アルミニウム板の再結晶に関する研究 (第2報)

不純物として銅を含む場合の再結晶粒の生長速度**

鈴木 秀次* 池田 晋*

Hideji Suzuki and Susumu Ikeda: Studies on Recrystallization of Aluminium (Plates II). Effect of Impurity on the Rate of Growth of Recrystallized Crystals.

By means of the same method as in the case of the first report, the rate of growth of a recrystallized crystal was measured for six kinds of Al-Cu alloys, containing 0.027, 0.15, 0.56, 1.03, 1.61 and 2.00% Cu, respectively. The results differ from those of pure aluminium in the following points: (1) The more the copper content is the slower the growth-rate at a higher temperature than a certain characteristic temperature, but the reverse at the lower, provided that the copper content is more than about 0.03%. (2) An increase in copper content results in the depression of the transition temperature, at which the driving force changes its functional form from $(l+c)/D$ or l/D in the case of the copper content being less than about 0.6%. (3) The Rate of growth in alloys containing 1.61 or 2.00% Cu, pre-annealed at 350° is far slower than those pre-annealed at 450°, that is, the rate of growth is decreased by the process of dissolution of precipitates.

(Received September 11, 1952)

I. 緒 言

第1報⁽¹⁾において純アルミニウムの再結晶粒の生長速度の測定結果を述べたが、今回は不純物として銅を含む場合の生長速度の測定結果を述べる。試料としては第1報に用いたのと同じ純アルミニウムに銅をそれぞれ0.027%, 0.15%, 0.56%, 1.03%, 1.61%, 2.00% 加えた6種類の試料を用いた。約4cm 角に鑄込んだ後第1報と同様の方法で試料を製作した。熱処理および平均の結晶粒直径は Table 1 に示す通りである。

* 東北大学金属材料研究所

** 1950年9月本會札幌大會に発表

(1) 鈴木, 池田, 本誌, 16(1952), 585.

Table 1 Treatments of Specimens.

Lot	Copper Content	Temperature Annealing	Annealing Time	Average of Grain Diameter
BI	0.027wt %	400°	2 hr	0.16 mm
BII	0.027	600	2	0.34
CI	0.15	400	2	0.16
CII	0.15	600	2	0.35
DI	0.56	400	2	0.14
DII	0.56	600	2	0.31
EI	1.03	350	2	0.093
EII	1.03	450	2	0.25
EIII	1.03	550	2	0.63
FI	1.61	350	2	0.059
FII	1.61	450	2	0.26
GI	2.00	350	2	0.05
GII	2.00	450	2	0.26
GIII	2.00	550	2	0.60

II. 加工度と生長速度の関係

第1報と同様にして測定された再結晶粒の生長速度を Fig. 1~6 に示す。縦軸は何れも $\log v_0$ であるが横軸は Fig. 1 と Fig. 2 では $\log (l/D+C/D)$ であるが Fig. 3~6 では $\log (l/D)$ である。こゝに v_0 は再結晶粒の生長速

Fig. 1

Fig. 2

Fig. 3

度を焼鈍開始直後の時刻に外挿した値、 l は延伸率、 c は常数で 1.02% という値をもつ。 D は焼鈍開始前の平均の結晶粒直径で任意の直線にそつて測つた結晶境界間距離の平均値である。

不純物として銅を含んでも純アルミニウムと大體似た結果であるが、次の相異が認められる。

(1) 高温度の生長速度は銅の多いほど遅く、低温度の生長速度は銅の多いほど速い。但し純アルミニウム (99.995%) の低温度における生長速度は 0.027% Cu を含むものより速い (2) 再結晶粒生長の駆動力が $(l+c)/D$ の函数から l/D の函数に移る温度は銅を含むと低くなり、銅が 0.56% のとき最低で、それ以上ますと僅かに高くなる (3) 1.61

%, 2.00% の銅を含む合金を 350° で焼鈍した後 (Lot FI, Lot GI) 再結晶させると 450° で焼鈍したもの (Lot FII, Lot G II) に比べて著しく生長速度が遅い。すなわち析出を起した試料を固溶限の上で再結晶させても、析出をしなかつた試料に比べて生長速度が非常に遅い。

III. 銅含有量と生長速度の関係

銅の含有量の異なつた場合、同一の駆動力によつて生長する再結晶粒の生長速度を比較する。

Fig. 7 には駆動力が $l/D = 1 \text{ cm}^{-1}$ であるものを比較した。従つて純アルミニウムでは駆動力を同様にあらわし得ない故 $(l+c)/D = 1.5 \text{ cm}^{-1}$ すなわち $D = 0.2 \text{ mm}$ の場合について比較した。銅が 0.027%, 0.15% 入つたものは純アルミニウムの曲線と銅 0.56% の曲線の間にあつた (圖の温度範囲より低温でははみ出す)。圖が複雑になるので省いた。

$\log v_0$ と $1/T$ の関係はどの合金でも上に凸な曲線となり一定の活性化エネルギーをもつと考えることはできない。しか

し濃度によつて曲線の平均の傾斜は著しく變り、濃度の高いほど緩てくる。しかし銅が 1.61% 以上になるとほとんど變化しないようにみえる。400° と 500° の間でこれらの曲線は交差する。すなわち 500° 以上では大體銅含有量の多いほど v_0 は小さくなり、400° 以下では逆である。さらに別な駆動力に對して同様な比較を行つても大體同様な傾向を示す。

第1報で行つたように低温側の傾斜より活性化エネルギーを求めてみると Table 2 のような結果が得られる。顯著なことは 99.98% 近くに活性化エネルギーの極大があつて、これより純度が良くなつてもまた悪くなつても活性化エネルギーの減少するようにはみえることである。一般に試

料の純度が良くなると再結晶の活性化エネルギーが大きくなると考えられていたが、最近川島、中村によつて 99.998

Fig. 4

Fig. 5

假定すれば両者の絶対値まで完全に一致させることができる。所で Anderson-Mehl の場合結晶粒の大きさは 530 mm⁻² であるから非常によく一致しているといふ得る。

(2) N. Kawashima and Y. Nakamura, 本誌, 16 (1952), 183.

(3) W. A. Anderson and R. F. Mehl, Trans. AIME, 161(1945), 140.

(4) M. Kornfeld and W. Pawlow, Phys. Zeit. Sowjetunion, 12 (1937), 301.

% Al では 99.992 % に比べて非常に活性化エネルギーの減小することが知られ⁽²⁾, 上述の測定と定性的に一致している。極大附近のエネルギーの値は Anderson-Mehl の測定値⁽³⁾に近く、不純物量も大體似ている。

IV. 従来の測定値との比較

従来のアルミニウムにおける再結晶粒の生長速度の測定結果は Fig. 8 に示される。Anderson-Mehl の測定⁽³⁾は純度 99.97% のものを用いて同様な方法で行われたのであるから、Lot B の測定値と大體一致するはずであつて、前節に述べたように両者の活性化エネルギーの測定値が一致しているのは當然である。さらに Anderson-Mehl の試料 Lot A の D

を 0.056 mm と

Kornfeld-Pawlow の測定⁽⁴⁾では活性化エネルギーが大體 37 kcal で Anderson-Mehl の測定値 56~62 kcal と非

Fig. 6

Fig. 7

Table 2 Values of Activation Energy.

Copper Content	(l+c)/D	l/D	Activation Energy
0.027 wt %	2cm ⁻¹	—	68 kcal mol ⁻¹
0.027	3	—	58
0.027	5	—	56
0.15	3	—	57
0.56	—	2 cm ⁻¹	51
0.56	—	3	47
0.56	—	5	41
0.56	—	7	41

(5) J. Fujiwara, E. Tatsumoto and T. Hirokawa, J. Sci. Hiroshima Univ., 11(1942), 311; 藤原, 物理學講演集, 4 (1944 丸善), 145.

常に異つている。相異の原因は Kornfeld-Pawlow の場合不純物が多いことゝ、測定が行われた温度範囲が Kornfeld Pawlow の場合大體 400° 以上なのに Anderson-Mehl の測定は 400° 以下と異なつてゐるためである。Kornfeld

Pawlow の測定には 450° 位から下の活性化エネルギーの大きな直線に移ろうとする傾向をみせており測定温度範囲の影響が現れてゐる。

藤原、辰本、廣川⁽⁵⁾らの針金についての測定結果は大體 Kornfeld Pawlow の結果と

似ているが、高温側の活性化エネルギーは Kornfeld-Pawlow の測定値より小さい。この相異は藤原、辰本、廣川らの用いた試料の含有不純物量が多いためと考えられ

Fig. 8

る。すなわち、我々の測定値より大體一致する曲線を選び出して圖に書入れておいたが、0.56% Cu の $l/D=7\text{cm}^{-1}$ に対する測定値が大體藤原、辰本、廣川らの測定に一致し、0.15% Cu の $l/D+c/D=5\text{cm}^{-1}$ に対する測定値が大體 Kornfeld らの測定値に一致している。0.027% Cu の試料では高温側の活性化エネルギーが Kornfeld-Pawlow の値よりも大きい、低温側で Anderson-Mehl の測定結果と大體一致する。

線の場合と板の場合では生長速度に幾分の差はあるだろうから、厳密な比較はできぬが、Kornfeld-Pawlow の場合 l は 4% であるから $D=0.1\text{mm}$ ならば速度の絶対値も 0.15% Cu の場合と一致する。所で線は延伸される前に 420° で 2 時間焼鈍されているが、同様の処理を板に行えば D は 0.15~0.25 mm でなければならぬ。正しく一致してはいないが線と板の相異を考えれば大體妥當な値であると思われる。

藤原、山下の板状試料についての測定結果はさらに複雑である。Fig. 8 の左下側の曲線群がそれであつて、再結晶粒の板に対する相對的な結晶方向が異なると他の條件は同一でも別な曲線になる。板状試料と線状試料との相異は藤原、山下ら自身によつて、線状試料では單一結晶に併合される直前の微結晶は著しい纖維狀排列の殘存があり、かつ結晶粒も微細である。しかるに板状試料では纖維狀排列は著しく減少し、結晶粒も大きくなつてゐるためであると説明された。第 1 報に述べたように、等温的に再結晶させるとき、生長速度は次第に遅くなることが多いが、移動爐を用いるときには常に一定時間焼鈍された試片中を粒界が移動するのであるから、生長速度は遅く觀測される。さらに第 1 報 Fig. 3 に示した例ではある時間焼鈍されると生長は止まつてしまうので、移動爐の温度分布に對應してある温度以下では生長速度が零になつて觀測される場合がある。これが藤原、山下の測定結果を複雑ならしめた原因である。

以上の如くこれまで行われた三つの測定結果の間の見掛けの矛盾には、不純物を考慮に入れ、温度範圍を擴げた今回の實驗によつて妥當な説明が與えられるのである。

最後に終始御懇篤な御指導を頂いた竹内 榮 教授に衷心より感謝の意を表する。

(6) 藤原、山下、廣島文理科學部紀要、12(1942), 163.