ECAE法による超微結晶Al-Mg-Sc合金の熱的安定性の向上と疲労特性の評価

メタデータ	言語: Japanese
	出版者:
	公開日: 2018-11-01
	キーワード (Ja):
	キーワード (En):
	作成者: 門前, 亮一, Monzen, Ryoichi
	メールアドレス:
	所属:
URL	https://doi.org/10.24517/00052641

This work is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial-ShareAlike 3.0 International License.

KAKEN
2003
55
金沢大学

ECAE法による超微結晶Al-Mg-Sc合金の熱的安定性の向上と疲労特性の評価

(研究課題番号　14550652)

平成15年度科学研究費補助金〔基盤研究(C)(2)〕

研　究　成　果　報　告　書

平成16年3月

研究代表者　門　前　亮　一

教授)

金沢大学附属図書館
0400-05026-9

KAKEN
2003
55

ECAE法による超微結晶Al-Mg-Sc合金の熱的安定性の向上と疲労特性の評価

（研究課題番号：14550652）

平成１５年度科学研究費補助金（基盤研究(C)(2)）研究成果報告書

平成１６年３月

研究代表者　門 前 亮 一
（金沢大学工学部　教授）

研究成果目次

はしがき …… 1

研究成果 …… 5

1．超微細結晶粒を持つ Al-Mg-Sc 合金の熱的安定性 …… 5

資料 …… 14

2．Al-Mg-Sc 合金の機械的特性 …… 39

2．1　Al-Mg-Sc 合金の低サイクル疲労挙動と微視組織 …… 39

資料 …… 40

2．2　ECAE 加工を施した Al-Mg-Sc 合金の機械的特性 …… 56

はしがき

結晶粒を微細化すれば，強度のみならず伸びも増加することが昔からよく知られた事実である．最近になり，室温での機械的性質の向上や超塑性の発現などで超微細結晶粒材料が特に注目されている．超微細結晶粒材料を得る手段の一つとして側方押し出し加工（Equal Channel Angular Extrusion ： 以下 ECAE）法がある．ECAE 法は，バルク状の大型部材にも適用できる可能性を秘めることから，力学特性の優れた構造材料の製造プロセスとして期待されている．しかし，ECAE 法などの強加工法によって得られる超微細結晶粒組織は非平衡準安定状態であり，塑性変形中や低温での焼鈍により容易に再結晶を生じ，機械的性質が低下することが知られている．

近年 Al 合金へ少量の Sc（スカンジウム）を添加することにより，強度が著しく向上することが報告されている．この強度の上昇は Al_3Sc 相の微細析出によるものであり，添加元素の原子%当たりの硬化量をみると，Sc は金に次いでその効果が大きい．また，Al_3Sc 析出粒子の粗大化は極めて遅く，Al_3Sc 粒子析出のための時効温度は，典型的な析出強化型 Al 合金である 2000 系・7000 系合金の溶体化処理温度にも達する．従って Sc を含む Al 合金は現存の実用 Al 合金と比較して高い高温強度を持ち，極めて優れたクリープ特性を示す．さらに，Al_3Sc はその高温における安定性のため，各種 Al 合金の再結晶温度を飛躍的に上昇させることが知られている．これは，Al_3Sc 粒子が粒界移動に対する有効なインヒビターとして働くためである．

本研究では，比較的用途の広い Al-Mg 合金に Sc を添加した試料に ECAE 加工を施した後時効処理を施し，微細粒組織の熱的安定性について組織学的に詳細に検討するとともに，引張および疲労試験を行い機械的特性の評価を行った．また比較のため，通常の Al-Mg-Sc 合金多結晶材の疲労挙動を中心とした機械的性質の調査も行った．

平成１６年３月

研究代表者　　門前　亮一

研究組織

研究代表者：門前　亮一（金沢大学工学部　教授）
研究分担者：渡邊　千尋（金沢大学工学部・助手）
研究分担者：北　　和久（金沢大学自然科学研究科　助手）

研究経費

平成１４年度	２，２００千円
平成１５年度	５００千円
計	２，７００千円

研究発表

(１) 学会誌等

1) C. Watanabe, C. Y. Jin, R. Monzen and K. Kitagawa, Low-cycle fatigue behavior and dislocation structure of an Al-Mg-Sc alloy, Materials Science and Engineering A, (2004), in press.
2) C. Watanabe, T. Kondo and R. Monzen, Coarsening of Al_3Sc precipitates in an Al-0.28wt% Sc alloy, Metallurgical and Materials Transaction A, (2004), in press.
3) C. Watanabe, Y. Taniguchi, R. Monzen and K. Tazaki, Microstructure evolution of an ultrafine-grained Al-Mg-Sc alloy during annealing, Proceedings of the 8th Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy, (2004), in press.
4) C. Watanabe, R. Monzen, K. Higashimine and K. Tazaki, Low-cycle fatigue behavior in an Al-1wt% Mg-0.27wt% Sc alloy, Proceedings of the 8th Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy, (2004), in press.
5) D. Watanabe, C. Watanabe, R. Monzen and K.Tazaki, Ostwald ripening of Al_3Sc precipitates in an Al-Sc alloy , Proceedings of the 8th Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy, (2004), in press.

(2) 口頭発表

1) 谷口康弘, 渡邊千尋, 門前亮一, 超微細結晶粒を持つ Al-Mg-Sc 合金の熱的安定性, 日本金属学会北陸信越支部・日本鉄鋼協会北陸信越支部連合講演会, 福井, 平成 14 年 12 月 7 日
2) 金　成一, 渡邊千尋, 門前亮一, 北川和夫, Sc を添加した Al-Mg 合金の低サイクル疲労特性と転位組織, 日本金属学会・日本鉄鋼協会北陸信越支部連合講演会, 福井, 平成 14 年 12 月 6 日
3) 近藤剛史, 渡邊千尋, 門前亮一, Al-Sc 合金における Al_3Sc 析出粒子の粗大化成長, 日本金属学会・日本鉄鋼協会北陸信越支部連合講演会, 福井, 平成 14 年 12 月 7 日
4) 金　成一, 渡邊千尋, 門前亮一, 北川和夫, Al-Mg-Sc 合金の疲労挙動と転位組織, 日本金属学会春期講演大会, 千葉, 平成 15 年 3 月 27 日
5) C. Watanabe, C. Y. Jin, R. Monzen and K. Kitagawa, Low-cycle fatigue behavior and dislocation structure of an Al-Mg-Sc alloy, International Conference on Strength of Materials (ICSMA13), Budapest, Hungary, August 23, 2003.
6) Al-Sc 合金における Al_3Sc 粒子の粗大化成長, 渡邊千尋, 近藤剛史, 門前亮一, 日本金属学会秋期講演大会, 札幌, 平成 15 年 10 月 11 日
7) 谷口康弘, 野崎晃司, 渡邊千尋, 門前亮一, 超微細結晶粒を持つ Al-Mg-Sc 合金の熱的安定性, 日本金属学会・日本鉄鋼協会北陸信越支部講演会, 長野, 平成 15 年 12 月 6 日
8) 渡辺大然, 渡邊千尋, 門前亮一, Al-Mg-Sc 合金における Al_3Sc 析出粒子の粗大化成長, 日本金属学会・日本鉄鋼協会北陸信越支部連合講演会, 長野, 平成 15 年 12 月 7 日
9) 清水重岳, 金　成一, 渡邊千尋, 門前亮一, 北川和夫, Al-Mg-Sc 合金の低サイクル疲労挙動と転位組織, 日本金属学会・日本鉄鋼協会北陸信越支部連合講演会, 長野, 平成 15 年 12 月 7 日
10) C. Watanabe, Y. Taniguchi, R. Monzen and K. Tazaki, Microstructure evolution of an ultrafine-grained Al-Mg-Sc alloy during annealing, 8th Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy (8APEM), Kanazawa, Japan, June 7, 2004.
11) C. Watanabe, R. Monzen, K. Higasimine and K. Tazaki, Low-cycle fatigue behavior in an Al-1wt% Mg-0.27wt% Sc alloy, 8th Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy

(8APEM), Kanazawa, Japan, June 7, 2004.

12) D. Watanabe, C. Watanabe, R. Monzen and K. Tazaki, Ostwald ripening of Al_3Sc precipitates in an Al-Sc alloy, 8th Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy (8APEM), Kanazawa, Japan, June 7, 2004.

13) 渡邊千尋, 谷口康弘, 門前亮一, ECAE 法によりに超微細化した Al-Mg-Sc 合金の等温焼鈍に伴う内部組織変化, 日本金属学会秋期講演大会, 秋田, 平成 16 年 9 月発表予定

研究成果

1．超微細結晶粒を持つ Al-Mg-Sc 合金の熱的安定性

ECAE 法とは，図 1 に示すように同じ断面積を持ち，角度Φで屈曲して上部から側部へ貫通する穴，すなわちチャンネルを設けた金型の上部から試料を入れて強制的に押し出すことにより屈曲部で試料内にせん断ひずみを導入する加工法である[1,2]．穴の上部入口と側部出口で試料の断面形状が変わらないことから，出てきた試料は再度穴の中に入れることができ，せん断ひずみがさらに加えられる．繰り返し穴の中を通すことにより試料にはひずみが蓄積され，同時に超微細結晶粒組織を得ることができる．ECAE 法は，バルク状の大型部材にも適用できる可能性を秘めることから，力学特性の優れた構造材料の製造プロセスとして期待されている．しかし，ECAE 法などの強加工法によって得られる超微細結晶粒組織は非平衡準安定状態であり，塑性変形中や低温での焼鈍により容易に再結晶を生じ，機械的性質が低下することが知られている．

これまでに純 Al および Al 合金の再結晶挙動に及ぼす各種の添加元素の影響は詳しく調べられており，Sc の優れた再結晶抑止効果はよく知られている[3-5]．これは，Al_3Sc 析出粒子が粒界移動に対する有効なインヒビターとして働くためである．純 Al の再結晶に及ぼす各種の希土類元素の影響も調べられているが，Sc 添加の効果は抜きんでている．Al-Sc 合金の再結晶完了温度が時効性 Al 合金の溶体化処理温度以上，予備処理によっては 873 K 以上にもなるという報告もなされている．これらの特徴から，Sc 添加 Al 合金は新しい軽量かつ高温高強度の Al 合金としての可能性を持っている．また，Al 合金に Sc を添加することにより超微細結晶粒組織の熱的不安定性が改善されるということも明らかにされている[6-8]．Al-3%Mg-0.2%Sc 合金に ECAE 加工を施した試料の焼鈍過程が調査されており，約 550 K まで微細結晶粒が保持され，Sc 添加により超微細結晶粒組織の熱的安定性が大きく向上したことが示されている．しかし，焼鈍過程における組織変化に伴う再結晶挙動と Al_3Sc 析出相の相互関係や結晶粒成長のメカニズム等を詳細に調査した報告例はほとんどないのが現状である．

そこで，本研究では再結晶抑止効果の高い Sc を比較的用途の広い Al-Mg 合金に添加し，ECAE 法により得られた超微細結晶粒材料を用いて，焼鈍過程における組織変化を硬さ試験や組織観察によって詳細に観察する．さらに得られた知見を基に超微

細結晶粒組織の熱的安定性について検討することを目的とした．なお，再結晶挙動と密接な関係にある Al_3Sc 粒子の粗大化挙動についても調査したが，その成果は学会誌等の発表を通して示す．

超微細結晶粒材料の焼鈍過程の調査から得られた研究結果は以下のようにまとめることができる．

1．ECAP 加工後の内部組織

Al-3.0 mass% Mg-0.2 mass% Sc 合金の鋳塊より，直径 10 mm，長さ 50 mm の試験片を切り出し，883 K，2 h にて溶体化処理を行った．超微細結晶粒組織を得るために Route B_c，チャンネル角 90°，5pass の条件で ECAE 加工を施した．ECAE 加工後の試料内部には，図２(a)に示すように，平均粒径約 300 nm のほぼ等軸状の超微細結晶粒が形成された．結晶粒内の転位密度は非常に高く，多くの亜粒界が観察される．

2．焼鈍による組織変化

ECAE 後の試料は，573 K，623 K で種々の時間焼鈍を行った後，直ちに氷水中に焼き入れた．焼鈍に伴う硬さと結晶粒径の変化を図３に示す．623 K においては，わずか 1 min の焼鈍により ECAE 後の約半分程度に硬さは減少する．光学顕微鏡観察より平均結晶粒径は約 3.5 μm に粗大化しており，硬さの低下は再結晶によるものと言える．

図２と３から 573 K の焼鈍に伴う組織変化は次のように大きく 3 段階に分けることができる．

(1) 焼鈍初期（~10 min）：

硬さは ECAE 後の約 2/3 程度まで減少する．結晶粒内の転位密度が大きく減少し，結晶粒径は 600 nm 程度まで成長する．焼鈍初期段階では転位密度の減少と結晶粒の成長に伴い硬さが減少する．

(2) 焼鈍中期（10 min~3 days）：

硬さは上昇し，結晶粒の成長はほとんど見られない．この際，結晶粒内，粒界上ともに微細な Al_3Sc 析出粒子が観察された．すなわち，硬さは結晶粒内への微細な Al_3Sc 相の析出により上昇し，結晶粒界は粒界上の Al_3Sc 粒子によってピン止めされるため，結晶粒の成長は強く抑制される（図４）．

(3) 焼鈍後期（3 days~）：

Al_3Sc 析出相の粗大化成長が観察され，硬さの減少と結晶粒の成長が見られる．結晶粒径と Al_3Sc 粒子径の間には，図５に示すように，直線関係が成り立つ．結晶粒の成長が Al_3Sc 粒子径により支配されていることが明らかとなった．

３．連続再結晶

573 K 焼鈍材における TEM 観察より，結晶粒の成長が起こる際に再結晶粒の形成，成長は見られなかった．再結晶粒の形成なしに結晶粒の成長が起こる現象として連続再結晶がある[9,10]．連続再結晶においては，これまでに初期組織と焼鈍後の集合組織に大きな相違はないという報告がある．本研究においても結晶粒の成長は連続再結晶によるものではないかと考え，集合組織の測定を行った．

図６に，ECAE 材ならびに焼鈍材の集合組織測定結果を示す．紙面に対して垂直方向が押し出し方向である．再結晶粒が確認された 623 K 焼鈍材においては，初期組織と比較して集合組織が大きく変化していることがわかる．一方，573 K 焼鈍材では，結晶粒の成長がみられた焼鈍後期段階においても，初期組織と比較して集合組織に大きな相違は見られない．従って，573 K 焼鈍においては，結晶粒の成長は連続再結晶によるものであると理解できる．

参考文献

(1) 堀田善治，古川稔，根本実，T. G. Langdon，日本金属学会誌，**37** (1998) 767.

(2) 堀田善治，古川稔，根本実，T. G. Langdon，熱処理，**41** (1999) 68.

(3) 西川精一，長島信雄，沢口哲夫，小林繁美，軽金属，**18** (1968) 517.

(4) 堀茂徳，佐治重興，北川広明，軽金属，**24** (1974) 1.

(5) H. Hasegawa, S. Komura, A. Utsunomiya, Z. Horita, M. Furukawa, M. Nemoto and T. G. Langdon, Mat. Sci. Eng., **A256** (1999) 188.

(6) S. Lee, A. Utsunomiya, H. Akamatsu, K. Neishi, M. Furukawa, Z. Horita and T. G. Langdon, Acta Mater., **50** (2002) 553.

(7) D. G. Morris, M. A. Munoz-Morris, Acta Mater., **50** (2002) 4047.

(8) M. Furukawa, A. Utsunomiya, K. Matsubara, Z. Horita and T. G. Longdon, Acta Mater., **49** (2001) 3829.

(9) H. Gudmundsson, D. Brooks and J. A. Wert, Acta Metall. Mater., **39** (1991) 19.

(10) R. K. Davies, V. Randle and G. J. Marshall, Acta Mater., **46** (1998) 6021.

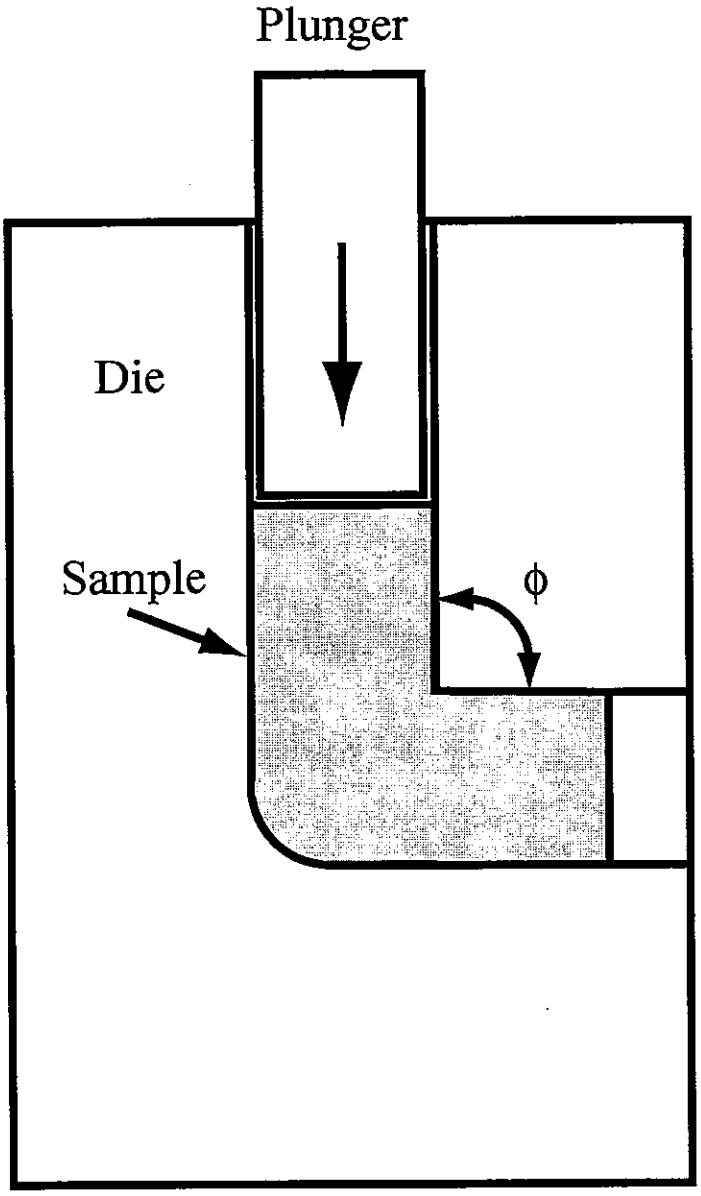


図1　ECAEの模式図.

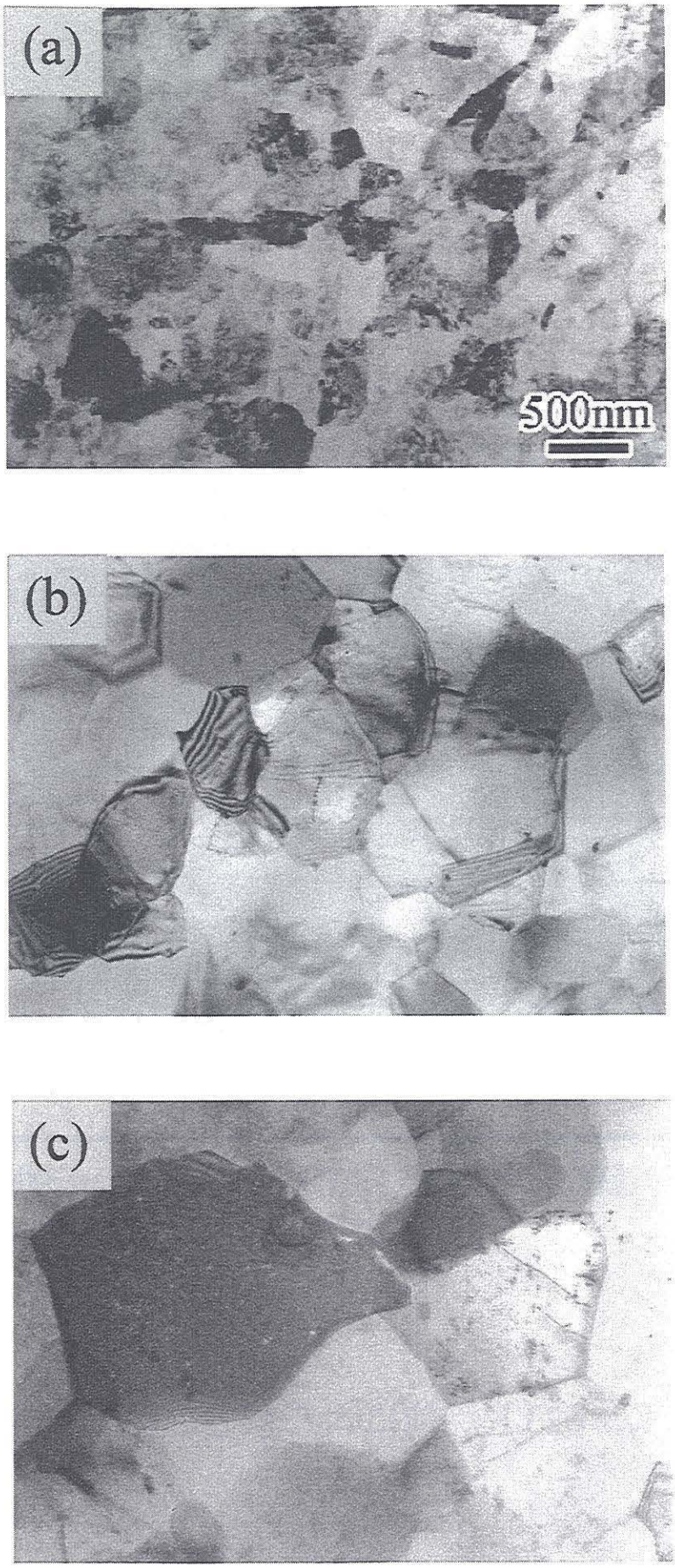


図2　(a) ECAE材，(b) 573 Kで10 min焼鈍材，
(c) 573 Kで60 days焼鈍材のTEM像.

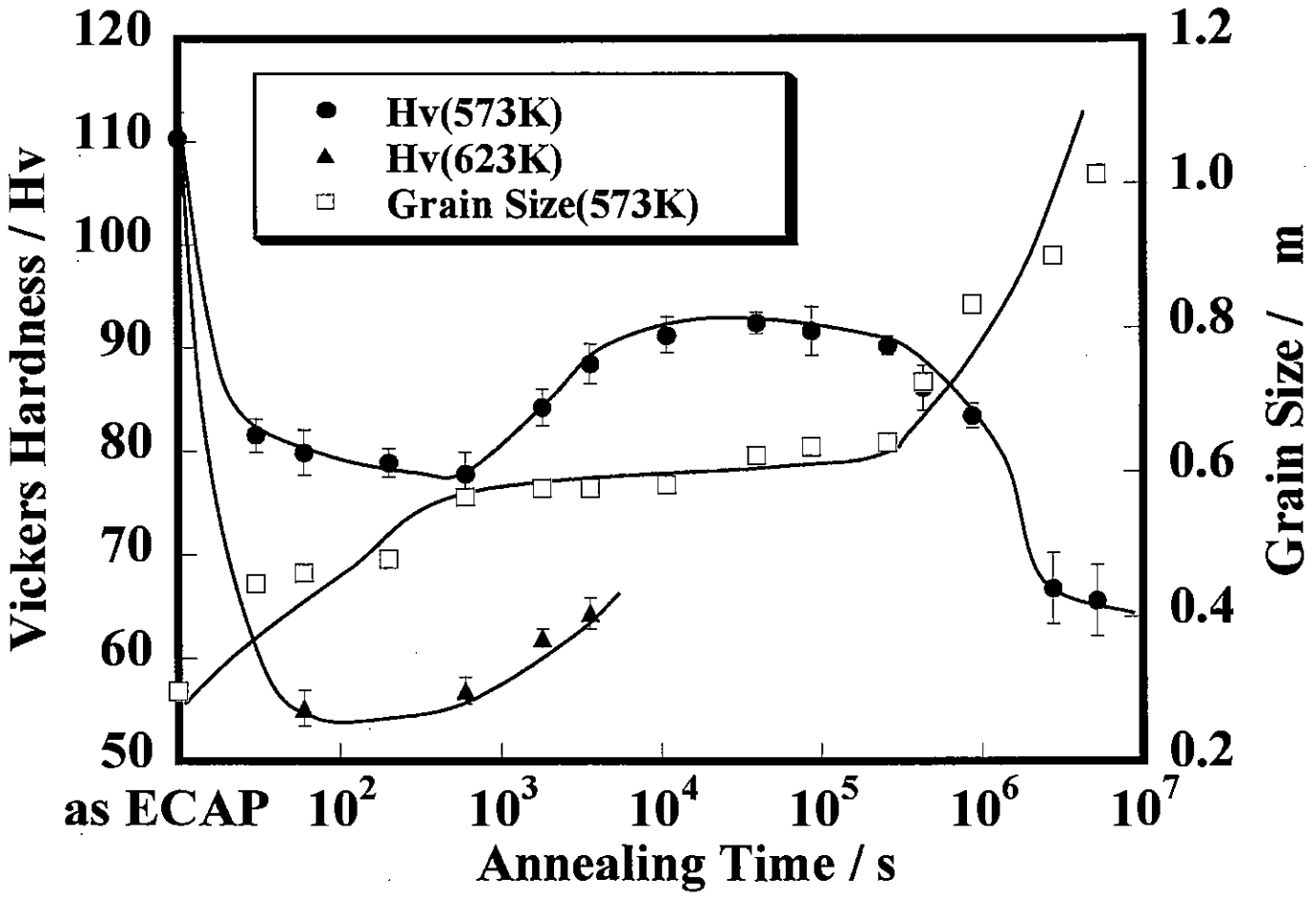


図3　573 K，623 K焼鈍による硬さと結晶粒径の変化.

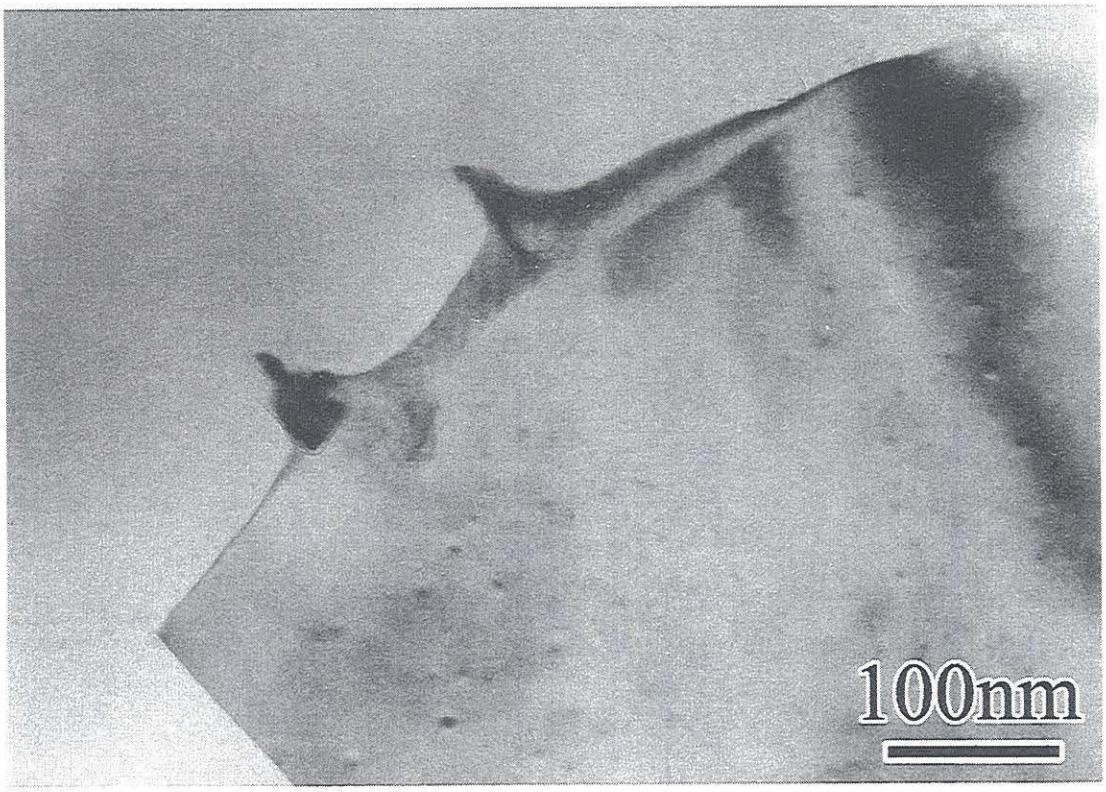


図4　Al_3Sc析出粒子による粒界移動ピン止め効果を示す573 Kで24 h焼鈍後のTEM像.

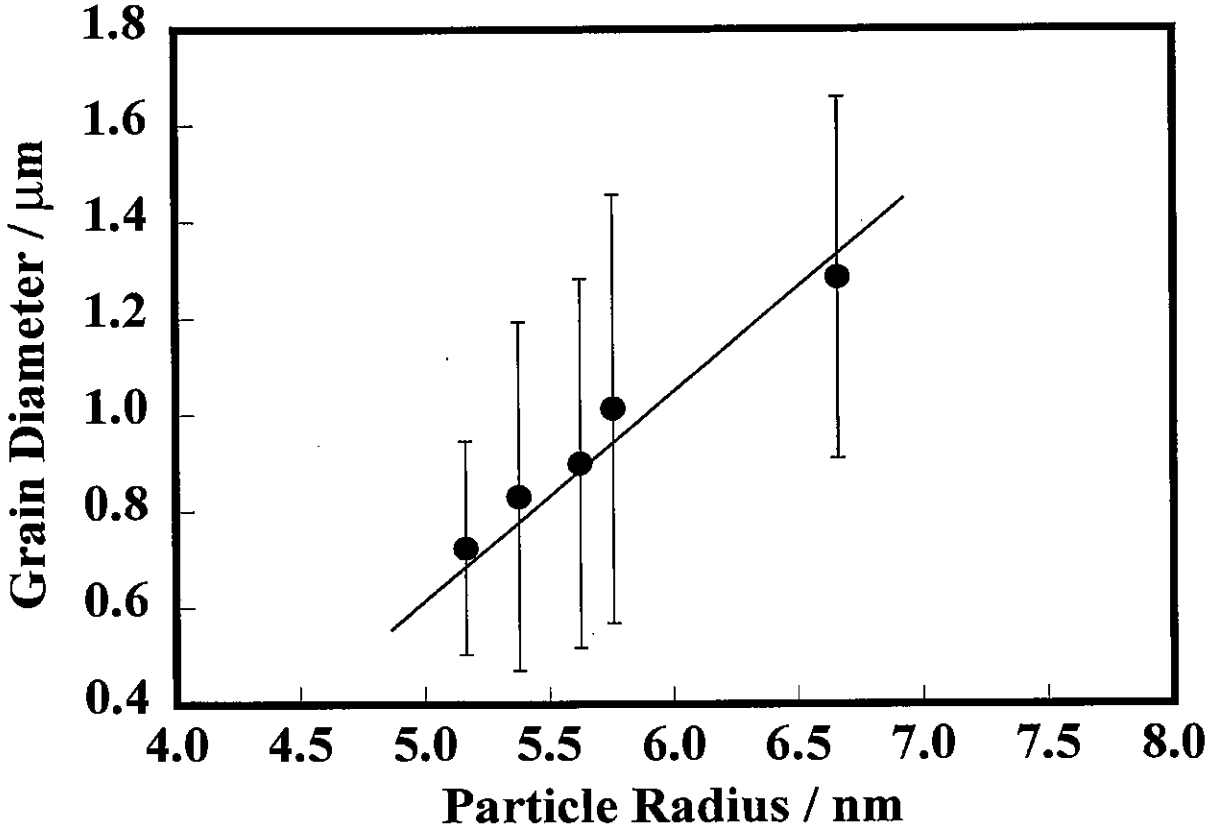
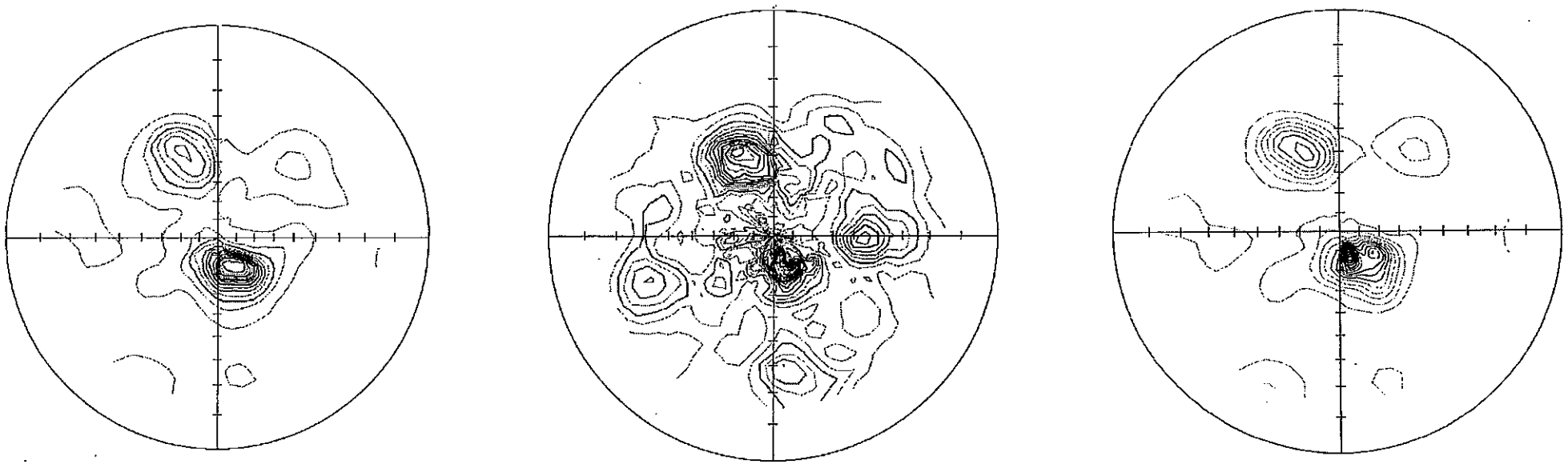


図5　結晶粒径とAl_3Sc粒子径の関係.



(a) as ECAE　　(b) 623 K, 1 min　　(c) 573 K, 5 days

図6　ECAE材および焼鈍材における(111)極点図.

２．Al-Mg-Sc 合金の機械的特性

２．１　Al-Mg-Sc 合金の低サイクル疲労挙動と微視組織

Al-Mg 合金は延性に富み，優れた耐食性を持つため，広く構造材料として用いられている．しかし，強度の点では析出強化型 Al 合金である 2000，7000 系の諸合金と比較すると著しく低い．近年，各種 Al 合金へ少量の Sc を添加することで，Al_3Sc の析出により強度が著しく上昇することが報告されている．Al-Mg 合金においても，Sc 添加により耐食性を損なうことなく，上記の析出強化型 Al 合金と遜色ない強度が実現されている．加えて超塑性の発現，優れた高温強度などが見出され，Al-Mg-Sc 合金は耐食性・高温強度・低密度が要求される運送機器用材料，とりわけ航空機器用材料としての応用が期待されている．運送機器用材料として使用される場合，信頼性の観点より疲労特性を知ることは非常に重要となる．しかし，現在 Al-Mg-Sc 合金の疲労に関する研究例は非常に少なく，また組織学的見地から疲労特性を考察した報告は皆無である．

そこで，本章では Al-Mg 合金をベースに Sc を添加した Al-Mg-Sc 合金を用いて，Al_3Sc 析出物の分散状態を変化させ，疲労挙動の調査を行う．併せて内部転位組織の観察を行い，疲労挙動と転位組織の発達過程を関連づけ考察し，その結果を Al-Mg 二元系合金と比較検討することを目的とする．

２．２　ECAE 加工を施した Al-Mg-Sc 合金の機械的特性

現在までに報告されている超微細結晶粒材料の機械的特性の研究例は，Al，Cu などの純金属かあるいは Al-Mg 合金固溶体が多い．しかし，焼鈍に伴う組織変化と機械的特性の相互関係を詳細に調査した報告例はほとんどない．本章では，ECAE 法で得られた超微細結晶粒を持つ Al-1.0mass% Mg-0.27mass%Sc 合金の機械的性質を評価するため，ECAE 加工後焼鈍した試料の機械的性質との比較検討を行う．

結果は以下のように要約される．

１．引張試験

ECAE材を 623 K で焼鈍したとき，30 min で硬さがピークに達し，その後 Al_3Sc 粒子の粗大化により硬さが減少した．ECAE 材では伸長方向の長さは約 900 nm，垂直断面からは約 200 nm のほぼ等軸状の超微細結晶粒が認められた．焼鈍時間の経過とともに結晶粒径は徐々に減少したが，通常の再結晶は起きなかった．ECAE 材，623 K で 30 min，270 min 焼鈍材の応力ーひずみ曲線を図 1 に示す．また，得られた結果をまとめて表 1 に示す．ECAE材は焼鈍材に比べ，降伏応力，引張り強さが高いが，降伏後直ちにネッキングによる応力低下を起こす．しかし，焼鈍を行うことにより，均一伸びが大幅に増加する．また，焼鈍材は破断するまでの伸びが ECAE材のほぼ 2 倍になる．

２．引張試験後の組織

ECAE材では変形前後において組織には大きな違いは観察されなかった．623 K，30 min 焼鈍材では，結晶粒の軸比が ECAE 材に比べて小さくなった．ECAE 加工を施した Al-Mg 合金において，焼鈍に伴い押し出し軸に平行な面で観察される結晶粒の軸比が小さくなるという報告があり，本研究の結果とよく一致する．結晶粒内には回復段階に見られる転位の再配列によるネットワーク構造が観察された．しかし，試験後転位の運動が粒内に析出した Al_3Sc 粒子によって阻まれ，転位が均一に分布していた．270 min 焼鈍材も試験後には 30 min 焼鈍材と同様に，粒内の転位密度が上昇し，析出粒子による運動転位のピン止めの様子が観察された．

３．低サイクル疲労試験

ECAE 材，30min 焼鈍材，270min 焼鈍材の塑性ひずみ $\varepsilon_{pl}=1\times10^{-3}$ における繰返し硬化曲線を図 2 に示す．いずれの試料においても，試験開始後徐々に応力振幅が減少し，一定の値に飽和する．その後のさらなる繰返し数の増加に伴い応力振幅は急激に減少し，明らかな疲労軟化挙動を示し破断に至る．30 min 焼鈍材は，応力振幅が

急激に減少し，一定の値に飽和する．270 min 焼鈍材の応力振幅はどの時点においても 30 min 焼鈍材に比べ低い値になっている．また，焼鈍と共に疲労寿命が短くなっている．

一般に塑性ひずみ振幅制御疲労試験（低サイクル疲労試験）においては，疲労寿命と引張り試験における破断伸びとがよく対応することが知られている．引張り試験の結果より，焼鈍によって低サイクル疲労寿命の改善が期待されたが，実際には焼鈍を施した試料の方が，疲労寿命が劣るという結果になった．今回の研究では疲労試験の内部組織の観察も行っていないため，試験結果を説明することができないが，今後塑性ひずみ振幅を変化させ更なる試験を行い，併せて内部組織の観察を行いECAE材・焼鈍材の疲労挙動を調査していく予定である．

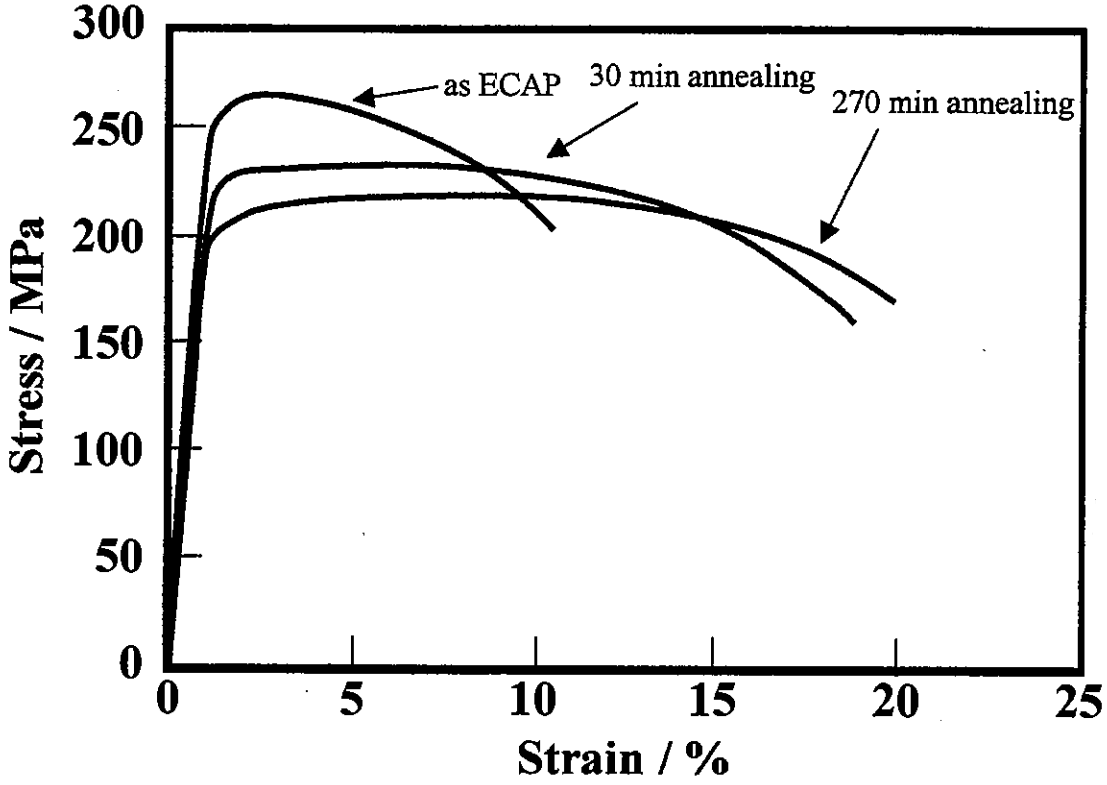


図1　ECAE材，623 Kで30 min焼鈍材270 min焼鈍材の応力－ひずみ曲線.

表1　623 K焼鈍に伴う機械的性質の変化.

Annealing time (min)	Tensile strength (MPa)	Yield stress (MPa)	Homogeneous elongation (%)	Elongation (%)
0	254	269	2.5	10.3
30	222	236	6.8	18.3
270	201	225	8.5	19.9

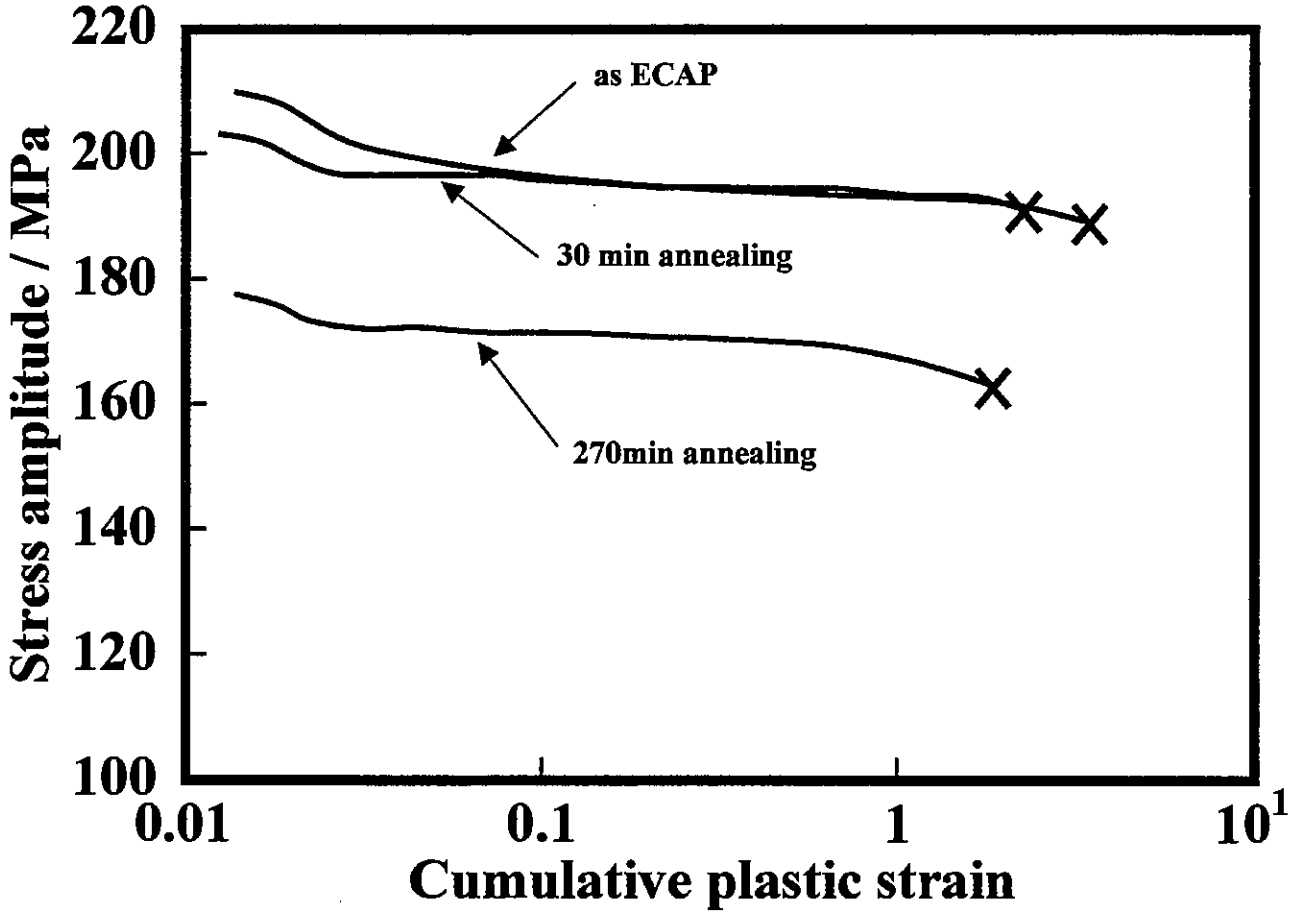


図2 ECAE材，623 Kで30 min焼鈍材，270 min焼鈍材の

$\varepsilon_{pl}=1\times10^{-3}$における繰返し硬化曲線.