

計装化押し込み試験法による Al-Mg 固溶体の クリープ^o律速過程の遷移検出

高木 秀有^{1,*1} 道 明² 藤原 雅美³ 大塚 正久^{4,*2}

¹日本大学大学院工学研究科機械工学専攻

²マサチューセッツ工科大学工学部材料科学科

³日本大学工学部総合教育科物理学教室

⁴芝浦工業大学工学部材料工学科

J. Japan Inst. Metals, Vol. 69, No. 4 (2005), pp. 348-355

© 2005 The Japan Institute of Metals

Detecting the Transition of Creep Rate-Controlling Process in Al-Mg Solid-Solution Alloy through Instrumented Indentation

Hidehiko Takagi^{1,*1}, Ming Dao², Masami Fujiwara³ and Masahisa Otsuka^{4,*2}

¹Department of Mechanical Engineering, College of Engineering, Nihon University, Koriyama 963-8642

²Department of Materials Science and Engineering, School of Engineering, Massachusetts Institute of Technology, Massachusetts 02139, USA

³Division of Applied Physics, College of Engineering, Nihon University, Koriyama 963-8642

⁴Department of Materials Science and Engineering, Faculty of Engineering, Shibaura Institute of Technology, Tokyo 108-8548

Indentation creep tests of an Al-5.3 mol% Mg solid-solution alloy were performed using a microindenter in order to examine whether creep properties can be extracted accurately from a testpiece which is as small as a rice grain. A conical indenter was pressed into a surface with a load of 0.39 N at temperatures ranging from 546 to 590 K. When the average equivalent stress $\bar{\sigma}_m$ in the region beneath the indenter decreases to a critical stress $\bar{\sigma}_c$ during the creep indentation, the creep stress exponent n changes from 4.9 to 3.0. The measured $\bar{\sigma}_c$ -value decreases from 122 to 52 MPa with increasing temperature, while the corresponding indentation strain rate $\dot{\epsilon}_c$ increases from 1.22×10^{-3} to $2.00 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. The temperature dependence of $\bar{\sigma}_c$ and $\dot{\epsilon}_c$ is almost in agreement with the results derived from dislocation theory. The activation energy Q for creep in the stress range H ($\bar{\sigma}_m > \bar{\sigma}_c$) is approximately equivalent to that for the lattice diffusion of pure aluminum, 144 kJ mol^{-1} . The Q -value in the stress range M ($\bar{\sigma}_m < \bar{\sigma}_c$) is close to the activation energy for the mutual diffusion of this alloy, 130 kJ mol^{-1} . With load-jump tests at $T=573 \text{ K}$, indentation load was abruptly changed from 0.39 N to various values ranging 0.19-0.59 N. In the stress range H, instantaneous plastic deformation (IPD) takes place evidently even when the load increment ΔF is very small. In the stress range M, the IPD does not occur when ΔF is within a certain value. However, the occurrence of IPD is observed when $\bar{\sigma}_m$ coincided with $\bar{\sigma}_c$. The findings suggest that the creep rate-controlling process changes from recovery control ($n=4.9$) to glide control ($n=3.0$) below $\bar{\sigma}_c$. These results agree well with those of conventional uniaxial creep tests. Consequently, the indentation testing technique can be used effectively to extract creep parameters from small-volume samples.

(Received December 9, 2004; Accepted February 8, 2005)

Keywords: aluminium-magnesium alloy, creep, indentation, self-similar indenter, stress exponent, activation energy, high-speed glide, dragging viscous glide, rate-controlling process

1. 緒 言

一般に材料の力学的性質を正しく評価するには、標準試験片を数多く用意する必要がある。しかし、研究段階の新規材料や原子力材料では大きな試料を作製するのが難しく、小さな試片しか用意できないことが多い。こうした理由から、少量のミニチュア試験片を用いて力学特性が評価可能な材料試験法の確立が望まれてきた。米粒ほどの小さな試片を用いて、従来の引張クリープ試験によるのと同じ力学特性値(ク

リープの活性化エネルギー、応力指数など)が得られないだろうか。これを実現するための必要条件は

- クリープ変形に試料の寸法形状依存性がない
- 新たに導入する歪み速度と相当塑性歪み速度が比例することである。これらは塑性歪みの発達に幾何学的な相似性が維持されるときに成り立つ。これらを十分に満たす材料試験機を考案し、押し込みクリープに関する構成方程式を導出しておく必要がある。

計装化押し込み試験法とは、円錐形圧子を様々な負荷モードで試料表面に押し込んだ際の荷重と押し込み変位の時間変化を解析することにより材料の高温力学特性を評価する方法である¹⁾。高温下では押し込み変位が時間と共に増加する押し込みク

*1 日本大学大学院生 (Graduate Student, Nihon University)

*2 2004 年 12 月逝去

リーブが生じる²⁾。押し込みクリープ試験によって、変形応力を徐々に減らしたときの材料のクリープ挙動を知ることができる。

これまでに押し込みクリープに関する種々の構成方程式が提案されており³⁻⁵⁾、このことが実験結果の解釈に混乱を来す一因ともなっている。また、高温試験では押し込み変位の測定にサーマルドリフトが入り易いため、試験データの信頼性を損なう原因となっている。こうした現況から、押し込み試験法によってクリープ特性値を本当に求めることができるのかといふかる向きもある。

Liらは圧子直下の領域で複数の変形過程が活動するときの構成方程式を導いた⁴⁾。SargentとAshbyは高温硬さ試験からクリープ特性に関する情報が得られる可能性を示した⁵⁾。Prakashは押し込み試験において定常クリープが発現する概念モデルを提案した⁶⁾。LucasとOliverはナノインデンターを用いて低融点材料のクリープ特性値を求めた⁷⁾。藤原と大塚はマイクロインデンターを用いて、純金属、固溶体合金、分散強化合金、二相合金について高温押し込み試験を行い、圧子下における塑性歪み分布の時間変化に幾何学的相似性が維持されるときに押し込みクリープに関する構成方程式を導き、得られたクリープ特性値が従来の引張クリープ試験結果とよく一致することを報告した⁸⁻¹⁰⁾。Takagiら¹¹⁾とDaoら¹²⁾は押し込みクリープのFEシミュレーションを行い、圧子下の塑性歪み分布に自己相似性が成り立つことを証明した。

本研究では Al-5.3 mol%Mg 固溶体合金について一定荷重押し込み試験と荷重急変試験を行い

- 応力指数 n が 5 から 3 に遷移するときの応力と押し込み歪み速度の温度依存性を調べ、これについて理論的検討を加える。
- 各応力域 ($n \cong 5$ および $n \cong 3$) におけるクリープの活性化エネルギーと瞬間塑性変形の有無から変形律速過程を推定する。
- 圧子下の領域において複数の変形過程が活動する場合のクリープ速度を考え、変形律速過程のスイッチングについて検討する。

押し込みクリープ試験による結果と従来の引張クリープ試験の結果がよく一致することを述べ、この新しい試験法の妥当性と有用性を主張する。

2. 実験方法

Al-5.3 mol%Mg 合金(高純度科学研究所製)の鋳塊をアルゴンガス中、温度 773 K、時間 86.4 ks の条件で均質化処理した。これを 5 mm × 10 mm × 5 mm の直方体に切断した後、エメリー研磨を行い、試験面(5 mm × 10 mm)と底面が平行となるように整形した。その後、アルゴンガス中、温度 773 K、時間 3.6 ks の条件で焼鈍した。Table 1 に供試材の化学組成を示す。

押し込みクリープ試験の直前に、過塩素酸：エチレングリコール：エチルアルコール = 1 : 2 : 40 の混合液を用い、液温 273 K、電流密度 14.5 mA/mm²、時間 900 s で電解研磨し、試料表面層を 40 μm 程度除去した。

Table 1 Chemical composition of tested material.

Test material	Analysed composition (mol%)				
	Mg	Si	Fe	Cu	Al
Al-Mg alloy	5.3	0.004	0.004	0.0002	Balance

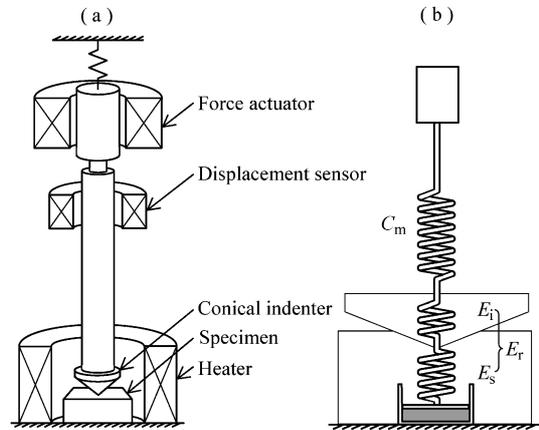


Fig. 1 (a) Schematic diagram and (b) dynamic mechanical model of a microindenter. C_m : the machine compliance, E_r : the reduced elastic modulus, E_i : the Young's modulus of indenter tip and E_s : the Young's modulus of testpiece.

押し込みクリープ試験は自作のマイクロインデンターを用いて実施した(Fig. 1(a)を参照)⁸⁾。アルゴンガス中で試料表面にダイヤモンド製の円錐形圧子(頂角: 136°)を押し込み、その押し込み深さの時間変化を測定した。一定荷重試験は荷重 0.39 N、温度 546~590 K ($0.60 T_m \sim 0.65 T_m$, T_m は液相線温度)、負荷時間 1200 s で行った。荷重急変試験は、温度 573 K、試験中に荷重を 0.39 ± 0.20 N の範囲で急変させた。このときの所要時間は 0.1 s 以内であった。試験中、温度変動は ± 1 K であった。

3. 押し込みクリープの構成方程式

押し込みクリープに関する構成方程式は藤原と大塚によって導かれている⁸⁾。以下に、その概略を記す。

一定の押し込み荷重を円錐形圧子に作用させたとき、力の平衡条件の下、圧子下において塑性変形領域が幾何学的相似性を維持しながら発達すると仮定する¹³⁾。つまり圧子の押し込み深さが 2 倍になると、塑性歪みの等高線もその形を保持したまま 2 倍に広がると考える。この前提は Takagi らの FE シミュレーションにより妥当であることが確認されている¹¹⁾。この場合、圧子直下の領域の変形速度 $\dot{\epsilon}_{in}$ は、圧子の押し込み変位を u 、押し込み速度を \dot{u} として次式のように定義される^{14,15)};

$$\dot{\epsilon}_{in} = \frac{\dot{u}}{u}. \quad (1)$$

これを押し込み歪み速度という。押し込み荷重 F を圧痕の水平投影面積で除した値を押し込み圧力 p_m 、押し込み速度を支配する圧子直下の変形領域(以後、コントロールボリュームという)の平均相当応力を $\bar{\sigma}_m$ とすると、表面隆起や沈下が無視

できる場合は次の関係があることが知られている¹⁶⁻¹⁸⁾;

$$\bar{\sigma}_m \cong \frac{p_m}{3} \propto \frac{F}{u^2}. \quad (2)$$

この領域の代表点における相当応力 $\bar{\sigma}$ は次のように書くことができる;

$$\bar{\sigma} = C_1 p_m \propto \bar{\sigma}_m. \quad (3)$$

ここで、 C_1 は位置に依存する無次元定数である。定常変形状態が実現するとき、この点の相当塑性歪み速度 $\dot{\epsilon}$ は転位クリープに関するべき乗則¹⁹⁾に従うとする;

$$\dot{\epsilon} = A_1 \left(\frac{\bar{\sigma}}{E} \right)^n \exp \left(-\frac{Q}{RT} \right). \quad (4)$$

ここで、 A_1 : 時間の逆数の単位をもつ材料定数、 E : ヤング率、 n : 応力指数、 Q : クリープの活性化エネルギー、 R : ガス定数、 T : 温度である。歪みの適合条件により、 $\dot{\epsilon}$ と $\dot{\epsilon}_{in}$ は比例するので次式で表される¹⁴⁾;

$$\dot{\epsilon}_{in} = C_2 \dot{\epsilon}. \quad (5)$$

ここで、 C_2 は等方性材料では 3 程度の無次元定数である。したがって、押し込みクリープの構成方程式は式(1)~式(5)から

$$\dot{u} = A_2 u \left(\frac{F}{Eu^2} \right)^n \exp \left(-\frac{Q}{RT} \right), \quad (6)$$

または

$$\dot{\epsilon}_{in} = A_3 \left(\frac{\bar{\sigma}_m}{E} \right)^n \exp \left(-\frac{Q}{RT} \right) \quad (7)$$

となる。 A_2 と A_3 は時間の逆数の単位をもつ定数である。上式から押し込みクリープの応力指数は次式で与えられる;

$$n = \left[\frac{\partial \ln \dot{\epsilon}_{in}}{\partial \ln (\bar{\sigma}_m/E)} \right]_T. \quad (8)$$

式(6)で $\dot{u}(Eu^2/F)^n/u = K$ と置くと、押し込みクリープの活性化エネルギーは次式で与えられる;

$$Q = -R \left[\frac{\partial \ln K}{\partial (1/T)} \right]. \quad (9)$$

4. 結 果

4.1 一定荷重押し込みクリープ試験

Fig. 2 は Al-5.3 mol%Mg 固溶体合金の表面に円錐形圧子を一定荷重で押し込むことにより得られた押し込みクリープ曲線である。負荷直後の瞬間変位のあと、圧子の押し込み変位は時間と共に増加する。押し込みクリープ曲線の形から分かるように、圧子の押し込み速度は時間と共に低下し、押し込み歪み速度 $\dot{\epsilon}_{in}$ も徐々に低下する。押し込み変位が大きくなるにつれて圧子と試料表面との接触面積が増大するため、コントロールポリュームの平均相当応力 $\bar{\sigma}_m$ は一様に低下することになる。

Fig. 3 は押し込み歪み速度 $\dot{\epsilon}_{in}$ と各温度のヤング率²⁰⁾で規格化した平均相当応力 $\bar{\sigma}_m/E$ を両対数グラフで表示したものである。図中、押し込みクリープは高応力域から低応力域に向かって進行する。負荷直後および変位測定器の測定限界を超えたところを除き、実験点は 2 本の勾配の異なる直線上に乗っている。各々の領域における直線は互いに平行であり、この勾配は式(8)から応力指数 n に相当する。直線グラフの

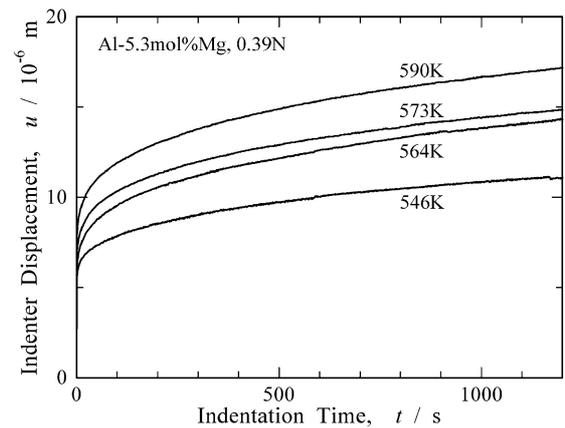


Fig. 2 Indentation creep curves of Al-5.3 mol%Mg solid-solution alloy with a load of 0.39 N measured at $T = 546, 564, 573$ and 590 K.

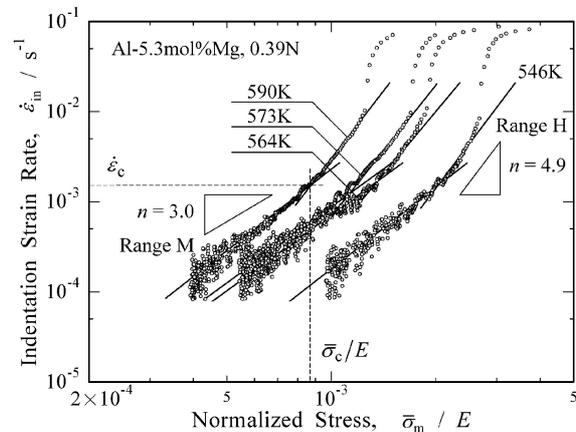


Fig. 3 Relationship of $\dot{\epsilon}_{in}$ versus $\bar{\sigma}_m/E$, both on logarithmic scales. The creep stress exponent n changes distinctly from 4.9 to 3.0 at a critical stress $\bar{\sigma}_c$ and corresponding indentation strain rate $\dot{\epsilon}_c$.

屈折は、コントロールポリュームの平均相当応力 $\bar{\sigma}_m$ がある応力レベル $\bar{\sigma}_c$ まで低下すると n 値が 4.9 から 3.0 に遷移することを示している。これより以後、従来の引張クリープ試験結果との関連から、高応力域 ($\bar{\sigma}_m > \bar{\sigma}_c, n \cong 5$) を H 領域、中応力域 ($\bar{\sigma}_m < \bar{\sigma}_c, n \cong 3$) を M 領域という。

この直線グラフはコントロールポリュームでべき乗則クリープが生じていることを表す。この実験事実は、コントロールポリュームの平均相当応力 $\bar{\sigma}_m$ が押し込みクリープの進行と共に徐々に減少すると、この領域には動的回復により $\bar{\sigma}_m$ 値に対応した定常転位組織が形成されることを示唆している。詳細は別途報告する予定である。

Fig. 4 に示すように、遷移応力 $\bar{\sigma}_c$ は 573 K で 54~67 MPa であり、546 K から 590 K までの間に 122 MPa から 52 MPa まで低下する。また同図には、他の研究者らの結果も同時に示した。この図から、本研究の結果は他の研究者による引張クリープ試験結果²¹⁻²³⁾ とほぼ一致することが分かる。

Fig. 5 は応力指数が 4.9 から 3.0 に変化するときの押し込み歪み速度 $\dot{\epsilon}_c$ の温度依存性を示したものである。 $\dot{\epsilon}_c$ 値は温度

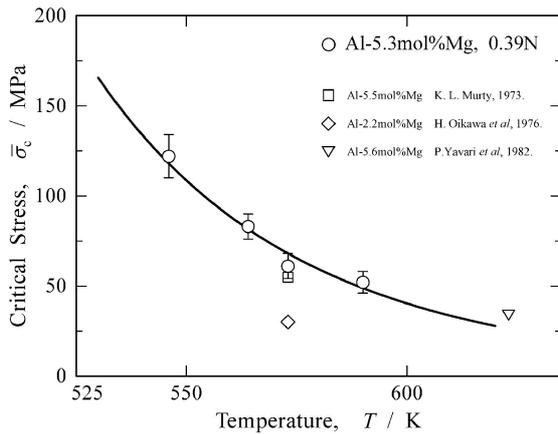


Fig. 4 Temperature dependence of the critical stress $\bar{\sigma}_c$.

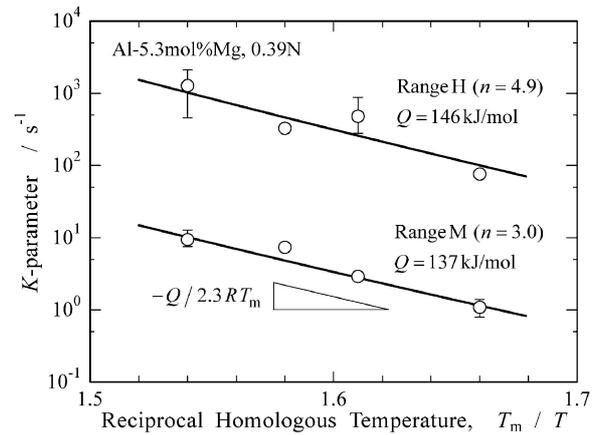


Fig. 6 Arrhenius plots of the K parameter, $K = \dot{u}(Eu^2/F)^n/u$, in stress ranges H ($n \approx 5$) and M ($n \approx 3$), respectively.

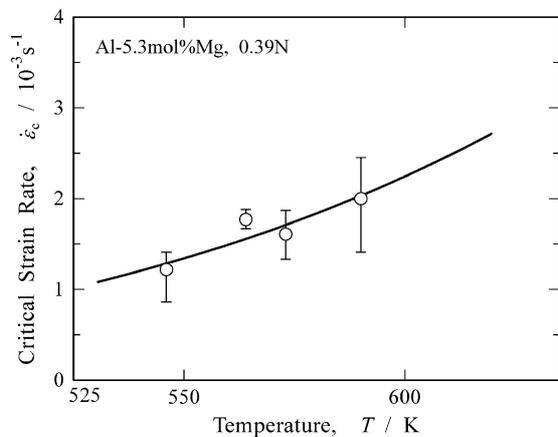


Fig. 5 Temperature dependence of the critical indentation strain rate $\dot{\epsilon}_c$.

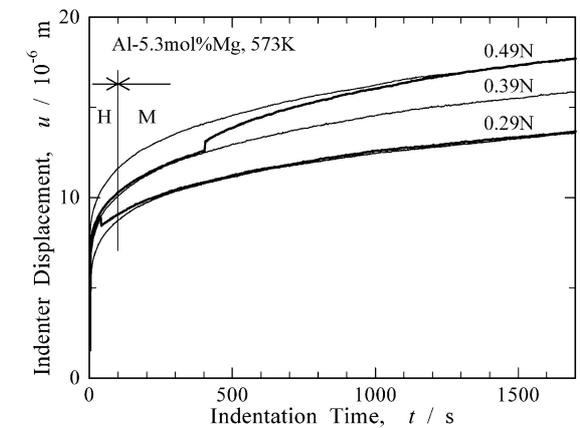


Fig. 7 Results of indentation load-jump test. Thin lines denote indentation creep curves with constant loads of 0.29 N, 0.39 N and 0.49 N, respectively, at $T=573$ K. Thick lines denote indentation creep curves obtained with the abrupt change in indentation load from 0.39 N to 0.29 N or from 0.39 N to 0.49 N, respectively.

が高くなるにつれて増加する。このように $\bar{\sigma}_c$ と $\dot{\epsilon}_c$ は温度に対して逆の依存性を有している。 $\dot{\epsilon}_c$ 値のアレニウスプロットから得られた活性化エネルギーは 20 kJ/mol あり、これはアルミニウムの格子拡散の活性化エネルギーに比べてかなり小さい値である。

Fig. 6 は各応力域の $K = \dot{u}(Eu^2/F)^n/u$ を計算し、これをアレニウスプロットしたものである。各応力域で K 値は一本の直線上に乗っている。式(9)により、この直線の勾配から押し込みクリープの活性化エネルギー Q を求めることができる。H 領域 ($n=4.9$) では $Q=146$ kJ/mol であり、これはアルミニウムの格子拡散の活性化エネルギー (144 kJ/mol) にほぼ等しい²⁴⁾。M 領域 ($n=3.0$) では $Q=137$ kJ/mol であり、これはこの合金の相互拡散の活性化エネルギー (130 kJ/mol) に近い値である²⁴⁾。

4.2 荷重急変試験

Fig. 7 は押し込み変位 u と押し込み時間 t との関係である。細い曲線は温度 573 K で 0.29 N, 0.39 N, 0.49 N の一定荷重試験によって得られた結果である。太い曲線は、H 領域で荷重を 0.39 N から 0.29 N に急減させた場合と M 領域で 0.39 N から 0.49 N に急増させた場合の時間変化を示している。太い曲線はある遷移段階を経て細い曲線に漸近していく。こ

の事実は、コントロールボリュームでべき乗則クリープが成り立つときに押し込み変位に対して押し込み速度が一義的に定まることを意味する。つまり押し込み歪み速度はコントロールボリュームの平均相当応力に対して一義的に定まり、これが荷重経路に依存しないことを示している。

Fig. 8(a) と (b) に、各応力域で荷重を 0.39 N から様々な値に急変したときの瞬間変位量の変化を示す。横軸は荷重変化量 ΔF であり、正は増加、負は減少を表す。縦軸は瞬間変位量 Δu であり、正は押し込み方向への変位を表し、負はその反対方向への変位を表す。両図において、荷重を急減したときの Δu は一本の直線上に乗っている。つまり、H および M 領域で荷重を急減したときは $\Delta u \propto \Delta F$ が成り立つ。一方、荷重を急増させたときの瞬間変形挙動は各応力域で大きく異なっている。(a) : H 領域では荷重を 0.05 N 程度急増させると、 Δu 値は直線から上方に外れる。(b) : M 領域では荷重を 0.10 N 程度急増させても Δu 値は依然として直線上に存在している。しかし、荷重をそれ以上増加させると、(a) の場合と同様に直線から外れるようになる。

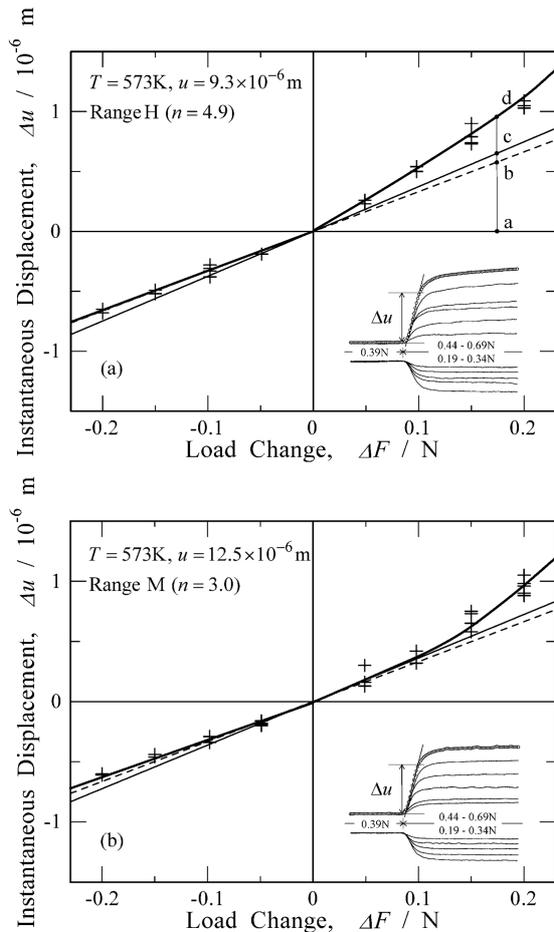


Fig. 8 Dependence of instantaneous displacement Δu on load increment ΔF in stress ranges (a) H and (b) M. The inset exhibits a magnified view of the part of load jumping.

5. 考 察

5.1 荷重急変試験における瞬間塑性変形の判別

5.1.1 マイクロインデンターのコンプライアンス

押し込みクリープ試験中に荷重を急増させたとき、試験機には弾性変形が生じ、試片には弾性変形と瞬間塑性変形が生じる可能性がある。以下では、荷重急増時の瞬間変位量において弾性変位量と瞬間塑性変位量を区別する方法について述べる。

マイクロインデンター (Fig. 1 (b) を参照) では試験機-圧子-試片が直列連結しているため、この力学系のコンプライアンス C は次式で与えられる^{25,26};

$$C = C_m + \frac{1}{2\alpha E_r} \sqrt{\frac{\pi}{A}} \quad (10)$$

ここで、 C_m は試験機のコンプライアンスであり、圧子に特殊治具を装着したときの $F-u$ 曲線の勾配から求められる (573 K, $F=0.39$ N では $C_m=3.32 \times 10^{-6}$ m/N)。上式の第 2 項は接触コンプライアンスであり、 E_r : 複合ヤング率、 α : 円錐形圧子では 1²⁵、 A : 圧痕の投影接触面積である。弾性接触理論から圧子の接触深さ u_c は次式で表される;

$$u_c = u - C_m F - \beta (C - C_m) F \quad (11)$$

ここで、円錐形圧子では $\beta=0.72$ である²⁵。圧子の接触深さ

がその先端の曲率半径に比べて十分に大きいとき、圧痕の投影接触面積 A は次式で表される;

$$A = 19.25 [u - C_m F - 0.72 (C - C_m) F]^2 \quad (12)$$

また、複合ヤング率 E_r は次式で与えられる;

$$\frac{1}{E_r} = \frac{1 - \nu_i^2}{E_i} + \frac{1 - \nu_s^2}{E_s} \quad (13)$$

ここで、 E_i , ν_i および E_s , ν_s は圧子先端部および試片のヤング率とポアソン比を表し、 $E_s = 58.00$ GPa, $\nu_s = 0.345$ であり^{20,27}、 $E_i = 1141$ GPa, $\nu_i = 0.07$ である²⁸。式 (10), (12) および (13) から次式を得る;

$$-3.56 F (C - C_m)^2 + 4.95 (u - C_m F) (C - C_m) - \frac{1 - \nu_i^2}{E_i} - \frac{1 - \nu_s^2}{E_s} = 0 \quad (14)$$

荷重急変試験は、H 領域において $F=0.39$ N, $u=9.32 \times 10^{-6}$ m, M 領域では $F=0.39$ N, $u=12.50 \times 10^{-6}$ m, の条件で実施した。式 (14) から C 値を求めると、H 領域では $C=3.73 \times 10^{-6}$ m/N となり、M 領域では $C=3.61 \times 10^{-6}$ m/N となる。これに荷重変化量を乗ずることにより荷重急変時にマイクロインデンターと試片に生じる弾性変位量を知ることができる。

5.1.2 瞬間塑性変形の判別

Fig. 8 (a) と (b) において、荷重急変時の力学系に生じる弾性変位量が勾配 C の細い実線によって示されている。またマイクロインデンターの弾性変位量が勾配 C_m の破線によって示されている。圧子先端部 (ダイヤモンド製) の弾性変形は無視できるので、 ab と bc はそれぞれ荷重急変時の試験機と試片の弾性変位量を表していると考えられる。実線から上方の部分 cd は荷重急増時に試片に生じた瞬間塑性変位量を表す。まず荷重を急減した場合から見てみよう。H および M 領域とも当該実験点は勾配 C の直線上にはほぼ存在している。したがって、この場合の瞬間変形は試験機と試片の弾性変形によるものである。次に荷重を急増した場合であるが、(a): H 領域では荷重を僅かに急増 ($\Delta F < 0.05$ N) したときでもコントロールボリュームに瞬間塑性変形を生じる。(b): M 領域で $\Delta F \leq 0.10$ N の場合は弾性変形だけが生じるが、 $\Delta F > 0.10 \sim 0.15$ N になると同時に瞬間塑性変形も生じる。このときの条件を $F=0.39 + (0.13 \sim 0.15)$ N, $u=12.50 \times 10^{-6}$ m, として、式 (2) からコントロールボリュームの平均相当応力を求めると $\bar{\sigma}_m = 58 \sim 60$ MPa となる。この値は Fig. 3 および Fig. 4 において応力指数が 4.9 から 3.0 になるときの遷移応力 (573 K, $\bar{\sigma}_c = 54 \sim 67$ MPa) にほぼ一致している。この事実は、H 領域では熱活性化抵抗は存在しないか無視できるほど小さく、転位は自由飛行的な高速運動をしており、荷重を僅かに急増 ($\Delta F \leq 0.05$ N) したときでも弾性変形だけでなく瞬間塑性変形も生じることを示している。一方 M 領域では熱活性化抵抗が存在し、転位は溶質雰囲気を引きずりながら粘性運動しており、荷重を $\Delta F \leq 0.10$ N 程度増加しても熱活性化抵抗のため直ちに動くことはできず、弾性変形だけが生じる。しかし荷重をある程度増加させて平均相当応力 $\bar{\sigma}_m$ が $58 \sim 60$ MPa を超えると、転位は溶質雰囲気から離脱して瞬間塑性変形を発現することを示している。

5.2 遷移応力と押し込み歪み速度の理論的検討

Fig. 9 に圧子下のコントロールボリュームにおける刃状転位の速度 v と抵抗応力 τ_R の関係を模式的に示す. A 点で高速運動している転位の速度が押し込みクリープの進行に伴って B 点の v_B まで低下すると, 転位の周りに溶質雰囲気形成され始め, C 点まで一気に減速される. 転位速度が v_c になると転位の周りに一定の大きさの溶質雰囲気が形成されるようになる. CD 間では転位は溶質雰囲気を引きずりながら粘性運動し, 転位速度と抵抗応力は比例することが知られている²⁹⁾. Al-Mg 固溶体合金中の転位運動に関する計算機シミュレーションによれば³⁰⁾, τ_R - v 線図における C 点は直線から外れるところにはほぼ対応しており, このときの速度 v_c は溶質原子濃度を C_s として次式で表せる³¹⁾;

$$v_c = v_0 C_s^m \exp\left(-\frac{Q_v}{RT}\right) \quad [\text{m/s}]. \quad (15)$$

ここで, $v_0 = 7.4 \times 10^5$ m/s, $m = 1.17$, $Q_v = 127$ kJ/mol である.

次に, 押し込みクリープの進行に伴って固溶体合金中の転位が高速運動から粘性運動に遷移するときの平均相当応力 $\bar{\sigma}_c$ と押し込み歪み速度 $\dot{\epsilon}_c$ に関する理論式を導く. 一般に内部応力 σ_i は次式で表せる;

$$\sigma_i = \alpha b G M \sqrt{\rho}. \quad (16)$$

ここで, α : 0.36 の定数³²⁾, b : バーガスベクトルの大きさ (2.86×10^{-10} m), G : 剛性率, M : テーラー因子 (3.06)³³⁾, ρ : 転位密度. クリープ変形中の内部応力の変化率は, 塑性歪みを ϵ , 時間を t として次式となる;

$$\frac{d\sigma_i}{dt} = \left(\frac{\partial \sigma_i}{\partial \epsilon}\right) \dot{\epsilon} - \left(-\frac{\partial \sigma_i}{\partial t}\right). \quad (17)$$

ここで, 第 1 項の $(\partial \sigma_i / \partial \epsilon)$ は転位上昇による回復の効果を含まない純粋な加工硬化率, 第 2 項は加工硬化の効果を含まない純粋な回復軟化速度を意味する. 転位論に基づく検討結果を参考にすると^{31,32)}, 上式は近似的に次のように書き表せる;

$$\frac{d\sigma_i}{dt} = \frac{\alpha^2 \beta b G^2 M^3}{4\sigma_i} \dot{\epsilon} - \frac{\eta D}{2(\alpha b G M)^2} \sigma_i^3. \quad (18)$$

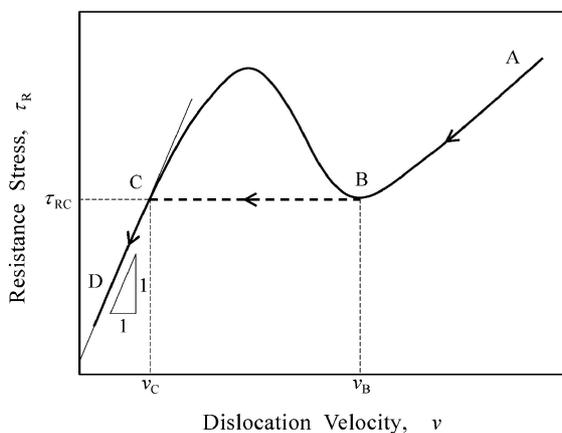


Fig. 9 Schematic illustration showing the relation between dragging resistance stress τ_R and edge dislocation velocity v in a solid-solution alloy, both on logarithmic scales.

ここで, β : 見かけの転位増殖係数, η : 回復による転位減少係数, D : 拡散係数. 定常変形状態では $d\sigma_i/dt = 0$ であるので, 定常クリープ速度 $\dot{\epsilon}$ は次式となる;

$$\dot{\epsilon} = \frac{2\eta D}{\alpha^4 \beta b^3 G^4 M^5} \sigma_i^4. \quad (19)$$

クリープ速度 $\dot{\epsilon}$ は, 刃状転位速度を v として次式で表すこともできる;

$$\dot{\epsilon} = \frac{2}{M} \rho b v. \quad (20)$$

大部分の転位が運動しているとする, 定常変形状態における内部応力と転位速度の関係は, 式(16), (19)および(20)から次式となる;

$$\sigma_i = \alpha b G M \sqrt{\frac{\beta}{D\eta}} v. \quad (21)$$

転位運動に対する抵抗応力 τ_R と転位速度 v が比例するとき ($v = B\tau_R$, B は転位の易動度), 変形応力 σ は内部応力と有効応力の和として次式で表される;

$$\sigma = \sigma_i + \frac{M}{B} v. \quad (22)$$

圧子直下のコントロールボリュームで転位の周りに一定の大きさの溶質雰囲気が形成され始めるときの平均相当応力 $\bar{\sigma}_c$ は, 式(21)と(22)から次式のように表される;

$$\bar{\sigma}_c = \left(\alpha b G M \sqrt{\frac{\beta}{D\eta v_c}} + \frac{M}{B} \right) v_c. \quad (23)$$

このときの押し込み歪み速度 $\dot{\epsilon}_c$ は式(5), (19)および(21)から次式となる;

$$\dot{\epsilon}_c = \frac{6\beta b}{DM\eta} v_c^2. \quad (24)$$

式(23), (24)に式(15)を代入することによって, 転位が高速運動から粘性運動に遷移するときの応力 $\bar{\sigma}_c$ と押し込み歪み速度 $\dot{\epsilon}_c$ が得られる.

Fig. 10 は, 上記理論から求めた遷移応力 $\bar{\sigma}_c$ と押し込み歪み速度 $\dot{\epsilon}_c$ の温度に対する変化を示す. Table 2 に計算に用いた材料定数^{24,30,32,34)}を示す. 式(23)から得られた $\bar{\sigma}_c$ 値は温度が高くなるにつれて減少し, 式(24)の $\dot{\epsilon}_c$ 値は逆に増大する. この計算結果は Fig. 4 および Fig. 5 の実験結果と同様なオーダーと温度依存性を示している. したがって, 応力指

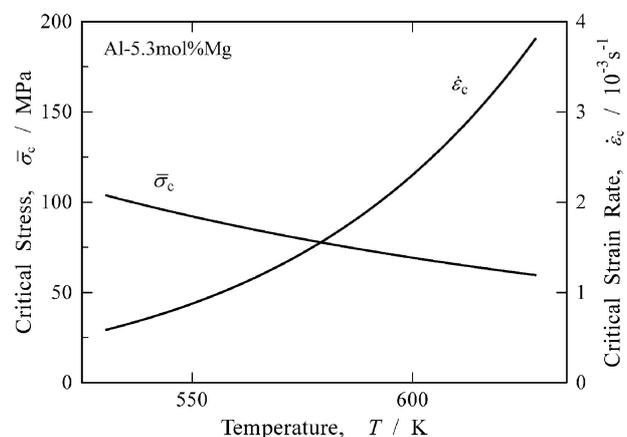


Fig. 10 Temperature dependences of $\bar{\sigma}_c$ and $\dot{\epsilon}_c$ obtained theoretically.

数が 4.9 から 3.0 に遷移するときの $\bar{\sigma}_c$ と $\dot{\epsilon}_c$ は、転位が高速運動から粘性運動に遷移するときの値に対応していると考えられる。

式(24)によれば、 β/η が一定のときの $\dot{\epsilon}_c$ 活性化エネルギーは拡散の活性化エネルギーとほぼ一致するが、それに温度依存性があるときは一致しない。実際、理論値 $\dot{\epsilon}_c$ のアレニウスプロットから求めた活性化エネルギーは 62 kJ/mol であり、これは格子拡散の活性化エネルギーの半分程度に相当する。上記の活性化エネルギーと押し込みクリーブ試験による実験値 (20 kJ/mol) との違いは、 β と η の見積もり方に主たる原因があるように思われるが、詳細は今のところ不明である。

5.3 クリーブ律速過程の遷移

実験結果によれば、H 領域において応力指数は約 5 であり、クリーブの活性化エネルギーはマトリックスの格子拡散の活性化エネルギーにほぼ等しい。この応力域では熱活性化抵抗は無視できるほど小さく、転位は自由飛行的な高速運動をしている。一方、M 領域における応力指数は約 3 であり、クリーブの活性化エネルギーはこの合金の相互拡散の活性化エネルギーに近い値である。この応力域では熱活性化抵抗が存在し、転位は粘性運動をしている。こうした事実は、H 領域の押し込みクリーブ速度は転位上昇などの回復によって支配されており、M 領域での押し込みクリーブ速度は転位の粘性運動によって支配されていることを示唆している。

圧子の押し込み速度を支配するコントロールボリュームでは、転位の上昇運動が律速する変形過程[過程 1, $n=5$]、転位の粘性運動が律速する変形過程[過程 2, $n=3$]、格子拡散による変形過程[過程 3, $n=1$]、粒界拡散による変形過程[過程 4, $n=1$]、Harper-Dorn クリーブ過程[過程 5, $n=1$]

Table 2 Material constants used in evaluating $\bar{\sigma}_c$ and $\dot{\epsilon}_c$. G : the shear modulus, B : the dislocation mobility, D : the diffusion coefficient, β : the coefficient of dislocation increase by multiplication, η : the coefficient of dislocation decrease by recovery.

T (K)	G (GPa)	B (m^3/Ns)	D (m^2/s)	β (1/m)	η
573	21.0	4.73×10^{-15}	1.61×10^{-16}	9.61×10^6	98.3
623	20.0	4.22×10^{-14}	1.45×10^{-15}	2.86×10^6	87.3
673	19.4	2.87×10^{-13}	9.39×10^{-15}	9.54×10^5	77.6

Table 3 Comparison between indentation creep test results and tensile creep test results.

Creep test method	Test materials	T (K)	$\bar{\sigma}$ (MPa)	Stress range	n	Q (kJ/mol)
Indentation (current study)	Al-5.3 mol%Mg alloy	546-590	23-151	H	4.9	146
				M	3.0	137
Tension (Murty <i>et al.</i> , 1972, 1973)	Al-5.5 mol%Mg alloy	573	5-250	H	4.9	140
				M	3.0	138
Tension (Yavari <i>et al.</i> , 1981, 1982)	Al-5.6 mol%Mg alloy	623	6-95	H	4.6	—
				M	3.0	149
Tension (Sato and Oikawa, 1988)	Al-5.3 mol%Mg alloy	570-640	2-50	H	4.3	137
				M	3.3	136

などが活動している可能性がある³⁵). 過程 1 と 2 は互いに競合する関係にあるが他の過程は互いに独立なので、これらが同時に働くときの押し込みクリーブ速度 $\dot{\epsilon}_{in}$ は次式で表される;

$$\dot{\epsilon}_{in} = C_2 \dot{\epsilon} = C_2 \left(\frac{\dot{\epsilon}_1 \dot{\epsilon}_2}{\dot{\epsilon}_1 + \dot{\epsilon}_2} + \dot{\epsilon}_3 + \dot{\epsilon}_4 + \dot{\epsilon}_5 \right). \quad (25)$$

ここで、 $\dot{\epsilon}_i$ は過程 i によって生じる相当塑性歪み速度である。本実験条件 ($\bar{\sigma}_m/E = 10^{-4} - 10^{-3}$, $T/T_m = 0.60 - 0.65$) では、 $\dot{\epsilon}_3, \dot{\epsilon}_4, \dot{\epsilon}_5$ は $\dot{\epsilon}_1, \dot{\epsilon}_2$ に比べて無視できるほど小さいので次式となる³⁶);

$$\dot{\epsilon}_{in} = C_2 \frac{\dot{\epsilon}_1 \dot{\epsilon}_2}{\dot{\epsilon}_1 + \dot{\epsilon}_2}. \quad (26)$$

転位が溶質雰囲気から離脱するのに要する応力 $\bar{\sigma}_c$ よりも $\bar{\sigma}_m$ の方が大きいとき、転位は自由飛行的に高速運動する。この場合は $\dot{\epsilon}_1 \ll \dot{\epsilon}_2$ となり、式(26)は $\dot{\epsilon}_{in} \approx C_2 \dot{\epsilon}_1$ となる。したがって、H 領域 ($\bar{\sigma}_m > \bar{\sigma}_c$) では回復律速であり、 $\dot{\epsilon}_{in} \propto (\bar{\sigma}_m/E)^5$ が成り立つ。一方、転位のすべり速度が上昇速度と同程度であるときは $\dot{\epsilon}_{in} \approx C_2 \dot{\epsilon}_2$ となる。したがって、M 領域 ($\bar{\sigma}_m < \bar{\sigma}_c$) ではすべり律速となり、 $\dot{\epsilon}_{in} \propto (\bar{\sigma}_m/E)^3$ が成り立つ。

一定荷重試験において、押し込みクリーブの進行に伴ってコントロールボリュームの平均相当応力 $\bar{\sigma}_m$ がある応力レベル $\bar{\sigma}_c$ まで低下すると、それまで高速運動していた転位の周りに一定の大きさの溶質雰囲気が形成されて粘性運動をするようになる。これに伴って変形律速過程が遷移し、応力指数は 5 から 3 になると考えられる。

5.4 引張クリーブ試験結果との比較

押し込みクリーブ試験による結果と従来の引張クリーブ試験の結果を Table 3 に示す。本試験では H 領域の応力指数 n は 4.9、クリーブの活性化エネルギー Q は 146 kJ/mol である。M 領域では $n=3.0$, $Q=137$ kJ/mol である。Murty²¹、Murty ら³⁷)による Al-5.5 mol%Mg 固溶体合金の引張クリーブ試験結果は、H 領域では $n=4.9$, $Q=140$ kJ/mol であり、M 領域では $n=3.0$, $Q=138$ kJ/mol、である。他の研究者による結果もほぼ同じである^{22,23,38,39})。Fig. 4 に示したように遷移応力 $\bar{\sigma}_c$ についても引張りクリーブ試験結果とほぼ一致する。このように押し込みクリーブ試験から得られる結果は従来の引張クリーブ試験結果と同様になる。

本論文において、押し込みクリーブ試験法により米粒ほどの試片からクリーブ特性値を正しく評価できることが示された。

6. 結 言

Al-5.3 mol%Mg 固溶体合金に関する押込みクリープ試験を行い、以下の知見を得た。

(1) 押込みクリープの進行に伴って圧子直下の領域の平均相当応力 $\bar{\sigma}_m$ がある値 $\bar{\sigma}_c$ まで低下すると、応力指数 n は 4.9 から 3.0 に変化する。

(2) 高応力域 ($\bar{\sigma}_m > \bar{\sigma}_c$) におけるクリープの活性化エネルギー Q はアルミニウムの格子拡散の活性化エネルギーにほぼ等しく、中応力域 ($\bar{\sigma}_m < \bar{\sigma}_c$) における Q 値はこの合金の相互拡散の活性化エネルギーに近い。

(3) 高応力域では瞬間塑性変形が生じるが、中応力域では荷重をある範囲で増加させても生じない。この応力域で瞬間塑性変形が発現し始める $\bar{\sigma}_m$ 値は、一定荷重試験で n 値が 4.9 から 3.0 に変化するときの遷移応力 $\bar{\sigma}_c$ にほぼ一致する。

(4) 転位論による検討から、 n 値が変化するときの $\bar{\sigma}_c$ と $\dot{\epsilon}_c$ は転位が高速運動から粘性運動に遷移するときの値に対応する。

(5) 転位運動様式の遷移に伴って、変形律速過程は回復律速からすべり律速にスイッチングし、応力指数が 4.9 から 3.0 に変化する。

(6) 押込みクリープ試験による結果は、従来の引張クリープ試験の結果と首尾よく一致する。

本研究の一部はニュークリア・デベロップメント株式会社による日本大学産学官連携知財センター研究奨励寄附金によって行われたものであり、ここに謝意を表します。

文 献

- 1) A. C. Fischer-Cripps: *Nanoindentation*, (Springer-Verlag, New York, 2004).
- 2) *Microindentation Techniques in Materials Science and Engineering*, eds. P. J. Blau and B. R. Lawn, (ASTM, Philadelphia, 1986).
- 3) T. O. Mulhearn and D. Tabor: *J. Inst. Metals* **89**(1960) 7-12.
- 4) W. B. Li, J. L. Henshall, R. M. Hooper and K. E. Easterling: *Acta Metall.* **39**(1991) 3099-3110.
- 5) P. M. Sargent and M. F. Ashby: *Mater. Sci. Technol.* **8**(1992) 594-601.
- 6) O. Prakash: *Proc. The J. Weertman Symposium*, eds by R. J. Arsenault *et al.*, (MMMS, PA, 1996) pp. 155-169.
- 7) B. N. Lucas and W. C. Oliver: *Metall. Mater. Trans. A* **30**(1999) 601-610.
- 8) M. Fujiwara and M. Otsuka: *J. Japan Inst. Metals* **63**(1999) 760-769.
- 9) M. Fujiwara and M. Otsuka: *Mater. Sci. Eng.* **A319-321**(2001) 929-933.
- 10) M. Fujiwara: *J. Japan Inst. Light Metals* **52**(2002) 282-290.
- 11) H. Takagi, M. Dao, M. Fujiwara and M. Otsuka: *Philos. Mag.* **83**(2003) 3959-3976.
- 12) M. Dao, H. Takagi, M. Fujiwara and M. Otsuka: *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **795**(2004) 352-330.
- 13) R. Hill: *The Mathematical Theory of Plasticity*, (Oxford, Clarendon, 1983).
- 14) H. M. Pollock, D. Maugis and M. Barquins: *Microindentation Techniques in Materials Science and Engineering*, eds. P. J. Blau and B. R. Lawn, (ASTM, Philadelphia, 1986) pp. 47-71.
- 15) Y. T. Cheng and C. M. Cheng: *Philos. Mag. Lett.* **81**(2001) 9-16.
- 16) D. Tabor: *The Hardness of Metals*, (Oxford: Clarendon, 1951).
- 17) K. L. Johnson: *J. Mechan. Phys. Solids* **18**(1970) 115-126.
- 18) A. Bolshakov and G. M. Pharr: *J. Mater. Res.* **13**(1998) 1049-1058.
- 19) J. Cadek: *Creep in Metallic Materials*, (Amsterdam, Elsevier, 1988).
- 20) K. Abe, Y. Tanji, H. Yoshinaga and S. Morozumi: *J. Japan Inst. Light Metals* **27**(1977) 279-281.
- 21) K. L. Murty: *Scr. Mater.* **7**(1973) 899-904.
- 22) H. Oikawa, K. Sugawara and S. Karashima: *Scr. Mater.* **10**(1976) 885-888.
- 23) P. Yavari and T. G. Langdon: *Acta Metall.* **30**(1982) 2181-2196.
- 24) E. A. Brandes and G. B. Brook: *Smithells Metals Reference Book Butterworth-Heinemann*, (Oxford, Butterworth-Heinemann, 1992).
- 25) W. C. Oliver and G. M. Pharr: *J. Mater. Res.* **7**(1992) 1564-1583.
- 26) G. M. Pharr, W. C. Oliver and F. R. Brotzen, *J. Mater. Res.* **7**(1992) 613-617.
- 27) E. A. Brandes and G. B. Brook: *Smithells Metals Reference Book Butterworth-Heinemann*, (Oxford, Butterworth-Heinemann, 1992) pp. 15-2.
- 28) G. F. Cardinale, D. G. Howitt, K. F. McCarty, D. L. Medlin, P. B. Mirakarimi and N. R. Moody: *Diamond Relate. Mater.* **5**(1996) 1295-1302.
- 29) A. H. Cottrell: *Dislocations and Plastic Flow in Crystals*, (Oxford University Press, 1953).
- 30) H. Nakashima and H. Yoshinaga: *J. Japan Inst. Metals* **56**(1992) 254-261.
- 31) H. Miyagawa, T. Morikawa, T. Okazaki, H. Nakashima and H. Yoshinaga: *J. Japan Inst. Metals* **60**(1996) 367-376.
- 32) H. Miyagawa, H. Nakashima and H. Yoshinaga: *J. Japan Inst. Metals* **56**(1992) 531-540.
- 33) G. I. Taylor: *J. Inst. Metals* **62**(1938) 307-324.
- 34) J. L. Tallon and A. Wolfenden: *J. Phys. Chem. Solids* **40**(1979) 831-837.
- 35) H. J. Frost and M. F. Ashby: *Deformation-Mechanism Maps*, (Pergamon Press, Oxford, 1982).
- 36) F. A. Mohamed and T. G. Langdon: *Scr. Metall.* **9**(1975) 137-140.
- 37) K. L. Murty, F. A. Mohamed and J. E. Dorn: *Acta Metall.* **20**(1972) 1009-1018.
- 38) P. Yavari, F. A. Mohamed and T. G. Langdon: *Acta Metall.* **29**(1981) 1495-1507.
- 39) H. Sato and H. Oikawa: *Scr. Mater.* **22**(1988) 87-92.