α 鉄の遷移クリープにおよぼす温度および応力の影響

村 田 威 雄* 今 井 勇之進**

Takeo Murata and Yunoshin Imai: Effects of Temperature and Stress on Transient Creep of Alpha Iron. The transient creep characteristics of polycrystalline alpha iron were investigated mainly at temperatures ranging from 500 to 650°C using the constant stress creep equipment with a servo divider and the rapid heating method developed newly for determining the activation energy for transient creep. The results obtained are summarized as follows: (1) The transient creep strain exhibits a normal time dependence and inverted transient creep has not been observed. The stress dependence of the initial creep rate, V_i , which is the rate just after applying a load is larger than that of the steady-state creep rate, V_s , and the value of V_i/V_s increases as the stress increases within the range up to about twice the 0.01% offset stress. (2) Of some proposed equations for creep-time relation, an equation based on the assumption given by Akulov satisfies the experimental results fairly well. The calculated values of the creep rate approximate the experimental ones at the creep strain more than 1%. (3) The activation energy for transient creep depends on the creep strain. The dependence will be divided into three regions at 700°C as reported previously. However, the first region is not observed at 800°C, and the values of the activation energy obtained at the creep strain of nearly zero are smaller than that of self-diffusion on the contrary to the results at 700°C.

(Received May 27, 1974)

I. 緒 言

鉄の高温クリープに関しては多くの報告^{(1)~(20)}があり、実用鋼のクリープまで含めるとぼう大なものになる。しかし、クリープ歪の小さな範囲でその値を正確に測定した例は非常に少ない。 α 鉄の初期クリープ速度 V_i の温度、応力依存性がどの程度なのかという基本的な問題でさえ、まだほとんど手がつけられぬままに残されている現状である。実用鋼においては、1% という小さなクリープ歪が問題になることがあるから、このような歪の小さな範囲で α 鉄の遷移クリープを測定し、基礎的な知識を得ることは、実用的にはなほ重要であると思われる。

一方、遷移クリープの曲線については種々の関数が報告されており^{(21)~(23)}、また、その理論的な取扱についてもさかんに研究が行なわれている^{(24)~(31)}。古い理論のなかには加工硬化、回復などを考慮しなかったものもあったが、近年転位の直接観察がさかに行なわれ、転位密度のクリープ歪依存性、転位速度の応力依存性などが測定されるようになってから、この実験事実を基礎にした理論が展開されるようになった^{(26)~(31)}。このいわゆる半経験的な理論式には種々の形式のものがあつた。理論値と実験値とは互いに良く一致するといわれている。しかし、種々の関数について全般的に比較、検討した例は少なく、 α 鉄の遷移

クリープに関しては古くから放物線則が成立つといわれているに留まっている。 α 鉄の遷移クリープを理解する一つの手がかりを得るためには、まず、そのクリープ曲線に良く適合する関数を見出す必要があると考えられる。

そこで、本報では上述の二つの観点から、 α 鉄の定応力クリープ試験を主に 500~650°C の温度範囲で行ない、 V_i の温度および応力依存性を求め、種々の関数の適合性を検討した。

II. 実験 方 法

試料は電解鉄を水素ガス雰囲気(圧力 100 Torr)の中で溶解したものであつて 1 回の溶解量は 15 kg である。鋼塊(平均直径 75 mm, 長さ 325 mm)を熱間鍛造、圧延して厚さ 7 mm, 幅 22 mm の板材とし、その表面を平面研磨した後厚さ 2 mm まで冷間圧延した。冷間圧延材の圧延面は反るのが普通であるから、その面を平にするために圧延材を試験片の長さで切断し、厚さ 10 mm の 2 枚の鉄板ではさんで 600°C で 3 hr 焼なました後、引張型のクリープ試験片(Fig. 1)に仕上げた。その後、最終の熱処理(800°C×3 hr→FC)を行ない、試験前に試験片の表面を化学研磨^{††}して酸化層、キズなどを除去した。試験片の化学分析値(wt%)は、0.003 C, 0.002 N, 0.017 O, 0.005 Si, 0.005 P, 0.003 S であつて Mn は 0.003 以下であつた。最終熱処理後のフェライト結晶粒の平均直径は約 30 μ m であり、室温でのビッカース硬さ(5 kg)は約 68 であつた。定応力

* 東北大学金属材料研究所(The Research Institute for Iron, Steel and Other Metals, Tohoku University, Sendai)

** 東北大学金属材料研究所, 現在 東北大学名誉教授(The Research Institute for Iron, Steel and Other Metals, Tohoku University, Sendai. Now, Emeritus Professor of Tohoku University)

† クリープ歪 = 0 におけるクリープ速度。

†† HF(濃度 46%) 28 cc, H₂O₂(濃度 30%) 470 cc, H₂O 56 cc.

Fig.1 Specimen for creep tests. The strain is detected at the projection, P.

クリープ試験機については先に報告した⁽³²⁾ので省略する。クリープ試験の雰囲気はすべて約 10^{-5} Torr の真空とした。 V_i を測定するためには負荷の条件を一定にする必要がある。定荷重速度により引張試験を行ない、応力の値がクリープ試験応力に達した時直ちに試験機の機能を定応力クリープ試験に切換えるという方法を用いた。 V_i の値はクリープ曲線の $t=0$ における接線勾配を求めて得た。この誤差は測定値の約 25% である。クリープ歪の測定範囲は 0.1 までであるが、試験後の試験片のくびれはわずかで、その中央部の断面積は標点間の両端の値に比べて最高 2%、平均 1.2% 小さいにすぎない。したがって、定応力の条件はほぼ満されていると見なす。

III. 実験結果および考察

1. α 鉄のクリープ曲線におよぼす温度および応力の影響

Fig.2~Fig.5 にクリープ曲線を示す。いずれの曲線においてもクリープ速度はクリープ歪の増加とともに単調に減少し、 α 鉄の単結晶に見出されている逆遷移現象⁽¹⁷⁾は全く認められない。Fig.6 に V_i および 定常クリープ速度 V_s の応力依存性を示す。500 および 550°C においては実験点が一直線上にのり、応力指数の値は V_i の場合の方が大きい。一方、600°C では応力の小さな範囲で実験点が一直線上から外れる傾向を示している。同様な傾向は Armco 鉄の最小クリープ速度の応力依存性にも認められている⁽¹²⁾。Fig.6 において、600°C の V_i と V_s の実験点を互

Fig.2 Creep curves of alpha iron at 500°C. Stresses (kg/mm²) are shown close to the curves and in parenthesis at time axis.

Fig.3 Creep curves of alpha iron at 550°C. Stresses (kg/mm²) are shown close to the curves and in parenthesis at time axis.

Fig.4 Creep curves of alpha iron at 600°C. Stresses (kg/mm²) are shown close to the curves and in parenthesis at time axis.

Fig.5 Creep curves of alpha iron at 650°C. Stresses (kg/mm²) are shown close to the curves and in parenthesis at time axis.

いに比較すると判るように、この温度においても V_i の応力依存性は V_s のそれよりも大きい傾向を示す。Fig. 7 に V_i および V_s のアレニウスプロットを、Table 1 に V_i および V_s の見かけの活性化エネルギーを示す。Fig. 7 より知られるように、 V_i は V_s の場合と同様に応力(カッコ内

の数字) に関係無くアレニウス型の式を満足している。この図から求めた V_s の見かけの活性化エネルギーは、 α 鉄のキュリー点以下における自己拡散の活性化エネルギー ΔH_{SD} の値、60 kcal/mol⁽³³⁾ にほぼ一致している。一方、この実験の範囲においては V_i の見かけの活性化エネルギーは応力が小さくなると増大し、 ΔH_{SD} の値に比べて大きくなる。

Table 1 Apparent activation energies (kcal/mol) for V_i and V_s .

Constant	Stress (kg/mm ²)		
	2.0	3.0	4.0
V_i	87.6 $\pm$ 7.6	67.1 $\pm$ 3.2	58.0 $\pm$ 6.2
V_s	57.8 $\pm$ 0.3	64.0 $\pm$ 1.5	57.5 $\pm$ 0.4

Fig. 6 Stress dependence of V_i and V_s . The values of V_i at 600°C are multiplied by 0.1.

Fig. 7 Temperature dependence of V_i and V_s . The testing stresses (kg/mm²) are shown in parenthesis. The values of V_i at 3.0 and 4.0 kg/mm² are multiplied by 0.1.

2. α 鉄の遷移クリープと定常クリープとの関連性

遷移クリープは定常クリープの前駆過程であるから、 V_i と V_s との間にはある特定の関係が存在すると期待できる。Table 2 に V_i/V_s の値を示す。この表から知られるように、0.01% オフセット応力 ($\sigma_{0.01}$)、またはそれ以上のあまり応力の大きくない条件下 ($<2\sigma_{0.01}$) においては、応力が大きくなると V_i/V_s の値は増大する傾向を示す。Evans らの結果⁽¹¹⁾によれば、540°C、3.9~7.0 kg/mm² の試験条件下では V_i/V_s は 5.3~12.0 の範囲にあり、応力が増大すると減少する傾向を示している。この値は本実験で得た値に比べて小さい。しかし、Table 2 から知られるように、応力がオフセット応力に比べてかなり大きい場合には V_i/V_s の値が応力の増加にともない減少する傾向を示す。この傾向は Evans らが得たものと同じである。

3. クリープ曲線に対する種々の関数の適合性

従来の代表的な関数は Table 3 に示すように、放物線型式(1)、(2)、指数型式(4)の他に半経験的な理論によるもの式(5)~(7)がある。 α 鉄の遷移クリープに対する各関数の適合性を調べる目的から、各関数の未知数の最適値を最小 2 乗法[†]により決定してクリープ歪の計算値 ϵ_{cal} を求め、この値と実測値 ϵ_{exp} との差を確率誤差

$$r = 0.6745 \sqrt{\sum (\epsilon_{exp} - \epsilon_{cal})^2 / (n - q)}$$

で表わすと Table 3 に示すように 10^{-4} のオーダーの値が得られる。ただし、 n はクリープ歪の測定数で 20~60 程度であり、 q は未知数の数である。まず、各未知数の温度、応力依存性について簡単に述べておく。放物線型の式、あるいは Andrade の式[式(3)]の場合には β は温度が高く、または応力が大きいほど大きな値を示し、また m は 0.5~

† Table 3 に示した関数はすべて非線形であるから、これを線形化した後、間接測定法によって各未知数の最適値を求める。この方法の詳細については文献(34)の 144 頁を参照されたい。

Table 2 Effects of temperature and stress on V_i/V_s .

Temperature (°C)	Stress (kg/mm ²)								
	0.01% offset	0.5	1.0	1.5	2.0	3.0	4.0	4.5	5.0
500	2.9	—	—	—	—	19.5	24.2	47.7	45.0
550	2.5	—	—	—	5.1	16.9	45.1	—	—
600	1.7	—	—	22.0	28.5	35.5	35.7	—	—
650	1.2	—	3.4	41.0	37.5	—	—	—	—
700	0.9	1.7	2.2	28.6	11.7	—	—	—	—

Table 3 Creep strain-time relation and deviation between the strain observed and that calculated.

No.	Function	Number of constant	Probable error ($\times 10^4$)	Ref.
1	$\epsilon = \beta \cdot t^m$	2	4.4	(22)
2	$\epsilon = \beta \cdot t^m + V'_s \cdot t$	3	1.0	(22)
3	$\epsilon = \ln(1 + \beta t^{1/3}) + V'_s \cdot t$	2	5.3	(21)
4	$\epsilon = V'_s \cdot t + A_1 \{1 - \exp(-t/T_1)\} + A_2 \{1 - \exp(-t/T_2)\}$	5	2.1	*
5	$\epsilon = V'_s \cdot t + \frac{V'_s}{k_1} \ln \left[1 + \frac{V'_i - V'_s}{V'_s} \{1 - \exp(-k_1 \cdot t)\} \right]$	3	3.2	(27)
6	$\epsilon = V'_s \cdot t + D \cdot \ln f + \frac{C(1-B) \{1 - \exp(-R' \cdot t)\}}{f}$ $f = B + (1-B) \exp(-R' \cdot t)$	5	3.0	(30)
7	$t = \epsilon/V'_s + C_1 \{1 - \exp(-k \cdot \epsilon)\}$	3	1.5	**

* The equation is obtained assuming a dashpot and two Voigt elements connected in series.

** The equation will be obtained by solving a differential equation proposed by Akulov⁽²⁸⁾.

0.9 の範囲にあり、応力が大きくなると減少する傾向を示している。指数型の式の場合には、 T_1 および T_2 は応力が大きくなると減少し、またアレニウス型の式を満足する。一方、Li の式〔式(5)〕では k_1 は応力が大きくなると増加し、またアレニウス型の式を満足する。Webster の式〔式(6)〕において、 B は Li の式の V'_i/V'_s に相当し、応力の増加または温度の上昇にともない大きくなる。 R' は Li の式の k_1 に相当し、 k_1 と同じ応力および温度依存性を示す。また C は負の値をとり、いちじるしい応力および温度依存性を示さない。Akulov の仮定による式〔式(7)〕はつぎの方程式の解である。

$$d\rho/d\epsilon = k\rho - k'\rho^2$$

$$d\epsilon/dt = \rho b v$$

ただし、 k, k', v はクリープ歪に依存しない定数である。 k の応力および温度依存性は V'_i または V'_s のそれに比べて小さく 4~40 程度の値をとる。

つぎに、 α 鉄の遷移クリープに対する関数の適合性について述べる。Table 3 より知られるように、式(2)または式(7)によるクリープ歪の計算値は実験値とかなりよく一致しており、その差は 10^{-4} ~ 1.5×10^{-4} にすぎない。一方、クリープ速度に関しては、その値を実験的に正確に求めることが困難であり、たとえば定常クリープ段階においてもクリープ速度の測定値には 30% 程度のバラツキが見られ

る。そこで、実験値と計算値との違いが高々 30% ならば両者はほぼ近似していると見なすと、このような近似が得られるクリープ歪の範囲は、式(2)または式(7)の場合約 1% 以上（ただし、約 9% までのクリープ曲線により未知数を定めたとき）に限られる。それ以下の小さなクリープ歪の範囲では式(2)による計算値が実験値より大きく、 V'_i の計算値 V'_i は無限大となる。式(7)によれば V'_i の値は

$$C_1 = (1/V'_i - 1/V'_s)/k$$

の式より求めることができるが、実験値の $1/2 \sim 1/3$ でありかなり小さい。すなわち、式(7)は瞬間歪直後のクリープ速度をやや小さく見積るが、未知数の数は 3 と少く、クリープ歪および速度（ただし $\epsilon > 1\%$ ）をかなり正確に表現することから、 α 鉄の遷移クリープに比較的良く適合する関数と見なすことができる。

4. 遷移クリープの活性化エネルギー

従来の研究によれば、クリープの活性化エネルギーは、2.49% 以上のクリープ歪の範囲ではクリープ歪に依存しないといわれていた⁽¹⁶⁾が、Fig. 8 に示すように、700°C 近傍で得たクリープの活性化エネルギーは三つの領域から成るクリープ歪依存性を示し、クリープ歪が零に近い部分では自己拡散の活性化エネルギーに比べて大きい⁽³⁵⁾。このよ

うな低クリープ歪領域におけるクリープの活性化エネルギーは試験温度が高くなると減少する傾向を示し、Fig.9に示すように、800°C 近傍では逆に自己拡散のそれよりも小さく、クリープ歪が増加すると大きくなり、極大値を示した後徐々に減少する。このように、活性化エネルギーとクリープ歪との関係が温度によって異なり、800°C の場合には領域1が全く認められないのは、最小の活性化エネルギーの認められるクリープ歪 $\epsilon_{\min}$ が高温では非常に小さくなるからであると考えられる。

Fig.8 Relationship between the activation energy for transient creep and the creep strain at 700°C.

Fig.9 Relationship between the activation energy for transient creep and the creep strain at 800°C.

ところで、Zener-Holloman のパラメーター

$$Z = \dot{\epsilon} \exp(\Delta H_c / RT)$$

を用いると、 ΔH_c を適当に定めることにより種々の温度における $\dot{\epsilon}$ - ϵ 曲線を 1 本の Z - ϵ 曲線で表わすことができる。すなわち、試験温度が異なってもクリープ歪 ϵ が等しければ、アレニウス型の式

$$\dot{\epsilon} = A \exp(-\Delta H_c / RT)$$

の係数 A も等しいと仮定すると、 ΔH_c の値はクリープ歪に依存しないという結果が得られる。 α 鉄の場合、 $\Delta H_c =$

70 kcal/mol とおいて $\dot{\epsilon}$ - ϵ 曲線を Z - H パラメーターで整理した結果⁽¹⁶⁾が報告されている。この結果によると、クリープ歪が約 2.5% 以上の範囲においては一定のクリープ歪における Z の値が温度にあまり依存せず、互いにはほぼ一致している。そこで、つぎにさらにクリープ歪の小さい範囲で得た $\dot{\epsilon}$ - ϵ 曲線の温度依存性について検討を加える。

Fig.10 に $\dot{\epsilon}$ - ϵ 曲線を示す。この曲線より ΔH_c の値を求めるために、(1) 600~700°C の間には相変態が存在しないので ΔH_c の温度依存性は無視しうるほど小さく、かつ、

Fig.10 Relationship between the creep rate and the creep strain.

(2) クリープ歪が一定であれば、組織、すなわち、係数 A の値も温度によらず一定であると仮定する。Fig.10 に示す曲線が互いにやや平行であることから知られるように、 ΔH_c の値はクリープ歪に関係なく一定であり、新しい急速加熱法によって得た傾向と異なった挙動を示す。この違いはクリープ歪の小さな範囲でいちじるしい。そこで、低クリープ歪領域においては、先述の(1)、(2)の仮定に問題があると思われる、それが原因で ΔH_c の値が低目に見積られたと考えられる。とくに仮定(2)の妥当性には問題がある。すなわち、瞬間歪は応力が一定のとき高温になるほど大きくなるから試験片の全歪(瞬間歪+クリープ歪)は当然のことながらクリープ歪が同じであっても温度によって異なる。したがって、種々の温度において同一の応力により同一のクリープ歪を試験片に与えてもクリープ歪の小さな範囲では組織が互いに異なると考えられる。このように(2)の仮定には問題があるから、この仮定により得た ΔH_c をクリープの活性化エネルギーと呼ぶことはできないと思われる。

一方、新しい急速加熱法⁽³⁵⁾によれば、温度変化の範囲は約 5°C と狭く、この範囲では先述の(1)の仮定が十分に成立っており、また加熱速度がいちじるしく速く(約 500°C/sec)、かつ昇温時間は 1/100 sec と非常に短いことから温

度上昇にともなう係数 A の変化は従来の場合に比べてかなり小さいものと思われる。したがって、この方法により得た ΔH_c の値はクリープの活性化エネルギーという物理的意味を持つものであると思われるが、そのクリープ歪依存性の原因については今後の研究によって明らかにされる必要がある。

IV. 総 括

多結晶 α 鉄の定応力クリープ試験を主に 500~650°C の温度範囲で行ない、遷移クリープの諸特性の温度および応力依存性を調べ、さらに新しい急速加熱法により遷移クリープにおけるクリープの活性化エネルギーを測定した。得られた結果はつぎのように要約される。

(1) α 鉄の遷移クリープは一般的な傾向 ($\epsilon < 0$) を示し、逆遷移クリープ現象は認められない。応力が $1.5 \cdot \sigma_{0.01}$ より小さい範囲では瞬間歪直後のクリープ速度 V_i は定常クリープ速度 V_s に比べて大きな応力依存性を示し、 V_i/V_s の値は応力の増加にともない増大するが、応力の大きい範囲 (約 $1.5 \sigma_{0.01}$ 以上) では逆に減少する傾向がある。

(2) クリープ曲線は従来のいくつかの式のうち、Akulov の仮定に基づく式

$$t = \epsilon / V_s + C_1 \{1 - \exp(-k \epsilon)\}$$

によって比較的良く近似される。クリープ歪が 9% までのクリープ曲線によって V_s , C_1 , k の未知数を最小 2 乗法で定めた場合、クリープ歪の計算値は実験値にほぼ一致し、また、クリープ速度の計算値はクリープ歪が 1% 以上の範囲において実験値に近似する。

(3) 遷移クリープの活性化エネルギーはクリープ歪依存性を示す。700°C においては、クリープ歪の増加にともない領域 1, 2 および 3 のクリープ歪依存性が順に現われるのに対して、800°C では領域 2 および 3 のみが認められ、クリープ歪が零に近い範囲では活性化エネルギーの値が自己拡散のそれよりも小さくなる。

終りに、本研究を行なうに当たり、有意義な御助言を寄せられた東北大学金属材料研究所 増本 健教授、実験に協力された同 木村久道氏、およびクリープ試験片の製作を担当された同付属工場平削係 佐藤誠一氏に深く感謝します。

文 献

- (1) J.J.Kanter and L.W.Spring : Proc. ASTM, **30** (1930), 110.
- (2) 山口桂次, 中村晃三: 理化学研究所彙報, **14** (1935), 76.
- (3) P.Feltham : Proc.Phys.Soc., **B 66** (1953), 865.
- (4) O.D.Sherby and J.L.Lytton : J.Metals, **8** (1956), 928.
- (5) C.Crussard and R.Tamhankar : Trans.Met.Soc. AIME, **212** (1958), 718.
- (6) D.McLean and K.F.Hale : *Structural Processes in Creep*, Iron and Steel Inst., (1961), 19.
- (7) F.Garofalo, L.Zwell, A.S.Keh and S.Weissmann : Acta Met., **9** (1961), 721.
- (8) I.A.Gindin and Ya.D.Starodubov : Phys. Met. and Metallog., **18** (1964), No.5, 118.
- (9) R.K.Steele and M.J.Donachie : Trans. Quarterly (ASM), **58** (1965), 273.
- (10) Y.Ishida, C-Y.Cheng and J.E.Dorn : Trans. Met.Soc.AIME, **235** (1966), 964.
- (11) W.J.Evans and B.Wilshire : Trans. Met. Soc. AIME, **242** (1968), 1303.
- (12) J.Cadek, M.Pahutová and P.Ryš : Phys. Status Solidi, **36** (1969), 345.
- (13) J.Čadek, M.Pahutová, K.Ciha and T.Hostinsky : Acta Met., **17** (1969), 803.
- (14) P.W.Davies and K.R.Williams : Acta Met., **17** (1969), 897.
- (15) V.Sklenička and J.Čadek : Z.Metallk., **61** (1970), 575.
- (16) K.L.Murty, M.Gold and A.L.Ruoff : J.Appl. Phys., **41** (1970), 4917.
- (17) T.Iikubo, H.Oikawa and S.Karashima : Scripta Met., **5** (1971), 837.
- (18) S.Karashima, T.Iikubo, T.Watanabe and H.Oikawa : Trans.JIM, **12** (1971), 369.
- (19) A.Orlová, M.Pahutová and J.Čadek : Phil.Mag., **25** (1972), 865.
- (20) S.Karashima, T.Iikubo and H.Oikawa : Trans. JIM, **13** (1972), 176.
- (21) E.N.da C. Andrade : Proc.Roy.Soc., **A 84** (1910), 1.
- (22) F.Garofalo : *Fundamentals of Creep and Creep-Rupture in Metals*, The Macmillan Company, (1965), 10.
- (23) J.B.Conway and M.J.Mullikin : Trans.Met.Soc. AIME, **236** (1966), 1496.
- (24) N.F.Mott : Phil.Mag., **44** (1953), 742.
- (25) C.Crussard : Trans.ASM, **57** (1964), 779.
- (26) W.G.Johnston : J.Appl.Phys., **33** (1962), 2716.
- (27) J.C.M.Li : Acta Met., **11** (1963), 1269.
- (28) N.S.Akulov : Acta Met., **12** (1964), 1195.
- (29) B.Reppich, P.Haasen and B.Ilschner : Acta Met., **12** (1964), 1283.
- (30) G.A.Webster : Phil.Mag., **14** (1966), 775.
- (31) J.J.Gilman : Proc.5th U.S.National Congr.Appl. Mech., ASME, (1966), 385.
- (32) 今井勇之進, 村田威雄 : 金属学会誌, **33** (1969), 1359.
- (33) F.S.Buffington, K.Hirano and M.Cohen : Acta Met., **9** (1961), 434.
- (34) 本間 仁, 春日屋伸昌 : 次元解析・最小 2 乗法と実験式, 応用数学講座第 5 巻, コロナ社, (1956).
- (35) 村田威雄, 今井勇之進 : 金属学会誌, **38** (1974), 1154.