

令和 5 年 6 月 7 日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05137

研究課題名（和文）延性二相合金におけるクリープ特性の重畳とその組織因子による影響

研究課題名（英文）Clarification of creep deformation behavior in dual-ductile phase alloys and establishment of the creep theory

研究代表者

高木 秀有 (TAKAGI, Hidenari)

日本大学・工学部・准教授

研究者番号：40409040

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：純Al（母相）とAl合金（強化相）から構成される連続繊維状態の延性二相合金を作製し、高温の引張試験とクリープ試験を実施した。引張試験結果によると、強化相の体積率と最大応力は直線関係が見られた。これは、実験データがlinear law of mixturesに従うことを示す。クリープ試験結果によると、二相合金のデータは、各単相材のデータとlinear law of mixturesで計算された結果とほぼ近い。これは、二相合金中の母相と強化相は、それぞれの単相材で生じる変形律速機構でクリープしており、二相合金の実験データは両相の変形挙動が重畳されて出力されることを示す。

研究成果の学術的意義や社会的意義

社会インフラや輸送機器などに使われている構造材料は、様々な手段によって高強度、高耐久性が実現されるように作られる。このため、その材料は複雑な組織を持つことになり、その挙動や状態を調査するのが難しくなる。本研究では、実用合金の挙動や状態をよく理解するために、組織形態を単純にした材料で、明確ではなかった知見を得る研究を実施した。得られた結果は、近年注目されているミルフィーユ構造やパイモダル組織を有する材料、高エントロピー材などのクリープ特性の理解に繋がる。

研究成果の概要（英文）：In this study, the ductile dual-phase (DDP) alloys composited by 99.99% Al (matrix phase) and Al-Mg solid solution alloy (reinforced phase) are made with a fully continuous fiber state by accumulative roll bonding. Tensile tests and creep tests at elevated temperatures are performed. From the tensile data at 546 K, the relationship between the maximum stress versus the volume fraction of the reinforced phase lies in a straight line. The result indicates that the relationship between the maximum stress and the volume fraction of a DDP alloy follows the classical linear law of mixtures (CLLM). The creep data of an Al+Al-2Mg (DDP) alloy at 623 K are nearly equal to the lines calculated by the CLLM. The above concludes that if the individual rate-controlling mechanisms arise in each phase, the creep data of a DDP can be analyzed by the CLLM. It means that the creep property for the DDP alloy is extracted including the superposition of creep behavior at both phases.

研究分野：材料強度物性

キーワード：延性二相合金 クリープ 連続繊維

1. 研究開始当初の背景

単相合金の高温クリープ理論は良くまとめられているが(1-6)、二相合金(多相合金)については研究対象の多くが実用合金であるため、一般化された法則や理論は少ない(7, 8)。この要因は、実用合金では構成元素が多く、構成相と結晶粒径・析出形態・転位組織などの複数の組織因子が存在するためである。具体的には、ある一つの元素による結晶粒内の強化と結晶粒界の弱화가同時に生じること、室温付近では強化要因となる転位や結晶粒界が高温では弱化作因となること、クリープ変形中に複数の組織因子が同時に変化することなどが挙げられる。

我々は、新学術領域研究「シンクロ型長周期積層構造の材料科学」において研究対象であった、Mg二相合金のクリープ特性に関する調査を行った(9)。その結果によると、二相合金のクリープ特性は単相合金の理論及び知見のみでは解釈できず、構成相の特性が重畳した結果となることを示す。一方、これまでの二相合金(多相合金)のクリープ特性に関する報告例をみると、単相合金のクリープ理論を用いて実験データを整理し、母相あるいは強化相のどちらかひとつの特性が現出すると解釈されている。これは、クリープ特性に対する組織因子の役割を検討する際に間違った結論を導いてしまう。その結果、例えば構造物の強度設計や余寿命予測などにおいて過大評価されるなどの問題が生じる。

ところで、上述のMg二相合金では強化相が不連続繊維状態であり、また強化相のクリープ特性がまだ良く解明されていない。このため、クリープ特性の重畳がこのMg二相合金において特有の法則であるのか、または一般化された法則であるのかは不明のままである。そこで、クリープ特性の重畳は、二相合金に対する一般化された法則であることを明らかにする必要がある。なお、この重畳は、近年注目されているミルフィーユ構造やバイモーダル組織を有する材料、高エントロピー材などのクリープ特性の理解にも重要である。

2. 研究の目的

本研究では、組織因子の組み合わせを単純化し、完全連続繊維状態の強化相を有する延性二相合金において、クリープ特性に対する構成相の役割と組織因子による影響を明らかにする。具体的には、純Al(母相)とAl合金(強化相)から構成される連続繊維状態の二相合金において、母相と強化相の体積率を系統的に変えた試料に対して、高温の引張試験を実施する。これによって、これまで報告されているclassical linear law of mixturesなどに従うことを明らかにする。また、同試料に対するクリープ試験を実施し、各相のクリープ特性が延性二相合金の特性に対してどのように寄与するのかを調査する。

3. 研究の方法

供試材は、高純度科学社製の99.99%Al(以下、Al)およびAl-2mol%Mg(以下、Al-2Mg)とする。はじめに、これらの結晶粒径は、圧延と焼鈍処理によって、100 μ m程度とし、それらは完全回復組織とした。第一に、母相をAl、強化相をAl-2Mgとする延性二相合金は、Accumulative roll bonding (ARB)法を用いて作製された(10, 11)。このとき、ARBは、2枚の母相材で強化相を挟み込んで仮止めした後、大気中、280 $^{\circ}$ C、5分の熱処理を行った直後に実施された。ARB後には水冷された。強化相であるAl-2Mgの体積率は、約17%、23%、33%とし、この体積率はARBする前の各単相材の厚さで調整した。なお、この体積率は、ARB加工後に、積層された断面における母相と強化相の幅(長さ)から計算された。結晶粒径は、Scanning electron microscope (SEM, JEOL JSM-6500F)に付属されたelectron backscatter diffraction (EBSD, TSL Instrument, Japan)法によって測定された。図1(a)は、AlとAl-2MgをARBによって接合し、熱処理を施した後のSEM/EBSDによる観察結果である。強化相は、上下の試片の端まで、連続繊維状態となっている。このように、作製された延性二相合金は、強化相であるAl-2Mg相は母相であるAlによって挟まれた連続繊維状態の組織形態を有している。また、この写真から、Al-2Mgである強化相の体積率は23%程度であることがわかる。図1(b)は、electron backscatter diffraction (EBSD, TSL Instrument, Japan)法によるInvers Pole Figure (IPF)マップである。図1(a)の左端から右端まで連続したIPFマップであり、結晶粒径の大小はあるものの、母相(Al)と強化相(Al-2Mg)の平均結晶粒径は、どちらもおよそ100 μ m程度であった。また、結晶は十分に回復された等軸晶に近い組織となっている。図1(c)は、強化相と母相の界面を拡大したSEM像である。界面には、分散粒子が存在している。これは、ARB前に各相(各試片)の表面に存在していたAl₂O₃と思われる表面層が、ARB加工時に分散され粒子化されたものだと考えられる。但し、母相と強化相の界面全体に分散粒子が存在しているわけではなく、その被覆率は5割程度である。なお、この界面の接合状態および分散された粒子状の組織は、各二相合金のマクロな力学特性、特に最大応力には影響を与えないことを確認した。

上述の延性二相合金および各単相材から、ドックボーン形状の一軸試験片は、放電加工機によって切り出された。平行部の長さは8mm、幅は1.5mm、厚さは強化相の体積率で異なり1.5-2mm程度である。このようにして作製された延性二相合金とそれぞれの単相材に対して、引張試験とクリープ試験が実施された。引張試験は、島津製作所製のAG10Nを用いて、546K、引張歪み速度 1×10^{-5} 、 1×10^{-4} 、 $1 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ で実施された。引張クリープ試験は、大気中、546Kで実施された。

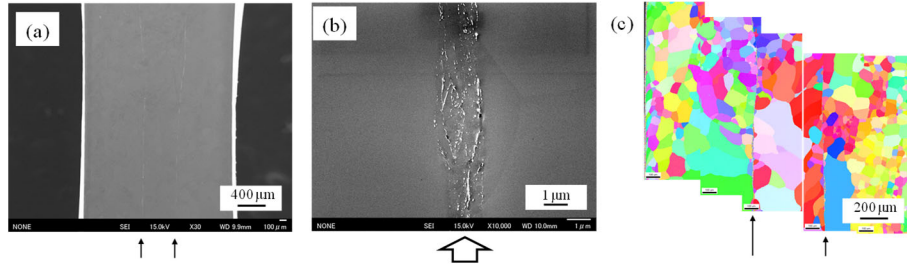


図1 二相合金のSEM像およびIPFマップ

4. 研究成果

(1) 応力-歪み線図

図2は、AlとAl-2Mgの単相合金と強化相の体積率 V_r が異なる延性二相合金(Al+Al-2Mg)に対する引張試験で得た応力-歪み線図である。試験温度は546 K、引張歪み速度は $1 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ である。図において、Al-2Mg単相材の最大応力が最も高く、Al材のそれが最も低い。一方、伸びは応力と反対の傾向を示し、純Alが一番延性を有する。延性二相合金の結果において、強化相の体積率が高くなるにしたがい、最大応力は高くなる。なお、伸びについては明瞭な傾向を言及することは難しい。但し、強化相であるAl-2Mg単相材と比べると、延性は明らかに向上している。

(2) クリープ曲線

図3は、546 Kで異なる応力によって得られたAl+Al-2Mg合金(強化相の体積率は23%)のクリープ曲線を示す。これら延性二相合金のクリープ曲線は、通常の単相材のそれと比べて、特別な挙動や傾向は見られない。負荷応力が高い20 MPaでは、破断が直ちに生じる。一方、5 MPaとなると、破断は長時間経過しても生じない。図の5 MPaは破断前に途中止めされている。

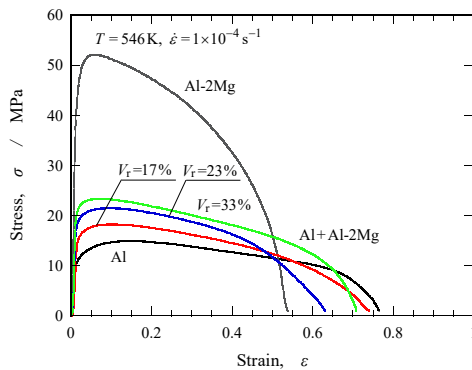


図2 応力-歪み線図

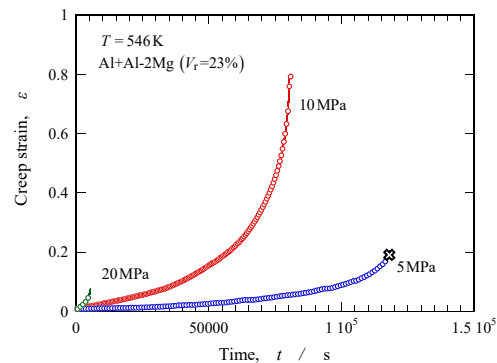


図3 クリープ曲線

(3) 最大応力と強化相の体積率との関係

図4は、図2のような応力-歪み線図から、強化相の体積率に対する最大応力をプロットした図である。各変形速度において、強化相の体積率の割合と最大応力の関係は、母相と強化相のデータを結んだ直線上にある。なお、本研究で実施した他の試料及び力学条件下においても、図4と同様な結果を得ている。Choらによると、延性二相合金の降伏応力は、強化相が連続繊維状態で母相が不連続繊維状態の場合では体積率と降伏応力の関係は上に凸に、その逆の強化相が不連続繊維状態であるときは凹となる(12)。一方、両者が連続繊維状態であれば直線関係となることを示している。Ankemらは、延性二相合金に関する実験と有限要素解析によって、各相に生じる歪みが等しくないと、classical linear law of mixturesには従わないことを示しており、これは高温条件でも適用できるとした(13)。本実験で得た図4から明らかなように、体積率と最大応力の間には直線関係が見られている。また、図1に示すような母相と強化相が連続繊維状態である。これは、引張試験において、母相と強化相で生じている歪みは同じであり、また、延性二相合金の最大応力(降伏応力) σ_y と体積率 V の関係は、次式で示すclassical linear law of mixturesに従うことを示している(14)。

$$\sigma_y = \sigma_m V_m + \sigma_r V_r \quad \text{①}$$

ここで、添え字のmとrは、それぞれ母相と強化相を意味する。VenkateshとDunandによると、この式が成立する条件は、母相と強化相が完全に接合されており、歪みの整合性が成立すること、軸方向に対して強化相は完全に平行であることなどが挙げられている(15)。これを参照すると、図4の実験事実は、本研究の力学条件下で実施された引張試験では、両相は等しい歪み速度で変形しており、最大応力を示す変形歪み領域では両相の界面に大きな剥離がないことを示唆している。また、時間依存の塑性変形(クリープ)が生じるような条件下で、式①が適用できること

は計算機実験によって示されている。しかしながら、これらの結果は、学条件下でも、延性二相合金の応力は式①に示される classical linear law of mixtures で説明できることを、実験によって示された。

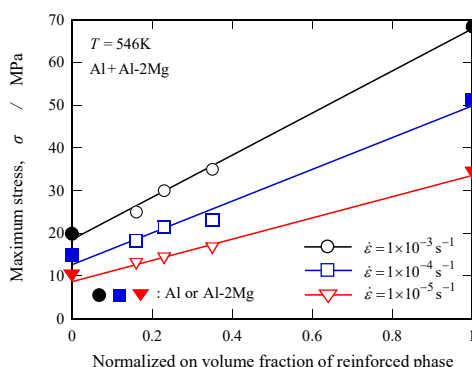


図4 最大応力と強化相の体積率との関係

(4) クリープの応力指数

図5は、図3で示したようなクリープ曲線から最小クリープ速度（定常クリープ速度）を求め、それぞれの負荷応力に対してプロットした両対数グラフである。なお、最小クリープ速度は、単相材および延性二相合金問わず、クリープ試験開始後の比較的早い段階で現れる。図において、これら実験データの傾きは、べき乗則クリープの関係から、クリープ特性である応力指数 n に相当する。まずは単相合金の結果について説明する。純Alの結果（◇印）において、実験データは応力条件によらず、ほぼ一本の直線で近似できる。この応力指数は $n = 5.3$ である。この値は、これまでに報告されている結果 ($n = 5$) に近い(3-6)。なお、20 MPaの結果は、近似直線より上方にある。これは、べき乗則破綻する力学条件であると考えられる。次に、Al-Mgの結果（□印）について説明する。実験データは、20MPa付近を境に、傾きが異なる二つの直線で近似できる。このとき、高応力側の応力指数は $n = 5.4$ であり、低応力領域では $n = 2.5$ となる。このように応力領域によって応力指数が変化するのは、すでに報告されている。この詳細の説明は省くが、この応力指数の変化は、クリープの変形律速機構が変わることに対応している(3-6)。 $n = 3$ の範囲では転位は溶質雰囲気を伴いながら運動しており、その転位運動がクリープ速度を決めている。他方、 $n = 5$ では負荷応力が高くなり転位は溶質雰囲気を離脱して、自由飛行的な運動をしており、その転位運動がクリープ速度を決めていると説明される。

次に、二相合金の結果（○印）について説明する。図5における二相合金の実験データは、母相と強化相の単相材の結果の間にある。図から明らかなように、応力が小さい領域の実験データの傾きは、強化相のそれに近くなる。他方、高応力側の傾きは、母相および強化相の近似直線の傾きがほぼ同じであるため、それらと同じになる。図5の太い黒線は、母相と強化相の単相材の実験データと式①を用いてクリープ速度と応力の関係を計算した結果である。複合則によって得られた太い黒線は、二相合金の実験データを良く近似できている。これは、延性二相合金中の母相と強化相では、それぞれの単相材で生じている変形律速機構に従ってクリープ変形しており、実験データは両相の変形挙動が重畳された結果として出力されることを示している。このことは、延性二相合金のクリープデータについて、単相合金のクリープ理論を用いての解釈は正しくないことを意味している。

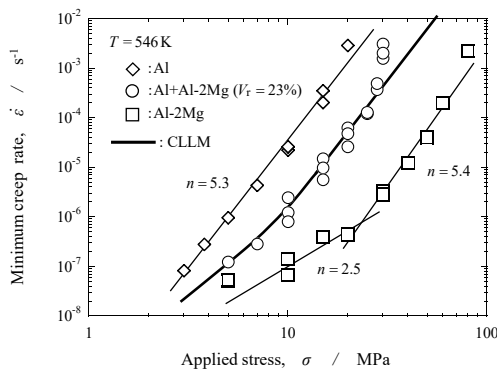


図5 応力指数

図6は、Al+Al-2Mgにおける623 K、3 MPaのクリープ試験において、最小クリープ速度となる時間帯で試験を途中止めた試片に対するSEM/EBSD観察結果である。試験機から取り出した試験片は、直ちに水冷処理されている。観察部は平行部であり、図の両側が母相(Al)であり、中央部が強化相(Al-2Mg)である。図6(a)において、両相において、いくつかの結晶粒では粒内に僅かな方位差が見られる。但し、その歪み量はクリープ試験前(図1(b))とあまり変わらない。これは、最小クリープ速度を示すクリープ試験では、粒内に明瞭な歪みが蓄積がなされないことを示唆している。図6(b)(c)は、母相と強化相の界面の観察結果を示す。図の左側が強化相(Al-2Mg)である。図に示されるように、異相界面においても、歪みが顕著に蓄積されている様子は見られない。また、異相界面でのSEM観察によると、剥離は見られない。このことは、両相のクリープ変形は、歪みの連続性を維持しながら進行しており、この事実は、延性二相合金の結果を式①を用いて解釈できるということをサポートしている。なお、異相界面には、図1(b)で示したように、ARB時に混入した酸化皮膜と思われる介在物が存在する。最小クリープ速度時点では、介在物周りにおいても、顕著な歪みの集中は生じていない。上記の結果は、本実験で取り扱った延性二相合金は、連続繊維状の強化相を有し、異相界面の結合状態は剛であることを示している。このことは、本実験のクリープデータの解析に、すでに報告されている理論的検討や有要素解析の結果を適用できることを示している。

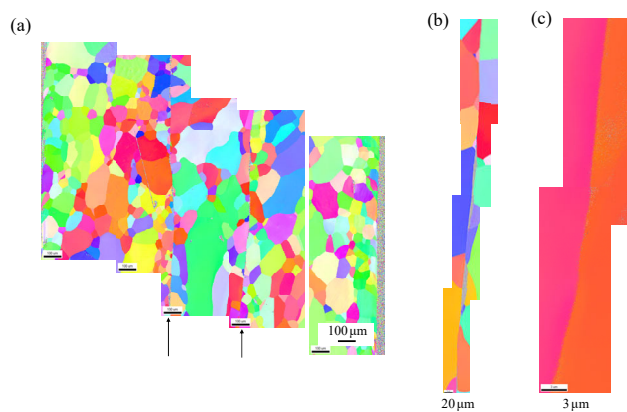


図6 二相合金におけるIPFマップ

Reference

- (1) A. S. Argon, *Strengthening mechanisms in crystal plasticity*, Oxford, 2008.
- (2) D. Caillard, J. L. Martin, *Thermally Activated Mechanisms in Crystal Plasticity*, Pergamon, 2003.
- (3) J. Cadec, *Creep in metallic materials*, Elsevier, 1988.
- (4) T. Suzuki, S. Takeuchi and H. Yoshinaga, *Dislocation dynamics and plasticity*, Springer-Verlag, 1989.
- (5) V. Levitin, *High temperature strain of metals and alloys*, Wiley-Vch, 2006.
- (6) M. E. Kassner, *Fundamentals of creep in metals and alloys*, Elsevier, 2009.
- (7) T. W. Clyne and P. J. Withers, *An introduction to metal matrix composites*, Cambridge University Press, 1993.
- (8) S. Ankem, H. Margolin, C. A. Greene, B. W. Neuberger and P. G. Oberon, Mechanical properties of alloys consisting of two ductile phases, *Prog. Mater. Sci.*, 51 (2006) 632-709.
- (9) M. Fujiwara, H. Takagi and K. Higashida, High-temperature creep mechanism of dual -ductile-phase magnesium alloy with long-period stacking ordered phase, *Mater. Trans.*, 60 (2019) 503-512.
- (10) N. Tsuji, Y. Saito, H. Utsunomiya and S. Tanigawa, Ultra-fine grained bulk steel produced by accumulative roll-bonding (ARB) process, *Scripta Mater.*, 40 (1999) 795-800.
- (11) N. Tsuji, Y. Ito, Y. Saito, Y. Minamino, Strength and ductility of ultrafine grained aluminum and iron A. Kelly and K. N. Street, *Creep of fiber composites I. Experimental behavior of lead-phosphor bronze*, 328 (1972) 267-282.
- (12) K. Cho and J. Gurland, The law of mixtures applied to the plastic deformation of two-phase alloys of coarse microstructures, *Metal. Trans A*, 19 (1988) 2027-2040.
- (13) S. Ankem, J. G. Shyue, M. N. Vijayshankar and R. J. Arsenault, The effect of volume percent of phase on the high temperature tensile deformation of two-phase Ti-Mn alloys, *Mater. Sci. Eng.*, A111 (1989) 51-61.
- (14) M. McLean, Creep deformation of metal-matrix composites, *Comp. Sci. Tech.* 23 (1985) 37-52.
- (15) T. A. Venkatesh and D. C. Dunand, A model for the longitudinal primary creep of a long-fiber composite, *Acta Mater.* 47 (1999) 4275-4282.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1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 Hidenari Takagi	4. 巻 62
2. 論文標題 Dislocation Motion in AlMg Alloys in the Creep Region Characterized by Activation Volume	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Materials Transactions	6. 最初と最後の頁 1328-1335
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2320/matertrans.MT-M2020359	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4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 高木秀有
2. 発表標題 インデンテーション法による力学特性評価
3. 学会等名 日本鉄鋼協会 材料の組織と特性部会「高温材料の高強度化」研究会シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高木秀有, 鈴木真由美
2. 発表標題 Mg-Zn-Gd合金における硬さの温度依存性
3. 学会等名 軽金属学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高木秀有
2. 発表標題 インデンテーション法による軽金属材料の高温力学特性評価
3. 学会等名 軽金属学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高木秀有, 鈴木真由美
2. 発表標題 LPSO Mg合金における硬さの温度依存性
3. 学会等名 日本金属学会
4. 発表年 2021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
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------