ECAP 加工による微細粒組織の形成*

堀田 善治**

Production of Ultrafine-Grained Structures Using Equal-Channel Angular Pressing*

by HORITA Zenji**

キーワード 強ひずみ加工, ECAP, 結晶粒微細化, 高強度, 高延性, 超塑性

1. はじめに

金属材料は結晶粒を微細化することで一般に強度や延性などの力学特性が改善される。著者らのグループでは、これまでに ECAP (Equal-Channel Angular Pressing) と呼ばれる強ひずみ加工法¹⁾で結晶粒を微細化し²⁾、強度改善を試みてきた³⁻⁵⁾。また、高ひずみ速度や低温度での超塑性の発現を確認している^{6, 7)}。最近では、ECAP 加工で微細粒組織を保ったまま第 2 相粒子の微細な分散制御も可能であることを示している⁸⁾。ここでは、ECAP 加工による微細粒組織の形成について概説し、関連の力学特性について紹介する。

2. ECAP

図 1 に ECAP 法によるひずみ導入の模式図を示す。同じ断面積をもち、角度 Φ で屈曲して上部から側部へ貫通する穴、すなわちチャンネルを設けて金型 (ダイ) とする。上部から試料を入れて強制的に押し出すことにより屈曲部で試料内にせん断ひずみが導入されることになる。穴の上部入口と側部出口で試料の断面形状が変わらないことから、出てきた試料は再度穴の中に入れることができ、せん断ひずみがさらに加えられる。繰り返し穴の中を通すことにより試料にはひずみが蓄積されることになる。いま、試料が穴を通った回数を N とすると、試料に導入される相当ひずみ ε_N は図 1 中のチャンネル角度 Φ と弧の角度 Ψ を用いて次式で与えられる⁹⁾。

$$\varepsilon_N = (N/\sqrt{3}) [2 \cot \{(\Phi/2) + (\Psi/2)\} + \Psi \operatorname{cosec} \{(\Phi/2) + (\Psi/2)\}]$$

図 2 は 1 回通したときの相当ひずみ ε_1 を幾つかの Ψ のもとに Φ の関数として計算したものである。 ε_1 は Ψ にはあまり影響されず、 $\Phi = 90^\circ$ ではいずれの Ψ でも約 1 となる。

このようなせん断ひずみの導入法は 1981 年ロシア (当時ソ連) の Segal ら¹⁾によって考案され、1991 年に同じくロシアの Valiev ら²⁾によってサブミクロンレベルの結晶粒微細化に利用できることが示された。

3. 結晶粒微細化と力学特性

図 3 は 99.99% の高純度アルミニウムを室温で 4 回 ECAP したときの透過電子顕微鏡 (TEM) 写真と直径 $12.3\mu\text{m}$ 領域より得た制限視野回折 (SAED) パターンである。ECAP は室温で行い、潤滑剤として二硫化モリブデン (MoS_2) を使用した。2 回目以降の ECAP は試料を長軸の回りに 90° ずつ回す、いわゆる Route B_C という方法で行った。これは、微細結晶粒組織が試料無回転あるいは 180° 回転の場合より効率よく達成できるという報告による¹⁰⁾。なお、試料の観察面や方向は図 4 の定義に対応

図 1 ECAP 法の模式図

*原稿受付 平成16年12月15日
**九州大学大学院 Kyusyu University

図2 相当ひずみとチャンネル角の関係。

図5 0.2% 耐力と結晶粒度の関係。

図3 4回パスした99.99%AlのTEM組織とSAEDパターン。

図6 破断伸びと初期ひずみ速度の関係。

図4 ECAP 観察面と方向の定義。

する。いずれの面も等軸状の結晶粒が得られ、平均結晶粒径は約 $1.3\mu\text{m}$ であった。SAED パターンがリング状を呈することから、粒界角は大角化していることが知られる。

図5は、2種類の市販Al合金(1100, 3004)でホールペッチの関係が成り立つことを示したものである¹¹⁾。それぞれの合金でECAP加工は室温で6回と8回施し、さらに100℃、150℃、200℃、250℃、300℃で1時間熱処理して結晶粒度を調整したのち引張試験を行い、0.2%耐力を結晶粒度の $-1/2$ 乗、すなわち $d^{-1/2}$ に対してプロットしたものである。

図6はAl-3mass%Mg-0.2mass%Sc合金を室温で8回ECAP加工し引張試験を行った時の初期ひずみ速度に対する破断伸びを示したものである¹²⁾。573Kの低温度でも

図7 変形後の引張試験片の形状。

ひずみ速度 $1.0 \times 10^{-2} \text{s}^{-1}$ で1280%の超塑性伸びが得られた。一方、冷間圧延材(C.R.)の伸びは200~300%であった。ECAP加工は超塑性特性の向上に効果的であることが示される。図7は673Kで引張試験を行った時の試験片形状を示したものである。均一に変形が進行していることが知られる。

4. 第2相粒子の微細分散化

図8は、Al-10.8mass%Ag合金を溶体化後8回パスし、373Kと473Kで時効したときの時効曲線である⁸⁾。比較

図8 溶体化材と ECAP 材の時効曲線.

図10 板状 ECAP の模式図.

図9 ECAP 材を (a) 373 K と (b) 473 K で 100 h 時効したときの透過電子顕微鏡組織.

のために溶体化後そのまま時効したときの結果も示す。473 K の時効において、溶体化材は典型的な時効硬化曲線を示すのに対して、ECAP 材は硬度が減少し時効硬化は見られない。一方、373 K 時効では、溶体化材と ECAP 材ともに硬度の増加が見られ、100 h 時効でピーク値を示した。特に ECAP 材のピーク硬度は他のいずれの試料よりも高い値となっている。

図9には、ECAP 材を (a) 373 K と (b) 473 K で 100 h 時効したときの透過電子顕微鏡組織を示す⁹⁾。両者の組織には大きな違いがあることが確認される。時効温度が 373 K の場合、結晶粒径が約 $1\mu\text{m}$ 以下に微細に保たれ、図9 (a) の A で示すように転位密度の高い微細結晶粒も観察される。結晶粒内には B で示すような直径数十 nm の細かな析出粒子が観察され、結晶粒界には C で示すような直径数百 nm の塊状粒子が観察される。分析電子顕微鏡による解析結果によれば、粒内に析出した細かい析出粒子は、球状の GP ゾーン (η ゾーン) と板状の γ' 中間相であることが分かった。また、粒界上に析出した粒子は γ 安定相であることが分かった。これに対し、図9 (b) で示すように 473 K で時効した組織では微細粒領域は見

図11 純 Al 4 パス後の X 軸方向から観察した TEM 組織と SAED パターン.

られず、観察される析出粒子は直径 500 nm 以上の粗大な γ 安定相粒子であることが確認された。すなわち、ECAP 加工材の 373 K 時効では、結晶粒微細化硬化と微細粒子の析出による時効硬化の両方が重畳して大きな硬度値を示したものと考えられる。

5. ECAP の板材への適用

ECAP を用いて結晶粒を微細化するには先に述べたように Route B_c を利用するのが最も効果的である¹⁰⁾。しかし、棒材には適用できるが、板材への適用は Route B_c を用いた場合、非現実的である。そこで、著者らのグループは、図10に模式的に示すように正方形の板材を準備し、板面法線方向 (Z 方向) に 90° ずつ回転する Route B_{cz} を提案した¹³⁾。こうすることで、Route B_c と同様に多方向からせん断ひずみが導入でき、結晶粒の微細化とともに粒界の高角化が効果的に行われることが期待できる。

図11は純 Al を 4 パスした後 X 軸方向より観察した TEM 組織と制限視野回折 (SAED) パターンである。等軸状で明瞭な結晶粒界を有する結晶粒径約 $1\mu\text{m}$ の微細粒組織が得られている。SAED パターンより結晶粒界は高角であると考えられる。約 70~80% の領域がこのような高角粒界を有する等軸状微細粒組織であることが確認さ

図12 X面上における試料端より中心までの硬度測定結果。

れた。YおよびZ軸方向からの観察でもほぼ同様な組織が観察された。

図12は、X面上を試料の端から中心部に向けて1mmごとに硬度を測定した結果である。この一連の硬度測定はZ面に垂直に深さ0.5mmから4.5mmまで1mm間隔で行った。狭い範囲で硬度値にばらつきはあるものの、ほぼ一定であることが知られる。Y面上でも同様な結果が得られ、試料全体にわたって硬度値は一定であり均一であることが確認された。最近、Al-1mass%Mg-0.2%Sc合金をRoute B_{CZ}で4回パスして高温変形したところ、超塑性伸びが得られた¹⁴⁾。

6. おわりに

ECAP法はバルク材の結晶粒を微細化できることで注目される。また第2相粒子の分散度を制御して強度改善を図ることができることも注目される。プレス機の容量が十分であれば、試料の大型化も可能である¹⁵⁾。しかし、ECAPプロセスは不連続的であることから、生産効率は良くない。最近、連続的に強ひずみが付与できるプロセス法が提案されている。著者らのグループでは結晶粒微細化が連続的に可能なSTSP (Severe Torsion Straining

Process) 方法¹⁶⁾を考案し、強ひずみ加工プロセスの実用化を目指している。

参考文献

- 1) V. M. Segal, V. I. Reznikov, A. E. Drobyshesky and V. I. Kopylov, *Russian Metallurgy (Metally)*, 1 (1981) 99-105.
- 2) R. Z. Valiev, N. A. Krasilnikov and N. K. Tsenev, *Materials Science and Engineering*, A137 (1991), 35-40.
- 3) 堀田善治, 王経涛, 古川稔, 根本実, R. Z. Valiev, Y. Ma and T. G. Langdon, 日本金属学会会報「まてりあ」, 32 (1993) 898-900.
- 4) 堀田善治, 古川稔, T. G. Langdon, 根本実, 日本金属学会会報「まてりあ」, 37, (1998) 767-774.
- 5) Z. Horita, T. Fujinami, M. Nemoto and T. G. Langdon, *Journal of Materials Processing Technology*, 117, (2001) 288-292.
- 6) S. Komura, Z. Horita, M. Furukawa, M. Nemoto and T. G. Langdon, *Metalurgical. Materials Transactions* 32A, (2001) 707-716.
- 7) S. Ota, H. Akamatsu, K. Neishi, M. Furukawa, Z. Horita and T.G. Langdon, *Materials Transactions*, 43, (2002) 2364-2369.
- 8) K. Ohashi, T. Fujita, K. Oh-ishi, K. Kaneko, Z. Horita and T.G. Langdon, *Materials Science Forum*, 426-432, (2003) 2637-2642.
- 9) Y. Iwahashi, J. Wang, Z. Horita, M. Nemoto and T. G. Langdon, *Scripta Materialia*, 35 (1996) 143-146.
- 10) Y. Iwahashi, J. Wang, Z. Horita, M. Nemoto and T. G. Langdon, *Acta Materialia*, 46, (1998) 3317-3331.
- 11) Z. Horita, T. Fujinami, M. Nemoto and T. G. Langdon, *Metalurgical. Materials Transactions* 31A, (2000) 691-701.
- 12) 藤田武志, 小村章吾, 堀田善治, Terence G. Langdon, 軽金属, 50 (2000), 376-380.
- 13) M. Kamachi, M. Furukawa, Z. Horita and T. G. Langdon, *Materials Science and Engineering*, A361, (2003) 258-266.
- 14) M. Kamachi, M. Furukawa, Z. Horita and T. G. Langdon, *Materials Transactions* 45, (2004) 2521-2524.
- 15) Z. Horita, T. Fujinami and T. G. Langdon, *Materials Science and Engineering*, A318, (2001) 34-41.
- 16) K. Nakamura, K. Neishi, K. Kaneko, M. Nakagaki and Z. Horita, *Materials Transactions*, 45, (2004) in press.