研究論文

高純度アルミニウムにおける動的再結晶*

山縣 裕**

Dynamic recrystallization of high purity aluminum*

Hiroshi YAMAGATA**

The microstructural changes in 99.999 mass% aluminum were investigated during deformation at elevated temperatures by the constant-speed-compression tests. The stress vs. strain curves of poly-crystals showed multiple stress oscillations at temperatures from 511 K to 820 K at an initial strain rate of 1.67×10^{-3} /s. An in-situ observation of diffraction patterns for a single-crystal was carried out during a compression test at an initial strain rate of 1.67×10^{-4} /s at 533 K. Asterism patterns appeared in the work hardening stages, while spot patterns appeared in the work softening stages. An anodized single-crystal compressed up to 0.6 at an initial strain rate of 1.67×10^{-4} /s at 583 K showed dynamically recrystallized grains containing subgrains. These observations prove that the recrystallization is caused by the discontinuous dynamic recrystallization mechanism.

Keywords: aluminum, single-crystal, compression test, elevated temperature deformation, dynamic recrystallization.

(Received November 4, 1993)

1. 緒 言

銅や鉛、オーステナイト鉄などの高温変形においては、動的再結晶 (DRX)^{1)~3)}が生じ、応力-ひずみ線図に長周期の多重の応力振動 (以下、DRX 型応力-ひずみ線図と言う) が現れる。クリープ試験においてもひずみ速度が周期的に変化する^{4),5)}。そして、新粒が高密度の転位や亜結晶粒を含む典型的な DRX 組織^{1)~3)}が見られ、これらの金属の低い積層欠陥エネルギーが動的回復 (DRV) を抑制し、新粒の生成に必要なひずみを蓄積する^{1)~3),6),7)}とされている。

一方、多くの研究^{8),9)}がある純アルミニウムに関しては、多重の応力振動も新粒の形成も一般的には報告されていない。そのため、積層欠陥エネルギーが高く、新粒形成に必要な駆動力が DRV で消えるので、DRX しない^{2),3)~8)}とされてきた。このことは、かなり以前から言われている^{4),10)}が、最近に限っても Kassner ら^{11),12)}の 99.999 mass% 多結晶および単結晶のねじり試験、また Dadson ら¹³⁾の 99.9999%*1 多結晶の圧縮試験によると、多重の応力振動は見られていない。そして変形後の組織として、伸びた元の結晶粒の中に DRV 特有の亜結晶粒を報告している。このように、DRX を生じない場合には、応力-ひずみ線図は単調に加工硬化した後、ほぼ応力一定で変形する定常状態 (以下、DRV 型の応力-ひ

ずみ線図と言う) を一般的に示すとされている。純アルミニウムのその他の機械試験 (詳細は後述) においても類似の挙動が報告されており、クリープ試験においてもひずみ速度の周期的変動は見られていない^{14),15)}。また、合金においても、たとえば Al-Mg では、5 mass% Mg 以上でないと DRX は生じない¹⁶⁾とされている。

純アルミニウムに DRX があるとする研究もまったくないわけではない。Ravichandran ら¹⁷⁾は 99.999% 純度の圧縮試験後、DRX 粒が見られたとしているが、応力-ひずみ曲線はやはり DRV 型であった。また、ほかにも、高温変形後に再結晶組織を見て DRX があるとする報告はある^{18),19)}。しかし、再結晶粒が見られたとしても、熱間試験後には静的再結晶 (SRX) も急速に進むため、そのこと自体では DRX が起きたことにはならないと以前より指摘²⁰⁾されている。結局、DRX の決め手となる実験報告は今までなく、純アルミニウムは DRX しない金属に分類⁴⁾するのが定説となっている。

著者²¹⁾は、帯溶融精製した純アルミニウムの高温圧縮試験において、規則的応力振動が生じ、新粒の形成されていることを最近見いだした。そして、純アルミニウムにも核生成-成長を経る DRX が生じるのでは、と考えた。しかし、再結晶粒が見られたことだけでは、前述のように、DRX が確かに起きたと言う決め手にならない。そこで応力振動を手掛かりに、圧縮試験中に透過ラウエ法による回折像をその場観察し、併せて偏光顕微鏡観察を行い、確かに DRX が生じることを確認したので

*1 本文中 mass% および at% の表示がないものは、原著に記述されていないためである。

* 本報告は、すでに速報としたデータ²¹⁾を含み、総合的に考察を加えたものである。

** ヤマハ発動機(株)第二研究部 (磐田市)。R & D div. 2, YAMAHA Motor Co., Ltd (Iwata-shi, Shizuoka)。

ここに報告する。

2. 実験方法

2.1 試験片

99.999 mass%純度のアルミニウム棒の不純物は $\text{Ag} < 2 \times 10^{-5}$ (mass%), $\text{Cu}: 5 \times 10^{-5}$, $\text{Fe} < 10^{-4}$, $\text{Mg}: 10^{-4}$, $\text{Si}: 10^{-4}$ であった。棒は帯溶融精製により、亜結晶粒のない単結晶となっていた。多結晶試験片は、棒をスウェージ後 $\phi 10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ に削り、573 K で1.8 ksの焼なましで平均3 mmの粒径とした。またその場観察に用いた単結晶試験片は、棒より $2 \text{ mm} \times 3 \text{ mm} \times 6 \text{ mm}$ に、組織観察用の単結晶試験片は $7 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ に切出し、いずれも473 K で10.8 ksのひずみ取りを行った。圧縮軸の方位を Fig. 2 中に示す。

2.2 圧縮試験

多結晶試験片はインストロン1185型試験機を用い、1 mm/minの一定速度（初期ひずみ速度で $1.67 \times 10^{-3}/\text{s}$ ）で圧縮した。試験温度は296 K から872 K の範囲とし $\pm 2.5 \text{ K}$ の精度で温度管理し雰囲気は大气とした。試験片は二枚の平行な SiC 板の間にはさみ、黒鉛および MoS_2 系潤滑剤を適宜用いた。粒径が大きいため側面の凹凸は生じたが、ほぼ真ひずみ2程度までバレーリングなしに圧縮できた。組織観察用には単結晶試料を0.1 mm/min（初期ひずみ速度で $1.67 \times 10^{-4}/\text{s}$ ）で583 K でひずみ0.6まで圧縮後5秒以内に水冷した。

2.3 X線その場観察圧縮試験

X線回折像は自作した圧縮試験装置を50 kV-40 mAの銅対陰極による白色X線源に取りつけ、その場撮影し

た。一定の圧縮速度0.06 mm/min（初期ひずみ速度で $1.67 \times 10^{-4}/\text{s}$ ）を用いた。試料は加熱した CO_2 ガスを吹き付け、温度は $533 \pm 5 \text{ K}$ に制御した。

入射X線径は2 mmとし、試料中央とフィルムの距離は35 mmとした。回折像の解釈の背景として、多くのラウエ斑点が見られるとき、試料は粗い結晶粒より成ると推測²²⁾できる。DRX粒が現れ、露出時間中に加わるひずみが小さければ、アステリズムの代わりに斑点が見れ、DRXが検出できる。60秒の露出が撮影に最適であった。

2.4 組織観察

変形を与え水冷した試料は、過塩素酸-エチルアルコール系の液²³⁾を用い電解研磨し、圧縮軸に垂直な断面を出した。その後、パーカ液²³⁾を用い陽極酸化後、偏光顕微鏡にて観察した。本方法は、細かい亜結晶粒を分離観察するのに限界²⁴⁾がある。しかし、室温においても組織が変わる可能性があり、迅速さを要することを考慮すると、最も使いやすい方法である。

3. 結果

3.1 多結晶試料の規則的応力振動

真応力-真ひずみ曲線は変形温度に伴って Fig. 1 のように変化する。その特徴として多重の山と谷を持つ DRX 型の応力振動が見られる。真ひずみ2までにおいて、応力振動は511および571, 614, 668, 720, 763, 820 K において顕著に現れた。

3.2 単結晶試料のX線その場観察

Fig. 2 は単結晶の真応力-真ひずみ線図で、ひずみ0.65までに三つの大きい山を持つ。アルファベットは、各回折像の露出の開始したひずみを示し、Fig. 3 に対応する。60秒の露出時間はひずみ0.05において0.01ひずみ、0.75において0.05ひずみに相当し、この時間中のひずみは小さく回折像は各ひずみにおける組織を反映して

Fig. 1 True stress vs. true strain curves for polycrystal specimens.

Fig. 2 True stress vs. true strain curve at 533 K for a single-crystal specimen.

Fig. 3 X-ray diffraction patterns taken by a transmission Laue method for a single-crystal at different strains of a to q shown in Fig. 2.

いると言える。Fig. 3aは未変形結晶の典型的な透過ラウエ像である。この斑点像が崩れアステリズムが現れ (Fig. 3b), 第一の山に向かいひずみの増加とともにそのストリークは伸びる (Fig. 3c)。この山を過ぎると突然、斑点が現れる。模様は初期の模様とまったく異なるので、新粒が現れたと言える。この模様は最初の谷まで続き (Fig. 3e), 再び拡散し (Fig. 3f と g), 第二の山を過ぎるとまた違った斑点の配列が現れる (Fig. 3h から j)。この配列は第三の山に向かって再び拡散し (Fig. 3k), 以後、斑点とストリークの混在した像になる (Fig. 3l から p)。最後に、Fig. 3qは点qより除荷後、ただちに撮影した像である。これも斑点とストリークより成る。

以上の回折像の変化をまとめると、硬化段階ではアステリズムが、軟化段階ではラウエ斑点が現れる。第三の山を過ぎたあたりから斑点とストリークの混在した像になる。

3.3 組織観察

Fig. 4はFig. 2に示した単結晶を583 Kで真ひずみ0.6まで変形後の組織である。真応力-真ひずみ曲線はFig. 2と大差ない応力振動を示した。写真中、大部分は亜結晶粒の中に含むが、亜結晶粒の見られない部分 (A, B) も混在している。いずれの結晶粒も非常に大きく1 mm程度もある。試料の冷却速度は、通常この手の観察に使われている高速冷却²⁵⁾に比べ速いとは言えないが、SRXも見られず、典型的なDRX組織を呈している。

4. 考 察

4.1 回折像の変化からの組織変化の推定

入射X線径は2 mmでありFig. 3dとeに多くの斑点は見られない、したがって回折像にかかわる粒は2 mm以上あると考えられる。それゆえ粗い結晶粒が現れ、第一および第二の谷に向かい大きな加工軟化を生じたのであろう。粗大な粒となる粒界移動の速度はかなり速い。元は単結晶であったので、新粒がDRXによって形成されたことは言うまでもない。

単結晶の圧縮軸方位は異なるが、著者は623 Kでの応力振動に伴う組織変化を観察²⁶⁾している。それによると、第一の山までは亜結晶粒の生成途上であり、山からの急激な応力低下直後には粗大な新粒が見られた。これは、本研究の回折像の変化と対応している。

古城²⁷⁾は電気銅多結晶を673 Kで引張試験し、冷却後に背面反射X線回折像を撮影している。それによると応力振動の谷で現れるデバイ環は山でのものより不連続になる傾向にあった。本研究ではDRX粒が粗大なためデバイ環は現れていないが、デバイ環が不連続になる

のとストリークが消滅するのとは、同じ傾向である。

4.2 規則的応力振動

4.2.1 既知の動的復旧過程との比較

純アルミニウムの動的復旧過程は多くの研究を基に整理^{8),9)}されている。それによると、ひずみ20程度までは、ひずみ2付近まで加工硬化、それ以上で緩やかに軟化し定常状態を示す。組織変化として、粒界は亜結晶粒に止められ鋸歯状になり、亜結晶粒径は定常状態で一定となる典型的なDRV組織を示す。さらに、ひずみ20以上^{28)~32)}においては、元の結晶粒が亜結晶粒程度の大きさまで引き伸ばされても等軸の亜結晶粒形状は保たれ、粒界の三割程度は大角粒界よりなる。この大変形領域の組織の形成過程は、新粒が核生成し成長する通常の動的再結晶 (Discontinuous DRX) とまったく異なり、McQueenら³⁰⁾はこれを幾何学的な動的再結晶 (Geometric DRX) と呼んでいる。しかし、この段階に至っても応力-ひずみ曲線に多重の応力振動は現れず、復旧過程としてはDRVに分類⁹⁾される。

以上が、一般に共通認識として持たれている。しかし、本研究で明らかになった過程はこれとまったく異なり、むしろ、新粒の核生成-成長を経るよく知られたDRXであると思われる。

4.2.2 規則的応力振動と積層欠陥エネルギー

単結晶では振動の振幅が多結晶に比べ非常に大きいことが銅において報告³³⁾されている。ひずみ速度は一桁異なるが、Fig. 1中の511 Kの曲線と温度の近いFig. 2を比較すると同様な傾向が見られる。これはすでに指摘²⁾されているように、多結晶では粒界近傍が新粒の核生成サイトとなるため低応力でDRXが開始するが、単結晶では変形がより均一で高応力まで核生成しにくいであろう。Fig. 4で粒径の非常に大きいことも核生成のしにくさの表れである。

また、応力振動は方位依存性を持つことが、単結晶を用いた研究³⁴⁾により最近明らかになりつつある。多重すべり方位では、 $\langle 111 \rangle$ が最も低ひずみに第一の山が現れ、山までの加工硬化係数は最も高く、振動の振幅も大きい。加工硬化係数の大きい方位には、低ひずみに第一の山が現れることは、ひずみの蓄積速度に関係するものと考えられる。交差すべりによるDRVが起きやすくて、ひずみの蓄積速度が速ければDRXが生じるものと思われる。

Fig. 1において明瞭な定常状態変形を示さず、やや加工硬化するような挙動を示す。これは圧縮速度一定の試験のため、ひずみの増加につれ真ひずみ速度が漸増し、それに伴い変形応力が増加したことによると考えられる。

以上、いずれにせよDRXは起きるわけで、高積層欠

Fig. 4 Dynamically recrystallized grains at a strain of 0.6, with or without subgrains (A, B).

陥エネルギーの金属は DRX しないとする説は否定されるが、DRX の核生成に積層欠陥エネルギーがいかなる役割をするのかは、今後、他の金属との比較検討を要する。

4.2.3 今までの報告になぜ応力振動が見られなかったか

著者の知る限り、規則的応力振動を報告している例はない。この理由として、過去の文献^{35)~41)}で原因のわかるものに次のものがある。まず、引張試験^{37), 38)}においては、大きな加工軟化のため不安定変形が生じ応力振動が記録されるまで変形は継続しない。ねじりや圧縮試験においては、大変形は与えられるが、ひずみ速度が速く³⁹⁾、温度範囲が異なる⁴⁰⁾。また、使用されている材料の純度が明らかに低い⁴¹⁾。純度については、著者も 99.99 mass% と 99.999 mass% の応力-ひずみ挙動を 623 K で 0.5 までのひずみで比較し、99.99 mass% の試料は単調な DRV 型を示すのを確認⁴²⁾している。文献³⁵⁾、³⁶⁾についても詳細な分析結果は記載されていないが、試料の純度は低いと思われる。

しかし、現在のところ理由が不明なものは、すでに引用した次の報告である。Kassner ら¹¹⁾および Dadson ら¹³⁾、Ravichandran ら¹⁷⁾はいずれも高純度アルミニウムを試験し応力振動は観察していない。これらの報告では微量不純物については言及していない。もし、試料純度が本研究と同じレベルであるとすれば、温度とひずみ速度範囲はほぼ同じこれらの報告において、なぜ応力振動が見られなかったのかは、明らかではない。

4.2.4 動的粒成長

McQueen ら⁴³⁾は、Straub と Blum⁴⁴⁾の研究に基づき、著者の報告²¹⁾の応力振動は動的粒成長による応力の振れであるとの指摘をしている。Straub らは粒径 3.5 mm の粗大結晶の 99.99 mass% アルミニウムを用いて 923 K で圧縮クリープを行った際、突発的にクリープ速度が速まる現象を報告している。そのとき、粒内は亜結晶粒組織から成っているが、長距離の粒界移動が見られたことより、ひずみ速度急増の原因は粒成長による急激な軟化によるとした。彼らはこれを、動的結晶粒成長 (Dynamic grain growth) と称し、99.5 mass% アルミニウムにこのような現象が見られないのは、不純物が粒界移動を妨げたことによるとしている。彼らの試験のひずみ速度変化は DRX に特有な周期的変化ではなく、また組織的にも DRX は見られていないので、彼らの観察は確かに粒成長によるひずみ速度の振れであろう。

多重の応力振動は、動的粒成長によるとする指摘⁴³⁾は多結晶の場合あてはまるかも知れない。しかし、単結晶の場合については、DRX による大角粒界の生成を前提にしなければ当然のことながら成り立たない。ただし、速い粒界移動が粒内転位を吸収して軟化をもたらしひずみ速度を急増させる、クリープにおける現象は、速度一定の圧縮の場合、加工軟化に対応するので、新粒形成後の速い粒成長は応力振動の出現する必要条件かも知れない。

また、微量不純物により粒成長が抑制され DRX が起きず、大変形に至ったときに現れるのが幾何学的動的再結晶ではないかと考えられる。

以上、応力振動について考察してきたが、電気銅²⁷⁾や電解ニッケル⁴⁵⁾等には純度が悪くても DRX は起きるわけで、高純度アルミニウムがこれらの金属と類似の DRX 過程を持つのであれば、新粒の核生成-成長速度に微量不純物と積層欠陥エネルギーがいかにかわり合うかは、興味深い課題である。

5. 結 言

99.999 mass% アルミニウムに高温圧縮速度一定試験を行い、微視的構造の変化を X 線透過ラウエ法および偏光顕微鏡で観察した。

(1) 平均粒径 3 mm の多結晶試験片を圧縮 (初期ひずみ速度で $1.67 \times 10^{-3}/s$) したところ、511 K から 820 K の温度範囲に、多重の山谷を示す規則的応力振動が現れた。

(2) 単結晶試験片を 533 K で圧縮 (初期ひずみ速度で $1.67 \times 10^{-4}/s$) し、応力振動に伴う X 線回折像の変化をその場観察した。第一、第二の山に向かう加工硬化領域ではアステリズム模様は、谷に向かう加工軟化域では

斑点模様が現れ、再結晶粒の生成しているのが斑点模様の変化より確認された。

(3) 583 K でひずみ0.6まで圧縮（初期ひずみ速度で $1.67 \times 10^{-4}/s$ ）した単結晶試料を陽極酸化処理し、下部組織を観察した。その結果、亜結晶粒を内部に含む典型的な動的再結晶粒が見られた。

観察の結果、この再結晶過程は今まで生じないとされていた新粒の核生成-成長を経る動的再結晶であることを確認した。

本研究の内容について、貴重なご助言をいただいた芝浦工業大学 大塚正久教授および電気通信大学 酒井拓教授に御礼申し上げる。

参 考 文 献

- 1) 酒井 拓：日本金属学会報，**22** (1983)，1036.
- 2) T. Sakai and J. J. Jonas: *Acta Metall.*, **32** (1984)，189.
- 3) H. J. McQueen, E. Evangelista and N. D. Ryan: *Recrystallization '90, The Minerals, Metals and Materials Society, Warrendale*, (1990)，89.
- 4) D. Hardwick, C. M. Sellars and W. J. McG. Tegart: *J. Inst. Metals*, **90** (1961-62)，21.
- 5) G. Gottstein: *Metal Sci.*, **17** (1983)，497.
- 6) G. Gottstein and U. F. Kocks: *Acta Metall.*, **31** (1983)，175.
- 7) B. Derby and M. F. Ashby: *Scripta Metall.*, **21** (1987)，879.
- 8) H. J. McQueen and K. Conrod: *Microstructural Control in Al Alloys, Met. Soc. AIME.*, Warrendale, (1986)，197.
- 9) M. E. Kassner, M. M. Myshlyayev and H. J. McQueen: *Mat. Sci. Eng.*, **A108** (1989)，45.
- 10) H. J. McQueen, W. A. Wong and J. J. Jonas: *Canad. J. Physics*, **45** (1967)，1225.
- 11) M. E. Kassner and M. E. McMahon: *Met. Trans.*, **18A** (1987)，835.
- 12) M. E. Kassner: *Met. Trans.*, **20A** (1989)，2182.
- 13) A. B. C. Dadson and R. D. Doherty: *Acta metall. mater.*, **39** (1991)，2589.
- 14) I. S. Servi and N. J. Grant: *Trans AIME*, **10** (1951)，909.
- 15) D. McLean: *J. Inst. Metals*, **80** (1951-52)，507.
- 16) G. A. Henshall, M. E. Kassner and H. J. McQueen: *Met. Trans.*, **23A** (1992)，881.
- 17) N. Ravichandran and Y. V. R. K. Prasad: *Metall. Trans.*, **22A** (1991)，2339.
- 18) L. Styczynski, W. Pachla and S. Wojciechowski: *Metal Sci.*, **16** (1982)，525.
- 19) S. P. Belyayev, V. A. Likhachev, M. M. Myshlyayev and O. N. Senkov: *Phys. Metal Metall.*, **52** (1981)，143.
- 20) J. J. Jonas, C. M. Sellars and W. J. McG. Tegart: *Metall. Reviews*, **14** (1969)，1.
- 21) H. Yamagata: *Scripta Metall. Mater.*, **27** (1993)，201.
- 22) B. D. Cullity: *Elements of X-Ray Diffraction*, X線回折要論，松村源太郎訳，アグネ，(1961)，262.
- 23) Ch. Perdrix, F. Montheillet, G. Wyon and F. Weill: *Metallography*, **13** (1980)，289.
- 24) J. K. Solberg, H. J. McQueen, N. Ryum and E. Nes: *Phil. Mag.*, **60** (1989)，447.
- 25) 酒井 拓，大橋正幸：鉄と鋼，**67** (1981)，2000.
- 26) H. Yamagata: *Scripta Metall. Mater.*, **27** (1992)，727, 1157.
- 27) 古城紀雄，岡田陽三，堀 茂徳：材料，**29** (1980)，776.
- 28) Ch. Perdrix, M. Y. Perrin and F. Montheillet: *Mem. Scient. Revue Metall.*, **78** (1981)，309.
- 29) F. Montheillet, M. Cohen and J. J. Jonas: *Acta Metall.*, **32** (1984)，2077.
- 30) H. J. McQueen, O. Kunstad, N. Ryum and J. K. Solberg: *Scripta Metall.*, **19** (1985)，73.
- 31) D. Hardwick and W. J. McG. Tegart: *Mem. Scient. Revue Metall.*, **LVIII** (1961)，7.
- 32) H. P. Stüwe: *Z. Metallk.*, **56** (1965)，633.
- 33) 菊池潮美：文献2)中に引用.
- 34) 大塚正久，田中康介，福富洋志，山縣 裕：軽金属学会第84回春期大会講演概要集 (1993) 143.
- 35) C. M. Sellars and W. J. McG. Tegart: *Acta Metall.*, **14** (1966)，1136.
- 36) M. M. Farag, C. M. Sellars and W. J. McG. Tegart: *Deformation under hot working conditions, Iron and Steel Institute, London*, (1968) 60.
- 37) S. Howe and C. Elbaum: *Phil. Mag.*, **8** (1961)，37.
- 38) P. Olla and P. F. Virdes: *Metall. Trans.*, **18A** (1987)，293.
- 39) H. J. McQueen and N. Ryum: *Scand. J. Metal*, **14** (1985)，183.
- 40) H. Luthy, A. K. Miller and O. D. Sherby: *Acta Metall.*, **28** (1980)，169.
- 41) H. Ormerod and W. J. McG. Tegart: *J. Metals*, **89** (1960-61)，94.
- 42) H. Yamagata: *Acta Metall. Mater.*, 印刷中.
- 43) H. J. McQueen, W. Blum, S. Straub and M. E. Kassner: *Scripta Metall. Mater.*, **28** (1993)，1299.
- 44) S. Straub and W. Blum: *Scripta Metall. Mat.*, **24** (1990)，1837.
- 45) 大橋正幸，遠藤孝雄，酒井 拓：日本金属学会誌，**54** (1990)，43.