サブミクロン粒径をもつ Al-3%Mg 合金 ——その製造と組織——

九州大学助教授；工学部材料工学科 堀田 善治*
九州大学訪問研究員，現在：西安冶金建筑学院助教授 王 経涛
福岡教育大学助教授；教育学部技術科 古川 稔
九州大学教授；工学部材料工学科 根本 實

Russian Academy of Sciences, Professor, **Ruslan Z. Valiev**
University of Southern California, Research Assistant Professor, **Yan Ma**
University of Southern California, Professor, **Terence G. Langdon**

1. はじめに

結晶粒微細化は金属材料の強度や延性改善に有効であることはよく知られたことである。ホール・ペッチの関係に従えば、低温度における降伏強度は結晶粒の微細化とともに増加することになる。この強化法は靱性を損なわずに強化できる重要な強化法である。一方、変形温度が $\sim 0.5T_m$ (T_m は融点)以上の高温で、結晶粒径が $\sim 10\ \mu\text{m}$ より小さくなると、大きな延性をもたらす超塑性現象が出現するようになる。結晶粒径をさらに微細にしナノレベルあるいはサブミクロンレベルにすると、このような超塑性現象は高ひずみ速度で出現する可能性があり、材料の成形加工にとっては注目すべきこととなる。

ナノ粒径やサブミクロン粒径の微細結晶粒を得るには、一般にガス凝集凝着法⁽¹⁾、高エネルギーボールミリング法⁽²⁾、すべり摩耗法⁽³⁾などが用いられている。しかし、いずれの方法も構造材料として利用できる程に大きな材料を得るのは困難であり、また空隙が材料中に残存する⁽⁴⁾など構造材料としては致命的な問題が残る。

ところで、金属材料に準静水圧下で強ひずみを課すことにより結晶粒径をサブミクロンレベルにできることが Smirnova ら⁽⁵⁾によって示された。以来、ロシアの研究者を中心に、Al⁽⁶⁾、Cu⁽⁷⁾、Fe⁽⁸⁾、Mg⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾、Ti⁽¹¹⁾などの金属や合金、さらに TiAl⁽¹²⁾の金属間化合物でサブミクロン粒径を有するバルク状試料が製造できたことが報告されている。

本研究では、Equal-Channel Angular Pressing (ECAP) 法⁽¹³⁾と呼ばれる強ひずみ加工法でサブミクロン粒径[†]の Al-3%Mg 固溶体合金を作製し、その微細結晶粒組織を透過電子顕微鏡により観察した。さらに、この合金の延性評価を行

うとともに、変形中に生じた組織変化について調べた。

2. ECAP 法

図1は、SMG 材製造のための ECAP 法を模式的に示したものである。同じ断面積をもち角度 Φ で交わる二つの管の一方に試料を入れ、圧力をかけて試料を通す。このとき純粋なせん断変形が二つの管の交差した面で均一に起こる。ただし、管の入口と出口で試料の大きさは変わらない。このようなせん断変形を繰り返し行い目標の塑性ひずみを得る。いま N をせん断変形の繰り返し数とすると、試料の受ける真の塑性ひずみ ε は次式で与えられる⁽¹⁴⁾。

$$\varepsilon = \cosh^{-1}[N \cot(\Phi/2)]$$

図1 ECAP法による SMG 材製造の模式図。

[†] Submicrometer-Grain を略して本稿では SMG と呼ぶ。

図2 (a) ECAP 組織, (b) A, B, C 領域の制限視野回折パターン。

本実験では、約 500 μm の初期結晶粒径をもつ大きさ $14 \times 14 \times 60 \text{ mm}^3$ の試料を用いた。ECAP は $\Phi = \pi/2$ の条件で行い、約 4 の真塑性ひずみを得るまで変形を繰り返した。作製中は中間焼鈍は行わなかった。

3. ECAP 組織と通常圧延組織との比較

図 2(a) は ECAP 組織を示す。組織は不均一で、結晶粒が特定方向に長い形状のものや等軸状のものが観察される。図 2(b) は図 2(a) の A, B, C をつけた直径 1.9 μm からの制限視野回折パターンを示す。いずれも回折斑点が円周方向にランダムに散在していることから、各結晶粒間のミスオリエンテーションが大きく集合組織ではないことが確認される。各回折斑点は散漫であることから結晶粒内に内部ひずみが存在することが知られる。結晶粒界は粒の形状にかかわらず不明瞭であり、非平衡状態にあると考えられる。結晶粒径を Linear Intercept 法で測定すると、約 0.2 μm が得られた。

図 3 は通常の圧延で同程度のひずみを加えた時の組織である。ECAP 組織と一見同じように見えるが、図中の直径 1.9 μm から得た制限視野回折パターンから判断すると、特定方位のサブグレインからなる集合組織となっている。

なお、組織観察には九州大学超高压電子顕微鏡室の JEM-2000FX を加速電圧 200 kV で用いた。組織観察用薄膜試料の作製手順については別報で述べた⁽¹³⁾。

4. 延性評価

図 4 は 403 K で変形したときの破断までの伸びと初期ひずみ速度との関係を示したものである。変形には、あらかじめ 443 K で 1.8 ks 焼鈍した試験片と (○) そうでない試験片 (□) を用いたが、この焼鈍による組織上の変化は認められなかった。破断伸びも、変形前の焼鈍の有無にかかわらずひずみ速度の減少とともに増加し、両試験片とも $1.3 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ で約 175% になった。比較のために結晶粒径約 500 μm の試

図3 通常の圧延で得られた組織と制限視野回折パターン。

図4 403 K で変形したときの破断伸びと初期ひずみ速度との関係。

験片を $1.3 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ で変形すると、●で示すように破断伸びは 88% と半減し、延性改善に対して結晶粒微細化が効果的であったことが知られる。

5. 等温変形組織

図 5(a) は $1.3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ のひずみ速度で変形したときの組織である。図 2(a) の ECAP 組織とよく似た組織を呈している。ひずみ速度が一桁速い $1.3 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ で変形した試験片でも同様な組織が観察された。

図 5(b) には $1.3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ のひずみ速度で変形した場合の組織と制限視野回折パターンを示す。回復や再結晶が生じて結晶粒はかなり等軸状になっているが、一部の等軸粒は方向性を持った結晶粒の跡にできていることがコントラストの違いから分かる。結晶粒界もかなり明瞭になっていることが観察される。また、各回折斑点の散漫度は小さくなり、これは粒内転位密度の減少に伴う内部ひずみの減少によるものと

図5 (a) $1.3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ で変形したときの变形組織, (b) $1.3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ で変形したときの变形組織と制限視野回折パターン, (c) $1.3 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ で変形したときの变形組織と制限視野回折パターン.

表1 変形後の結晶粒径.

結晶粒径 (μm)	ひずみ速度 (s^{-1})			
	1.3×10^{-2}	1.3×10^{-3}	1.3×10^{-4}	1.3×10^{-5}
	0.16*	0.18*	0.21	0.39

* 方向性を持った結晶粒の幅

考えられる.

図5(c)は $1.3 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ のひずみ速度で変形したときの組織と制限視野回折パターンである. 結晶粒の形状は等軸で, 再結晶が変形中に十分起こったことが確認される. 結晶粒界は明瞭で直線的であり, 粒界に沿った消費縞は規則的である. 回折斑点は円周方向にランダムに分布しており, 各結晶粒間には大きなミスオリエンテーションがあることが分かる. また, 回折斑点は丸くて鮮明であることから内部ひずみが消失していることが明らかである.

表1は変形後の結晶粒径を示す. ひずみ速度が小さく変形時間が長くなると, 結晶粒径が大きくなることが分かる.

6. お わ り に

本実験で得られた SMG 材の破断伸びは粗大粒のものと比べて2倍程大きい, 超塑性という基準から見れば十分な伸びとはいえない. 結晶粒径が約 $0.2 \mu\text{m}$ と小さいにもかかわらず伸びが十分ではなかったのは, 結晶粒の形状が均一でなかったこと, 結晶粒界が不明瞭で非平衡状態にあったこと, 粒内転位が多かったことなどが理由として挙げられる. また, $\sim 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ のような遅いひずみ速度で破断伸びが大きくなったのも, 同じような理由によるものと考えられる. いかにして形状均一なサブミクロンレベルの結晶粒を得るのか, また, 結晶粒径をサブミクロンレベルに保ったまま, いかにして粒内転位を少なくし結晶粒界を明瞭で平衡状態にするのが今後の重要課題となろう. しかし, サブミクロン粒径のバルク状試料が Al-3%Mg 合金のような利用価値の高い金属材料で得られたことは, 超塑性現象を利用した成形加工

の分野で大きな期待が持たれるものと思われる.

本研究は, 軽金属奨学会のグループ研究助成金, および米国立科学財団(National Science Foundation-NSF)の補助金によって行われたものである. また, 王 経涛の九州大学滞在は九州大学工学部国際学術交流資金からの援助によるものである. ここに記して謝意を表する.

文 献

- (1) H. Gleiter: *Deformation of Polycrystals: Mechanisms and Microstructures*, Ed. N. Hansen, A. Horsewell, T. Leffers and H. Lilholt, Riso National Laboratory, Roskilde, Denmark, (1981), p. 15.
- (2) C. C. Koch and Y. S. Cho: *Nanostruct. Mater.*, **1**(1992), 207.
- (3) D. A. Rigney: *Ann. Rev. Mater. Sci.*, **18**(1988), 141.
- (4) D. M. Owen, A. H. Chokshi, Y. Ma and T. G. Langdon: *Brit. Ceram. Proc.*, **51**(1993), 58.
- (5) N. A. Smirnova, V. I. Levit, V. I. Pilyugin, R. I. Kuznetsov, L. S. Davydova and V. A. Sazonova: *Fiz. Metal. Metalloved.*, **61**(1986), 1170.
- (6) R. Z. Valiev and N. K. Tsenev: *Hot Deformation of Aluminum Alloys*, Ed. T. G. Langdon, H. D. Merchant, J. G. Morris and M. A. Zaidi, TMS, Warrendale, PA, (1991), p. 319.
- (7) N. A. Akhmadeev, N. P. Kobelev, R. R. Mulyukov, YA. M. Soifer and R. Z. Valiev: *Acta Metall. Mater.*, **41**(1993), 1041.
- (8) R. Z. Valiev, R. R. Mulyukov, V. V. Ovchinnikov and V. A. Shabashov: *Scripta Metall. Mater.*, **25**(1991), 2717.
- (9) R. Z. Abdulov, R. Z. Valiev and N. A. Krasilnikov: *J. Mater. Sci. Lett.*, **9**(1990), 1445.
- (10) R. Z. Valiev, N. A. Krasilnikov and N. K. Tsenev: *Mater. Sci. Eng.*, **A137**(1991), 35.
- (11) O. Kaibyshev, R. Kaibyshev and G. Salishchev: *Mater. Sci. Forum*, **113-115**(1993), 423.
- (12) R. M. Imayev, V. M. Imayev and G. A. Salishchev: *J. Mater. Sci.*, **27**(1992), 4465.
- (13) J. Wang, Z. Horita, M. Furukawa, M. Nemoto, N. K. Tsenev, R. Z. Valiev, Y. Ma and T. G. Langdon: *J. Mater. Res.*, **8**(1993), 2810.
- (14) V. M. Segal, V. I. Reznikov, F. E. Drobyshevski and V. I. Kopylov: *Izv. Akad. Nauk SSSR-Metally*, **1**(1981), 115.

(1993年10月8日受理)

(*連絡先: 〒812 福岡市東区箱崎6-10-1)