

# 工業用純アルミニウム系合金における 引張変形中の転位密度変化*in-situ*測定と 機械的性質の関係



兵庫県立大 工学研究科  
材料・放射光工学専攻

足立大樹

# 背景：（株）UACJとの共同研究

純アルミニウム系合金：A1200合金

化学組成(%)

Si+Fe	Cu	Mn	Zn	Ti	Al
< 1.0	< 0.05	< 0.05	< 0.1	< 0.05	99.0以上

用途：エアコンのフィン、自動車用ヒートインシュレータ、IT筐体など

特長：熱伝導性が高く、放熱性が高い、良好なプレス成型性（高い延性）



現在、軽量化による低コスト化を目的として  
**高強度化**が求められている。



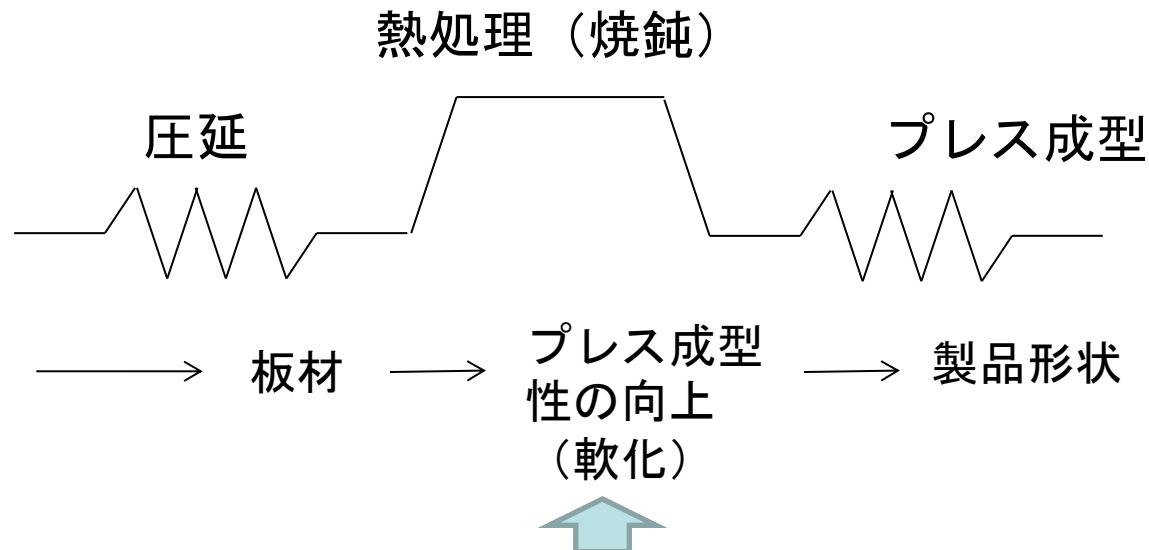
# 背景：（株）UACJとの共同研究

純アルミニウム系合金：A1200合金

化学組成(%)

Si+Fe	Cu	Mn	Zn	Ti	Al
< 1.0	< 0.05	< 0.05	< 0.1	< 0.05	99.0以上

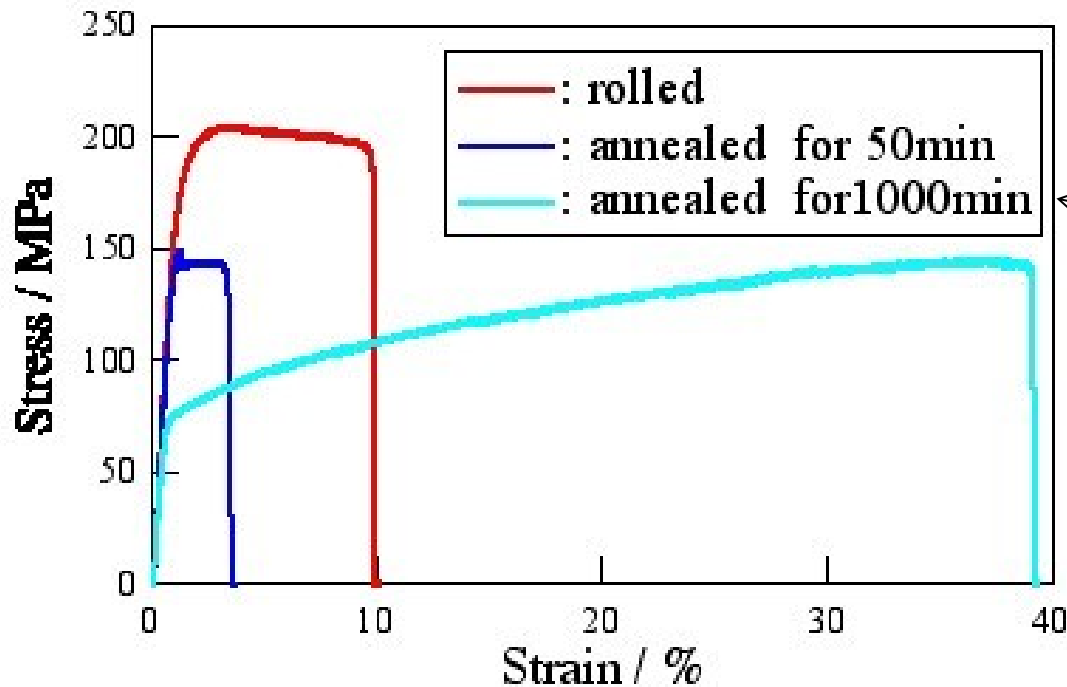
## 製品の製造工程



高強度化のためには焼鈍時間の短縮が考えられる



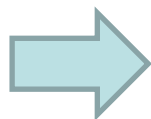
# 焼鈍の短時間化による延性の低下



← 従来製品の作製条件

焼鈍条件を1000min→50minに減らすと降伏強度は増加したが延性が大きく減少

A1200圧延材の523K焼鈍に伴う応力ひずみ曲線の変化

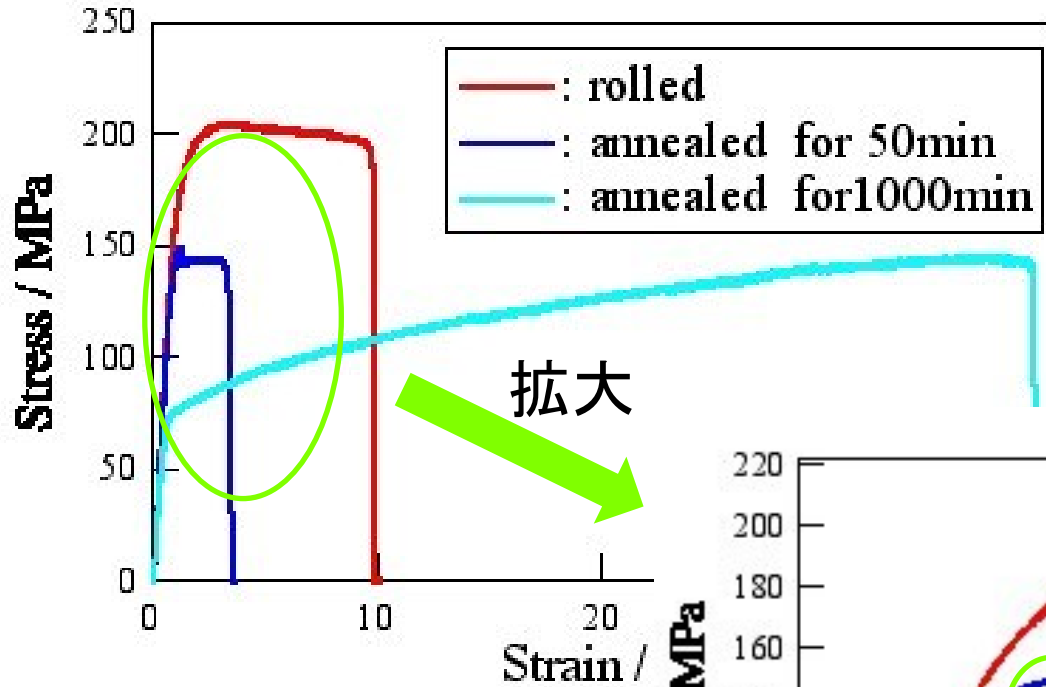


通常、圧延材に焼鈍を施すと、延性が増加するが50min焼鈍では延性がかえって低下

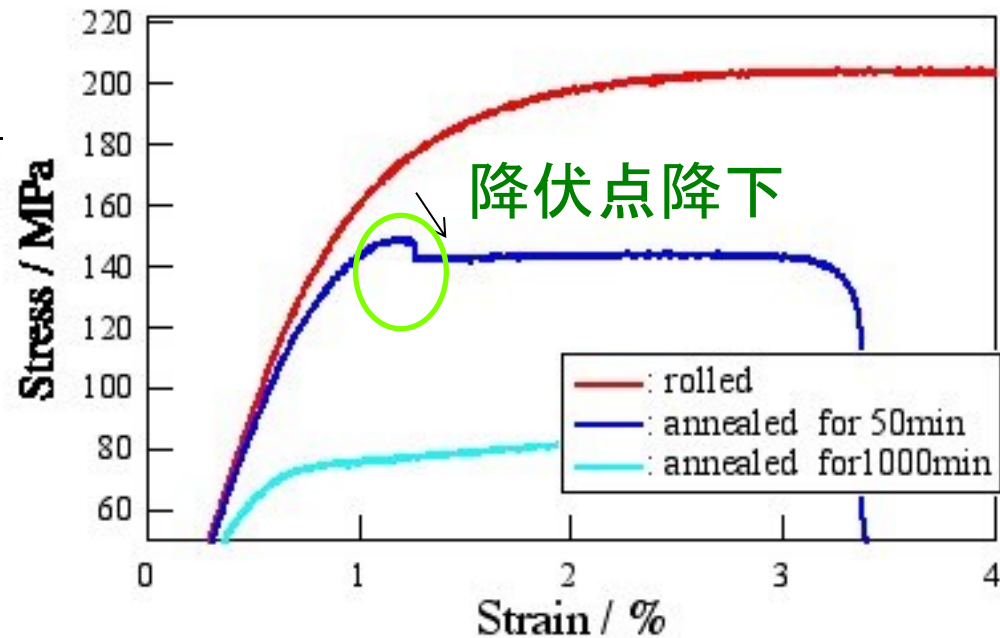
**従来の常識とは正反対の現象**



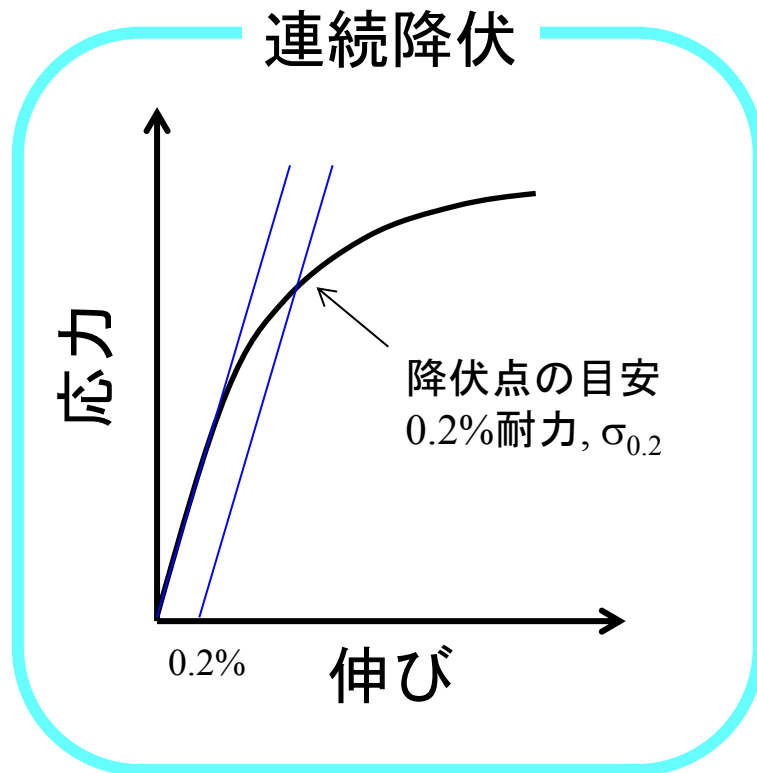
# 焼鈍の短時間化による延性の低下



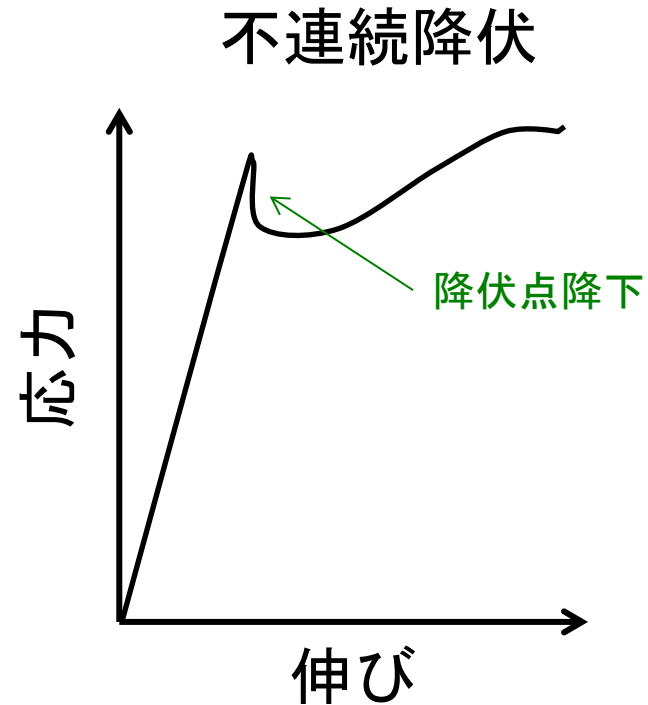
延性の低下  
↓  
降伏点降下現象の発現により  
局所変形が生じたことが原因



# アルミニウムの降伏点降下現象



アルミニウム合金



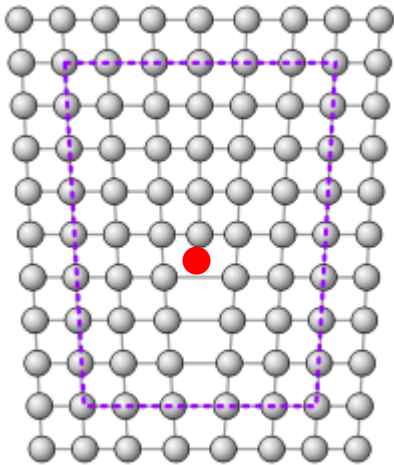
鉄鋼

どの教科書にも、アルミニウム合金は連続降伏し、鉄鋼のように降伏点降下現象をしめさない、と書いてある



# 鉄鋼の降伏点降下に関する理解

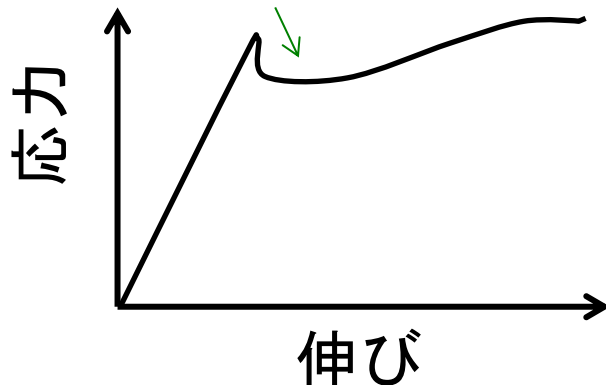
## コットレル雰囲気



鉄鋼

転位まわりに生じる格子ひずみを緩和するために  
溶質原子が転位近傍に侵入  
⇒ コットレル雰囲気の形成

コットレル雰囲気に転位が固着  
⇒ 不動転位化  
可動転位の減少



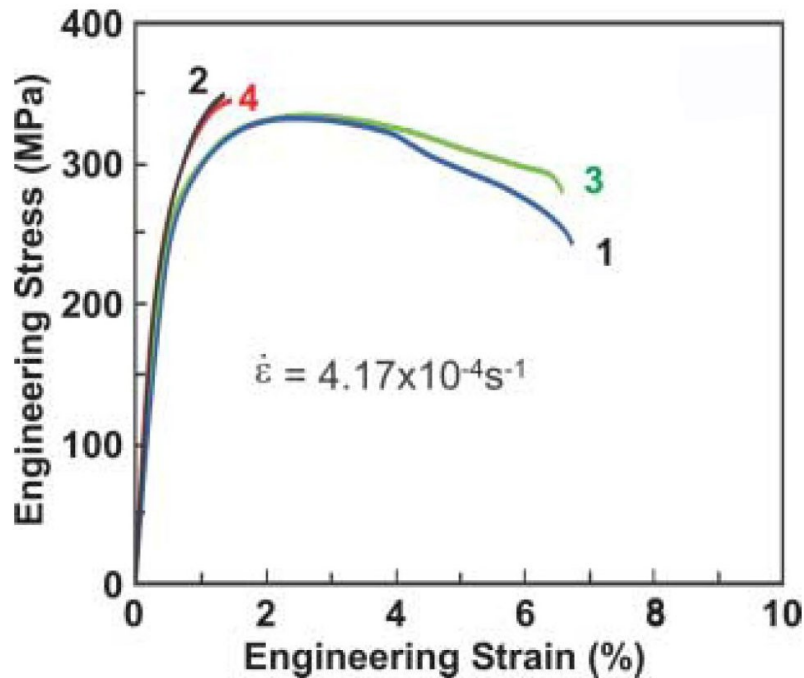
高応力でコットレル雰囲気から転位が離脱  
可動転位が急激に増加  
塑性変形が容易となるため強度低下  
(降伏点降下)



しかし、純アルミニウムにおける降伏点降下現象  
発現理由としては考え難い

# 超微細粒材が示す特異な力学現象

## 純アルミニウムの 加工軟化、焼鈍硬化



X. Huang, N. Hansen and N. Tsuji, Science Vol.312 (2006), 249.

粒径が300nm程度の99%純度アルミニウム合金において、強加工を施した後、焼鈍すると、延性が低下

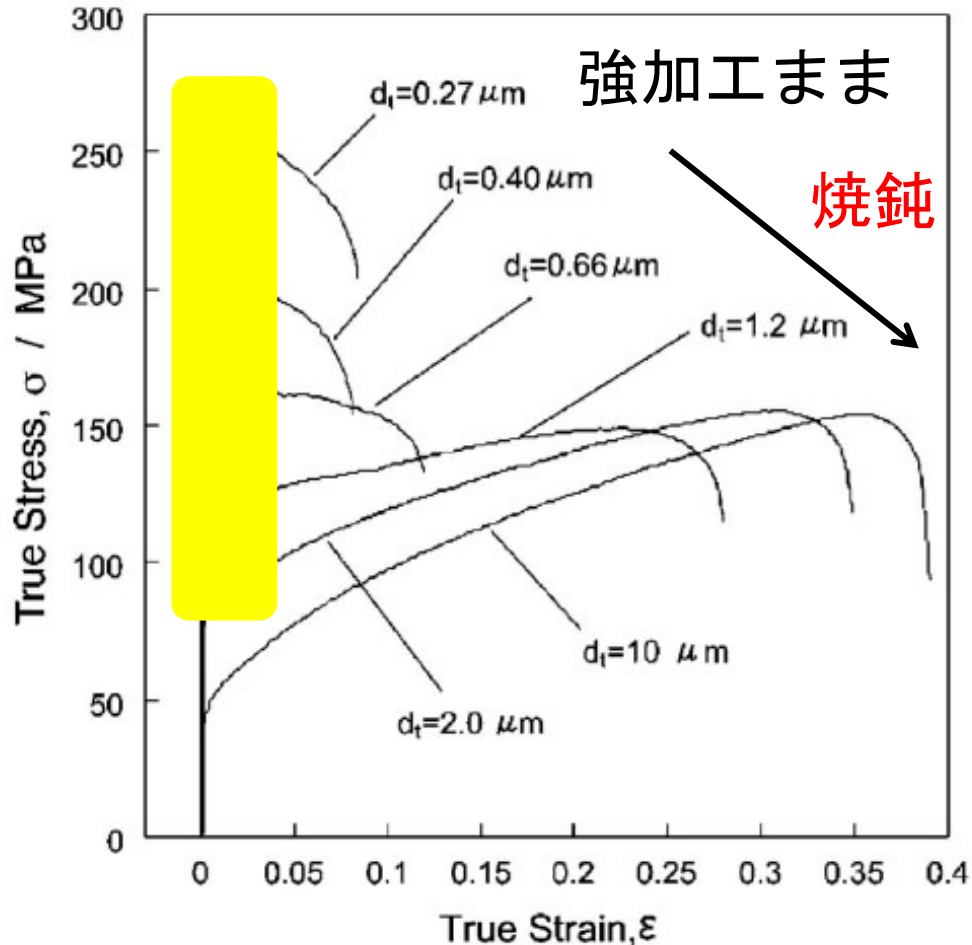
従来の常識と全く逆の現象

- 1 強加工まま
- 2 試料1を焼鈍
- 3 試料2を再度加工
- 4 試料3を再度焼鈍





# 超微細粒材の降伏点降下



アルミニウムは通常、降伏点降下を示さない



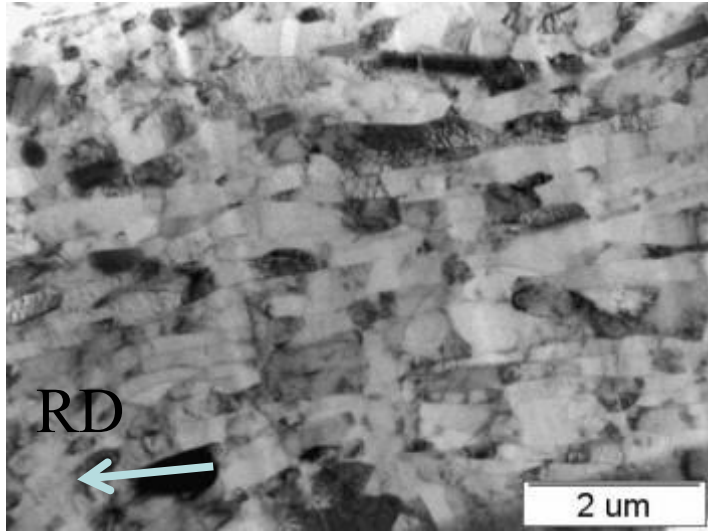
粒径 $2\mu\text{m}$ 以下の焼鈍材では降伏点降下を示す

N. Tsuji et al., Scripta Mater.,47(2002),893

99%Al-強加工材の低温焼鈍に伴う  
結晶粒径変化と応力ひずみ曲線の変化



# A1200合金の結晶粒組織



A1200 as-rolled  
粒径1 $\mu$ m程度

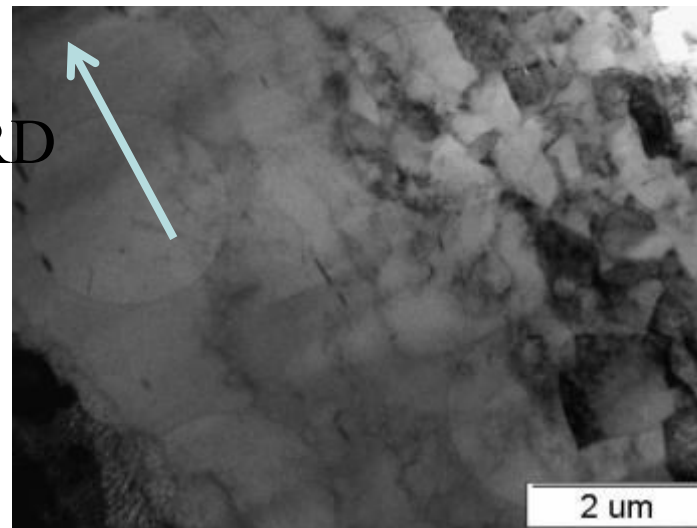
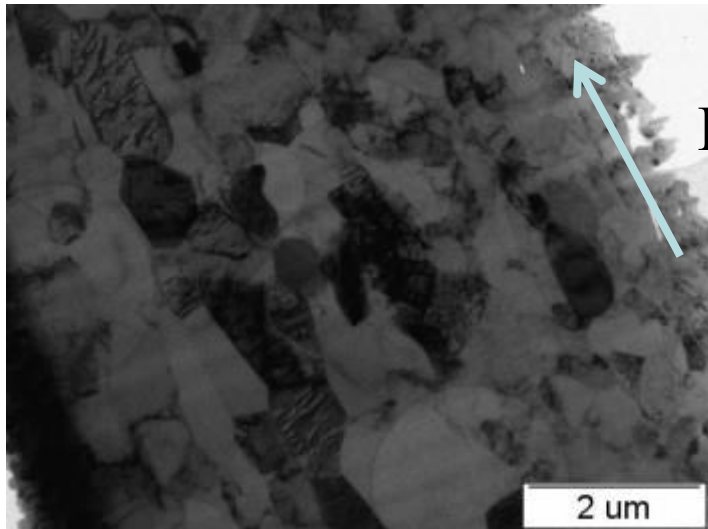
圧延材、50min焼鈍材は  
粒径2 $\mu$ m以下

粒径1.5~2 $\mu$ m程度

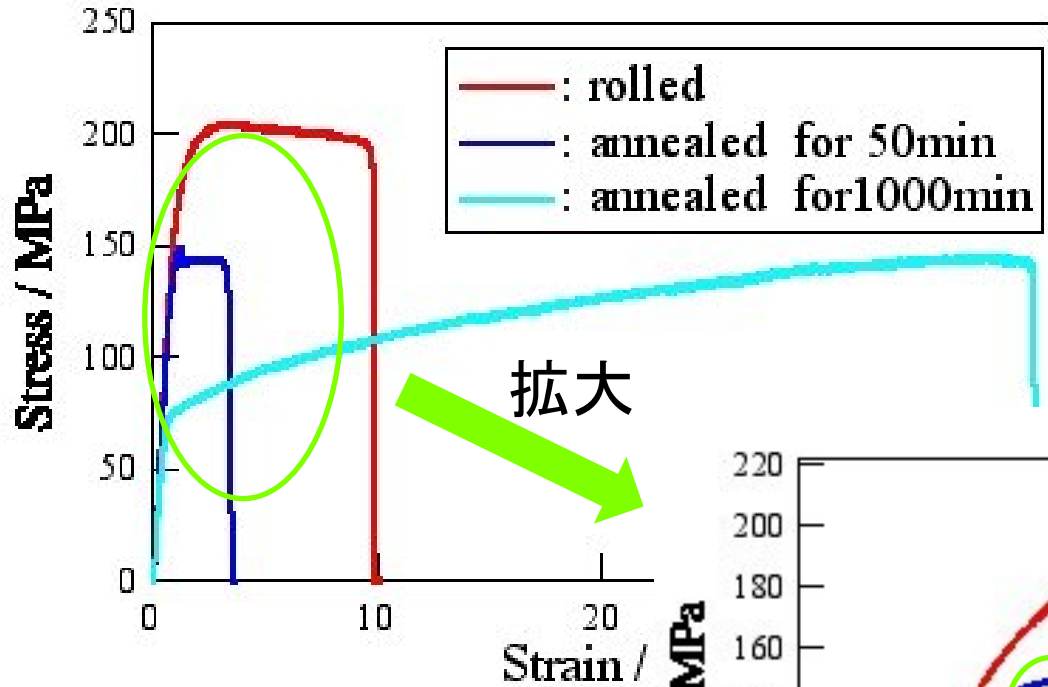
A1200 annealed at 523K for 50min

A1200 annealed at 523K for 1000min

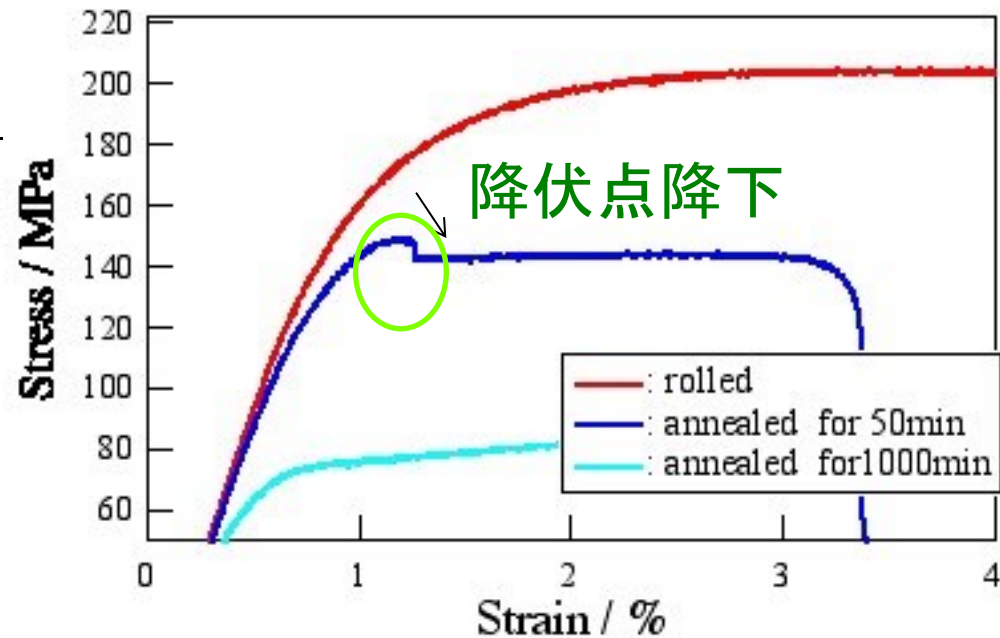
一部結晶粒が粗大化した部分再結晶組織



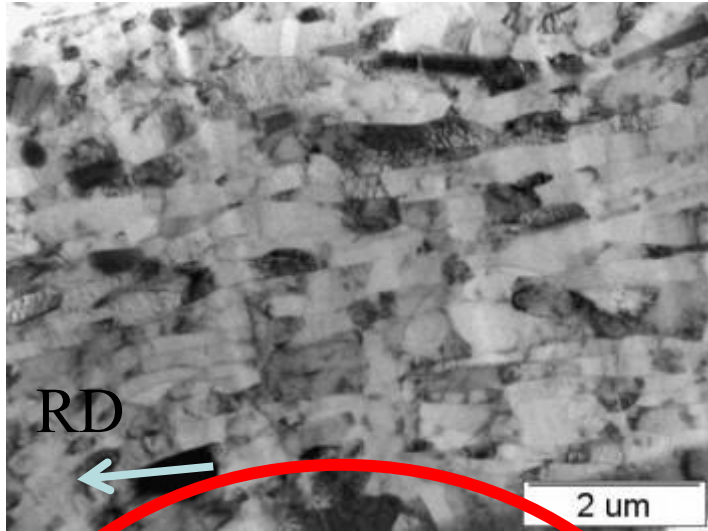
# 圧延まま/焼鈍材



但し、圧延まま材は  
降伏点降下を示さない  
↓  
結晶粒径以外にも原因が？



# 結晶粒径微細化による延性低下と 降伏点降下発現の関連



A1200 as-rolled

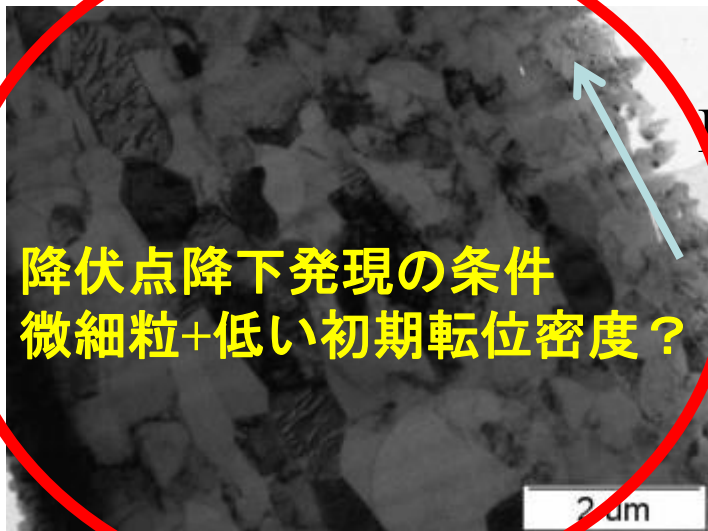
粒径1μm程度

粒径1.5~2μm程度

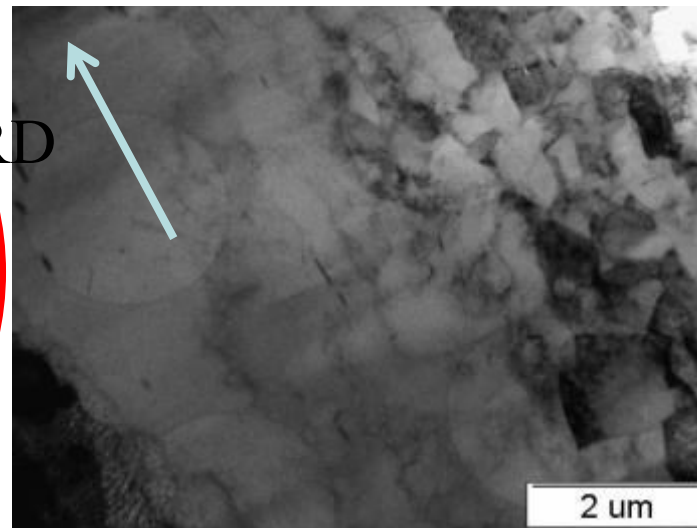
A1200 annealed at 523K for 50min

A1200 annealed at 523K for 1000min

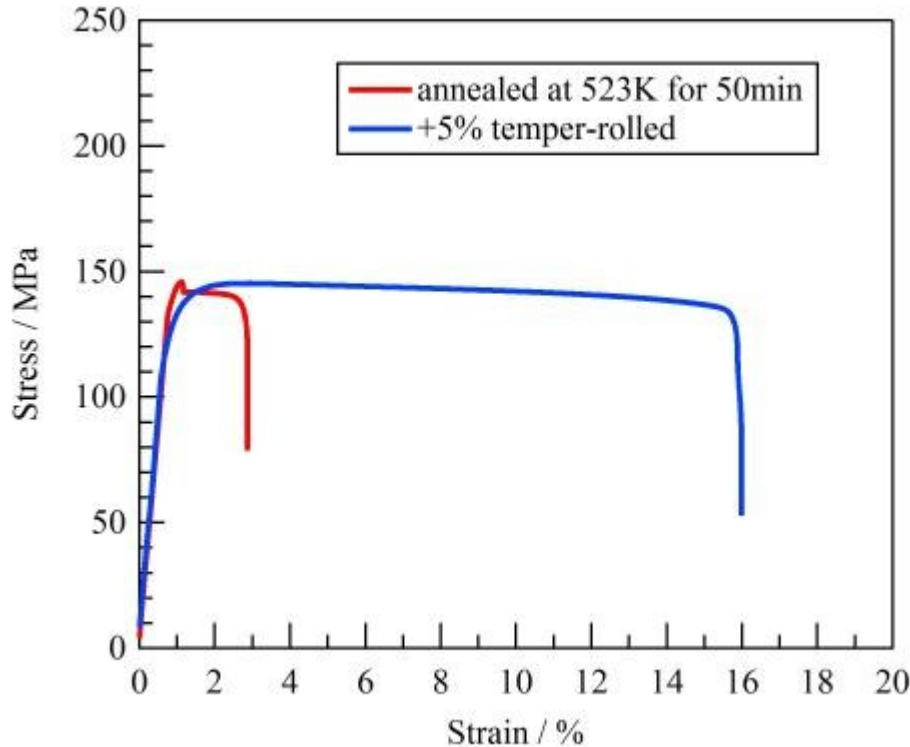
一部結晶粒が粗大化した部分再結晶組織



降伏点降下発現の条件  
微細粒+低い初期転位密度？



# 短時間焼鈍による延性低下と付加圧延



50min圧延材に5%の付加圧延を  
施し、初期転位密度を増加させる



延性回復  
降伏点降下現象が消失

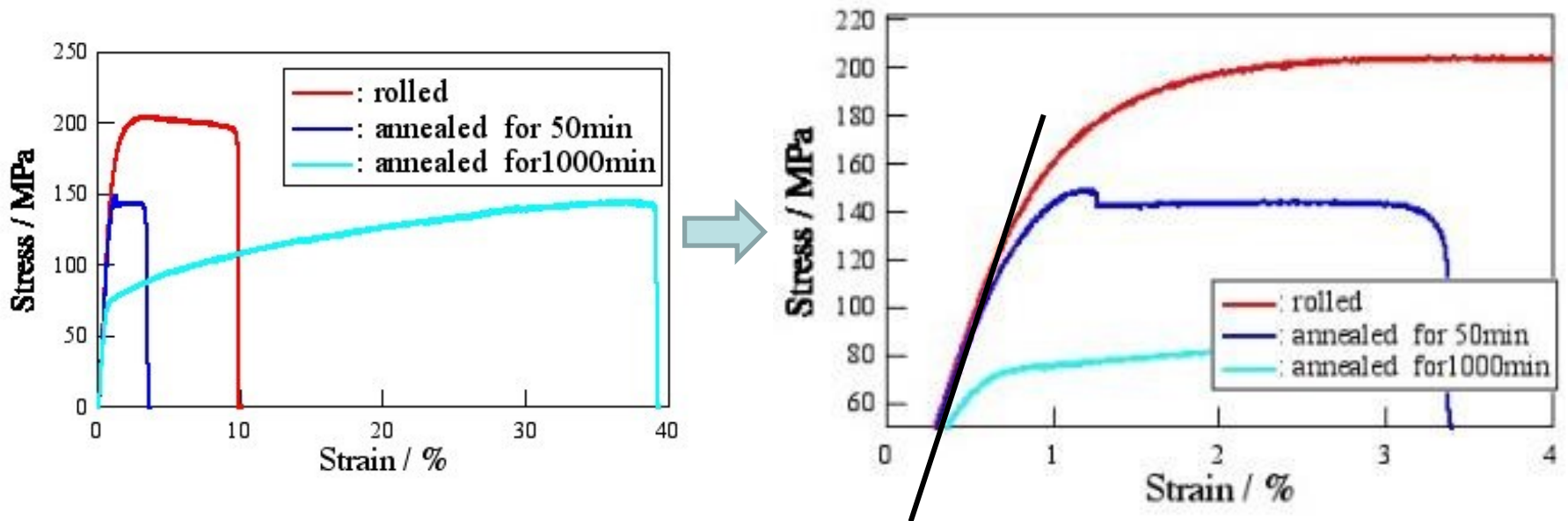
解決策は見つかったしかし、、

A1200圧延材の短時間焼鈍と付加圧延による  
応力ひずみ曲線の変化

何故、**微細粒**+**低初期転位密度**、  
この条件がそろえば降伏点降下が生じるのか？

# 純アルミニウムの降伏点降下の特徴

- 結晶粒が $2\mu\text{m}$ 以下 + 初期転位密度が低い  
この二つの条件がそろった時に生じやすい
- 降伏点前から応力-ひずみ曲線が寝ている



これらの現象が説明できる理論が必要

# 目的

---

結晶粒径、初期転位密度が

引張変形中の転位密度変化に及ぼす影響と  
機械的性質の関係を明らかにする



純アルミニウムの短時間焼鈍材において

降伏点降下現象が生じる理由を明らかにする

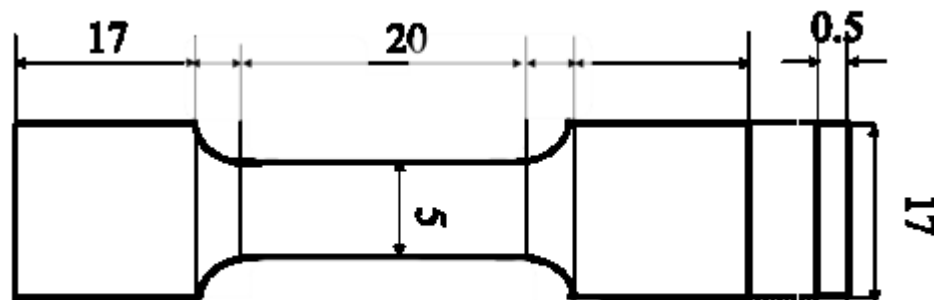
# In-situ XRD測定

SPring-8 BL19B2 (25keV,  $\lambda=0.491 \text{ \AA}$ )

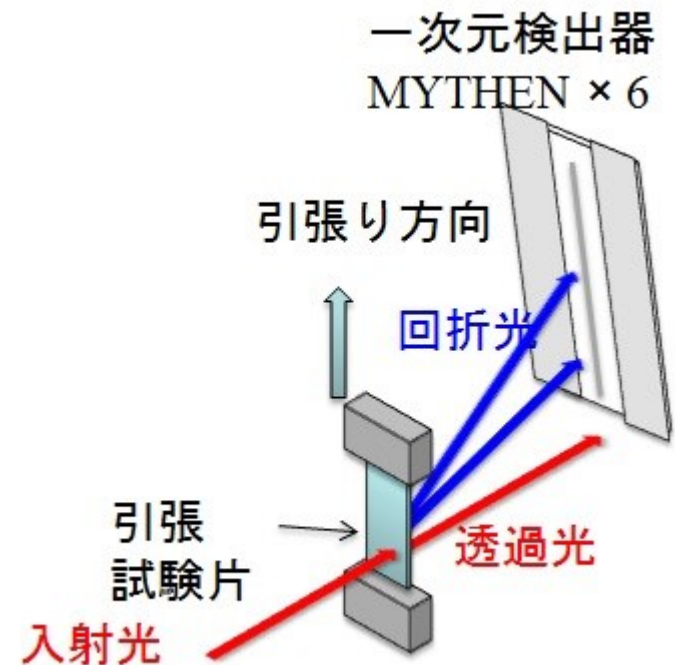
測定回折ピーク (111), (200), (220), (311), (222), (331), (420), (422), (333)

時間分解能 : 2s

初期ひずみ速度 :  $3.3 \sim 6.7 \times 10^{-4} / \text{s}$



代表的な引張試験片形状(mm)



実験の模式図





# In-situ XRD測定

SPring-8 BL19B2 (25keV,  $\lambda=0.491 \text{ \AA}$ )

測定回折ピーク (111), (200), (220), (311), (222), (331), (420), (422), (333)

時間分解能 : 2s

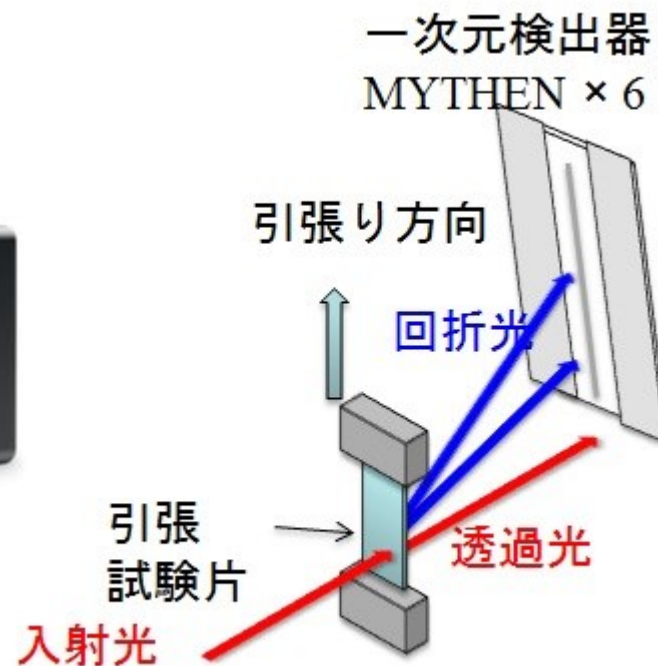
初期ひずみ速度 :  $3.3 \sim 6.7 \times 10^{-4} / \text{s}$



Huber回折計



DECTRIS製  
一次元検出器  
MYTHEN



実験の模式図



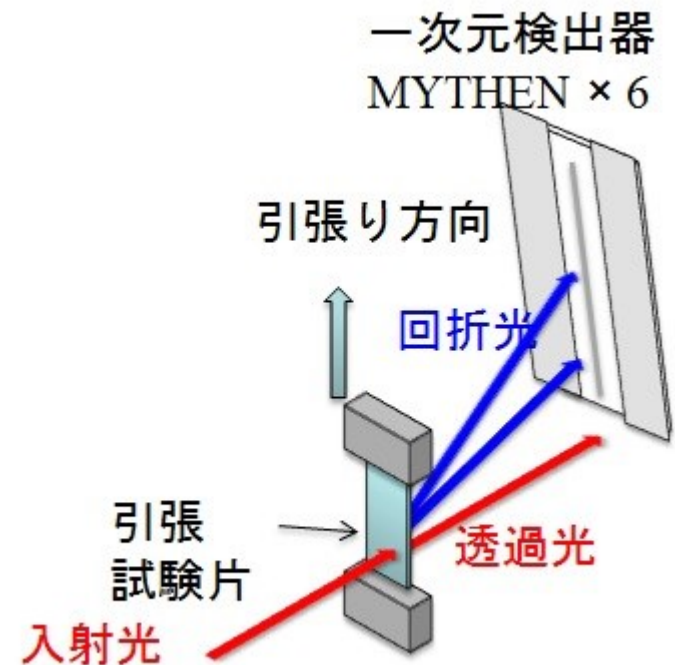
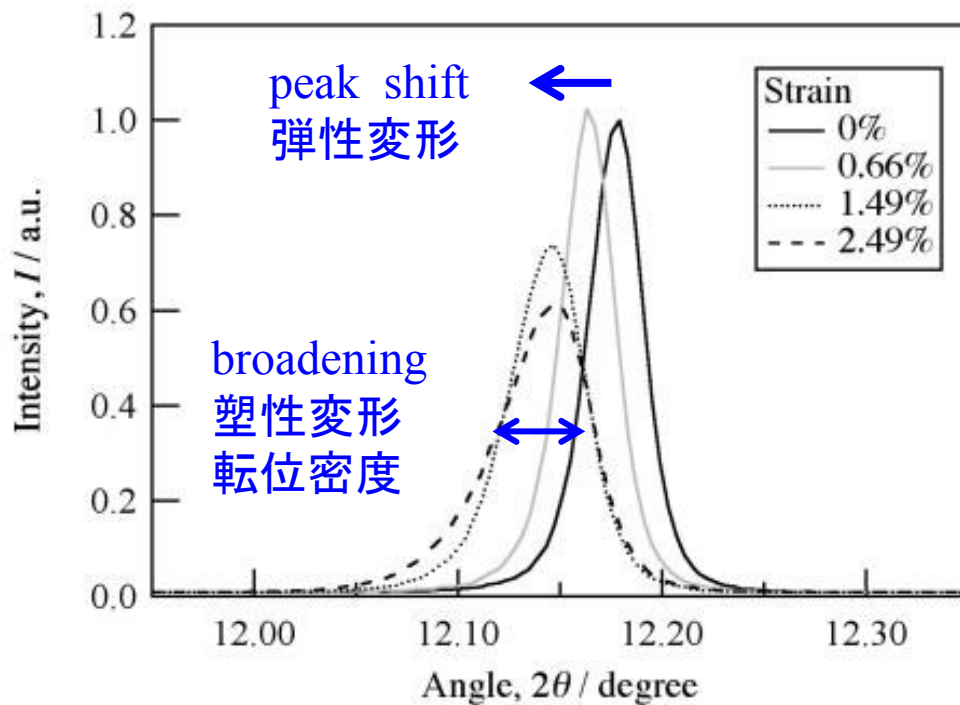
# In-situ XRD測定

SPring-8 BL19B2 (25keV,  $\lambda=0.491 \text{ \AA}$ )

測定回折ピーク (111), (200), (220), (311), (222), (331), (420), (422), (333)

時間分解能 : 2s

初期ひずみ速度 :  $3.3 \sim 6.7 \times 10^{-4} / \text{s}$



実験の模式図



# 転位密度算出法

## Williamson-Hall法

$$\frac{\Delta 2\theta \cos\theta}{\lambda} = 2\varepsilon \frac{\sin\theta}{\lambda} + \frac{0.9}{d}$$

$\varepsilon$  : 結晶子内の不均一ひずみ

$d$  : 結晶子径

$b$  : バーガスベクトル

$\Delta 2\theta$  : 半値幅

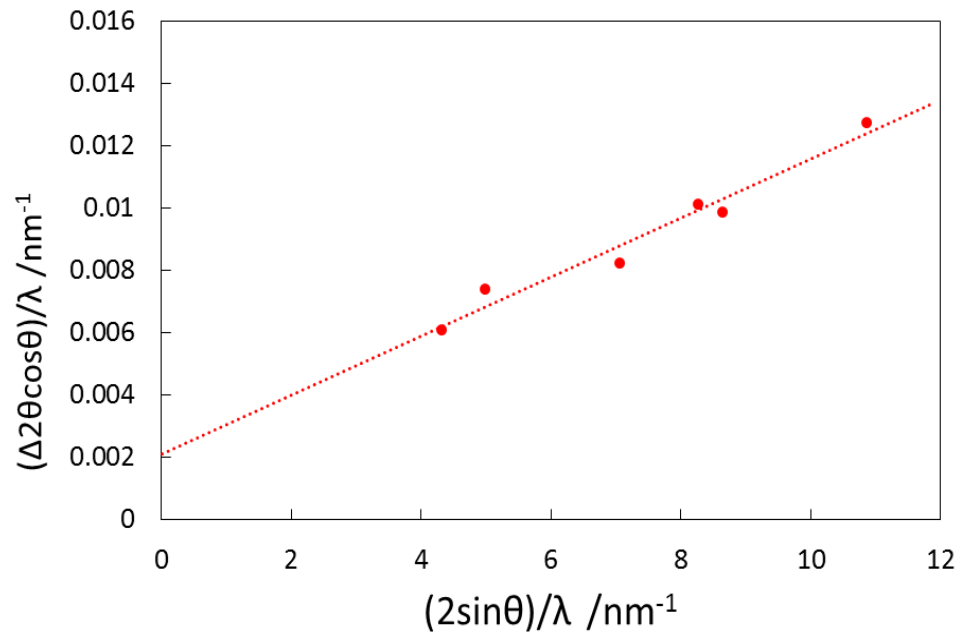
$\lambda$  : X線の波長



傾き  $\varepsilon$  が  
転位密度に対応

転位密度

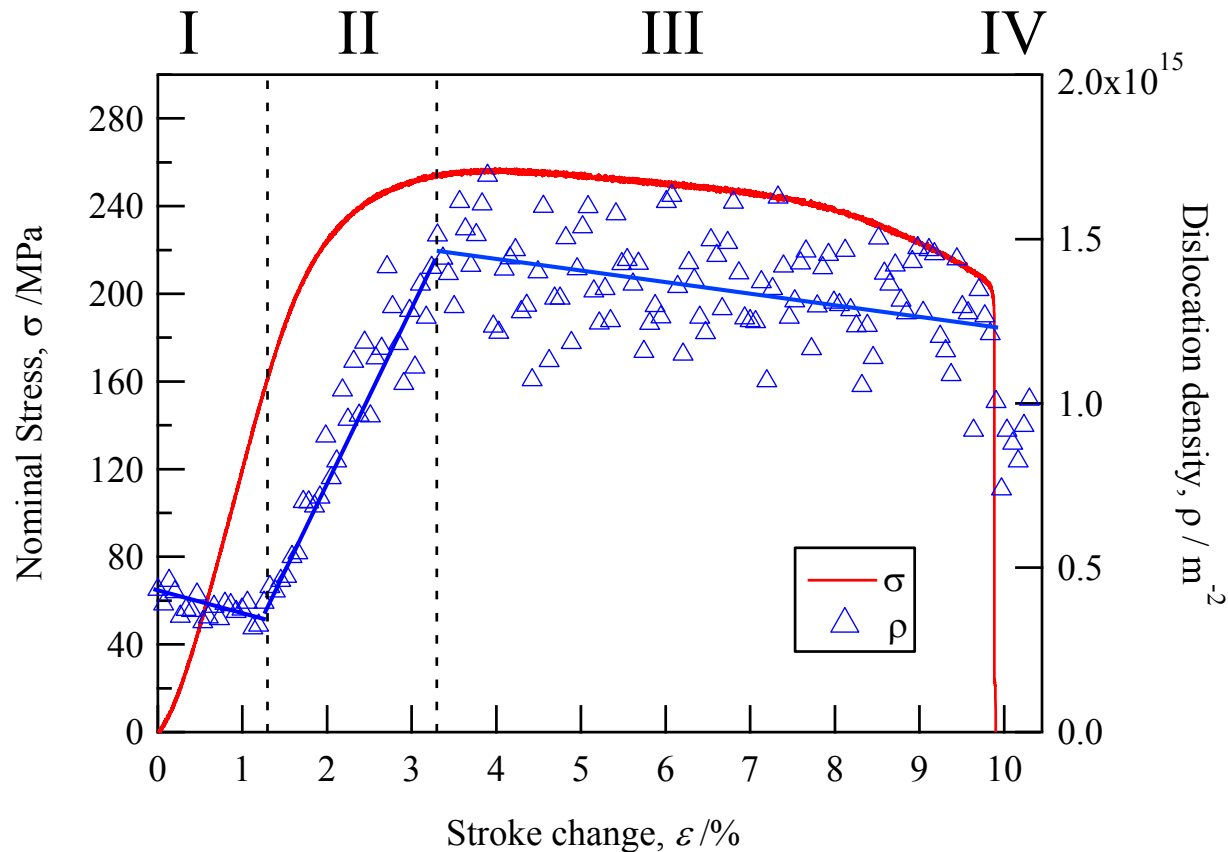
$$\rho = 16.1 \times \left(\frac{\varepsilon}{b}\right)^2$$



2N-Al圧延材のWilliamson-Hall plot



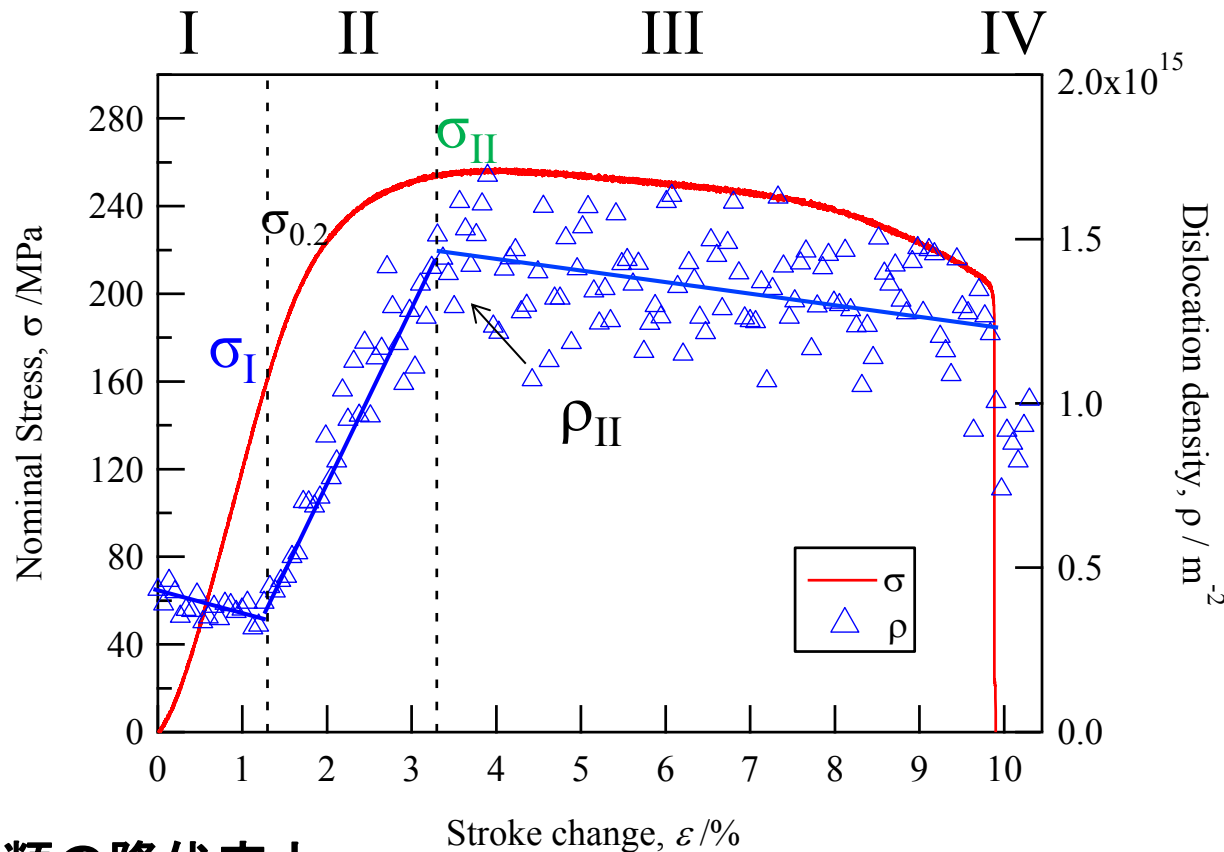
# 微細粒純Alにおける転位密度変化( $d=260\text{nm}$ )



- stage I : ほぼ弾性変形 領域
- stage II : 弾性+塑性変形 領域
- stage III: ほぼ塑性変形 領域
- stage IV: 破断に伴う除荷による転位密度減少



# 微細粒純Alにおける転位密度変化( $d=260\text{nm}$ )



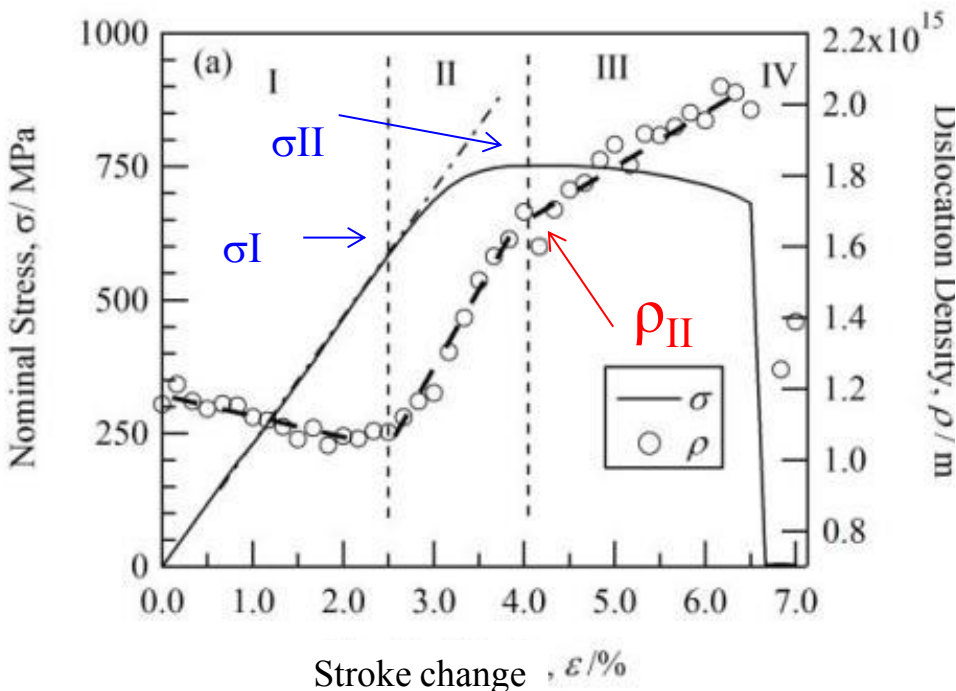
## 二種類の降伏応力

1.  $\sigma_I$  : 転位が増殖しはじめ、塑性変形が開始される応力
2.  $\sigma_{II}$  : 塑性変形のみで変形が進行するために必要な転位量  $\rho_{II}$  まで増加し、ほぼ塑性変形のみで変形が進行可能となった応力

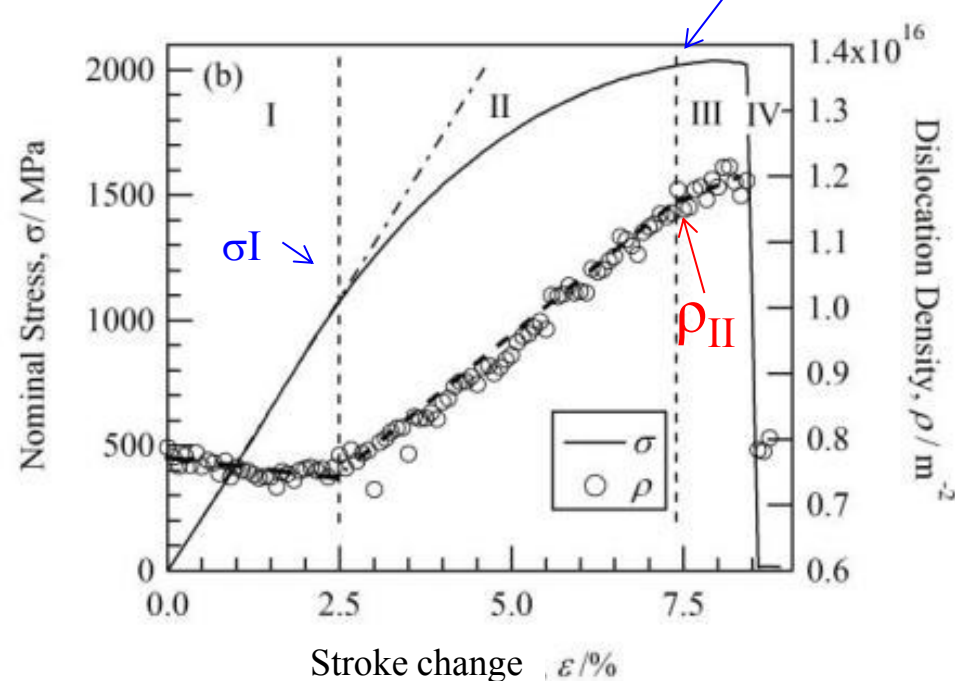


# 微細粒Niにおける転位密度変化

ARB-Ni (粒径=270nm)



nc-Ni (粒径=52nm)

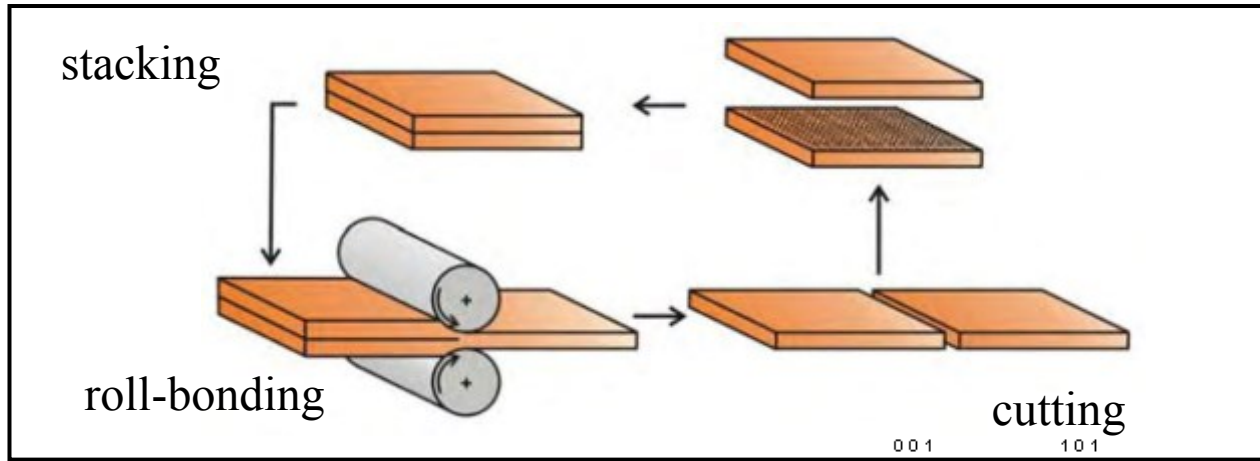


Niにおいても $\rho_{II}$ が明瞭に観察され、  
In-situ XRDにより $\sigma_I$ ,  $\sigma_{II}$ が求められる



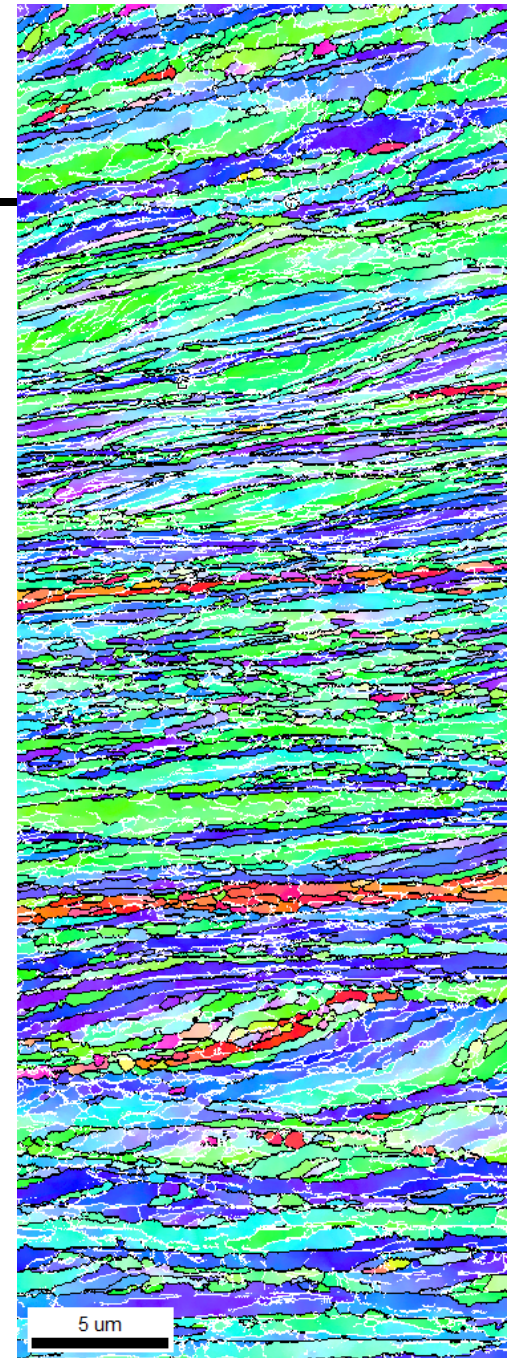
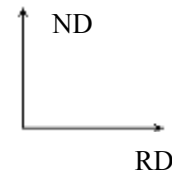
# ARB-Ni

- 6 cycles of ARB at room temperature

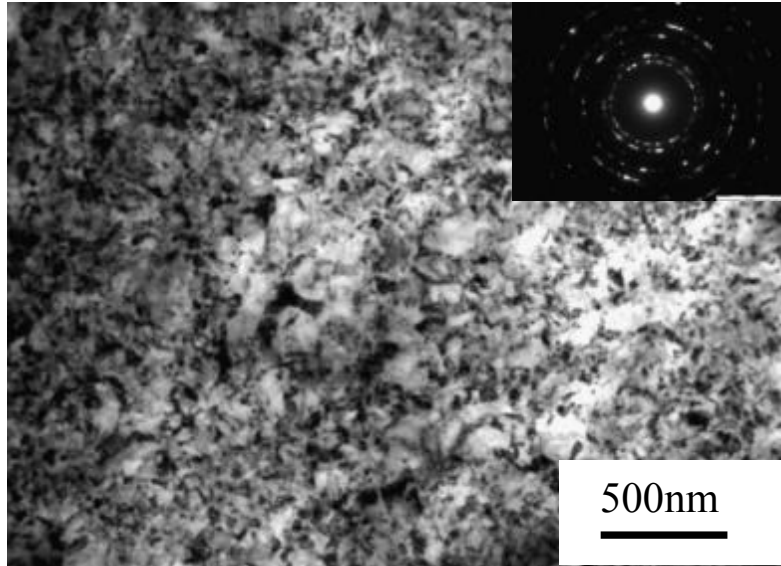


Schematic of  
ARB

Grain size  
270nm

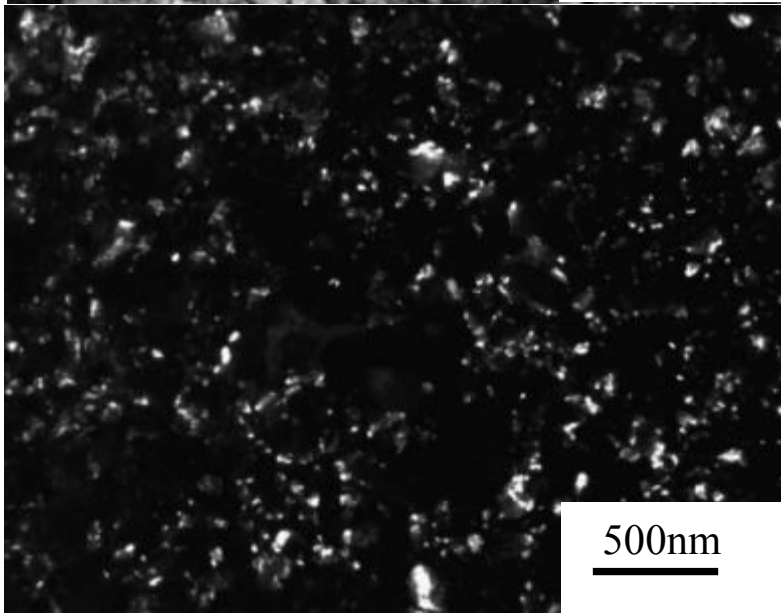
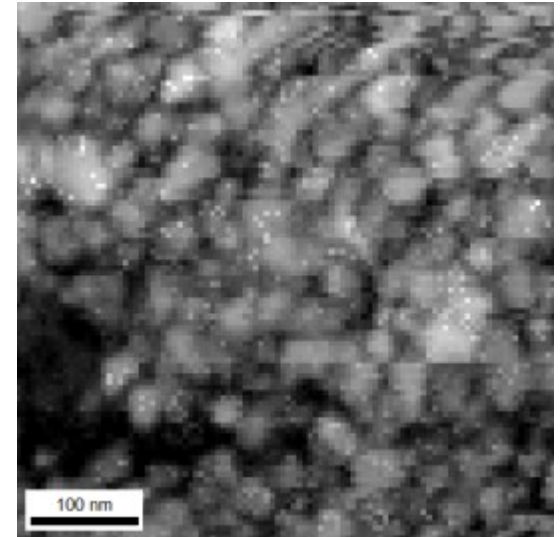


# Electrodeposited Ni



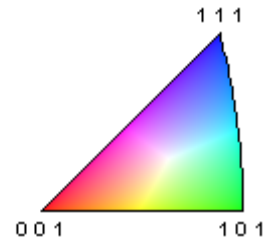
nc-Ni  
( $d=52\text{nm}$ )

TEM  
bright field image

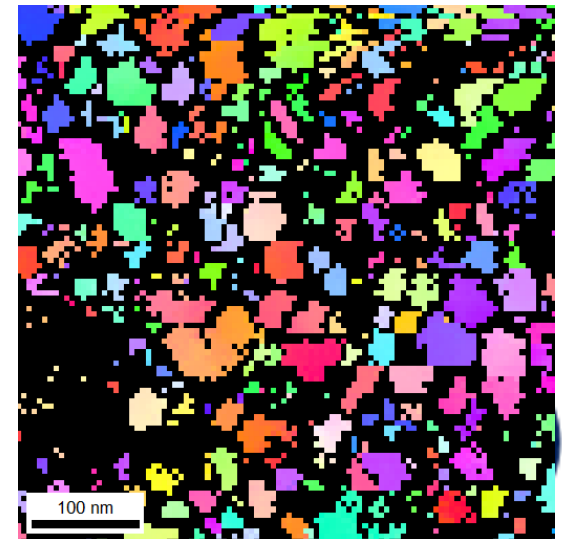


TEM  
dark field image

Ni

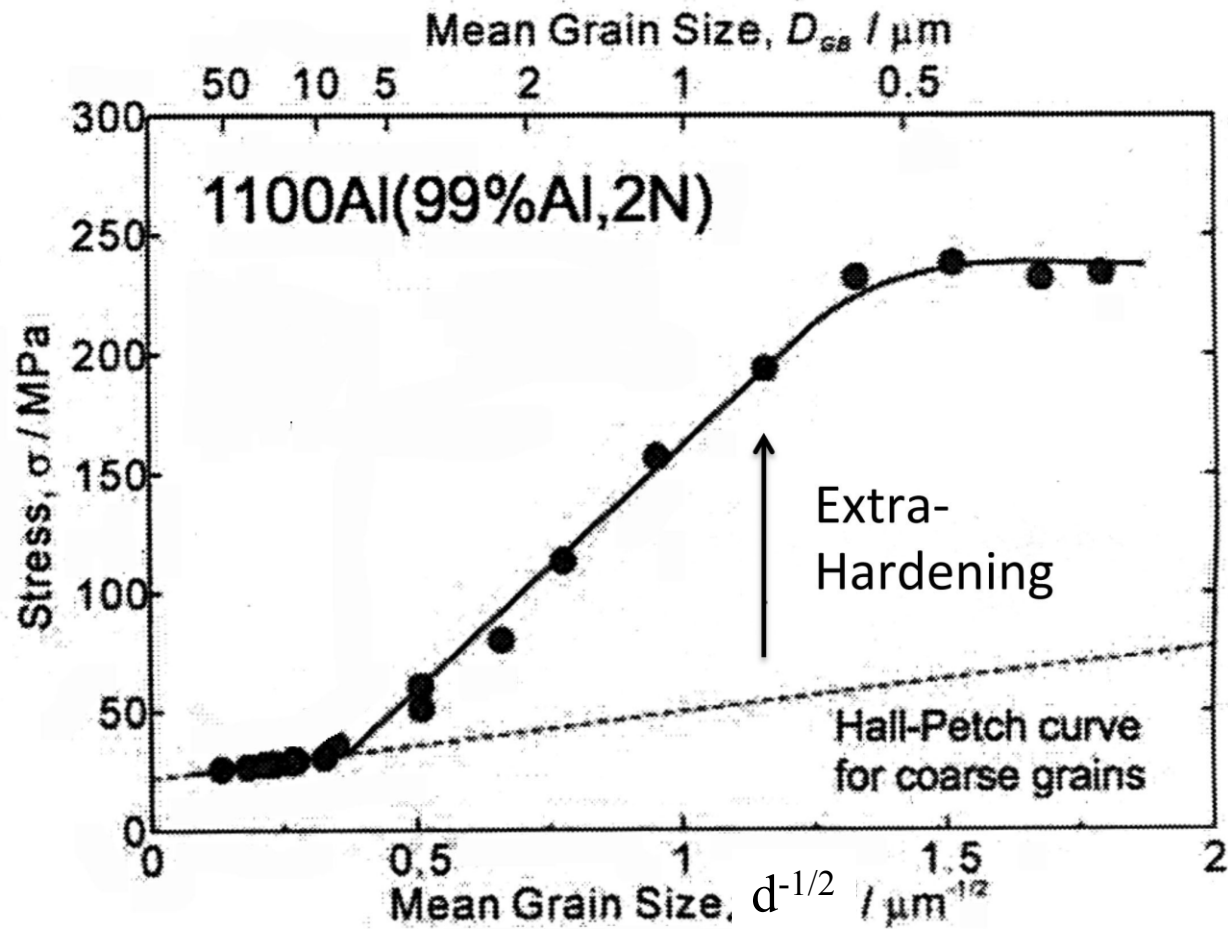


SEM/TKD  
TD-IPF





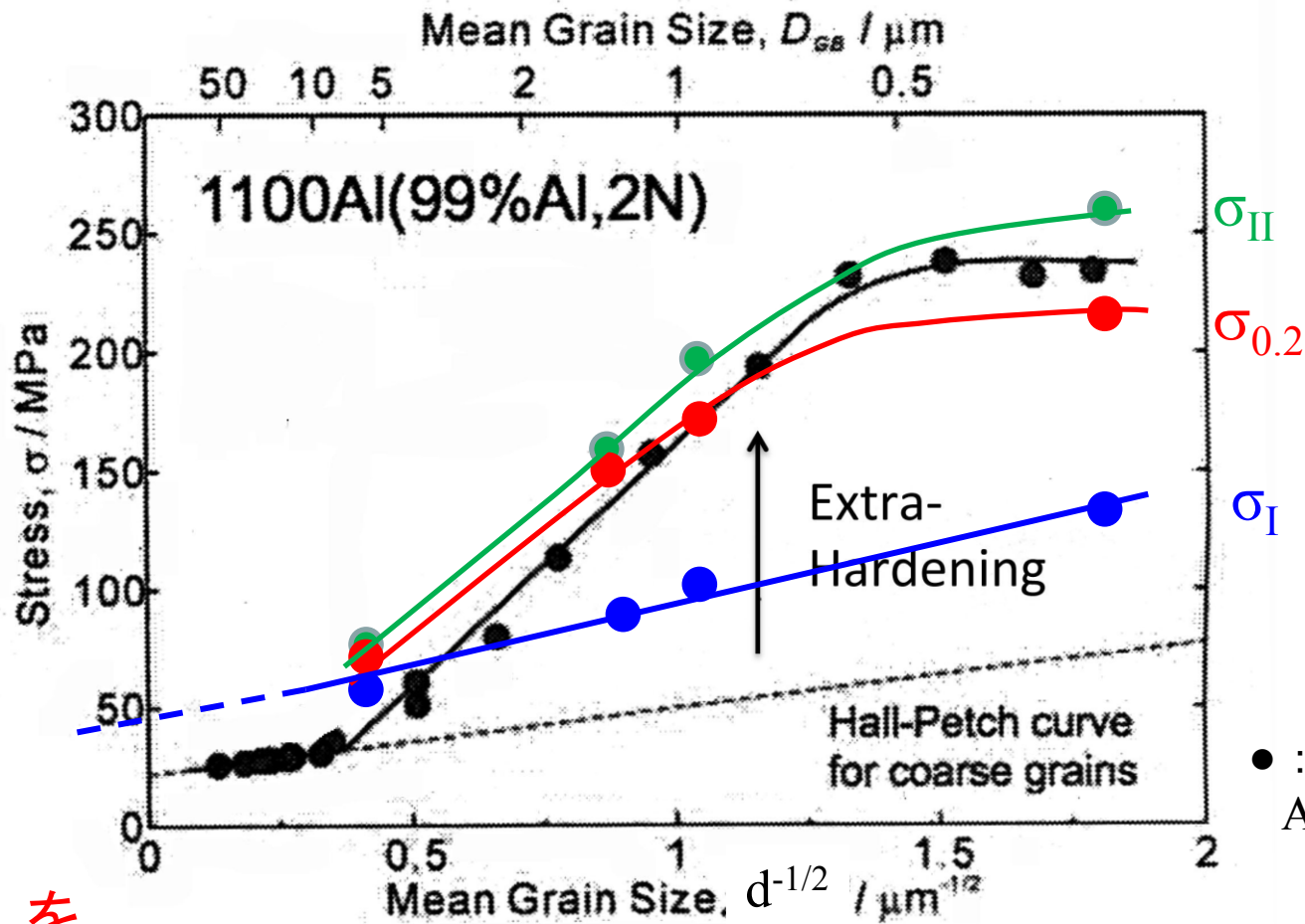
# 純AlにおけるHall Petchプロット



● : Kamikawa et al.  
A1100合金



# 純Alにおける $\sigma_I$ , $\sigma_{II}$ , $\sigma_{0.2}$ の粒径変化



● : Kamikawa et al.  
A1100合金

$\sigma_{0.2}$ は $\sigma_{II}$ を  
良く評価する  
パラメータ

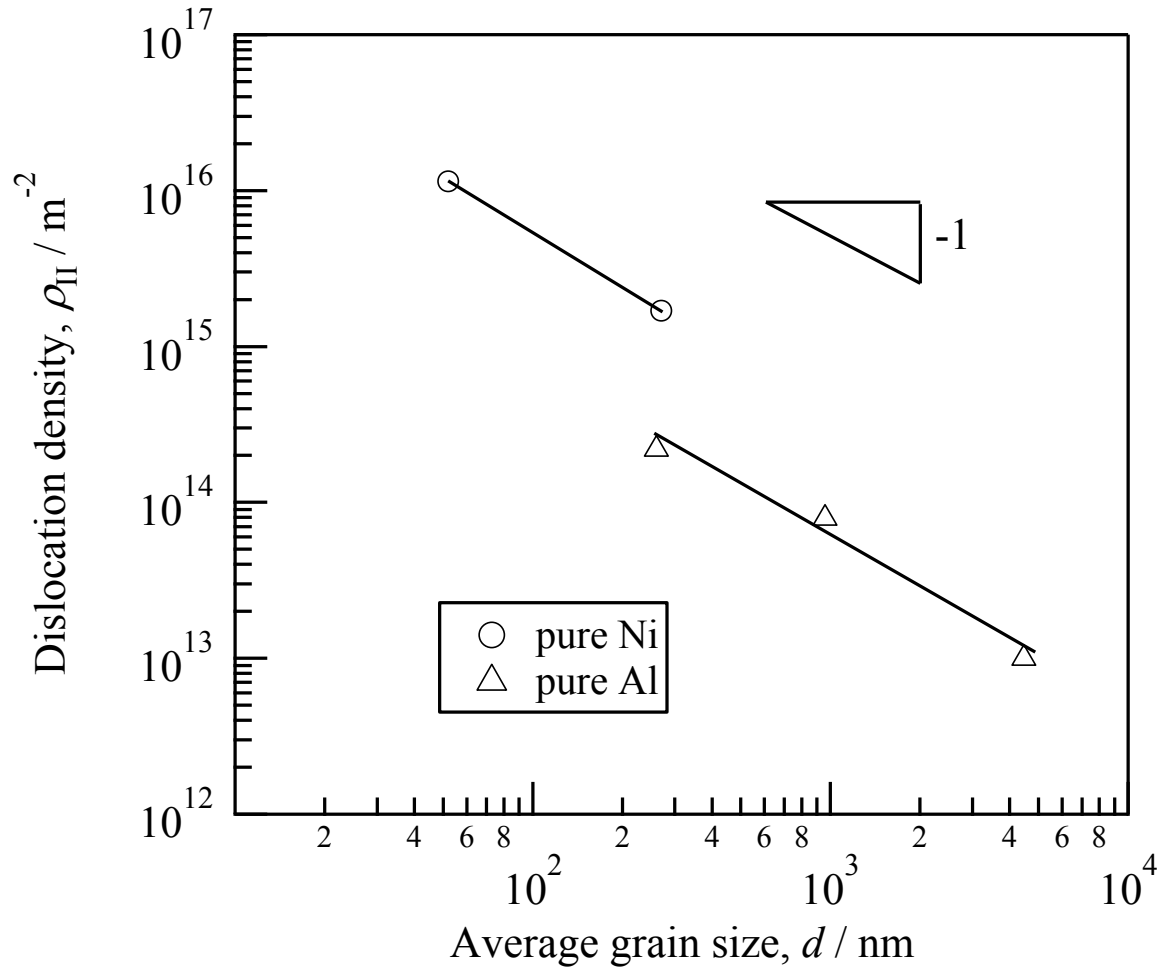
粗大粒材では  
微細粒材では

$$\sigma_{II} \doteq \sigma_{0.2} \doteq \sigma_I$$

$$\sigma_{II} \doteq \sigma_{0.2} > \sigma_I$$



# $\rho_{II}$ の粒径変化



$$\rho_{II} \propto 1/d$$

結晶粒が微細化すると  
塑性変形に必要な転位密度が増加



Stage IIの拡大  
 $\sigma_I$ と $\sigma_{II}$ の差が増加

# $\rho_{II}$ の意味

塑性変形によるせん断変形量と  
転位密度の関係

$$\gamma = \rho b x$$

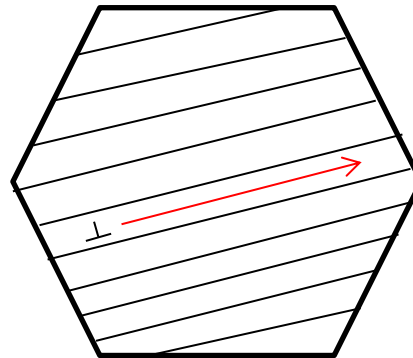
$\gamma$  : せん断ひずみ

$\rho$  : 転位密度

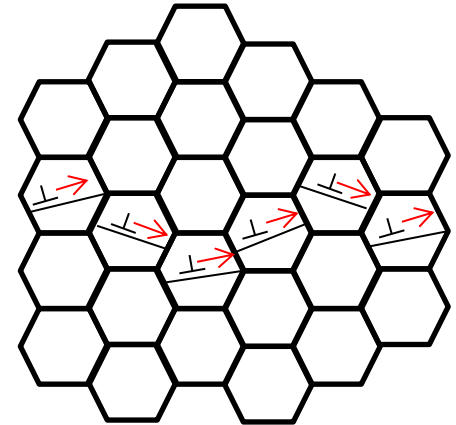
$x$  : 平均移動距離

$b$  : バーガースベクトル

粗大粒材



微細粒材

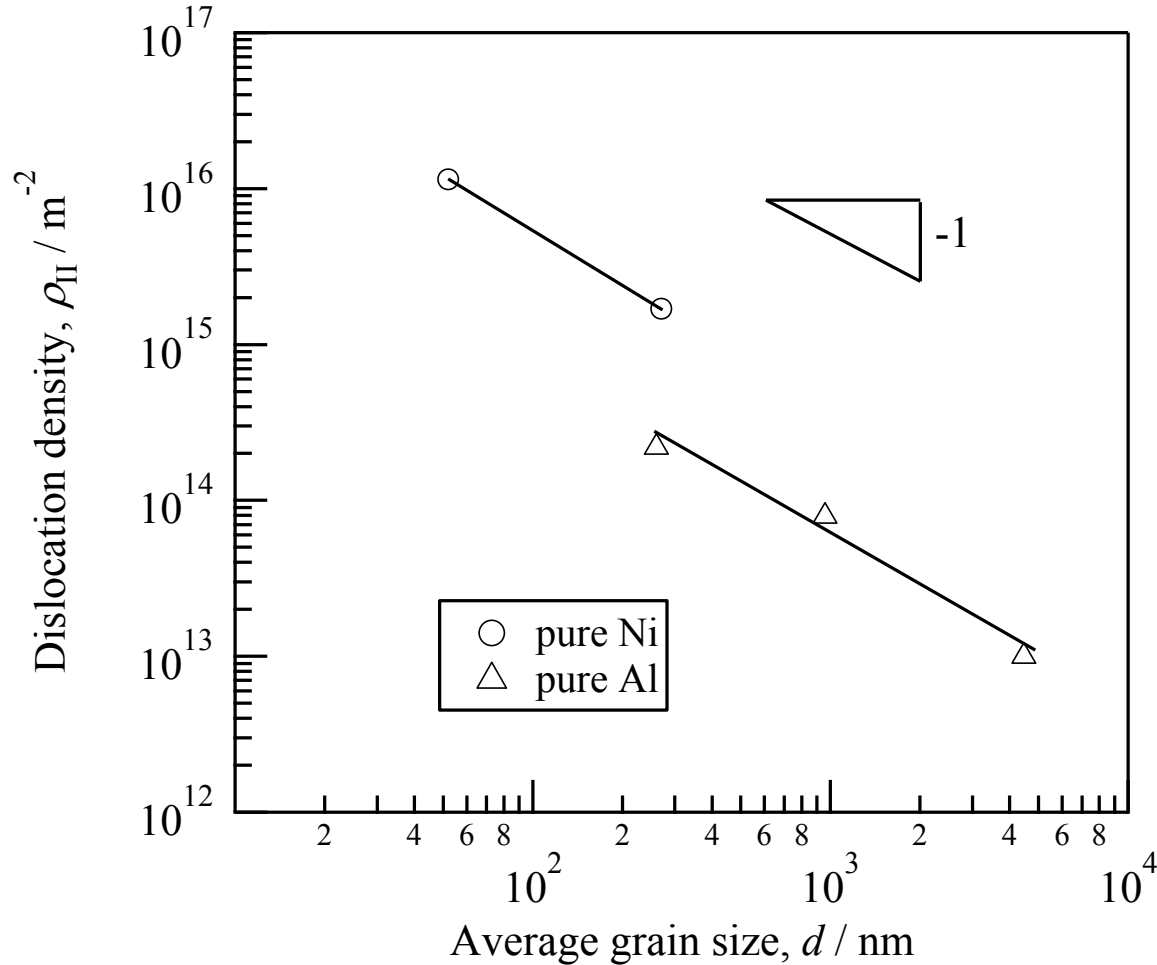


$d$ の減少によって $x$ は減少する

微細粒材では、塑性変形に必要な転位密度 $\rho_{II}$ は  
大きくなる

$$x \propto d, \gamma, b = \text{constant} \Rightarrow \rho \propto 1/d$$

# $\rho_{II}$ の粒径変化



$$\rho_{II} \propto 1/d$$



Bailey-Hirschの式

$$\Delta\sigma \propto \rho^{1/2}$$

に代入



Hall-Petchの式

$$\Delta\sigma \propto d^{-1/2}$$

$\sigma_{II}$ に関し、結晶粒微細化強化は転位強化  
Ashbyらの理論と一致

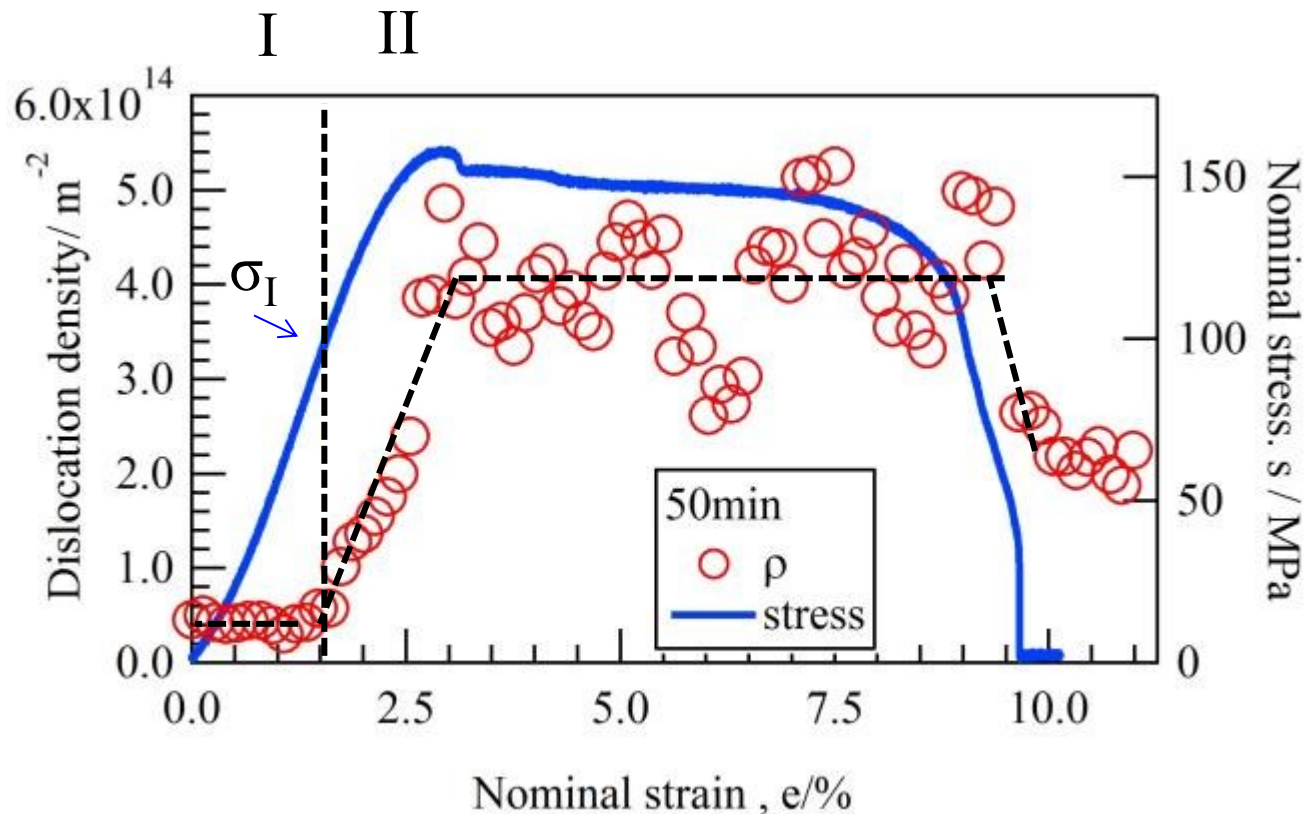


# 結晶粒微細化が転位密度変化に及ぼす影響

- ・ 引張変形の進行に従い、転位密度は四段階を経て変化する。
- ・ In-situ XRD測定から $\sigma_I$ ,  $\sigma_{II}$ ,  $\rho_{II}$ を求めることが出来る。
  - $\sigma_I$  : 転位源が活性化し、転位密度の急激な増加が開始され  
塑性変形量が増加しはじめる応力
  - $\rho_{II}$  : 塑性変形のみで変形が進行するために必要な転位密度
  - $\sigma_{II}$  : ほぼ塑性変形のみで変形が進行しはじめる応力
- ・ 0.2%耐力 $\sigma_{0.2}$ は $\sigma_{II}$ を概ね良く評価している。
  - 粗大粒材 ( $d > \text{数}\mu\text{m}$ ) では :  $\sigma_{II} \doteq \sigma_{0.2} \doteq \sigma_I$
  - 微細粒材 (数百nm  $< d < \text{数}\mu\text{m}$ ) :  $\sigma_{II} \doteq \sigma_{0.2} > \sigma_I$
- ・  $\rho_{II} \propto 1/d$ 
  - 微細粒材では塑性変形に必要な転位密度が多いため、stage IIが広くなり、 $\sigma_{II}$ と $\sigma_I$ の差が大きくなる。
  - 微細粒材の機械特性を理解するために必要



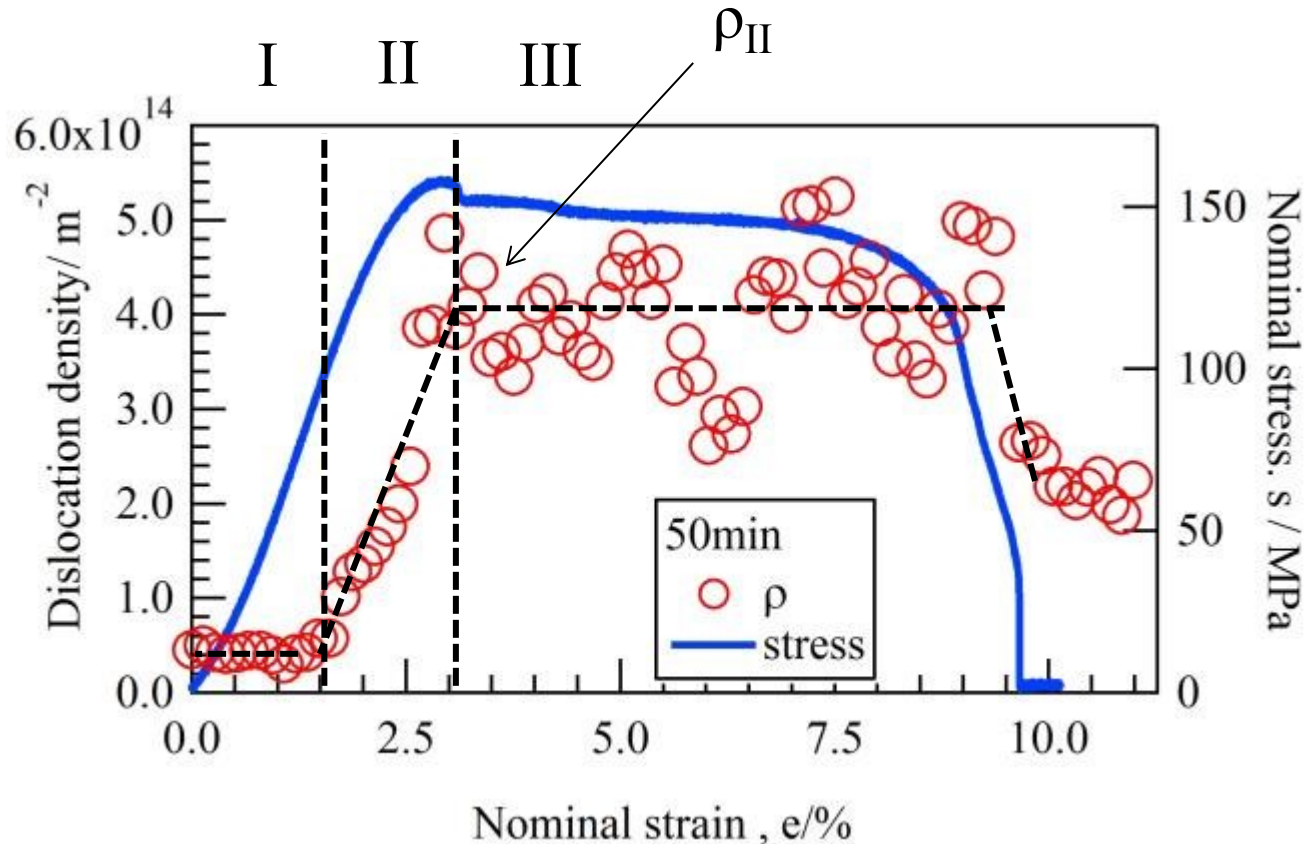
# 短時間焼鈍材の転位密度変化



降伏点降下が生じるよりもかなり低ひずみ側から転位は増殖  
→ 可動転位の急激な増加が降伏点降下の原因ではない



# 短時間焼鈍材の転位密度変化



$\rho_{II}$  を示す付近で降伏点降下が生じる

→ つまり、ほぼ塑性変形のみで変形が進行し始める時に生じる

