

アルミニウム双結晶の変形挙動におよぼす結晶粒界の影響

北川和夫* 尾田十八*
関文男* 杉森勝**

Effect of Grain Boundary on Deformation Behavior of Aluminum Bicrystal

by

KAZUO KITAGAWA, JŪHACHI ODA, FUMIO SEKI and SUGURU SUGIMORI

Abstract

It is very important to estimate the deformation of polycrystalline materials from the elasto-plastic behavior of a single crystal. But this estimation is the difficult problem because the grain boundaries restrict the deformation in polycrystalline metals. In the recent investigations on this problem, the coarse-grained specimens of aluminum are used and many results are published, but up to now, the effect of grain boundary is not obvious.

Then, in this paper, the bicrystal specimens of highly pure aluminum are adopted to analyse the effect of grain boundary on deformation behavior. The specimens have the grain boundaries perpendicular to the tensile axis and consist of two isoaxial crystals. On these specimens the stress-strain curves and the patterns of slip lines are obtained, and more, the moiré technique is applied to analyse the strain distribution. The results obtained are as follows.

- 1) The strain becomes more tightly restricted by the grain boundary with the increase of misorientation between primary slip systems.
- 2) The minimum value of strain near grain boundary becomes smaller as the misorientation between primary slip systems increases.
- 3) When the misorientation between primary slip systems is small, primary slip occurs across the grain boundary, but when the misorientation is big enough, it is hardly possible that each primary slip simultaneously occurs near grain boundary.

1. 緒 言

金属材料は多結晶体よりなり、その破壊はこれら結晶粒の粒界や粒内で生ずるものであり、また個々の結晶粒の方位や粒度は、材料全体の变形挙動に影響するものであることが知られている。しかし

*機械工学科 **大学院学生 機械工学専攻

単結晶より多結晶体の変形挙動を推定するには、現在結晶粒界の影響がまだ十分に解明されておらず、従来よりこの点を明らかにするための研究がきわめて多く行なわれている。

PETCH¹⁾ は多結晶体の流れ応力を平均結晶粒直径の関数として表示する有名な式を提示しているし、BOAS-HARGREAVES²⁾, URIB-WAIN³⁾, LIVINGSTON-CHALMERS⁴⁾ は結晶方位の差による個々の結晶粒の変形量の相違や、結晶粒内の不均一変形の様子を定性的に明らかにした。一方国内においても、佐賀ら⁵⁾ はグリッド法により結晶の2次元ひずみ分布を実験的に解析しているし、宮本ら⁶⁾ は有限要素法を利用して、アルミニウム粗大結晶粒試験片により、すべり線発生の推定や、引張り軸方向に結晶粒界をもつ試験片に対するすべり線の発生と伝ばの研究を行なっている。また美馬ら⁷⁾ も同様の実験を試みている。しかしこれらの研究によっても、いまだ粒界の性質は明らかとはいえず、したがって単結晶より多結晶体の変形挙動を推定しようとすることは非常に困難な問題である。

以上により、本研究は粒界の最も基本的な性質を知るため、引張軸に垂直な直線結晶粒界を有するアルミニウム双結晶を試料として、この結晶粒界をはさむ2つの結晶の方位変化による変形挙動を追求することにした。すなわちモデルは1つの結晶の方位が、もう一方の基準結晶に対し引張軸回りに回転している等軸双結晶を対象とし、ここではこれの応力-ひずみ関係を求め、さらにモアレ法により粒界付近のひずみ分布を明らかにした結果を報告するものである。

2. 実験方法

2.1 試験材料

結晶の塑性挙動は不純物元素の含有により非常に影響されるので、本実験では高純度のアルミニウム(99.99%)を使用した。適当な大きさに切断した素材アルミニウム板を、結晶方位を制御するため種付けし、アルミナ粉末を mold 材として TAMMANN-BRIDGMAN 法⁸⁾ により結晶化させた。このときのろつば降下速度は約 8 cm/hr である。結晶化させたアルミニウム板を 4% フッ化水素酸でマクロエッチして単あるいは双結晶になっていることを確認し、X線背面反射ラウエ法により所定の方位になっていることを確かめた上で、加工ひずみの導入を極力さけるべく、放電加工によって Fig. 1 に示す形状に仕上げた。またモアレ解析用、およびすべり線観察用試料は表面の平滑さを要求されるため、エメリー紙による研磨仕上げの後パフ研磨を行なった。さらにすべての試験片について結晶製作時、および加工時に導入されたひずみや変質層を除去するため、過塩素酸 1, エチルアルコール 4 の割合の電解液により電解研磨を行なった。その後 300°C で 1 時間の真空焼鈍を行ない完全を期した。

本実験で使用した双結晶の幾何学的模式図を Fig. 2 に示す。基準結晶 (Standard crystal) は結晶学的に固定しておき、異方位結晶 (Misoriented crystal) は

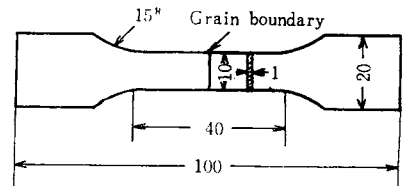


Fig. 1 Shape and dimension of test piece(mm)

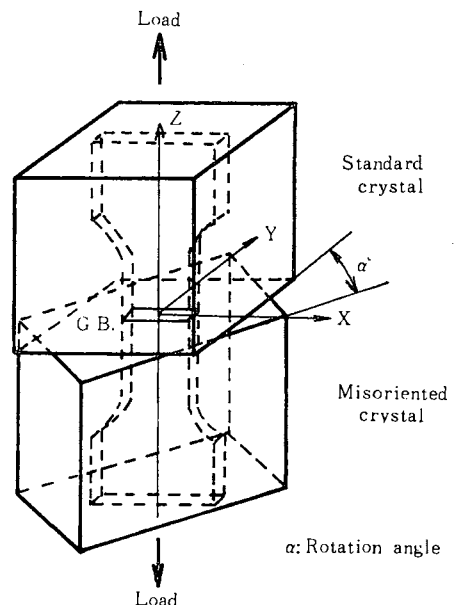


Fig. 2 Schematic view of bicrystal

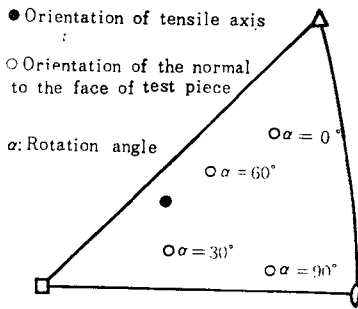


Fig. 3 Stereographic projection of test piece

実験中、必要に応じてすべり線分布の観察も行なった。モアレ法においては 20line/mm のグリッドシートを用い、ミスマッチ法による測定を行なった。

引張軸のまわりに回転させるわけだが、本実験では 30°, 60°, 90° と回転させたものを実験に供した。したがって各結晶とも引張軸方向の結晶方位は一定で、面方位のみ異なるためシュミット因子は同一である。ステレオ基準三角形内に示した引張軸方位と各結晶の面方位を Fig. 3 に示す。

2・2 引張試験およびモアレ解析

引張試験は定変位型試験機を用いて、変位速度 0.5mm/min にて行なった。はじめに単および双結晶の応力-ひずみ曲線を求め、次に粒界付近のひずみ分布を得るため、1, 3, および 6%ひずみ状態におけるモアレ解析を実施した。さらにこれら

3. 実験結果と考察

3・1 応力-ひずみ線図

基準結晶、およびそれを引張軸回りに 30°, 60°, 90° と回転したときの成分単結晶の 12 のすべり系とシュミット因子、さらにすべり線と引張軸とのなす角を Table 1 に示す。またそれぞれの成分単結晶の応力-ひずみ曲線を Fig. 4 に示す。結晶製作の際、正確に所定の結晶方位のものを得ることは非常に困難であるが、Table 1 から明らかのように、すべり変形に関与する主すべり系をはじめとするシュミット因子の大きいすべり系の順位は各結晶とも同一で、しかもその大きさにも大差はないことから各試験片とも十分実験目的に対応するものと了解される。

Table 1 Slip system and direction of slip line

No.	Slip system	$\alpha=0(\text{deg})$		$\alpha=30$		$\alpha=60$		$\alpha=90$	
		S. F.	$\theta(\text{deg})$	S. F.	θ	S. F.	θ	S. F.	θ
1	$\beta\text{-AC}[\bar{1}10]$	0.489	141	0.484	139	0.490	127	0.496	100
2	$\alpha\text{-DB}(110)$	0.452	77	0.455	62	0.458	56	0.422	60
3	$r\text{-AB}(\bar{1}01)$	0.391	27	0.411	39	0.394	69	0.383	132
4	$\alpha\text{-DC}(101)$	0.337	77	0.372	62	0.333	56	0.335	60
5	$\beta\text{-DC}(101)$	0.256	141	0.292	139	0.264	127	0.246	100
6	$r\text{-DB}(110)$	0.239	27	0.269	39	0.245	69	0.246	100
7	$\beta\text{-AD}(011)$	0.226	141	0.198	139	0.233	127	0.208	132
8	$\delta\text{-AB}(\bar{1}01)$	0.216	114	0.270	151	0.233	164	0.188	168
9	$\delta\text{-AC}(\bar{1}10)$	0.188	114	0.240	151	0.195	164	0.165	132
10	$r\text{-AD}(011)$	0.157	27	0.149	39	0.157	69	0.164	168
11	$\alpha\text{-BC}(0\bar{1}1)$	0.101	77	0.083	62	0.114	56	0.119	60
12	$\delta\text{-BC}(011)$	0.029	114	0.032	151	0.036	164	0.029	168

α : Rotation angle

S. F.: Schmid factor

θ : Angle between slip line and tensile axis

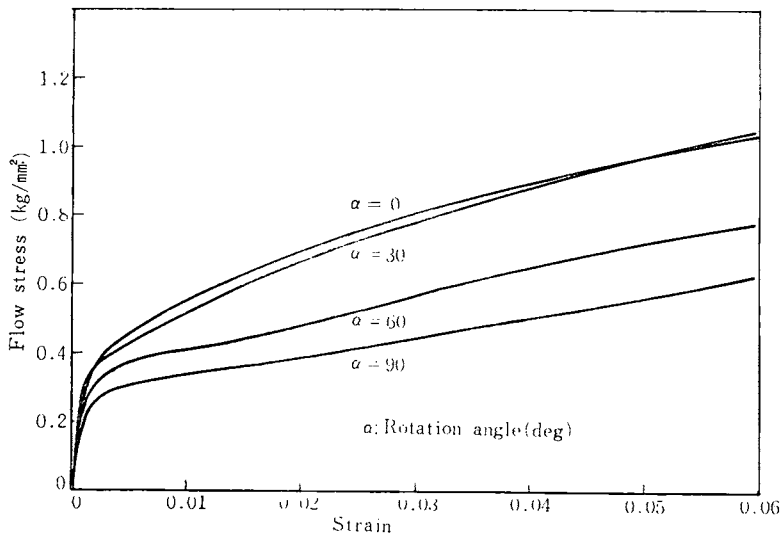


Fig. 4 Relation between flow stress and strain of single crystal

さて、供試片の条件から、寸法効果がなければほぼ同一の応力-ひずみ曲線が得られるはずであるが、Fig. 4のごとく回転角により大きな差があらわれている。これは試験片の断面寸法比が Fig. 5に示すように1:10と大きいため、主すべり系のすべりベクトルが回転角により変化するためと考えられる。ここで矢印の方向を主すべり系とすると、その方向に刃状転位が通過することになる。そこで主すべり系の刃状転位の通過距離と応力との関係を求めると Fig. 6 のようになる。これによれば、低ひずみ領域では通過距離の影響は少ないが、高ひずみ領域ではその傾向が非常に顕著であることが明らかである。

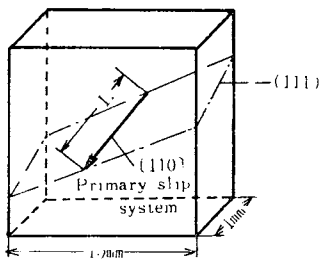


Fig. 5 Path length of edge dislocation

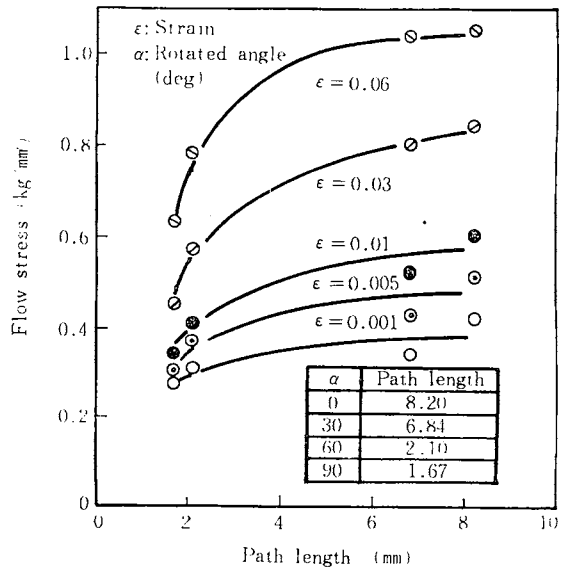


Fig. 6 Relation between flow stress and path length of primary slip system of edge dislocation for single crystal

この寸法効果に関して **SUZUKI**⁹⁾ は種々の直径を有す銅単結晶を用いて実験を行ない、基準三角形の中央付近に引張軸のある単一すべりをおこすような結晶では、応力—ひずみ曲線における第1段階*の長さは、直径が大きくなると増加し、第2段階の加工硬化率は直径とは無関係になることを認め、さらに〔100〕方位に近いもの、つまり2次すべりが活動しやすいものでは加工硬化率は直径に影響されるとしている。また **FOURIE**¹⁰⁾ は薄片銅単結晶を用い、第1段階の長さは刃状転位の通過距離に影響されるが、らせん転位にはほとんど影響されず、さらに加工硬化率と通過距離は無関係であると述べている。

以上のような実験結果と、さらに **HIRSCH**¹¹⁾ が述べているように、主すべり系の転位の蓄積により第1段階が終了するものとする、刃状転位が試験片のすべり面を横切るとき、その通過距離が長ければそれだけよいに不純物原子や他の転位との相互作用を生ずるため、すべり面上において転位の蓄積が活発に行なわれ、第1段階が早く終了するという理論的考察より、本実験のごとく同一ひずみにおいても回転角の増加につれて刃状転位の通過距離が幾何学的に長くなり、高い応力値を示したものと考えられよう。

次にこれらの単結晶を成分結晶とする双結晶の応力—ひずみ曲線を **Fig. 7** に示す。ところでいま一般的多結晶体中の一つの結晶に注目するとき (**Fig. 8**)、これはいくつかの結晶によって囲まれ、結晶粒界を介して変形を拘束されている。このような結晶の変形挙動を調べるとき、**Fig. 8 (b)** に示すような2つの結晶が直列および並列に配置している簡単なモデルの挙動を知ることが最も重要と考える。本報では特に(b)のモデルを対象とした実験であるが、この場合のひずみは粒界の変形拘束がないとすれば **Fig. 9** の破線にて示すようなA、Bおのおのの結晶の相加平均として定義できることになる。しかし実際には結晶粒界による影響のためこのような簡単な傾向はとらず、**Fig. 7** に見るようなものとなる。すなわち、それらの分布は **Fig. 9** での一点鎖線のようなものとなっている。以上のようにして得られた実験的ひずみと直列モデルのひずみとの差 4ϵ を、粒界による拘束ひずみと定

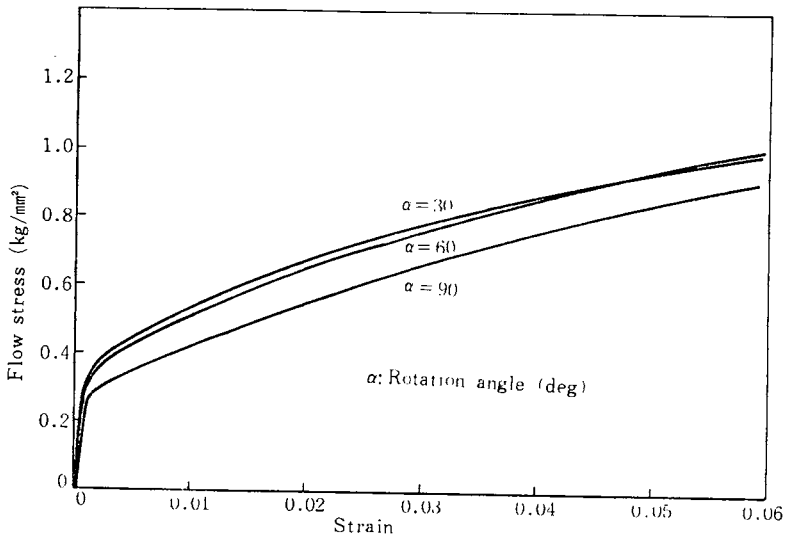


Fig. 7 Relation between flow stress and strain of bicrystal

*面心立方金属単結晶の加工硬化過程において、初期に生ずる容易すべり領域を第1段階といい、その後続く硬化率の高い領域を第2段階という。

義することにし、Fig. 4とFig. 7から応力と拘束ひずみ $\Delta\epsilon$ を、すなわち粒界強さを求めた。その結果をFig. 10に示す。これより引張軸回りの回転角が大きくなるにつれて、主すべり系の方位差が大きくなるため粒界の拘束が顕著になっているのがわかる。しかもその傾向が応力とほぼ線形の関係にあることが了解される。これらのことは次のような点から理解できるであろう。すなわちFig. 2の双結晶の模式図において、結晶粒界での両成分結晶のひずみの両立性から次式が成立しなければならぬ。

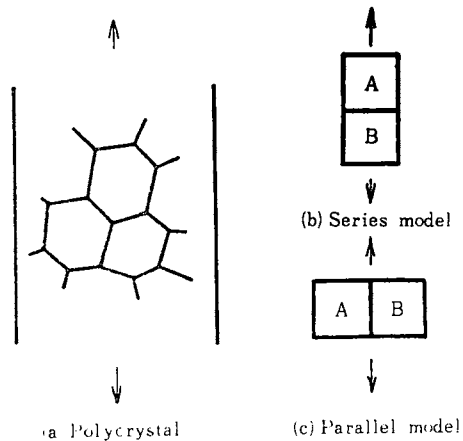


Fig. 8 Simplified models of grain boundary

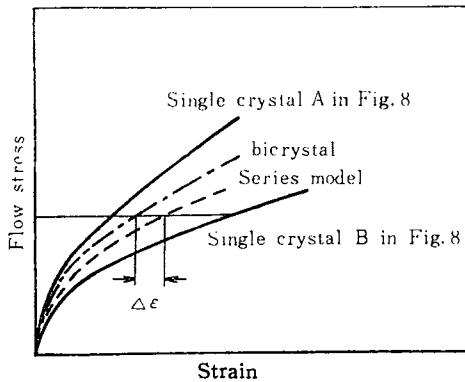


Fig. 9 Relation between flow stress and strain of series model

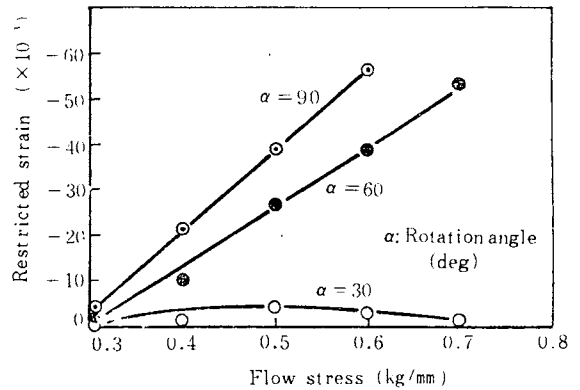


Fig. 10 Restricted strain of bicrystal caused by misorientation

$$\left. \begin{aligned}
 \epsilon_{xx}^S &= \epsilon_{xx}^M \\
 \epsilon_{yy}^S &= \epsilon_{yy}^M \\
 \epsilon_{xy}^S &= \epsilon_{xy}^M
 \end{aligned} \right\} (1)$$

したがって両結晶の主すべり系に方位差が存在すれば、引張軸回りの回転角が 0° または 180° のとき以外はすべり系の $x-y$ 平面内の合成すべりベクトルは0にはならないため、両結晶において1次すべり系以外に、2次すべり系が活動しなければならない。方位差が小さいときは2次すべりの活動量は少なくすむが、方位差が大きくなるにつれてその活動量が多くなる。極端な場合として、回転角が 90° の場合は各成分結晶における2つの主すべり系ベクトルの $x-y$ 平面内のベクトル成分は直交するので、主すべり系が同時に活動することはできず、変形は高い剪断応力ですべる2次すべり系によらねばならぬので、拘束は極めて大きくなることは容易に想像できる。

また一般に2次すべり系が活動すると、1次すべり系の活動は困難となり、いわゆる加工硬化現象を呈すが、粒界付近では上述のごとく2次すべりをともなうため、加工硬化現象をおこし、変形が局部的に困難となって、応力-ひずみ線図は低ひずみ側に移動したともいえよう。

3・2 すべり線観察

Photo. 1 にひずみ 6%における試験片中央部での結晶粒界付近のすべり線観察結果を示す。ここで結晶学的方位差因子として次式の N_{ij} を定義する⁴⁾。

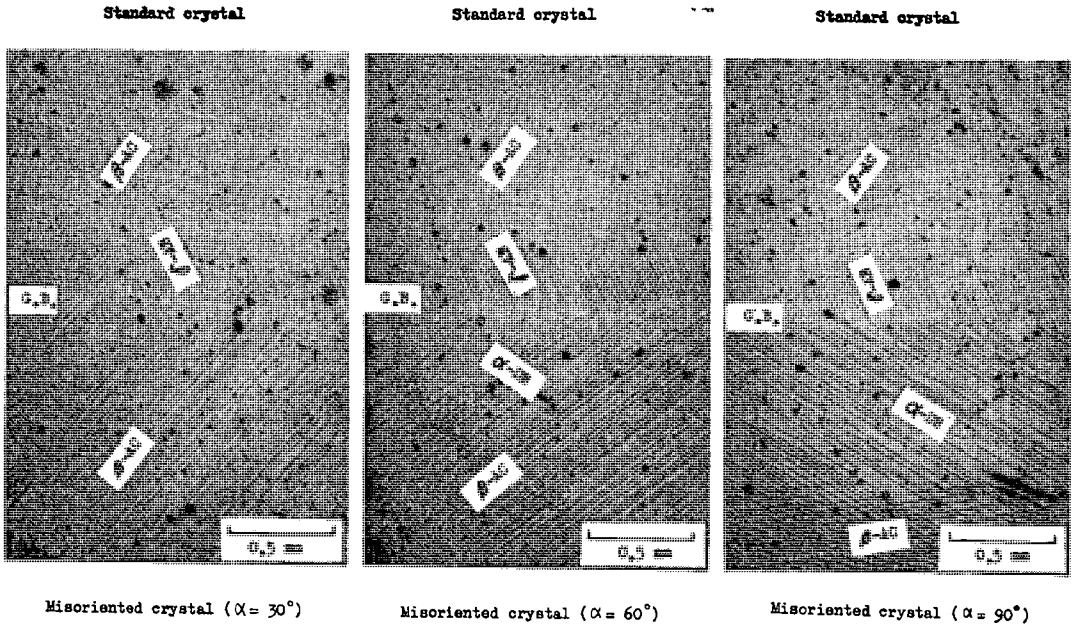


Photo. 1 Slip line near grain boundary

$$N_{ij} = (e_i \cdot e_j)(g_i \cdot g_j) + (e_i \cdot g_j)(e_j \cdot g_i) \quad (2)$$

ただし、 i, j はそれぞれ i 結晶、 j 結晶の 12 のすべり系を意味し、 e はすべり面に垂直な単位ベクトルで、 g はすべり方向の単位ベクトルである。したがって 1 つの双結晶において組合せにより、144 の N_{ij} が計算されることになるが、ここでは回転角 180° までの主すべり系同志の N_{ij} を Fig. 11 に示し、シュミット因子の大きい主すべり系 ($\beta-AC$)*、臨界すべり系 ($\alpha-DB$)*、共役すべり系 ($r-AB$)* の 3 種のすべり系について、相互の N_{ij} を Table 2 に示す。ここで主すべり系の N_{ij} が 1 に近い程、一方の結晶のすべり変形が他方の結晶のすべり変形を促進しやすく、双結晶全体として単結晶に近い変形をするが、この値が小さいと、各成分結晶のすべり変形は互いに影響し合わなくなるため、すべり変形が不連続になることを意味する。

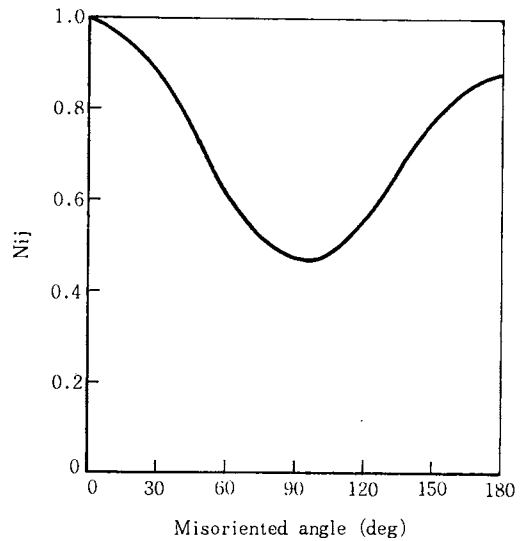


Fig. 11 Relation between misorientation angle and orientation factor N_{ij}

*Tompson の四面体による各すべり系の名称

さて、回転角が 30° の場合は主すべり系同志の N_{ij} は 0.894 と大きいため、粒界でのすべり変形は比較的連続に生ずることが予想され、Photo. 1 に見られるように各成分結晶の主すべり系が粒界まで活動している他、基準結晶側で共役すべり系が活動しているにすぎない。回転角が 60° になると 30° の場合に見られた 3 種のすべり系の他に、異方位結晶側に臨界すべり系がかなり遠方まで発生している。このときの主すべり系同志の N_{ij} は 0.645 と減少しているので、すべり変形が不連続になり、多量の 2 次すべりが活動したものと思われる。ここで Table 2 に示すとおり、異方位結晶側の臨界すべり系と、基準結晶側の N_{ij} はいずれも比較的小さく、むしろ異方位結晶のすべり系と、基準結晶の臨界すべり系の方が 1 に近いので、後者が活動しやすいように考えられるが、2 次すべりの活動は 1 次すべり系の転位との相互作用によって、かなり影響されるため、2 次すべりの発生と N_{ij} と関係づけることは困難のように思われる。回転角が 90° では 60° の場合よりもさらに N_{ij} は小さくなり、Fig. 11 において最小値をとる。このとき各成分結晶は相手側結晶と互いに無関係にすべり変形しようとするため、粒界付近でのすべり変形は極めて不連続になり、しかも $3 \cdot 1$ で述べたように各成分結晶において主すべり系の粒界面 ($x-y$ 平面) 内のすべりベクトル成分は直交するので、一方の主すべり系が粒界まで到達しておれば、相手結晶の主すべり系は活動することはできない。したがって Photo. 1 に見られるように、基準結晶

Table 2 Relation between rotation angle and orientation factor N_{ij}
 α : Rotation angle (deg)

Slip system		$\alpha=0^\circ$ (Standard crystal)		
		β -AC	α -DB	r -AB
$\alpha=30$	β -AC	0.894	0.878	0.399
	α -DB	0.487	0.887	0.403
	r -AB	0.581	0.149	0.891
$\alpha=60$	β -AC	0.646	0.988	0.328
	α -DB	0.438	0.600	0.670
	r -AB	0.697	0.409	0.598
$\alpha=90$	β -AC	0.462	0.773	0.593
	α -DB	0.569	0.351	0.925
	r -AB	0.601	0.449	0.287

側では主すべり系が粒界まで活動しているから、異方位結晶側ではひずみの両立性を最も満足しやすく、しかも基準結晶側の主すべり系との結晶学的方位差因子が大きくて、かつシュミット因子の大きいすべり系が活動しやすい。そこで異方位結晶側の臨界すべり系は、基準結晶側の主すべり系との N_{ij} に関しては共役すべり系より幾分小さいが、シュミット因子がそれより大きく、かつひずみの両立性を満足しやすい方位にあるため、比較的そのすべり変形が容易であったものと想像される。また異方位結晶側において、結晶粒界から離れた位置ではひずみの両立性を満たす必要はないため、主すべり系が発生していることは容易に了解されよう。

3.3 モアレ解析

Fig. 12~Fig. 14 にそれぞれ 30° , 60° , 90° と回転角を与えた双結晶のモアレ法で測定した粒界付近のひずみ分布結果を示す。図中の $\bar{\epsilon}_2$ は試験片に加えたクロスヘッドの移動ひずみを意味するもので、もちろん試験片平行部におけるひずみは、この値より小さい。(例えば $\bar{\epsilon}_2=6\%$ の場合は平行部において 5.4%)

回転角 30° の場合について見ると、 $\bar{\epsilon}_2=1\%$ では結晶粒界付近にほとんどひずみの拘束は見られない。しかし、この試験片においては、すべり線は結晶粒界から 10mm 程離れた位置においてすでに発生しており、平均ひずみ ($\bar{\epsilon}_2$) の増加とともに、その発生が結晶粒界付近に移動していることから、この程度のひずみにおいてもすでに結晶粒界による拘束が現われていると予測されるが、その変化はモアレ法にて確認されることがわかる。 $\bar{\epsilon}_2=3\%$ ではひずみの拘束がはっきり現われている。

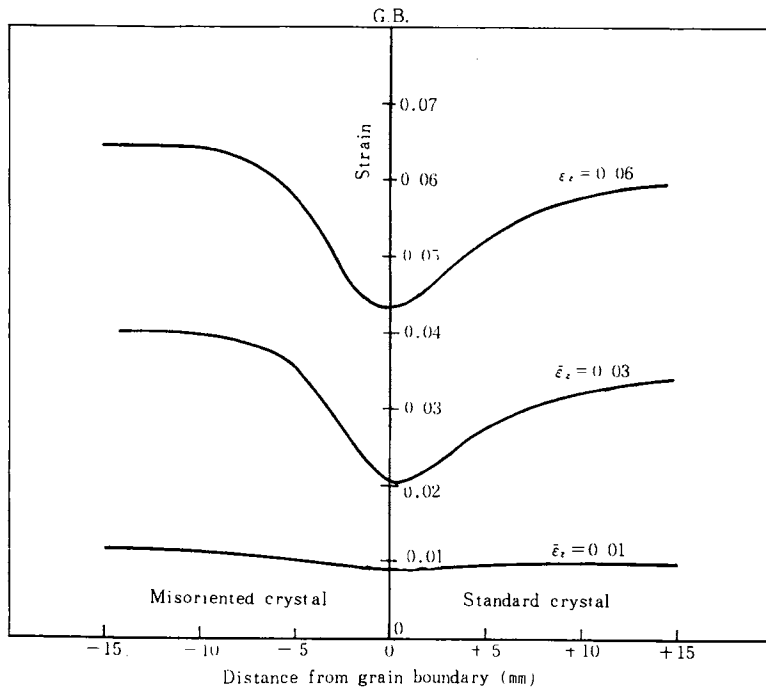


Fig. 12 Strain distribution along tensile axis of bicrystal ($\alpha=30^\circ$)

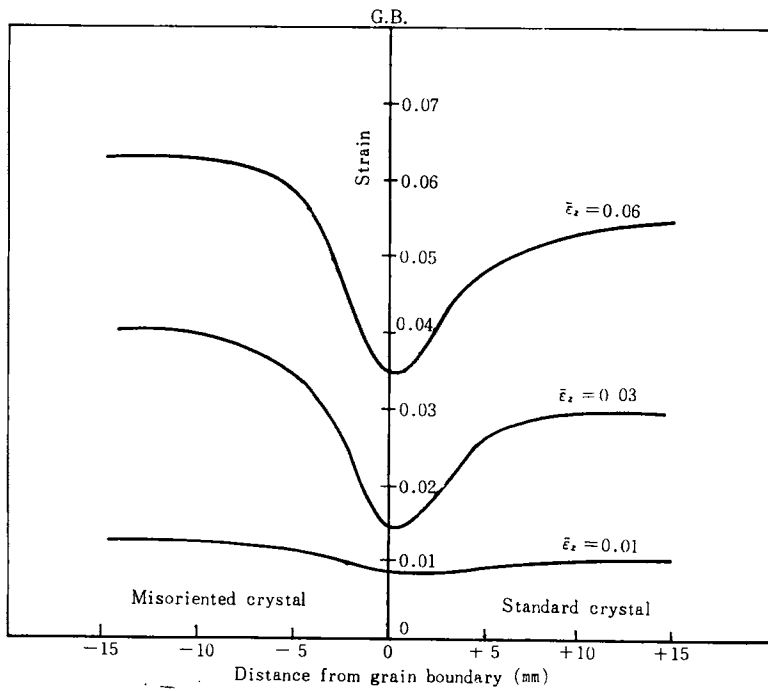


Fig. 13 Strain distribution along tensile axis of bicrystal ($\alpha=60^\circ$)

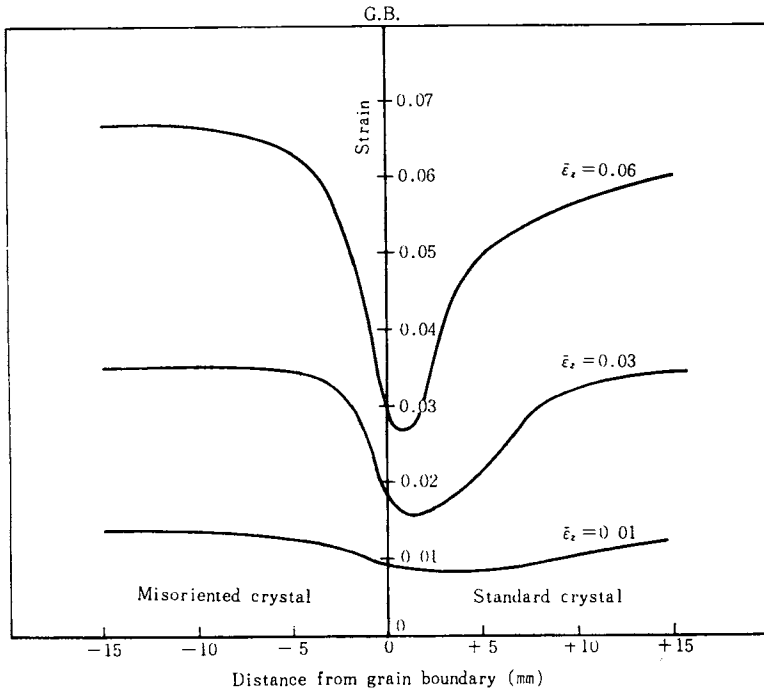


Fig. 14 Strain distribution along tensile axis of bicrystal ($\alpha=90^\circ$)

この段階ではすでに結晶粒界付近において、主すべり系はもちろんのこと、2次すべりが活動しているため、幾分加工硬化しているものと思われる。 $\bar{\epsilon}_x=6\%$ ではひずみレベルの増大は認められるが、ひずみの拘束状態は、傾向として $\bar{\epsilon}_x=3\%$ の場合と大差はない。これは3・1において、応力-ひずみ線図から算出した拘束ひずみと応力との関係を示すFig. 10にも見られるように、変形初期において結晶粒界による拘束が現われ、その後はあまり増加しない結果と対応するものであろう。回転角 60° においては当然のことながら回転角 30° の場合より大きい。回転角が 90° になると平均ひずみの増加とともに拘束は顕著になっているが、この理由について3・1、3・2で述べたとおりである。またひずみの極小点が、結晶粒界上ではなく、基準結晶側に移動しているのが特徴的である。これは定性的にはURIEら⁹⁾が示した平均ひずみの大きい結晶と小さい結晶が隣り合っているときは、平均ひずみの小さい結晶側にひずみの極小値があらわれることと一致している。

4. 結 言

結晶粒界が引張軸に直角で、一方の結晶の引張軸、および面方位を固定し、他方の結晶は引張軸回りに 90° までの範囲で回転した、高純度アルミニウム双結晶の引張り試験により、応力-ひずみ線図モアレ解析、およびすべり線観察を行なった結果、以下のことが明らかとなった。

1. 主すべり系の方位差の増加は、結晶粒界による拘束ひずみを増加させる。
2. 主すべり系の方位差の増加とともに、ひずみの極小値は減少し、さらにその極小点は平均ひずみの小さい側にあらわれるが、後者についてはURIEらの実験結果と一致する。
3. 主すべり系の方位差が小さいときは、各成分結晶の主すべり系が結晶粒界まで到達し、わずかの2次すべりをともなうが、方位差の増加とともに多量の2次すべりが活動し、方位差が極めて大き

くなると、一方の成分結晶の主すべり系は活動しにくく、結晶粒界付近では2次すべりのみによる変形が生じやすくなる。

最後に、本研究は軽金属学会の御援助を得て行なわれたものであり、ここに感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) N. J. PETCH・ほか2名, *Phil. Mag.*, 7 (1962), 45.
- 2) W. BOAS and M. E. HARGREAVES, *Proc. Roy. Soc. Lond., Ser. A*, 193 (1948), 89.
- 3) V. M. URIE and H. L. WAIN, *J. Inst. Metals* 81 (1952), 153.
- 4) J. D. LIVINGSTON and B. CHALMERS, *Acta Met.* 5 (1957), 322.
- 5) 佐賀ほか3名, 日本機械学会論文集, 34 (1968) 261, 842.
- 6) 宮本ほか3名, 日本機械学会誌, 74 (1971) 624, 53.
- 7) 美馬ほか2名, 日本金属学会誌, 35 (1971) 7, 647.
- 8) 結晶工学ハンドブック編集委員会編, 結晶工学ハンドブック, (1971), 497, 共立出版.
- 9) 鈴木(秀)他2名, *J. Phys. Soc. Japan*, 11 (1956), 382.
- 10) J. T. FOURIE, *Phil. Mag.*, 15 (1967), 187.
- 11) P. B. HIRSCH and J. S. LALLY, *Phil. Mag.*, 12 (1965), 595.

(昭和48年5月19日受理)