

微細粒アルミニウム固溶体での高温変形中の 粒界すべりと溶質雰囲気引きずり運動の共存

伊藤 勉^{*,**} 水口 隆^{***}

1. はじめに

超塑性とは材料に大きな均一伸びを生じる現象のことである⁽¹⁾。日本では、2002年にJIS規格(H7007)⁽²⁾において超塑性に関する定義が制定された。JIS規格では、「多結晶材料の引張変形において、変形応力が高いひずみ速度依存性を示し、局部収縮(ネッキング)を生じることなく数百%以上の巨大な伸びを示す現象」と定義されている⁽²⁾。この現象は、今日、塑性加工が難しい材料の塑性加工法として活用⁽¹⁾⁽³⁾⁻⁽⁵⁾されている。

超塑性の発現機構として、微細結晶粒超塑性⁽¹⁾、内部応力超塑性⁽¹⁾⁽⁶⁾⁻⁽⁹⁾、Class I型固溶体における粒内変形支配の超塑性的挙動⁽¹⁾⁽¹⁰⁾⁻⁽¹⁹⁾がある。各超塑性の発現機構の詳細は文献に譲るとして、一般に超塑性と言えば微細結晶粒超塑性を指す。

超塑性の歴史は古く、青銅器時代初期(紀元前2500年頃)のトルコで用いられていた砒素を10%含んだ砒素青銅が、複雑形状を作る際に必要とされる微細構造を有する二相合金であったことから、微細結晶粒超塑性が発現したのではないかとGeckinliは推察している⁽¹⁾。また、超塑性的な特徴が研究された超高炭素鋼の化学組成と紀元前300年から19世紀後半まで使用されていたダマスカス鋼のそれが似ていることから、超塑性を示したのではないかと考えられている⁽²⁰⁾。しかし、当時は金属材料における超塑性現象に関心が払われることはなかった。

超塑性に関する論文として最古のものは、1912年にBengough⁽²¹⁾によって $\alpha+\beta$ 黄銅(Cu-Zn合金)が温度973 Kにおいて163%の最大伸びを示したとするものである。この論文の中でBengoughは、「ある特殊な黄銅を最適な条件で引張ると、まさにガラスのように振舞い、巨大な伸びを示した」と記述している。その後、1928年にJenkins⁽²²⁾は、加工熱処理を施したCd-ZnやPb-Snの共晶合金において、300~400%もの超塑性伸びを示した試験片外観写真をその証拠として掲載した。そして最も衝撃的な報告は、1934年にPearson⁽²³⁾がBi-Sn共晶合金において1950%もの巨大伸びを示したとするものである。しかし、このPearsonの発見は西側諸国に注目されることはなかったが、旧ソビエト連邦で注目されることとなる。旧ソビエト連邦の研究者BochverとSviderskayaは、1945年に発表した論文の中で、超塑性の語源となる“sverhplastichnost”という用語を用いた⁽²⁴⁾。その後、1959年に初めて“superplasticity”(超塑性)という用語が学術論文⁽²⁵⁾の中で用いられた。しかし、超塑性が世界的に関心を持たれるようになったのは今世紀に入ってからのものである。1960年代に入ると、米国の研究者Underwood⁽²⁶⁾により旧ソビエト連邦の研究論文の再調査が進められ、超塑性に関する興味深い論文が増加した。さらに、1970年代になると式(1)で表される、ひずみ速度感受性指数⁽²⁷⁾⁽²⁸⁾(Strain Rate Sensitivity: m 値)を用いた超塑性変形機構の議論が行われるようになった。

$$m = \frac{\log \sigma}{\log \dot{\epsilon}} \quad (1)$$

* 香川高等専門学校機械工学科；准教授(〒761-8058 高松市勅使町355)

** 物質・材料研究機構 構造材料拠点エネルギー構造材料分野 耐熱材料設計グループ；NIMS 特別研究員(国立高等専門学校機構 派遣研究教員)

*** 愛媛大学大学院理工学研究科物質生命工学専攻；准教授

Coexistence of Grain Boundary Sliding and Solute Drag Creep during High-Temperature Deformation for Fine-Grained Aluminum Solid Solution Alloy; Tsutomu Ito^{*,**} and Takashi Mizuguchi^{***} (*Department of Mechanical Engineering, National Institute of Technology, Kagawa College, Takamatsu. **High Temperature Materials Design Group, Energy Infrastructure Materials Field, Research Center for Structural Materials (RCSM), National Institute for Materials (NIMS), Tsukuba. ***Graduate School of Science and Engineering, Ehime University, Matsuyama)

Keywords: *superplasticity, superplastic-like behavior, grain growth, grain boundary sliding, solute drag creep, deformation mechanism*

2017年1月27日受理[doi:10.2320/materia.56.346]

ここで、 σ は応力、 $\dot{\epsilon}$ はひずみ速度である。1980年代になると、超塑性成形の実用化を目指し、超塑性変形中の空洞欠陥形成⁽¹⁾機構(キャビテーション)、高速超塑性発現を目指し、メカニカルアロイング⁽¹⁾により作製されるサブミクロンサイズの結晶粒径から成る材料を用いた研究に主眼が置かれた。さらに、1990年代初めには、複合材料における超塑性が確認されるようになった⁽¹⁾。また一方で、超塑性成形の成形速度向上およびエネルギーコスト削減のため、高速超塑性⁽¹⁾⁽²⁹⁾⁻⁽³¹⁾や低温超塑性⁽³²⁾⁻⁽³⁴⁾が注目された。これら超塑性の発現には結晶粒微細化が有効とされ、この頃から強ひずみ加工⁽³⁵⁾⁽³⁶⁾(Severe Plastic Deformation: SPD)による組織制御が盛んに研究されるようになった。SPDとして、Equal Channel Angular Extrusion⁽³⁷⁾(ECAE)法、High Pressure Torsion⁽³⁸⁾(HPT)法、Accumulative Roll Bonding⁽³⁹⁾(ARB)法、Cyclic Extrusion Compression⁽⁴⁰⁾法、Bulk Mechanical Alloying⁽⁴¹⁾法、Asymmetric Rolling⁽⁴²⁾法、Cryogenic Rolling⁽⁴³⁾法、Multi Axial Forging⁽⁴⁴⁾法、Friction Stir Processing⁽⁴⁵⁾(FSP)法などが試みられている。

本稿では、超塑性発現を目的として5083アルミニウム合金にFSPを施し微細結晶粒組織を導入した。FSPを施すことで、本合金には10 μm 以下のほぼ等軸な微細組織が形成された。FSP材の超塑性の発現を確認するに先立ち、静的焼鈍を施しFSPで形成された微細組織の熱的安定性を調査した。その微細組織は熱的に不安定で結晶粒成長が生じやすいが、200%を超える巨大伸びが得られた。高温変形中の変形組織の観察から、変形初期は等軸的な組織を維持し粒界すべり⁽¹⁾が変形を支配しているが、ある変形量を超えると結晶粒が応力軸方向に伸長した組織が観察された。このように、変形とともに結晶粒が応力軸方向に伸長する組織の特徴は、いわゆるClass I型固溶体における粒内変形支配の超塑性的挙動でも観察される。5083アルミニウム合金は、Class I型固溶体の代表であるAl-Mg合金をベースとしている。そこで本稿では、熱的に不安定な微細結晶粒アルミニウム固溶体の高温変形における高温変形機構の遷移(スイッチング)による巨大伸び発現の現象論的特徴について紹介する。

2. 熱的に不安定な微細結晶粒アルミニウム固溶体の高温変形において見られたある特徴

(1) 供試材および組織制御

供試材として、板厚6 mmの5083アルミニウム合金O材の圧延板を用いた。表1にその分析化学組成を示す。本合金はAl-Mg合金をベースとする典型的なClass I型固溶体で

表1 分析化学組成。

元素	Mg	Mn	Fe	Si	Cr	Cu	Ti	Al
質量%	4.54	0.68	0.19	0.13	0.11	0.02	0.02	残部
原子%	5.04	0.33	0.09	0.13	0.06	0.01	0.01	残部

ある。微細結晶粒組織を導入するため、FSPを本合金に施した。FSPとは1991年に英国溶接研究所(The Welding Institute: TWI)で開発された固相接合の1種である摩擦攪拌接合⁽⁴⁶⁾(Friction Stir Welding: FSW)を組織制御法として活用したものである。FSPは組織制御範囲が処理工具の寸法に依存するが、短時間で微細組織が得られる特徴がある。

FSPには日立設備エンジニアリング(株)(現在: 株日立パワーソリューションズ)製のFSW装置(SHH204-720)を用いた。処理工具寸法は、シヨルダール⁽⁴⁵⁾直径 $\phi 20$ 、プローブ⁽⁴⁵⁾径M6、プローブ長さ5.8 mm、プローブ先端はSR3の半球頭、工具材質はSKD51の焼入れ焼戻材である。FSP処理を施すため、圧延板から長さ250 mm、幅50 mmの短冊状の試験片を切出した。切出しは試験片長手方向と圧延方向(Rolling Direction: RD)が平行となるように行った。試験片の幅の中央部をRDと平行に距離200 mmの距離をFSPした。FSPは工具回転数⁽⁴⁵⁾(N_R)1200 rpm、工具移動速度⁽⁴⁵⁾(v)400 mm/min、工具挿入量⁽⁴⁵⁾(h)5.9 mm、工具傾斜角⁽⁴⁵⁾(θ)前進 3° 、位置制御方式⁽⁴⁵⁾で行った。

(2) 初期組織

図1に本合金の母材(Base Metal: BM)とFSP材攪拌部⁽⁴⁵⁾(以下、攪拌部と略記)の横断面マイクロ組織を示す。母材のマイクロ組織からは圧延により横方向に伸長した結晶粒が認められる。このことから、母材はO(焼鈍)材であっても再結晶は生じていない回復組織と考えられる。交点計数法⁽⁴⁷⁾により母材の結晶粒の横方向(Transverse Direction: TD)と法線方向(Normal Direction: ND)の平均切片長さ(l_{BM})を求め、それにFullman補正因子⁽⁴⁸⁾を乗じて算出した平均切片長さ(L)は、横方向と法線方向とでそれぞれ $L_{TD} = 98 \pm 19 \mu\text{m}$ と $L_{ND} = 8.8 \pm 0.3 \mu\text{m}$ である。母材の結晶粒の横方向と法線方向の切片長さの比(Grain Aspect Ratio: GAR = L_{ND}/L_{TD})は 12 ± 2 であり、結晶粒形状に強い異方性がある。これに対し、攪拌部(Stir Zone: SZ)のマイクロ組織からは等軸かつ微細な結晶粒が認められる。交点計数法により攪拌部の結晶粒の平均切片長さ(l_{SZ})を求め、それに補正因子1.74⁽⁴⁹⁾を乗じて平均結晶粒径(d)を算出すると $d_{SZ} = 7.4 \pm 0.2 \mu\text{m}$ で

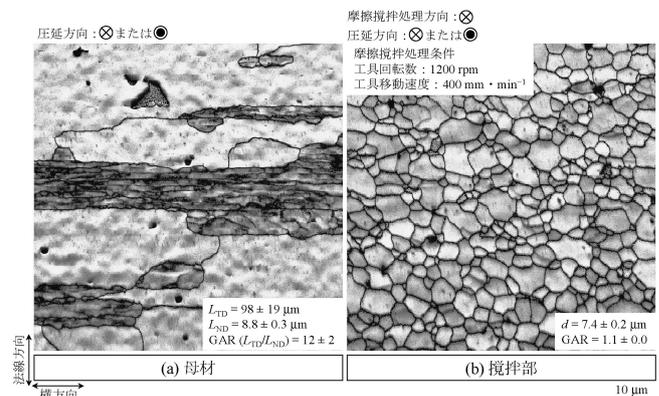


図1 母材および攪拌部のマイクロ組織(初期組織)。

ある。さらに、攪拌部のGARは 1.1 ± 0.0 であり、ほぼ等軸的な微細組織がFSPにより形成される。したがって、5083アルミニウム合金O材にFSPを施すことで、等軸的かつ $10 \mu\text{m}$ 以下の微細組織を形成させることができる。

(3) 攪拌部組織の熱的安定性

図2に攪拌部組織をマッフル炉にて573, 673, 773 Kの各温度で30 min間静的に焼鈍し組織凍結した後のマイクロ組織を示す。本合金のマイクロ組織は673 K以下では熱的に安定でFSP直後と同様に等軸的かつ微細組織を維持しているが、773 K以上で熱的に不安定となり顕著な結晶粒成長が生じている。本稿では、静的焼鈍試験を100 K間隔で荒く実験したため、実際に粒成長が生じ始める温度は673~773 Kの間にあるものと考えられる。

(4) 高温変形組織の特徴

図3に攪拌部の温度698 K、初期ひずみ速度 $1 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ における高温変形組織を示す。上段は変形量(公称ひずみ:

ϵ_n)が50, 100, 150, 200%に達した時点で高温引張試験を中断したマイクロ組織であり、下段は上述の各変形量に達するのと同じ時間静的焼鈍を施したマイクロ組織である。攪拌部の初期粒径は約 $7.9 \mu\text{m}$ であるから、図3下段の静的焼鈍組織は初期粒径に比べ約 $5 \mu\text{m}$ ほど粒成長している。ただし、静的焼鈍組織の平均結晶粒径は、焼鈍時間(変形量)が増加しても $14 \mu\text{m}$ 程度で飽和し、かつほぼ等軸的な組織を呈している。一方、図3上段の高温変形組織は、平均結晶粒径(d)の値からも分かるように、粒成長は生じているものの、変形量50%まではほぼ等軸的な組織を維持しているが、変形量100%を超えると応力軸方向に伸長したマイクロ組織が認められる。微細結晶粒超塑性の発現条件の1つに $10 \mu\text{m}$ 以下の等軸微細組織が必要とされている⁽¹⁾。ところが、本合金はClass I型固溶体に分類される合金であるため、結晶粒径に依存することなく、粒内変形により超塑性的挙動を示すことも可能である⁽¹⁾⁽¹⁰⁾⁻⁽¹⁹⁾。よって、本合金では平均結晶粒径が $10 \mu\text{m}$ を下回るような条件下では、微細結晶粒超塑性の主たる変形機構である粒界すべりが継続できるが、変形中の粒成長によって粒界すべりの継続が困難になると、Class I型固溶体の高温変形機構の主たる変形機構である溶質雰囲気引きずり運動(solute drag クリープ)へ遷移しているのではないかと予測される。そこで以下では、このような変形機構の遷移について考察を加えてゆく。

(5) 高温変形曲線

図4に本合金の攪拌部の応力-ひずみ曲線を代表して温度763 Kの高温変形(真応力-真ひずみ)曲線を示す。攪拌部の高温変形曲線は、一般的な高温変形の特徴である高温、低ひずみ速度ほど変形応力が低下する傾向を示している。特に注

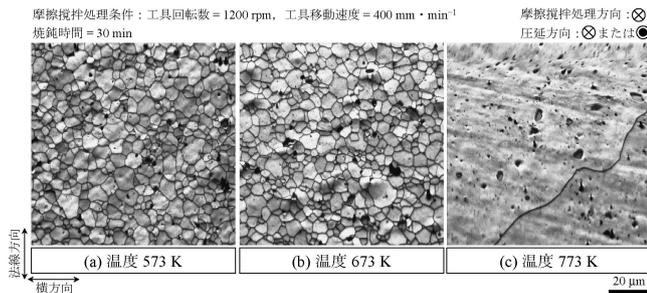


図2 静的焼鈍後の攪拌部のマイクロ組織。

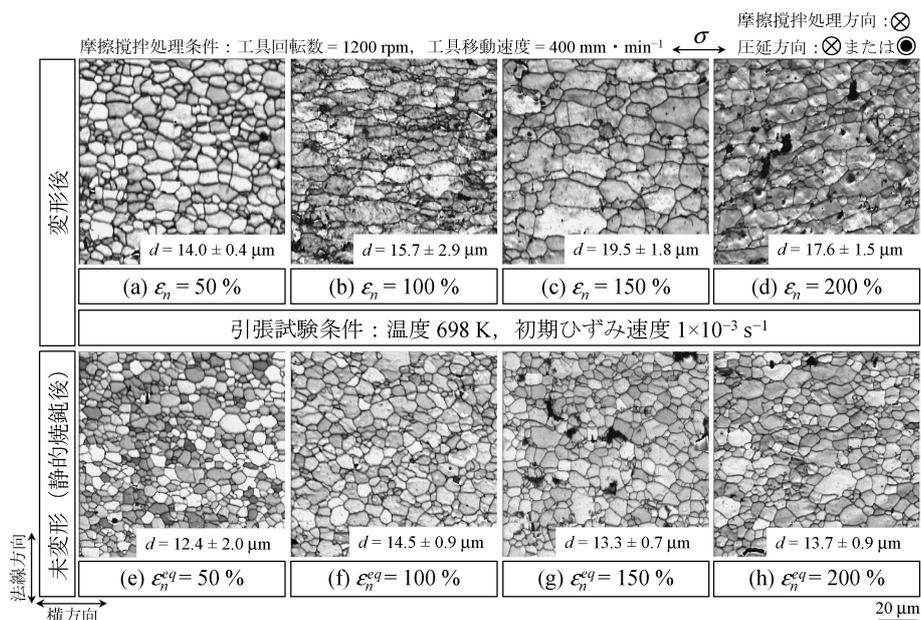


図3 攪拌部の高温変形組織(上段は温度698 K、初期ひずみ速度 $1 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ での各変形量におけるマイクロ組織、下段は各変形量に達するのと同じ時間静的に焼鈍したマイクロ組織。)

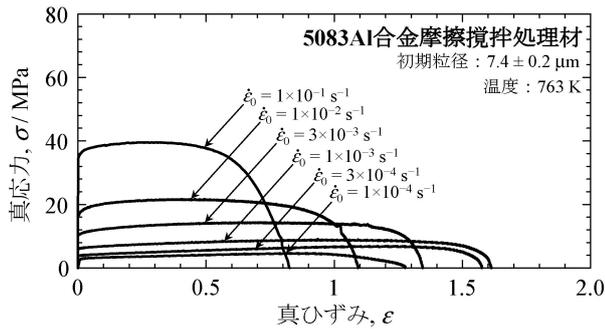


図4 攪拌部の温度763 Kにおける高温変形(真応力-真ひずみ)曲線.

目したいのは、攪拌部の高温変形曲線は、低ひずみ速度の変形条件において変形が進行するに連れ変形応力が緩やかに増加(加工硬化)している[†]。アルミニウム合金は積層欠陥エネルギー⁽⁵⁰⁾が大きいので、容易に回復が生じ、高温変形では加工軟化を生じることが多い。一方で、高温変形では結晶粒径が粗大なほど変形応力は大きくなるため、この変形の進行に伴う変形応力の増加は、変形中の結晶粒成長に伴う変形応力の増加によるものと考えられる。佐藤ら⁽⁵¹⁾⁻⁽⁵³⁾は、超塑性変形中の粒成長挙動について詳細に検討している。それによると、微細結晶粒超塑性変形中に生じる結晶粒成長には、変形誘起成分と時間に依存する静的成分に分離でき、静的成分は変形応力の増大をもたらすが、加工硬化による変形の安定性には寄与せず、変形誘起成分は変形硬化を介し変形を安定化させると結論づけている。高温変形中の結晶粒成長の変形誘起成分と静的成分の分離については今後の検討課題であるが、佐藤らの報告するAl-Mg-Mn合金⁽⁵²⁾では、変形量が真ひずみで最大0.6(公称ひずみに換算すると82%相当)までの範囲における解析であり、本稿で議論する変形量よりも小さい領域における現象を対象としている。

(6) 熱間延性

図5に攪拌部の破断伸びと初期ひずみ速度の関係を示す。比較として、図中に母材の773 Kと803 Kにおける破断伸びを併記している。破断伸びの誤差線は80%信頼区間を表している。攪拌部の熱間延性は、幅広いひずみ速度範囲において200%を超える巨大伸びが得られている。本稿での攪拌部の最大破断伸びは、温度763 K、初期ひずみ速度 $3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ において383%であった。一方、母材の破断伸びはいずれの条件も150%にも満たない。したがって、FSPにより微細組織を導入することで熱間延性が向上する。なお、図2に示した温度773 Kでの攪拌部の静的焼鈍試験後のマイクロ組織観察では、顕著な粒成長が認められたが、同温度での熱間延性は優れている。これは静的焼鈍と高温引張試験に用いた電気炉が異なるため、高温引張試験では図2ほどの顕著

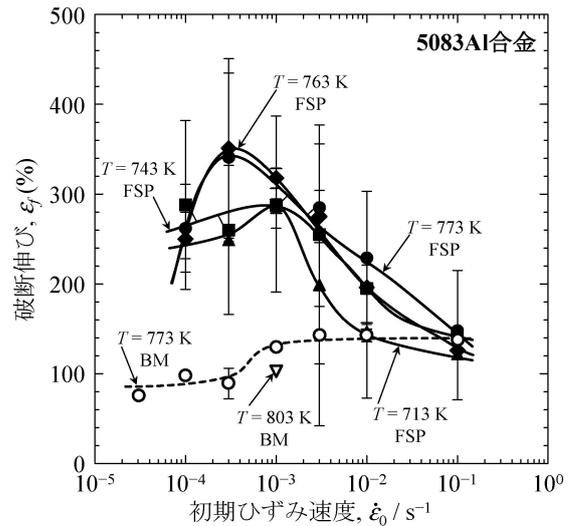


図5 熱間延性.

な粒成長が生じていないためと考えられる。

(7) 高温変形機構

高温変形機構を議論する際に式(2)で表されるDorn型の速度式⁽⁵⁴⁾が用いられる。

$$\dot{\epsilon} = A \left(\frac{\sigma}{E} \right)^n \exp \left(-\frac{Q}{RT} \right) \quad (2)$$

ただし、 $\dot{\epsilon}$ はひずみ速度、 A は材料定数、 σ は応力、 E はヤング率、 n は応力指数、 Q は変形の活性化エネルギー、 R は気体定数、 T は絶対温度である。

高温変形機構を議論する場合、式(2)に従いひずみ速度と応力を両対数関係で整理することで応力指数が求められ、さらに、アーレニウスプロットにより変形の活性化エネルギーが算出され、高温変形機構が同定される。昨今、超塑性に関するISO⁽⁵⁵⁾の改訂に伴い、超塑性変形機構の目安となるひずみ速度感受性指数(m 値： m 値は応力指数の逆数 $m=1/n$)の決定には、公称ひずみ10%における真応力と式(3)で表される真ひずみ速度⁽⁵⁵⁾を用いることが規定された。

$$\dot{\epsilon} = \frac{L_0}{L} \dot{\epsilon}_0 \quad (3)$$

ただし、 $\dot{\epsilon}$ は真ひずみ速度、 $\dot{\epsilon}_0$ は初期ひずみ速度、 L_0 は試験片の初期平行部長さ、 L は公称ひずみ10%における試験片の平行部長さである。

図6に攪拌部と母材の公称ひずみ10%における真応力を式(4)で表される純アルミニウムのヤング率の実験式から算出される各温度に対応する E で除した規格化応力と真ひずみ速度の両対数関係を示す。

$$E \text{ (MPa)} = 8.04 \times 10^4 - 42.6 \times T \quad (4)$$

ここで、式(4)は純アルミニウムの剛性率(G)の実験式⁽⁵⁶⁾(5)を、剛性率からヤング率への換算式⁽⁵⁷⁾(6)を用いて決定した。

$$G \text{ (MPa)} = 3.022 \times 10^4 - 16 \times T \quad (5)$$

$$E \text{ (MPa)} = 2(1+\nu)G \quad (6)$$

[†] 真応力や真ひずみの算出は体積保存を仮定するため、塑性安定な変形範囲内で成立する。

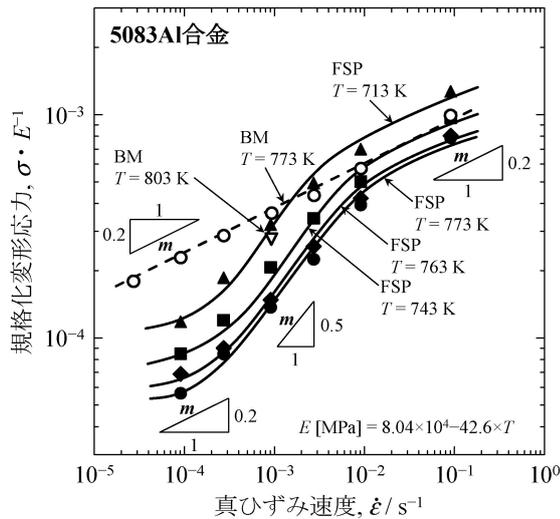


図6 規格化応力と真ひずみ速度の両対数関係。

ここで、 ν はポアソン比で本稿では0.33を用いた。

一般に微細結晶粒材料の高温変形における応力とひずみ速度の両対数関係はS字曲線を示すことが知られている⁽⁵⁸⁾。攪拌部の応力とひずみ速度の両対数関係は、どの試験温度においてもS字曲線を描いている。また、高温変形の特徴である高温、低ひずみ速度域ほど変形応力が低下する傾向を示す。S字曲線の勾配がひずみ速度感受性指数 m 値を表す。攪拌部は中間ひずみ速度域において約0.5となり、高ひずみ速度域と低ひずみ速度域では約0.2となる。中間ひずみ速度域の m 値(約0.5)は粒界すべり⁽⁵⁹⁾の値と一致する。一方、高ひずみ速度の m 値(約0.2)は転位クリープのそれと一致する。低ひずみ速度域の m 値(約0.2)は、変形速度が遅いため、試験片が長時間高温環境下に晒されることで結晶粒成長が生じ、粒界すべりの発現が困難になることによる m 値の低下など諸説⁽⁶⁰⁾⁽⁶¹⁾あり詳細は分かっていない。 m 値が約0.5となる変形条件と熱間延性が200%を超える条件が良く一致していることから、本合金の巨大伸びの主たる変形機構は粒界すべりによるものと考えられる。一方、母材の温度773 Kにおける応力は、結晶粒径が攪拌部よりも大きいため、試験温度が高いにもかかわらず高い応力を示している。また、 m 値は全てのひずみ速度域において転位クリープの目安となる約0.2を示す。

攪拌部の高温変形機構をさらに議論するため、変形の活性化エネルギーを算出する。図7に変形の活性化エネルギーを算出するためのアーレニウスプロットを示す。図は m 値0.5 (n 値は2)の範囲内におけるひずみ速度 2.73×10^{-3} , 9.09×10^{-4} , $2.73 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ においてクロスカットした場合のアーレニウスプロットである。式(7)で表されるように、図7の直線の勾配に応力指数 n と気体定数 R を乗じることで変形の活性化エネルギーが算出できる。

$$Q = nR \frac{\partial \ln(\sigma/E)}{\partial (1/T)} \quad (7)$$

式(7)より算出した変形の活性化エネルギーは、クロス

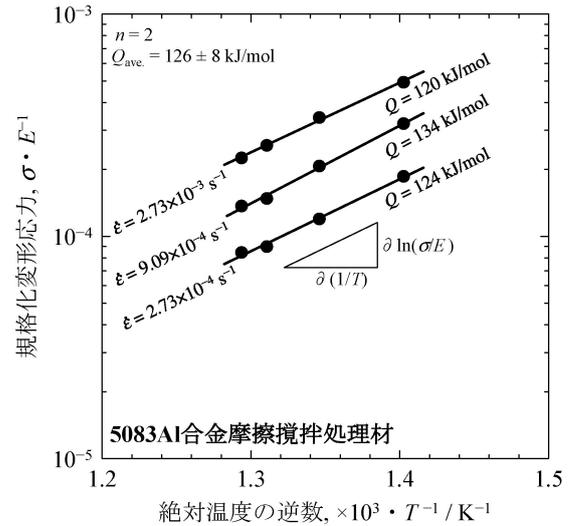


図7 攪拌部の変形の活性化エネルギー算出のためのアーレニウスプロット。

カットしたひずみ速度 2.73×10^{-3} , 9.09×10^{-4} , $2.73 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ に対しそれぞれ120, 134, 124 kJ/molとなる。これらの算術平均を攪拌部の変形の活性化エネルギーとすれば、 $126 \pm 8 \text{ kJ/mol}$ となる。純アルミニウムの格子拡散と粒界拡散の活性化エネルギーの文献値⁽⁶²⁾⁽⁶³⁾はそれぞれ142 kJ/molと84 kJ/mol、アルミニウム中のマグネシウムの相互拡散の活性化エネルギーの文献値⁽⁶⁴⁾は126 kJ/molであるから、攪拌部の変形の活性化エネルギーはアルミニウム中のマグネシウムの相互拡散の値と良く一致する。以上より、本合金で得られる巨大伸びの主たる変形機構は、アルミニウム中のマグネシウムの相互拡散に律速された粒界すべりによるものと考えられる。しかし、上述で議論した高温変形機構は、公称ひずみ10%における応力を用いていることに注意しなければならない。図3に示した高温変形途中の組織のように、変形量50%では結晶粒成長は生じているものの、等軸的な組織を維持していることから公称ひずみ10%時点での主たる変形機構が粒界すべりであることは疑いようがない。しかし、変形量が100%以上での変形組織は応力軸方向に伸長しており、もはや粒界すべりが維持できていないと考えられる。そこで次節ではこの解釈について議論する。

(8) 熱的に不安定な微細結晶粒アルミニウム固溶体における高温変形

本稿では、熱的に不安定なマイクロ組織を有する微細結晶粒アルミニウム固溶体における高温変形について紹介してきた。その特徴として、変形初期(変形量が50%程度まで)は等軸的な組織を維持し、応力指数および変形の活性化エネルギーから主たる変形機構はアルミニウム中のマグネシウムの相互拡散に律速された粒界すべりによるものと考えられる。しかし、高温変形組織の特徴から、変形量が100%を越える頃より、結晶粒が応力軸方向へ伸長する様子が伺え、この組織の特徴は、Class I型固溶体で発現する粒内変形支配の超塑性的挙動のものと良く一致する。このことについて変形機

構領域図を用いて考察してみる。領域図の作図には、粒界拡散(Coble)クリープ⁽⁶⁵⁾⁽⁶⁶⁾、格子拡散(Nabaro-Herring)クリープ⁽⁶⁵⁾⁽⁶⁸⁾、ハーパー・ドーン(Harper-Dorn)クリープ⁽⁶⁹⁾⁻⁽⁷¹⁾、格子拡散に律速された粒界すべり⁽⁵⁹⁾⁽⁷²⁾、溶質雰囲気引きずり機構⁽⁷³⁾⁽⁷⁴⁾(solute drag クリープ)、転位の上昇運動律速の転位(累乗則)クリープ⁽⁶³⁾の6つの変形機構を仮定した。これらの変形機構の速度式を表2に示す。ただし、攪拌部の変形初期における主たる変形機構は、アルミニウム中のマグネシウムの相互拡散に律速された粒界すべりと考えられるが、これに対応する速度式が存在しない。そのため、表2に併記した純アルミニウムの格子拡散の拡散係数⁽⁶²⁾(D_L)、純アルミニウムの粒界拡散の拡散係数⁽⁶³⁾(D_{gb})および、アルミニウム中のマグネシウムの相互拡散の拡散係数⁽⁶⁴⁾(D_{sol})を比較すると、 D_L と D_{sol} は近い温度依存性を示すことから、本稿では純アルミニウムの格子拡散に律速された粒界すべりの速度式を用いた。変形機構領域図の作図に際し、表2に示した6つの変形機構は互いに独立と仮定した。図8に温度713 KにおけるAl-5 mol%Mg合金の変形機構領域図を示す。この化学組成は5083アルミニウム合金の組成に近似できる。図の縦軸は結晶粒径(d)をバーガースベクトル(b)で規格化した規格化粒径(d/b)、横軸は応力をヤング率で規格化した規格化応力(σ/E)の両対数関係で表している。図は、表2に仮定した6つの変形機構の領域に区別される。さらに、図中の細線は等ひずみ速度線を示している。また、図中の太い水平線は、平均結晶粒径(規格化平均粒径)の位置に、温度713 Kの高温引張試験から得られた公称ひずみ10%における真応力をヤング率で規格化した規格化応力範囲を示したものである。よって、公称ひずみ10%における実験条件では、純アルミニウムの格子拡散に律速された粒界すべりの変形機構の領域に属している。しかし、本合金のように熱的にマイクロ組織が不安定な材料では、変形中に結晶粒成長が生じるため、変形の進行とともに規格化粒径と規格化応力範囲を示す太い水平線は、領域図の右斜上方へと徐々にシフトしていくであろう。今の場合、純アルミニウムの格子拡散に律速された粒界すべりの右斜上方に存在する高温変形機構は、solute drag クリープまたは、累乗則クリープである。solute drag クリープは上述したように、Class I型固溶体における粒内変形支配の超塑性的伸びを生じさせる主たる変形機構である。一方、累乗則クリープはサブグレ

インやすべり線の形成により変形が局在化し大きな伸びは得られない。本稿では、粒界すべりに対する速度式を格子拡散律速に仮定しており、各変形機構の境界線の見積もりが不十分である。そのため、変形量が100%以降の規格化粒径と規格化応力範囲を示す太い水平線を領域図中に示さないが、得られた破断伸びを考慮すれば、本合金のようにマイクロ組織が熱的に不安定な微細結晶粒から成るClass I型アルミニウム固溶体の高温変形では、変形初期は微細結晶粒を維持できるため、主たる変形機構は粒界すべりにより変形が進行するが、結晶粒成長により粒界すべりの継続が困難になると、Class I型アルミニウム固溶体で発現する粒内変形支配の超塑性的挙動(いわゆる、solute drag クリープ)へと変形機構が遷移することで200%を越える巨大伸びが発現するものと考えられる。よって、今後の課題として、変形機構領域図のより厳密な作図が必要である。

他方で、佐藤らのAl-Mg-Mn合金における超塑性変形誘起粒成長の報告⁽⁵²⁾でも、真ひずみ0.6(公称ひずみ82%)を越えると結晶粒の引張方向への伸長が認められ、超塑性領域(いわゆる、粒界すべりの領域)を外れてしまったと論じてい

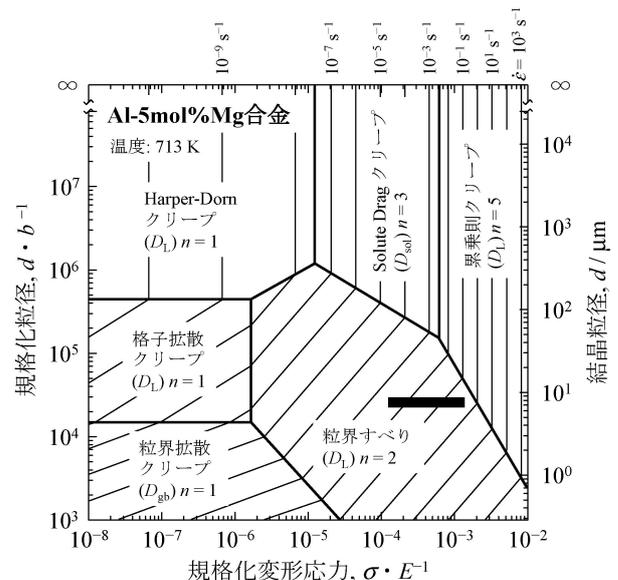


図8 Al-5 mol%Mg合金の温度713 Kでの高温変形機構領域図。

表2 高温変形機構領域図の作図に用いた各変形機構の速度式。

変形機構	速度式	文献
粒界拡散クリープ(粒界拡散律速)	$\dot{\epsilon} = 66.8 (EbD_{gb}/kT) (b/d)^3 (\sigma/E)$	(65)(66)
格子拡散クリープ(格子拡散律速)	$\dot{\epsilon} = 28 (EbD_L/kT) (b/d)^2 (\sigma/E)$	(65)-(68)
Harper-Dorn クリープ(格子拡散律速)	$\dot{\epsilon} = 1.5 \times 10^{-10} (EbD_L/kT) (\sigma/E)$	(69)-(71)
粒界すべり(格子拡散律速)	$\dot{\epsilon} = 1.5 \times 10^7 (EbD_L/kT) (b/d)^2 (\sigma/E)^2$	(59)(72)
Solute Drag クリープ(相互拡散律速)	$\dot{\epsilon} = (6.26/e^2c) (kT/Eb^3)^2 (EbD_{sol}/kT) (\sigma/E)^3$	(73)(74)
累乗則クリープ(格子拡散律速)	$\dot{\epsilon} = 3 \times 10^6 (EbD_L/kT) (\sigma/E)^5$	(63)

$E(\text{MPa}) = (8.04 \times 10^{10}) - (4.26 \times 10^7) \times T$, $D_L(\text{m}^2/\text{s}) = (1.7 \times 10^{-4}) \exp(-142000/RT)$, $D_{sol}(\text{m}^2/\text{s}) = (3.4 \times 10^{-5}) \exp(-126000/RT)$, $D_{gb}(\text{m}^2/\text{s}) = (8.74 \times 10^{-5}) \exp(-86000/RT)$

e : ミスフィットパラメータ, c : 溶質濃度, k : ボルツマン定数

る。このことから本稿で見られる現象は、佐藤らの報告する Al-Mg-Mn 合金でも観測されていたと考えられる。よって、本稿のような粒界すべりから solute drag クリープへの変形機構の遷移は Class I 型固溶体で特有の現象であるかもしれない。

3. おわりに

本稿では、熱的にマイクロ組織が不安定である微細結晶粒アルミニウム固溶体において観察された変形機構の遷移による巨大伸びについて、その現象論的特徴を紹介した。難加工材料の塑性加工法の1つとして超塑性成形が期待される中、成形速度や超塑性発現温度の低下の最善策として結晶粒微細化が注目されるようになり、強ひずみ加工法による組織制御が盛んに研究されているが、結晶粒微細化は何も超塑性特性を向上させるだけでなく、低温域ではホール・ペッチの関係⁽⁷⁵⁾⁽⁷⁶⁾にしたがい材料強度を向上させる。したがって、大きな寸法の微細結晶粒材料の創製が可能となれば、高温域では超塑性発現により熱間加工性に優れ、熱間加工後も微細結晶粒組織を維持できれば室温強度に優れた部材の創製が可能となることは言うまでもない。しかし、熱間域での塑性加工では、マイクロ組織が極めて安定、もしくは粒成長をピン止めするような第2相粒子の存在が無ければ、結晶粒成長を無視することは難しいと言える。

一方で、Class I 型固溶体の高温変形では、粒界すべりが困難な中間粒径から粒界すべりの影響を完全に無視できる単結晶でも粒内変形支配の超塑性的巨大伸びを示す。塑性加工のみを考えれば、Class I 型固溶体の塑性変形能は魅力的であるが、塑性加工後の室温強度までを含めれば粗大結晶粒組織は好ましくない。ところが、Class I 型固溶体合金では、初期結晶粒径を微細化し熱間加工中に微細結晶粒超塑性(粒界すべり)が継続困難な粒径に粒成長したとしても、粒内変形支配(solute drag クリープ)に変形機構が遷移することで優れた延性を確保できることを本稿の結果は表していると考えられる。また一方で、初期粒径が微細であれば粒成長の程度にもよるが、ほどほどの微細組織を維持した状態での熱間加工も可能となるであろう。幸いなことに、市販のアルミニウム合金やマグネシウム合金の中には Class I 型固溶体合金に分類されるものが多く含まれており、それら合金の組織微細化手法が確立され、本稿が熱間加工への一助となれば幸いである。

本研究の一部は、(一社)日本アルミニウム協会 平成22・23年度アルミニウム研究助成「摩擦攪拌接合を起源とした組織制御法によるアルミニウム合金の高機能化」、(国研)科学技術振興機構 研究成果展開事業 研究成果最適展開支援プログラム A-STEP フィージビリティスタディ 探索タイプ 平成25年度応募「粒界すべりと溶質雰囲気すべり機構との重畳効果による自動車部品用 Al-Mg 合金の新規高速超塑性の発現」、(一社)日本アルミニウム協会 平成27・28年度ア

ルミニウム研究助成「異なる変形機構の重畳による自動車用 Al-Mg 合金の超塑性特性向上」により賄われた。ここに甚大なる感謝の意を表します。

文 献

- (1) T. G. Nieh, J. Wadsworth and O. D. Sherby: Superplasticity in Metals and Ceramics, Cambridge University Press, (1997).
- (2) (一財)日本規格協会, (一財)大阪科学技術センター: JIS H7007, (一財)日本規格協会, (1995).
- (3) Z. Horita, M. Furukawa, M. Nemoto, A. J. Barnes and T. G. Langdon: Acta Mater., **48**(2000), 3633-3640.
- (4) J. Schroers: JOM, **57**(2005), 35-39.
- (5) A. J. Barnes: J. Mater. Eng. Perform., **16**(2007), 440-454.
- (6) P. Zwigl and D. C. Dunand: Acta Mater., **45**(1997), 5285-5294.
- (7) E. Sato and K. Kuribayashi: Acta Metall. Mater., **41**(1993), 1759-1767.
- (8) K. Kitazono and E. Sato: Acta Mater., **47**(1998), 135-142.
- (9) K. Kitazono and E. Sato: Acta Mater., **46**(1998), 207-213.
- (10) E. M. Taleff and P. J. Nevland: JOM, **51**(1999), 34-36.
- (11) 伊藤 勉, 大塚正久: までりあ, **43**(2004), 931-937.
- (12) 伊藤 勉: 軽金属, **62**(2012), 344-350.
- (13) 伊藤 勉, 佐伯潤也, 大塚正久: 日本金属学会誌, **67**(2003), 85-92.
- (14) 伊藤 勉, 石川真之, 大塚正久: 日本金属学会誌, **67**(2003), 27-33.
- (15) 伊藤 勉, 石川真之, 大塚正久: 日本金属学会誌, **66**(2002), 832-839.
- (16) 伊藤 勉, 駒 正幸, 柴崎 聡, 大塚正久: 日本金属学会誌, **66**(2002), 476-484.
- (17) 伊藤 勉, 柴崎 聡, 駒 正幸, 大塚正久: 日本金属学会誌, **66**(2002), 409-417.
- (18) T. Ito, K. Kawasaki and T. Mizuguchi: Mater. Sci. Forum, **838-839**(2016), 249-255.
- (19) M. Otsuka, S. Shibasaki and M. Kikuchi: Mater. Sci. Forum, **233-234**(1997), 193-198.
- (20) J. Wadsworth and O. D. Sherby: Prog. Mater. Sci., **25**(1980), 35-68.
- (21) G. D. Bengough: J. Inst. Metals, **7**(1912), 123-174.
- (22) C. H. M. Jenkins: J. Inst. Metals, **40**(1928), 21-32.
- (23) C. E. Pearson: J. Inst. Metals, **54**(1934), 111-123.
- (24) A. A. Bochvar and Z. A. Sviderskaya: Izv. Akad. Nauk. SSSR. Otdel. Tekh. Nauk., **9**(1945), 821-827.
- (25) M. G. Lozinsky and I. S. Simeonova: Acta Metall., **7**(1959), 709-715.
- (26) E. E. Underwood: J. Metals, **14**(1962), 914-919.
- (27) D. A. Woodford: ASM Trans. Quart., **62**(1969), 291-293.
- (28) J. W. Hutchinson and K. W. Neale: Acta Metall., **25**(1977), 839-846.
- (29) T. G. Nieh, L. M. Hsiung, J. Wadsworth and R. Kaibyshev: Acta Mater., **46**(1998), 2789-2800.
- (30) A. Inoue: Mater. Sci. Eng. A, **267**(1999), 171-183.
- (31) S. X. McFadden, R. S. Mishra, R. Z. Valiev, A. P. Zhilyaev and A. K. Mukherjee: Nature, **398**(1999), 684-686.
- (32) M. Mabuchi, H. Iwasaki, K. Yanase and K. Higashi: Scripta Mater., **36**(1997), 681-686.
- (33) M. Mabuchi, K. Ameyama, H. Iwasaki and K. Higashi: Acta Mater., **47**(1999), 2047-2057.
- (34) M. J. Mayo: Nanostruct. Mater., **9**(1997), 717-726.
- (35) R. Z. Valiev, A. V. Korznikov and R. R. Mulyukov: Mater. Sci. Eng. A, **168**(1993), 141-148.
- (36) R. Z. Valiev, Y. V. Ivanisenko, E. F. Rauch and B. Baudalet: Acta Mater., **44**(1996), 4705-4712.
- (37) V. M. Segal: Mater. Sci. Eng. A, **271**(1999), 322-333.
- (38) A. P. Zhilyaev, S. Lee, G. V. Nurislamova, R. Z. Valiev and T. G. Langdon: Scripta Mater., **44**(2001), 2753-2758.

- (39) Y. Saito, H. Utsunomiya, N. Tsuji and T. Sakai: Acta Mater., **47**(1999), 579–583.
- (40) M. Richert, H. J. McQueen and J. Richert: Can. Metall. Quart., **37**(1998), 449–457.
- (41) O. Kobayashi, T. Aizawa and J. Kihara: Mater. Trans. JIM, **37**(1996), 1497–1504.
- (42) Y. M. Hwang and G. Y. Tzou: Int. J. Mech. Sci., **39**(1997), 289–303.
- (43) Y. Wang, T. Jiao and E. Ma: Mater. Trans., **44**(2003), 1926–1934.
- (44) M. Noda, M. Hirohashi and K. Funami: Mater. Trans., **44**(2003), 2288–2297.
- (45) R. S. Mishra and Z. Y. Ma: Mater. Sci. Eng. R, **50**(2005), 1–78.
- (46) W. M. Thomas: Friction Stir Butt Welding, International Patent Application No. PCT/GB92/0220, (1991).
- (47) H. Abrams: Metallography, **4**(1971), 59–78.
- (48) R. L. Fullman: Trans. AIME, **197**(1953), 447–452.
- (49) A. W. Thompson: Metallography, **5**(1972), 366–369.
- (50) P. C. J. Gallagher: Metall. Trans., **1**(1970), 2429–2461.
- (51) 佐藤英一, 栗林一彦, 堀内 良: 日本金属学会誌, **52**(1988), 1043–1050.
- (52) 佐藤英一, 板谷一弘, 栗林一彦, 堀内 良: 軽金属, **39**(1989), 437–443.
- (53) 佐藤英一, 栗林一彦, 堀内 良: 鉄と鋼, **78**(1992), 1414–1421.
- (54) A. K. Mukherjee, J. E. Bird and J. E. Dorn: Trans. ASM, **62**(1969), 155–179.
- (55) ISO:20032, Method for Evaluation of Tensile Properties of Metallic Superplastic Materials, International Organization for Standardization, (2013).
- (56) P. M. Sutton: Phys. Rev., **91**(1953), 816–821.
- (57) 小原嗣郎: 基礎から学ぶ金属材料, 朝倉書店, (2012), 49–80.
- (58) O. D. Sherby: ISIJ Int., **29**(1989), 698–716.
- (59) H. Lüthy, R. A. White and O. D. Sherby: Mater. Sci. Eng., **39**(1979), 211–216.
- (60) G. Rai and N. J. Grant: Metall. Trans. A, **6A**(1975), 385–390.
- (61) O. A. Kaibyshev: Czech. J. Phys., **31**(1981), 223–227.
- (62) T. S. Lundy and J. F. Murdock: J. Appl. Phys., **33**(1962), 1671–1673.
- (63) H. J. Frost and M. F. Ashby: Deformation Mechanism Maps, Pergamon Press, (1982), 20–29.
- (64) H. Oikawa, N. Matsuno and S. Karashima: Metal Sci., **9**(1975), 209–212.
- (65) F. A. Mohamed and T. G. Langdon: Metall. Trans., **5**(1974), 2339–2345.
- (66) R. L. Coble: J. Appl. Phys., **34**(1963), 1679–1682.
- (67) F. R. N. Nabarro: Report of a Conference on the Strength of Solids, The Physical Society, (1948), 75–90.
- (68) C. Herring: J. Appl. Phys., **21**(1950), 437–445.
- (69) O. A. Ruano, J. Wadsworth and O. D. Sherby: Acta Metall., **36**(1988), 1117–1128.
- (70) J. G. Harper, L. A. Shepard and J. E. Dorn: Acta Metall., **6**(1958), 509–518.
- (71) J. Harper and J. E. Dorn: Acta Metall., **5**(1957), 654–665.
- (72) O. D. Sherby and J. Wadsworth: Prog. Mater. Sci., **33**(1989), 169–221.
- (73) J. Weertman: J. Appl. Phys., **28**(1957), 1185–1189.
- (74) O. D. Sherby and P. M. Burke: Prog. Mater. Sci., **13**(1968), 323–390.
- (75) E. O. Hall: Proc. Phys. Soc. Lond. B, **64**(1951), 747–753.
- (76) N. J. Petch: J. Iron Steel Inst., **174**(1953), 25–28.

★★

伊藤 勉
 2003年3月 芝浦工業大学大学院工学研究科地域環境システム専攻博士課程
 修了 博士(工学)
 2003年4月 横浜国立大学エコテクノロジー・システム・ラボラトリー
 2003年9月 茨城大学工学部附属超塑性工学研究センター
 2005年4月 日本大学工学部総合教育物理学教室
 2009年9月 現職 高松工業高等専門学校(現:香川高等専門学校)機械工学科
 2016年4月 現職 物質・材料研究機構構造材料研究拠点エネルギー構造材料
 分野 耐熱材料設計グループ 特別研究員(国立高等専門学校機
 構 派遣研究教員)

専門分野: 材料物理学, 材料強度物性学, 接合科学
 ◎主に軽金属材料の高温変形・超塑性・固相接合に関連する研究に従事して
 いる。最近, 粉末冶金, 抗菌・消臭・抗ウイルス機能, 信頼性工学にも興
 味を持ち始めた。

★★



伊藤 勉



水口 隆