高温周期応力下におけるアルミニウムの表面縞模様形成過程

大橋 賢一* 福富 洋志**, 遠藤 孝雄**

J. Japan Inst. Metals, Vol. 53, No. 5 (1989), pp. 529-535

Formation Process of Surface Markings during Fatigue of Aluminum at Elevated Temperatures

Ken-ichi Ohasi*, Hiroshi Fukutomi** and Takao Endo**

Observations were conducted on the specimen surface after high temperature fatigue of aluminum by means of optical and interference microscopy. The surface markings produced during high temperature fatigue were convex or concave under the action of tension-compression stress cycles, whereas they were like stairs under the action of tension-tension stress cycles. Based on the metallographic observations, a model for the formation process of surface markings was proposed. It was confirmed experimentally that the first faint groove, which appeared in a specimen subjected to a process of annealing-mechanical polishing-electrolytic polishing prior to a fatigue test, corresponds to the position of grain boundary just after annealing. However, the grain boundary position just before the fatigue test was different from that after electrical polishing. This is because the grain boundaries which intersect free surface are liable to move during the heating-up process prior to high temperature fatigue in order to decrease their interfacial energy. This explains the first large displacement of grain boundary migration. A tentative model was proposed to account for the reason why the displacement of grain boundary migration during high temperature fatigue is large notwithstanding the small unidirectional deformation.

(Received January 6, 1989)

Keywords: surface markings, fatigue, high temperature, aluminum, grain boundary migration, grain boundary sliding, cyclic deformation

I. 緒 言

高温疲労中では疲労サイクルに対応した表面縞模様を形成しながら結晶粒界が移動し、結晶粒界が最大せん断方向に揃った矩形状組織(squared-up grain structure, diamond structure)となる⁽¹⁾⁻⁽⁴⁾。矩形状組織が形成されると、結晶粒界すべりが同一箇所ですべて生じるため結晶粒界にキャビティが形成されてついには破壊にいたる⁽⁵⁾⁻⁽⁷⁾。

高温疲労における結晶粒界すべりや粒界移動については幾つかの報告があり、表面縞模様の形成モデルの提案⁽⁸⁾⁽⁹⁾もなされている。しかし、結晶粒界の挙動については、高温疲労の本質に係わる重要な問題でありながら今日まで明らかにされていないことも多い。これらを列挙すると次のようである。

(i) 疲労サイクルのどの過程で何時、結晶粒界が移動するのか、結晶粒界すべりは、粒界移動と同時に起こるのか、それとも交互に生じるのか。

(ii) 周期変動応力下では、一方向の変形に比して粒界移

動量が大きいのはなぜか。

(iii) 第1番目の表面縞模様が持つ特徴は、一般に2番目以降の縞の特徴と異なっているが、その理由は何か。

(iv) 応力サイクルにともなう結晶粒界の第1跳躍がそれ以降の跳躍に比して大きいのはなぜか。

(v) 表面縞模様の数がサイクル数と一致する場合も少ない場合もあるがその理由は何か。

(vi) 高温疲労の過程で消滅する結晶粒は一般に平均粒径よりも小さいように見えるがその理由は何か、等である。

著者等は疲労試験中の縞模様の形成過程の準その場観察を行い⁽¹⁰⁾、この種の研究で観察される第1番目の浅い溝(faint groove, 以下では, f. g. と略す)は、加熱前に存在していた結晶粒界の位置に対応し、疲労試験中に形成されたものではないこと、f. g. に続く縞は(これを第2番目の縞と定義する)疲労試験の応力付加直前の結晶粒界位置に対応するものであることを指摘した。本論文では、第1番目の浅い溝(f. g.)が疲労試験前の粒界位置を示していること、第1番目の粒界跳躍が疲労応力の付加に先立つ加熱中に生じていることを実験的に示し、簡単なモデルで小さ

* 横浜国立大学大学院生, 現在: 特許庁(Graduate Student, Yokohama National University, Yokohama).
Present address: Japanese Patent Office, Tokyo)

** 横浜国立大学工学部生産工学科(Department of Mechanical Engineering and Materials Science, Yokohama National University, Yokohama)

い結晶粒の第1跳躍が2番目以降の粒界移動に比して大きい理由を説明する。続いて、引張-引張反復疲労試験の結果を基にして表面縞模様の形成モデルを示し、高温変動応力下では単軸応力時より粒界移動が容易な理由等を考察する。

II. 実験方法

1. 試料の作成

用いた試料の純度は99.99%Alである。疲労試験には、平行部の幅16 mm、長さ25 mm、厚さ7 mmの試験片を用いた。疲労試験における応力軸は圧延方向に一致させた。試験片の焼鈍温度は850 Kで焼鈍時間は3.6 ksである。焼鈍後(一部の試料については焼鈍前に)、ゲージ部を機械研磨した上で10 mm四方を電解研磨して組織観察に供した。電解液の成分は前報⁽¹⁰⁾に示した。

2. 疲労試験

疲労試験機には、クローズドループシステム(閉回路制御系)の電気油圧サーボ式材料試験機(島津, EHF-EA5型)を用いた。本機は、荷重制御時にストロークを副制御(主制御より感度が低い)することによって、試験片に荷重を与えることなく試験片をつかみ具に取り付けることができる。また、荷重を主制御しているのので、加熱時にも試験片に熱応力が生じない。雰囲気加熱炉には、赤外線反射炉を用いた。試験方法の詳細は前報⁽¹⁰⁾に示した通りである。

3. 組織観察

同一場所の試験前後、再研磨・腐食後の光学顕微鏡観察および干渉顕微鏡による試料表面の縞の観察を行った。干渉顕微鏡は白色光源による干渉縞を利用し、そのずれから、0.03~20 μm の微小高低差を測定することができる。

III. 実験結果

1. 熱衝撃による結晶粒界の可視化

第1番目の縞模様(f.g.)を干渉顕微鏡で調べた結果、溝の深さが他の縞に比べて浅いことが見出された。また、1番目の縞と2番目の縞との間の粒界移動距離(第1跳躍距離)は、その後の粒界移動距離に比して一般に大きい。これ等の事実、最初の縞の形成機構が、それ以降の縞の形成機構とは異なっていること、結晶粒界の第1跳躍が疲労試験前の昇温の際に生じている可能性を暗示している。この点に関しては、Yavari および Langdon⁽¹¹⁾も第1番目の弱いコントラスト(f.g.)は結晶粒界がもともと存在していた場所であろうと述べているが、証拠は示されていない。

この疑問に答えるには、荷重付加直前の結晶粒界位置を知る必要がある。結晶粒界位置を調べるには熱腐食によっ

て粒界溝を掘る方法も考えられるが、アルミニウムの場合、酸化膜が緻密なので必ずしも適当な方法とは言えない。それゆえ、本研究では以下の手法で熱衝撃により疲労試験直前の粒界位置を明らかにすることを試みた。まず、冷間圧延したままの疲労試験片の片面をパフ研磨後電解研磨をして鏡面に仕上げる。この試験片を1 K/sの加熱速度で昇温し、850 Kに到達するとその温度で3.6 ks保持し水中に焼き入れる。この一連の過程で試験片は再結晶して平均粒径が1~2 mmになり、水冷の過程で試験片は熱衝撃を受ける。熱衝撃を受けた試験片の光学顕微鏡写真をFig. 1(a)に示す。試験片には、熱衝撃のために多くのすべり線が認められるが、結晶粒界位置も明らかになってい

Fig. 1 Variations of temperature, load and strain with time during a high temperature tensile test which is equivalent to the first 1/4 cycle of the fatigue test.

Fig. 2 Optical micrograph showing the position of the first grain boundary sliding. (a): after a thermal shock, (b): after 1/4 cycle, (c): after etching.

る。一方、同じ試験片の他の面は水冷後に通常の方法で機械研磨と電解研磨を施して結晶粒界が観察できるようにした。その時の光学顕微鏡写真を Fig. 2(a) に示す。このようにして準備した試験片に 1/4 サイクルの引張荷重を付加した。前報で明らかにしたように、粒界移動は除荷過程で生ずるので、試験片の冷却は荷重を付加したまま送風して行い、粒界位置を凍結した。試験片を取り付ける際の応力や加熱・冷却の際の熱応力を避けるために荷重制御機構を働かせた。試験温度(748 K)まで加熱する時の昇温速度も 1 K/s である。試験機系の温度が安定するのを待って荷重を付加した。荷重が 200 N に到達した後に割り型の赤外線加熱炉の扉を開放して送風により試料の冷却を行っ

Fig. 3 Optical micrograph showing the position of the first grain boundary sliding. (a): before test, (b): after polishing plus 1/4 cycle, (c): after etching.

た。この際荷重は 200 N に保った。この時の温度変化、荷重変化および荷重を一定に保つために要した試験片掴み部の変位の時間変化を Fig. 3 に示した。Fig. 3 から分かるように送風急冷の間も荷重制御機構が働き荷重はほぼ一定に保たれている。

Fig. 1(b) および Fig. 2(b) は、このようにして得た 1/4 サイクルの引張試験後の光学顕微鏡写真である。熱衝撃で結晶粒界を可視化した面では、1/4 サイクル(引張荷重下)で Fig. 1(a) に示した粒界上で粒界すべりが起こっていることが粒界上の段差によるコントラストから分る。一方、焼鈍・電解研磨後に 1/4 サイクルの引張荷重を負荷し、その後送風急冷した面では、電解研磨により蝕刻された粒界位置とは異なった場所で粒界すべりが生じている(Fig. 2(b))。Fig. 1(c) および Fig. 2(c) は、それぞれ Fig. 1(b) および Fig. 2(b) を再研磨した後の光学顕微鏡写真である。表面層の除去による影響を考慮してこれらの写真を見比べると、冷却過程では結晶粒界がほとんど移動していないと考えられる。

この結果は、(1) 焼鈍後の電解研磨により出現した結晶粒界は試験片取り付け後の加熱中に粒界移動すること、(2) 疲労試験により形成される表面縞の内、第 1 番目の縞は疲労試験中に生じたものではないこと、(3) 第 1 跳躍は疲労試験前に生じていることを示している。

2. 粒界すべりと粒界移動

前報⁽¹⁰⁾において、引張反復試験においても結晶粒界移

動が生じること、すなわち粒界移動にとって引張荷重に続く圧縮荷重の付与は不可欠なものではないことを明らかにした。引張反復試験においては縞模様が階段状で階段の数がサイクル数に対応していた。ここでは、引張圧縮の繰り返しを2サイクル、その後引張-引張のサイクルを4回繰り返した結果を示す。Fig. 4は、その時の荷重-変位曲線、Fig. 5はこれらの荷重サイクルが終了した後の組織を示す干渉顕微鏡写真である。写真の中にある等間隔の線は0.1 mmの間隔を持った目盛りである。この写真からも第1跳躍距離が他の粒界移動距離に比して著しく大きいことが分かるが、第1跳躍距離が0.3 mm程度になる場合も観察された。この写真の干渉縞の場合、除荷過程で生ずる粒界移動の量が、粒界すべり量に比して小さいために判然としないが、2回の引張圧縮に対応した2つの凹凸状の縞(干渉縞が波打っている)に引き続いて、引張反復による階段

状の縞(干渉縞が一方向にずれていく)が4本形成されているのがわかる。

前報⁽¹⁰⁾においても指摘したように、引張反復試験における表面縞模様が階段状であることは、粒界すべりが生じている時には粒界は移動せず、結晶粒界移動が生じている時には粒界すべりは生じていないこと、すなわち荷重が増加している過程では粒界すべりが生ずるが、荷重が減少する過程では粒界すべりは生じないことを示しており、見掛け上粒界すべり硬化⁽¹²⁾が生じている†。また、引張-圧縮疲労試験の縞模様が凹または凸型であることは、引張荷重が試料に作用している時の粒界すべり方向と圧縮荷重が付加されている時の粒界すべり方向とは互いに逆方向になっていることを示している。縞模様の形成機構についてはⅣ.3でさらに詳しく考察する。

Ⅳ. 考 察

1. 疲労試験前の粒界移動

高温疲労試験で観察される表面縞のうち、第1番目の跳躍は、電解研磨した試験片を試験機内で加熱する過程で生ずる粒界移動によることをⅢ.1で示した。ここでは、疲労試験前に生じる粒界移動の理由とこれに関連した現象について議論する。

冷間加工後再結晶処理をすると、自由表面に顔を出している粒界はその界面張力によって試料表面に垂直になるようにする。この様子をFig. 6(a)に示した。一般には、再結晶処理後に機械研磨と腐食を行った上で疲労試験に供する

Fig. 4 Variation of load with stroke at 748 K.

Fig. 5 Optical micrograph showing the surface steps. The stress cycles subjected to the specimen are shown in Fig. 4.

Fig. 6 Schematic illustration of grain boundary migration before a test. (a), (b) and (c) show the cross sections of a fatigue specimen after annealing, after electrolytic polishing and after heating up to a fatigue temperature, respectively. The dotted lines indicate the surface position after annealing.

† 本研究は、連続観察ではないので除荷過程の初期に粒界が移動しているのか、除荷過程の終期に粒界が移動しているのかは明らかでない。従って、たとえ粒界移動中に粒界すべりが生じていても前者の速度が後者に比して著しく速いと階段状の縞模様が形成され、見掛け上粒界移動中には粒界すべりが起こらないように観察される可能性は残されている。

ので、表面層が削られる。本研究の場合、この量は機械研磨で約 0.1 mm (ノギスによる測定)、電解研磨では、約 0.07 mm (顕微鏡の焦点位置の変化量のダイヤルゲージによる測定) であった。このように再結晶処理後に表面層を削り落とすと一部の粒界が自由表面に対して垂直でなくなり不安定になる。しかし、室温付近では結晶粒界は移動できないので、電解研磨するとこの不安定な粒界と自由表面との交切部分に凹状の溝が形成される。Fig. 6(b) はこの時の様子を示したものである。このような試験片を粒界移動可能な高温で保持すると、結晶粒界が自由表面に対して垂直になるように移動する。この時の様子を Fig. 6(c) に示す。これらの図から分かるように、再結晶処理後に研磨した試験片を用いると、疲労試験前に浅い凹状の溝 (faint groove) に対応する縞が観察される場合が生じる。このような場合には、第 1 回目の粒界すべりが f. g. 以外の所で生じる。

また、Fig. 6 から以下のことが予想される。即ち、粒径が揃っている場合、表面上で比較的小さく見える粒は、研磨で粒の一部が露出している場合か、研磨で粒の大部分が削られて一部が残っている場合である。従って、前者では粒界が広がる方向へ動き、後者では結晶粒が消滅する方向に結晶粒界が動くことが期待される。さらに、表面上で観察した時に小さい結晶粒は大きい粒に比して粒界移動距離が大きいことが期待されるが、このことも組織観察中にしばしば経験することと一致している。

Fig. 2(b) で、消滅する方向に結晶粒界が大きく動いた中央の小さな粒は、再研磨後腐食した Fig. 2(c) では存在していない。これは、疲労試験前に行なった機械研磨で結晶粒の大部分が削られて、その粒の一部のみが残っていた場合に相当すると考えられる。

2. 結晶粒界移動の駆動力

高温疲労における特徴の 1 つに矩形状組織の形成がある。矩形状組織の形成機構については粒界すべりによるひずみ誘起説⁽²⁾⁽⁶⁾⁽¹³⁾ 応力誘起説⁽⁸⁾、亜粒界説⁽¹⁾ などがある。しかし、準その場観察および引張反覆試験の結果から、粒界すべりと粒界移動が交互に生じることが明らかになった。このことは、粒界すべりによって生じた歪みが粒界移動の駆動力になることを示しており、歪誘起粒界移動説を支持する根拠になり得る。しかし、矩形状組織の形成は一方変形では起こらないので⁽²⁾⁽¹⁴⁾ (起きると言う報告⁽⁶⁾ があるが詳細は記述されていない)、なぜ高温疲労条件下では粒界の移動量が一方変形に比して大きいかを議論する必要がある。

高温疲労でできる矩形状組織が、粒界三重点近傍の粒界移動によって形成されることは、間淵等⁽²⁾ によって確認されており、本研究の観察においても随所に認められる。そこで、Fig. 7(a) に示すような粒界三重点を考える。高温では粒界すべりが顕著になるので、図中に示した応力軸方

Fig. 7 Schematic illustrations of grain boundary sliding and grain boundary migration. The average dislocation density is designated by ρ_1 . ρ_2 ($\rho_2 > \rho_1$) is the dislocation density of the region where high stress concentration is caused by the grain boundary sliding. ρ_0 ($\rho_0 < \rho_1$) is the dislocation density of the region swept out by high angle grain boundaries.

向に外力がかかると大きなせん断応力を受ける粒界 OA がすべろうとする。結晶粒界がすべると粒界 OB および OC を含む結晶粒に粒界すべりによる応力集中で塑性変形が生じ、この結晶粒の転位密度が増す。この時の転位密度を ρ_2 とすると、この値は他の結晶粒の平均転位密度 ρ_1 よりも大きいので、転位密度の差に比例した粒界移動の駆動力が粒界 OB および OC に働き、Fig. 7(b) のように結晶粒界が移動する。これが粒界すべりによる歪誘起粒界移動説である。しかし、この説明では、引張試験やクリープ試験においても高温疲労条件下の粒界移動と同程度の粒界移動量が期待されることになるが、実際の一方変形では大きな粒界移動は観察されていない。高温疲労条件下で粒界移動量が大きい理由の 1 つは、一方変形に比して累積総歪量が大きい事も原因の 1 つと考えられるが、引張反覆試験では累積総歪量が小さくても結晶粒界が移動し続けることを考慮すると、高温疲労条件下で粒界移動量が大きい理由を累積総歪量の差のみで説明するのは適当ではない。

一般に、大角粒界は移動の過程で転位を吸収するため、大角粒界が移動した後は低転位密度の領域が存在する⁽¹⁵⁾。ここでは、この低転位密度領域に及ぼす変形モードの影響を考慮した議論を行なうために、移動した大角粒界 OB および OC の後方に生じた低転位密度領域の転位密度を ρ_0 で表わす (Fig. 7(b))。いま、試験片に一定応力が負荷されている場合や応力が増加している場合を考えると、粒界移動によって転位密度が一旦 ρ_0 に低下しても、変形が継続しているためたちまちこの低転位密度領域に転位が導入されて ρ_1 ($\rho_1 > \rho_0$) になる。したがって、粒界移動の駆動力が減少し、大きな粒界移動を期待することはできない。

一方、高温疲労試験では、粒界移動が応力の減少中に生じるので、一定応力負荷の高温変形に比して低転位密度領域における転位の増殖は不活発であろう。このことは、粒

界を挟む領域の転位密度差が大きい状態、すなわち、高温疲労条件下では粒界移動の駆動力となる歪みエネルギー差の大きい状態が、一定応力条件の場合よりも長く続くことを意味している。高温疲労条件下における粒界移動量が大きいのは、恐らく、低転位密度領域が形成された後に負荷応力が減少することと関係しているであろう。

3. 表面縞模様の形成過程

本研究では、引張圧縮と引張反復とを組み合わせ、試料表面にできる組織との対応を確認し、Fig. 5 に示した。この観察結果に基づいて表面縞の形成過程を模式的に示したのが Fig. 8 である。Fig. 8 の右上には、試験片が引張-圧縮疲労サイクルを受けた時の試料断面を、右下には引張-引張のサイクルを受けた時の試料断面を示してある。試料の表面から見える粒界は、一端が拘束されていないのですべり易いと考えられ、Fig. 8 では、正の荷重が負荷された時に結晶表面に凸部ができる粒界が示してある。応力が減少に転じた時には、前に述べたように、たとえ正の荷重が負荷されていても粒界の移動中は、ほとんど粒界すべりが起こらず、応力が逆転すると粒界は逆向きにすべる。結果として引張圧縮では凹凸状、引張反復では階段状の縞ができる。今回行った実験では、正弦波形の表面縞模様は観察されなかったが、高温曲げ疲労の研究では、美しい正弦波形の縞模様が形成されており⁽⁹⁾⁽¹⁶⁾、粒界が移動している間でも粒界すべりが生じているように見える。また、本実験において観察された組織においても Fig. 8 の模式図に比べると階段状の部分がなだらかになっている。これは、応力増大時にも結晶粒界が移動している可能性を示唆しているともいえるが、粒界近傍の塑性変形で階段状の部分がなだらかになっている可能性もある。例えば、Fig. 1(c)で、三重点だけではなく、左上方のすべりを起こした粒界に沿って亜粒界が存在している。これは、粒界すべりに伴い粒界近傍が変形することを示すものである⁽¹⁷⁾。これらも段差をなだらかにする原因であろう。今回の縞模様が凹凸ま

たは階段状であるのに対し、高温曲げ疲労では、表面縞模様が正弦波形になる理由は明らかではない。今後の検討が必要であろう。

V. 結 論

高温疲労試験中に生じる縞模様の形成機構に関し、従来の研究で明らかにされていない幾つかの重要な問題が残っている。本研究では、これらの諸問題を明らかにする目的で、荷重制御の引張圧縮試験、引張反復試験を行ない、以下の結論を得た。

(1) 表面の縞模様は、粒界すべりと粒界移動が交互に生じる事により形成される。

(2) 粒界移動の駆動力は、粒界すべりによって生じる粒界三重点近傍の塑性歪みによると考えられる。

(3) 粒界すべりは応力の絶対値が増大する過程で生じ、粒界移動は応力の絶対値が減少する過程で生じるので、表面の縞模様は引張圧縮試験においては凹凸状、引張反復試験では階段状になる。

(4) 高温交番応力下では、一方向の変形に比して大きな粒界移動が観察される。これは、矩形状組織ができるまでの間、粒界が周期的に移動し、粒界すべり硬化が生じていない新しい領域で粒界すべりが周期的に生じることおよび繰り返して生じる粒界すべりによって、粒界移動の駆動力が繰り返して生ずるためと考えられる。

(5) 表面縞模様のうち、第1跳躍はその他の粒界移動に比して大きい。この第1跳躍は、疲労試験の前に生じたものである。本稿では、その実験的証拠と試験前の粒界移動を説明するモデルを示した。高温疲労試験で消滅する結晶粒は一般に小さいが、このことは、上記のモデルで簡単に説明できる。

本研究の一部は軽金属奨学会のグループ研究助成金によって行なわれたことを記し、感謝の意を表します。

文 献

- (1) H. J. Westwood and D. M. P. Taplin: Metall. Trans., 3(1972), 1959.
- (2) 間淵 博, 今井 修, 岡下幸市, 中山 豊: 日本金属学会誌, 48(1984), 522.
- (3) K. U. Snowden: Philos. Mag., 6(1961), 321.
- (4) 竹内 栄, 本間恒夫: 日本金属学会誌, 29(1965), 764.
- (5) 竹内 栄, 本間恒夫: 日本金属学会誌, 29(1965), 757.
- (6) G. Wignmore and G. C. Smith: Met. Sci. J., 5(1971), 58.
- (7) 間淵 博, 中山 豊: 軽金属, 35(1985), 447.
- (8) T. G. Langdon and R. C. Gifkins: Acta Metall., 31(1983), 927.
- (9) P. Yavari and T. G. Langdon: Acta Metall., 31(1983), 1595.

Fig. 8 Formation process of surface markings under the stress modes of tension-compression and tension-tension.

- (10) 大橋賢一, 福富洋志, 遠藤孝雄: 軽金属, **39**(1989), 5号印刷中.
- (11) P. Yavari and T. G. Langdon: *Scr. Metall.*, **13**(1979), 191.
- (12) F. Weinberg: *Trans. AIME*, **212**(1958), 808.
- (13) 竹内 栄, 本間恒夫: 日本金属学会誌, **29**(1965), 521.
- (14) 間淵 博, 中山 豊: 材料科学, **23**(1987), 7.
- (15) K. T. Aust, E. T. Koch and C. G. D. Dunn: *Trans. Met. Soc. AIME*, **215**(1959), 90.
- (16) T. G. Langdon: *Low Cycle Fatigue and Elasto-Plastic Behaviour of Materials*, Ed. by K.-T. Rie, Elsevier Applied Science, London, (1987), 71.
- (17) V. Raman: *Metall. Trans. A*, **174A**(1986), 1100.