（千葉大学学位申請論文）

アルミニウム合金の結晶粒超微細化による機能性材料の創製

2004年1月

千葉大学大学院自然科学研究科

人工システム科学専攻　機械物理システム講座

野田　雅史

アルミニウム合金の結晶粒超微細化による機能性材料の創製

論 文 要 旨

工業用材料を高強度化し，同時に加工性の優れた高機能性材料の創製が求められている．その解決策として結晶粒超微細化法が大きな注目を集めている．一方，結晶粒微細化法は加工方法が特殊なものが多く，工業的に実用展開が困難な状況下にある．

本研究では，アルミニウム合金を対象として既存設備を利用し，且つ実工程への展開に適した手法として超微細粒組織を有する機能性材料の創製法として，多軸鍛造法による強加工法を提案する．なお，従来も各種強加工法は適用されており，転位密度の増加すなわち駆動力に基づく理論に従い静的不連続再結晶が試みられてきた．本研究においても従来の加工工程を大幅に変更せずに上述の理論に基づき結晶粒微細化を試みた結果，内部組織は混粒状態であり機械的特性も顕著な向上を示さなかった．

そこで，新たに多軸鍛造法による強ひずみ加工を施し，局所方位差を導入することで内部組織にひずみ勾配を作り，動的連続再結晶による超微細粒の形成を試みた．具体的には超微細粒を形成させるための負荷様式として，加工温度を温間領域にすることで動的連続再結晶を起こし，複数軸方向からの荷重負荷が重要であり，超微細粒形成に有効であることを明らかにしている．

その結果，粒径は 0.5μm まで超微細化することが可能であり，強度は出発材に比較して 2.5 倍以上に向上し，熱処理により結晶粒を制御することで，破断伸びは 3 倍にまで改善できた．また，降伏応力は引張強さに比べ粒径依存性が高いことを幅広い粒径範囲にて明らかにした．

超微細粒の効果は同種材料の超塑性発現温度よりも 200K 以上低下させることが可能となり，実用的な観点から潤滑材や離型剤は特殊なものを用いる必要がなくなるため極めて実用的な材料が創製できた．超微細粒材料の超塑性変形挙動を TEM および FE-SEM にて観察した結果，低温超塑性の主な変形機構は粒内変形であり，粒界すべりが主な変形機構であるという従来の考え方と大きく異なることを見出した．

結論として，本研究で提案した多軸鍛造法という簡便な手法においても加工温度とひずみ経路を工夫することで，機械的諸特性に優れた超微細粒材料の創製が可能であることが明らかとなった．

目　次

第1章　序　論

1.1　研究の背景と目的 …… 1
1.2　既存の加工熱処理における塑性加工の役割 …… 5
1.3　結晶粒微細化法の概要および加工方法 …… 8
　1.3.1　結晶粒微細化機構 …… 8
　1.3.2　結晶粒微細化の原理 …… 12
　1.3.3　種々の結晶粒微細化法 …… 12
1.4　国内外の研究動向 …… 18
1.5　従来および微細粒材料での超塑性変形 …… 21
　1.5.1　従来の超塑性一般 …… 21
　1.5.2　微細粒材料における超塑性変形 …… 22
1.6　論文の構成 …… 24
参考文献 …… 27

第2章　圧延加工による結晶粒微細化

2.1　緒　言 …… 31
2.2　実験方法 …… 33
　2.2.1　試料組成および機械的特性 …… 33
　2.2.2　圧延加工 …… 34
　2.2.3　再結晶温度の測定 …… 37
　2.2.4　再結晶処理 …… 37
　2.2.5　組織観察 …… 38
　2.2.6　機械的特性試験 …… 44
2.3　実験結果 …… 45
　2.3.1　せん断ひずみ付与圧延 …… 45
　2.3.2　中間低温熱処理の効果 …… 49
　2.3.3　圧延材および焼なまし材の硬さと組織 …… 50
　2.3.4　機械的特性の評価 …… 54
2.4　考　察 …… 55
　2.4.1　圧延加工によるせん断変形付与 …… 55

2.4.2 微細結晶粒と機械的特性 …… 57
2.4.3 静的再結晶における結晶粒微細化機構 …… 58
2.5 結　言 …… 60
参考文献 …… 61

第3章　前加工付与圧延による結晶粒微細化

3.1 緒　言 …… 63
3.2 実験方法 …… 65
3.3 実験結果 …… 68
3.3.1 材料加工硬化への前加工付与の効果 …… 68
3.3.2 前加工付与圧延材の機械的特性 …… 73
3.3.3 機械的特性と組織観察 …… 76
3.3.4 焼なまし特性 …… 83
3.3.5 極低温圧延の効果 …… 86
3.4 考　察 …… 89
3.4.1 前加工付与が結晶粒微細化に及ぼす影響 …… 89
3.4.2 極低温圧延の特性とその役割 …… 91
3.4.3 強ひずみ加工材の機械的特性 …… 94
3.4.4 焼なまし組織と機械的特性 …… 96
3.5 結　言 …… 98
参考文献 …… 100

第4章　アルミニウム合金の結晶粒微細化へ及ぼすひずみ負荷様式の影響

4.1 緒　言 …… 102
4.2 実験方法 …… 104
4.3 実験結果 …… 106
4.3.1 負荷様式の差異が機械的特性に及ぼす影響 …… 106
4.3.2 微細結晶粒の形成 …… 113
4.3.3 結晶粒方位および隣接間粒界方位差の測定 …… 116
4.3.4 負荷様式の差異による結晶粒微細化機構 …… 121
4.3.5 加工による結晶方位および粒界方位差の増進 …… 125

4.4 考　察 …… 130
4.4.1 負荷軸数の差が機械的性質へ及ぼす影響 …… 130
4.4.2 破断面組織と破断伸びの関係 …… 133
4.4.3 負荷様式と組織形成 …… 135
4.4.4 集合組織形成と負荷様式の関係 …… 136
4.4.5 結晶粒微細化に及ぼす負荷様式の影響 …… 140
4.4.6 種々のアルミニウム合金と加工法との比較 …… 142
4.5 結　言 …… 144
参考文献 …… 146

第5章　多軸鍛造法によるアルミニウム合金の微細結晶粒創製と機械的特性

5.1 緒　言 …… 148
5.2 実験方法 …… 150
5.3 実験結果 …… 153
5.3.1 多軸鍛造法による超微細粒形成とその機械的特性 …… 153
5.3.2 焼なましによる機械的特性の変化 …… 157
5.3.3 結晶粒径と均一伸びおよび局部伸びの関係 …… 161
5.4 考　察 …… 164
5.4.1 多軸鍛造法による結晶粒超微細化機構 …… 164
5.4.2 焼なましによる機械的特性の変化 …… 169
5.4.3 機械的特性と結晶粒径の関係 …… 170
5.4.4 焼きなましに伴う延性の変化 …… 172
5.4.5 結晶粒径と加工硬化量の関係 …… 173
5.4.6 種々の結晶粒径における破断面形態 …… 176
5.4.7 多軸鍛造加工法における再結晶現象 …… 179
5.5 結　言 …… 181
参考文献 …… 183

第6章　多軸鍛造法により結晶粒微細化したAl-Mg合金の低温超塑性の発現と変形機構

6.1 緒　言 …… 185

6.2　実験方法 …… 187
6.3　実験結果 …… 191
6.3.1　多軸鍛造加工法による超微細粒創製と熱処理による組織変化 …… 191
6.3.2　超塑性挙動の発現 …… 194
6.3.3　高温引張変形に伴う組織変化 …… 198
6.3.4　空隙の形成 …… 204
6.4　考　察 …… 206
6.4.1　粒界すべりと粒内変形に及ぼす試験温度の影響 …… 206
6.4.2　低温超塑性の発現に伴う組織変化 …… 211
6.4.3　高温引張変形に伴う破断面形態の差異 …… 213
6.4.4　超塑性変形中に生じる組織変化 …… 215
6.5　結　言 …… 216
参考文献 …… 218

第7章　Al-Mg 合金の低温超塑性発現に及ぼす結晶粒径と組織変化の影響

7.1　緒　言 …… 220
7.2　実験方法 …… 222
7.3　実験結果 …… 225
7.3.1　多軸鍛造材および熱処理材の結晶粒径とその組織 …… 225
7.3.2　低温超塑性に及ぼす試験温度の影響 …… 229
7.3.3　低温超塑性の発現に及ぼす初期結晶粒径の影響 …… 233
7.3.4　破断面観察 …… 239
7.4　考　察 …… 241
7.4.1　変形中の組織変化と初期結晶粒径依存性 …… 241
7.4.2　低温超塑性の発現に伴う内部組織変化 …… 243
7.4.3　破断面組織と初期結晶粒径の関係 …… 247
7.4.4　低温超塑性の発現に伴う機械的特性 …… 248
7.5　結　言 …… 250
参考文献 …… 252

第8章　総　括

8.1　研究の成果 …… 254
8.2　今後の課題と展望 …… 257
参考文献 …… 259

付　録

付1　2軸引張試験機の概要および設計 …… 260
付2　十字形引張試験片の作製とFEM解析 …… 267
付3　二軸引張試験機を用いた十字形引張試験片の高温引張変形 …… 272

謝　辞 …… 278

著者の学術研究業績 …… 279

第 1 章

序 論

1.1 研究の背景と目的

金属材料の結晶粒径をサブミクロンレベルまで超微細化することにより，強度，靭性，耐食性および加工性などが飛躍的に向上することが知られている[1-4]．この合金元素を用いない結晶粒微細化法による諸特性の改善は，添加元素の削減，リサイクル性の向上および材料の軽量化と節減が利点として挙げられ，近年の省エネルギーおよび省資源問題を初めとする環境との調和の取れた機能性材料を創製することが可能である．つまり，産業面のみならず環境面からも社会的要請に応えることの出来る材料創製法である．結晶粒微細化法に関する研究は1997 年から現在に至るまで，スーパーメタルと称する国家的プロジェクトとして進行している[5]．

結晶粒微細化法を用いることで上記のように優れた基盤材料の開発を意図した組織の微細化に関する試みは各種材料で盛んに行われ，その加工法も多岐に渡る．これら加工プロセスにおける結晶粒微細化のメカニズムは変形中あるいは熱処理による再結晶挙動やサブグレインの方位傾角の増加など，現在集中的に議論が行われている[6-14]．例えば，アルミニウム合金のバルク材を供試材とした結晶粒微細化法においては，塑性変形による強ひずみ加工を材料に付与することである[15-31]．すなわち，材料内部に強ひずみ加工により転位を蓄積することで内部組織構造を大きく変化させ，それを静的または動的な回復あるいは再結晶を利用することで微細粒を生成させる方法である．また，そのための負荷様式としてはせん断ひずみを導入することが有効であると考えられている[7-8,15,18,29]．

ここで，再結晶についてあらかじめ述べることにする．再結晶には不連続再結晶と連続再結晶の二通りがありその定義は大きく異なる．高角境界で囲まれた転位をほとんど含まない領域（核）が無秩序に生成し，その境界が長距離移動するという二段階過程を経て新粒組織が形成される過程が通常の再結晶，あるいは不連続再結晶である．これに対し，塑性変形によって生じる転位境界が変形と動的回復に伴い次第に高傾角化と局所的な微小移動を起こし，やがて全領域で新粒組織が一様に生じるのが連続再結晶である[7-8,32-33]．最近，動的再結晶においても 0.5 T_m（T_m は融点：絶対温度）以下の温間から冷間加工域においてもアルミニウム合金に強ひずみ加工を施すだけで，微細粒組織が生じる現象が頻繁に報告されている[34-42]．この低温型動的再結晶と呼ぶべき現象は“再結晶”の言葉を含んでいるが，そこで働く機構は Fig. 1-1 に示すように通常の動的再結晶の機構とは明らかに異なるようである．

代表的な強ひずみ加工法として，等断面傾斜押出し法（Equal Channel

Angular Pressing, ECAP）[20-22]や高静水圧下ねじり加工法（Torsion Under High Pressure, HPT）[23-25]，多軸繰り返し鍛造法（Multi-axial Alternative Forging, MAF）[26-28]，繰り返し重ね接合圧延（Accumulative Roll Bonding, ARB）[29-31]などが採用されている．これらの手法に関しては，後述の 1.3.3 節に加工模式図を示し説明することとする．

ここで，著者らは産業における結晶粒微細化法の重要性を認識し，独自の従来設備を使用した実工程へも応用可能と考えられる結晶粒微細化法の提案およびその機械的特性と組織変化について検討した．また，本研究では実工程および実操業という観点から微細粒材料の創製に取り組むこととしたが，その理由は微細粒材料の適応範囲は各種産業に大きなバックグラウンドを有していると考えられるためである．以下，我が国の主工業の一つである自動車産業について最近の自動車部品におけるアルミニウム合金適応範囲と今後の方向性について述べる．

国内の普通・小型乗用車に使用されてきた主な構成材料の比率であるが，最も大きな比率を有している鉄鋼材料はここ 25 年間減少傾向が続いているものの，衝突安全性の向上のためのハイテン鋼，品質向上のための防錆鋼板等の付加価値を高めた鋼板の比率が上昇している [50,16]．一方，アルミニウム合金は 1980 年代から自動車の軽量化の要求から，シリンダブロックやアルミホイール等に適応され急速に使用量が増加している．近年ではエンジンフード等への板材の適用も進められており，今後ともアルミ化の傾向は加速して行くものと考えられる [5,16,34-37]．ここで，材料技術に求められる最も大きな課題は，環境と安全に対する貢献である．

環境への対応は排出ガスの浄化，軽量化と効率向上による低燃費化，クリーンエネルギーの適用，環境負荷物質の低減およびリサイクル技術の確立が挙げられる．一方，安全性の観点からは衝突安全性への貢献が期待される．衝突エネルギーの吸収に優れた材料が待ち望まれているが，部材が硬すぎるあるいは柔らかすぎても衝突の際の反力吸収には意味が無い．つまり，衝突の際に適切な反力を発揮する必要がある．現状では安全性向上のために板厚の増加や補強材の追加等により対応している場合も多く，車体重量は増加する傾向にある．しかし，低燃費化およびリサイクル性による環境への対応の必要性からも，安全性の向上と軽量化の両立が可能な材料の開発が望まれている [36-37]．

ここまで，結晶粒微細化法の必要性および微細粒を得るための加工法について述べてきた．しかしながら，結晶粒微細化法が現在抱えている最も重要な問題の一つは，加工方法が特殊なため工業規模での展開が困難であると同時に，微細粒材料が有する機械的諸特性が明確に示されていない点にある．つまり，如何に現状の設備と加工工程を大幅に変更することなく微細粒を生成し，機械的特性の向上を結晶粒径と関

連付けて示す必要がある.

本研究は，実工程にも適応可能な結晶粒微細化法の確立，結晶粒径と機械的諸特性の関係解明を主目的とし，多軸鍛造法という独自の加工法を提案するとともに，結晶粒微細化に対する強ひずみ加工の役割およびアルミニウム合金の結晶粒微細化に及ぼす加工プロセスの効果について，金属学的な組織変化の観点から議論し，更に機械的特性の改善の有無について解明したものである．すなわち，多軸鍛造法で得られた結果を他の強ひずみ加工法と比較・検討することで，実用性に優れた結晶粒微細化法について提案し，その加工工程を確立すると同時に機械的特性に対する微細粒材の役割を明確にすることで工業的に有用な知見を得ることを目的としている．特に，多軸鍛造法による結晶粒微細化，結晶粒径と機械的特性の変化および低温超塑性の変形機構に関して焦点をあて，超微細粒アルミニウム合金の特性について言及し，この種の材料の有用性を述べることとする.

これらを遂行すべく，次のように目的を定めた．第一に，従来からアルミニウム合金の加工法として良く用いられている圧延と鍛造加工を用いて，種々の加工温度において強ひずみ加工を行い，変形後の組織と機械的特性を調べることで微細粒を効率よく形成させ，機械的特性が向上するための負荷条件と組織的因子の解明を目的とした．次に，これらの結果を種々の報告と比較し，既存設備においても安定した微細粒材料創製技術の確立と室温での結晶粒径の変化による機械的特性の変化を解明し実用展開の立場から議論し，微細粒材料の利点について述べる．最終的に，加工工程の短縮および量産性の観点から，微細粒材料の代表的特徴である低温高速超塑性について，従来低温とされてきた温度よりも遥かに低い温度での超塑性の発現の可能性，変形機構および低温超塑性に及ぼす結晶粒径の影響を検討した．結晶粒微細化法が環境面のみならず工業的にも有効な手法である理由は，1) Hall-Petch の $(\sigma_y = \sigma_0 + k_y / \sqrt{d})$ [5,37]にしたがって結晶粒径 d が微細化になるにつれ降伏応力 σ_y は上昇し，高強度化とともに部材の軽薄短少化が計られる．2) 超微細化によって超塑性の発現，更にはその発現温度のより低温化に伴って実用的に加工性の向上による部材数の削減，低温化により潤滑材などの加工条件が容易になるなどが考えられ，結果的に環境負荷の低減に繋がると思われる.

このような背景の基に，本研究目的を以下に要約する.

(1) 簡便な結晶粒微細化材料の創製法のプロセスと加工法の確立．すなわち，多軸鍛造法の提案

(2) 超微細粒材料の機械的特性の評価と結晶粒径に対する依存性

(3) 超塑性の発現温度の低温化

(4) 低温超塑性に及ぼす組織学的検討と変形機構の解明

Stacking fault energy (SFE)	Low to Medium SFE	High SFE
Materials	Cu, Ni, γ Fe Fcc Stainless Steel	Al, Mg, α Fe Bcc Stainless Steel
(a) Dynamic restoration mechanism	Dynamic Recrystallization (DRX)	Dynamic Recovery (DRV)

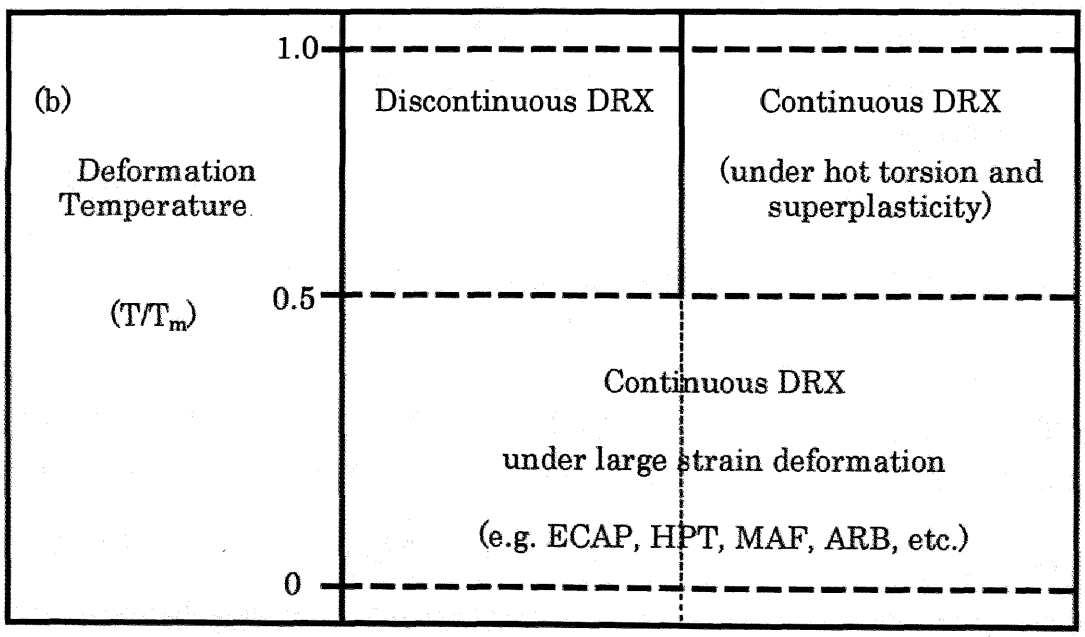


Fig.1-1 (a) Dynamic restoration mechanisms operating under hot deformation of low to high stacking fault energy (SFE) materials. (b) Schematic illustration of the effect of temperature (T/T_m) on various DRX processes operating in low to high SFE materials.

1.2 既存の加工熱処理における塑性加工の役割

結晶粒微細化法が注目を集める以前は，多元素添加による合金の固溶・析出強化，熱間加工による組織変化および冷間加工を利用した加工ひずみの蓄積等によりアルミニウム合金は強度を向上させてきた[5,16]．ここで，冷間加工，温間加工および熱間加工と強度向上の関係について以下の１）～３）に説明を記す．

1) 冷間加工（極低温加工を含む）は加工と焼なまし，時効，固溶化などの熱処理と組み合わせて行われている[32,34]．加工により各結晶粒は変形し，転位などの格子欠陥が冷間加工では不均一に極低温加工では比較的均一に導入され，各結晶粒は局所方位差を持つ小領域に分断され，熱処理により回復や再結晶が起こり，微細なサブグレインや大傾角粒が形成される．転位と相互作用する溶質原子が含まれる場合は溶質原子が転位に集積してひずみ時効が起こり，過飽和固溶体では析出硬化が起こる[7,8,332]．加工はこれら溶質原子の集積や析出を早め硬化を促す効果がある．

2) 温間加工では材料の静的再結晶は起こらないが，拡散が盛んな温間域で加工を受けるため加工中に回復と動的回復および再結晶またはひずみ時効が起こり，前者では微細なサブグレインや大傾角粒を形成し，後者では転位と溶質原子の相互作用により転位密度が効率良く増加して硬化する[19,33]．従来，塑性加工には冷間あるいは熱間という定義がある．一方で近年の研究により，材料を室温以上再結晶温度以下で加工するケースが多くなり，このような温度域では冷間や熱間加工と異なる組織変化，結晶方位および集合組織が観察される．この温度域での加工を温間加工と称している．温間加工は結晶粒微細化が集中的に議論され始めた1997年以降に多く用いられるようになった[16]．

3) 加工中に結晶粒の成長を伴う動的再結晶または加工後に静的再結晶がおこる熱間加工では，再結晶により結晶粒は微細化する．しかしながら，低融点材料にとって熱間加工温度は再結晶温度より遥かに高く，微細粒が形成された途端に結晶成長が起こる．一方，鋼のように高融点かつ相変態の起こる材料では加速冷却により動的回復組織または再結晶組織から変態させることにより変態組織の微細化が図られる[5,16,37]．

アルミニウム合金の適応範囲の拡大，需要の促進および環境面への配慮といった観点から，上述の結晶粒微細化法に寄せられる期待はリサイクル性と機械

的特性の両面からも大きいものとなっている．ところが，現在集中的に議論されている微細粒創製法は特殊な金型の使用[20-25]，加工途中での材料の脱脂とスポット溶接が必要な圧延法[29-31]，粉末冶金[43-46]等が主流である．しかしながら，工業的規模で結晶粒微細化の技術を用いるならば，これまで培われてきた塑性加工を利用することが最も簡便で有益であると考えられる．

ここで，現在実施あるいは提案されている種々の基本的な加工熱処理(TMCP: Thermo-Mechanical Control Process)と，その中で利用している材料学的現象および塑性加工の果たしている役割とその効果を Table1-1 に示す[5,16]．従来の加工熱処理(TMCP)における塑性加工は加工温度，加工率，ひずみ速度や冷却速度を制御する手法であり，その際に生じる加工組織やひずみを組織制御に利用しているといえる．しかしながら，引張，圧縮，せん断変形などのひずみの負荷形態や，その導入方向などは集合組織を制御する場合以外はほとんど問題とされていなかった．これに対し，結晶粒微細化法では今までの TMCP 手法とその考え方を更に発展させ，加工温度や速度，更には負荷形式の異なりがもたらす組織と機械的性質の関係解明など，従来法に加工組織，再結晶過程，再結晶組織という概念を付け加えている．そのため，塑性加工や負荷様式が組織微細化にどの様な働きをもたらすか加工プロセスに対する検討を含め明らかにする必要がある．

Table 1·1 The various processing thermo-mechanical control processes.

加工温度	処理	材料学的現象	加工の効果
冷間加工 （Cold Work）	加工	変形 （D）	加工硬化，局所方位差導入
	加工 → 焼きなまし	D → 回復 （RV）	サブグレイン，非平衡粒の微細化
		D → 再結晶 （RX）	結晶粒微細化
	加工 → 時効	D → ひずみ時効 （SA）	降伏点上昇
	過飽和固溶化 → 加工 → 時効	D → 析出 （P）	析出物微細化
温間加工 （Warm Work）	加工 → 冷却	D → 動的回復 （DRV）	サブグレイン，非平衡粒の微細化
		D → 動的ひずみ時効 （DSA）	加工硬化 （“温間加工”）
	加工 → 加速冷却	D → 変態 （TR）	変態組織制御，強度・靭性向上
			（制御圧延・制御冷却） （TMCP）
	加工 → 緩冷却	D → TR → P	変態組織制御，強度・靭性向上
熱間加工 （Hot Work）	加工 → 加速冷却	D → DRV → RX	結晶粒微細化
	加工 → 加速冷却	D → 動的再結晶 （DRX）	結晶粒微細化
	加工 → 加速冷却	D → DRX → （RX） → TR	変態組織微細化
	加工 → 加速冷却	D → DRX → TR	変態組織微細化

1.3 結晶粒微細化法の概要および加工方法

1.3.1 結晶粒微細化機構

アルミニウム合金は面心立方格子(fcc)金属であり，変態点が存在せず同素体を持たないことから，鉄やチタンとは異なり強化法の幅が限られている[32]．一方，強化の考え方には転位論的な微視的理論と複合則的な巨視的理論に大別できる．前者には析出強化，分散強化および結晶粒微細化が，後者には繊維強化がある．

結晶粒微細化法は塑性変形により蓄積したエネルギー，すなわち転位密度の増加に伴い増加した駆動力を熱処理による組織の回復および再結晶を利用することで粒径を微細にする方法である[6-8,32]．ここでいう再結晶については連続再結晶と不連続再結晶に分類される．核形成理論からすると，前者は転位が集積した亜結晶粒界や転位セル組織からの均質核生成により，後者は変形帯のようにマトリックス内の転位密度の高い不均一な領域や介在物，晶出物や結晶粒界から発生する不均質核生成によると考えられる[19,33]．1997年以降，精力的に研究が成されてきたECAP法[20-22]やARB法[29-31]などに代表される強ひずみ加工法において1μm以下の超微細粒を得ることが可能なのは，いわゆる均質核生成に相当すると思われる．一方，Al-Mn系合金の連続鋳造材を均質化処理／圧延／急速加熱したり，Al-Fe-Mn合金を圧延／熱処理する方法は，凝固時の微細晶出物や共晶粒子が再結晶核のサイトとなる不均質核生成と考えられる[32-34]．転位集積に対する析出物，介在物の役割を考えたとき，オロワン・タイプでは転位の集積がしやすく，切断タイプでは局所すべりが起こり転位の均質な集積は難しい[32-34]．転位が局所的に集積し加工時に動的回復および再結晶が作用する結果，強ひずみ加工材にて0.5μm程度の亜結晶粒が局所的に多数観察されたと思われる．このことは加工時に動的な回復が顕著に生じてたためであると考えられる．

結晶粒微細化法により材料内部に微細結晶粒が成形すると，当然ではあるが結晶粒界が材料内部に細かく配分される．これが転位の動きを妨げるため転位の運動は粒界で止められる．つまり粒界は塑性変形の障害となるため微細な金属組織を有するほど強度は高くなる．いま平均結晶粒径をdとすると，塑性変形させるための応力，つまり降伏応力σ_yは式（1.1）で与えられ，これはHall-Petchの式として知られている[5,32,37]．

$$\sigma_y = \sigma_i + k_y / \sqrt{d} \qquad (1.1)$$

ここで，k_yは結晶粒径に依存しない係数である．またσ_iは結晶粒に依存しない応力で摩擦力といい，結晶格子自身が転位の動きに対して及ぼす抵抗力，転位などに基づく抵抗力などである．

これまで機械的特性は，例えば同一材料では圧延条件，圧延温度を変えることで改善できることは古くから経験的に知られており，実際の操業に応用されている．しかし，それらは工場固有の技術であったため研究の対象にはなかなか進展しなかった．しかし，数少ない文献から1920年代後半に既に英国で焼ならし省略のため，低温圧延が行われていたことが報告されている[5]．その後も，その時々の設備や技術の制約の中で，ニーズに対応するための低温圧延や制御圧延が行われており，それが今日のTMCP（Thermo-mechanical Controlled Processing）[5,16]に進展している．しかし，機械的特性は金属組織に依存することが知られているが，未だ加工ー熱処理を用いた方法では画期的といえる特性の発現には至っておらず，また結晶粒微細化に用いる加工方法の異なりによって機械的特性も変化するため，微細粒形成に対する加工プロセスの効果については未だ解明されていない部分が多い．

現在，結晶粒微細化法がどのようなアルミニウム合金において適応され，どの様な観点から取り組まれているかを国内外の研究動向も含めFig.1-2に示し，Fig.1-3結晶粒微細化への幾つかのアプローチ法を示す[5,32-34]．

How	What	Why
プロセス（素材・加工）	構造・組織・組成	メカニズム
⇩	⇩	⇩
経済性および実工程への応用展開	新規性と求心力	信頼性と将来展開

超微細粒材料

※部品特性

高強度・疲労強度	→	down size	：軽量化
高靭性		高安全	：耐震部材
高耐食性		長寿命	：耐食部材

※部品化プロセス

超塑性変形	→	ニアネットシェイプ	：難加工部品
高速拡散	→	低温プロセス	：耐磨耗部品

	～1990年	現在	将来
日本	Al-Mg-Zn	Al-Mg	Al-Mg-Si
欧米	2036，2008合金	Al-Mg-Si（6111,6022,6016）	Al-Mg-Si

Fig. 1·2 The approach to ultra grain refinement in Japan, and the characteristic of ultrafine grained materials.

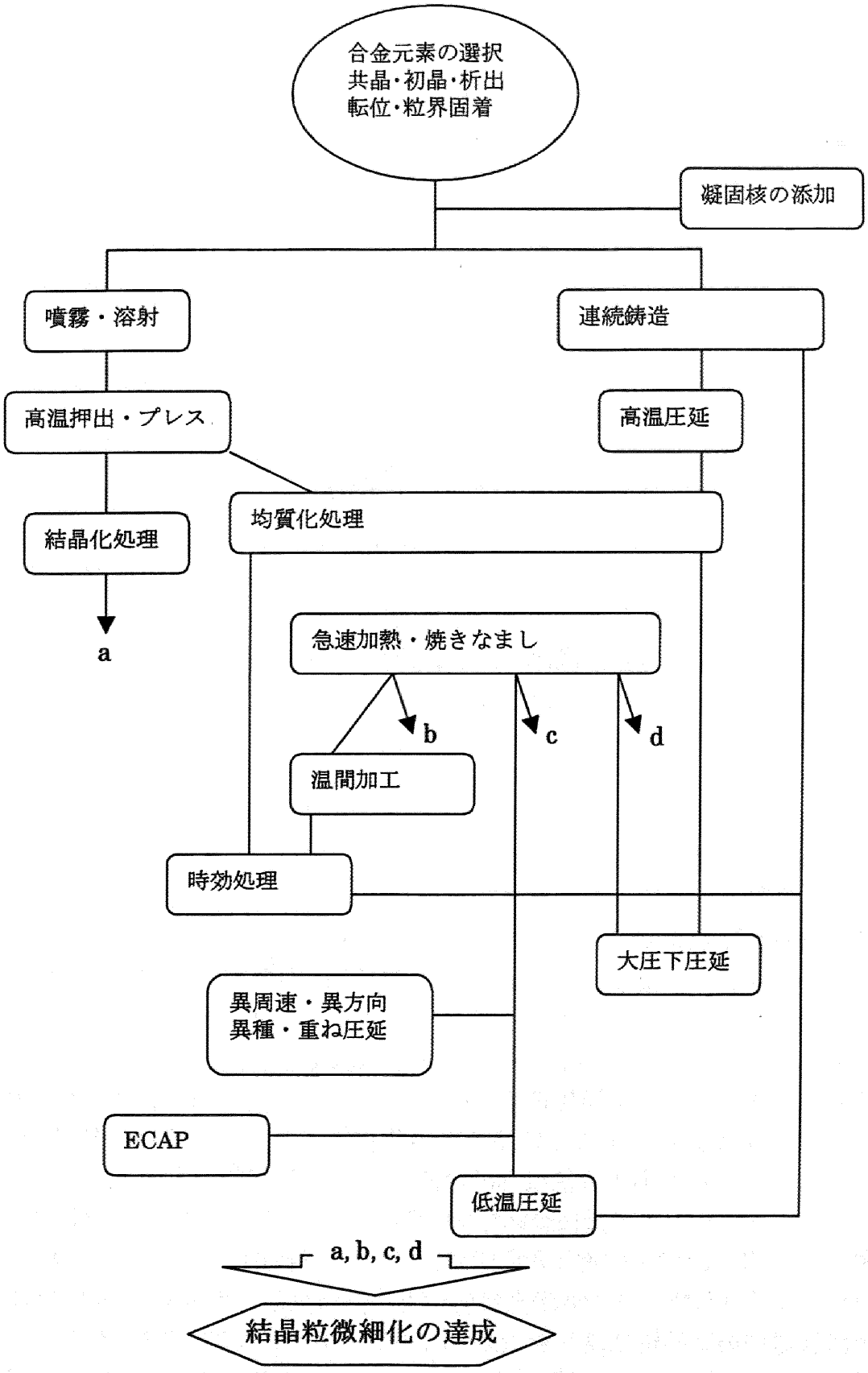


Fig. 1-3 The road map of the process for obtaining fine-grained materials.

1.3.2 結晶粒微細化の原理

結晶粒微細化に利用できる材料学的現象はTable1-1に示したように，塑性加工後の回復および再結晶である．すなわち，塑性加工により材料中に多量に蓄積された転位のひずみエネルギーが回復や再結晶の駆動力となる．一般にこの駆動力が大きいほど，その後の再結晶の際に再結晶核が多量に生成して結晶粒は微細化される．したがって，結晶粒微細化には材料内部すなわち結晶粒内に如何に多量の転位を効率良く蓄積できるかに掛かっている[1-11]．再結晶では高温で粒成長が起こるので，粒成長を如何に抑制するかも重要である．つまり，結晶粒を微細化するには転位が蓄積し易い条件の下で，出来るだけ大きな塑性ひずみを導入することが必要である[1-11]．

アルミニウム合金のバルク構造材料の場合，結晶粒を微細化する方法としては析出物や加工硬化および焼なましを利用したものが一般的である．これは主として静的再結晶を利用している．一方で，後述する特殊加工法などは動的再結晶[19,30,33]を利用したものである．静的再結晶で重要な因子は，1）核生成サイト（不均一変形領域）の密度の増大，2）駆動力（転位密度）の増大，3）界面の易動度の減少が挙げられる．動的再結晶で重要な因子は，1）局所的なひずみ勾配と組織の回復，2）旧結晶粒界延長線上への転位境界の形成，3)転位境界の方位差増加が挙げられる．

1.3.3 種々の結晶粒微細化法

結晶粒微細化法は前項までに記した通り，加工と熱処理技術の組み合わせで行われているが，サブミクロンレベルまで超微細化するには，加工ー熱処理に特別な工夫や技術が必要とされる．最近では従来の加工ー熱処理法における加工プロセスと加工温度を組み合わせて工夫することで，材料に付与するひずみ量を著しく大きくし，加工熱処理法では到達できなかった数μm，更には1.0μm以下のサブミクロンレベルまで結晶粒を微細化することで強度や諸特性の飛躍的向上を目指し，その加工方法は多岐に渡っている[17-31]．

ここで重要なのは，どの手法においても共通しているのは強ひずみを材料に付与し，加工温度は材料の組織が回復する温間域にて加工を行っている点である．すなわち，アルミニウム合金を初めとする低融点材料および積層欠陥エネルギーの高い材料での加工は低温型の動的再結晶あるいは動的回復を利用していると考えられる[32-33]．ここで，各方法が独自のプロセスを有しているので，以下に現在試みられている主な結晶粒微細化法とその中で用いられる塑性加工法の概要を述べる．

1）加工ー熱処理法

加工ー熱処理法とは，バルク材の結晶粒微細化法として有効とされており，主に加工により材料中に多量の加工ひずみを蓄積後，ソルトバスなどにより急速加熱して再結晶処理を行うもので，高温になったソルトあるいはオイルに浸漬することで回復現象を引き起こさずに新核生成と再結晶粒を生成するものである．その他に，比較的低温度にて加工ひずみと変形温度を制御し，塑性変形に伴い生成する不均質な転位下部組織を変形中に主ずる回復あるいは再結晶を利用して微細化する手法がある．前者が通常の再結晶または不連続再結晶であり，後者は連続再結晶に該当する．

この方法では，工業的観点から従来の加工法を大幅に変更することなく微細な結晶粒を得ようしており主に圧延加工を用いるものが多い．ここで重要なのは，通常の再結晶を利用した場合，如何に材料内に高いひずみエネルギーを蓄積するかであり，圧延ロールの上下速度を変化させ試料へ強制的に強いせん断変形を与える異周速圧延[38]や，試料の元板厚を大きくし加工率を稼ぐとともに一度に大きな塑性ひずみを導入する大圧下圧延[39]，さらに蓄積したひずみが加工熱により熱エネルギーとして回復することを防ぎ，更には材料の変形抵抗を高めた後に強いせん断変形を付与する極低温圧延[40-42]が挙げられる．これらは，ひずみを有効に蓄積した後，急速加熱により再結晶させる方法であり最近の報告では 1.0μm 程度の微細粒形成に成功している．一方で，連続再結晶を利用した手法には特殊加工に頼るものが多いが，材料内へ強ひずみを付与することは通常の再結晶法と共通している．ところが，連続再結晶を利用する場合の多くは温間での加工が重要になり，加工ひずみが残存する可能性が大いにあるため延性が乏しくなる．そのため，加工後の焼なまし条件と結晶粒径および強度を制御することは通常の再結晶よりも難しくなる．

2）特殊加工法

特殊加工法には主に粉末材料に対してメカニカルアロイング[43-46]，バルク材料に対しては等断面傾斜押出し法（Equal-Channel Angular Pressing：ECAP）[20-22]，繰り返し重ね接合圧延（Accumulative Roll-Bonding：ARB）[29-31]および高静水圧下ねじり加工法（Torsion Under High Pressure, HPT）[23-25]などがある．これらは 1μm の微細結晶粒を得ることができるが，現状では，形状制限や加工条件に制限があるため大型構造材料の作製は難しい．何ずれの加工方法も材料に割れ（加工ひずみ量が最大）が入らなければ形状を変えること無く，無

限に加工が可能とされており，急速加熱を利用せず材料加工中の温度，あるいは初期温度を加えることで動的な回復現象を連続的に引き起こす方法である．

(a) 粉末のメカニカルアロイング[43-46]

ボールミルを用いて粉末を室温でミリングすると，粉末は延ばし，折りたたみ，圧接などの塑性変形を繰り返し受け，強ひずみにより結晶粒は微細化する．主に鉄鋼材料や金属間化合物に適応されている．この方法で数十ｎｍのナノクリスタルからアモルファスの構造を持った粉末が得られている．この粉末を固化焼結してバルク材とする方法であるが，その過程で結晶粒の著しい成長が起こる場合もある．

(b) Equal-Channel Angular Pressing：ECAP 法[20-22]

Fig.1-4(a)のような屈曲した等断面のダイス溝穴(θ:屈折角)に材料を通すことにより，屈曲部で材料に単純せん断変形を付加する方法である．加工前後で材料の断面積が変化しないので，これを何回でも繰り返すことができ，外観の変形なしに原理的に無限に大きなひずみを付加できる．このプロセスは Segal ら[47]より集合組織制御法として考案され，1981 年に公表されたが，その後 Valiev ら[21-22]が結晶粒微細化のための強加工法として利用し，屈折角 90° の直角ダイスを用いて多くの研究を行った．Al 合金に対しては，この方法と適切な焼なましを行うことで 10^{-1}～10^{2}μｍの広範囲に及ぶ粒径の多結晶体を得ている．しかし，この方法は長尺物への適用は困難であり，応用範囲は限定される．

(c) 高静水圧下ねじり加工法(Torsion Under High Pressure, HPT)[23-25]

Fig.1-4(b)に HPT の模式図を示す．ディスク状の試験片を支持台に乗せ，押し棒で試料に大きな圧力をかけながら回転させることによりせん断ひずみが導入される．この HPT 法はロシアの Smirnova ら[48]によって 1986 年に紹介され，結晶粒をサブミクロンまで微細化することが示されている．しかし，この手法に関しては系統的な研究はなされていない．これは，試料サイズが大きくなく，形状がディスク状と限られており実用的な関心が薄いことが主な理由として挙げられる．

(d) 繰り返し重ね接合圧延(Accumulative Roll-Bonding：ARB 法)[29-31]

ARB 法は圧延を利用した強ひずみ加工である．ARB の原理図を Fig.1-4(c)に示す．板を圧延すると板厚は半分となるが長さは 2 倍程度になる．そこで，圧延板を長さ方向に 2 等分し，2 枚を重ね繰り返し圧延を行う方法である．繰り返し加工数をｎ回行うとともに接合界面は 2^{n}層になる．ただし，合わせ面は接合することが条件であり，そのために接合面の清潔さ，ロール径やロール速度な

どの圧延条件は限定される．しかし，板厚の薄い板材のみに関しては微細粒を得る有効な方法である．

(e) 摩擦攪拌接合法(Friction Stir Welding: FSW) [49-53]

板厚の大きな板材の結晶粒微細化法としてはFSW法[49-53]が挙げられる．FSW法は従来，異種合金や長尺材料の接合に使用されてきた手法である．近年では，この手法をバルク材料の表層微細化に用いた報告がなされている．FSW 法は1990 年代初頭に英国溶接研究所(TWI)において発明・開発された[50]．この接合概念はFig.1-4(d)に示すように，丸棒状の回転ツールにより，素材との間で摩擦熱を発生させ，同時にツール先端の特殊な形状を持ったピンで塑性流動を起こしながら継ぎ手の開先を攪拌することにより接合する方法である．摩擦熱を発生させるため被接合材に剛性がない場合は裏当てが必要となるが，適切なツールと接合条件を選定することにより，欠陥の少ない安定した継ぎ手性能を得られることから，長尺のアルミニウム合金製鉄道車両の製造などに適用されている[51-53]．最近では，FSW を行なった軌跡が超微細粒を生成することから，接合以外に熱処理に相当する加工としても注目されている．

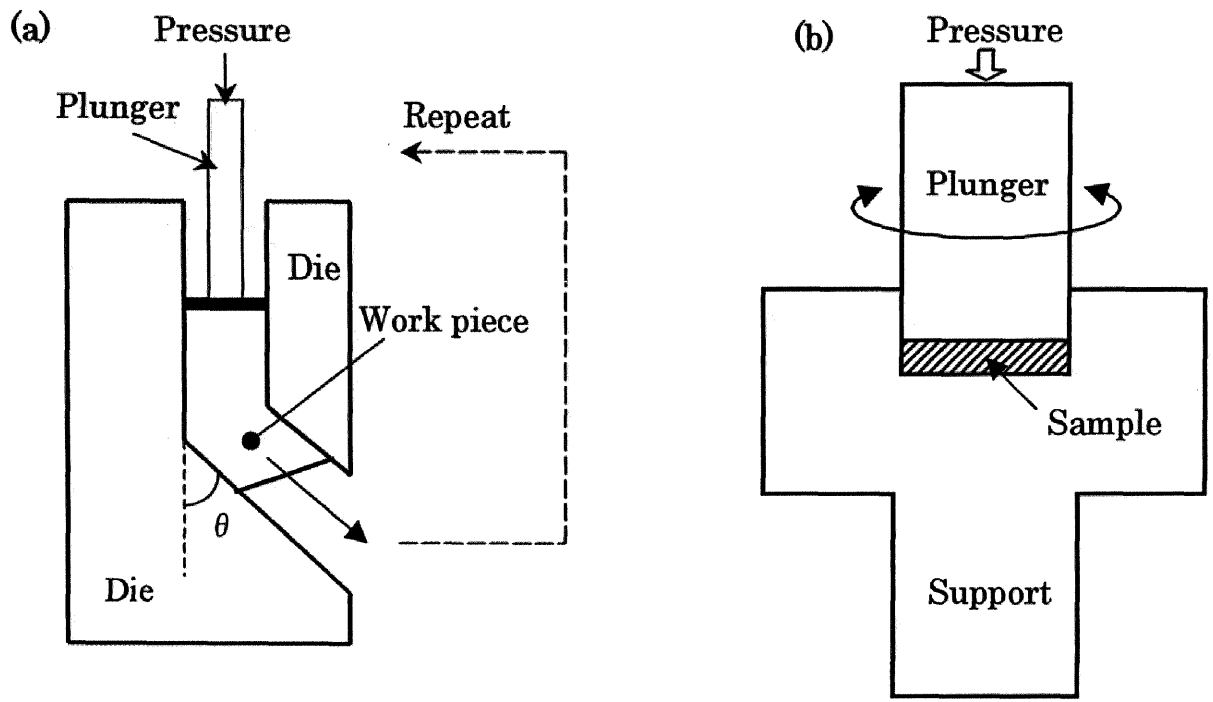


Fig. 1-4 Schematic illustration of the various grain refinement methods and its outline.
(a) ECAP, (b) HPT, (c) ARB and (d) FSW.

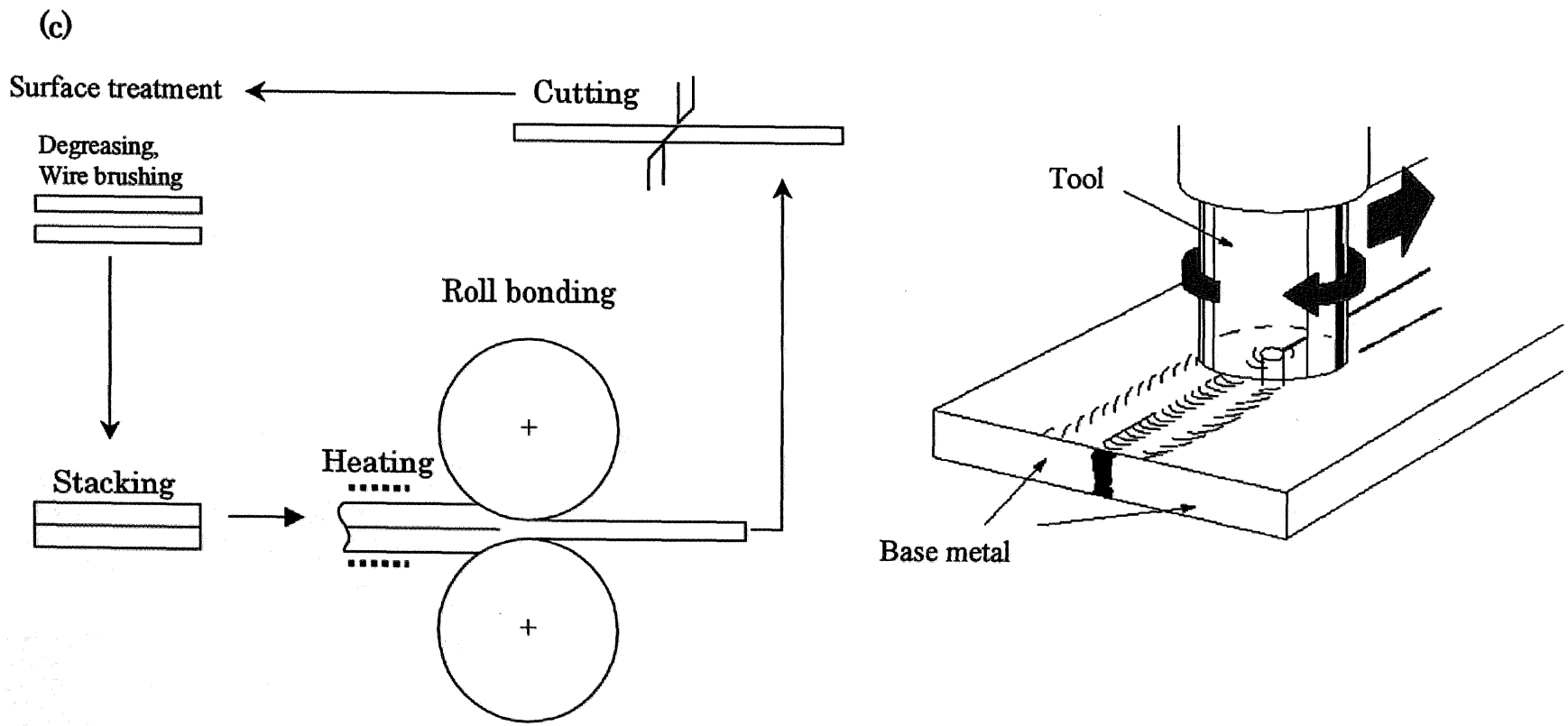


Fig. 1-4 Schematic illustration of the various grain refinement methods and its outline.
(a) ECAP, (b) HPT, (c) ARB and (d) FSW.

1.4 国内外の研究動向

金属材料は産業の基盤となる材料である．とりわけアルミニウム材料は，軽金属の中でもとりわけ構造用材料として汎用性の高い金属材料である．産業技術の発展に伴い金属材料に要求される機械的諸特性や機能的特性は益々高くなっており，軽量高強度化や長寿命化等の優れた材料特性が求められている[5-16]．

近年の基礎的な研究によって，一般材料でも結晶粒径を微細化することで，強度・靭性・耐食性等が大きく向上することが確認されつつある．高強度・高機能特性を有する汎用構造材料を創製する技術が確立できれば，社会基盤を充実させると同時に，経済および社会に及ぼす効果は非常に大きい．例えば「強度２倍，寿命２倍」の材料を使用すれば，自動車の軽量化による燃費向上にも繋がり，日本全体の CO_2 排出量を 2～3%削減できるとする試算もある[36-37]．

このような状況下において，我国では Table1-2 に示すようにスーパーメタルプロジェクトと称し 1995～1996 年の一年間で先導研究を行い，1997 年から 5 年間集中的に創製方法，加工条件および種々の諸特性に関し活発に研究を重ねてきた．しかし，これらは研究室サイズでの成果がほとんどであり，また微細粒材料を創製するための手法も特殊なものが多く目立つ．圧延や鍛造などの従来法を利用した手法では，本論文にて著者等が提案している多軸鍛造法が最も実用化に近いものと考えられる．一方，微細粒材料の諸特性に関しては室温での引張試験結果が主であり，破壊靭性および疲労試験等を総合的に評価したデーターは皆無に等しい．また，微細粒形成のメカニズムおよび大型構造用材料への結晶粒微細化法の適応の可能性を模索しながらも，より詳細な機械的諸特性を明確にする必要があり，構造用材料として使用するには非常に重要な課題を抱えている．

結晶粒微細化に関する研究は，Fig.1-2 に示したように対象合金こそ異なるものの微細化手法および研究アプローチにおいては世界的に見ても我国が先導していると考えられる[36-37]．日本におけるスーパーメタルプロジェクト等による革新的な研究が，海外における超微細粒材料研究に大きなインパクトを与え，各国がそれぞれ独自に微細粒材料プロジェクトを立ち上げているのが現状である．以下に各国の研究例を示すが，主だった研究背景および最終的な目標は各国とも共通のものである．しかし，微細材料創製のための加工プロセスにおいては，欧州はより現実的であり，特殊加工などを極力使用せず従来法の改善により目標を達成しようと取り組んでいる．

まず欧州では，2000 年から 1 年間の EU プロジェクトとして超微細粒材料の創製に関する研究が開始された．内容は 1μm 程度の微細粒材の性質を調査し，

有用性を評価することを目的に，冷間大ひずみ圧延と焼なましを組み合わせた加工プロセスを中心として研究が行われた．また，2001年から3年間で民間企業と大学を中心としたECSCプロジェクトが開始され，高強度化を主眼に微細構造制御技術の開発が進められてきた．プロジェクト成果の適用範囲としては，自動車，建造物およびパイプライン等を念頭に置いている．実用化しやすい範囲として結晶粒径2～3μmの微細材の創製と実用化の目処を得ることを目的に，超急速冷却法を開発し，熱延ラインでの微細粒材製造にターゲットを絞っている．2002年から2007年までに新たにECSC2002プロジェクトが始まり，高強度，耐久性，リサイクル性を探求している．

一方，米国では超微細粒材料に関する研究プロジェクトは特に見られないが，2000年に発表されたNational Nanotechnology Initiativeの一環として，結晶粒微細化法のみに留まらず，各種材料の開発が“Grand Challenges”の一例として挙げられており今後の研究動向が注目される．

韓国では1998年から5年計画でHiper-21プロジェクトが始まっている．日本のスーパーメタルプロジェクトと同様な研究を推進している．このプロジェクトにて創製された微細粒材の平均粒径は板表面層で2～3μmと微細であるが，中心は5μmと粗大である．種々の業界からの参加も交え実用化を考慮し仕様設計からの検討を進めている．2003年から2007年の第二期プロジェクトでは1）超微細粒材料の製造方式の研究開発，2）製造技術の実証，3）大型構造物への超微細粒材料の適用について研究等を行う予定である．

中国もまた，韓国と同様に1998年から国家プロジェクトを立ち上げた．“double strength and / or double service life”を目標に，微細化，高純度化，均質化をキーワードにしている．構造用材料で2～3μm程度の微細粒材料の創製を目指しているものの，内容的には日本のキャッチアップが主体である．近年，中国では積極的に国際会議を開催しており情報収集を実施している．

Table 1-2 Total plan of super metal project in Japan.

Study item	F.Y. 1997	1998	1999	2000	2001
1. Fundamental experiment	→				
2. Feasibility study					
Cryogenic rolling		→	→		
ECAP		→	→		
ARB		→	→		
Differential speed rolling		→	→		
Strip casting		→	→		
Controlled warm rolling		→	→		
3. Modefication of feasibility process for a substantial process				→	
4. Trial of a substantiation process					→

Technical development of a nano metal is performed from 2001 to 2005. Object alloys are an aluminum alloy and a copper alloy.

1.5 従来および微細粒材料での超塑性変形

1.5.1 従来の超塑性一般

本論文では，微細粒材の創製と同時に低温超塑性の発現およびその変形機構の解明，結晶粒径および試験温度の関係にも重点的に取り組んだ．ここで，超塑性に関する一般的な定義について述べることにする．

金属材料を引張変形させると，通常延性の高い材料でも数 10%ないし 100%以下のひずみにてネッキングを生じ破断に至る．しかし，特定な組織を有する金属に対して特定の変形条件下ではネッキングを生じることなく，数百から数千%にも及ぶ巨大伸びが観察される．この現象を超塑性と称している．

超塑性に関する最初の報告は 1920 年 Rosenhain, Haughten, Binghman ら[54]によるもので，Zn-Al-Cu 三元共晶合金の曲げ変形においてもろいはずの金属材料が帝王緑化で変形し異常に大きな延性を示すことを報告したことに始まる．その後，共晶合金の異常伸びに着目し，詳細な検討を行ったのは Pearson (1934 年) [55]である．Pearson らは Pb-Sn, Bi-Sn 共晶合金で 1950%もの伸びを得たことも示している [55]．そして異常に伸びる材料は異常に微細な結晶粒径を持っていること，結晶粒界ですべりが起きていること，巨大伸びにもかかわらず結晶粒形状は等軸状のままで伸長していないことを明らかにした．1945 年にこれらの現象に着目した Bochvar, Presnyakov らにより，異常伸びに関する系統的研究が超塑性なる呼称で次々に公表された．超塑性の研究が活発になったのは Underwood[56]によって以上の成果が欧米へ紹介されてからである．特に，Backofen ら [57]は Nodai, Manjoin[58]のひずみ速度感受性の概念を超塑性現象に適応し，超塑性における異常伸びとひずみ速度感受性指数とが良い対応を示すことを種々の合金を用いて明らかにした．

超塑性は金属材料のみならず，微細な等軸粒を有する多結晶材料に現れる一種の高温変形様式であると考えられ，材料の内的因子である組織，特に結晶粒径と，外的因子である温度とひずみ速度との間にある釣合いが保たれている変形状態で発現する．結晶粒が等軸微細であることが超塑性発現の一要因である．特に，共析あるいは共晶合金のような化学組成の異なる二相が混在する組織を持つ合金において超塑性が多く見出されているのは，単相合金よりも微細粒を得ることが容易であり，$T_m/2$（T_m は絶対温度での融点）以上の温度においても粒成長が起こりにくいためでもある [59-60]．したがって，数μm 程度の安定な微細粒組織と変形温度およびひずみ速度が適切に組み合わされば，一定の化学組成に限定することなく，すべての材料に超塑性が発現する可能性がある．

超塑性変形のレオロジー的な特徴は高いひずみ速度感受性である．一般に，超塑性変形は式（1-2）で表されている[61-62]．

$$\sigma = K\dot{\varepsilon}^{m} \qquad (1\text{-}2)$$

ここで，σは流動応力，$\dot{\varepsilon}$はひずみ速度，K は定数である．なお，指数の m 値はひずみ速度感受性指数と呼ばれ，引張試験における材料のネッキング抵抗の目安となり，m 値が 0.3 以上かつ 200%程度の大きな伸びを示した場合を一般的に超塑性状態と見なしている[60]．

従来，超塑性を得るためには変形前に微細な等軸粒であることが必要とされていた．ところが，高温変形前に未再結晶粒を含む加工組織の 2024, 8090 系アルミニウム合金[7]，あるいはβ型チタン合金の粗大組織[46]でも超塑性の発現が報告されている．これらは変形中に動的再結晶，あるいは動的回復が生じ結晶粒が微細化するためであると考えられている[19,33,63-64]．したがって，加工組織材料や粗大結晶粒材料から出発した超塑性挙動が体系的に検討され，超塑性を発現させるための条件が決定されるならば，超塑性は現在よりも広範囲に渡って応用が期待できる．

1.5.2 微細粒材料における超塑性変形

超塑性加工には工程削減および多品目・複雑形状に対応できるという利点がある．一方で，チタン合金に代表されるように冷間加工がほとんど不可能であり，熱間加工温度も高くかつ超塑性発現温度の範囲が狭い金属材料は，薄板，箔および線材などへの加工も困難で，最終的な一次製品としての材料費の増大を招いていた．また，超塑性発現温度も高く，このような金属材料を利用した超塑性加工においては金型費も高くなるため，製品のトータルコストが高価なものとなり超塑性加工は一部航空・宇宙関連部品の加工に用いられるに過ぎなかった．

一方，結晶粒径をより微細化すると超塑性発現温度は低下するとされており，結晶粒微細化に関する研究が活発に行われている．例えば，1996 年には結晶粒径を 10μm 以下にすることで変形速度は高速側へ，変形温度は低温側へ移行することが Higashi, Langdon ら[60-65]により報告されるまでに至った．アルミニウム合金では，Al-Mg 合金をそれぞれ ECAP 法[66-67]，ARB 法[68]により強ひずみ加工した微細粒材料（粒径 1μm 以下）を 673K にて変形させた結果，両材とも m 値は 0.4 で 300%程度の伸びを示している．加えて，これら微細粒材料は，これまで議論されてきた Al-Mg 系合金（粒径 10μm）よりも比較的高い強度を

維持している．

ところで，松木らの報告によれば，粒径 8μm 程度の種々のアルミニウム合金を用いて試験温度 823K で変形を付与した結果，超塑性が顕著に現れる条件下では粒界すべりの寄与率は 70～80％と報告されている[69-70]．一方で，超微細粒の超塑性変形は数多く報告されているものの，粒径 1μm 以下での低温高速超塑性の発現のみが述べられ，その変形機構（粒界すべり，粒内変形，void の形成）に触れたものは非常に少ない．また，これまでの超微細粒アルミニウム合金における低温超塑性の議論の多くは，試験温度 673K で実験した結果が主であり[67-68,71]，この温度はアルミニウム合金の再結晶温度より高く，試験温度到達までに粒成長が起きると考えられる[26-28]．

超塑性変形を利用した成形加工に対しては，微細粒材料が有効であることは伺えるものの，その変形機構の解明および変形または試験温度に対する結晶粒径との関係は超微細粒材料の分野では未熟である．的確な加工条件および変形機構を示すことは，低温あるいは高速超塑性の利点をより明らかにするものであり，製品のトータルコストを抑える可能性がある．他方，加工条件により変形機構が異なるならば，製品を作製する際の加工条件を種々選択することが可能となり，幅広い選択肢を得ることとなる．

本研究では，前述のごとく超微細粒材料および結晶粒径を種々変化させたときの変形機構についても議論し，どの程度まで超塑性発現温度を低温側へ移行することが可能か解明することも目的の一つとしている．

1.6 論文の構成

本論文は，本章(第1章序論)を含めて，全体として次の8章から構成される．

第1章　序論
第2章　圧延加工による結晶粒微細化
第3章　前加工付与圧延による結晶粒微細化
第4章　アルミニウム合金の結晶粒微細化へ及ぼすひずみ負荷様式の影響
第5章　多軸鍛造法により結晶粒微細化したアルミニウム合金の機械的特性
第6章　超微細粒 Al-Mg 合金の低温超塑性と変形機構
第7章　低温超塑性に及ぼす初期結晶粒径の影響
第8章　総括
　　付録

以下に各章の概要を述べる．

はじめに，第 1 章（本章）において，研究の背景と目的および従来の研究概念と本研究の意義，そして本論文の構成と概要を記述している．

次に，第 2 章において，アルミニウム合金の代表として展伸材料として広く用いられている非時効合金である 1100，3004 および 5083 アルミニウム合金を採り上げ，最も実用化しやすい圧延加工と熱処理を組み合わせた結晶粒微細化法について検討している．具体的には，冷間圧延あるいは極低温圧延加工による転位密度の増加と再結晶処理による結晶粒微細化条件を調べ，微細化した本合金の機械的特性，結晶粒径と加工プロセスについて検討している．その結果，従来から行われている単純な圧延では微細結晶粒を得ることが困難であり，微細粒を得るためにはより強ひずみ加工法が必要であることを明確にしている．

第 3 章では，前章の冷間および極低温圧延加工前に前加工として鍛造加工を組み合わせた強ひずみ加工について，結晶粒微細化に及ぼす鍛造加工および加工ひずみの役割および加工温度について検討している．すなわち，前加工としての鍛造の役割を種々の加工温度（極低温および温間加工）下で体系的に調べ，機械的特性に及ぼす微細粒組織の影響を検討する．また，冷間圧延に比較して極低温圧延では付与した塑性エネルギーの損失が少なく，内部組織はより均一に変形させることが可能であり，加工中に形成されたサブグレインや結晶粒の状態から，既存工程を組み合わせた簡便な手法においても微細粒の生成が十分可能なことを示している．

第4章では,前加工として採り入れた鍛造加工のみで結晶粒微細化が可能か,負荷様式という側面から検討したもので, TEM による詳細な組織観察から加工中における結晶粒微細化の機構を示している．なお，拡散や第二層粒子形成の影響を排除するため工業用純アルミニウム合金(A1100 合金)を用いて微細化機構について述べている．ここでは，鍛造加工のみでも延性の損失が極めて少なく，引張強さが試験前の2倍以上に向上し，結晶粒径も1μm以下に微細化することが可能であることを示している．同時に，結晶粒微細化を効率よく行うための負荷様式と加工条件について明確にし，他の強ひずみ加工法と微細組織および機械的特性を比較しても遜色がないことを明確にしている．

第5章では，前章までに示した鍛造加工と加工条件から実工程への応用可能な新たな強ひずみ加工法として多軸鍛造法を提案している．本章では，実工程を念頭に据えるべくアルミニウム合金の中でも比較的広範囲に使用され，需要の拡大も期待できるA5083合金を多軸鍛造法により微細化した．このとき機械的特性は加工ひずみ量の増加および微細結晶粒の生成機構と関連付け示している．また創製した微細粒材料を種々の温度で焼なましすることによる，引張強さ，降伏応力，硬さおよび伸び（破断伸び，均一伸び，局部伸び）の変化を結晶粒径および焼なまし温度の関数として示している．さらに，焼なまし後も他の強ひずみ加工法と同等以上の特性を示すと同時に，結晶粒径と機械的特性の関係を明確にしている．

第6章では，低温超塑性発現に及ぼす諸因子の影響と変形機構について検討している．はじめに，高温引張特性（流動応力，破断伸び，m値）を種々の変形温度とひずみ速度条件で体系的に調べ，破断伸びに対する粒界すべりおよび粒内変形の寄与率を明確にしている．微細な初期結晶粒を有する材料では組織の回復温度においても超塑性が発現し，主な変形機構は粒内変形であることを組織観察，結晶粒の回転とすべりおよびアスペクト比より示している．さらに，低温超塑性発現に対する低温型動的再結晶と粒成長の影響について，組織変化と変形量の増加に対する結晶粒の形状変化より明確にしている．初期結晶粒が微細であることは，超塑性の発現をより低温側へ移行することが可能であり，変形温度によりその変形機構は大きく異なることを見出している．

第7章では，従来低温とされてきた温度よりも更に200K程度も低い温度で超塑性が発現するか検討したものである．低温超塑性を発現させるための条件として，主に初期結晶粒径に焦点を絞り，種々の初期結晶粒径とひずみ速度において調べ，低温超塑性が発現可能な結晶粒径について検討している．変形機構に対しても結晶粒径と破断面組織，試験片表面組織およびTEM組織と関連付け検討し，微細粒材特有の変形機構が低温超塑性の発現に伴い作用することを提言している．この種材料の変形機構を解明するための実験手法には統一的な

ものが無く定量的な評価が成されていないため，実験手法においても一部新たな評価法として提案している．

第 8 章では，本研究で得られた主な研究成果について総括するとともに，本研究に関連した将来展望について述べている．

また，本論文をまとめる段階では論文内容に直接関与しなかったが，著者らが自作した二軸引張試験機に関する内容を付録に記述した．すなわち，二軸引張試験機には主に二つの目的があり，第一に従来の数値計算による塑性加工シミュレーションの高精度化，第二にせん断変形が巨視的には作用しない二軸応力部での相当応力と組織変化について検討を行うべく設計作製したものである．全ての軸は独立制御となっている．このため，動作に必要なプログラミングを示し，試験片形状算出に使用した ANSYS 三次元解析結果と同時に設計書と設計仕様を添付している．

参考文献

(1) Y. Saito, H. Utsunomiya, N. tsuji Tetsuo Sakai and Ren-Guo Hong: J. Japan Inst. Metals, 63 (1999), 790-795.

(2) M. Kobayashi, K. Funami: *Proc. of the third sympo. on Super Metal* (JRCM, 2001), 169-173.

(3) T. Aida, K. Matsuki, Z. Horita and T.G. Langdon: Scripta Mater. 44(2001), 575-579

(4) T.G. Langdon: Metall. Trans. 13A(1982), 689

(5) for example, *Present Status and Future Prospect of Aluminum Super Metal Project,* (JRCM, 1997) , 1-21.

(6) T. Watanabe: *New approach to grain refinement,* JIM Seminar Text, (The Japan Inst. of Metals, 2000), 17-23.

(7) M. Kobayashi: J. Japan Inst. Light Metals, 39 (1989) , 776.

(8) Y. Umakoshi and S. Yamaguchi: Tetsu-to-Hagane, 79 (1993) , 75.

(9) D.A. Porter and K.E. Easterling: *Phase Transformations in Metals and Alloys, second edition,* Chapman & Hall, London, (1992).

(10) M.F. Ashby: Phil. Mag., 21(1970), 399.

(11) N. Tsuji, T. Murakami and Y. Saito: J. Japan Inst. Metals, 63 (1999), 243-251.

(12) M. Furukawa, Z. Horita, M. Nemoto, R.Z. Valiev and T.G. Langdon: Phil. Magazine A, 78(1998), 203-215.

(13) F. Inoko and K. Kashihara: J. Japan Inst. Metals, 56 (1992), 371.

(14) S. Kohara, M.N. Partharathi and P.A. Beck: Trans. Met. Soc. AIME, 212(1958), 875.

(15) M. Noda, M. Hirohashi, K. Funami and Y. Suwahara: J. Japan Inst. Metals 66 (2002), 101-108.

(16) for example, *New approach to grain refinement,* JIM Seminar Text, (The Japan Inst. of Metals, 2000)

(17) F.J. Humphreys and M. Hatherly: Recrystallization and Related Annealing Phenomena, Elsevier, (1995)

(18) R.Z. Valiev, R.K. Islamgaliev and I.V. Alexandrov: Prog. Mater. Sci., 45 (2000), 103.

(19) H. Miura, Y. Aoki and T. Sakai: J. Japan Inst. Metals, 58 (1994), 267.

(20) M. Furukawa, Z. Horita, M. Nemoto, R.Z. Valiev and T.G. Langdon: Acta Mater., 44 (1996), 4619.
(21) R.Z. Valiev, A.V. Korznikov and R.R. Mulykov: Mater. Sci. Eng., A168 (1993), 141.
(22) R.Z. Valiev, N.A. Krashilnikov and N.K. Tsenev: Mater. Sci. Eng., A137 (1991), 35.
(23) R.Z. Abdulov, R.Z. Valiev and N.A. Krashilnikov: J.Mater. Sci. Lett., 9(1990), 1445.
(24) R.Z. Valiev, F. Chmelik, F. Bordeaux, G. Kapwlski and B. Baudelet: Scripta Metall. Mater., 27 (1992), 855.
(25) R.Z. Valiev, Yu.V. Ivanisenko, E.F. Rauch and B. Baudelet: Acta Mater., 44 (1992), 855.
(26) M. Noda, M. Hirohashi and K. Funami: J. Japan Inst. Metals 67 (2003) 98-105.
(27) M. Noda, M. Hirohashi and K. Funami: J. Mater. Trans., 44 (2003) In press.
(28) M. Noda, K. Funami, M. Hirohashi and M. Kobayashi: Mater. Sci. Forum, In press.
(29) Y. Saito, H. Utsunomiya, N. Tsuji and T. Sakai: Acta Mater., 47 (1999), 579-583.
(30) Y. Ito, N. Tsuji, Y. Saito, H. utsunomiya and T. Sakai: J. Japan Inst. Metals 64 (2000), 429-437.
(31) H. Utsunomiya, K. Tanda, Y. Saito, T. Sakai and N. Tsuji: Jurnal of the JSTP, 40 (1999), 1187-1191.
(32) T. Maki: *New approach to grain refinement,* JIM Seminar Text, (The Japan Inst. of Metals, 2000) pp 9-15.
(33) T. Sakai: *New approach to grain refinement,* JIM Seminar Text, (The Japan Inst. of Metals, 2000) pp 83-86.
(34) M. Osamura: *Proc. of the first sympo. on Super Metal,* (JRCM, 1998) 13-21.
(35) I. Kozasu: *New approach to grain refinement,* JIM Seminar Text, (The Japan Inst. of Metals, 2000) pp 1-8.
(36) E. Abe: *Proc. of the fourth sympo. on Super Metal,* (JRCM, 2001) 1-8.
(37) H. Yoshida: *Proc. of the second sympo. on Super Metal,* (JRCM, 1999) 21-29.

(38) Q. Cui, K. Ohori: J. Japan Inst. Light Metals 50(2000) 335-340.
(39) A. Niikura, K. Koyama and Y. Bekki: *Proc. of the third sympo. on Super Metal,* (JRCM, 2001) 137-141.
(40) M. Noda, K. Funami and M. Kobayashi: J. Japan Inst. Metals 64 (2000) 395-398.
(41) M. Furui, T. Kawakami and S. Saji: J. Japan Inst. Light Metals 52 (2000) 339-345.
(42) M. Kobayashi, K. Funami: *Proc. of the second. on Super Metal* (JRCM, 1999), 281-290.
(43) K. Ameyama: Scripta Mater., 38 (1998), 726.
(44) K. Ameyama: *New approach to grain refinement,* JIM Seminar Text, (The Japan Inst. of Metals, 2000) 65-68.
(45) Y. Kimura and S. Takaki: J. Mater. Trans., JIM, 36 (1995), 289.
(46) N. Machida, K. Funami and M. Kobayashi: Mater. Sci. Forum, 357-359(2001), 539-544.
(47) V.M. Segal, V.I. Reznikon, A.E. Drobyshevsky and Y.I. Kopylov: Russian Metallurgey, 1 (1981), 99.
(48) N.A. Smirnova, V.I. Levit, V.I. Pilyugin, R.I. Kuznetsov, L.S. Davydova and V.A. Sazonova: Fiz. Met. Metalloved., 61 (1986), 1170.
(49) Y.J. Kwon, I. Shigematsu and N. Saito: J. Japan Inst. Metals, 66(2002), 1325-1332.
(50) W.M. Thomas, E.D. Nicholas, J.C. Needham, M.G. Murch, P. Templesmith and C.J. Dawes: GB Patent Application No. 9125978.8, Dec. 1991, US Patent No. 5460317, Oct. 1995.
(51) W.M. Thomas and E.D. Nicholas: Materials & Design 18 (1997), 269-273.
(52) Y. Li, L.E. Murr and J.C. McClure: Mater. Sci. Eng., A271 (1999), 213-223.
(53) C.J. Dawes and W.M. Thomas: Weld. J., 75 (1996), 41-45.
(54) W. Rosenhain, J.L. Haughten and K.E. Bingham: J. Int. Metals, 23 (1920), 261-324.
(55) C.E.Pearson: J. Int. Metals, 54 (1934), 111-124.
(56) E.E. Underwood: J. Metals, 14 (1962), 914-919.
(57) W.A. Backofen, I.R. Turner and D.H. Avery: Trans. ASM, 57(1964), 980-990.
(58) A. Nodai and M.J. Manjoine: J. Appl. Mech., 8 (1941), 77.
(59) T. Ohnishi, K. Higashi and Y. Nakatani: J. JIM 48(1984) 977-982.

(60) H. Iwasaki, T. Mori, M. Mabuchi and K. Higashi: Mater. Sci. Techn. 15(1999) 180-184.
(61) B.M. Watts and M.J. Stowell: J. Mater. Sci. 6(1971) 228-237.
(62) C.H. Caceres and D.S. Wilkinson: Acta Metall. 32(1984) 415-422.
(63) X. Yang, H. Miura and T. Sakai: J. JIM 59(1995) 1222-1229.
(64) R. Kaibyshev, T.Sakai, F. Musin, I. Nikulin and H. Miura: Scripta Mater. 45 (2001), 1373-1380.
(65) K. Higashi, M. Mabuchi and T.G. Langdon: ISIJ Intl. 36(1996) 1423.
(66) T.G. Langdon: Mater. Sci. Eng. A174(1994) 225-230.
(67) Z. Horita, S. Lee, S. Ota, K. Neishi and T.G. Langdon: Mater. Sci. Forum 357-359(2001) 471-476.
(68) N. Tsuji, K. Shitotsuki and Y. Saito: Mater. Trans. JIM 40(1999) 765-771.
(69) K. Matsuki, N. Hariyama and M. Tokizawa: J. JIM 45(1981) 931-941.
(70) K. Matsuki, Y. Ueno and M. Yamada: J. JIM 38(1974) 219-226.
(71) M. Kawazoe, T. Shibata and K. Higashi: Mate. Sci. Forum 233-234(1997) 207-214.

第２章

圧延加工による結晶粒微細化

Chapter 2

Grain Refinement of Aluminum Alloys by Rolling Process

Abstract

Grain refinement of aluminum alloys can be achieved by introducing a large amount of lattice distortions during an intense plastic deformation. Additionally, high stored energy working process and following annealing in rapid heating are essential to obtain fine grained materials.

In order to introduce high plastic strain to 3004 and 5083Al alloys, one-directional rolling methods at cryogenic temperature or room temperature were applied. Effect of one directional rolling at cryogenic temperature methods was estimated by a stored strain energy, which it's obtained from a microstructure and work hardening. As the result, Vickers hardness, tensile stress and yield stress of materials rolled up to 90% were increment of about 1.5 times larger than that of the starting material respectively. The annealing temperature was determined by differential scanning calorimeter (DSC) analysis. However the materials having annealing treatment at 583K, 300s produced grain structure with larger than 6μm in grain size. It was not found that the fast improvement of mechanical properties. That is, introduced amount of stored strain energy was not sufficient during an intense plastic working. It is necessary that induced larger amount of stored strain energy for materials.

Key words: grain refinement, mechanical properties, cryogenic rolling, high stored energy, aluminum alloy

2.1 緒　言

第1章において，アルミニウム合金の強化機構に際し相変態が利用できず，また環境面への配慮からも結晶粒微細化法が有効であるが，従来の加工ー熱処理法では結晶粒の微細化に限界があり，実工程への適応が困難な特殊な強ひずみ法でしか微細粒材料が得られていないことを述べた．同時に，強ひずみ加工法と加工ー熱処理法を系統的に検討したものはなく，第1章にて述べているが，加工ー熱処理法と強ひずみ加工法では加工中における内部組織変化が全く異なる．したがって，従来の加工ー熱処理法と強ひずみ加工法を双方の加工プロセス，組織変化および機械的特性の面から比較検討することには意味がある．

ところで，結晶粒微細化法が現在抱えている最も重要な課題は実用化できる手法の確立である．現在の金属加工において圧延は基幹となる生産手段で，アルミ製品の80%は圧延により生産されている[1-2]．そのため既存の装置を用いた強化法でなければ経済的な面からも実用化は困難であり，その加工プロセスは実工程への適応を前提としなければ工業的には無意味である．本章では加工方法を工夫することで従来から行なわれている加工ー熱処理法の加工工程を大幅に変更することなく，結晶粒微細化による高強度化と微細結晶粒の形成が可能か加工プロセス，組織変化および機械的特性それぞれの観点から検討した．

近年，大量生産・大量使用される金属材料においてスクラップ再生は年々増加する傾向にありリサイクル材料の占める割合は大きくなっている[3-4]．長期的展望に立てば，すべての材料がリサイクルを前提として設計，製造されなければならない．このような社会状況のもとではより高強度かつ高性能化された材料の開発においても添加元素を出来るだけ少なくする必要がある．結晶粒径と強度の間には，Hall-Petchの関係[5-7]が一般に認められており，この関係式によると数十μmの結晶粒径を3μm程度まで微細化すると，降伏強さが2割～3割程度上昇すると推定される[6-7]．組織微細化の手法として，ひずみ加工ー再結晶法が有効であることがこれまで報告されている[8]．また，ひずみエネルギー導入のためにはせん断変形加工による強ひずみ加工が微細な再結晶粒創製に有効であると報告されている[6-7]．ところが，第1章で述べたように，塑性加工と熱処理を組み合わせた手法（TMCP）による結晶粒微細化およびその加工プロセスについて議論したものは少なくはないが，強ひずみ加工法[9-19]との加工プロセス，組織変化および機械的特性の差異について系統的に議論した報告はほとんど見られない．また，再結晶挙動は強ひずみ加工法[6-10,16]では主に動的連続再結晶[20-21]であるのに対し，加工ー熱処理法では静的不連続再結晶を利用している．つまり，結晶粒微細化法を実用化に適した手法として開発するには強ひずみ加工

法と従来の加工ー熱処理法の差異を理解することが重要である.

そこで本章では, 微細粒生成に必要である再結晶核つまり加工による駆動力(転位密度)の増大を図るために, 加工ー熱処理法として冷間圧延法および極低温圧延と熱処理を組み合わせ微細粒材料の創製が可能か模索したものである. 極低温でのアルミニウム合金の加工は, 材料温度をあらかじめ低温にしておくことで, 加工の際に付与した加工ひずみが熱エネルギーとして開放されることを抑止し, 材料内部の転位密度の増加を意図したものである. 加工プロセスに大きな変更を加えずに, 加工条件および組織変化から微細粒材料創製について検討を行なった.

本章では, 通常の圧延加工よりもより多くのひずみエネルギーを得る手段として, 圧延加工温度を極低温(77K)とした. 本論文で述べている極低温圧延とはあらかじめ試料を液体窒素中に浸漬し, 試料温度を 77K とした後に圧延加工を施すことを指しており, 極低温下で加工を行なうことで材料中に多量のひずみを蓄積した後に急速加熱する方法を用いた. すなわち, 転位密度の増加に伴う駆動力の向上を意図しており, 後の静的不連続再結晶にて微細粒をより得やすい条件を作製することを目的としている.

2.2 実験方法

2.2.1 試料組成および機械的特性

使用した材料はA3004 (Al-Mn 系), A5083 (Al-Mg 系)アルミニウム合金で, 板厚 10mm×板幅 10mm×長さ 40mm の圧延板を用いた. 材料はそれぞれ 623K にて 10.8ks 均質化熱処理を施し供試材とした. その化学組成を Table 2-1 に, また均質加熱処理後の機械的特性を Table 2-2 に, 試料寸法と圧延方向の関係を Fig.2-1 に示す. ここで Fig.2-1 中に示す RD, TD および ND はそれぞれ rolling direction, transverse direction および normal direction を意味している.

Table 2-1 Chemical composition of material. (mass %)

	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Zn	Cr	Ti	Ni	Al
A 3004	0.16	0.48	0.15	1.0	1.2	0.01	0.01	0.01	0.01>	bal.
A 5083	0.08	0.2	0.02	0.5	4.83	0.01	0.06	-	-	bal.

Table 2-2 Mechanical Properties of material.

Material	Yield Stress (MPa)	Tensile Stress (MPa)	Elongation (%)	Vickers Hardness HV
A 3004	130	285	18	52
A 5083	145	293	10	76

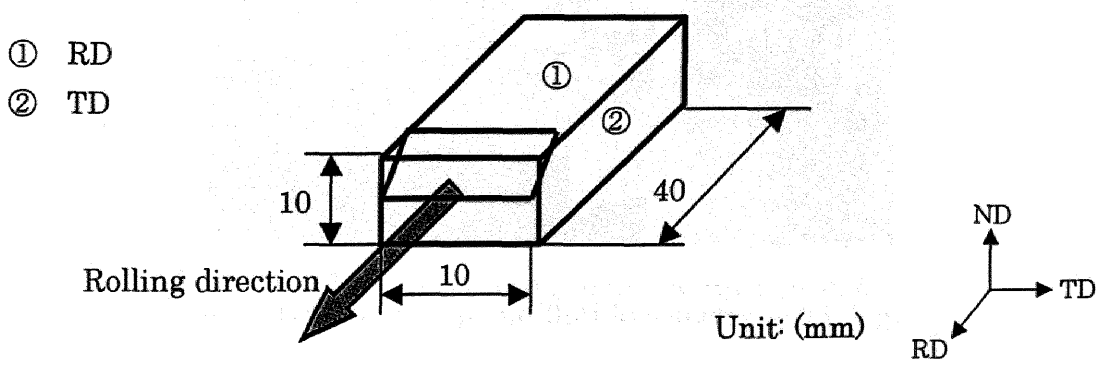


Fig.2-1 Relationship Specimen size and working direction.

2.2.2 圧延加工

圧延加工はロール径 150mm の 2 段圧延機にてロール速度 10.0m/min とし全圧下率 90%，最終板厚 1.0mm まで 10% / 1pass で冷間圧延を行なった．使用圧延機の外観を Fig.2-2 に示す．圧延条件として，通常の圧延加工と比較して材料内に多量のひずみエネルギーを蓄積するために治具を用いた圧延と，比較のため通常の圧延を行なった．治具使用の目的として，上下ロールから受ける力を異ならせ摩擦による強制的なせん断変形を得るためである．圧延温度は極低温（77K）と室温で行ない，極低温圧延は試料を加工毎に液体窒素に浸漬し，圧延開始温度を 77K 一定とした．また室温圧延では加工終了毎，試験片が室温状態になった後に次の加工を施した．このとき，1pass あたりの圧下率は元板厚に対し 10%とした．実験工程の流れを Fig.2-3 に示す．

室温圧延は極低温圧延がどの程度加工ひずみの蓄積に有効であるか調べると同時に，結晶粒径および機械的特性の差異を明らかにするために行なった．圧延加工の模式図を Fig.2-4 に示す．途中，加工率 50%（板厚 5.0mm）において組織制御（析出物・転位固着源の増加）のため低温熱処理を行なった．その温度と時間を Table 2-3 に熱処理工程を Fig.2-5 に示す．

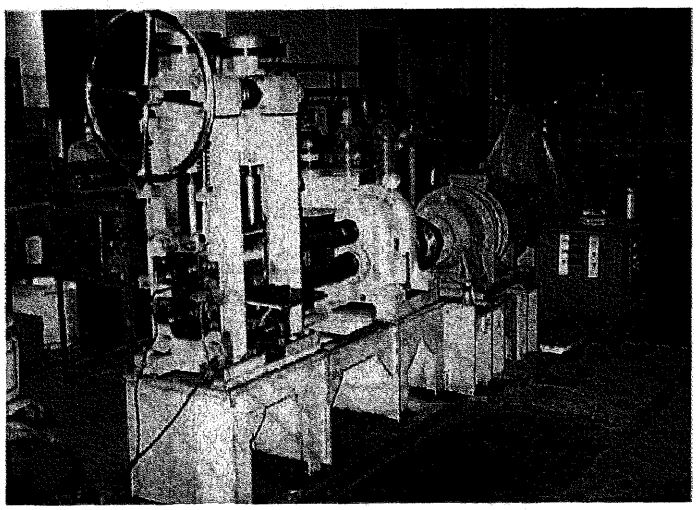


Fig.2-2 Appearance of Rolling equipment (2Hi-mill).

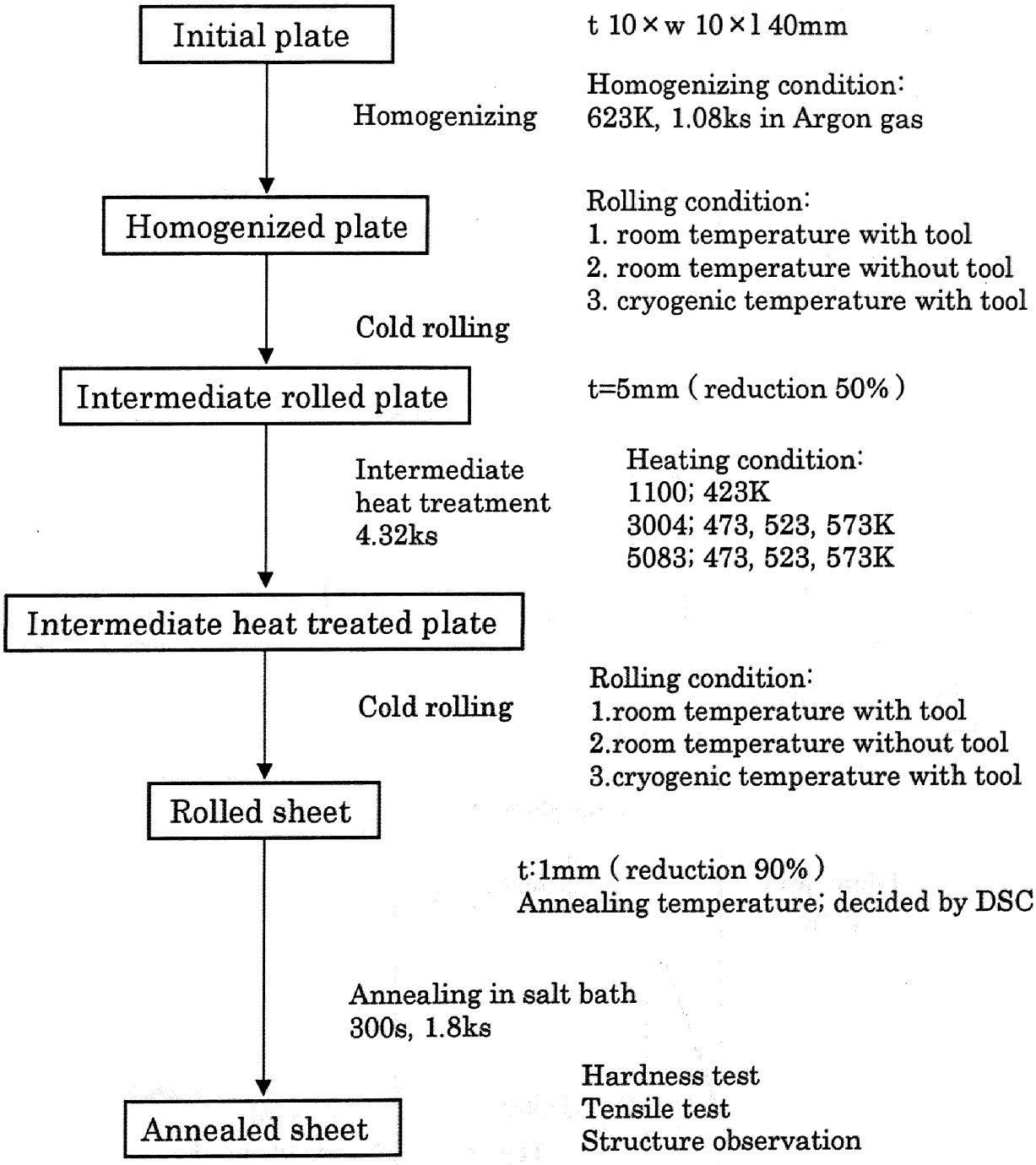


Fig.2-3 The flow chart of an experiment process.

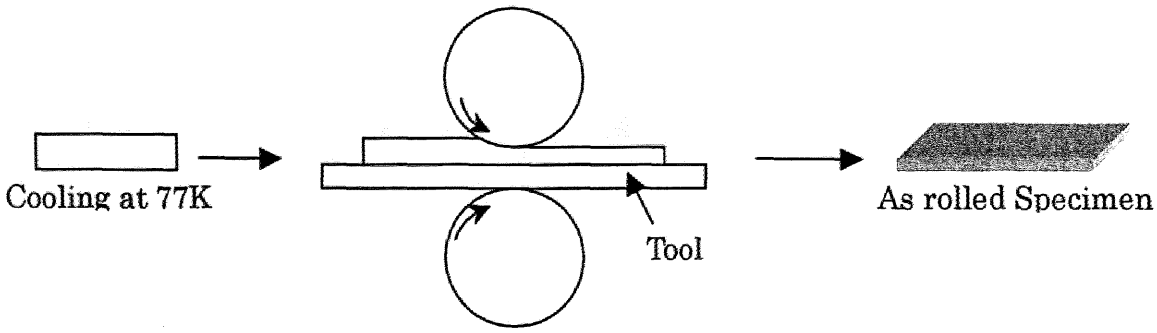


Fig.2-4 Schematic illustration of Cryogenic rolling with tool.

Table2-3 Intermediate heat treatment condition of rolled up 50% specimens.

	Heating condition, T/K		
3004	473	523	573
5083	473	523	573

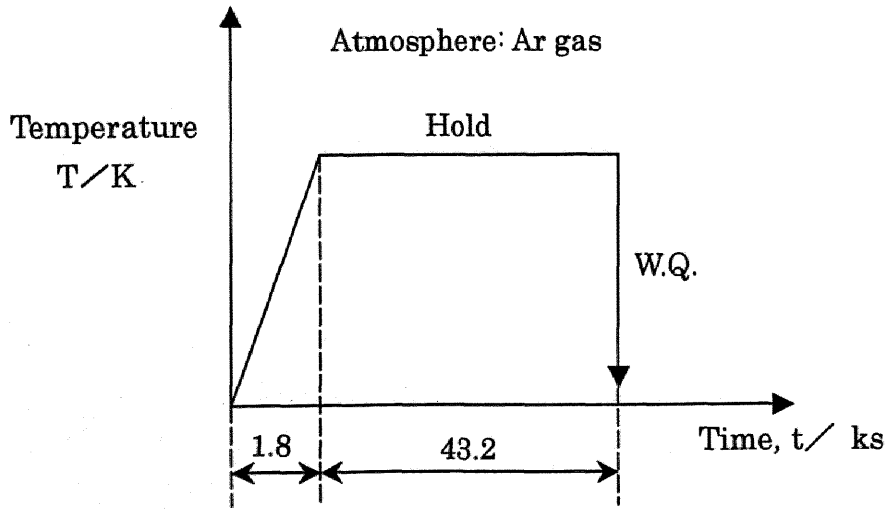


Fig.2-5 Temperature versus annealing time for intermediate heat treatment.

2.2.3 再結晶温度の測定

再結晶温度はDSC(Differential Scanning Calorimeter)(8270型：理学電機)測定により求めた．試料パンはアルミナ製容器を用い，試料重量は約30mg，昇温速度は10K/minとし，示差領域は273～823Kである．測定試料と同量の基準物質として供試材に623Kにて10.8ksの焼なましを施したものを使用した．測定雰囲気は大気と設定し，同条件のもと1検体につき3回の測定を行ない，DSC曲線で最も発熱反応の激しい点を再結晶温度と定めた．圧延加工直後の材料温度と材料内部に蓄積されたエネルギーの関係を明らかにするため，再結晶温度と定めた範囲にて発熱量を測定することで，加工の進展に伴う熱量の変化を測定した．

2.2.4 再結晶処理

DSC測定により求めた温度を基にソルトバスにて急速加熱を行ない，加工により蓄積したひずみ（転位）を一挙に開放する手法を採用した．ソルトバス浸漬時間は300sとしその後，氷水を用いて急冷を行なった．この一連の再結晶処理により材料内部に蓄えられていたひずみエネルギー（駆動力）を開放し，ひずみの無い微細結晶粒を創製した．ソルトバスの組成は，硝酸カリウム50%と硝酸ナトリウム50%を混合したものである．再結晶処理工程をFig.2-6に示す．

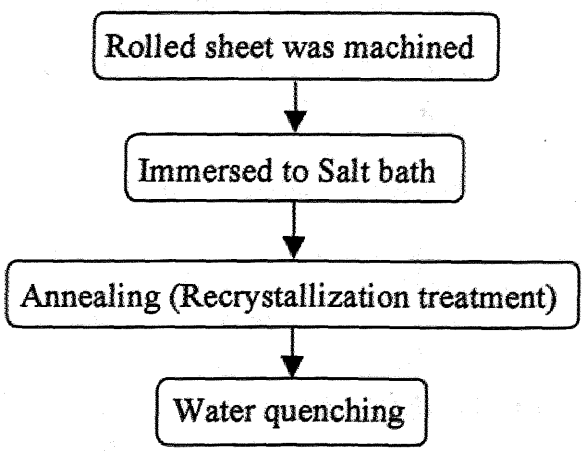


Fig.2-6 Method of recrystallization treatment.

2.2.5 組織観察

結晶粒微細化法により微細になった結晶粒径，およびその結晶方位関係は微細材料が諸特性向上へ及ぼす要因を知る意味で欠かすことの出来ない．そこで，より正確に結晶粒の状態および粒界構造を評価するため三通りの組織評価方法を用いた．これは微細結晶粒の平均結晶粒径，結晶方位算出には未だ決定的な測定法が無く，結晶組織を正確に評価するには内部組織，粒界方位差および結晶粒径を知る必要があるためである[22-25]．

本研究での組織観察は光学顕微鏡，走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)および透過型電子顕微鏡（Transmission Electron Microscope: TEM）にて行ない，結晶方位差はEBSP（Electron Back Scatter Pattern: EBSP）の自動結晶方位解析装置により測定した．

1) 光学顕微鏡

試料を冷間樹脂に埋め込み，観察面（TD面）をエメリー紙にて#400から#2000番まで順に研磨し，粒径0.3μmのアルミナ研磨剤を使用しバフ研磨にて鏡面仕上げにした．試料作成工程をFig.2-7に示す．この試料を電解腐食にてエッチングしたものを観察試料とした．電解腐食液は蒸留水 180cc，ホウ酸 8g，フッ化水素酸 15cc の溶液で，陽極に試料を，陰極に純度 99.99%の純アルミニウムを用い 35V にて約 45 s 行なった．電解研磨法の概略図を Fig.2-8 に示す．

光学顕微鏡にて観察した組織に切片法（ASTM　E112 - 60T）[22]を適用し，平均結晶粒径を算出した．用いた切片法の定義とその式を以下に示す．このとき測定対象とした結晶粒の数は最低200個である．切片法では対象となる試料断面に全長 L の何本かの直線を引き，この直線が横切った結晶粒の数 n_Lを求める．直線の端がその内部にある結晶粒は(1/2)個と数える．

この n_Lの値より式(2.1)を用いて平均結晶粒度$\bar{l}$を算出する．

$$\bar{l} = \frac{L}{n_L} \qquad (2.1)$$

直線が必ずしも結晶粒の中央部を横切らないため，切片長さが結晶粒径と比べて小さい値を与えると考えられる．そこで，式(2.2)を用い円換算に修正し平均結晶粒径を算出する．

$$D = \frac{\sqrt{(4/\pi)}}{\bar{l}} = 1.13\bar{l} \qquad (2.2)$$

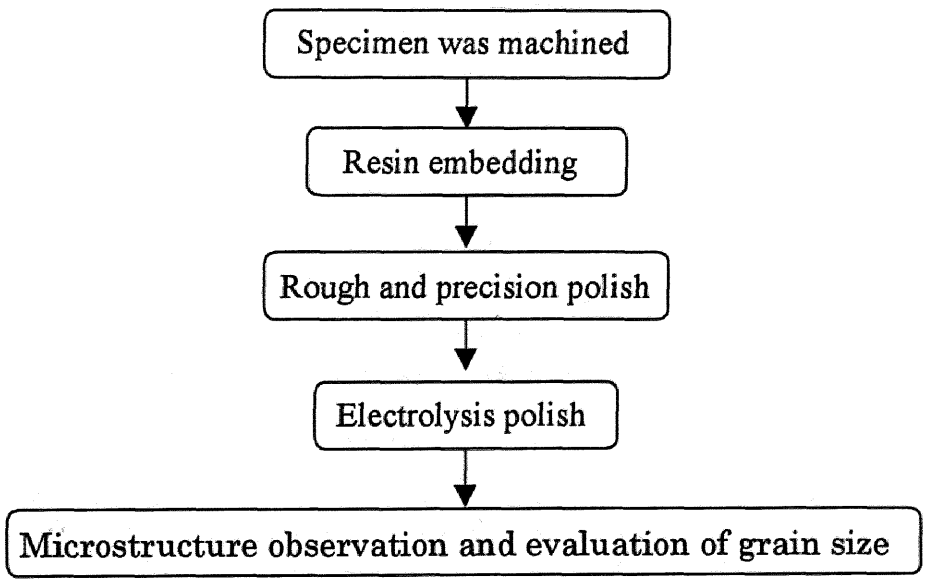


Fig.2-7 Method of surface treatment and evaluation of microstructure.

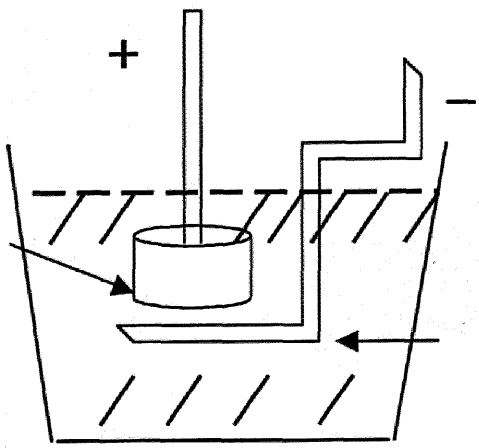


Fig.2-8 Schematic illustration of electrolytic cell and polishing.

2) 走査型電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)観察

引張試験後の試験片表面および破断面観察は SEM(JSM-6300: 日本電子製)および FE-SEM(S4700: 日立製)を用いた. FE-SEM とは Field Emission Scanning Electron Microscope(電界放射型走査顕微鏡)の略である. 通常の SEM は W フィラメントを使用しているのに対し, FE-SEM は冷陰極電界放出型電子銃を使用している. そのため, 通常の SEM は主に粗大粒材料の組織観察に使用した. 一方, FE-SEM はその高分解能性より微細粒材料の組織観察に使用した. FE-SEM には高分解能・高解像度という利点があり, さらには通常の SEM に比べ焦点深度が深いため粒界すべりを起こした面や凹凸を伴う破断面観察には最適である. 特に空隙の形成および粒界すべりや粒内変形に伴う結晶粒内部での湾曲模様を捉えやすい.

本研究では SEM 観察を行なうに際し, 予め試験片観察面をエメリー紙による研磨とバフ研磨により鏡面としている. これは, 後述するがひずみ誘起により粒界および結晶粒が試験後の腐食なし観察できる利点がある. Fig.2-9 に FE-SEM の外観像を示す.

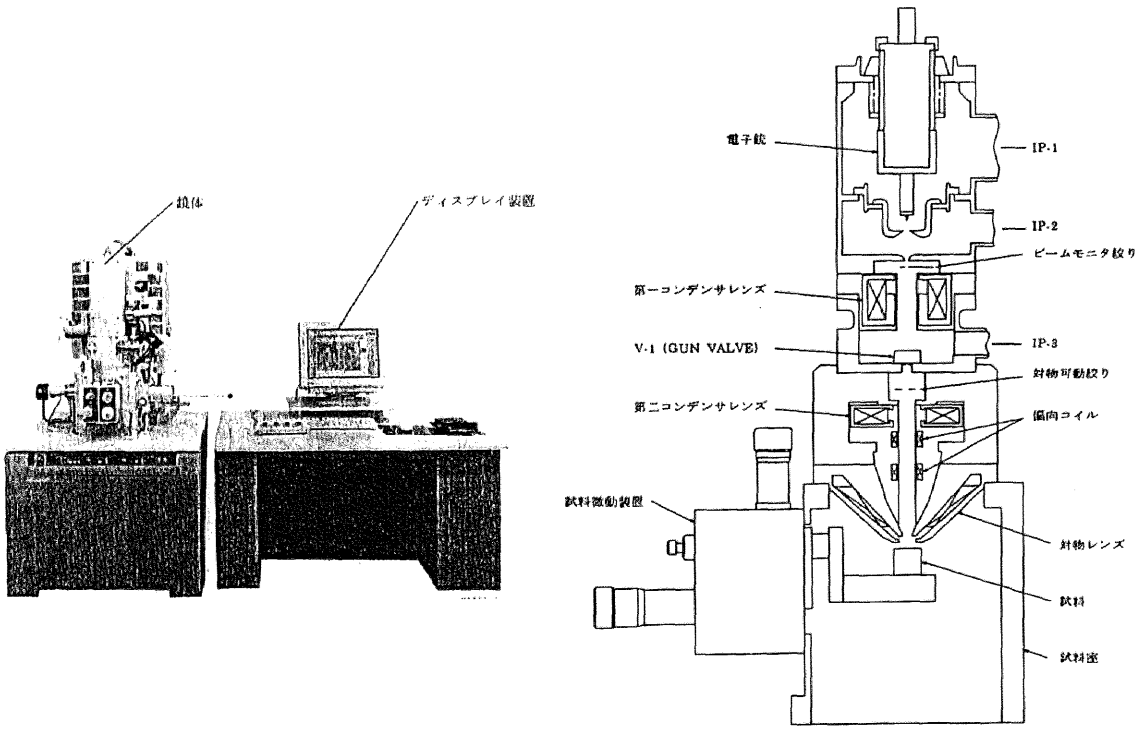
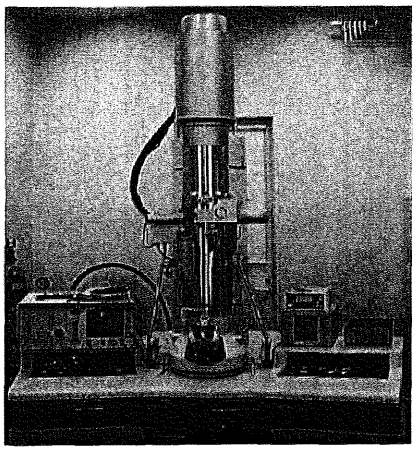


Fig.2-9 The appearance image of FE-SEM equipment.

3) 透過型電子顕微鏡(Transmission Electron Microscope：TEM)観察

TEM(H－9000：日立製)による組織観察は加速電圧 300 k V にて，制限視野を約 2μm と設定して行なった．TEM は光学顕微鏡と異なり材料の内部構造を詳細に把握できる利点があり，これにより転位の状態や粒界構造、結晶粒の形状など得られる情報は膨大である．しかし，TEM 観察に用いる試料は観察範囲が限られており広範囲の観察は不可能で，材料内に導入したひずみの不均一性や再結晶時の混粒などがある場合，観察する検体数を増やす必要がある．

本研究ではバルク材料を用いているため，TEM 用の試料作成にはまずファインカッターにより板厚 0.5mm 以下の薄片に切断した後，観察する面の両側を粗研磨・精密研磨の順で行ない鏡面仕上げとした．この段階で板厚は約 30μm 程度とした後にφ3.0mm の円形に打ち抜き，イオンミリング（E－300 型：日立製）を用いてイオン衝撃により試料を薄膜とし観察試料とした．Fig.2-10(a)に透過電子顕微鏡を，(b)にイオンミリング外観像を示す．



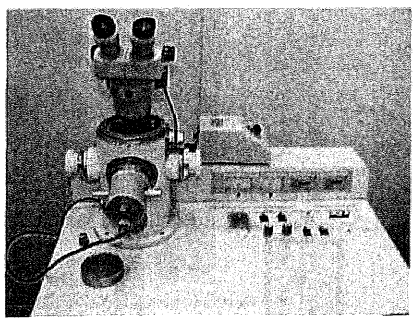


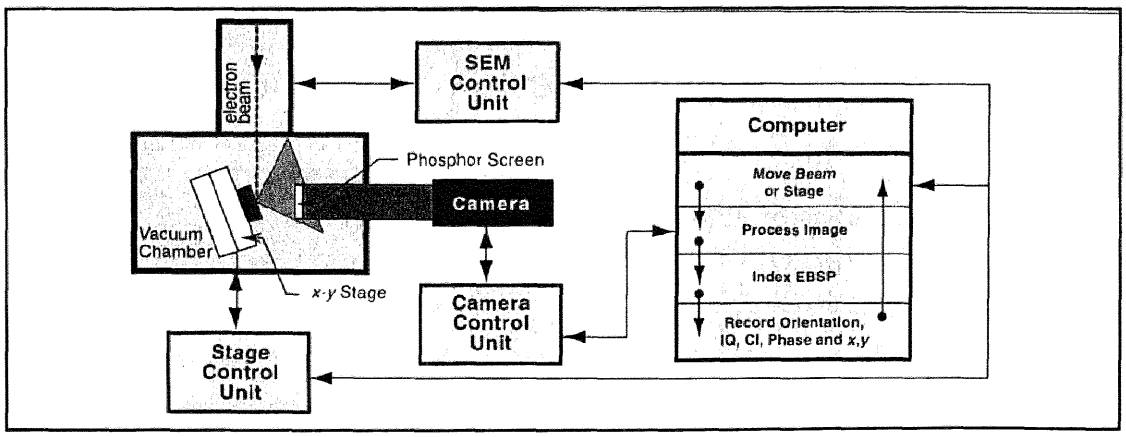
Fig.2-10 Appearance of Transmission Electric Microscope (TEM) and Ion-milling equipment.

4) EBSP 法(Electron Back-Scatter Diffraction Pattern)による結晶方位解析

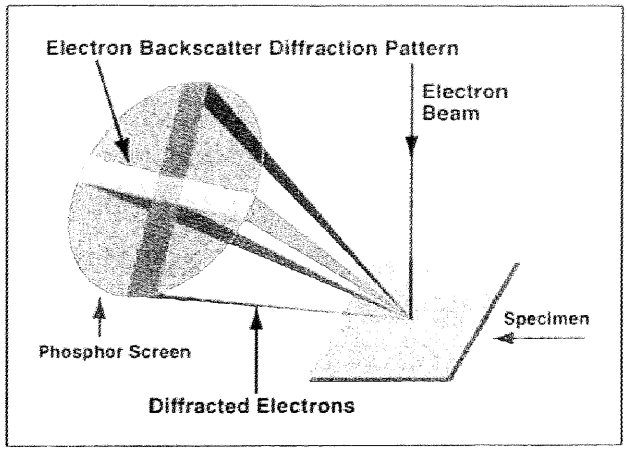
EBSP 法とは，TEM で観察される菊池線の発生原理と同一である．EBSP すなわち反射電子によって得られる菊池線は，本来の菊池線と区別する意味で，最初は Kikuchi Diffraction (BKD) と名付けられ現在に至る[23-25].

創製した微細結晶粒材料を TSL 社の OIM 自動解析システムに基づいた EBSP 測定にて，スキャンポイントを 0.2μm とし高分解能で解析するため FE-SEM を用いた．測定領域は解析試料の最小結晶粒径を参考に，結晶粒が 100 個以上測定できるよう設定した．また，スキャンポイントは TEM 観察により得た結晶粒径を参考にし定めた．測定項目は，平均結晶粒の算出，粒界マップ，TD 面（圧延方向に対し水平な面）観察における RD と ND 方向の結晶方位，測定領域に対する結晶粒径の分布と，傾角分布，傾角を変化させたときの平均結晶粒径そして極点図である．この方法は，上述した光顕写真，TEM とは異なり，バルク材のまま一度に観察面の数百個の結晶粒を解析すると同時に，光顕組織では不明なサブグレインの頻度や位置をマップとして見ることが可能である．

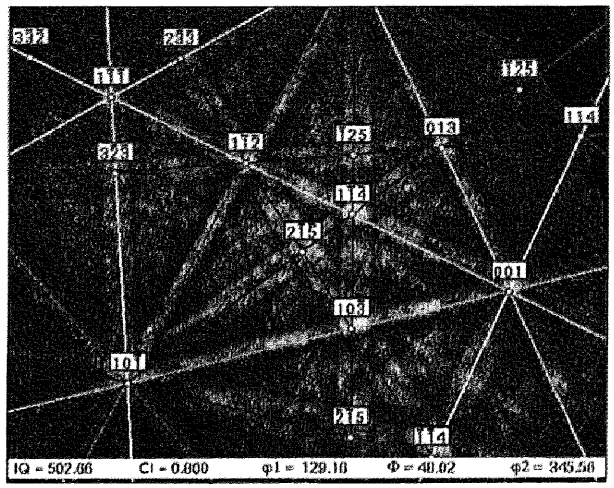
Fig.2-11(a)に EBSP 解析におけるハードウェア処理の概略図を，Fig.2-11(b)に EBSP 解析の模式図を示し，更に実際の解析にいて得られる菊池線から算出した複数バンドと指数付けを示したものを Fig.2-11(c)に示す．



(a) OIM hardware configuration.



(b) Schematic of electron backscatter diffraction (EBSP).



(c) Indexed of EBSP.

Fig.2-11 Explanation of EBSP analysis equipment.

2.2.6 機械的特性試験

結晶粒微細化法により作製した試料の機械的特性を調べるため，引張試験による降伏応力，引張強さおよび破断伸び値の算出，更に試料に蓄積されたひずみエネルギー量と軟化状態の把握の目安としてマイクロビッカース硬さ試験を行なった．

硬さ試験はマイクロビッカースを用い荷重 300 g，押し込み時間 30 s とした．ビッカース硬さを求めるにあたり，試料縦断面にて厚さ方向に 0.25mm づつ 3 点を取り，試料長手方向（圧延方向）に等間隔で 9 点測定し合計 27 点とした．その後，値の最大値と最小値を省略し実際の値は 25 点で求めた．ビッカース硬さ HV を式(2.3)で求めた．ここで，P は押し込み荷重を，d は圧痕のくぼみ平均対角線長さを示している．

$$HV = \frac{1.854P}{d^2} \qquad (2.3)$$

引張試験は板厚 1mm，板幅 5mm，長さ 16mm の平行部寸法を有する小型引張試験片を用い初期ひずみ速度 $5.2\times10^{-4}\ \mathrm{s}^{-1}$ でインストロン型オートグラフを用いて行なった．引張強さ，降伏応力および破断伸びを算出した．破断伸びは破断後に標点間の平行グリッド間 l_0 の伸び Δl を計測して求めた．試験片の引張方向は圧延方向に平行である．以下に真ひずみ ε_T と真応力 σ_T の算出法を記す．ここで，ε_n は公称ひずみである．

$$\varepsilon_T = \log_n\left(\frac{l_0 + \Delta l}{l_0}\right) = \log_n(1+\varepsilon_n) \qquad (2.4)$$

$$\sigma_T = \frac{P}{A} = \frac{Pl}{A_0 P_0} = \sigma_n(1+\varepsilon_n) \qquad (2.5)$$

2.3 実験結果

2.3.1 せん断ひずみ付与圧延

試料へより多くのひずみを蓄積させ再結晶への駆動力を増加するには，加工熱以外の入熱を極力抑止することが挙げられる[10,18,26]．そのためには材料温度，あるいは加工時の温度をより低温側へ冷却することが有効であり，本研究ではこれら条件を満たすべく 77K にて圧延加工を施した．また，Fig.2-4 に示したように治具を用いて無潤滑下において試料を圧延することで，試料に付与される摩擦抵抗を高くし，より大きなせん断ひずみを試料に導入しようとした．

その結果，加工材において Fig.2-12 に示すように室温圧延材(a)ではせん断帯[27]発生による波状のマクロ繊維組織が見られるが，極低温圧延材(b)ではせん断帯は見られず，一様な繊維組織となっていた．しかしながら，後述する機械的特性からも明らかであるように主目的であるせん断変形付与への治具の効果は見られなかった．加工中に圧下することは可能であるが，極低温圧延では治具と試料間に付着氷ができ，これが潤滑材の役割を果たすことで圧延機に噛み込ませる際に試料がスリップしたためである．後述する硬さ試験結果 Fig.2-14 で示すように治具の有無では硬さの差は見られず，圧延に採用した極低温(77K)も室温加工材と比べ大差が無かった．

Fig.2-13 に示すようにせん断帯の発生は室温圧延材のほうが極低温圧延材に比べその頻度も高く組織が波状に湾曲していることからも明らかである．しかしながら Fig.2-14 に示した TEM 組織からでは両材において明確な差異は認められないものの Fig.2-14(b)に示す極低温圧延材の内部組織では室温圧延材に比べ伸長した結晶粒内および粒界への転位の集積と堆積が大きいことがわかる．また，亜結晶組織を形成し始めていることからも後の微細粒形成のための核生成サイトの頻度は極低温材の方が高いように見える．しかしながら，室温圧延材の内部組織を示した Fig.2-13(a)においては(b)に比べ転位の蓄積度合いは少ないものの伸長粒内部に既に亜結晶粒を形成しており，全体的に転位が回復によって消滅したか，あるいは粒界に吸収されたような組織形態である．これは，圧延加工中に材料内部への入熱が極低温圧延材よりも大きく作用し，回復現象を引き起こした結果であると推測される．

本章において微細結晶粒を得る手法には静的不連続再結晶，すなわち加工後の熱処理を利用しているため，この時点において転位が存在しない室温圧延材では粒界の方位増進は起きると考えられるが，核生成サイトの基となる転位密度が低下しているため微細結晶粒の形成は望めないと考えられる．他方，極低

温圧延材においても局所的には既に亜結晶粒界や転位セル壁を形成しているため[9,14,20]，蓄積した転位が一部回復していることは明確である．加工終了後の加工材においてこのような結果となったことは後述するが，圧延材の板厚が薄くなるにつれ材料への入熱が激しくなり，内部組織を回復させたことに起因する．

材料中の転位密度を著しく高めるために行なった極低温圧延においても材料へ入熱する傾向は高く，組織が回復してしまうが局所的に微細な亜結晶粒の形成が見られた．つまり，加工変形中に起こる組織の回復すなわち動的回復現象を利用することで微細な結晶粒が得られることを示唆する結果である．ただし，動的現象を利用する場合においても導入された転位により亜粒界や低角粒界が生成されるため転位の導入は行なわなければならず，加工温度および板厚変化に伴う材料への入熱の関係を明らかにする必要がある．これらが解明されることにより，圧延加工のみでも微細結晶粒の創製は十分可能なものと考えられる．

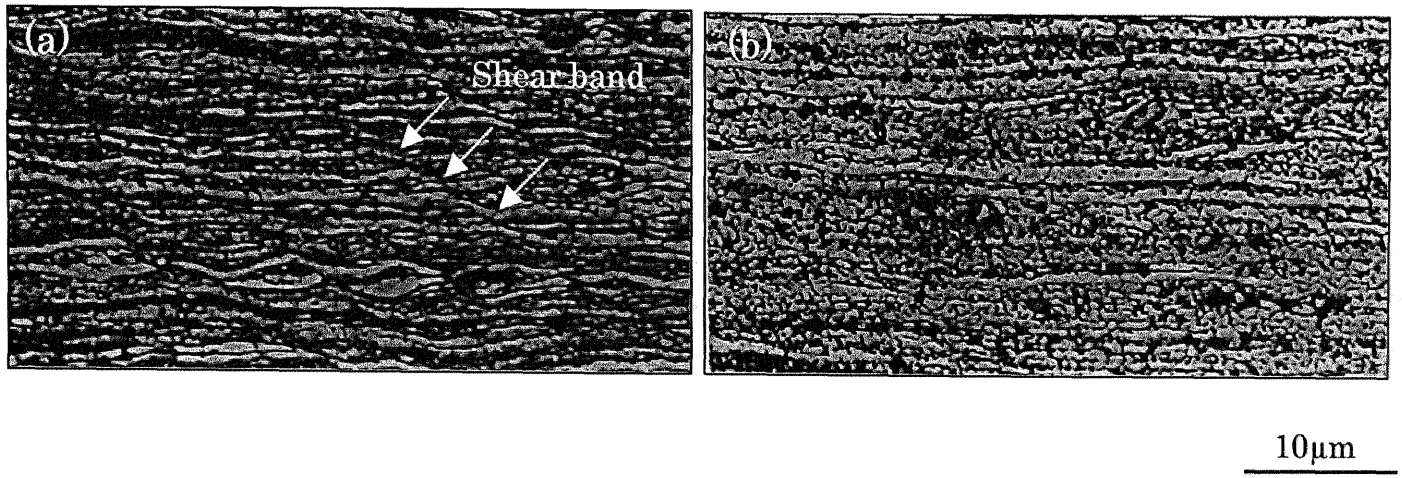


Fig.2-12 Microstructure in longitudinal section of 5083-rolled sheet (1mm, thick)
(a) Room temperature rolling with tool and (b) Cryogenic temperature rolling with tool.

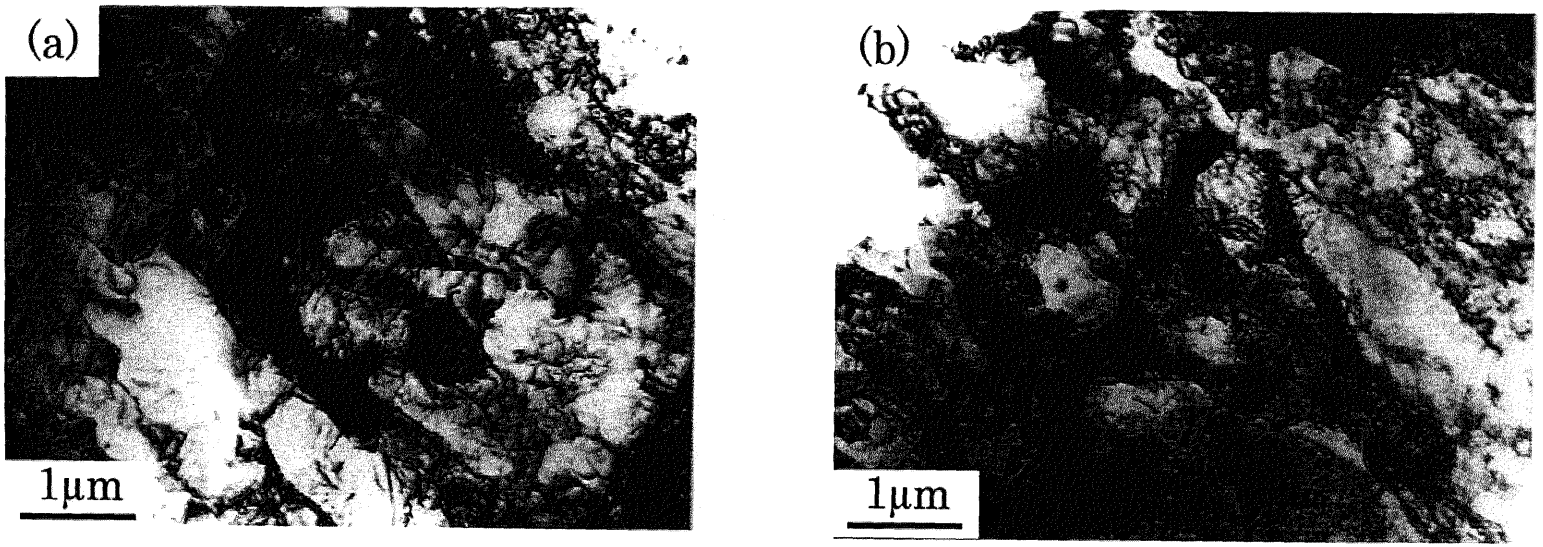
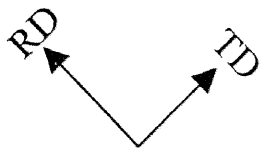


Fig.2-13 TEM microstructure in longitudinal section of 5083-rolled sheet (1mm, thick)
(a) Room temperature rolling with tool and (b) Cryogenic temperature rolling with tool.



2.3.2 中間低温熱処理の効果

冷間圧延と再結晶処理の間にTable2-3に示すような低温での中間熱処理により，圧延加工により蓄積させたひずみの一部を回復させることで，転位を再配列させ静的再結晶法に有利とされ[6,10,28]，微細結晶粒を得るために必要な転位セル壁を最終加工材にて多数形成させることを目的とした．しかし，Table2-4に示す板厚1.0mmの圧延板におけるDSC分析結果およびFig.2-14に示す硬さ試験結果においても差は認められなかった．

一方，Table2-4の結果より室温圧延では治具の有無に関わらず再結晶温度はA3004合金では591Kであり，治具の効果はないことが明らかである．また，極低温圧延材（治具有り）の再結晶温度はA3004合金では579Kと室温圧延材に比べ若干低い値を示した．Fig.2-13に示したTEM組織からも圧延加工中における入熱により組織の回復が起きることを示したが，加えて中間低温熱処理の際に蓄積された一部のひずみ（転位）が再配列し，セル壁もしくは亜粒界を形成したため，後の再結晶処理ではさほど熱エネルギーを必要としなくなり，再結晶温度が低い値を示したと推察できる．

A5083合金においてはどの加工法においても再結晶温度は563Kであった．A3004合金，A5083合金で再結晶温度が加工法により異なる原因としてMgの固溶が考えられ[29-30]，A5083合金は室温圧延および極低温圧延のどちらの加工法においても加工硬化は同程度であり，加工温度が室温および低温のどちらの場合も差が無い．

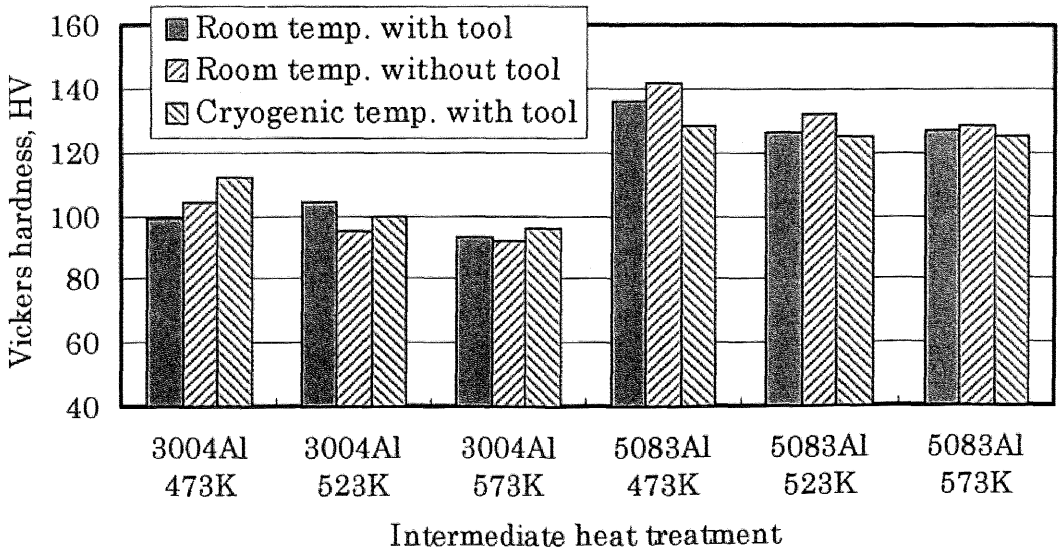
Table2-4 Recrystallization temperature decided by DSC analysis.
R.T.: Room temperature, Cryo.T: Cryogenic temperature.

Material	Intermediate heat treatment temp. [K]	Recrystallization temperature [K]		
		R.T. with tool	R.T. without tool	Cryo.Temp. with tool
3004	473	591	591	579
	523	591	591	579
	573	591	591	579
5083	473	563	563	563

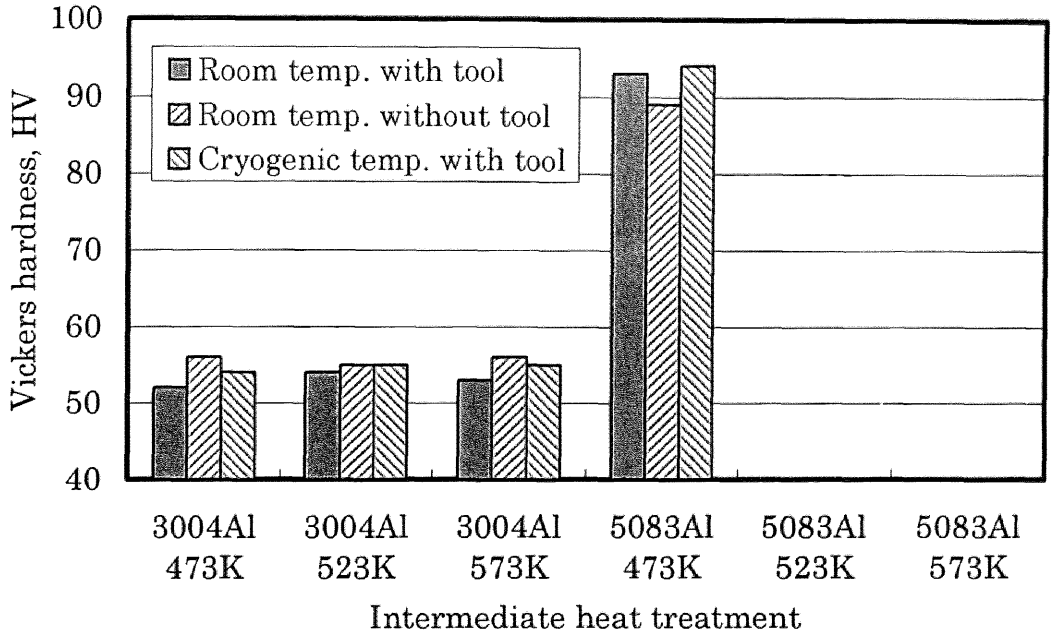
2.3.3 圧延材および焼なまし材の硬さと組織

A3004 合金および A5083 合金で中間低温熱処理の異なる室温圧延材（治具有り・無し），極低温圧延材（治具有り）の硬さ，およびそれらの熱処理材の硬さは Fig.2-14(a)，(b)，(c)に示すようになる．ここでの熱処理温度は DSC 分析での発熱反応により求めた温度で A3004 合金は 591K，A5083 合金は 563K を示し，それぞれ 300s にて 1.8ks 焼なましを行なった．お互いの差は極めて少ないが，強いていえば A3004 合金では加工材および熱処理材とも極低温圧延材の方が硬化しており，A5083 合金では加工材および熱処理材とも極低温圧延材の方が硬さは低くなっている．

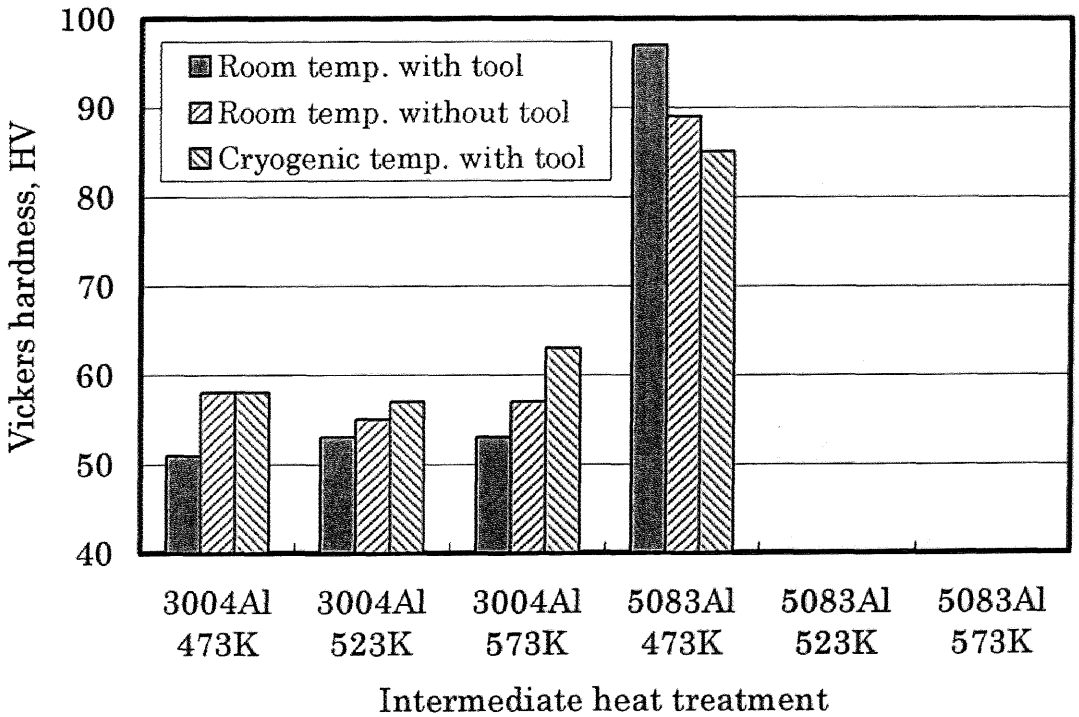
また，Fig.2-15 に A5083 合金中間熱処理 473K の室温圧延材（治具有り）と極低温圧延材（治具有り）を最終圧下率 90%（板厚 1.0mm）まで加工したものを 563K にて再結晶処理させた光顕組織を示す．観察面は縦断面（TD 面）である．光顕組織からもわかるが，圧延加工のみによる低いひずみエネルギー蓄積では結晶粒を微細にすることは困難である．圧延加工では加工前の板厚が定められてしまうため，板厚を大きくするか，圧延加工前に前加工を付与する必要がある [18,28]．ただし，Fig.2-16 に示すようにせん断変形を強く受ける表層部では結晶粒径は目標とした 3.0μm 程度まで微細化されており，ひずみエネルギーの大幅な蓄積は結晶粒微細化に有効であるといえる．Fig.2-15 および Fig.2-16 の光顕組織より切片法を用いて算出した平均結晶粒径は 6.0μm であり，圧延温度による結晶粒径の際は認められなかった．



(a) Vickers hardness of rolled sheet.



(b) Vickers hardness of annealed sheet (300s).



(c) Vickers hardness of annealed sheet (1.8ks).

Fig.2-14 Vickers hardness of various work condition and various temperatures.

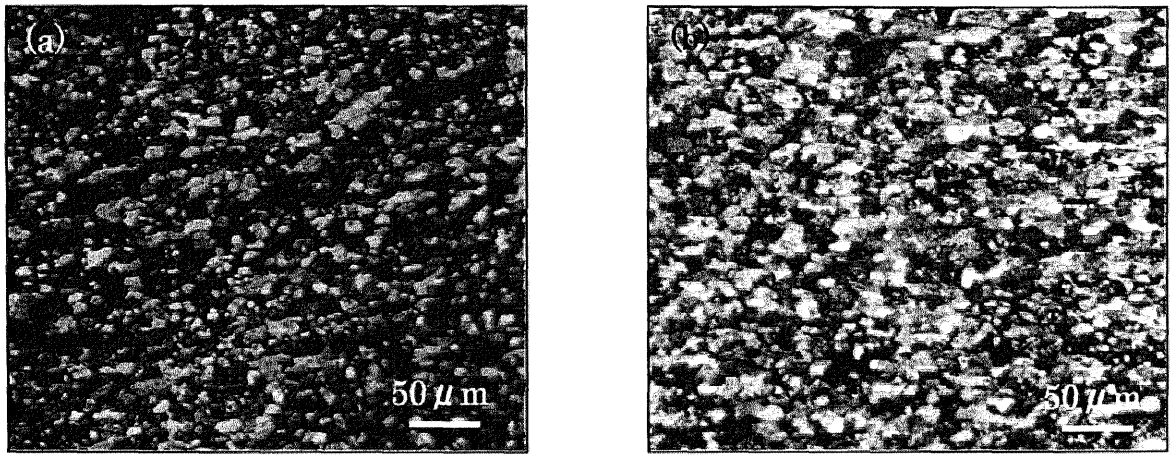


Fig.2-15 Microstructure of 5083Al sheet annealed at 563K in 300s (Intermediate heat temp. of 473K) (a) Room temperature rolling with tool, (b) Cryogenic temperature rolling with tool.

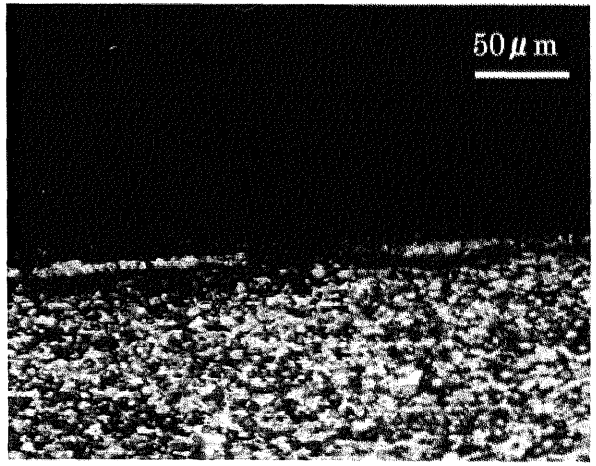


Fig.2-16 Microstructure of surface layer in longitudinal section of 5083 sheet annealed at 563K in 300s.

2.3.4 機械的特性の評価

Fig.2-4 に示した 2 段圧延機により供試材を 1pass あたり圧下率 10%にて板厚 10.0mm から最終的に 1.0mm まで圧延を行なった．このときの全圧下率は 90%である．一例として，加工材と 563K，300s 急速加熱により再結晶させた A5083 合金の引張試験結果を Table 2-5 に示す．加工後で引張強さは 452MPa，降伏応力は 452MPa となり破断伸びはほとんど無い．供試材に比べ引張強さは 1.6 倍，降伏応力は 3.1 倍の上昇を示している．これを再結晶処理した場合，引張強さと降伏応力はそれぞれ 304MPa および 153MPa となり破断伸びは 18%まで回復した．供試材時と比較しても，これら再結晶処理材の機械的特性はほとんど同一である．加工材時点で引張強さが 1.5 倍しか向上していないため蓄積したひずみ量が非常に小さいことは明らかである．また、Fig.2-15 および Fig.2-16 からも結晶粒径は約 6μm まで微細化できたものの機械的特性の向上には至らず，サブミクロンオーダーにまで結晶粒を微細化しなければ機械的特性の飛躍的向上は望めないと考えられる [16,20,30]．

Table2-5 Mechanical properties of 5083Al at various conditions.
(a) Room temperature with tool, (b) Cryogenic temperature with tool.

(a)	Tensile strength (MPa)	Yield stress(MPa)	Elongation(%)
As rolled	452	452	—
Recrystallized	304	153	18

(b)	Tensile strength (MPa)	Yield stress(MPa)	Elongation(%)
As rolled	462	462	—
Recrystallized	305	155	19

2.4 考察

2.4.1 圧延加工によるせん断変形付与

圧延によりせん断変形付与を付与した場合，Fig.2-15 および Fig.2-16 から明らかであるが，ロールと試料の接触面にせん断変形が強く起こるため[9-10]，蓄積されるひずみは試料表層部が大きくなり，内部への蓄積は特に板厚が厚い場合には不可能である．模式図化したものを Fig.2-17 に示し，Table2-6 に加工ひずみ蓄積量に及ぼす圧延条件の影響を示す．圧延 1pass では表層にせん断変形が蓄積され，2pass 以降は蓄積された同一箇所に上塗りのようにひずみが蓄積されていく．加工率が増加し薄板になると圧下力が増大しひずみは均一に導入されるが，薄板になる以前に表層部に蓄積されたひずみは非常に強いものになる[9-10,26,28]．この結果，試料端部では微細結晶粒を形成するものの内部では粗大結晶粒を形成に至ったと考えられる．

転位の回復を抑えひずみの蓄積量を増大させ，さらに再結晶時の駆動力を増加させることにより核発生サイトを増やすため極低温下での圧延も試みたが Fig.2-12 に示したように組織均一加工には効果がある反面，Fig.2-14 および Table2-5 に示した機械的特性向上へは効果を示さなかった．

また，異方向圧延[31]と称し室温および極低温で圧延加工による結晶粒微細化が行なわれており，やはり表層部に強いせん断ひずみが導入されたため再結晶処理後では加工面の結晶粒が微細になると報告されている．特殊加工法とされる ARB[14-15]においてはこの傾向を上手く利用し，Fig.1-5(c)に示すように圧延後試料を切断，重ね合わせをすることで試料内部にひずみを導入している．圧延加工において試料内部までひずみを導入するには，1Pass 当りの圧下量を大きな値とし，薄板であることが望ましいが，上述した ARB などのように工夫をすることで解決できる問題でもある．

本研究においては，バルク材を使用し圧延加工のみで微細結晶粒を形成させることを目的としたため，圧延加工法を大幅に変更することはなかった．その結果，結晶粒を 6μm 程度まで微細化することは可能であるものの，この程度の結晶粒サイズでは機械的特性の向上に効果は無かった．加えて，試料表層部のみが微細な結晶粒を生成した要因として Fig.2-17(a)を 1pass 目とすると，塑性加工によるひずみは内部まで届かず表層部に留まり，(b)を 2pass 目とすると，1pass の加工により表層部に蓄積されたせん断変形へ上塗りのような形で蓄積される．さらに加工を進め，数 Pass 後の試料の様子を(c)と仮定すると，板厚を非常に薄くしなければ内部までせん断変形は届き難い．その結果，これまでの

加工により表層部にはかなり大きなせん断変形が蓄積されるため，再結晶処理をしたときに材料表層部と中心部にて結晶粒の混粒を引き起こしたものと考えられる．

Table2-6 Effect of rolling condition at increment of stored strain energy.

出側材料温度	高	→	低
圧下率	高	→	低
ロール径	大	→	小
ロール速度	高	→	速

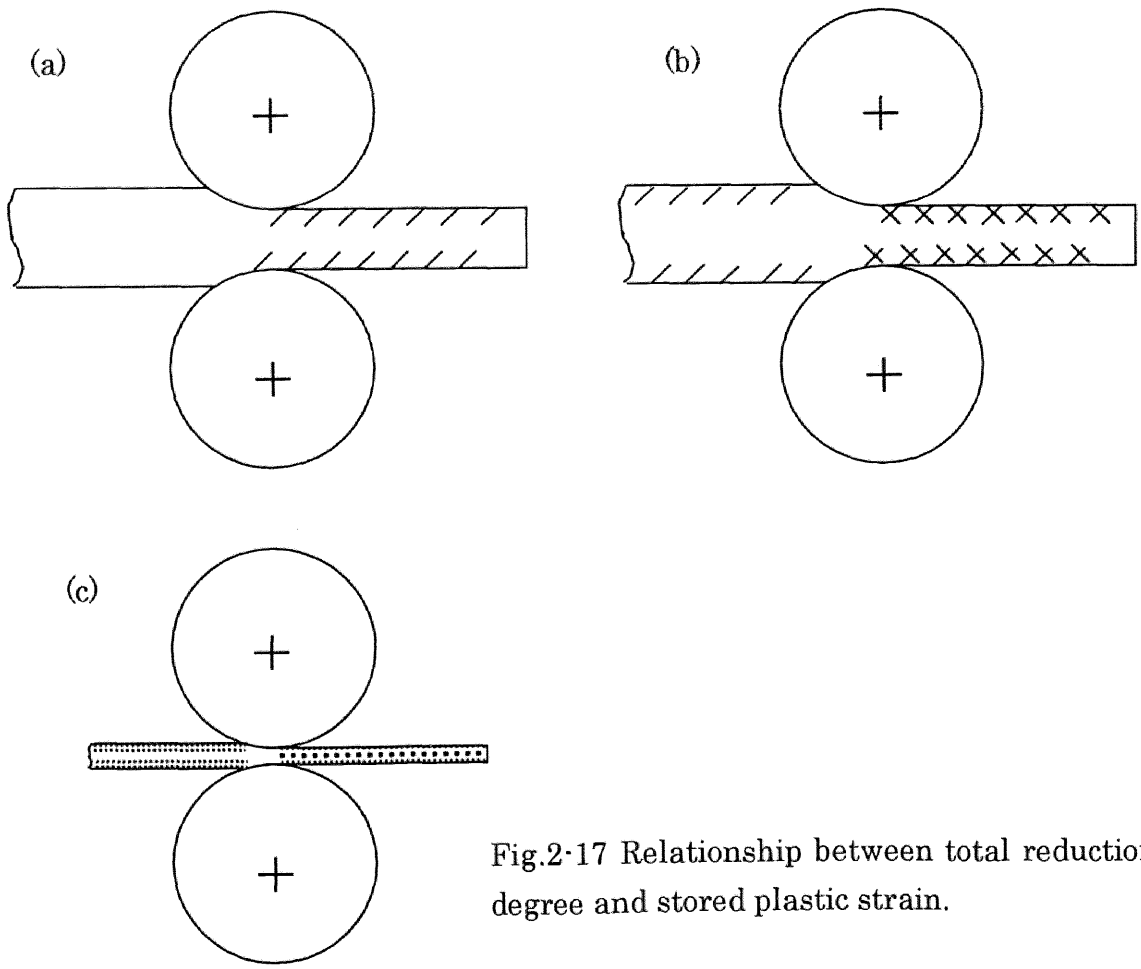


Fig.2-17 Relationship between total reduction degree and stored plastic strain.

2.4.2 微細結晶粒と機械的特性

圧延加工のみによる結晶粒微細化法では結晶粒径は 6.0μm 程度まで微細にすることは可能であるが，Fig.2-15 および Fig.2-16 のように内部混粒が激しくまた，蓄積されたひずみ量の目安として用いた硬さも Fig.2-14 に示すように低い値であった．Table2-5 に示した引張試験結果も再結晶処理を行なうと，供試材と同等の値となり引張強さおよび降伏応力は向上しなかった．これらの結果より結晶粒を 6.0μm 程度に微細化しても機械的特性はほとんど同一の値を取り，さらなる微細化が必要なことを示唆した．

ここで，注意しなければならないのが材料内部に蓄積されたひずみ（転位）は一概に硬さで表すことは不可能であり，硬化および軟化傾向の指針として用いる必要がある．材料内部のひずみ（転位）導入度合いを知る方法として TEM による組織観察が挙げられ，今後内部組織の動向を詳細に調べることが必要である．

Hall-Petch の関係式にしたがうならば当然の如く，結晶粒径が微細になればその影響が現れるのは降伏応力であり，逆に降伏応力が向上するならば微細結晶粒が形成あるいは材料が加工硬化することで内部に密度の高い転位組織を形成するはずである [6-9,16,18]．よって実験方法として試料に対し負荷と除荷を繰り返し行ない，降伏応力を向上させることが考えられる [17,20,30]．このとき，繰り返し数を増加させるための試験温度条件は温間域が有効であると考えられる．何故なら試料を加工硬化させずに，蓄積したひずみを常にサブグレインあるいは亜結晶粒に転化できる可能性が高いためである．一方で，駆動力に頼る方法であるならば冷間加工にて試験を行なうことが有効であり再結晶温度と熱処理時間さらに冷却速度の検討が必要である．

本研究においては，供試材寸法が基板厚 10mm で最終板厚を 1mm としているために加工率を稼ぐには厳しい条件下であり，目標値には達しなかったが圧延加工のみによる結晶粒微細化は必ずしも不可能ではない．幾つかの圧延加工を用いた結晶粒微細化法を以下に記載する．ただし，以下に示す結晶粒微細化法は実工程への適応は一般的に困難と考えられている．そのため，これまで示してきたように板厚が 10mm 程度の試料を圧延した場合でも加工条件の改善と動的回復および再結晶現象を利用することで微細結晶粒の創製は可能であると思われる．

1）元板厚を大きくし，トータル加工率を稼ぐ大圧下圧延 [28]
2）上下ロール速度を変化させ強制せん断ひずみを導入する異周速圧延 [19]
3）繰り返し重ね接合圧延（ARB）[14-15]

2.4.3 静的再結晶における結晶粒微細化機構

本章における圧延加工後に熱処理により再結晶処理を行なうことを一般的に静的不連続再結晶と称している[6-7,21]．これは，第1章でも述べたが結晶粒内の転位密度を加工により導入されるひずみを利用し増加させ，不連続再結晶に必要な核生成サイトの形成と駆動力の向上により微細結晶粒を得る手法である．Fig.2-18 にモデル化したものを示す．(a)のような初期結晶粒があるとき圧延加工により(b)に示すように転位は粒内，あるいは粒界に集積および堆積する．駆動力の理論から考えるならば，このとき粒内の転位密度が高いほど後に得る結晶粒は微細なものとなる[6-7]．次に熱処理を施すことにより(c)に示すように幾つかの転位は新粒界形成のために消滅し，残りは核形成サイトとして作用することになる．その後浸漬時間の経過とともに粒界方位差は次第に高角化し(a)に示した初期結晶粒径を分断するような形にて粒界が形成され結晶粒は微細化する．

ところが，圧延加工において板厚が薄くなるに伴い加工による試料への入熱が激しくなったため，加工により導入された転位は蓄積されずに回復現象を引き起こす．加工中に起きる回復現象を動的回復と称しているがこれが作用することで内部転位密度は減少し，亜結晶粒あるいは低角粒界を形成し始める．このとき，Fig.2-19 に示す模式図より①は高角粒界に囲まれた結晶粒であり②と③は低角粒界を有した結晶方位差がまだ十分にない結晶粒を表している．ここで重要なのは，低角粒界は核生成サイトとしての役割は果たせない[20-21,32]ということである．つまり，回復現象が起こる結果として低角粒界または亜粒界が生成されるならば必然的に微細結晶粒を得るのに必要な核生成サイトは減少することになる．核生成サイトが減少する結果，駆動力を高めても微細な結晶粒を得ることができない．これは本章で行なった実験結果と符合する．

低角粒界や亜結晶粒を加工温度および転位の導入と上手く組み合わせ結晶粒微細化を行なう手法が動的連続再結晶である[21,32]．動的連続再結晶には低角粒界の存在が必要と考えられ，導入された転位は加工中の回復により移動しやすくなり近くの粒界に吸収されその粒界が有する結晶粒界方位差を増進させて行く．そのため，転位密度を高め一部が低角粒界へ転化したとしても転位の吸収および消滅や亜結晶粒の創製と傾角増進が連続的に作用することで微細結晶粒を得ることが可能である．ただし，加工材で微細結晶粒を得ることは可能であるが性的再結晶と異なり材料内部に転位が残留ひずみという形で残存する場合が多く低温焼なましを施し，延性を回復させると同時に，結晶粒の方位差を増進させる必要がある．

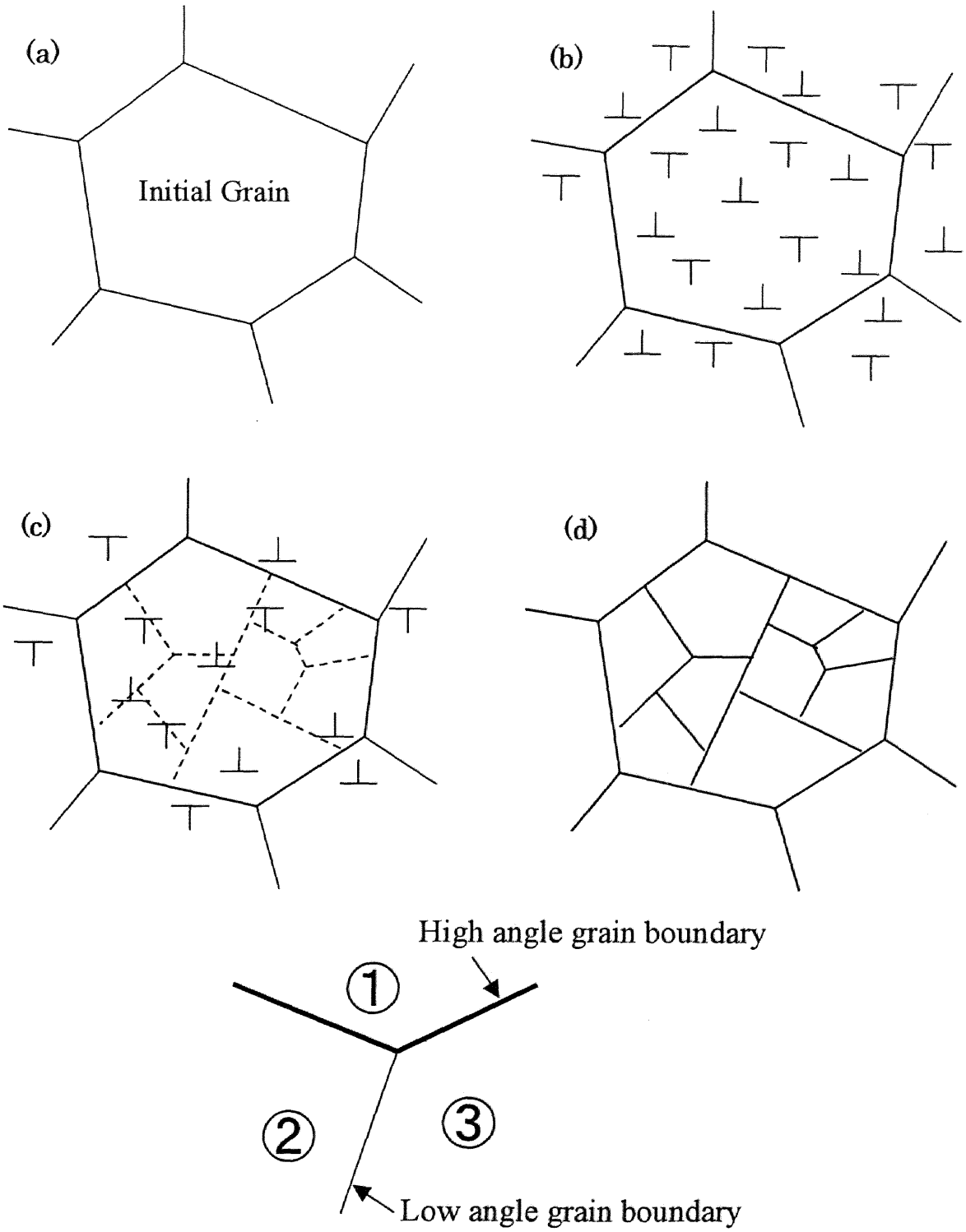


Fig.2-18 Schematic illustration of the grain refinement by the static recrystallization and its deformation mechanism.

2.5 結　言

実工程への適応という観点から，従来の加工ー熱処理工程を大幅に変更することなく結晶粒微細化による強度の向上を試みた．その結果，結晶粒を微細化するには加工ひずみを材料内部に蓄積すること，すなわち転位密度を増加させ駆動力を高めることで後の再結晶処理にて微細結晶粒を得るための核生成サイトを生成させる必要がある．本章では材料に圧延加工のみで大きなせん断ひずみを導入するべく試験温度を極低温(77K)とした．加工途中において組織制御（析出物・転位固着源の増加）のため低温熱処理を施し，最終的に蓄積した加工ひずみを開放するための熱処理いわゆる静的不連続再結晶を行なった．本章において得られた結果を以下に示す．

(1) 加工温度を冷間および極低温としたとき加工後の結晶粒径に差異は認められず両条件ともに約 6μm程度の微細結晶粒を形成した．
(2) 試料と圧延ロール接触部には摩擦抵抗によるせん断変形が強く作用し，表層部のみにせん断ひずみが蓄積されたため再結晶処理を施した後に試料表層部と内部にて混粒を引き起こし，表層部の結晶粒径は 3μm程度の微細粒であった．
(3) 中間処理として行なった低温熱処理は転位の再配列および亜結晶粒，低角粒界の形成には有効である．しかしながら，低角粒界は転位密度を著しく増加させた後に焼なましを行なう再結晶法において核生成サイトとしての役割を果たすことはなかった．
(4) 圧延温度における極低温は結晶粒微細化には効果はないものの，冷間圧延加工に比較して，せん断帯の発生頻度が低く組織を均一に変形させるには有効である．
(5) A5083 合金において引張強さと降伏応力は再結晶処理後それぞれ 304MPa および 153MPa となり破断伸びは 18%まで回復した．引張強さおよび降伏応力とも供試材時の約 1.2 倍の向上にとどまった．
(6) 結晶粒径を 6μmまで微細化することは圧延加工のみでも可能であるものの，この程度の微細化だけでは機械的特性の向上は望めず，さらなる微細粒の創製が必要である．

参考文献

(1) H. Gleiter: Prog. Mater. Sci., 33 (1989), 223-315.

(2) R. Birringer: Mater. Sci. Eng., A117 (1989), 33-43.

(3) H. Yoshida: *Proc. of the second sympo. on Super Metal,* (JRCM, 1999) 21-29.

(4) for example, *Present Status and Future Prospect of Aluminum Super Metal Project,* (JRCM, 1997) , 1-21.

(5) H. Kuhn and D. Medin: *ASM Handbook Volume 08: Mechanical Testing and Evaluation,* (ASM, Ohio, 2000), 7.

(6) M. Kobayashi: J. Japan Inst. Light Metals, 39 (1989) , 776.

(7) Y. Umakoshi and S. Yamaguchi: Tetsu-to-Hagane, 79 (1993) , 75.

(8) K. Shibue: *Proc. of the second sympo. on Super Metal,* (JRCM, 1999) 217-220.

(9) N. Tsuji, T. Murakami and Y. Saito: J. Japan. Inst. Metals 63(1999) 243-251.

(10) M. Kobayashi, K. Funami: *Proc. of the second sympo. on Super Metal* (JRCM, 1999), 281-290.

(11) Y. Iwahashi, M. Furukawa, Z. Horita, M. Nemoto and T.G. Langdon: Metall. Mater. Trans., A29 (1998), 2245-2252.

(12) T.G. Langdon, M. Furukawa, M. Nemoto and Z. Horita: JOM 52 (2000), 30-33.

(13) Q. Cui, K. Ohori: J. Japan Inst. Light Metals 49 (1999), 155-160.

(14) Y. Saito, H. Utsunomiya, N. tsuji Tetsuo Sakai and Ren-Guo Hong: J. Japan Inst. Metals, 63 (1999), 790-795.

(15) Y. Saito, N. Tsuji, H. Utsunomiya, T. Sakai and R.G. Hong: Scr. Mater., 39 (1998), 1221-1227.

(16) K. Funami, R. Sano: *4th Pacific Rim Int. Conf. on Advanced Materials and Processing* (Japan Inst. Metals, 2001) 1983-1986.

(17) M. Noda, M. Hirohashi and K. Funami: J. Japan Inst. Metals 67 (2003) 98-105.

(18) M. Noda, K. Funami and M. Kobayashi: J. Japan Inst. Metals 64 (2000) 395-398.

(19) Q. Cui, K. Ohori: J. Japan Inst. Light Metals 50(2000) 335-340.

(20) X. Yang, T. Sakai and H. Miura: J. JILM 49(1999) 383-388.

(21) T. Sakai: *New approach to grain refinement,* JIM Seminar Text (The Japan Inst. of Metals, 2000) 83-86.
(22) Y. Takayama: J. Japan Inst., Light Metals 44(1994) 48-56.
(23) O. Umezawa: J. Japan Inst., Light Metals 50(2000) 86-93.
(24) S. Suzuki: Materia Japan 40(2001) 612-616.
(25) for example, *OIM ACADEMY,* (2000, July), TexSEM Laboratories, Inc.
(26) M. Furui, T. Kawakami and S. Saji: J. Japan Inst. Light Metals 52 (2000) 339-345.
(27) M. Hatherly and A.S. Malin: Metals Technology, August (1979), 308-318.
(28) A. Niikura, K. Koyama and Y. Bekki: *Proc. of the third sympo. on Super Metal,* (JRCM, 2001) 137-141.
(29) H. Esaki and K. Shibue: *Proc. of the second sympo. on Super Metal* (JRCM, 1999), 231-239.
(30) Z. Horita: *Proc. of the second sympo. on Super Metal* (JRCM, 1999), 271-279.
(31) M. Furui, M. Noguchi and S. Saji: J. Japan Inst. Light Metals 49 (1999) 209-213.
(32) H. Miura, Y. Aoki and T. Sakai: J. Japan Inst. Metals, 58 (1994), 267.

第３章

前加工付与圧延による
結晶粒微細化

Chapter 3

Improvement of Mechanical Properties of Aluminum Alloy by Cryogenic Rolling with Forging as Pre-work Process.

Abstract

To improve the mechanical properties of Al alloys, grain refinement is one of the useful methods. In this study, grain refinement of 3004Al alloy was carried out by heavy plastic working i.e. warm or cryogenic forging, which induced high stored strain energy. It was possible to be rolled up to 98% reduction ratio by using cryogenic rolling with forging as prework process. Annealing was finally performed for rapid recrystallization in a salt bath at recrystallization temperature. As the result, Vickers hardness, tensile strength and yield stress of specimens worked up to 98% were HV160, 450MPa and 390MPa, respectively. The specimens having annealing treatment at 583K, 300s produced fine grain structures with about 5μm in grain size. It was found that the yield stress and tensile strength were 1.6 and 1.2 times compared with that of initial material regardless of forging condition. In the case of shorter annealing time, i.e. 30s, the grain size was 3 ~4μm and yield stress increment of 2.5 times was obtained. This working process is more practical and easy to enhance its mechanical properties.

Key words: cryogenic forging, cryogenic rolling, mechanical properties, stored strain energy, grain refinement, heavy plastic working

3.1 緒　言

圧延加工のみでは試料内部へのひずみ蓄積は困難であると同時に，再結晶後には試料表層部つまりロール接触部と試料内部では結晶粒径の混粒が存在し，その原因として試料と圧延ロール間に生じる摩擦抵抗によるせん断ひずみが試料表層部のみに蓄積されることを第 2 章において示した．このとき，試料全体の平均結晶粒径は 6.0μm であり，引張強さと降伏応力は供試材時の 1.2 倍に留まった．一方で，圧延加工における極低温の役割は材料組織の均一性には有効であるものの，結晶粒微細化および機械的特性向上への効果は少ないものであった．

本研究では，従来まで操業にて用いられてきた加工プロセスに大きな変更を加えず，実工程に適応可能な結晶粒微細化法の確立を目指しているため第 2 章における問題点の解決には，初期板厚を十分に持たせた材料に対し大圧下による圧延加工と再結晶熱処理における浸漬時間の短縮が考えられる．しかし，大圧下圧延では加工硬化が激しくロール接触部には摩擦によるせん断変形が試料表層部へ蓄積され，圧延後の表層と内部結晶粒の混粒および組織の配向性に差異を生じやすく [1-7]，材料系によっては耳割れが発生するなど必ずしも適切といえる方法ではない [1,3-4]．また，再結晶処理を適切な温度および時間にて行なわなければ材料内部にこれまで蓄積したひずみが残留ひずみ，すなわち転位として存在するため後の欠陥の一因となる可能性が高い．

近年，結晶粒微細化に関する試みが各種材料で盛んに行なわれその加工法も種々報告されている [1-19]．その中でもバルク材を素材としたこれら加工プロセスにおいて結晶粒微細化のメカニズムは転位の再配列，回復，再結晶 [11-12,18]，サブグレインの方位傾角の増加 [7-12,19] など，なお議論の分かれるところである．しかし，アルミニウム合金の結晶粒微細化の手法において加工プロセスに共通しているのは強ひずみ加工を材料に蓄積することである．また，そのための負荷様式としてはせん断ひずみを導入することが有効であるといわれている [8-9]．

そこで本章では，加工プロセスとしては複数使用することになるが，圧延加工前に前加工として鍛造加工を採用し，これまでに報告されたアルミニウム合金と同様な微細粒径達成への可能性を探ることを主目的とした．これは従来から操業にて用いられてきた手法の組み合わせであり，この加工プロセスにて微細な結晶粒を形成させ機械的特性に優れた材料を創製することが出来るならばこれは工業的にも重要である．上述したが通常，圧延加工だけでは導入された加工ひずみが材料内部まで十分に蓄積できず，その後の再結晶でも結晶粒微細化は困難であった [1-3,5-6]．しかし，圧延加工前に前加工として鍛造工程を採り入

れることで，あらかじめ内部組織を十分に発達させるとともに再結晶への駆動力となるひずみエネルギーを十分に試料内部へ蓄積することが可能である．また，第２章から極低温下で圧延することにより冷間圧延に比べ，材料は比較的均一なひずみ導入，高い硬さと高強度を有するという結果が得られたことを踏まえ，これら加工プロセスの組織微細化への効果とその役割について検討を加えた．この加工プロセスは強ひずみ加工の一種となるため，報告されている強ひずみ加工法と同等の結晶粒径と機械的特性が得られるならば，実工程への適応に対し結晶粒微細化法が一歩前進するものと考えられる．

本章では，その組織および機械的特性について次のような観点から検討することとする．

1) 前加工付与圧延における鍛造加工の役割

2) 鍛造条件を極低温および温間としたとき，加工温度により転位密度の増加および亜結晶粒の形成等の組織変化および最終粒径にもたらす影響

3) 再結晶粒を得るための最適な熱処理方法

4) 転位密度の増加に効果があると考えられてきた極低温加工に対する，機械的特性および組織変化からの検討

3.2 実験方法

使用した材料はA1100合金（工業用純アルミニウム），A3004（Al - Mn系）合金で板厚30×板幅30×長さ60mmの鋳造材である．材料には893K，28.8ksの均質化熱処理を施し，それを供試材とした．その化学成分と機械的特性をTable 3-1，Table 3-2に示し，供試材の光顕組織をFig.3-1に示す．Fig.3-1には均質化熱処理後の平均結晶粒径も併せて示す．

供試材は前加工として長手軸方向を回転軸とし1Pass毎に90度回転させ，厚さおよび幅方向の直交二面を厚さ22mm(圧下率27%)まで，温間(473K)または極低温(77K)で鍛造した．このとき1Passあたりの加工量は元板厚に対し20%の圧下率で制御した．その後，一面のみ鍛造し板厚10mmの素材とした(圧下率67%)．圧延加工は第2章2.2節において述べた手法と同様であるが，本章では治具の使用は行なっておらず，板厚0.5mm(元厚みに対し圧下率98%)まで圧延を行なった．比較材料として鍛造なしの圧延加工のみを施した圧延材も用いた．加工の模式図をFig.3-2に，使用した低温圧延機の概観像をFig.3-3に示す．

これら用いた加工プロセスの材料を区別するために，以下，温間鍛造＋極低温圧延加工した試料はWC材，極低温鍛造＋極低温圧延加工材をCC材，そして極低温圧延加工のみ行なった試料をCR材，室温圧延加工材をRR材と定義する．また，機械的特性の評価は硬さ試験と引張試験にて行ない，その試験条件は第2章2.2節2.6節と同様である．

焼なましにはソルトバスを用い急速加熱をDSCによる再結晶温度測定結果に基づき573K一定のもと種々の浸漬時間にて行なった．その後試料は水冷した．用いた材料は主に最終圧下率98%材である．また，最適浸漬時間はソルトバス浸漬時間を30～300s変化させ測定した硬さより求めた軟化曲線をもとに決定した．組織観察は光学顕微鏡とTEMにて行ない，結晶方位解析と結晶粒径測定にはEBSPを用いた．光顕観察およびEBSP解析は圧延方向に対して水平な面（縦断面：TD）にて行ない，TEM観察は圧延面（板面）で行なった．

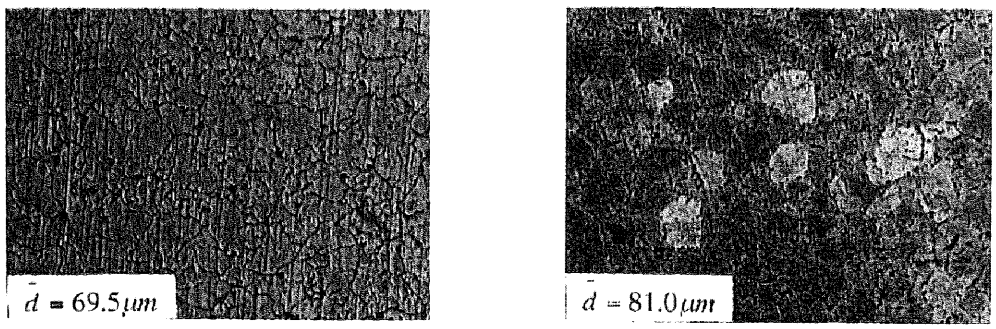
上記した機械的特性試験，組織観察，方位解析は前章で述べた方法と同一であるが，本章では鍛造加工がどの程度下部組織の発達に寄与したか，更に微細結晶粒の判定を詳細に実施するため，光学顕微鏡の他に試料内部の組織変化を詳細に観察するためTEMを用いた．

Table 3-1 Chemical composition of materials. (mass %)

	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
1100	0.13	0.55	0.07	0.003	—	—	0.002	0.02	bal.
3004	0.17	0.46	0.17	1.07	1.24	0.01	0	0.025	bal.

Table 3-2 Mechanical properties of materials.

	0.2% Proof Stress (MPa)	Tensile Stress (MPa)	Elongation (%)	Vickers Hardness HV
1100	41	88	36	29
3004	63	158	18	52



(a) (b)

×100

Fig.3-1 Optical microstructure of aluminum alloys after homogenized at 893K 28.8ks (a)A 1100 (b)A 3004 alloy.

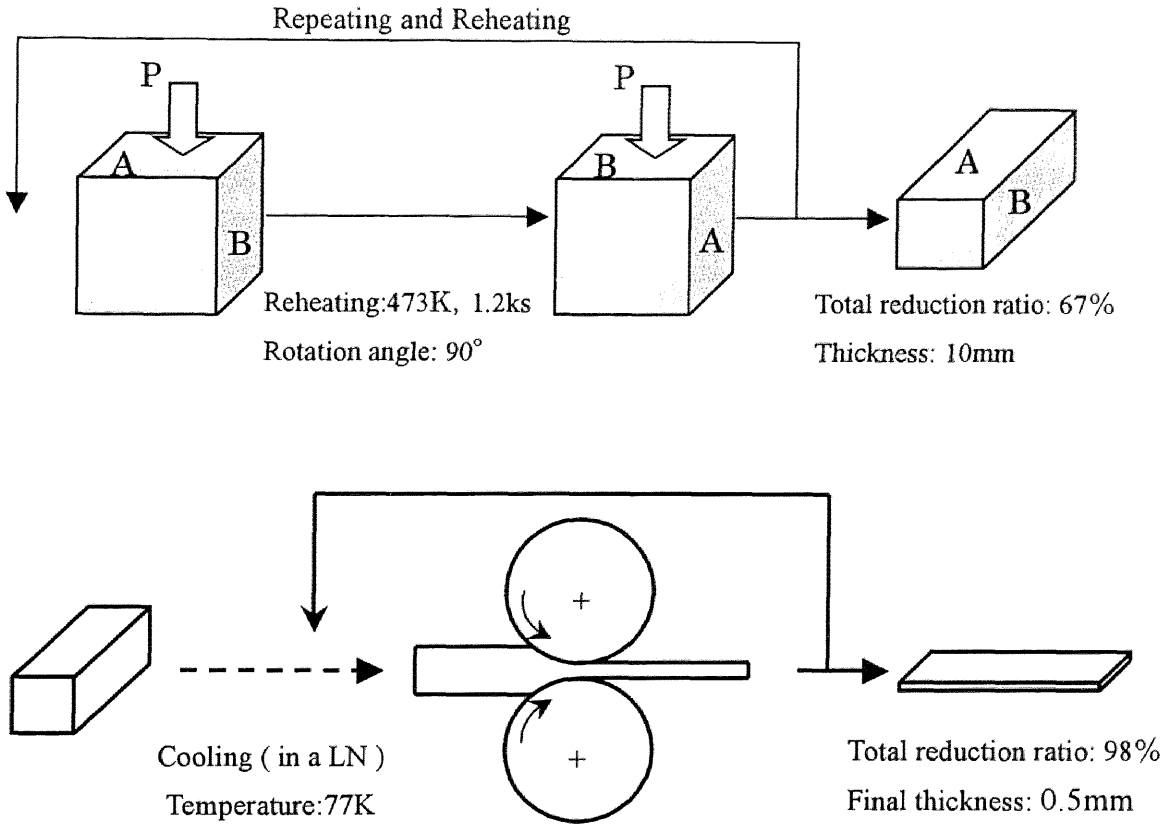


Fig.3-2 Schematic illustration of multi-axial alternative forging and cryogenic rolling process.

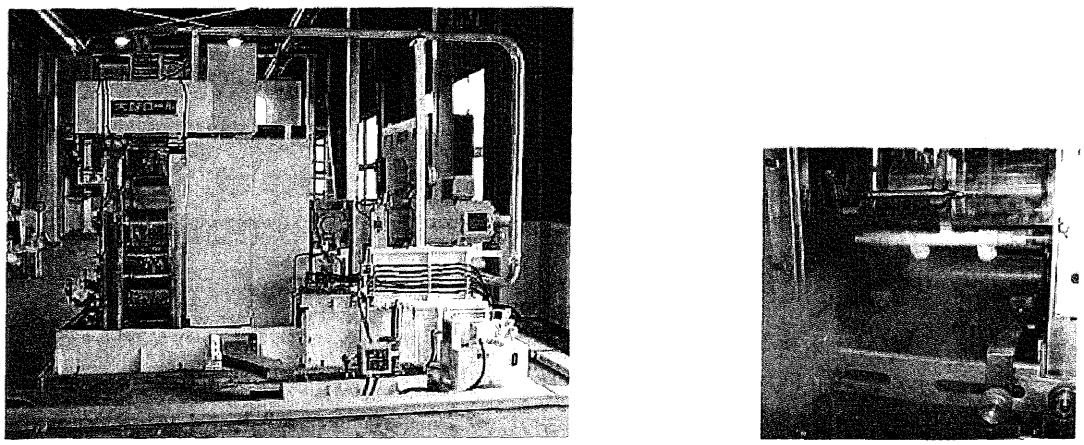


Fig.3-3 Appearance of cryogenic rolling equipment.

3.3 実験結果

3.3.1 材料加工硬化への前加工付与の効果

結晶粒の微細化のためにひずみエネルギーを出来るだけ多く材料内に蓄積させる観点から，加工を各種行なっているが，その増加とともにその硬化の様子を知ることが必要である．本研究では加工により導入したひずみエネルギー量の目安を推定すべくマイクロビッカース硬さ試験により強ひずみ加工による材料の加工硬化特性を調べた．試験条件および使用装置は第 2 章と同一である．Fig.3-4 は WC 材，CC 材の極低温圧延過程中の圧下率の増加による硬さの変化を示したものである．横軸は鍛造加工率を含めた圧下率を示しており，圧下率 98%で板厚は 0.5mm である．また図中には比較のために CR 材，RR 材の圧延加工のみの試料の硬さも示している．WC 材および CC 材とも鍛造終了時（67%圧下率，板厚 10mm）での硬さは既に HV100 前後であり供試材の硬さの 1.7～1.9 倍に達している．硬さは 90%圧下率の CR 材および RR 材と同程度となり，前加工として採り入れた鍛造加工がひずみエネルギー蓄積に非常に有効であることを示した．また，RR 材では更に 97.6%まで圧下率を増加しても硬さはほとんど上昇しない [15-16]．これに比べ，これら鍛造材は加工の増加とともに硬さは増加し圧下率 98%で HV160 を示し供試材の 2.8 倍にまで上昇している．すなわち，導入されたひずみエネルギーも CR 材,RR 材に比べて増加していると推定される．また，硬さは上昇傾向にあり後述の加工材における伸び測定結果からも極低温下であれば更なる強加工も可能なことを示している．

更にこれら前加工処理材を同一圧下率で比較すると，WC 材は CC 材よりも強化され鍛造による鍛錬効果は，温間鍛造＋極低温圧延の加工プロセスの方が有効であることを示している．これは Fig.3-5 に示した極低温および温間鍛造後の縦断面を光学顕微鏡で観察した組織より，結晶変形状態，変形帯発生の有無，あるいは既報の低温圧延，温間圧延での光顕観察から温間加工での下部組織の発達が顕著でなことからも推定できる [2,17-18]．そこで，温間鍛造後に組織がどのように変化したかをより詳細に把握すべく，縦断面に対し TEM 観察を行なった．その観察結果を Fig.3-6 に示す．Fig.3-6(a)は全体像であり，既に結晶粒径 2.0μm 程度の微細な結晶粒を形成している．しかしながら，粒界近傍や粒内に転位が認められ，セル組織を形成しており一部では既に 1μm 程度の微細な結晶粒が形成されておりその周囲には転位の集積が少ない．ここで，TEM 組織において結晶方位を十分に有した材料を観察した場合，白黒のコントラストが強くなることからもこれらの局所的に生成された結晶粒は十分な方位差（高角粒界）を有

していると考えられ，転位の残存状態および結晶粒形状からも温間変形中に動的回復または再結晶を引き起こしていると考えられる．形成された結晶粒間を拡大したものが同図(b)であり，平均粒径 0.7μm の超微細粒を形成しているものの結晶粒界が直線的でなく，また粒界には一部転位の堆積が見られることからも方位が少ないサブグレインであることがわかる．Fig.3-5 に示した光顕組織より，両材とも完全な結晶組織ではないが，組織が十分に発達したため，通常圧延加工のみでは高い加工率で見られる高密度転位セル壁の形成および結晶粒が圧延方向に伸張したパンケーキ状組織の形成[8-9]に至っており，温間加工は組織を発達させるに効果的であることがわかる．

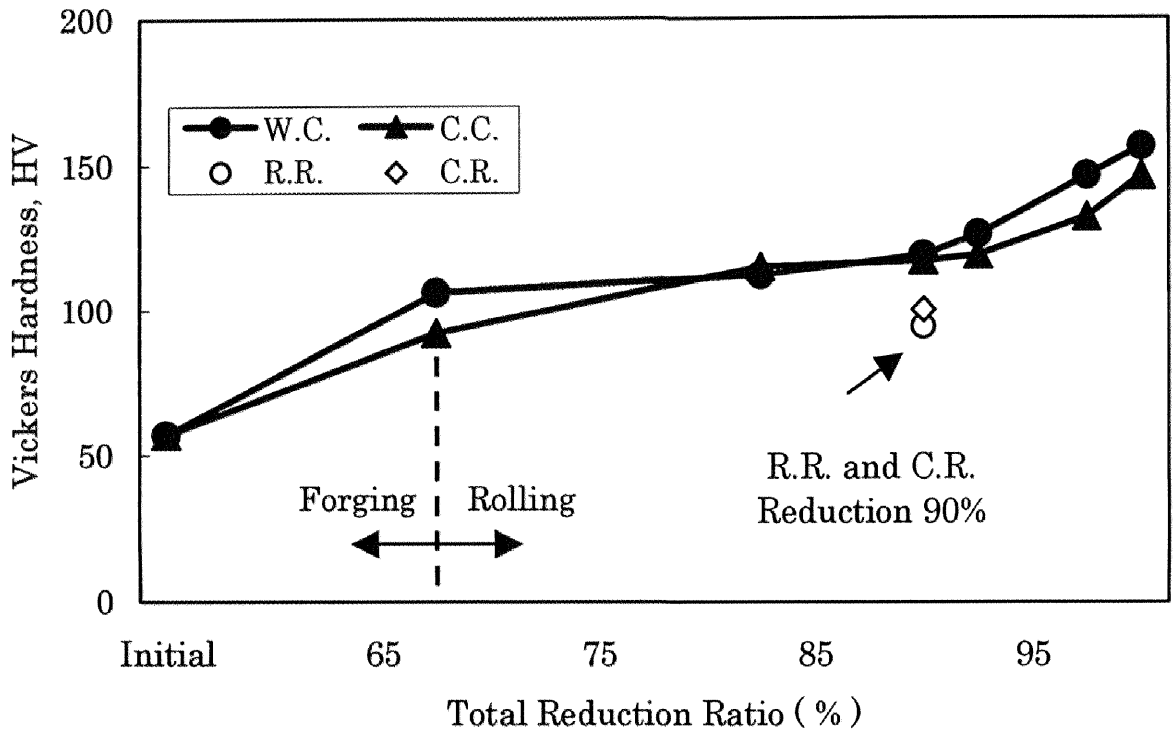


Fig. 3-4 Total reduction ratio dependence of hardness. R.R.: Cold rolling without forging. C.R.: Cryogenic rolling without forging. C.C.: Cryogenic rolling after cryogenic forging. W.C.: Cryogenic rolling after warm forging. (Figures in parenthesis indicate reduction ratio)

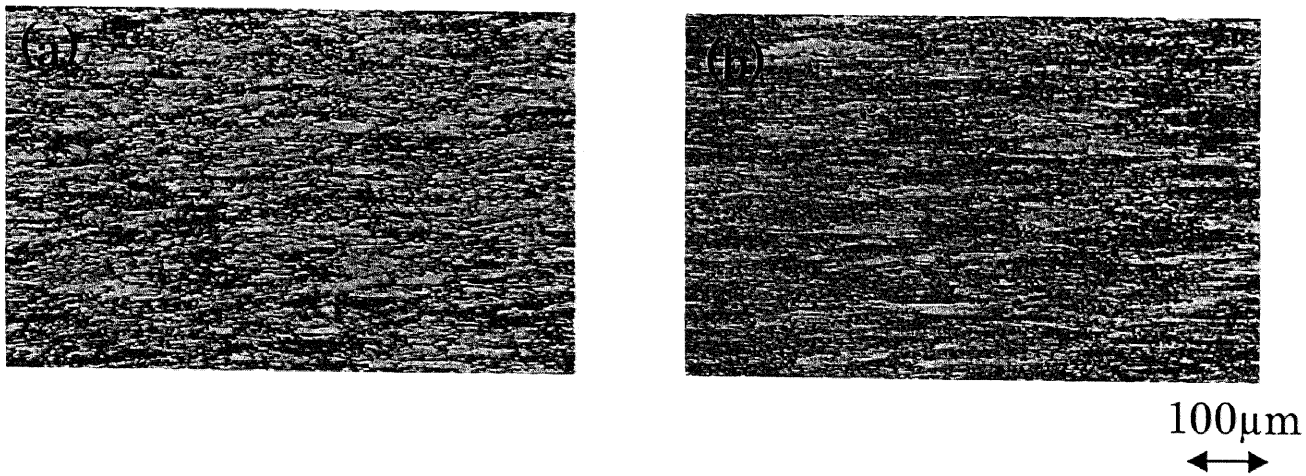


Fig.3-5 Microstructure of the specimens 67% forged at various temperature. On the longitudinal sections, (a) warm forging (473K), (b) cryogenic forging(77K).

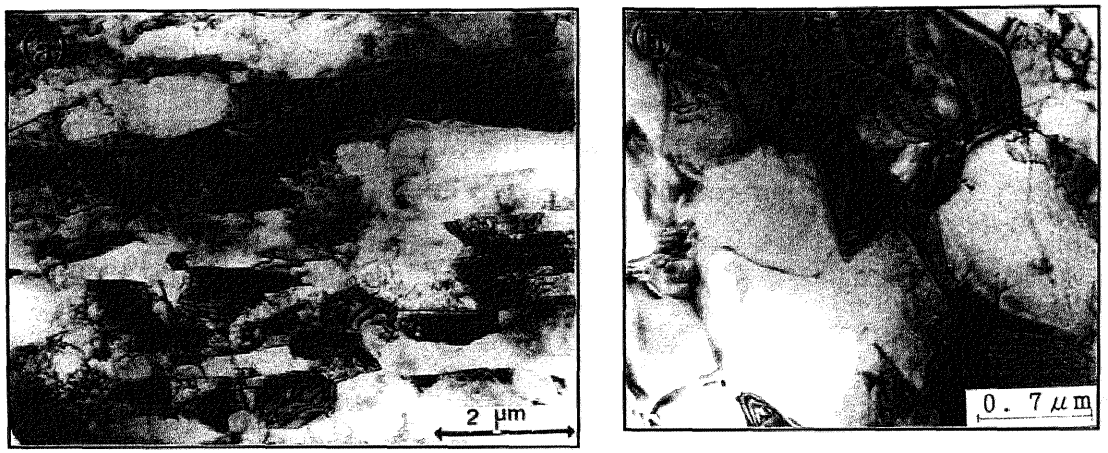


Fig.3-6 TEM microstructure of the specimens 67% forged at 473K.

3.3.2 前加工付与圧延材の機械的特性

A3004 合金における圧下率 97%(板厚 1.0mm), 98%(板厚 0.5mm)それぞれの WC 材と CC 材の引張強さと降伏応力および破断伸びを Fig.3-7 に示す. 同図(a)は圧延材の強度を, (b)図は再結晶処理後の強度を示したものである. (a)図において圧下率 98%の WC 材の引張強さと降伏応力は最大でそれぞれ 450MPa および 400MPa であり, 加工法の違いによりそれらは WC 材(98%), CC 材(98%), WC 材 (97%), CC 材 (97%) の順に低下しており, 同一圧下率の下では WC 材の引張強さ, 降伏応力は CC 材より幾分大きな値を示している. また, 583K, 300s 焼なまし後における引張強さと降伏応力の大きさの順序は, (b)図のように加工材のそれと同様である.

前加工の無い RR 材, CR 材の圧下率 98%による引張強さと降伏応力は, 加工材においてそれぞれ 390MPa および 375MPa であり, RR 材と CR 材でその差は見られない. また 623K にて 30s 再結晶処理した RR 材は引張強さ 190MPa, 降伏応力 90MPa, 破断伸びは 20%と報告されている [17-18]. これに比べて, 圧下率 98%WC 材は Fig.3-7(a)図より加工材で引張強さ 450MPa, 降伏応力 396MPa となり 583K, 300s の再結晶熱処理後では(b)図のように引張強さ 210MPa, 降伏応力 110MPa である. 再結晶熱処理条件が幾分異なるが, 前加工を付与することで引張特性はより高い値を示している. 一方, 破断伸びは加工材の場合(a)図に示した様に, WC 材(圧下率 98%)でも 7~8%で, 更なる加工も可能なことを示している.

Fig.3-8 は A1100 合金における圧下率 98% (板厚 0.5mm) における WC 材, CC 材の焼なまし時間に伴う機械的特性の変化を示したものである. 加工材の場合最大で引張強さと降伏応力はそれぞれ 257MPa および 192MPa となり, 583K にて 300s の再結晶処理した場合では引張強さ 123MPa, 降伏応力 81MPa である. 一方, 破断伸びは WC 加工材の場合 8%であった. 同一圧下率の下では WC 材 (98%) の強度は CC 材 (98%) のそれよりも若干低い. この傾向は前述した A3004 合金の結果と同一である. しかし, 浸漬時間 30s 以降は両加工材とも同程度の値を示しながら強度は低下し破断伸びの回復が見られた. 583K にて 300s 焼なました材料は引張強さ, 降伏応力とも加工材に比べそれぞれ 2^{-1} の低下であった.

本加工プロセスでは, 温間鍛造と極低温圧延の組み合わせによる簡便な手法で, A3004 合金では 583K, 300s にて再結晶処理した後の圧下率 98%WC 材の引張強さと降伏応力(b 図)はそれぞれ, 加工材(a 図)の 2^{-1} および 3^{-1} へ低下している. しかし, 引張強さと降伏応力は供試材のそれ(63MPa, 158MPa)に比べそれぞれ 1.3 倍, 1.8 倍 となり破断伸びは 26%という結果を得た. A1100 合金で

は 583K，300s で再結晶処理した後の圧下率 98%WC 材引張強さと降伏応力は供試材のそれ(88MPa，41MPa)に比べそれぞれ 1.4 倍，1.8 倍 となり破断伸びは 25%という結果を得た.

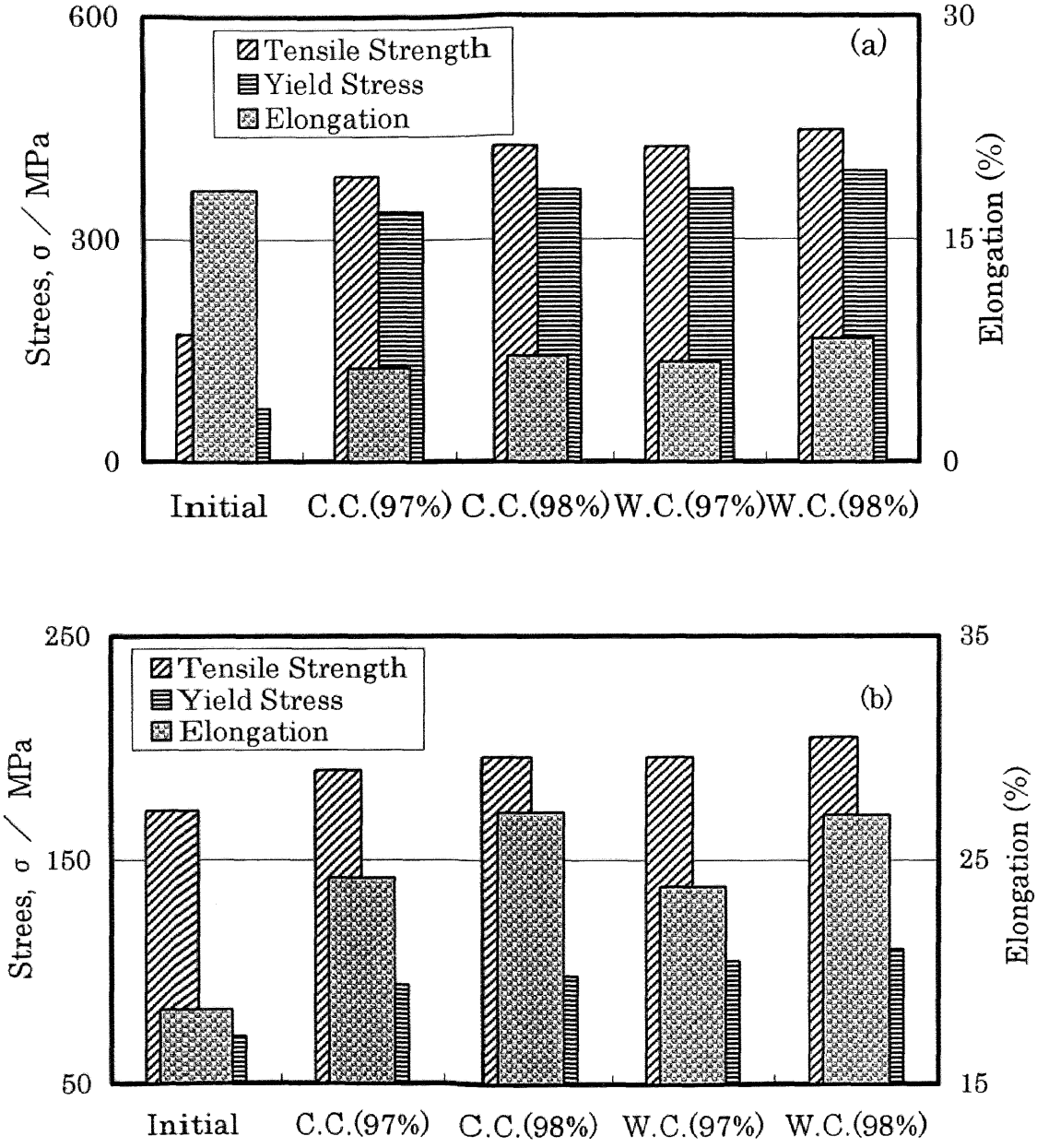
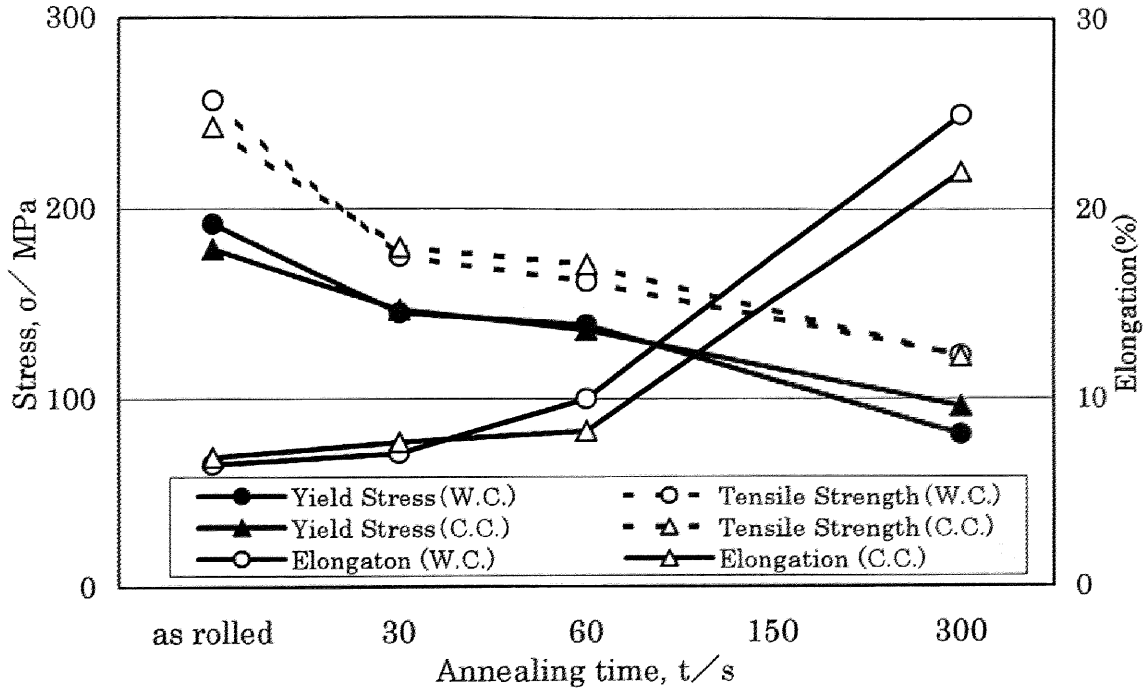


Fig.3-7 Effect of total reduction ratio on mechanical properties of heavy worked, (a) in as-rolled state, (b) after annealing for 300s at 583K.



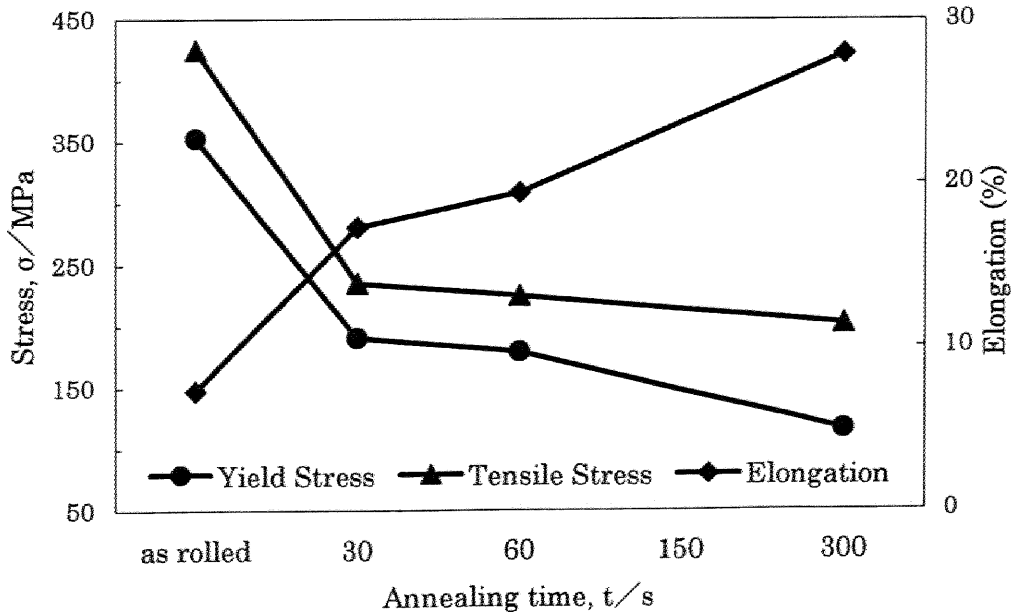


Fig.3-8 The change in stress and elongation with annealing time in 98% heavy worked specimens at 583K (a) A 1100, (b) A 3004 alloy.

3.3.3 機械的特性と組織観察

再結晶温度はDSCにより発熱の有無を測定し，最大の発熱反応が起こる温度とした．DSC分析の結果，A3004合金材の再結晶温度は強加工の程度を変化させても563～623Kの範囲内であった．DSC曲線の一例をFig.3-9に示す．

圧下率98%のWCとCC材を使用して583K一定のもと，焼なまし時間の増加に伴う硬さと降伏応力の変化の推移をFig.3-10に示す．また，その時のWC材における光顕組織をFig.3-11に，EBSP解析[20-21]より得たIPF(Inverse Pole Figure)マップをFig.3-12に示す．なお，得られたIPFマップの色は図中に示す標準三角形より決定される．硬さは焼なまし時間30sで一定値に達している．焼なまし時間30sではFig.3-11の光顕組織のように圧延による変形帯も見られず，300sでは既に粒成長が生じている．

更にFig.3-12のEBSP測定からも加工ひずみのない結晶粒の存在が確認出来，個々の結晶粒が異なった方位を有していることより焼なまし時間30sは再結晶に十分な保持時間である．これは，Fig.3-8(b)に示した30s焼なましを行なったA3004合金材の引張強さ，降伏応力と破断伸びの関係からも明らかである．この時の降伏応力は174MPaで，破断伸びは14%であった．Fig.3-11とFig.3-8より，焼なまし保持時間の増加とともに硬さは変化しないが結晶粒の成長が起こっており降伏応力は低下してくる．

Fig. 3-12で示したEBSP観察より583Kにて30s保持したWC材の平均結晶粒径は3.7μm，300s保持のそれは5μmであった．また，30s保持試料の傾角別平均粒径を測定すると傾角5°で3.7μm，10°で3.7μm，15°では3.8μmとほとんど変化がない．傾角毎の平均結晶粒径をTable 3-3に示す．これらの解析結果より，この再結晶粒は比較的大きな結晶方位を有しており短時間の焼なまし処理でも十分に亜結晶粒ではなく結晶粒を生成することが可能であることを示している．これは純Alの1パスECAP材の平均粒径2.1μm，傾角の最大分布が10°前後に存在する結果と大きな違いがない[22]．ここで，熱処理時間30sでの結晶粒測定は切片法を用いているが，他にTEM組織およびEBSP解析により決定したものである．EBSP解析における傾角5°の結晶粒径測定結果は，切片法により求めた結晶粒径と非常に近い値を示した．

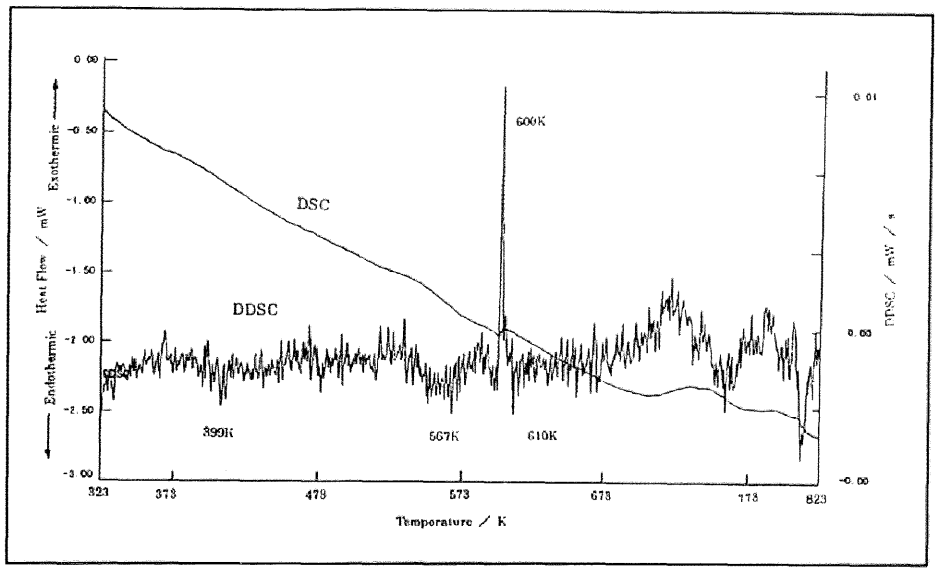


Fig.3-9 DSC curve and its differential (DDSC) of A3004 sheet rolled at cryogenic temperature after warm forging.

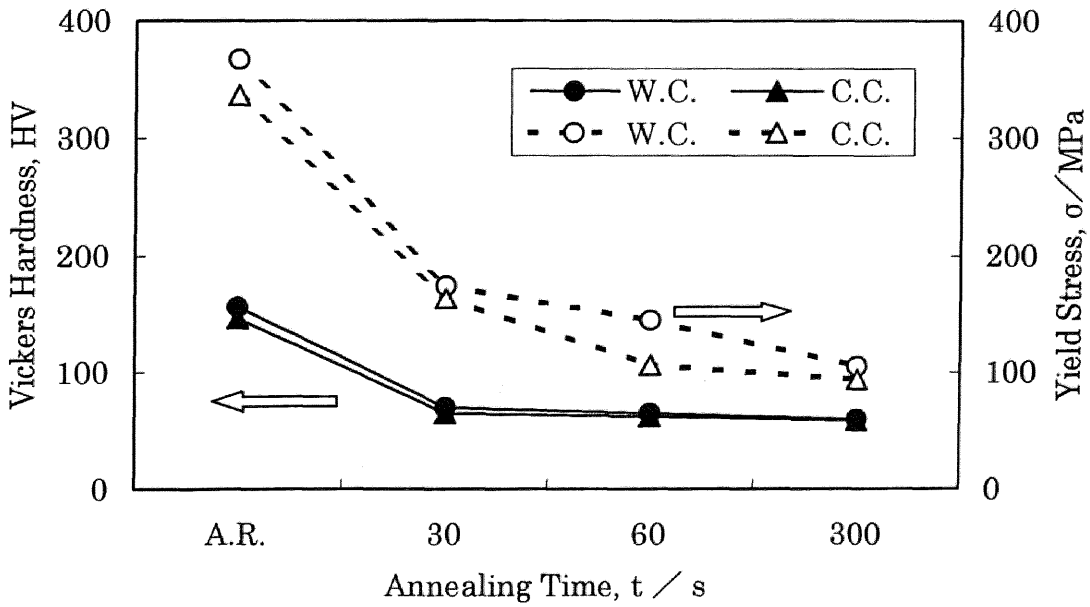


Fig.3-10 The change in hardness and yield stress with annealing time in 98% heavy worked specimens at 583K.

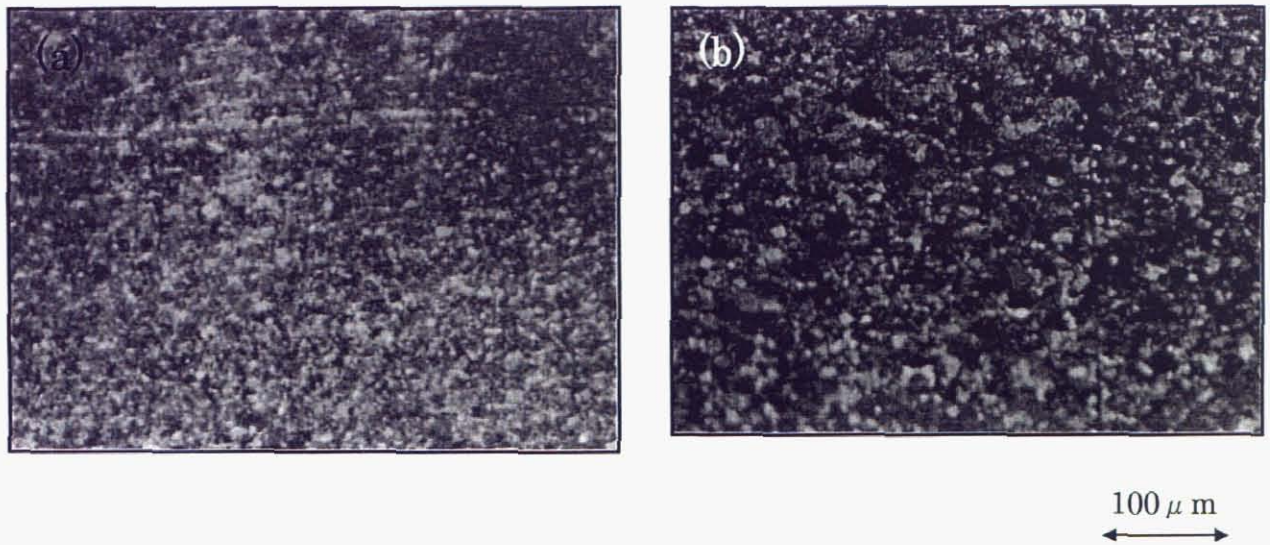


Fig.3·11 Microstructure of heavy worked specimens (98% Cryogenic rolling) annealed for (a) 30s (b) 300s at 583K.

(a) (b)

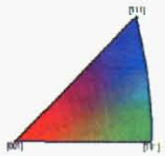


Fig.3-12 EBSP image of heavy worked specimens (98% Cryogenic rolling) annealing for (a) 30s, (b) 300s at 583K.

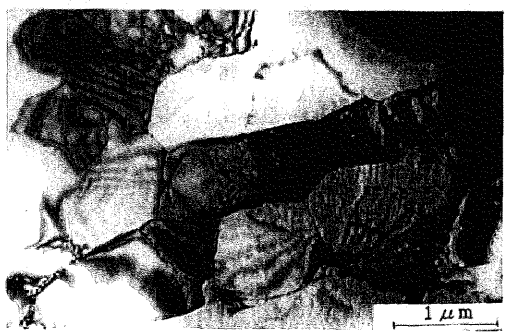
Table 3·3 Relation between grain size and allowable inclined angle by EBSP.

Inclined angle (degree)	3	5	10	15
Grain size (μm)	3.0	3.7	3.7	3.7

内部組織より加工後の圧延材の組織変化，加工材が再結晶するに最適な浸漬時間の算出と結晶粒が形成されているかを確認するため，これら強加工材へ透過型電子顕微鏡（TEM）による組織観察を行なった．TEM 観察用試料は圧延面から採取し，加速電圧 300kV で行なった．制限視野回折図形の撮影には直径 2.0μm の視野制限絞りを用いた．Fig.3-13 にそれぞれ条件の異なる TEM 組織を示す．(a)-(c)は A3004 合金であり，(d)は A1100 合金である．

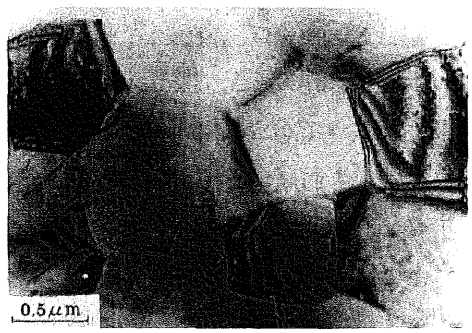
特筆すべきは Fig.3-13(a)において加工材にも拘らず微細な結晶粒が形成されていることである．局所的ではあるが結晶粒界形状および転位の残存などから低角粒界に囲まれた結晶粒と高角粒界に囲まれた結晶粒が混在していると考えられるが，このときの平均結晶粒径は 0.5μm 程度である．これは第 2 章においても述べたが，温間鍛造を付与することで強ひずみを付与し材料内部では低角粒界および亜結晶粒の生成が活発に行なわれたと考えられる．その後，極低温圧延にて加工を施したが後述する Fig.3-17 からも，板厚 2.0mm にて大きな発熱反応を示すと同時に，加工による入熱が激しいことは明らかである．つまり，温間鍛造において予め材料内部に低角粒界を形成したことにより，極低温圧延によって付与された転位は粒界に堆積しながら，加工による入熱が重なり低角粒界を高角化させ，局所的に微細な結晶粒を形成したと考えられる．このとき材料内部では回復による局所的応力勾配 [2,23-24]が生じたのも微細粒形成の一因子と考えられる．転位密度増加のために行なった鍛造による前加工と極低温圧延の組み合わせ加工ではあるが，温間域での加工が材料内部に活発な組織変化を促しその作用により微細な結晶粒を形成することが可能であることを示している．短時間の焼なましにおいて TEM 組織および EBSP 解析にて転位の残存が無い結晶粒が確認できたのも上述した作用の効果と考えられる．

(a) as rolled (98%)



(b) as annealed at 583K, 30s (98%)

(c) as annealed at 583K, 30s (98%)



(d) as annealed at 583K, 30s (98%)

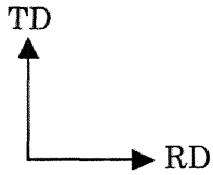


Fig.3-13 TEM microstructure in rolling plane of the specimens rolled up to 98%. (a) - (c) 3004 aluminum alloy, (d) 1100 aluminum alloy.

3.3.4 焼なまし特性

前節までに述べたように，A3004 合金材の場合焼なまし時間は Fig.3-8, Fig.3-10～Fig.3-13 までで明らかにしたように 30s が最適と考えられる．また，急速加熱・短時間焼なましの組織と機械的特性の変化については既に前節までに示しているため，ここでは 583K における短時間焼なましの結果について述べる．Fig.3-14 になまし時間の変化による硬さの変化を，Fig.3-15 にその時の光顕組織を示す．

Fig.3-14 より A3004 合金は非常に短時間で速い軟化特性を示すのに対し A1100 合金材は浸漬時間 60s まで徐々に軟化し，反比例を示すような直線的な軟化を示している．Fig.3-15 より A3004 合金は比較的早い段階で視野の全面に結晶粒が生成されているのに対し，A1100 合金では浸漬時間 60s 以降に結晶粒が生成されており，添加元素による影響が大きいと考えられる [25]．Fig.3-13 に示した TEM 組織より両材とも浸漬時間 30s 程度で結晶粒は生成されており，粒内転位もほとんど見られないが，結晶粒界のコントラストや Fig.3-14 および Fig.3-15 から A3004 合金の結晶粒傾角に比べ A1100 合金のそれは低い値を示すと考えられる．また，焼なまし中に起こる転位の再配列，低角粒界の高傾角化や，元素添加による結晶粒成長抑止効果により粒成長速度が異なる [19,25] ため 300s なました結果，A1100 合金は最終的に大きな結晶粒径に至ったものと考えられる．A1100 合金に対して EBSP 解析は行なっていないものの Fig.3-13(d) に示した TEM 組織および Fig.3-15 に示す光顕組織から微細結晶粒形成には浸漬時間 60s で十分であると考えられるが，この場合 Fig.3-8(a)に示した機械的特性より破断伸びは 10%に留まることから A1100 合金材の最適浸漬時間は 150s が最適と考えられる．

本研究では再結晶開始の目安を軟化が開始されたときとし，硬さが一定値を示し始めた点つまり軟化が終了した時点を再結晶が完全に終了したと捕らえている．通常静的再結晶では微細な結晶粒が得られるが，前述した Fig.3-13 の結果より軟化を開始する以前に局所的に結晶粒が生成されており，これらは外部からの熱を吸収し隣接する結晶粒と合体・成長することにより平均的に大きな結晶粒径を示したものと考えられる [1,19]．つまり，静的再結晶 [1-3,15-18] にて焼なましを行なう場合，加工材内部に亜結晶粒または低角粒界が既に生成されているならば軟化が完全に終了するより以前に再結晶は終了しその後は粒成長を示すものと考えられる．

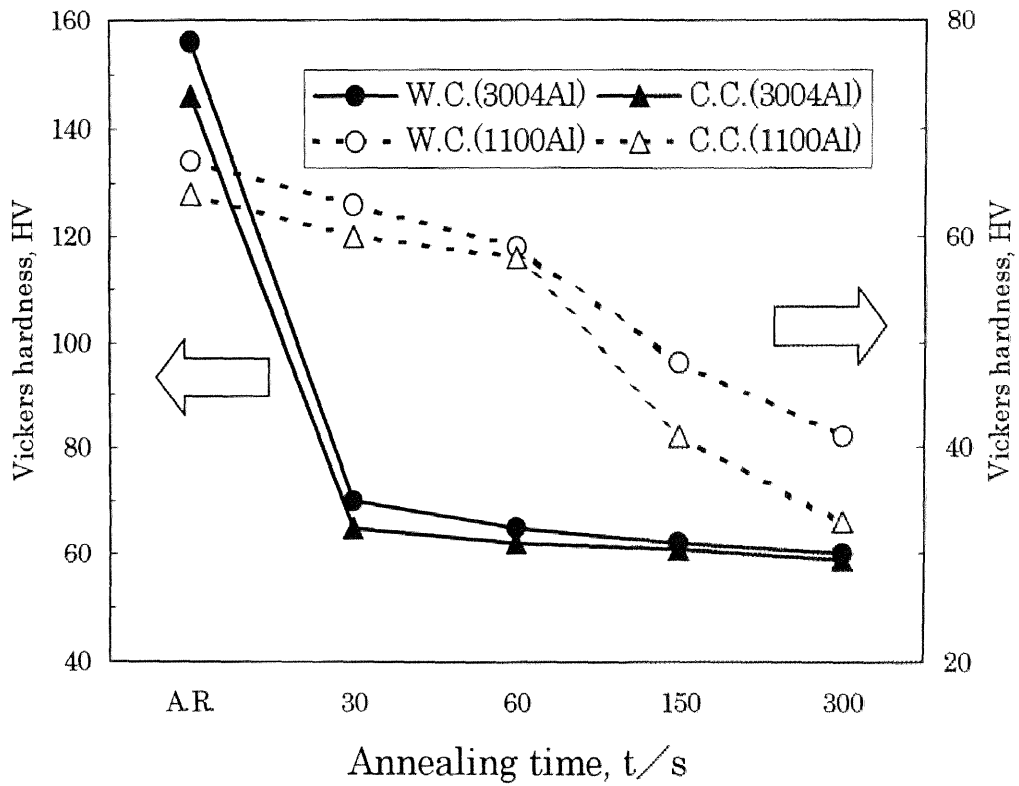
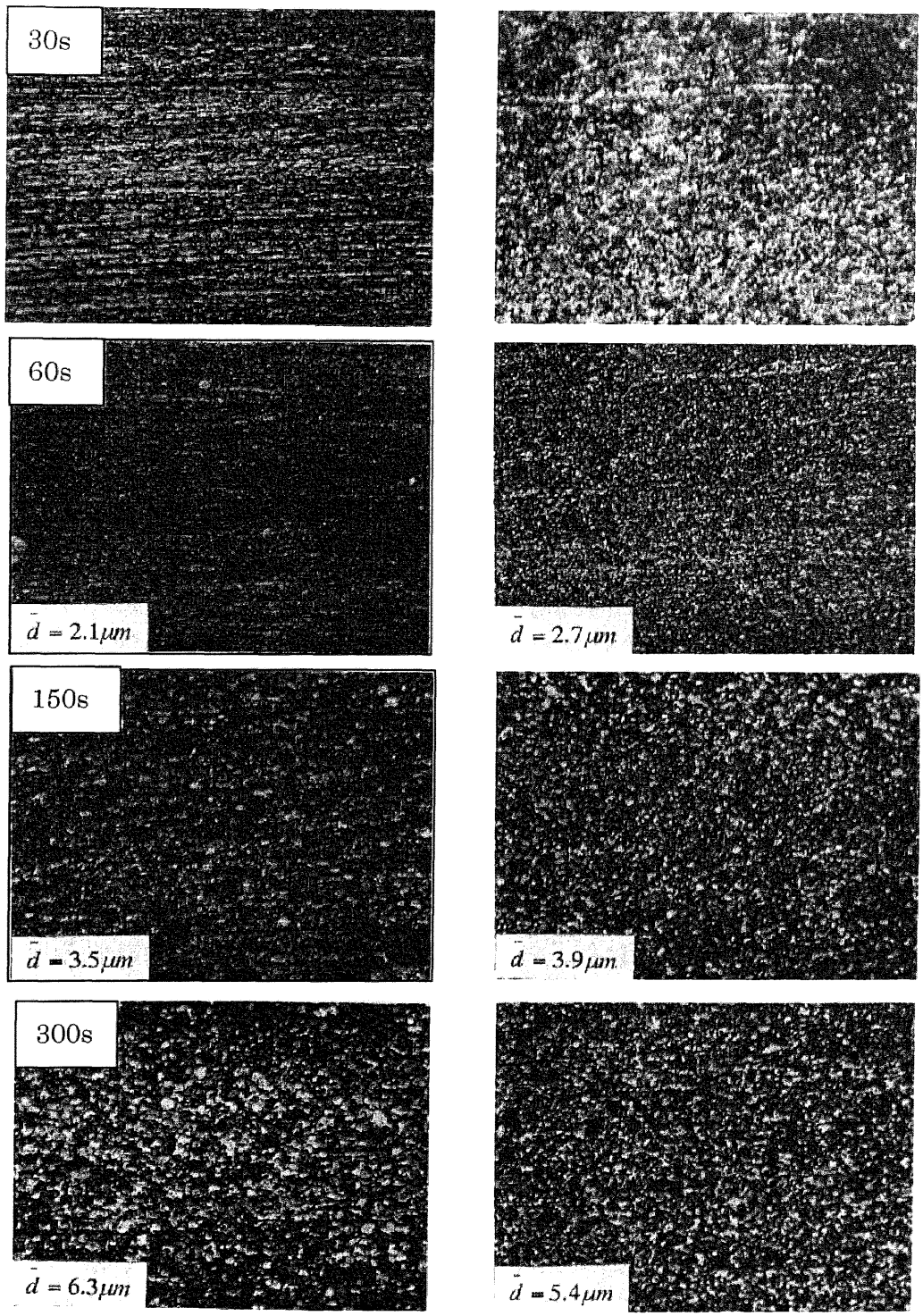


Fig.3-14 The change in elongation with annealing time in 98% heavy worked specimens annealed for 583K.



(a) (b)

Fig.3·15 The change in grain size with various annealing time in 98% heavy worked specimens at 583K (a) A 1100, (b) A 3004 alloy.

3.3.5 極低温圧延の効果

Al 合金の温間[2]および室温圧延加工では，前章で示した Fig.2-12(a)のようにせん断帯発生により波状のマクロ繊維組織を生じ易いが，極低温圧延ではせん断帯を形成せず，結晶学的すべり変形を均一に生じることにより試料内部へひずみエネルギーの均一な蓄積をもたらす[1,5,18]．これは Fig.3-16 に示すように RR 材，CR 材の縦断面内における板厚方向の硬さ分布を測定すると，CR 材の方が厚さ方向での硬さ分布の違いが少ないことからも示される．また，Fig.3-4 に示したように試料厚みが大きくても極低温下での強加工が可能であり，加工中に著しい転位の消滅や回復現象を引き起こさないため，再結晶にて機械的特性の向上を目的とする場合には極低温加工を組み合わせる事は有効である．通常，圧延で大きなせん断ひずみを試料に導入しようとすると無潤滑圧延が最適であるが[15-16]，本研究で用いた試料寸法および圧延条件下では，霜等が発生し潤滑の役目をすることもなく強加工することが出来た．ここで述べている再結晶とは加工後の熱処理を利用した静的不連続再結晶である．

各パス毎の WC と CC 材の圧延後の試料温度変化を Fig.3-17 に示す．図より板厚 2.0mm から急激な温度上昇が見られる．図中の▲印はその加工率における試料(CC 材)の DSC 測定より得られた再結晶温度域での発熱量を示している．加工材のため昇温過程で転位の再配列，回復に伴う多くの発熱域がみられるが，この温度域は DSC 曲線で最も発熱反応が激しい点である．加工に伴い試料温度上昇の少ない板厚 5.0mm では発熱量も少ないが，加工により大きな温度上昇の見られる板厚 2.0mm の加工率の点では発熱量も大きくなっており，内部組織に大きな変化が生じていると思われる．しかし，板厚 2.0mm 材よりも 1.0mm 材での発熱量が少なくなっており，加工組織の一部が回復し蓄積ひずみエネルギーの減少に繋がった結果 Fig.3-13(a)に示したように，加工材においても亜結晶粒を伴う結晶粒組織の生成が確認されたと考えられる．つまり加工温度を低温に維持しても，強ひずみ加工による入熱により材料内部に局所的な方位差を有する結晶粒界が形成され，それまで蓄積されていた転位が方位増進のために粒界に吸収されたために粒内における転位の残存は確認されなくなったと思われる．

一方で，板厚が厚い時点では外部から試料への入熱は抑制されているものの，板厚が薄くなるにつれ外部からの入熱が激しくなり極低温の効果が薄れる結果となった．

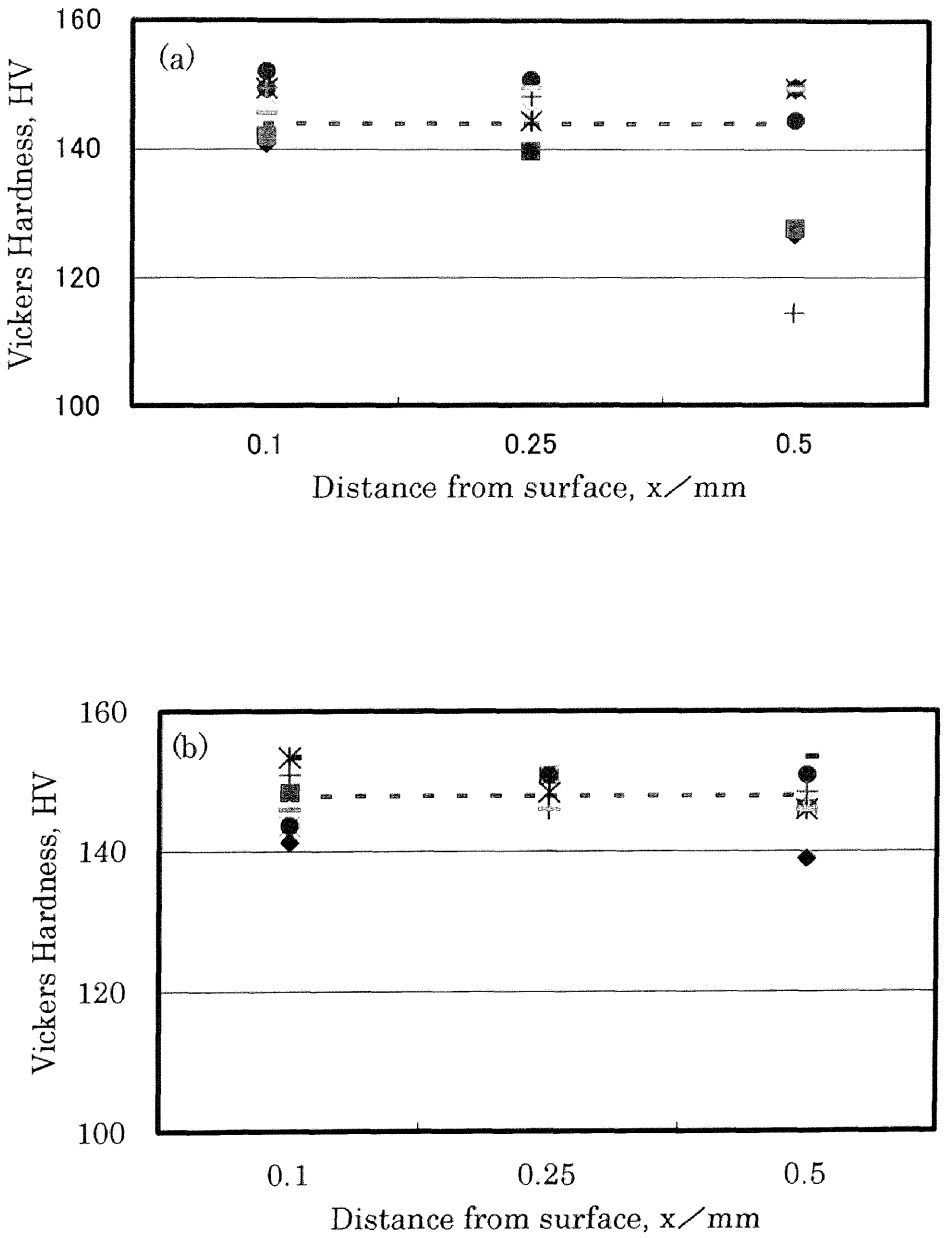


Fig.3-16 Effect of rolling condition on Vickers hardness in axial cross section of aluminum alloy. (a) cold rolling, (b) cryogenic rolling.

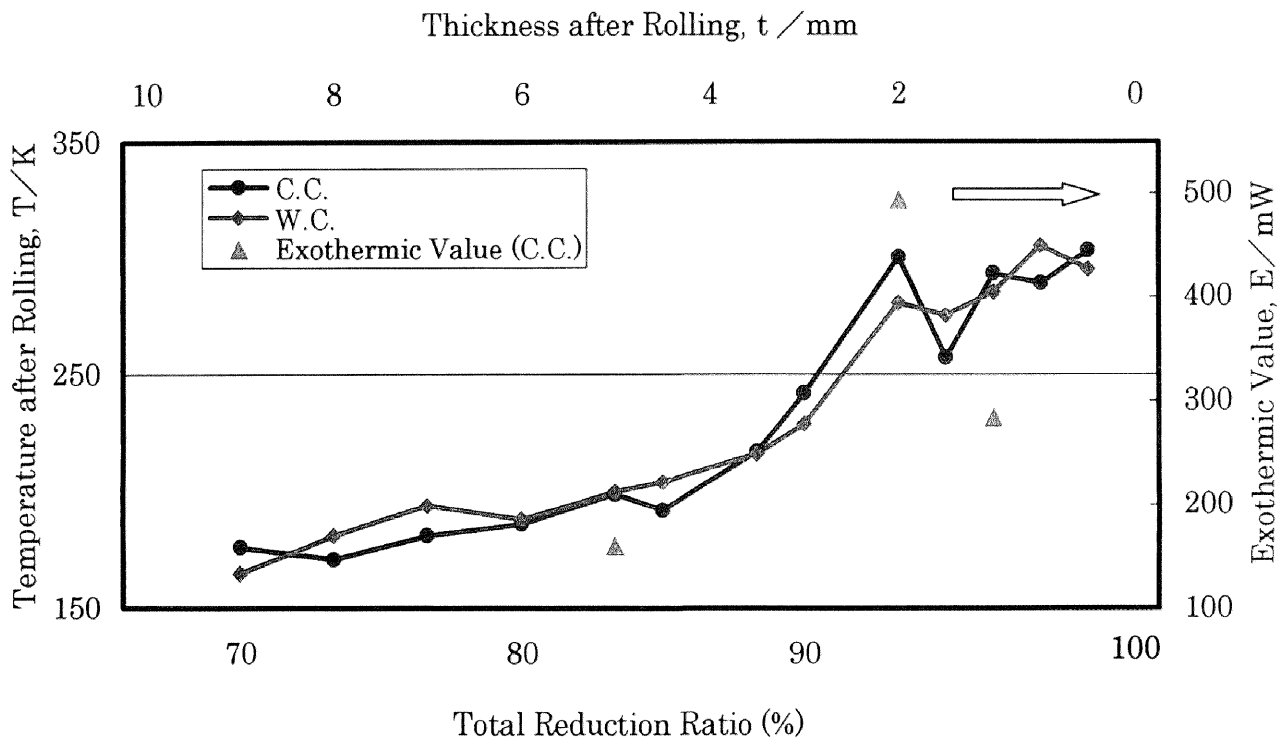


Fig.3-17 Relation between specimen temperature after cryogenic rolling or exothermic value and reduction ratio.

3.4 考察

3.4.1 前加工付与が結晶粒微細化に及ぼす影響

Fig.3-5 は A3004 合金材の温間および極低温鍛造後の変形の様子を縦断面にて観察したもので，温間鍛造の変形帯は交差が激しく極低温のそれに比べ明確な下部組織の発達が予想されるような変形帯[26]を形成している．Fig.3-6 に示した温間鍛造材の TEM 組織より，既に微細な結晶粒が幾つか形成されており，動的再結晶の作用を示唆する[14]小傾角粒界，セル組織および亜粒界[8-9,12,24]を確認することが出来る．更に，これら前加工処理材を同一圧下率で比較すると，WC 材は CC 材よりも強化され前加工付与効果は温間鍛造と極低温圧延の加工プロセスの方が有効なことを示している．これは温間鍛造中に形成される転位が極低温鍛造のそれよりも容易に運動し，上述した低角粒界や亜結晶粒界の存在によって加工により生成された転位が連続的にそれらに吸収される[8-9]ため微細で発達した組織形成に効果的であると考えられる．前加工付与材のみを比較すると温間鍛造材が極低温鍛造材の機械的特性および組織変化が優れていることから，動的回復および再結晶が連続的に作用することが最も結晶粒微細化に効果的であると考えられる．これらは Fig.3-5 に示した極低温および温間鍛造後の縦断面光顕観察，Fig.3-6 に示した温間鍛造後の TEM 組織より明らかなように結晶粒の変形状態，せん断変形発生の有無，あるいは既報の低温圧延，温間圧延での光顕観察と TEM 観察から，温間加工での下部組織の発達が顕著なことからも容易に推定出来る[2,8]．

Fig.3-4 は WC，CC 材の極低温圧延過程中の圧下率の増加に伴う硬さの変化の一例を示したものである．元板厚に対し圧下率 67%まで鍛造した材料の硬さは温間および極低温鍛造で若干の違いを示しているが，既に供試材の 1.7～1.9 倍に達している．これは圧延加工のみを行なった RR 材，CR 材の圧下率 90%の材料と同程度である．圧下率 90%で比べると CR 材，RR 材で硬さの顕著な違いは見られない．同様な事実は室温および 77K で異方向圧延[17-18]，一方向圧延[17,25]した結果でも報告されている．また，圧延加工のみで更に 97.6%まで加工率を増加させも硬さはほとんど上昇しない[17-18]．これに比べ，これら鍛造材は加工の増加とともに硬さは増加し圧下率 98%で供試材の 2.8 倍(HV160)まで達している．すなわち，導入されたひずみも CR 材と RR 材に比べて増加すると同時に，鍛造時に形成された微細結晶粒により強度が向上したと推定される．一方，WC 材と CC 材間でも鍛造時の硬さの差がそのまま圧下率 90%に至っても維持されている．つまり，強ひずみ加工において大きなひずみを蓄積するには

圧延加工よりも鍛造加工が有効であり，鍛造加工における動的な回復あるいは再結晶について検討しなければならない．

これまで加工熱処理法による静的不連続再結晶について従来法の利用を踏まえ検討してきたが，静的再結晶よりも変形中に起きる動的再結晶が微細結晶粒の形成および機械的特性の向上に対する効果が高く，本章では鍛造という従来加工を用いても結晶粒微細化が可能なことを示す結果を得たため，負荷様式と加工条件および加工中に起きる組織変化について再検討する必要がある．

本研究で採用した前加工としての鍛造加工は，その後の圧延加工と組み合わせることで90%以上の圧下率でも硬さは圧延のみのそれとは異なり一定値にならず，むしろ上昇する傾向であった．より一層の高強度化を行なうには前加工での加工率増進を図ることが重要であり，前述した組織的観点からも微細結晶粒形成に寄与する因子である小傾角粒界，セル組織および亜結晶粒界[4]を連続的に発生させることが必要である[12]．同時に，圧延加工のみでは困難であった内部組織へのひずみを導入する一手法として，極低温圧延の前に鍛造加工により大きなひずみを試料内に練り込むことで，高強度化と微細結晶粒形成が可能なことを示唆した．

これまでの実験結果より，加工温度は冷間あるいは極低温よりも内部組織が活発に活動することが出来る温間加工[2,8,12]が結晶粒微細化にとって一つの重要な因子であると考えられる．このとき温間加工の利点は動的回復および再結晶を利用するため，加工後に行なう熱処理はより短時間になり，加工中においても再結晶温度を上回らないため結晶粒成長を抑止する点が挙げられる．

3.4.2 極低温圧延の特性とその役割

発達したサブグレインを有する下部組織の形成に前加工が有効であることは前節で述べた通りである．これに対して，その後の加工である圧延工程は単に必要な材料寸法に変形させるだけでなく，組織や機械的特性に対してどの様な寄与を果たすのか検討する．

第2章で示したFig.2-13はAl材の冷間圧延材と極低温圧延材の変形の様子を縦断面で観察したものである．極低温圧延では明らかに変形バンドが直線的であり，冷間圧延材のそれは波状の変形帯が見られる．直線的な変形バンドを形成するため，加工率が増加しても組織を均一に加工することが可能なことはFig.3-16からも明らかであり，組織を均一に加工するには極低温圧延[1,15-18]は有効であるといえる．Fig.4-17はWCとCC材の圧延後の試料温度変化と試料内部エネルギー量の変化を示したものである．圧下率85～90%以後試料板厚の減少とともに急激な温度上昇が見られる．これは室温および極低温ともに見られる現象であり，板厚が薄くなるに連れ試料発熱が激しく，加工時の入熱抑止のための極低温は効果的ではない．また，圧延加工時の材料の発熱により蓄積されたひずみの幾らかは解放されており軟化現象を示すはずであるが，Fig.3-4で示した硬さ測定から発熱反応が見られたにも拘わらず硬さの上昇が見られた．

硬さ測定結果において鍛造加工が微細結晶粒径製に効果的であったのは，Fig.3-6に示したTEM組織より明らかではあるが材料内部が十分発達していることが挙げられ，加工硬化を単に引き起こすよりは内部組織を発達させることがひずみエネルギー蓄積や機械的特性の向上に有効なことを示唆している．このときの変形機構は動的連続再結晶が低角粒界や亜粒界そして亜結晶粒の生成に有効であると考えられる．しかし，Al材の再結晶温度は加工率を変化させても，またWCおよびCC材に拘わらず大きな変化を示さず563～623Kの範囲内である．一方，前加工の無いRR材とCC材を比較しても両材料の硬さはほとんど変化が無い．これらの事実よりAl材においては冷間加工，極低温加工の違いは大きく現れないものの，板厚1.0mmの圧延加工材で縦断面を板厚方向に硬さを測定するとFig.3-16の様に極低温圧延材はほとんど一様な硬さを示す．これに対し，冷間圧延材のそれはロール接触部での表層部と中央部では値が疎らであり変形が一様でないことを示している[1,15-18]．

Fig.3-13(a)はWC材の圧延加工後TEM組織であるが，極低温圧延後にも拘わらず粒内に転位の少ない明確な微細結晶粒が形成されており，中には1.0μm以下の超微細粒の存在も確認できる．また，Fig.3-13(b),(c),(d)に示した30s焼なまし材のTEM組織およびFig.3-12に示したEBSP解析からも加工組織の残存は認められない．圧延加工後にこのような内部組織を示したためFig.3-14に

示すように非常に短時間の焼なましにて軟化状態に入ったと考えられる．このような微細粒形成に強ひずみ加工法がどのように影響したかを考えると，極低温圧延による加工ひずみ導入というよりは前述したように，前加工として取り入れた鍛造加工による下部組織の発達が影響しているものと考えられる．

更に同じ Al 材においても Al-Mn 系合金では加工率の増進とともに硬さは増加するものの，Al-Mg 系合金の場合は逆に硬さは飽和するという現象も見られる[10, 12]．既報によると，Al-Mn 系合金において 77%加工した場合のビッカース硬さは Mn 量が多くなるほど固さは増大し，低温加工材が室温加工材より硬さは 10～20%高くなっている．一方，Al-Mg 系合金では Mg 量の増大とともに硬さは増加するものの室温加工材と低温加工材ではほとんど差が無いか，もしくは極低温加工材の硬さが低くなると示され，これを Fig.3-18 に示す[10]．一般に，Al 原子に対して Mg 原子が大きいことから，Mg 原子がコットレル雰囲気を形成して転位を固着させ，マトリックスを強化させる作用があることが知られている．しかし，低温では室温に比べ Mg の拡散速度が遅く，Mg が転位を固着する位置に移動しにくいため，室温加工材の場合ほどひずみが蓄積されないと考えられる[25]．

以上より，Al 材について圧延過程での極低温圧延は板面内での組織均一性[1,15-18]をもたらすが，加工ひずみエネルギーの蓄積および増加に対して顕著な効果を示さず，使用合金により極低温における硬さ増加傾向は異なると考えられる．

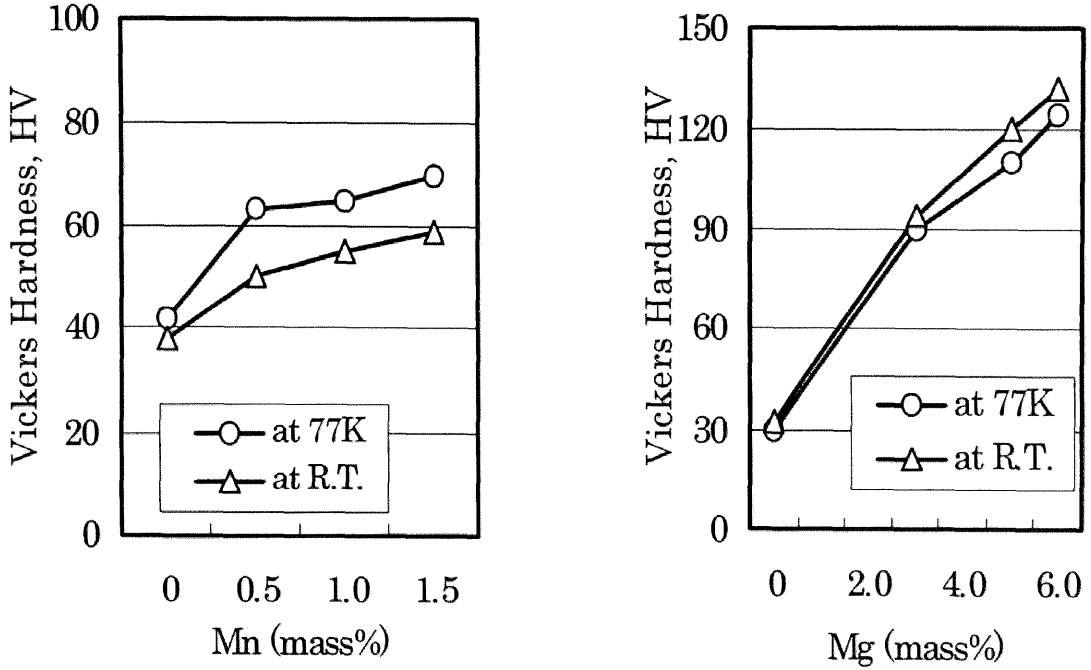


Fig.3-18 Relation between Mn or Mg addition and Vickers hardness after worked to 77% at various temperatures.

3.4.3 強ひずみ加工材の機械的特性

A3004 合金に対し温間鍛造付与極低温圧延(WC)を圧下率 98%まで施すことで，加工材の引張強さと降伏応力は Fig.3-7(a)より最大で，それぞれ 450MPa および 400MPa まで強化することが出来た．前加工を付与しない RR 材，CR 材の圧下率 98%における強度は加工材において引張強さ 390MPa，降伏応力 375MPa であり RR 材と CR 材でその差は見られない．これを 623K にて 300s の再結晶処理を施した RR 材は引張強さ 190MPa，降伏応力 90MPa，破断伸びは 20%と報告されている [15-18]．これに比べ，WC 材を 583K，300s の再結晶処理後では Fig.4-7(b)より引張強さ 210MPa，降伏応力 110MPa，破断伸びは 26%となる．再結晶温度は幾分異なるものの，前加工を付与することで加工材および再結晶処理材ともに引張特性はより高い値を示す．このとき破断伸びも改善しており，組織均一性に有効な極低温圧延と強ひずみ加工によりあらかじめ材料内部にサブグレインや低角粒界を形成した後に再結晶処理したため，結晶方位はランダムな配向性が高くなり破断伸びの回復に繋がったと考えられる．

一方で，加工材の破断伸びは 10%以下に低下しており，破断伸びは焼なましにより回復させることが可能であるが，加工材時点において破断伸びと強度のバランスがとれた材料創製には至らず ECAP[7,14]および ARB[9,13]と同様の傾向を示した．

ECAP や ARB による超微細粒の創成加工手法では，1 μm 以下の超微細粒結晶粒が得られ，高強度を示す材料が得られている．しかし延性が加工量の増加とともに損なわれ，高温焼なましを行なうことで強制的に延性を回復させている．これらの手法を用いた A1100 合金において，伸びを得るため 573K にて 300s の再結晶熱処理を行なうと結晶粒は 4.9μm となり引張強さは加工材に比べ 3^{-1} に低下し，強度は加工前レベルに戻るため，高強度を維持したまま伸びを改善することは困難であると考えられている [27]．この理由として，微細粒材料あるいはサブグレインを含む組織の結晶粒界は直線的ではなく，曲線的であり熱的に非平衡 [14,22-23]であることが挙げられる．一方，A3004 合金でも ECAP 法により引張強さと降伏応力の再結晶処理後における低下率は前述した A1100 合金と同程度である [22]．

本研究での WC 材を 583K にて 300s 再結晶処理した場合，Fig.3-7 と Fig.3-8(a)に示した通り引張強さ，降伏応力は加工材に比べ A1100 合金ではそれぞれ 2^{-1}，A3004 合金ではそれぞれ 2^{-1}，3^{-1} と低下している．ECAP や ARB に比べ引張強さの低下割合が少ない要因として ECAP および ARB とも加工後既に超微細結晶粒（未再結晶組織が残存している）が形成されており，既に形成された結晶粒がその後の熱処理による熱エネルギーを容易に吸収し，粗大化し

てしまうことが挙げられる．この現象は多くの強ひずみ加工材において見られ，その因子として創製した微細粒の粒界が非平衡状態にあり熱的に不安定[14,22-23]なことが挙げられる．これら二つの加工法は動的連続再結晶によるものであり，これに比べ前加工付与極低温圧延法は転位密度を高めるタイプの加工法のため[11,15-16]，再結晶処理した場合，静的不連続再結晶が作用する結果として，再結晶核の生成が起き再結晶粒が形成される．そのため，既に結晶粒界は平衡状態にあり同じ時間の熱処理を付与しても，結晶粒が粗大化を開始するまでにやや時間が掛かるためと考えられる．

次に温間鍛造付与極低温圧延材の圧下率 98%における A1100 合金，A3004 合金の加工材と同条件下での再結晶処理材では引張強さ，降伏応力の向上と低下度合いが上述したように異なる．この違いは Table 3-1 の合金組成値を参照すると，Mg 含有量の大小に対応していることがわかり，ECAP においても A1100 合金，A3004 合金，A5083 合金の順で強度は同加工率において高くなっていることからも明らかである．全ての合金は供試材段階では十分焼なまされた状態にあり，晶出粒子や析出粒子は大きくなり強度にはあまり影響を及ぼさず，強度はマトリックスに固溶した Mg による固溶強化により支配されると考えられる[14,25]．

前加工付与極低温圧延加工において，圧延加工のみの加工材よりも強度は向上し，結晶粒径も 3μm 以下まで微細化させることが可能となった．しかしながら，加工量の増加に伴い著しく破断伸びが減少し工業用材料として用いるには，なお加工プロセスに課題を残す結果となった．

3.4.4 焼なまし組織と機械的特性

Fig.3-14 からも明らかなように，A3004 合金では 583K 一定の下で再結晶処理を行なうと 30s で既に軟化傾向を示し，その後浸漬時間を変化させても硬さは一定値を維持したままである．しかし，降伏応力は Fig.3-10 から浸漬時間の増加に伴い 30～300s で約 50MPa 程低下する．その原因の一つに粒成長が考えられ，これは Fig.3-12 の EBSP 測定からも明らかである．よって A3004 合金における最適浸漬時間は 30s と考えられ，Fig.3-13 に示した TEM 組織からも再結晶粒を確認することができた．一方 A1100 合金では，Fig.3-13 に示した TEM 組織では 1.0μm の微細結晶粒を確認することもできたが，Fig.3-8 に示したように浸漬時間 30s では破断伸びが回復せず，十分な破断伸びを回復するための熱処理時間に 150s を要している．つまり，A1100 合金の最適な浸漬時間は 150s と判断できる．ここでは伸びが回復した時点を最適浸漬時間とした．

A3004 合金においては Fig.3-13(a)に示すように，極低温圧延加工材において既にサブグレインが確認されており，LN 温度域でこのようなサブグレインが観察された理由として，強ひずみ加工によって非常に狭い範囲での大きな方位変化，すなわち大きな局所方位差[2,12]が多数導入されたことと，Fig.3-17 に示したように板厚が薄い段階（板厚 2.0mm）では，加工による入熱が著しく，圧延加工中に組織が一部回復し転位密度の高い個所に亜結晶粒界やサブグレインを生成した可能性が挙げられる．すなわち動的回復と再結晶が起きたことを示唆するものである．

このように再結晶に対する駆動力の増加を図るだけでなく，組織を回復させ加工ひずみの一部を亜粒界もしくはサブグレインへ転化し，次の圧下の際にこのサブグレインの傾角増進および亜結晶粒界にある転位の解放を連続的に行なえば，加工硬化は著しいものとはならずに延性を維持した微細結晶粒材の創製が可能であると考えられる．そのためには，回復現象が容易に起こりうる温間域での加工が必要であり，動的連続再結晶による結晶粒微細化を行なうことが有効である[12,24]．

Table3-3 に示した EBSP 解析より傾角別平均結晶粒径を測定すると結晶粒界方位差 5°～15° ではほとんど変化が無い．これらの解析結果より，この再結晶粒は比較的大きな傾角を有しており亜結晶粒では無く結晶粒であることがわかる．これは純アルミニウムの傾角最大分布が 10° 前後に存在する結果と大きな違いが無い[22]．

現在，種々行なわれている結晶粒微細化法の特徴として，強ひずみ加工によれば高強度化は可能であるものの，破断伸びは 10%以下まで低下するため，焼なましにより延性を回復させている．しかしながら，本研究においても結晶粒

径 3.0μm 以下，かつ高強度材料の創製には成功したものの，一方で破断伸びの損失が大きく工業用材料として用いるには問題がある．今後は，破断伸びを如何に損なわずに高強度化，ひいては結晶粒径をサブミクロンオーダーに微細化できる加工法を考案しなければならない．同時に，微細粒材料を実用化するには，結晶粒径と破断伸び（均一伸びと局部伸び）さらに強度の関係を明確にし，加工プロセスを簡易化する必要がある．

3.5 結　言

強度向上のための微細結晶粒を得る手段として，工業的にも容易な鍛造による前加工と組織変化が均一である極低温圧延加工を組み合わせて結晶粒微細化を行なった．ここで，鍛造温度はAl合金の組織の回復温度に相当する温間と転位密度を高めることが可能な極低温の 2 通りにて行なった．鍛造を用いた理由は，温間鍛造では材料内部を予め鍛造による鍛錬にて十分に加工することで発達した組織を形成させることであり，極低温鍛造では駆動力の考えに基づき材料内部の転位密度を増加させることにある．これら従来設備を利用し結晶粒径3μm程度の微細粒が得られるならば，実工程へ結晶粒微細化法を適用するに重要な進展であると考えられる．前加工付与圧延加工における加工プロセスおよび組織変化が結晶粒微細化と機械的特性にもたらす結果は以下に示す通りである．

(1) A1100 合金および A3004 合金に前加工を付与した場合，極低温下において圧下率 98%以上の強加工が可能である．また DSC により加工材の発熱および吸熱反応を調べた結果，再結晶温度は 583K であった．

(2) 使用合金により再結晶温度に大きな違いは生じなかったものの，その後の再結晶処理における最適な浸漬時間には差異が見られた．これは合金組成および材料内部に存在する低角粒界あるいは亜結晶粒の頻度に依存する．

(3) 前加工として試料内部に大きなひずみエネルギーを付与蓄積するために採り入れた鍛造による鍛練は結晶粒微細化および加工中の内部組織変化に効果的であった．温間鍛造後極低温圧延を施した圧下率 98%加工材の引張強さ，降伏応力およびビッカース硬さは A3004 合金においてそれぞれ 450MPa，390MPa および HV160 であった．また加工材のままで 7~8%の破断伸びを示した．

(4) 極低温圧延は試料内部での組織均一性をもたらすが，加工ひずみエネルギーの蓄積および増加に対して顕著な効果を示さず，使用合金により極低温における硬さの増加傾向は異なる．

(5) 本加工プロセスにおいて結晶粒微細化に対して最も効果的であったのは温間鍛造であり，亜結晶粒および低角粒界の生成が活発に行なわれていた．

(6) 98%加工材を 583K にて 30s の再結晶熱処理を行なった結果，粒界方位差を十分に有する平均結晶粒径 3μm 程度の微細な結晶粒を得ることができ，このとき引張強さと降伏応力は供試材のそれと比較してそれぞれ最大で 2.5 倍の上昇を示し，加工組織の残存は確認されなかった．

(7) 極低温圧延を実施したにも拘らず，板厚が薄くなるに伴い極低温の効果は薄れ，板厚 2mm時で加工による入熱が大きくなり，組織の一部が回復を起こした結果転位が開放された．このため，加工材において亜結晶粒と一部では結晶粒が確認され，その結晶粒径はいずれも 1μm以下であった．

(8) 本章において目標とした結晶粒径 3μm の微細材の創製は加工方法を工夫することで，従来設備を利用しても可能であり圧延加工のみによる結晶粒微細化では強度の向上は供試材の 1.2 倍にとどまったが，前加工を付与することで 2.5 倍まで達することが可能となった．

参考文献

(1) M. Noda, K. Funami and M. Kobayashi: J. Japan Inst. Metals 64 (2000) 395-398.

(2) N. Tsuji, T. Murakami and Y. Saito: J. Japan. Inst. Metals 63(1999) 243-251.

(3) Q. Cui, M. Nomura and K. Ohori: *Proc. of the second sympo. on Super Metal,* (JRCM, 1999) 241-259.

(4) H. Utsunomiya, K. Tanda, Y. Saito, T. Sakai and N. Tsuji: Jurnal of the JSTP, 40 (1999), 1187-1191.

(5) M. Furui, T. Kawakami and O. Sazi: J. Japan Inst. Light Metals 52 (2000) 339-345.

(6) Q. Cui, K. Ohori: J. Japan Inst. Light Metals 50(2000) 335-340.

(7) Z. Horita, M. Furukawa, M. Nemoto and T.G. Langdon: The Heat Treatment, 41 (2001), 68-74.

(8) M. Noda, M. Hirohashi and K. Funami: J. Japan Inst. Metals 67 (2003) 98-105.

(9) Y. Saito, H. Utsunomiya, N. Tsuji and T. Sakai: Acta Mater., 47 (1999), 579-583.

(10) I.V. Alexandrov, Y.T. Zhu, T.C. Lowe, R.K. Islamgaliv and R.Z. Valiev: Nanostruct. Mater. 10 (1998), 45-54.

(11) T. Maki: *New approach to grain refinement,* JIM Seminar Text, (The Japan Inst. of Metals, 2000) pp 9-15.

(12) T. Sakai: *New approach to grain refinement,* JIM Seminar Text, (The Japan Inst. of Metals, 2000) pp 83-86.

(13) Y. Saito, H. Utsunomiya, N. Tsuji and T. Sakai: *Proc. of the second sympo. on Super Metal,* (JRCM, 1999) 261-269.

(14) Z. Horita: *Proc. of the second sympo. on Super Metal,* (JRCM, 1999) 271-279.

(15) M. Kobayashi: J. Japan Inst. Light Metals, 39 (1989), 776.

(16) M. Kobayashi, K. Funami: *Proc. of the second. on Super Metal* (JRCM, 1999), 281-290.

(17) S. Saji: *Present Status and Future Prospect of Aluminum Super Metal Project,* JRCM, (1998), 94-110.

(18) M. Furui, M. Noguchi and S. Saji: J. Japan Inst. Light Metals, 49(1999), 209-213.
(19) S.D. Terhune, Z. Horita, M. Nemoto, Y. Li, T.G. Langdon, and T.R. McNelley: *Proc. of the 4th Int. Conf. on Recrystallization and Related Phenomena*, (1999), 515.
(20) O. Umezawa: J. Japan Inst., Light Metals 50(2000) 86-93.
(21) S. Suzuki: Materia Japan 40(2001) 612-616.
(22) P.B. Berbon, S. Komura, A. Utsunomiya, Z. Horita, M.Furukawa, and
(23) T.G. Langdon: Mater. Trans., JIM, 40-8(1999), 772-778.
(24) X. Yang, H. Miura and T. Sakai: J. JIM 59(1995) 1222-1229.
(25) H. Esaki and K. Shibue: *Proc. of the third second. on Super Metal* (JRCM, 1999), 231-239.
(26) M. Hatherly and A.S. Malin: Metals Technology, August (1979), 308-318.
(27) K. Funami, R. Sano: *4th Pacific Rim Int. Conf. on Advanced Materials and Processing* (Japan Inst. Metals, 2001) 1983-1986.

第４章

アルミニウム合金の結晶粒微細化へ及ぼすひずみ負荷様式の影響

Chapter 4

Effect of Strain Loading Process on Grain Refinement in the Aluminum Alloy

Abstract

Grain refinement of aluminum alloy can be achieved by introducing a large amount of lattice dislocations during an intense heavy plastic deformation. In this paper, the effect of the strain loading process on the grain refinement and mechanical properties in aluminum alloy was investigated, in terms of mechanical properties, grain boundary misorientations and microstructures. Uniaxial or biaxial forging was performed at 473K for the grain refinement of the 1100 aluminum. In biaxial forging, the work pieces were rotated by 90° on the longitudinal axis in each forging process.

As the result, the bulk materials with biaxial forging at 473K showed a significant development in grain refinement; to the grain sizes less than 1μm. On the other hand, these fine grains of sub-micron size were never obtained through a uniaxial forging even at the same temperature. In the biaxial forged materials, it was shown by using high resolution EBSP and TEM that most of fine grains were surrounded by high-angle and random boundaries whose misorientations are larger than 15° . The formation of these fine grains during the forging and reheating process was deeply associated with the development of the sub-grain boundaries within the larger grains surrounded by high angle boundaries. Tensile test at room temperature showed that strength increases with an increase of strain in biaxial forging and also larger total elongation is obtained in comparison with a uniaxial forging material. The yield stress and tensile strength in the biaxial forged materials are higher than that in the uniaxial forging process, when they are compared under the same amount of pre-deformation.

As described above, multi-axial forging technique is one of the most effective methods to produce fine grained structure and enhance strength without a decrease of ductility.

Key words: strain loading process, fine grain refinement, mechanical properties, multi-axial forging, high-angle boundaries, 1100 aluminum

4.1 緒　言

第 3 章までに転位を材料内部に蓄積し転位密度を増加させ，その後の熱処理にて微細粒を得るいわゆる静的不連続再結晶を利用することで，実工程への適応を前提とした高強度を有する微細粒材料創製のための結晶粒微細化法の確立に取り組んできた．すなわち，圧延加工前に前加工として鍛造を採り入れた場合，結晶粒微細化は従来の加工プロセスの組み合わせのみでも十分可能であり，そのとき得られる結晶粒径は 3.0μm 程度であることを示した．しかしながら，結晶粒径を更に 3.0μm 以下の粒径 1μm 以下に超微細化することで機械的諸特性が向上することが期待できる [1-3]．

本章では第 3 章において結晶粒微細化に効果的であった温間域における鍛造加工を採用し，負荷様式と組織変化の関係および機械的特性の向上と結晶粒の種々の特性について検討を加えた．これまでの研究結果より，従来法を利用し結晶粒をより微細にするには変形中に起こる組織の回復を利用した亜結晶粒および低角粒界の生成による局所方位差の導入 [2] と同時に，動的連続再結晶あるいは回復現象 [2] を引き起こすことが必要であると推測される．そのため，これまでの転位密度の増加に伴い微細結晶粒を得る，すなわち駆動力的概念 [1,4] と対称にある動的再結晶を利用した加工方法を確立する必要がある．動的再結晶において重要なことは回復温度における加工と転位の導入による低角粒界の生成である．低角粒界では転位が材料内部に多量に蓄積されても核生成サイトとして作用せず，転位を吸収することにより粒界の方位を増進させている [2,3]．結晶方位を増進させながら動的連続再結晶を引き起こしながら材料内部に局所方位差を導入するための手段としては，強ひずみ加工法が最も適切であると考えられる．

微細結晶粒をもつ材料は室温での強度が極めて高いことに加え，低温高速超塑性の発現 [2-4] や疲労特性の向上 [5] など優れた性質を示すことが知られている．微細結晶粒を得るための手法は多岐に渡り，バルク材に対しては ECAP(Equal Channel-Angular Pressing)[6-10]，ARB(Accumulative Roll-Bonding)[11-14]，異周速圧延法 [15]，極低温圧延法 [16-20]，といった強ひずみ加工法が提案されている．これまでの強ひずみ加工による結晶粒微細化に関する研究において，微細化された材料の破断伸びは著しい減少を示すことが明らかとなっており，強度を保つと同時に破断伸びの損失を最小限にとどめるために焼なまし特性について研究が成されている [14,16,22-23]．前述のような結晶粒微細化法は容易に微細結晶粒を形成させ靭性を損なうことなく強度向上が可能な手法とされているが，加工段階における強度向上と同時に破断伸びの損失を抑止する有効な負荷様式の選定と組織的因子の関係における報告は数少ない．そこで，強度向上が困難とさ

れている工業用純アルミニウムを用い一軸，あるいは二軸から負荷し結晶粒微細化を行うことで，高い強度を維持したまま破断伸びの大幅な減少を抑止するために必要な因子と，ひずみ負荷様式の違いによる組織変化との関係を調べることにした．本研究では，どの様なひずみ負荷様式を材料へ適用することが微細粒形成をより容易に可能なものとするか，負荷様式の違いによる機械的特性および組織変化を比較検討し強度と破断伸びが両立する結晶粒微細化法を提案するものである．

4.2 実験方法

使用材料は工業用純アルミニウム(A1100-O 材)であり，Table 4-1 にその化学組成を示す．材料は鋳造材で均質化熱処理を 853K にて 28.8ks 施し，平均結晶粒径 64μm の等軸結晶粒を得た．これを供試材とし Fig. 4-1 に示す加工模式図のように，一軸鍛造(Uniaxial Forging)と二軸鍛造(Biaxial Forging)の二通りのひずみ負荷様式を採用した．一軸鍛造は一軸方向から，二軸鍛造は各パス毎に試料を 90° 回転させ二軸方向から繰り返し交互に負荷したものである．供試材寸法は，板厚 50mm，板幅 50mm，長さ 50mm とした．両負荷様式とも供試材を 473K，3.6ks 加熱保持後，基板厚に対し一回の加工率を 20%の圧下率で制御し，相当ひずみ($\bar{\varepsilon}$)は加工前後の試料寸法変化より求めた．加工後は毎回 473K，1.2ks の再加熱を行い加工終了後は手早く水焼入れを行った．用いた加熱温度は再結晶温度 600K 以下で，第 2 章で述べた DSC 解析より定めた．

一軸および二軸鍛造加工材より，板厚 1mm，板幅 3mm，長さ 5mm の平行部寸法を有する小型引張試験片を RD-TD 面から採取し，室温引張試験に供した．引張方向は RD 方向と平行であり，初期ひずみ速度 $1.67 \times 10^{-3}\ s^{-1}$ にて行った．

組織観察は光学顕微鏡および透過電子顕微鏡(TEM)を用い，RD-ND 面上にて行った．TEM 観察は試料を機械研磨した後，イオンミリングにて薄膜化したものを，加速電圧 200kV で行った．光顕または TEM 組織写真へ切片法[24]を適用して結晶粒の平均切片長さを求め，それを平均結晶粒径とした．また，同一面上における EBSP 解析[25-27]より結晶粒間の方位差を求めると同時に，平均結晶粒径の算出や方位マッピング像を作製し，機械的特性との関連性について検討を加えた．

Table 4-1 Chemical composition of 1100 aluminum alloy (mass%)

	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
A1100	0.13	0.55	0.07	0.003	—	—	0.002	0.02	bal.

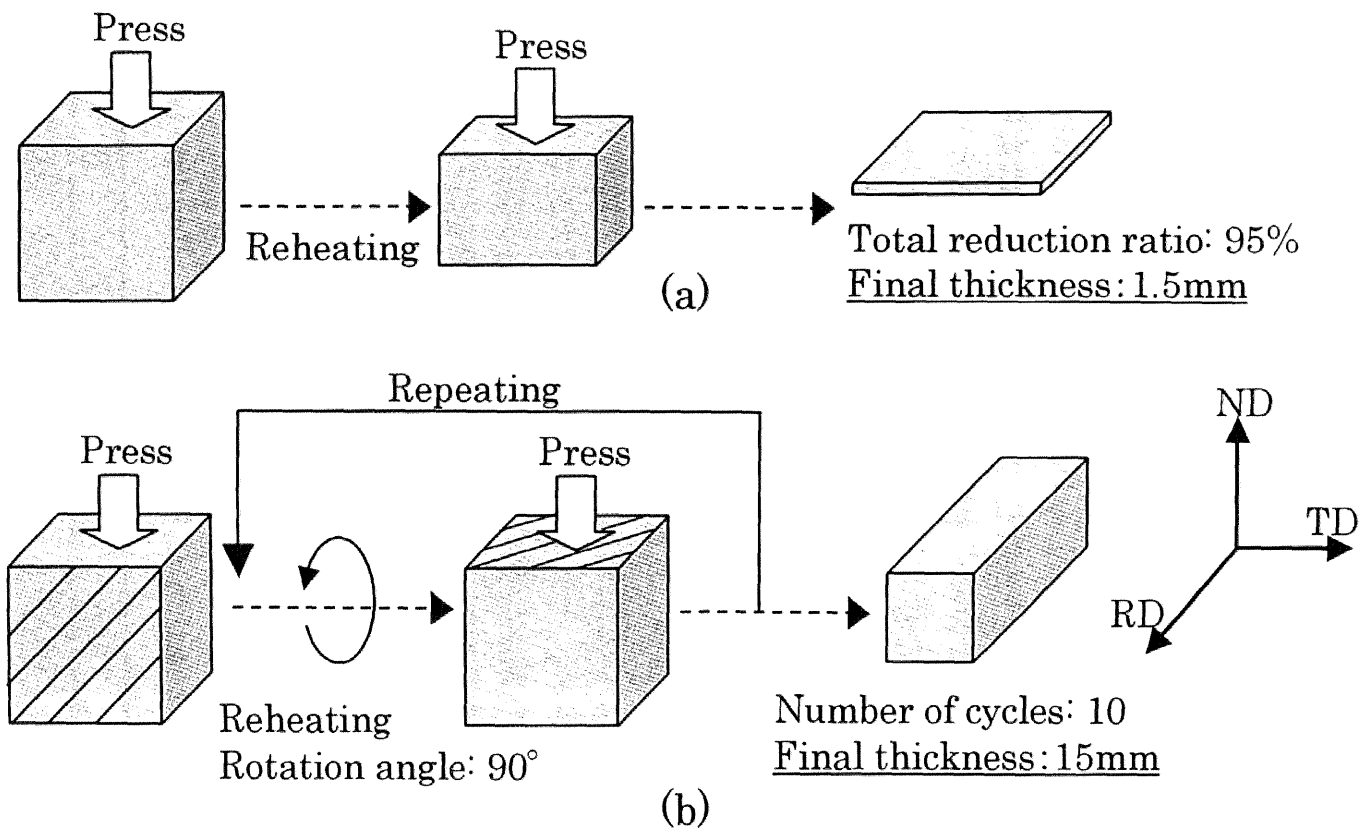


Fig. 4-1 Schematic illustration of the working process for the multi-axial alternative warm forging. (a) uniaxial forging, (b) biaxial alternative forging.

4.3 実験結果

4.3.1 負荷様式の差異が機械的特性に及ぼす影響

Fig.4-2 に一軸，二軸鍛造材の加工量の増加に伴う加工材と加工後に 473K, 1.2ks 熱処理を施したものの硬さを示す．両鍛造材とも加工後と熱処理後の硬さに大きな差は見られなかった．この熱処理条件は各パス後に行った再加熱条件と同一である．両加工材とも相当ひずみ($\bar{\varepsilon}$) 0.5 程度まで硬さは著しく増加し，供試材時の 1.5 倍に達している．その後，加工量の増加とともに一軸鍛造材の硬さはさらなる上昇を示した．これに対して二軸鍛造材のそれは$\bar{\varepsilon}$=0.7 以後，硬化の進行が抑えられほぼ一定値を維持している．何れも二軸鍛造材の方が低い硬さを示すが，最終的に一軸，二軸鍛造材の硬さはそれぞれ供試材の 2.2 倍，1.7 倍に達した．また，低ひずみ領域では両加工材とも加工硬化が回復現象を上回り加工硬化を示すが，中ひずみ領域以降では一軸鍛造材は引き続き緩やかな加工硬化を示すのに対し二軸鍛造材の硬さは一定値を示す．後述する TEM 組織および EBSP 解析からも明らかではあるが，二軸鍛造材では低ひずみ領域において既に高ひずみ転位セル壁を生成し，中ひずみ領域では結晶粒界がより鮮明な結晶粒組織を形成後に結晶方位が増進し等軸結晶粒が形成され，加工の早い時期で加工硬化が飽和していると考えられる．

一軸，二軸鍛造材の引張試験結果を Fig.4-3(a)および(b)に示す．両加工材とも引張強さは加工量の増加に伴い向上するが，二軸鍛造材では$\bar{\varepsilon}$=1.5 で 180MPa まで到達し，以後ほぼ一定値を維持するものの，一軸鍛造材では$\bar{\varepsilon}$=1.57 で 150MPa を示した後，加工量の増加とともに引張強さは上昇する傾向にある．この傾向は Fig.4-2 に示した硬さ試験結果とよく対応している．最終的な引張強さは一軸および二軸鍛造材とも大差は示さないが，破断伸びは一軸鍛造材では 10%未満であるのに対し，二軸鍛造材では引張強さの向上に伴う破断伸びは急激な低下を引き起こすことなく加工後においても約 26%を維持した．また，公称応力－ひずみ線図に着目すると Fig.4-3 より一軸および二軸鍛造にて同一の加工量を付与した試片の公称応力-ひずみ関係に異なりが見られる．このように負荷様式を変化させることで引張強さはほぼ同一な値を示すが，破断伸びと加工硬化の進展状況が異なることが硬さ試験および引張試験結果から明らかとなった．

異なる負荷様式における光顕での組織変化を Fig.4-5 に示す．加工の初期では両材とも等軸結晶粒であるが，旧粒内と思われる中に新しい粒界が発生していることがわかる．更に加工の中盤では一軸鍛造材の組織は横方向へ伸張し様々

な方向へ変形帯[16,22,28]が形成されている．一方，二軸鍛造材では等軸の結晶粒を保っており，初期に比べ旧結晶粒内中に明瞭な新しい結晶組織が確認できる．加工の終盤では一軸鍛造材の板厚は1.5mmとなるため横方向へ伸張した組織を形成しており一つの組織は非常に厚いのに対し，二軸鍛造材ではファイバー状の組織となり非常に薄い組織を形成している．この時の板厚は15.0mmである．

相当ひずみで$\bar{\varepsilon}$=2.5付与した加工材のTEM組織をFig.4-6に示す．一軸，二面鍛造材とも縦断面から試料を採取している．この時の平均結晶粒径はそれぞれ1.0μmと0.5μmであり，両材とも回折パターンがリング状を描いていることから隣接間粒界方位差が大きい高傾角粒界を有した微細粒材料であることが明らかである[14-15]．

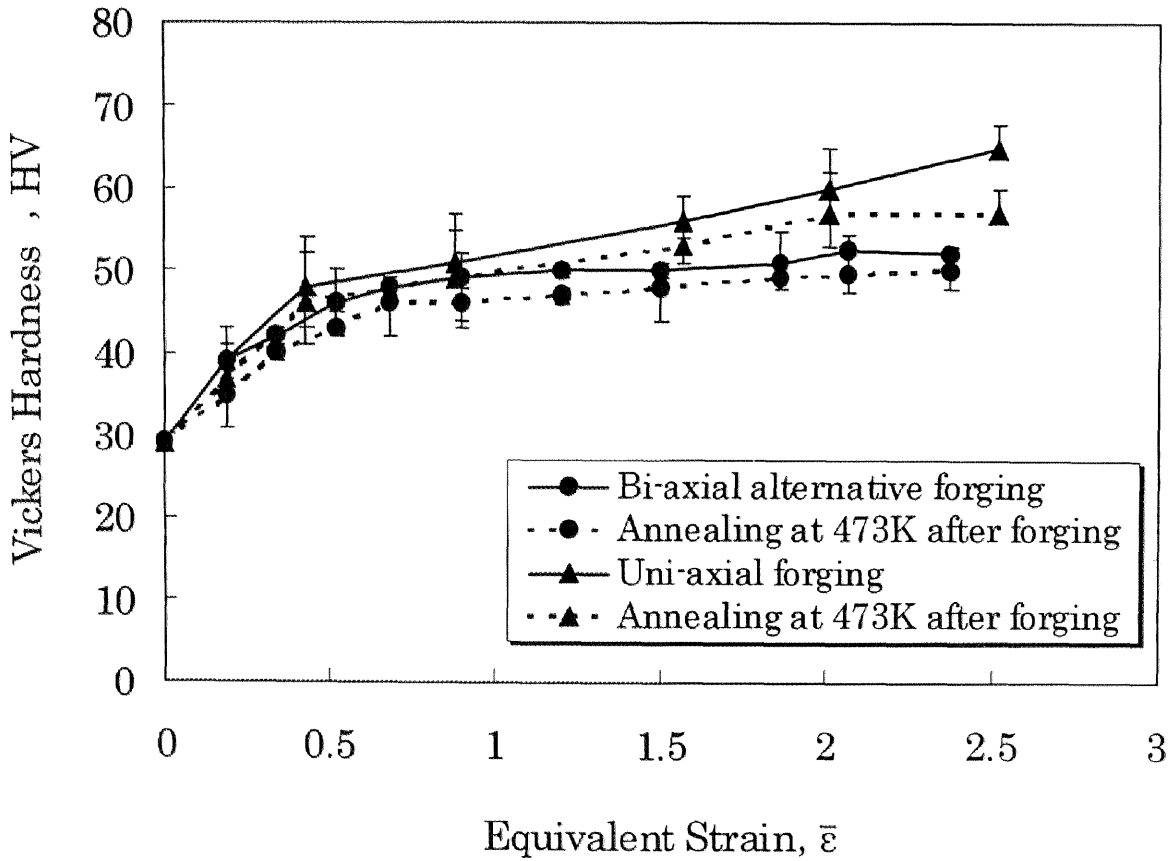


Fig. 4-2 Relation between Vickers hardness and equivalent strain in the 1100 aluminum annealed at 473K for 1.2ks after different forging processes.

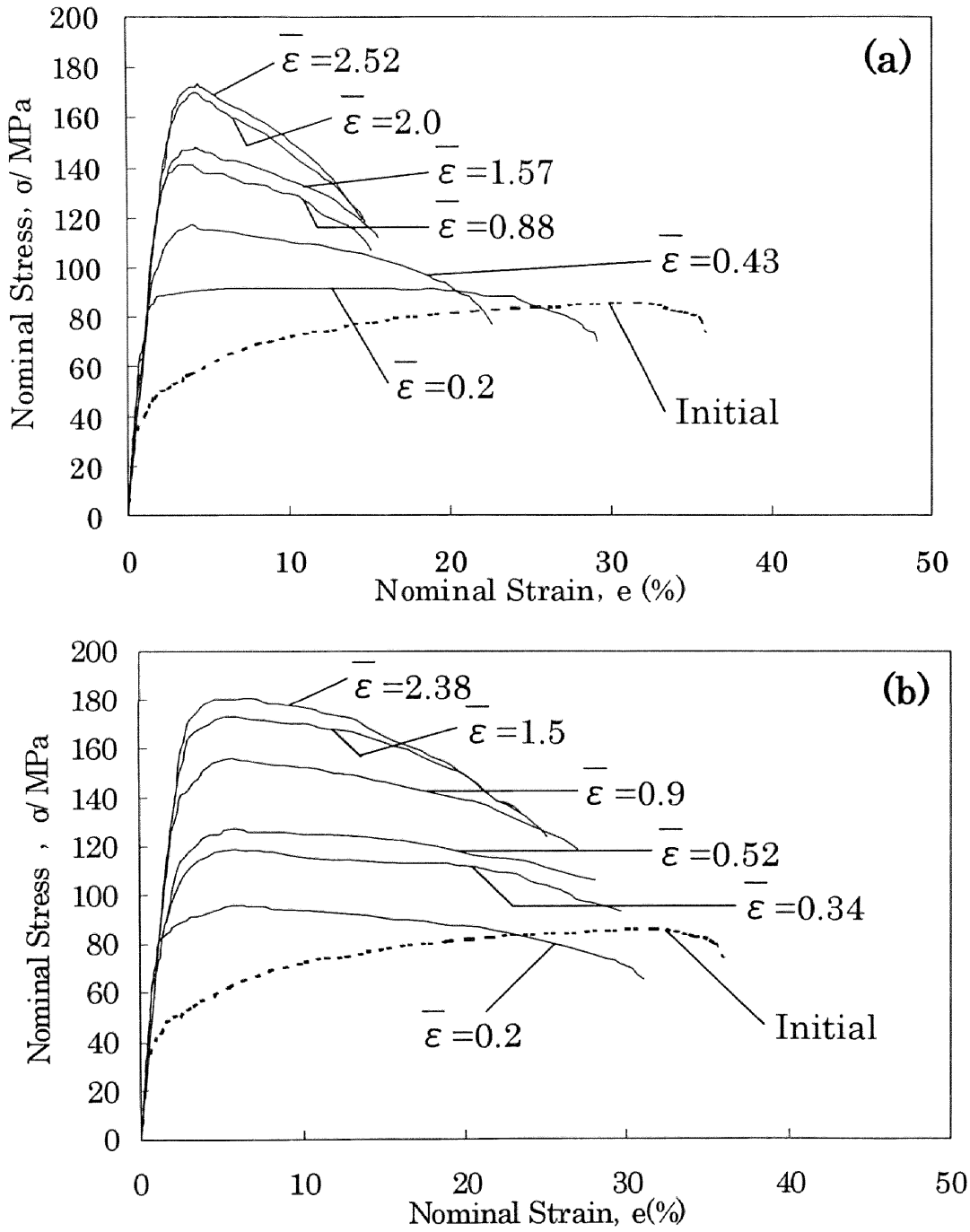


Fig. 4-3 Nominal stress - strain curves of the 1100 aluminum alloy. Pre-deformed by equivalent strain $\bar{\varepsilon}$ through different forging processes; (a) uniaxial forging, (b) biaxial forging.

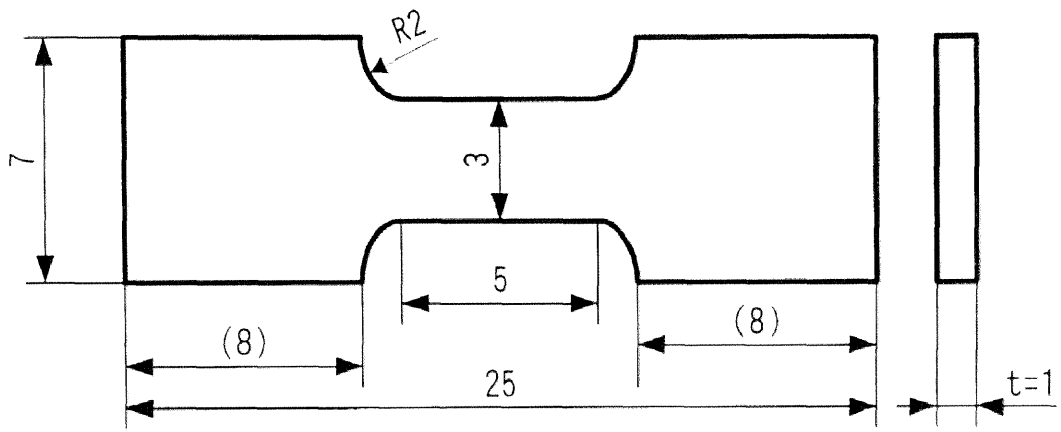


Fig.4-4 Dimensions of tensile specimen

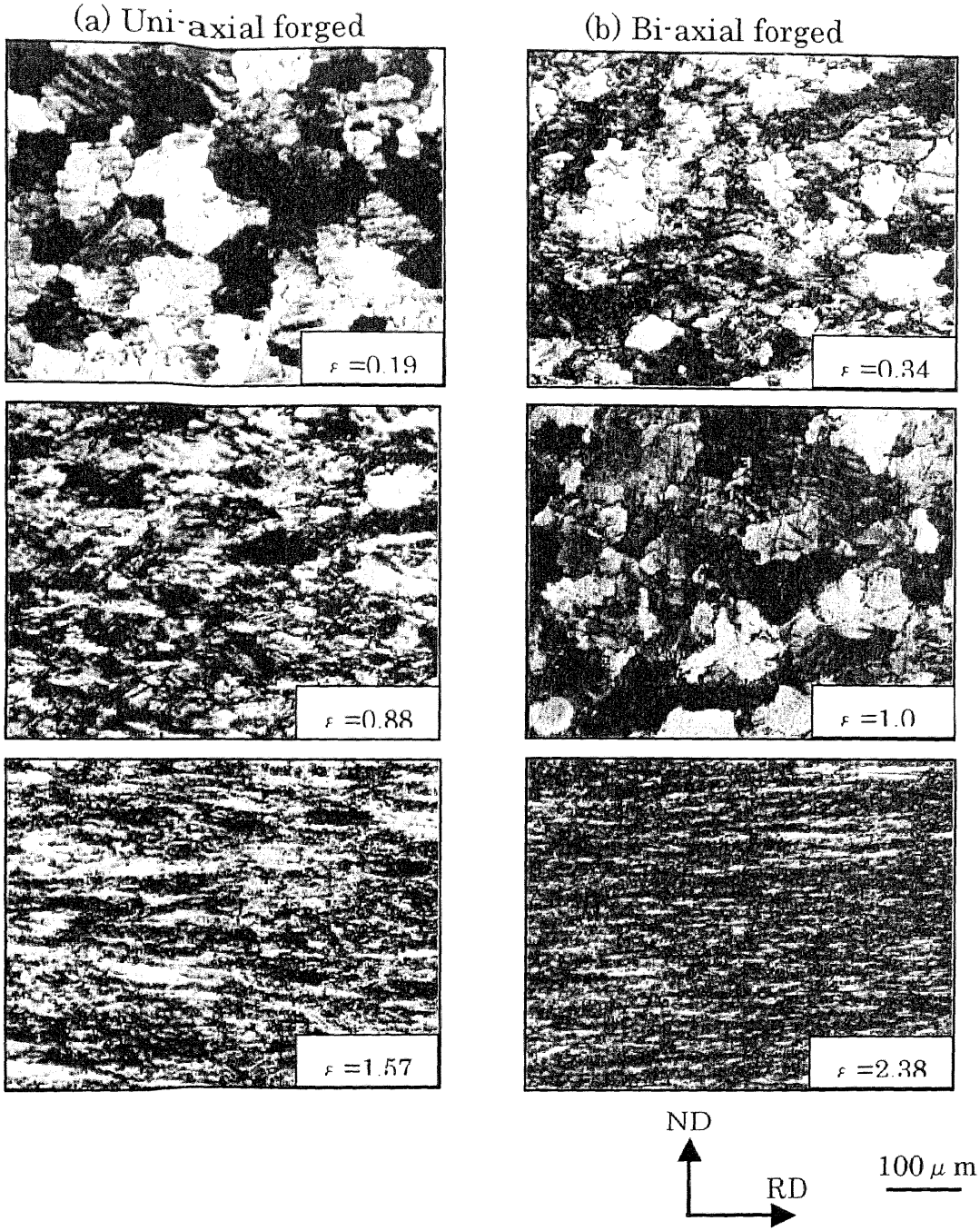


Fig.4-5 Microstructure of 1100 aluminum alloy obtained by two kinds of warm forging specimens to various reduction (a) uni-axial forged and (b) bi-axial forged.

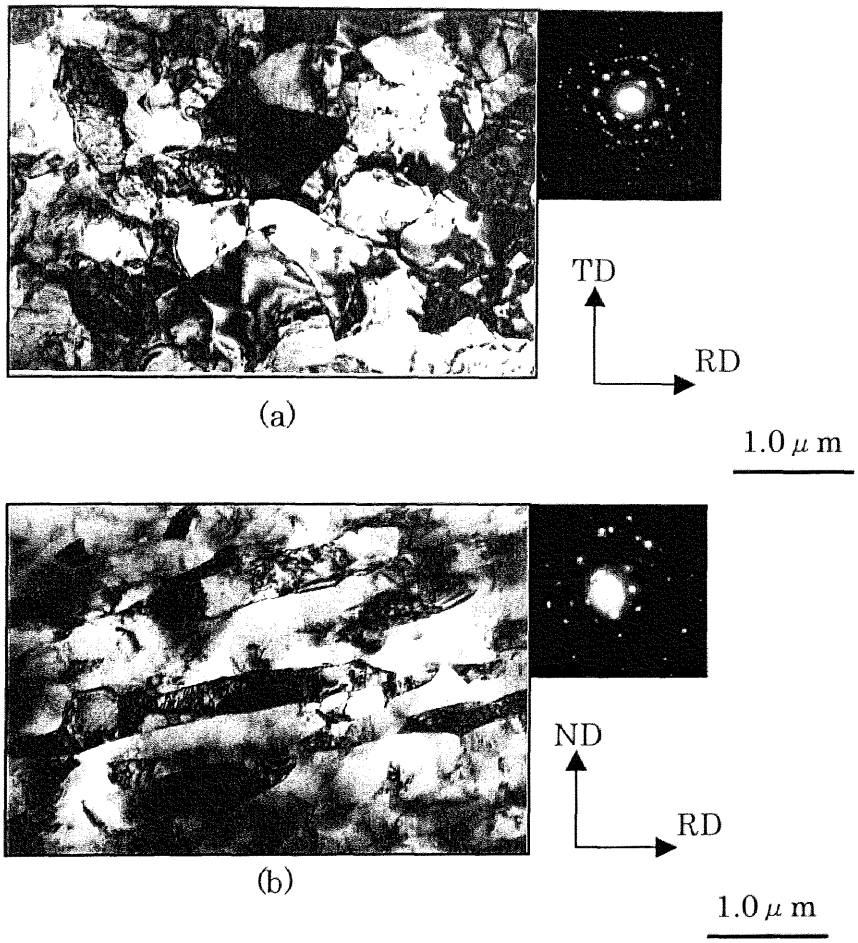


Fig.4-6 TEM microstructure of 1100 aluminum alloy obtained by two kinds of warm forging (a) uni-axial forged ($\dot{\varepsilon}$ =2.52) (b) bi-axial forged ($\dot{\varepsilon}$ =2.38).

4.3.2 微細結晶粒の形成

本項では加工の進展に伴う負荷様式の差による組織変化を Fig.4-7 に示す．Fig.4-7 (a)-(c)は一軸鍛造材を，Fig.4-7(d)-(f)は二軸鍛造材の TD 面観察による TEM 組織である．TD 面では結晶組織が負荷軸に対して垂直方向へ伸長した組織が観察された．Fig.4-7(a)および(d)より加工量の少ない段階では旧粒界近傍へ多量の転位が導入されている．導入された転位は旧粒界近傍および結晶粒内に高密度転位セル壁を形成した後，加工の進展とともに Fig. 4(b)と(e)に示すように，明確な粒界を有する組織へと変化し，その形状は伸長組織[28]であった．

一軸鍛造材および二軸鍛造材($\bar{\varepsilon}$=0.2，0.34)ではそれぞれ伸長粒の平均厚さ(d_t)は 1.2μm, 0.8μm, 平均長さ(d_l)は 2.1μm, 1.5μm である．最終加工率($\bar{\varepsilon}$=2.52, 2.38)では伸長粒の大きさはそれぞれ d_t=0.4μm，0.5μm，d_l=1.1μm，0.6μm であった．この時，結晶粒の形状の指針となるアスペクト比(d_l/d_t)は一軸鍛造材では 1.7～2.6 へ増加するが，二軸鍛造材では 2.0～1.3 へ加工量の増加とともに減少した．すなわち，一軸鍛造材の結晶粒形状は伸長粒であり二軸鍛造材でのそれは等軸に近い形へ変化していることを示している．この様子は Fig.4-8 に示す TEM 組織からも，二軸鍛造材では組織が加工により伸長するのみでなく伸長粒組織中へ多数の新粒界が新たに形成され，伸長粒を分断していることからも伺える．また，後述する EBSP 解析による粒界マップにおいても，高角粒界で囲まれた結晶粒中に節状の低角粒界が多数形成されている事実とも一致した．

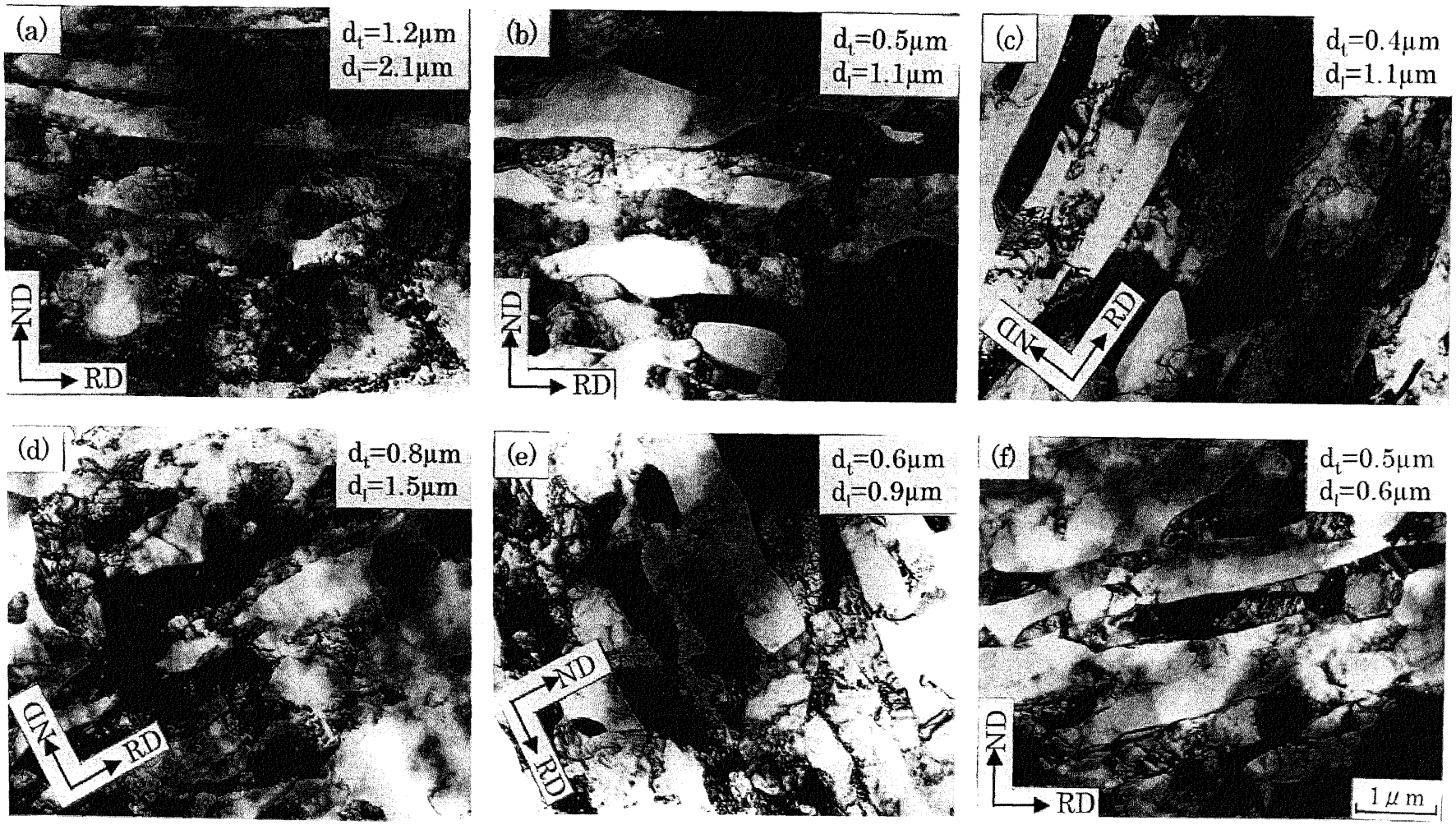


Fig. 4-7 TEM microstructure of the 1100 aluminum alloy deformed by different forging process. (a) $\bar{\varepsilon}$ =0.2, (b) $\bar{\varepsilon}$ =0.88, (c) $\bar{\varepsilon}$ =2.52 by uniaxial forging. (d) $\bar{\varepsilon}$ =0.34, (e) $\bar{\varepsilon}$ =0.9, (f) $\bar{\varepsilon}$ =2.38 by biaxial forging.

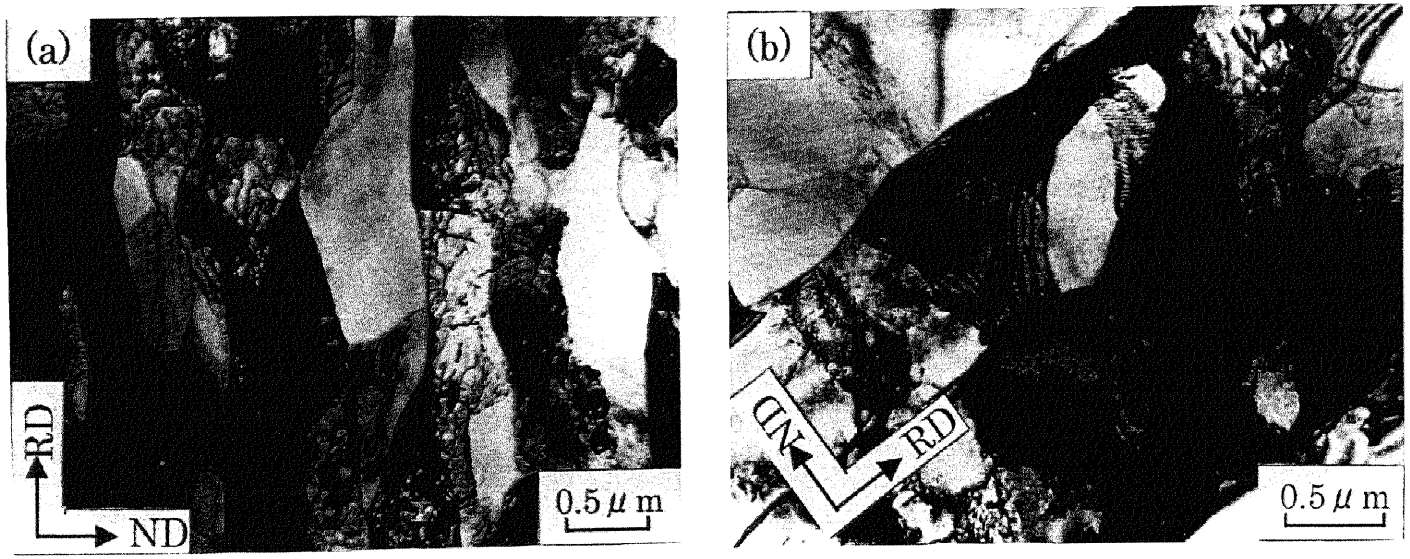


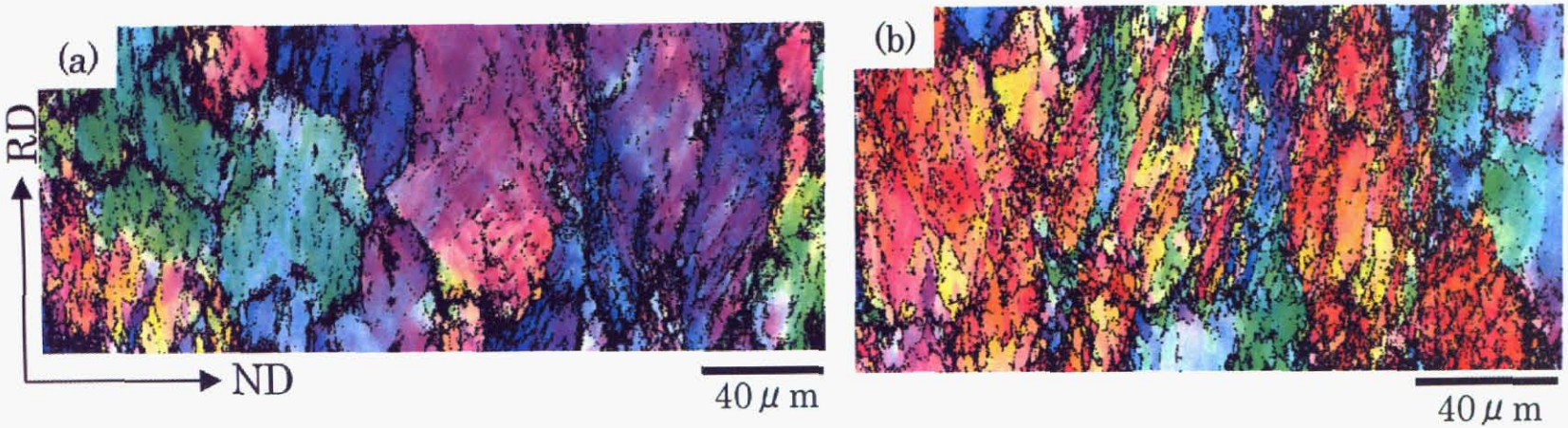
Fig. 4-8 Effect of strain loading processing on TEM microstructure of the 1100 aluminum. (a) uniaxial forging($\dot{\varepsilon}$ =1.57), (b) biaxial forging($\dot{\varepsilon}$ =1.5).

4.3.3 結晶粒方位および隣接間粒界方位差の測定

負荷ひずみ様式の違いが結晶方位へどの様な影響を及ぼすか両加工材とも，ひずみ量を$\bar{\varepsilon}$=0.9 付与した試料に対し，EBSP による方位解析を行った．解析は TD 面にて行ったもので，その結果を Fig. 4-9(a)-(b)に IPF(Inverse Pole Figure)マップとして示す．IPF マップの色は図中に示す逆極点図より決定される[25-27]．一軸鍛造材では，Fig.4-9(a)に示される IPF マップより特定の色(方位)で表される領域が非常に多く，強い組織配向を有している傾向が認められる．これより，活動しているすべり系が限られていることがわかる．これに対し，二軸鍛造材では Fig.4-9(b)に示すように特定の色が多いという傾向は無く，強い組織配向は認められない．また隣接粒同士は異なる色を示しており方位差を十分有していると考えられる．すなわち，二軸鍛造材では結晶方位も特定の配向ではなく比較的ランダムな配向を示していることから，複数のすべり系，変形帯が活動していることが推察される．

同一視野での各々の粒界方位差について Fig.4-10(a)-(d)に粒界マップと傾角ヒストグラムを示す．粒界マップ中の赤線は粒界方位差 15° 未満の低角粒界，黒線は方位差 15° 以上を有する高角粒界を示している．測定視野における高角粒界の頻度は一軸鍛造材で 56%，二軸鍛造材で 60%とほとんど同一である．大きな差は低角粒界の形成状態であり，一軸鍛造材では低角粒界は各所に点在しているが，二軸鍛造材では高角粒界中に節状の低角粒界が高角粒界を分断するように多数形成されている．

ここで，Fig.4-11 に二軸鍛造にて$\bar{\varepsilon}$=2.38 付与したときの IPF マップ，粒界マップおよび傾角ヒストグラムを示す．二軸鍛造を繰り返し付与することにより伸長した結晶粒を分断するように低角粒界が形成されると同時に加工中に起きる動的再結晶および再加熱中に起きる静的再結晶の影響を受け結晶方位差も高角側へ推移していることがわかる[21]．これまで$\bar{\varepsilon}$=0.9 程度ではランダムな組織配向を示すことは無いものの，結晶粒が微細化され個々の結晶粒が粒界方位差を有した結果，$\bar{\varepsilon}$=2.38 ではランダムな組織配向を示し活動するすべり系が多くなっていることを示している．上述したが，このように強ひずみ加工によって結晶粒を微細化し，個々の結晶粒が十分な粒界方位差を有するならば破断伸びの著しい損失を招くことなく材料を高強度化することが可能であり，鍛造という従来から用いられてきた手法においてもそれは十分達成することが出来る．



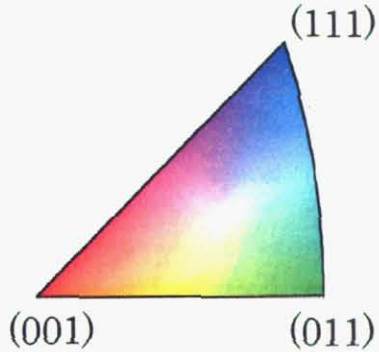


Fig. 4-9 Orientation imaging micrographs obtained by EBSP analysis for the 1100 aluminum alloy with different forging process. (a) uniaxial forging and (b) biaxial forging. Observed from the TD direction.

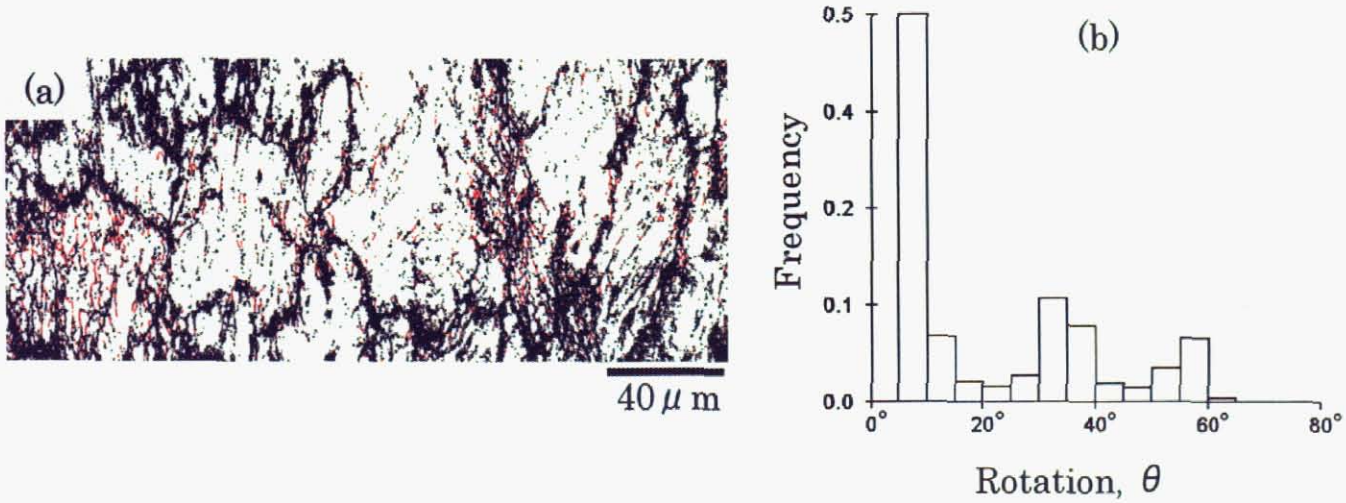


Fig. 4-10 Misorientation distribution in grain boundary. In the microstructure (a) and (c), black lines show the high-angle boundaries whose misorientations are larger than 15 degrees and the red lines show the low-angle boundaries. Frequency histogram for misorientation angle are shown in (b) and (d) for the 1100 aluminum, (a), (b): uniaxial forging and (c), (d): biaxial forging.

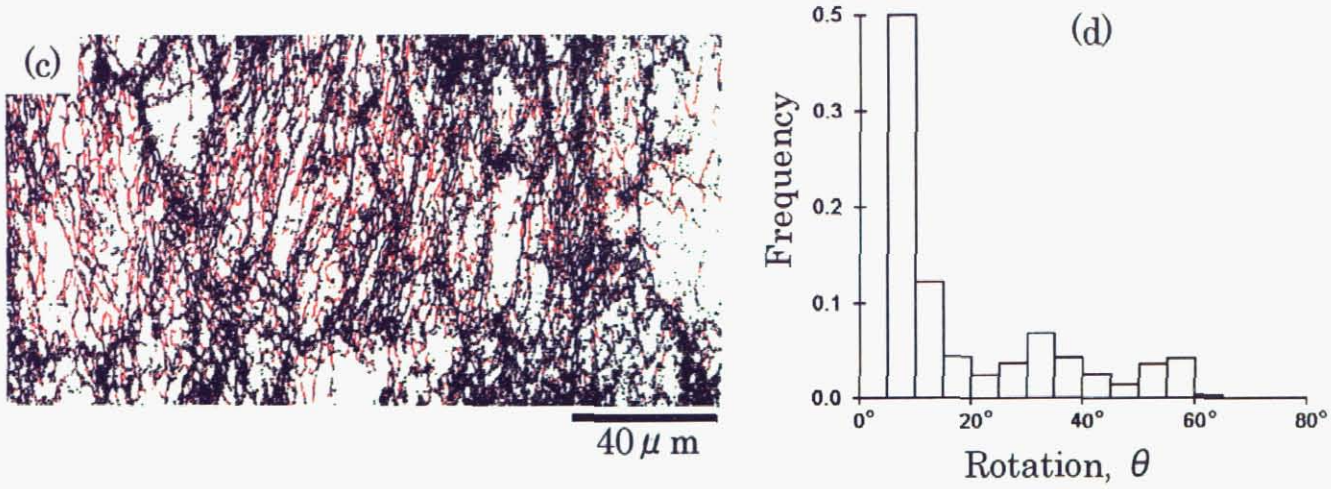


Fig. 4-10 Misorientation distribution in grain boundary. In the microstructure (a) and (c), black lines show the high-angle boundaries whose misorientations are larger than 15 degrees and the red lines show the low-angle boundaries. Frequency histogram for misorientation angle are shown in (b) and (d) for the 1100 aluminum, (a), (b): uniaxial forging and (c), (d): biaxial forging.

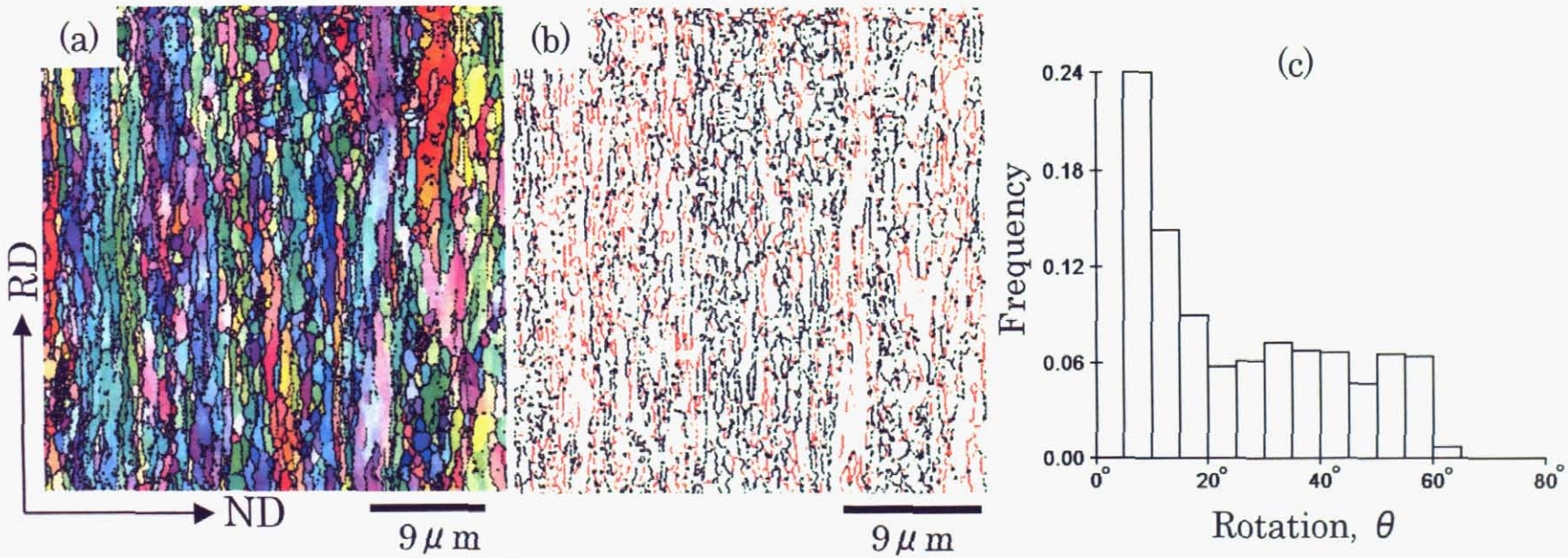


Fig. 4-11 Orientation imaging micrographs obtained by EBSP analysis for the 1100 aluminum alloy with biaxial forging. Observed from TD. (a) IPF map, (b) misorientation distribution in grain boundary and (c) frequency histogram for misorientation angle.

4.3.4 負荷様式の差異による結晶粒微細化機構

二軸鍛造材において負荷ひずみ量を増加させたときの縦断面 TEM 組織と回折像の変化を Fig.4-12 に示す．Fig.4-12(a)より低ひずみ域で高密度転位セル壁を形成している様子がわかる．この時，結晶粒界らしきものを形成しているが方位差は非常に少なく回折パターンもネット状を示している．中ひずみ域（Fig.4-12(b)）まで加工を進展させる長手方向に伸張した組織（パンケーキ状組織）を形成してくる．ただし，長手方向に組織が伸長するのみに留まらずにパンケーキ状組織中に幾つかの新しい粒界が発生し結晶粒を形成しており，回折パターンも先ほどのネット状からリング状のパターンを示すようになっている．高ひずみ域（Fig.4-12(c)）まで加工を付与すると視野の全面が微細な結晶粒で埋め尽くされており，今まで観察されていたパンケーキ状組織から等軸の結晶粒へ変化している様子も伺える．図中の回折パターンからも明らかではあるが結晶粒同士が方位差を有していることがわかる [28]．更にパンケーキ状組織の厚さおよび幅ともそれぞれ加工の進展とともに厚さは薄くまた幅は狭くなってきており，前述したように一つのパンケーキ状組織内に幾つもの結晶粒界が導入され，その一つ一つが加工の進展とともに方位差を有し始め最終的には独立した一つの微細結晶粒の形成に至ったと考えられる．この時の TEM 観察による平均結晶粒径は 0.5μm となり超微細粒が形成されていた．

転位形成の観点から観察結果を見るならば，転位がサブグレインの粒内および粒界に非常に多く生成されている．さらに加工度が増加すると粒内転位が非常に多くなる一方で，それまで粒界に生成あるいは堆積していた転位は少なくなっている．前者は更なる加工とともにすべりあるいは回転現象を引き起こしパンケーキ状組織内に新たな粒界を形成するあるいは亜結晶粒の生成 [29-30]のために役立つと考えられ，後者は加工ひずみ導入以前に形成されていた方位差の少ない低角粒界の方位差増進 [19,22]のために結晶粒界に吸収されたと考えられる．これら組織内部の動きは，一つは温間域での加工による動的再結晶と回復が挙げられると同時に加工の際の力（圧力）が何らかの影響をもたらすため転位やサブグレインが容易に運動（または運動の助長を）するため，種々行なわれている研究報告では$\bar{\varepsilon}$=4.0 程度で超微細結晶粒が形成されるのに対し [6-8,11-13]，本研究では相当ひずみ$\bar{\varepsilon}$=2.5 で容易に超微細結晶粒形成に至ったと考えられる．

負荷様式の差異による結晶粒微細化への影響を調べるため，相当ひずみ 1.5 にて一面鍛造および二軸鍛造加工材の Fig.4-8 に示した TEM 組織を比較検討する．両加工材ともにパンケーキ状組織の粒界は鮮明に形成されている点では差異は無いものの，二軸鍛造加工材のパンケーキ状組織内部では方位差を有していると考えられる多くの結晶粒を確認することが出来，また新しいサブグレイ

ンが多数確認できる．方位差の観点からも粒界が鮮明に出ている箇所と隣り合わせて粒界が薄く確認できる箇所がある．既報によるとこのような箇所は方位差が非常に大きく，粒界が鮮明な箇所は数 10 度の傾角を有しており薄く確認できる箇所の粒界方位差は数度とされ，このような材料を微細材料と定義している [1,9,29-30]．本研究ではこの既報と同様の結果を得た．また同一のひずみ量において TEM 組織を比較するとパンケーキ状組織の分断などの様子から負荷様式としては二軸鍛造が結晶粒微細化を容易に実現できるようである．加工の進展とともにパンケーキ状組織は伸張して行くのではなく，組織内に結晶粒を形成していくと前述したが Fig.4-8 からも明らかであるように幾つもの結晶粒が形成され一つのパンケーキ状組織から等軸粒が幾つも形成される様子がわかる．

これらの微細粒の結晶方位を調べるために、二軸鍛造加工材と 473K にて 1.2ks の焼なましを施した試料について EBSP による観察を行った．Fig.4-13 にはその EBSP の Image Quality マッピング（以下 IQ マップと記す）を示す．IQ マップでは Image Quality（以下 IQ と記す）の高い領域は白くマッピングされる．一般には，残留ひずみが高い場合には領域の IQ 値が低いとされているため小さい等軸の白い領域が再結晶粒と思われる [25-27]．Fig.4-13 より加工材および焼なまし材の IQ マップに大差は見られず IQ 値も加工材で約 80，焼なまし材で約 88 を示しており，Fig.4-2 および Fig.4-3 の機械的特性が高ひずみ域で既に等軸粒となり飽和すること，Fig.4-6(b)および Fig.4-12 に示した加工材 TEM 組織にて結晶粒が確認されたことと一致し，加工後に再結晶処理を行わずとも前述したように高い機械的特性と破断伸びを有した材料を創製することが可能である．

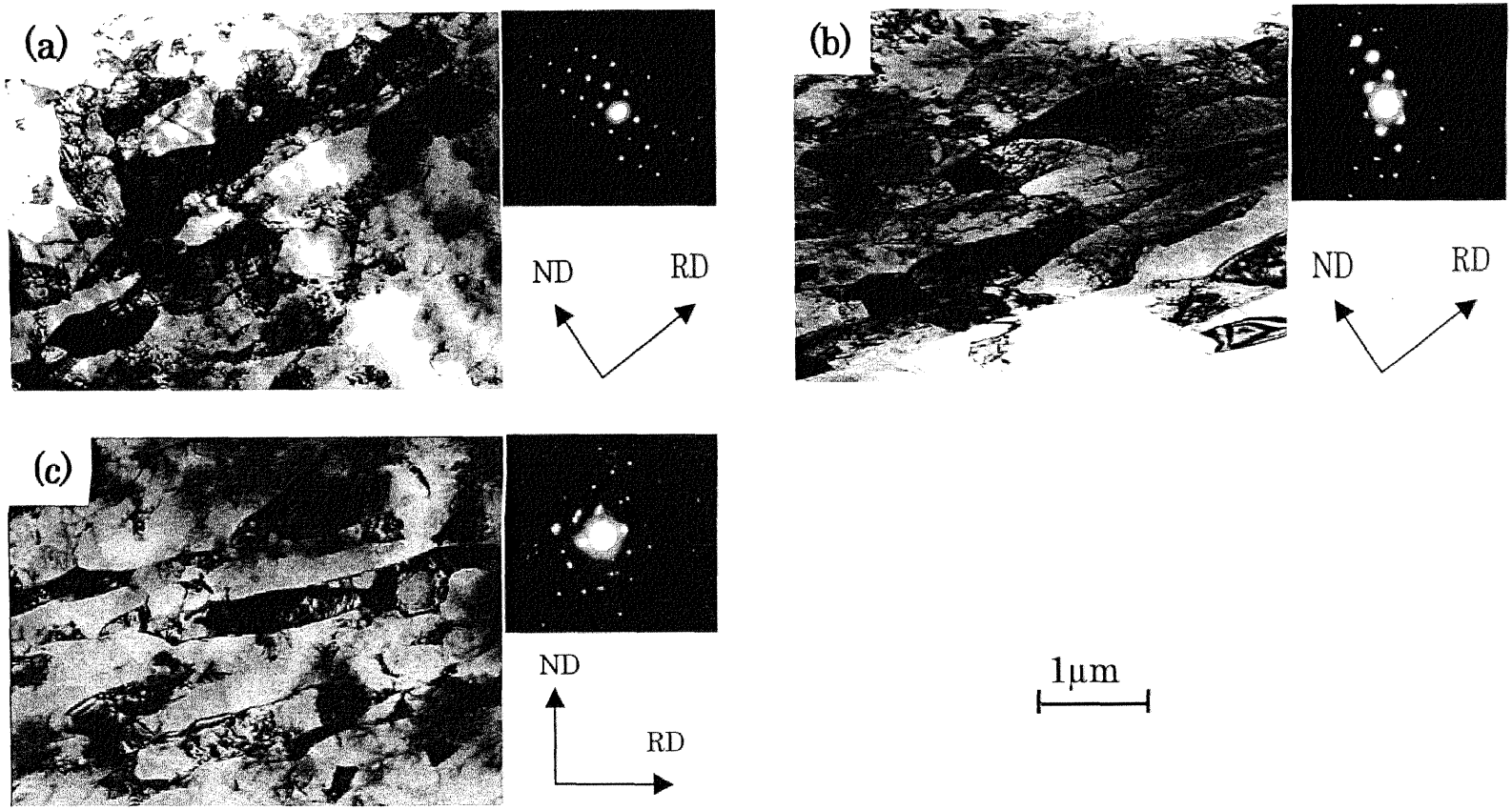


Fig. 4-12 TEM microstructure of the 1100 aluminum alloy deformed specimen. (a) $\bar{\varepsilon}$ =0.34, (b) $\bar{\varepsilon}$ =0.9, (c) $\bar{\varepsilon}$ =2.38 by biaxial forging.

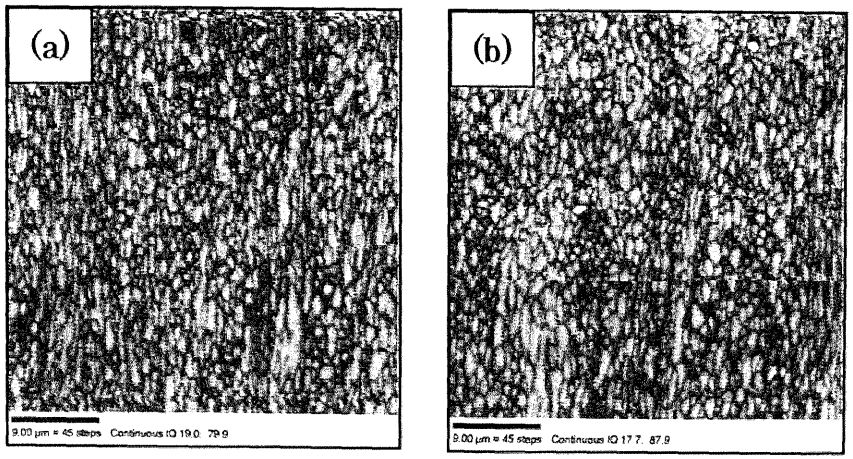


Fig.4-13 Mapping of EBSP image quality parameter (a) $\dot{\varepsilon}$ =2.38 forged by biaxial forging process and (b) its annealed at 473K, 1.2ks.

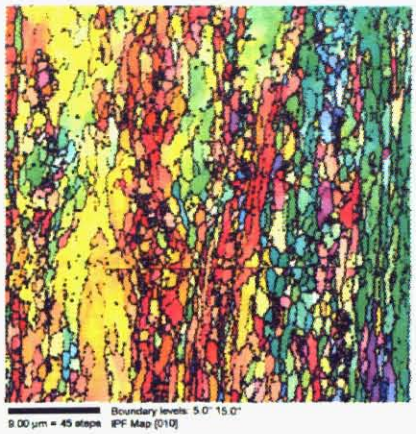
4.3.5 加工による結晶方位および粒界方位差の増進

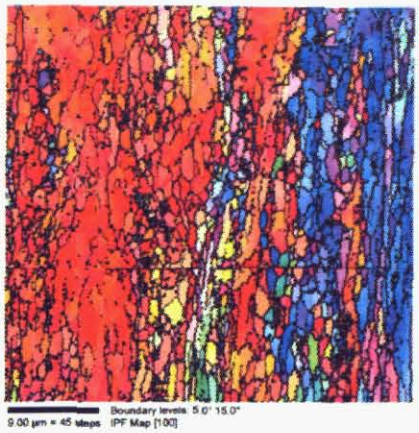
二軸鍛造加工材（$\bar{\varepsilon}$=2.5）と加工材を 473K にて 1.2ks の焼なましを施した二種類の材料に対して EBSP 解析を行った．その縦断面観察における IPF マップを Fig.4-14 に示す．それぞれ観察面内における RD 方向および ND 方向の方位分布を示しており IPF マップの色は同図に示す逆極点図により決定される[25-27]．観察結果より明らかであるが加工材(a)における ND 方向の方位は圧縮変形を受けたものであり RD 方向は引張変形を示している．473K，1.2ks 焼なまし材(b)では RD 方向の方位はやや引張変形を示すが(a)に比べややランダム粒であり，ND 方向においては特定の方位を持たないランダム結晶粒から成立していることがわかる．

Fig.4-15 は Fig.4-14(a)，(b)と同視野で観察した傾角毎の平均結晶粒径と測定視野における結晶粒径の頻度を示したものである．結晶傾角 5°～10° の範囲では結晶粒径は 1.0μm オーダーであり，傾角を 15° 以上としても 2.0μm 程度の非常に微細な結晶粒であった．これは前述した TEM 組織と一致する．更に 473K にて焼なまし処理を行うことによりごく僅かではあるが結晶粒径が細かくなる傾向を示した．測定傾角と平均結晶粒径の関係を Table4-2 に示す．この結果と TEM 組織観察より，回復温度での焼なまし処理は結晶粒界およびサブグレイン粒界の平滑化を引き起こし，結晶組織全体を整頓させる働きがあると考えられる．

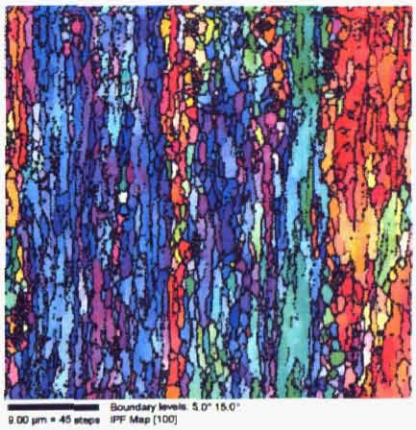
加工の進展とともに機械的特性は飛躍的に向上し伸びは損なわれないことは既に述べたが，伸びが損なわれない理由として Fig.4-14 に示したように結晶組織がランダム粒界であることが挙げられる．次に機械的特性向上の因子として傾角の増進が上げられる．Fig.4-16 および Fig.4-17 に二軸鍛造材加工において $\bar{\varepsilon}$=0.9 および 2.5 付与した加工材の結晶傾角頻度をグラフ化したものと粒界マップを示す．赤線は方位差 5° 以上 15° 未満の粒界，黒線は 15° 以上の粒界を示している．粒界マップより $\bar{\varepsilon}$=0.9 付与した加工材に比べ $\bar{\varepsilon}$=2.5 付与した加工材の方が視野全体に 15° 以上の結晶粒界が分散している．低角粒界（赤線）の分散度合いはどちらも同程度であるものの $\bar{\varepsilon}$=0.9 付与時で低傾角であったものが $\bar{\varepsilon}$=2.5 では高傾角側へ推移していると考えられ，傾角分布を示したグラフからも若干ではあるが加工が進展するにしたがい高傾角側の頻度が高くなっている．すなわち加工度の増加とともに結晶粒界の方位差（傾角）が高角化することは明らかである．

(a)





(b)



IPF map : Direction of ND　　IPF map : Direction of RD

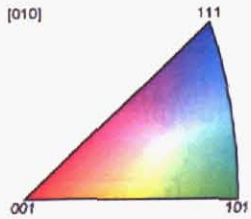


Fig.4-14 IPF map of EBSP image in biaxial alternative forged 1100 aluminum. (a) $\dot{\varepsilon}$ =2.38 forged and (b) its annealed at 473K, 1.2ks.

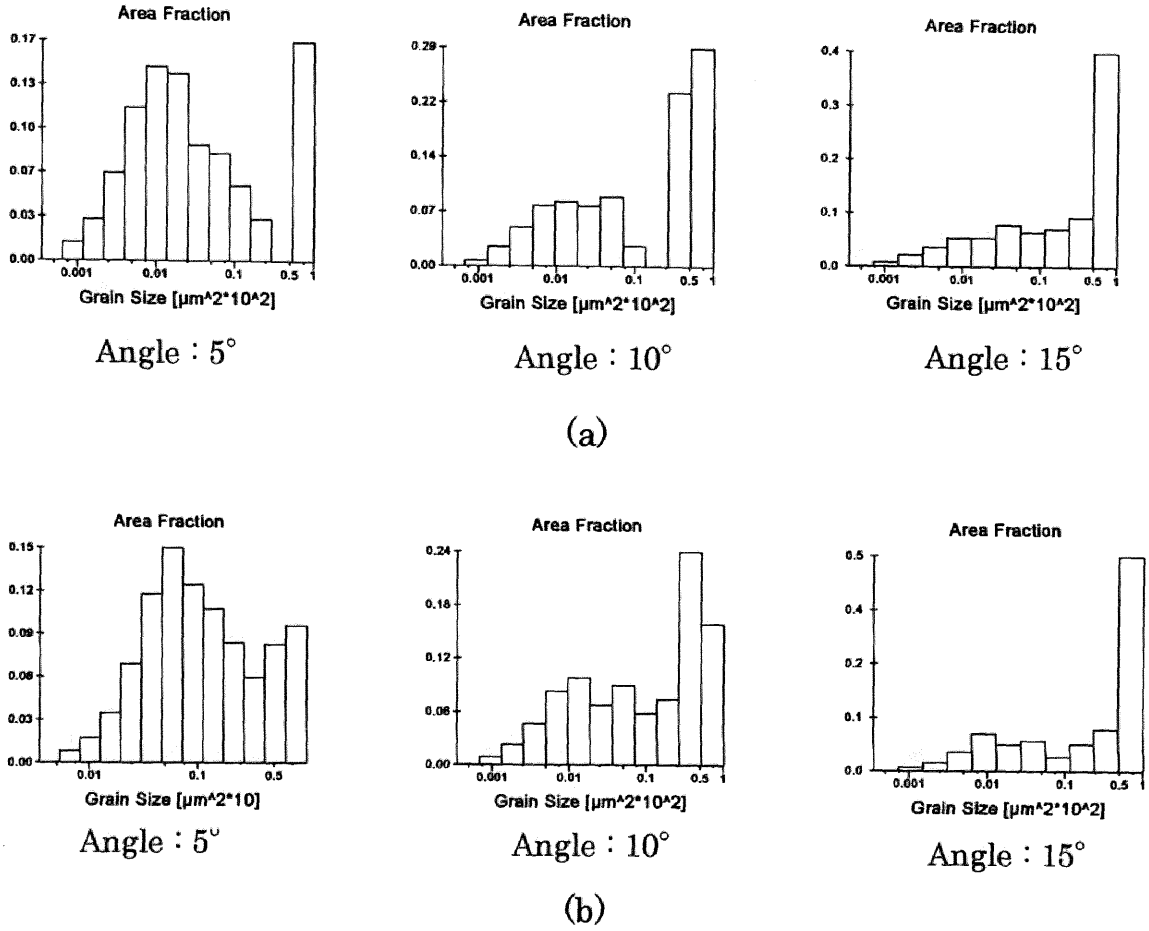


Fig.4-15 Grain size distribution diagram of 1100 aluminum obtained by biaxial alternative forging ($\dot{\varepsilon}$ =2.38) (a) after forged specimens, (b) annealed 473K, 1.2ks.

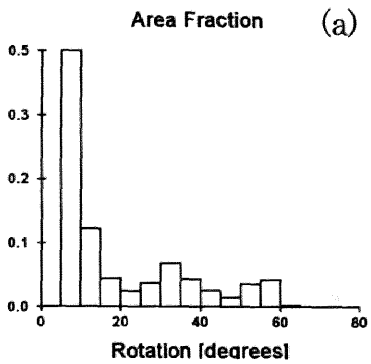
Table 4-2 Relation between Grain size and allowable inclined angle by EBSP (a) after biaxial warm forged ($\dot{\varepsilon}$ =2.38), (b) annealed at 473K, 1.2ks.

Inclined angle (degree)	2	5	10	15	20
Grain size (μm)	1.09	1.31	1.81	2.36	2.81

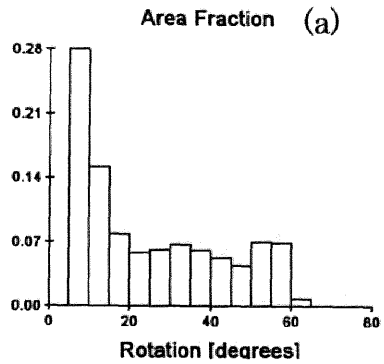
(a)

Inclined angle (degree)	2	5	10	15	20
Grain size (μm)	0.86	1.21	1.71	2.2	2.55

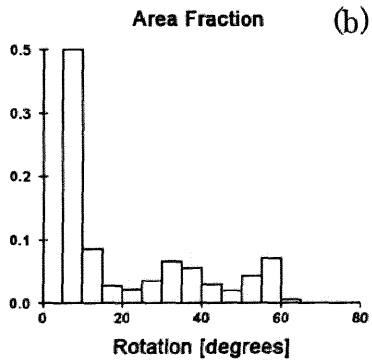
(b)



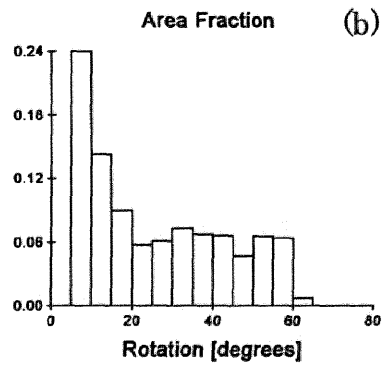
biaxial forging ($\dot{\varepsilon}$ =0.9)



biaxial forging ($\dot{\varepsilon}$ =2.5)



biaxial forging ($\dot{\varepsilon}$ =0.9)



biaxial forging ($\dot{\varepsilon}$ =2.5)

Fig.4·16 Frequently misorientation angle diagram of 1100 aluminum, (a) after forged specimens, (b) annealed 473K, 1.2ks.

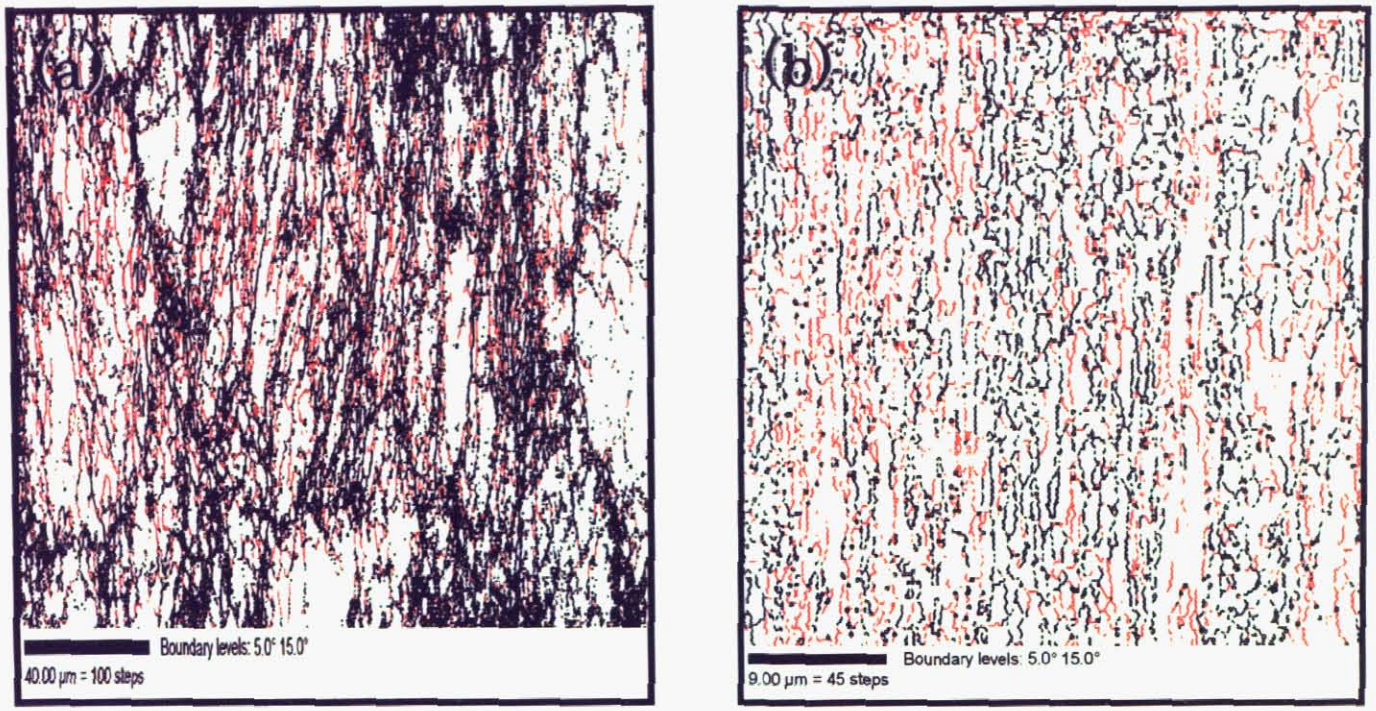


Fig.4-17 Misorientation distribution of grain boundary in 1100 aluminum obtained by biaxial forged specimens. (a) $\dot{\varepsilon}$ =0.9, (b) $\dot{\varepsilon}$ =2.5.

4.4 考　察

4.4.1 負荷軸数の差が機械的性質に及ぼす影響

ひずみ負荷様式の差異が機械的性質へ及ぼす影響を強度と組織変化から検討を加えた．Fig.4-3 より加工量の増加とともに引張強さの上昇傾向は両材において同一であるが，破断伸びを比較すると一軸鍛造材が 10%程度まで低下する．一方，二軸鍛造材は 25%程度の破断伸びを有している．ここで，二軸鍛造材の最大引張強さおよび破断伸びは ECAP 加工 6 回押出し材[6]とほぼ同程度であった． Fig.4-3(a)，(b)で得た破断伸びを鍛造予ひずみの関数として，均一伸びと局部伸びに分けた結果を Fig.4-18(a)，(b)に示す．同図には最大応力時の硬さの推移も示した．一軸および二軸鍛造材の均一伸びは 4%，10%と大きく異なり，Fig.4-2 と比較すると一軸鍛造材での引張試験の最大応力時の硬さは試験前のそれと差異は認めらない．それに対し二軸鍛造材では予加工量の増加とともに試験前の硬さと比べると最大応力時の硬さは増加し，鍛造予加工量の増加と供に硬さの増加量は著しくなる．均一伸びに大きな差異をもたらした原因として，Fig.4-3 および Fig.4-18 より二軸鍛造材は一軸鍛造材に比べ加工硬化量が大きくなっているためである．

均一伸びに差異が生じた因子として，内部組織観察によると，一軸鍛造材の均一伸びの低下はその組織が強い結晶配向を有し伸長粒内部に転位が存在するためと考えられる．二軸鍛造材では伸長粒内部の転位は最終加工段階でほぼ消滅し，組織はランダムな配向性を有している．二軸鍛造材が強い結晶配向を持たないのは，加工によるせん断変形と圧縮変形が二軸から交互に付与されることに伴うせん断ひずみの切断・積層[20,28]が繰り返されたためと考えられる．しかし，加工後の再加熱処理により内部組織がどの程度回復したか調べるには至らなかった．

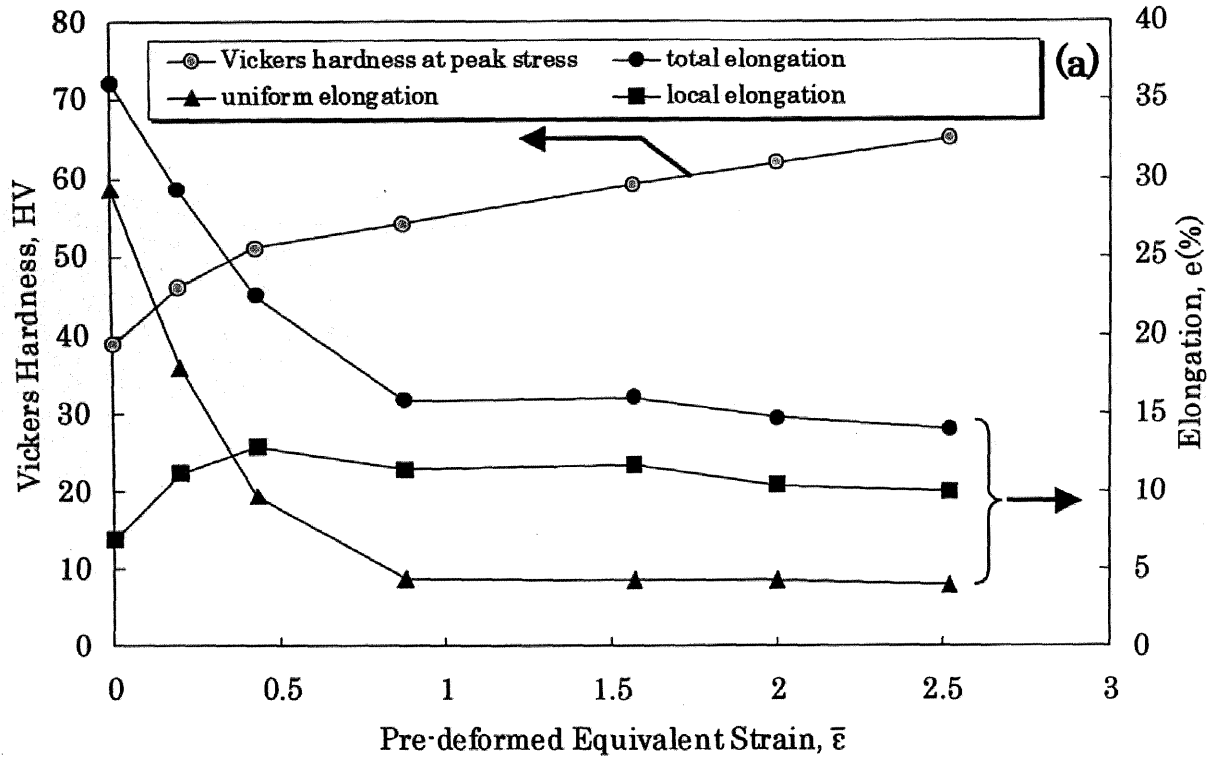


Fig. 4-18 Relation between mechanical properties (total elongation, uniform elongation, local elongation and Vickers hardness at peak stress) and pre-deformed equivalent strain; (a) uniaxial forging, (b) biaxial forging.

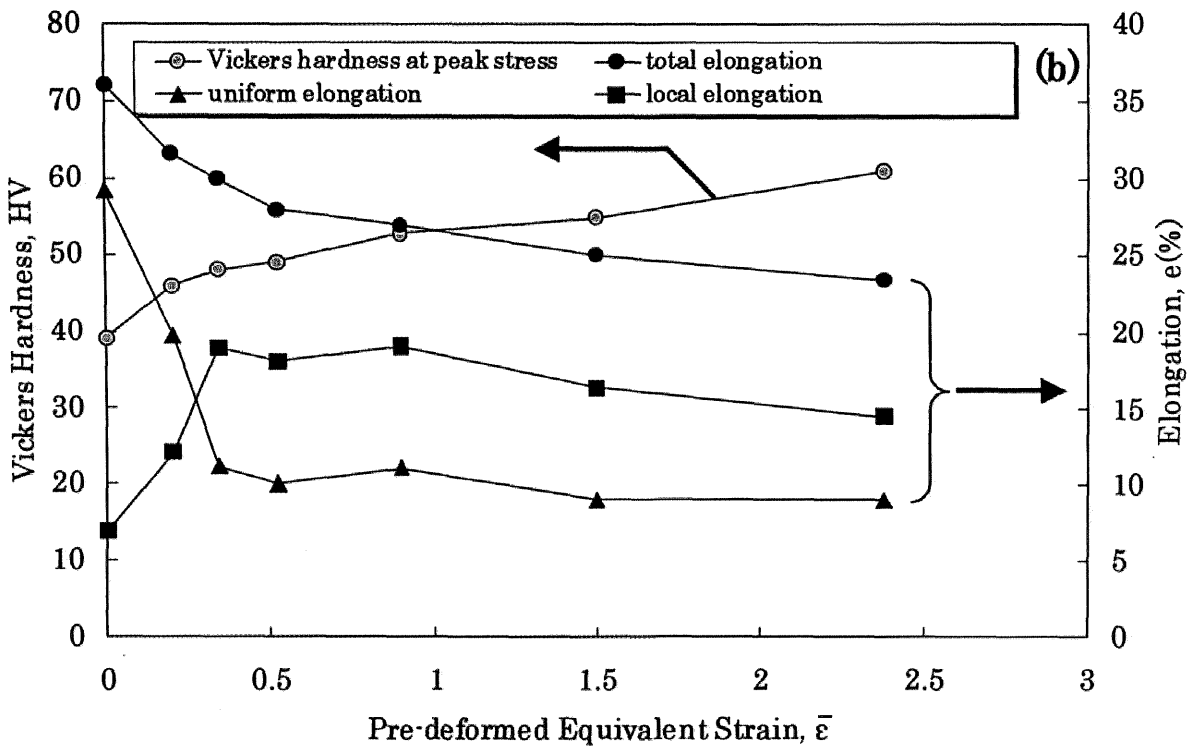


Fig. 4-18 Relation between mechanical properties (total elongation, uniform elongation, local elongation and Vickers hardness at peak stress) and pre-deformed equivalent strain; (a) uniaxial forging, (b) biaxial forging.

4.4.2 破断面組織と破断伸びの関係

初期ひずみ速度 1.67 x 10^{-3} s^{-1} にて室温引張試験を行ったときの各加工材の破断試験片と破断面 SEM 組織を Fig.4-19 に示す．Fig.4-18 より一軸および二軸鍛造材の均一伸びには大きな差異が認められた．そのため加工硬化の大きな二軸鍛造材は一軸鍛造材に比べてディンプルが深く形成され易く，より延性的で降伏後の均一伸びも大きな伸びを起こしたものと推定される[23]．
一軸および二軸鍛造材の局部伸び大小関係は Fig.4-19 の破面組織と明確に結び付けることができる．破面(TD-ND 面)組織はいずれも延性破壊の様相を示すものの，一軸鍛造材は破断部の板面(RD-TD 面)観察よりせん断縁[19]が観察された．これは試験片内部が塑性拘束効果による三軸応力状態にて試験片内部で微小空洞の発生と成長が起こるが，粒内変形が少ないため等軸状ディンプルを形成している．これに対し，二軸鍛造材では結晶粒が引張方向に平行に伸長しディンプルが形成され，SEM 組織からも結晶粒が均一な変形をした領域が比較的広い．その要因として，二軸鍛造材ではすべり面の分離によって生じるリップルが引張方向へ伸長した結晶粒内部に見られ，すべり変形が破断部に多数存在するためリップルの面積が増加し破壊が起きたことを示している[5,19,23]．リップルは伸長した結晶粒内部に存在し，変形は粒内変形に担われていると考えられる．一軸鍛造材に比べ，すべり系を多く有する二軸鍛造材にてリップルが多数観察されたことは EBSP 解析結果と良く一致する．このような事実から二軸鍛造材は一軸鍛造材に比べより延性破壊の割合が大きいといえる．

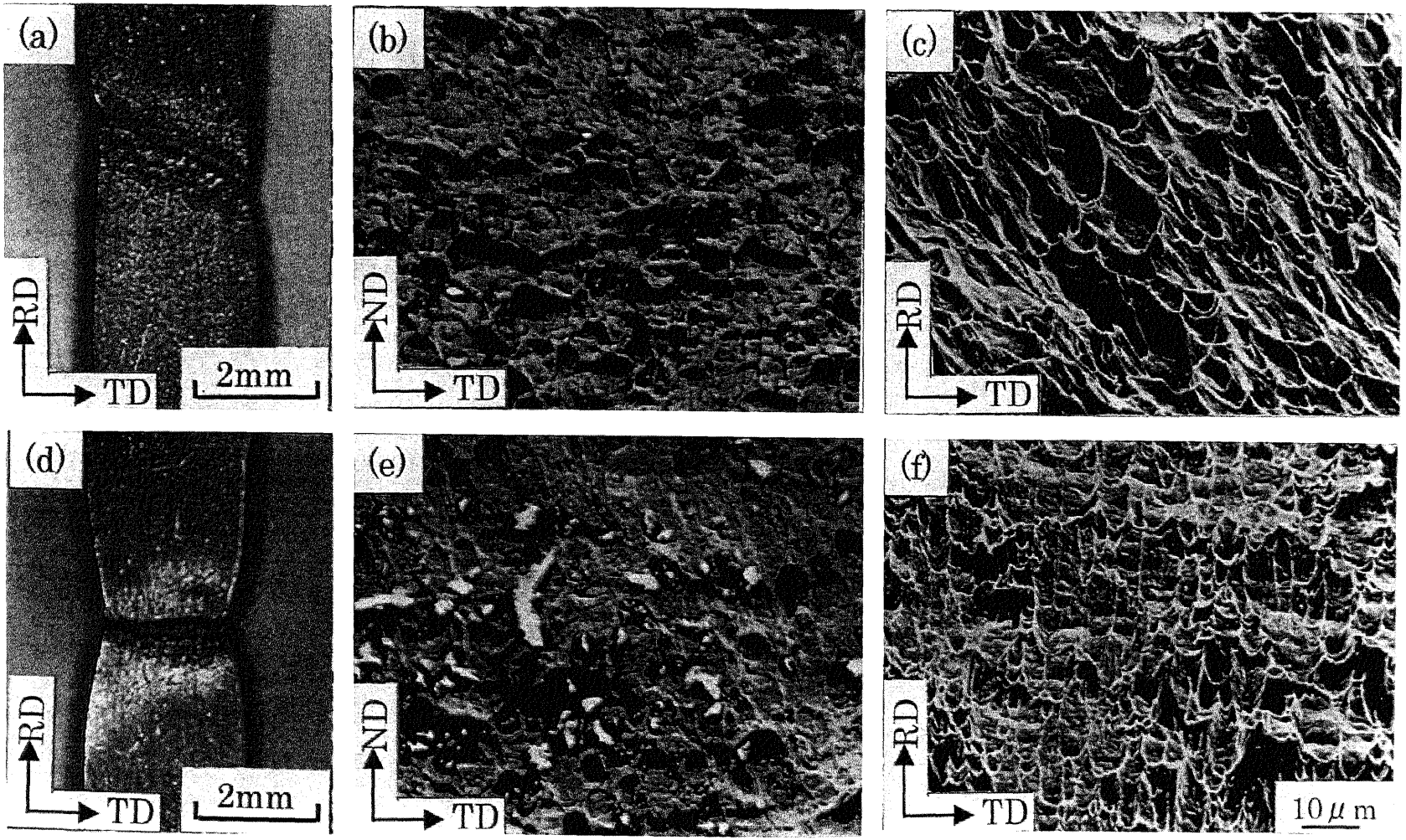


Fig. 4-19 Fracture appearances observed from different directions in tensile tested specimens; (a)-(c) uniaxial forging, (d)-(f) biaxial forging.

4.4.3 負荷様式と組織形成

一軸および二軸鍛造材の加工の進展に伴う結晶組織と方位変化に関して検討を加えた．Fig.4-7 および Fig.4-10(a), (c)より一軸および二軸鍛造材とも加工の初期段階において粒内への転位の集積はほとんど同一状態であるものの，一軸鍛造材では加工により生成された転位は周囲の高角粒界へ優先的に作用し，その粒界が有する方位差増進に繋がったと考えられる．この様に高角粒界中に新粒界が形成され難いことは結晶粒微細化が起こり難いことを示唆するものである [29-30]．一方，二軸鍛造材では高角粒界に囲まれた領域中へ小角粒界が多数形成されている．加工を$\bar{\varepsilon}$=2.38 まで進展させた場合 Fig.4-11(b)に示すように高角粒界は視野の全域に細かく分散し，加工により生成された転位は一軸鍛造材とは異なり，サブグレイン粒界にて吸収および消滅することで小角粒界が方位差を増進させ高角粒界内へ移行したものと思われる．高角粒界の頻度が加工を行うことで増加していることは Fig.4-10(d)と Fig.4-11(c)から明らかである．

一軸鍛造材において，等軸状で結晶方位差の大きい結晶粒が得られ難いのは加工量の増加とともに結晶粒は伸長し，組織の変形方向が特定方向に限られているため，サブグレイン粒界が効率よく粒界方位差の増進に繋がらないためと考えられる．一方，二軸鍛造材はサブグレイン組織が形成され易く，加工により生成した転位がサブグレイン粒界にて吸収・消滅され結晶粒方位差が大きくなり易くなり，これは微細粒材において活動転位が変形中に消滅し粒内転位密度が増加しないことを示している．これは加工軸を回転させることから変形方向の逆転に伴い部分的な回復を生じた結果であろう．つまり，両加工材とも TEM 組織および EBSP 解析にて示されたように，結晶粒内に転位が集積してもその後の加工と再加熱による新しい結晶粒界形成や方位差の高角化のメカニズムは異なっている．

これより二軸鍛造のように複数の方向からせん断変形を与え，結晶粒界を高角化するに十分な量の転位が生成されるならば，より等軸かつ微細な結晶粒を得ることが可能であり，これが結晶粒微細化を容易に行う必要条件といえる．

4.4.4 集合組織形成と負荷様式の関係

負荷ひずみ様式の違いが結晶方位へ差異を明らかにすべく，一軸および二軸鍛造加工材とも$\bar{\varepsilon}$=0.9 付与した試料の極点図を Fig.4-20 および Fig.4-21 に示す．Fig.4-20 は加工材の集合組織を，Fig.4-21 はそれを再加熱と同条件において熱処理を施しその後水冷したものである．解析は TD 面にて行ったものである．

Fig.4-20 においてその組織配向性は一軸および二軸鍛造加工材では大きな差は生じておらず，最も組織配向が強い部分においてもその強度はそれぞれ 8.68 および 7.1 である．一軸鍛造加工材の極点図は二軸鍛造加工材に比べ若干強い組織配向を示しこれは前述した IPF マップと一致する．すなわち，加工材の時点において Fig.4-7 および Fig.4-8 に示した TEM 組織からも一軸鍛造材では，伸長粒を分断するような亜結晶粒界の形成が見られず粒内に転位が蓄積され加工によるひずみにより粒内の転位密度が上昇したため主すべり系が特定の方向に強く作用した結果として破断伸びは二軸鍛造材よりも低い値を示したと考えられる．二軸鍛造加工材の極点図においても一軸鍛造材のそれとは大きな差は無いが IPF マップおよび TEM 組織より，亜結晶粒界の形成が一軸鍛造材よりも目立ち，また活動しているすべり系も多く存在している．

これらを再加熱と同条件にて焼なましを施すことにより Fig.4-21 のように集合組織が変化する．焼なましを施すことで静的不連続再結晶が促進された結果，組織配向が強い部分においてもその強度は一軸および二軸鍛造材においてそれぞれ 6.98 および 4.12 まで低下する．つまり，二軸鍛造材では加工により導入された転位が効率よく粒界に吸収される，あるいは亜結晶粒界の生成に繋がり結晶方位を増進させていると考えられ[2)]，これらの工程を繰り返す結果特定の組織配向を示さない微細粒の形成に役立ったと推察される[22)]．この作用により結晶方位は比較的ランダムな配向を示し，複数のすべり系および変形帯が活動しやすい状態を維持することが更なる結晶粒の微細化に繋がっていると思われる．

一方，一軸鍛造材では焼なましを施すことにより組織配向は若干低下するものの約 7 程度の値を示し二軸鍛造加工材と同一の強さを示す．静的不連続再結晶は再加熱中に起きていると考えられるが，Fig.4-8 に示した TEM 組織からも伸長粒内に単に転位密度の高い箇所が存在するのみでは結晶粒は微細化されず，材料内部に亜結晶粒あるいは低角粒界を生成することが必要かを示唆している．すなわち，これまで行われてきた静的不連続再結晶を利用した加工－熱処理法においても転位密度の増加と同時に，材料内部にすべり系の増加と亜結晶粒界の創製が可能ならば動的変形下のみに留まらず静的再結晶においても十分微細な結晶粒を生成することは可能であると思われる．一軸鍛造材では二軸鍛造材に比べ主すべり系の数も限られているが，先述した条件を満たすならば二軸鍛

造材と同等の機械的特性をより容易な加工法にて得ることが可能であると考えられる.

以上より，負荷様式としては多軸応力状態を作り出すことが重要であり，加工方法により人為的に粒径を操作することが可能であることが実験結果より明らかとなった．最終的に結晶粒微細化法の実工程への応用を考慮するならば多軸方向から加工を加え，材料内部の転位密度を高めながらも転位を低角粒界に吸収させ結晶方位差を増進させることと，導入された転位から亜結晶粒を如何に作り出すかが結晶粒微細化にとって重要な因子であることが明らかとなった.

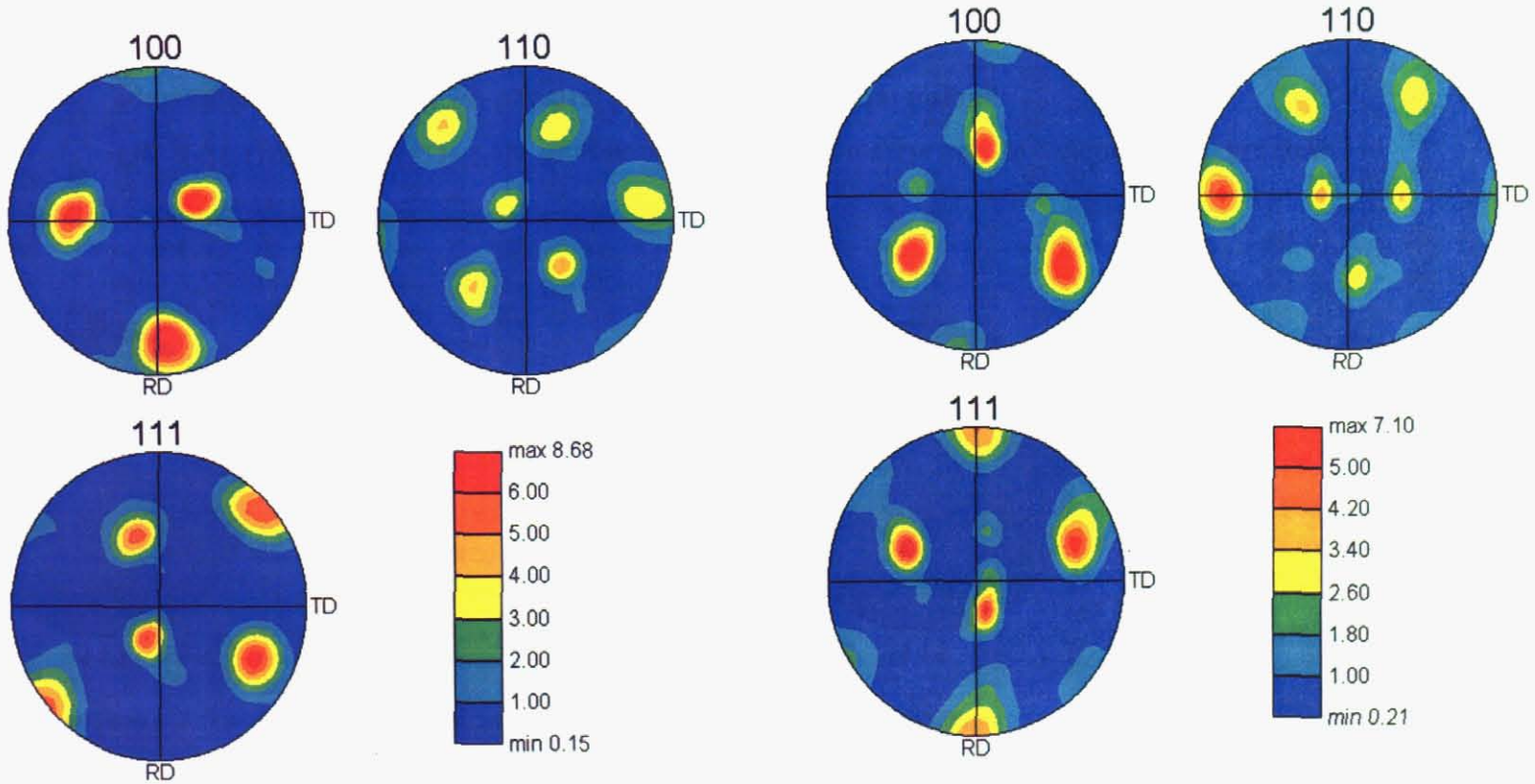


Fig. 4-20 {100} {110} {111} Pole figures of forged materials and pre-deformed strain give equivalent strain $\dot{\varepsilon}$ =0.9. (a) uniaxial forging and (b) biaxial forging.

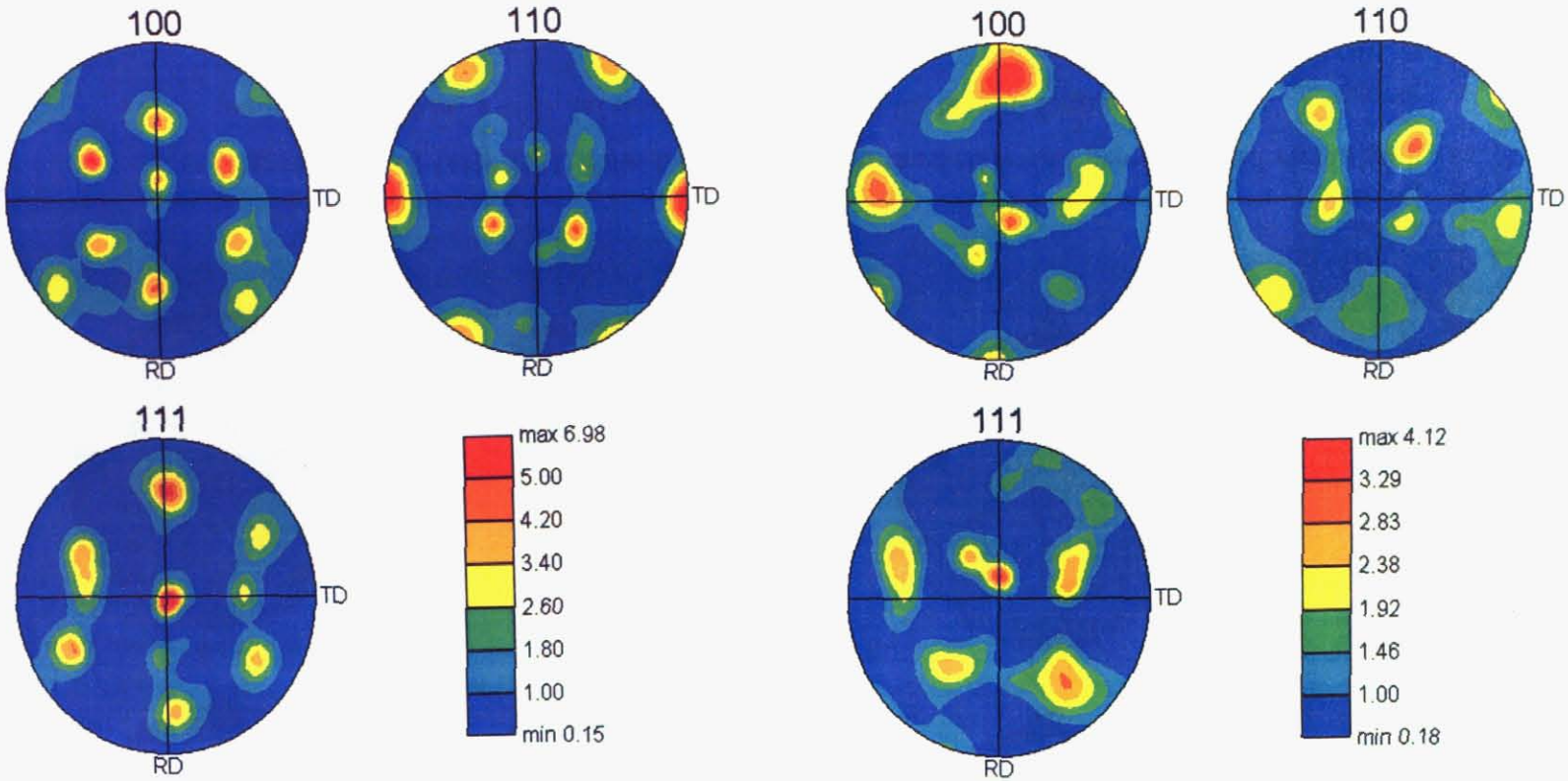


Fig. 4-21 {100} {110} {111} Pole figures of annealed materials and pre-deformed strain give equivalent strain $\dot{\varepsilon}$ =0.9. (a) uniaxial forging and (b) biaxial forging.

4.4.5　結晶粒微細化に及ぼす負荷様式の影響

Fig.4-2 に一軸および二軸鍛造材の硬さを示したが，両加工法とも加工材を473K で焼なまし処理した場合の硬さの変化は同程度であり，加工材時の硬さの差がそのまま熱処理した硬さに反映されている．二軸鍛造材に比べ一軸鍛造材の硬さは 1.5 倍ほど高い値を示す．また二面交互鍛造材では$\bar{\varepsilon}$=1.0 で硬さは一定値になるが，一軸鍛造材は加工の進展とともに加工硬化を引き起こしている．$\bar{\varepsilon}$=1.0 までは両材とも加工硬化を引き起こしている．$\bar{\varepsilon}$=1.0 以降において前者では加工後の再加熱時に加工硬化された材料が容易に回復現象を引き起こし，一定値を保つが後者は再加熱を行っても加工硬化が回復現象を上回り更なる硬化を示唆する結果となった．ただし，$\bar{\varepsilon}$=1.0 以降ではそれ以前に比べ硬さは緩やかな曲線を描いている．

Fig.4-5 に示す光顕組織からも負荷様式の差異により組織形成が異なっている．加工の初盤では等軸粒を形成しているが中盤では一軸鍛造材の組織は長手方向に伸張し，旧粒内あるいは変形帯が様々な方向に向いているのに対し，二軸鍛造材ではまだ等軸粒を保ち旧粒内に新粒界が形成されていることがわかる．このように組織に違いが現れたのは上記した硬さと同じく$\bar{\varepsilon}$=1.0 であった．加工の終盤では両材ともファイバー状の組織を形成するが二軸鍛造材の方が幾分細密化している．

二軸鍛造材の TEM 組織を Fig.4-12 に示したが，ひずみ量$\bar{\varepsilon}$=0.34 では転位セル組織が多数形成されている．セル壁は高密度転位により形成されており RD 方向にやや伸張しており回折パターンはネット状であった．それ以降の$\bar{\varepsilon}$=1.0 で既にパンケーキ状組織が形成され，パンケーキ状組織内にも複数の粒界が存在している．ひずみ量$\bar{\varepsilon}$=1.5 では Fig.4-8 に示すようにパンケーキ状組織間の粒界は一軸鍛造材(a)および二軸鍛造材(b)ともに明確に現れている．大きな違いは，パンケーキ状組織内に新たに発生している新粒界である．(a)では一部粒界が鮮明であるものの，そのほとんどは薄い線で表されている．一方，(b)では視野全域に渡り粒界が鮮明に現れている．TEM による粒界コントラストは結晶粒界方位差を示すことが知られており[14-15]，これによれば(a)よりも(b)の方が高角粒界であると判断できる．高角粒界を黒太線，低角粒界を黒細線で示した模式図を Fig.4-22 に示す．このように高角粒界が多数発生した箇所を多く有することが微細粒を得る条件とも報告されており[21-23]，上記した結果から結晶粒微細化に対して有効な負荷様式は二軸鍛造であるといえる．

上述してきたように一軸鍛造材および二軸鍛造とも$\bar{\varepsilon}$=1.0 で硬さや組織変化を示した理由として以下の事項が挙げられる．

(1) 二軸鍛造加工では微細粒組織が形成されると同時に平均転位密度は減少し，その後は導入されたひずみは連続的な回復により転位の再配列により容易に粒界が整えられると同時に，方位変化を引き起こすことで高傾角を有する超微細粒へ転化した．

(2) 一軸鍛造加工では転位セル組織は形成されるものの，厚さ方向のみの変形により Fig.4-8 に示したように，二軸鍛造に比べ微細結晶粒を形成することが困難であり，導入されるひずみと回復のバランスがとれずに転位が徐々に蓄積したため加工硬化を示した．

(3) 二軸鍛造材では加工の早い段階で強度が飽和状態に達した．これは前述した組織形成や各すべり系活動状況によるところが大きいと考えられる．一軸鍛造材では組織形成が二軸鍛造材のそれよりも遅いため Fig.4-2 の硬さ結果および Fig.4-5 の光顕組織に異なりが生じたものと考えられる．

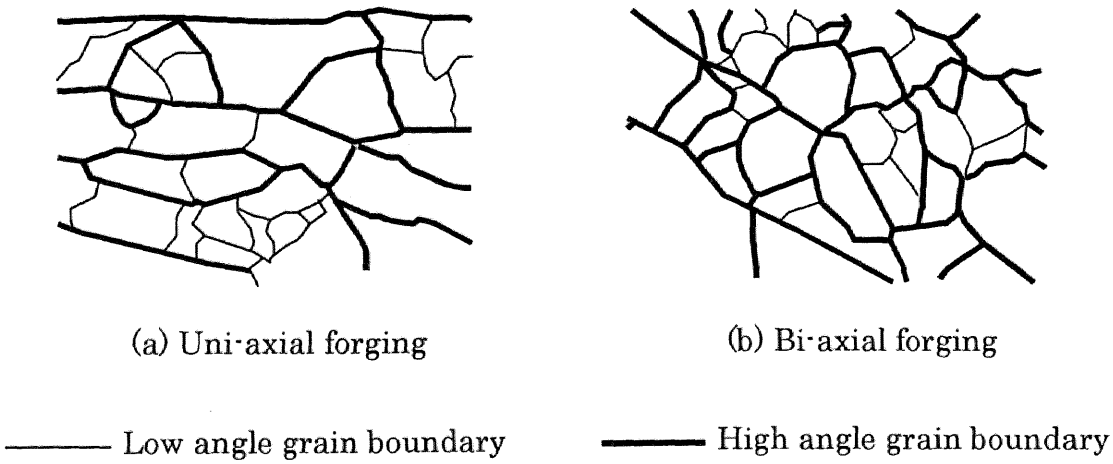


Fig.4-22 Schematic illustration of low and high angle grain boundary distribution of 1100 aluminum obtained by (a)uniaxial forging($\dot{\varepsilon}$ =1.57), (b) biaxial alternative forging($\dot{\varepsilon}$ =1.5)

4.4.6 種々のアルミニウム合金と加工法との比較

本実験において，ひずみ負荷様式の差異が引張特性，結晶方位および内部組織形態へ大きな影響を及ぼすことは純アルミニウム A1100 合金を対象として明らかにした．また，負荷様式を変化させるのみで容易に強度向上を達成することを示した．そこで，強度と伸びの関係をアルミニウム合金の他のデータ [31]，例えば A1100 合金を用いて Saito 等が行った ARB 法 [11-14]，Horita 等が行った ECAP 法 [6-10] のデータと本実験結果を Fig. 4-23 に示す．なお，ARB 法では板厚 1mm，板幅 5mm，長さ 10mm，ECAP 法では板厚 2mm，板幅 3mm，長さ 5mm の平行部寸法を有する引張試験片を用いており，本研究結果と十分比較が可能と考えられる．これより一軸鍛造材と ARB 材，二軸鍛造材と ECAP 材のデータに類似した傾向が見られる．一軸鍛造材では強度の増加とともに強い組織配向が形成されたため伸びは極端な低下を示し，ARB 材よりも低い値である．ARB 材における結晶方位はあまり強い組織配向を示さない [13-14,22] とされていることより，組織配向が破断伸びへ影響を及ぼすと考えられる．一方で，二軸鍛造は高強度を保ちながら極端な伸びの低下を示すことなく ECAP 法と類似した傾向が現れた．その原因の一つに加工法が挙げられる．二軸鍛造は加工毎に試料を 90° 回転させ二軸から負荷する手法であり，試料形状は異なるが ECAP 法においても加工毎に試料を 90° ずつ回転させ，せん断変形を付与する加工を行っている．以上より，圧縮・せん断変形は結晶粒微細化を行うための条件であると考えられるが，伸びを維持したまま高強度化を行うには，負荷軸を多軸化することが必要である．

本研究の結果に着目すると，特に二軸鍛造材では強度と伸びのバランスは大きく改善され，一軸鍛造材のそれよりも良好である．この結果から，A1100 合金でありながらも結晶粒微細化を行うことで，その機械的特性は Al-Mn 系や一部 Al-Mg 系合金と代替できるまでに達している．すなわち，結晶粒微細化法は合金元素添加による特性改善とは異なり，材料が再利用し易く環境負荷を最小限にできることを裏付けている．さらに，本手法によれば実用加工として容易な鍛造を用い，複数方向から負荷することで容易にバルク材の微細粒形成が可能で伸びを極端に低下させることなく強度向上を達成することが可能である．

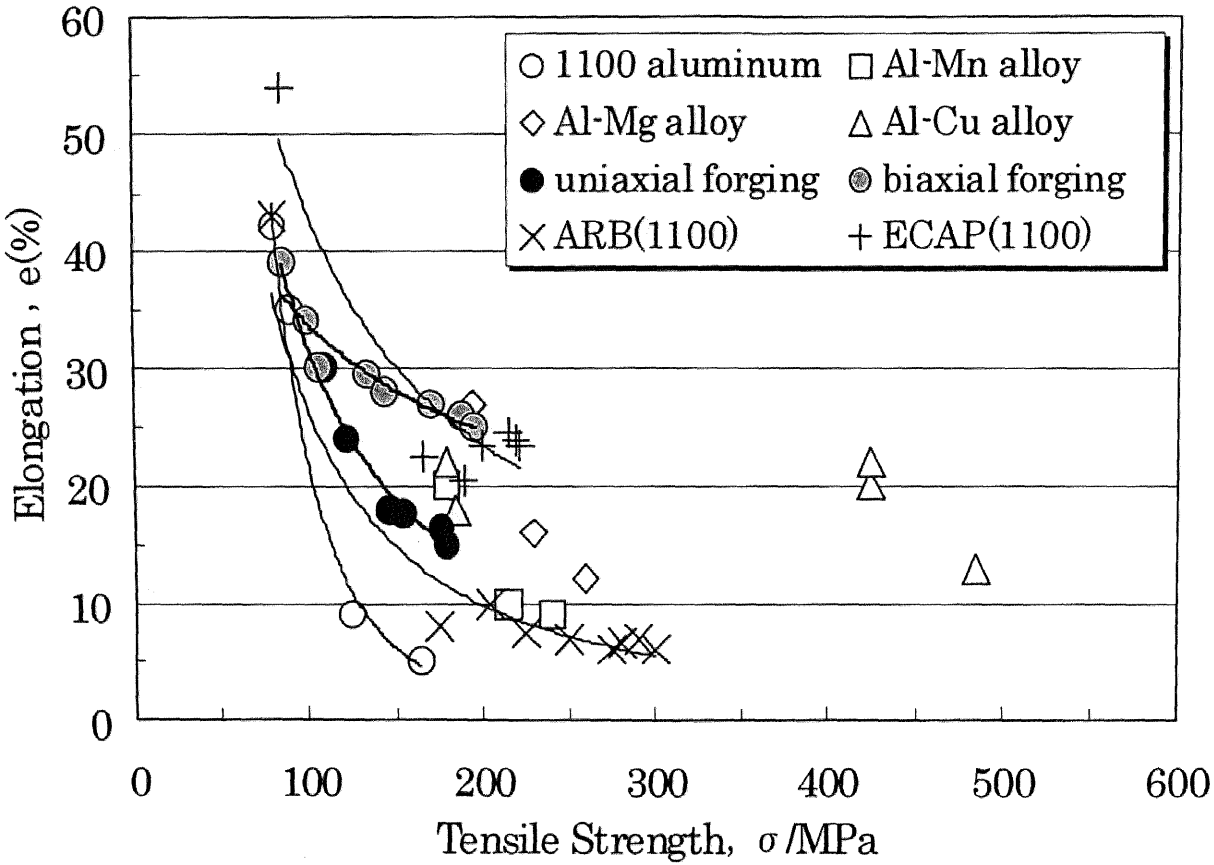


Fig. 4-23 Tensile strength and elongation of the 1100 aluminum deformed by different forging processed and various kinds of conventional aluminum alloys.

4.5 結　論

温間域における鍛造加工が結晶粒微細化に対し効果的であったことから，微細結晶粒をより容易に形成させるにはどのような負荷様式が効果的か負荷軸数を一軸および二軸として鍛造加工を行った．このとき，添加元素の影響を受けず温間域においても安定な状態を維持することの出来る A1100 工業用純アルミニウムを用いて，負荷様式の差異がもたらす機械的特性と結晶粒微細化過程の差異を調べた．加えて，ひずみ負荷様式として一軸および二軸鍛造加工を行うことで，負荷軸数と微細結晶粒形成機構および強度向上の関係の解明と鍛造加工のみでより微細な結晶粒を形成させることが可能かも検討した．これらを比較することで負荷様式が結晶粒微細化へ及ぼす影響を機械的特性，結晶組織および結晶方位差から検討した結果を以下に示す．

(1) 一軸鍛造材では強い組織配向を有し，破断伸びは強度向上とともに著しい低下を招くが，二軸鍛造材ではランダムな組織配向を示すため破断伸びは 26%と大きな値を示して加工度が増した割に低下は少ない．
(2) 破断面形態は一軸および二軸鍛造材ともディンプル破面を形成して延性破壊を呈しているものの，二軸鍛造材ではすべり面分離が生じていることが可能なことを示している．
(3) 二軸鍛造材加工材の引張強さと降伏応力には大きな差は見られず，180MPa および 170MPa にまで達し，これは供試材時に比べそれぞれ 2.1 倍と 3.7 倍に相当する．このとき，加工材であるものの破断伸びの損失はほとんどなく，粒界方位差を十分に有した結晶粒を形成していた．
(4) ひずみ負荷様式としては二軸鍛造のように様々な方向からせん断ひずみを導入することが結晶粒微細化には有効であり，低角粒界が高角粒界に囲まれた領域を節状に分断することで加工により導入された転位が動的な回復と再結晶の助長を受け低角粒界に吸収されることで結晶粒界は高角化し，これらの作用が連続的に作用することで結晶粒が微細化された．
(5) 結晶粒微細化機構は主に動的な回復と再結晶が作用していると考えられる．さらに，再加熱時に静的不連続再結晶が起きることで加工および再加熱中に結晶方位差を増進させるため，結晶粒径 1μm 以下の超微細粒の形成が可能である．

(6) 本研究で採用した二軸鍛造材の機械的特性は ECAP 材のそれと同程度まで改善されており，特殊な加工法を用いることなく強度向上が成され，この材料が有する強度は Al-Mn，Al-Mg 系合金などに一部代替できる可能性があることを示した．

(7) 結晶粒径 1μm 以下の超微細粒が創製可能であり，延性を維持したまま高強度を示したことにより，従来の加工工程を大幅に変更することなく鍛造加工のみでも結晶粒微細化および高強度材料の創製は可能である．

参考文献

1) for example, *Present Status and Future Prospect of Aluminum Super Metal Project,* (JRCM, 1997) pp1-21.
2) N. Tsuji, K. Shiotsuki and Y. Saito: Mater.Trans., JIM 40(1999) 765-771.
3) H. Akamatsu, T. Fujinami, Z. Horita and T. G. Langdon: Scripta Mater. 44(2001) 759-764.
4) K. Funami, R. Sano: *4th Pacific Rim Int. Conf. on Advanced Materials and Processing.* (2001, Dec.)
5) Y. Demura, K. Kitagawa and M. Kawazoe: J. Japan Inst. Light Metals 51(2001) 324-328.
6) Z. Horita: *Proc. of the first sympo. on Super Metal,* (JRCM, 2001) pp97-106.
7) R. Z. Valiev, N. A. Kraslinikov and N. K. Tsenev: Mater. Sci. Eng. A137 (1991) 35-40.
8) M. Furukawa, Z. Horita, M. Nemoto, R. Z. Valiev and T. G. Langdon: Acta Mater. 44(1996) 4619-4629.
9) Y. Nishida: *New approach to grain refinement,* JIM Seminar Text, (The Japan Inst. of Metals, 2000) pp45-48.
10) A. Azushima: *New approach to grain refinement,* JIM Seminar Text, (The Japan Inst. of Metals, 2000) pp49-52.
11) Y. Saito, H. Utsunomiya, N. Tsuji, T. Sakai and S. Lee: *Proc. of the first sympo. on Super Metal,* (JRCM, 2001) pp97-106.
12) Y. Saito, H. Utsunomiya, N. Tsuji and T. Sakai: Acta Mater. 47(1999) 579-583.
13) Y. Saito, H. Utsunomiya, N. Tsuji, T. Sakai and R.G. Hong: J. Japan Inst. Metals 63(1999) 790-795.
14) N. Tsuji, T. Murakami and Y. Saito: J. Japan. Inst. Metals 63(1999) 243-251.
15) Q. Cui, K. Ohori: J. Japan Inst. Light Metals 50(2000) 335-340.
16) M. Noda, K. Funami and M. kobayashi: J. Japan Inst. Metals 64(2000) 395-398.
17) M. Kobayashi, K. Funami: *Proc. of the second sympo. on Super Metal,* (JRCM, 2001) pp281-290.
18) K. Funami, M. Noda: Abstracts of the Japan Inst. Metals, fall meeting,

(2000) 278.
19) M. Noda, M. Hirohashi, K. Funami and Y. Suwahara: J. Japan Inst. Metals 66 (2002), 101-108.
20) M. Kobayashi, K. Funami: *Proc. of the third sympo. on Super Metal,* (JRCM, 2001) pp169-173.
21) K. Funami, M. Noda, M. Hirohashi: Abstracts of the Japan Inst. Metals, fall meeting, (2001) 498.
22) Y. Ito, N. Tsuji, Y. Saito, H. utsunomiya and T. Sakai: J. Japan Inst. Metals 64(2000) 429-437.
23) Y. Takayama, M. Yamaguchi, T. Tozawa, H. Kato, H. Watanabe and T. Izawa: *The fourth Int. conf. on Recrystallization and Related Phenomena,* (Japan Inst. Metals, 1999) pp321-326.
24) Y. Takayama: J. Japan Inst., Light Metals 44(1994) 48-56.
25) O. Umezawa: J. Japan Inst., Light Metals 50(2000) 86-93.
26) S. Suzuki: Materia Japan 40(2001) 612-616.
27) for example, *OIM ACADEMY,* (2000, July), TexSEM Laboratories, Inc.
28) Y. Saito, N. Tsuji, Y. Ito: *Proc. of the third sympo. on Super Metal,* (JRCM, 2001) pp149-161.
29) T. Watanabe: *New approach to grain refinement,* JIM Seminar Text, (The Japan Inst. of Metals, 2000) pp17-23.
30) T. Maki: *New approach to grain refinement,* JIM Seminar Text, (The Japan Inst. of Metals, 2000) pp 9-15.
31) *Structure and Properties of Aluminum Alloys,* Japan Inst. Light Metals, (1991).