総 説 REVIEW

超 塑 性 の 前 進†

東 健 司*

Advances in Superplasticity

by

Kenji HIGASHI*

1 は じ め に

微細粒超塑性は、材料を応力のひずみ速度感受性指数 m 値の大きい条件に保持しながら変形すると、非常に低い流動応力と大きな伸び値を示す現象を言う。超塑性の歴史は古く、その現象のルーツは今世紀初頭までさかのぼる。¹⁾ Pearson のぐるぐる巻きの 2000% 伸び値の写真 (Bi-43Sn 共晶合金) は、超塑性に対する強い関心を集めた。第二次世界大戦後、²⁾ Underwood の解説を機に活発な研究が再開されたが、超塑性の明確な解析を為すまでには至らなかった。この超塑性の混沌期に終止符を打ったのは、Backofen である。彼の業績は有名な超塑性流動応力とひずみ速度の現象論的基礎式に集約される。彼の一連の業績は、超塑性研究の基礎的指針であり、現在でも超塑性変形機構を考察する上で中心的役割を果たしている。^{4)~7)}

1970 年代以降は、超塑性の黎明期で、新しい超塑性ニッケル基、チタン基、アルミニウム基そして鉄基合金などが次々と開発、実用化された。^{8)~12)} やがて超塑性を利用した真空あるいはブロー成形品等が工業的に製造され始めると、超塑性成形後の機械的諸特性が意識されるようになった。当時の結晶粒微細化による材料の高強度、高じん性指向の気運とも重なって、既存の実用合金に超塑性特性を付与する加工熱処理法の研究が活発化した。最近では、急凝固技術の発展と粉末冶金技術の応用により、高含有率の複相合金¹³⁾あるいは複合材料¹⁴⁾、メカニカル合金^{15), 16)}、セラミックス^{17), 18)}などでも超塑性の挙動が見い出されている。こうした超塑性の世界規模での高まりは、ここ数年間の超塑性に関連した国際会議開催の頻繁さからもうなづける。^{19)~25)} 各会議の主テーマや発表論文のタイトルを眺めると、〈超塑性の一般的特徴〉→〈超塑性機構と超塑性の問題点〉→〈超塑性の利用と応用〉と言った歴史的流れを読み

取ることが出来る。既に、現在は超塑性の円熟期あるいは終焉期? に突入した感がある。

超塑性は約半世紀以上の長い年月にわたって進化してきたが、この間、超塑性ミクロ組織に対する認識もまた徐々に変化してきた。特に、ここ数年における超塑性ミクロ組織に対する認識の変化は非常に大きい。この変化は、超塑性に関する研究の充実さもさることながら、最近の急凝固や粉末冶金技術の発展、あるいは工場の熱間加工を含めた製造設備の充実に起因した実用合金の加工熱処理法の顕著な発達に因るところ大であると筆者は考えている。本小文では、超塑性の歩んで来た歴史的背景を踏まえ、各時代の超塑性研究の推移より遊離してきた問題点を指摘し、筆者なりにそれらを総括、概説する。また蛇足ながら、本題目の〈超塑性の前進〉は、超塑性の終焉を切に希望する著者の気持ちを込めたものである。

2 超塑性材料の歴史

超塑性ミクロ組織に対する認識の変化を指摘する前に大ざっぱな超塑性材料の歴史を眺めてみよう。表 I は、代表的な超塑性材料を年代順に整理したものである。合金組成、超塑性発現条件 (温度とひずみ速度)、超塑性能力の目安となる m 値、最大破断伸び値、合金の初期ミクロ組織および超塑性変形中の組織変化の有無等を記入している。超塑性ミクロ組織の多くが超塑性状態ではミクロンオーダーの微細均一組織であり、また超塑性変形中の組織変化がひずみ誘起粒成長以外には無く、ミクロ組織の大きな変動が超塑性変形中見られないこと^{*}などが一般的特徴になっている。

こうした多くの超塑性材料の代表的なミクロ組織の

*1 厳密には、ひずみ誘起粒成長自身、変形中に生じる合金のミクロ組織変化である。しかし、従来より、超塑性変形中の粒成長は超塑性の一般的特徴とされてきた。ここでは、後述する変形間中の大きなミクロ組織の変動と区別して用いる。

† 原稿受理 昭和63年12月8日 Received Dec. 8, 1988

* 正 会 員 大阪府立大学工学部 堺市百舌鳥梅町, Department of Metallurgical Engineering, University of Osaka Prefecture, Mozu-Umemachi, Sakai

類推から、一般的な超塑性マイクロ組織は次のように分類する事が出来る。

- (1) ミクロンオーダーの微細均一等量組織を有する共晶、共析合金
- (2) 共晶、共析合金以外の二相等量あるいは二相混合組織から成る微細均一複相合金
- (3) 微細均一再結晶粒組織から成る単相合金^{*2}

現在までに発表された超塑性関連記事は約 2000 件にも及ぶ。図 1 は、超塑性に関連した報告例を、超塑性マイクロ組織の代表的な種類別に区別して各年代ごとに示したものである。1960 年代の発表件数のほとんどは複相合金に関するものである。その後、発表件数は顕著に増加しているが、各時代とも共晶、共析合金のような二相等量組織が超塑性材料の代表例として君臨している。しかし、共晶、共析合金以外の二相等量あるいは二相混合組織から成る複相合金も増加している。時代とともに、微細再結晶粒組織から成る単相合金が、超塑性材料として取り扱われる頻度が多くなっている。この傾向は、加工熱処理法の発展に伴う既存

図 1 代表的な超塑性マイクロ組織の種類別の歴史的推移

実用合金の超塑性化の開発経緯に対応している。

これら超塑性マイクロ組織の共通した特徴はミクロンオーダーの均一微細再結晶粒組織である。歴史的に見て複相合金が主流であったのは、複相合金が単相合金より均一微細な超塑性マイクロ組織を得ることが容易で、なおかつ高温変形中でも安定な微細組織を保持できるためである。これらは異相界面の高温での移動速度が同相界面のそれより小さいことに起因する。また、複

^{*2} 厳密な意味での単相合金ではない、ここでは、第二相粒子体積率が 10% 以下の合金と言う意味で用いる。

表 I 超塑性材料の歴史

年代	合金の組成 (wt%)	温度 (°C)	ひずみ速度 (/s)	m 値	最大伸び値 (%)	合金のマイクロ組織	組織変化の有無
1912	Cu-40Zn	—	—	—	200	$\alpha + \beta$ 共晶	—
1920	Zn-10Al-10Cu	—	—	—	—	共晶	—
1928	Cd-27Zn	20~30	—	0.5	350	—	—
1934	Bi-43Sn	20~30	—	—	1950	共晶	—
1964	Zn-20Al	250	$5 \times 10^{-4} \sim 5 \times 10^{-3}$	~0.5	1000	共析	—
1965	Sn-38Pb	20	$10^{-4} \sim 10^{-2}$	0.5	1584	共晶 (1~3 μ)	—
1966	Al-33Cu	360~520	$10^{-4} \sim 10^{-2}$	0.7	>500	共晶 (2~8 μ)	無
1967	Co-10Al	1200	—	0.5	850	共晶	—
	Ni-39Cr-10Fe-2Ti-1Al	810~980	$10^{-4} \sim 10^{-2}$	0.5	1000	二相混合 (3~7 μ)	無
	Sn-5Bi	20	$10^{-3} \sim 10^{-2}$	0.7	>1000	微細再結晶粒 (1~5 μ)	無
	Sn-38Pb	0~80	$10^{-4} \sim 10^{-2}$	0.5	1500	共晶	無
	Ti-6Al-4V	800~1000	$10^{-3} \sim 10^{-3}$	0.9	1000	$\alpha + \beta$ 共晶 (7~20 μ)	無
1968	Fe-0.1~0.5C	700~1000	$10^{-3} \sim 10^{-3}$	0.3~0.7	450	α (<10 μ) + 微細分散 Fe_3C	—
	Mg-6Zn-0.5Zr	270~310	$10^{-3} \sim 10^{-2}$	0.5	>1000	α (1~5 μ) + 微細分散粒子	無
	Ni-35Cr-26Fe-0.6Ti	795~855	$10^{-3} \sim 10^{-2}$	0.5	>1000	二相混合	無
1969	Mg-34Al	250~400	$10^{-3} \sim 10^{-2}$	0.8	2100	$\delta + \gamma$ 共晶 (2 μ)	無
1970	Zn-22Al	200~300	$10^{-4} \sim 10^{-2}$	0.5~0.6	1500	共析	無
1971	Cu-10Al-4Fe	800	$10^{-4} \sim 10^{-3}$	0.5	~800	共晶 (5 μ)	無
	Cu-3Al-2Si-0.4Co	500~600	$10^{-3} \sim 10^{-3}$	0.5	~300	微細再結晶粒 (~10 μ)	無
1972	Cu-10Al	540~700	$10^{-4} \sim 10^{-2}$	0.7	700	共晶	無
*	Cu-7P	410~600	$10^{-4} \sim 10^{-2}$	0.5	>600	$\alpha + \beta$ 共晶 (~10 μ)	有
*	Ti-8Mn	750~900	$10^{-3} \sim 10^{-2}$	~1.0	150	β 単相 (500 μ)	有
*	Ti-15Mo	820~920	$10^{-3} \sim 10^{-2}$	~1.0	450	β 単相 (300 μ)	有
1973	Al-11Zn-1Mg-0.4Zr	550	$10^{-4} \sim 10^{-3}$	0.9	1550	微細再結晶粒 (7 μ)	無
	Zn-22Al	20~250	$10^{-3} \sim 10^{-2}$	0.5	2500	共析 (~2 μ)	無
1974	Fe-26Cr-7Ni	700~1020	$10^{-3} \sim 10^{-2}$	0.6	600	二相混合 (5 μ)	無
	Fe-0.03~0.1C	850~1000	—	0.7	820	二相混合	無
1975	Al-25Cu-5Si	500	10^{-3}	0.4	1306	共晶 (~2 μ)	無
*	Al-6Cu-0.5Zr	400~500	$10^{-4} \sim 10^{-1}$	0.5	2000	亜結晶粒 (<1 μ)	有
	Fe-1~2C	650~900	$10^{-4} \sim 10^{-2}$	0.4~0.5	500	二相混合 ($\alpha + \text{Fe}_3\text{C} / \alpha + \gamma$)	無
1976	Al-8Ca	300~600	$10^{-4} \sim 10^{-2}$	0.8	850	共晶	無
*	Al-6Cu-0.5Zr	350~475	$10^{-4} \sim 10^{-1}$	0.5	>1000	亜結晶粒 (<1 μ)	有
	Al-6Mg-0.4Zr-0.2Mn	400~520	$10^{-4} \sim 10^{-3}$	0.6	890	微細再結晶粒 (~10 μ)	無

年 代	合金の組成 (wt%)	温度 (°C)	ひずみ速度 (/s)	m 値	最大伸び値 (%)	合金のミクロ組織	組織変化の有無
1977	Ti-6Al-4V	815~927	$10^{-3} \sim 10^{-3}$	0.9	>100	$\alpha + \beta$ 共晶 ($\sim 8\mu$)	無
*	Ti-10V-2Fe-3Al	704~815	$10^{-7} \sim 10^{-3}$	0.7	>140	擬 β 単相 (120μ)	有
*	Ti-15V-3Cr-3Sn-3Al	704~815	$10^{-7} \sim 10^{-3}$	0.9	>140	β 単相 (55μ)	有
1978	Cu-38Zn-15Ni	580	$10^{-5} \sim 10^{-2}$	0.5	678	$\alpha + \beta$ 共晶	無
	Cu-28Zn-15Ni-13Mn	580	$10^{-5} \sim 10^{-2}$	0.5	450	$\alpha + \beta$ 共晶	無
1979	Fe-1.6~1.8C	650	10^{-4}	0.5	1680	二相混合 ($\alpha + \text{Fe}_3\text{C}$)	無
1980	Al-5Ca-5Zn	450~550	$10^{-2} \sim 10^{-2}$	0.5	600	微細再結晶粒 ($< 2\mu$)	無
1981	Al-6Zn-2Mg-2Cu-0.2Cr	485~530	$10^{-4} \sim 10^{-3}$	0.7	>1000	微細再結晶粒 ($\sim 10\mu$)	無
	Al-3Li-0.5Zr	450	$10^{-3} \sim 10^{-3}$	0.5	1035	微細再結晶粒 ($\sim 2\mu$)	無
	Al-4Cu-3Li-0.6Zr	450	$10^{-3} \sim 10^{-3}$	0.5	850	微細再結晶粒 ($\sim 2\mu$)	無
1982	Cu-10Al-6Ni-5Fe-2Mn	700~850	$10^{-3} \sim 10^0$	0.7	>5500	二相混合 (2μ)	無
*	Fe-25Cr-7Ni-3Mo	950	$10^{-3} \sim 10^{-1}$	0.5	>2500	二相混合 ($\alpha + \gamma / \gamma + \sigma$)	有
1983	Al-6Zn-2Cu-2Mg-0.2Cr	516	10^{-4}	0.7	>1000	微細再結晶粒 ($\sim 10\mu$)	無
*	Al-6Cu-0.5Zr	400~530	5×10^{-3}	—	1028	亜結晶粒	有
1984	Al-5Mg-1Cu-1Mn-0.2Cr	485~530	$10^{-4} \sim 10^{-3}$	0.7	800	微細再結晶粒 ($8 \sim 9\mu$)	無
	Al-4Cu-2Mg-1C-0.8O	400~500	$10^{-4} \sim 10^{-1}$	0.3	250	—	—
*	Ti-15V-3Cr-3Sn-3Al	815	$10^{-4} \sim 10^{-3}$	0.5	230	β 単相 ($\sim 80\mu$)	有
1985	Al-6Zn-2Mg-2Cu-0.2Zr	450	$10^{-3} \sim 10^{-2}$	0.5	1000	微細再結晶粒 ($\sim 10\mu$)	無
	Al-8Zn-3Mg-1Cu-1Co	510	10^{-2}	0.4~0.6	500	亜結晶粒/一部再結晶	無
*	Al-9Zn-1Mg-0.2Zr	530	$10^{-4} \sim 10^{-2}$	0.5	850	亜結晶粒	有
*	Cu-40Zn-3Al-4Mn-1Pb	340~540	$10^{-4} \sim 10^{-3}$	~ 0.4	500	β 単相 ($\sim 200\mu$)	有
	ZrO ₂ -3molY ₂ O ₃	1150~1450	10^{-4}	0.5	~ 200	微細再結晶粒 ($\sim 0.3\mu$)	無
1986	Al-6Zn-2Mg-2Cu-0.7Zr	520	10^{-4}	—	300	微細再結晶粒 ($\sim 6\mu$)	無
*	Al-6Zn-2Mg-2Cu-0.7Zr	520	$10^{-2} \sim 10^{-1}$	—	>500	亜結晶粒	有
*	Al-10Mg-0.5Mn	300	$10^{-4} \sim 10^{-2}$	0.5	~ 600	亜結晶粒 ($< 0.5\mu$)	有
1987	Cu-14Al-3Ni-0.1Cr-0.1B	700	10^{-4}	0.4	170	$\gamma + \beta$ 二相混合 ($\sim 6\mu$)	無
	ZrO ₂ -20Al ₂ O ₃ -3molY ₂ O ₃	1250~1500	$10^{-7} \sim 10^{-3}$	0.5	~ 200	二相混合 ($\sim 0.5\mu$)	無
1988	Al-4Cu-2Mg-1C-0.8O	425~475	$10^{-4} \sim 10^{-2}$	0.3	~ 500	微細再結晶粒 ($\sim 0.5\mu$)	—
*	Al-10Mg-0.1Zr	300	$10^{-4} \sim 10^{-2}$	0.5	~ 500	亜結晶粒 ($1 \sim 2\mu$)	有
*	Fe-25Cr-7Ni-3Mo	1000	$10^{-3} \sim 10^{-1}$	—	>1300	二相混合 (亜結晶 α + 微細 γ)	有

相合金の超塑性が等量あるいはそれに近い相比において良好な特性を示すのは、超塑性の主変形機構である粒界すべりのすべり量が異相界面では同相界面より大きい事に起因する。図2は、代表的な超塑性ミクロ組織の実例である。図2(a)は、実用アルミニウム青銅 (Cu-10Al-5Ni-5Fe-2Mn) 合金の ($\alpha + \kappa$) 二相等量混合組織で、その平均粒径は両相とも $2\mu\text{m}$ 程度である。図2(b)は、実用 7475 (Al-6Zn-2Mg-2Cu-0.2Cr) アルミニウム合金の $15\mu\text{m}$ の微細均一な静的再結晶粒から成る単相組織である。上述してきた超塑性ミクロ組織は、多くの超塑性材料のミクロ組織から類推された代表例である。しかし、逆に新しい超塑性材料開発の指針と成り得るわけで、実際、新しい超塑性材料開発に大きく寄与したことは事実である。

超塑性変形の機構解明は、その巨大伸び値故、昔から非常に関心を集めた。当然ながら超塑性変形機構モデルは、超塑性ミクロ組織の特徴をうまく説明できるよう十分考慮されて確立された。結晶粒の形状は超塑性変形中変動しないことが大きな特徴であるから、大きな伸び値を得るためには結晶粒の隣接粒相互の相対的位置が変化しなければならない。こうした事が可能であるためには、粒内変形 (準均質変形) ではなく、

粒界の変形すなわち粒界すべり (非均質変形) が起らなければならない。実際、マーカー法による表面観察や走査型電子顕微鏡による直接観察などで結晶粒の粒界すべりが確認され、超塑性変形の全ひずみ量の60%から90%近くを粒界すべりによる変形が占めている。代表的な超塑性ミクロ組織の帰納的考察から推測される超塑性変形の主機構は、基本的に粒界すべりであることは疑う余地はないだろう。

3 超塑性ミクロ組織に対する認識の変化

代表的な超塑性材料のミクロ組織の類推から得られた超塑性ミクロ組織の特徴は、ミクロンオーダーの微細均一組織と、高温変形間中のミクロ組織の安定性である。この事実 に立脚して超塑性の正当な歴史が展開され、この特徴が超塑性発現条件の伝統的見解となっている。しかしながら、表I中に*印で示したように、必ずしもミクロンオーダーの微細均一組織で無くても、かなり良好な超塑性特性を示す異端例が各時代に存在したこともまた事実である。こうした従来の一般的な超塑性ミクロ組織の分類に当てはまらない異端例の歴史的推移を整理した結果が図3である。図3は異端例の報告が各年代の超塑性関連の全報告にたいして占める割合の変化を示している。時代とともに異端例の占

(a) 実用 C6301 アルミニウム青銅(Cu-10Al-5Ni-5Fe-2Mn)合金の $(\alpha+x)$ 二相等量の複相組織, 黒地が α -母相, 白い粒子が x 相
(b) 実用 7475 アルミニウム(Al-6Zn-2Mg-2Cu-0.2Cr)合金の微細均一再結晶粒から成る単相組織

図2 代表的な超塑性材料のマイクロ組織の実例

める割合が増加している事は明らかである。この異端例の増加は新しい加工熱処理法による超塑性実用合金の製造方法の発展と歩を合わせている。新しい加工熱処理法の発展とともに、従来の一般的な超塑性マイクロ組織の分類に当てはまらない組織を持つ材料からも超塑性が生まれてきたわけである。超塑性マイクロ組織に対する認識において、このような変化が生じてきた事は確かである。

表Ⅰ中に*印を付した材料の大きな特徴は、変形初期において、そのマイクロ組織が大きく変化することである。当然、このマイクロ組織の変化はひずみ誘起粒成長以外の変化を意味する。この変形途中で合金のマイクロ組織が大きく変化する実用アルミニウム合金と実用

図3 従来の一般的な超塑性マイクロ組織の分類に当てはまらない異端例の歴史的推移

図4 実用 8090 アルミニウム(Al-2.5Li-1Cu-1Mg-0.2Zr)合金の超塑性変形前後における代表的なマイクロ組織変化。変形条件: 520°C, 1×10^{-3} /s; (a) 変形開始前, (b) 変形途中 ($\epsilon=0.8$)

ステンレス鋼の例を図4および図5に各々示す。両図は、これらの合金の変形開始直前と変形途中($\epsilon=1$)での代表的マイクロ組織を示している。図4では、変形により加工組織の残留した未再結晶組織が微細均一再結晶粒組織に変化し、また、図5では粗大な $(\alpha+\gamma)$ 二相混合組織が微細均一な $(\alpha+\gamma)$ 二相組織に変化している。従来の超塑性マイクロ組織は、図6に示すように、変形量に伴い単に粒成長するのみで相の種類やその結晶粒の形状などは大きく変化しない。しかし、図4および図5に示した両合金では、変形途中で合金の初期マイクロ組織が大きく変化する。

今までに報告された変形途中で大きくマイクロ組織が変化する合金の組織変化の特徴を分類し、その変化を模式的に示した結果が図7である。

(1)は、粗大再結晶粒が変形により亜結晶粒に変化するタイプである。このタイプの代表的な例は、1972年にGriffithsとHammond²⁹⁾により報告された β チタン合金での観察例である。歴史的にみてもこの報告例が粗大粒超塑性の第一号であろう。500 μm 以上の粗大な再結晶粒組織が変形により熱的に安定した微細な亜結晶粒に変化するもので、かれらはこの微細亜結晶粒が超塑性発現の原因であると考えている。同様な組織変化がその後、Hammond³⁰⁾やHamilton³¹⁾により β チタン合金で多く報告されている。Hamiltonらは、こ

図5 実用 SUS329J1 ステンレス鋼 (Fe-25Cr-6Ni-3Mo) の超塑性変形前後における代表的なマイクロ組織変化。変形条件: 950°C, 1×10^{-3} /s
(a) 変形開始前, (b) 変形途中 ($\epsilon=0.9$)
(鈴山恵氏提供)

のタイプの超塑性は、この微細な亜結晶粒に起因しているのではなく、 β 相が大きな拡散速度を有している事が本質的原因であると報告している³¹⁾。この変形中に形成される亜結晶粒がさらに動的再結晶するかどうかは原論文では報告されていない。しかし最近、Hammondらは高速ねじり試験により得られた大ひずみ域において、変形中に形成された亜結晶粒がさらに動的再結晶する証拠写真を得ている³⁰⁾。

(2)は、粗大な伸長あるいは層状組織が、変形によりせん断されて微細均一組織に変化するタイプである。元々、このタイプは、共晶、共析合金を含めた複相合金において観察されることが多い。^{32)~34)}

(3)は、微細亜結晶粒から成る単相の粗大結晶粒が、変形により微細均一再結晶粒に変化するタイプである^{35), 36)}。このタイプの代表例は、単相あるいはそれに近いアルミニウム合金においてよく観察される。これらの合金のマイクロ組織の特徴は変形開始直前の未再結晶加工組織にある。この未再結晶加工組織は、ピンニング粒子 (Al_3Zr) の微細均一分散により静的再結晶が顕著に抑制される事で得られ、変形途中でこの未再結晶加工組織から微細等軸再結晶粒に動的に組織変化する。このタイプの最も有名な実例は、英国にて開発された 2004 (Al-6Cu-0.4Zr; 商標名 Supral) 合金で、現在

(a) 変形開始前

(b) $\epsilon=1$

(c) $\epsilon=2$

図6 従来の実用超塑性 7475 アルミニウム合金 (Al-6Zn-2Mg-2Cu-0.2Cr) の超塑性変形中の組織変化。ひずみ誘起粒成長のみが生じており、図4のような大きなマイクロ組織の変化はない

Superform Metals 社が超塑性成形用材料として実用化している。このタイプの超塑性が、次期航空機用アルミニウム合金として開発中の Al-Li 合金にて観察され^{37), 38)}、現在非常に注目されている。

(4)は、複相合金の動的な相分離 (動的析出) あるいは相変態により、粗大組織から微細均一組織に変化するタイプである。この粗大組織の下部構造は、通常亜結晶粒組織から成り、変形中に動的再結晶する場合が多い。また、変形開始以前に既に粗大相が存在している場合には、(2)で示した組織変化が同時に起こり、均一微細化する。二相合金の相分離あるいは相変態と、加工とを組み合わせた組織微細化処理は、従来からの

図7 変形途中におけるミクロ組織変化の特徴の模式図

加工熱処理法の一般例である。しかし、この(4)タイプでは、相分離や相変態が高温で残留している亜結晶粒界上で優先的に起きたり、あるいは高温変形時のひずみ(格子欠陥)誘起により促進される事が大きな特徴である。この結果、相分離や相変態の発生頻度が増加し、静的な場合よりさらに微細均一な組織が得られ、かつ早期に二相安定組織に到達する。 $(\alpha+\beta)$ チタン合金³⁹⁾、 $(\alpha+x)$ アルミニウム青銅⁴⁰⁾、 $(\alpha+\gamma)$ 二相ステンレス鋼⁴¹⁾の超塑性に、このタイプのよい例を見ることが出来る。

変形開始初期にそのミクロ組織が大きく変化する超塑性材料では、この特徴に起因して従来の代表的な超塑性材料とは異なる超塑性挙動を示す。この材料の超塑性の代表的な利点は、静的再結晶させた材料と比較して超塑性が発現する変形速度がかなり大きいことと、空洞の発生率が顕著に少ないことである。これらの利点は、超塑性の工業的利用の観点から非常に望ましいことである。

4 超塑性変形途中でのミクロ組織変化

変形途中で初期ミクロ組織が大きく変化する超塑性材料の中で、特に印象的、かつ衝撃的な超塑性合金は、前述した2004合金に代表される動的再結晶型超塑性アルミニウム合金と $(\alpha+\gamma)$ 二相ステンレス鋼³⁵⁾である⁴¹⁾。

両合金の変形中の組織変化の基本的特徴は、図7(3)(4)に示した模式図の通りである。しかし、今なおこの変形途中の組織変化の機構は明確とは言えない。ここでは、この変形途中の組織変化に関する最近の研究のいくつかを紹介する。

4・1 動的再結晶型超塑性アルミニウム合金

2004(supral)合金に代表される動的再結晶型超塑性アルミニウム合金の研究は、表Iに見るように、歴史的にはかなり古くから英国を中心に行なわれてきた。我国では、ここ数年特に著しい進歩を見せている。この合金の特徴は、超塑性変形開始直前の未再結晶加工組織にある。この未再結晶加工組織が変形途中で動的再結晶して均一微細組織に変化する。この未再結晶加工組織は、微視的には微細な亜結晶粒から構成されている。変形に伴うこの亜結晶粒の動的変化を図8に示す。変形に伴い亜結晶粒の粒界傾角が連続的に増加し、つまり変形前の小傾角から大傾角に移行する事で再結晶が起こる(図8(a))。この傾角の変化に対応して、亜結晶粒の粒径が大きくなり、数 μm 以下の微細な動的再結晶粒が得られる(図8(b))。こうした変形中の粒界傾角の増大は、他のアルミニウム合金の動的再結晶においてもよく観察される特徴である。^{42)~45)}

さて、こうした変形前の初期未再結晶加工組織は、

図8 Al-6Cu-0.4Zr アルミニウム合金の変形に伴うマイクロ組織の動的変化, 変形条件: 420°C, 2×10^{-2} /s

ピンニング粒子 (Al_3Zr) の微細均一分散に起因した静的再結晶の顕著な抑制によって得られる。図8(c)には、このピンニング粒子 (Al_3Zr) の寸法変化を示しているが、変形とともに粒子寸法の増加が認められる。したがって、ここで観察される動的再結晶は、このピンニング粒子の寸法増加にともなう粒界移動阻止能力の低下に起因して生じたものと推測される。それ故、この場合の動的再結晶は一度だけ起こると考えられ、変形中繰り返し起こる動的再結晶とは異なる。Nesは最近、このモデルの他に、 Al_3Zr 粒子の変形中の再固溶を観察し、この再固溶による粒界移動阻止能力の低下が、動的再結晶を導くと言うモデルを提案している。⁴⁵⁾

4・2 ($\alpha+\gamma$)二相ステンレス鋼

($\alpha+\gamma$)二相ステンレス鋼は、微細な二相等量組織 (40～50% γ 体積率) で超塑性を示す事は従来よりよく知られている。ところが最近、工業的に生産された ($\alpha+\gamma$)二相ステンレス鋼 (SUS329) が、2000% 以上の大きな伸び値を 10^{-3}s^{-1} の比較的速度変形速度において示す事、そしてこの合金のマイクロ組織が超塑性変形途中で大きく変化する事が報告された。^{41), 47), 48)} この超塑性 ($\alpha+\gamma$)二相ステンレス鋼の初期マイクロ組織は非常に複雑で、当然ながらその変形中の組織変化も単純でない。以下、超塑性変形前後のマイクロ組織の特徴を整理して概説するが、ここではさらに簡便のため α 相の析出を伴わない条件下での組織変化のみについて取り扱う。

α 相が析出しない条件下での変形前のマイクロ組織は二種類ある。すなわち、 α 相単相組織と、粗大 γ 相と α 相の ($\alpha+\gamma$) 二相組織である。 α 相単相組織を変形前の

組織とした場合には、基本的には、図7の(4)タイプの変化が起る。変形前の α 相は微細均一な亜結晶粒から成る。変形とともにこの亜結晶の粒界上に動的析出した γ 相が粗大化し、同時に動的再結晶して亜結晶粒の傾角が大きくなり、最終的には ($\alpha+\gamma$) 均一微細二相混合組織が形成される。後述する変形前の組織を ($\alpha+\gamma$) 二相組織とした場合の α 相にて生じる組織変化と基本的には同一である。しかし、 γ 相が亜結晶粒界上に動的析出するのでその析出する平均間隔が狭くなり、最終的に得られる ($\alpha+\gamma$) 二相混合組織は非常に微細な組織になる。この微細組織が良好な超塑性を発現させる大きな因子である。

($\alpha+\gamma$) 二相組織を変形前の組織とした場合、変形途中では粗大 γ 相の分断と消滅による微細化と、 α 相中の微小 γ 相の粗大化、および α 相の動的再結晶による微細化とが競合して起こり、最終的には ($\alpha+\gamma$) 二相微細均一組織 ($2 \sim 3 \mu\text{m}$) が形成される。

($\alpha+\gamma$) 二相ステンレス鋼の変形中の大きな組織変化に対する報告のすべては、現象論的には一致した見解を取っている。しかし、 α 相の動的再結晶による微細化機構を含めた超塑性出現機構に関しては、現在二つの異なる主張がある。そのひとつは、硬い第二相による軟い α 相の局所的かつ間欠的な加工硬化と加工軟化 (変形中に何度も反復繰り返して起こる動的再結晶) の微妙な平衡状態により超塑性が発現すると主張するモデルである。この動的再結晶による新しい超塑性機構モデルは、超塑性流動の平衡状態を変形と動的再結晶による硬化—軟化の釣り合い状態の反復として捉えており、理論的モデルとしては非常に興味深いものである。かつて、Bailey によって提示されたクリープ現象の硬化—軟化釣合モデル⁴⁹⁾を超塑性発現条件に導入した最初の衝撃的なモデルと考えられる。この α 相が変形により繰り返し動的再結晶するモデルでは従来の超塑性変形機構の粒界すべりモデルを完全に否定している。

今ひとつのモデルは、 α 相が微細な亜結晶粒から成り、この亜結晶粒が硬い γ 相周囲でのひずみ集中で核生成サイトとなり、局所的な不連続再結晶によって大傾角粒になるというもので、 α 相の一回切りの動的再結晶後では ($\alpha+\gamma$) 二相混合組織の粒界すべりを基本とした超塑性変形が生じると考えている。

いずれにせよ、($\alpha+\gamma$) 二相ステンレス鋼の超塑性変形中の組織変化は、その機構の解明を含めて今後の課題であろう。しかし、ここでは少なくとも、変形中大きな組織変化を起こす ($\alpha+\gamma$) 二相ステンレス鋼が、良好な超塑性を示すことだけは明確に出来たと思う。

5 超塑性の構成方程式に対する認識の変化

超塑性材料に歴史的な推移があったように、超塑性

- (1) $\sigma = k\dot{\epsilon}^m$
 k : 定数, m : ひずみ速度感受性指数
- (2) $\sigma = k(d)^p \dot{\epsilon}^m D_0 \exp(-Q/RT)$
 K : 定数, m : ひずみ速度感受性指数
 d : 結晶粒径, p : 結晶粒径指数
 $D_0 \exp(-Q/RT)$: 拡散係数, T : 絶対温度
 Q : 活性化エネルギー, R : ガス定数
- (3) $\sigma = \sigma_0 + H\epsilon$
 $\log \sigma_0 = A_0 + A_1(\log \dot{\epsilon}) + A_2(\log \dot{\epsilon})^2$
 $+ A_3(\log \dot{\epsilon})^3 + A_4(\log \dot{\epsilon})^4$
 H : 硬化係数, A_0, A_1, A_2, A_3, A_4 : 定数
- (4) $\sigma = k\epsilon^n \dot{\epsilon}^m$
 k : 定数, n : ひずみ硬化指数
 m : ひずみ速度感受性指数

図9 超塑性構成方程式の歴史的流れ

構成方程式もまた長い歴史を有する。図9は超塑性構成方程式の歴史的流れを、また図10は代表的な真ひずみ—真応力曲線の推移を示す。構成方程式の原点は、超塑性研究の巨人、Backofenが1960年代に提案した有名な式(1)より始まる。^{4)~7)}この原式は、ニュートンの完全粘性流動方程式である。図10(a)に示すように、超塑性の定常流動応力状態を硬化(応力の増加)と軟化(応力の低下)の動的平衡状態として捉えている。それ故、応力のひずみ依存性は考慮しなくても良い。この概念は超塑性変形中の組織変化が起らないという金属組織学的根拠からも支持された。この式は高温変形におけるDorn型の半経験的構成方程式に組み込まれ、^{50), 51)}Dorn一派を中心に実験的に発展して、最近、⁵²⁾Mukherjeeによって式(2)のように総括された。

1970年代、Rockwell Internationalの研究グループによって、超塑性ブロー成形用の加圧プロセス制御法の確立を目的とした定ひずみ速度引張試験による超塑性流動応力の新しい評価法が確立された。⁵³⁾その主な理由は、従来の定クロスヘッド速度引張試験では、超塑性伸び値の増加に伴い試験片平行部のひずみ速度が低下し、変形中の組織変化に起因した流動応力の正しい変化を捉えることが出来ないためである。

この定ひずみ速度試験により得られた真ひずみ—真応力曲線の代表例を図10(b)(c)に示す。(b)は伸び値とともに流動応力が増加し、加工硬化のみが顕著に観察される例である。超塑性状態(大きな m 値を示す変形条件)においては、この加工硬化による流動応力の増加はひずみにたいしてほぼ直線的に増加する。こ

のような変化を示す材料にたいして、Ghoshらは、式(2)を拡張した式(3)を提案した。⁵³⁾ここで観察される加工硬化は単に超塑性変形中の結晶粒成長のみに因るものである。このタイプの真ひずみ—真応力曲線を示す合金は、ミクロンオーダーの微細均一結晶粒を持ち、変形中に大きく組織変化しない従来のいわゆる代表的な超塑性材料である。このような超塑性材料の変形量 ϵ に伴う変形中の結晶粒径 d は、 $d = d_1 + c\epsilon$ (d_1 : 初期粒径, c : 材料定数)で表わされる。この式と式(2)により、次のような関係式、 $\sigma = K\dot{\epsilon}^m(d_1 + c\epsilon)^p$ が得られる。この式より、定数 m, p がひずみ ϵ に依存せず、ひずみ速度が常に一定であれば、応力がひずみ量に伴い増加することは自明である。

一方、(c)は、伸び値の増加に伴い流動応力が増加する事は(b)と同様であるが、ある変形量以降は流動応力が飽和あるいは低下している例である。このタイプの真ひずみ—真応力曲線は、変形初期では加工硬化が、そして変形途中から加工軟化が連続的に起る事を意味している。それ故、変形中に生じる加工硬化と加工軟化は当然ひずみ依存性を有している。したがって、式(1)~(3)を用いることは当然出来ないで、基本的には式(4)を念頭において新しい構成方程式を考慮していかなければならない。実は、変形初期にそのミクロ組織が大きく変化する合金こそが、このタイプの真ひずみ—真応力曲線を示すのである。(c)のタイプの真ひずみ—真応力曲線が、変形中ひずみ速度が変化しない定ひずみ速度引張試験で得られたものであるから、ここで観察された流動応力の変動は、超塑性変形中に生じるミクロ組織の大きな変化に対応しているはずである。以下では、このタイプの材料が大きな超塑性伸び値を示す理由について、変形の塑性不安定性の観点より概説する。

6 変形の塑性不安定性 (Plastic Instability) により再確認される超塑性材料

超塑性材料のミクロ組織に対する認識の変化と超塑性流動応力の構成式の変化を歴史的流れに沿って眺めた。その結果、超塑性ミクロ組織に対する従来の認識の範ちゅうからはみ出した超塑性材料の一群が正史の裏に存在することを明確にする事が出来た。この一群の超塑性材料に共通した組織的特徴は、高温変形途中

図10 超塑性材料の代表的な真ひずみ—真応力曲線の歴史的推移

でその初期ミクロ組織が大きく変化する事である。一般に受け入れられている超塑性組織の特徴は、ミクロンオーダーの微細均一組織と、高温変形中の組織安定性である（事実、筆者も学生時代このように教えられた）。この超塑性ミクロ組織の特徴を基本にして超塑性の構成式が提案され、また超塑性の基本的特徴である巨大伸び値と低流動応力のひずみ速度依存性をうまく説明してきた。まさにこの研究の積み重ねが超塑性の輝かしい歴史であった。こうした由緒ある超塑性材料の正史を否定する事なく、また異端的超塑性材料の特徴をも止揚した新しい体系を築き上げることはそう容易ではない。この回答は超塑性変形の塑性安定性をどのように捉え直すかという問題と同等である。

従来の超塑性材料と異端的超塑性材料の大きな違いは、超塑性変形中の組織変化の有無である。しかし、従来の超塑性材料におけるひずみ誘起粒成長をもこの変形中の組織変化とすれば、厳密にはやはり組織変化が起こっているわけである。実際、定ひずみ速度試験では、ひずみ誘起粒成長に起因した流動応力の増加が観察される。そこで、以下では最初から超塑性変形中に組織変化が本質的に生じると仮定し、ひずみ速度が一定の条件下で得られた真ひずみ—真応力曲線を基に変形の安定性条件より両超塑性材料（従来の超塑性材料と異端的超塑性材料）の塑性安定性を検討し、両超塑性材料の超塑性特性の統合を試みる。

ここでは、Hart⁵⁴⁾の変形安定性条件を採用する。その条件は、試験片の断面積の減少速度がその断面の減少とともに小さくなることで、次式で表わされる。

$$\partial \log \dot{\epsilon} / \partial \log \dot{\epsilon} \geq 0 \quad (6.1)$$

また、具体的な構成方程式を仮定することが出来ないから、以下のように考える。まず、任意の変形径路において、任意の時間における増分 $d\sigma$, $d\epsilon$, $d\dot{\epsilon}$ の相互関係を、

$$d \log \sigma = \gamma d \epsilon + m d \log \dot{\epsilon} \quad (6.2)$$

とする。ここで、

$$m = (\partial \log \sigma / \partial \log \dot{\epsilon}), \\ \gamma = (1 / \sigma) (\partial \sigma / \partial \epsilon) \text{ である。}$$

荷重 $F = \sigma A$ は、試験片断面の任意の位置で常に一定であるから、 $\delta F = A \delta \sigma + \sigma \delta A = 0$ の関係が成立する。これらより、最終的に次式が得られる。

$$0 = (\delta A / A) (1 - \gamma - m) + m (\delta \dot{\epsilon} / \dot{\epsilon}) \quad (6.3)$$

それ故、式(6.1)は

$$(\partial \log \dot{\epsilon} / \partial \log \dot{\epsilon}) = -(1 - \gamma - m) / m \quad (6.4)$$

と書き換えることが出来る。ここで、

$$I(\epsilon) = (1 - \gamma - m) / m \quad (6.5)$$

を変形に伴う塑性不安定パラメータと定義する。

適切な構成方程式を仮定できないから、任意のひずみ速度で定ひずみ速度試験を実際に行い、任意のひず

図11 定ひずみ速度試験にて得られた超塑性 7475 アルミニウム合金と $(\alpha + \gamma)$ 二相ステンレス鋼の真ひずみ—真応力曲線の両対数プロット

み量での m および γ を測定する。そして、式(6.5)より $I(\epsilon)$ を計算する。ここで、Hart の変形安定性の条件式(6.1)より、 $I(\epsilon) \leq 0$ を満足する m および γ を与えるひずみ速度域とひずみ量域で変形の安定性が少なくとも保証され得るわけである。この条件を採用すれば、超塑性変形中の組織変化を包括した超塑性巨大伸び値の出現理由を力学的に明確に説明することが出来るはずである。

以下、実際の超塑性材料を用いて、超塑性状態での変形の安定条件を検討してみよう。ここでは、10 μm の均一微細再結晶粒から成る超塑性 7475 アルミニウム合金を従来の超塑性材料の、また粗大 γ 相と α 相の不均一な二相混合組織から成る $(\alpha + \gamma)$ 二相ステンレス鋼を異端的超塑性材料の代表例として各々用いる。両合金の定ひずみ速度試験下で得られた真ひずみ—真

図12 超塑性 7475 アルミニウム合金と $(\alpha + \gamma)$ 二相ステンレス鋼のひずみに伴う m 値と n 値の変化

図13 超塑性7475アルミニウム合金と(α+γ)二相ステンレス鋼のひずみに伴う変形の塑性安定性パラメータ $I(\epsilon)$ 値の変化

応力曲線を両対数で示したのが図11である。超塑性7475アルミニウム合金は図10(b)タイプ、また(α+γ)二相ステンレス鋼は図10(c)タイプである。加工硬化係数 n 値(図11の曲線勾配)とひずみ速度急変法より求めた m 値のひずみに伴う変化を図12に各々示す。両合金の超塑性挙動の違いは明確である。これらの n , m 値より算出した $I(\epsilon)$ の変化を図13に示す。両合金の n , m 値はひずみ量に伴い共に異なる変化を示したのに対し、 $I(\epsilon)$ 値は、共に負あるいはゼロに近い値を示し、大きな変形量まで変形が安定であるという結果を示している。このように、変形中の組織変化の違いによる n および m 値の変化を、Hartの変形の安定条件で統一する事が可能で、かつ巨大超塑性伸び値の出現理由がこの条件で保証され得る事が判る。今後、変形中の組織変化と n および m 値の変化の対応性が明確になれば超塑性変形の本質的な構造解析が今までとは異なった観点から行なわれるものと期待される。

7 おわりに

本小文では、超塑性研究の歴史的流れを展望した。そして、各時代の研究から遊離してきた超塑性ミクロ組織に対する問題点を指摘し、従来の超塑性材料の変形中のミクロ組織変化とは異なる挙動を示す超塑性材料の存在を明らかにした。つぎに、これらの超塑性材料の変形中のミクロ組織変化に対する認識を総括し、両材料の変形中の超塑性ミクロ組織に対する認識の違いが、変形中の加工硬化と加工軟化の変動の違いに起因する事を示した。また、両超塑性材料の巨大伸び値の出現理由を変形の塑性安定条件より明らかにした。

最後に、この小文をまとめるに際し、ご助言、ご指導して頂いた大阪府立大学工学部伊藤太一郎教授に感謝致します。また、(α+γ)二相ステンレス鋼の組織写真(図4)を快く提供して頂いた立命館大学理工学部館山恵博士に謝意を表します。

参考文献

- 1) G. D. Bengough, J. Inst. Met., **7**, 123 (1912).
- 2) C. E. Pearson, *ibid.*, **54**, 111 (1934).
- 3) E. E. Underwood, J. Metals, **14**, 914 (1962).
- 4) W. A. Backofen, I. R. Turner and D. H. Avery, Trans. of ASM, **57**, 980 (1964).
- 5) D. H. Avery and W. A. Backofen, *ibid.*, **58**, 551 (1965).
- 6) D. L. Holt and W. A. Backofen, *ibid.*, **59**, 755 (1966).
- 7) S. W. Zehr and W. A. Backofen, *ibid.*, **61**, 300 (1968).
- 8) J. W. Moore, J. Tequesta and R. L. Athey, U. S. Patent 3,519,503 (1976).
- 9) D. Lee and W. A. Backofen, Trans. AIME, **239**, 1034 (1976).
- 10) N. E. Paton and C. H. Hamilton, Met. Trans., A-10, 241 (1979).
- 11) B. M. Watts, M. J. Stowell, B. L. Baikie and D. G. E. Owen, Met. Sci., **10**, 198 (1976).
- 12) O. D. Sherby, B. Walser, C. M. Young and E. M. Cady, Scr. Metall., **9**, 569 (1975).
- 13) O. A. Ruano, L. E. Eiselstein and O. D. Sherby, Metall. Trans., A-13, 1785 (1982).
- 14) T. G. Nieh, C. A. Henshall and J. Wadsworth, Scr. Metall., **18**, 1405 (1984).
- 15) T. G. Nieh, P. S. Gilman and J. Wadsworth, Scr. Metall., **19**, 1375 (1985).
- 16) T. R. Bieler, T. G. Nieh, J. Wadsworth and A. K. Mukherjee, Scr. Metall., **22**, 81 (1988).
- 17) F. Wakai, S. Sakaguchi and Y. Matsuno, Advanced Ceramic Mate., **1**, 259 (1986).
- 18) F. Wakai and H. Kato, Advanced Ceramic Mate., **2**, 71 (1987).
- 19) Ed. by N. E. Paton and C. H. Hamilton, "Superplastic Forming of Structural Alloys" (1982) AIME, Warrendale, PA.
- 20) Ed. by S. P. Agrawal, "Superplastic Forming" (1985) Metals Park, OH, ASM.
- 21) Ed. by R. Pearce and L. Kelly, Superplasticity in Aerospace-Aluminium, (1985) Ashford Press, Cranfield, England.
- 22) Ed. by B. Baudelet and M. Suery, "Superplasticity", Editions CNRS (1985) Grenoble, France.
- 23) Ed. by T. R. McNelley and H. Charles, "Superplasticity in Aerospace" (1988) AIME, Phoenix.
- 24) Ed. by M. Doyama and S. Somiya, MRS Intn. Meeting on Advanced Materials (1988) Tokyo, Japan.
- 25) Superplasticity and Superplastic Forming, Ed. by N. E. Paton and C. H. Hamilton (1988) AIME, Seattle, WA.
- 26) 東 健司, 粉体工学会誌, **25**, 528 (1988).
- 27) 松木賢司, 上埜安英, 山田正夫, 日本金属学会誌, **38**, 448 (1973).
- 28) A. E. Geckinli and C. R. Barrett, J. Mat. Sci., **11**, 510 (1976).

- 29) P. Griffiths and C. Hammond, *Acta Met.*, **20**, 935 (1972).
- 30) C. Hammond, private communication.
- 31) C. H. Hamilton, S. P. Agrawal, N. E. Paton, J. C. Chennutt and E. D. Weisert, Rockwell International Science Centre Report J / 0442A / cb, undated.
- 32) G. Herriot, M. Suery and B. Baudalet, *Scri. Met.*, **6**, 657 (1972).
- 33) M. Suery and B. Baudalet, *J. Mat. Sci.*, **8**, 363 (1973).
- 34) G. Herriot, B. Baudalet and J. J. Jonas, *Acta Met.*, **24**, 687 (1976).
- 35) B. M. Watts, M. J. Stowell, B. L. Baikie and D. G. E. Owen, *Met Sci.*, **10**, 198 (1976).
- 36) K. J. Gardner and R. Grimes, *ibid*, **13**, 216 (1979).
- 37) J. Wadsworth, 文献20) に同じ.
- 38) R. Grimes, 文献22) に同じ.
- 39) 大隅 真, 高橋明男, 清水正治, 都筑隆之, 三菱重工技報, **20-4**, 1 (1983).
- 40) 東 健司, 未発表.
- 41) 前原泰裕, 鉄と鋼, **73**, 1722 (1987).
- 42) H. J. McQueen, E. Evangelista, J. Bowles and G. Crawford, *Met. Sci.*, **18**, 395 (1984).
- 43) K. Lintermanns and H. A. Kuhn, Aluminum alloy, their physical and mechanical properties, Ed. by E. A. Starke, Jr and T. H. Sandders, Jr, **1**, 529 (1986).
- 44) M. R. Drusy and F. J. Humphreys, *Acta Met.*, **34**, 2259 (1986).
- 45) E. Nes, 文献22) に同じ.
- 46) N. Ridley, 文献19) に同じ.
- 47) 牧 正志, 第44回超塑性研究会資料 (1988).
- 48) 飴山 恵, *ibid.*
- 49) R. W. Bailey, *J. Inst. Met.*, **35**, 27 (1926).
- 50) A. K. Mukherjee, J. E. Bird and J. E. Dorn, *Trans. ASM*, **62**, 155 (1969).
- 51) H. W. Hayden, S. Floreen nd P. D. Goodell, *Met. Trans.*, **3**, 833 (1972).
- 52) B. P. Kashyap and A. K. Mukherjee, 文献22) に同じ.
- 53) A. K. Ghosh and C. H. Hamilton, *Met. Trans.*, **13A**, (1982).
- 54) E. W. Hart, *Acta Met.*, **15**, 351 (1967).