純 Al 単結晶の動的再結晶挙動の放射光ラウエ法による解析^{*1}

伊原健太郎^{1,*2} 美浦康宏²

¹九州大学大学院工学府材料物性工学専攻

²九州大学大学院工学研究院材料工学部門

J. Japan Inst. Metals, Vol. 67, No. 4 (2003), pp. 209–217

© 2003 The Japan Institute of Metals

Analysis of Dynamic Recrystallization Behavior in Al- single Crystals by Synchrotron Radiation Laue Technique

Kentaro Ihara^{1,*2} and Yasuhiro Miura²

¹Department of Materials Physics and Chemistry, Kyushu University, Fukuoka 812–8581

²Department of Materials Science and Engineering, Kyushu University, Fukuoka 812–8581

The main purpose of this study was to clarify the process of dynamic recrystallization (DRX) of pure Al single crystals by using the synchrotron radiation (SR) Laue technique and the electron backscatter pattern (EBSP) technique. Compression tests were made at 473 K with an initial strain rate of 10^{-3} s^{-1} using a test machine designed to fit on the camera stage of Synchrotron Radiation apparatus at SPring 8-BL28B2. The $\langle 111 \rangle$ crystallographic orientation was chosen as the compression axis. During a compression test, transmission Laue spots were recorded. As plastic deformation of the crystal proceeded, the Laue spots of the matrix streaked toward the center of the film. Before the first stress peak, the streaks of the Laue spots reached a plateau. Just before the peak stress was reached, the brightness of the new spots from the DRX grain increased at the end parts of the streaks of the original Laue spots. After the stress peak, the Laue spots from the DRX grain suddenly brightened and streaked as those from the matrix disappeared. The crystallographic orientation relationship between the DRX grain and the matrix was mostly explained by analyzing the slip systems in the matrix. The misorientation of DRX grain boundaries might be slightly larger than that of the surrounding subgrain boundaries when DRX occurs. These observations imply that DRX is the process that a field which has a higher angle boundary than surrounding subgrain in the matrix grows during deformation.

(Received December 6, 2002; Accepted February 17, 2003)

Keywords: aluminum single crystal, high temperature compressive deformation, dynamic recrystallization, Synchrotron Radiation Laue technique, the electron backscatter pattern technique

1. 緒 言

純アルミニウム (Al) においては、その積層欠陥エネルギーが高い (166 mJ/m^2)¹⁾ ために、その動的復旧過程は動的回復のみで動的再結晶は発現しないといわれてきた²⁾ が、1992 年に Yamagata により 99.999 mass% まで高純度化したアルミニウムの高温圧縮試験で動的再結晶型の応力振動が確認されて以来^{3,4)}、高純度 Al における動的再結晶の研究が注目されるようになり、X 線フィルム法で応力ピーク後において伸びの無い新たな Laue スポットの存在が確認された⁵⁾。また、引張試験においても動的再結晶型の応力振動が認められた⁶⁾。このように現在では、高純度 Al において動的再結晶が発現することに異論はないようである。高純度 Al では回復が高水準で進み転位の蓄積ができない一方、高い粒界移動度が期待される⁷⁾。したがって、動的再結晶が抑

制される効果よりも、助長される効果の方が大きくなると考えることができる。

このような状況のもとで、純 Al の動的再結晶過程の理解をさらに深化させるためには新粒の核生成・成長機構を明らかにすることが重要である。特に、新粒の発生場所、成長する新粒と未再結晶領域との方位関係、新粒が成長する際の方位変化の有無を把握することが重要である。X 線 Laue 法では回折斑点の形状変化から結晶の湾曲の様子を知ることができる。このときイメージングプレート (IP) を用いることにより、結晶方位や組織の速い変化を、従来のフィルム法よりさらに高い時間分解能で追跡することができる。

著者らはこれまでに、IP を用いた X 線透過 Laue 法 (以後、IP-Laue 法と称す) により、Al 単結晶の高温圧縮変形中における結晶方位の変化を追跡した結果を報告した⁸⁾。

本研究では、IP-Laue 法に加えて、放射光 Laue 法 (SR (synchrotron radiation) Laue 法) を適用して成長する新粒と未再結晶領域との方位関係および新粒が成長する際の方位変化などをさらに詳しく調べた。さらに、EBSP (electron backscatter pattern) 法によって粒界近傍の結晶方位解析を

^{*1} 2002 年 11 月 2 日日本金属学会秋期大会において発表

^{*2} 九州大学大学院生 (Graduate Student, Kyushu University)

行った. それらの結果にもとづいて動的再結晶粒の核生成・成長過程および動的再結晶前後における局所の結晶方位変化について考察した.

2. 実験方法

2.1 試料作製

試料は, 株式会社大阪アサヒメタル工場製の帯溶融精製した 99.999 mass% (5N-Grade) Al 単結晶である. 発光分光分析によって銅(Cu), マグネシウム(Mg)およびシリコン(Si)の極めて弱いスペクトル線が認められている. ただし, Mg および Si は電極中にも含まれている.

このインゴットから, 圧縮軸方向を $\langle 111 \rangle$ 近傍に定めた 3 mm×3 mm×6 mm の角柱状試料を切り出した. その後, 試料表面をエメリー紙で研磨し, さらに電解研磨を行って表面の平滑化および加工ひずみ層の除去を行った. 圧縮試験前に内部ひずみの除去を目的として, 473 K, 3 時間の焼鈍を行った.

2.2 圧縮試験

X 線透過 Laue 法連続方位追跡用に作製した圧縮試験機はインストロン型圧縮試験機である. 試料周辺を高温一定温度に保つためヒータリングガンを用いた. 試験温度は 473 ± 2 K, 初期ひずみ速度は 10^{-3} s^{-1} である.

また, 本研究で用いた純 Al 単結晶の圧縮変形中の応力落下が発現するための活性化エネルギーを求めるために, 試験温度 393~508 K, 初期ひずみ速度 $10^{-5} \sim 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ の範囲で圧縮試験を別途行った.

2.3 高温圧縮変形中の結晶方位解析

2.3.1 放射光透過 Laue 法

前述の IP-Laue 法よりさらに時間分解能を上げるために放射光 Laue スポットの場所連続撮影を行った. これは新粒発現時の微弱な反射を検出することも目的とした. 放射光は, 財団法人高輝度光科学研究センター(SPring 8)のビームライン BL28B2 を利用した. 試料に照射している放射光のエネルギーの低い部分($< 3 \text{ keV}$)は真空パスの窓であるベリリウム(Be)窓で吸収し, それ以上の全ての波長のビームを試料に照射した. ビームの発散角は 0.024 mrad , ビーム照射領域は試料中央部, ビームの形状は正方形で, 照射面積は 4.0 mm^2 である. 新粒発現時, 透過 Laue スポットの変化に寄与する領域は試料体積中の 32% であった. 変形中, 蛍光板に映った放射光透過 Laue 像を CCD カメラによりビデオ撮影した. 試料と蛍光板の距離は 140 mm であった.

2.3.2 通常の X 線透過 Laue 法

前述の IP-Laue 法により変形の各段階の X 線透過 Laue スポットを撮影した. 試料と IP の距離は 30 mm とした. このときタングステン(W)をターゲットとした白色 X 線を用い, 出力条件は 40 kV - 25 mA , X 線露光時間は 5 秒 とした. X 線の発散角は 33 mrad , ビーム照射領域は試料片中央部, ビームの形状は円形で, 照射面積は 1.4 mm^2 である. 露光された IP を読み取り装置(R-AXIS DS3)にかけ, デジ

タル化した X 線 Laue スポットを得た. 動的再結晶が発生したことを示唆する応力落下を確認した後, 除荷を行い, 直ちに試料を氷水中に入れて冷却し, 組織凍結を行った. その後, 2.3.3 で述べるように, 走査型電子顕微鏡(SEM)および EBSP 法を用いて試料内部の組織観察および方位解析を行った.

2.3.3 SEM/EBSP 法による結晶方位解析

放射光 Laue スポットその場連続撮影後の試料の組織凍結は実験装置系統上困難であるため, 同じ圧縮試験条件 $T = 473 \pm 2 \text{ K}$, $\dot{\epsilon}_0 = 1.07 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ で IP-Laue 法による結晶方位追跡を行った後, 第一応力ピーク後 $\epsilon = 0.27$ にて試験を中断し, 直ちに氷水中に焼入れた. この試料内部の X 線照射領域内の結晶方位マッピングを, TSL-EBSD システム(OIM-400SPS)を搭載した走査電子顕微鏡 JSM-5600 を用いて, 加速電圧は 20 keV , ステップ間隔 $5 \mu\text{m}$ の条件下で行った.

3. 実験結果

3.1 応力-ひずみ曲線

試験温度 393~508 K, 初期ひずみ速度 $10^{-5} \sim 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ の範囲で圧縮試験を行った結果得られた応力-ひずみ曲線を Fig. 1 に示す. 応力落下が起こるための活性化エネルギー Q が, 応力により変化しない定数である場合, Zenner と Hollomon⁹⁾ が導入した温度補償ひずみ速度因子 Z は次式のように表される.

$$Z = \dot{\epsilon} \exp(Q/RT) \quad (1)$$

Z が σ によって次式のように変化すると仮定した場合,

$$Z = A [\sinh(\alpha\sigma)]^n \quad (2)$$

ここで A と n は材料定数である¹⁰⁾.

Fig. 1 Stress-strain curves at $\dot{\epsilon}_0 = 10^{-5} \sim 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ and $T = 393 \sim 508 \text{ K}$ (Initial compression axis: $\langle 111 \rangle$).

応力が大きい場合には、 $Z \simeq A \exp \beta \sigma$ 、応力が小さい場合には、 $Z \simeq A \sigma^n$ とすることができる。 β は、 $\alpha = \beta/n$ の近似式から求められる。これらの式が動的再結晶発現に際して適用できるとして、 σ の値を、第一ピーク応力値とし、 Q の値を求める。圧縮軸 $\langle 111 \rangle$ 、試験温度 393~508 K、初期ひずみ速度 $1.50 \times 10^{-5} \sim 1.00 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ の条件での圧縮試験によって得られた Q は $65.2 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ であった。これは Al の大角粒界の移動のための活性化エネルギー¹¹⁾ $63 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ に近く、核形成後の粒成長は大角粒界の移動を伴って進行することを示唆する可能性がある。しかし、山縣ら¹²⁾の求めた 99.999 mass% $\langle 111 \rangle$ 方位 Al 単結晶の変形の見かけの活性化エネルギー $140 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ に比べて差があり、この点については今後詳細な検討が必要であろう。

放射光を試料中央部に照射しながら圧縮試験に供した純 Al 単結晶の真応力-真ひずみ曲線を Fig. 2 に示す。真ひずみ $\epsilon = 0.15$ で最初の明瞭な第一応力ピークの出現が認められた。第一応力落下における応力の変動幅 (9.2 MPa) はピーク応力 (17 MPa) の約 55% であった。このとき試料内のかなりの量のエネルギーが解放されたことが示唆される。その後の応力落下では、応力の変動幅は第一応力落下におけるものよりも小さいものであった。

3.2 高温変形中における結晶方位変化

473 K における変形前の放射光 Laue スポットを Fig. 3 に示す。ビーム入射方向は $\langle 213 \rangle$ 方向、圧縮軸は $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ 方向である。放射光透過 Laue スポットのビデオ像を各変形段階において抜粋したものを Fig. 4 に示す。図中の各写真の下段に真ひずみおよび圧縮試験開始時からの経過時間を記した。左上の番号は Fig. 2 中の番号に対応する。変形が進むにしたがって、蛍光板上で各スポットは放射状に伸びた。これは試料内部のビーム照射領域において、変形の進行に伴って結晶格子面が湾曲したことを示している。 $\epsilon = 0.15$ (圧縮試験開始から 149 秒後) で、伸びの無い新しいスポットが現れた (Fig. 4 の 4 の矢印先端部分など)。この部分 (311 スポット周辺) の拡大像の 6 秒間 (応力落下 1 秒前から) にわたる連続写真を Fig. 5 に示す。未再結晶領域の伸びた 311 スポット

の端 (Fig. 5 矢印先端部分) が急激に輝度を増している。同様の現象は未再結晶領域の他のスポットでも観察された。第一応力落下は $\epsilon = 0.15$ (圧縮試験開始から 150 秒後) で発現したことから、新スポットは応力ピーク到達の遅くとも 1 秒前にすでに発現していると言える。試料は単結晶であるので、 $\epsilon = 0.15$ で発生した新スポットは動的再結晶によって生成した新粒のスポットであると言える。すなわち、変形応力の急激な落下は動的再結晶の発現によるものと考えることができる。

同じ圧縮試験条件 ($T = 473 \text{ K}$, $\dot{\epsilon}_0 = 1.07 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$) で IP-Laue 法による結晶方位追跡を行った際の各変形段階での X 線透過 Laue スポットを Fig. 6 に示す。写真左上の番号は Fig. 6 中の応力-ひずみ曲線上に示した番号に対応する。Fig. 3 と同様に変形が進むにしたがって、IP 上で各スポットは放射状に伸びている。しかし、Fig. 4 に比べてスポットの伸びは小さい。さらに、Fig. 6 の 1 (ピーク到達直前) および 2 (ピーク後) の透過 Laue スポットにおいて、IP のダイレクトビーム照射部付近に新たなスポットが確認できるが、Fig. 4 のように未再結晶領域のスポットの端から新粒のスポットが発生する様子は観察されない。この原因として、X 線の強度が十分でなかったため、新粒発生時の微弱な新スポットを検出できなかったこと、未再結晶領域の伸びたスポットを十分に捉えられなかったこと、および、X 線 Laue スポット撮影に時間分割法を採用したことなどが考えられる。

3.3 SEM/EBSP 法による動的再結晶組織の結晶方位解析

圧縮試験条件 $T = 473 \text{ K}$, $\dot{\epsilon}_0 = 1.07 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ で IP-Laue 法による結晶方位追跡を行った後、 $\epsilon = 0.27$ にて試験を中断し、直ちに氷水中に焼入れた試料内部の結晶方位マップを Fig. 7 に示す。ステップ間隔は $5 \mu\text{m}$ である。観察領域は試料中央部 (下段図赤枠内) で、X 線照射領域に含まれる。観察された新粒は図中、それぞれ新粒①および新粒②とした。他の領域 (水色) は未再結晶領域である。方位マップにおける色は下段の逆ステレオ三角形内の色に対応する。Fig. 6 の 3 の透過 Laue 像に新粒①および②ともそのスポットが確認さ

Fig. 2 Stress-strain curve during applying SR ray to the specimen. Numbers 0-8 correspond to those in Fig. 4.

Fig. 3 Transmission SR Laue diffraction pattern at $\epsilon = 0$.

Fig. 4 Transmission SR Laue diffraction pattern at each deformation stage. Numbers 0-8 correspond to those in Fig. 2.

Fig. 5 311 SR Laue spot at each deformation stage.

れるため、いずれも動的再結晶粒であると言える。この観察領域において、未再結晶領域の角度のばらつきは約 15° 、未再結晶領域中の亜結晶同士の方角差は平均約 5° であった。新粒①内の角度のばらつきは約 3° 、新粒②内の角度のばらつきは約 25° であった。未再結晶領域と新粒①および新粒②

との角度差はそれぞれ約 23° および 45° であった。新粒②内の角度のばらつきから、新粒②は圧縮試験中断前にはすでに変形が進行していたことが推定される。それに対し、粒内の方位分布から、新粒①は新粒②よりも後で発生したと考えられる。新粒①の周辺には複数のすべり系が働いたことを示唆

Fig. 6 X-ray Laue diffraction patterns at each deformation stage. Numbers 0–3 correspond to those in Stress–strain curve.

する組織が見られる。新粒①と未再結晶領域の方位関係は、ほぼ $\langle 211 \rangle$ 軸回りに約 23° 回転させた関係にあった。未再結晶領域中の亜結晶同士はほぼ $\langle 211 \rangle$ 軸回りに約 5° の回転関係を有しており、新粒形成のメカニズムを解く上で未再結晶領域の活動すべり系を把握することの重要性が伺える。

4. 考 察

4.1 放射光透過 Laue スポットの形状変化

例として 111 スポット、211 スポットおよび 001 スポットの伸びの変化を Fig. 8 に示す。図中に Fig. 2 の応力–ひずみ曲線を黒色の線で合わせて示した。第一応力落下 ($\epsilon = 0.15$) が発生するまで変形応力が増加し続けていたのに対し、Fig. 4 の未再結晶領域の放射光 Laue スポットの伸びは、 $\epsilon = 0.12$ 以上では確認されなかった。Laue スポットの伸びの増大が試料内の転位密度の増加を反映することを考慮すると、放射光照射領域では、応力ピーク前の段階ですでに、転位の蓄積によるひずみエネルギーが臨界値に達していたことが推測される。ここで、Laue スポットによる伸びの差は透過法によるものである。Fig. 9 に透過 Laue スポットの形状に及ぼす格子面湾曲の影響を説明した模式図を示す。湾曲前

Fig. 7 Orientation image after deformation at $T = 473 \text{ K}$, $\dot{\epsilon}_0 = 1.07 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ ($\epsilon = 0.27$).

Fig. 8 The transformation of Synchrotron Radiation Laue spot with stress–strain curve. Stress–strain curves correspond to those in Fig. 2.

の格子面の法線方向を N とする。上段図のように格子面の法線が面 NOC 上を角度 2θ だけ揺れると、反射ビームは角度 4θ 揺れる。下段図のように格子面が OC 軸回りに角度 2θ だけ湾曲すると反射ビームは角度 2θ だけ揺れる。このように、スポットの伸びは OS 方向の伸びが強調される。また、 $\angle OCS$ の違いによって Laue スポットの形状も異なる¹³⁾。

$\epsilon = 0.15$ に達して初めて伸びの無い新粒の Laue スポットが確認され、その Laue スポットは直ちに輝度を増すとともに伸び始めた。このことから新粒は成長しながら変形していることがわかる。この間も未再結晶領域の Laue スポットの伸びは観察されなかった。未再結晶領域の Laue スポットが消滅して観察できなくなったのが $\epsilon = 0.16$ であったことが

Fig. 9 The transformation of Laue spot by bended crystal

ら、放射光照射領域では応力落下中にほぼ完全に新粒組織(少なくとも 12 mm^3)に変わったことがわかる。放射光を用いたこの手法では、空間分解能が約 $300 \mu\text{m}$ であるので、新粒の核がいつ発生したかを厳密に議論することはできないが、少なくとも応力落下前にはすでに動的再結晶は発現し、発生後の新粒は未再結晶領域よりも変形しやすいことが推測される。

4.2 動的再結晶粒と未再結晶領域との方位関係

最近では、再結晶核は塑性変形した未再結晶領域中にすでに存在する小領域とする考え方¹⁴⁾が最も確かであろうとされている。動的再結晶における核形成・成長過程は静的再結晶のそれと似ていると考えられている¹⁵⁾が実際に核形成・成長過程をその場連続観察したものはない。

そこで、放射光 Laue スポットその場連続観察で確認された新粒と未再結晶領域との方位関係から、新粒の形成過程を考察する。Fig. 10 に放射光透過 Laue 法で確認された未再結晶領域の方位変化の軌跡および新粒の方位を示す。図中の未再結晶領域の方位は、Laue スポットの輝度が最も高い方位であり、記した番号は Fig. 4 の番号に対応する。この未再結晶領域で主に活動したすべり系は、 $(\bar{1}11)\langle 01\bar{1} \rangle$ (すべり系 A とする)と、 $(11\bar{1})\langle \bar{1}10 \rangle$ (すべり系 B とする)の 2 種類であると考えられる。変形前のシュミット因子は、すべり系 A が 0.29、すべり系 B が 0.28 である。発生直後の新粒は未再結晶領域と $\langle 1\bar{2}1 \rangle$ 軸を共有し、この軸周りの角度差は 8° であった。 $\langle 1\bar{2}1 \rangle$ は、すべり系 $(111)\langle 01\bar{1} \rangle$ (すべり系 C とする)(変形前のシュミット因子は 0.0054)が働いたときに導入される刃状転位の転位線方向であり、すべり系 A および B が主に活動する未再結晶領域中で、局所的にすべり系 C が活動し周囲と大きな方位差を生じた領域が新粒の核となったと考えられる。変形開始時から応力ピーク付近まで未再結晶領

Fig. 10 (010) stereographic projection showing lattice rotation by plastic deformation. Numbers 0-4 correspond to those in Fig. 4.

域は $\langle 1\bar{0}1 \rangle$ 軸周りの格子回転を示す方位分布を示している。このため、新粒と未再結晶領域との方位関係がほぼ $\langle 1\bar{0}1 \rangle$ 軸周りの回転関係となる未再結晶領域が存在する。発生後の新粒は変形応力落下中においてほぼ $\langle 111 \rangle$ 軸周りの格子回転を起こし、その圧縮軸は $\langle 1\bar{1}\bar{1} \rangle$ 方向に向かって行った。新粒と未再結晶領域との方位関係は、角度差は異なるものの、Fig. 7 および Fig. 11 の新粒①と未再結晶領域との関係にも当てはまる。

以上のことから、発生直後の新粒の結晶方位を捉えることができるならば、新粒の形成過程は比較的理解しやすい場合もあるといえる。放射光 Laue 法により考えられる新粒の形成過程を模式的に示した図が Fig. 12 である。Fig. 12(a)の濃い灰色の平面は未再結晶領域のある結晶面 (hkl) である。 (hkl) 面は変形に伴い $\langle 1\bar{0}1 \rangle$ 軸周りに湾曲する (Fig. 12(b))。応力ピーク付近からピーク後にかけては、Fig. 12(c)のように、湾曲した (hkl) 面の一部が平面 (図中縞部分) となり、その領域を増してゆく。以上の機構を経て、Fig. 4 および Fig. 5 のように伸びた透過 Laue スポットの一部が輝度を増すという現象が見られたものと考えられる。動的再結晶粒と未再結晶領域との方位関係は $\langle 111 \rangle 30^\circ$ 回転関係にあるという報告²⁾や、最初に発生する動的再結晶粒は変形能が大きい容易すべり方位になるという報告¹⁶⁾がある。本研究での発生直後の動的再結晶粒と未再結晶領域の方位関係は必ずしもそれらの報告に当てはまるものではない。

核形成後かなり成長した動的再結晶粒 (Fig. 7 の新粒②) に関しては、新粒自体がすでに成長とともに変形しており、Fig. 11 に示すようにこの段階での結晶方位測定結果から新粒②の形成過程および未再結晶領域との方位関係を厳密に考察するのは困難である。

Fig. 11 (100) stereographic projection showing lattice rotation by plastic deformation. Numbers 0-3 correspond to those in Fig. 6.

Fig. 12 The model of nucleation and growth.

4.3 再結晶発現のために必要なエネルギー

新粒形成時の転位の蓄積によるひずみエネルギーが本研究において試算できる。転位エネルギーによる再結晶粒界移動の駆動力を P_v 、単位体積当たりの転位の全エネルギーを E_D とすると、

$$P_v = E_D = \alpha \rho \mu b^2 \quad (3)$$

と表される¹⁾。 ρ は転位密度、 μ は剛性率、 b は転位のバーガースベクトル、 α は 0.5 程度の定数である。そこでまず、(i)せん断変形応力値、(ii)放射光 Laue スポットの伸びおよび (iii)EBSP 法から得られた未再結晶領域の方位分布から、そ

れぞれ新粒発現時の未再結晶領域の転位密度 ρ を試算した。

(i) 単結晶の変形ステージ II 以降では、せん断応力と転位密度の間には次式

$$\tau = \alpha \mu b \sqrt{\rho} \quad (4)$$

(τ : せん断変形応力、 α : 定数 (0.20~0.35)^{17,18)}、 ρ : 転位密度)がよく成り立ち、2 次すべり系の林立転位密度を結晶中の全転位密度と同等とすると、そのときの転位密度を見積もることができる。ここでは $\mu = 2.60 \times 10^{10} \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$ 、 $b = 0.286 \text{ nm}$ とする¹⁸⁾。放射光 Laue 法より、 $(1\bar{1}\bar{1})\langle 0\bar{1}1 \rangle$ と $(\bar{1}\bar{1}1)\langle 1\bar{1}0 \rangle$ の 2 種類のすべり系が主に活動したと考えられる。新粒のスポットが発生したときの分解せん断応力 τ は 7.5 MPa と計算される。この場合、 $\rho \sim 10^{13} \text{ m}^{-2}$ と見積もることができる。

(ii) 放射光 Laue 法より、実際に活動したと考えられるすべり系のすべり面 (111) の Laue スポットの湾曲度は新粒発現時には $\langle 0\bar{1}1 \rangle$ 軸周りに 13° と実測された。いま特定の格子面の、放射光 (面の法線と角 α をなす) に照射された部分が、放射光および変形前の格子面の法線となす角が 90° である回転軸のまわりに角 β をなすように湾曲したと仮定する。このとき Laue スポットは放射状に伸びるが、この放射方向の広がり注目した。ここで格子面の回転軸に平行な転位線方向をもつ同符号の刃状転位が存在し、結晶が湾曲しているモデルを考える。入射ビームの径を a 、バーガースベクトルを b とすると、この場合の転位密度の変化量は、

$$\rho = \beta / (b \cdot a \cdot \cos \alpha) \quad (5)$$

となる。 β は Leonhardt チャートと Wulff ネットを用いて、初期状態との差として求められる。これより、格子面湾曲に寄与した転位密度を計算すると $6.5 \times 10^{12} \text{ m}^{-2}$ と求められる。このときスポットの伸びには短波長側に限界があることを考慮すると、実際の格子面湾曲量はさらに大きい値になる。このことから、Laue スポットの伸びから計算すると、 $\rho \sim 10^{13} \text{ m}^{-2}$ と考えられる。

(iii) Fig. 7 の新粒①の周辺の転位密度 ρ を概算する。新粒①の周辺に確認できる亜結晶粒界がバーガースベクトル b の刃状転位による転位境界であると考え。転位境界の傾き角が θ のとき、転位の間隔 h は、

$$h = b / \theta \quad (6)$$

である。単位面積当たりの亜結晶粒界中の転位密度 ρ_{sb} は、

$$\rho_{sb} = 1 / h \quad (7)$$

である。直径 d_{sb} の亜結晶粒は単位体積中に d_{sb}^{-3} 個存在するため、単位体積中の亜結晶粒界面積 S は、

$$S = 3 / d_{sb} \quad (8)$$

である。これにより、刃状転位が亜結晶粒界中にのみ存在すると仮定した場合の、単位体積中の転位密度 ρ は、

$$\rho = \rho_{sb} \cdot S = 3 / (h \cdot d_{sb}) = 3\theta / (b \cdot d_{sb}) \quad (9)$$

である。Fig. 7 の新粒①の周辺では、 $\theta \sim 5^\circ$ 、 $d_{sb} \sim 100 \mu\text{m}$ であることから、 $\rho \sim 10^{13} \text{ m}^{-2}$ と推測できる。

以上(i)~(iii)の過程で試算した ρ の値はいずれも $\rho \sim 10^{13} \text{ m}^{-2}$ であった。

この ρ の値と式 (3) より E_D の値は $E_D \sim 10^4 \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$ ($= 10^{-4} \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$) と推定される。

これらの結果をまとめると、再結晶発現に必要な転位の蓄

積エネルギーは $10^{-4} \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ 程度ということになる。しかし、これらの過程において算出した転位密度は、試料内部の平均転位密度と考えられ、局所に蓄積した転位密度はさらに大きな値であると思われる。転位密度には上限値があり、それにより成長可能な再結晶核ができるためのエネルギーの上限値を推測することも可能である。そこで、通常の塑性変形では考えられえないが、結晶中の原子配列が不定形物質のものに近い状態を想定すると、この場合 $\rho \sim 10^{18} \text{ m}^{-2}$ であり、 $E_D \sim 10 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ となる。Al の比熱は $917 \text{ J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ である¹⁹⁾ ため、473 K に加熱したことによるエネルギー増加は $11.7 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ である。3.1 で述べたように、第一ピーク応力値から求めた応力落下が起こるための活性化エネルギー Q が $65.2 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ であった。この値を新粒の核が成長するために必要なエネルギーと考え、それに比べて新粒発現時の転位の蓄積によるひずみエネルギーは低い。

ここで、半径 r の球状の再結晶核が周りのひずみの高い未再結晶領域(転位の蓄積によるひずみエネルギー E_D) を蚕食して成長すると考える。再結晶境界のエネルギーを γ とすると、一次再結晶粒の臨界半径 r_c は、

$$r_c = 2\gamma/E_D \quad (10)$$

で求められる¹⁴⁾。半径 r_c より大きくなった粒は成長できる。成長可能な新粒の核が形成されるためにはエネルギー E_D が必要であり、さらにその新粒の核が成長するには 3.1 で求めた活性化エネルギー Q が必要となると考えると、転位の蓄積によるひずみエネルギー E_D のもとで新粒の核が形成されてもその全てが成長できるとは限らないということになる。

4.4 再結晶核形成の臨界サイズ

ここでは、放射光 Laue スポットその場連続観察による動的再結晶確認時の新粒核形成の臨界サイズを試算し、その後の成長過程と実際得られた変形応力の変動との対応を考察する。観察される Laue スポットが新粒のもののみになったとき ($\varepsilon = 0.16$)、ビーム照射領域の体積を考慮に入れると、球状と仮定した場合の新粒の半径は少なくとも 1 mm 程度と推定される。

はじめに、新粒が成長し始める時点ではどの程度の大きさを持っているのか推察する。

そこで、式(10)を用いて、成長可能な新粒の臨界核半径 r_c を計算上求める。

まず、新粒発生時の γ の値を求める。Read-Shockley の関係²⁰⁾ が成り立つ場合を想定する。

$$\gamma = \gamma_m \theta / \theta_m [1 - \ln(\theta / \theta_m)] \quad (11)$$

(γ_m , θ_m はそれぞれ、粒界が大傾角粒界となったときの粒界エネルギーおよび角度差。ここでは Al の大傾角粒界のエネルギー $\gamma_m = 0.324 \text{ N} \cdot \text{m}^{-1}$, $\theta_m = 15^\circ$ とした²¹⁾)

4.2 で述べたように新粒発生時、新粒と未再結晶領域との角度差は 8° であったことから、新粒発生時の粒界エネルギーは式(11)より $\gamma = 0.281 \text{ N} \cdot \text{m}^{-1}$ となる。

新粒確認時の転位による蓄積エネルギーは $10^4 \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$ 程度と試算されたことから、式(10)より r_c の値は $\sim 60 \mu\text{m}$ と見積もることができる。

再結晶の核形成は亜結晶粒成長によって発現すると考えられている²²⁾。そこで、放射光 Laue スポットその場連続観察による動的再結晶確認時の平均亜結晶粒径を試算する。流動応力 σ は亜結晶粒径 D に依存し次式が成り立つ^{23,24)}。

$$(\sigma/\mu)(D/b) = K \quad (12)$$

Al の場合は $K = 28$ とされる²⁵⁾。このとき $D \sim 30 \mu\text{m}$ となる。新粒核成長の臨界半径 $r_c \sim 60 \mu\text{m}$ と試算されたことからすると、動的再結晶は、周りの亜結晶粒より 4 倍程度大きい粒が成長してゆく過程であるということになる。しかし、式(3)から求めた新粒確認時の転位の蓄積によるひずみエネルギーや式(12)から試算される亜結晶粒径も試料全体の平均値であると考えられる。強圧延した金属の再結晶を想定し式(10)から r_c を試算した場合、 $r_c \sim 1 \mu\text{m}$ 程度を得た例¹⁴⁾ などから、放射光 Laue スポットその場連続観察によって確認された新粒の核の臨界サイズおよび周囲の亜結晶粒径は、実際には式(10)や式(12)等から試算したものより小さい値をとるものと考えられる。

次に新粒が発生後、どの程度まで異常成長可能か考察する。亜結晶粒・結晶粒組織の粒径・方位差・粒界移動度・粒界エネルギーの平均値よりも大きい値を持つ粒が異常成長すると仮定して導出された Humphreys の統一理論²⁶⁾ が実際の純 Al において当てはまるとする。これによると、半径 R 、粒界移動度 M 、粒界エネルギー γ 、周囲との角度差 θ の粒が、周りの粒組織(平均粒半径 R 、平均粒界移動度 M 、平均粒界エネルギー γ) の中でどれだけ異常成長できるかを知ることができる。

$$X = 2Q \pm 2(Q^2 - QG)^{1/2} \quad (13)$$

ここで、 $X = R/\bar{R}$, $Q = M/\bar{M}$, $G = \gamma/\bar{\gamma}$ である。

また、式(11)および、

$$M = M_m \{1 - \exp[-B(\theta/\theta_m)^n]\} \quad (14)$$

(M_m は大傾角粒界の粒界移動度, $n = 4$, $B = 5$)

より^{1,26,27)}, Q および G は θ および $\bar{\theta}$ を変数にもつ。

4.2 で述べたように新粒発生時、新粒と未再結晶領域との角度差は $8^\circ (= \theta)$ であった。第一応力ピーク付近から未再結晶領域のスポットの伸びは増大しないこと、および Fig. 7 の未再結晶領域内の亜結晶粒同士の方位差から判断すると、 $\bar{\theta}$ の値は約 5° と考えられる。この値を用いると、平均より 1.3 倍大きい粒が約 25 倍の半径に異常成長可能と見積もることができる。上記で算出した半径 $60 \mu\text{m}$ の新粒が 25 倍の半径を持つまで成長したとすると、計算上は最大で半径 1.5 mm まで異常成長することになる。未再結晶領域のスポットが観察されなくなった時、すなわち新粒が半径 1.0 mm 程度まで成長したと考えられる時は、新粒のスポット発生から 15 秒後であった。これは $\sigma = 9.6 \text{ MPa}$, $\varepsilon = 0.16$ のときであり、第一応力落下後の谷に近く、応力落下の勾配が緩く変化する段階であった。新粒が半径 1.0 mm から 1.5 mm まで成長するに伴い、 $\varepsilon = 0.16$ の段階から少し変形応力が低下したものと考えることができるが、式(10)で求めた r_c 値が過大評価された可能性があるため、さらなる詳細な検討が必要であろう。

5. 結 言

純 Al 単結晶の高温圧縮変形における動的再結晶発現前後の結晶方位変化を放射光 Laue スポットのその場連続観察、迅速 X 線透過 Laue 法および SEM/EBSP 法により調べた結果、以下の知見を得た。

(1) 放射光 Laue スポットのその場連続観察により純 Al 単結晶における動的再結晶の発現が認められた。

(2) 動的再結晶は、変形中の未再結晶領域中で主に活動するすべり系とは別のすべり系が局所的に活動することによって周囲と大きな方位差をもつ領域が成長する過程であると考えられる。

(3) 変形応力ピーク前の段階で、転位の蓄積によるひずみエネルギーが臨界値に達する。このエネルギーは再結晶核が成長するために必要なエネルギーよりもかなり低く、転位の蓄積によって形成された再結晶核が全て成長できるとは限らないことが示唆される。

本研究の遂行にあたり多大な援助をいただいた財高輝度光科学センターの梶原堅太郎氏に深く感謝します。また、実験に協力していただいた九州大学大学院生の山村 健，山下正博両君に感謝します。

本研究は財団法人日本アルミニウム協会研究助成事業ならびに財団法人軽金属学会の援助によって行われたものである。

文 献

- 1) F. J. Humphreys and M. Hatherly: *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*, (Elsevier Sci. Ltd., 1995) pp. 11-56.
- 2) G. Gottstein and U.F. Kocks: *Acta Metall.* **31** (1983) 175-188.
- 3) H. Yamagata: *Scr. Metall. Mater.* **27** (1992) 201-203.
- 4) H. Yamagata: *Scr. Metall. Mater.* **27** (1992) 727-732.
- 5) H. Yamagata: *Scr. Metall. Mater.* **30** (1994) 411-416.
- 6) Y. Watanabe, T. Koike, M. Otsuka and H. Yamagata: *J. Japan Inst. Metals.* **62** (1998) 44-49.
- 7) C. Chovel, S. Gourdet and F. Montheillet: *Int. Conf. UHPM 98*, Sevrier, Annecy Lake, France (1998) pp. 67-74.
- 8) Y. Miura, K. Ihara and K. Fukaura: *Mater. Sci. Eng. A.* **280** (2000) 134-138.
- 9) C. Zener and J. H. Hollomon: *J. Appl. Phys.* **15** (1944) 22-32.
- 10) C. M. Sellars and W. J. McG. Tegart: *Mem. Sci. Rev. Met.* **63** (1966) 731-746.
- 11) F. Haessner and S. Hofmann: *Recrystallization of Metallic Materials*, ed. by F. Haessner. Dr. Rieder-Verlag, Stuttgart (1978) 63.
- 12) H. Yamagata and M. Otsuka: *Materia Japan* **36** (1997) 795-801.
- 13) B. D. Cullity: *Elements of X-ray diffraction*, Japanese edition, translated by G. Matsumura, (Agne Co., Ltd., 1992) 237.
- 14) E. Furubayashi: *Saikessho-to-Zairyososiki*, (Uchidaroukakuho, Tokyo, 2000) pp. 61-153.
- 15) R. D. Doherty, D. A. Hughes, F. J. Humphreys, J. J. Jonas, D. Juul Jensen, M. E. Kassner, W. E. King, T. R. McNelly, H. J. McQueen and A. D. Rollett: *Mater. Sci. Eng. A.* **238** (1997) 219-274.
- 16) T. Koike, T. Sunada, K. Tanaka, M. Otsuka and H. Yamagata: *Abstracts of the Japan Institute of Light Metals* **90** (1996) pp. 85-86.
- 17) N. Hansen and X. Huang: *Acta Mater.* **46** (1998) 1827-1836.
- 18) R. Neuhaus and Ch. Schwink: *Philos. Mag. A* **65** (1992) 1463-1484.
- 19) Japan Institute of Light Metals: *Aruminiumu-no-sosiki-to-seisitu* (1991) 3.
- 20) W. T. Read and W. Shockley: *Phys. Rev.* **78** (1950) 275-289.
- 21) L. E. Murr: *Interfacial Phenomena in Metals and Alloys*. Addison-Wesley, Reading (1975) 131.
- 22) F. J. Humphreys and M. Hatherly: *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*, (Elsevier Sci. Ltd., 1995) 152.
- 23) O. D. Sherby and P. M. Burke: *Prog. Mater. Sci.* **13** (1967) 325-386.
- 24) S. Takeuchi and A. S. Argon: *J. Mats. Sci.* **11** (1976) 1542-1566.
- 25) W. Blum, Q. Zhu, R. Merkel and H. J. McQueen: *Z. Metallkde.* **87** (1996) 14-23.
- 26) F. J. Humphreys: *Acta Mater.* **45** (1997) 4231-4240.
- 27) G. Gottstein and L. S. Shvindlerman: *Scr. Metall. Mater.* **27** (1992) 1515-1520.