# 純銅の動的回復・動的再結晶を伴う変形中の転位密度の その場観察および ISV 型構成式への適用

長岡 佑磨 伊東 正登 谷口 兼一

In-situ Observation of Dislocation Density in Pure Copper during Deformation with Dynamic Recovery and Dynamic Recrystallization and Its Application to ISVs Constitutive Equations

Yuma NAGAOKA Masato ITO Kenichi YAGUCHI

#### Abstract

Constitutive equations based on internal state variables (ISVs) are used to predict flow stresses and microstructures during hot working. In particular, the constitutive equation based on dislocation density has been used in practice in manufacturing. However, since it is generally difficult to measure dislocation density during hot working, various parameters used in ISVs constitutive equations are obtained by fitting stress-strain curves, and dislocation density is only one of the mediating variables. In this study, we obtained the dislocation density during hot deformation using neutrons and compared the ISVs constitutive equation with the conventional method in which the parameters are determined from stress-strain curves and the method in which the parameters are determined from measured values. The results show that the dislocation density predicted by the conventional method of fitting by stress-strain curves may deviate from the actual dislocation density of the material, and that the dislocation density can be predicted accurately when the parameters are determined using actual measurements. We also compared the predicted and measured dislocation densities during dynamic recrystallization in Yanagimoto's dynamic recrystallization model, and showed that the measured dislocation densities can be applied to the dynamic recrystallization model.

キーワード:純銅、転位密度、動的回復・動的再結晶、中性子、粒径

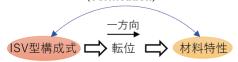
#### 1. はじめに

金属の大規模生産では熱間加工が広く用いられている。 熱間加工中の材料の強度および組織変化を予測すること は高機能材料の開発や品質の向上につながることから需 要は非常に大きい。そのため高温変形中の材料の強度お よび組織の変化を予測するためのモデルが多く提案され ており1), その中でも塑性変形の素過程である転位の運動 や変形エネルギーなどの内部状態変数(ISV)に基づい て記述されたモデルは ISV 型構成式と呼ばれている<sup>2,3)</sup>。 ISV 型構成式は物理現象に則したモデル化がなされてお り、適切に現象を組み込むことで多くの金属や多様な加 工方法に適用することが可能である。すでに製造現場に おいて転位密度に基づいた ISV 型構成式が実用的に用い られている4,5)。しかし、転位は熱間加工中にその量が保 存されず、また、ナノオーダーの転位を動的かつ熱間で 測定することは困難であるため、転位密度ベースの ISV 型構成式の妥当性について十分な検証ができない状況で あった。そこで本研究では、熱間変形中の転位密度の取得を試み、その実測値による ISV 型構成式の評価を実施した。今回の研究の概要を図1に示す。これまでは強度や延性といった最終的な材料特性のみで ISV 型構成式は評価され、転位は一種の媒介変数として用いられてきたが、加工中の転位を測定できれば物理現象との整合性から ISV 型構成式の妥当性を評価できるようになる。また、より物理現象に則したモデルの検討ができ、 ISV 型構成式の高精度化も図れる。

本研究では熱間変形中の転位密度を測定する手法として中性子回折に着目した。中性子は透過性が高く,酸化膜や変形に伴う表面荒れの影響を受けにくいため,近年,非破壊試験の手段として注目されている。大強度陽子加速器施設(J-PARC)において純銅の丸棒引張試験片を用いて様々な温度で熱間引張を実施し,熱間変形中の転位密度の取得を試みた。その結果を用いて,転位の増殖・回復を表現する ISV 型のモデルの妥当性を評価した。加えて,柳本111 による動的再結晶モデルとも比較し妥当性

#### 従来の構成式の評価方法

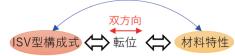
#### ① 材料特性(強度, 延性, 粒径)の比較 (Verification)



転位密度の実測値が無いため 材料特性のみで評価していた

#### 開発中の構成式の評価方法

① 材料特性(強度, 延性, 粒径)の比較 (Verification)



中性子回折による転位密度の測定

② 転位密度の比較(Validation)

中性子回折による転位密度の実測により、 モデルの評価、高精度化が可能になる

#### 図1 ISV 型構成式の妥当性評価の流れ

Flow of verification and validation of ISVs constructive equations

を検証した。

## 2. 熱間引張中の転位密度測定

#### 2.1 試験条件

本研究では大強度陽子加速器施設 (J-PARC) におい て, 中性子回折を用いた純銅の熱間引張中の転位密度の 測定を試みた。ビームラインは J-PARC MLF の BL20 (iMATERIA 回折計)を使用した。試料は熱間圧延後の無 酸素銅(純度 99.96%以上)を 500℃で 3 時間焼きなまし 後に水冷したものを使用し、形状は平行部が φ8 mm、長 さ 26 mm の丸棒引張試験片とした。試験温度は 25℃, 300℃, 400℃, 500℃, 引張速度は25℃の場合は公称ひ ずみ速度が 5.8×10<sup>-5</sup>/s, 300℃, 400℃, 500℃の場合は  $1.0 \times 10^{-4}$ /s となる一定ストローク速度で実施した。試験 片平行部下部に熱電対を取付け、変形中の温度を測定し て温度制御した。試験片外観および熱電対を取付け後に 引張試験装置に設置した写真を図2に示す。昇温は赤外 炉により速度 1℃/sec で加熱し、設定温度到達から 10 分 間保持後に引張加工を開始した。雰囲気は25℃の場合は 大気中,300℃,400℃,500℃の場合は酸化を抑制する目 的で He ガス雰囲気にて試験を実施した。

## 2.2 転位密度の解析手法

転位密度の解析手法として CMWP 法<sup>6)</sup> を採用した。 CMWP 法は下記の式により物理関数を畳み込み,回折パターンをフィッティングすることで転位密度や結晶子サイズなど巨視的平均情報が得られる。

$$I_{theoretical} = I_{size} \otimes I_{strain} \otimes I_{inst} + B.G. \tag{1}$$

ここで、 $I_{theoretical}$  は理論ラインプロファイル、 $I_{size}$  は結晶子サイズに起因したラインプロファイル、 $I_{strain}$  は転位によるミクロひずみに起因したラインプロファイル、 $I_{inst}$  は装置由来のラインプロファイルである。式中の $\otimes$  は畳み込みを表している。CMWP 法は回折ピークの裾野も含めたプロファイルの全情報を利用できるため、回折強度が弱くなりやすい高温でも適切な数値を得やすいという





図 2 丸棒引張試験片および引張試験機への設置後の外観 Appearance of round bar tensile test specimen and after installation in tensile testing machine

特徴があり、今回のような高温のデータを扱う解析の手 法として適している。

## 2.3 中性子回折による転位密度の測定結果

図3に応力と真ひずみの関係、図4にCMWP法によって得られた転位密度と真ひずみの関係を示すっ。25℃、300℃、400℃では真ひずみに対して転位密度は単調に増加しており、また温度が高いほど全体的に転位密度は低下している。この結果は高温になるほど転位の交差すべりや上昇運動が起きやすくなり、動的回復が促進されるという一般的な知見と一致する。500℃では真ひずみに対して転位密度が振動している様子が観察された。動的再結晶時の新生粒の生成とともに転位密度が低下し、ひずみが加えられることでまた転位密度が上昇するというサイクルによるものと考えられる。一般的に高温になるほど回折ピークは低くなりパラメータの同定は困難になるが、J-PARCの中性子回折を利用することで500℃までの動的回復、動的再結晶を含んだ転位密度の測定に成功した。

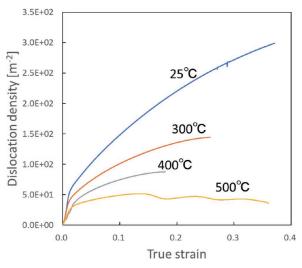


図 3 純銅の真応力 - 真ひずみ曲線 <sup>7)</sup> True stress- True strain curve of pure copper

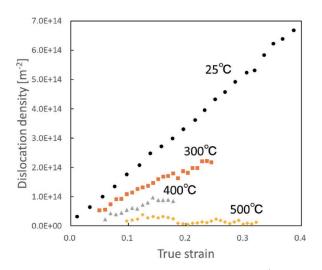


図 4 純銅の転位密度と真ひずみの関係 <sup>7)</sup> Relation between dislocation density and true strain in pure copper

## 3. ISV 型構成式

## 3.1 熱間加工中の転位密度発展方程式

転位密度を内部状態変数として表現した ISV 型構成式では、加工中の転位密度の変化量を記述した発展方程式により転位密度を求め、応力と転位密度の関係式(Bailey-Hirschの式<sup>8)</sup>)により応力に変換する。発展方程式はこれまで様々なモデルが提案されてきており、Bailey<sup>9)</sup>とOrowan<sup>10)</sup>は加工中の応力の変化を転位の増殖を表す硬化項と転位の消滅を表す回復項により表現している。今回はBaileyとOrowanによる変形抵抗式を転位の発展方程式へと変換した以下の時間増分型の式を用いて評価を実施する。

$$\Delta \rho = \left( A_1 \sqrt{\rho} \dot{\varepsilon} - B_1 \rho \right) \Delta t \tag{2}$$

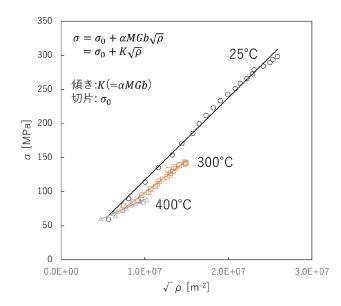


図 5 応力と転位密度の平方根の関係 Relation between stress and square root of dislocation density

ここで、 $\rho$  は転位密度、 $\dot{\epsilon}$  はひずみ速度、 $A_{\rm l}$  は加工硬化に関する係数、 $B_{\rm l}$  は動的回復に関する係数である。Bailey-Hirsch の式は以下の形で記述される。

$$\sigma = \sigma_0 + \alpha M G b \sqrt{\rho} = \sigma_0 + K \sqrt{\rho}$$
 (3)

ここで、 $\sigma$  は応力、 $\alpha$  は転位強化係数(通常  $0.1\sim0.5$ )、M はテイラー因子(FCC 金属の場合はおおむね 3)、G は剛性率、b はバーガースベクトル、 $\sigma_0$  は転位の相互作用の寄与以外の応力である。

式 (3) の $\alpha$ と $\sigma_0$  を同定するため、2.3 節より得られた 測定結果を応力  $\sigma$  と転位密度の平方根  $\sqrt{\rho}$  の関係に変換 したグラフに図5に示す。近似曲線の傾きと切片がそれ ぞれの温度の  $K(=\alpha MGb)$  と  $\sigma_0$  に相当する。ところで、 従来の ISV 型構成式の研究では図5のような転位密度の 実測はほとんどされておらず、式(3)の $\alpha$ と $\sigma_0$ は未知 数となる。そのため $\alpha$ と $\sigma_0$ を定数として扱い,式(1)  $O(A_1)$  および  $B_1$  を変化させて実測値と合わせ込むことが 多い。今回は比較のため $\mathbf{Z}$ 5から得られた $\alpha$ ,  $\sigma$ 0の実測 値と  $\alpha = 0.4$ ,  $\sigma_0 = 20$  MPa に固定した 2 パターンで図 3 の応力ひずみ曲線とのフィッティングを実施した。 フィッティングに際して、 $A_1$ はどの温度域においても一 定という制約を入れている。パラメータ A<sub>1</sub> はひずみが加 えられたことによって入る純粋な転位の増加量の係数で あり、材料組織(粒径、析出物など)に変化が無ければ、 パラメータ A<sub>1</sub> の温度、ひずみ速度依存性は小さいものと 考えることができる。今回の試料は、純度の高い無酸素 銅で析出も少なく、また試験温度よりも十分に高温で焼 きなまされていることから、25℃, 300℃, 400℃間で顕 著な材料組織の変化はないと考え、4,の値はすべての温 度域で一定であるとした。

図6にフィッティング後の構成式より得られた応力ひ

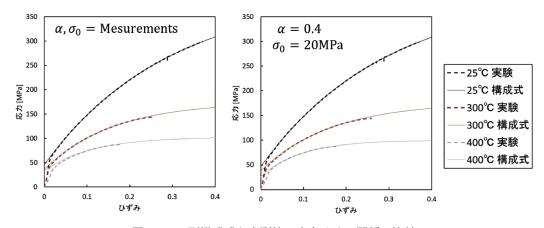
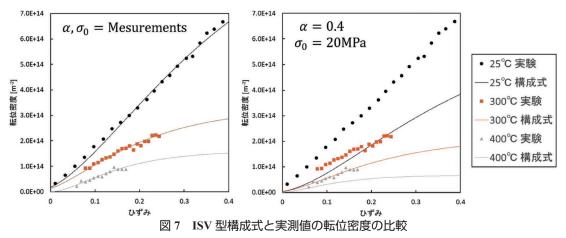


図 6 ISV 型構成式と実測値の応力ひずみ関係の比較

Comparison of stress-strain curve of the ISVs constitutive equation with the experiment value



Comparison of dislocation density of the ISVs constitutive equation with the experiment value

ずみ曲線と実験値の比較、図7に転位密度の変化と実験 値の比較を示す。図6より $\alpha$ ,  $\sigma$ <sub>0</sub>が実測値と固定値の両 方で実験値の応力ひずみ曲線を良く再現できることが分 かる。しかし、**図7**の転位密度の変化を見てみると $\alpha$ , σ₀ の実測値を使用したものでは転位密度の変化が精度良 く予測できているのに対して、固定値を使用したもので は予測精度が悪く、全体的に構成式の転位密度が過小に 計算されている。このように、従来の応力ひずみ曲線の みの ISV 型構成式の評価では、一見、図6のように精度 よく現象を再現できているように見えても内部状態変数 (この場合は転位密度) が実際の値と乖離するということ が起こり得る。ISV型構成式において転位密度は再結晶 のトリガーや粒成長の駆動力として使われるため、転位 密度の正確性が計算精度に与える影響は非常に大きい。 今回の取り組みにより転位密度の予測精度の向上ひいて は ISV 型構成式のさらなる高精度化につなげることがで きる。

#### 3.2 動的再結晶

図3の500℃の試験では転位密度が周期的に振動して

おり、これは動的再結晶によるものと考えられる。前章 までの転位密度発展方程式は加工硬化と動的回復の予測 をすることはできるが、応力が低下する動的再結晶に適 用することはできない。そこで、動的再結晶を表現する ためのモデルが提案されている1-3)。動的再結晶は加工履 歴に応じて局所的に起こる現象であるため、厳密に計算 するには動的再結晶が起こるたびに動的再結晶領域 (Substructure)を設け個々に計算しなくてはならないが、そう すると計算コストが膨大になる。そこで柳本<sup>11)</sup> によって 動的再結晶のタイミングが違ったとしても動的再結晶の 回数が同じであれば同一の Sub-structure として取り扱う ことで、計算コストを抑えつつ、粒径やひずみなどの分 布も求めることができる方法が開発された(図8)。本研 究では、上述の方法で解析を実施した。なお、3.1節同 様、加工硬化、動的回復のパラメータは実験により求 まったものを使用したが、動的再結晶のパラメータの多 くは推定値を使用している。

図9に柳本によるモデルを使用した解析と500℃の実験値の比較を示す。応力、転位密度ともに定量的な精度の面では課題はあるが、定性的には傾向をとらえられて

# Summary of dynamic recrystallization

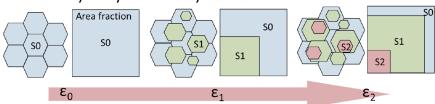


図8 柳本による動的再結晶モデル概要 異なるタイミングで発生した動的再結晶を動きまして取り扱う

Overview of dynamic recrystallization model by Yanagimoto

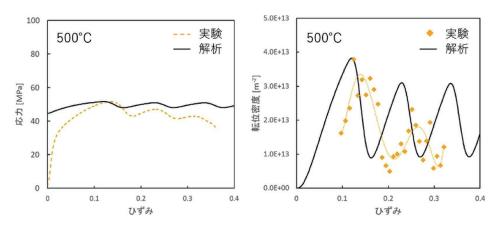


図 9 500℃における応力および転位密度の実測値と柳本のモデルによる計算値との比較 Comparison of stress and dislocation density calculated by Yanagimoto's model with measured values at 500°C

いる。今回の取り組みによって、動的再結晶の回数に応じて Sub-structure を同一のものとするような簡易化したモデルでも転位密度の挙動を再現できることが示された。

今回 500 の解析をするにあたりいくつか課題も散見された。その中でも大きな課題は  $\sigma_0$  の精度である。式(3) より自明ではあるが、たとえ転位密度  $\rho$  が 0 であったとしても応力  $\sigma$  が  $\sigma_0$  以下になることはない。そのため、 $\sigma_0$  は本来、降伏応力(図 9 の応力ひずみ曲線から500 では約 30 MPa と推測される)よりも高くなることはない。しかし、今回測定値から求めた  $\sigma_0$  は 44 MPa であったため、図 9 の応力の解析値は実測値に対して常に高めになった。高温では回折パターンが弱く、CMWP 法による転位密度の同定においてばらつきが出やすくなるため、 $\sigma_0$  もばらつきの影響により高くなった可能性がある。今後、再現性の検証とともに実測の不確かさを考慮したモデル化などを検討していく。

## 4. おわりに

本研究では ISV 型構成式の新しい評価方法を確立するために、J-PARC において無酸素銅の中性子回折を実施し、熱間変形中の転位密度を測定した。また、その結果を用いて既存の転位密度の増殖・回復に関する式について評価し、応力 – ひずみ関係とともに内部状態変数であ

る転位密度も精度よく予測できることを示した。加えて、動的再結晶モデルでの比較も行い、測定した転位密度が動的再結晶モデルにも応用できることを示した。

ISV 型構成式は多くのモデルが報告されており、統一的なモデルは存在しない。その中で、内部状態変数自体の確からしさを定量的に評価する本研究の試みが果たす役割は大きいといえる。今後さらに多くの条件でデータを蓄積することで、より物理現象に則したモデルの開発につなげることができる。

# 謝辞

本研究は茨城大学、東京電機大学、東北大学、三菱マテリアル(株)の共同研究の一環であり、茨城大学の佐藤成男教授、東京電機大学の小貫祐介准教授、東北大学の鈴木茂教授にご助言・ご助力を頂きました。また、茨城大学院生の馬場加奈氏にはデータ解析にご協力いただきました。心より感謝申し上げます。

## 文 献

- 1) 柳田 明, 塑性と加工, 51, 931-936 (2010).
- 2) Z. C. Sun, H. L. Wu, J. Cao and Z. K. Yin, *Int. J. Plast*, **106**, 73–87 (2018).
- 3) H. E. Cho, Y. Hummi, A. L. Bowman, S.-i. Karato, J. R.

- Baumgardner and M. F. Horstemeyer, *Int. J. Plast*, **112**, 123–157 (2019).
- 4) 日本鉄鋼協会, "計算工学による組織と統制予測技 術の最前線", 日本鉄鋼協会 (2010).
- 5) J. Hirsch, "Virtual Fabrication of Aluminium Products", WILEY-VCH (2006).
- 6) G. Ribárik, J. Gubicza and T. Ungár, *Mater. Sci. Eng. A*, **387-389**, 343-347 (2004).
- 7) 馬場加奈, 小貫祐介, 長岡佑磨, 伊東正登, 鈴木 茂, 佐藤成男, X線分析の進歩, **53**, 175-182 (2022).
- 8) J. E. Bailey and P. B. Hirsch, *Philos Mag*, **53**, 485–497 (1960).
- 9) R. W. Bailey, J Inst Metals, 35, 27-40 (1926).
- 10) E. Orowan, J West Sco St Inst, 54, 45-82 (1946).
- 11) 柳本 潤, 生産研究, 46, 27-34 (1994).



長岡 佑磨 Yuma NAGAOKA 高機能製品カンパニー 技術開発部 銅加工開 発センター



伊東 正登 Masato ITO イノベーションセンター 金属加工・材料領域 主任研究員



谷口 兼一 Kenichi YAGUCHI イノベーションセンター 金属加工・材料領域 TM・主任研究員