単相金属・合金の高温クリープ挙動：その理解と問題点　その1

及　川　　洪*

1·1　は　じ　め　に

1·1·1　高温クリープ

この解説では，いわゆる高温クリープ(power-law creep)と稱されるようなクリープ挙動をとりあげる．

クリープ現象を理解するためには，本来，転位の発生，移動，(堆積)，消滅の全過程について知る必要があるが，ここでは単相金属(公稱純金属，一次固溶体)の主として定常クリープ挙動に注目する．

なお，注意深く測定すると，厳密な意味で「クリープ速度一定の期間」(定常変形状態)は無いという話もある．実際，定応力クリープ試験を行っていても，鉄基固溶体合金では，一見して定常状態は無いということがすぐわかる例もある．一方，多くの純金属では，クリープ速度のあまり変らない期間が認められる場合も多い．ここでは，一応この状態を定常変形と稱し，主としてこの段階(場合によっては最小クリープ速度)について述べることにする．

純金属の(擬)定常クリープ挙動については，材料強度の教科書に一応の記述はあるが，実は理論的な説明としての完成度には極めて種々の段階のものが混じっており，実験的事実さえ不確かなものもある．以下では，一般的な説明(理解)の中の問題点のいくつかについて言及する．

クリープに特化した単刊本としては，丸山・中島のもの[1]が挙げられるが，鉄鋼材料に主体を置いた専門的なもの[2]も最近出版された．理論的な取扱いなどについての通覧的要素の強いものとしては，1980年代中頃までは Cadek の本[3]が，またごく最近のものとしては Kassner の本[4]が挙げられる．

1·1·2　律速段階とクリープ曲線

クリープにおける定常変形に至る経緯には，個々の転位のすべり挙動と変形全体の律速機構によっていくつかの類型があり，それぞれが特徴的なクリープ曲線を描くことが知られている(図1·1参照)．

(i)　転位のすべり運動は粘性的(viscous glide)であり，このすべり運動そのものが律速過程(glide control)となっている場合：図1·1の逆遷移型(inverted primary)および(弱)S字型((weak)sigmoidal primary))に対応．

(ii)　転位のすべり運動は粘性的であるが，すべり運動よりも刃状転位の上昇運動(回復)の方がより困難で，全体の変形は最終的に転位の上昇運動で決られている(climb control)場合：図1·1の(強)S字型遷移に対応．

(iii)　転位のすべりそのものは高速で自由飛行的であるが，すべり運動は間欠的にしか生ぜず(jerky glide)，変形を続けるためには回復する(転位の上昇運動を含む)必要がある場

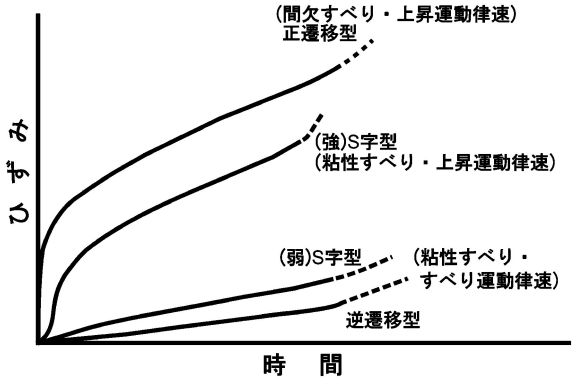

図1·1　クリープ曲線．

* 東北大学名誉教授(〒982-0804 仙台市太白区鈎取 3-2-2)
Power-law Creep Behavior of Single-phase Metallic Materials: Its Understanding and Unsolved Problems Part 1; Hiroshi Oikawa (Professor Emeritus, Tohoku University, Sendai)
Keywords: *power-law creep, single phase materials, climb control, glide control, sigmoidal primary creep, solute concentration effect, grain size effect, stacking-fault energy effect, low-stress regime, high-stress, regime*
2009年9月30日受理

合：図1·1の正遷移型(normal primary)に対応.

1·2　粘性すべり/すべり運動律速の変形

1·2·1　現象と理論的解析

この種の挙動であると，実験室的試験条件下では，定常クリープ速度 $\dot{\varepsilon}_s$ を負荷応力 σ_a，試験温度 T の関数として，

$$\dot{\varepsilon}_s \propto \sigma^n \exp\left(-Q_C/RT\right)$$

で示した場合，応力指数 n は約3，活性化エネルギー Q_C は拡散の活性化エネルギー Q_D にほぼ等しい($Q_C \approx Q_D$)．典型例としてはAl–Mg固溶体[5]や αFe–Mo固溶体[6]などが挙げられる(**図1·2**参照)．

この種の挙動は，各種クリープ挙動の中で，定量的理解が確立しているクリープ挙動の代表例と言える．

この変形ではCottrell型の溶質雰囲気を引きずってすべり運動している刃状転位が主役であり，ひずみ速度 $\dot{\varepsilon}$ は1本の(刃状)転位の平均的動き(平均速度 $\bar{v}$)と可動転位密度 ρ_m によって，

$$\dot{\varepsilon} \propto \rho_m b \bar{v}$$

として表現できる．転位のすべり速度 v は有効応力 $\sigma^*(=\sigma_a-\sigma_i)$ の関数

$$v \propto \sigma^* D_{sol}$$

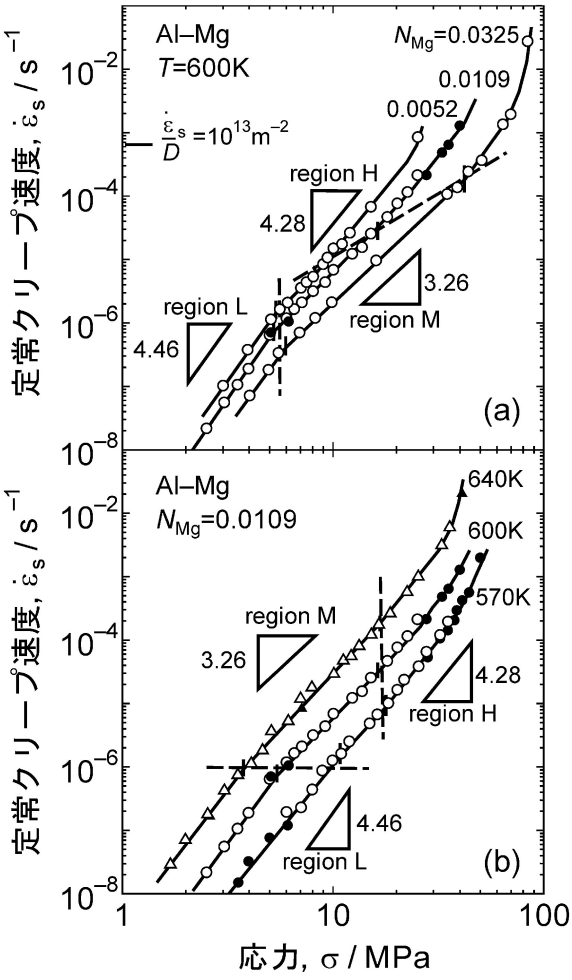

図1·2　Al–Mg合金の定常クリープ速度 $\dot{\varepsilon}_s$ と負荷応力 σ の関係[5]．(a) Mg濃度の影響，(b) 温度の影響.

として定量的に見積可能である．解析の詳細は文献[1]のp. 44～66に丁寧に述べられている．

内部応力 σ_i(あるいは ρ_m)が判れば，転位速度 v が求められ，クリープ速度の絶対値を見積ることが可能である．ただし，現在のところ，転位密度を実験なしで純理論的に見積ることは出来ていない．したがって **ρ の実測値**(1点でもよい)**さえあれば，$\dot{\varepsilon}_s$ の絶対値を(その応力依存性，温度依存性も含めて)算出可能**という状況にある．

この種の変形挙動を示す試料では，変形後の転位は粒内に比較的均等に分布している．しかしサブバウンダリー的転位網，あるいはセル壁のようなものが形成されないわけではない．**セル壁が無いことがこの種変形挙動の必須条件ではない**ことに留意する必要がある．なお，セル壁的なものが形成されるひずみ量は合金系によって大幅に異なる．Al–Mg合金ではかなり変形しなければセル壁は認められないが，αFe–Mo合金ではそれほど大きなひずみを与えなくても，部分的にセル壁が観察される．

1·2·2　解析適用可能範囲

この種の典型的挙動が認められるのは中応力域のみであり，図1·2に示したように，高応力側，低応力側ともにクリープ速度の応力依存性は大きくなる．

(a)　高応力側限界 σ_u

高応力域(Region H)では，溶質雰囲気から離脱した裸の転位の自由飛行的なすべり運動が関与するようになる．雰囲気離脱応力 σ_u は実験的にも(**図1·3**)，理論的にもかなり良く判っている．

ただし，この領域での変形過程全体についての理解はまだ全く出来ていない．この事情は，後述の1·3, 1·4の場合と同じである．

(b)　低応力側限界 σ_l

低応力域(Region L)では，変形は内部応力 σ_i が外部応力 σ_a に極めて近い状態(**図1·4**参照)で進行しているので，転位の上昇運動が律速段階になっていると考えられている．しかし，クリープ速度そのものの実験結果については，全く異な

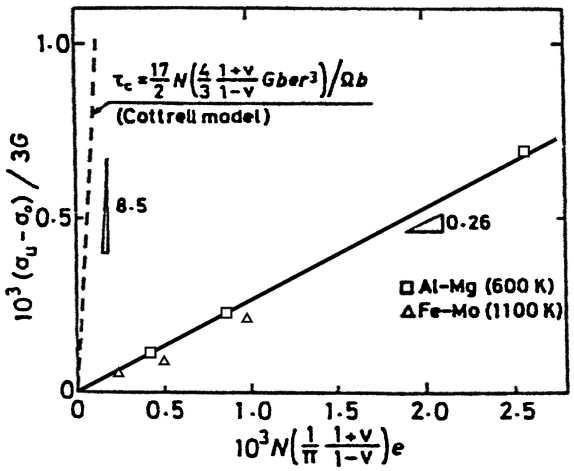

図1·3　上部限界応力 σ_u の溶質濃度依存性[5]．
N：溶質濃度(モル分率)，e：溶質原子の寸法因子.

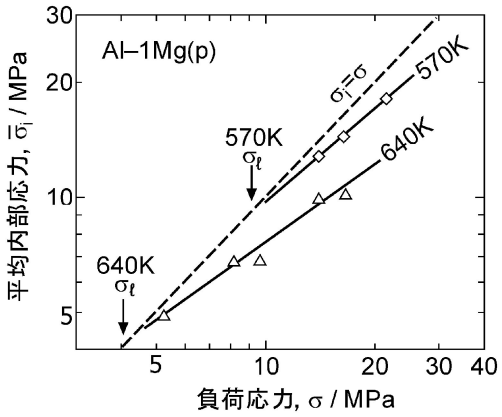

図1・4　Al–Mg 合金のクリープにおける内部応力 σ_i の負荷応力依存性[5]．σ_l は下部限界応力．

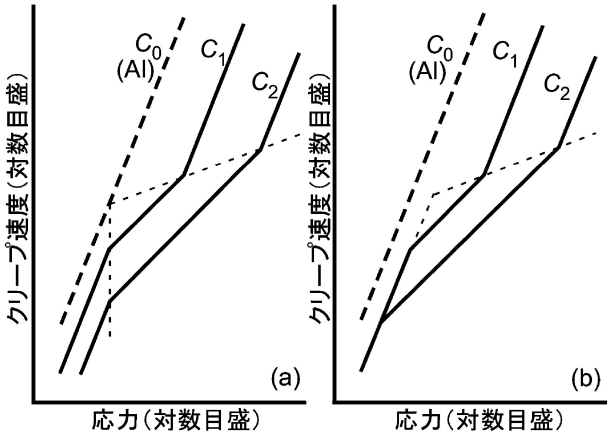

図1・5　クリープ速度の応力依存性に及ぼす溶質濃度の影響（模式図）．(a) Oikawa 他のデータ，(b) Langdon 他のデータ

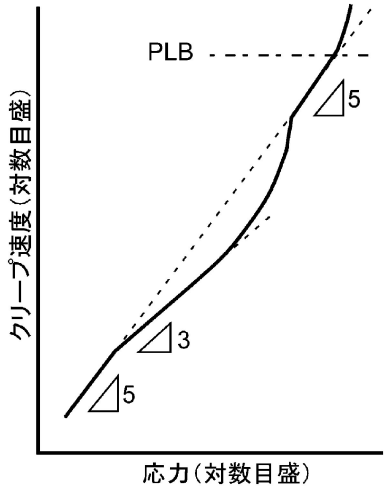

図1・6　低合金における溶質効果の出現範囲などについての新提案（模式図）[12]．

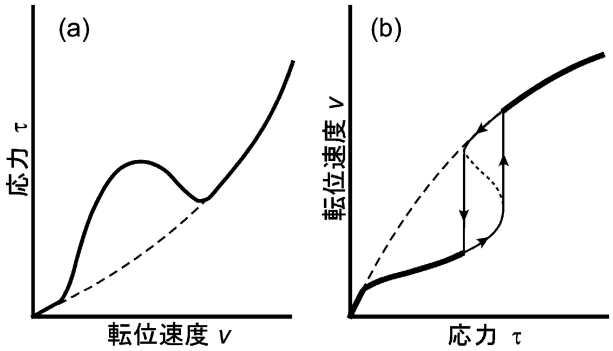

図1・7　転位（すべり）速度 v と負荷応力 τ の関係（試験法による違い）．(a) 転位（すべり）速度（あるいは変形速度）制御試験，(b) 負荷応力制御試験．

った報告が出されている．

Oikawa 他のグループは，すでに図1・2で示したように，模式的に描けば，**図1・5**(a)に示すように，この低応力域でも $\dot{\varepsilon}$ には溶質濃度依存性があり，Region M/Region L の境界応力 σ_l は溶質濃度（$C_{Mg}=0.5\sim3.1$ mol%）にはほとんど依存しないほぼ一定の値をとるとしている．このグループは αFe–Mo（$C_{Mo}=0.5\sim2$%）についても同様の結果を報告[6]している．

一方，Langdon 他のグループ[7]–[9]は，図1・5(b)に模式的に示すように，低応力域では $\dot{\varepsilon}$ には溶質濃度依存性はほとんど無く，合金（$C_{Mg}=1\sim5$ mol%）の $\dot{\varepsilon}$ は一本の母線に乗り，σ_l は $1/\sqrt{C_{Mg}}$ に比例して低下するとしている．ただし，この合金の母線は純アルミニウムに対する $\dot{\varepsilon}$ よりも約1.5桁以上低い位置にある．

この問題に関しては，図1・5(a)の結果を疑問視する論文[10]もあるが，擁護する論文[11]もある．なお Langdon は，次項1・2・3の新説の紹介（高応力側挙動主眼）の模式図[9][12]では，低応力側の溶質濃度依存性について図1・5(a)のタイプを描いている．これは，この新説の基となった実験データ[8][9]（図1・5(b)のタイプ）とは異なるものであるが，その点については全く何も述べていない．

この種の挙動を示す材料のクリープについての報告は多くあるが，その**クリープ挙動に及ぼす応力，温度，溶質濃度などの影響をセットとして公表している報告はごく少なく**，この問題の決着はまだ付いていない．この様な状況にあるので，Mohamed–Langdon[7]などが以前に出した σ_l の条件式（Region L と Region M の判別式）には大きな疑問が残る．

1・2・3　全体の挙動（の理解）についての異論

Langdon[12]や Saimoto 他[13]は，クリープ速度に溶質濃度依存性が認められるのは中間応力域（図1・2などの高応力域のかなりの部分を含む）のみであるとしている．**図1・6**に模式的に示すように，低応力域と（極）高応力域ではクリープ速度は上昇運動律速（$n\approx5$）の一つの直線上（の両端）に乗るというモデルを提唱している．しかし，これは必ずしも検証，確立されているわけではない．

この種の議論を行う際には，以下の点に十分留意する必要がある．**図1・7**(b)に模式的に示すように，クリープ試験では決められた（外部）応力の下で，転位がどう動くかを観察している．これは，図1・7(a)に示すような，通常の引張試験のように転位速度 v（あるいはひずみ速度 $\dot{\varepsilon}$）によって応力 τ（あるいは σ）が決るという状況ではない．条件によっては，

両者は極めて異なった挙動をとる場合がある．

1·3　間欠すべり/上昇運動律速型の変形

1·3·1　累乗則クリープ(power-law creep)

1950年代からSherby他(例えば[14])が純金属の(高温)クリープ実験を行い，(定常)クリープ速度の温度依存性は(自己)拡散の活性化エネルギーに類似した値をとることを示し，Weertman[15]が「ジョグの移動を伴う刃状転位の上昇運動がクリープ変形の律速段階である」と説明した．これがクリープ変形の(定量的)転位論的解釈の始りといえる．

その後，Poirier[16]が(見かけの)活性化エネルギーは試験温度と共に連続的に変わっているとして，この高温クリープの一般的解釈に疑問を提した．Sherby-Weertman[17]は，$Q_C \approx Q_D$ は勝手に線引したものではなく，高温クリープと稱されるような挙動($\dot{\varepsilon}_s \propto \sigma^n$, $Q_C \approx Q_D$)がある条件範囲ではっきり認められると反論し，今日に至っている．

純金属の(擬)定常クリープ速度 $\dot{\varepsilon}_s$ に注目してデータの解析を行うと，$n \approx 5$, $Q_C \approx Q_D$ というクリープ挙動を示す場合が実際に認められる．この様な挙動は，実験室的に容易に実現可能な試験条件の下で，よく出現する．

1·3·2　理論的説明

純金属中では転位は高速(自由飛行的)で間欠的にすべり運動する．一定負荷応力 σ_a の下で変形を続けるためには，転位(加工)組織が回復し，内部応力 σ_i は低下しなければならない．σ_i が低下した分だけ変形(転位すべり)が生じて加工硬化し，再び $\sigma_i \approx \sigma_a$ の状態に戻る．回復には刃状転位の上昇運動が必要で，この反応は空孔の発生・消滅と長距離移動を伴う．これが $Q_C \approx Q_D$ の理由である．

このWeertman流の説明では，ジョグの数，転位数などは負荷応力 σ_a のみで定まり，それらは温度には依存しないことが暗黙に仮定されている．

転位(加工)組織のどこでどのように回復し，それが組織全体に対してどの様に影響を及ぼすかについては，種々のモデルが提案されている．しかし，実験的に判明している**クリープ速度の応力依存性 n，温度依存性 Q_C(およびクリープ速度の絶対値)を満足に説明できるものはまだ無い．**

変形は現象論的には加工硬化率 h と回復速度 r によって，

$$d\sigma = h d\varepsilon - r dt$$

として表現される．クリープでは応力変化は無い($d\sigma = 0$)ので，クリープ速度 $\dot{\varepsilon} = d\varepsilon/dt$ は

$$\dot{\varepsilon} = r/h$$

となる．その温度依存性は(活性化エネルギーの形で表現すれば)

$$Q_C = Q_r - Q_h$$

となる．ここでジョグの移動が律速であれば $Q_r = Q_D$ であるから，

$$Q_h = 0 \ (\because Q_C = Q_D)$$

が導かれる．つまり，理論的には，加工硬化率 h には大きな温度依存性は無いということになる．

1·3·3　実験との対比

日本では複数のグループが種々の手法で(例えば[18]～[20])，色々な点にかなり注意深く配慮した上で，主に純アルミニウムを中心に，測定中の加工硬化の影響を含まない(真の) r，測定中の回復の影響を含まない(真の) h を測定している．それらの結果に基づいて，その温度依存性をまとめて模式的に示すと，**図1·8**のようになる．すなわち，Arrhenius型の表示をすると，クリープ速度 $\dot{\varepsilon}_s$ は拡散係数 D と平行($Q_C \approx Q_D$)であるが，r は $D(\propto \dot{\varepsilon}_s)$ よりも小さい傾き($Q_r < Q_D$)となり，h は水平ではなく，Q_h は負の値をもつ．

一方，温度急増法(0.1～0.6 s で 5.0～17.3 K 上昇)で(見かけの)温度依存性 Q_C を測定すると，**図1·9**に示すように，温度急変直後の数秒間は(見かけの)温度依存性は Q_D よりも明らかに大きい．また，焼鈍材の初期加工硬化率 $h_0 = (\sigma_c/E)/\Delta\varepsilon_p$ は，**図1·10**に示すように，負荷(試験)温度によらず一定である．

これらの実験結果は，**クリープ中の(真の) r, h に関係する組織には，かなりの温度依存性がある**ことを強く示唆している．しかし，普通のクリープ変形組織因子に著しい温度依存

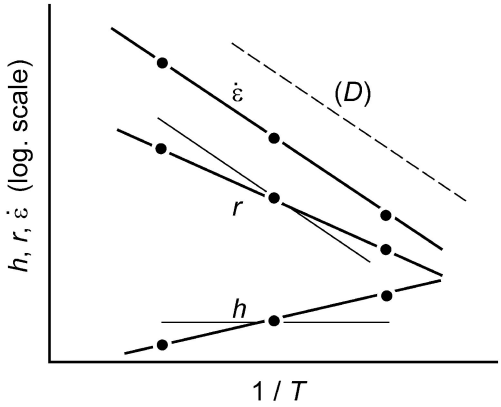

図1·8　クリープ速度 $\dot{\varepsilon}_s$，真の回復速度 r，真の加工硬度率 h の温度依存性．細線は理論的予測．

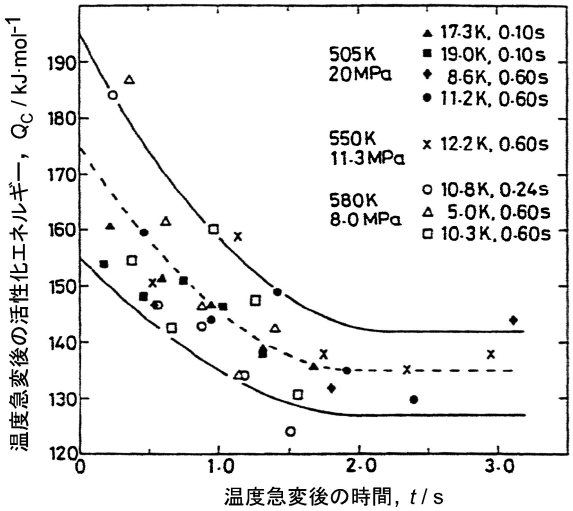

図1·9　アルミニウムのクリープ中における温度急変直後における(見かけの)活性化エネルギー[21]．

性を認めた報告は無い．**図1·11**には，α鉄の923 K～1123 Kにおけるいくつかのクリープ組織因子を示す．もしこれらにQ_Dの1/3程度の温度依存性があれば，図中の破線のような急勾配を示すはずである．

これらのことから，間欠すべり/上昇運動律速型のクリープ変形機構についての理論的説明は定性的にも不完全であり，組織観察も不十分であると言わざるを得ない．我々は**まだ肝心の箇所が判っておらず，その組織を観察できていない．**

この種のクリープ変形の説明における最大の問題点は，素ジョグの移動(刃状転位の上昇)がどこで生じているか，またその移動(あるいは合一消滅)が他の転位(転位組織全体)の配列変化(移動)にどのような影響を及ぼすかについて，まだ定性的にさえ，見積ることが出来ていないことにある．

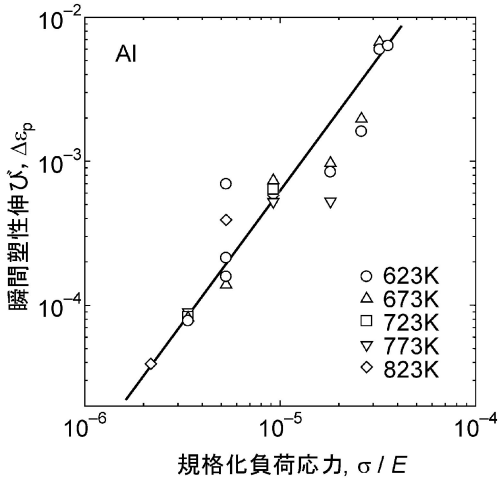

図1·10　アルミニウム(焼鈍材)の初期加工硬化率に及ぼす負荷(試験)温度の影響[22](直線の勾配は$1/h$に相当)．

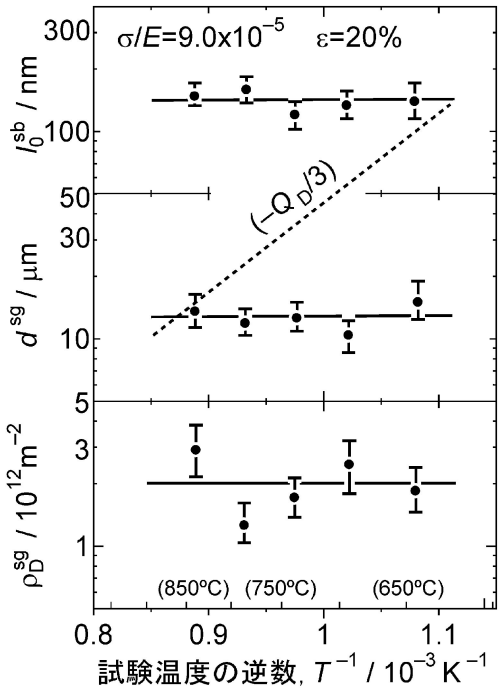

図1·11　α鉄のクリープ組織に及ぼす変形温度の影響[23]．l_0^{sb}：サブバウンダリー内の転位間隙，d^{sg}：サブグレイン寸法，ρ_D^{sg}：サブグレイン内部の転位密度．

1·4　粘性すべり/上昇運動律速型の変形

転位のすべり運動は自由飛行的なものよりもはるかに遅い(粘性的すべり)が，転位組織の回復速度の方がさらに遅れ，変形全体は結局転位の上昇運動に支配されてしまう場合がある．このような例は，多くの低積層欠陥エネルギー合金で認められている．この種の合金は図1·1の(強)S字型遷移を示す．この様な挙動を示す典型例として，Cu−16％Al合金のクリープ挙動を**図1·12**に示す．

遷移段階の初期では，図1·12(c)で明らかなように，内部応力σ_iは負荷(外部)応力σ_aよりかなり小さく，逆遷移型クリープ曲線を描き，粘性すべり挙動の特徴を示す．ひずみ増加(時間経過)に伴って(全)転位密度(図1·12(b))は増加し，クリープ速度(図1·12(a))も増加する．

遷移段階の中期になると，全転位密度ρ_{total}はほぼ一定のまま，それまで均等に分散していた転位が集団(セル壁)を作るようになり，全転位中セル内の孤立転位の比率L_{cell}/L_{total}が著しく低下する(図1·12(b))と同時に，内部応力σ_iは急上昇する(図1·12(c))．この報告では，σ_i/σ_aは0.85程度まで上昇するとされているが，現在のように測定に(逆)外挿法が適用されていれば，この値はもっと高いものになるであろうと推定される．これらの内部組織の変化に対応して，クリープ速度$\dot{\varepsilon}$は最大値$\dot{\varepsilon}_{max}$をとった後，急激に低下する(図1·12(a))．

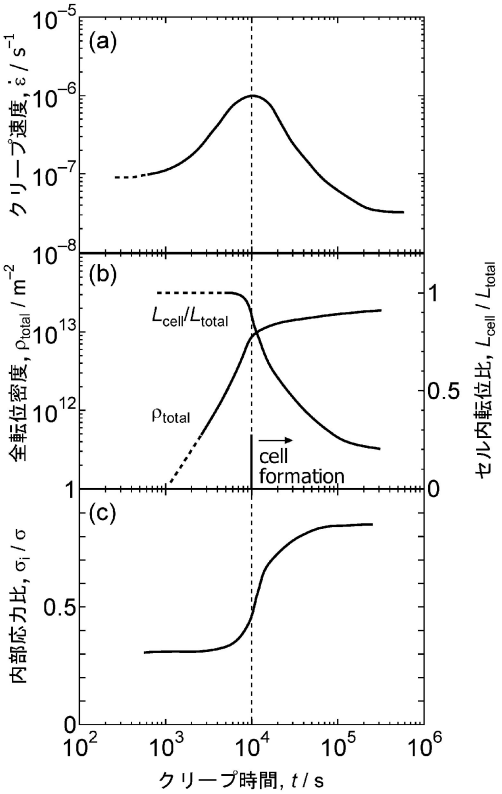

図1·12　(強)S字型遷移を示すクリープにおける各種因子の変化[24]（Cu－16 mol％Al, 723 K, 39.2 MPa）．L_{cell}/L_{total}セル内孤立転位の比率．

定常クリープ速度 $\dot{\varepsilon}_s$ はこの最大値 $\dot{\varepsilon}_{max}$ よりも桁違いに小さな値となる．なお，すべり律速の場合（前述1·2）も条件によっては $\dot{\varepsilon}_{max}$ が認められることがある．（図1·1の（弱）S字型遷移）．しかし，その場合の $\dot{\varepsilon}_{max}/\dot{\varepsilon}_s$ は高々2以下でしかない（例えば[6][25][26]）．

多くの低積層欠陥エネルギー合金やオーステナイト系材料では，この種の挙動をとることが予想されるが，図1·12の様な解析はほとんど進んでいない．どの様な条件で転位組織の変化（孤立分散から集団形成へ）が生じるかなどについては，全く判っていない．類似組成の合金ですべり運動律速と上昇運動律速の両方が可能と考えられるような場合は，上昇運動律速の方が桁違いに強いと予想される（例えば[27]）．従って，上昇運動が主役となるように各種条件（組成も含めて）を選択することが望ましいので，**合金の上昇運動律速クリープ挙動についての基礎的な研究が活発になることが望まれる．**

（以下次稿に続く）

予定章題目
- 2·1　積層欠陥の影響
- 2·2　結晶粒径の影響
- 2·3　高応力域での挙動
- 2·4　低応力域での挙動
- 2·5　変形機構領域図
- 2·6　おわりに

文　　献

（1）丸山公一，中島英治：「高温強度の材料科学」，内田老鶴圃，2002（改訂版），pp. 329.
（2）F. Abe, T. U. Kern and R. Viswanathan (eds): ‘‘Creep-resistant steels’’, Woodhead Publ, (2008), pp. 678.
（3）J. Cadek: ‘‘Creep in Metallic Materials’’, Elsevier, (1985), pp. 372.
（4）M. E. Kassner: ‘‘Fundamentals of Creep in Metals and Alloys’’, Elsevier, (2009) (2nd ed.), pp. 295.
（5）H. Sato and H. Oikawa: ‘‘Further experimental study of deformation characteristics of Al–Mg alloys in the power–law creep regime’’, Scr. Metall., **22**(1988), 87–92.
（6）S. Nanba and H. Oikawa: ‘‘Effect of the solute concentration on deformation characteristics of Fe–Mo solid solutions in the power–law creep regime at 1100 K’’, Mater. Sci. Eng. A, **101** (1988), 31–37.
（7）F. Mohamed and T. G. Langdon: ‘‘The transition from dislocation climb to viscous glide in creep of solid solution alloys’’, Acta Metall., **22**(1974), 779–788.
（8）Z. Horita and T. G. Langdon: ‘‘High temperature creep of Al–Mg alloys’’, in ‘‘Strength of Metals and Alloys (Proc. ICSMA–7)’’ eds. H. J. McQueen *et al.*, Pergamon Press, (1985), 797–802.
（9）Z. Horita, T. Shimada, T. Endo and T. G. Langdon: ‘‘The creep behavior of Al–Mg solid solution alloys at high stresses’’, Proc. 3rd. Intern. Conf. on ‘‘Creep and Fracture of Engineering Materials and Structures’’, eds. B. Wilshire and R. W. Evans, (1987), The Inst. of Metals. 113–126.
（10）T. Fang, R. Raokila and K. L. Murty: ‘‘An examination of class A to class M transition in Pb–9Sn and other alloys’’, Metall. Trans. A, **17**(1986), 1447–1453.
（11）M. S. Soliman: ‘‘Significance of solute concentration dependence of climb–controlled creep rates in dilute solid solution alloys’’, J. Mater. Sci. Lett., **14**(1993), 1155–1157.
（12）T. G. Langdon: ‘‘Transition in creep behavior’’, Mater. Trans. JIM, **37**(1996), 359–362.
（13）B. J. Diak, K. R. Upadhyaya and S. Saimoto: ‘‘Characterization of thermodynamic response by materials testing’’, Prog. Mater. Sci., **43**(1998), 223–363.
（14）O. D. Sherby, J. L. Lytton and J. E. Dorn: ‘‘Activation energies for creep of high–purity aluminum’’, Acta Metall., **5**(1957), 219–227.
（15）J. Weertman: ‘‘Dislocation climb theory of steady–state creep’’, Trans. ASM, **61**(1968), 681–694.
（16）J. Poirier: ‘‘Is power–law creep diffusion–controlled?’’, Acta Metall., **26**(1978), 629–637.
（17）O. D. Sherby and J. Weertman: ‘‘Diffusion–controlled dislocation creep: A defense’’, Acta Metall., **27**(1979), 387–400.
（18）遠藤孝雄，福富洋志，丸茂敬知，吉田賢次：「アルミニウムの高温変形機構」，日本金属学会誌，47(1983), 1–9.
（19）中島英治，河村伸清，栗下裕明，吉永日出男：「純アルミニウム単結晶の加工硬化率と回復速度」，日本金属学会誌，**50** (1986), 441–448.
（20）H. Oikawa and K. Sugawara: ‘‘Instantaneous plastic strain associated with stress increments during the steady–state creep of Al and Al–5.5 at.pct.Mg alloy’’, Scr. Metall., **12**(1978), 85–89.
（21）T. Kaji, J. Cadek and H. Oikawa: ‘‘Effect of a sudden temperature increase on creep of aluminum at high temperature’’, Acta Metall., **36**(1988), 2259–2266.
（22）H. Nakashima and H. Yoshinaga: ‘‘Transient creep mechanism in pure aluminum at high temperature’’, Trans. JIM, **28** (1989), 644–654.
（23）S. Karashima, T. Iikubo, T. Watanabe and H. Oikawa: ‘‘Transmission electron microscopy of substructures developed during high–temperature creep in alpha–iron’’, Trans. JIM, **12**(1971), 369–374.
（24）T. Hasegawa, Y. Ikeuchi and S. Karashima: ‘‘Internal stress and dislocation structure during sigmoidal transient creep of a copper–16.0 at.% aluminium alloy’’, Metal Sci. J., **6**(1972), 78–82.
（25）H. Oikawa, K. Honda and S. Ito: ‘‘Experimental study on the stress range of class I behavior in the creep of Al–Mg alloys’’, Mater. Sci. Eng., **64**(1984), 237–245.
（26）H. Oikawa, M. Maeda and S. Karashima: ‘‘Variation in type of transient creep curve with applied stress in iron–molybdenum solid solutions’’, Scr. Metall., **6**(1972), 339–344.
（27）F. Cao and T. M. Pollock: ‘‘Creep deformation mechanisms in Ru–Ni–Al ternary B2 alloys’’, Metall. Mater. Trans. A, **39** (2008), 39–64.

及川　洪

★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★

1961年　東北大学大学院工学研究科博士課程修了（工学博士）
1961年―1997年　東北大学工学部勤務．助手，講師，助教授，教授を経て，定年退職（名誉教授）
1998年―2006年　産業技術短期大学学長（名誉教授）
専門分野：高温における材料（基礎）物性，特に金属・固溶体のクリープ変形，合金中の拡散など．

★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★