日本金属学会誌 第 46 巻 第 3 号 (1982) 253-257

Cu-Al 合金単結晶における内部摩擦の振幅依存性と微小塑性

奈良井 弘* 浅 野 滋**

J. Japan Inst. Metals, Vol. 46, No. 3 (1982), pp. 253-257

Amplitude-Dependent Internal Friction and Microplasticity in Cu-Al Alloy Crystals

Hiroshi Narai* and Shigeru Asano**

Internal friction in Cu-0.8 at% Al and Cu-1.8 at% Al alloy crystals was measured as a function of strain amplitude at around 800 Hz over the temperature range of 160-330 K. The data were analyzed by the phenomenological method and converted into typical mechanical responses, such as the microplastic strain and dislocation velocity expressed as a function of stress. Results obtained are summarized as follows. (1) Plastic flow in copper was remarkably suppressed by aluminum alloying in the microplastic region where plastic strain ranged from 10^{-9} to 10^{-8} . This alloying effect was two orders of magnitude greater than the usual solid solution hardening in a macroplastic region. (2) The microplastic flow stress increased with decreasing temperature in alloy crystals containing more aluminium, as in the case of the usual solid solution hardening. (3) The dislocation velocity estimated from the amplitude dependence of internal friction agreed well with the etch-pit data so far reported in the literature. It was shown that the dislocation motion was impeded by solute atoms as much in the microplastic region as in a macroplastic region.

(Received October 22, 1981)

I. 緒 言

内部摩擦の振幅依存性に対するデータ解析は、従来は Granato-Lücke 理論⁽¹⁾⁽²⁾にもとづいて行なわれるのが通例であった。この理論は転位の離脱モデルを定式化したものであり、1956 年に発表されて以来、多くの研究者により実際のデータ解析に適用され、転位と点欠陥の相互作用に関する重要な情報を与えてきた。Granato-Lücke 理論そのものは一定の適用限界を持っているため、最近ではさらに一般化された理論もいくつか提唱されてきている^{(3)~(6)}。しかし、これらの理論も基本的には転位の離脱モデルにもとづいているため、実験データに適用して得られる情報は転位と点欠陥の相互作用に限られ、転位の運動特性を明らかにするものとはいえない。

ところが一方、以上のような理論とは異なり、内部摩擦の振幅依存性の実測値より転位の運動特性に関する知見を得ようとする試みもある。こうした研究は転位の離脱モデルを仮定することなく、巨視的現象として内部摩擦の振幅依存性を定式化しようとするものである。これは歴史的には、Read により理論的可能性が指摘され⁽⁷⁾、その後 Baker によって取扱われた問題である⁽⁸⁾。Baker は LiF について内部摩擦の振幅依存性から転位の平均速度の算出を試みたが、理論的基礎が不十分なため、得られた知見は十分に一般的なものとはいえなかった。その後 Asano⁽⁹⁾は、現象

論の立場から Baker の取扱いを一般化して、転位の運動特性と内部摩擦の振幅依存性との関係を明らかにした。このような理論は最近になって実際のデータ解析に適用されるようになった⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾。この場合は、内部摩擦の振幅依存性の測定データをもとにして、降伏以前の微小塑性歪を応力の関数として算出しようとするものである。このような微小塑性歪が内部摩擦と密接な関係にあることは、実験的に明らかにされている⁽¹²⁾⁽¹³⁾。また転位密度が知られている場合には微小塑性歪は、容易に転位の平均速度に換算することができる⁽⁸⁾⁽⁹⁾。

内部摩擦の振幅依存性に関する実験的研究は、従来から多くの金属材料で行なわれてきた。特に Cu 希薄合金については Bauer ら^{(14)~(16)}の研究がよく知られている。彼らは Cu-Si 合金、Cu-Ge 合金、Cu-Sn 合金について、内部摩擦の振幅依存性を系統的に測定し、Granato-Lücke 理論にもとづいてデータ解析を行なって転位と合金元素の相互作用の大きさを明らかにした。これに対して、Polotskiy ら⁽¹⁰⁾は Cu-Mg 合金の内部摩擦を測定し、Granato-Lücke 理論によることなく Asano の現象論にもとづいて微小塑性歪を算出し、転位の運動特性に関する知見を得た。ここで得られた情報はエッチピット法から得られる転位の運動速度と比較し得るものである。

本研究の目的は、Cu-Al 合金単結晶において内部摩擦の振幅依存性を測定し、現象論的解析法によって Cu 中の転

* 名古屋工業大学大学院 (Graduate School, Nagoya Institute of Technology, Nagoya)

** 名古屋工業大学金属工学科 (Department of Metallurgical Engineering, Nagoya Institute of Technology, Nagoya)

位の運動特性におよぼす Al の効果を明らかにすることである。具体的なデータ解析は、内部摩擦の実測値から微小塑性歪を算出し、さらに転位の平均速度に換算してエッチピットによるデータと比較検討することである。

II. 実験方法

実験材料は 99.99%Cu をベースにし、99.999%Al を添加して真空溶製した。試料は純銅母材および 0.8at%Al, 1.8at%Al 合金の 3 種類であった。単結晶は黒鉛モールド(断面 10 mm×1.5 mm)の中でブリッジマン法によって作製し、放電加工機により 80 mm の長さで切断した。なお、単結晶は種々の方位のものを作製したが、以下の実験結果では、単一すべりでかつシュミット因子がほぼ等しいもの(0.45~0.47)のみ採用した。内部摩擦の測定の前には、いずれの試料も 873 K(600°C)で 86.4 ks(24 h)の真空焼鈍を施した。

内部摩擦の測定は 800 Hz 前後の自由端横振動法で行なった。試料を 60 s 以上にわたって一定振幅で振動させた後、励振を止めて自由減衰曲線を高速度レベルレコーダー(Brüel and Kjaer Type 2305)で記録させた。このような自由減衰曲線は振幅の対数値が時間に対して記録されており、各振幅での傾きを読みとることによって対数減衰率を算出した。測定温度は 160~330 K の範囲で変化させ、昇温速度は 0.0137 K/s(0.8 K/min)とした。

III. データ解析法⁽¹⁷⁾

内部摩擦の尺度として用いられる対数減衰率は、物理的にはつぎのように意味づけられる。

$$\delta = \Delta W / 2W \quad (1)$$

ここで W は振動体のもつ力学的エネルギーであり、 ΔW は 1 周期あたりの損失エネルギーである。実際の振動状態では歪が試料内で不均一に分布しているため内部摩擦も位置によって異なっている。したがって実際に測定される内部摩擦とは、最大の歪振幅 $\epsilon_{\max}$ を実験変数として、各部位での内部摩擦を試料全体にわたって平均化した値 δ_{av} に相当する。このことから式(1)はつぎのように書き直すことができる⁽¹⁸⁾。

$$\delta_{av}(\epsilon_{\max}) = \frac{\iiint \epsilon_0^2 \delta(\epsilon_0) dx dy dz}{\iiint \epsilon_0^2 dx dy dz} \quad (2)$$

ここで ϵ_0 は均一な歪分布を想定した場合の歪振幅であり、 δ は均一な歪分布のもとで測定されるべき仮想的な内部摩擦である。以下では $\delta(\epsilon_0)$ を真の内部摩擦と呼ぶことにする。このとき真の内部摩擦はつぎのように力学的応答と結ばれる⁽⁹⁾。

$$\delta(\epsilon_0) = \frac{M}{\sigma_0^2} \oint \epsilon(\sigma) d\sigma \quad (3)$$

ここで右辺の積分は応力歪曲線におけるヒステリシスループの面積に相当する。また、力学応答としての $\epsilon(\sigma)$ は弾

性成分と塑性成分に分けるとつぎのように表わすことができる。

$$\epsilon(\sigma) = \frac{\sigma}{M} + \epsilon_p(\sigma) \quad (4)$$

ただし M は弾性率である。内部摩擦の測定条件では、つねに塑性歪 $\epsilon_p(\sigma)$ が弾性歪 σ/M にくらべて十分に小さいので、そのことを考慮して $\epsilon_p(\sigma)$ を微小塑性歪と呼ぶことにする。内部摩擦の定義を以上のように定式化すれば、測定値 $\delta_{av}(\epsilon_{\max})$ と微小塑性歪 $\epsilon_p(\sigma)$ は、物理量として相互に換算可能な応答関数となる。

データ解析の方法としては、まず歪分布を平均化して測定値 $\delta_{av}(\epsilon_{\max})$ から真の内部摩擦 $\delta(\epsilon_0)$ を算出する。自由端横振動の場合、式(2)からつぎのような換算式が得られている⁽¹⁹⁾。

$$\delta(\epsilon_0) = \frac{1}{6\epsilon_0^2} \frac{d}{d\epsilon_0} \int_0^{\epsilon_0} \frac{\epsilon_{\max}}{\sqrt{\epsilon_0^2 - \epsilon_{\max}^2}} \times \frac{d\{\epsilon_{\max}^3 \delta_{av}(\epsilon_{\max})\}}{d\epsilon_{\max}} d\epsilon_{\max} \quad (5)$$

つぎに力学応答を標準化して真の内部摩擦 $\delta(\epsilon_0)$ から微小塑性歪 $\epsilon_p(\sigma)$ を算出する。この場合、応力歪曲線においては離脱型と摩擦型の 2 種類のヒステリシスが可能であるが⁽⁹⁾、Cu 合金の定常的振動変形では後者のヒステリシスが実現されるものと考えられる⁽¹³⁾。摩擦型ヒステリシスの場合には、式(3)、(4)からつぎのような換算式が得られている⁽⁹⁾。

$$\epsilon_p(\sigma) = \frac{\sigma}{M} \left\{ \frac{1}{4} \delta \left(\frac{\sigma}{2} \right) + \frac{1}{2} \int_0^{\sigma/2} \frac{\delta(\sigma_0)}{\sigma_0} d\sigma_0 \right\} \quad (6)$$

実際のデータ解析に式(5)、(6)を適用するために、つぎのような簡易法をとることにした。まず、実際の測定値をつぎのような実験式で表わすことにする。

$$\delta_{av}(\epsilon_{\max}) = A \epsilon_{\max}^n + B \quad (7)$$

ここで、 A 、 B および n は測定データによってきまる定数である。実験式が式(7)のように決定されると、式(7)を式(5)に代入して積分計算を行なうことにより真の内部摩擦 $\delta(\epsilon_0)$ はつぎのように具体的に求まる。

$$\delta(\epsilon_0) = AK(n) \epsilon_0^n + B \quad (8)$$

ただし、 $K(n)$ は歪分布によってきまる特性関数であって、自由端横振動の場合はつぎようになる⁽¹⁹⁾。

$$K(n) = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \frac{n+3}{3} \Gamma\left(\frac{n+4}{2}\right) / \Gamma\left(\frac{n+3}{2}\right) \quad (9)$$

ただし、 Γ はガンマ関数を表わすものとする。さらに振幅に依存する成分、つまり式(8)の右辺の第 1 項を式(6)に代入して積分計算を行なうことにより、微小塑性歪 $\epsilon_p(\sigma)$ はつぎのように具体化される⁽⁹⁾。

$$\epsilon_p(\sigma) = A \frac{n+2}{2^{n+2}n} K(n) \left(\frac{\sigma}{M} \right)^{n+1} \quad (10)$$

このような手順でデータ解析を行なうと、内部摩擦の実測側 $\delta_{av}(\epsilon_{\max})$ より微小塑性歪 $\epsilon_p(\sigma)$ を容易に算出することができる。

IV. 実験結果

Fig.1 は 300 K における純銅および 0.8 at% Al, 1.8 at% Al 合金の内部摩擦の測定データ $\delta_{av}(\epsilon_{max})$ である。ここで白丸印は単結晶に関する測定値であり、黒丸印は参考のために測定された多結晶のデータである。なお、単結晶の方位は標準ステレオ三角形に示してあり、そのシュミット因子はほぼ等しい。測定点を結ぶ曲線は最小二乗法により式(7)の関数としてあてはめられた実験曲線を表わしている。Fig.1 の特徴はつぎのように整理することができる。

(1) 内部摩擦の振幅に依存しない成分は合金元素を添加してもあまり変化しないが、振幅に依存する成分はそれによって著しく減少する。

(2) 多結晶試料と単結晶試料の間に著しい差異が生じている。振幅に依存しない成分は単結晶の場合には著しく抑制されているが、振幅に依存する成分は系統的变化が見られない。

(3) 純銅に関しては、大振幅領域で振幅の増加にともない内部摩擦が減少している。

本研究では特に(1)の特徴に注目して主として単結晶についてデータ解析を行なうことにする。したがって曲線のあてはめは式(7)のような単一の関数で十分近似できる範囲のみで行なった。この場合、 n の値は 1.4~3.6 の範囲内であった。Fig.2 は Fig.1 について、式(8)から算出した真の内部摩擦 $\delta(\epsilon_0)$ である。振幅に依存する成分は換算の結果 2 倍程度に増加し、振幅に対する変化が急激になっている。

Fig.3 は Fig.2 に対して、式(10)から算出された微小塑性歪 $\epsilon_p(\sigma)$ である。この図は微小塑性領域における応力歪曲線に相当する。ただし、通常の応力歪曲線とはちがって縦軸と横軸が逆になっており、横軸には応力が対数で目盛られている。この図より微小塑性領域では 1% 程度の Al を

合金化することにより微視的な変形応力が単結晶の場合は 2 桁程度増加していることがわかる。これは通常の固溶硬化、つまり巨視的な変形応力の増加に比べると著しく大きな変化を示している。

Fig.4 は 0.8 at% Al 単結晶試料について、内部摩擦の実測値の温度変化を示すものである。図中の数字は測定温

Fig.2 The intrinsic internal friction expressed as a function of strain amplitude. The solid curves are derived from the single crystal data and the broken ones from polycrystal data in Fig.1.

Fig.3 The microplastic strain expressed as a function of stress. The curves are evaluated from Fig.2.

Fig.1 The measured value of internal friction plotted against the maximum value of strain amplitude. The data were obtained at 300 K for pure copper and Cu-Al alloys. The open circles represent single crystal data and the closed ones polycrystal data.

Fig.4 The measured data $\delta_{av}(\epsilon_{max})$ at various temperatures for the Cu-0.8 at% Al single crystal. The figures denote absolute temperatures of the measurement.

度を表わす。この図より、内部摩擦は温度の低下にともない、振幅に依存しない成分も依存する成分もともに減少していることがわかる。こうした傾向はすべての合金試料で見られた。

Fig.5 は Fig.4 の結果をもとにして、前に示した所定の解析手順を経て算出された微小塑性歪である。これも Fig.3 と同様に微小塑性領域での応力歪曲線に相当する。この図より温度の低下にともなって曲線が高応力側へシフトしており、塑性歪が生じ難くなっていることがわかる。このことは微小塑性領域における合金の塑性変形が熱活性化過程に支配されていることを示す。これは従来から巨視的変形で観察されている固溶硬化の特徴と定性的には一致するものである。

Fig.5 The microplastic strain expressed as a function of stress. The curves are evaluated from the data in Fig.4. The figures denote absolute temperatures of the measurement.

Fig.6 Variation of the microplastic flow stress with temperature for pure copper and Cu-Al alloy crystals.

Fig.6 は合金元素 Al の添加により、塑性変形の難易度がどのように変化するかを調べるために、各試料について 1×10^{-9} の塑性歪を生じるための応力を各温度で算出したものである。これはいわば微小塑性領域における変形応力に相当するものである。この図より温度依存性は合金化にともなって著しくなることがわかる。この結果も通常の固溶硬化の特徴と定性的には一致しているが、微小塑性領域における温度変化はきわめて著しい。

V. 考 察

内部摩擦の振幅依存性に関する従来の研究は、Bauer ら^{(14)~(16)}の研究のように転位と点欠陥の相互作用に関するものが主であった。本研究は Cu 中での転位の運動特性におよぼす Al の効果を調べる目的で、内部摩擦の測定より微小塑性歪 $\epsilon_p(\sigma)$ を算出した。これは微小塑性領域における塑性変形の難易度を表わすものである。しかし、転位の運動特性をより直接的に検討するためには、以上の結果をもとにして転位の運動速度を算出し、内部摩擦以外の実験手段による結果と比較することが必要である。

Cu および Cu 合金に関する転位の運動速度は、従来はエッチピット法により幅広く研究されてきた。特に Cu-Al 合金については、Haasen ら^{(20) (21)}が系統的な研究を行ない、転位の運動特性におよぼす溶質原子の効果を詳細に検討している。

ここでは、内部摩擦の実測値から算出された微小塑性歪 $\epsilon_p(\sigma)$ をもとにして、転位の平均運動速度 $\bar{v}(\sigma)$ を見積り、これらとエッチピットのデータとを比較検討する。 $\bar{v}(\sigma)$ の算出はつぎのような方法に従った^{(8) (9)}。

転位論によれば、塑性歪 $\epsilon_p(\sigma)$ と転位の平均移動距離 $\bar{S}(\sigma)$ との間にはつぎのような関係がある。

$$\epsilon_p(\sigma) = A b \bar{S}(\sigma) \quad (11)$$

ただし、 A は運動転位密度であり、 b はバーガースベクトルの大きさである。内部摩擦の測定条件では、試料には振動変形が加えられるので、転位の平均運動速度 $\bar{v}(\sigma)$ と転位の平均移動距離 $\bar{S}(\sigma)$ との間にはつぎのような関係がある⁽⁹⁾。

$$\bar{v}(\sigma) = 4 f \bar{S}(\sigma) \quad (12)$$

ここで f は内部摩擦の測定における振動数を表わす。式(12)は以前に Baker⁽⁸⁾によって導かれたものと等価である。式(11)と式(12)より微小塑性歪 $\epsilon_p(\sigma)$ と転位の平均運動速度 $\bar{v}(\sigma)$ の関係はつぎのように与えられる。

$$\bar{v}(\sigma) = \frac{4f}{Ab} \epsilon_p(\sigma) \quad (13)$$

したがって、運動転位密度 A が既知ならば、 $\epsilon_p(\sigma)$ は $\bar{v}(\sigma)$ に容易に換算できることがわかる。

Fig.7 は Fig.1 の単結晶試料について、300 K における転位の平均速度 $\bar{v}(\sigma)$ の算出結果である。横軸はこの場合分解せん断応力に換算してあり、縦軸は転位の平均速度である。ここでは計算にあたり運動転位密度を $1 \times 10^8 \text{ m}^{-2}$ と

Fig.7 The dislocation velocity at 300 K expressed as a function of resolved shear stress. The solid lines are evaluated from the internal friction data shown in Fig.1, while the broken ones correspond to the etch-pit data compiled by Kleintges and Haasen.

仮定したが、この値は従来の微小塑性の実験結果から妥当なものと思われる。また参考のために他の研究者による純銅および Cu-Al 合金に関するエッチピット観察のデータ⁽²¹⁾も破線で示した。この図を見れば明らかに、300 K において転位の運動は合金化により著しく妨げられることがわかる。また、エッチピット法による従来の実験結果とは、測定領域は異なっているが数値的には大体の一致を示している。エッチピット法が転位 1 本 1 本に関する情報であり、内部摩擦法が転位全体の平均に関する情報であることを考慮すると、このような一致は注目値する。

エッチピット法などのように顕微鏡的手段では、特に Cu および Cu 合金の場合は、従来から知られているように、観察する転位ごとにばらつきが大きく、また研究者間の結果のくいちがいも著しいとされている。本研究では現象論的解析法により、内部摩擦の振幅依存性から転位集団の運動特性として平均運動速度を見積った。ここに得られた結果は、従来の内部摩擦の研究ではあまり行なわれないデータ解析法にもとづくものであるが、エッチピット法などから得られる結果と対比しうる新しい情報を提供するものである。

VI. 結 言

純銅および Cu-0.8at%Al, Cu-1.8at%Al 合金の 3 種類の単結晶に対して 800 Hz 前後の自由端横振動法により内部摩擦の振幅依存性を測定した。さらに現象論的なデータ解析の結果、微小塑性歪と転位の平均運動速度を算出した。得られた結果はつぎのようにまとめられる。

(1) Al を合金化することにより、微小塑性領域における塑性変形は著しく抑制された。合金化の効果は、降伏点以上で観察される通常の固溶硬化に比べてきわめて顕著であった。

(2) 内部摩擦の振幅依存性に関する温度変化を解析した結果、微小塑性領域における塑性変形は温度の低下とともに抑制され、また合金化とともにその傾向が顕著となることがわかった。これは通常の巨視的変形における固溶硬化の特徴と定性的には一致する。

(3) 内部摩擦の振幅依存性の実測値から転位の平均運動速度を見積ったところ、エッチピット法の結果と大体の一致を示した。この場合も合金化にともない転位の運動は著しく妨げられることがわかった。

文 献

- (1) A.Granato and K.Lücke: J. Appl. Phys., **27** (1956), 583.
- (2) A.Granato and K.Lücke: J. Appl. Phys., **27** (1956), 789.
- (3) L.J.Teutonico, A.V.Granato and K.Lücke: J. Appl. Phys., **35** (1964), 220.
- (4) B.D.Trott and H.K.Birnbaum: J. Appl. Phys., **41** (1970), 4418.
- (5) D.G.Blair: J. Appl. Phys., **43** (1972), 37.
- (6) R.B.Schwarz: Acta Met., **29** (1981), 311.
- (7) T.A.Read: Phys. Rev., **58** (1940), 371.
- (8) G.S.Baker: J. Appl. Phys., **33** (1962), 1730.
- (9) S.Asano: J. Phys. Soc. Japan, **29** (1970), 952.
- (10) I.G.Polotskiy, T.V.Golub and O.N.Kashevskaya: Phys. Met. Metall., **36** (1973), No. 2, 166.
- (11) I.G.Polotskiy, T.Y.Benieveva, T.B.Golub and O.N.Kashevskaya: Metallofizika, Akad. Nauk Ukr. S.S.R., **66** (1976), 43.
- (12) V.V.Rudchenko and Ye.F.Pudarev: Phys. Met. Metall., **48** (1979), No. 6, 175.
- (13) R.Threder and P.Feltham: *Internal Friction and Ultrasonic Attenuation in Crystalline Solids*, Vol. 2, Ed. by D.Lenz and K. Lücke, Springer-Verlag, (1975), 369.
- (14) N.F.Fiore and C.L.Bauer: Acta Met., **12** (1964), 1329.
- (15) E.C.Oren, N.F.Fiore and C.L.Bauer: Acta Met., **14** (1966), 245.
- (16) R.H.Saul and C.L.Bauer: J. Appl. Phys., **39** (1968), 1469.
- (17) 浅野 滋: 日本金属学会会報, **20** (1981), 21.
- (18) S.Asano: Japan J. Appl. Phys., **8** (1969), 9.
- (19) S.Asano: Phil. Mag., **30** (1974), 1155.
- (20) H.Ney, R.Labusck and P.Haasen: Acta Met., **25** (1977), 1257.
- (21) M.Kleintges and P.Haasen: Scripta Met., **14** (1980), 999.