

軽量・高強度の多層接合複合材料設計のための引張り変形下の
層内および界面層組織設計の実験的基礎検討
**Trial on Scanning Simultaneous SAXS and Fluorescence Measurements of
Age-Hardenable Alloy Sheets and Multilayers under Tensile Deformation.**

奥田 浩司^a, 浴畑 嶺^a, 松本 克史^b, 山口 真弘^b, 三宅 乾太^b
Hiroshi Okuda^a, Rei Sakohata^a, Katsushi Matsumoto^b, Masahiro Yamaguchi^b, Kanta Miyake^b

^a京都大学大学院工学研究科, ^b(株)神戸製鋼所
^aKyoto University, ^bKobe Steel, Ltd.

組成傾斜を伴う多層アルミニウム合金積層板の特性を評価するための有効な手法として前課題までの測定で進めてきた、蛍光-小角同時測定法を利用し、その複層材料としての組織-強度特性の評価をおこなうための第一歩として時効硬化性モデル単層/複層試料に対して単純引張り条件下での組織評価を試みた。BL40XU の小角散乱計測セットアップで試料位置に一軸の引張り装置を設置し、室温での引張り試験中の小角散乱強度、蛍光強度ならびに荷重を同時計測し、実用合金多層試料に適用するための基礎データの取得・検討をおこなった。

キーワード： アルミニウム積層構造材、マイクロビーム走査小角散乱法、変形下その場測定

背景と研究目的：

本申請では2017A期までの実験により、組成分布と小角散乱強度分布、透過率分布を同時に測定することにより、2-3元系の組成傾斜材料における組織分布を定量的に解析する方法を開発し[1-4]、さらに実用元素添加による多元多層材料の熱処理効果の検討へ拡張した[5]。本手法は多元多層積層材料内部に組成傾斜をもつ複雑な多層析出強化材料の組織分布を定量化する有力な手法であることが示されてきている。本申請ではこの手法を熱処理試料の変形特性の理解に結びつけるため、変形中の試料に対して上記の評価手法のための検討をおこなうことを目的とした。結晶性材料における変形中の小角散乱強度は析出物などによる散乱強度に重畳して欠陥や多重散乱に起因する寄生散乱が観察される場合があり、実用上、あるいは材料設計上興味がある高強度材料の詳細な測定を開始する前にこれらの効果や散乱強度のレベル、変形に対する計測の安定性などの基礎データを取得する必要がある。したがって本課題では単層材(通常板材)の7000系合金熱処理試料と、走査小角散乱測定手法の検討の多元合金への拡張時に使用したAl-Mg/Al-Zn/Al-Mgモデル材料を対象としてIn-situ引張り/SWAXS測定用試料を作成した。本課題では引張り試験中の試料の変形状態をモニターしながらSWAXS測定を行い、変形試料に対する測定の技術的な課題の洗い出しと検討を進めることを目的とした。

これにより実用合金に近い合金系や組成の多層材料の組織分布と変形破壊特性の関係を評価する手法の開拓のための基盤を作ることを目指した。

実験：

必要な位置分解能を得るためにビーム径が小さいというだけでなく、試料中の析出量が非常に

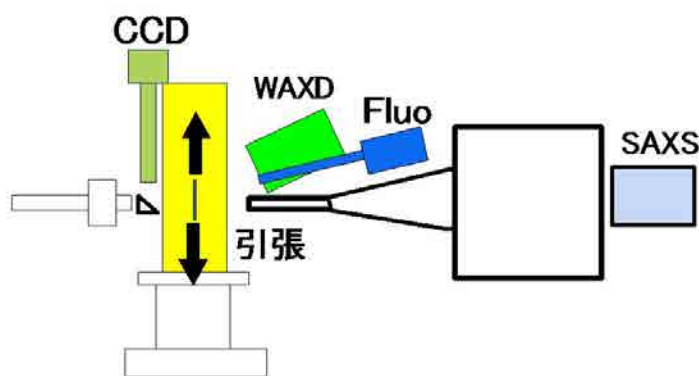


図1. 本課題で試用したその場引張り小角高角蛍光同時測定システムの概要図

小さい部分から連続的に位置の関数として析出量、サイズともに変化する様子を定量的に評価するという本課題遂行に必要な小角散乱測定 of 分解能、ダイナミックレンジなどの性能を考慮し、Pilatus 100K 検出器を用いた SPring-8 の BL40XU での測定をおこなった。試料として変形中の SWAXS 強度計測の評価をおこなうための 7000 系圧延板材(単層材)試料および 7000 系高強度合金を形成するモデル積層材として AlMg および AlZn 材の多層構造を作成し、高温熱処理による相互拡散層の形成後時効熱処理により析出組織を形成した。また、位置の厳密な制御には専用の荷重負荷装置を設計製作する必要があるが、今回は引張り変形によるマクロな変形挙動と散乱信号が今回設計した X 線散乱回折/引張り同時測定用試料の中でどのように変化するかを検討してから専用機を作成する必要があるため、比較的簡易なその場引張り試験機を一部改造して使用した。全体の測定システム概要を図 1 に示す。また、今回試用した引張り装置を図 2 に示す。測定は BL40XU において積層材断面が X 線入射方向に垂直になるように試料形状を制御し、5 μm ピンホールによるマイクロビーム小角散乱・蛍光同時一次元スキャン測定をおこなった。図 1 に示す測定配置は基本的に前課題を踏襲したものであり、引張り変形中も試料形状を X 線上流側から撮影するためのミラーを配置しているところが異なる。測定は BL40XU において前課題までで進めてきたピンホール系によるマイクロビーム小角散乱測定と蛍光 X 線測定、透過率測定を試料を移動しながら同時におこなう走査マイクロビーム小角蛍光同時測定をおこなった。X 線エネルギーは 15 keV、カメラ距離は 81 cm である。ピンホールは 5 μm ならびに 20 μm のものを用いた。



図 2. 本課題で使用したその場引張り荷重負荷装置の概観

結果および考察：

図 3 は AlMg/AlZn/AlMg3 層モデル積層材料の熱処理材に対してその場引張り荷重負荷/SWAXS 同時測定をおこなった場合の、荷重/公称歪曲線の例である。図での横軸はクロスヘッド速度定速設定の際の変形の経過時間で示されている。図からこの多層材料の変形では降伏後、平均的な情報としては加工硬化しながらの均一変形が続き、ある時点で変形の局所化(不安定化)が進行した後破断にいたるように見えることがわかる。この変化は見かけ上は 7000 系単層材と似ているものの、その破壊様式を In-situ の CCD モニター画面で確認するとその様相が大きく異なっていることがわかる。図 4 の上段は 7000 系単層板試料の引張り変形中のマクロな形状変化、下段は 3 層モデル材(4 時間相互拡散処理材)の変形過程の形状変化を図 1 の前置 CCD でその場観察した状況を示している。図より単層材では塑性変形の進行とともに結晶粒界が視認できるようになり、変形の結晶粒方位による異方性出現と粒界領域への歪の集中や粒回転が進行していることを示唆する表面形状変化が認められ、最終的な破断ではネッキングの進行による端部での亀裂導入と進展による破断にいたることがわかる。一方でモデル 3 層材料においては相互拡散処理によって中央層全体に Mg が拡散侵入するまでには至っていない条件のため、熱処理に

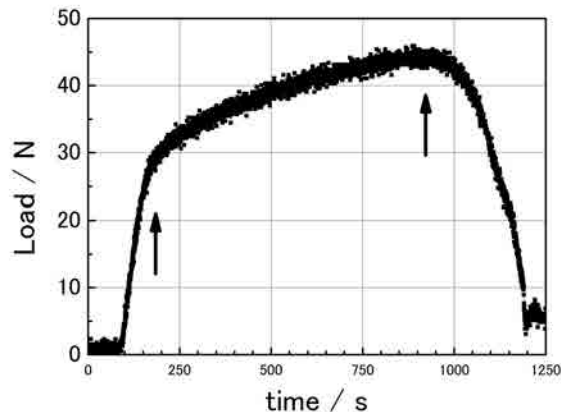


図 3. 積層材(3 層 : AlMg/AlZn/AlMg モデル多層材の相互拡散処理(743K/54ks)+時効処理後のその場引張り試験/SWAXS 測定中の荷重-公称歪曲線。

よる硬化は層界面近傍がもっとも顕著となる条件になっている。それを反映して、破壊は層境界

近傍のもっとも硬
度の高いと予想さ
れる領域でまずク
ラック形成が起こ
り、それが相対的に
強度の高い内部層
を伝播して3層の
うち中央の層の破
壊に至り、最終的な
破断となること、中
央層の破壊進行時
には7000系単層板
の試料の場合のよ
うな目視ではっきり
とわかるネッキング
は起こっていない
ことが確認され

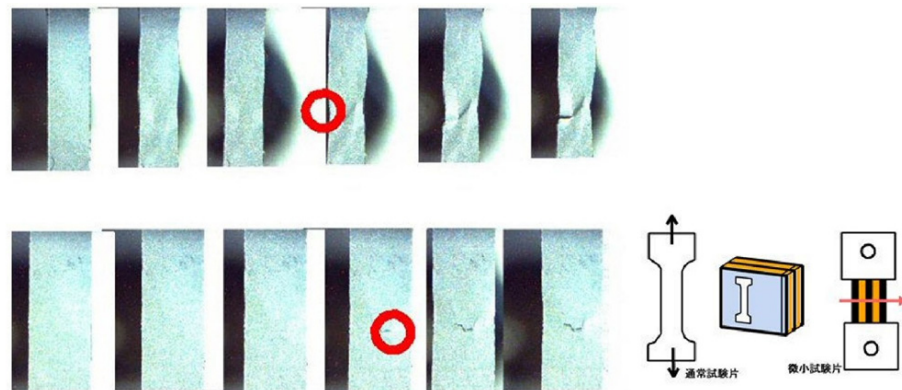


図4. 単層(上段)ならびに三層試料(下段)のその場引張り過程における試料外形変化。3層材では硬度の高い内部で亀裂が発生する様子が CCD によるその場観察画像から確認できる。

れた。図中の赤丸で囲われている部分がクラックが発生した位置に相当する。今回の装置では測定時間と引張り装置本体のストローク、計測中の引張り装置位置の移動の制御性などの問題があり、引張り試験中にクラックが発生した場所近傍に計測位置を移動させての組織分布状況をリアルタイムで確認することはできず、また2次元走査では一度のスキャンが In-situ 変形の変形速度に対して長すぎるという問題があるため、この点については破壊開始条件の組織的な特徴を抽出する上で今後のシステム改良の課題となっている。図5は7000系単層試料の引張り変形中の小角

散乱強度変化の例を示している。析出強化型 Al 合金においては時効温度程度の高温領域でのその場引張り変形測定をおこなった場合には析出物の形状サイズ回復が動的に起こりながら変形が進行することが報告されているが[6]、室温変形であるため、変形中に析出物が成長あるいは形状変化を起こすことはないため、基本的には平均半径のわずかな変化のみが観察されている。また、上述の制限から、初期測定点がネッキングを開始した位置から離れていたため、塑性不安定性発現時の析出組織変化や多重散乱発現による小角プロファイル劣化[6]は確認されていない。一方、In-situ SWAXS 強度の規格化の検討において、引張り試験作動時に In-situ 測定システムでの入射光強度の連続的な低下などの、これまでの走査 SWAXS 測定では観察されなかった強度変動が認められ、散乱強度規格化に問題が出ていることが判明した。入射光モニターの安定性、変形装置駆動回路との干渉の可能性など原因の検討を進めているが、現状ではまだ原因ははっきりしていない。前回までの1次元走査 SWAXS 測定により、内部まで Mg 拡散が進行した多層試料の組織評価についても実現が可能であることが示されているため、検出システムとしては多層試料の変形過程のその場 SWAXS 測定が可能になったと考えられるが、定量解析のための課題が残っているのが現状である。

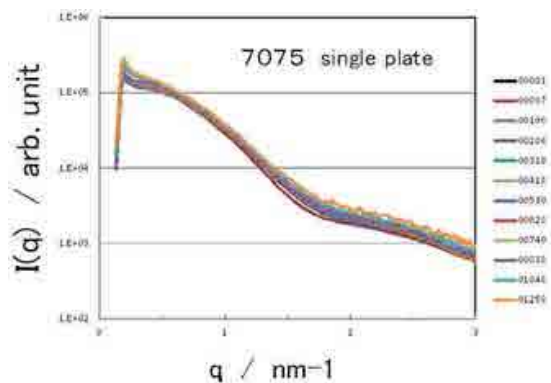


図5. 7075 単相材の引張りに伴う小角散乱強度変化の例。

まとめと今後の課題：

組成傾斜を持つ多層アルミニウム材料中のナノ組織分布を定量化するための走査 SWAXS 法を進展させ、その組織分布設計と力学特性の関係を調べるための In-situ 測定手法に発展させることを目的として、BL40XU の走査マイクロビーム SWAXS 測定システムに引張荷重負荷装置をマウントして計測を試みた。システムとしては引張り変形中のマクロな試料形状変化を観察しながら

破断に至るまでの過程でマイクロビーム SWAXS 測定をおこなうことに成功した。しかし今回の試行により、1)引張荷重負荷中のビーム安定性(ビーム強度低下、ならびに低下率のモニタ方法による不整合)、2)変形局所化に対応できるビーム位置、スキャン範囲制御ならびに計測条件最適化について、実用多層材の検証に使うためにはさらなる改良と検討が必要であると結論され、今後荷重負荷試験機の改造および試料形状再検討、上流側のピンホールシステムへの熱および振動の影響の検証などの改良を進めていく必要がある。また、結晶粒回転などの効果を同時に検出する上で、現在ネックになっている検出器大面積化、具体的には BL40XU への Pilatus 1M クラスの導入と、高角領域全周をカバーできる高角検出器の整備を強く希望する。

この成果は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (N E D O) の委託業務の結果得られたものである。

参考文献：

- [1] 平成 26 年度 SPring-8 産業新分野支援課題・一般課題(産業分野)実施報告書(2014B), 2014B1597.
- [2] 平成 27 年度 SPring-8 産業新分野支援課題・一般課題(産業分野)実施報告書(2015A), 2015A1684.
- [3] 平成 27 年度 SPring-8 産業新分野支援課題・一般課題(産業分野)実施報告書(2015B), 2015B1597.
- [4] 平成 28 年度 SPring-8 産業新分野支援課題・一般課題(産業分野)実施報告書(2016B), 2016B1580.
- [5] 平成 29 年度 SPring-8 産業新分野支援課題・一般課題(産業分野)実施報告書(2017A), 2017A1597.
- [6] H.Okuda et al., Scr. Mater. 46,795 (2002)