

高温塑性変形による結晶粒界キャビテーションの ナノスケール解析法の開発と 塑性不安定を抑制する結晶粒径の研究

千葉大学 大学院融合科学研究科 ナノサイエンス専攻

助教 森田剛

(平成 23 年度奨励研究助成 AF-2011034)

キーワード：粒界キャビテーション，小角 X 線散乱，塑性不安定

1. 研究の目的と背景

金属材料は、塑性変形過程において「空隙（キャビテーターまたはボイド）」を形成し、塑性変形の程度が増すにつれ空隙は成長する。この空隙が材料に部分的なくびれを生じさせ、最終的な破断を誘発する。図1に、くびれを生じた試験片の写真を示す。（塑性変形により部分的に材料の直径が細くなる部分が発生する。）金属材料の塑性変形過程における空隙の形成は、金属材料の強度評価や材料設計、さらには、構造材料の維持管理における劣化や破断危険性の検査に対し、極めて配慮されるべき現象である。

先駆的に、E.W. Hart は 1967 年、本研究分野において極めて重要な論文を発表しており、金属材料の塑性変形において、ひずみ量感受性 m と加工硬化感受性 γ のパラメータが以下の式にあてはまる場合、均一変形であり、一方で、領域より外れた場合、塑性不安定を起こすことを提案した¹⁾。

$$m + \gamma \geq 1. \quad (1)$$

これは、Hart の理論として極めて重要であり広く知られている。しかしながら、その構造的理屈付けや塑性不安定を抑制する材料内部の変形機構理論にまでは発展していないと考えられる。

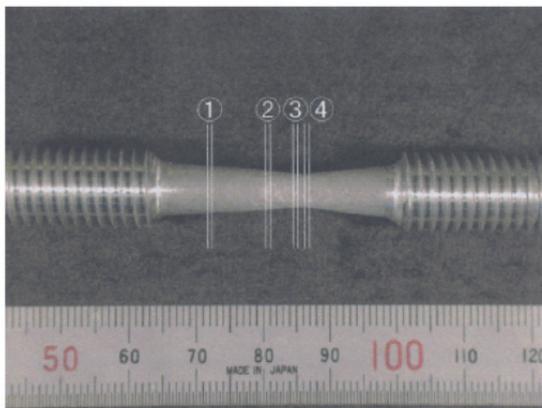


図1 引張試験片に発生した局所くびれ④の部分でくびれが生じている。ここで塑性不安定を起こし破断に至る。

長谷川らは、透過型電子顕微鏡により結晶粒界に塑性変形段階で生じるキャビテーションの詳細な観察を行っている²⁾。これによれば、上述の通り、ボイドが結晶粒界に発生していることが確認され、破断を誘発していることが示された。しかし、直接観察という優れた点がある一方で、透過型電子顕微鏡観察で問題となるのは、金属材料を電子線が透過する程度まで薄くする過程で、発生したボイドが拡大、もしくは、変形する点であり、定量的な評価が困難な点である。

岡崎らは、コンピューターシミュレーションにより、実験で得られた応力-ひずみ線図から理論値が一致しなくなる点が最大応力前から現れ、これが粒界キャビテーションの発生による材料の強度低下と関連していることを提案している³⁾。

本研究は、塑性変形における局所くびれ発生に伴う塑性不安定に関し、材料内部の構造情報、特に空隙の構造解析に基づいてその抑制方法の検討を行う、極めて広範な塑性加工技術への応用が期待される研究課題である。また、超塑性などの極めて変形量の大きな塑性変形が何故可能なのか、に関しても微視的な解を与え得る重要な研究課題と考える。

本研究の試料には、多結晶体の純アルミニウムを用いた。加工と焼鈍により結晶粒を制御した試料（結晶粒径：170, 346, 及び、630 μm ）に高温（553 K）にて引張試験を行い、変形過程で生じた粒界キャビテーションを、小角 X 線散乱法により解析した。また、超微細結晶粒に関しても検討を行った。

2. 実験方法

2・1 供試材

試料には、多結晶体のアルミニウムを用いた。加工と焼鈍により結晶粒を制御した試料（結晶粒径は 170, 346, 及び、630 μm ）に高温（553 K）にて引張試験を行い、変形過程で生じた粒界キャビテーションを、高強度 X 線源を用いた小角 X 線散乱法により測定した。

さらに、超微細結晶粒を持つ試料を用いた。ECAP (Equal-Channel Angular Pressing) 法により、丸棒材料の直径を減少させることなく強加工を与え、超微細結晶粒とした。これにより、結晶粒径依存性の広範な検討が可能となるばかりでなく、今まで実現できなかった、超微細結晶粒を有する金属材料の塑性変形におけるポイド形成過程を、詳細に解明する研究が可能となった。金属材料は、結晶粒微細化により機械的強度が増すことが知られ、特に、結晶粒の超微細化により、純金属の機械的強度を大幅に増加させることができれば、金属材料のリサイクル性を損なうことなく高強度材料を開発することができる。図 2 に本研究で用いた ECAP 用金型の写真を、図 3 に ECAP 用金型の割型図を示す。

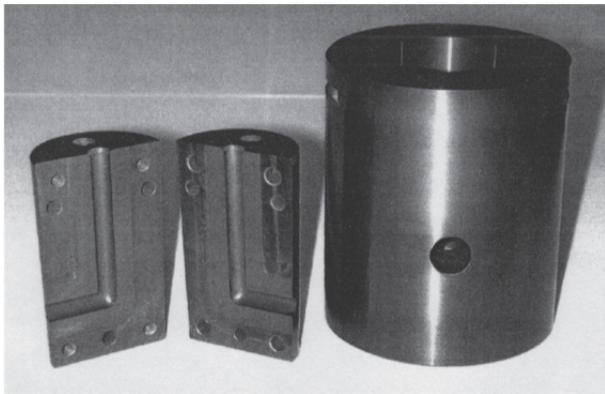


図 2 ECAP 金型

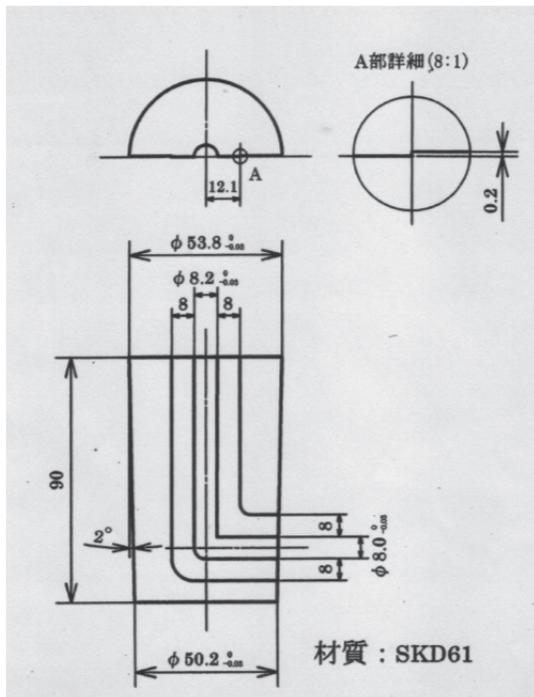


図 3 ECAP 金型の割型図

2・2 小角 X 線散乱法

本研究では、金属材料の塑性変形により生ずる空隙とその成長過程を、小角 X 線散乱法を適応することで、材料内部の情報を含め、定量的かつ微視的スケールで観察した。観測サイズは、メソスケール領域であり、本研究の観察領域としては最適と考えられる。

得られる情報は、空隙の「サイズ、形状、数、さらにサイズ分布」など、本研究分野において貴重な情報である。生じる空隙のサイズは、数十から数百 Å 程度であり、小角散乱法が効果的な観察手法となる。ポイドの形成や成長過程を、材料の変形量と、超微細結晶粒を含んだ結晶粒径依存性から解析した。この解析により、金属材料の機械的特性に微視的な構造解析に基づいた理解を与え、より優れた金属材料の開発に貢献することが期待される。

小角 X 線散乱法は、極めて有用なポイドの評価法である。散乱強度は以下の式により表わされる⁴⁾。

$$I(s) = nV^2(\Delta\rho_e)^2 I_e |F(s)|^2 S(s), \quad (2)$$

ここで、 n は散乱体 (本研究ではキャビティー) の個数、 V は散乱体の体積、 $\Delta\rho_e$ は電子密度差、 I_e は電子散乱強度、 $F(s)$ が形状因子、及び、 $S(s)$ が構造因子である。重要な点は、電子密度の 2 乗に散乱強度が関係している点であり、真空中に粒子が存在する場合はもちろんのこと、ある電子密度をもつ試料の媒体中に、電子密度の低い領域や、本研究のような空隙が存在する場合でも、式(2)で与えられる散乱理論式から、形状や大きさ等の情報が得られるものと考えられる⁵⁾。

さらに、小角 X 線散乱データの解析には、試料の吸収係数の高精度の見積りが欠かせない。これは、散乱強度は下記のように、吸収係数と指数関数的に関係しているためである。

$$I(s) = \{I_{\text{obs}}(s) - I_{\text{back}}(s) \cdot \exp(-\mu l)\} \cdot \exp(\mu l), \quad (3)$$

ここで、 $I_{\text{obs}}(s)$ と $I_{\text{back}}(s)$ は、それぞれ観測された散乱強度とバックグラウンドの散乱強度である。 μl は吸収係数で、質量吸収係数、試料密度、及び、試料長で表わされる。

2・3 X 線吸収法による密度測定

前述のとおり、高精度の吸収係数の見積りのためには、試料の密度が必要である。一方で、散乱測定を行っている部分に限定し、試料の密度を評価する必要がある、これはバルク体をそのまま密度評価するだけでは達成できない。このため、試料の密度について X 線吸収法を用い

て、ランベルトーベールの法則から、局所的に、かつ、散乱強度を測定する場所において、密度を観測することを試みた。本測定は、小角 X 線散乱と同時測定にて行うことができるとともに、散乱シグナルを取得している部分にて密度を評価でき、従来のバルク体からの平均密度とは異なる点も特筆されるべきである。また、アルキメデス法による液中における浮力を使った測定方法においては、本研究で扱うキャビティーが試料表面にも存在していることが走査型顕微鏡観察でわかっており、非接触で浮力を用いない X 線吸収法は、高精度の測定という観点でも有用と思われる。

3. 実験結果と考察

図4に、ECAPを施した試験片の応力-ひずみ挙動を示す。また、図5に引張試験後の試験片と、各ひずみを抽出し、小角 X 線散乱測定用に作製した薄膜を示す。

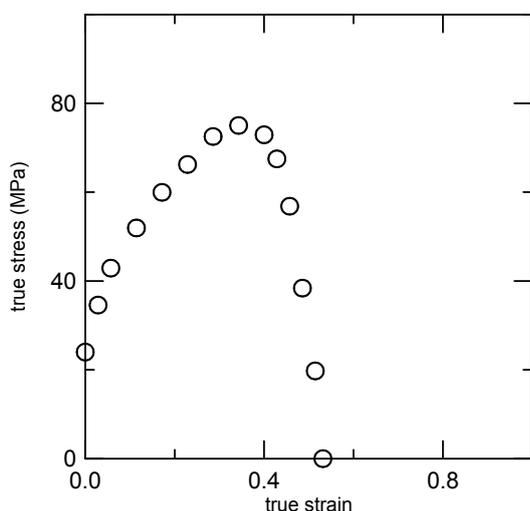


図4 ECAPを施した引張試験片の応力-ひずみ挙動

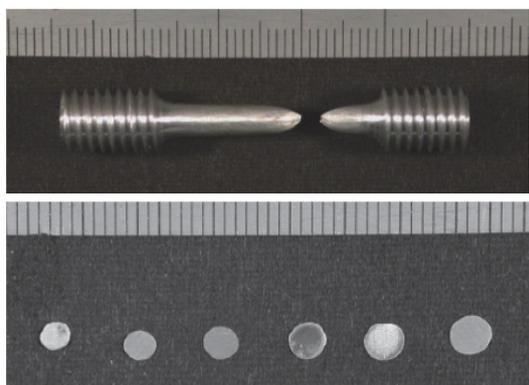


図5 引張試験後の引張試験片(上)と小角 X 線散乱測定用にゲージ部から作製されたさまざまなひずみ値における薄膜試料(下)

薄膜は、小角散乱に薄膜作製時に行う機械加工等が影響を与えないよう、放電加工と機械研磨、化学的鏡面研磨を複合して行った。同様に作製したつかみ部からは有意な散乱は生じなかったことから、薄膜は問題なく作製されたと思われる。薄膜厚さは、質量吸収係数と試料密度から 100 μm と見積った。最も散乱強度を効率よく測定できる厚さに設定することができた⁹⁾。

図6に結晶粒径 170 μm の X 線吸収法により測定された局所密度を示す。複数の点は再現性を確認するための複数回の各測定を示している。測定用の薄膜は、前述の小角散乱測定用に行った方法と同様の手順にて作製した。測定の結果、最大応力の付近で密度が最小値を示し、試験片中、特に、くびれが発生した部分で、キャビティーにより、密度が著しく減少していた。しかし、破断直前では、密度は逆に増加に転じた。これは、キャビティーの発生と成長よりも、キャビティーの引張軸方向への伸長が優位となり、単位体積当たりの空隙体積が減少したことから、密度が増加に転じたものと考えられる。この傾向は、他の結晶粒径を有する試験片でも同様であったが、結晶粒径 170 μm の試料が、本研究においては最も大きな密度減少を示した。これは、結晶粒界キャビテーションの挙動と密接に関連していると思われる。

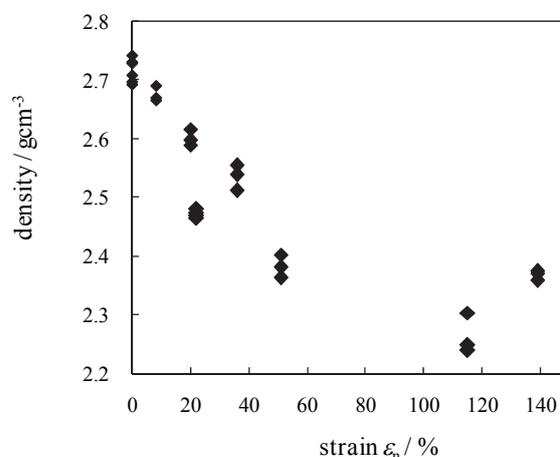


図6 X 線吸収法を用いた結晶粒径 170 μm の引張試験片での密度変化とひずみとの関係

図7に小角 X 線散乱測定により評価されたキャビティーサイズのひずみ依存性を示す。キャビティーサイズは、散乱シグナルの連続的な波形分離から求められ、本研究では、数 \AA 程度の極めて微小なポイドが多数あり、これが指数関数的な分布関数で表わされる、との解析結果となった。破断等に直接関係するポイドは、大きなサイズを有するキャビティーと考えられるため、指数関数の減衰定数を定義して、分布についても定量性が与えられるよう解析した。

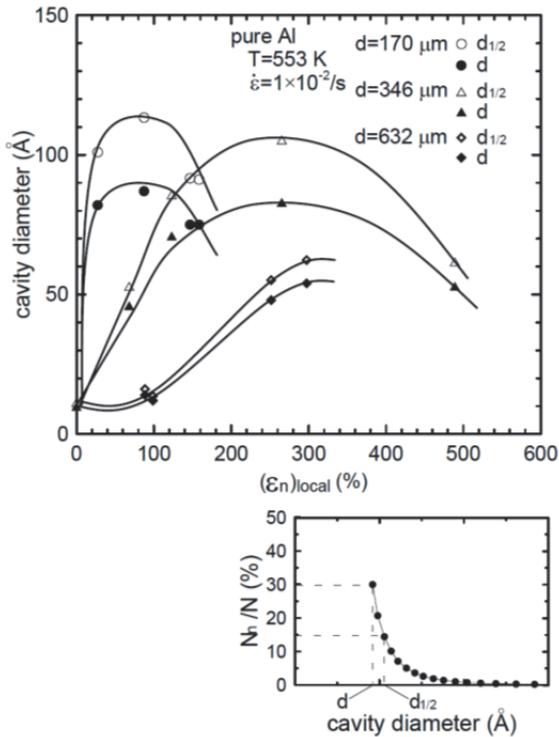


図 7 小角 X 線散乱測定により評価された 170, 346, 及び, 632 μm の結晶粒径を持つ試験片中に発生したキャビティーサイズのひずみ依存性

結晶粒径 170 μm では, 材料中に発生したキャビティーの成長が速く, 小さいひずみで大きく成長することがわかった. これは, 転位の移動がすばやく結晶粒界に到達し, サブバウンダリーを形成すると共に, 滑り応力を生じさせているためと考えられる. これは, 346 μm と 632 μm でも同様の結晶粒径依存性が観測された. しかし, ECAP による超微細結晶粒では異なる傾向を示した. 超微細結晶粒では別の機構によるキャビティー発生なのか, 今後, 検討を行う予定である.

4. 結言

小角 X 線散乱法を用い, 高温変形におけるキャビテーションの微視的評価法に関し検討を行った. この中で, ECAP を施した超微細結晶粒についても検討した. また, X 線吸収法を用い, キャビテーションによる密度低下の

観測に成功した. 最大応力のひずみで極小を示し, キャビテーションにより材料の密度低下が起こる一方, 破断直前では, キャビティーの伸長による密度増加が観測された. 小角 X 線散乱測定から評価されたキャビティーのサイズと引張試験から得られた応力-ひずみ挙動から, 小さいひずみで破断に至る結晶粒径では, キャビティーの成長の速く, また, 大きなサイズに成長することがわかった. これは, 結晶粒径の増加とともに, ひずみに対する成長速度とサイズともに減少した. これらから, 本研究で扱った材料は純金属であるため, 結晶粒径は転位が結晶粒界に到達するための移動距離と密接な関係があると考えられるため, 転位の移動によるサブバウンダリーの形成と, 伴って発生する滑り応力が関係していることが, 小角 X 線散乱測定から定量的に評価できることがわかった. 今後, ボイドの評価を, X 線吸収法を用いた局所密度測定を併用した小角 X 線散乱法により行うことで, 破断機構の理解に貢献できるものとする.

謝 辞

本研究は, 公益財団法人天田財団の平成 23 年度奨励研究助成(AF-2011034)の援助を受けて行われたものであり, ここに記して謝意を表します.

参考文献

- 1) E.W. Hart, Acta Metall. 15 (1967) 351.
- 2) T. Hasegawa, K. Kawaguchi, T. Murata, T. Yakou, Mater. Trans. JIM 32 (1991) 244.
- 3) T. Hasegawa, Y. Sakurai, K. Okazaki, Mater. Sci. Eng. A346 (2003) 34.
- 4) A. Guinier, G. Fournet (translation by C.B. Walker), Small-angle Scattering of X-rays, Wiley, New York, 1955.
- 5) K. Fukuyama, Y. Kasahara, N. Kasahara, A. Oya, K. Nishikawa, Carbon, 39 (2001) 287.
- 6) O. Glatter, O. Kratky (Eds.), Small Angle X-ray Scattering, Academic Press, London, 1982.