モリブデンの応力緩和曲線の形状と力学的状態方程式

田上 耕司* 中野 修** 松田日出彦*

J. Japan Inst. Metals, Vol. 45, No. 6 (1981), pp. 566~574

The Shape of Stress Relaxation Curves and the Mechanical Equation of State in Molybdenum

Koji Tanoue*, Osamu Nakano** and Hidehiko Matsuda*

It is experimentally ascertained that any stress relaxation curve, obtained from stress relaxation tests by a monotonic loading mode and plotted as $\log \sigma$ vs $\log \dot{\epsilon}$, can be translated (scaled) in a particular direction so that it will coincide with the overlapping segment of any other stress relaxation curve, and that a linear relationship holds for scaling. The effects of (1) cyclic loading, (2) imposed strain rates, (3) impurities and (4) grain sizes as various factors on the shape of stress relaxation curves and the scaling parameter, $m = \langle \partial \ln \dot{\epsilon} / \partial \ln \sigma \rangle$, obtained as a reciprocal of the slope on scaling are investigated. Any stress relaxation curve is concave upward and the linear relationship holds for scaling with the exception of fatigue tests and single crystals. The measured values of m depend on impurities and temperature, but are independent of the other factors. Then, the physical meaning of the scaling locus is discussed referring to the experimental results. It is shown that the locus of translation can be attributed to the relation between the pre-exponential term $\dot{\epsilon}_0$ and the maximum internal stress σ_i^0 , and that the mechanical equation of state, $f\{\dot{\epsilon}, \sigma, (\dot{\epsilon}_0, \sigma_i^0), T\} = 0$ holds for the arbitrary value of $(\dot{\epsilon}, \sigma, T)$ under the present conditions of measurements, provided the scaling is possible.

(Received November 21, 1980)

I. 緒 言

応力緩和試験より得られる応力 σ と塑性歪速度 $\dot{\epsilon}$ との関係は応力緩和試験 (SRT) 中の塑性歪み ϵ が非常に小さい ($\epsilon < 0.2\%$) ので、内部構造がほぼ一定の条件下での σ と $\dot{\epsilon}$ の関係と見なすことができる。そして、 σ と $\dot{\epsilon}$ を両対数表示した曲線 (constant hardness 曲線と呼ばれており、以後応力緩和曲線はこの意味で用いる) は温度と応力緩和開始までに与えられた ϵ によってその形状を変化させる。低温変形 ($T < 0.25T_m$, T_m は融点) の場合には応力緩和曲線の形状は下に凸になるが、それ以上の高温変形領域 ($T > 0.25T_m$) では上に凸になることが知られている⁽¹⁾。また ϵ の増加につれて、低温変形では曲線の曲率とその傾きが小さくなるのに対して、高温変形では逆に ϵ の減少につれて、この傾向が現われる。しかし、いずれの温度領域においても多結晶材料の応力緩和曲線群は平行移動によって 1 本の曲線に重ね合わせることができ、しかもその平行移動の軌跡は直線であることが実験的に確かめられている^{(1)~(4)}。高温変形領域における平行移動の直線の傾き μ から得られるパラメーター $m (=1/\mu)$ は高温クリープの指数 n と一

致することが Al で報告されており⁽²⁾、平行移動の軌跡は定常クリープ状態での σ と $\dot{\epsilon}$ の軌跡であると考えられている⁽¹⁾。

低温変形の場合の平行移動の解釈に対しても 2, 3 の報告例がある。Hart⁽⁵⁾ は SRT 中の歪速度が Gilman⁽⁶⁾ の実験式、

$$\dot{\epsilon} = \alpha \rho_m \nu_1 \exp(-\sigma_0/\sigma) \quad (1)$$

で与えられると仮定した。ここに α は方位因子、 ρ_m は運動転位密度、 ν_1 は頻度因子、 σ_0 は構造によって決まるパラメーターである。そして、SRT 中に ρ_m, ν_1, σ_0 が一定であると仮定して、式 (1) から次式を得ている。

$$\left(\partial \ln \dot{\epsilon} / \partial \ln \sigma \right)_{\epsilon} = \sigma_0 / \sigma = 1/\lambda \quad (2)$$

ここに $\lambda [= (\partial \ln \sigma / \partial \ln \dot{\epsilon})_{\epsilon}]$ は応力緩和曲線上の傾きとして得られる歪速度依存因子である。さらに、応力緩和曲線群の平行移動の関係が成立する場合には次式、

$$\mu = 1/m = (\partial \ln \sigma / \partial \ln \dot{\epsilon})_{\lambda} \quad (3)$$

が満足されねばならない。ここで δ は応力緩和曲線群の λ が一定となる平行移動の軌跡上における $\ln \sigma$ と $\ln \dot{\epsilon}$ の変

* 九州工業大学金属加工学科 (Department of Metal Processing Engineering, Kyushu Institute of Technology, Kitakyushu)

** 九州工業大学大学院 (Graduate School, Kyushu Institute of Technology, Kitakyushu)

化を表わす。式(1)~(3)より m についての次式が得られる。

$$m = d \ln \rho_m / d \ln \sigma_0 \quad (4)$$

すなわち、 m は ρ_m と σ_0 との関係によって決定されることを示した。

一方、田上⁽⁷⁾は SRT 中には Johnston-Gilman 型の実験式、

$$\dot{\epsilon} = \alpha \rho_m b B \sigma^* m^* \quad (5)$$

が有効であると考え、この式を用いて次のように m の説明を試みた。ここに b はバーガースペクトルの大きさ、 B は温度により決まる定数、 σ^* は有効応力、 m^* は転位速度の有効応力依存指数である。Mo の応力緩和曲線群の形状と平行移動の関係は現象論的に導いた次式(6)と(7)でそれぞれ、表わすことができる⁽¹⁾⁽⁷⁾。

$$\ln(\sigma/\sigma_c) = \exp[\omega \ln(\dot{\epsilon}/\dot{\epsilon}_c)] \\ = (\dot{\epsilon}/\dot{\epsilon}_c)^\omega \quad (6)$$

$$\dot{\epsilon}_c = A \cdot \sigma_c^m \quad (7)$$

ここに σ_c は変形停滯応力、 $\dot{\epsilon}_c$ は σ_c に対応する歪速度、 ω は応力緩和曲線の形状を決定するパラメーター、 A は平行移動の位置を決定する定数である。Mo の低温変形では $0 < \sigma^*/\sigma_c \leq 1$ であるという条件と式(5)~(7)から m を近似的に次式で示すことができた(詳細は文献(7)参照)。

$$m = m^* + d \ln \rho_m / d \ln \sigma_c \quad (8)$$

式(4)で示される m の場合には SRT 中に式(1)の成立が仮定されているが、式(1)は式(5)より応力緩和現象の解析への適用性が低いことは多くの文献が示す通りであって、式(4)の考え方が実験的に成立するかどうかは明らかにされていない。また式(8)は粗い近似のもとに導かれたものである。このように、いずれの式も平行移動の物理的意味を明確に示していない。

そこで、本論文では m に対する荷重方法、歪速度、不純物元素、結晶粒径、温度などの諸因子の影響を調べ、その結果をもとにして応力緩和曲線群の平行移動の物理的意味について考察し、また同時に力学的状態方程式の成立の条件について明らかにする。

II. 実験方法

実験に使用した材料は公称純度が 99.96% 以上の焼結純 Mo 線材($\phi 1.3$ mm)、99.95% 以上の焼結純 Mo 板材(厚さ 1 mm)、焼結 Mo-0.1 at%Co 合金の線材($\phi 1.3$ mm)および Johnson-Matthey 社製の 99.99% 以上の Mo インゴットである。これらの材料の化学組成を Table 1 に

示す。線材と板材は機械加工によってそれぞれ $\phi 1.2$ mm $\times$ 50 mm と 1 mm $\times$ 3 mm $\times$ 50 mm に加工した後、エメリー紙による研磨と電解研磨によって表面を平滑にした。そして、 2×10^{-4} Pa の真空中で熱処理して結晶粒径を調整した。線材の平均結晶粒径は 1673 K で 3 ks(50 min)の熱処理によって 23 μ m に、また板材では 2 回の歪焼鈍法によって 30, 50, 100, 1500 μ m の 4 種類の平均結晶粒径に調整したが、板材の熱処理条件の詳細については著者らによる他の論文⁽⁸⁾に示してあるのでここでは省略する。Mo インゴットからは溶湯融法によって単結晶を育成して、圧縮軸が $[149]$ となるように 2 mm $\times$ 2 mm $\times$ 6 mm の単結晶試験片を放電加工によって切り出した。そして、表面を電解研磨し、1873 K で 18 ks(5 h)真空焼鈍して圧縮試験に供した。

線材および板材は有効ゲージ長さを 25 mm、クロスヘッドの移動速度から計算される公称歪速度 $\dot{\epsilon}_1$ を $\dot{\epsilon}_1 = 3.3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ として、292 (板材は 300), 350, 420 (板材は 400 と 450), 500, 550 K の 5 温度で引張試験を行った。単結晶の圧縮試験は黒鉛の微粉末を潤滑剤として用い、見掛けの剪断歪速度 $\dot{\gamma}_a$ を $\dot{\gamma}_a = 4.8 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ として、300 K で行った。そして、得られた荷重の時間変化曲線から 50 個のデータ点を読み取り、応力緩和速度($-\dot{\sigma}$)を Lagrange の補間法によって計算した後、機械系の弾性定数 K_c を用いて、塑性歪速度 $\dot{\epsilon} (= -\dot{\sigma}/K_c)$ を応力 σ の関数として求めた。このようにして得た σ と $\dot{\epsilon}$ の関係を両対数プロットすることにより、応力緩和曲線を得た。

応力緩和曲線群が平行移動によって 1 本の曲線に重なり合い、また平行移動の直線関係が実験的に成立することを再確認するため、先ず単調な荷重方法によって得た応力緩和曲線群の平行移動の関係について詳細に調べた。次に平行移動の傾き μ の逆数 $m (= 1/\mu)$ に対して、Fig. 1 に示される(1)繰返し荷重と(2)負荷歪速度、および(3)不純物元素と(4)結晶粒径などの種々の因子がどのように影響するかについて調べた。(1)繰返し荷重(A)は $\dot{\epsilon}_1$ で単調に荷重した後、上限の応力を 200 と 400 MPa、下限の応力を 30 MPa に設定し、 $\dot{\epsilon}_1$ で 2~500 回の繰返し荷重を与え SRT を行った。繰返し荷重が 20 回までは各試験片で 1 回の SRT を行ったが、50 回以上では同一試験片で SRT を繰返した。そして m に対して繰返し荷重の回数と振幅の影響について調べた。(1)-(B)は上限および下限の応力を 200 と 30 MPa に設定し、繰返し速度 30 Hz で 2×10^2 ,

Table 1 Chemical composition of specimens. (ppm in weight)

Materials	Fe	Ni	Cu	Co	Sn	O	N	C	NVR*
Pure Mo(wire)	20	10	<30	—	—	26	8	<30	10
Pure Mo(plate)	80	<30	<30	—	—	160	7	<30	40
Mo-Co alloy	20	10	—	510	—	—	—	—	10
Pure Mo(Johnson-Matthey)	5	3	3	—	30	—	—	—	25

* Non volatilized residuum containing Al, Ca, Si and Mg.

Fig.1 Schematic representations of (1) cyclic loading and (2) imposed strain rate as various factors to investigate their effects on the shape of stress relaxation curves plotted as $\log \sigma$ vs $\log \dot{\epsilon}$ and the stress-strain rate scaling parameter, $m = \{\delta \ln \dot{\epsilon} / \delta \ln \sigma\}$.

$5 \times 10^2, 10^4, 10^5$ 回の完全片振り引張疲労試験を行った後, SRT を繰返した。(2)は引張変形時の負荷歪速度 $\dot{\epsilon}_2$ を $\dot{\epsilon}_2 / \dot{\epsilon}_1 = 0.03, 0.3, 1, 3$ と変化させた。Fig.1 に示される因子以外に (3) 不純物元素の影響についても調べた。ここでは Table 1 に示されるようにやや純度の異なる線材と板材および Mo-0.1 at%Co 合金の3種類を選び, 単調な荷重方法の場合と同様にして応力緩和曲線群を求め, m を得た。次に, (4) 結晶粒径を $30 \sim 1500 \mu\text{m}$ の4種類に調整し, m に対する結晶粒径の影響について調べた。また, $\{101\} \{111\}$ すべり系を持つ単結晶の応力緩和曲線を求め, その形状と平行移動の関係について調べた。単結晶の応力緩和曲線は剪断応力 τ と塑性剪断歪速度 $\dot{\gamma}_p$ の両対数プロットで示したが, τ と $\dot{\gamma}_p$ はそれぞれ次式で計算した。

$$\tau = \frac{P \sin \chi_0}{a_0 (1-e)} \sqrt{(1-e)^2 - \sin^2 \lambda_0} \quad (9)$$

$$\dot{\gamma}_p = \frac{-\dot{\sigma}}{K_c} \left\{ \frac{(1-e)}{\sin \chi_0 \sqrt{(1-e)^2 - \sin^2 \lambda_0}} \right\} \quad (10)$$

ここに P は荷重, a_0 は試料の初期断面積, χ_0 と λ_0 は変形前に試料軸がすべり面およびすべり方向となす角度, $\dot{\sigma}$ は応力緩和速度, e は試料の伸び $\Delta l / l_0$ である。 e, ϵ と σ はさらに次式で関係づけられる。

$$e = \left(l_c - \frac{P}{S_m} \right) / l_0 \quad (11)$$

$$\epsilon = \frac{l_c}{l_0} - \frac{\sigma}{K_c} \quad (12)$$

$$\sigma = P(1-e) / a_0 \quad (13)$$

ここに, S_m は試験機の弾性定数, l_c はクロスヘッドの移動量で SRT 中は一定である。式(11)~(13)より e と ϵ を P の関数として求め, また SRT 中の e の時間変化 $\dot{e}$ を $\dot{e} \approx 0$ とし式(13)より $\dot{\sigma}$ を荷重緩和速度 $\dot{P}$ の関数として求めることにより, τ と $\dot{\gamma}_p$ を P と $\dot{P}$ の関数として得た。

III. 実験結果

単調な荷重方法によって得た線材の応力緩和曲線を 292 K の場合について Fig.2 に示す。応力緩和開始点の歪速度は引張変形時の歪速度 $\dot{\epsilon}_1$ に一致している。これらの曲線群は平行移動によって1本の曲線上に重ね合わせることができ, その平行移動の関係を Fig.3 に示す。図は $\epsilon = 1.7\%$ の応力緩和曲線上の任意の1点を定め, その点に重なる他の曲線上の点の位置関係を示している。図から明らかなように確かに平行移動の直線関係が実験的に成立する。そして, 傾き $\mu = 0.12$ ($m = 8.6$) を得た。

Fig.1(1)-(A)の繰返し荷重の回数が2回の場合を例として Fig.4 に示す。Fig.2 の場合と同様に平行移動の直線関係が成立する。 $\epsilon = 2.4\%$ の曲線上に平行移動した結果

Fig.2 A series of stress relaxation curves following monotonic loading for molybdenum at 292 K. The diagonal straight line is the direction of scaling.

Fig.3 The scaling relation for the stress relaxation curves shown in Fig.2.

を Fig.5 に示すが、500 回までの他の繰返し回数の場合も同様な曲線の形状となった。Fig.6 は Fig.1(1)-(B) の疲

Fig.4 A series of stress relaxation curves following cyclic loading(A) of 2 cycles for molybdenum at 292 K.

Fig.5 Master curve generated from seven curves following cyclic loading(A) of 2 cycles at 292 K. It is constructed by superposing curves in Fig.4 onto the curve with 2.4% ϵ .

Fig.6 A series of stress relaxation curves following cyclic loading(B) of 500 cycles for molybdenum at 292 K.

勞試験で繰返し回数が 500 回の場合の結果である。この場合、SRT 中に λ は一定であるが、歪みの増加につれて λ は小さくなる直線群となり、平行移動によって重ね合わせることができなかった。また、繰返し回数が $2 \times 10^2 \sim 10^5$ 回のいずれの場合も同様の結果を得た。次に、Fig.1(2)の負荷歪速度を変化させた結果の 1 例として $\dot{\epsilon}_2 = 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ の場合を Fig.7 に示す。応力緩和開始点での歪速度は $\dot{\epsilon}_2$ に一致し、Fig.2 の場合と同様に平行移動の直線関係が成立する。そして、 m は $\dot{\epsilon}_2$ に依存せず $m = 8.6$ となった。Fig.8 は (3) 不純物元素の影響を Mo-Co 合金について調べた結果である。曲線群の傾き λ は小さくなり、また m が変化していることが分かる。以上の Fig.1 の (1) と (2) および (3) の試験によって得られた m をまとめて Fig.9 に示す。図には平行移動できなかった (1)-(B) と純 Mo 板材の結果 (Fig.11) は示されていない。繰返し荷重の回数と振幅および負荷歪速度は m に対して影響を及ぼさず $m = 8.6$ となったが、不純物元素としての Mo-Co 合金は m を大きく低下させることが知られる。さらに、(4) 結晶粒径の影響について調べたものを Fig.10 に示す。 m は各温度

Fig.7 A series of stress relaxation curves tested at the imposed strain rate of $\dot{\epsilon}_2 = 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ for molybdenum at 292 K.

Fig.8 A series of stress relaxation curves for Mo-0.1at%Co alloy at 292 K.

Fig.9 The effects of cyclic loading (A), imposed strain rate and impurities on m at 292 K.

で結晶粒径にはほとんど依存していない。しかし、1500 μm においては不均一変形の影響によると思われる試験片の形状変化が一部に観察されており、平行移動の直線性は微細結晶粒の場合より良くなかった。そして、 m の平均値の温度依存性は Fig.11 に示されるように、線材、板材、Mo-Co 合金の順に減少しており、Table 1 から不純物元素量の増加によって m が減少する傾向が分かる。次に、 $\{101\}[111]$ すべり系を持つ6本の単結晶の圧縮試験を行ったが、内3本は単純圧縮用として、残りは SRT 用として使用した。Fig.12 は見掛けの歪速度 $\dot{\gamma}_a$ を $4.8 \times 10^{-4} \text{s}^{-1}$ として 300 K で圧縮変形して得られた剪断応力 τ -塑性剪断歪み γ_p 曲線の代表例である。図中矢印の γ_p に相当する歪みで SRT を行った結果の代表例を Fig.13 に示すが、応力の減少につれて λ が連続的に増加する上に凸の曲線が得られた。縦の破線は応力緩和開始点に相当する γ_p において、Fig.12 から計算された真の歪速度 $\dot{\gamma}_{p0} [= \dot{\gamma}_a (1 - d\tau/d\gamma_p \cdot 1/4K_c)]$ である。 $\dot{\gamma}_{p0}$ は γ_p の増加につれて、すなわち $d\tau/d\gamma_p$ が小さくなるにつれて $\dot{\gamma}_a$ に近づいていることが分

Fig.10 The effect of grain size on m at various temperatures.

Fig.11 Variations of m with temperature for several materials.

かる。応力緩和開始点の歪速度が $\dot{\gamma}_{p0}$ より小さくなっているのは、再圧縮後に与えられる $\dot{\gamma}_p$ が小さく応力緩和の開始が十分な塑性領域で行われていないためと、圧縮変形時の $K_c = 7 \sim 9 \text{GN/m}^2$ † が非常に小さいためである。そして、これらの曲線間には平行移動の関係が成立しなかった。以上の SRT 中の塑性歪みは多結晶で $\epsilon < 0.2\%$ 、単結晶で $\gamma_p \approx 2\%$ であった。

IV. 考 察

1. 応力緩和曲線の形状変化

単調な荷重方法によって得られる応力緩和曲線 (Fig.2) は下に凸の滑らかな曲線を示し、平行移動の直線関係が成

† 引張変形では $K_c = 20 \sim 50 \text{GN/m}^2$ である。

Fig.12 Shear stress vs plastic shear strain curve for molybdenum single crystal with $(\bar{1}01) \langle 111 \rangle$ slip system tested by compression at 300 K. The apparent shear strain rate, $\dot{\gamma}_a$ is $4.8 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ and the arrows in the figure indicate the places where stress relaxation tests were performed.

Fig.13 A series of stress relaxation curves plotted as $\log \tau$ vs $\log \dot{\gamma}_p$ for molybdenum single crystal with $(\bar{1}01) \langle 111 \rangle$ slip system at 300 K.

立する。これら曲線の形状は Fig.1(1)-(A) に示される繰返し荷重の回数や振幅および(2)の荷重歪速度を変化させてもほとんど変化しない。このことは次のように説明できる。すなわち、転位速度の有効応力依存指数 m^* は応力緩和曲線の接線として与えられる歪速度依存因子 λ を用いて、また $d\sigma = d\sigma^*$ を仮定して式(2)と(5)から次式で与えられる。

$$m^* = \left(1 - \frac{\sigma_i}{\sigma}\right) / \lambda \quad (14)$$

式(14)から m^* と内部応力 σ_i が一定の場合には σ が増加

† ここでは σ_i は転位の平均速度に対応した平均内部応力 σ_i^* の意味で用いており、 σ_i^* は外部応力 σ に依存するが SRT 中にはほぼ一定とみなすことができる⁽⁸⁾。

するにつれて λ が増加する。すなわち曲線は下に凸となることが理解される。Fig.1(1)-(A)の繰返し荷重中は弾性的に変化する歪みが大部分で、塑性歪みは小さく、繰返し回数を増してもそれによる内部構造または σ_i の変化はほとんどないと考えられる。(2)の場合も $\dot{\epsilon}_2$ は σ^* を変化させるだけで σ_i には影響を与えない。したがって、(1)-(A)と(2)の因子は σ_i の増加には直接寄与せず σ_i の増加は単調な荷重方法によって与えられる塑性歪みの増加に対応し、SRT 中に内部構造または σ_i はほぼ一定に保たれる。一方、Fig.1(1)-(B)の疲労試験の場合には Fig.6 に示すごとく λ が一定の直線群が得られる。このことは $d\sigma = d\sigma^*$ 、すなわち σ_i が一定であるという式(14)の成立条件の下では、 m^* が σ によって変化しない限り説明することができない。 m^* は材料と温度のみに依存する定数なので、 σ_i が応力緩和中に大きく変化することを意味している。高振幅 ($\dot{\gamma}_p > 10^{-3}$) 疲労試験では3次的セル組織が形成されるが、低振幅 ($\dot{\gamma}_p < 10^{-3}$) 疲労試験では転位のタングル、クラスター、ループ、高密度らせん転位のジョグが形成され、転位組織は不安定となっている⁽⁹⁾。本実験の疲労試験も後者の場合に属するので SRT 中に内部構造が変化し、それにつれて内部応力の最大値 σ_i^0 が変化し、 σ_i も顕著に変化したものと思われる。

単結晶においても Fig.13 に示されるように平行移動の関係は成立しなかった。図では SRT の開始直後に応力緩和が一時的にはば停滞し、その後徐々に λ が増加する曲線を示している。このような応力緩和の停滞は大部分の運動転位密度 ρ_m がクロスヘッドの停止により運動を一時停止するために $\dot{\gamma}_p (\propto \rho_m \sigma^* m^*)$ が小さくなり、その後 ρ_m が変形時の ρ_m まで回復すると同時に応力緩和が進行し、再び ρ_m は徐々に減少して行くものと考えられる。このように、応力緩和が一時的停滞する現象が単結晶に現われるのに多結晶材料に現われないのは焼結材中の結晶粒界やポイドなどの多くの障害物が転位の顕著な bow out をさまたげているのに対し、単結晶では bow out した転位が外力の変化に敏感に反応するためと考えられる。SRT 開始直後に ρ_m が急激に変化することは実験的に得られる転位の運動の活性化体積 V^* の急激な変化からも予想することができる。Fig.13 において応力の緩和がほぼ停滞する領域(A)とそれに続く λ が連続的に増加する領域(B)に分けて、 V^* を次式で求めた。

$$V^* = kT (\partial \ln \dot{\gamma}_p / \partial \tau)_T \quad (15)$$

ここに k はボルツマン定数で T は絶対温度である。(A)では $V^*/b^3 = 110 \sim 60$ 、(B)では $V^*/b^3 = 35 \sim 20$ となって、いずれも示される数値の範囲内で歪みの増加につれて連続的に減少した。このように実験的に得られる見掛けの活性化体積 V_A^* が(A)と(B)の領域で異なるのは(A)における ρ_m の顕著な変化に起因すると考えられる。運動転位の平均速度を $\bar{v}$ として、 $\dot{\gamma}_p = \rho_m b \bar{v}$ より式(15)は

$$V_A^* = kT (\partial \ln \rho_m / \partial \tau)_T + kT (\partial \ln \bar{v} / \partial \tau)_T \quad (16)$$

となる。 $d\tau = d\tau^*$ とすれば式(16)の右辺第2項が真の活性化体積を与える。(A)領域における第1項は(B)に比較して大きく寄与していると考えられ、(B)で得られた V^* は同じ $[101][111]$ Mo 単結晶を用いて応力緩和試験と歪速度変化試験の2試験方法から決定された値⁽¹⁰⁾と良く一致している。 V^* はまた λ を用いて式(2)と(15)から次式に変形することができる。

$$V^* = kT/\tau\lambda \quad (17)$$

Fig.13の(B)の全領域において、応力緩和量 $\Delta\tau$ 対 $\ln \dot{\rho}_0$ プロットは直線関係を良く満足し、 V^* が一定であるという結果を得ている。これは式(17)から τ の減少につれて λ が増加する、すなわち応力緩和曲線が上に凸となることが理解される。SRT中の(B)領域において V^* が一定であることは、パイエルス機構による律速では V^* と剪断有効応力 τ^* が反比例的に変化するという理論的予測⁽¹¹⁾や実験結果⁽¹²⁾と矛盾する。このことはSRT中に式(16)の右辺第2項が増加する一方では、 ρ_m の減少に伴う第1項の寄与がなお無視できないため V_A^* が一定になったものと思われる。このように、単結晶で平行移動の関係が成立しなかったのは各応力緩和曲線において構造因子 $\dot{\epsilon}_0$ (主に ρ_m) が顕著に変化したためと考えられる。

2. 力学的状態方程式の成立について

SRT中の塑性歪速度 $\dot{\epsilon}$ は次式で表わすことができる。

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_0 \exp[-\Delta G(\sigma^*)/kT] \quad (18)$$

ここに $\dot{\epsilon}_0$ は構造因子、 ΔG はギブスの自由エネルギーで

となる。温度が一定で単調な荷重方法によって得られた多結晶材料の応力緩和曲線は、 $\dot{\epsilon}_0$ と σ_1^0 がほぼ一定の条件における $\dot{\epsilon}$ と σ の関係であると言うことができる。式(20)はさらに

$$f[\dot{\epsilon}, \sigma, (\dot{\epsilon}_0, \sigma_1^0), T] = 0 \quad (21)$$

の形に表わされる。そして、式(21)の力学的状態方程式は任意の $(\dot{\epsilon}_0, \sigma_1^0)$ の組において成立する。与えられる歪みが異なる各応力緩和曲線相互においては、 $\dot{\epsilon}_0$ と σ_1^0 がともに変化していると考えられる。この $\dot{\epsilon}_0$ と σ_1^0 の関係が明らかになり、応力緩和曲線群が平行移動によって1本の曲線に重なり合うならば平行移動の軌跡は $\dot{\epsilon}_0$ と σ_1^0 の関係を表わすことになる[†]。ここで、平行移動の関係が成立するということは式(21)の力学的状態方程式が成立するための十分条件であって必要条件ではないことを注意したい。

$\dot{\epsilon}_0$ と σ_1^0 の関係を求めるため以下の4式の成立を仮定する。

$$\rho_T = \rho_0 + C \cdot \epsilon^\beta \quad (\text{Gilbert ら}^{(14)}) \quad (22)$$

$$\rho_m = A \cdot \epsilon \quad (23)$$

$$\sigma_1^0 = \alpha_1 G b \sqrt{\rho_T} \quad (24)$$

$$\dot{\epsilon}_0 = \alpha \rho_m \frac{baL}{l^*} \left(\frac{b}{l^*} \nu_d \right) = \rho_m \nu \quad (25)$$

ここで、 C, A, α_1 は定数、 G は剛性率、 l^* は転位の活性化長さ、 $a \cdot L$ は活性化面積、 ν_d はデバイ振動数、 ν は頻度因子である。式(22)~(25)より $\dot{\epsilon}_0$ と σ_1^0 の関係は β を変数として次式で表わされる。

Fig.14 Various scaling loci calculated from eq.(26) which expresses the relation between the pre-exponential term $\dot{\epsilon}_0$ and the maximum internal stress σ_1^0 .

σ^* の減少関数である。転位の平均速度を時間平均で取扱った Li⁽¹³⁾の方法を平均内部応力 σ_1^* の計算に適用し⁽⁸⁾, σ_1^* を σ_1^0 と σ の関数として $\sigma_1^* = g(\sigma_1^0, \sigma)$ とおけば、 σ^* は

$$\sigma^* = \sigma - g(\sigma_1^0, \sigma) \quad (19)$$

となる。ここで σ_1^0 は内部応力場の最大値で変形が停滞する際の応力に等しい。式(19)を式(18)に代入すると、

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_0 \exp[-\Delta G\{\sigma - g(\sigma_1^0, \sigma)\}/kT] \quad (20)$$

† 幾何学的平行移動の関係は変形停滞応力 σ_1^0 と実験的に変形が停滞したと判断される歪速度 $\dot{\epsilon}_c [= \dot{\epsilon}_0 \exp(-\Delta G_0/kT)]$ との関係で与えられる。ここに ΔG_0 は $\sigma^* = 0$ でのギブスの自由エネルギーである。したがって、後述の Fig.14 に示される横軸 $\dot{\epsilon}_0$ は $\dot{\epsilon}_c$ を $(\Delta G_0/kT)$ だけ正の方向に平行移動した関係を示している。また、Fig.3などで実際に測定される平行移動の関係は σ_1^0 と $\dot{\epsilon}_c$ の関係をさらに平行移動したものである。

Fig.15 Variation of m with β as a strain exponent. The increase in β or the decrease in m causes the mobile dislocation density ρ_m to increase.

$$\dot{\epsilon}_0 = A\nu \left\{ \frac{1}{C} \left\{ \left(\frac{\sigma_1^0}{\alpha_1 G b} \right)^2 - \rho_0 \right\} \right\}^{1/\beta} \quad (26)$$

式(26)に $A=10^{10}/\text{cm}^2$, $C=8 \times 10^{10}/\text{cm}^2$ ⁽¹⁴⁾, $\rho_0=3 \times 10^8/\text{cm}^2$ ⁽¹⁴⁾, $\alpha_1=0.72$ ⁽¹⁵⁾, $\nu=10^{-3}$ ⁽¹⁶⁾ を代入して, $\dot{\epsilon}_0$ と σ_1^0 の関係を β の関数として計算した結果を Fig.14 に示す. 実験的に測定される範囲(ここでは σ に対してではなく σ_1^0 に対してその範囲を示してある)では平行移動の直線関係がほぼ成立する. 図中の σ_{ix}^0 は式(23)~(25)より $\epsilon=0$, $\rho_m=0$, $\dot{\epsilon}=0$ となる応力である. そして, 図示されているような β の値を用いれば Fig.11 に示される純 Mo 線材の m の温度変化 $m=2.3\sim 8.6$ を説明することができる. Fig.1 の(1)-(A)と(2)および(4)結晶粒径(単結晶を除く)の因子は m にほとんど影響を与えなかったが, これは β がこれらの因子に依存しないことを意味する. 一方, 温度と不純物元素は m を大きく変化させた. そこで, 実験的に得られた m を計算の際に用いた β の関数として, Fig.15 に示す. 図では純 Mo 線材についてだけ温度を示してあるが, 温度の上昇につれて, また不純物元素の添加につれて β が増加する傾向にある. このことは式(25), (26)から同一の σ_1^0 (または ρ_T) で比較した場合, 運動転位密度 ρ_m が温度の上昇につれて, また不純物元素の添加につれて増加することを意味している. そして, Fig.1 の(1)-(A)と(2)および(4)結晶粒径(単結晶を除く)の因子は ρ_m にはほとんど影響を与えないことが分かる.

以上のように応力緩和曲線群の平行移動の軌跡は $\dot{\epsilon}_0$ と σ_1^0 の関係によって説明することができる. β と種々の因子の関係, および式(20)の $4G$ と応力の関数形が明らかになり, また平行移動の関係が成立するならば, 任意の $\dot{\epsilon}$, σ , T に対して $\dot{\epsilon}_0$ と σ_1^0 が決定される. そして, 式(21)の力学的状態方程式が成立する. また同時に, ρ_m , ρ_T , ϵ など内部構造に関するパラメーターの決定が可能となる.

V. 結 言

単調な荷重方法によって得られた多結晶純 Mo の応力緩和曲線は下に凸の滑らかな曲線となり, 平行移動によって1本の曲線に重ね合わせることができる. そして, 平行移動の直線関係が成立する. この平行移動の傾きの逆数として得られるパラメーター m に対して, また応力緩和曲線の形状に対して, Fig.1 に示される(1)繰返し荷重, (2)負荷歪速度および(3)不純物元素, (4)結晶粒径などの因子がどのように影響するかを 292~550 K の温度範囲で調べた. その結果を以下に要約する.

(1) 単調な荷重方法によって得られる多結晶純 Mo の応力緩和曲線の形状と m の値は Fig.1 に示される(1)-(A)の繰返し荷重の振幅や回数, (3)の負荷歪速度を変化させてもほとんど変化せず 292 K で $m=8.6$ を得た. また結晶粒径(単結晶を除く)の m に対する影響も見られなかった.

(2) Fig.1(1)-(B)に示される疲労試験の場合には応力緩和曲線は傾きの異なる直線となり, 平行移動の関係は成立しなかった. また, 300 K における単結晶の応力緩和曲線は上に凸となり, 同様に平行移動の関係は成立しなかった.

(3) 不純物元素と温度のみが m を変化させ, 応力緩和曲線の形状にも影響を与えた.

以上の実験結果から, 平行移動の物理的意味について考察し, 平行移動の軌跡は構造因子 $\dot{\epsilon}_0$ (主に ρ_m) と内部応力場の最大値 σ_1^0 との関係式(26)から説明できることを示した. そして, SRT 中に σ_1^0 と $\dot{\epsilon}_0$ がそれぞれ著しく変化する疲労試験と単結晶の場合を除いて, 任意の $\dot{\epsilon}$, σ , T が与えられれば $\dot{\epsilon}_0$ と σ_1^0 の関係が決定され, 本実験条件の範囲内で $f(\dot{\epsilon}, \sigma, (\dot{\epsilon}_0, \sigma_1^0), T)=0$ の力学的状態方程式が成立することが明らかとなった.

終りに, 材料を提供していただいた日本タングステン株式会社および同社の仙場謙次氏, 単結晶の作製に便宜を計っていただいた九州大学応用力学研究所の北島一徳教授, また実験に協力して貰った九州工業大学学生 寺田敏則君(現在: 九工大大学院)と村本真治君(現在: 日立コンピューターコンサルタントKK)に深く感謝の意を表します.

文 献

- (1) E.W.Hart, C.Y.Li, H.Yamada and G.L.Wire: *Constitutive Equations in Plasticity*, Ed. by A.S.Argon, MIT Press, Cambridge, (1975), 149.
- (2) E.W.Hart and H.D.Solomon: *Acta Met.*, **21** (1973), 295.
- (3) H.Yamada and C.Y.Li: *Acta Met.*, **22**(1974), 249.
- (4) G.L.Wire, H.Yamada and C.Y.Li: *Acta Met.*, **22**(1974), 505.
- (5) E.W.Hart: *Rate Processes in Plastic Deformation of Materials*, Ed. by J.C.M. Li and A.K. Mukherjee, ASM, (1975), 284.
- (6) J.J.Gilman: *Aust. J. Phys.*, **13**(1960), 327.

- (7) K.Tanoue : J.Japan Inst. Metals, **42**(1978), 837.
 (8) K. Tanoue and H. Matsuda : J. Japan Inst. Metals, **45**(1981), 559.
 (9) J.C.Grosskreutz and M.Mughrabi: *Constitutive Equations in Plasticity*, Ed. by A.S.Argon, MIT Press, Cambridge, (1975), 251.
 (10) F.Guiu : Phys. Status Solidi, **19**(1967), 339.
 (11) P.Guyot and J.E.Dorn : Canad.J.Phys., **45**(1967), 983.
 (12) H.Conrad and W.Hayes : Trans. ASM, **56**(1963), 249.
 (13) J.C.M.Li : *Dislocation Dynamics*, Ed. by A.R. Rosenfield *et al.*, McGraw-Hill, New York, (1968), 87.
 (14) A.Gilbert, B.A.Wilcox and G.T.Hahn : Phil. Mag., **12**(1965), 649.
 (15) S.Karashima, H.Oikawa and T.Igarashi : J. Japan Inst. Metals, **34**(1970), 389.
 (16) K.E.Amin, K.L.Murty and J.E.Dorn : J. Appl. Phys., **44**(1973), 615.

日本金属学会誌 第 45 卷 第 6 号 (1981) 574~580

アルミニウム<100>および<110>対称傾角粒界の 応力誘起粒界移動

福 富 洋 志* 堀 内 良**

J. Japan Inst. Metal, Vol. 45 No. 6 (1981), pp. 574~580

Stress Induced Migration of <110> and <100> Symmetric Tilt Boundaries

Hiroshi Fukutomi* and Ryo Horiuchi**

Stress induced migration behavior of three types of tilt boundaries which are described as vertical arrays of $a/2[1\bar{1}0](001)$, $a/2[11\bar{2}](111)$, and $a[001](010)$ dislocations for $[110]$, $[1\bar{1}0]$, and $[100]$ tilt boundaries respectively, was investigated by the use of aluminum bicrystals. These three types of boundaries whose misorientation angles were smaller than 10° migrated under the stress and produced plastic strain at elevated temperatures. The migration velocity (v) varied with stress (σ) and temperature (T) according to the following equation :

$$v = A(\theta, \xi) \sigma^n \exp(-Q/RT),$$

where $A(\theta, \xi)$ is a numerical factor depending on the misorientation angle (θ) and type of grain boundary (ξ), $n \approx 1$ and $Q = 80 \pm 5$ kJ/mol.

Grain boundary sliding occurred at misorientations larger than 10° .

(Received November 25, 1980)

I. 緒 言

面心立方晶の通常のすべり転位である $a/2\langle 110 \rangle \{111\}$ の刃状転位列で構成されるような幾何学的関係にある $\langle 112 \rangle$ 対称傾角粒界は、高温で応力を付加された場合、 27° 程度の大きな傾角まで応力に誘起されて粒界移動を生ずることを前報⁽¹⁾で報告した。粒界が応力に誘起されて移動することは、粒界に転位が存在することを示すもので、このような応力誘起移動の解析は粒界構造の理解に対しても示唆に富む結果を与えることが期待される。本報では $\langle 112 \rangle$ 対称傾角粒界以外の粒界、即ち通常のすべり転位

の配列ではなく別種の転位の配列で構成されるような幾何学的関係にある粒界について、応力誘起粒界移動の知識を拡大することを目的とした。

一般に面心立方晶の塑性変形で観察されるすべり転位は $a/2\langle 110 \rangle \{111\}$ であるが、このことは他種の転位が sessile であることを意味するものではなく、最も動きやすい転位が活動するために、他の転位の活動がマスクされるものと考えた方が自然である。通常のすべり転位以外の転位の活動を報告した例は多くはないが、最近 Karntherlar⁽²⁾ は Ag, Cu, Ni について透過電顕観察により高温での $a/2\langle 110 \rangle \{100\}$ 転位のすべり運動を見出している。し

* 東京大学大学院、現在：横浜国立大学工学部金属工学科 (Graduate School, The University of Tokyo, Tokyo. Present address : Department of Metallurgical Engineering, Faculty of Engineering, Yokohama National University, Yokohama)

** 東京大学宇宙航空研究所 (Institute of Space and Aeronautical Science, The University of Tokyo, Tokyo)