Cyclic-HPT 加工により得られる定常結晶粒径に及ぼす 1 パスひずみの影響

佐藤 宏和* 足立 望 戸高 義一

豊橋技術科学大学大学院工学研究科

J. Japan Inst. Met. Mater. Vol. 85, No. 2 (2021), pp. 67-74
© 2021 The Japan Institute of Metals and Materials

Effect of One-Pass Strain on Steady-State Grain Size by Cyclic - HPT Straining

Hirokazu Sato*, Nozomu Adachi and Yoshikazu Todaka

Department of Mechanical Engineering, Toyohashi University of Technology, Toyohashi 441-8580

The effect of one-pass strain, $|\pm\Delta\epsilon|$, on grain refinement was systematically investigated by cyclic - HPT straining with a repetitive deformation process in which positive and negative shear strain are introduced. The steady-state grain size, d_{ss} , depended on $|\pm\Delta\epsilon|$ rather than the given total strain, $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$. The unstable dislocation cell walls formed by positive strain, $+\Delta\epsilon$, was decomposed by negative strain, $-\Delta\epsilon$. The stability of dislocation cell wall increased as the number of dislocations introduced by applying $|\pm\Delta\epsilon|$ in a grain, n , increased. The decrease in n was caused by decreasing $+\Delta\epsilon$ and grain size. It was found that n affected the stability of dislocation cell walls and was an important factor in determining d_{ss} . [doi:10.2320/jinstmet.J2020045]

(Received September 14, 2020; Accepted October 21, 2020; Published January 25, 2021)

Keywords: grain refinement, steady-state grain size, dislocation cell, severe plastic deformation, repetitive deformation

1. 緒 言

塑性変形による結晶粒の微細化は Hansen らによって提唱された grain subdivision モデルにより理解される^{1,2)}。このモデルによると、塑性変形によって結晶粒内に転位が蓄積することで転位セルが形成される。塑性変形の進行と共に転位セルサイズが微細になり、転位セル壁が高角化することで結晶粒の微細化が生じる。grain subdivision モデルに基づき、結晶粒の微細化についての研究が広く行われており、結晶粒径は与えられたひずみ量の増加と共に微細になることが明らかにされてきた。その過程で、より大きなひずみを与えることを目的とした巨大ひずみ加工と呼ばれる加工法が提案された。巨大ひずみ加工として、Equal-Channel Angular Pressing (ECAP) 加工³⁾や Multi-Directional Forging (MDF) 加工⁴⁾、High-Pressure Torsion (HPT) 加工⁵⁾が挙げられるが、いずれの加工法においても形状不変の加工を前提としており、試料に対して無限大のひずみを与えることができる。

Iwahashi らは Route C の ECAP 加工を用い、純 Al におけるひずみ量の増加に伴う転位セルの発達過程を調査した⁶⁾。Route C とは ECAP 加工の加工経路の 1 つでパス毎に試料を 180° 回転させ加工を行うため、正負のせん断ひずみが交互に試料に導入される。また、ECAP 加工のように一定ひずみ量

の導入を繰り返す加工では、1 パスで与えるひずみ量 $|\pm\Delta\epsilon|$ の積み重ねによって試料に与えられる総ひずみ量 $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ が増加する。 $|\pm\Delta\epsilon| = 1.1$ の加工条件で 1 パスの加工を施した試料では結晶粒内に多くの転位セル壁が観察され、試料中の平均方位差は 5° であった。4 パスの加工により $\Sigma|\pm\Delta\epsilon| = 4.2$ が与えられた試料では、平均方位差は 15° に上昇し、転位セル壁の高角化が認められた。これは grain subdivision モデルにおける、転位の導入による転位セルの発達に相当する。

結晶粒微細化に $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ が寄与することは明らかであるが、結晶粒微細化過程における $|\pm\Delta\epsilon|$ の重要性についても議論されている。下川らは分子動力学を用いて、せん断変形後に同ひずみ量かつ逆向きの剪断変形を加える加工 (2 パスの Route C の ECAP 加工を模擬した加工) によって導入される高角粒界と低角粒界の比率と $|\pm\Delta\epsilon|$ の関係についての調査した⁷⁾。このシミュレーションにより、 $|\pm\Delta\epsilon|$ が小さい場合、試料中に導入される粒界は主に方位差の小さな低角粒界であるが、 $|\pm\Delta\epsilon|$ が特定の値を超えると、高角粒界の比率が急激に上昇することが明らかとなった。これは Route C の ECAP 加工のように正負のひずみを交互に導入する加工の場合、 $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ に加えて $|\pm\Delta\epsilon|$ も結晶粒の微細化に重要な因子であることを示している。

また、Route C の ECAP 加工のように正負のひずみを交互に導入する加工に限らず、ひずみの導入方向がパス毎に変化する繰り返し加工においても、塑性加工による結晶粒微細化過程は $|\Delta\epsilon|$ に依存して変化すると報告されている⁸⁾。パス間に試料を 90° 回転させる Route B の ECAP 加工により、 $|\Delta\epsilon| =$

* 豊橋技術科学大学大学院生 (Graduate Student, Toyohashi University of Technology)

1.1 の加工を $\Sigma|\Delta\epsilon| = 4.2$ まで加えた純 Al では高角粒界に囲まれた結晶粒が多数認められたのに対して、 $|\Delta\epsilon| = 0.23$ の加工を同 $\Sigma|\Delta\epsilon|$ まで加えた純 Al では、 $|\Delta\epsilon| = 1.1$ の試料の結晶粒よりも粗大なサブグレインが多く認められた。

以上のように、ひずみの導入方向がパス間で変わる繰り返し加工の場合、塑性変形により得られる組織が $|\pm\Delta\epsilon|$ によって変化することが報告されているが、その理由については明らかになっていない。転位セルの発達、塑性変形により結晶粒内に転位が蓄積されることによって生じるため、結晶粒中に導入される転位の本数が影響している可能性が考えられる。そこで本研究では、試料に $+\Delta\epsilon$ および $-\Delta\epsilon$ を交互に繰り返し与える加工法を用いることによって、 $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ および $|\pm\Delta\epsilon|$ を独立に制御し、結晶粒微細化に及ぼす両パラメータの影響を系統的に調査すると共に、変形中に導入される転位の本数の観点から、塑性変形によって得られる結晶粒径に及ぼす $|\pm\Delta\epsilon|$ の影響について検討することを目的とする。

2. 実験方法

同じ $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ を与えた場合であっても、塑性加工後の組織は供試材の初期粒径や化学組成によって異なることが知られている。そのため、供試材として合金元素や析出物の影響を極力排除した純 Fe (Fe-11ppmC) を用いた。供試材の均質化のために、1000℃ で 3.6 ks の焼鈍を行った。焼鈍後の純 Fe の平均粒径 d_{ave} は 190 μm、Vickers 硬さ HV は 0.6 GPa であった。本研究では、試料に与える $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ を制御するために HPT 加工を用いた。HPT 加工とは円板状の試料に上下のジグにより高い静水圧をかけた状態で、ねじりによりせん断ひずみを導入する加工法である。 $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ および $|\pm\Delta\epsilon|$ の制御は、Monotonic-HPT (m-HPT) 加工と Cyclic-HPT (c-HPT) と呼ばれる 2 種類の加工経路を用いて行った。加工経路の模式図を Fig. 1 に示す。それぞれの加工経路で作製した試料を m-HPT 材および c-HPT 材とする。m-HPT 加工では一定方向のねじり加工を N 回転与えるのに対して、c-HPT 加工では任意の回転回数 ΔN で回転方向を反転させ、総回転数 $\Sigma|\pm\Delta N|$ を付与する。従って、c-HPT 加工は、Route C の ECAP 加工と同様に、正回転 $+\Delta N$ による正のせん断ひずみと負回転 $-\Delta N$ による負のせん断ひずみを繰り返し導入する加工である。HPT 加工の相当ひずみ量は $\epsilon = 1/\sqrt{3} \ln((2 + \gamma^2 + \gamma\sqrt{4 + \gamma^2})/2)$ で表される^{9,10)}。せん断ひずみ量 γ は $\gamma = 2\pi rN/t$ で与えられ、 r は試料中心からの距離、 t は HPT 加工中の試料厚さである。ここで、HPT 加工における $|\pm\Delta\epsilon|$ は $|\pm\Delta N|$ により導入されるひずみ量と定義する。c-HPT 材においては、 $+\Delta N$ および $-\Delta N$ により、 $+\Delta\epsilon$ と $-\Delta\epsilon$ が繰り返し導入される。c-HPT 材における $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ は、 $\Sigma|\pm\Delta N|$ を上述の式に代入することで求められる。m-HPT 加工では回転方向の反転は行わないため $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ と $|\pm\Delta\epsilon|$ は等しい。HPT 加工では、 $|\pm\Delta N|$ に加えて、 r の増加と共に $|\pm\Delta\epsilon|$ が連続的に増加するため、 $|\pm\Delta\epsilon|$ を容易に独立制御できる。従って、c-HPT 加工は、塑性加工による組織発達過程に及ぼす $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ と $|\pm\Delta\epsilon|$ の影響の調査に適する加工法と言える。本研究では、初期試料厚さ $t_0 = 0.85$ mm の円板状試料 (直径 $d = 20$ mm) を HPT 加工用試料とし、圧力 $P =$

◆ Monotonic-HPT (m-HPT)

◆ Cyclic-HPT (c-HPT)

$$\Sigma\Delta N = |\Delta N| + |-\Delta N| + |\Delta N| + |-\Delta N| + \dots$$

$$\Sigma\Delta\epsilon = |\Delta\epsilon| + |-\Delta\epsilon| + |\Delta\epsilon| + |-\Delta\epsilon| + \dots$$

Fig. 1 Difference between Monotonic-HPT and Cyclic-HPT with a schematic diagram. In the HPT-straining, the relationship between the shear strain γ and the equivalent strain ϵ is expressed by $\epsilon = 1/\sqrt{3} \ln((2 + \gamma^2 + \gamma\sqrt{4 + \gamma^2})/2)$.

5 GPa, 回転速度 $\omega = 0.2$ rpm, 室温下で HPT 加工を行った。

m-HPT 材および c-HPT 材の評価方法として、Vickers 硬さ試験と XRD による転位密度測定、SEM/EBSD による組織観察を行った。XRD および SEM/EBSD 用試料は機械研磨による加工変質層の除去を目的として、過塩素酸メタノールを用いて電解研磨を行った。Vickers 硬さ試験には(株)島津製作所製 HMV-1ADW を用い、荷重 500 g、負荷時間 10 s の条件で得られた値の 3 点平均を測定値としてプロットした。XRD 測定装置には、(株)リガク製 Ultima-IV を使用し、入射 X 線には Cu-Kα1 線源 (40 kV-40 mA, 波長 0.15418 nm) を用いた。Cu-Kα2 の影響は Rachinger の方法¹¹⁾により分離を行った。得られた X 線ラインプロファイルを Voigt 関数でフィッティングすることで半価幅を求めた。半価幅に含まれる装置由来の影響は 1000℃、24 h の焼鈍を行った Fe 粉末 (純度 99.998%) の半価幅を用いて除去した¹²⁾。転位密度測定には Williamson and Hall 法¹³⁾を用い、方位パラメーター Γ ^{14,15)} が等しい (110), (211), (220) の回折ピークの半価幅から転位密度を算出した。SEM 観察には(株)日立ハイテク製 SU-5000 を使用し、加速電圧 20 kV、スポット強度 70 の条件で観察を行った。結晶方位の解析には、(株) TSL ソリューションズ製の EBSD 測定装置を用い、解析には同社製 OIM Analysis を用いた。

3. 結 果

3.1 硬度測定

種々の条件で作製した m-HPT 材および c-HPT 材の Vickers 硬さ HV と r の関係を調査した結果を Fig. 2(a) に示す。HPT 材の中心部は、回転軸のずれによる誤差の影響を受けやすいため、本研究では $r \geq 1.0$ mm の範囲でデータ整理を行った。

m-HPT 材において、 $N=1$ の HV は $r=1.0 \sim 3.5$ mm において、 $N=5, 10$ の HV より低い値であったが、 $r=4.0 \sim 9.0$ mm では N による HV の差異は認められなかった。 $N=5$ と 10 の HV を比較するといずれの r においても同程度の値を示した。 HV と $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ の関係を Fig. 2(b) に示し、 HV の上昇が飽和していない領域をオープンマーカー、飽和した領域をソリッドマーカーで示す。以後、 HV の上昇が飽和した際の HV を定

常硬さ HV_{ss} ($HV_{\text{steady-state}}$) とする。Fig. 2(b) から m-HPT 材は $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|=4.5$ で HV が HV_{ss} に達していることがわかる。一般に、HPT 加工による HV の変化は相当ひずみにより整理できる^{16,17)}。本研究の m-HPT 材においても同様に、ひずみの導入に伴う HV の変化は、 $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ を関数とする一本の連続的な曲線で整理できた。

$|\pm\Delta N|=1/8$ で、それぞれ $\Sigma|\pm\Delta N|=1, 5, 10$ まで加工を行った c-HPT 材では、いずれの $\Sigma|\pm\Delta N|$ においても r の増加に伴い HV が上昇することがわかった (Fig. 2(a))。 $\Sigma|\pm\Delta N|=5, 10$ の c-HPT 材において HV の差異は認められず、c-HPT 加工を $\Sigma|\pm\Delta N|=5$ まで行うことで HV_{ss} となることがわかった。 $\Sigma|\pm\Delta N|=10$ の c-HPT 材と $N=10$ の m-HPT 材の HV の比較を行うと、 $r=6.5 \sim 9.0$ mm において同程度であったが、 $r=1.0 \sim 6.0$ mm においては c-HPT 材は m-HPT 材よりも低い値を示した。また、Fig. 2(b) からわかるように、 $+\Delta\epsilon, -\Delta\epsilon$ の繰り返し変形を受ける c-HPT 材では、 HV 変化は m-HPT 材のように $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ で整理できなかった。 $\Sigma|\pm\Delta N|=1$ の c-HPT 材が HV_{ss} に到達した $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ は 5.2 であったが、 $\Sigma|\pm\Delta N|=5$ の c-HPT 材では 4.5 において HV_{ss} に到達している。従って、c-HPT 材が HV_{ss} に到達するためには、 $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ だけでなく c-HPT 加工における $|\pm\Delta\epsilon|$ の繰り返し回数も重要であると考えられる。

c-HPT 加工の $|\pm\Delta N|$ を $1/8, 1/4, 1/3$ と変化させ、 $|\pm\Delta N|$ が HV_{ss} に与える影響を調査した結果を Fig. 3(a) に示す。各 c-HPT 材の $\Sigma|\pm\Delta N|$ および HPT 材の N は 10 回転に統一しており、全測定点において HV_{ss} に到達しているため、 $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ の影響は無視できる。c-HPT 材における HV_{ss} の最大値はいずれの $|\pm\Delta N|$ であっても、m-HPT 材と同程度の 3.5 GPa であるが、3.5 GPa に到達する r は $|\pm\Delta N|$ が大きくなるに従って減少した。同じ r で比較した場合、 $|\pm\Delta\epsilon|$ は $|\pm\Delta N|$ の増加に伴い大きくなるため、 $|\pm\Delta\epsilon|$ が HV_{ss} に影響していることが示唆される。c-HPT 材と m-HPT 材の HV_{ss} と $|\pm\Delta\epsilon|$ の関係を Fig. 3(b) に示す。HPT 加工によって得られる HV_{ss} は、 $|\pm\Delta\epsilon| < 3$ の範囲で $|\pm\Delta\epsilon|$ の増加と共に上昇し、 $|\pm\Delta\epsilon| > 3$ の範囲では一定となることが明らかとなった。

3.2 転位密度測定

$N=10$ の m-HPT 材の HV_{ss} は $r > 1.0$ mm で一定であるため、 $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|=7.2$ を中心として $\phi=8.0$ mm の範囲で XRD による測定を行った。c-HPT 材は $|\pm\Delta\epsilon|$ によって HV_{ss} が異なるため、測定範囲を $\phi=5.0$ mm と小さくし、 $|\pm\Delta\epsilon|=1.8, 2.2, 2.6$ の 3 箇所を中心として測定を行った。 $N=10$ の m-HPT 材の $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|=7.2$ における ρ は $3.4 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ であった。また、 $|\pm\Delta\epsilon|=1.8, 2.2, 2.6$ における c-HPT 材の ρ はそれぞれ $1.4 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}, 1.6 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}, 2.3 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ であった。一般に転位強化量は Bailey-Hirsh の関係¹⁸⁾を用いて議論されるが、高木らは結晶粒径がサブミクロンの多結晶鉄に冷間加工を加えた際に強度の上昇が粗大粒 (結晶粒径 20 μm) の試料と比較して非常に小さかったことから、転位強化の寄与はサブミクロン結晶粒を有する材料では小さいと述べている¹⁹⁾。対して、結晶粒微細化強化の影響は結晶粒径がサブミクロンの領域において、より顕在化する。従って、XRD で認められた

Fig. 2 Change in Vickers hardness HV with (a) distance from center r and (b) total strain $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ in m-HPT ($N=1, 5$ and 10) and c-HPT ($|\pm\Delta N|=1/8, \Sigma|\pm\Delta N|=1, 5$ and 10).

Fig. 3 Change in saturated Vickers hardness HV_{ss} with (a) distance from center r and (b) one-pass strain $|\pm\Delta\epsilon|$ in m-HPT ($N=10$) and c-HPT ($|\pm\Delta N|=1/8, 1/4$ and $1/3, \Sigma|\pm\Delta N|=10$).

m-HPT 材と c-HPT 材の ρ の差が HV に及ぼす影響は小さいと考えられる。

3.3 組織観察

Fig. 4(a)に $N=10$ の m-HPT 材と $|\pm\Delta N|=1/8$ と $\Sigma|\pm\Delta N|=10$ の c-HPT 材の各 $|\pm\Delta\epsilon|$ の Inverse Pole Figure (IPF) map, Fig. 4(b)に各試料の EBSD より求めた平均結晶粒径 d_{ave} と $|\pm\Delta\epsilon|$ の関係を示す。 d_{ave} は JIS G0551 に従い, Planimetric method²⁰⁻²²⁾により求めた。 $N=10$ の m-HPT 材においては, $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|=6.6$ の組織を示す。 $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|=6.6$ における m-HPT 材の d_{ave} は 250 nm であった。 c-HPT 材の $\Delta\epsilon=1.0, 1.6, 2.4$ における d_{ave} はそれぞれ 2230 nm, 620 nm, 320 nm であり, $|\pm\Delta\epsilon|$ の増加に伴い微細となった。従って, Fig. 3(b)でみられた $|\pm\Delta\epsilon|$ の増加に伴う HV_{ss} の上昇は結晶粒が微細になることで生じたと考えられ, $|\pm\Delta\epsilon|$ によって塑性変形によって得

られる定常状態となった際の結晶粒径が変化することを示している。以降, 定常状態となった際の結晶粒径を定常結晶粒径 d_{ss} ($d_{steady-state}$) とする。

塑性変形において, ひずみ速度 $\dot{\gamma}$ と転位密度 ρ の間には $\dot{\gamma} = \rho b v$ が成り立つことが知られている。ここで, b はバーガスベクトル, v は転位の平均移動速度である。従って, $\dot{\gamma}$ の上昇した場合, ρ もしくは v が上昇する必要がある。そのため, 塑性変形によって得られる結晶粒径は一般に $\dot{\gamma}$ の上昇に従い, 微細となると考えられている。HPT 加工における $\dot{\gamma}$ は $\dot{\gamma} = 2\pi r \omega / t$ で表され, ω が一定であっても r の増加によって $\dot{\gamma}$ は上昇する。しかしながら, Fig. 2(a)から明らかなように $N=10$ の m-HPT 材において, r の増加 ($\dot{\gamma}$ の増加) による HV_{ss} (d_{ss}) の差異は認められなかった。また, Fig. 3(b)より r の異なる c-HPT 材であっても HV_{ss} が同じであることが認められており, これは c-HPT 材においても $\dot{\gamma}$ の増加によって d_{ss} が変化しないことを示している。オロワンの式 $\dot{\gamma} = \rho b v$ から見積もった HPT 加工中 ($\rho = 1 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$) の転位の平均移動速度 v は $1.2 \mu\text{m/s}$ で, 比較的低速である。従って r の増加に伴う $\dot{\gamma}$ の上昇に対して, v の上昇によって対応できたために, ρ の変化は小さく, その上昇量は結晶粒径の微細化に寄与しない程度であったことを Fig. 2(a)と Fig. 3(b)は示している。

また, Fig. 4(a)の IPF map に着目すると, 高角粒界に囲まれた結晶粒内に存在する低角粒界の存在が認められた。この低角粒界は転位によって形成された転位セル壁であると考えられる。Fig. 5に $N=10$ の m-HPT 材と $|\pm\Delta N|=1/8, \Sigma|\pm\Delta N|=10$ の c-HPT 材の観察視野内における低角粒界と高角粒界の総長さを示す。 $|\pm\Delta\epsilon|$ の減少による低角粒界の総長さの変化はみられなかったが, 高角粒界の総長さは $|\pm\Delta\epsilon|$ の減少と共に短くなった。これは結果は $|\pm\Delta\epsilon|$ の減少に伴い低角粒界 (転位セル壁) の高角化が困難になることを示唆している。

4. 考 察

Fig. 3(b)より, $|\pm\Delta\epsilon| < 3$ の c-HPT 材では, $|\pm\Delta\epsilon|$ の減少と共に粗大な結晶粒径で定常状態に達することが明らかとなった。これは, $|\pm\Delta\epsilon|$ の減少により転位セル壁の高角化が困難になったことによると示唆された (Fig. 5)。結晶粒微細化は転位セルサイズが微細になり, 転位セル壁が高角化することによって生じるため, $|\pm\Delta\epsilon|$ の減少に伴い転位セル壁の高角化が困難になる現象と d_{ss} の大きさは関連していると考えられる。まずは, c-HPT 加工の負回転時の転位セル壁の変化についての考察を行う。

Al 多結晶を用いて, 正負のひずみを交互に加えた際の転位セル組織の変化が調査されている。TEM 観察から, 引張により 4.5% のひずみを付与したことで形成した転位セルが, 圧縮により約 3.5% のひずみとなるまで負のひずみを付与することで一部分解することが明らかになった²³⁾。これに対して, 正負のひずみを交互に与えた場合であっても, 転位セル壁の分解が生じないとの場合もある。単結晶 Al-9at%Cu 合金において, 13% のひずみにより形成した転位セル壁は

Fig. 4 Comparison of (a) the inverse pole figure maps and (b) the average grain size with one-pass strain $|\pm\Delta\varepsilon|$ in m-HPT ($N = 10$) and c-HPT ($|\pm\Delta N| = 1/8$, $\Sigma|\pm\Delta N| = 10$).

0.4% の逆方向のひずみによって分解しなかった²⁴⁾。転位セル壁の分解の有無を決める要因として、方位差を生む転位セル壁内の転位密度の大小が挙げられる。従って、結晶粒内に多くの転位が導入されることで転位セル壁の安定度の向上に繋がると考えられる。c-HPT 加工において、 $|\pm\Delta\varepsilon|$ が低下すると $|\pm\Delta\varepsilon|$ により導入される転位の本数は減少し、形成される転位セル壁の安定度は $|\pm\Delta\varepsilon|$ が大きいときと比べて低くなると予想される。

そこで、無加工の純 Fe に対して $+\Delta\varepsilon$ および $-\Delta\varepsilon$ を与え、 HV の変化から $-\Delta\varepsilon$ による転位セル壁の分解の可能性を検証

した。 $+\Delta\varepsilon$ として $+N = 1/8$ の m-HPT を施した試料 A、および、試料 A に対し $-\Delta N = 1/32$, $1/8$ の $-\Delta\varepsilon$ を付与した試料 (試料 B, 試料 C) の HV を Fig. 6(a) に示す。試料 B は、試料 A と比較して、 $\Sigma|\pm\Delta\varepsilon|$ が増加しているにもかかわらず、 HV の上昇は認められなかった。この結果は、 $-\Delta\varepsilon$ による転位セル壁の分解が生じ、結晶粒微細化が進行していないことを示唆している。試料 A と試料 B を比較すると、 HV が $r = 4.0 \sim 9.0 \text{ mm}$ において大凡 0.3 GPa 上昇しており、結晶粒微細化が進行していると考えられる。以上の結果より考えられる試料 A から試料 C 間の微細組織の変化の模式図を Fig. 6(b) に示

す。試料 B では、 $-\Delta N = 1/32$ によって安定度の低い一部の転位セル壁が分解し、粒内に分散すると考えられる。従って

Fig. 5 Change in total length of grain boundaries with one-pass strain $\Delta\epsilon$ in c-HPT ($|\pm\Delta N| = 1/8$, $\Sigma|\pm\Delta N| = 10$) and m-HPT ($N = 10$).

試料 A と比較して試料 B の転位セルサイズは粗大となる。しかしながら、試料 C では試料 A、試料 B と比較して HV が上昇しており、転位セルサイズが微細になったことを示唆している。これは分解された転位(粒内に分散した転位)が転位セルを再形成することに加え、既存の転位セル内に新たな転位セル壁が形成されたことに起因すると考えられる。TEM 観察より、4.5% の引張りひずみを与えた Al 多結晶に対して圧縮ひずみを加えると、ひずみ方向を反転させた初期には一部の転位セル壁の分解が生じたが、反転前よりも転位セルサイズが微細になると報告²³⁾されており、Fig. 6 においても同様の現象が生じたと考えられる。緒言で述べたように Route B の ECAP 加工における $|\pm\Delta\epsilon|$ を小さくすると微細組織の発達が緩やかになるが⁸⁾、これは 1 パス目と 2 パス目に導入されるせん断ひずみに対する負のせん断ひずみがそれぞれ 3 パス目と 4 パス目で導入されることで、転位セル壁の分解が生じているためと考えられる。

c-HPT 加工中に生じる転位セル壁の安定度の観点から $|\pm\Delta\epsilon|$ によって d_{ss} が変化する理由を検討する。転位セル壁の分解が生じない m-HPT 材では結晶粒微細化に伴い、粒界での転位の消滅や異符号の転位同士との消滅の頻度が上昇し、導入された ρ と消滅する ρ が釣り合うことで結晶粒径は d_{ss} となる。 $|\pm\Delta\epsilon| < 3$ の c-HPT 材においても転位セル壁の分解が

Fig. 6 (a) Influence of a magnitude of $-\Delta N$ after applying $+\Delta N$ of 1/8 on Vickers hardness. (b) Schematic diagram of the change in microstructures in each condition.

生じずに同様の理由で結晶粒径が定常状態となるのであれば、 $|\pm\Delta\epsilon|$ に依存せず m-HPT 材と同程度の d_{ss} となるはずであるが、実際には Fig. 3(b) からわかるように $\Delta\epsilon < 3$ の c-HPT においては m-HPT 材と比較して粗大な結晶粒径で定常状態に達しており、転位セル壁の分解の影響が生じている。c-HPT 加工の負回転時に生じる転位セル壁の分解は、転位セルのサイズの微細化および転位セル壁の高角化を阻害するため、 $|\pm\Delta\epsilon|$ により安定な転位セル壁を形成できなくなることによって転位セルの発達が止まり、結晶粒径は定常状態になると考えられる。転位セル壁の安定度を決定する一因として転位セル壁内に蓄積された転位の本数が考えられるため、結晶粒内に導入される転位の本数が減少することで、転位セル壁の分解は生じやすくなる。各 $|\pm\Delta\epsilon|$ によって 1 つの結晶粒内に導入される転位の本数 n と結晶粒径 d の関係を Fig. 7 に示す。 $|\pm\Delta\epsilon|$ の大小はカラーバーで表す。HPT 加工のようにせん断変形によって転位が導入される場合、導入される転位密度 ρ_{cal} は $\rho_{cal} = 4\gamma/bL$ で示される²⁵⁾。ここで L は転位がすべり運動を行う距離であり、本研究では $L = d$ である。結晶粒を一辺の長さが d の立方体、転位の平均長さを d と仮定することで、 $|\pm\Delta\epsilon|$ によって 1 つの結晶粒内に導入される転位の本数 n は $n = V\rho_{cal}/d$ で示される。ここで、 V は結晶粒の体積である。この n の内訳として、回復により減少する転位の本数 n_{rec} と結晶粒内に残る転位の本数 n_{dis} の 2 つの要素が考えられるため、本研究では $n - n_{rec} = n_{dis}$ であると仮定する。Fig. 7 からわかるようにいずれの $\Delta\epsilon$ であっても d の微細化と共に n は減少するため、 n_{dis} も次第に減少し、負回転時に分解しない安定な転位セル壁の形成が次第に困難になり、結晶粒径が定常状態になったと考えられる。同様に、 $|\pm\Delta\epsilon|$ の減少によって n は減少することから、 $|\pm\Delta\epsilon|$ が小さい程、安定

な転位セル壁の形成が困難となった際の粒径が大きくなると考えられる。Fig. 7 に $|\pm\Delta\epsilon| < 3$ の c-HPT 材の d_{ss} となった際の n をプロットした。各 d_{ss} については、無加工材と c-HPT 材、m-HPT 材の HV と $d_{ave}^{-1/2}$ 間において最小二乗法を用いることで導出した Hall-Petch の式^{26,27)} $HV = 850 + 1.4d^{-1/2}$ を用いて HV_{ss} から算出した。 d_{ss} に到達した際の n は、いずれの $|\pm\Delta\epsilon|$ においても 10^4 程度で整理でき、 d_{ss} が n に決定されることを示唆している。従って、 n は転位セル壁の安定度に影響を与え、 d_{ss} を決める重要な因子であると考えられる。また、 d_{ss} の減少に伴って n は増大する傾向にあり、より微細な d_{ss} を得るためには、余剰に n を導入する必要があることがわかる。 d_{ss} の減少に伴う n の増大は Fig. 7 中に点線で示した結晶粒の微細化に伴う粒界密度 S_v の上昇傾向と概ね一致しており、これは粒界での転位の消滅の影響を示唆している。 S_v の上昇は粒界での転位の消滅頻度を上昇させるため (n_{rec} の上昇)、同じ n を導入した場合であっても n_{dis} は減少し、安定な転位セル壁の形成は困難になる。そのため、粒径が定常状態となった際の n と S_v には相関があったと考えられる。現時点では n_{rec} に与える転位の対消滅の影響を考慮することができていないため今後の課題として検討したい。

5. 結 言

本研究では、m-HPT 加工と c-HPT 加工を用いることにより $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ および $|\pm\Delta\epsilon|$ を独立に制御し、純 Fe の結晶粒微細化に及ぼす両パラメーターの影響を調査した。また、塑性変形中に 1 つの結晶粒内に導入される転位の本数 n に注目し、塑性変形によって得られる定常結晶粒径 d_{ss} に及ぼす $|\pm\Delta\epsilon|$ の影響についても検討した。本研究にて得られた結果を以下にまとめる。

(1) ひずみの導入に伴う m-HPT 材の HV 変化は、 $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ を関数とする 1 本の連続な曲線で整理できた。一方、 $+\Delta\epsilon$ 、 $-\Delta\epsilon$ の繰り返し変形を受ける c-HPT 材では、 HV 変化は $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ で整理できなかった。

(2) Vickers 硬さ試験の結果から、 $|\pm\Delta\epsilon| < 3$ の場合、 $+\Delta\epsilon$ 、 $-\Delta\epsilon$ の繰り返し変形を受ける c-HPT 材では逆方向の変形時に転位セル壁の分解を生じることが示唆された。これが、ひずみの導入に伴う c-HPT 材の HV 変化を $\Sigma|\pm\Delta\epsilon|$ で整理できなかった理由と考えられる。

(3) m-HPT 加工、c-HPT 加工の別を問わず、HPT 加工によって得られる HV_{ss} と d_{ss} は $|\pm\Delta\epsilon|$ によって決まることが明らかとなった。本研究における HPT 加工の条件 ($\omega = 0.2$ rpm, 室温) では、 HV_{ss} と d_{ss} は、 $|\pm\Delta\epsilon| < 3$ のときに $|\pm\Delta\epsilon|$ の増加に伴って微細になり、 $|\pm\Delta\epsilon| > 3$ で一定の値となった。

(4) $|\pm\Delta\epsilon| < 3$ における d_{ss} は、 $|\pm\Delta\epsilon|$ の塑性変形により 1 つの結晶粒内に導入される転位の本数 n で整理することができた。 n は転位セル壁の安定度に影響を与え、 d_{ss} を決める重要な因子であることがわかった。

本研究は、日本学術振興会 科学研究費補助金 基盤研究(B) 18H01750 の支援を受けて行われたものであり、ここに深甚なる謝意を表します。

Fig. 7 Relationship between the number of dislocations introduced by one-pass strain $|\pm\Delta\epsilon|$ in one grain n and grain size d . The n at the steady-state grain size d_{ss} in c-HPT ($|\pm\Delta\epsilon| < 3$) were plotted. Each $|\pm\Delta\epsilon|$ is indicated by a color in the color bar.

文 献

- 1) N. Hansen and D.J. Jensen: *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* **357** (1999) 1447-1469.
- 2) N. Hansen: *Metall. Mater. Trans. A* **32** (2001) 2917-2935.
- 3) V.M. Segal, V.I. Reznikov, A.E. Drobyshvskiy and V.I. Kopylov: *Russ. Metall.* **1** (1981) 99-105.
- 4) H. Miura, G. Yu and X. Yang: *Mater. Sci. Eng. A* **528** (2011) 6981-6992.
- 5) P.W. Bridgman: *Phys. Rev.* **48** (1935) 825-847.
- 6) Y. Iwahashi, Z. Horita, M. Nemoto and T.G. Langdon: *Acta Mater.* **45** (1997) 4733-4741.
- 7) T. Shimokawa, T. Yamashita, T. Niiyama and N. Tsuji: *Mater. Trans.* **57** (2016) 1392-1398.
- 8) K. Nakashima, Z. Horita, M. Nemoto and T.G. Langdon: *Acta Mater.* **46** (1998) 1589-1599.
- 9) S. Onaka: *J. Japan Inst. Metals* **74** (2010) 165-170.
- 10) S. Onaka: *Philos. Mag. Lett.* **90** (2010) 633-639.
- 11) W.A. Rachinger: *J. Sci. Instrum.* **25** (1948) 254-255.
- 12) Th.H. de Keijser, J.I. Langford, E.J. Mittemeijer and A.B.P. Vogels: *J. Appl. Cryst.* **15** (1982) 308-314.
- 13) G.K. Williamson and W.H. Hall: *Acta Metall.* **1** (1953) 22-31.
- 14) S. Takaki, F. Jiang, T. Masumura and T. Tsuchiyama: *ISIJ Int.* **58** (2018) 769-775.
- 15) S. Takaki, T. Masumura and T. Tsuchiyama: *ISIJ Int.* **59** (2019) 567-572.
- 16) K. Edalati, A. Yamamoto, Z. Horita and T. Ishihara: *Scr. Mater.* **64** (2011) 880-883.
- 17) Y. Ito and Z. Horita: *Mater. Sci. Eng. A* **503** (2009) 32-36.
- 18) J.E. Bailey and P.B. Hirsch: *Philos. Mag.* **5** (1960) 485-497.
- 19) S. Takaki, K. Kamikawa, Y. Futamura and T. Tsuchiyama: *Mater. Sci. Forum* **317** (2006) 503-504.
- 20) A. Sauveur: *Trans. AIME* **22** (1894) 546-557.
- 21) Z. Jeffries, A.H. Kline and E.B. Zimmer: *Trans. AIME* **57** (1916) 594-607.
- 22) Z. Jeffries: *Trans. Faraday Soc.* **12** (1916) 40-56.
- 23) T. Hasegawa, T. Yakou and S. Karashima: *Mater. Sci. Eng.* **20** (1975) 267-276.
- 24) H. Mori and H. Fujita: *J. Phys. Soc. Japan* **38** (1975) 1349-1356.
- 25) M.F. Ashby: *Philos. Mag.* **21** (1970) 399-424.
- 26) E.O. Hall: *Proc. Phys. Soc. London Sect. B* **64** (1951) 747-752.
- 27) N.J. Petch: *J. Iron Steel Inst.* **174** (1953) 25-28.