

平成 30 年 6 月 7 日現在

機関番号：10101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2017

課題番号：16K17989

研究課題名(和文) 超塑性材料/非超塑性材料クラッド材の変形挙動メカニズムの解明

研究課題名(英文) Investigation of deformation mechanism of superplastic/non-superplastic clad sheet

研究代表者

徳永 透子 (Tokunaga, Toko)

北海道大学・工学研究院・助教

研究者番号：30767299

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では圧延加工により作製したMg合金/Alクラッド薄板材を対象とし、超塑性材料(Mg合金)と非超塑性材料(Al)を組み合わせた複合材料の超塑性変形メカニズムの解明を試みた。電子後方散乱回折法により超塑性変形中の組織変化を調査した。その結果、純Alは結晶粒内で主に変形しており、粒界すべりは見られなかった。一方、Mg合金においては粒界すべりが生じた粒界と生じなかった粒界の二種類が存在することが明らかとなった。Mg/Al界面近傍においては伸びが200%を超えると双晶が多数観察され、粒内での変形が顕著であることが示された。

研究成果の概要(英文)：Deformation mechanism of superplastic/non-superplastic composite was investigated. The composite was fabricated by hot rolling and composed of Mg alloy and pure Al as superplastic and non-superplastic materials, respectively. Microstructure evolution of the composite was investigated at several strains during superplastic deformation by electron backscatter diffraction technique. It has been demonstrated that in the Al part, grain boundary sliding was not occurred and it was deformed inside the grains. On the other hand, in the Mg alloy part, grain boundary sliding was partially occurred. In the Mg part near the Mg/Al interface, twins were observed after 200% of elongation, which implies that the Mg part deformed with the dislocation slip inside grains.

研究分野：組織制御学

キーワード：超塑性変形 複合材料 マグネシウム合金 アルミニウム

### 1. 研究開始当初の背景

脆性材料と延性材料の組み合わせからなる複合材料において、脆性材料はその破断限界を超えて変形することが知られている[1]。この延性改善のメカニズムは、延性材料が脆性材料への応力集中を緩和するとともに塑性不安定を抑制するためであると考えられている[1]。しかしながら、現段階では、このような巨視的な(材料力学的な)説明のみが報告されており、脆性材料、延性材料、そして界面を構成するミクロ組織の挙動に立脚した詳細な説明・理解は未だなされていない。

研究代表者のグループは、近年 Mg 合金 / Al クラッド材の開発に取り組み、熱間押出法により Al 被覆 Mg 合金厚板を作製した後、さらに熱間鍛造加工することでクラッド薄板材へ加工することに成功した[3]。ここで重要な点は、単独では 40%しか伸びない純 Al が Mg 合金基材上に被覆された状態では Mg 合金とともに 550%もの伸びを示すという特異な現象を見出したことである。このクラッド材が示した特異な現象はひずみ速度感受性指数の解析を行った結果に基づき、超塑性変形であることが示された。研究代表者らの先行研究においては、この純 Al の特異な伸びは Mg 合金と純 Al が強固に接合されており、超塑性変形能を持つ Mg 合金が純 Al のネッキングを抑制したことによる、と考察した。つまり、従来の脆性材料と延性材料の組み合わせからなる複合材料における延性改善の現象が超塑性現象の場合にも適用できると考察した。しかしながら、この考察ではクラッド材を一体としてとらえた巨視的な視点からのみ特異な伸びの原因を考察しており、Mg 合金と純 Al それぞれのミクロ組織の変化挙動が伸びに及ぼす影響の詳細は考慮されていない。

複合材料の巨視的な応力状態をその結晶粒のサイズ・形態・結晶方位などの組織学的因子は未だ関連付けられていない。これは、バルク材の変形と微細組織変化が生じる時間・空間スケールに大きな違いがあることや、変形中の組織学的因子の統計的挙動が十分に理解されていないことによる。すなわち、巨視的視点のみからバルク材の変形挙動を説明できたとしても、詳細な変形機構の説明、変形機構の高精度な予測、そして他合金系の適用などにあたって多くの問題が残る。

したがって、複合材料の詳細な変形挙動メカニズムを解明し、適切な材料設計を行うためには、巨視的変形挙動とミクロ組織変化の動的相関を解明し、複合材料の変形を総合的に理解する必要がある。

### 2. 研究の目的

複合材料の強度物性の新たな学理構築のため、超塑性材料 / 非超塑性材料の組み合わせからなる複合材料において巨視的変形挙動とミクロ組織の変化挙動の動的相関を明らかにすることを目的とする。

### 3. 研究の方法

本研究では超塑性材料として Mg 合金、非超塑性材料として純 Al を用いた。熱間押出および熱間圧延加工により Mg 合金 / 純 Al クラッド薄板材を作製した。先行研究では熱間鍛造により薄板を作製したが、本研究ではより実用的である圧延加工によりクラッド材を作製した。圧延加工により作製したクラッド材の基礎特性の調査として耐食試験および引張試験を実施した。超塑性変形メカニズムの調査においては 300 でひずみ速度  $1.0 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$  の条件で圧延方向と引張方向が一致するようにクラッド材に対して引張変形を施した。また、Mg 合金 / Al 界面の観察を透過型電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscope: TEM) を用いて行い、原子レベルでの界面の状態を調査した。

組織学的因子(結晶粒サイズ・形態・方位)を調査するために電子後方散乱回折法 (Electron BackScatter Diffraction: EBSD) を用いた。引張変形中の連続的な組織変化を調査するために、引張試験を中断し、試験片を急冷することで組織を凍結し、引張変形途中の組織学的因子の調査を行った。また同時に、超塑性変形によって試料に与えられる塑性ひずみを KAM (Kernel Averaged Misorientation) マップを作成することで評価した。

クラッド材における Mg 合金および Al の巨視的かつ連続的な応力状態の変化を調査するために、有限要素解析を試みた。解析はポーランドの AGH 科学技術大学の Lukasz Madej 教授(研究協力者)に指導を受けつつ進めたが、超塑性変形のモデル作成が難航したため、超塑性変形中の連続的な変形挙動について、電子ビームリソグラフィを用いて調査した。引張試験片平行部の側面に電子線リソグラフィにより微細格子模様を描画し、この格子の変形を引張試験前後で比較することで超塑性変形中の粒界および粒内での挙動を Mg 合金、Al、Al/Mg 界面近傍それぞれに対して調査した。

### 4. 研究成果

熱間圧延加工により作製した Mg 合金 / Al クラッド薄板材の基礎特性の調査として耐食性試験および引張試験を行った。クラッド材は良好な耐食性を示し、Mg 合金全体が Al に覆われていることが示された。また、高温引張試験において、クラッド材は Mg 合金と Al が接合したまま超塑性変形した。Mg 合金および純 Al それぞれに対し、300 でひずみ速度  $1.0 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$  の条件で引張試験を行ったところ、Mg 合金と純 Al の伸びはそれぞれ約 400%および約 70%であったため、Mg 合金は超塑性材料、純 Al は非超塑性材料であることが確認できた。また、TEM を用いて Mg 合金 / Al 界面を詳細に観察した。圧延直後のクラッド材の Mg/Al 界面においては、熱間押出

時に形成した 3  $\mu\text{m}$  程度の金属間化合物層が破壊され、分断されていた。分断された金属間化合物層の間にできた Mg/Al 新生界面には、圧延直後は 100 nm 程度の  $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$  および数 nm 程度の  $\text{Al}_3\text{Mg}_2$  と思われる層が存在していた。その後、クラッド材が引張試験中に加熱され、金属間化合物が成長し、 $\text{Al}_3\text{Mg}_2$  の方が  $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$  よりも厚く成長した。

圧延後のクラッド材において、Mg 合金は圧延加工により圧延面に対して(0001)面が平行な圧延集合組織が形成していたが、超塑性変形の進行に伴い集合組織はランダム化した。一般的に、粒界すべりが生じた際は集合組織がランダム化することが知られているため、本クラッド材における Mg 合金は主に粒界すべりにより変形したと考えられる。より詳細に微細組織の変化を調査するため、超塑性変形中に引張試験を中断し、EBSD により結晶方位解析を行い、超塑性変形中の組織変化を調査した。Fig. 1 に EBSD により得られた結晶方位マップ (Figs. 1 (a)、(b)、(e)、(f)) および KAM マップ (Figs. 1 (c)、(d)、(g)、(h)) を示す。Fig. 1 (a) から (d) は Mg 合金部、Fig. 1 (e) から (h) は Al 部の結果を示している。Mg 合金部はクラッド材の厚さ中心付近における結果であり、Figs. 1 (a)、(c)、(e)、(g) は 50% 伸び、Figs. 1 (b)、(d)、(f)、(h) の結果は 200% 伸びの時点での結果を示している。赤い粒界 (KAM マップ中では白い粒界) および黒い粒界はそれぞれ低傾角粒界 ( $2$  から  $15^\circ$ ) と高傾角粒界 ( $15^\circ$  以上) を示している。

Mg 合金部では、圧延直後は結晶粒が圧延方向に引き伸ばされていたが、伸びが 8% 程度でほぼすべての結晶粒が微細等軸粒に変化していた。また、Figs. 1 (a)、(b) に示されるように伸びが増大し、さらに 500% もの大きなひずみを与えられた後でさえも結晶粒は等軸であった。引張変形が開始して破断に至るまで結晶粒径はほとんど変化せず、破断時まで等軸形状を保っていた。このことから、Mg 合金は高温変形中に動的再結晶を起こしたことが示された。KAM マップの解析から、変形初期から 50% 伸びまでは塑性ひずみ量が増加したが (Fig. 1 (c)) 200% 伸びの時点では塑性ひずみ量は 50% に比べて減少し (Fig. 1 (d))、その後 500% 伸びにおいてもその減少した塑性ひずみ量が維持されていた。この塑性ひずみ量の変化は、圧延加工により多量に付与されたひずみが高温引張変形中の動的再結晶によって一旦減少したが、200% 以降は引張変形によって与えられるひずみ量と動的再結晶により減少するひずみ量が釣り合った結果であると考えられる。また、微細組織中 (Fig. 1 (d)) で塑性ひずみ量が高い個所に着目すると、結晶粒内全体ではなく粒界近傍においてひずみが集中していた。これは、粒界すべりが起こる際に転位が粒界に沿って運動し、その転位が粒界三重点で蓄積したことによると考えられる [2]。しかし一方で、ひずみの蓄積がない粒界も多く見られた。ひ

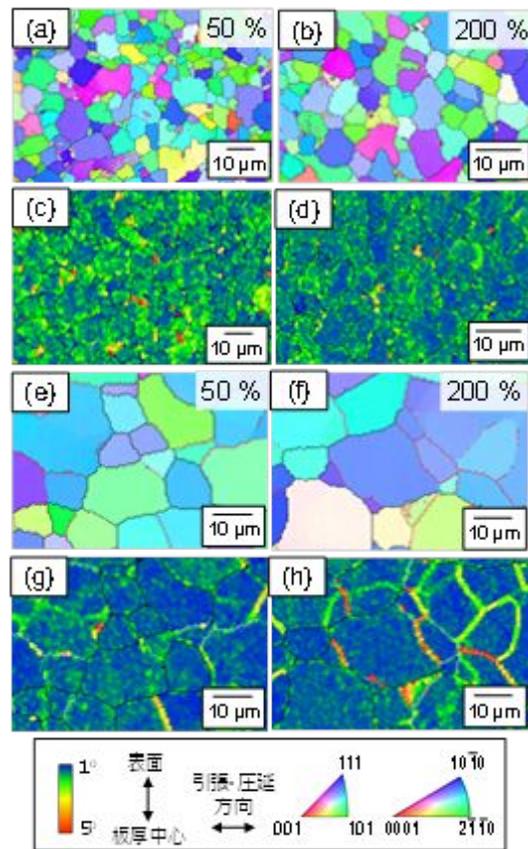


Fig. 1 Microstructure evolution of Mg alloy/Al clad sheet during superplastic deformation. Figs. (a) to (d) and Figs. (e) to (h) illustrate the microstructures of Mg alloy and Al, respectively. Figs. (a), (b), (e) and (f) show the crystallographic orientation and Figs. (c), (d), (g) and (h) show the KAM map.

ずみの蓄積のある粒界とない粒界の両方が同時に存在するという事は、粒界すべりが生じた粒界と粒界すべりが生じなかった粒界の両方が同時に存在することを示しており、その原因は複数の結晶粒が群となって移動する協調的粒界すべり [3] が生じた可能性を示唆している。

純 Al は変形が進むにつれて結晶粒が著しく粗大化した。粗大化した高傾角粒界で囲まれた粒の内部には低傾角粒界が存在していた。これは、結晶粒の合体による粗大化が生じているためであると考えられる [4]。この結晶粒の合体は、結晶粒が回転することで隣り合う結晶粒同士が同じ方位を持つようになり、徐々に亜結晶粒界が消滅し、最終的には高傾角粒界に囲まれた粒の粗大化が進む現象として知られている。亜結晶粒が臨界サイズ以上まで合体した後は、高傾角粒界の移動により結晶粒はさらに成長する。そのため、Fig. 1 (e) や (f) で見られるように粒の内部に低傾角粒界を持つ結晶粒は複数の粒が合体している途中段階であると推察される。

また、純 Al においては、ひずみが 8% の時点では粒内と粒界部両方において低い KAM

値を保っていたが、ひずみが50%以上になると高傾角粒界で囲まれる粒内において、高いKAM値が集中して粒界のように見える部分が存在していた(Figs. 1 (g), (h))。高いKAM値を示している部分には $2^\circ$ 以上の方位差を有して低傾角粒界となっている部分と、 $2^\circ$ 未満の方位差しか有していないため低傾角粒界にもならず、結晶粒内に存在する部分がある。この低傾角粒界の形成および結晶粒内でのひずみの局所的な蓄積は、粒内転位の動的回復により、転位の再配列が起こったことによると考えられる。また、観察される粒が $10\ \mu\text{m}$ 以上と粗大であることから、回復に続いて再結晶が起こり、結晶粒の粗大化が起こったと考えられる。

Mg合金/Al界面近傍のMg合金についてもEBSDを用いて微細組織変化を調査した。Mg/Al界面近傍においてもMg合金の結晶方位は超塑性伸びの増大に伴い、圧延集合組織がランダム化した。しかしながら、200%伸び時点で双晶の発生が見られた。双晶の発生は板厚中心部においてもわずかに見られたが、Mg/Al界面近傍での発生量が著しく多かった。双晶は転位のすべりによって発生する応力集中を緩和するために生じるため、双晶の発生は転位のすべり運動が起こったことを意味する。したがって、200%より大きい伸びを生じた際に、板厚全体において転位のすべりによる粒内変形が起こったこと、また板厚中心部よりも界面近傍において粒内変形が顕著に起こったことが推察できる。

超塑性変形中の連続的な組織変化を捉えるために、電子ビームリソグラフィ技術を用いて引張試験片平行部に微小な格子模様を描画し、その格子模様の変形を追跡した。Figs. 2 (a)および(c)に4%の引張変形を施した後のAl被覆層およびMg合金基材厚さ中心部における微細格子模様をそれぞれ示す。引張方向は紙面横方向である。Al被覆層(Fig. 2 (a))においては、粒界での格子模様のずれが観察された。粒内においても、変形前は正方形であった格子模様がわずかに引張方向に変形して長方形になっている様子が観察された。粒界における格子のずれは粒界すべりを、粒内における格子の変形は転位のすべりをそれぞれ表していると考えられる。ただ、粒界部における格子模様のゆがみは材料表面での結晶粒の隆起による可能性もある。一方、Mg合金基材(Fig. 2 (c))においては、粒界における格子のずれは観察されたが、粒内では格子模様の変形は見られない。つまり、Mg合金は主に粒界すべりによって変形した、と考えられる。

Figs. 2 (b)および(d)に60%の引張変形を施した後のAl被覆層およびMg合金基材厚さ中心部における微細格子模様をそれぞれ示す。変形が進行し、60%に達すると、Al被覆層(Fig. 2 (b))においては、粒界での格子のずれは4%変形時と比べてほとんど違いは見られないが、粒内では元の正方形格子が長方形や平行

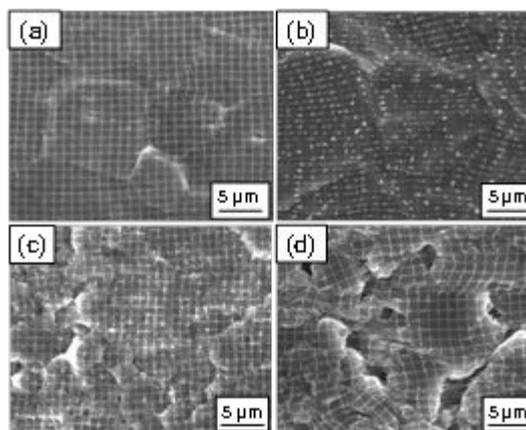


Fig. 2 Microgrid patterns on the Al coating layer (a, b) and on the Mg alloy substrate (c, d) after elongation of 4% (a, c) and 60% (b, d) at  $300^\circ\text{C}$  and at  $1.0 \times 10^{-3}\ \text{s}^{-1}$ .

四辺形や台形になっており、粒内部での著しい転位のすべり変形が起こったことが示された。また、これに対しMg合金基材(Fig. 2 (d))においては粒内の格子は元の正方形がほぼそのまま維持されていることから、粒内における転位のすべり運動はほとんど起こっていないと考えられる。結晶粒界を横切る格子線に注目すると、Al被覆層(Fig. 2 (b))では格子線は多少湾曲しながらも連続して結晶粒界を横切っているのに対し、Mg合金基材(Fig. 2 (d))では格子線は結晶粒界で不連続になり、粒内の正方形格子の向きが結晶粒ごとに異なっている。これは、Mg合金基材において著しい粒界すべりのために結晶粒が回転したものと推察される。以上のことから、60%までの変形においては、Al被覆層の変形は粒内のすべり変形が、Mg合金基材においては粒界すべりがそれぞれ支配的であることが示された。

#### <引用文献>

- [1] C. Jeong, T. Oya, J. Yanagimoto, Journal of Materials Processing Technology, 213 (2013) 614-620.
- [2] M. Kawasaki, T.G. Langdon: J. Mater. Sci., 42 (2007), 1782-1796.
- [3] H. Masuda, S. Taniguchi, E. Sato, Y. Sugino, S. Ukai: J. Jpn. Inst. Met., 79 (2015), 287-294.
- [4] J.C.M. Li: J. Appl. Phys., 33 (1962) 2958-2965.

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表](計3件)

徳永透子、松浦清隆、大野宗一、“微小格子描画を用いたAl/Mg/Alクラッド薄板材の超塑性変形挙動調査”、一般社団法人軽金属学会 第132回春季大会、名古屋(名

古屋大学東山キャンパス)、 2017/5/19-21.

徳永透子、松浦清隆、大野宗一、試料表面に描画した微小格子模様を用いた Al 被覆 Mg 合金薄板の超塑性変形挙動の調査、公益社団法人 日本金属学会 2017 年春期 (第 160 回) 講演大会、東京都 (首都大学東京 南大沢キャンパス)、 2017/3/15-17.

徳永透子、松浦清隆、大野宗一、 “ Al 被覆 Mg 合金薄板の塑性変形挙動に及ぼす微細組織の影響 ”、一般社団法人 軽金属学会 第 130 回春季大会、大阪 (大阪大学 吹田キャンパス 工学部 / 工学研究科)、 2016/5/28-29.

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

徳永 透子 (TOKUNAGA, Toko)  
北海道大学・大学院工学研究院・助教  
研究者番号: 3 0 7 6 7 2 9 9

### (2) 研究協力者

マデイ ウーカシュ (MADEJ, Lukasz)