多軸負荷を受ける多結晶形状記憶合金[†]

徳 田 正 孝* ペトロ・シットネル**

Polycrystalline Shape Memory Alloy under Multi-Axial Loading Conditions

by

Masataka TOKUDA* and Petro SITTNER**

Key words : Stress-induced phase transformation, Pseudoelastic effect, Systematic experiments, Thin-walled tube, Constitutive equations, Meso-mechanics, Intelligent material

1 は じ め に

近年、機械工学の研究分野において、材料の相変態にかかわる研究が活発である。これまで、材料の相変態は機械工学の分野の研究者・技術者にとって必須の知識ではあっても主たる研究対象ではなかった。

ただし、別の側面からは、相変態は古くから機械工学と深くかかわっている。例えば、液体・気体間の相変態は蒸気機関の原理であり、機械工学分野の研究者・技術者にはなじみが深い。この蒸気機関で利用される材料(物質)特性は、気体と液体間の体積比、さらにこれがある一定の容積内に制限した時に生じる大きな圧力差である。これは、本論文で議論する形状記憶効果応用技術の一種であると分類することもできるであろう。

相変態を機械工学にかかわる材料学的視点から、あるいは材料力学的視点から眺めるとどうであろうか。機械工学において、材料は長く提供されるものであった。提供された材料の力学的特性を把握し、これを基礎にして、安全あるいは寿命の長い機械・構造物を合理的に設計するのである。機械工学における材料研究は、提供された材料の力学的特性(変形・強度特性)を構成方程式に集約することであり、これを用いて機械・構造物の応力・ひずみ解析を行い、その安全性を確認した。もちろん、計算機の発達の十分でない時代においては、このようないわゆる構造解析は実際には容易ではなく、多くの工学技術者の興味を集めた大きな研究対象の一つであった。この構造解析における多くの障害を一挙に取り除いたのが計算機の発達に助けられた汎用数値解析法(とくに有限要素法)の発達・普及である。ここにおいて、機械・構造物の応力・ひずみ解析手法開発に忙殺されていた材料力学分野の研究者はようやく、材料の力学特性の解明に目を向ける余裕が出てきた。さらに、複合材料の出現がある。必要な力学特性を持つ材料を設計・製作することが、機械工学の材料力学分野の役割として入ってきた。とくに、繊維強化材料(GFRP, CFRP, FRM, C/Cなど)の発達には目覚ましいものがあり、これを契機に

必要な力学特性を人為的にコントロール(設計)するティラード・マテリアルの概念が構築された。

さて、このように必要な特性を持つ材料は、設計するものである、あるいはその可能性があるとの考えが定着した結果、粒子分散強化型複合材料、また傾斜機能材料などの新素材開発研究が、機械技術者の興味を引く研究分野ともなり、さらには、インテリジェント材料(知能材料、スマート材料)設計の概念にまで到達する。インテリジェント材料とは、生物・生体、あるいは生体組織のように、危険に対するセンサー機能を持ち、かつその危険の度合いを判断する(自己診断)、さらにそれに対する自己反応(危険に対する回避、あるいは損傷が生じた場合の自己修復)などの機能を持つ理想(夢)の材料である。ここにおいて、材料(マテリアル)とこれらの組み合わせにより得られる機械・構造物(システム)との区別が判然としなくなる。これは、材料の特性がどのような微視的構造・微視的メカニズムで発現しているかを考える時、もともと当然のことである。すなわち我々が工業的に利用している多くの金属材料は、原子、分子、結晶、多結晶といった階層構造を持っている。同じ原子よりなっている材料でもそれぞれの階層での構造の違いにより全く異なる力学特性を持つ材料ができて上がる。例えば炭素棒とダイヤモンドの違いである。また、各階層構造における欠陥が材料の(力学的)特性に決定的な役割を果たす。例えば、結晶構造における転位、あるいはクラックの存在である。もし転位なる線欠陥がなければ、その材料の降伏応力は飛躍的に大きくなるであろうし、また微細なクラック(透明なガラスにも目には見えない微細なクラックが無数に入っている)がなくなれば、破壊応力は数百倍も大きくなる。このように見る時、材料自体も機械・構造物であり、ある機能を実現するための複雑な構造機能システムである。すなわち、現在の機械工学での材料研究は、材料を構造システムとみる構造機能解析研究と言えるかもしれない。このような認識は、電子顕微鏡の発達・普及の助けによるところが大きい。

[†] 原稿受理 平成7年8月18日 Received Aug. 18, 1995

* 正 会 員 三重大学工学部機械工学科 〒514 津市上浜町, Dept. of Mech. Eng., Mie Univ., Kamihama, Tsu, 514

** チェコ科学アカデミー・物理学研究所, Inst. of Physics, Czech Acad. of Sci., Czech Republic

また、電子計算機による適切な情報処理にも大きく依存している。

さて、このような材料に対する機械工学分野での材料設計・システム研究分野の一領域として、相変態を取り入れる材料設計・特性評価がある。ここでは、井上らの先駆的研究がある。ここでは、製鉄、鑄造、各種熱処理プロセスに対して、熱-力学-化学反応を取り入れた形での材料の力学的特性シミュレーション・システムが完成しており、そのデモンストレーションとして日本の伝統的^{1),2)}技能・技術である日本刀の熱間鍛造が解析されている。

この相変態に対する関心を、機械工学者・技術者に対しさらに高めたのが、形状記憶合金（形状記憶効果）の出現であろう。すなわち、相変態により材料の力学的特性が変化するという金属材料学的なものではなく、相変態により大きな変形、あるいは大きな力を発生させることができるという極めて運動学的・機械力学的な現象・効果の出現である。これは、この緒言の初めの部分にて紹介した液相-固相間変態と基本的に同じ効果であり、蒸気エンジンに対し、固体エンジンといった新たな展開なども期待できることになる。

ここで著者らが特に注意を喚起したいのは、以下のようなことである。液相-気相変態を支配するのは圧力と温度である。また、金属の状態図、とくに固相-液相変態における支配パラメータも温度と圧力である。一方、形状記憶合金の固相-固相変態は、温度と応力によって支配される。応力と圧力の違いは何か。応力は2階のテンソルであり6つの独立成分を持つ。圧力（平均静水圧）はこの6つの独立成分の1つに過ぎない。もう少し単純に問題を絞ると、これまでの金属の状態図、あるいは気体-液体状態変化は、温度軸と圧力軸で表すことができた。一方、そのメカニズムから明かなように固体-固体相変態はせん断力軸が必要であることを認識する必要がある。これは、同じ相変態でも、固体-固体相変態の多様性を示唆している。すなわち固体-固体相変態にその変形原理を持つ形状記憶効果は、せん断応力軸を含む相変態であり、これまでの圧力軸のみで整理されている相変態の力学とは明確に区別して取り扱う必要がある。高圧物性物理で有名なブリッジマン教授は、膨大な高圧力による材料物性変化に関する論文を発表した後、今後の研究はせん断応力軸との示唆を残したと言われている。これまでの形状記憶合金に関する実験的研究を見ると、そのほとんどが引張りと温度変化のみによるものであり、力学的見地からは極めて不十分な状態にある。現在、このような基礎的実験事実が極めて不足しており、この合金の基礎的研究の発展、さらには形状記憶合金の工業的応用拡大に対する大きな障害ともなっている。

さてこのような見地に立ち、数年前から著者らの研究室にてせん断軸を含む一般負荷条件下における多結晶形状記憶合金の変形挙動を、系統的で、精密な実験により調べてきた³⁾⁻¹⁶⁾。また、これらに対して、メゾスコピック・アプローチによる理論的解析研究を進めてきた¹⁷⁾⁻²⁴⁾。

本稿では、上に述べたような見地から多軸複合（一

般）負荷条件下における多結晶形状記憶合金の変形挙動の研究の状況を総括し、その展望を論じるが、著者らの研究室以外では殆ど行われていないのが現状である。したがって、紹介する内容の多くが著者らの研究グループのものであり、これまでの研究のまとめのようになってしまうことをお許し願いたい。また、総説ではあるが解説的な部分も多く含まれてしまうこともご容赦願いたい。

2 一般負荷と形状記憶合金

緒言では、固体-固体間相変態、とくに形状記憶合金の特異な変形挙動はせん断応力が重要な支配因子であることを述べた。これを踏まえ、形状記憶合金研究における一般負荷の重要性を、ここで少し詳細に説明したい。

形状記憶合金のいわゆる形状記憶メカニズムはオーステナイト-マルテンサイト間の相変態である。つまり結晶構造が変化することの利用である。この相変態は、温度および応力によって制御される。すなわち、形状記憶効果は、温度誘起マルテンサイト変態（およびその逆変態）と応力誘起マルテンサイト変態（およびその逆変態）の組み合わせにより生じる。この変態の結晶学的詳細²⁵⁾は、極めて複雑であるのでここでは、その基本メカニズムに通常用いられる模式図を用いて説明を進めていく。Fig. 1の正方格子を母相（オーステナイト相）であるとすると、これを冷却すると、Fig. 1(a)に示したような双晶型変態（マルテンサイト変態：結晶構造の変化）が生じる。この冷却による変態は一般に方向性がなくランダムに生じるため、わずかな体積変化が見られるものの、大きなゆがみ（変形、あるいは形状変化）は観察されない。加熱すると元の母相に戻る。一方、このような母相構造にせん断応力が加わるとこの双晶型変態（マルテンサイト変態）は、（せん断応力の方向と関連した）一つの方向にそろって生じる。つまりここでは大きな永久ゆがみ（永久形状変化）が発生する。しかもこのゆがみ（変形）は、限界はあるものの数%に達し、弾性変形、あるいは熱弾性ひずみに比べて極めて大きい。このゆがみは、加熱による逆変態（オーステナイト変態）により元に戻る。この様子を、応力-ひずみ関係で示すとFig. 1(c)（実線）となる。すなわちこれがいわゆる典型的な形状記憶現象（効果）である。また、Fig. 1(b)において、実験室温度がオーステナイト（逆）変態温度よりも高い場合、除荷の途中からオーステナイト変態（逆変態）が生じ、加熱しなくても変形は元に戻る（Fig. 1(c) 破線）。これは、擬弾性変形現象（あるいは擬弾性効果）と呼ばれる。そ

Fig. 1. Temperature-induced and stress-induced martensitic phase transformations.

のメカニズムは、形状記憶効果とまったく同じであり、環境の違いにより現れる巨視的挙動の見かけ上の違いである。

さて、ここで温度はスカラー・パラメータ（独立変数は1）に対し、前節で指摘したように応力は2階のテンソルであり6つの独立の成分を持つ。すなわち変態の大きさと方向を6つの独立成分を変化させることによりコントロールできる可能性がある。つまり、現在の形状記憶合金の応用は、極めて単純な負荷（単純ねじり、単軸引張り、あるいは組合せ比例負荷）の範囲に限られているが、これらの6つの成分の任意の変化を含む負荷を与える時、形状記憶合金には極めて多様で複雑な、しかも所要の変形挙動を発生させることができるはずである。形状記憶合金に単純な伸び・縮みを与えるだけでなく、3次元的な複雑な動き・変形・力を与える。また制御できる可能性がある。

次に、工学的応用で用いられる形状記憶合金のほとんどは多結晶体であることに注目しよう。多結晶金属はその名のとおりに、多数（無数）のミクロンオーダーの成分結晶粒より成っている。しかもこれらの結晶粒はそれぞれ勝手な（ランダムな）配向を持っている。ここで言う配向とは、結晶学的に決まる双晶を生じやすい面と方向の組で表されるいわゆる双晶系が空間的にどのように配置されているかである。著者らの実験に採用した銅系形状記憶合金では一つの結晶粒内に24の等価な双晶系がある。すなわち、各結晶粒成分は相変態に関し強い異方性を持つ。このような、異方性を持つ結晶粒が多数集まった多結晶体に負荷が加わった場合、これら配向の異なる結晶粒間の相互干渉のためいわゆる内部応力（結晶粒間の応力差）、また残留応力（除荷後にも残留する微視的応力：これらのトータルは外力とつりあうためゼロである）が発生する。すなわち、外的に与えられた荷重が極めて単純なものであっても、各成分結晶粒には、それぞれ互いに異なる複雑な複合負荷が加わることになる。今、この残留応力を例にとって結晶粒間の相互作用の影響の効果について考えてみよう。Fig. 2はこのための説明図である。残留応力に対応するような、外力に比べ極めて小さな応力が結晶粒に加っている場合を考えてみよう。この時母相（オーステナイト結晶構造）は、その小さな応力分だけ弾性的にゆがんでいる。これがFig. 2(b)の状況である。これを冷却するとどのようなになるか。この応力が極めて小さいものであっても、マルテンサイト変態はこの負荷方向に導かれ大きな変形（ゆがみ）を生じる（Fig. 2(c)）。Fig. 1で説明した温度変化のみでは相変態は生じて、大きなゆがみ（変形）は得られない状況を思い出して頂きたい。たとえ、残留応力が応力誘起マルテンサイト変態応力よりもはるかに小さくても、形状記憶合金の変形に対し決定的な役割を果たす。実際の現象とのかかわりを挙げれば、例えば次のようである。形状記憶合金は、負荷-除荷-加熱でその形状が元に戻るのがその特徴であるが、多結晶形状記憶合金では、一般にそのプロセスを何度か繰返すことによりその特性を獲

得できる。いわゆる形状記憶効果の安定化（STABILIZATION）である。これは上記の内部応力あるいは残留応力が支配パラメータであると考えられる。また、形状記憶合金をロボットなどのためのアクチュエータとして用いる場合、重要な問題として形状記憶合金のトレーニングがある。すなわち、適当な残留（内部）応力を材料あるいは構造要素に発達させることにより、いかなる外的負荷も加えることなく、温度を繰返し変動させるだけで、形状記憶合金に繰返し変形、あるいは繰返し力を発生させようとするものである（2方向形状記憶効果の付与）。このような、形状記憶合金のトレーニングによるいわゆるアクチュエータ機能付与は形状記憶効果の工学・工業的応用の観点から極めて重要な研究課題となっている。

さて、上述のような形状記憶合金の微視的構造・微視的変形メカニズムを考える時、形状記憶合金の複雑な挙動に対し予測性を持つ構成方程式を形式化するためには、成分結晶粒に生じる内部（残留）応力あるいは内部（残留）ひずみを考慮する必要がある。いわゆる、メゾスコピック・アプローチが必要な領域である。この種の材料不均一を扱うため、塑性力学などの分野ですでにいくつかのモデルが提案されている。結晶粒成分の力学的特性については、いわゆる結晶塑性論に基づきモデル化され、それら結晶粒間の相互作用（これによって生み出される内部応力、内部ひずみ）は、いわゆるセルフ・コンシステント・タイプのモデルにより取り入れることができる。このような多結晶体の塑性力学的モデル構築のためのメゾスコピック・アプローチの詳細については、著者の論文・解説もあるので参照して頂ければ大変幸いである。^{26), 27)}

形状記憶合金の力学的変形挙動に関する構成方程式の提案については、単軸負荷・除荷条件下のものがほとんどである。とくに熱力学的考察に基づく Muller のもの、²⁸⁾ 田中らによるものが受け入れられている。また、多軸一般負荷条件については、例えば、Sun Q. P. ら、^{29)~31)} Patroor-Berveiller, ^{32)~34)} Ranieckie, ³⁵⁾ 田中らによってその構築が進められている。そのうちいくつかはメゾスコピックなアプローチに基礎を置いている。しかしながら、これらの構成方程式で得られた結果について、多軸負荷の実験結果の検証を受けていない。これは、多軸負荷実験結果がほとんど見当たらないためである。最近いくつかの研究室で多軸負荷実験の準備が進められて来ていると聞が、

Fig. 2. Effect of residual stress.

少なくとも国際会議録などで公表されたものとしては、著者らのグループによるもの以外には見当たらない。このような多軸研究の遅れには、もちろんいくつかの理由がある。まず、マルテンサイト変態にかかわるこのような力学現象につき機械工学の研究者・技術者が興味を持ち始めたのが、ほんの、ここ10年程度にすぎず、極めて歴史の浅いことが挙げられる。また、その形状記憶特性が最も優れ、研究開発およびその応用が最も活発であるいわゆる Ti-Ni 系形状記憶合金^{39), 40)}は、線材としては提供されるが、バルク材料の製造は極めて難しい。したがって、例えば巨視的な多軸負荷実験法のスタンダードである、薄肉円筒試験片あるいは2軸引張薄板試験片などを用意することが極めて困難である。この状況にあって、ごく最近 Ti-Ni 形状記憶合金コイルばねの変形特性を解析することにより、組合せ応力効果の基本特性を究明する試みが発表されている。これは、Ni-Ti 形状記憶合金における上記の問題を回避するひとつの興味ある手法であるが、新たな問題を生むことにもなる。最近、ようやく加工性に優れ、かつ値段が比較的安い銅系形状記憶合金や鉄系形状記憶合金⁴²⁾にも興味が向けられるようになってきた。これら鉄系、および銅系形状記憶合金は、その形状記憶特性、また疲労特性においては劣るものの、線材に限られる Ti-Ni 系合金に対し、比較的容易にバルクなものを製造することができ、形状記憶効果の新たな応用性拡大が期待できる。基礎実験観点からすれば通常の旋盤加工で例えば薄肉円筒試験片を作成することができ、これらの材料をサンプルとして、複合負荷に対する形状記憶合金の熱-力学特性を調べることができる。

以下に、著者らの銅系形状記憶多結晶金属を用いた実験結果を例に引きながら一般負荷条件下における形状記憶合金の変形特性を紹介する。

3 複合負荷条件下の実験結果の紹介

3.1 試験片および実験方法

用いられた試験片は、銅系形状記憶合金 Cu-10 wt % Al-5 wt % Mn-5 wt % Zn で作られた外径 8 mm、内径 5 mm、ゲージ長さ 40 mm の薄肉円管である。熱処理により無負荷状態における基本変態温度は

$M_s=239\text{ K}$, $M_f=223\text{ K}$, $A_s=248\text{ K}$, $A_f=260\text{ K}$ に調質してある。したがって用いたこの試験片材料は室(常)温において擬弾性挙動を示す。ここに M , A はマルテンサイト、オーステナイト、下添字 s , f は開始および終了を意味する。試験機には島津オートグラフ AG10TC⁴³⁾を用いた。この試験機により、薄肉円管試験片に軸応力 σ (あるいは軸ひずみ ϵ) とねじり応力 τ (あるいはねじりひずみ γ) を同時に加え、かつ独立に制御することができる。温度 T は電気炉により変動させることができる。

実験はこの装置を用いて、応力-温度空間 (σ , $C_1\tau$, T)、あるいはひずみ-温度空間 (ϵ , $C_2\gamma$, T) にて種々の経路を与えることにより行われた。ここに、 C_1 と C_2 は温度一定(室温)下におけるねじり試験と引張試験の応力-ひずみ関係を一致するように導入した係数で

ある。同時にこれらの係数を用いることと、温度一定下における種々の比例負荷試験により得られる相当応力 ($=[\sigma^2+(C_1\tau)^2]^{1/2}$) - 相当ひずみ ($=[\epsilon^2+(C_2\gamma)^2]^{1/2}$)⁷⁾ 関係も引張試験のそれに一致させることができる。

3.2 単純負荷試験結果

Fig. 3 は、常温下における単軸引張-除荷繰返し試験の結果を示している。Fig. 3(a) からわかるように擬弾性変形が安定化するには10回程度の繰返し予変形を与えることが必要である。また、安定化した後の部分ループ実験の結果を Fig. 3(b)~(d) に示した。近年、ようやくこの部分ループの詳細を通じての多結晶形状記憶合金のメカニズムの研究、およびその形式化が研究されるようになって⁴⁴⁾いる。これらの図からわかるように、一般に銅系形状記憶合金の擬弾性ループの面積(エネルギー消散)は Ni-Ti 系合金のそれに比較して小さく、(使い方にもよるが)形状記憶機能としては劣っていると言える。またここでは、単結晶に見られるような変態にかかわるシャープな変化は見られない。この理由のひとつとして、多結晶体の不均一性(成分結晶粒の配向、また製造過程における何らかの不均一)を挙げる事ができる。配向による材料不均一にかかわる単純負荷での応力-ひずみ関係のスムーズ化は、簡単な数理モデルによるシミュレーション¹⁹⁾計算で確認している。

Fig. 4 は、円筒のねじり-逆ねじり繰返し試験により得られたせん断応力-せん断ひずみ関係を示している。図から、両振繰返し変形を与える場合、片振繰返し変形の場合よりも早く安定化(STABILIZED)サイクルが得られることがわかる。また塑性変形に見られる様な強いバウシinger効果が見られないことなどが興味深い。これは、同じ消散を伴う非弾性変形ではあるが、すべり変形により得られる塑性変形と、変態により得られる擬弾性変形の違いとして理解できる。

3.3 組合せ比例負荷試験

Fig. 5 は、ねじりと軸力による比例負荷試験の結果の一例を示している。ここに縦軸、および横軸は、3.1節で説明した相当応力 σ_{eq} 、相当ひずみ ϵ_{eq} である。組合せ比例負荷の場合も、単純負荷に比べて安定サイクルに達するまでのサイクル数はやや多いものの、20 サイクル程度で安定サイクルに達することがわかる。また、組合わせ負荷の場合においても擬弾性特性すなわち、無負荷状態に対して無応力状態が対応することが確認される。また相当応力 σ_{eq} 、相当ひずみ ϵ_{eq} で表されたこの安定サイクルは、単軸引張試験により得られる安定化応力-ひずみサイクル関係にはほぼ一致している。著者等の実験によれば、これ以外の種々の応力比による比例負荷試験の安定化相当応力-相当ひずみ関係も単軸引張りによるそれに一致する⁹⁾。

3.4 温度変動を含む組合せ比例負荷試験

Fig. 6(a) は、与えられた温度-応力複合経路を示している。この場合、点1→点2は常温での比例負荷試験、点2→点3→点4は応力状態を一定に保持したままで温度サイクルを与えたことを示している。また、点4→点

Fig. 3. Cyclic tensile loading-unloading experiments.

Fig. 4. Cyclic torsional experiments.

Fig. 5. Proportional loading experiment.

5は、比例的に除荷を行ったことを示している。Fig. 6(b)は、これに対するひずみ応答を示している。ここにおいても確認されるように、比例負荷に対しては、比例変形が対応する。また、比例負荷を与えられた状態で、温度変化が与えられると比例変形し、かつ温度が元に戻ると変形も元に戻る(点4と点2)。すなわち、試験片の形状は記憶されている。したがって、負荷点2で複数回の温度サイクルが与えられると、変形応答2—3—4が繰返されることになる。少しくどくなるが、このような方法で、形状記憶合金に2次元の挙動を与えることが可能となる。すなわち、温度変化を与えることにより、ねじれと伸縮を同時にかつ比例的に発生させることができる。

Fig. 7は、温度変動を持つ比例負荷試験の別の例を示

Fig. 6. Proportional loading experiment with temperature change (I).

Fig. 7. Proportional loading experiment with Temperature change (II).

している。この場合、まず温度を上昇させてから行ったものである。形状記憶合金の当然の特性ではあるが、温度を下げる(Fig. 7(a)での点3→点4)事により、大きな変形の比例的増加(Fig. 7(b)での点3→点4)を得ることができる。また、この場合でもゼロ応力状態は、ゼロひずみ状態に対応している。すなわち、このようにやや複雑な経路をたどる場合でも形状記憶合金はその元の形状は記憶している。

3・5 複合負荷試験

次に複合変形および複合負荷試験結果の一例を示す。複合負荷(変形)試験とは、ここでは応力(あるいはひずみ)空間においてその経路が直線的でない(比例負荷、あるいは比例変形的でない)場合を総称する。この複合負荷には、2軸引張試験で与えられる様な応力テンソル(あるいはひずみテンソル)の主軸不変な場合と、本論文で扱う様な引張りとねじりの組合せ負荷が与えられ、主軸が回転する場合の2種類がある。変形中の活性化バリエーションの変化を考える時、形状記憶合金の巨視的変形挙動の理解に対していずれの実験も必要であるが、2軸引張試験は、いずれの研究室でも、まだ行われておらず(あるいは公表されておらず)残念ながら論評できない。

さて、Fig. 8は複合変形試験の一例として、三角形形状複合ひずみ経路(OABO, OCBO, OBAO, OBCO)に対する応力応答を示したものである。ここで注目すべき特徴のひとつは、経路OABと経路OCBをたどった後生じた応力状態B*とB**の違いである。すなわち、塑性変形と同じく、同じ変形状態であっても、そこに至る変形経路が異なる場合、到達される応力状態は異なる。すなわち明瞭な履歴(経路)依存性が観察されている。更に興味深いことは、無ひずみ状態は常に無応力状態に対応し、履歴依存性が消滅している。形状記憶合金の変形メカニズムからすれば当然のことであるが、弾性変形、塑性変形になじんできている従来の固体力学研究者に

Fig. 8. Complex deformation experiment ($OB = 3.0$ %, $\Phi = 36^\circ$).

Fig. 9. Complex loading experiment ($OB = 350$ MPa, $\Phi = 36^\circ$).

としては極めて新鮮な現象に見える。Fig. 9は複合負荷試験の一例を示している。Fig. 8に示したひずみ制御の実験とは異なり、応力制御で三角形状複合応力閉経路OABO, OCB O, OBAO, OBCO [Fig. 9(a)]を与えた場合である。対応するひずみ応答をFig. 9(b), (c)に示した。ここでも明らかに履歴依存性が認められる。すなわち、Fig. 9(b)におけるひずみ状態 B^* と B^{**} は、いずれも同じ応力状態点 B に対応している。このような履歴依存性の発生の根拠は、例えば単軸引張応力-ひずみ関係から推定することができる。すなわち、単軸引張りの応力-ひずみ関係の概略図Fig. 10において、例えば応力 A に対して、2つのひずみ B と C が対応する。またひずみ A^* に対して応力 B^* と C^* が対応する。このようなエネルギー消散に伴う変形挙動の多様性が、複合負荷条件下ではさらに複雑な形で現れることになる。この複雑さを生み出すのは、例えば変形中の応力主軸の回転（単軸引張り、あるいは比例負荷試験では応力主軸の回転はない）に伴う活性バリエーションの変化などが考えられる。このような履歴依存性は、とくに一般負荷条件下における形状記憶合金の精度の高い構成方程式の形式化を極めて困難なものにする。履歴依存性については、良く知られるように塑性変形において見られ、塑性異方性の発達のメカニズムの解明あるいはこれを考慮した信頼性の高い構成方程式の構築に関連して研究者の興味を長い間引きつけていた。この経験は、形状記憶合金の構成方程式形式化に対し多くの示唆を含んでいるが、その微視的変形メカニズムはまったく異なることを留意しなければならない。いずれにしても、この研究は始まったばかりである。Fig. 9(c)にもう一つの興味深い現象が見られる。経路OBAO (Fig. 9(a))に対する応力応答OBAO (Fig. 9(c))に注目されたい。応力点 A では、すでにせん断応力はゼロである。一方、対応するひずみ状態点 A では、せん断ひずみ成分が残っている。この残留せん断ひずみ成分は、軸応力の除荷 (Fig. 9(a)のAO)によって、軸ひずみと同時に消滅する。すなわち、これは軸応力を変化させることにより、大きなせん断ひずみ

Fig. 10. Simple case of path dependency.

(円筒の場合、ねじり変形)の変化を与え得ることを意味する。応力経路CO (Fig. 9(a))に対応する応力応答CO (Fig. 9(c))からわかるように、この逆も真であり、せん断応力の除去により軸ひずみが消滅する。このような特性は形状記憶合金の工業的応用の拡大を感じさせてくれる。

3・6 温度変動を伴う複合負荷

Fig. 11に温度変動を伴う複合負荷試験の一例を示す。Fig. 11(a)は用いられた温度-応力履歴経路であり、(b)は対応するひずみ応答経路を示している。Fig. 11(b)において、1—2: 軸応力負荷、2—3: せん断応力負荷、3—4: 応力状態を維持したまま温度を室温から363 Kまで上昇させる、4—5: 温度を保ったまません断応力を除荷する、5—6: 軸応力を除荷する、6—7: 温度を室温に戻す、である。温度を変動させた状況に注目してみよう。温度上昇3—4に対し、ひずみは原点（ひずみゼロ）に向かって3—4とほぼ比例的に大きく減少する（ただし、厳密には原点0と点3を結ぶ直線上にあるわけではない。この理由は次に示す実験結果から理解できる）。また、Fig. 11に示された破線は、前述の経路から温度変動を除いた場合を示している。この図から負荷経路1—2—3と除荷経路3—2—1では、対応するひずみ応答は互いに異なっていることが確認できる。また、この応答経路と、温度変化を含む経路では、応力の変化は同じであるが、その応答経路には大きな違いが出ている。すなわち、複合負荷経路に加えて、これに適当な温度変化を与えることで、形状記憶合金に極めて多様で複雑な多次元挙動を与え得ることを示唆している。本実験を例に取れば、例えば、温度変化量を変えてやればひずみ応答3—4間の距離を変えることができる。

Fig. 12は、温度変動を含む複合負荷試験のもうひとつの例を示している。温度-負荷経路はFig. 12(a)に示すように、1—2: 軸応力とせん断応力の組合せ比例負荷、2—3—4: 応力状態を維持したまま温度を上下させる、4—5: せん断応力の除荷、5—6—7: 応力状態を維持したまま再び温度を上下させる、7—8: 軸応力の除荷、である。対応するひずみ応答経路はFig. 12(b)に示した。温度変動を与えた場合に注目してみよう。まず、比例負荷の後、温度を上下させた場合（2—3—4）、すでに観察・議論したように、温度上昇に対し逆変態が生じ、比例的に変形は減少する。温度を元に戻す（低くする）と、再度マルテンサイト変態が生じ、ひずみ

Fig. 11. Complex loading experiment with temperature change (I).

Fig. 12. Complex loading experiment with temperature change (II).

みは比例的に上昇し、元の点（2と4）に戻る。すなわち形状記憶合金は温度変化の前の変形状態を記憶していることになる。また、この温度変化を繰返すことは、この薄肉円筒試験片に軸方向の伸びとねじれ変形を同時に比例的に繰返し与えることを意味する。ここまでは、Fig. 6 に示した比例変形試験結果と同じである。次に温度変化経路 5—6—7 に対するひずみ応答 5—6—7 (Fig. 12 (b)) を見てみよう。この場合、応力状態 5 は複合負荷（応力主軸の回転を含む負荷）プロセスの結果として到達された状態である（応力状態 2 は、組合せ負荷により得られたものであるが、比例負荷プロセスにより到達されたものであり、応力主軸の回転は含まれていない）。この場合、温度を上昇させると、ひずみは必ずしも比例変形的でない形で減少する（5—6）。また、その後温度を上昇させると、ひずみは増加するが元のひずみ状態 5 ではなく点 7 にたどりついている。すなわち、この場合、比例変形で与えられた点 2 の変形状態と異なり、複合負荷で得られた点 5 の変形状態は、記憶されていない。すなわち、温度を元に戻しても変形は元に戻らない。形状記憶合金もその形状を記憶していないことがあることを記憶すべきである。

4 形状記憶合金の力学的モデルと構成方程式について

3章で示したのは、複合負荷条件とはいえ、熱力学的にも、運動学的にも、金属物理学的にも、力学的にも極めて限られた条件内の結果であり、実際の形状記憶合金の挙動はさらに多様である。しかしながら工学的応用を考える時、ある限られた条件下での挙動の正確な信頼性の高い予測が極めて重要であることも確かである。ここでは、このような意味を背景に、3章で示した実験事実を再現でき、さらにある程度の予測性を持つ構成方程式の形式化手法の一例を示す。^{19), 23)}

Fig. 13. Two-dimensional model of single crystal component.

Fig. 14. Phase Transformation surfaces.

さて、ここでは構成式の形式化に当たって次のような基本的仮定を置いている（モデル化している）。

(1) 応力誘起相変態は正、逆とも双晶変形システムに対する分解せん断応力がある一定値（臨界せん断応力）になった時に開始する。

(2) 臨界せん断応力は、マルテンサイト変態に対してもオーステナイト変態（逆変態）に対しても、温度上昇に比例して増加し、変態により生じたせん断ひずみの総和に比例して増加する。

(3) 結晶粒間の相互作用は、セルフ・コンシステントモデルあるいはそれに類似（あるいは準じる）モデルによって考慮する。

さて以上の基本的仮定の下で、3章で示された種々の実験結果の再現を試みる。ただし、計算の簡単のため、次のような2次元結晶モデルを採用する。すなわち、この結晶はちょうど重ねられたトランプ・カードのようにすべる（せん断変形する）ことができる。そして、このトランプカードに面内せん断応力を加えると当然のことながらカードは“ずれ（せん断ひずみ γ ）”を生み出す。ただし、カードと異なり、Fig. 13 に示すような2つの方向にのみせん断変形するものとする（破線： X_1^* 軸から 60° あるいは 120° 回転した方向）。また、塑性変形のすべりと異なり、このせん断変形の大きさにはある限界があるとする（ $\gamma \leq \gamma_{\max}$ ）。この制限は、形状記憶合金の変形メカニズムが双晶型変態であり、この変態が完了した時点でそれ以上の非弾性せん断ひずみは生じないことにより付加される。この時、この結晶モデルの変態面は Fig. 14 に示すように2次元せん断応力平面（ $\sqrt{3} \tau_{31}^*$, $\sqrt{3} \tau_{32}^*$ ）において2つの菱形で表される。外側はマルテンサイト変態開始面であり、内側の菱形はオーステナイト変態（逆変態）開始面である。仮定に従って、これ

らの菱形は、せん断変形の増加・減少に対し、また、温度の上昇・下降に対し相似拡大・縮小する。さて、このような力学特性を持つ2次元結晶粒が多数集まって多結晶体を形成し、巨視的せん断応力負荷 ($\sqrt{3}\tau_{31}$, $\sqrt{3}\tau_{32}$) が与えられた場合、各結晶粒ではその配向により、それぞれ異なる挙動を示すが、これらの平均として多結晶体の変形挙動が算出される。

Fig. 15, 16 は、この力学モデルにより算出された形状記憶合金の変形挙動の一例を示す。3章に示した実験結果との比較においては、 $\sqrt{3}\tau_{31} = \sigma$, $\sqrt{3}\tau_{32} = C_1\tau$, $\gamma_{31}/\sqrt{3} = \epsilon$, $\gamma_{32}/\sqrt{3} = C_2\gamma$ なる対応があることに留意されたい。この対応に関する理論的根拠は数理塑性論にて発展させられ、とくにイリュージシの一般塑性理論で論じられた2階対称テンソルに関する一般関係に基づくものである⁴⁵⁾。ただし、用いた対応は、材料挙動が、主として応力（あるいはひずみ）テンソルの第2不変量に支配され、第1および第3不変量の影響は無視できるという仮定に基づいている。この対応は、多結晶体の塑性変形に対しては有効であったが⁴⁵⁾（第1および第3不変量の効果が小さいので）、形状記憶合金の場合、これら2つの不変量の影響はいまだ必ずしも明確ではなく、これから研究課題である。ここにおいて、係数 C_1 , C_2 の導入について、理論的には極めてあいまいなものがあることを認めなければならない。同時に、実際の実験では、特にねじりが入った場合円筒が有限の厚みを持っているため、変形は必ずしも一様でないこと、また材料が初期状態において初期等方性が保たれているかどうかの問題などもある。いずれにしても、多くの問題を含んでいるが、研究は始まったばかりである。

さて Fig. 15 は、応力制御で行われた3角形応力負荷閉経路 (Fig. 9 に示した実験結果に対応) に対する計算結果を示す。また Fig. 16 は、3角形複合応力経路において温度サイクルを負荷した場合 (Fig. 11 に示した実験結果に対応) に対する計算結果を示している。モデルの簡単さのため定量的には十分ではないが、複合負荷条件下に見られる形状記憶合金の変形挙動の傾向を良く再現していると考えられる。

なお、ここでは計算の簡単のため、結晶粒間の相互作用については、応力一定（マクスウェル型）の仮定を用いて考慮した。この他、良く知られているように、ひずみ一定（ホイクト、あるいは T. H. Lin 型）の仮定、あるいはより理論的なセルフコンシステント・モデルの採用も考えられる。著者らの経験によれば、これらのモデルの間には、確かに単軸引張りの応力-ひずみ関係にて定量的な差を生み出すが、定性的には大きな差異はなく、この定量的な差は工学的観点からすれば材料定数の選択でカバーできる。複合負荷においても、その定性的特徴は、いずれのモデルを用いても大差はない。もちろんより精密なセルフコンシステント・モデル使用が最も望ましいが、決定的な問題にはならないと著者は判断している。また、このセルフコンシステント・モデルももちろんパーフェクトなものではなく、結晶粒界の特性、結

Fig. 15. Computer simulation result (I).

Fig. 16. Computer simulation result (II).

晶粒の形状、結晶粒内のひずみおよび応力不均一の影響、などを無視している点から多くの改良の余地がある。なお塑性力学研究の分野では、Hill の厳密理論、あるいはセルフ・コンシステント・モデルの修正を試みたもの、あるいは有限要素法の発達を基礎とし、微視的不均一をより精密に取り入れる高橋らの試みも見られている。これらは、工学における微視的メカニズム、微視的材料構造の取り入れの難しさを示していると同時に、メゾメカニクスの工学における役割と期待を感じさせてくれる。

5 おわりに

本稿では、複合負荷条件下における形状記憶合金の研究の意義と、現状について紹介した。ここで明らかにした事は、研究は始まったばかりであり、研究手法自体もまだ確立されておらず模索の状態ということである。形状記憶現象の基本メカニズム（温度誘起マルテンサイト変態および応力誘起マルテンサイト変態）自体については、これまで多くの基礎的・物性学的あるいは金属学的分野での研究の膨大な蓄積があり、ここに得られている知見を十分に生かす事が大切であり、機械工学と金属・材料工学との境界・融合領域である。

最後に、形状記憶合金、あるいは形状記憶効果の研究に対する期待を記しておきたい。

まえがきにも触れたが、複合材料、機能材料に続き理想材料として知能材料の概念がある。これは、特に大型構造物や、航空機、人工衛星・宇宙往還機・宇宙ステーション、また、原子力機器などそのメンテナンスの困難な機器・構造物用材料のための理想材料として期待されており、多くの研究活動、研究会活動、国内・国際会議の開催などが近年極めて活発である。ここにおいて、形状記憶合金は、圧電素子などと並んで大きな期待を集めている⁵⁰⁾。

また、次世代ロボットのアクチュエータとして人工筋肉の概念の提案とその具体的研究開発の活動がある。ここでは、低位のエネルギーを有効な力学的エネルギーに変換する素子の開発であるが、ここでも圧電素子・圧電ゴム（電気エネルギー $\leftrightarrow$ 力学エネルギー^{51), 52)}）、高分子ゲル（化学エネルギー $\rightarrow$ 力学エネルギー^{51), 52)}）、などと並んで形状記憶

合金・形状記憶ポリマー（低位の熱エネルギー→力学的エネルギー）に対する興味・期待は大きい。材料自体がその構造を維持できるアクチュエータということはいくらかでも小さいモータを作ることができることを意味し、マイクロマシンの価値観・評価も可能である。もちろん、すでに工業的応用が進められている周知の分野もある。基礎的には相変態にかかわる極めて力学的な興味ある現象として、また応用的には従来の大エネルギー・高効率型工学技術に対し、低エネルギー・低効率工学技術あるいは環境適応・人間適応工学技術としての価値観からこの研究の価値を眺めてみるとまた興味深いものがある。

また、原点に戻ってこの応力誘起相変態により生じる大きな非弾性変形、あるいはこれにかかわるエネルギー消費（消散）を利用した構造材料のじん性向上の試みと評価、また形状記憶粒子による材料強化なども活発に研究されている^{53)~55)}。

若き読者に、材料研究、相変態研究、形状記憶効果研究に対する興味を少しでも持っていただければ著者にとって望外の幸せである。

参 考 文 献

- 1) T. Inoue and T. Ohomori, Proc. of 1st Int. Seminar on Microstructure, and Mechanical Properties of New Eng. Mat., p. 515 (1993) Mie Academic Press.
- 2) 上原拓也, 井上達雄, 材料, **44**, 309 (1995).
- 3) P. Sittner, K. Hara and M. Tokuda, Proc. of Int. Seminar on Microstructure, and Mechanical Properties of New Eng. Mat., p. 57 (1993) Mie Academic Press.
- 4) P. Sittner and M. Tokuda, Advanced Materials '93, Trans. Mat. Res. Soc. Jpn, **18B**, 951 (1994).
- 5) P. Sittner, Y. Hara and M. Tokuda, Proc. of ICSMA 10, p. 319 (1994).
- 6) P. Sittner and M. Tokuda, Proc. of Int. Symp. on Shape Memory Mat., p. 541 (1994) Int. Academic Pub..
- 7) P. Sittner and M. Tokuda, Proc. of 15th Riso Int. Symp. on Mat. Sci., p. 537 (1994) Riso National Lab..
- 8) 原 康治, 徳田正孝, ペトロ・シットネル, 日本機械学会東海支部岐阜地方講演会講演論文集, No. 943-2, p. 147 (1994).
- 9) P. Sittner, Y. Hara, M. Takakura and M. Tokuda, Res. Rep. Fac. Eng., **19**, 9 (1994) Mie Univ..
- 10) 徳田正孝, ペトロ・シットネル, 日本機械学会関西支部第70期定時総会講演会講演論文集, No. 954-1, 209 (1995).
- 11) 徳田正孝, ペトロ・シットネル, 高倉正佳, 日本機械学会東海支部豊橋地区講演会講演論文集, No. 953-2, 63 (1995).
- 12) P. Sittner, M. Takakura and M. Tokuda, Scripta Metallurgica, **32**, 2073 (1995).
- 13) M. Tokuda, P. Sittner and Y. Hara, Proc. of 2nd Int. Seminar on Microstructure, and Mechanical Properties of New Engineering Materials, p. 427 (1995) Academic Pub..
- 14) Y. Hara, P. Sittner and M. Tokuda, The Third Asian-Pacific Workshop on Intelligent Mat. & the 4th Symp. on Intelligent Mat., p. 28 (1995).
- 15) M. Tokuda, P. Sittner and M. Takakura, Proc. of the 5th Int. Symp. on Plasticity and Its Current Applications, p. 367 (1995) Gordon and Breach Pub..
- 16) ペトロ・シットネル, 徳田正孝, 材料, **44**, 597 (1995).
- 17) M. Tokuda, P. Sittner and Y. Hara, Proc. of the First Asia-Oceania Int. Symp. on Plasticity, p. 88 (1993).
- 18) 徳田正孝, ペトロ・シットネル, 原 康治, 日本機械学会平成5年度材料力学部門講演会講演論文集, No. 930-73, 531 (1993).
- 19) M. Tokuda and P. Sittner, Proc. of 2nd Int. Symp. on Advances in Eng. Plasticity and Its Applications, p. 11 (1994) Int. Academic Pub..
- 20) 徳田正孝, ペトロ・シットネル, 原 康治, 日本学会会議第43回応用力学講演会講演予稿集, p. 671 (1994).
- 21) M. Tokuda and P. Sittner, 日本学会会議第43回応用力学講演会講演予稿集, p. 667 (1994).
- 22) 徳田正孝, 原 康治, ペトロ・シットネル, 日本機械学会東海支部岐阜地方講演会講演論文集, No. 943-2, 151 (1994).
- 23) 徳田正孝, ペトロ・シットネル, 第44回応用力学連合講演会講演論文集, p. 65 (1995).
- 24) M. Tokuda, M. Ye, Y. Hara, M. Takakura and P. Sittner, Proc. of Int. Symp. on Microsystems, Intelligent Mat. and Robots, (submitted) (1995).
- 25) 舟久保照康, “形状記憶合金” (1984) 産業図書.
- 26) 徳田正孝, 大野信忠, J. Kratochvil, 日本機械学会論文集, **52**, 758 (1986).
- 27) 徳田正孝, 応用数理, **5-4**, 60 (1995).
- 28) Muller, Acta Met. Mat., **39**, 263 (1991).
- 29) K. Tanaka, Arch Mech. **43**, 239 (1991).
- 30) K. Tanaka, Res. Mechanica, **18**, 251 (1986).
- 31) K. Tanaka, H. Tobushi and H. Iwanaga, Proc. of the 31 Japan Cong. on Mat. Res., p. 51 (1988).
- 32) Q.-P. Sun and K.-C. Hwang, J. Mech. Phys. Solids, **41**, 1 (1993).
- 33) Q.-P. Sun and X. J. Xu, Proc. of 1st Int. Seminar on Microstructure, and Mechanical Properties of New Eng. Mat., p. 37 (1993) Mie Academic Press.
- 34) W.-Y. Yan, Q.-P. Sun and K.-C. Huwang, Proc. of the 2nd Asia-Pacific Symp. on Advances in Eng. Plasticity and Its Applications, p. 233 (1994) Int. Academic Press.
- 35) M. Berveiller, E. Patoor and M. Buisson, Journal de Physique III, **C4**, 387 (1991).
- 36) B. Raniecki, C. H. LExcellent and K. Tanaka, Arch Mech., **44**, 261 (1992).
- 37) B. Raniecki and O. Bruhns, Arch Mech., **43**, 343 (1991).
- 38) K. Tanaka, D. Hasegawa, H. J. Bohm and D. F. Fischer, Mat. Sci. Res. Int., **1**, 23 (1995).
- 39) 林 萍華, 戸伏寿昭, 田中喜久昭, 伊貝 亮, 日本機械学会論文集, **A-60**, 660 (1994).
- 40) 戸伏寿昭, 塑性と加工, **35**, 910 (1994).
- 41) 三田俊裕, 三角正明, 大久保雅文, 日本機械学会論文集, **A-61**, 1657 (1995).
- 42) F. Nishimura, K. Tanaka, E. R. Oberaigner and F. D. Fisher, Proc. of the 5th Int. Symp. on Plasticity and Its

- Current Applications, p. 343 (1995) Gordon and Breach Pub..
- 43) 徳田正孝, 稲垣佳也, 吉田広明, 日本機械学会論文集, A-58, 1947 (1992).
- 44) K. Tanaka, F. Nishimura and H. Tobushi, Jour. of Intelligent Material Systems and Structures, 7, 487 (1994).
- 45) Y. Ohashi, M. Tokuda and H. Yamashita, J. Mech. Phys. Solids, 23, 295 (1975).
- 46) M. Berveiller and A. Zaoui, J. Mech. Phys. Solids, 26, 325 (1979).
- 47) 高橋 寛, 斉藤知子, 本橋 元, 徳田正孝, 阿部武治, 日本機械学会論文集, A-60, 1017 (1994).
- 48) S. Miura and H. Katoh, Mat. Sci. Res. Int., 1, 67 (1995).
- 49) S. Miura and H. Katoh, Proc. of 1st Int. Seminar on Microstructure, and Mechanical Properties of New Eng. Mat. p. 37 (1993) Mie Academic Press.
- 50) Y. Furuya, Extended Abstract of the 3rd Asia Pacific Workshop on Intelligent Mat. and 4th Symp. on Intelligent Mat., p. 46 (1995).
- 51) 鈴木 誠, 日本機械学会第2回バイオエンジニアリングシンポジウム講演論文集, No. 920-7, 3 (1992).
- 52) 鈴木 剛, 八木一夫, 佐脇 豊, 徳田正孝, 日本機械学会72期全国大会講演会講演論文集, No. 940-30, IV, 480 (1994).
- 53) H. Tobushi, S. Hayashi, A. Ikai and H. Hara, Proc. of the 5th Int. Symp. on Plasticity and Its Current Applications, p. 351 (1995) Gordon and Breach Pub..
- 54) T. Iwamoto and Y. Tomita, Proc. of the 5th Int. Symp. on Plasticity and Its Current Applications, p. 331 (1995) Gordon and Breach Pub..
- 55) V. I. Levitas and E. Stein, Proc. of 2nd Int. Seminar on Microstructure, and Mechanical Properties of New Eng. Mat. 2, 581 (1995) Int. Academic Pub..
- 56) T. Tsuta, M. Hasegawa and Y. Kitazaki, Proc. of the 2nd Asia-Pacific Symp. on Advances in Eng. Plasticity and Its Applications, p. 451 (1994).