

令和 2 年 6 月 22 日現在

機関番号：12101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H03406

研究課題名(和文)加工誘起ナノクラスターによるアルミニウム合金の環境脆化の抑制

研究課題名(英文) Suppression of environmental embrittlement in cold worked aluminum alloys with deformation-induced nano clusters

研究代表者

倉本 繁 (Kuramoto, Shigeru)

茨城大学・理工学研究科(工学野)・教授

研究者番号：10292773

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,890,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、環境脆化を生じにくい高強度アルミニウム合金の開発指針を得るための基礎研究を実施した。析出強化合金として実用化されているAl-Zn-Mg系合金、Al-Cu系合金、Al-Cu-Mg系合金、Al-Mg-Si系合金を対象として、従来の析出強化とは異なる加工誘起ナノクラスターで強化された状態の試料を冷間圧延加工によって作製し、環境脆化特性の評価を実施した。その結果、これらの試料が従来の析出強化に比べて高強度を有すると同時に環境脆化を生じにくいことを明らかにした。また加工時の溶質元素の種類や添加量が強度特性に影響を及ぼすことから、これらの制御指針を明らかにすることが今後の課題と考えられる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の実施により、加工誘起ナノクラスターを用いて実用超強力アルミニウム合金を実現するための基礎的指針が得られた。特に、合金元素の種類や量が強度特性に及ぼす影響や、ひずみ速度が環境脆化特性に及ぼす影響は新たな知見であり、今後の実用化を考える上で大きなヒントとなる。また、これらの高強度化に関する金属組織学的な知見は、単にアルミニウム合金の機械的特性向上に役立つだけでなく、一般的な金属材料へ広く適用可能なものであり、その学術的、社会的意義は大きいものとする。

研究成果の概要(英文)：The present study is a basic research to obtain a method to develop high strength aluminum alloys with better resistance to environmental embrittlement. We prepared the aluminum alloy specimens whose strength is raised by the existence of nano clusters induced by cold rolling. Then, the resistance to environmental embrittlement has been evaluated for these specimens. It has been revealed that they showed higher strength than conventionally processed specimens together with better resistance to environmental embrittlement. Also, we have found that alloying elements affect the mechanical properties significantly, and further study will be expected to clarify the method to control the factors that control the mechanical properties.

研究分野：金属材料学

キーワード：強度・破壊靱性

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

持続可能な社会を構築する上で、我々が日常の移動手段として利用する自動車、列車、航空機等の高効率化は重要な課題である。金属材料分野では、構造部材として使用される金属材料の高強度化が、燃費効率と動力特性の双方を向上させるため、最重要課題となる。一般的に金属材料では、転位という格子欠陥の運動により変形が生じるため、高強度化のためには転位の運動を抑制することが必要である。実用材料においては、転位の移動を抑制するために、固溶強化・分散強化・析出強化・加工強化・結晶粒微細化強化などの手法が利用されている。

近年、さまざまなプロセスを活用したナノスケールまでの結晶粒微細化技術が大きく進展し、強化手法としての重要性が強く認識されつつある。研究代表者も、科研費研究(基盤研究 B、24360297、2012~14年度)により、High-pressure torsion (HPT) という特殊な強加工中に、合金元素の配置が変化して、ナノクラスターの形成や粒界近傍のナノスケールの合金元素の濃化をもたらす、超高強度化をもたらすことを明らかにした。

以上のような超高強度化は、HPT のような特殊な手法(相当歪 10~100)によってのみ実現されると考えられてきたが、研究代表者らは、圧延のような従来プロセス(相当歪 10 以下)によっても類似の高強度化が生じることを見出した。しかし、現状においては、高強度化に及ぼす合金組成やプロセス条件因子の影響は不明であり、それらの諸因子と環境脆化との関係も不明である。これらを解明すれば、従来材より著しく信頼性に優れた実用超強力アルミニウム合金を開発することができると思われ、本研究を提案するに至った。

### 2. 研究の目的

本研究では、環境脆化を生じにくい高強度アルミニウム合金の開発指針を得るための基礎研究を実施する。現在、最も強度が高いアルミニウム合金は、7075 合金(Al-Zn-Mg 系合金)であり、熱処理により合金元素を析出させた状態(T6 処理状態)で使用されるが、その析出組織に起因する環境脆化が生じ、実用上の問題となっている。最近、この合金に室温での冷間加工を施すだけでナノクラスターが生成し、著しく高強度化することが見出された。この加工誘起ナノクラスターによる強化においては、従来の T6 処理材とは異なる金属組織が形成されるため、環境脆化が生じにくいことが予想されるものの、その詳細は明らかではない。本研究では、このナノクラスターによる強化機構を利用した場合に、環境脆化を抑制するために必要な金属組織の条件、およびそのような組織を生じさせるプロセス条件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、前述した目的を達成するために、加工誘起ナノクラスターを有する試料を対象として、系統的な実験を実施する。試料としては、析出強化合金として実用化されている Al-Zn-Mg 系合金、Al-Cu 系合金、Al-Cu-Mg 系合金、Al-Mg-Si 系合金を用いた。圧延加工は、板厚 6~10mm から開始した。加工中に合金元素の再配置が生じる可能性が考えられ、その挙動に加工前の合金元素の固溶状態が影響することが予測される。そこで、本研究では、各号近景において添加元素の種類や添加量を変化させた試料を用いて試験を実施した。これにより、加工前の合金元素の固溶量が強度特性および環境脆化特性に及ぼす影響を調査した。圧延した試料の硬さ試験、引張試験を行い、圧延加工による強化挙動および環境脆化特性を把握した。強度と環境脆化挙動には、転位密度、結晶粒径、粒界への合金元素の濃化、粒内でのナノクラスター形成等が複雑に絡み合っており、寄与することが考えられる。そこで、加工による変形組織の変化、材料中の水素の挙動についても必要に応じて評価した。

### 4. 研究成果

#### (1) Al-Zn-Mg 系合金

本系の代表的な市販合金である 7075 合金に 90% 以下の範囲で冷間加工率を変化させ冷間圧延を行い、ビッカース硬さ試験、湿潤大気雰囲気(HA)および乾燥窒素ガス雰囲気(DNG)環境下での SSRT(低歪速度法)試験および組織観察を行った。圧延率が増加するにつれて硬さも増加し、90% のとき硬さは最大となり、圧延率 60% 以上で T6 処理(従来の最高強度となる熱処理条件)材の硬さを上回った。

図 1 に見られるように、圧延率が増加するにつれて引張強さは増加し、圧延率 60% 以上のとき、硬さと同様に T6 処理材よりも引張強さが高くなる。一方、圧延率が増加すると破断伸びは減少する。また、圧延材は試験環境が DNG から HA に変わっても、引張強さおよび破断伸びの減少はほとんど見られない。

一般的にひずみ速度が小さいほど環境脆化が顕著となるため、図 1 よりもさらに初期ひずみ速度の小さい  $1.67 \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$  において検討したところ、水素脆化感受性(HES)指数は 20% 圧延材

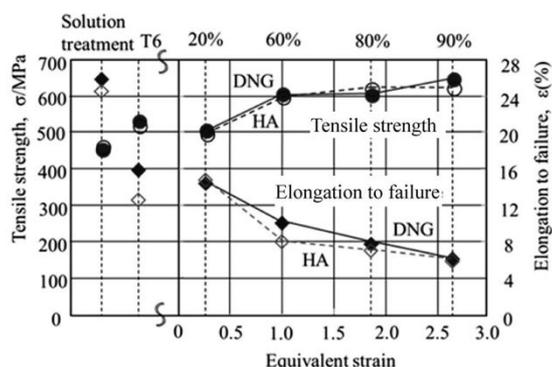


図 1 7075 合金の引張特性に及ぼす冷間圧延率の影響(初期ひずみ速度  $1.67 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ )

が-0.03, 90%圧延材は0.21 となり, 圧延材はT6 材 (HES: 0.52) よりも水素脆化感受性が低いことが判明した。これと関係して破面観察より圧延材はHA, DNG 環境ともにディンプルを伴う延性破面が見られ, T6 材で問題となる粒界破壊を伴う脆化挙動は認められなかった。

7075 合金よりもさらに Zn 量を増やして高強度化を図った合金についても検討を実施した。Al-8.2%Zn-2.0%Mg-2.0%Cu-0.15%Zr 合金に冷間圧延を施し, ビッカース硬さ試験および引張試験を実施したところ, 7075 合金の場合と同様に圧延率の上昇に伴い硬さの増加が見られた。図2 に示す通り, 圧延率とともに引張強さ(初期ひずみ速度  $1.67 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ ) は増加し, 40%以上の圧延率では T6 材の引張強さを上回った。一方で圧延率の増加に伴い破断伸びは減少した。試験環境を乾燥環境から湿潤環境にすると, T6 材では破断伸びが著しく低下したのに対して, 圧延材ではほとんど低下しなかった。これと対応し, 圧延材では湿潤環境においても試験後の破面に粒界破壊は見られず, ディンプルを伴う延性破面が観察された。

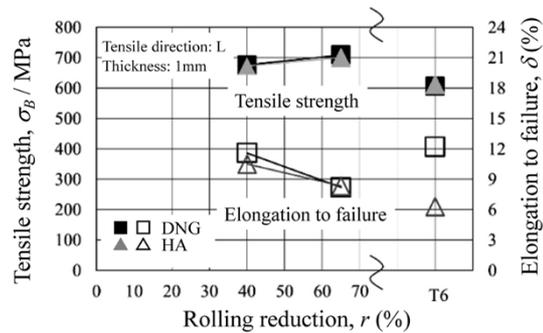


図2 Al-8.2%Zn-2.0%Mg-2.0%Cu-0.15%Zr 合金の引張特性に及ぼす冷間圧延率の影響(初期ひずみ速度  $1.67 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ )

### (2) Al-Cu, Al-Cu-Mg 系合金

Al-Cu 系の代表的な市販合金である 2219 合金に 90%の範囲で冷間加工率を変化させ冷間圧延を行い, ビッカース硬さ試験, 湿潤大気雰囲気 (HA) および乾燥窒素ガス雰囲気 (DNG) 環境下での SSRT (低歪速度法) 試験および組織観察を行った。Al-Zn-Mg 系合金の場合と同様に圧延率が増加するにつれて硬さも増加し, 圧延率 90%のとき硬さは最大となった。本系合金については, T6 材, 圧延材ともに湿潤環境下の試験において引張強さおよび破断伸びの減少はほとんど見られなかったが, 圧延材においてひずみ速度を広範囲に変化させて評価したところ, 条件によっては環境の影響が見られることが判明した。図3 に示す通り, 水素脆化感受性指数 HES の値は, 7075-T6 材の 0.52 よりも低いものの,  $10^{-6} \text{ s}^{-1}$  程度のひずみ速度において極大となる。

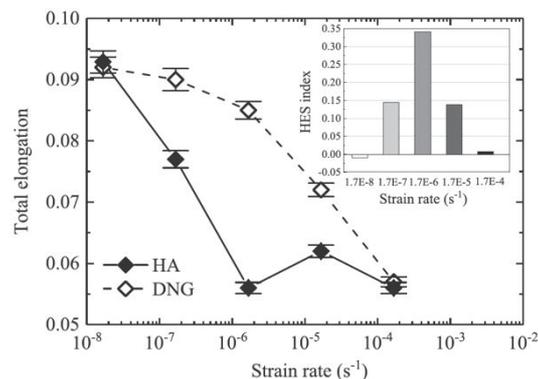


図3 2219 合金の破断伸びに及ぼす初期ひずみ速度の影響(冷間圧延率 90%)

これと関連し, 変形後の試験片の昇温式水素脱離試験を実施したところ, 水素放出挙動にひずみ速度が影響を及ぼすことがわかった。これは, 試験環境から材料中に侵入する水素の量や, 侵入した水素と転位, 粒界, 固溶元素, 第2相などの圧延材中の組織との相互作用にひずみ速度が影響することを示唆している。本研究の期間内に, この現象を詳細に調べることができなかったが, これまでに知られていなかった新たな知見であり, 今後冷間加工により高強度化したアルミニウム合金を実用化する際に, 用途によっては注意が必要であると考えられる。

Al-Cu-Mg 系の代表的な市販合金である 2024 合金についても, 2219 合金と同様に 90%の範囲で冷間加工率を変化させ冷間圧延を行い, ビッカース硬さ試験, 湿潤大気雰囲気 (HA) および乾燥窒素ガス雰囲気 (DNG) 環境下での SSRT (低歪速度法) 試験および組織観察を行った。Al-Zn-Mg 系合金の場合と同様に圧延率が増加するにつれて硬さも増加し, 圧延率 90%のとき硬さは最大となった。本系合金については, 90%冷間圧延材がほとんど延性を有していなかったため, 70%までの冷間圧延を施した後に, SSRT 試験を実施した。T6 材, 圧延材ともに湿潤環境下の試験において引張強さおよび破断伸びの減少はほとんど見られなかった。

### (3) Al-Mg-Si 系合金

Al-Mg-Si 系に関しては, Mg, Si 添加量および Cu 添加量の異なる 4 つの実験室合金に 90%の範囲で冷間加工率を変化させ冷間圧延を行い, ビッカース硬さ試験, 湿潤大気雰囲気 (HA) および乾燥窒素ガス雰囲気 (DNG) 環境下での SSRT (低歪速度法) 試験および組織観察を行った。合金組成を表1 に示す。Al-Zn-Mg 系合金の場合と同様に圧延率が増加するにつれて硬さも増加し, 圧延率 90%のとき硬さは最大となった。本系合金についても, Al-Cu 系合金と同様に T6

表1 本研究で用いた Al-Mg-Si 系合金の組成 (#1,2: Mg,Si バランス組成, #3,4: 過剰 Si 組成)

Specimen	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr
#1	0.89	0.09	0.01	<0.01	1.6	<0.01
#2	0.93	0.09	1.0	<0.01	1.6	<0.01
#3	1.43	0.1	<0.01	<0.01	1.2	<0.01
#4	1.43	0.1	0.98	<0.01	1.18	<0.01

材、圧延材ともに湿潤環境下の試験において引張強さおよび破断伸びの減少はほとんど見られなかった。図4に示す通り、本系合金においては、Al-Zn-Mg系、Al-Cu系、Al-Cu-Mg系と比較して、圧延による強度上昇が小さかったが、#4の試料(過剰Si組成、Cu添加)90%圧延材の引張強さは450MPaを超え、2024合金時効硬化材とほぼ等しい優れた強度を示した。本系合金の合金元素添加量がそもそも低く、圧延時の固溶量が小さいにもかかわらず、なぜこのような強化が生じたのかという点については、本研究の期間内に明らかにすることができなかった。しかし、Mg, Si, Cu添加量の違いが強度に大きく影響することは新たな知見であり、今後さらに詳しく溶質元素が強度特性と環境脆化特性に及ぼす影響を調べる必要がある。

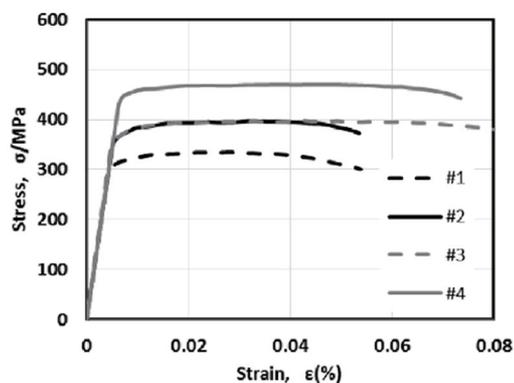


図4 Al-Mg-Si系合金の引張特性(冷間圧延率90%)

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Tadenuma Hiroki, Kuramoto Shigeru, Kobayashi Junya, Itoh Goroh, Aoi Ichiro, Shimizu Yoshihiro	4. 巻 69
2. 論文標題 Influence of cold rolling on strength and resistance to hydrogen embrittlement in Al-8%Zn-2%Mg-2%Cu-0.15%Zr alloy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Japan Institute of Light Metals	6. 最初と最後の頁 312 ~ 314
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.2464/jilm.69.312">https://doi.org/10.2464/jilm.69.312</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Safyari Mahdieh, Moshtaghi Masoud, Kuramoto Shigeru	4. 巻 172
2. 論文標題 Effect of strain rate on environmental hydrogen embrittlement susceptibility of a severely cold-rolled Al-Cu alloy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Vacuum	6. 最初と最後の頁 109057 ~ 109057
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1016/j.vacuum.2019.109057">https://doi.org/10.1016/j.vacuum.2019.109057</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nakajima Yuki, Kuramoto Shigeru, Kobayashi Junya, Itoh Goroh, Oh-ishi Keiichiro, Aoi Ichiro, Shimizu Yoshihiro	4. 巻 68
2. 論文標題 Effect of test environment on tensile properties of cold-rolled 7075 aluminum alloy	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Japan Institute of Light Metals	6. 最初と最後の頁 621 ~ 626
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.2464/jilm.68.621">https://doi.org/10.2464/jilm.68.621</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計16件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 Mahdieh Safyari, Junya Kobayashi, Shigeru Kuramoto, Goroh Itoh
2. 発表標題 Suppression of environmental hydrogen embrittlement by severe cold rolling in Al-Zn-Mg-Cu-Cr alloy with high amount of zinc
3. 学会等名 軽金属学会第136回春期大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 三浦琢真, 倉本 繁, 伊藤吾朗, 小林純也
2. 発表標題 Al-Mg-Si系合金の機械的特性に及ぼす冷間圧延の影響
3. 学会等名 軽金属学会第136回春期大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 三浦琢真, 倉本 繁, 伊藤吾朗, 小林純也
2. 発表標題 Al-Mg-Si系合金冷間圧延材の機械的特性に及ぼす合金組成の影響
3. 学会等名 軽金属学会第137回秋期大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Mahdiah Safyari, Junya Kobayashi, Shigeru Kuramoto, Goroh Itoh
2. 発表標題 Effect of solution treatment on mechanical properties and hydrogen embrittlement behavior of severely cold-rolled Al-alloys
3. 学会等名 軽金属学会第137回秋期大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 豊田章高, 藤澤竜星, 小林純也, 倉本 繁, 伊藤吾朗
2. 発表標題 Al-Cu系合金冷間圧延材の引張特性に及ぼす試験環境の影響
3. 学会等名 軽金属学会第134回春期大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 藤澤竜星, 小林純也, 倉本 繁, 伊藤吾朗
2. 発表標題 Al-Cu-Mg系合金冷間圧延材の耐水素脆化特性
3. 学会等名 軽金属学会第134回春期大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 蓼沼宏樹, 小林 純也, 倉本 繁, 伊藤吾朗
2. 発表標題 冷間圧延したAl-8%Zn-2%Mg-2%Cu-0.15%Zr合金の耐水素脆性
3. 学会等名 軽金属学会第134回春期大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 サフィヤリ マディエ, 蓼沼宏樹, 小林純也, 倉本 繁, 伊藤吾朗
2. 発表標題 Al-8%Zn-2%Mg-2%Cu-0.2%Cr合金の機械的性質と水素脆化感受性に及ぼす強冷間圧延の影響
3. 学会等名 軽金属学会第135回秋期大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 蓼沼宏樹, 小林純也, 倉本 繁, 伊藤吾朗
2. 発表標題 Al-8%Zn-2%Mg-2%Cu-0.15%Zr合金の耐水素脆化特性に及ぼす冷間圧延の影響
3. 学会等名 軽金属学会第135回秋期大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 豊田章高, 小林純也, 倉本 繁, 伊藤吾朗
2. 発表標題 Al-Cu系合金冷間圧延材の耐水素脆化性
3. 学会等名 軽金属学会第135回秋期大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 藤澤竜星, 小林純也, 倉本 繁, 伊藤吾朗
2. 発表標題 Al-Cu-Mg系合金の耐水素脆化特性に及ぼす冷間圧延の影響
3. 学会等名 軽金属学会第135回秋期大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 中島祐樹, 倉本 繁, 青井一郎, 清水吉広
2. 発表標題 Al-Zn-Mg合金冷間圧延材の耐水素脆化性
3. 学会等名 軽金属学会第132回春期大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 藤澤竜星, 中島祐樹, 倉本 繁
2. 発表標題 Al-Cu-Mg系合金冷間圧延材の引張特性
3. 学会等名 軽金属学会第132回春期大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 夢沼宏樹, 中島祐樹, 小林純也, 倉本 繁, 伊藤吾朗, 青井一郎, 清水吉広
2. 発表標題 冷間圧延したAl-8%Zn-2%Mg-2%Cu-0.15%Zr合金の引張特性
3. 学会等名 軽金属学会第133回秋期大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 中島祐樹, 小林純也, 倉本 繁, 伊藤吾朗, 青井一郎, 清水吉広
2. 発表標題 Al-Zn-Mg合金冷間圧延材の耐水素脆化性に及ぼす加工率の影響
3. 学会等名 軽金属学会第133回秋期大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 藤澤竜星, 中島祐樹, 小林純也, 倉本 繁, 伊藤吾朗
2. 発表標題 Al-Cu-Mg系合金冷間圧延材の引張特性に及ぼす圧下率の影響
3. 学会等名 軽金属学会第133回秋期大会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	小林 純也  (Kobayashi Junya)  (20735104)	茨城大学・理工学研究科(工学野)・助教    (12101)	

