

引張り変形中の In-situ X 線回折実験を用いた
バルクナノアルミニウム中の転位増殖挙動の観察
**Observation of the Dislocation Multiplication Behavior under Tensile
Deformation in Bulky Nano-Structured Aluminums by Using in-situ X-ray
Diffraction Technique**

足立 大樹^a, 宮嶋 陽司^b
Hiroki Adachi^a, Yoji Miyajima^b

^a兵庫県立大学, ^b東京工業大学
^aUniversity of Hyogo, ^bTokyo 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、Hardening by Annealing などの特異な力学現象を示す。本研究では結晶粒径を変えた試料と、それに軽圧延を加えた試料について、異なるひずみ速度で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、超微細粒材では軽圧延を加えた試料の方が、転位増殖が開始されるひずみ量が小さくなり、増殖速度が遅いことが分かった。また、ひずみ速度が低い方が、転位増殖が開始されるひずみ量が小さくなり、増殖速度も低下することが分かった。これらは従来粒径材では見られなかった現象であり、超微細粒材では転位増殖機構が従来粒径材とは異なっていることを示唆している。

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：

構造用材料用アルミニウム合金の結晶粒径は最小でも 10 μ m 程度であったが、近年、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法を用いることで、結晶粒径をナノオーダーに超微細化することが可能となっている。例えば、合金添加を施していない純アルミニウムでも結晶粒径を数百 nm まで超微細化することで、降伏強度が 4 倍に増加することが報告されており、リサイクル性の高い次世代構造用材料として期待されている[1]。しかしながら、超微細粒材は従来粒径材が示さない様々な特異な力学的現象を示すことが報告されている。例えば FCC 金属であるにも関わらず降伏点降下現象[1]を示すことや、加工することにより柔らかくなり、焼鈍すると硬化する Hardening by Annealing / Softening by Deformation 現象[2]の発現、また、応力ひずみ曲線の大きなひずみ速度依存性を示すことがそれにあたる。超微細粒材料を実用に供するためには、これらの現象が生じる原因を明らかにし、制御する必要がある。よって、本研究では、結晶粒径と、初期転位密度の異なる純アルミニウムに対し、異なるひずみ速度の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、超微細粒材における転位増殖挙動に及ぼす要因について調べた。

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 373, 498, 573K で焼鈍を施し、それぞれ平均結晶粒径 350nm, 1.3 μ m, 5.3 μ m の試料を得た。次にこれら焼鈍材に数%の軽圧延を施すことにより、結晶粒径をほとんど変えることなく、初期転位密度を僅かに増加させた試料を作製した。これら超微細粒材 (373K 焼鈍材と ARB 材)、微細粒材 (498K 焼鈍材と 498K 焼鈍+圧延材)、従来粒径材 (573K 焼鈍材と 573K 焼鈍+圧延材) をそれぞれ比較することにより、結晶粒径と初期転位密度が転位増殖挙動に与える影響を調べることが出来る。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。引張り速度は 0.2mm/min (ひずみ速度 $8.3 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$) および 0.02mm/min (ひずみ速度 $8.3 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$) で行い、IP の移動速度はそれぞれ 2mm/min、0.2mm/min で行った。用いた X 線のエネルギーは 25keV であり、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、Williamson-Hall 法を用いて転位密度を求めた[3]。

結果および考察：

Fig.1 にその場 X 線回折測定時における応力ひずみ曲線を示す。従来粒径材では軽圧延を施したことによる応力ひずみ曲線の変化はほとんどみられなかった。微細粒材では、軽圧延材では連続降伏を示したのに対し、焼鈍材において降伏点降下現象が観察された。しかしながら、降伏点降下後の応力はほぼ同程度であった。一方、超微細粒材ではいずれの試料においても連続降伏を示したものの、降伏応力と最大応力は軽圧延材の方が低く、大きい塑性伸びを示した。これは Softening by Deformation 現象[2]である。

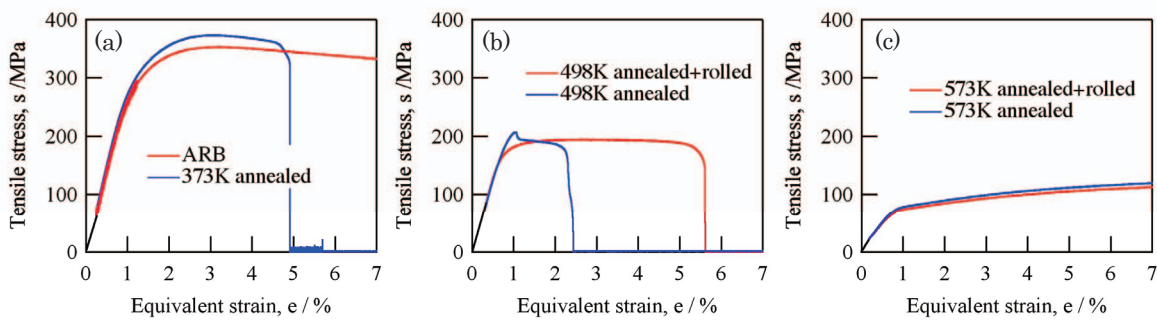


Fig.1. その場 X 線回折測定時における応力ひずみ曲線(ひずみ速度 $8.3 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$)
(a)超微細粒材 (b)微細粒材 (c)従来粒径材

Fig.2 にひずみ速度を変えた時の応力ひずみ曲線の変化を示す。従来粒径材や微細粒材ではひずみ速度による応力ひずみ曲線の変化はほとんどみられなかったが、超微細粒材ではひずみ速度を小さくすることにより、降伏応力と最大応力の低下と伸びの向上が見られた。

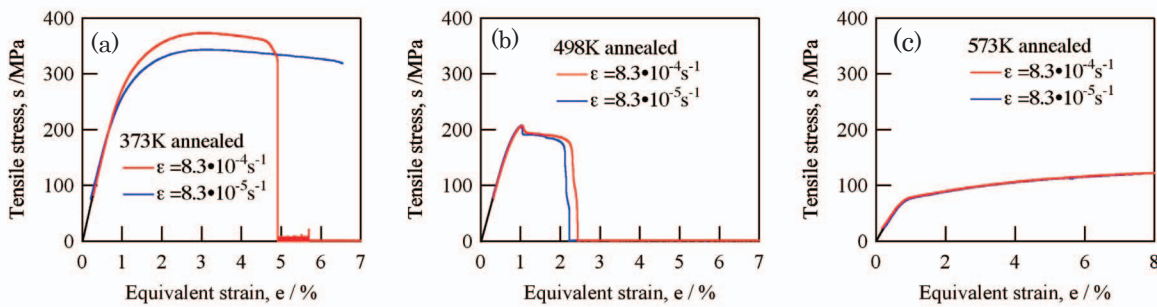


Fig.2. その場 X 線回折測定時における応力ひずみ曲線のひずみ速度による変化
(a)超微細粒材 (b)微細粒材 (c)従来粒径材

Fig.3 に Fig.1 の応力ひずみ曲線に対応する、その場 X 線回折測定時における転位密度変化を示す。まず、0 ひずみにおいてみられる軽圧延による転位密度の変化は小さく、せいぜい $1 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-2}$ 程度であった。この差そのものは強度を大きく変える量ではないということが Bailey-Hirsch の式から予測される。

従来粒径材では変形初期から転位密度は徐々に増加し、0.8%ひずみ付近を超えると転位の増殖速度が緩やかになった。これは応力の変化と非常に良く対応しており、純アルミニウムの従来粒径材では転位の増殖は非常に小さい応力で生じ、転位密度の増加により硬化することが分かった。微細粒材では変形初期には転位密度はあまり増加しなかったが、0.5%ひずみ付近を超えると転位が増殖しはじめる事が分かった。このことは結晶粒を微細化することによって、転位が増殖しづ

らくなることを示唆している。また、0.8%ひずみ付近までは焼鈍材と軽圧延材は似た転位密度変化を示すが、1.1%ひずみ付近で焼鈍材では転位密度が急激に増加した。これは応力ひずみ曲線の降伏点降下を示すひずみ量に対応しており、このひずみ量において何らかの転位増殖機構が活性化されたため、急激に転位密度が増加し、それに伴い応力が低下したと考えられる。鉄鋼では炭素周りに形成されたコトレル雰囲気から不動転位が外れることにより可動転位が増加することによって降伏点降下現象が生じるとされているが、この試料は純アルミニウムであり、転位を固着するような溶質原子などは考えにくく、この活性化された転位増殖機構が何であるかについては不明である。

超微細粒材では、ARB 材では 0.5%ひずみ、373K 焼鈍材では 0.8%ひずみまで転位密度はほとんど増加しなかった。この 0.5, 0.8%というひずみ量はそれぞれ応力ひずみ曲線の初期勾配から傾きが緩やかになるひずみ量に対応しており、このひずみ量を超えると転位が増殖し始め、塑性変形が開始されることを示している。ARB 材は 373K 焼鈍材に軽圧延を加えた試料に概ね対応するので、超微細粒材では軽圧延により初期転位密度がほとんど変化しないにも関わらず、転位増殖に必要なひずみ量(応力)が変化することが分かった。また、その後の転位増殖速度は 373K 焼鈍材よりも ARB 材の方が遅かった。これらの現象が生じる理由については不明であるが、この転位増殖挙動の違いが応力ひずみ曲線の違いに反映され、Softening by Deformation 現象の原因となったと考えられる。

ただ、ARB 材と 373K 焼鈍材の初期転位密度は $5 \cdot 10^{13} \text{ m}^{-2}$ 以上であり、従来粒径材よりも高いため、林立転位により形成される Frank-Read 源も粒内に多く存在すると予想されるが、超微細粒材では従来粒径材とは異なり、これらは低い応力では活性化されないことを示唆している。また、引張り変形中に増殖した転位密度は破断時に、特に超微細粒材において特に顕著に減少することが分かる。このことは、破断後の試料の転位組織を透過電子顕微鏡を用いて観察しても、超微細粒材の力学特性を十分には理解出来ないことを示している。

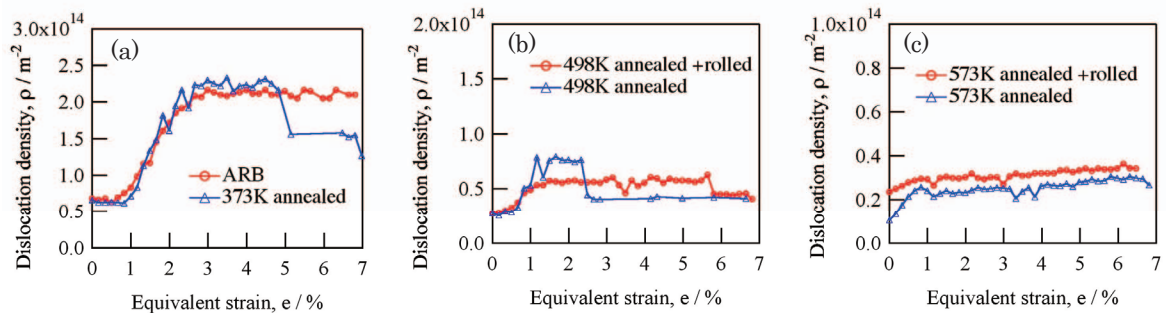


Fig.3. その場 X 線回折測定時における転位密度変化
(a)超微細粒材 (b)微細粒材 (c)従来粒径材

Fig.4 にひずみ速度の変化による転位増殖挙動の変化を示す。従来粒径材と微細粒径材ではひずみ速度の変化により転位増殖挙動に大きな変化は見られなかった。しかし、超微細粒材ではひずみ速度の低下により、転位増殖が開始されるひずみ量が減少し、その後の転位増殖速度も低下した。このことがひずみ速度変化に伴う応力ひずみ曲線の変化に反映されていると考えられる。

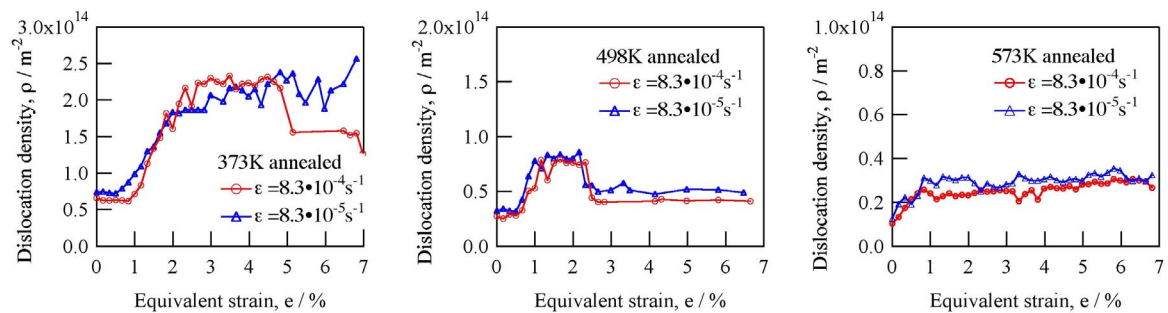


Fig.4. その場 X 線回折測定時における転位密度変化のひずみ速度による変化
(a)超微細粒材 (b)微細粒材 (c)従来粒径材

今後の課題：

今回の実験により、超微細粒を有するアルミニウムにおいて、降伏点降下現象、**Softening by Deformation** 現象、大きなひずみ速度依存性といった特異な力学現象を示す原因が、転位増殖挙動の違いより説明出来ることが明らかとなった。但し、何故そのような転位増殖挙動の違いが生じるのかについての理由については本実験では十分に明らかにすることは出来なかった。

また、超微細粒材において破断後の転位密度は変形中よりも大きく減少することが分かったことから、変形中の転位組織と応力除荷後の転位組織は異なる可能性が高く、本実験のその場測定手法は超微細粒材の力学特性を理解する上で大きな力となる。但し、アルミニウムよりも重く、X線透過力が劣る金属、例えば銅やニッケル、鉄鋼などの超微細粒材の研究には本手法をそのまま適用することは出来ず、フラックスの多いアンジュレーターを備えたビームラインの使用が必須であると考えられる。

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).
- [3]H. Adachi, Y. Miyajima, A. Shibata, D. Terada and N. Tsuji, *13th International Conference on Aluminum Alloys*, 61(2012).