

討13

遷移BCC金属の鋸歯状不連続変形
(Portevin-LeChatelier効果)

東北大学 金属材料研究所 吉永 日出 男

I. 緒言： 固溶体硬化の大きい合金では、ある温度および歪速度範囲で応力-歪曲線に鋸歯状のギザギザ(serration)が現われる(P-L効果)。置換型固溶体では合金濃度を比較的高くしないとこの現象は明瞭に観察されないのが普通であるが、固溶体硬化能の大きい遷移BCC金属の侵入型固溶体では100ppm程度の濃度で明瞭に観察される。鋼の靱性脆性としてよく知られているように、P-L効果が現われるような変形条件では加工硬化が大きく延性が低下するので、材料の機械的性質を考える上でこの現象は重要である。

ここでは主として遷移BCC金属の侵入型固溶体を対象としてこれまでの研究と我々の最近の研究を述べこの現象に関する研究の現状を明らかにしたい。

II. P-L効果の諸特性： 一般に材料の強度は温度が高くなる程低下する傾向があるが、固溶体硬化の大きい材料では溶質原子が拡散できるようなある温度範囲で強度の逆温度依存性が観察されることが多く、侵入型固溶体ではほぼこの温度範囲でP-L効果が現われる。これはP-L効果に伴う加工硬化が大きいことに対応している。

温度が高く、溶質原子の雰囲気転位とともに容易に重くことができるようになるとP-L効果が現われなくなることから、この現象は静止または遅い転位のまわりには雰囲気が形成されるが速い転位のまわりには形成されないような条件のもとで結晶が変形する際に生ずるものと考えられる。ただし、観察される応力-歪曲線上のserrationにはいくつかの異なる形態のものがあり、その原因が単一のものであることを暗示している。

1. 分類 これまでに観察されたserrationには様々な形態のものがあり、研究者によっていろいろ異なる分類がなされているが、基本的には図1に示すような三種のものに大別され、これらが入り混って生ずることから多様な形態が生ずるものと考えられる。図1は模型的な応力-歪曲線で、実際には同一曲線の上にこれらの型のserrationのすべてが明瞭に分離した形で現われることはきわめてまれである。

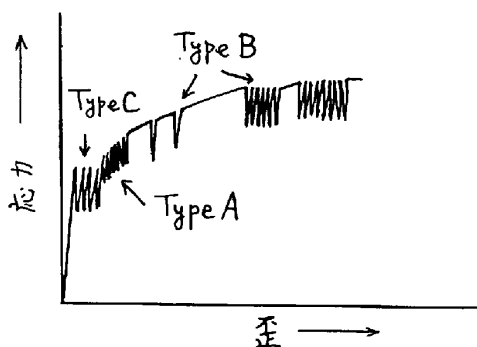


図1 三種のserrations

Type Aの特徴は、振幅が比較的小さく周期が短いことで、P-L効果の現われる下限の温度 T_{CL} 付近では、変形の進行とともに振幅が増大する。 T_{CL} 近傍ではある臨界歪 ϵ_{CL} 以上でserrationが起り始めるが、 ϵ_{CL} は温度の上昇とともに減少してついに零になる。さらに温度を上げて行くと、振幅が増大するが、今度は逆に変形がある臨界の歪 ϵ_{CH} を越えると突然消滅する。この ϵ_{CH} も温度の上昇とともに減少して、上限温度 T_{CH} で零になる。上下の臨界温度はいずれも歪速度が大きい程高温側にずれる。また、この種のserrationが起るときは加工硬化が非常に大きくなる。

Type BはType Aと複雑に混り合って現われることが多いが、比較的低い温度では一つ一つの応力低下が間欠的に起り、その間をType Aのserrationが埋めるという形態をとる。Type BはType Aが消滅した後まで持続し、 T_{CH} 近傍では変形がかなり進んだところで図1に示したように連続して現われることがある。Type Bは応力低下が大きく、Type Aに比べて加工硬化が少ないのが特徴である。したがって、Type AとBが混在すると、Type Aで生じた大きな加工硬化がType Bの応

力低下で開放されることにより、平均の応力-歪曲線の上に Type B の力低下の回数と同数の山ができることがある。(置換型固溶体にもこれらと類似の二種の serration が観察され、それぞれ本文とは多少異なる立場から unlocking serration および locking serration と呼ばれている。(たとえば、A. J. R. Soler-Gomez and W. J. McG. Tegart; *Phil. Mag.*, 20 (1969), 495))。

Type C は TCH 近傍で変形したときに降伏伸びのところで起こる Serration で、振幅が最も大きく、Type B と同様に serration の数と同数の比較的狭い Lüders 帯が観察される (A. S. Keh, Y. Nakada and W. C. Leslie; *Dislocation Dynamics*, ed. by A. R. Rosenfield et al., McGraw-Hill, (1968), 381; A. T. Thomas; *Acta Met.*, 14 (1966), 1363)。Type C は TCH 以上では Type A とともに消滅する。

2. Type A serration の発生条件 この種の serration は著しく大きな加工硬化と密接な関係があるところから、前述の三種の serration の中で最も重要なものと思われる。ところで、この種のものが変形開始とともに現われるような臨界温度と歪速度 $\dot{\epsilon}$ との間には $\log(T_{CL}\dot{\epsilon}) - 1/T_{CL}$ のよい直線関係が成立し、その勾配から求められた活性化エネルギーは溶質原子の拡散の活性化エネルギーと一致することが知られている。一方上限の温度と歪速度との間にも $\log(\dot{\epsilon}/T_{CH}) - 1/T_{CH}$ のよい直線関係が成立すが、その勾配より求められた活性化エネルギーは溶質原子の拡散の活性化エネルギーよりもはるかに高い値を示す場合が多い。たとえば α -Fe-C 系では約 0.5 eV 高く、V-C 系においては実に 2 eV も高い値が測定されている。0.5 eV という値は C 原子と転位との相互作用エネルギーとも考えられるが (Keh et al. 前出)、2 eV の差は大きすぎる。したがって、 $\log(\dot{\epsilon}/T_{CH}) - 1/T_{CH}$ からは真の活性化エネルギーが求められないのではないかという疑いが生ずる。

III. P-L 効果の原因: P-L 効果の原因についてはこれまでに様々な論議がなされてきたが、それらは次の二つの考え方に大別される。

第 1 は Friedel によって提唱されたもので (J. Friedel; *Dislocation*, Pergamon, (1964))、変形開始時の降伏点現象と加工硬化領域での serration を同一の現象と考え、一つの力低下には必ず Lüders 帯の伝播が起こっているという仮定より出発する。Lüders 帯の伝播中には Lüders 帯内部の加工硬化した領域はほとんど変形しないので、その領域内の転位はほとんど静止状態にあり、時間の経過とともに溶質原子の雰囲気形成される。したがって次の変形も転位の雰囲気からの離脱を要するのと同じような降伏点現象が繰返されるものと考えられる。

この理論によれば (Friedel は雰囲気形成が飽和濃度になったときに Serration が起こるとしているが、Type A の serration の振幅は降伏時の力低下よりも一般に小さく、しかも温度の上昇とともに増大するという事実があるので、ここではこの事実を考慮して Friedel の理論を修正している。)

$$\dot{\epsilon} \leq \dot{\epsilon}_{CL} = \alpha \frac{\Delta \epsilon AD}{mkT} \left(\frac{AC_0}{\Delta T_c} \right)^{\frac{3}{2}} \quad \alpha = 8(\pi/2)^{1/2}/b^9 \quad (1)$$

ならば serration が観察されることになる。ここで m は一回の降伏に際して同時に走る Lüders 帯の数、 $\Delta \epsilon$ はこの際の歪増分、 A は溶質原子と転位との相互作用の大きさを示すパラメータ、 D は溶質原子の拡散係数、 C_0 は平均濃度、 ΔT_c は試験機の感度で決まる応力変化の測定限界、 b は原子間距離である。(1) 式は P-L 効果の生ずる下限の温度を与えるが、高温になって雰囲気が転位とともに動けるようになればこの機構による serration は起こらないことになる。Friedel は薄い雰囲気の場合についてこの上限の温度を $\dot{\epsilon} \geq \dot{\epsilon}_{CH} = 2\rho D \tau b^3/kT$ (2) によって与えている。しかし、P-L 効果が観察されるのは比較的濃い雰囲気の場合であるから $\dot{\epsilon}_{CH} = 4b\rho kTD/A$ (3) とする方が妥当であろう (A. H. Cottrell; *Dislocations and Plastic Flow in Crystals*, Oxford, (1953) 参照)。

ここで ρ は転位密度, τ は転位に働く有効応力である。

この考え方は Lüders 帯の伝播を前提としているが、次のような点で実験事実と矛盾しているように思われる。実験の serration には 図 1 に示したように Lüders plateau は観察されない。最も重要と考えられる Type A では Lüders 帯が観察されない (A. T. Thomas; 前出)。Lüders 帯の観察される Type B, Type C でも一つの応力低下は一つの狭い Lüders 帯の生成に対応するもので、この種の Lüders 帯は試験片を伝播して覆うことはなく、次々に狭い Lüders 帯が独立に発生することによって serration が起きている。このため Lüders plateau が生じないものと思われる。(ただし、置換型固溶体では、TCL 近傍で Lüders plateau を生ずる Type B の応力低下が観察されている (たとえば B. Russell; *Phil. Mag.*; 8 (1963), 615. Russell はこの種の serration を Type A と呼んでいる)。このような場合には Friedel の理論が適用されるであろう。)

さらにこの理論では Type A の serration に伴う大きな加工硬化を説明することが困難なように思われる。そこで、いったん雰囲気に着した転位の大部分は不動化され、serration は降伏現象について Johnston が提案したような (W. G. Johnston; *J. Appl. Phys.*, 33 (1962), 2716) 新たな転位の増殖によって起こるのではないかという考えが生ずる (B. A. Wilcox and G. C. Smith; *Acta Met.*, 12 (1964), 371)。実際、P-L 効果の起こる温度領域で変形させた結晶内では転位密度が高く、セル組織が細かい (竹山, 高橋; 国際鉄鋼科学技術会議, 前掲(2), (1967), P. 672)。しかしこの考え方から serration 振幅の温度および歪依存性を理解することは困難なように思われる。

第二の考え方は Nabarro に発するものである (F. R. N. Nabarro; *Report on Strength of Solids, Phys. Soc.*, (1949), 38)。図 2 に示すように、転位がその速度に対応する定常状態の雰囲気を引きずりながら運動する際には、雰囲気による抵抗がある転位速度 v_{CH} で極大値をとる。 $v < v_{CH}$ の転位には雰囲気が形成されるが $v > v_{CH}$ の転位は加速されて雰囲気から離脱することになる (A. H. Cottrell; 前出)。ここでピーク応力に対応する転位速度は

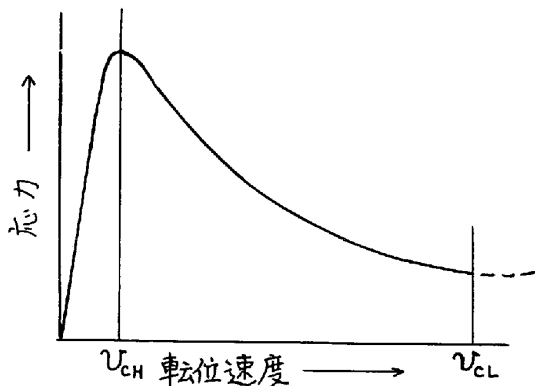


図 2 転位がその速度に対応する定常雰囲気によって受ける抵抗

$v_{CH} \approx 4kTD/A$ (4) で与えられる。Cottrell が置換型合金の P-L 効果に、塑性変形による空孔の生成を考慮してこの考え方を適用して以来 (A. H. Cottrell; *Phil. Mag.*, 44 (1953), 829)、多くの研究者がこの考え方を採用している。

ところで、転位が (4) 式で与えられる臨界速度より遅いときには転位のまわりに雰囲気が形成されて、その転位は固着され、その結果 P-L 効果が起こるとしている研究者が多い。もし密度 ρ の転位がすべて同一の速度で動くものとする、 v_{CH} に対応する歪速度は (8) 式で与えられることになる。したがって上述の考え方では $\dot{\epsilon} \leq \dot{\epsilon}_{CH}$ で serration が起こることになる。

しかし、 $v < v_{CH}$ であれば、図 2 から明らかなように $d\tau/dv > 0$ であるから、転位速度の一樣性を仮定する限り、上述の歪速度領域では塑性安定であって (2) 式参照) serration は生じないはずである。

Bodner 等が示したように (S. R. Bodner and A. Rosen; *J. Mech. Phys. Solids*, 15 (1967), 66; S. R. Bodner; *Mater. Sci. Eng.*, 2 (1967), 213)、歪速度が増す程変形応力が低下するような場合には応力-歪曲線に serration が生ずるものと考えられるが、この種の塑性不安定が生ずるのは第 2 図の $v_{CH} < v < v_{CL}$ の領域である。ここで雰囲気から完全に離脱する速度 v_{CL} は $v_{CL} \approx AD/kTb^2$ (5) で与えられるから (H. Yoshinaga and S. Morozumi; to be published in *Phil. Mag.*), $\dot{\epsilon} \leq \dot{\epsilon}_{CL} = \rho AD/kTb$ (6) によって P-L 効果の起こる下限の温度が決まり、

$\dot{\epsilon} \geq \dot{\epsilon}_{CH}$ によって上限の温度が決まることになる。この機構は Type A の serration に関する多くの実験事実とよく対応している (H. Yoshinaga, K. Toma, K. Abe and S. Morozumi; to be published in *Phil. Mag.*). たとえば、変形の進行とともに serration の振幅が増大して行くこと、TCH 近傍では最も大きな振幅になるが、歪が $\dot{\epsilon}_{CH}$ を越えると突然 serration が消滅することなどは、変形の進行につれて運動転位の密度が増加することと対応している。

しかし、以上の考え方は転位速度の一様性を仮定しているところにおそらく大きな欠陥がある。転位速度に分布があると、Type A の serration には大きな加工硬化が伴うこと、消滅の臨界条件からは正しい活性化エネルギーが求められないこと、serration の起こる温度範囲が理論値より広いことなどが定性的に理解される (Yoshinaga et al.; 前出)。

さらに、serration の振幅が果して 図 2 に示した応力によって決まるものかどうかははなはだ疑問である。加速されて裸になった転位が内部応力の原因となっている他の転位源を動かすようなことがあれば、振幅は増幅されることになろう。しかし、Type A では加工硬化率が大きいことから考え、たとえ不動化された転位の部分的な開放が行なわれたとしても、これら転位が結晶外に押し出されて消滅する割合は転位密度の増加に対して極わずかであろう。

これに対して Type B の応力低下は多量の不動化された転位の雪崩的な開放によって起こるものと思われる (Russel; 前出)。これは Type B に伴う加工硬化が少ないこと、Type A による硬化を開放することがあること、高応力になると発生頻度が増すことなどによって明らかである。(ただし、置換型固溶体の研究者の中には本文の Type A と Type B に対応すると考えられる serration をいずれも $v < v_{CH}$ で雰囲気を引きずっている転位の中から $v > v_{CH}$ の転位が生み出されることによると考えている者 (W. Charnock; *Phil. Mag.*, 20 (1969), 427) もいる。しかし、これは serration の発生条件が $\dot{\epsilon} \leq \dot{\epsilon}_{CH}$ ではなく $\dot{\epsilon} \leq \dot{\epsilon}_{CL}$ であること、Type A と Type B の形態に明らかな差があることなどを考慮しなかつたために生じた混乱のように思われる。)

Type C の serration は転位の著しい増殖を伴う点で Type B と異なっているように思われる。しかも T_{CL} 近傍では Lüders plateau となり serration の形をとらない。このようにかなり高温にならないと現れないということは、降伏によって増殖された転位の運動に対する溶質雰囲気の抵抗の差に起因するものと思われる。すなわち、低温では Lüders 帯内の転位が未変形部分に応力集中を与えることによって変形が伝播するのに対して、TCH 近傍になると、増殖された転位のまわりに直ちに雰囲気が形成されて転位の運動が抑制される結果、未変形部分への応力集中が十分に起こらなくなるためであろうと思われる。

IV. 結 言: P-L 効果の開始条件については以上に示したように理論と実験との比較的良好な対応が得られているが、その消滅条件や加工硬化などの重要な問題についてはいまだ定性的な議論しか行なわれていない。serration の振幅も含めてこれらを定量的に論ずるには転位と溶質原子の相互作用 (特に転位近傍における) と転位の速度分布に関する正確な知識が不可欠であり、いずれも困難な問題である。