

結晶粒微細化による軽量・高強度の3層接合複合材料の延性向上とその
微細組織依存性のその場計測による解明

**Microstructural Analysis of Multilayered Composite Sheet with Grain
Refinement Process Aiming at Enhanced Elongation and Ductility
Examined by in-situ SAXS Measurements**

奥田 浩司^a, 林 杉^a, 伊藤 樹人^a, 宇野木 諒^b, 伊原 健太郎^b, 松本 克史^b
Hiroshi Okuda^a, Mikito Ito^a, Ryo Unoki^b, Kentaro Ihara^b, Katsushi Matsumoto^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った。BL40XUの小角散乱計測セットアップで前課題で用いた1軸の引張装置を設置し、結晶粒微細化処理後の熱処理試料について室温での引張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2018A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[5]、引張変形中のその場測定へと発展させた[6]。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。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で多層材料の組織分布が変形過程に与える影響を検証することを目的とした。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。本課題では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およびAl/AlZn/Al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。前課題では引張り中の組織変化を走査小角散乱測定によってその場観察することには成功したものの、相互拡散熱処理によって結晶粒が粗大

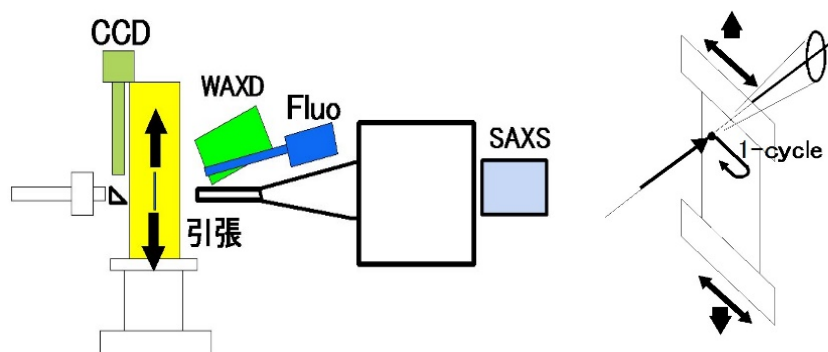


図1. 本課題で使用したその場引張小角高角蛍光同時測定システムの概要図と試料上の引張試験中のX線走査の模式図。本構成は前課題を踏襲した。

化したことにより、結晶粒サイズが各層の厚さに達している粗大結晶状態となっていることが原因で、期待された強度延性バランスを実現するための塑性変形様式となっていないことが明らかとなった。そこで本課題では結晶粒微細化の元素添加に加え、熱処理と加工のプロセス調整により結晶粒サイズの微細化を試み、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：

実験は BL40XU の第一ハッチでのピンホールによるマイクロビームを利用した走査小角 (SAXS) 高角 (WAXD) 同時散乱実験をおこなった。図 1 に本測定の概要と試料上の X 線スキャンの状況を模式的に示す。基本変形速度として公称ひずみ速度で 5%/hr での引張ひずみを与えながら、試料断面方向に入射したマイクロビームにより小角散乱、高角回折、蛍光強度の同時測定をおこなった。走査は試料の内部を 1 次元スキャンして元の位置に戻る単位動作を 1 サイクルとして破断まで走査を繰り返した。ビームは約 15 keV の準単色光を用い、SAXS、WAXD 測定には Pilatus を用いた。その場引張荷重付加は 500 N まで対応可能なロードセルを搭載した単軸引張荷重負荷装置を作成して用い、熱処理後の試料の変形は室温でおこなった。準単色光を利用する利点として、小角散乱については十分な解析の分解能が得られる一方、回折に関しては波長幅の効果で回折条件が広くなり、擬似ラウエ的に限定的な範囲で回折スポットが確認できるようになるため、結晶方位分布の概要を知るのに便利であることが挙げられる。

結果および考察：

図 2 は多層試料の荷重変位曲線の例である。多層材料の特徴として、硬質層が亀裂進展あるいは破断しても靱い軟質層が残るために低応力状態での変形がしばらく続く点が挙げられる。前課題での試料では、硬化層の破壊については粗大結晶のために比較的急速に亀裂が進展してしまうこと、軟質層の部分でもほぼ単結晶状態であることから優先的なすべり方向が同一であるために巨視的な外形変形が発達して目視可能なすべり帯と粒回転が確認されるようになり、本来目的としていた材料変形様式とは異なる現象が起きていることが確認された。一方図 2 の inset の写真は本課題における引張り変形中の最硬化領域が破断した直後、荷重伸び曲線の縦矢印の直後の様子を示しているが、黄色 (逆△印) で示される亀裂部分の外側の軟質層領域、赤色 (横△) の位置で亀裂とほぼ水平位置に対称的なネッキングが開始していることが分かる。これは結晶粒の微細化により、軟質層部分での異方的な変形がそれほど目立っていないことを示唆している。

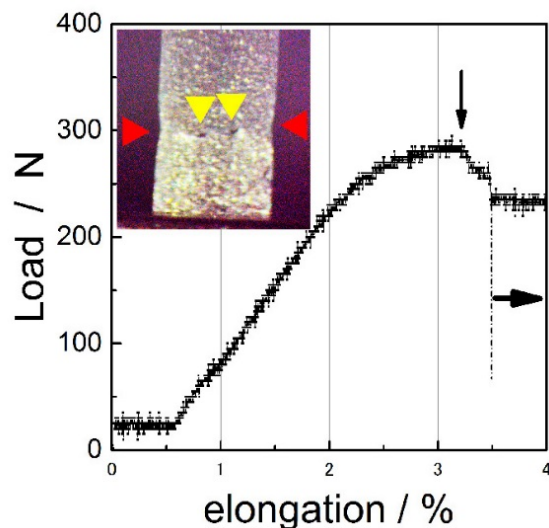


図 2. 微細結晶粒試料の引張りその場 SWAXS 測定中の荷重—伸び曲線と、亀裂導入/ネッキング開始直後の試料。

本課題では破断開始 (亀裂導入後、かつ試料破断前) の状態での変形の進行と組織の関係を調べるため、亀裂の導入が目視された時点で引張変形を停止し、その状態での組織分布をより詳細に調べた。われわれの以前の単結晶 Al-Ag 合金を利用した塑性変形中の析出組織変化のその場測定の結果から、比較的単純な AlAg 系では高温 (時効温度) での熱処理の場合には切断された GP ゾーンが自己修復しながらその空間分布に関してはすべり方向への異方性を発達させて塑性変形を継続することがわかっているが [7]、室温変形の場合には切断された析出物のその後の組織変化への寄与にはいくつかの効果が考えられているものの、まだ定量的に解明されたとは言いがたい

状況にある。今回のような実用材料を想定した結晶粒微細化試料における亀裂周辺のナノ組織分布の実験的解明のためには、その結晶粒などの組織情報との関連での詳細な調査が必要のため、現在高角データと上記の変形停止（応力負荷下）での小角散乱分布の対応関係の検討を進めているところである。

図3は高角回折検出器で小角散乱と同時に計測した回折強度の1次元走査に伴う変化である。ここでは $10\ \mu\text{m}$ ステップスキャンにおける5ステップごとの変化を示しており、赤丸で回折斑点の集積位置を示している。また、上部の黒い部分は蛍光分析用の検出器との干渉部分になる。図では 200 および 220 の強度が比較的強く現れている。縦(2θ)方向に伸びているのは入射光が準単色であるため、歪んだ結晶や多少の方位ずれでも回折条件を満たす波長がある範囲では見出されることによる。前課題では各層厚程度の結晶粒径（層面内方向にはその数倍）であったために、高角回折は位置を変化させてもほとんど単一スポットしか観察できなかったのに対して、各位置で試料厚さ方向に複数の粒方位が存在することを示している結果となった。

クラック発生/ネッキング以前の均一変形領域での小角散乱と高角回折のプロファイルを図4に示す。比較的伸びが出る微細析出物の状態での GP ゾーン $\sim\eta'$ の析出が予想される位置での小角散乱像は図右に示すように等方的な散乱強度を与えており、微細高密度の析出組織になっていることが分かる。このときの高角回折図形が図4左であるが、複数の指数の回折線が同時に出現し

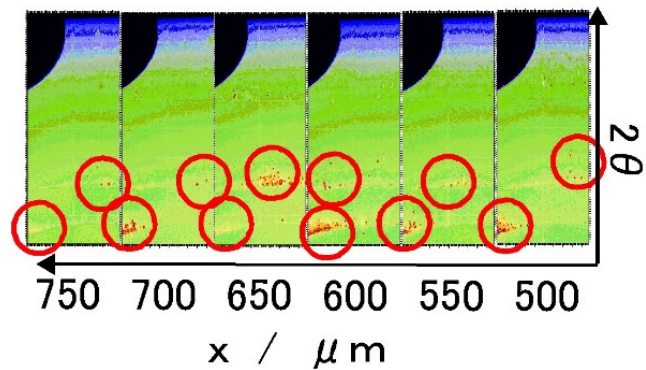


図3. 図2の試料のWAX検出器上の回折点の分布の位置による違い。5ステップごとの表示。各微細スポットが各結晶に対応するため、どの位置でも多数の結晶粒による回折が観察されていることが分かる。また、回折スポットの集積方向が試料の位置により異なる。

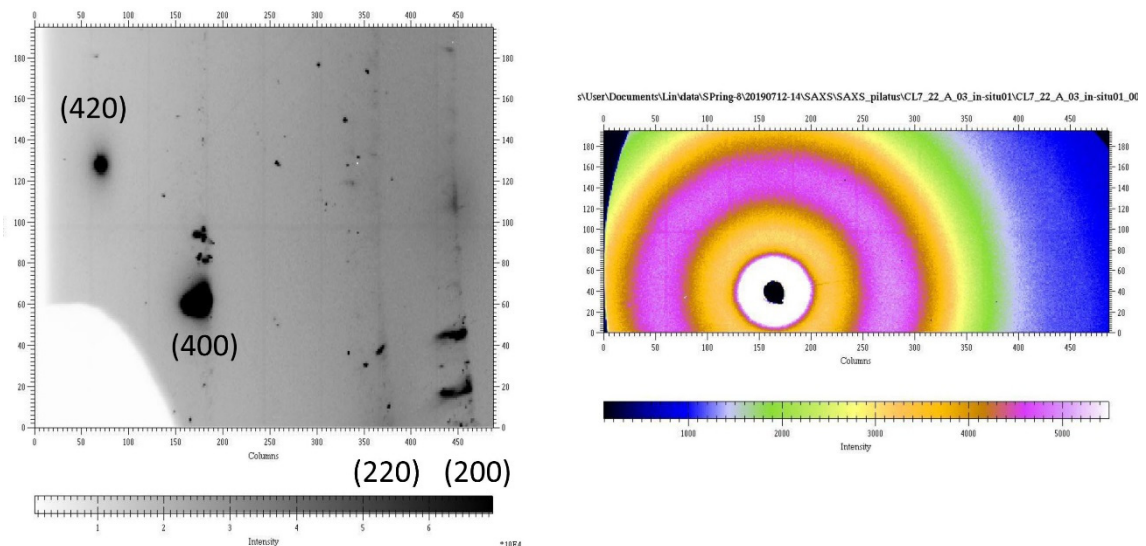


図4. 均一変形領域での高角回折と小角散乱プロファイルの例。相互拡散による η' 形成が期待される領域の小角散乱(右)は等方的で明確な干渉ピークを示す散乱を与える。同じ位置で同時に計測された高角回折(左)では複数反射が同時に観察され、多結晶状態であることを示している。白色ラウエと異なるのは準単色光であるため回折指数が判断可能であることである。

ていることから別の方位を持つ複数の結晶子が右図の等方的な SAXS 像に寄与していることを示している。均一変形領域では今回の測定条件内では明確な析出強化組織の異方性の発達は認められなかった。

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 法を発展させ、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、モデル 3 層材に対する引張試験中の小角散乱分布のその場測定を試みた。前課題での不均一変形からの破壊で課題となった結晶粒粗大化の問題を解決するために試料の結晶粒を微細化し、変形中の散乱変化をその場測定した。均一変形領域では前回と類似の結果が得られたが、クラック導入から破壊に至る過程ではより均一(対称性の良好)なネッキングの形状が観察された。不均一変形が進行するクラック導入後の変形と組織の関係については複合材料としての強度と延性バランスの観点から軟質層領域と硬質層中間部にある中強度領域でのナノ組織変化が粗結晶試料とどのように異なるかを検討することが今後の課題であり、現在図 2 のような破断前の不均一変形領域でのマクロ伸び量固定条件での散乱強度分布の詳細な解析を進めている。さらに固定位置での高角(結晶回転)時間変化の観察を実現するという観点から高速な位置同定と時分割へのスムーズな移行を実現するシステムの改良が必要となると考えられる。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 Pilatus1M 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(NEDO)の委託業務の結果得られたものである。

参考文献：

- [1] 松本克史 他、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] 松本克史 他、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] 松本克史 他、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] 松本克史 他、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] 松本克史 他、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] 松本克史 他、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(2017B), 2017B1611.
- [7] H.Okuda et al., Scr. Mater. 46,795(2002)