Al-Be 共晶合金を用いた内部応力 超塑性モデルの検証

北 園 幸 一[†] 佐 藤 英 一 栗 林 一 彦

文部省宇宙科学研究所

J. Japan Inst. Metals, Vol. 60, No. 5 (1996), pp. 441-445

Experimental Verification of Internal Stress Superplasticity Model Using Al-Be Eutectic Alloy

Koichi Kitazono, Eiichi Sato and Kazuhiko Kuribayashi

The Institute of Space and Astronautical Science, Sagami-hara

Materials containing second phases show superplastic behavior during thermal cycling (internal stress superplasticity). The authors recently proposed a quantitative model using continuum micromechanics theory for the superplastic behavior. In the present study, this theoretical model has been verified by compression creep tests under thermal cycling conditions using a Be particle dispersed Al matrix alloy as an ideal material. The thermal cycling creep rates were much higher than the isothermal creep rates and proportional to the applied stress at low stresses. However they approached the isothermal creep rates at high stresses. This behavior agrees well with a theoretical prediction, and the value of the thermal cycling creep rate at low stresses coincides with the theoretical one. Therefore it was concluded that the internal stress superplasticity model was applicable to particle dispersed metal matrix composites.

(Received February 5, 1996)

Keywords: superplasticity, internal stress, thermal cycling, aluminum-beryllium alloy, micromechanics, creep

I. 緒 言

材料の超塑性挙動は、その変形機構から微細結晶粒超塑性和変態超塑性の2つに分類される。変態超塑性は、外力負荷の下で材料の変態点を通過する熱サイクルを与えるときに生じる超塑性挙動であり、その変形機構は、変態ひずみによる内部応力が変形を促進するという内部応力説⁽¹⁾⁽²⁾、変態によって生じるボイドが転位の発生源となって変形が促進されるという転位クリープ説⁽³⁾、変態界面に部分的不整合が形成され粒界すべりが促進されるという界面非晶質説⁽⁴⁾などに分けられる。

近年、SiC 繊維強化 Al 複合材料⁽⁵⁾や多結晶 Zn⁽⁶⁾に、高温、低応力下で熱サイクルを付加すると、くびれを生じずに非常に大きな伸びを示すことが報告された。この熱サイクルクリープ挙動の特徴は、低応力域で等温クリープよりも非常に大きいひずみ速度を示し、そのひずみ速度と付加応力との関係が比例関係になることである。この挙動は、微細結晶粒超塑性とは明らかに異なり、変態超塑性に類似している。この変形挙動について Sherby らは、熱ひずみによって生じる

内部応力が、外力による巨視的変形を促進するというモデル⁽⁶⁾⁽⁷⁾を提唱し、内部応力超塑性と名付けた。熱ひずみは、Al-SiC 複合材料の場合マトリックスと強化相の熱膨張率の違いにより、また多結晶 Zn の場合結晶方位による熱膨張率の違いにより生じる。この熱ひずみは、変態超塑性の内部応力説⁽¹⁾⁽²⁾の変態ひずみに担当し、従来の変態超塑性も広い意味では内部応力超塑性に含めて考えることができる。

内部応力超塑性を説明する Sherby らのモデル⁽⁶⁾⁽⁷⁾は、ある大きさの内部応力分布があるときの外力とひずみ速度との関係を述べているだけで、どのような内部応力場が生じているかについては言及してしない。過去の変態超塑性内部応力モデル⁽¹⁾⁽²⁾では、球状変態生成相に接している部分のみの応力場が解析されただけである。したがってこれらのモデルからは、与えられた条件下でのひずみ速度を定量的に予測することはできない。定量的解析としては、二次元の有限要素法によるシミュレーション⁽⁸⁾がなされているだけであった。これに対し著者は、球状粒子がマトリックス中に分散しているという簡単な場合について、連続体マイクロメカニックスの手法を用いて、温度変化中の応力場、ひずみ速度の解析を行い、定量的な内部応力超塑性モデルを提案した⁽⁹⁾。本研究ではこの連続体モデルによく合っているモデル材料として、Al マトリックス中に球状 Be 粒子が分散している Al-Be 共

[†] 東京大学大学院生

晶合金を選択し、その熱サイクルクリープ試験を行って、モデルの定量的検証を行った。

II. 内部応力超塑性モデル

実験にはいる前に、著者らが提唱している内部応力超塑性モデルについて、その原典⁽⁹⁾は非常に煩雑でわかりにくいので、ここで論理のエッセンスを述べ直すことにする。クリープ変形をする球状のマトリックスの中心に塑性変形をしない球状の介在物が存在する材料を考える (Fig. 1)。ここで介在物の体積分率 f は十分小さく、また介在物界面の界面拡散は塑性ひずみの不一致を緩和するのに十分に速いが、マトリックス中の粒内拡散は熱ひずみの不一致を緩和するのに十分に遅いと仮定する。この仮定は、Al マトリックス中に $1\ \mu\text{m}$ 程度の大きさの球状粒子が分散しているような材料について妥当である⁽⁹⁾。このような材料に、(a)一軸引張あるいは圧縮応力を付加した場合、(b)一定速度で加熱または冷却を行った場合について分けて考える。

(a)の場合、マトリックスが介在物によって拘束されていないならば、マトリックスは $\bar{\epsilon}_{ij}^P$ というひずみ速度で様に塑性変形(クリープ)する[†]。ここで介在物界面の界面拡散が十分に速ければ、介在物とマトリックスの塑性ひずみの不一致は界面拡散で緩和される。このとき、拡散によるひずみ速度 $\dot{\epsilon}_{ij}^D$ が様に介在物内に生じているとみなすことができ[†]、 $\dot{\epsilon}_{ij}^D = \bar{\epsilon}_{ij}^P$ となる。

(b)の場合、介在物がマトリックスによって拘束されていないならば、介在物はマトリックスに対して $\dot{\epsilon}_{ij}^T$ というひずみ速度で様に膨張または収縮する[†]。マトリックス中の粒内拡散が十分に遅い場合、介在物とマトリックスの熱ひずみの不一致を緩和するために、マトリックスはある特殊な不均一な塑性変形をしなければならない。このときのひずみ速度を $\Delta\dot{\epsilon}_{ij}^P$ と書く。

したがって(a)と(b)が同時に起こった場合の材料中のひずみ速度は、

$$\dot{\epsilon}_{ij} = \frac{\bar{\epsilon}_{ij}^P + \Delta\dot{\epsilon}_{ij}^P \cdots (M)}{\dot{\epsilon}_{ij}^T + \dot{\epsilon}_{ij}^D \cdots (I)} \quad (1)$$

と書ける。(M)はマトリックス中、(I)は介在物中を表す。このとき、変形が進んでも材料中に新たな内部応力は発生せず、定常応力分布が達成される。このときマトリックス中の応力場を、位置に依存する成分 $\Delta\sigma_{ij}$ と依存しない成分 $\bar{\sigma}_{ij}$ を用いて、

$$\sigma_{ij} = \bar{\sigma}_{ij} + \Delta\sigma_{ij} \quad (2)$$

と表す。

金属マトリックスは高温で、いわゆるベキ乗則(通常応力指数 n は 3 以上)に従うクリープ変形をする。このときのひずみ速度式は、

$$\dot{\epsilon}_{ij} = B\sigma_e^{n-1}\sigma'_{ij} \quad (3)$$

[†] $\bar{\epsilon}_{ij}^P$, $\dot{\epsilon}_{ij}^D$, $\dot{\epsilon}_{ij}^T$ は位置に依存せず一定の値、 $\Delta\dot{\epsilon}_{ij}^P$ は位置に依存した値を取り、それぞれの具体的な表式は文献⁽⁹⁾に示されている。

Fig. 1 Illustrations of the model for analysis which consists of a spherical matrix and an inclusion. (a): under uniaxial external load, (b): under heating or cooling at a fixed rate.

と表せる。 σ_e は相当応力、 σ'_{ij} は偏差応力、 B は温度に依存する定数である。ここで議論を簡単にするために式(3)を

$$\dot{\epsilon}_{ij} = B\sigma_{ij}^n \quad (3')$$

と書く。式(1)と式(2)が式(3')で結ばれているとき、マトリックス全体で体積平均すると

$$\bar{\epsilon}_{ij}^P = B(\bar{\sigma}_{ij} + \Delta\sigma_{ij})^n \quad (4)$$

となる。ここで $\bar{\sigma}_{ij}$ は、付加応力 σ_A の $1/(1-f)$ である。式(4)は $\bar{\sigma}_{ij}$ と $\Delta\sigma_{ij}$ の大小によって

$$\bar{\epsilon}_{ij}^P \approx B\bar{\sigma}_{ij}^n \quad (\bar{\sigma}_{ij} \gg \Delta\sigma_{ij}) \quad (5a)$$

$$\approx nB\Delta\sigma_{ij}^{n-1}\bar{\sigma}_{ij} \quad (\bar{\sigma}_{ij} \ll \Delta\sigma_{ij}) \quad (5b)$$

と近似できるので、付加応力が大きい、つまり $\sigma_A \gg \Delta\sigma_{ij}$ のとき、式(5a)は、

$$\bar{\epsilon}^P \approx \frac{B}{(1-f)^n} \sigma_A^n \quad (6)$$

となる。ここで $\bar{\epsilon}^P$ は一軸伸び(圧縮)のひずみ速度である。これは等温クリープ変形の数式と同じであり、高応力側では熱サイクルクリープ速度と等温クリープ速度が一致することを示している。次に付加応力が小さい、つまり $\sigma_A \ll \Delta\sigma_{ij}$ のとき厳密なテンソル計算を行うと、式(5b)は、

$$\bar{\epsilon}^P \approx |\Delta\alpha\dot{T}|^{1-1/n} B^{1/n} \frac{(1-f^{1/n})f}{(1-f)^{2f^{1/n}}} \frac{2n(n+4)}{2^{1/n}5} \sigma_A \quad (7)$$

となる⁽⁹⁾。 $\Delta\alpha$ はマトリックスと介在物との熱膨張率の差、 $\dot{T}$ は熱サイクルの加熱あるいは冷却速度である。これは低応力側で加熱または冷却中に、クリープ速度と付加応力が比例関係になることを示している。

式(6)、(7)に未知パラメータは存在しないので、例として $n=5$, $f=0.01 \sim 0.04$ のときの $\bar{\epsilon}^P$ と σ_A の関係を両対数グラフにプロットすると、Fig. 2 のようになる。式(6)と式(7)が交わる付近では、ひずみ速度と付加応力の関係は2つの直線に漸近するような曲線(破線)になると考えられる。

Fig. 2 Thermal cycling creep behavior predicted by eqs. (6) and (7).

ところで温度が変化すると、式(3)中の B が変化するので、式(1)、(2)の応力場、ひずみ速度も変化する。したがって厳密には定常応力分布が達成されるのではなく、準定常状態が達成されるというべきである。熱サイクル中のクリープ挙動は、温度の反転部分を除けば、この準定常状態が達成されていると考えることができる。

III. 実験方法

1. 実験材料

連続体モデルの仮定(体積分率が小さく、微細な球状介在物が分散している)によく適合しているモデル材料として、Be粒子がAlマトリックス中に分散しているAl-Be共晶合金を選択した。AlとBeは互いに固溶せず非整合であり、共晶組成は0.8 mass%Be(1.2 vol%Be)である⁽¹⁰⁾。そして押し出し加工により、Be相を微細に分散させることができる。

試料は、大気中でAl-2.5 mass%Be母合金と99.9%Al地金を760°Cで溶解した後、金型鋳造し、押し出し比18の熱間押し出し加工により直径14 mmの棒材とし、873 Kのソルトバス中で250 ks焼鈍した。圧縮試験片として、押し出し方向に切削加工した中空円筒型圧縮試験片(長さ10 mm、外径6 mm、内径4 mm)を用いた(Fig. 3)。作製した試料は、走査型電子顕微鏡(SEM)で観察した。

2. 熱サイクルクリープ試験

クリープ試験は等温、熱サイクルともに圧縮クリープ試験を採用した。熱膨張測定装置(Fig. 3)は、高周波コイルによる加熱、差動トランスによる変位の偏差測定が可能なものである。試験片には石英製中空円筒を介して鉛直方向に一定の

Fig. 3 Schematic diagrams of the compression creep apparatus and a test sample.

荷重を付加した。試験片の上面と下面の変位の偏差を2本の石英ロッドを介した差動トランスで試験片のひずみとして検出した。R熱電対を試験片の表面にスポット溶接して温度を測定しながら、PID温度制御装置を用いた高周波誘導コイルによって急速に加熱し、冷却ガスを吹き付けることによって急速に冷却した。熱サイクルは、一定の温度域で加熱速度、冷却速度が等しい三角波状のサイクルを付加した。本装置は最大 ± 10 K/sで一定速度の加熱冷却が可能であり、加熱冷却反転時における設定温度と実際の温度との誤差は $\pm 1 \sim 2$ Kである。

試料の等温クリープ試験温度は、638 Kに設定した。この温度付近でAl-Be共晶合金のひずみ速度と付加応力の関係は次のべき乗則で記述される⁽¹¹⁾。

$$\dot{\epsilon} = A(\sigma_A/E)^n \exp(-Q/RT) \quad (8)$$

E は純Alのヤング率、 R は気体定数、 T は絶対温度、 A は合金の種類による定数である。 Q は変形の活性化エネルギーで、本実験ではAlの自己拡散の活性化エネルギーに近い $Q=146$ kJ/molとした⁽¹¹⁾。等温クリープ試験と熱サイクルクリープ試験とを比較するために、次の式で求めた等価温度 T_0 が638 Kとなるように熱サイクルの温度域を $T_1=573$ K, $T_2=673$ Kに設定した。

$$\exp\left(-\frac{Q}{RT_0}\right) = \frac{1}{T_2 - T_1} \int_{T_1}^{T_2} \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) dT \quad (9)$$

Fig. 4にAl-Be共晶合金の熱サイクル圧縮クリープ試験中の、温度と圧縮率の測定結果の一例を示す。温度変化に対応した膨張、収縮を繰り返しながら、徐々に圧縮ひずみが生じていることがわかる。熱サイクルクリープ速度は、平均ひずみ速度として変形が定常に達したところで図のように直線をひき、その傾きから算出した。

Fig. 4 An example of the thermal cycling creep tests. Dashed line shows an average strain rate at a quasi steady state during thermal cycling.

IV. 実験結果および考察

1. 組織

Fig. 5 に圧縮試験片の組織写真を示す。Be 粒子の粒径は、結晶粒界で $2.4 \mu\text{m}$ 、粒内で $0.5 \mu\text{m}$ であり、両方ともほぼ球状であった。Be 粒子の体積分率は 1.2% であるが、この内 $1/3$ は結晶粒界に、 $2/3$ は粒内に析出していた。粒界に析出している粒子の体積変化は粒界拡散により非常に速く緩和され、内部応力場の形成には寄与しないと考えられるので、計算には析出物の体積分率として $f=0.008$ を用いた。

2. 熱サイクルクリープ試験結果

Fig. 6 に Al-Be 共晶合金の熱サイクル、等温クリープ試験の結果を示す。グラフはひずみ速度と付加応力の両対数グラフで、付加応力は 638 K での純 Al のヤング率⁽¹²⁾ (52.6 GPa) で規格化してある。熱サイクルクリープ試験は加熱冷却速度を $2, 5, 10 \text{ K/s}$ の 3 種類に設定して行った。参考として純 Al の等温クリープ曲線⁽¹³⁾ もプロットしてある。

等温クリープ速度は実験した応力域では付加応力の約 7 乗に比例していた。熱サイクルクリープ挙動については、3 種類の各線とも低応力域では等温クリープの場合よりひずみ速度ははるかに大きく、純 Al の等温クリープ速度よりも大きかった。そしてそこではひずみ速度と付加応力は比例していた。付加応力が増加すると、応力指数 n が増加しながら、等温クリープ速度に次第に近づき、高応力側では熱サイクルクリープ速度と等温クリープ速度はほぼ一致した。この傾向は Fig. 2 に示される連続体モデルからの予測と良く合っ

Fig. 5 SEM photographs of the Al-0.8 mass%Be alloy. (a): Coarse Be particles (average size of $2 \mu\text{m}$) precipitated at matrix grain boundaries are observed. (b): Fine Be particles (average size of $0.5 \mu\text{m}$) precipitated inside matrix grains are observed.

ている。

破線は連続体モデルから式(7)を用いて計算した熱サイクルクリープ速度の予測値を表す。このときの計算に用いた値は、 638 K での Al と Be の熱膨張率の差 $\Delta\alpha = 1.34 \times 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, $n=7.0$, $B=5.90 \times 10^{-11} \text{ s}^{-1} \text{ Pa}^{-7}$ である。ひずみ速度が付加応力に比例する低応力域では、加熱冷却速度が 10 K/s , 5 K/s の条件のとき、実験値は予測値の約 60% であった。したがって定量的にも連続体モデルは、Al-Be 共晶合金の実験結果をうまく説明していると言える。

一方加熱冷却速度が 2 K/s のとき、実験値は理論値の 20% 程度でしかない。この理由として、加熱冷却速度が小さいとき介在物の体積膨張または収縮の際のひずみ速度も小さくなるので、熱ひずみがある程度マトリックス中の粒内拡散で緩和され、形成される内部応力場はモデルの予測より小さくなり、ひずみ速度も減少したと考えることができる。実験値と予測値の差異について定量的な検討の余地があるが、本実験結果は内部応力超塑性モデルの妥当性を示すものと言えるだろう。

Fig. 6 Thermal cycling and isothermal creep rates as a function of a modulus compensated applied stress. Heating and cooling rates are (a): 10 K/s, (b): 5 K/s, (c): 2 K/s. Dashed lines are calculated using equation (7).

V. 結 言

金属基複合材料の内部応力超塑性について連続体マイクロメカニクスを用いたモデルによる解析を行った。この解析は、熱サイクル中に低応力側でひずみ速度が付加応力に比例することを予測し、またそのひずみ速度の絶対値を既知のパラメータで予測することが可能である。解析結果を実験的に検証するために、モデル材として Be 粒子分散 Al 共晶合金を用いて熱サイクル並びに等温クリープ試験を行った。実験結果とモデルからの予測は、加熱冷却速度を変えた 3 種類のすべてについて、ひずみ速度の付加応力依存性、加熱冷却

速度依存性ともに非常によく一致していた。またひずみ速度の大きさも 4 倍の範囲内で一致していた。したがって金属マトリックス中に微細な球状粒子が分散しているような材料に熱サイクルを付加したときの内部応力超塑性挙動について、本モデルによる解析が有効であることが確かめられた。

終わりに本研究の遂行にあたり、天田金属加工機械技術振興財団および軽金属奨学会の助成を受けたことを記し、謝意を表す。

文 献

- (1) M. de Jong and G. W. Rathenau: *Acta Metall.*, **9**(1961), 714.
- (2) G. W. Greenwood and R. H. Johnson: *Proc. Roy. Soc. London*, **283A**(1965), 403.
- (3) F. W. Clinard and O. D. Sherby: *Acta Metall.*, **12**(1964), 911.
- (4) 井口信洋: *材料科学*, **17**(1980), 107.
- (5) M. Y. Wu and O. D. Sherby: *Scr. Metall.*, **18**(1984), 773.
- (6) M. Y. Wu, J. Wadsworth and O. D. Sherby: *Metall. Trans.*, **18A**(1987), 451.
- (7) S. H. Hong, O. D. Sherby, A. P. Divecha, S. D. Karmarkar and B. A. MacDonald: *J. Composite Mater.*, **22**(1988), 102.
- (8) H. Zhang, G. S. Daehn and R. H. Wagoner: *Scr. Metall. Mater.*, **24**(1990), 2151.
- (9) E. Sato and K. Kuribayashi: *Acta Metall. Mater.*, **41**(1993), 1759.
- (10) T. B. Massalski (ed.): *Binary Alloy Phase Diagrams*, vol. 1, ASM, Ohio, (1986), 92.
- (11) 大塚正久, 野末 章, 堀内 良: *日本金属学会誌*, **46**(1982), 353.
- (12) 阿部勝憲, 丹治雅典, 吉永日出男, 諸住正太郎: *軽金属*, **27**(1977), 279.
- (13) H. Luthy, A. K. Miller and O. D. Sherby: *Acta Metall.*, **28**(1980), 169.