

## 超微細粒組織を有する純アルミニウムが示す特異な力学現象中の転位密度その場測定

### In-situ Measurement of Dislocation Density During Unique Mechanical Behaviors in Bulk Nanostructured Aluminum

足立 大樹<sup>a</sup>, 高木 健<sup>a</sup>, 宮嶋 陽司<sup>b</sup>, 柴田 暁伸<sup>a</sup>, 寺田 大将<sup>a</sup>, 辻 伸泰<sup>a</sup>  
Hiroki Adachi<sup>a</sup>, Takeshi Takagi<sup>a</sup>, Yoji Miyajima<sup>b</sup>, Akinobu Shibata<sup>a</sup>, Daisuke Terada<sup>a</sup>, Nobuhiro Tsuji<sup>a</sup>

<sup>a</sup>京都大学, <sup>b</sup>東京工業大学  
<sup>a</sup>Kyoto University, <sup>b</sup>Tokyo Institute of Technology

超微細結晶粒を有する純アルミニウムは従来粒径材の数倍の強度を有するが、降伏点降下や Hardening by Annealing などの特異な力学現象を示す。本研究では引張り変形を行いながら X 線回折実験を行うことにより、超微細粒純アルミニウムにおける転位密度のその場測定を試みた。その結果、結晶粒径が小さい程、引張り試験の進行に伴う転位密度の増加量は大きく、また、破断により転位密度が大きく減少することが分かった。また、降伏応力よりも小さい応力から転位が増殖していることが明らかとなった。

キーワード： 転位密度、超微細粒、アルミニウム、その場測定 XRD

#### 背景と研究目的：

近年、自動車の燃費向上による CO<sub>2</sub> 削減、リサイクル性の向上による環境負荷の低減が求められている。その為、構造用金属材料にも従来からの軽量で高強度という要求に加えリサイクル性の向上も求められている。これまで、合金化を通じた時効析出や固溶強化による高強度化が行われてきたが、それらの手法による限界が見え始めている上、大量の合金元素の利用によるリサイクル性悪化の問題がある。

構造用金属材料には多結晶材が用いられ、その結晶粒径は最小でも 10 $\mu$ m 程度であったが、近年、通常加工では不可能な極めて大きい塑性ひずみを材料に与える「巨大ひずみ加工」を用いることで、結晶粒径をナノオーダーに超微細化したバルク材の超微細粒金属（バルクナノメタル）を得ることが可能になった。例えば、合金添加を施していない純アルミニウムでも超微細粒化することで、強度が 4 倍に増加することが報告されており[1]、リサイクル性の高い、高強度軽量構造材料として期待されている。しかしながら、バルクナノメタルは通常粒径材が示さない様々な特異な力学的現象を示すことから、これらの現象の発現メカニズムを理解し、制御するために、より詳細な研究を行うことが実用化のため急務である。例えば FCC 金属における降伏点降下現象[1]や Hardening by Annealing / Softening by Deformation 現象[2]の発現がそれにあたる。これはバルクナノメタルでは結晶粒界の占める割合が多いため、変形を担う転位の挙動に結晶粒界が大きな影響を与えるためであると予想されているが、バルクナノメタルにおける変形中の転位挙動については未だ明らかとなっていない。よって、本研究では、様々な結晶粒径を有する純アルミニウムに引張り変形を施しながらその場 X 線回折実験を行うことにより、変形の進行に伴う転位密度の変化を調べ、結晶粒径が転位の増殖挙動に及ぼす影響について調べた。

#### 実験：

繰り返し重ね接合圧延(ARB : Accumulative Roll Bonding)法[1]により作製した平均結晶粒径 320nm のバルクナノアルミニウムに 100, 150, 225, 300 $^{\circ}$ C で焼鈍を施し、それぞれ平均結晶粒径 350, 420nm, 1.3, 5.3 $\mu$ m の試料を得た。これらの試料から平行部長さ 40mm, 幅 5mm, 厚さ 0.5mm の引張り試験片を切り出し、BL19B2 のゴニオメータ上に設置した引張り試験機に取り付けた。透過配置にイメージングプレート(IP : Imaging Plate)を設置し、IP の前面には幅 4mm のスリットを引張り方向と平行に設置した。引張り開始と同時に試料からの距離を保ったまま IP のみを引張り方

向と垂直方向に 2mm/s で移動させながら X 線回折実験を行うことにより、IP 上に時間変化に伴う回折強度の変化を記録した。用いた X 線のエネルギーは 25keV であり、引張り速度は 0.2mm/min で行った。実験を行った課題番号は 2010B1786 である。観察された(111), (200), (220), (311), (222)面の回折ピーク角度と半値幅(FWHM : Full Width at Half Width)を測定し、ピーク角度から格子定数を求め、FWHM から Williamson-Hall 法を用いて転位密度を求めた。

### 結果および考察：

図 1 に得られた応力ひずみ曲線、図 2 に格子定数を示す。引張り初期の弾性変形領域において格子定数が大きく増加し、降伏すると格子定数の変化は小さくなっている。ひずみ量による格子定数の変化は応力の変化と良く対応しており、試料の破断による負荷応力の低下によって格子定数は大きく減少している。

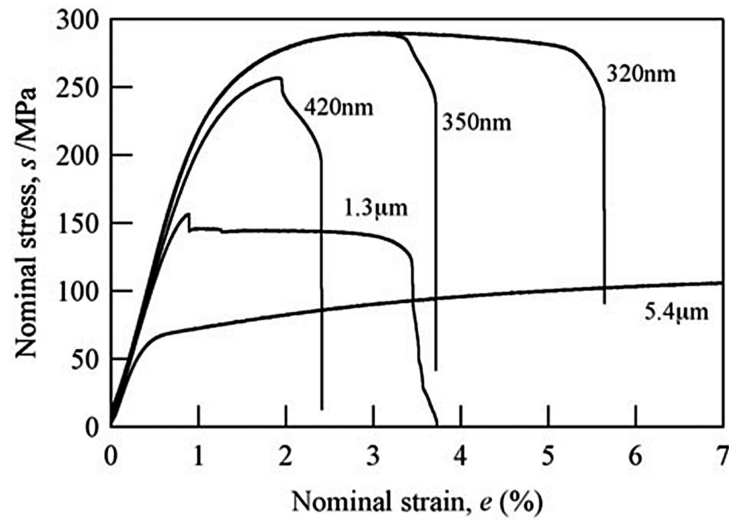


図 1. 応力ひずみ曲線の結晶粒径による変化

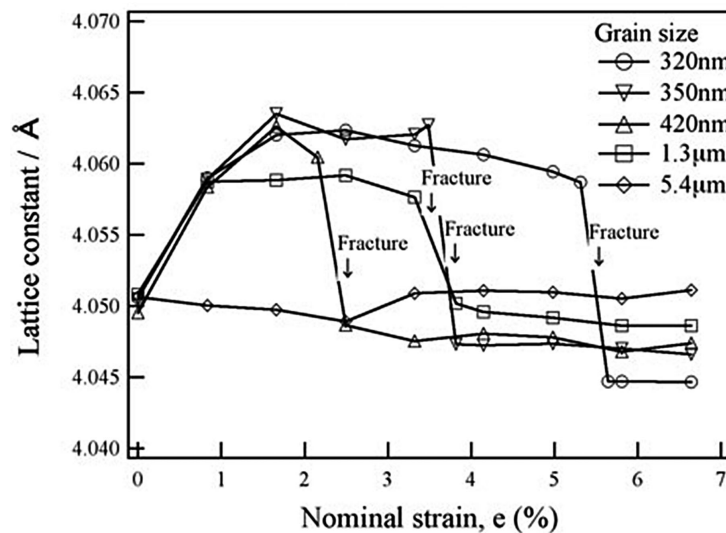


図 2. 引張りひずみ量の増加に伴う格子定数の変化と結晶粒径の影響

図 3 にひずみ量の増加に伴う転位密度の変化を示す。引張り変形の進行により転位密度は増加し、その後ほぼ一定となった。転位密度の増加量は結晶粒径が小さいものほど大きく、1.3 $\mu\text{m}$  粒径材では  $6.7 \cdot 10^{13} \text{m}^{-2}$  であるのに対し、320nm 粒径材では  $3.1 \cdot 10^{14} \text{m}^{-2}$  と非常に大きいことが分かった。また、破断により転位密度の低下があることが明らかとなった。結晶粒径が小さい試料ほど低下量は大きく、320nm 粒径材では  $1.9 \cdot 10^{14} \text{m}^{-2}$  に達することから、引張り変形中に増殖した転位は除荷に伴い結晶粒界がシンクとなって消滅したと考えられる。この結果は、特に、結晶粒が微細なバルクナノメタルにおいて、その力学特性を理解するために変形中のその場測定が必須であ

ることを示唆しており、本研究の手法は非常に有力な手法となることを示している。

弾性変形領域から塑性変形領域に移る応力が降伏応力であり、アルミニウムでは0.2%耐力を降伏応力と見なしている。320~420nm 粒径材では図1より0.2%耐力は1%ひずみ前後であることが分かる。しかしながら、図3より、320~420nm 粒径材では0.2%耐力よりも低い応力から転位密度が増加し始めており、超微細を有したバルクナノメタルでは、従来塑性変形が開始すると言われている降伏点（0.2%耐力）よりもかなり早期から塑性変形が開始していることが明らかとなった。しかしながら、今回の測定における時間分解能では、転位の増殖がどの程度の応力からはじまっているのかは正確に分からず、このバルクナノメタルにおける早期の転位増殖現象が、従来粒径材において報告されている転位の増殖メカニズムによって説明出来るのかどうかは検証出来なかった。

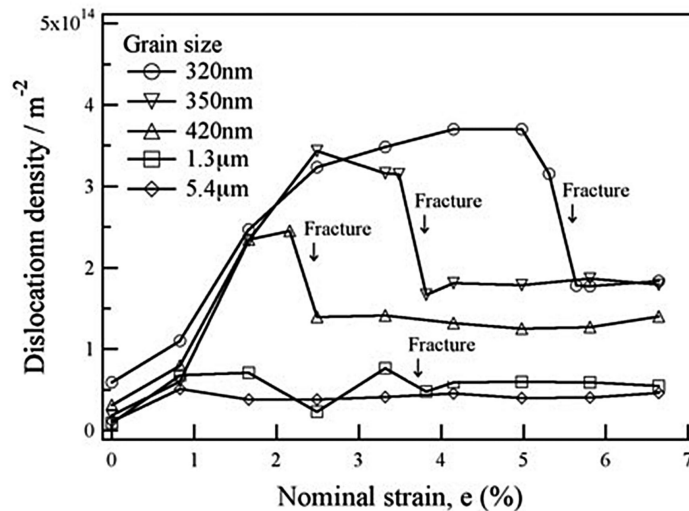


図3. 引張りひずみ量の増加に伴う転位密度の変化と結晶粒径の影響

#### 今後の課題：

今回の実験では当初、引張り変形中の転位密度の変化を In-situ で調べるため、取り込み速度の速い二次元検出器 PILATUS を用いて測定を行った。しかしながら、同検出器のピクセルサイズが  $366\mu\text{m}$  であったため、十分な角度分解能を得ることが出来ず、FWHM の引張り変形に伴う変化を正確に測定することが出来なかった。よって、IP 前に  $4\text{mm}$  幅のスリットを設置し、引張り変形の進行に伴い IP をスライドさせることで、IP の各位置に各時間における回折プロファイルを記録した。それにより十分な角度分解能は得られたものの、観察される回折プロファイルはスリット幅  $4\text{mm}$  を IP が移動するのにかかる時間の回折強度が平均化されたものになったため、十分な時間分解能を得ることが出来なかった。そのため、引張り初期における転位密度の変化を詳細に調べることが出来ず、どの程度の負荷応力によって転位が増殖しはじめるのか、そしてその応力に結晶粒径はどのように影響するのか、などの知見を得ることが出来なかった。この知見を得ることが出来れば、従来粒径材と超微細粒材で転位の増殖メカニズムがどのように異なるのかを調べることが出来、その結果に基づいてバルクナノメタルの機械的性質を制御できるようになると期待される。よって、今後は時間分解能と角度分解能の両立を目指し、光学系、検出器の選択や試料調整条件などの検討が必要である。

#### 参考文献：

- [1] N. Tsuji, Y. Ito, Y. Saito and Y. Minamino, *Scripta Mater.*, **47**, 893 (2002).
- [2] X. Huang, N. Hansen and N. Tsuji, *Science*, **312**, 249 (2006).