

称号及び氏名	博士（工学） 森重 大樹
学位授与の日付	2011年3月31日
論文名	「Microstructural Optimization for Obtaining Ultrafine-Grained Aluminum-Based Materials by Friction Stir Processing (摩擦攪拌プロセスを用いた超微細粒アルミニウム材料の組織最適化)」
論文審査委員	主査 東 健司 副査 高杉 隆幸 副査 奥田 修一 副査 辻川 正人

論文要旨

1997年の地球温暖化防止京都会議(COP3)以降、温室効果ガスの削減だけでなく、資源の枯渇、オゾン層の破壊といった地球環境問題への関心が、世界的規模で高まっている。特に産業界においては、排出源の多くを占める輸送機器分野での二酸化炭素排出削減に向けた取組が多数行われている。従来のガソリン車に限らず、最近大きく注目されるようになってきたハイブリッド車や電気自動車のような次世代車においても、エネルギー消費を如何に小さくするかが課題となっており、輸送効率の向上の面では車両重量の軽量化が鍵を握っている。自動車の軽量化には、従来から多用されている鉄鋼材料に代えて、アルミニウムやマグネシウム、チタン合金といった軽金属材料の適用が注目されており、最近ではオールアルミニウムボディの自動車がいくつかのメーカーから発売されるようになってきている。しかしながら、素材の製造コストや絶対強度の面で、やはり鉄鋼材料に劣る部分が多く、量産車ではアルミニウム合金の使用比率は10%以下に留まっている。アルミニウムやその他軽金属材料の高信頼性を達成できれば、構造材料としての使用比率も向上し、素材の製造コスト削減にも繋がる。その為には、アルミニウム材料の新たな合金設計が必要である。新規な合金の開発という金属材料の設計

においては、合金組成と製造プロセスの2つの面からの最適化アプローチが必要である。特に合金組成の最適化においては、近年社会的に大きく注目されている元素戦略に基づいた材料設計が求められており、希少元素の削減や不純物元素の積極的な利用の検討が重要である。

現在工業的に利用されているアルミニウム合金の主な強化メカニズムは固溶強化と析出強化である。しかし、この二つの強化機構は添加する合金元素に依存しており、材料の本質的な強化を目的とした純金属自体の強化は不可能である。合金元素に依存せず、純金属に適用できる強化機構が結晶粒微細化強化である。結晶粒微細化強化は、多結晶金属材料において強度が結晶粒径の $-1/2$ 乗に比例するホールペッチ則が知られている。この強化機構に基づき、微細な結晶粒を得ることにより材料の高強度化を図る試みが古くから行われている。結晶粒を微細化するためのプロセスとしては、その素形材化の過程から基本的に大きく3つに分類できる。溶解・鋳造によって得られる鋳塊の冷却速度の制御やその後の塑性加工により結晶粒径を微細にする **Ingot Metallurgy (I/M)** によるもの、冷却速度をさらに高めた液相や気相からの急冷もしくはボールミルでの強加工により得た微粉末を固化することによって素形材化する粉末冶金(**Powder Metallurgy, P/M**)法、そして電子ビーム蒸着法や電解析出法といった基板上に材料を堆積させる **Deposition** プロセスがある。古くから適用されている **I/M** による微細化プロセスでは、ミリメートル～マイクロメートルオーダーの結晶粒であるのに比べて、後者の **P/M** や **Deposition** プロセスでは、結晶粒径をサブミクロン～ナノスケールで制御することが可能であり、アルミニウム材料でも **GPa** 級の強度を達成した報告例もある。しかしながら、構造材料としての利用を対象とした場合には、**I/M** 以外からのアプローチは、バルクの大形化という点において技術的かつコスト面で困難である。

このような観点から、近年、**I/M** からの超微細粒材料の開発が注目されており、従来の押出や圧延などの塑性加工プロセスに比べて非常に大きなひずみを加えて動的再結晶組織を得る強ひずみ加工(**Severe Plastic Deformation, SPD**)プロセスが注目されている。**SPD** を用いて微細化されたアルミニウム材料は、ミクロン～サブミクロンオーダーの結晶粒径に到達する。この **SPD** プロセスには、**High-Pressure Torsion (HPT)**法、**Equal-Channel Angular Extrusion/Pressing (ECAE, ECAP)** 法、**Accumulative Roll-Bonding (ARB)**法などが考案されており、いずれもひずみ量 $\epsilon > 1$ 以上の大ひずみを加え、高速(ひずみ速度 $\dot{\epsilon} \approx 10^0 \sim 10^1 \text{ s}^{-1}$)かつ低温(室温～再結晶温度以下)で変形させることが可能である。**SPD** プロセスでは、**Z** パラメータ(温度補償ひずみ速度因子)をなるべく大きな条件でひずみを導入することが超微細粒形成の鍵となる。しかしながら、これらの方法においても、形状の制限、装置の出力などの問題から、大型バルクの製造に

は課題が多い。この問題を解決できる方法として、本論文では摩擦攪拌プロセス(Friction Stir Processing, FSP)に着目し、SPD プロセスでの超微細粒アルミニウム材料の組織形成に及ぼす支配因子を明らかにすることを目的とした。

第1章では、種々の結晶粒微細化に関する文献を調査し、SPD プロセスを用いた超微細粒アルミニウム材料に関して現状で理解されている点および問題点を抽出することで、本研究の課題を絞り込んだ。その結果、本論文では、SPD プロセスにおける超微細粒の形成に及ぼす支配因子として、外的因子である加工条件と内的因子である不純物元素量および固溶元素量に注目し、それらと結晶粒径との関係を明らかにすることを重要課題とした。

第2章では、SPD による結晶粒微細化の外的因子であるひずみ量、ひずみ速度および加工温度それぞれが、結晶粒径にどのように影響を及ぼしているかを調査した。摩擦攪拌プロセスを SPD プロセスとして適用する場合、高速で回転する工具との摩擦熱を利用していることから、加工温度の制御が重要となる。まず、純アルミニウムに対して任意の FSP 施工条件(ツール回転数、ツール移動速度)で摩擦攪拌プロセスを施し、施工中の温度測定を行うことで、FSP 施工条件と加工温度の関係を経験的に見出した。また、施工条件とひずみ速度の関係をを用いて、FSP 施工中の Z パラメータを算出し、SPD プロセスによる純アルミニウムの Z パラメータと結晶粒径の関係を明らかにした。その結果、Z パラメータが 10^{16} s^{-1} までは、Z パラメータの増加に伴い結晶粒径は微細になり、純アルミニウムでは約 $1\mu\text{m}$ に到達する。しかし、Z パラメータが 10^{16} s^{-1} を超えても結晶粒径はそれ以上微細にはならず、温度・ひずみ速度に依存しない最小結晶粒径に到達することが明らかになった。最小結晶粒径というパラメータを用いることで外的因子の影響を排除し、内的因子の影響を独立して検討することが可能となった。

第3章では、従来から議論されてきた超高純度アルミニウムと 99.99%以下の純アルミニウムにおける結晶粒径の違いに注目し、アルミニウムの最小結晶粒径に及ぼす純度の影響について調査した。前章と同様の条件にて 99.999%の純度を有する超高純度アルミニウムに対して FSP を施し、組織観察を行った結果、超高純度アルミニウムにおける Z パラメータと結晶粒径の関係は、99.99%以下の純アルミニウムと同様に $Z = 10^{16} \text{ s}^{-1}$ で最小結晶粒径に到達するが、その値は 1 桁以上も大きい $30\mu\text{m}$ 程度となることが明らかとなった。この結晶粒径の大きな差は、わずか 100ppm 程度の極微量の不純物元素が大きく影響を与えていることがわかった。その一方で、工業用純度(99%)と 99.99%の純度での比較において結晶粒径に大きな差は見られず、99.99%以下の純度では、不純物元素の効果はすでに飽和した状態となっていることが明らかとなった。このことから、アルミニウムの最小結晶粒径におよぼす各種合金元素の影響を本質的に明らかにするため

には、超高純度ベース(Fe 含有量 10ppm 以下)での議論を行う必要があることが示唆された。

第 4 章では、アルミニウムの最小結晶粒径に及ぼす固溶元素量の影響について調査した。一般的に、積層欠陥エネルギーの低い金属は、交差すべりが起こりにくく、回復が遅延するため、加工後の結晶粒径が小さくなる傾向にある。合金元素の添加により積層欠陥エネルギーが低下することを考慮し、材料選択の幅を拓げるため、最大固溶量の大きい Al-Mg 系合金について調査した。前章で述べたように、合金元素の影響を明らかにするには超高純度ベースの合金を用いることが望ましいが、本章ではサブミクロンオーダーの超微細粒の形成を目的として工業用純度ベースの合金を用いた。Mg 固溶量の異なる Al-Mg 合金に対して、Z パラメータが 10^{16} s^{-1} を超える条件を用いて FSP を施し、最小結晶粒径を得た。その結果、Al-Mg 合金の最小結晶粒径は Mg 固溶量の増加に伴って減少することがわかった。これまでに報告されている Al-Mg 合金の積層欠陥エネルギーの値を用いて、固溶量と積層欠陥エネルギーの関係に従って任意の Mg 固溶量における Al-Mg 合金の積層欠陥エネルギーを算出し、積層欠陥エネルギーと最小結晶粒径の関係を定量的に明らかにした。以上の結果から、積層欠陥エネルギーの低下に効果的な合金元素の添加により、最小結晶粒径を制御できる可能性を示した。

第 5 章では、本研究で得られた主要な成果を総括し、今後の研究活動における課題を示した。

審査結果の要旨

アルミニウム材料は、大幅な軽量化が期待できる構造材料として、自動車や航空機などの輸送機器に使用されている。しかしながら、現状のアルミニウム材料では、鉄鋼材料に比べると強度、延性や靱性、およびその製造コストの点で劣るため、アルミニウム材料の使用量は鉄鋼材料に比べるとまだまだ低く、その信頼性の向上が要望されている。現在、一般的に使用されているアルミニウム展伸材料の強度は、主に固溶強化や析出強化と呼ばれる合金元素に依存した強化機構に基づいて設計されているが、合金元素に依存せず、純金属自体の強化を達成するためには結晶粒微細化による強化が最も有効な方法である。本研究では、構造材料としてのアルミニウム材料の信頼性の向上を増進するため、合金組成設計と材料プロセスの両面から、超微細粒アルミニウムの設計・製造プロセスの最適化を目指した研究を実施しており、以下に述べるような研究成果を得ている。

- ① 構造材料として大型バルク材の製造が可能なプロセスについて調査し、摩擦攪拌プロセスと呼ばれる強ひずみ加工の一種に着目し、高純度アルミニウムを用いて加工条件の最適化を検討した。その結果、強ひずみ加工においては、付与されるひずみ量、加工時のひずみ速度および加工温度に依存しない最小の結晶粒径の存在を初めて明らかにした。
 - ② アルミニウムメタルの強ひずみ加工における最小結晶粒径に及ぼす不純物元素の影響について検討した結果、高純度アルミニウムでは最小結晶粒径が $1\ \mu\text{m}$ 程度であるのに対し、不純物元素量を $10\ \text{ppm}$ 以下に制御した超高純度アルミニウムでは最小結晶粒径は $30\ \mu\text{m}$ となることを明らかにした。また、工業用純度でも最小結晶粒径は高純度アルミニウムとほぼ同程度であり、最小結晶粒径に及ぼす不純物元素量の影響を明らかにした。
 - ③ 合金の積層欠陥エネルギーの観点から、アルミニウム合金の最小結晶粒径は、合金元素の固溶により $0.2\ \mu\text{m}$ 程度にまで減少することを初めて定量的に明らかにし、超微細粒アルミニウム材料の開発において、合金元素の選択指針を構築することができた。
- 本研究成果は、不純物元素や合金元素が構造材料としてのアルミニウムの高信頼性化に大きな影響力を有していることを示しており、工業的にも大いに期待できる有益な知見であり、材料技術の一層の高度化に貢献するところ大である。さらに、申請者が自立して研究を行うに十分な能力と学識を有することを証したものである。学位論文審査委員会は、本論文の審査ならびに最終試験の結果から、博士（工学）の学位を授与することを適当と認める。