Al-Ti 合金における降伏点現象

矢野 信三* 諸住 正太郎*

Shinzo Yano and Shotaro Morozumi: Yield Point Phenomenon in Al-Ti Alloy.

A yield point phenomenon was observed in Al-0.16 wt% Ti alloy when specimens were stretched at room temperature after cold working and annealing under the limited conditions, for example, 1 hr at 280 to 300°C. The phenomenon was most clearly observed in a specimen annealed at 280°C rather than at higher temperatures. Electron microscope observation revealed that the annealed structure of the specimen consisted of very fine subgrains of a few microns, inside of which the dislocation density was low. Therefore, it is concluded that, in addition to locking of dislocations by added titanium, the fine subgrain structure contributes greatly to the phenomenon.

(Received August 31, 1972)

I. 緒 言

軟鋼における降伏点現象は工業的にも重要であり、多くの研究がなされているが、アルミニウムおよびその合金においてもこの現象が観察され、報告されている^{(1)~(4)}。すなわち、Smallman ら⁽¹⁾は Al-0.21 wt% Cu, Al-2.49 wt% Zn, Al-0.005 wt% H の各合金の単結晶において降伏点現象を認め、その原因を溶質原子による転位の固着作用にあるとし、とくにアルミニウム格子を収縮させる銅や亜鉛などの原子は鉄中の炭素や窒素のように母格子をふくらませるものと同様な働きををするとしている。一方、Philips ら⁽²⁾は Al-Mg 多結晶試料においてストレッチャー・ストレン模様との関連においてこの合金の降伏点現象を観察している。また、Carreker ら⁽³⁾は線引きした 99.975% アルミニウムを 300°C で焼なまし後、室温以下の各温度で引張試験を行い、降伏点現象を観察しており、その原因を固溶している不純物によるとしているが、300°C 以上で焼なまししたものにこの現象が現われないのは、Fe-C 合金の場合のように、結晶粒が粗大化したためであろうとしている。さらに、寺井ら⁽⁴⁾は Al-Li 合金において降伏点現象を研究し、この合金にみられる降伏点現象を二つの型に分けている。すなわち、第 1 の型として溶体化処理し溶質が固溶している試料に現われるもの、また第 2 の型として、十分に析出処理を行ったものを加工しそれを非再結晶温度領域で焼なまししたときの試料にみられるものにてである。

筆者らは、他の研究過程において Al-Ti および Al-Zr 合金においても降伏点現象が現われることを知った。これら両合金におけるこの現象は同じ原因によるものと考えられるので、とくに Al-Ti 合金を取り上げ、その引張特性お

よび組織観察により本現象を調べたのでその結果について報告する。

本実験においては、まず合金中のチタン量によって降伏点現象がどのように変化するか、また用いたアルミニウム地金自身にこの現象がみられるか、さらにまた適当な熱処理温度などの予備的知見を得るため、後述の実験方法と類似の方法によって 99.8% 冷間加工したアルミニウム、Al-0.16% Ti, -0.32% Ti および -0.64% Ti の 4 種類の線状試料を用いて予備実験を行った結果、次のことがわかった。

(1) 260°C 1 時間の焼なましでは、合金は再結晶を行わない。

(2) 290°C 1 時間の焼なましでは、合金は再結晶を行い、室温における引張試験においていずれも降伏点現象を示し、0.16% Ti のものが最も降伏点伸びが大きい。

(3) 310°C 1 時間の焼なましでは、290°C のものよりも降伏点伸びは少なくなる。

(4) 630°C から焼入れし、290°C で焼もどした合金およびすべての条件で熱処理したアルミニウムには降伏点伸びはみられない。

以上の結果から、以下の実験では Al-0.16% Ti 合金について行った。

II. 試料および実験方法

1. 試 料

99.99% 純アルミニウムと Al-4.9% Ti 合金を用い、Al-0.16% Ti 合金を溶製し、これを 45 mm 直径の丸棒に鋳込み、皮むき後、1 部を切断し、これを 20 mm 直径まで熱間鍛伸し、次に冷間圧延により 5 mm 直径の棒とした。こ

* 東北大学金属材料研究所 (Research Institute for Iron, Steel and Other Metals, Tohoku University, Sendai)

(1) R.E.Smallman, G.K.Williamson and G.Ardley: Acta Met., 1(1953), 126.

(2) V.A.Philips, A.J.Swain and R.Eborall: J.Inst. Metals, 81(1952-53), 625.

(3) R.P.Carreker, Jr. and W.R.Hibbard, Jr.: Trans. AIME, 209(1957), 1157.

(4) 寺井士郎, 馬場義雄: 金属学会誌, 27(1963), 74.

れをさらに次の各工程により 4 種類の冷間加工度をもつ線状試料とした。

(1) 5 mm 直径の冷間圧延材をさらに引き続き線引きし 2 mm 直径の線とした。このときの冷間加工度は 99.8% である。

(2) 5 mm 直径の棒を 400°C 1 時間焼なまししてから線引きにより 2 mm 直径の線とした。冷間加工度は 84%。

(3) 5 mm 直径の棒を 3 mm 直径まで線引きし、ここで 400°C 1 時間の焼なましを行ってから 2 mm 直径まで線引きした。冷間加工度は 56%。

(4) 2.5 mm 直径まで線引きしたものを 400°C 1 時間焼なましを行ってから 2 mm 直径まで線引きした。冷間加工度は 36%。

また、残部は板状試料を作るため 350°C において鍛伸し 20 mm の角材とした。これをさらに冷間において 1 mm 厚さまで圧延し、これから 1×15×60 mm の平行部をもつ板状引張試験片を採取した。この試料の冷間加工度は 90% である。

2. 実験方法

上記の 4 種類の試料を所定の温度で所定の時間焼なまししてから、インストロン試験機を用い、室温において 10^{-5} ~ 10^{-3} sec⁻¹ のひずみ速度で引張試験を行った。線状試料のチャック間は 100 mm であり、板状試料の標点距離は 50 mm である。熱処理した板状試料の一部は適当な大きさにし、化学研磨液で薄くしたのち、さらに過塩素酸-エチルアルコール液を用い電解研磨して薄膜とした。この薄膜を JEM 6 A 電子顕微鏡により観察した。また板状試料の圧延方向に平行な縦断面について光学顕微鏡観察を行った。

Fig. 2 Stress - elongation curves of Al-0.16 wt% Ti alloy wires 99.8% cold drawn and annealed 1 hr at several temperatures

Fig. 3 Stress-elongation curves of Al-0.16 wt% Ti alloy sheets 90% cold rolled and annealed 1 hr at several temperatures

Fig. 4 Stress - elongation curves of Al-0.16 wt% Ti alloy wires 99.8% cold drawn and annealed at 280°C for 0.5, 1 and 1.5 hr respectively

Fig. 5 Stress - elongation curves of Al-0.16 wt% Ti alloy wires, 56, 84 and 99.8% cold drawn respectively and annealed 4 hr at 260°C

III. 実験結果

36% および 99.8% 冷間加工した線状試料を 280~330°C において 1 時間焼なまししたときの引張性質の変化を Fig. 1 に示す。引張強さと降伏強さの差および伸びの変化からみると、1 時間焼なましにおいては 280°C 付近から再結晶がはじまっていることがわかる。次に、熱処理や加工度が降伏点現象にどのように影響をあたえるかを示そう。

Fig. 2 は線状試料 (加工度 99.8%)、Fig. 3 は板状試料 (加工度 90%) について、各温度で焼なまししたものの応力-伸び線図を示す。これをみると、わずか 10°C 程度の焼なまし温度差が降伏強さおよび降伏伸びの値に大きくきいていくことがわかる。すなわち、焼なまし温度が高いと降伏強さは低下し、降伏伸びは減少する。降伏点現象は板状試料の方によく現われており、上降伏点および下降伏点が見

Fig. 1 Tensile properties of Al-0.16% Ti alloy wires cold drawn and annealed 1 hr at 280 to 330°C

っきりとみられ、とくに 280°C 焼なましのものにおいてリュース帯の伝播があきらかに観察された。これに対して 300°C 以上で焼なましのものではそれがみられず、一様な伸び変形を示し、一方 270°C 焼なましものは最初より局所的な変形がみられ、そこでのくびれを起こして破断した。

Fig. 4 は焼なまし時間の影響を示す。すなわち、280°C で 0.5 ~ 1.5 時間の焼なましにより降伏点現象の現われ方

比較的大きな亜結晶粒 (Photo. 2(b)) がみられるが、大部分は微細なしかも内部の転位の未整理な亜結晶粒より成り (Photo. 2(a))、この部分をさらに拡大してみると Photo. 3 にみられるように亜結晶粒内にかなりのからみ合った転位が存在し、かつセル構造が残存しているのがわかる。これはほぼ加工組織に近いものとみなされる。このような亜結晶粒はそれぞれが非常に方位の異なるようなコントラストを示しているが、数多くの粒を含む領域から得られた電子

Photo. 1 Longitudinal sections of Al-0.16 wt% Ti alloy sheets 90% cold rolled (a) and annealed 1 hr at 280°C (b), 300°C (c) and 340°C (d) respectively

が著しく変化しているのがわかる。すなわち、99.8% 加工の試料において 1 時間焼なましものに降伏点現象がよく現われており、0.5 時間では加工状態に近く、1.5 時間ではかなり軟化を示している。ほぼ同じ傾向が 84% 加工のものにもみられた。

Fig. 5 は加工度による変化を示す。260°C 4 時間の焼なましにおいては、56, 84 および 99.8% 加工のものうち 84% のものにもっともよく現象が現われている。

次に、組織観察の結果について述べる。Photo. 1 は板状試料の圧延のままおよび 280~340°C で 1 時間焼なまししたものの光学顕微鏡組織を示す。いずれも加工流がみられるが、300°C 以上ではかなり大きな結晶粒が発達しているのがわかる。これらの組織をさらに電子顕微鏡で観察した結果を次にあげる。

Photo. 2 は 270°C 1 時間焼なましの組織を示す。一部に

Photo. 2 Transmission electron micrographs of Al-0.16 wt% Ti alloy sheet 90% cold rolled and annealed 1 hr at 270°C : (a) relatively non-recovered region (b) recovered region

Photo.3 The same region as Photo.2(a), showing tangled dislocations in subgrains

Photo.4 Transmission electron micrograph of Al-0.16 wt% Ti alloy 90% cold rolled and annealed 1 hr at 270°C. Attached diffraction pattern from the entire region reveals that the orientation difference between each grain is small

Photo.5 Transmission electron micrograph of Al-0.16 wt% Ti alloy sheet 90% cold rolled and annealed 1 hr at 280°C, showing a clearly-recovered substructure

回折斑点(Photo.4)をみると、多結晶から成る環状図形はみられず単結晶特有の斑点が分裂した形態を示している。

次に、Photo.5に280°C1時間焼なまししたものの組織を示す。これでは亜粒界がさらにはっきりとしており、Photo.6に示すように、亜結晶粒内にはセル壁以外に転位はあまりみられず、粒内の転位が整理されているのがよくわかる。これがさらに温度が上り300°C焼なましになると、Photo.7に示すように、非常に大きく発達した結晶粒がみられるようになる。なお、これらの写真をみると、分散している化合物粒子によって転位や粒界の移動が阻止されているのが散見する。

Photo.6 Transmission electron micrograph of Al-0.16 wt% Ti alloy 90% cold rolled and annealed 1 hr at 280°C : In subgrains no other than small angle boundary are observed

Photo.7 Transmission electron micrograph of Al-0.16 wt% Ti alloy 90% cold rolled and annealed 1 hr at 300°C, showing that a very large grain coexists with small subgrains

いま、これらの組織観察をもとにして、亜結晶粒度および結晶粒度(340°C焼なまししたもののみ)に対して降伏強度をとると、Fig.6のようになる。これをみると、300°C焼なましのものの値がHall-Petchの関係からずれているが、これは、前述のように、この試料が粒径の非常に違った結晶粒と亜結晶粒の混合から成っており、このプロット

Fig. 6 Yield strength versus $d^{-1/2}$ plot for Al-0.16 wt% Ti alloy 90% cold rolled and annealed at several temperatures

が亜結晶粒をもとになされたためである。このことについては後に考察する。

以上の実験結果から、本合金における降伏点現象は、冷間加工後たとえば 280°C 1 時間というきわめて狭い条件下で焼なましを行い、その組織を完全軟化以前の微細でしかもその内部に転位の少ない亜結晶粒群からなる状態としたものに生ずることがわかった。

IV. 考 察

アルミニウム中のチタンの固溶度は非常に小さく、一つには 510°C で 0.24% といわれ、また、一方では 500°C で 0.08% 400°C で 0.07% であるといわれている⁽⁵⁾。本実験で用いた合金では 300°C の熱処理を行ったものでもかなりの析出物がみられたので、チタンの一部は固溶し、残りは化合物として細かく分散している状態にあると考えてよいだろう。

ところで、本実験の結果をみると、降伏点現象の現われる焼なまし温度は 1 時間加熱では 270 以上 300°C 以下という狭い温度範囲にあってしかも温度の高いほど降伏点伸びが小さい。さらに 280°C の焼なましにおいて 0.5 時間ではほぼ加工材類似の応力-伸び線図を示し、加工硬化領域をもたない。さらに 1.5 時間では降伏点伸びがほとんどみられない。しかし 1 時間焼なましでは現象が顕著に現われた。これらのことを考え合わせると、少なくとも、これらの処理によって固溶する溶質の量が変化したため、現象が現われたり消えたりしたとは思われず、むしろ再結晶過渡状態におけるこれらの処理条件による組織の変化が支配しているものと考えられる。現象の観察された試料は再結晶が完了していないものであるから、これは寺井ら⁽⁴⁾の第 2 型の降伏点現象と同様のものであり、おそらく Carreker ら⁽³⁾の試料も、含まれている不純物や処理工程により同様の組織をもっていたため現象が現われたものと考えられる。

本実験での板状試料ではリュース帯、上降伏点および下降伏点がみられた。鈴木⁽⁶⁾によれば、多結晶金属の引張りにおいてリュース帯を伴うときは、上降伏点は

$$\sigma_{uy} = 2\tau_f + 4\sqrt{\delta_l}(\tau_l - \tau_f)d^{-1/2},$$

また下降伏点は

$$\sigma_{ly} = 2\tau_f + \left(\frac{4}{\alpha}\right)\sqrt{\delta_l}(\tau_l - \tau_f)d^{-1/2}$$

として表わされる。ここで、 τ_f は結晶境界の制限のないときの転位の運動に対する抵抗力すなわち単結晶の臨界剪断応力、 τ_l は、すべりを起こした最初の結晶粒のすべり面を隣りの結晶粒内に延長した平面に沿った結晶粒からの距離 δ_l のところに固着された転位を動き始めさせる力であり、 d は結晶粒径である。また α はリュース帯先端の結晶粒内の応力集中係数の平均値で約 2 であるといわれている。これらの式で $\tau_l - \tau_f$ が小さいと、すでにすべりを起こしている結晶内で十分な変形を起こさないうちに隣接の結晶ですべりが活動するので、リュース帯はできないことになる。

一般に面心立方金属では固着力(τ_l)が小さく、かつ降伏応力以上の応力を加えないと交差すべりができないので、結晶粒内で望み通りの変形が容易にできるため、リュース帯がでにくいといわれているが、照射などの何らかの方法によって固着力を増して $\tau_l - \tau_f$ を大きくし、かつ結晶粒を微細にして降伏点の準位を上げると、終局的には固着力が結晶粒付近で新しい転位を発生させる準位までに増し、結果として降伏点現象が出現しうらうだろう。

ところで本実験で用いた Al-Ti 合金において、チタン添加の重要な効果の一つは再結晶温度を高め、微細な再結晶粒を得ることである。すなわち転位や粒界の移動を阻止させる効果がある。このことは、たとえば 280°C の焼なましで得られる合金の組織を微細な亜結晶粒から成る均一性のよいものとさせ、純アルミニウムで得られるよりも安定な粒界を形成させると思われる。このような効果が固溶されたチタンかまたは形成された化合物のいずれか、または両方によるのかはわからないが、結果的には添加されたチタンによって再結晶粒の微細化と転位の固着作用の複合効果によって降伏点現象が出現し、さらにそれらによってリュース帯が観察されると考える。すなわち、引張りにより応力が上降伏点に達すると試験片の一端において固着力に打ち勝って転位を増殖し、変形を開始してリュース帯を発生させる。そうすると応力は落ちて下降伏点の応力準位となり、帯内の結晶粒において必要な硬化が起こるまで変形する。この変形によりリュース帯先端における集中応力が上昇し固着力に打ち勝つと、隣接結晶粒においてすべりを起こさせるが、そのすべりはさらにその結晶粒の前方粒界で阻止され、そこでの応力集中が結晶粒内での変形で高められるまで停止している。このような機構に

(5) M. Hansen and K. Anderko: *Constitution of Binary Alloys*, McGraw-Hill, (1958).

(6) 鈴木秀次: 鉄と鋼, 50(1964), 69.

より下降伏点準位の応力によってリュース帯が進行することになる。

焼なまし温度が高くなると、その組織が亜結晶粒から通常の再結晶粒へと変わり、降伏点現象はみられなくなるが、この場合、結晶粒度が大きくなるのが大きな原因の一つであろうが、粒界自身の性質の変化もすべりの伝播に対して影響を与えているのではないだろうか。300°C 焼なましの試料においては微細な亜結晶粒と大きな再結晶粒の混合からなっているため、降伏強さとしては大きな結晶粒が支配的にきいているが、亜結晶粒も存在するのでその影響により降伏点伸びが現われているものと思われる。

一方、270°C 焼なましによる転位密度の高い試料では、固着がはずれ転位が活動して試料の一部に変形が起こっても、既存の転位とただちに反応して動的な回復を起こし、

それ以上の加工硬化を生じないほどの状態にあるため、くびれを生じて破断するのだろう。

V. 結 言

Al-0.16% Ti 合金を冷間加工し、各温度で焼なまししてから室温で引張試験を行ったところ、たとえば 280~300°C 1 時間焼なまししたものに降伏点現象がみられた。この温度範囲では温度の低いものの方に、より顕著に現象がみられた。これは、焼なまし処理により得られた組織が 2~3 μ という微細な亜結晶粒からなり、かつその粒内の転位が非常に少ないものである。よって、本合金における降伏点現象は、添加したチタンが転位を固着するとともに、組織を微細な亜結晶粒とすることにより生じたと考えた。