473Kで変形したマグネシウム多結晶における粒界付近の組織

間 洸 博* 中 山 豊*

J. Japan Inst. Metals, Vol. 47, No. 10(1983), pp. 867-872

Structure around Grain Boundaries of Polycrystalline Magnesium deformed at 473 K

Hiroshi Mabuchi* and Yutaka Nakayama*

Polycrystalline specimens of magnesium have been deformed in tension at 473 K, and the behaviors of grain boundary deformation were investigated mainly by optical microscopy. Particular attention has been paid to the formation of a band region of grain boundary, which is a cell region formed by the localized grain boundary migration (i.e. bulging mechanism) and the polygonization in a region adjacent to the grain boundary. Results obtained are summarized as follows.

(1) The specimens had a strong preferred orientation with the basal planes lying parallel to the tensile direction (rolling direction), therefore the Schmid factor for basal slip is small. At 473 K, however, basal slips have been activated in consequence of the relative difficulty in occurrence of non-basal slip and twinning.

(2) When the orientation relationship between adjoining grains is chosen in such a way that the crystal rotation due to basal slips is opposed to each other, the band region of grain boundary forms preferentially.

(3) Therefore, these results indicate that the additional stress concentration at grain boundary induced by deformation of grains is a dominating factor in the formation of the band region.

(Received May 6, 1983)

Keywords: *magnesium, polycrystals, tensile tests, high temperature deformation, basal slip, stress concentration, grain boundary migration, polygonization*

I. 緒 言

マグネシウムはおよそ 470 K 以上の高温変形で延性が著しく増加するが、クリープのような変形速度の遅い変形では粒界破壊を起こして脆化することがよく知られている⁽¹⁾。一方、このような粒界破壊の様相は、変形温度によっても著しく異なることが従来から指摘されており、このことはマグネシウムの高温粒界破壊の機構を解明するうえで重要な因子のひとつと考えられている⁽²⁾⁽³⁾。

著者ら⁽⁴⁾も、先にマグネシウムの高温での引張り変形挙動を詳細に調べ、粒界破壊の様相が変形温度によって著しく異なることを示し、さらに、これらは高温変形下で生じる種々の粒界挙動(粒界すべり、粒界移動ならびに粒界に

接した結晶粒内の変形)の特徴と密接に関連していることを明らかにした。とくにこの報告の中で、比較的低温の 473 K では、粒界移動と粒界に接した領域で生じるポリゴン化により粒界に沿って特異な帯状領域が形成され、この帯状領域が粒界破壊の原因になることを見出した。このような特徴ある粒界挙動と破壊形態は、これまでの研究では 423 K 以下の低温変形ならびに 523 K 以上の高温変形では認められず、したがって 473 K 近傍の変形温度に特有な現象であると考えられた。本実験における変形温度は、マグネシウムの実用の温度範囲にあることから重要であるが⁽⁵⁾、粒界破壊に寄与するような帯状領域の詳細とその生成する原因については未だ明らかでない。

そこで、本報告では、マグネシウム多結晶を用いて 473

* 大阪府立大学工学部(College of Engineering, University of Osaka Prefecture, Sakai)

K で引張り試験を行ない、この温度における変形機構を調べるとともに帯状領域の生成過程について追究した。

II. 実験方法

公称純度 99.99% のマグネシウムの鋳塊を厚さ 4 mm までは熱間圧延 (圧延率 80% 以上) したのち、Fig.1 に示すように圧延方向 (RD) と平行に切り出し、変形部分の寸法が $4 \times 4 \times 20 \text{ mm}^3$ の引張り試験片を作製した。これらは 823 K, 36 ks (10 h) 焼鈍し、平均の結晶粒径が $250 \mu\text{m}$ の多結晶試料とした。変形はインストロン型試験機を使用し、アルゴンガス雰囲気気炉内で変形温度 473 K, ひずみ速度 $4.2 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ で引張り変形し、試験片表面および内部の組織を観察した。引張り試験ならびに組織観察の詳細は前報⁽⁴⁾と同様である。

マグネシウムでは、圧延板を再結晶させて得た多結晶試料は各結晶粒が優先方位を有することから、本実験では変形後の組織観察は圧延面に平行な表面 (Fig.1 で RP 面とする) と圧延横方向 (TD) に垂直な表面 (Fig.1 で LS 面とする) の両表面で行ない、これらの差異に注目した。この際、多結晶試料における各結晶粒の方位を X 線マイクロラウエ法で解析し、結晶粒内における変形機構の方位依存性を調べた。

Fig.1 Schematic illustration of hot-rolled sheet and cutting procedure for tensile specimen.

III. 実験結果

Fig.2† は 473 K で見いだされた帯状領域の代表的な組織を示す。Fig.2(a) に示すように、試料表面 (ここでは RP 面) の光学顕微鏡組織では、微細な網目状の変形模様のみられる黒色化した領域として観察される。Fig.2(b) はこの試料表面を研摩腐食した組織を示すが、帯状領域の中はセルが形成されているのが認められる。このような帯状領域の変形模様とセル組織は、前報⁽⁴⁾で詳しく述べたように、粒界すべりを伴った粒界移動と粒界に接した領域で起こる

ポリゴン化によって生じることがわかっている。Fig.3 は 473 K で 30% 変形した試料を引張り軸と平行に切断して得た断面を研摩腐食した組織を示す。この写真から、試料内部においてもセル組織が形成されているのが認められる。しかしこの場合は、試料表面観察と比較して帯状領域は必ずしも明瞭でなく、粒界 3 重点の周囲からセルの領域が広がっている傾向がみられる。

Fig.4 は本実験に供した試料の各結晶粒の方位を測定し、(0001) 面方位と $[11\bar{2}0]$ 方向 (底面すべり方向) を圧延面

Fig.2 Typical micrographs of a band region of grain boundary in a magnesium specimen tested to a strain of 10% at 473 K.

(a) Superficial structure of as-strained specimen.
(b) Structure of the same region as (a) after polishing and etching. Cell-structure can be observed.

Fig.3 Optical microstructure of longitudinal section of specimen tested to a strain of 30% at 473 K, showing cell-structure revealed by repolishing and etching.

† 本論文では、すべて写真の上下方向が引張り軸方向に対応するようにしてある。

(RP 面) に関して極点図で表わした一例を示す。図のように、測定した約 40 個の結晶粒は底面と圧延面のなす角度がおおよそ 0.35 rad (20°) 以内にあり、また $[11\bar{2}0]$ 方向と圧延方向のなす角度に関してもほとんど 0.35 rad 以内が存在するものが多い。このように、各結晶粒の底面が試料の圧延面とはほぼ平行になるような著しい優先方位がみられた。この優先方位はいわゆる再結晶集合組織であるが、得られた方位関係はこれまでにマグネシウムで報告されている結果⁽⁶⁾と同じ傾向であった。本実験は、このような方位をもつ多結晶試料を圧延方向と平行に引張り、変形の異方性に着目して帯状領域の形成過程を調べた。

Fig.5 は 473 K で 10% 変形した試料の RP 面と LS 面における表面組織を対比して示したものである。RP 面 (Fig.5 (a)) では、粒界が黒く幅広くくなっているのが特徴であるが、この中には著しく幅を増したものがあり、明瞭な帯状領域を形成しているのがみられる。一方、LS 面 (Fig.5 (b)) では、RP 面でみられたような粒界の帯状領域は認められず、一部の粒界 3 重点 (図中矢印で示す) の近傍のみとくに黒くなっている。これらの粒界 3 重点では研磨腐食して観察した結果、その周囲で微細なセルが形成されている

Fig.4 Distribution of initial orientations in recrystallized grains, showing poles of basal planes and their directions in rolling plane.

のが認められた。このように、粒界の帯状領域は RP 面で主として形成され、これに対応する組織が LS 面から見た場合には粒界 3 重点で観察された。

Fig.5 (a) および (b) では、結晶粒内の変形組織にも著しい差異が認められる。RP 面では直線的なすべり帯がみられるほか、表面に起伏を伴ったセル組織が観察される。これらのすべり帯は、各結晶粒の方位から解析したところ底面すべりによるものであることがわかった。また、セル組織はその境界の方向が 3 種類の $\{11\bar{2}0\}$ 面の軌跡に一致している場合が多いことを認め、底面すべり系の転位によるポリゴン化によって形成されたものであることを確認した。一方、LS 面では結晶粒のいずれも引張り軸方向に近い角度をなした方向にすべり帯がみられる。Fig.4 で示した如く各結晶粒の底面が圧延面にはほぼ平行になることから、LS 面から見た場合のすべり帯もほとんど底面すべりによるものであることがわかる。

ところで、マグネシウムの変形では一般に低温では双晶変形が発生し易く、また高温では非底面すべりが活動し易くなると考えられている。とくに本実験の場合のように、

Fig.6 Temperature dependence of critical resolved shear stress for basal and non basal slip systems in pure magnesium single crystals.

Fig.5 Optical microstructures of surfaces of specimen tested to a strain of 10% at 473K. (a) RP surface, (b) LS surface.

試料を圧延方向に引張る場合には底面すべりに対するシュミット因子が小さく、したがって底面すべり、非底面すべりおよび双晶変形に及ぼす変形温度の影響はとくに大きい⁽⁶⁾⁽⁷⁾。そこで本実験では、多結晶試料の代表的な方位要素に類似した引張り軸方位の単結晶を作成し、変形機構と臨界分解せん断応力(CRSS)の温度依存性を調べた。その結果を Fig.6 に示す。図中、 Δ , $\bullet$, $\square$, $\times$ 印の方位が多結晶に類似した方位である。これらの方位では非底面すべり†に対するシュミット因子がいずれも 0.45 以上で活動し易く、底面すべりのシュミット因子より約 10 倍大きい。しかし、Fig.6 の結果が示すように、非底面すべりの CRSS は底面すべりの値(図中○印の方位)より大きく、低温で急激に増大している。このため、473 K ではこれらの方位においても非底面すべりが起こり得ず、底面すべりが活動した。また、423 K 以下の低温変形では双晶変形††が底面すべりとともに多数発生するのが観察された。これらの事実は、これまでマグネシウム単結晶で報告されている双晶変形および非底面すべりに対する温度と方位の影響^{(6)~(9)}ともよく類似していると思われる。以上のことから、本実験における多結晶試料は底面すべりが活動し難い方位であるにもかかわらず、473 K ではほとんど底面すべりが優先して活動したことが確認できる。

Fig.7 (a) Schematic representation of a band region, and (b) orientations of the adjoining grain pairs, showing poles of basal planes and grain boundary directions in rolling plane.

† Δ , $\bullet$, $\square$ 印の方位では $(10\bar{1}1)$ $[\bar{1}2\bar{1}0]$ 錐面すべりが活動し, $\times$ 印の方位では $(10\bar{1}0)$ $[\bar{1}2\bar{1}0]$ 柱面すべりが活動した。

†† 発生した双晶面については決定されなかった。

つぎに、Fig.7 は帯状領域の形成に関係する結晶粒の方位関係を調べた結果を示す。ここでは図中の模式図(a)に示したように、RP 表面で観察された帯状領域に隣接した結晶粒をそれぞれ A, B とし、これらの方位を圧延面に関して (0001) 面方位の極点図(b)で表わした。測定は7組の A-B 対について行ない、結晶粒 A を○点、結晶粒 B を●点で示してある。また、図中の破線はそれぞれ表面での粒界(帯状領域)の方向を示した。この図から、帯状領域となる粒界方向は圧延方向(引張り軸方向)に対して比較的垂直に近いものが多い傾向が得られた。さらに、結晶粒 A と B における (0001) 面方位には明らかに特定の方位関係が認められる。すなわち、方位は A のグループと B のグループが明瞭に区別されており、この関係はそれぞれの結晶粒の底面が LS 面から見た場合、互いに表面(帯状領域)に向って凸になるように配向している。

IV. 考 察

以上述べたように、マグネシウムの圧延板を再結晶させて得た多結晶試料は、 (0001) 面が圧延面と平行になるような優先方位をもつことが特徴としてまず挙げられる。本実験ではこれを圧延方向と平行に引張り変形するわけであるが、得られた優先方位(Fig.4)は底面すべりが活動し難い方位であるにもかかわらず他の変形機構がこの温度(473 K)では起こり難く、このため底面すべりが優先して活動できることがわかった。このことから、六方晶であるマグネシウムに特有な異方塑性が 473 K 変形でとくに強く現われ、本実験の粒界変形挙動に及ぼす影響が大きいと考えられる。

まず、結晶粒内のすべりが底面のみに限定されることから、粒界への応力集中効果がとくに大きくなる。これは微視的にはすべり帯による転位が粒界へ集積することに起因するが、この集積効果による応力集中が粒界を局所的に移動させ、さらに集積した転位がポリゴン化を起こすことは高温であるため十分考えられる。このような底面すべりによる応力集中が原因で生じたと考えられる粒界移動とポリゴン化の一例を Fig.8 (a)~(c) に示した。写真はひずみがそれぞれ 2% (a), 5% (b) および 10% (c) で変形を中断し、同一場所をみたものである。(a) は変形の初期段階であるが比較的粗大かつ直線的なすべり帯が写真上部の結晶に認められ、同時に粒界の幅広がりやポリゴン化がこの結晶粒内で生じているのが認められる。その後の変形(b)および(c)においても、底面すべりが顕著な写真上部の結晶粒方向に粒界が移動しており、ポリゴン化によるセル組織も粒界移動の進行方向でよく発達している。

前報⁽⁴⁾でも述べたように、473 K のような比較的低温では、573 K の如き高温に比較して粒界移動は起こりにくく、微小かつ局所的にのみ移動できることから粒界が細かい波状に変化するのが特徴である。このような粒界が著し

く凹凸化した箇所では、いわゆる bulging 機構⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾により微細なセルも形成される。一方、粒界に接した領域は 573 K 以上のような高温では回復する領域が広く、ポリゴン化によるセルのサイズがかなり大きくなる⁽⁴⁾。しかし、

Fig.8 Optical microstructures showing the process of grain boundary migration and polygonization of specimen tested to increasing strains of 2% (a), 5% (b) and 10% (c) at 473 K.

473 K のような比較的低温では回復できる領域は狭く、波状化した粒界の凹凸と同程度のサイズでポリゴン化を起こしており、これが変形の増大とともに微細なセル組織に成長するものと考えられる。

ところで、粒界移動による粒界の波状化ならびに粒界に接した領域でのポリゴン化は、程度の差はあるがほとんどすべての粒界で起こることが観察されている。例えば、マグネシウムの高温変形では粒界すべりが顕著に起こることが報告されており⁽¹²⁾⁽¹³⁾、粒界すべりが原因で粒界に沿ってしわ状の組織⁽¹⁴⁾が現われることはよく知られている。本実験においても、粒界すべりで発生した応力集中により粒界に接した領域で局所的な粒界移動と微細なポリゴン化が顕著に起こることはすでに報告した⁽⁴⁾。しかしながら、実験結果で述べたように、セル状組織が著しく発達した帯状領域の場合は、隣接した結晶粒で変形する底面すべりに Fig.7 でみられた方位関係がある場合のみ形成されることがわかった。また、粒界面が引張り軸方向に対して垂直に近い場合に明瞭な帯状領域を形成する傾向を示した。これらのことは、いずれも多結晶試料が有する優先方位とこれに起因した底面すべりが密接に関係した現象であることを示唆している。そこで、つぎにこの帯状領域の形成について考えてみる。

Fig.9 は帯状領域と底面すべりの関係を表わした一例を示す。写真は試料の RP 面と LS 面が交差する箇所であら両表面から対応させて見たものである。すべり帯からも判断できるように、形成された帯状領域の上下の結晶粒の底面は Fig.7 で示した方位関係になっている。すなわち、Fig.9 (b) でみられる如く、帯状領域はすべり面である底面が試料表面 (RP 面) に向って凸に配向した左側から粒界に沿ってくさび状に形成されている。この結果を模式的に示すと Fig.10 のように考えられる。(1) は変形前の状態を示し、図中の斜線は試料を LS 面から見た場合のすべり面を表わす。図のようにすべり面が入っていると、上下の結晶は単独ではそれぞれ (2) のように変形する。この変形では互いに反対方向に結晶回転を起こしながらせん断変形することになるが、本実験のように、すべり面と引張り軸方向のなす角が比較的小さい場合はこの回転角は小さい。一方、こ

Fig.9 Optical microstructures of a band region and basal slips on the RP surface (a) and LS surface (b), (c). (b) is magnified photograph of area indicated in (c). This specimen is tested to a strain of 5% at 473 K.

Fig.10 Schematic diagram illustrating deformation of grains and formation of a band region of grain boundary.

の場合には、図からも明らかなように引張り軸方向へのせん断変形が大きくなる。したがって、(3)で示したようにこれらが粒界で接している場合には、粒界の拘束から(2)と反対の結晶回転を引き起こすことになる。実際に、Fig.9(c)にみられるように、隣接した結晶の表面(RP面)の傾きから、結晶回転の方向が(3)で示したとおりであることが確認できる。この状態になると粒界には必ず引張り方向の応力集中が生じることになる。粒界面が引張り軸方向に垂直なとき、この応力集中効果は最も大きい。このような応力集中により、先に述べた如く粒界の波状化とポリゴン化が顕著に起こることになるが、(4)に示したようにすべり帯が最も長い左端が引張りによる応力集中を最も受けるため、ここから顕著なセル組織の発達が起り、帯状領域を生成するものと考えられる。このような帯状領域は試料内部でも形成されるが、この場合は例えば Fig.5(b)で認められるように、試料をLS面からみた場合に Fig.10で示す過程が粒界3重点から生じたものと考えられる。以上のような応力集中効果は、当然変形温度にも強く依存する。すでに述べたように、473 Kより低温側では双晶変形が発生し易く、また高温側では非底面すべりが起り易い。これら底面すべり以外の変形機構が結晶粒内で同時に働くことによって粒界への応力集中効果は減少するであろう。さらに、473 Kより高温では粒界移動が顕著となり、例えば573 K以上になると波状化を伴う移動からしだいに粒界全体が一様に大きく移動するようになる⁽⁴⁾。かかる粒界移動が可能になると、粒界が連続的にその位置を換えていく

ことになり、このことから473 Kより高温では帯状領域が生じ難くなると考えられる。

V. 結 論

マグネシウム多結晶を473 Kで引張り変形したときに発生する粒界の帯状領域について調べた結果、つぎのことが明らかとなった。

(1) 多結晶試料は各結晶粒の底面が圧延面と平行になるような優先方位を有する。この方位では底面すべりに対するシュミット因子が小さくなるが、473 Kでは他の変形機構(双晶変形および非底面すべり)が起り難く、底面すべりが優先して活動できることが特徴であった。

(2) 帯状領域を生成する粒界には、その隣接した結晶粒の底面の配向に特定の方位関係が存在した。

以上のことから、六方晶であるマグネシウムに特有な優先方位とこれに起因した底面すべりによる応力集中効果が帯状領域形成の主たる原因になることが明らかにされた。

終りに、本実験に協力された本学大学院生、橋本昌也氏に感謝致します。また、本研究の費用の一部は軽金属奨学金によりました。合わせて感謝の意を表します。

文 献

- (1) J.E.Harris : Trans. Met. Soc. AIME, **233** (1965), 1509.
- (2) J.Neill Greenwood, D.R.Miller and J.W.Suiter : Acta Met., **2** (1954), 250.
- (3) P.E.Brookes, N.Kirby and W.T.Burke : J.Inst. Met., **88** (1959-60), 500.
- (4) 間瀬 博, 中山 豊 : 日本金属学会誌, **46** (1982), 198.
- (5) 例えば、久家靖史 : 原子炉材料ハンドブック, 日刊工業新聞社, (1977), 617.
- (6) 麻田 宏, 吉永日出男 : 日本金属学会誌, **23** (1959), 67.
- (7) 麻田 宏, 吉永日出男 : 日本金属学会誌, **23** (1959), 649.
- (8) R.E.Reed-Hill and W.D.Robertson : J. Metals, **4** (1957), 496.
- (9) H.Yoshinaga and R.Horiuchi : Trans. JIM, **5** (1963), 14.
- (10) P.A.Beck and P.R.Sperry : J. Appl. Phys., **21** (1950), 150.
- (11) J.E.Bailey : Phil. Mag., **5** (1960), 833.
- (12) S.L.Couling and C.S.Roberts : Trans. Met. Soc. AIME, **209** (1957), 1253.
- (13) 間瀬 博, 中山 豊 : 軽金属, **31** (1981), 525.
- (14) H.Brunner and N.J.Grant : Trans. Met. Soc. AIME, **218** (1960), 122.