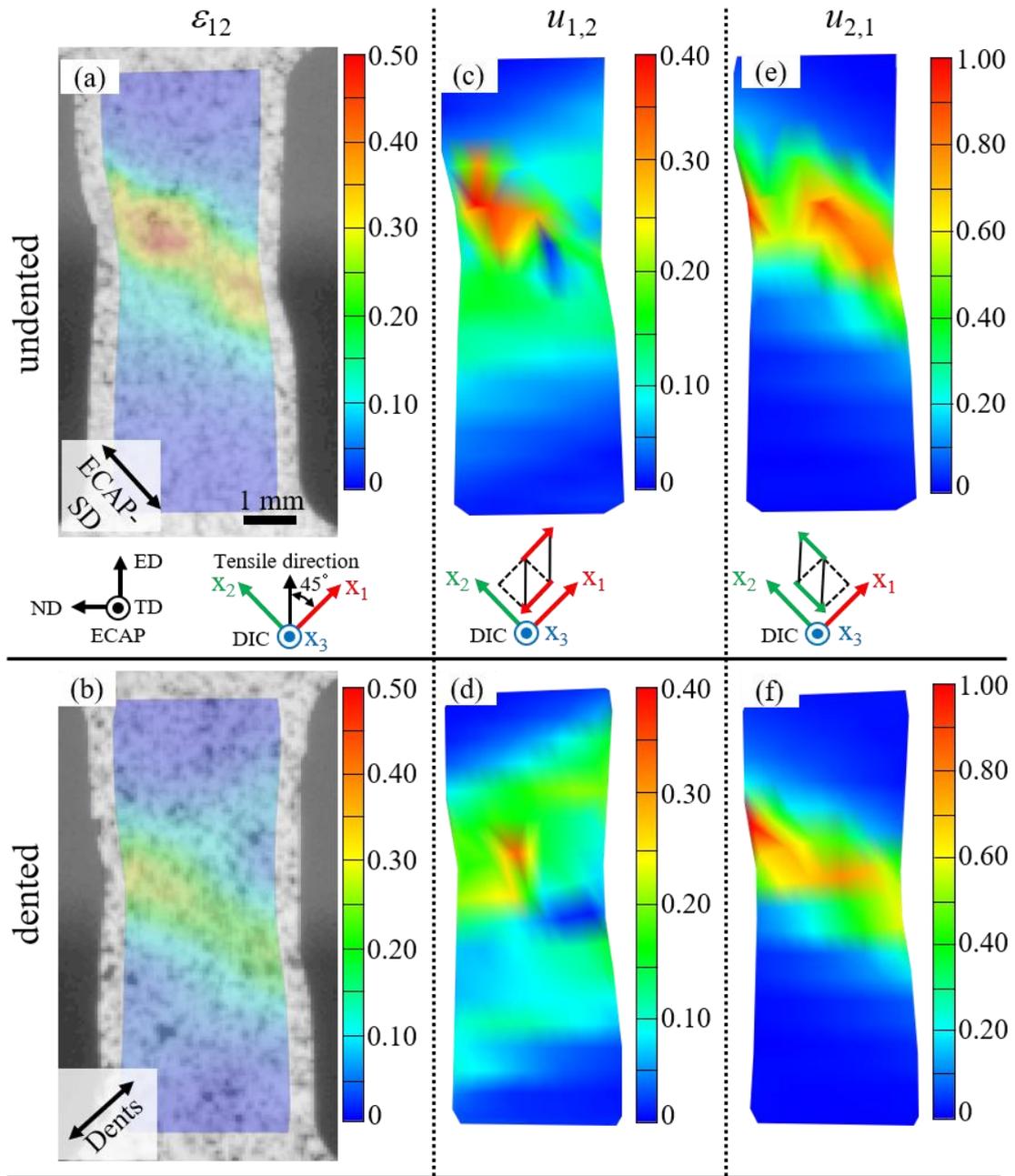


Fig. 5-4 Maps of shear deformation on the surface during the initial stage of local deformation ($\varepsilon_{ap} = 0.155$). The coordinate systems of ECAP and DIC are also shown. (a) and (b) show ε_{12} in the undented and dented specimens, respectively. (b) shows the initial position of dents and the direction of simple shear deformation caused by the dents. (c) and (d) show $u_{1,2}$ in the undented and dented specimens, respectively. (e) and (f) show $u_{2,1}$ in the undented and dented specimens, respectively. (c) and (e) show schematics of simple shear deformation described by $u_{1,2}$ and $u_{2,1}$, respectively.

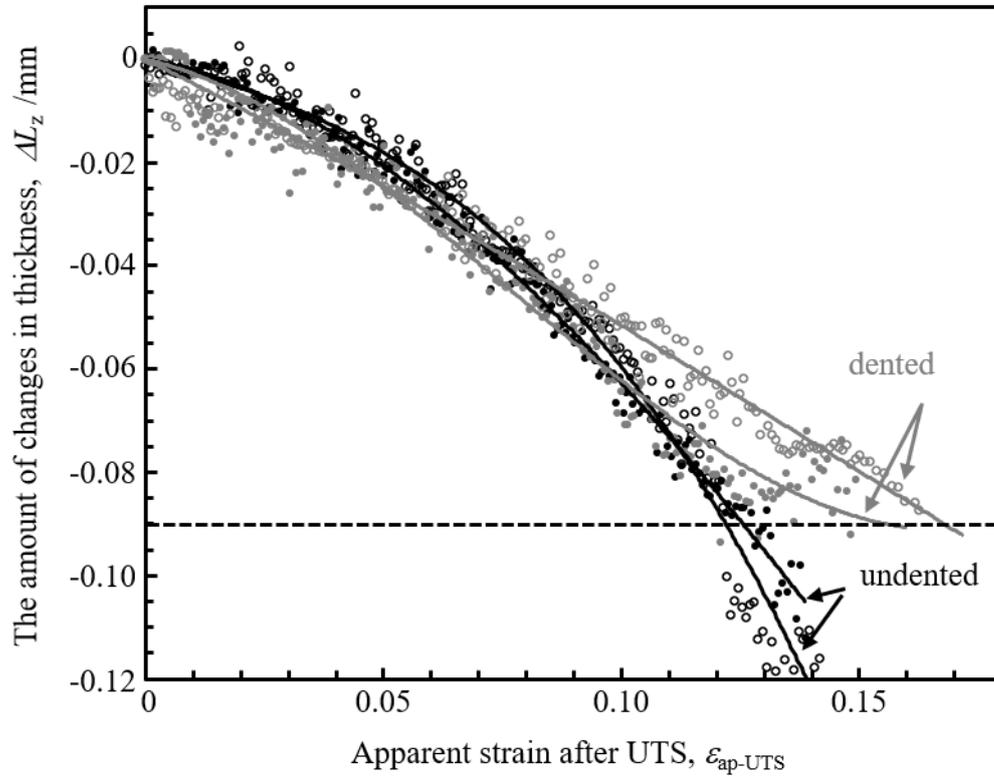


Fig. 5-5 Changes in thickness of the dented and undented specimens. The broken line shows $\Delta L_z = -0.09$ mm.

5. 4 加えられたせん断ひずみの分布の解析

溝無しおよび溝付き試験片の表面におけるせん断ひずみ集中の程度を評価するため、Fig. 5-6(a)に示す実線または破線に沿い、各試験片における ε_{12} の値をラインスキャンにより測定した。これらの測定は、局所変形の後期を示した Fig. 5-4(a), (b)を基にしている。Fig. 5-6(b)～(d)に、Fig. 6(a)内に実線で示した場所でのラインスキャンの結果を示す。これらの結果を次に示すローレンツ関数を用いて近似した。

$$\varepsilon_{12}(x) = h / (1 + (x - u)^2 / w^2) \quad (5-3)$$

ここで、 h は ε_{12} のピークの値、 u はそのピーク位置、 w は半値幅を示す。Fig. 5-6(b)に示すように、式(5-3)は溝無し試験片のすべての位置で ε_{12} のラインスキャン結果によく適合した。一方溝付き試験片では、Fig. 5-6(b), (c)内の拡大図で示すように、二か所でのピークが確認でき、これが近似から外れる部分となった。このような近似から外れるピークが存在する理由として挙げられるのは、Fig. 5-3で示した局所変形の初期段階において溝無し試験片とは異なり、溝付き試験片では ECAP-SD と ECAP-SD と交差する方向($u'_{1,2}$ と $u'_{2,1}$)の二方向に沿った単純せん断変形の発生である。

次に、両試験片の近似におけるパラメーターを比較するため、Fig. 5-7に ε_{12} のピークの値 h とピーク位置 u の関係を示す。ここで半値幅 w については h の値の大小に影響されるため、評価の対象外とした。Fig. 5-7より、 h について溝付き試験片の方が溝無し試験片よりも小さい値となり、すなわち、溝付き試験片はより小さなせん断ひずみで溝無し試験片と同じ伸びが達成できることが分かった。

一方で、Fig. 5-7はピーク位置 u については両試験片で同様の分布を示し、局所変形後期では両試験片における変形挙動に大きな差異は見られない。つまり、Fig. 5-3、Fig. 5-4とFig. 5-7の結果をまとめると、溝付き試験片は局所変形初期においてのみ支配的な変形を単純断変形から純粋せん断変形へと変化させ、局所変形後期では試験片の形状に関係なく ECAP-SD に沿った単純せん断変形が支配的となり、これに

よりせん断帯の局在化が進行したといえる. このように, 板状試験片への溝の加工は, 初期の局所変形の変形挙動には影響を与えるが, 後期の変形挙動や破壊挙動には影響を与えないことがわかった.

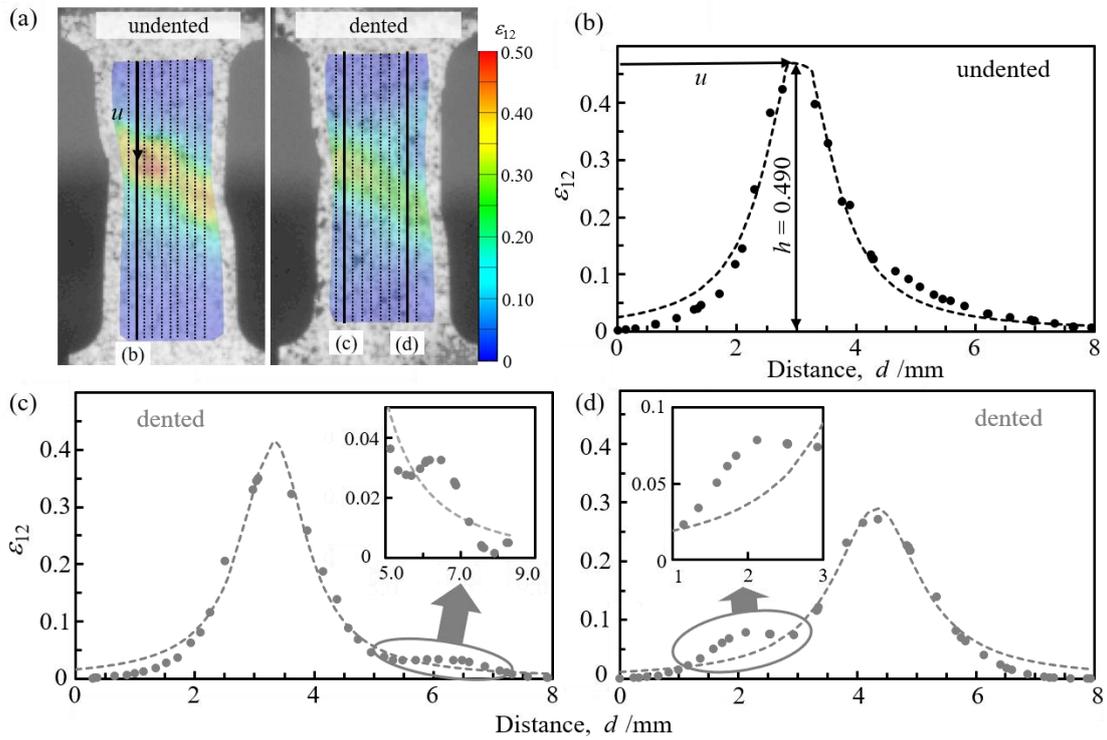


Fig. 5-6 (a) Full lines and broken lines show the positions where the line scan measuring ε_{12} was done. Full lines (a) show the positions where the line scans are shown in (b), (c), and (d). (b) The result of the undented specimen. u and h are the peak position and the position where the maximum ε_{12} was measured, respectively. (c) and (d) show the results for the left and right sides of the dented specimen, respectively. Enlarged views show the regions out of the fitting curve.

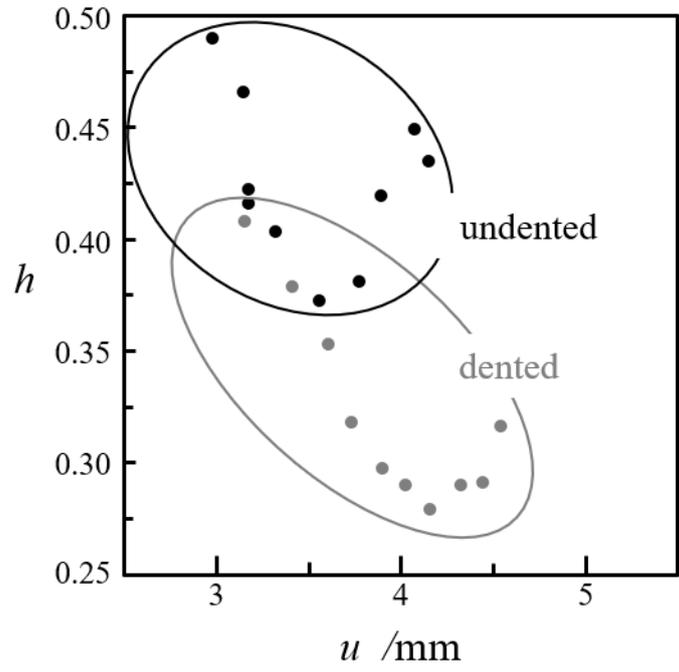


Fig. 5-7 Fitting parameters u and h for the dented and undented specimens.

5. 5 考察

ここまで得られた結果から明らかになった、溝無しおよび溝付き試験片の引張試験に伴う変形過程について、その模式図を Fig. 5-8 に示す。Fig. 5-8 は溝無し試験片では局所変形初期で既に ECAP-SD に沿ったせん断帯が形成されていることを示している。ここでのせん断変形は、単純せん断変形が支配的であることから、早期にせん断帯が局在化し、狭い領域に板厚減少を伴う多数の微小せん断帯が発生することで、溝付き試験より早く破断に至ったと考えられる¹⁴⁾。一方溝付き試験片では、局所変形初期では、ECAP-SD とそれと交差する溝の間での二つの方向で単純せん断変形が発生している。これらの変形は純粹せん断変形が広範囲で発生したと同義であり、これによりせん断帯の局在化を遅らせたと考えられる^{9, 10)}。この結果、局所変形後期におけるせん断帯の狭い領域での集中の遅延と、それによる板厚減少を抑制することができ、破断伸び向上に至ったといえる。

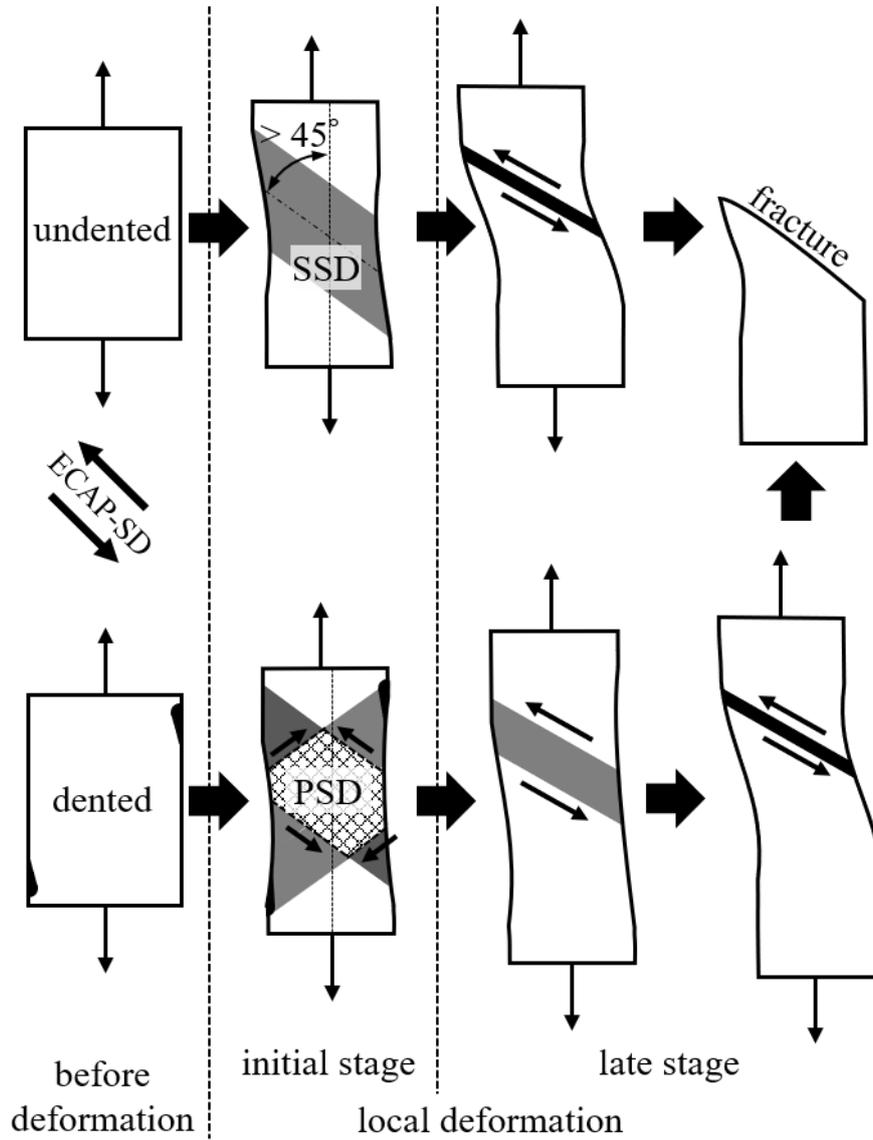


Fig. 5-8 Schematic illustrations of deformation behavior for undented and dented specimens. (PSD: pure shear deformation)

5. 6 結言

ECAP により作製した UFG Pure-Cu の引張試験において、板状試験片の形状を工夫することで、せん断帯の局在化の抑制により破断伸びの向上を試みた。主な結論は以下の通りである。

- (1) 破断伸び向上のため、板状試験片の両側に溝を加えた。その結果、溝付き試験片は、溝無し試験片に比べて全伸びが 20%程度増加した。また溝の加工による強度の低下は無かった。
- (2) 局所変形初期では、溝無し試験片では ECAP-SD に沿った単純せん断変形のみが支配的であった。一方、溝無し試験片では、ECAP-SD とそれと交差する溝の間での二方向において単純せん断変形が発生した。局所変形後期の試料表面におけるせん断ひずみの分布から、溝付き試験片は溝無し試験片と比較してせん断ひずみが狭い領域に集中していないことが分かった。これらの結果は、局所変形初期に溝により誘起された純粋せん断変形が、せん断ひずみの局在化を抑制し、これにより破断伸びが向上したことを示唆している。
- (3) 3D-DIC を用いて試験片の板厚変化を測定したところ、溝付き試験片の ΔL_z の減少が溝無し試験片と比較して緩やかであることが分かった。これは、せん断帯が局部的に発生することによる微小せん断帯の発達を抑制され、局所変形後期における急激な板厚減少が抑制されたためだと考えられる。また、いずれの試験片でもみかけの応力-ひずみ曲線に有意差がないことから、溝の加工は局所変形下でのせん断変形挙動にのみ影響を与えていると考えられる。

参考文献

- 1) A. Azushima, R. Kopp, A. Korhonen, D.Y. Yang, F. Micari, G. D. Lahoti, P. Groche, J. Yanagimoto, N. Tsuji, A. Rosochowski and A. Yanagida: *CIRP Ann.-Manuf. Technol.*, **57** (2008) 716-735.
- 2) C. C. Koch: *Scr. Mater.* **49** (2003) 657-662.
- 3) Y. T. Zhu and X. Liao: *Nat. Mater.* **3** (2004) 58-63.
- 4) D. R. Fang, Z. F. Zhang, S. D. Wu, C. X. Huang, H. Zhang, N. Q. Zhao and J. J. Li: *Mater. Sci. Eng. A* **426** (2006) 305-313.
- 5) R. Z. Valiev, A. V. Sergueeva and A. K. Mukherjee: *Scr. Mater.* **49** (2003) 669-674.
- 6) Y. H. Zhao, J. F. Bingert, T. D. Topping, P. L. Sun, X. Z. Liao, Y. T. Zhu and E. J. Lavernia: *Mater. Sci. Eng. A* **772** (2020) 138706.
- 7) K. Yang, Yu. Ivanisenko, A. Caron, A. Chuvilin, L. Kurmanaeva, T. Scherer, R. Z. Valiev and H. -J. Fecht: *Acta Mater.* **58** (2010) 967-978.
- 8) D. R. Fang, Q. Q. Duan, N. Q. Zhao, J. J. Li, S. D. Wu and Z. F. Zhang: *Mater. Sci. Eng. A*, **459** (2007) 137-144.
- 9) V. M. Segal: *Mater. Sci. Eng. A* **338** (2002) 331-344
- 10) V. M. Segal: *Mater. Sci. Eng. A* **406** (2005) 205-216.
- 11) M. Furui, C. Xu, T. Aida, M. Inoue, H. Anada and T. G. Langdon: *J. Japan Inst. Metals*, **70** (2006) 729-734.
- 12) M. A. Sutton, J. H. Yan, V. Tiwari, H. W. Schreier and J. J. Orteu: *Opt. Laser Eng.*, **46** (2008) 746-757.
- 13) Z. F. Zhang, and J. Eckert: *Phys. Rev. Lett.*, **94** (2005) 094301.
- 14) I. Sabirov, Y. Estrin, M. R. Barnett, I. Timokhin and P. D. Hodgson: *Acta Mater.*, **56** (2008) 2223-2230.

第6章 結論

6. 1 本論文の総括

強ひずみ加工により作製された超微細粒材料の微細化限界の原因について調べるため、FCC 金属材料を試料として、その As-ECAP 材のせん断帯形成特性を利用した SEM/EBSD 法による同一領域観察を行った。その結果、大きな単純せん断変形により同一領域内で結晶粒の微細化と粗大化が発生することが微細化限界の一因であることを明らかにした。また、SEM/EBSD 法により得られた結晶方位について対数角を用いた解析を行うことで、結晶粒内の転位密度テンソルの平面内成分について明らかにした。また変形後の結晶粒内の転位密度テンソルの平面内成分はそれぞれ異なる分布となることが分かった。これは結晶粒内で異なるすべり系が働くことで、バーガースペクトルの異なる GN 転位が不均一な分布となる事に起因していると言える。結晶粒内の方位差が増加した際にこれらの GN 転位は結晶粒内で再配列し、転位壁を形成することで結晶粒を微細化したと考えられる。更に、対数角による解析は、隣接領域間における試験片板面法線軸回りでの結晶回転による方位差の増加による粒界の形成のみならず、方位差の減少による消滅を明らかにした。このような方位変化は、異なるすべり系の活動が板面内せん断変形により引き起こされていることで、板面法線方向での結晶回転が強く誘起されたことにより起きたと考えられる。以下に各章の結論を総括する。

第2章「単純せん断変形による同一領域での超微細結晶粒の微細化と粗大化」では pure-Cu の As-ECAP 材について、SEM/EBSD 法による同一領域観察を行い、SPD の結晶粒微細化限界の要因を明らかにすることを目的とし、SEM/EBSD 法による大きな単純せん断変形が起きた領域での同一領域観察から、結晶粒界の形成による結晶粒微細化のみならず、粒界の消滅による結晶粒粗大化を確認した。このような結晶粒粗大化過程は、先行研究により示されている *grain boundary migration* による現象とは

異なる結晶粒粗大化過程であると言える。

第3章「結晶方位の対数角を用いた表現とそれによる格子湾曲テンソルの評価」では、SEM/EBSD 法により得られた方位情報を、対数角を用いて Nye の格子湾曲テンソルを評価する方法について示した。対数角とは、結晶方位とその変化の回転行列 \mathbf{R} の対数、すなわち $\ln \mathbf{R}$ の三つの独立な実数成分を指す。本章においては、直交座標系 x_1 - x_2 - x_3 での位置の変化 Δx_j とそれに伴う方位回転 $\Delta \mathbf{R}$ の対数角 $\Delta \omega_i$ の関係が、 x_j から $x_j + \Delta x_j$ での平均的な格子湾曲テンソル $\kappa_{ij} = \Delta \omega_i / \Delta x_j$ となることを示した。

第4章「単純せん断変形後に微細化および粗大化した結晶粒の方位変化の評価」では第2章と同様の実験・観察方法を pure-Al に対して行った。その結果、pure-Al についても単純せん断変形に伴う同一領域での結晶粒微細化と粗大化について確認し、FCC 金属ではその材料の特性に関わらずこのような現象が発生することが示唆された。また個々の結晶粒の方位について対数角による解析から、結晶粒内における転位密度テンソルの平面内成分について明らかにした。結晶粒内における転位密度テンソルは、その成分により異なる分布となった。これは変形により結晶粒内で異なるすべり系が活動したことで、結晶粒内にバーガスベクトルの異なる GN 転位が位置や密度を変えて存在していることを示す。このような結晶粒内での異なるすべり系の活動は板面内せん断変形により引き起こされているため、板面法線方向での結晶回転に強く現れ、結果として隣接領域での方位差の増加のみならず、減少についても引き起こし、これが結晶粒界消滅の原因となったと考えられる。

第5章「単純せん断と純粋せん断が超微細粒材の破断伸びに及ぼす影響」については、第2章および第4章での切り欠き付き試験片を用いたことで得られた切り欠きがせん断変形に及ぼす影響を基に、広範囲に純粋せん断変形を発生させる新たな形状の試験片を提案し、単純せん断と純粋せん断が UFG 材の破断伸びに及ぼす影響を調べた。試験片側面に半涙的形狀の溝を加工した結果、溝を加工しない試験片と

比較して破断伸びが向上した。3D-DIC による観察から、純粋せん断変形が局所変形の初期段階で広範囲に発生し、これによりせん断ひずみが広範囲に分散することで、局所変形後期において狭い領域でのせん断ひずみの集中が緩和され、かつ急激な板厚減少が抑制されたことが、溝付き試験片の破断伸びを向上させたことが分かった。

6. 2 今後の展望

本研究では UFG 材のせん断変形に伴う結晶粒界の消滅による結晶粒粗大化が、SPD に微細化限界が存在する一因であることを示した。単一の面内単純せん断変形による特定の軸回りでの結晶回転が粗大化の要因であるため、このような変形を伴わない加工法により、更なる結晶粒の微細化が期待できる。また結晶の組織変化を評価する上で SEM/EBSD により得られた結晶方位について対数角により解析し、変形に伴う方位変化の表現や転位密度テンソルの導出に用いたが、これらの解析手法については他の多結晶金属材料に対しても用いることができ、また SEM/EBSD 法を用いたシリアルセクションングによる観察を行うことで、転位密度テンソルの全成分を評価することが期待できる。更に、本研究で提案した各種形状の切り欠き付き試験片については観察手法として、または加工による性能向上の方法として、他の金属材料に適用する余地が十分にあると言える。

本博士論文に関係した投稿論文

(第2章)

“Refinement and coarsening of grains caused by tensile-shear tests in ultra-fine grained Cu processed by severe plastic deformation”

R. Matsutani, Y. Miyajima and S. Onaka:

Materials Transactions, **60** (2019) 751-757.

DOI: doi.org/10.2320/matertrans.M2018379.

(上記研究の和文による報告)

「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

日本金属学会誌, **82** (2018) 442-448.

DOI: doi.org/10.2320/jinstmet.JAW201804.

(第3章)

“Representation of Nye’s Lattice Curvature Tensor by Log Angles”

R. Matsutani and S. Onaka:

Materials Transactions, **60** (2019) 935-938.

DOI: doi.org/10.2320/matertrans.M2019049.

(上記研究の和文による報告)

「対数角による Nye の Lattice Curvature Tensor の表現」

松谷亮輔, 尾中 晋

日本金属学会誌, **82** (2018) 415-418.

DOI: doi.org/10.2320/jinstmet.J2018033.

(第4章)

“SEM/EBSD analysis of grain refinement and coarsening processes for ultra-fine-grained Al during simple-shear-deformation”

R. Matsutani, T. Sakuragi, N. Yamagishi, N. Miyazawa, N. Nakada and S. Onaka, in preparation.

(第5章)

“Increase in total elongation caused by pure shear deformation in ultra-fine-grained Cu processed by equal-channel angular pressing”

R. Matsutani, N. Nakada and S. Onaka:

Metals, **10** (2020) article no. 654, 11pages.

DOI: doi.org/10.3390/met10050654.

謝辞

本博士論文の執筆に際し、非常に丁寧にご指導を頂きました東京工業大学物質理工学院・尾中晋教授には、心より感謝いたします。また同物質理工学院・寺田芳弘准教授には、副査を務めていただき、研究内容に関するご指導およびご意見を賜り感謝いたします。さらに、本博士論文をまとめるにあたり、東京工業大学物質理工学院・木村好里教授、同物質理工学院・稲邑朋也教授、同物質理工学院・中田伸生准教授には、貴重なご意見を頂き深く感謝致します。ご退官された梶原正憲教授におかれましても、講究において大変お世話になりました。心より感謝申し上げます。

本論文は、超微細粒材の塑性変形によりもたらされる組織変化について知見をまとめたものですが、それらの実験方法のご助言と電子顕微鏡の取り扱いにご協力いただきました金沢大学 宮嶋陽司准教授に深く御礼申し上げます。学会や博士論文審査に際し、適切にご助言やご協力を賜りました宮澤直己助教に心より感謝申し上げます。また、第5章における画像相関法による観察では長廻拓海君にご協力いただきました。感謝申し上げます。

研修元の博士課程学生の先輩として吉田貴美子博士、山口義矢博士には入学前より様々な面で適切にご助力を賜りました。感謝の意を表します。さらに研修元の後輩の福井大介君には実験装置の使用と管理についてご協力いただきました。感謝の意を表します。

超微細粒材の緻密な実験に共に取り組んでくれた櫻木智仁君、山岸直希君、内山諒人君に感謝いたします。また研究室の先輩方、同期、後輩には公私共に大変お世話になりました。特に浜野航貴君には私の結婚式、そして卒業後もお世話になりました、有難う。

大学院での学習の機会にあたり，5年間の長期間にわたり物心両面から支えて下さった家族に心より感謝申し上げます。

最後になりますが，多忙な状況の中，大学院での長期間にわたる研修の機会を提供して頂いた防衛省 陸上自衛隊の関係各位の皆様がこの場をお借りして心より御礼申し上げます。