アルミニウム合金の極低温における セレーション発生時の不均一変形

倉本 繁[†] 菅野 幹宏 伊藤 吾朗

東京大学工学部材料学科

J. Japan Inst. Metals, Vol. 57, No. 10 (1993), pp. 1130-1135

Localized Deformation of Aluminum Alloys during Serrated Flow at Cryogenic Temperatures

Shigeru Kuramoto, Motohiro Kanno and Goroh Itoh

Department of Materials Science, Faculty of Engineering, The University of Tokyo, Tokyo

Plastic flow localization at the liquid helium temperature has been investigated for Al-Zn-Mg base alloys (7020), which have been applied for cryogenic propellant tankage. As the specific heats of metallic materials decrease with decreasing temperature, a temperature increase produced by plastic work at cryogenic temperatures will be appreciably higher than that produced at room temperature. This temperature rise in the deformed region can make the flow stress significantly lower than otherwise, giving rise to a serrated stress-strain curve at the temperatures below 40 K. In the present work, changes in test piece profiles are studied through the high magnification recording by use of a surface roughness measuring instrument. As a result, each load drop during serrated flow corresponds to a neck formation, which has been observed in ferrous alloys and titanium alloys. It should be noted that necking accompanied by each load drop is outstanding particularly in the specimens with a strong texture that arose from rolling or extruding. In these textured specimens, the sudden rise in temperature allows a great number of grains to deform all at once since the schmid factor of each grain is almost alike. Besides the texture, strain hardening also affects the characteristics of the localized plasticity. The extruded specimen that has the [111] fiber texture exhibits higher strain hardening rate and higher flow stress level at large strain than other specimens. For this reason, larger local reduction accompanied by each load drop is observed in the cross-sectional area of the extruded specimen.

(Received April 23, 1993)

Keywords: cryogenic temperature, low specific heat, plastic localization, serration, aluminum-zinc-magnesium alloy, surface roughness, test piece profile, texture

I. 緒 言

金属材料の変形は特定の結晶面に沿って特定の結晶学的方向に起こるという意味において本来不均一なものであるが、著しい変形の局在化は破壊を早期化し、その結果材料の延性・靱性を劣化させることになる。そこでこれまでに様々な不均一変形現象について多くの研究がなされてきた⁽¹⁾。不均一変形はすべり帯の形成のような結晶粒レベルのものからリュースダース帯の伝播のような試験片全体に及ぶものまで様々なスケールで発現する。約40 K以下の極低温環境下での変形に特徴的なセレーションも、そのような不均一変形の一つの例とされている。

極低温でのセレーションの発生機構は室温以上で観察されるセレーションのそれとは異なり、極低温で特徴的な断熱変形に基づくものであると考えられている⁽²⁾。一般に金属材料の比熱と熱伝導度は温度の低下とともに大幅に減少し、Fe-42%Ni合金を例に挙げると、液体ヘリウム温度(4.2 K)での比熱は室温

における値の約1/1000に、熱伝導度は約1/50になる。したがって極低温環境下においては、材料の一部分でわずかな塑性変形が生じただけでも塑性仕事によりその部分が断熱的に発熱し、そのためその領域が局所的に軟化して高歪速度で変形するとされている。また、その断熱変形に伴う局所的な温度上昇は鉄鋼材料では150 Kになるという報告もある⁽³⁾。このような不均一変形は極低温での材料の延性・靱性に様々な影響を及ぼすだけでなく、変形部の温度が上昇すること、および試験片の変形履歴が一樣でないことから機械的特性の評価の妨げにもなる。

Shibataら⁽⁴⁾は、鉄鋼材料のセレーションに及ぼす試験条件や材料特性の影響を、実験と計算機シミュレーションを通して詳細に調べている。そして試験片形状、冷媒の種類、試験機剛性、歪速度、熱伝導度、変形強度、加工硬化特性等がセレーション発生挙動に影響を与えることを明らかにしている。また、投影機などを用いてセレーション発生時の試験片の形状変化が調べられており、鉄鋼材料⁽⁴⁾やチタン合金⁽⁵⁾では1回の荷重低下が引張試験片平行部の1つのくびれに対応し、破断後の

[†] 東京大学大学院生

平行部には複数のくびれが存在すること等が明らかになっている。

一方宇宙ロケット等の極低温構造材料として使用されているアルミニウム合金に関しては、鉄鋼材料やチタン合金に比べてセレーシヨン発生時の応力振幅が小さく、局所変形量も小さいと考えられている。これは極低温においてアルミニウム合金の変形荷重レベルが鉄鋼材料やチタン合金に比べて小さく、熱伝導度は約10倍と大きいことに基づく⁽⁴⁾とされている。よって、極低温でのセレーシヨンがアルミニウム合金の変形・破壊挙動に及ぼす影響は前記の他の合金などに比べて小さいとも考えられる。しかしアルミニウム合金においてもセレーシヨン発生時の断熱変形量が大きい場合には破壊が早期化される⁽⁶⁾という報告があり、またこれまでに一般にアルミニウム合金の延性は温度低下にしたがって上昇するものの、セレーシヨンが発生する極低温域では延性が低下する傾向にある⁽⁷⁾ことがわかっている。

以上のようにアルミニウム合金の極低温における機械的特性の評価、およびそれに及ぼすセレーシヨンの影響に関する議論は行われてきたものの、セレーシヨン発生時の変形挙動に関する検討はほとんどなされていない。この原因として、アルミニウム合金においては前述のようにセレーシヨン発生時の局所変形量が小さいため、これまでのような投影機等による試験片観察では不均一変形の形跡の検出が不可能であったことが考えられる。そこで本研究では、引張試験片の表面起伏を表面粗さ測定機により高倍率にて測定することにより、時効硬化型アルミニウム合金の極低温におけるセレーシヨン発生時の不均一変形挙動について検討した。また研究の遂行途中において加工集合組織が不均一変形挙動に大きく影響することが判明したため、とくにその点について詳しく考察した。

II. 実験方法

不均一変形挙動を明らかにするためには、できる限り大きなセレーシヨンを発生させる方がよいであろう。そこで本研究では、極低温での使用実績があるアルミニウム合金のうち最も強度が高いAl-Zn-Mg系の7N01系合金[†]を主に用いることにした。本研究に使用した4種類の合金の組成をTable 1に示す。7N01Rと7N01Eはそれぞれ市販の熱延板(26 mm²)、押出棒(φ15 mm)であり、靱性や耐SCC性を向上させるために再結晶抑制効果の高いジルコニウムやクロムが添加されている。こ

Table 1 Chemical compositions (mass%). Commercial alloys 7N01R and 7N01E were received as hot rolled plate and as extruded bar, respectively.

Alloy	Zn	Mg	Cu	Mn	Zr	Cr	Al
7N01R	4.47	1.42	0.03	0.48	0.09	0.10	bal.
7N01E	4.37	1.18	0.14	0.41	0.09	0.15	bal.
7N01X	4.54	1.40	0.96	0.58	—	—	bal.
2219	—	—	6.46	0.25	0.14	—	bal.

[†] 欧州ではほぼ同一組成の合金(7020)がアリアンロケット⁽⁸⁾に使用されている。

れらに対して7N01Xは研究室で作製した合金であり、ジルコニウムやクロムを含んでいない。この合金を大気中で溶解して金型に鋳造し、均質化処理の後、約70%熱延(〜9 mm²)した。また、7N01系合金と同様に極低温用アルミニウム合金として用いられている2219合金を上記3種の7N01系合金との比較材として用いることにし、26 mm²の熱延板から切り出した角棒を冷間スウェーjing加工してφ8 mmとした。以上の計4種類の時効硬化型アルミニウム合金を平行部長さ10 mm、直径3.5 mmの丸棒引張試験片に加工した。引張軸は圧延または押出方向に平行とした。

7N01系合金の熱処理としては743 K、1 hの溶体化処理・水焼入れの後、313 K、24 hの予備時効および393 K、48 hの最終時効処理を行った(T6処理)。2219合金には813 K、1 hの溶体化処理・水焼入れの後、7%の引張変形を与えてから448 K、18 hの時効処理を施した(T87処理)。熱処理後の結晶粒組織を顕微鏡で観察し、溶体化処理時に再結晶しなかった試料(7N01Rおよび7N01E)については溶体化処理後に残存する加工集合組織を調べるため、X線回折により粉末試料との強度比を求めて逆極点図を作製した。

試験片の表面起伏については、室温または液体ヘリウム温度(4.2 K)において初期歪速度 8.3×10^{-4} /sで所定の引張変形量を与え、一旦除荷して引張試験機から取り外した後に、接触式表面粗さ測定機Surfcom 570A(㈱東京精密)を用いて、トレース速度0.3 mm/sで引張軸と平行に測定した。丸棒試験片の平行部の表面起伏を測定した後、試験片を引張軸の回りに180度回転させて再び同様の測定を行い、これら2つの表面起伏測定結果を組合せて、平行部の縦断面形状を得た。さらに最初の測定位置から試験片を引張軸の回りに90度回転させて同様の方法で縦断面形状を測定した。すなわち各試験片について、引張軸に対して90度の角度をなす2対の平面による断面を測定した。緒言でも述べたように、アルミニウム合金のセレーシヨン変形時の荷重低下は比較的小さく、それに伴う局所変形量も小さいことが予測されるため、表面起伏の拡大率は測定方向の50ないし100倍としてわずかな局所変形でも検出できるようにした。

またマクロな試験片形状変化以外に、変形後の試料を光学顕微鏡および透過電子顕微鏡で観察することによりセレーシヨン発生時のミクロな変形挙動についても若干の検討を加えた。

III. 実験結果

1. 結晶粒組織

溶体化処理直後の結晶粒組織を、光学顕微鏡で観察した結果をFig. 1に示す。7N01Rおよび7N01Eは熱間加工後の溶体化処理時に再結晶せず、結晶粒は加工方向に著しく延伸されたままである。以下このような組織を未再結晶組織と呼ぶが、これは市販材に含まれているジルコニウム系およびクロム系化合物が溶体化処理中の再結晶を抑制するためである。これら市販7N01系合金に対して、ジルコニウム、クロム等の再結晶抑制元素を含まない7N01X合金、および再結晶抑制元素を含むが溶体化処理温度が7N01系よりも高い2219合金は、溶体化処理中に完全に再結晶してほぼ等軸粒組織となっている。

Fig. 1 Optical micrographs of longitudinal sections after solution treatments.

a: 7N01R, b: 7N01E, c: 7N01X, d: 2219.

2. 液体ヘリウム温度における荷重-変位曲線

4種の試験片を4.2 Kにおいて引張試験して得られた荷重-変位曲線の例をFig. 2に示す。どの試料においても塑性歪量約1%でセレーションが発生し、変形の進行とともに荷重低下量は増加していく。セレーション発生後の変形は不連続な高速塑性変形の繰り返しであり、これが破断まで続く。7N01Eは他の試料に比べて変形荷重レベルが高く、また破断直前の荷重低下量が著しく大きい。この原因については後に考察する。

3. 試験片縦断面形状

引張試験片平行部の縦断面形状測定は、室温および液体ヘリウム温度(4.2 K)において荷重-変位曲線上最高荷重に達する前のいわゆる「一様変形」領域において、変形を中断して行った。約4.5%引張変形した後の7N01Rおよび7N01E合金の試験片縦断面形状測定の結果をFig. 3に示す。試験片平行部には旋削加工により生じた微細な傷(高低差約2 μm, 間隔約0.044 mm)も検出されたが図面作成時に除去してある。4.2 Kでの破断は約4.5%の変形を生じた後、4.2 Kで再び引張変形させて荷重低下をさらに一回生じた後の縦断面形状を示している。7N01Rおよび7N01Eのどちらにおいても室温では平行部表面は比較的均一に断面減少しているようであるが、4.2 Kでは平行部に凹凸が生じており室温で変形した試料より起伏が大きい。縦断面形状測定時には実験方法の項に記したように、

Fig. 2 Load vs. displacement curves at 4.2 K. a: 7N01R, b: 7N01E, c: 7N01X, d: 2219.

Fig. 3 Longitudinal section profiles of 4.5% deformed 7N01R(a) and 7N01E(b). Profiles were recorded with a surface roughness measuring instrument along the tensile axis. Testing temperatures are indicated in the figures. Dashed lines represent the profiles after one additional load drop.

丸棒試験片を引張軸の回りに90度回転させて同様の測定を行ったが、凹部および凸部が試験片平行部引張軸方向のほぼ同じ位置に検出されたため、4.2 Kでセレーション変形した丸棒試験片にはくびれが生じているものと判断される。また、実線と破線とを比較するとセレーション変形時の一回の荷重低下は新たなくびれ(図中に矢印で示した)に対応していることが明らかである。

さらに変形の進んだ塑性伸び約7%での結果をFig. 4に示すが、4.2 Kで変形した試験片の平行部にはFig. 3と同様に凹凸が生じており、室温で同程度変形した試験片の縦断面形状とは明らかに異なっている。またここでも1回の荷重低下によって新たなくびれが生じており、セレーション発生時には荷重-変位曲線上のいわゆる「一様変形」領域においても変形が不均一に進行していることが分かる。

次に、約4.5%引張変形した7N01Xおよび2219合金の縦断面形状をFig. 5に示す。Fig. 3に示した市販7N01系合金と比較すると、試験片平行部には室温変形の後でも大きな凹凸が

Fig. 4 Longitudinal section profiles of 7% deformed 7N01R(a) and 7N01E(b).

Fig. 5 Longitudinal section profiles of 4.5% deformed 7N01X(a) and 2219(b).

存在する。Fig. 1 に示したように、これらの合金は溶体化処理時に完全に再結晶しており、試験片表面付近の各結晶粒の方位の違いによって引張変形時の結晶回転方向が異なるため、試験片表面に細かい凹凸が生じたものと推察される。液体ヘリウム温度での変形の後にも同様の細かい凹凸が見られ、前出の市販 7N01 系合金と異なり、試験温度により縦断面形状にはほとんど差異が認められない。また、1 回の荷重低下により矢印で示した部分が若干くびれているようではあるが、市販 7N01 系と比較すると明瞭でない。約 7% 塑性変形した試料についても同様の測定を行ってみたが、このような傾向は変化しなかった。

Fig. 3 および Fig. 5 の縦断面形状変化から、一回の荷重低下により生じた直径変化を測定した結果を Fig. 6 に示す。この図から、2 つの市販 7N01 系合金には 1 回の荷重低下に対応

Fig. 6 Change in diameter by one additional load drop, ΔD , vs. distance in the axial direction, d . Specimens were deformed by 4.5% at 4.2 K.
a: 7N01R, b: 7N01E, c: 7N01X, d: 2219.

して明瞭なくびれが認められる。最もくびれた部分の直径減少量は約 20 μm となっており、この値は鉄鋼材料⁽⁴⁾やチタン合金⁽⁵⁾の約 1/5~1/10 である。7N01X および 2219 にはこのような明瞭なくびれは生じていない。

4. 液体ヘリウム温度での変形組織

極低温でのセレーションは断熱変形であるとされているが、荷重負荷速度の速い衝撃試験等で断熱変形が生じた場合にはせん断帯 (adiabatic shear band) が観察される⁽⁹⁾ことが多い。実際に、純アルミニウムではセレーションに伴う温度上昇が小さい場合にはせん断帯が観察された⁽¹⁰⁾例がある。そこでまず光学顕微鏡で破断後の試験片の表面および縦断面を観察してみたが、セレーションと対応してすべり線が特定の箇所に集中していたり、せん断帯が生じていたりしているのは確認されなかった。次に 4.2 K で約 13.5% 変形後の試料を TEM で観察してみたところ、Fig. 7 に市販 7N01 系合金についての観察例を示すが、7N01R にはせん断変形の形跡が認められるものの他の試料には認められなかった。

Ⅳ. 考 察

高倍率表面起伏測定により縦断面形状を測定した結果、市販

Fig. 7 Transmission electron micrographs of the specimens deformed by 13.5% at 4.2 K.
a: 7N01R, b: 7N01E.

7N01 系アルミニウム合金の極低温におけるセレーション発生時の荷重低下は丸棒試験片のくびれに対応し、結晶粒組織の違いがそのくびれの出現挙動に大きく影響していることが明らかとなった。以下、セレーション発生時の局所変形挙動に関係する因子について考察する。

セレーション変形中のくびれ発生時の断面減少量は再結晶組織となっている 7N01X と 2219 に比べて、未再結晶組織となっている市販 7N01 系合金において顕著となる (Fig. 6)。緒言でも記したように極低温でのセレーションの発生には、試験条件や材料特性が影響するとされている。これらの因子のうち、試験条件の影響は本研究においては一定であるので除外できる。また材料特性については、Fig. 2 に示したように 7N01E のみ変形強度レベルが高く、加工硬化も大きいようであるが、他の 3 つの試料には顕著な違いはみられない。以上のような状況を踏まえ、セレーション発生時の変形挙動の違いと組織との関係について検討してみる。

熱処理後の時効析出組織を TEM で観察した結果、3 種の 7N01 系合金中には微細な η' が高密度に析出しており、2219 合金中には θ が析出していた。3 種の 7N01 系合金の時効析出組織には差が見られなかったため、集合組織の違いについて以下に比較する。X 線回折により得られた市販 7N01 系合金の引張軸方向の逆極点図を Fig. 8 に示す。板面方向については省略したが、7N01R には $[112](110)$ 熱延集合組織が残存している。また 7N01E には $[111]$ 繊維集合組織が残存している。このように溶体化処理後でも顕著な加工集合組織が残存している場合、シュミット・ファクターがほぼ同様の値となっている結晶粒が多量に存在していると考えられる。このような状況下で一度ある領域内で変形が生じると塑性仕事による発熱に伴って近傍の類似のシュミット・ファクターを有する多くの結晶粒が一度に変形する。これに対して完全に再結晶している場合には、各結晶粒の方位は加工集合組織の発達している場合に比べ引張軸方向に弱い優先方位しか持たない。よってある領域で発熱が起こっても、その近傍の各結晶粒の変形応力レベルがそれぞれ異なるため、比較的変形の局在化が起こりにくいと考えられる。また既述のようにこれらの完全に再結晶している試料においては各結晶粒の方位により結晶回転方向が異なるため、表面に細かい凹凸が多量生じる。その結果として、くびれを生じたとしても検出することがさらに困難になっていると考えられる。

溶体化処理後でも加工集合組織が残存する市販 7N01 系合金と、完全に再結晶する 7N01X および 2219 合金とのセレーショ

Fig. 8 Inverse pole figures in the longitudinal direction. a: 7N01R, b: 7N01E.

ン発生時の不均一変形挙動の違いは以上のように理解できるが、変形量が大きくなった場合には、2 種の市販合金の間にも Fig. 1 の荷重-変位曲線に見られるように変形およびセレーション発生挙動に差異が認められた。他の試料に比べて 7N01E は加工硬化が大きく、破断直前に生じる荷重低下も大きい。Hosford ら⁽¹¹⁾は純アルミニウム単結晶の加工硬化挙動に及ぼす引張方位の影響について調べ、4.2 K においては $[111]$ 方向の加工硬化が最も大きくなるとしている。よって本研究において強い $[111]$ 繊維集合組織を有する 7N01E 合金が最も大きな加工硬化を示すのは、加工硬化挙動の方位依存性によるものと考えられる。また、荷重低下量を変形荷重レベルで規格化した量を塑性歪量に対してプロットすると Fig. 9 のようになり、変形が進むにつれて 7N01E の荷重低下量が急激に増加していることが分かる。これは鉄鋼材料について調べた Shibata らの結果⁽⁴⁾と一致し、加工硬化しやすい材料は塑性変形が進むにつれて変形荷重レベルが高くなって発生する熱量が増加し、引き続き起こる局所変形の量も大きくなるためと考えられる。

このような荷重低下量の差が大きい約 13.5% での市販 7N01 系合金の縦断面形状を比較してみると、Fig. 10 に示すように加工硬化の大きい 7N01E 合金の平行部に発生するくびれはその荷重低下量に対応して 7N01R よりもかなり大きくなっている (縦方向の倍率は Fig. 3~5 の半分となっていることに注意)。また、一回の荷重低下に伴う直径変化を縦断面形状の下

Fig. 9 Amount of stress drop normalized by the stress just before the drop, $\Delta\sigma/\sigma$, vs. elongation plots.

Fig. 10 Longitudinal section profiles of 7N01R(a) and 7N01E(b) deformed by 13.5% at 4.2 K (top). Change in diameter by one additional load drop, ΔD , vs. distance in the axial direction, d (bottom).

に示したが、くびれの発生している領域の広さには顕著な違いが見られないものの、7N01E のくびれによる断面減少量は 7N01R の約 3 倍と大きい。

以上のようにセレーション発生時の試験片平行部の比較的微細な変形挙動と組織との関係については明らかにすることができたが、Fig. 7 で示したように 7N01R にはせん断変形の形跡が認められるものの、セレーション発生時の局所変形量が最も大きい 7N01E にはそのようなせん断変形の形跡が認められない。よって、元々せん断変形を起こしやすい 7N01R ではせん断帯が発生するが、そうでない場合は特に微細な変形の集中を起こさずに通常よりも高速度のすべり変形を起こしているものと推察される。すなわち、セレーションの発生時には局所的な温度上昇を伴う高速局所変形の結果として試験片にくびれが生じるが、その際の微細な変形機構は必ずしも通常の変形機構と異なっている必要はないと結論できる。

V. 結 言

表面粗さ測定機を利用した高倍率表面起伏測定により、7N01 系アルミニウム合金の液体ヘリウム中におけるセレーション変形時の不均一変形挙動について検討し、以下の結果を得た。

(1) 溶体化処理前の加工集合組織の残存する市販 7N01 系合金においては、荷重-変位曲線上の荷重低下がこれまで鉄鋼材料やチタン合金について報告されていたのと同様に、丸棒引張試験片の平行部のくびれと対応する。しかしくびれ発生時の断面減少量はそれらの合金に比べて小さい。

(2) 溶体化処理中に再結晶を起こして等軸粒組織となっている場合には市販 7N01 系合金と異なり、明瞭なくびれは認めら

れない。すなわち、荷重低下と対応するくびれ発生時の断面減少量は集合組織に依存し、引張軸方向に強い優先方位を有する加工集合組織の残存する場合に顕著となる。

(3) 加工硬化が大きい[111]繊維集合組織の場合には、変形の進行に伴う荷重低下量の増加が特に著しく、それに対応してくびれ発生時の断面減少量も比較的大きくなる。

終わりに、本研究の一部は(財)軽金属奨学会の教育研究資金によって賄われたものであり、ここに深く感謝の意を表します。また表面粗さ測定は住友金属鉱山(株)中央研究所において、引張試験は東京大学低温センターにおいてそれぞれ行われた。ここに付記して深甚なる謝意を表します。

文 献

- (1) A. Luft: Progress in Mater. Sci., **35**(1991), 97.
- (2) Z. S. Basinski: Proc. Roy. Soc., **A240**(1957), 229.
- (3) 柴田浩司: 鉄と鋼, **75**(1989), 213.
- (4) K. Shibata, H. Sakamoto, K. Fijita and T. Fujita: Trans. ISIJ, **28**(1988), 136.
- (5) T. Kawabata, S. Morita and O. Izumi: Proc. 4th World Conf. on Ti., (1980), 801.
- (6) G. Y. Chin, W. F. Hosford, Jr. and W. A. Backofen: Trans. Met. Soc. AIME, **230**(1964), 1043.
- (7) 佐治重興, 堀 茂徳: 軽金属, **39**(1989), 574.
- (8) B. Lagouanelle: Revue de L'aluminium, Oct., (1980), 427.
- (9) B. Dodd and Y. Bai: *Ductile Fracture and Ductility*, Academic Press, London, (1987), 123.
- (10) G. Y. Chin, W. F. Hosford, Jr. and W. A. Backofen: Trans. Met. Soc. AIME, **230**(1964), 437.
- (11) W. F. Hosford, Jr., R. L. Fleischer and W. A. Backofen: Acta Metall., **8**(1960), 187.