- (29) J.J.Gilman and W.G.Johnston : *Solid State Physics*, Vol.13, Academic Press, New York and London, (1962), 147.
 (30) H.Conrad : *J.Metals*, **16**(1964), 582.
 (31) A.H.Cottrell : *Dislocations and Plastic Flow in Crystals*, Oxford, (1953), 41.
 (32) 川田雄一, 平 修二, 多田美朝 : 応力測定マニュアル, オーム社, (1972), 49.
 (33) 渡辺 理 : 歪ゲージとその応用, 日刊工業新聞社, (1971), 75.
 (34) E.Schmid : *Trans.JIM*, **9**(1968), Suppl., 798.
 (35) J.C.M.Li : *Can.J.Phys.*, **45**(1967), 493.
 (36) I.Gupta and J.C.M.Li : *Met. Trans.*, **1**(1970), 2323.
 (37) K.Okazaki, Y.Aono and M.Kagawa : *Acta Met.*, **24**(1976), 1121.
 (38) K.Okazaki, M.Kagawa and Y.Aono : *Z. Metallk.*, **67**(1976), 47.
 (39) J.C.M.Li : *Dislocation Dynamics*, Ed. by A.R. Rosenfield *et al.*, McGraw-Hill Book Co., (1968), 87.
 (40) T.Endo, K.Suzuki and M.Ishikawa : to be published.

Zn-22% Al 合金における結晶粒径の常温塑性挙動への影響

広 橋 光 治* 河 合 栄一郎*
 六 碓 賢 亮* 宮 川 松 男**

Mitsuji Hirohashi, Eiichiro Kawai, Kensuke Mutsuzaki and Matsuo Miyagawa :
 Effects of Grain Size on Plastic Behaviour at Room Temperature of Eutectoid Zn-22%Al Alloys.

The plastic behaviour at room temperature is investigated on the superplastic Zn-22%Al alloys with grain sizes of 0.1~4.9 μm . The optimum grain size giving the maximum value of total elongation existed for each strain rate.

The strain rate sensitivity m have the maximum value at grain size of about 0.6~0.8 μm , and the strain rate sensitivity disappears above 4 μm ($m=0$). The total elongation increases with increase in m -value at the same grain size.

The maximum tensile stress is reached at 2~5% strain, and the grain boundary sliding of mother phase α' is observed in these strain ranges. The local elongation after the occurrence of the maximum tensile stress depends mainly on the α - β grain boundary sliding and on the deformation of the grains.

In the specimen of optimum grain size, at low strain rate, the total elongation is large because the α - β grain boundary sliding is remarkable, but at high strain rate, the specimen is brittle because the α - β grain boundary sliding does not occur and the intercrystalline cracks of α' -boundary is observed. In the large grain size alloy, the deformation of grains is observed at any strain rate.

(Received August 1, 1977)

I. 緒 言

超塑性材料においては、従来、延性の増加という観点から高温 ($>0.5 T_m$, T_m は合金の融点 K) での変形挙動の解析^{(1)~(3)}が多くなされてきたが、著者らは⁽⁴⁾Zn-22% Al 合金においては常温でも特定条件下で 100~200% 程度の延性があることを明らかにした。

したがって同合金の常温における塑性変形挙動が解明されれば、逆に超塑性材料の加工後の強化法もある程度予想できるものと思われる。

本研究は、常温塑性におよぼす結晶粒径およびひずみ速

度の影響を引張試験によって検討し、さらに定形時の表面および破断面の観察、硬さおよびX線回折試験を併せて行い、常温における変形挙動を解明せんとしたものである。

II. 実験方法

本研究に使用した合金は、Zn(純度 99.99%)78%, Al(純度 99.9%)22%の純2元系の共析合金(以後SPZと略称)と、これを母合金にして0.5% Cu および0.01% Mgを添加した強化材(以後SPZ-CMと略称)の2種類で、主として前者について実験した。試料は板厚1mmに熱間圧延した後、375°Cで2h加熱固溶処理後水冷し、常温に

* 千葉大学工学部(Faculty of Engineering, Chiba University, Chiba)

** 東京大学工学部(Faculty of Engineering, The University of Tokyo, Tokyo)

て約1年間時効したものを素板として使用した。さらに、結晶粒径の影響を検討するために、素板を360°Cで再固溶化処理後水冷して常温時効した試料および素板を250°Cで30 min~72 h 焼戻した試料を作り、素板とともにこれらについても組織観察と引張試験を行った。

試験片形状は前報⁽⁴⁾と同様(平行部の幅10 mm, 標点距離40 mm)であり、引張試験はクロスヘッド速度を0.05~500 mm/minの各段階に変化し、試験温度は室温をほぼ28°C(一部のシリーズは20°C)と一定にして、インストロン型引張試験機を用いて行った。

また、組織の観察には、光学および走査型電子顕微鏡、X線回折装置を使用し、硬さは荷重100 gを加えてマイクロピッカース硬度計で測定した。

III. 実験結果

1. 結晶粒径の最大引張応力および全伸びへの影響

Ball ら⁽⁵⁾は、結晶粒径による引張特性の変化を検討している。これは超塑性の変形挙動を考察するうえで極めて重要なことであるが、彼らの実験は再結晶温度以上の高温で行われており、複雑な因子を多く含んでいるものと思われる。そこで本研究では、まず粒径の変化による室温引張特性の変化を検討した。

Photo.1(a)~(d)は、SPZの素板(固溶化水冷後室温に

て約1年間時効)および素板を250°Cで焼戻した試料の組織である。写真において黒い粒はAl側固溶体 α 相、白粒はZn側固溶体 β 相であり、素板(a)では平均粒径は約0.8 μm である。これを250°Cで加熱するとPhoto.1(b)~(d)に示すように、焼戻し時間の増加とともに結晶粒は成長し、3日間焼戻したPhoto.1(d)では4.9 μm にまで成長している。この場合には、 β 相内に粒の成長過程で生じた亜粒界が観察されるが、粒径の測定では考慮に入っていない。

Fig.1は公称応力 s -公称ひずみ e 線図の一例である。低ひずみ速度($\dot{\epsilon}=1.9 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$)では、素板を焼戻し処理した結晶粒径の大なる試料ほど変形応力は高くなり、伸びは小さくなっている。これに対して高ひずみ速度($\dot{\epsilon}=1.9 \times 10^{-1} \text{ s}^{-1}$)のときには、250°Cで3日間焼戻した粒径の大きな試料で、加工硬化現象を示し、素板よりも伸びが大きくなっている。

これらの線図より最大引張応力 σ_{max} および全伸び δ と結晶粒径 L との関係を求めたのがFig.2(a)および(b)であり、(a)は純2元系SPZの、(b)はCuとMgを添加したSPZ-CMの結果である。またFig.2(a)には本実験範囲のひずみ速度域におけるひずみ速度依存性指数 m を、Backofen ら⁽¹⁾の提唱する次式(1)により最大引張応力から求めて示した。

Photo.1 Variation in electron microstructures with tempering time at 250°C. ($\times 1500 \times \frac{1}{2}$)
(a) original specimen (room temperature aging for about 1 year after solution-treatment (grain size $L=0.8 \mu\text{m}$))
(b) tempered for 30 min ($L=1.3 \mu\text{m}$)
(c) for 3 h ($L=2.1 \mu\text{m}$)
(d) for 3 days ($L=4.9 \mu\text{m}$)

Fig.1 The stress-strain curves in uniaxial tension of the specimens with various grain sizes for the binary Zn-22% Al alloy (SPZ).

$$\sigma = K \dot{\epsilon}^m \quad (1)$$

なお、Fig.2(a)の粒径0.8 μm 以下の実験結果は、固溶化処理後水冷し、2相分解直後の極く微細な粒径($L=0.1 \mu\text{m}$)から約1年間の常温時効によって結晶粒が成長し、素板($L=0.8 \mu\text{m}$)の状態にいたるまでの結果である。その経過を前報⁽⁴⁾に常温時効の影響として報告したが、ここでは粒径の影響としてそれを引用し、250°C焼戻し材の結果と合せて示した。図によるとひずみ速度 $\dot{\epsilon}$ が大なるほど最大引張応力 σ_{max} は大きく、全伸び δ は小さくなる傾向がある。また各ひずみ速度で全伸び δ が最大値を示す粒径が存在し、その粒径はひずみ速度が大きくなるほど小さくなる。

また m 値は後述のごとく、ひずみ速度域によって変化

Fig.2 Variation in tensile properties of the specimens at various strain rates. (a) binary alloy (SPZ), (b) quaternary alloy (SPZ-CM)

するが平均値と比較すると $0.6 \mu m$ 前後の粒径で最大となり, $4 \mu m$ 以上の粒径になると, ひずみ速度による最大引張応力の差はなくなり, $m=0$ となる。

一方 Fig.2(b) の SPZ-CM の実験結果の一部は, 前報⁽⁶⁾に SPZ と同じく 常温時効の影響として報告したが, ここでもそれを引用し, $100^\circ C$ で時効したものの結果と合せて示した。図中の☆印は固溶化処理直後の 2 相分解前の母相 α' 組織を呈している試料の場合で, ひずみ速度による差はなく, 2 相分解後は各ひずみ速度において全伸びの最大値を生ずる粒径が存在し, その粒径は SPZ の場合とほぼ同じ ($0.8 \mu m$) であるが, 全伸びの値は SPZ より小さい。

Fig.3 はマイクロビッカース硬さ Hv と粒径 L の関係を示したもので, 両者の関係は Fig.2(a) における低ひずみ速度 ($\dot{\epsilon}=1.9 \times 10^{-3} s^{-1}$) の場合の全伸び δ と粒径 L の関係 (Fig.3 にも破線で併記しておいた) の反対になっている。すなわち, 硬さ試験の負荷速度 (負荷は約 15 s 間で全荷重 (100 g) になる) が, 引張試験の低ひずみ速度に相当し, 常温で最大の伸びを生ずる粒径 ($L=0.7 \sim 0.8 \mu m$) で最小

Fig.3 Variation in Vickers-hardness and total elongation with grain size.

の硬さになっており, 硬さが延性の大小を判定する目安となり得ることを示している。

2. ひずみ速度の最大引張応力および全伸びへの影響

前節において, 最大引張応力および全伸びに影響する因子として結晶粒径が大きな比重を占めていることが明らかになったが, 本節では SPZ について粒径を一定 (素板 $L=0.8 \mu m$) にして, 最大引張応力および全伸びのひずみ速度依存性を調べた。その結果を Fig.4 に示す。

なお, 同図にはその最大引張応力から求めたひずみ速度依存性指数 m 値が付記してある。図によると $\dot{\epsilon} < 3 \times 10^{-3} s^{-1}$ の領域では $\log \sigma_{max}$ と $\log \dot{\epsilon}$ の間に直線関係があり, 前述の式 (1) が成立し, $m=0.22$ と一定となり, 同領域における全伸び δ も約 150% の一定値となっている。 $\dot{\epsilon} > 3 \times 10^{-3} s^{-1}$ になると, ひずみ速度の増加とともに m 値は減少し, 全伸び δ も減少して, 竹岡らの報告⁽⁷⁾にもあるように m 値と全伸びの傾向は対応している。

Fig.4 Variation of tensile properties with strain rate for the original specimen (grain size $L=0.8 \mu m$).

IV. 変形挙動に関する実験と考察

これまでの実験結果から、常温でも低ひずみ速度において $0.8\mu\text{m}$ 前後の粒径の試料で最大伸びを示し、SPZ の場合には 150% 以上の大きな伸びを生じることが明らかになったので、この場合の変形挙動を観察した。

1. 表面および内部組織の観察

試料は引張試験前に表面をバフ研磨し、引張変形を与えながら走査型電子顕微鏡によって各ひずみ段階での表面状態を観察した。なお、ひずみ e_t は裏面に写真焼付けした 1mm 標点の局部ひずみで表わした。

Photo.2(a), (b)は、素板を低ひずみ速度 ($\dot{\epsilon}=3.1\times 10^{-5}\text{s}^{-1}$) で変形したときの表面状態の変化を示したもので、(a) はひずみ e_t が 30% のときであるが、固溶化処理時の母相 α' 粒界と思われる部分にすべりによる起伏が生じている。Photo.2(c)は、固溶化処理後 150°C で 10 s 間恒温変態したときの組織を示したものであるが、この α' 粒径と前述の起伏の大きさとを比較すると良く対応している。この起伏は最大引張応力直前のひずみ (2~5%) からみられ、ひずみの増加とともに網目状につながり、同時に α' 粒径よりはるかに微細な α - β 粒界すべりを生ずる。さらに目視できるくびれが発生するような大きなひずみになると、

α - β 粒界でのすべりが著しくなって網目状の起伏はみえにくくなり、Photo.2(b)のごとく引張方向への α , β 粒径に相当する微細な条痕だけが観察される。

Photo.2(d)は引張変形後、破断部近傍 ($e_t=200\%$) の表面を研磨して内部組織を観察したものであるが、引張方向への結晶粒の変形は認められず、引張方向と直角方向に結晶粒は成長する傾向にあり、変形前 (Photo.1(a)) に対して粒径は $2\mu\text{m}$ 程度にまで成長している⁽⁸⁾。一方、高ひずみ速度の場合は、低ひずみ速度の場合と同じように最大応力点近傍のひずみで α' 粒界にすべりが起こり起伏を生ずるが、この場合には微細な α - β 粒界すべりは起こらずその起伏からクラックに発達するため全伸びも小さい。

Photo.3(a)~(d)は SPZ の試料を 250°C で 3 日間焼戻し処理した結晶粒径が大なる ($L=4.9\mu\text{m}$) 試料の変形前後の表面および内部組織を示したものである。(a)は最大応力点直後のひずみ $e_t=5\%$ のときで、固溶化時の母相 α' 粒界のすべりがみられる。その後、ひずみの増加とともに (b)のようにその起伏は顕著になる。(c)はその拡大写真で、 α' 粒界の大きな起伏のほか α - β 粒界の起伏も認められる。また同表面を研磨して内部組織を観察すると、(d)のごとく結晶粒は引張方向に変形し、粒内すべりが起こっていることが認められる。

Photo.2 Change of surface and internal structures after tensile deformation of SPZ showing the optimum grain size ($L=0.8\mu\text{m}$) at low strain rate ($\dot{\epsilon}=3.1\times 10^{-5}\text{s}^{-1}$).
(a) At strain $e_t=30\%$ ($\times 150\times \frac{4}{5}$)
(b) $e_t=410\%$ ($\times 150\times \frac{4}{5}$)
(c) Isothermally transformed for 10 s at 150°C ($\times 150\times \frac{4}{5}$)
(d) Internal structure ($\times 1500\times \frac{4}{5}$)

Photo.3 Change of surface and internal structures caused by tensile test of SPZ with large grain size ($L=4.9\mu\text{m}$) at low strain rate ($\dot{\epsilon}=1.9\times 10^{-4}\text{s}^{-1}$).
(a) At strain $e_t=5\%$ ($\times 150\times \frac{4}{5}$)
(b) $e_t=40\%$ ($\times 150\times \frac{4}{5}$)
(c) $e_t=40\%$ ($\times 500\times \frac{4}{5}$)
(d) Internal structure ($\times 500\times \frac{4}{5}$)

2. 破面観察

一方、破断面の観察も変形挙動の解明に役立つものと考え、走査型電子顕微鏡により観察した。

Photo.4 (a), (b), (c)は SPZ の素板試料($L=0.8\mu\text{m}$)の引張破面を、Photo.4(d), (e), (f)は SPZ-CM の試料を 100°C で3日間時効し、粒径を前者と同じにした試料の引張破面を、それぞれ示したものである。(a)は、常温でも150%程度の大きな全伸びが得られる低ひずみ速度($\dot{\epsilon}=1.9\times 10^{-3}\text{s}^{-1}$)で引張試験したときの破面で、非常に密で滑らかになっている。これに対して高ひずみ速度($\dot{\epsilon}=1.9\times 10^{-1}\text{s}^{-1}$)の(c)の場合は、 α および β 相に相当する大きさの凹凸がある粗い破面となる。(b)の中ひずみ速度($\dot{\epsilon}=1.9$

3. X線回折による測定

次に粒内すべりが変形にどの程度寄与しているかをX線回折(Cu ターゲット, $30\text{ kV}-15\text{ mA}$)により検討した。

Fig.5 (a), (b), (c)は、変形前後の試料表面のX線回折図形を示したものである。(a)は常温にて2か月時効($L=0.7\mu\text{m}$)した試料で、大きな伸びを示す低ひずみ速度($\dot{\epsilon}=1.9\times 10^{-3}\text{s}^{-1}$)では α 相、 β 相ともに回折波形は変形前後で大差なく、その分離状態も良好であることから、変形は主に粒界移動によって進行すると思われる。一方、高ひずみ速度($\dot{\epsilon}=1.9\times 10^{-1}\text{s}^{-1}$)では、ひずみ e_1 が小さいにもかかわらず分離状態は変形前より若干悪くなり、相当の粒内すべりが起こっているものと思われる。(b)は時効未完

(A) binary alloy (SPZ), $L=0.8\mu\text{m}$ ($\times 1500$)

(B) quaternary alloy (SPZ-CM), $L=0.8\mu\text{m}$ ($\times 150$)

Photo.4 Scanning electron micrographs of the fracture surface of the binary and quaternary alloys.

(a), (d) $\dot{\epsilon}=1.9\times 10^{-3}\text{s}^{-1}$
 (b), (e) $\dot{\epsilon}=1.9\times 10^{-2}\text{s}^{-1}$
 (c), (f) $\dot{\epsilon}=1.9\times 10^{-1}\text{s}^{-1}$

$\times 10^{-2}\text{s}^{-1}$) の場合には、両者が部分的に混在した破面が得られ、その凹凸は(c)のように激しくない。

SPZ-CM の試料では、母相 α' 粒界に β 相が優先的に析出するため⁽⁶⁾、網目状 α' 粒界が認められる。この試料を引張変形すると(d)~(f)のごとく、高ひずみ速度ほど塊状($40\mu\text{m}$ 程度)の α' 粒界でのぜい性的な破面がより多く観察され、低ひずみ速度では dimple 破面となっている。

Fig.5 X-ray diffraction patterns before and after tensile deformation of the binary alloy (SPZ).

了側において粒径が小さい($L=0.4\mu\text{m}$)場合の例で, 変形前においても微細粒のために回折図形の分離が悪い。この試料を低ひずみ速度で変形すると分離は変形前より良くなる。これは粒界移動によって結晶粒の成長が起こったためと考えられる。これに対して高ひずみ速度の場合には, 変形前よりさらに分離が悪くなり, 粒内すべりが変形に大きく寄与していることがわかる。また(c)の粒径が大きすぎる($L=4.9\mu\text{m}$)場合には, ひずみ速度に関係なく変形後は半価幅が広がり, Photo.3(c)の変形後の内部組織でも認められたように, 主に粒内すべりによって変形が進行したものと考えられる。なお, この試料は 250°C で時効した後, 同温度より空冷したもので, 変形中に溶解度変化が起こり, 回折角度が多少移動している。

V. 総 括

Zn-22% Al 共析合金の結晶粒径およびひずみ速度の常温引張特性への影響を検討し, その変形挙動を解析した結果次の結論を得た。

(1) 結晶粒径と最大引張応力および全伸びとの間には, ひずみ速度をパラメーターにした相関関係があり, 各ひずみ速度において全伸びが最大値を示す粒径が存在し, その粒径はひずみ速度が大きくなるほど小さくなる。

(2) ひずみ速度依存性指数 m は, 粒径 $0.6\sim 0.8\mu\text{m}$ で最大($m=0.22$)となり, $4\mu\text{m}$ 以上の粒径になると $m=0$ となってひずみ速度依存性はなくなる。

(3) 同じ粒径でもひずみ速度域によって m 値は変化し,

m 値の大なる低ひずみ速度域では全伸びは大きく, 高ひずみ速度域になり m 値が低下すると全伸びは小さくなる。

(4) $0.6\sim 0.8\mu\text{m}$ の粒径の試料を低ひずみ速度で引張変形すると, 150% 程度の大きな伸びが得られるが, この場合の変形は α - β 粒界すべりによるもので, 変形後はその粒界移動によって結晶粒は成長する。一方, 高ひずみ速度の場合には, 変形初期に生じた母相 α' 粒界のすべりから, 破壊が進行して数%の小さな伸びで破断し, その破面は α' 粒径に相当する粗い破面を生ずる。

(5) $4\mu\text{m}$ 以上の粗い粒径の試料の変形挙動はひずみ速度に無関係で, 変形初期に α' 粒界でのすべりを生ずるが粗粒のため α - β 粒界すべりは起こりにくく, α, β 両相の粒内すべりによって変形する。

文 献

- (1) W.A.Backofen, I.R.Turner and D.H.Avery: Trans.ASM, **57**(1964), 980.
- (2) G.R.Rosemore: J.Inst.Metals, **101**(1973), 59.
- (3) R.L.Coble: J.Appl.Phys., **34**(1963), 1679.
- (4) 加藤光治, 河合栄一郎, 六崎賢亮, 宮川松男: 日本金属学会誌, **38**(1974), 539.
- (5) A.Ball and M.M.Hutchison: Metal Science J., **3**(1969), 1.
- (6) 広橋光治, 河合栄一郎, 六崎賢亮, 宮川松男: 日本金属学会誌, **41**(1977), 487.
- (7) 竹岡健治, D.Oelschlägel, 和泉 修: 日本金属学会誌, **35**(1974), 780.
- (8) J.C.M.Li: J.Appl.Phys., **33**(1962), 2958.