

# 博士学位論文審査要旨

2021年7月10日

論文題目： 強ひずみ加工法による銅合金の結晶粒微細化機構に関する研究

学位申請者： 浅野 真由

審査委員：

主査： 理工学研究科 教授 宮本 博之  
副査： 理工学研究科 准教授 湯浅 元仁  
副査： 大阪市立大学 工学研究科 教授 兼子 佳久

要 旨：

構造用金属材料の高強度化は構造物の軽量化を可能とし、省エネルギーや環境問題の解決に寄与する重要な課題である。高強度化の中でも強ひずみ加工法による結晶粒微細化は希少金属が多い合金元素が不要であるため、持続可能な省資源型の方法として期待される。本論文では転位論の観点から加工プロセスでの組織発展に着目し、強ひずみ加工における結晶粒微細化に及ぼす合金元素の影響について明らかにした。特に固溶体合金中の溶質元素の影響は、主に原子寸法や剛性率の差異に起因する弾性的相互作用による効果と積層欠陥エネルギーの低下による影響が考えられるが、これらの相対的な寄与については明確でなかった。本論文ではモデル材料として、銀および銅、および銅合金について、溶質元素と積層欠陥エネルギーの影響を独立的かつ系統的に変化させた。まず、固溶体元素の無い純金属について積層欠陥エネルギーの低下は超微細粒組織形成の前段階の転位セル組織を早期に形成して、加工硬化率を高めるものの、転位セル組織から超微細粒組織への変化に至る加工後期の組織形成には変化がなく、最終の結晶粒径への影響も無いことを明らかにした。次に積層欠陥エネルギーの変化が微小な Mn を添加した場合、転位セル組織から超微粒形成に至る後期段階においても、加工硬化率の上昇、ならびに転位密度の増加と結晶粒径の減少を継続させることを明らかにした。刃状転位と溶質元素の弾性相互作用により転位セル壁から方位差の大きい亜粒界への変化を早めたものと考えられる。

次に積層欠陥エネルギーの低下させる Al を添加した場合、加工の前段階を通じて、加工硬化率を高めて、最終の結晶粒径が減少することを確認した。さらに微細化の効果は積層欠陥エネルギーよりも弾性的相互作用による効果が高いことを明らかにした。以上のことから、強ひずみ加工法による結晶粒超微細化に関する合金元素の効果を明らかにして、微細化に効果的な合金設計の指針を示すことができた。

よって、本論文は、博士（工学）（同志社大学）の学位を授与するにふさわしいものであると認められる。

## 総合試験結果の要旨

2021年7月10日

論文題目： 強ひずみ加工法による銅合金の結晶粒微細化機構に関する研究

学位申請者： 浅野 真由

審査委員：

主査：	理工学研究科 教授	宮本 博之
副査：	理工学研究科 准教授	湯浅 元仁
副査：	大阪市立大学 工学研究科 教授	兼子 佳久

要 旨：

本論文の主たる内容は Materials Science and Engineering, Journal of Materials Research, Materials Science Forum, 銅と銅学会に掲載及び掲載予定であり十分な評価を得ている。

2021年7月10日午後6時より2時間にわたり、提出論文に関する学術講演会が開かれ、種々の質疑・討論が行われたが、提出者の説明により十分な理解が得られた。

さらに、講演会終了後、審査委員により学位論文に関連した諸問題につき口頭試問を実施した結果、十分な学力を確認できた。なお、提出者は多数の英語による論文発表や学会発表を行っていることや、語学試験にも合格していることから、十分な語学能力を有すると認められる。

よって総合試験の結果は合格であると認められる。

# 博士学位論文要旨

論文題目： 強ひずみ加工法による銅合金の結晶粒微細化機構に関する研究  
氏名： 浅野 真由

## 要旨：

本論文は、FCC組織を有する純金属と合金において強ひずみ加工 (Severe plastic deformation, SPD) 法の1つである側方押し出し加工 (Equal-channel angular pressing, ECAP) 法を用いて超微細結晶材を作製し、ECAPの各段階における力学特性と微細組織を調査した。微細組織形成過程におけるセル壁の形成から結晶粒界の形成に着目し、積層欠陥エネルギーと固溶原子による固溶強化の効果の観点から、強ひずみ加工における加工硬化ステージの推移と微細組織形成の関係を議論した研究成果を取りまとめたものであり、全6章から構成される。

第1章は緒言であり、本研究の背景と目的を示している。金属材料の靱性・強度の向上など材料に優れた特性を与える強化方法として結晶粒微細化がある。中でも、結晶粒径を1  $\mu\text{m}$  以下に超微細化する強ひずみ加工法により、従来不可能であった大きなバルク形状の超微細結晶材の作製が可能になり、高強度が要求される構造材料への適用が期待できる。これまでに、強ひずみ加工法の種類、超微細結晶組織の形成機構、機械的性質など多くの研究が報告されている。多くの実用金属材料は合金であり、Cu-Al合金やCu-Zn合金に代表される固溶体は、優れた機械的性質を持つため数多く使用されている。これらのFCC構造の合金中の固溶原子は、転位や結晶粒界との相互作用に加えて、積層欠陥エネルギーの低下による転位の拡張や、変形双晶の形成によって転位の動的回復を抑制するため、加工硬化を高める。強ひずみ加工法による微細組織形成過程は、転位の蓄積によるセル壁の形成、転位同士の合成・対消滅・再配列による結晶粒界の形成、転位の吸収による大角粒界の形成と考えると、転位の拡張や、転位と固溶原子の相互作用により、それぞれの過程が遅れることが予想される。しかしながら、それらのどの要因がどの段階で支配的であるかは明らかではない。そこで、積層欠陥エネルギーを低下させる効果と、固溶体の効果を分離し、これらが強ひずみ加工における微細組織形成過程である転位の蓄積からセル壁の形成、セル壁からサブグレイン粒界・小角粒界までの粒界化、小角粒界から大角粒界までの大角化に及ぼす影響を明らかにすることを目的とした。

第2章では、ECAPにおける加工硬化ステージおよび組織形成の関係を明らかにするため、Cuに焦点を当て、硬さの変化および、転位密度や粒界方位差の変化と転位組織観察を行った。積層欠陥エネルギーが中程度のCu (40  $\text{mJ/m}^2$ ) では、加工初期 (1~3 パス) に硬さが著しく増加し、セル組織の発展に伴い微細化も進んだが、加工後期 (4~8 パス) では硬さ・組織ともに飽和した。一方で、加工とともに粒界方位差は増加した。加工硬化率は、1パスにおける硬さの増加率を1パス当たり導入される相当ひずみで除したもので近似し、得られた加工硬化率と組織観察の結果から、圧縮やねじり変形で達成される高ひずみ域で現れる加工硬化ステージ III, IV, V との関係を類推した。その結果、ECAPにおける加工硬化率は、先行研究の報告と一致し、転位の蓄積からセル壁・サブグレインバウンダリー・小角粒界形成までが ECAP 加工初期に現れるステージ III~IV、小角粒界から大角粒界形成までが ECAP 加工後期に現れるステージ IV~V に相当することを示した。

第3章では、Cuよりも積層欠陥エネルギーの低いAg (25  $\text{mJ/m}^2$ ) を用い、両者の硬さの変化および、転位密度や粒界方位差の変化と転位組織観察の比較を行った。これは、硬さや組織形成における積

層欠陥エネルギー(拡張転位幅)の影響のみを明らかにすることを意図する。積層欠陥エネルギーの低い Ag は Cu に比べて、加工初期での加工硬化率は高く、セル径も大幅に減少するが、加工後期での加工硬化率、結晶粒径に顕著な差がみられなかった。この結果から、加工初期では、らせん転位の交差すべりが抑制されたことにより転位密度が増加し、硬さも増加することが示された。さらに、転位セルだけでなく変形双晶が形成されたことも微細化が促進した原因であった。一方、加工後期は、刃状転位の空孔の増減を伴う再配列が主な機構であると考え、らせん転位の交差すべりのしにくさは大きな影響を与えなかったと言える。以上から、積層欠陥エネルギー低下の影響は、加工初期(ステージ III)に大きな影響を及ぼすことが明らかになった。

第4章では、Cuと積層欠陥エネルギーが同等のCu-Mn合金を用い、両者の硬さの変化および、転位密度や粒界方位差の変化と転位組織観察の比較を行った。固溶体が加工硬化ステージと微細組織変化に及ぼす影響は、主に積層欠陥エネルギーを低下させる効果と固溶原子と転位の相互作用による効果によると考えられるが、ここでは、後者のみの影響を明らかにすることを意図する。Cu-Mn合金の積層欠陥エネルギーはCuと同等であるが、加工初期では、転位密度と硬さが増加し、セル径も減少した。固溶量の増加に伴ってすべり形態もwavyからplanarに変化した。さらに、加工後期でも、転位密度の増加が継続したため、硬さも増加した。したがって、拡張転位幅が狭く、完全転位に収縮し易い積層欠陥エネルギーの高い金属であっても、固溶原子によって転位の動的回復を十分に抑制できることが明らかとなった。固溶体の効果は、加工全体(ステージ III~V)に影響を及ぼし、この効果は、固溶量が多いほど顕著になった。

第5章では、積層欠陥エネルギーと固溶体の相乗効果の影響を明らかにするために、固溶原子の添加により積層欠陥エネルギーが低下するCu-Al合金と上昇するCu-Ni合金の硬さの変化および、転位密度や粒界方位差の変化と転位組織観察の比較を行った。加工初期では、Cu-Al合金の方がより微細化が促進されたが、加工後期ではCu-Al合金、Cu-Ni合金ともに微細化が進んだ。したがって、積層欠陥エネルギーの高低に関わらず、微細化は可能であり、特に加工後期(ステージ IV以降)における固溶原子の効果が大きいことが明らかになった。Cu-Al合金は、積層欠陥エネルギーが低いことにより拡張した転位と、固溶原子の存在が重畳したと考えられる。

第6章は総括であり、本研究で得られた結果のまとめである。