

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 7 月 19 日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26630001

研究課題名(和文) 低荷重振動圧縮負荷による非可逆転位の累積を利用した金属表面層のナノ微細化制御技術

研究課題名(英文) Nanostructural refinement of metal surface layer by using the accumulation of irreversible dislocation resulting from cyclic low-compressive loading

研究代表者

中村 孝 (Nakamura, Takashi)

北海道大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：30237408

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：金属に低圧縮負荷を振動的に与え、転位の非可逆成分を累積させることにより、表面をnmオーダーに微細化する技術を開発する。大気、N₂、Ar、真空中で実験を行い、結晶粒微細化に及ぼす雰囲気、負荷荷重、繰返し数の影響を調べた。炭素鋼およびアルミ合金を用いた実験の結果、両者ともに粒径1マイクロメートル以下の微細層が形成された。微細化層の粒径や深さは、負荷の大きさや振動回数によって制御できることがわかった。微細化の程度は大気やN₂中では顕著であるが、Ar中では小さかった。真空中では微細化がほとんど生じなかった。以上から、本手法によるナノ微細化には雰囲気と転位の相互作用が不可欠であることが明らかとなった。

研究成果の概要(英文)：This study developed a nanostructural refinement method of metal surface on the order of nm by using the accumulation of irreversible dislocation generated and moved resulting from low-compressive cyclic load. The refinement experiments were performed in air, nitrogen, Ar and vacuum and the effects of atmosphere, the amount of load, and the number of cycles applied were investigated. As a result of using low carbon steel and aluminum alloy for a test material, nanostructural layer with grain size on the order of 1 micrometer or below was formed in both alloys. The grain size and the depth of refined layer was able to be controlled by the compressive load and the number of cycles. The amount of refinement was superior in air and nitrogen; however it was not so much in argon. In vacuum, nanostructural layer could not be observed. The above findings revealed that this nanostructural refinement method requires the synergistic effect between atmosphere and dislocation.

研究分野：材料強度学

キーワード：ナノ微細化 振動 雰囲気 非可逆転位

1. 研究開始当初の背景

近年、ECAP 法や高速ショットピーニング法に代表される 強加工を用いた金属組織の微細化技術が注目されている。これらの加工法では、材料に真ひずみ 4 以上の大規模な塑性ひずみが付与される⁽¹⁾。一方、バルクの塑性ひずみを伴わない、繰返し数が 10^7 回を超える超高サイクル疲労における内部破壊では、破壊起点周囲に微細な凹凸状の領域が形成されることが報告されている。申請者は、この領域が破面同士の長期間にわたる繰返し接触により形成されることを明らかにした⁽²⁾。また、この微細な凹凸状領域の縦断面を観察した研究によれば、破面直下の組織がナノメートルオーダーで微細化することが報告されている⁽³⁾。このことは、金属表面に繰返し圧縮負荷を付与することで、表層組織をナノ微細化層に改質できる可能性を示唆する。本研究ではこの現象の詳細を明らかにし、新たな表面改質技術の開発を試みる。

2. 研究の目的

本研究では、金属表面に比較的小さな圧縮負荷を多数回繰返し付与することにより、表層組織をナノメートルオーダーで微細化する新たな技術の開発を目的とする。まず、炭素鋼 S25C の焼なまし材を対象として低荷重の圧縮負荷を繰返し与え、表層組織の微細化が可能かどうかを検討した。さらに、負荷繰返し数および試験環境を変化させた試験を行い、それらが微細組織の形成に及ぼす影響を明らかにした。次にアルミニウムダイカスト合金 ADC12 に対して低荷重の繰返し圧縮負荷を与え、S25C と同様な微細化が可能かどうかを検討した。

3. 研究の方法

(1) 試験概要

試験の概要を図 1 に示す。試験には、本研究室で開発した電気油圧サーボ式疲労試験機および超高真空疲労試験機を用いた。繰返し負荷は、疲労試験機のピストンに連結させたインデントアを軸方向に振動させることにより与えた。

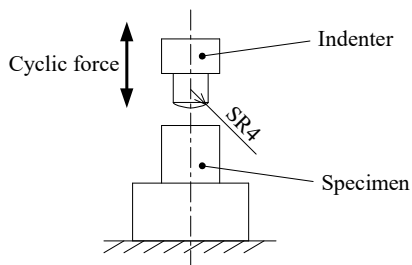


Fig.1 A schematic figure of applying cyclic compressive load on the specimen surface.

(2) 供試材

供試材には、機械構造用炭素鋼 S25C およびアルミニウムダイカスト合金 ADC12 を用いた。S25C の化学成分は、C:0.24, Si:0.19,

Mn:0.42, P:0.010, S:0.019, Cu:0.01, Ni:0.02, Cr:0.04 (mass%) であり、熱処理として、焼なまし(1123K, 3.6ks 保持後炉冷)を施した。ADC12 の化学成分は Cu:2.22, Si:10.7, Mg:0.22, Zn:0.70, Fe:0.73, Mn:0.24, Ti:0.04, Ni:0.07 (mass%) である。ADC12 は鑄放し材であり、熱処理は施していない。両材から図 1 に示す試験片を切削によって加工した。インデントアとの接触面には、#120~#2000 のエメリー紙で研磨を行った後、バフ研磨を施した。

(3) 試験条件

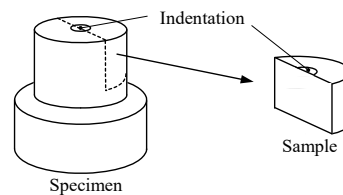
①S25C を用いた実験

初めに、負荷繰返し数が組織の微細化に及ぼす影響を調べるため、繰返し数を 1×10^6 回、 5×10^7 回の 2 条件として試験を行った。試験は荷重制御で行い、最大圧縮荷重 392N(40kgf)、最小圧縮荷重 0N とした。また繰返し周波数は 200Hz、波形は正弦波とした。試験環境は室温大気中とした。

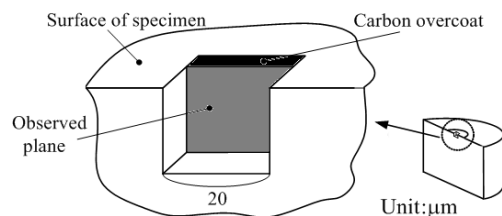
次に、試験環境の影響を調べるため、真空および窒素環境で試験を行い、室温大気環境の結果と比較した。真空環境試験は、チャンバ内圧力を $8.5 \times 10^{-7} \sim 2.3 \times 10^{-6}$ Pa の高真空状態として行った。一方、窒素環境試験は、チャンバを 5.3×10^{-5} Pa まで排気した後、窒素ガス(純度 99.99%以上)を大気圧まで導入してから実施した。どちらの環境においても、荷重条件は最大圧縮荷重 392N(40kgf)、最小圧縮荷重 0N、周波数 200Hz の正弦波とし、負荷繰返し数は 5×10^7 回のみとした。

②ADC12 を用いた実験

繰返し数を 5×10^7 回の 1 条件として室温大気中で試験を行った。最大圧縮荷重 392N(40kgf)、最小圧縮荷重 0N の正弦波を 200Hz で負荷した。



(a) A cut out sample for cross sectional observation.



(b) Observed area fabricated by FIB.

Fig. 2 The method to make a sample for high magnified observation by using SIM.

(4) 組織観察方法

繰返し接触試験を行った後、試験片から断面組織観察試料を作製した。図 2(a) に観察試料の切り出し方法を示す。また、図 2(b) に集束イオンビーム装置(FIB)による観察面の作

製方法を示す。まず、表面を保護するためにFIB加工領域表面にカーボン保護膜を形成させた。そしてガリウムイオンによるスパッタリングを行い、試験片表面を掘り下げて観察面を作製した。組織観察は走査型イオン顕微鏡(SIM)により行った。

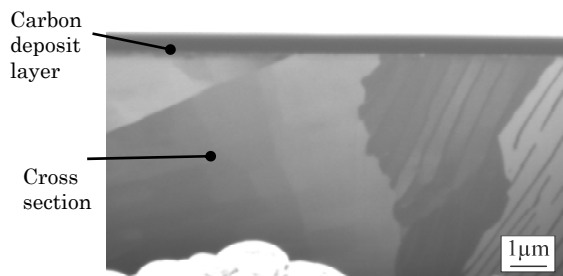
4. 研究成果

(1) S25Cにおける大気中の試験結果

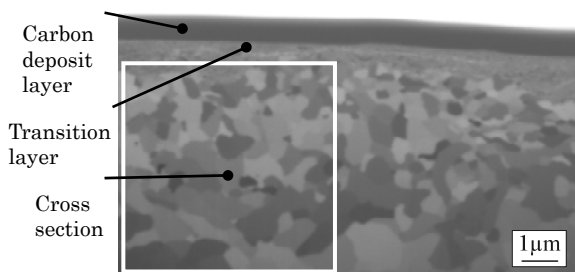
①負荷繰返し数 5×10^7 回の結果

室温大気中において最大圧縮荷重392N(40kgf)、負荷繰返し数 5×10^7 回の条件で試験を行った試料を S25C(Air, 5×10^7)と表記する。

この試料における縦断面組織を図3に示す。図3(a)は無負荷部すなわちインデント非接触部の組織である。同図には粒径 $10\mu\text{m}$ ~数十 μm 程度のフェライト粒およびパーライト粒が確認できる。この領域は負荷を付与していないため、試験前の状態に等しい。これに対し、図3(b)に示した圧痕中央部の縦断面組織は明らかに微細化している。組織の粒径は概ね $1\mu\text{m}$ 以下で、観察視野全体に渡って微細化が認められた。このことから、金属材料表面に低荷重の圧縮負荷を長期間繰返し付与することによって、金属表面に微細組織を形成できることが明らかになった。一方、カーボン保護膜直下の試料最表層部には、それより内部に見られる組織とは様相の異なる組織が存在している。このような組織は図3(a)の無負荷部には観察されなかった。そこで、この領域を遷移層と呼ぶこととする。遷移層については後述する。



(a) Unloaded region.



(b) Cyclically loaded region.

Fig. 3 Cross section of S25C (Air, 5×10^7) observed by SIM.

②負荷繰返し数 1×10^6 回の結果

負荷繰返し数の違いが微細組織の形成に与える影響を調査するため、繰返し数のみを 1×10^6 回に変化させて試験を行った。この試

料を S25C(Air, 1×10^6)と表記する。

図4に S25C(Air, 1×10^6)の圧痕中央部近傍における縦断面組織のSIM像を示す。結晶粒の微細化はパーライト相に比べフェライト相に多く観察された。このことは、フェライト相とパーライト相で微細化の程度に違いがある可能性を示している。図3(b)と比較すると、粒径は表層から約 $1\mu\text{m}$ までは概ね等しいものの、それより下の領域では数 μm のやや大きな結晶粒が散見された。このことから、負荷繰返し数は形成される微細組織の粒径に影響を及ぼすことがわかった。負荷繰返し数と粒径との関係の詳細については次項で述べる。また、遷移層は S25C(Air, 5×10^7)と同程度の厚さで存在していた。

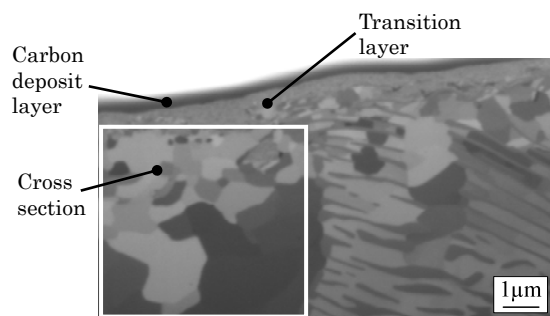


Fig. 4 Cross section of S25C (Air, 1×10^6) observed by SIM.

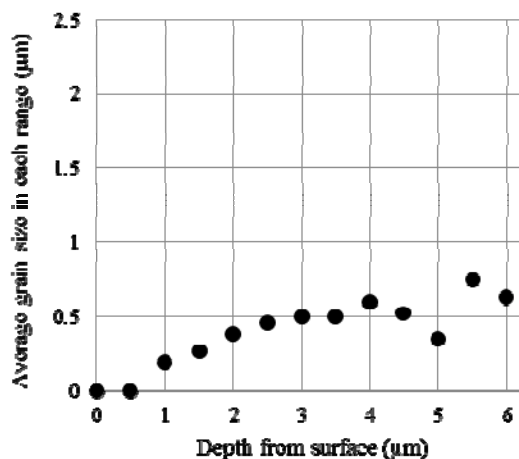
③粒径分布

負荷繰返し数 5×10^7 回と 1×10^6 回の試料に関して粒径と深さの関係を求めた。測定はフェライト相を対象とし、図3(b)および図4の白枠で囲んだ部分 ($6\mu\text{m} \times 6\mu\text{m}$) で行った。

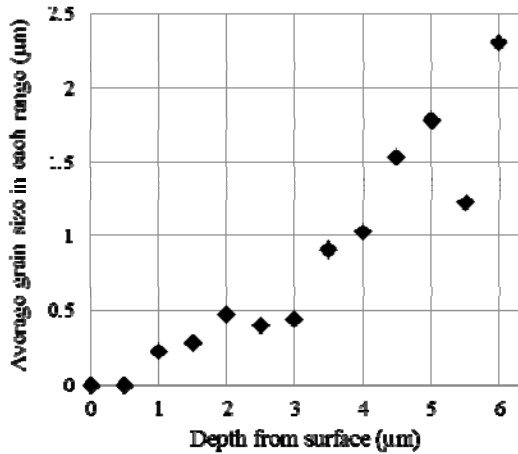
図5に測定結果を示す。横軸は表面からの深さ、縦軸はその深さにおける組織の平均粒径である。負荷繰返し数が多いほど、組織の微細化はより深い領域に及び、また、粒径が小さくなる傾向が認められる。このことは、負荷繰返し数を適切に変化させることで微細化層の厚さが制御できることを示す。

(2) S25Cにおける真空・窒素中の試験結果

繰返し圧縮負荷過程における周囲環境の



(a) S25C (Air, 5×10^7).

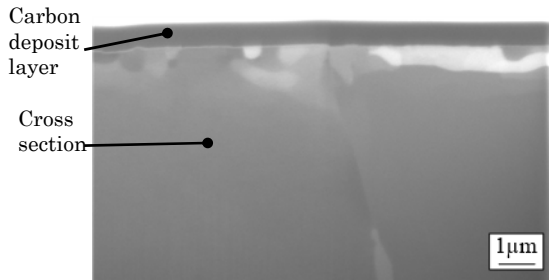


(b) S25C (Air, 1×10^6).

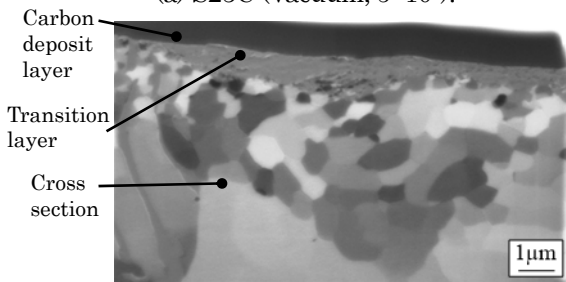
Fig. 5 Relation between grain size and depth.

違いが微細組織の形成に与える影響を調べるため、高真空および窒素環境にて試験を行った。どちらも負荷繰返し数は 5×10^7 回とした。これらの試料をそれぞれ S25C (Vacuum, 5×10^7), S25C (N_2 , 5×10^7) と表記する。

図 6 に縦断面組織の観察結果を示す。図 6 (a), (b) はそれぞれ S25C (Vacuum, 5×10^7), S25C (N_2 , 5×10^7) の SIM 像である。



(a) S25C (Vacuum, 5×10^7).



(b) S25C (N_2 , 5×10^7).

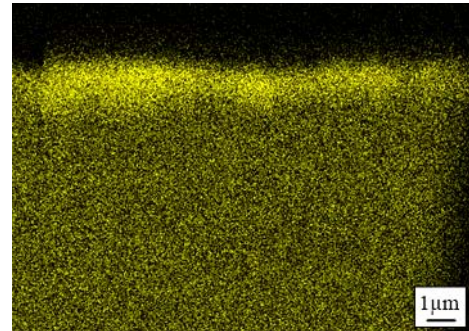
Fig. 6 Effect of vacuum and nitrogen on the microstructure of S25C cyclically loaded to 5×10^7 . Observations were made by using SIM.

まず、S25C (vacuum, 5×10^7) の結果に注目する。図 6 (a) より、表面から $0.5 \mu m$ 程度までは微細な組織が見られるが、それより内部の組織は全く微細化していない。微細化した組織の粒径も S25C (Air, 5×10^7) に比べると明らかに大きい。また、大気の結果に見られた遷移層は確認されなかった。次に、図 6 (b) の S25C (N_2 , 5×10^7) の結果に着目すると、高真空の結果に比べ組織は微細化していることが確認された。しかし、S25C (Air, 5×10^7) と比較すると微細化の程度は低く、やや粗い

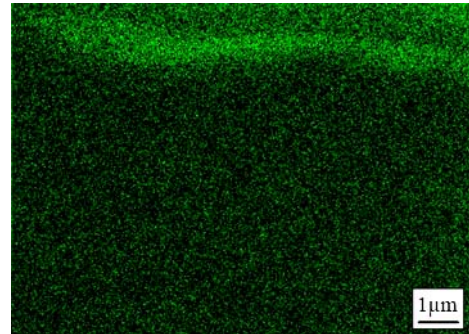
組織が観察される。一方、最表層には、大気の場合と同様に遷移層が存在した。以上より、表層組織の微細化の程度は雰囲気ガスの有無や種類によって変化することが明らかとなった。

(3) S25C における遷移層の分析結果

S25C (Air, 5×10^7), S25C (Air, 1×10^6), S25C (N_2 , 5×10^7) の縦断面組織には最表層部に遷移層が見られた。この領域の詳細を調べるため、エネルギー分散型 X 線分光分析法 (EDS) を用いて元素分析を行った。結果を図 7 に示す。図 7 (a), (b) はそれぞれ S25C (Air, 5×10^7) の O 元素カウントマップ、S25C (N_2 , 5×10^7) の N 元素カウントマップである。これらより、試験片の最表層領域には大気環境では O 元素が、窒素環境では N 元素が集中して存在することが明らかとなった。これらの領域はそれぞれの縦断面組織に見られた遷移層の領域と一致している。したがって、遷移層は、繰返し負荷過程で雰囲気ガスを構成する元素が試料表面に取り込まれた領域であると考えられる。この結果は、本手法によって、雰囲気ガス元素を常温で試料表層に拡散できる可能性を示している。



(a) Oxygen count map, S25C (Air, 5×10^7).



(b) Nitrogen count map, S25C (N_2 , 5×10^7).

Fig. 7 EDS analyses of the cross section.

(4) ADC12 における大気中の試験結果

室温大気中において最大圧縮荷重 392N (40kgf), 負荷繰返し数 5×10^7 回の条件で試験を行った試料を ADC12 (Air, 5×10^7) と表記する。

図 8 にこの試料の縦断面組織を示す。同図には表層から数 μm 程度の深さまで黒く見える層が確認される。EDS による元素分析の結果、この領域には O 元素が集中して検出されており、S25C で確認された遷移層と類似の組

織であると考えられる。このことはADC12においても、本手法によって、雰囲気ガス元素を常温で試料表層に拡散できることを示している。さらに、この遷移層より下の部分には、図8の四角枠内に示されるように、内部組織と比較して微細化した領域が観察される。この組織は粒径500nm程度であり、遷移層直下約1 μ mの深さまで形成されている。以上の結果から、低荷重の圧縮負荷を長期間繰返し付与することにより、ADC12においてもS25Cと同様に、遷移層や微細組織が形成されることが明らかになった。

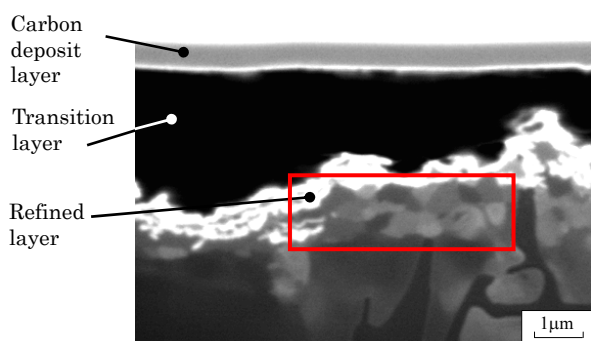


Fig. 8 Cross section of ADC12 (Air, 5×10^7) observed by SIM.

(5) まとめ

金属表面に比較的小さな圧縮負荷を多数繰返し付与することにより、表層組織をナノメートルオーダーで微細化する新たな技術の開発を行った。本技術を低炭素鋼 S25C およびダイカストアルミニウム合金 ADC12 に適用した結果、以下の知見が得られた。

- ① 本手法により、金属表層組織をメートルオーダーで微細化できることが明らかとなった。
- ② S25C を対象とする実験の結果、負荷繰返し数を変化させることで微細層の厚さを制御できる可能性が示された。
- ③ S25C を対象とする実験の結果、大気および窒素環境では組織は微細化した。高真空環境ではほとんど微細化しなかった。このことから、金属表層組織の微細化には雰囲気ガスを必要とすることが示された。
- ④ S25C を対象とする実験の結果、大気環境では O 元素、窒素環境では N 元素が試料の最表層部に集中して存在していた。また、ADC12 を対象とする実験でも、大気環境では O 元素が試料表層部に集中して検出された。このことは、雰囲気ガスを選択することで任意の元素を常温で試料表層に拡散できる可能性を示している。

参考文献

- (1) 梅本実, 戸高義一, LI JINGUO, “鉄鋼材料の表層超強 加工による組織と特性変化”, review 記事: 鉄と鋼, 94-12, (2008), pp. 616-628.
- (2) 中村孝, 小熊博幸, “超高サイクル疲労に

おける内部起 点型初期き裂進展破面の特徴と形成要因”, 材料, 60-12, (2011), pp. 1066-1071.

- (3) 小熊規泰, 原田久, 酒井達雄, “軸受鋼の長寿命回転曲げ疲労における内部起 点型疲労破壊メカニズム”, 材料, 52-11, (2003), pp. 1292-1297.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 2 件)

- (1) 今祐輔, 中村孝, 藤村奈央, 中谷建太郎, Cyclic Press 法による S25C 表層組織の改質における周囲雰囲気の影響, 日本機械学会北海道学生会第 44 回学生員卒業研究発表講演会講演論文集 CD-ROM, No. 152-1, S3-1-02, 査読無し.
- (2) 宮崎数則, 中村孝, 藤村奈央, 中谷建太郎, Cyclic Press 法による金属組織のナノ微細化に及ぼす負荷荷重の影響, 日本機械学会北海道学生会第 44 回学生員卒業研究発表講演会講演論文集 CD-ROM, No. 152-1, S3-1-04, 査読無し.

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 1 件)

名称: 金属加工法

発明者: 中村孝, 中谷建太郎, 和島達希

権利者: 国立大学法人北海道大学 山口佳三, 株式会社ハイブリッジ 和島達希

種類: 特許出願

番号: 特願 2015-065978

出願年月日: 2015 年 3 月 27 日

国内外の別: 国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中村 孝 (NAKAMURA, Takashi)

北海道大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号: 30237408