自由圧縮変形における高純度アルミニウム 双結晶の粒界の挙動

加 藤 道 友*

Michitomo Kato : The Behaviour of Grain Boundary in High-Purity Aluminium Bi-crystal During the Free Compressive Deformation. Grain boundary sliding during a constant rate heating under various constant compressive stresses of 20 kg/cm² to 35 kg/cm² were observed in high purity aluminium bicrystals with boundary misorientation angles of 33°37' and 33°19'. The bicrystal specimens were prepared by the Bridgmann method. Grain boundaries were situated parallel and normal to the compressive direction. The main results obtained were as follows. (1) When grain boundaries were situated parallel to the compressive direction, grain boundary sliding increased with increasing compressive stress up to 25 kg/cm², but when the stress increased to 30 kg/cm², the amount of grain boundary sliding became smaller than that for the compressive stress of 25 kg/cm². In the case of normal compression, grain boundary sliding increased with increasing compressive stress up to 30 kg/cm². (2) Grain boundary sliding during the free compressive deformation was caused by the misorientation of component crystal for external stress. (3) Grain boundary situated normal to the compressive direction migrated well. (4) The behaviour of the deformation layer in the region adjacent to the grain boundary affected strongly the difference in activation energy for grain boundary sliding by the compressive direction.

(Received July 11, 1966)

I. 結 言

塑性加工における粒界の挙動に関する基礎研究として、

* 愛媛大学工学部 (Faculty of Engineering, Ehime University, Matsuyama)

前報^{(1)~(3)}まではせん断変形における粒界じりと粒界移動ならびに粒界に接した領域の変形を高純度アルミニウム双

(1) 加藤：本誌，29(1965)，898.

(2) 加藤：本誌，30(1966)，540.

(3) 加藤：本誌，30(1966)，546.

結晶，固溶体合金双結晶について検討した。鍛造加工の基礎過程である自由圧縮における応力分布，材質の流動については多くの研究^{(4)~(6)}があるが粒界の挙動については十分でない。稲田⁽⁷⁾は Cu (99.86%) 多結晶体における圧縮方向と粒界移動の方向について報告しているが，粒界じりについてはふれていない。本実験では高純度アルミニウム双結晶を定負荷，定速加熱条件下で粒界面に直角および平行に圧縮変形させて，粒界じり，粒界に接した領域の変形および試験後の粒界移動状態を観察し検討した。

II. 試料および実験方法

高純度アルミニウム (99.99%) の鋳塊を厚さ 12 mm に冷間圧延し，この圧延板から 12×12×150 (mm) の角棒状試片を切り取った。つぎに前報⁽²⁾⁽³⁾と同じ方法で角柱状双結晶を製作した。Photo.1 はその一例である。これを腐食切

Photo.1 High-purity aluminium bicrystal with straight boundary.

断法により 11 mm の長さに切断し，エメリー紙と化学腐食により 10×10×10 (mm) の立方体の双結晶試片に仕上げた。双結晶の相対傾角は山本式結晶方位決定装置を使用して光像法⁽⁸⁾で測定した。本測定における相対傾角はそれぞれの結晶の {100} 面についての傾角である。供試試片の傾角を全試片について同一にすることは困難であつたので，粒界面に平行に圧縮（以後は平行圧縮という）した試片 (Fig.1-a 参照) は 32° 37'，粒界面に直角に圧縮（以後は直角圧縮という）した試片 (Fig.1-b 参照) は 33° 19' の傾角をもっている。

Fig.1 Direction of compressive stress.

圧縮試験機の構造の大略は Fig.2 に示した。主要部分は可動治具と固定治具，および加熱要素から構成され，試片は上方から片押し法により圧縮される。治具の裏側に加熱要素を装備した。荷重は定速負荷の場合には油ポンプ，定荷重の場合には分銅を使用できるようにした。試片の圧

縮歪はダイヤルゲージで測定し，組織の観察および粒界じりの測定は試験機の蓋の中央にある石英ガラス窓を通じて

Fig.2 Schematic drawing of compression apparatus.

おこなつた。

雰囲気はアルゴンガスであつて，室温から 400°C の範囲にわたつて定荷重 - 定速昇温 (2°C/min) 方式で試験をした。なお治具と試片の接触面には潤滑剤は使用していない。

III. 実験結果

1. 圧縮における粒界じり

平行圧縮で定速加熱した場合の粒界じり量を温度の関数として示すと Fig.3 のようになる。20 kg/cm² の初期応力

Fig.3 Grain boundary sliding vs. temperature curves under constant compressive stress, during constant rate (2°C/min) heating up to 400°C. Grain boundary is situated parallel to compressive direction.

では約 340°C で粒界じりを開始し漸増する。25 kg/cm² では約 220°C からじりを開始し，260°C までは少量の増加を示すのみであるが 260°C 以上になると急激に増加し，350°C 以上では 10°C の昇温について約 2.4 μ を示し，400°C では 25 μ に達している。この値は 7.5 kg/cm² の応力でせ

- (4) H.Meyer und F.Nehl: Stahl und Eisen, **45** (1925), 1961.
- (5) H.Hennecke: Stahl und Eisen, **48** (1928), 315.
- (6) E.Siebel und A.Pomp: Mitt. Kaiser-Wilhelm-Inst. Eisentorsch, **9** (1927), 157.
- (7) 稲田ら: 本誌, **29** (1965), 567.
- (8) 山本, 渡辺: 金属物理, **5** (1959), 196.

ん断した場合に相当する。30 kg/cm² の応力における粒界
 じりの開始は 25 kg/cm² の場合より高温であつて、増加の
 傾向も緩慢で 400°C で約 8 μ にすぎない。35 kg/cm² では
 さらにおそく 300°C でじりが開始し 400°C における じり
 量は 30 kg/cm² とほぼ同様である。

つぎに 直角圧縮における粒界じり 曲線を Fig. 4 に示し

Fig. 4 Grain boundary sliding vs. temperature curves under constant compressive stress, during constant rate (2°C/min) heating up to 400°C. Grain boundary is situated normal to compressive direction.

た、じりの開始温度は 20 kg/cm² の場合に約 320°C であ
 つて平行圧縮の場合よりわずかに早い。25 kg/cm² ではほ
 ぼ同じ程度である。また各応力において 360°C 付近まで
 は平行圧縮の場合と同様の傾向を示すが、それ以上では 25
 kg/cm² と 30 kg/cm² の場合の増加率が逆になり、400°C で
 は 30 kg/cm² の方が増加している。上述の応力と粒界じり

Fig. 5 Grain boundary sliding as a function of compressive stress.

量との関係を 350°, 400°C において検討したのが Fig. 5 で
 ある。平行圧縮の場合いづれの温度にても 25 kg/cm² の場

合にじりが最大値を示し、直角圧縮では 350°C では 25 kg/
 cm² の応力で最大を示すが 400°C では 30 kg/cm² の応力
 で最大を示している。

これらのことから圧縮においても昇温とともに粒界じり
 は増加するが、応力の増加には限度があり応力の増加は必
 ずしも粒界じりの増加をもたらすとはいえない。また両圧
 縮方法について比較すると約 30 kg/cm² の応力までは平行
 圧縮の方がじり量が多いが、それ以上では逆の関係を示
 す。

つぎに 400°C における圧縮歪と 応力との 関係を Fig. 6

Fig. 6 Relation between compressive strain and stress at 400°C.

に示した。20~25 kg/cm² の応力では歪みが急激に増加し、
 その後は漸増を示している。この図でとくに目につくこと
 は、圧縮方向と圧縮歪との関係が粒界じり- 応力の関係と
 全く逆になっていることである。すなわち、じりは平行圧
 縮の場合に多いが、圧縮歪は直角圧縮の方が多いというこ
 とである。

2. 圧縮における粒界じり反応の 活性化エネルギー

昇温過程における温度の微小変化を ΔT 、粒界じりの微
 小変化を Δr とすると、 $\Delta r/\Delta T$ は粒界じり-温度曲線の勾
 配を示すことになる。平行圧縮における $\Delta r/\Delta T$ を温度の
 関数として示すと Fig. 7 のようになる。つぎに $\Delta r/\Delta T$ の
 対数を 絶対温度の逆数の関数として示すと Fig. 8 のよう
 になる。試験温度全域にわたつては直線関係は得られず、
 かつ多少のばらつきはあるが比較的広い範囲にわたり負の
 勾配をもつ一連の直線関係をえた。したがつて $\Delta r/\Delta T$ と
 温度との間に

$$\Delta r/\Delta T = A \cdot \exp(-Q/RT)$$

が成立すると考えられるから、直線の傾斜から活性化エネ
 ルギを求めると約 10400 cal/mol となる。直角圧縮の場合
 の $\log \Delta r/\Delta T - 1/T$ 関係図も Fig. 9 のように比較的高温
 部で広い範囲にわたり負の直線関係をえた。この場合の活
 性化エネルギーは約 14400 cal/mol であつた。前者の値はせ

ん断による粒界よりの活性化エネルギー⁽²⁾とよく一致するが、後者はかなり大きい値であつて傾角の相違によるものとは考えられず粒界近傍の複雑な変形が推察される。

Fig. 7 Grain boundary sliding per deg. cent. vs. temperature curves. Grain boundary is situated parallel to the compressive direction.

Fig. 8 Logarithm of grain boundary sliding per deg. cent. as a function of reciprocal of absolute temperature. Grain boundary is situated parallel to the compressive direction.

3. 試片の表面および内部の組織

Photo. 2 (a~d) は各応力を平行に負荷し 400°C まで昇温した場合の表面組織を示し、(a'~d') は直角圧縮の場合を示した。20 kg/cm² の応力で平行圧縮した場合 (a) セン断と同様に粒界よりの参照線の僅少な喰いちがいが認められ、粒内には粒界と約 45° をなすなり線が認められる。直角圧縮 (a') では、粒界の巾は (a) よりわずかに広くなり、かつ局部的に太くなっている部分とそうでない部分との差が大きく示されている。25 kg/cm² の応力の場合、平行圧縮 (b) では粒界よりの粒界の巾とも (a) よりいじり増し、粒界帯には変形層が形成されている。また粒内なりが多なり系に現われている。直角圧縮 (b') の場合も粒界よ

りは増加し、かつ変形層も凹凸をなして各部に発生している。30 kg/cm² の応力を平行に負荷した場合 (c) には、粒界よりの (b) より減少し、かつ変形層の形成も比較的すくな

Fig. 9 Logarithm of grain boundary sliding per deg. cent. as a function of reciprocal of absolute temperature. Grain boundary is situated normal to the compressive direction.

い。しかし直角圧縮 (c') では (b) より粒界よりの増加し、粒内のなり帯は粗大かつ多なり系に現われ粒界に接した変形層の凹凸は大きく、しかも粒界全体にわたって形成されている。その発達方向は負荷方向である。35 kg/cm² の応力で平行圧縮した場合 (d) の粒界よりの (c) よりわずかに少なく、粒界帯の局部的変形も少なくなっている。しかし粒内では粗大ななり帯のほかに Fe で観察されるような波状なり線が発生しており、複雑な応力の作用が推察される。直角圧縮 (d') では粒界に接した変形領域は (d) よりいじりしく幅が広く、ほとんど全粒界にそって形成され、負荷方向へ発達している。粒内では粗大ななり帯ならびに交叉なりが生じている。

Photo. 3 は試験終了後再研摩した代表的な例である。

(a), (b) ともに粒界よりの最も多い場合、すなわち (a) は 25 kg/cm² で平行圧縮、(b) は 30 kg/cm² で直角圧縮の場合である。粒界よりの (a) がはるかに多いが試験後においても粒界は局部的に曲折しているのみで比較的直線状を示している。しかし (b) はよりの少ないが粒界移動がいじりしい。これらの相違は粒界帯の変形層の発達状況と関連しているようである。

IV. 考 察

本実験では立方体試片の中央にある粒界面に対して平行および直角に圧縮したいずれの場合にも、粒界よりのおこり、平行に圧縮した場合の方がなり量は多い結果を示した。いま、軸圧縮主応力を σ_x とし、粒界面が試片の横断面と θ だけ傾いているとすると、

粒界面に作用する応力 P は
 垂直分応力 σ は
 せん断分応力 τ は

$$P = \sigma_x \cos \theta$$

$$\sigma = \sigma_x \cos^2 \theta$$

$$\tau = \sigma_x \sin \theta \cos \theta$$

面でのせん断応力によるものではない。以上は材料力学的に考えた場合であるが、実際の現象は非常に複雑である。試片に定圧縮応力を負荷すると、結晶は歪み硬化するが、

Photo.2 Surface micro-structure of specimens heated to 400°C with a constant rate (2°C/min) of heating under constant compressive stress. ($\times 120$)

(a) ~ (d) : Boundaries are situated parallel to the compressive direction.

(a') ~ (d') : Boundaries are situated normal to the compressive direction.

(a) and (a') : correspond to 20 kg/cm², (b) and (b') to 25 kg/cm², (c) and (c') to 30 kg/cm²,

(d) and (d') to 35 kg/cm², respectively.

Photo.3 Micro-structure of specimens which were electro-polished after test. ($\times 120$)

(a) : 25 kg/cm², parallel to the boundary.

(b) : 30 kg/cm², normal to the boundary.

となる。本実験の場合 $\theta=0$ および $\theta=90^\circ$ であるから、いずれの場合も $\tau=0$ となる。換言すれば本実験における粒界面は垂直分応力が最大および最小となる二つの場合の面と考えられるから、粒界面上ではせん断分応力は作用しないのである。したがって、本実験で観察した粒界よりは粒界

定速加熱条件下ではしだいに回復し軟化する。昇温にともない結晶の変形抵抗が低下すると、定圧縮応力が負荷されているから再び変形をおこす。このように変形と回復がくりかえされていることになる。圧縮における粒界よりは Photo.2 からわかるようにせん断の場合⁽²⁾とは異なり、粒内のいちじるしい変形をともしついているのが特徴であつて、従来の概念からすれば粒界よりはとはいえない状態に近い。したがって、直角圧縮の場合の粒界よりは(粒界帯上下での結晶の相対的なずれ)は、上下結晶の外力に対する方位の違いに基因すると思われる。これは平行圧縮の場合に左右の結晶内でのりの様子が異なることから推察される。平行圧縮の場合も結晶内のせん断応力と軸圧縮主応力とに対する左右結晶の方位の差により、粒界帯左右での変形に差を生じ、この差が粒界でのずれをおこすと考えられる。

負荷応力の増加は必ずしも粒界よりはの増加を意味しない。これはある程度以上の応力になれば、粒界帯を境界と

する両側の結晶の迂り変形の差が少なくなり、かつ材料は応力に対して横向きの流動がいちじるしくなるためと思われる。さらに粒界迂りによつて生じた粒界に接する帯状変形領域も負荷の少ない場合よりも内部まで拡がり、その部分でポリゴン化して粒内のほかの部分より軟化し、小粒子組織となり局部的に粒界は移動する。このため粒界はいちじるしくジグザグをなし、粒界迂りに対する抵抗が大きくなるため結晶は変形しやすくなるにもかかわらず、粒界迂りは増加しないのであろう。この傾向はせん断試験においても報告されている⁽⁹⁾。粒界迂りにともなう粒界帯の変形領域は直角圧縮の場合にいちじるしく、これに関連して粒界移動も直角圧縮の場合に大きい。この点については稲田らの観察と一致している。

直角圧縮の場合の粒界迂り反応の活性化エネルギーは平行圧縮よりかなり大きい値を示した。これは直角圧縮における迂りは粒界帯上下の結晶の迂り変形の差によつておこり、かつ広い範囲にわたる帯状変形層を生じる。換言すれば平行圧縮による粒界迂りは粒界にそう狭い範囲で迂り、直角圧縮では広い範囲で迂るためこのような相違を生じたのであろう。

V. 結 言

高純度アルミニウム双結晶の粒界面に直角および平行方

(9) 美馬, 岡: 本誌, 29 (1965), 534.

向に自由圧縮をおこない粒界の挙動を観察した。その結果を要約するとつぎのようである。

(1) 粒界面に平行および直角に圧縮したいずれの場合にも粒界迂りはおこる。しかし自由圧縮における粒界迂りはせん断の場合と異なり、粒内のいちじるしい変形をとまなうのが特徴である。

(2) (1) より自由圧縮における粒界迂りは構成結晶の外力に対する方位差に基因しておこる現象と考えられる。

(3) 自由圧縮における粒界迂りは昇温とともに増加するが、応力の増加には限度があり、直角圧縮では 30 kg/cm^2 平行圧縮では 25 kg/cm^2 の応力で粒界迂りの最大を示した。

(4) 粒界移動および粒界に接した領域の変形は直角圧縮の場合に大きい。

(5) 粒界迂りの活性化エネルギーは圧縮方向により約 4 kcal/mol の差を示したが、これは迂りにともなう粒界帯の変形程度が影響すると考えられる。

終りにのぞみ本研究を終始御指導いただき、有益な御助言を賜つた大阪大学美馬源次郎教授、元本学故渡辺晴夫教授、ならびに試料の圧延に便宜をはかつて下さつた東洋アルミニウム K.K. の各位に厚く感謝します。また装置の製作に協力をいただいた本学瀬尾俊弘技官に謝意を表します。なお本研究の一部は軽金属奨学会の御援助によることを付記して感謝の意を表します。