亜鉛の破壊に及ぼす静水圧の影響

矢島正美* 石井 満* 小林 勝*

Masami Yajima, Mitsuru Ishii and Masaru Kobayashi : The Effect of Hydrostatic Pressure on the Fracture of Polycrystalline Zinc. The pressure-induced brittle ductile transition in polycrystalline zinc was examined, with special reference to the variation of transition pressure with the grain size of specimens. Fracture stress σ_{fr} in the brittle pressure range increases linearly with pressure P applied and is expressed as

$$\sigma_{fr}(P) = \eta P + \sigma_{fr}(0),$$

where a constant η is nearly 0.35 and $\sigma_{fr}(0)$ is the fracture stress at ambient pressure.

The pressure-induced transition has been found to occur when the fracture stress reaches the necking stress σ_n . The variation of transition pressure P_c with grain size comes from the dependence of $\sigma_{fr}(0)$ on grain diameter d of specimens, i.e. $\sigma_{fr}(0) = K_{fr} d^{-1/2}$, where K_{fr} is a constant, and the following relation is established :

$$P_c = \frac{\sigma_n}{\eta} - \frac{K_{fr}}{\eta} d^{-1/2}$$

Generally speaking, P_c does not vary linearly with $d^{-1/2}$, since the necking stress σ_n also depends on grain size. However, within a narrow grain size range in which the variation of σ_n is rather small, P_c satisfies the relation $P_c \propto d^{-1/2}$.

Finally, the rapid or discontinuous increase of ductility of zinc at the transition pressure has been explained on the basis of the previously proposed criterion of ductile fracture, viz. "the constancy of hydrostatic tensile stress".

(Received June 16, 1969)

I. 緒 言

亜鉛、ビスマスなどを引張り試験した場合、常圧では脆性破断するが静水圧下では延性を示すことはすでに Pugh ら⁽¹⁾が報告している。さらに彼らはこれら金属の場合、その延性[†]の静水圧による変化が通常の延性金属の場合と著しく異なることを報告した。すなわち脆性から延性への変

化は急激であり、ある圧力で延性は無限大に達する。この現象を彼らは圧力による脆性 - 延性遷移 (pressure-induced brittle ductile transition) と呼んだ。この現象の特徴はその変化が非連続的であり明らかに遷移圧力が存在すること、遷移圧力以上では非常に大きな延性を示し、単結晶で見られるような chisel point fracture を行ない cup and cone 型の破壊が見られないことである。Pugh ら⁽¹⁾は遷移圧力でこのような急激な延性の増加は亜鉛の加工硬化が小さいために生ずると解釈した。この解釈において彼らは明らかに延性破壊条件として引張り応力一定条件を仮定しているが、Orowan⁽²⁾によればこの仮定は正しくない。遷移

* 株式会社日立製作所中央研究所 (Central Research Laboratory, Hitachi Ltd., Tokyo)

(1) H.L.D. Pugh : NEL Report, No.142, (1964).

† 以下においては延性をひずみ $\ln(A_0/A)$ で表わす。
 A_0 は試験前の試験片断面積、 A は破断後くびれ部の断面積。

圧力については Dower⁽³⁾ が転位論的解釈を行っており、それによれば遷移圧力は温度あるいは結晶粒度により変化する。彼は Stroh⁽⁴⁾ の劈開破壊のモデルを用いており、劈開クラックの成長に関する Stroh の計算において、クラックの開口に伴う容積増加に必要な外力の仕事の項に等方圧縮応力(静水圧)の効果を入れることによりそれを導いている。この理論は遷移圧力直下の脆性域での破壊が劈開脆性破壊である限りは正しい。しかし常温における多結晶亜鉛の破壊が劈開破壊である可能性は乏しく、Dower の遷移圧力に関する転位論的説明が亜鉛の場合に使えるか否かは疑問である。したがって、多結晶亜鉛の圧力による脆性-延性遷移に関する上述の二つの疑問に答えるためには、亜鉛の破壊様式の圧力による変化をより詳細に調べ、とくに結晶粒度の影響を調べる必要がある。

以上のような事実を背景に本報告では、とくに亜鉛につき上述の遷移現象と結晶粒度の関係、脆性域での破壊の圧力による変化を詳細に調べた結果を報告する。本報告では、脆性-延性遷移は脆性破壊応力がくびれ応力(necking stress)に達した時に生ずること、遷移圧力の粒度依存性は常圧における破壊応力の大小からでてくことを述べる。最後に遷移圧力での延性の急激な増加は亜鉛の加工硬化が小さいことを考えれば先に筆者ら⁽⁵⁾が提案した延性破壊の応力条件“等方引張り応力一定条件”より直ちに説明できることを述べる。

II. 試料ならびに実験方法

供試材は 99.99% の純亜鉛で 15 mm ϕ $\times$ 300 mm l 鋳造材である。これを 150°C の oil bath で 30 分加熱した後取り出し、溝ロール加工により 10 mm ϕ の棒に仕上げた。この丸棒から平行部 3.0 or 4.0 mm ϕ $\times$ 20 mm l の丸棒引張り試験片を切り出し、同じく oil bath にて 200~350°C $\times$ 1 hr の熱処理を施して粒度の異なる 4 種類の試料を得た。熱処理温度ならびに試料の結晶粒度は Table 1 に示したとおりである。各試料は 1~3000 kg/cm² の静水圧中で引張り試験を行ない破壊応力、伸び等を測定するが、静

Table 1 Average grain sizes of the test specimens

Procedure	Average grain diameter d in μ
Zn(1) Recrystallized at 200°C for 0.5 hr	15.6
Zn(2) Recrystallized at 250°C for 1 hr	19.3
Zn(3) Recrystallized at 350°C for 1 hr	27.8
Zn(4) Recrystallized at 300°C for 1 hr after 10% prestraining	160

$$\text{Average grain diameter} = \sqrt{\text{Average grain area}}$$

- (2) E. Orowan : Rept. on Progress in Physics, 12 (1958), 185.
 (3) R.J. Dower : Acta Met., 15 (1967), 497.
 (4) A.N. Stroh : Proc. Roy. Soc. London, A 223 (1954), 404.
 (5) 矢島, 石井, 小林 : 塑性と加工, 9 (1968), 847.

水圧下における引張り試験の方法に関しては前報⁽⁶⁾で述べた方法とまったく同一であり、ここではそれを省略する。

III. 実験結果

1. 静水圧下における多結晶亜鉛の変形

Fig.1 は平均結晶粒径 27.8 μ の亜鉛試料 (Zn(3)) に関する結果であり、図に明示した各試験圧力での荷重対伸び曲線の一つ例である。0 kg/cm² は常圧を示し、常圧では約 10% の伸びの後脆性破断する。試験圧力の増大とともに伸びは増加するが、破断の型式は 800 kg/cm² まで同一であり、いずれも絞りを伴わず巨視的には破断面は引張り軸方向に垂直である。一方 1200 kg/cm² 以上では均一伸び変形の後絞り変形が行なわれるようになる。この場合 Photo.1

Fig.1 Load vs. elongation curves of polycrystalline zinc under high hydrostatic pressures

Photo.1 Fracture appearance of polycrystalline zinc as a function of pressure

の破断試料の写真より明らかとなっており、絞りの値は非常に大きく単結晶で見られるような chisel point fracture を示す。これから遷移圧力は 800~1200 kg/cm² の範囲にあるが、この範囲での延性の変化はひずみ $\ln\left(\frac{A_0}{A}\right)$ で表わせばほぼ零から無限大に変化していることになり、延性金属の場合の連続的な変化⁽⁵⁾とは著しく異なることが明らかである。本試料の場合、以上述べたとおり脆性域と延性域の二つの領域が存在し、その間に明確に遷移圧力が存在することが明らかであるが、いずれの領域でも荷重対伸び曲線は同一曲線上に乗り、これより変形応力の圧力による変化はないと断定してよい。すなわち任意の圧力での破壊応力

- (6) 矢島, 石井 : 塑性と加工, 9 (1968), 405.

は一つの応力ひずみ曲線上の一点であることに注目すべきである。

2. 遷移圧力と結晶粒度との関係

Fig. 2 は Table 1 に示した粒度の異なる 4 種類の試料 (Zn (1) ~ Zn (4)) につき圧力による脆性-延性遷移を見たものである。延性の尺度としては通常行なわれるようにひずみ $\ln \frac{A_0}{A}$ を取った。いずれの試料も急激な脆性-延性遷移を示し、遷移圧力は試料の平均結晶粒径 d が大きくなるに従い高圧側に移ることが明らかとなった。結晶粒がもっとも小さく $d=15.6 \mu$ の Zn (1) の遷移圧力は僅かに約 200 kg/cm² であった。これからより細粒な試料では遷移圧力が常圧まで下がってくることが期待できる。一方 $d \approx 2 \text{ mm}$ の粗粒試料 Zn (4) の遷移圧力は 1800 kg/cm² であり、Pugh ら⁽¹⁾の結果 1000 kg/cm² に比しはるかに高い。Pugh らが用いた試料の結晶粒度は明らかではないが、このような相違が主として結晶粒度の差に起因するとすれば、Pugh らの試料は Zn (3) と同一粒度であると予想できる。

Fig. 2 Effect of pressure upon the ductilities of samples with different grain sizes

3. 脆性域における伸びの圧力による変化

脆性域における破壊ひずみの変化はきわめて小さいが、均一伸びが圧力とともに増加することは前述した Zn (3) の結果より明らかであろう。Fig. 3 は粒度の異なる試料につきその均一伸び e の圧力による変化を詳細に見た結果である。常圧の伸びは各試料で異なり、Zn (1) の細粒試料では 20% という大きな値を持つ。一方粗粒試料 (Zn (4)) の伸びは ~1% である。いずれの試料においても脆性域では伸びは試験圧力とともに大幅に増加し、伸びの変化すなわち圧力依存性は各試料ではほぼ同一である。Zn (1) ~ Zn (3) の細粒試料の伸びは遷移圧力直下で ~30% に達する。この値は延性域における均一伸びの値と一致する。また延性域では均一伸びは一定となる。粗粒試料の結果も本質的には、Zn (1) ~ Zn (3) と同様であるが、この場合延性域での伸びがやや小さく、またその値はばらついている。以上より脆性-延性遷移における変化は伸びで見ると連続的であり、

遷移は伸びが局部収縮 (necking) を生ずる値に達したときに生ずると見てよい。

Fig. 3 Effect of pressure upon the uniform elongations of samples with different grain sizes

4. 脆性破壊応力の圧力による変化

Fig. 4 は脆性域における破壊応力 σ_{tr} の変化を見たものである。常圧における各試料の破壊応力は異なるが、いずれの場合も破壊応力は圧力とともに直線的に増加し、その勾配は約 0.35 であって結晶粒度に依存しない。遷移圧力直下では僅かに破壊応力が飽和する傾向を示すが、遷移圧力では大きな絞りを伴って延性破壊を行なうので破壊応力は著しく大きくなるはずである。遷移圧力直下における脆性破壊応力は Zn (1) ~ Zn (3) の細粒試料ではあまり変わらず 16~17 kg/mm² である。一方 Zn (4) の粗粒試料の値は ~11 kg/mm² である。延性域における伸びの値の比較においても Zn (4) は細粒試料に比して劣ったが、これはいわゆる材料の toughness が粗粒試料では劣るためであろう。III. 1. 項でも述べたとおり、変形応力は圧力に依存しないから、前項で述べた脆性域での伸びの変化はここで述べた脆性破壊応力の変化に対応するものと考えてよ

Fig. 4 Variation of fracture stress as a function of pressure for samples with different grain sizes

い。すなわち加工硬化法則として power law を仮定すると脆性域における伸びの値は $\sigma_{fr} = \sigma_0 \epsilon^n$ で与えられるはずである。ここに σ_{fr} は破壊応力であり、 n は加工硬化指数、 σ_0 は定数である。前項で脆性-延性遷移は伸びが局部収縮を生ずる値に達したときに生ずると述べたが、これは破壊応力を用いて表わせば、遷移圧力は破壊応力が局部収縮を生ずる引張り応力、すなわちくびれ応力 (necking stress) σ_n に等しくなるという条件で与えられることを意味する。

IV. 考 察

1. 脆性-延性遷移圧力ならびにその結晶粒度依存性

前節の結果より、多結晶亜鉛の圧力による脆性-延性遷移は結晶粒度に著しく依存し、結晶粒度が大きくなると遷移圧力は高くなることを明らかにした。また遷移における諸性質の変化のうち均一伸びの変化は連続的であり、遷移圧力では伸びが局部収縮を生ずる値に達したときに生ずることを明らかにした。これは破壊応力を用いて表わせば遷移圧力が“破壊応力=くびれ応力”という条件で決められることを意味する。一方、任意の圧力での破壊応力 $\sigma_{fr}(P)$ は圧力 P に比例して直線的に増加するから、その比例定数を η 、常圧の破壊応力を $\sigma_{fr}(0)$ とすれば遷移圧力 P_c は次式より求まる。

$$\sigma_{fr}(P_c) = \eta P_c + \sigma_{fr}(0) = \sigma_n \quad (1)$$

$$P_c = \frac{1}{\eta} (\sigma_n - \sigma_{fr}(0)) \quad (2)$$

これから遷移圧力 P_c の粒度による変化は、 σ_n が粒度に依存しないとすれば常圧の破壊応力 $\sigma_{fr}(0)$ の大小に基づいて出てくるものと見ることが出来る。Fig. 5 は $\sigma_{fr}(0)$ を $d^{-1/2}$ (d : 平均結晶粒径) に対してプロットしたもので、明らかに次式を満足する。

$$\sigma_{fr}(0) \approx K_{fr} d^{-1/2} \quad (3)$$

ここで K_{fr} は定数である。これから (2) 式は

$$P_c = \frac{\sigma_n}{\eta} - \frac{K_{fr}}{\eta} \cdot d^{-1/2} \quad (4)$$

と書くことができる。実際にはくびれ応力 σ_n も粒度に依存するから P_c は $d^{-1/2}$ に比例しない。しかし Zn (1) ~ Zn (3) の細粒試料に関する限り σ_n は粒度にあまり依存せず、

Fig. 5 Grain size dependence of fracture stress of zinc at atmospheric pressure

16~17 kg/mm² であり、 $P_c \propto d^{-1/2}$ は成立つと見てよい。

Fig. 6 は実際に P_c 対 $d^{-1/2}$ のプロットを行なったものであり、粗粒試料 Zn (4) の点を除けば他の点は大略直線に乗ると見てよい。このうち Zn (4) の結果は σ_n が著しく小さいために生じたものである。一方 Table 2 は K_{fr} ならびに各試料の σ_n の値より (4) 式を用いて直接 P_c を計算した

Fig. 6 Grain size dependence of transition pressure of zinc

Table 2 Brittle-Ductile Transition Pressure P_c in Polycrystalline Zinc

	Transition Pressure, P_c	
	Observed	Calculated
Zn (1)	300 kg/cm ²	300 kg/cm ²
Zn (2)	700 kg/cm ²	775 kg/cm ²
Zn (3)	1300 kg/cm ²	1200 kg/cm ²
Zn (4)	2100 kg/cm ²	1950 kg/cm ²

結果であり、実測値との一致は満足すべきものである。以上から、少なくとも多結晶亜鉛の脆性-延性遷移における遷移圧力は“脆性破壊応力=くびれ応力”という条件で決まり、遷移圧力 P_c の結晶粒度依存性はくびれ応力があまり変わらない粒度範囲では $P_c \propto d^{-1/2}$ が成立つが、広い粒度範囲では必ずしもこの関係が成立たないという結論をうる。緒言でも述べたとおり Dower⁽³⁾ は Stroth の劈開破壊のモデルを用いて遷移圧力と結晶粒度の関係を導いた。それによれば遷移圧力は次式で与えられる。

$$P_c = \alpha \sigma_1 - \left\{ \frac{16 G \gamma'}{\pi (1-\nu) K_{fl}} - \alpha K_{fl} \right\} d^{-1/2} \quad (5)$$

ここで σ_1 , K_{fl} は変形応力 σ_1 と結晶粒径 d との関係を表わす Petch の式 $\sigma_1 = \sigma_0 + K_{fl} d^{-1/2}$ 中の常数である。また G , ν , γ' はそれぞれ剛性率、ポアソン比、クラックの表面エネルギーである。 α はすべり面とクラックのなす角を θ とすると、

$$1 \leq \alpha = 1 + \sin\left(\theta - \frac{\pi}{4}\right) \leq 2 \quad (6)$$

で与えられる numerical factor である。Dower の理論は遷移圧力を転位論的に説明している点で意味のあるものであるが、これは脆性域での破壊が劈開破壊である場合のみ適用できるものであることは言をまたない。Dower の理

論で与えられる (5) 式は亜鉛に関し筆者らが実験的に導いた (4) 式と形式的に一致しているが、これは σ_{fr} の粒度依存性と変形応力 σ_{fl} のその類似からくるもので、各項の物理的意味はまったく異なるものである。Dower の理論では P_c は $d^{-1/2}$ に比例しなければならないが、これは前述したとおりあくまでもくびれ応力があまり変わらない粒度範囲で成立つもので、Fig. 6 の結果によれば粗粒試料 Zn (4) は $P_c \propto d^{-1/2}$ の関係から大幅にずれている。また Dower は (5) 式の各項の中のパラメーターの文献値より $\alpha \sigma_1$ ならびに $d^{-1/2}$ の係数を計算して下記の値を得ている。

$$\alpha \sigma_1 \sim 15.3 \text{ kg/mm}^2$$

$$\left\{ \frac{16 G \gamma'}{\pi (1-\nu) K_{fl}} - \alpha K_{fl} \right\} \sim 5.36 \text{ kg/mm}^{3/2}$$

一方下記の値は、 $P_c \propto d^{-1/2}$ を満足する Zn (1) ~ Zn (3) につき (4) 式の第 1 項と $d^{-1/2}$ の係数とを実験的に求めたものである。

$$\left. \begin{aligned} \frac{\sigma_n}{\eta} &= 48 \sim 51 \text{ kg/mm}^2 \\ \frac{K_{fr}}{\eta} &= 5.97 \text{ kg/mm}^{3/2} \end{aligned} \right\}$$

上の値のうち $\frac{\sigma_n}{\eta}$ は、それに対応する Dower の値と著しく異なっていることが明らかであろう。以上から多結晶亜鉛の場合の圧力による脆性-延性遷移は Dower の理論では説明できないものであることが明らかである。

2. 脆性域における破壊応力の圧力依存性

脆性域での破壊応力は圧力とともに直線的に増加し、その勾配は試料の結晶粒度とは無関係に ~ 0.35 であることが明らかとなった。すなわち、

$$\sigma_{fr}(P) = 0.35 P + \sigma_{fr}(0) \quad (7)$$

ここで $\sigma_{fr}(0)$ は常圧での破壊応力である。

破壊が Griffith 条件で決まるとすれば、 $P < \sigma_1$, σ_1 : 有効引張り応力の範囲では応力条件としては引張り応力一定条件で破壊するはずである。すなわち、破壊応力 σ_{fr} は

$$\sigma_{fr}(P) - P = \sigma_{fr}(0) \quad (8)$$

また単純な Zener-Stroh の劈開破壊のモデルに従えば剪断応力条件だけで規定されることになり静水圧は関与しないことになる。その他の転位論のモデルを考えた場合には、剪断応力の他に垂直応力も寄与することになるが、この場合にも外応力条件としては

$$\sigma_{fr}(P) - P = \text{const.} \quad (9)$$

となる。いずれにしても実験結果である (7) 式は以上のような応力条件とは一致しない。一方数値的には (7) 式は主ひずみ一定条件と一致している。すなわち、引張り軸方向の弾性ひずみ $\epsilon_1 = \{\sigma_1 - \nu(\sigma_2 + \sigma_3)\}/E$, E は縦弾性係数, ν はポアソン比において $\sigma_1 = \sigma_{fr} - P$, $\sigma_2 = \sigma_3 = -P$ とおき、主ひずみ一定条件を入れれば破壊応力 $\sigma_{fr}(P)$ は次式で与えられる。

$$\sigma_{fr}(P) = (1 - 2\nu) P + \text{const.} \approx 0.35 P + \text{const.} \quad (10)$$

3. 遷移圧力における急激な延性の増加

多結晶亜鉛の圧力による脆性-延性遷移現象の一つの特徴は、遷移圧力における延性の非連続的変化、すなわち非常に急激な増加である。この延性域における現象はこれまで考察してきた脆性域の現象とは無関係であると考えてよい。Pugh⁽¹⁾は延性の急激な増加が亜鉛の加工硬化が小さいために生ずると解釈した。この解釈の中で Pugh は延性破壊の条件として引張り応力一定条件を仮定している。すなわち圧力 P で引張ると破壊応力として P だけ高くなるが、その分だけ破壊ひずみは大きくなる。破壊ひずみ増加分 $\Delta \epsilon_{fr}$ は linear work hardening を仮定すれば、

$$\Delta \epsilon_{fr} = P / \frac{d\sigma}{d\epsilon} \quad (11)$$

であり、加工硬化係数 $\frac{d\sigma}{d\epsilon}$ に逆比例することになる。亜鉛の加工硬化が通常の金属に比較して著しく低いことは、Pugh⁽¹⁾が実際に測定して確認している。

しかし、Orowan⁽²⁾によれば延性引張り破壊は引張り応力条件によって決まらないから、Pugh が用いた仮定は正しくない。一方、著者⁽⁵⁾はすでに多くの金属、合金の延性破壊は等方引張り応力一定条件に従うことを明らかにした。それによれば静水圧下の引張り変形における延性増加の圧力係数は

$$\left(\frac{d\epsilon_{fr}}{dP} \right) \propto 1 / \frac{d\sigma}{d\epsilon} \quad (12)$$

これは圧力による延性の増加の速さが加工硬化係数に逆比例することを意味しており、亜鉛の加工硬化係数が小さいことを考えれば遷移圧力で亜鉛の延性が急激に増加することを説明できる。これは Pugh の解釈と定性的には一致しているが、延性破壊条件としてより合理的なものを使っている点に注目すべきである。最後に亜鉛の加工硬化が著しく小さい理由は現在明確ではないが、著者は回復による軟化が主原因であると考える。

V. 結 言

多結晶亜鉛は静水圧下において急激な脆性-延性遷移を示し、遷移圧力において延性は零から無限大に非連続的に変化する。本報告では特にこの現象と結晶粒度の関係、脆性域での破壊応力の圧力による変化を詳細に調べ、遷移圧力が何で決まるかを明らかにした。以下その結果を要約する。

まず破壊応力 σ_{fr} は脆性域で圧力 P とともに直線的に増加し、 $\sigma_{fr}(P) = \eta \cdot P + \sigma_{fr}(0)$, η は定数、遷移圧力ではくびれ応力、 σ_n に達する。この破壊応力の増加に対応して均一伸びは増加し、遷移圧力では局部収縮 (necking) を生ずる値に達し、それ以後は一定となる。これから、伸びの変化で見限りその変化は遷移の前後で連続的であり、遷移圧力

(7) N.F. Mott: Engineering, 165 (1948), 16.

$$\uparrow \epsilon_{fr} = \ln \left(\frac{A_0}{A} \right)$$

は“破壊応力=くびれ応力”という条件で与えられることが明らかとなった。遷移圧力は結晶粒度に大きく依存するが、これは常圧での破壊応力の結晶粒度依存性 $\sigma_{fr}(0) = K_{fr} d^{-1/2}$ からでてくるもので、上の条件より遷移圧力 P_c は一般に次式で与えられる。

$$P_c = \frac{\sigma_n}{\eta} - \frac{K_{fr}}{\eta} d^{-1/2}$$

一般にはくびれ応力 σ_n も粒度に依存するから、 P_c は $d^{-1/2}$ に比例しない。しかし σ_n があまり変わらない粒度範囲では近似的に P_c は $d^{-1/2}$ に比例することになるが、実際にある

狭い粒度範囲では P_c は $d^{-1/2}$ に比例し、また上の式より求めた P_c の計算値は実測値と一致した。次に上で述べた σ_{fr} と P に関する実験式において η は 0.35 であり、この式は主ひずみ一定条件と一致する。

最後に遷移圧力での延性の急激な増加は、延性破壊の条件として“等方引張り応力一定条件”を仮定し、亜鉛の加工硬化が小さいことを考えれば説明できることを示した。

終りにのぞみ、有益な御討論をいただいた東京工業大学の中村正久教授に厚く感謝の意を表します。