局所力学挙動と材料特性 —nm スケール力学挙動解析による 未踏領域への挑戦—

.

大 村 孝 仁*

1. はじめに

実構造物の部材の特性は、mm から m 程度のサイズで発現することが求められるのに対し、材料を構成する微視組織は、nm から μ m 程度のスケールで制御される。材料研究者にとっては、肉眼と顕微鏡というレンズの違いこそあれ、どちらもリアリティーのあるスケールとして実感できる対象であるが、それらのスケールのギャップは、実に 10^6 オーダーである。 10^6 オーダーのギャップとは、例えば、地球の直径(約13000 km)に対するゴルフ場のグリーン程度の大きさということになる。グリーンの大きさは実感できても、地球の直径を実感できる人は、そう多くないはずである。鉄鋼などの構造材料の多くにおいて、このスケールのギャップは、特性発現機構の理解や性能向上を目指す上で極めて大きなハードルである。

もう一つの大きなハードルは、微視組織と力学挙動の関係である。nmから μmの組織は、最先端のあらゆる観察・解析機器で詳細に捉えることができつつあるが、それと同じスケールの力学挙動を直接的に捉えることは未踏領域である。塑性変形を定量的に記述する方法の一つとして、我々は転位論をしばしば用いるが、個々の転位の振る舞いは電子顕微鏡などで実験的に観察することはできても、応力-ひずみ応答との関係を直接的に計測することは極めて難しい。nmスケールにおける微視組織と力学挙動の関係解明は、106のギャップを乗り越えることと同様に重要な課題である。

未踏領域である nm スケールにおける力学挙動を直接的に 計測できる技術として期待されているのが, ナノインデンテーションやマイクロピラー変形である.

ナノインデンテーション法は、すい型の圧子を μ N 単位の荷重で試料表面に押し込み、nm 単位で侵入深さを計測して変形抵抗を測定する技術である.形成される圧痕の大きさは、水平方向に数10 nm、深さは数10 nm 程度である.圧痕サイズを精度良く測定するため,圧子が試料へ侵入する深さ(押込深さ)を変位計によって測定し,圧子の幾何学的形状を介して圧痕の面積を求める方法を採用している.特にその測定原理を強調して,depth-sensing indentation と呼ばれる場合もある.この技術のさらに詳しい内容は,文献(1)(2)を参照願いたい.

マイクロピラー変形は、FIB 加工技術の発達に伴って急速に発展している手法で、直径が100 nm~μm オーダーの柱状試料を、走査型電子顕微鏡(SEM)や透過型電子顕微鏡(TEM)の中で圧縮または引張変形させ、その際の荷重-変位関係を定量的に測定する技術である。TEM 内その場観察の場合は、転位組織の変化を観察することに重点が置かれる場合が多いが、力学応答を同時に計測する技術も開発されている。試料は、バルクからピラー形状に切り出す方法に加え、ワイヤー状のナノ材料を対象にする技術も発達してきている。

本稿では、これらの先端的な局所力学挙動解析技術による 応用例を紹介し、マクロ材料特性の発現機構解明への展望に ついて述べる.

312 最近の研究

^{*} 物質・材料研究機構 元素戦略材料センター 構造材料ユニット; 副ユニット長(〒305-0047 つくば市千現 1-2-1) Local Mechanical Behavior Related to Materials Properties —A Grand Challenge through Nano-Mechanical Characterization—; Takahito Ohmura (National Institute for Materials Science, Tsukuba) Keywords: nanoindentation, transmission electron microscopy, dislocation, mechanical behavior, plastic deformation 2014年4月11日受理[doi:10.2320/materia.53.312]

2. ナノインデンテーション法による塑性変形開始挙動の解析

ナノインデンテーション法の特徴として、対象とする領域のサイズが μ m以下の微小領域であることを述べたが、もう一つの利点は、荷重-変位関係を遂次測定することによって、負荷や除荷の過程における基礎的な変形挙動を捉えることができる点である。その代表的な例は、負荷過程に現れるpop-inと呼ばれる変位が一スト現象である。図1は、Fe合金の測定で得られる典型的な荷重-変位曲線であり、図中の破線矢印で示された部分に変位の不連続点が明確に確認できる。図1の測定は荷重制御で行われたものであり、変位バーストは変形抵抗の急激な低下として理解される。同じ現象を変位制御で測定する場合には、荷重の急激な低下として発現する③。図1における荷重-変位データの取り込み速度は1秒間に200点であり、pop-inの途中では測定点が記録されないことから、0.005秒間よりも短時間に発生する瞬時の現象であると判断される。

この現象に関しては,発見当初は試料表面の酸化被膜の破壊現象などの説が唱えられたが $^{(4)}$,その後,金などの酸化抵抗の高い貴金属でも発現すること $^{(3)}$ や,同じ材料でも初期転位密度が低い場合に起こりやすいこと $^{(5)}$ ($^{(6)}$ などから,塑性変形の本質的な挙動としての理解が進んでいる.重要な知見の一つは,pop-in 現象は,弾性変形から弾塑性変形への遷移に対応し,発生時の荷重から算出される圧子下のせん断応力が,理想強度のオーダーに近い値になる点である $^{(7)}$.以下,図1を例にして定量的に述べる.pop-in が発生する臨界荷重を P_c とすると, P_c よりも低い荷重域では,荷重Pと押込深さhの実測値が,図中の破線で示される以下のヘルツ接触のモデル $^{(8)}$ に良く一致している.

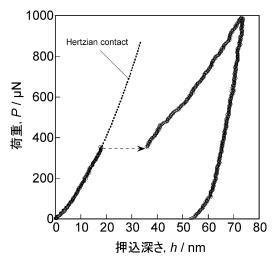


図1 Fe 合金のナノインデンテーションで得られる荷重-変位曲線. 破線矢印は pop-in 現象による変位バーストを示す. 点線は Hertz の接触モデルによる弾性変形曲線を表す⁽¹⁰⁾.

$$P = \frac{4}{3} E^* R^{1/2} h^{3/2} \tag{1}$$

ここで、R は圧子先端の曲率半径、 E^* は以下の式で与えられる複合ヤング率である.

$$\frac{1}{E^*} = \frac{1 - v_i^2}{E_i} + \frac{1 - v_s^2}{E_s} \tag{2}$$

このことから,pop-in 発生以前の力学挙動は,弾性変形挙動が支配的であると判断できる.また,圧子下の最大せん断応力 τ_{max} は以下の式で与えられる $^{(8)}$.

$$\tau_{\text{max}} = 0.18 \left(\frac{E^*}{R} \right)^{2/3} P^{1/3} \tag{3}$$

Pとして,図 1 より P_c = 300 μN とすると, τ_{max} は約 11.3 GPa と算出される.鉄の剛性率を 83 GPa とすると, τ_{max} は剛性率の約 1/7 と求められ, τ_{max} は理想強度に近い値であることがわかる.このことから,pop-in 現象は,転位が存在しない領域から転位が生成する挙動に基づく塑性変形の開始であると理解できる.ただし,pop-in の発生が転位の生成と同時とは限らないとする指摘もある.TEM 中 in-situ インデンテーションの結果 $^{(9)}$ によると,純 Al において,pop-in の発生以前に転位が生成する現象が確認されている.このことは,転位の生成に引き続いておこる何らかの過程,例えば増殖などが重要であることを示唆している.

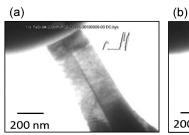
転位の増殖過程が力学挙動とどのように関係するのかを示 す例として、筆者らのグループが行った TEM in-situ 圧縮 変形の結果を示す. 試料は Fe-3 mass % Si 単結晶の柱状圧 縮試験片であり、圧縮軸は〈110〉に平行である。圧縮変形中 の荷重-変位関係を同時に計測する手法により、力学応答と 転位組織変化を同期させることができる.図2は、記録され た動画から抽出されたスナップショットであり、変形中の転 位組織の変化を示している⁽¹⁰⁾. (a)は pop-in 直前を, (b)は 直後を示している. (b)では明確な転位密度の上昇が観察さ れ,pop-in 発生時に転位の増殖が起こったことを示してい る. また, (a)(b)の時間差は1/30秒であることから,転位 増殖が極めて短時間に起こったことがわかる. (c)はリアル タイムで計測された荷重-変位曲線を示しており、pop-inの 瞬間は破線矢印の荷重の急激な低下に対応している. 本実験 は変位制御で行われたため、荷重制御で現れる変位バースト とは挙動が異なっているが、いずれも変形抵抗が劇的に低下 する挙動であり、本質的には同じ現象と考えてよい. この結 果は、塑性ひずみが急激に増大する変形挙動においては、転 位の増殖が重要な素過程であることを示している. 転位の増 殖と塑性ひずみの関係は、第4節でさらに検討を行う.

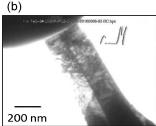
局所的な塑性変形の開始挙動を支配する因子をさらに理解するため、結晶構造の異なる種々の単結晶を用いた系統的な解析を行った。試料表面の垂直方向はすべて $\langle 001 \rangle$ に統一した。図3は、pop-in 荷重 P_c から式(3)を用いて算出される最大せん断応力 τ_{\max} と、除荷曲線から求められるヤング率から変換した剛性率Gとの関係をプロットしたものである $^{(10)}$. 測定を行ったすべての材料で両者は良い直線関係にあり、その係数は $1/2\pi$ から1/10程度の値と求められる.

一方,すべり面における完全結晶の摩擦応力を定式化した モデルの一つは以下の式で与えられる.

$$\tau = \frac{b}{h} \frac{G}{2\pi} \sin\left(\frac{2\pi x}{b}\right) \tag{4}$$

ここで、b はバーガースベクトルの大きさ、h はすべり面間 距離、x はすべり方向の相対変位である。 $b\sim h$ と近似して得られる応力の最大値は、x=1/4b のとき $G/2\pi$ である。これは、図 3 で実験的に求められた値と極めて近い値である.





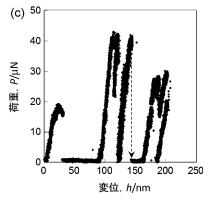


図2 Fe-3 mass%Si 単結晶の TEM 内その場圧縮変形で得られた動画から抽出した TEM 像. (a) popin 直前, (b) popin 直後. 転位密度が popin 後に大幅に増加している. (c) は同時に測定された荷重-変位曲線で, popin は破線矢印で示した荷重の急激な低下として発現している(10).

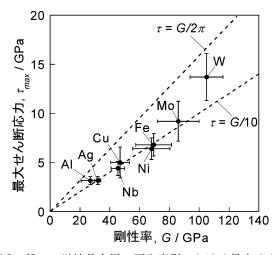


図3 種々の単結晶金属の圧入変形における最大せん断 応力 $\tau_{\rm max}$ と剛性率 G の関係 $^{(10)}$.

この結果は、pop-in 挙動が発現する応力レベルは、結晶構造に依らず、理想強度に近い値であることを示す有力な証拠であり、臨界応力は局所的な剛性率に強く依存することを示している.

3. 局所変形挙動に及ぼす格子欠陥の影響

塑性変形の開始挙動に対して、粒界や固溶元素などの格子 欠陥の影響について解析した例を次に述べる.

粒界による強化機構の議論には、しばしば結晶微細化強化のモデルが用いられる.結晶粒微細化強化は、実験結果から定式化された次のホール・ペッチの関係⁽¹¹⁾⁽¹²⁾で記述される場合が多い.

$$\boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{\sigma}_0 + kd^{-1/2} \tag{5}$$

ここで σ は流動応力, σ_0 は定数,kはロッキング・パラメーター,dは結晶粒径を表す.これを説明する粒界強化のモデルとしてパイルアップモデル $^{(11)}$ (12)や転位源モデル $^{(13)}$ などが示されている.両モデルを端的に表現すると,前者は転位運動に対する抵抗の働きとして,後者は転位の生成を促進する働きとして理解されており,一見すると矛盾しているように思える.これらのモデルを検証するためには,例えば単独の粒界と転位との相互作用を直接的に捉える実験が有効であるが,従来は透過電子顕微鏡による組織観察などに限定され $^{(14)-(18)}$,力学的性質との定量的な関係は不明である.この課題に対して筆者らは,一つの粒界の近傍にナノスケールの変形を加え,その挙動からこれら二つのモデルの検証を行った.その例を以下に述べる.

供試材は、Ti添加 Interstitial Free 鋼 (IF 鋼)で、試料の平均結晶粒径は数 $100~\mu m$ である。実験方法の詳細は、文献 (19)を参照されたい。測定位置は、粒界の直上および粒界から離れた粒内の2つのケースを設定した。 図 4は、ナノインデンテーション測定で得られる荷重-変位曲線の例であ

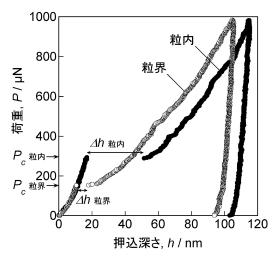


図4 Interstitial Free (IF)鋼における粒界および粒内に対するナノインデテーション測定で得られる荷重-変位曲線⁽¹⁹⁾.

る. 粒界(白丸)と粒内(黒丸)の両方の負荷曲線上には, pop-in が明瞭に現れている.

図5は、粒界と粒内の2つのケースについて臨界荷重 P_c と pop-in の深さ Δh の関係を示したものである. 図中の右 下には試料表面の SPM (Scanning Probe Microscope) 像を 示しており、 粒界とその直上に形成された圧痕が観察され る. 粒界を形成する2つの結晶粒を図のようにgrain 1, grain 2 とし、各結晶粒内を測定して得られたデータはそれ らを区別してプロットしている. 粒界上の測定値を含め、合 計3種類について各10点のプロットが示されている. 粒界 上の場合では、 P_c が $100\sim200\,\mu\mathrm{N}$ の比較的低い領域に集中 しているのに対し、粒内では最高 600 µN 程度まで分散して いる. 粒内よりも粒界における臨界荷重が低いことは、粒界 が有効な転位源として働くことを示唆している. また, 粒内 のデータについては、 P_c が高いほど Δh も高くなる傾向に あることが一つの特徴である. これについては, pop-in の 際に発生する塑性変形を prismatic loop 転位で担うモデ

$$P_{\rm c} = \left(\frac{1}{0.18}\right)^3 \left(\frac{R}{E^*}\right)^2 \left(\frac{2G}{a} \Delta h + \mu \gamma\right)^3 \tag{6}$$

ここで、a は圧痕の水平方向の大きさ、y は pop-in 後に残留する弾性ひずみを表す。図中に破線で示した曲線は、それぞれの結晶粒のプロットにフィッティングさせて描いたものであり、 P_c と Δh の関係は式(6)をほぼ満たし、 P_c が高いほど、すなわち蓄積される弾性ひずみエネルギーが大きいほど pop-in 時の塑性ひずみが大きくなることを示している。

さらに、 P_c が $100\sim600~\mu N$ の範囲に分散する理由について考察したい。本実験で用いた IF 鋼は、前節で示した単結晶試料よりもインデンテーション実験前の転位源密度が高い可能性がある。初期転位源密度が低い場合は、既存の転位源における圧入応力が転位源活性化の臨界応力に達しないた

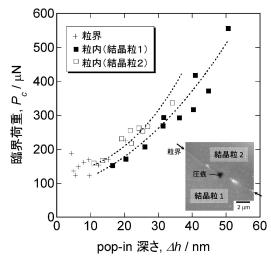


図 5 図 4 の荷重-変位曲線上に現れる pop-in 挙動の臨界荷重 P_c と pop-in 深さ Δh の関係. 右下は,試料表面の走査プローブ顕微鏡像で,粒界とその直上に形成された圧痕が観察される $^{(19)}$.

め、完全結晶領域から転位を生成して塑性変形が開始される必要があるのに対し、転位源密度が高い場合には、生成を必要とせずに既存の転位源の活性化によって塑性変形が開始する機構が支配的と考えられる。初期転位源密度がある程度高い場合に P_c が広範囲に分布する理由としては、第一に、圧入によって導入される応力場には分布があるために転位源に加わる応力が位置によって異なることである。式(3)で示した最大せん断応力は、圧子直下のある一点に発生する応力であり、転位源の位置がこれに一致することはむしろ稀であって、この点から離れるほど応力は低くなる。第二に、転位源が同じ位置であっても活性化される臨界応力が異なることが考えられる。転位源として例えばフランク・リード(FR)源を仮定すると、活動に必要な臨界応力は、Gb/l(lは FR源の長さ)であり、このlは種々存在するであろう。

一方,ナノインデンテーション測定では,最大荷重に対応する圧痕深さから従来と同様に硬さの算出も可能であり,粒界と粒内ではそれぞれ2.8±0.16,2.2±0.05 GPa と算出された. 粒界の変形抵抗は,粒内よりも30%程度高い値である. これは,粒界では粒内よりも低い荷重値で塑性変形が開始するという図5で述べた挙動と対照的で興味深い. すなわち,単独の粒界は,有効な転位源として働くことで塑性変形の開始を容易にする一方で,塑性変形が進行して粒界以外の転位源が活性化されると,粒界に向かって移動する転位のすべり運動に対する抵抗としての働きがより大きくなり,あるひずみ以上で顕著に強化に寄与するものと考えられる.

次に,固溶元素や初期転位密度が塑性変形の開始挙動に与 える影響について述べる.

図 6 は、0.004 mass%の C が固溶する ULC (Ultra-Lowcarbon) 鋼と Ti 添加 IF 鋼において得られた荷重-変位曲線の例を示したものである $^{(21)}$. どちらも明瞭な pop-in 挙動が現れているが、各材料の数10点の測定から求められる臨界荷重 P_c の平均値を比較すると、IF 鋼の 112 μ N に対してULC 鋼は 590 μ N と算出され、ULC 鋼の方が大幅に高い値

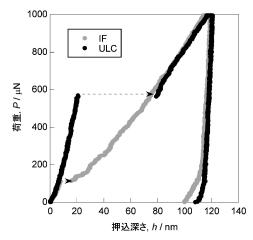


図 6 0.004 mass % の C が固溶する ULC (Ultra-Low-carbon) 鋼と Ti 添加 IF 鋼において得られた荷重-変位曲線の例⁽²¹⁾.

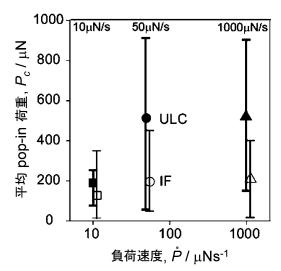


図 7 ULC 鋼と IF 鋼における臨界荷重 P_c の負荷速度 依存性 $^{(21)}$.

を示す. 固溶炭素が寄与する機構を明確にするため, 荷重負 荷速度を変化させた際の pop-in 挙動を示したのが図7であ る. 負荷速度を 10~1000 µN/s の範囲で変化させた場合, IF 鋼の P_c は負荷速度にほとんど依存しないのに対し、ULC鋼の場合は負荷速度が遅い条件において Pc が低下する傾向 を示す. ULC 鋼の P_c が負荷速度, すなわちひずみ速度に依 存することは、pop-in の発生機構に何らかの熱活性化過程 が関係することを示唆している. 固溶炭素が関わる機構とし ては、炭素の周辺に形成される短範囲の応力場と転位の相互 作用である. 前述のように、pop-in に対応する塑性変形の 開始と転位運動の関係は、既存転位の運動開始ではなく、無 転位領域からの転位生成から始まるものと理解できるが、転 位生成に固溶炭素が熱活性化過程を通じて寄与する描像は描 きにくい. 一方, 第2節で述べたように, pop-in が転位の 増殖に対応する挙動であるとすると, 転位生成から増殖まで の間に固溶炭素と転位の相互作用が発生すると考えるのが妥 当である. 機構解明までにはさらに時間を要すると思われる が、この新しい手法が炭素による固溶強化の理解に寄与する ことを望む.

図8は、ULC 鋼と IF 鋼において、引張変形による予ひずみを与えた試料の荷重-変位曲線の例である(22). 図6と比較すると P_c の値が極端に低く、固溶元素の影響も不明瞭である。図6で示した試料の転位密度は $10^{11}\,\mathrm{m}^{-2}$ のオーダーであるのに対し、図8の場合は $10^{14}\,\mathrm{m}^{-2}$ である。転位の平均間隔に換算すると、 $3\,\mu\mathrm{m}$ 程度から $100\,\mathrm{nm}$ に狭まることになり、圧子下に形成される応力場内に既存転位が存在する確率が、図8の場合は極端に高い条件と判断される。したがって、理想強度近くの応力を必要とする無転位からの転位生成を経ずに、既存転位の運動または既存の転位源の活性化が塑性変形開始を支配し、その応力は理想強度に比べて桁違いに低いと考えられることから、 P_c の値が低く現れるものと考察される。この結果は、粒界における平均の P_c が低いこ

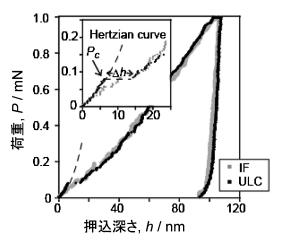


図8 ULC 鋼と IF 鋼において、引張変形による予ひず みを与えた試料の荷重-変位曲線の例⁽²²⁾.

とと類似しており、転位源の存在条件が塑性変形の開始挙動 に関係することを示している.

4. 試料サイズ効果と塑性変形の素過程

あるすべり面において塑性変形が開始する臨界せん断応力 τ_y を決める因子の一つは,結晶構造の周期性に起因して転位 の自己エネルギーが変化するパイエルス・ポテンシャルである。 τ_y は,熱的な助けを受けずにパイエルス・ポテンシャル の一つのヤマを越えるに必要な応力(パイエルス応力)として理解される。 τ_y は,剛性率 G,格子面間隔 h,バーガース・ベクトルの大きさ b を用いて次の形に表されることが多様な材料について実験的に示されている $^{(23)(24)}$.

$$\tau_{y} = \alpha G \exp\left(-\beta \frac{h}{b}\right) \tag{7}$$

ここで、 α 、 β は定数である。 τ 、 δ G で規格化すると、 τ 、/G は h/b の値のみに依存するので、結晶構造と格子定数が決まれば、臨界せん断応力がほぼ決まることを意味している。このように、高純度結晶の場合、特に金属以外の結晶や bcc 金属の低温変形においては、転位のすべり運動に対する結晶のイントリンシックな因子が支配して降伏応力が決まると理解されている。

以上の解釈は、単結晶のマクロな降伏現象を1本の転位 の運動で理解しようとするモデルである. 換言すれば、すで に結晶中に存在する可動転位を想定し、その運動が支配する というモデルである.

ここで1つの疑問が発生する. 降伏前の結晶において, その可動転位はどこからやって来るのか? いわゆる grown-in 転位なのか, それとも,変形過程において生成ま たは増殖して生まれた転位なのか?

ウィスカーの高い強度は、当初は無欠陥であることが理由とされていたが、強度が試料太さに強く依存することから⁽²⁵⁾、結晶が細くなるほど転位源長さの長い転位源が試料内に存在する確率が減少するためと理解されている⁽²⁶⁾、最

316 最近の研究

近では、Uchic ら⁽²⁷⁾が、0.5~数10 µm の様々なサイズの円 柱状の単結晶試料による系統的な研究において、圧縮試験で 測定される降伏応力が円柱の直径が小さいほど高くなること を示した. その理由として, 試料サイズが小さいほど内包さ れる初期の可動転位の数が低下するためであると考察してい る. 降伏応力が試料寸法に依存することは、すなわち、ある すべり面の臨界せん断応力が、応力場に含まれる転位数また は転位源数に依存することを示しており、大変興味深い. こ のことは, 例えば, 結晶粒微細化強化における強化機構に新 たなヒントを与える可能性がある. これまでの結晶粒微細化 強化の機構モデルは、粒界強化、すなわち粒界における転位 のすべり運動の障害が素過程として考えられていたが、それ に加えて, 粒内の降伏応力がサイズ効果で上昇することを検 討に加える必要がある. 筆者らが行った IF 鋼および納 Al の超微細粒材料に対する局所力学測定では、結晶粒サイズに 応じて,マクロ硬さのみならず,粒内の硬さも変化する結果 が得られている(28)(29). 結晶粒内の降伏応力が結晶粒サイズ に依存することは、式(5)において、粒径に依らず材料定 数と考えれていた σ₀ 項が一定値ではないことを意味してお り,強化機構に関する重要な示唆を含んでいる.

強度の試料サイズ依存性においてもう一つ重要な点は、可動転位密度だけでなく、転位源密度も関係している点である。転位論において、ある瞬間における転位密度が一定の場合、ひずみ速度は転位の平均易動度 \bar{v} で支配されるモデルで表現され、以下となる。

$$\dot{\gamma} = \rho b \bar{v} \tag{8}$$

この関係は、オロワンが最初に導入したのでオロワンの式とも呼ばれている。このモデルは、転位の易動度を粘性運動による有限の速度とすることにより、その速度が温度に依存することに基づいて変形の熱活性化過程を説明するのに都合が良い。マクロな塑性ひずみを議論する上では、多数の転位の平均速度、または1本の転位が長距離を運動する間の平均速度として捉えればよいので、統計力学的なアプローチを可能にする。一般的な熱活性化過程の解析は、このモデルに立脚している場合が多い。

一方,生成または増殖した転位が瞬時に一定の移動距離を 運動する飛行運動の場合,ひずみ速度は以下で与えられる.

$$\dot{\gamma} = \dot{\rho}b\bar{x} \tag{9}$$

この場合,移動距離はある力学的な平衡位置までの距離か,または表面までの距離と考えられ,短時間では一定とみなせる。したがって,ひずみ速度はある瞬間における転位の増殖速度 \dot{p} に支配される。材料の変形を局所的に,あるいは短時間的な視点で捉えれば,塑性変形の素過程としてはこのモデルが現実に近いと考えられる。実際に,第2節の図2で示したように,極めて短時間に転位密度が急激に増加し,発生した転位は直ちにある場所まで移動する挙動が明確に観察されている。また,バルク材に対しても, \dot{p} のの間に導入される転位組織については以下のような結果が得られている(30)。図9は,IF 鋼に対するナノインデンテーションによって形成された(a) 試料表面の圧痕像,それらに対する(b)

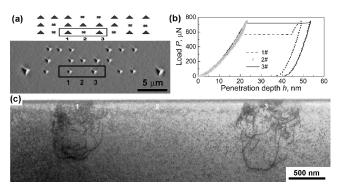


図9 IF 鋼における, (a)ナノインデンテーション試験 後の試料 AFM 像, (b)3 つに場合分けされる荷 重-変位曲線の例,および(c)その転位組織の断面 TEM 像⁽³⁰⁾.

荷重-変位曲線, (c)圧痕直下の転位組織の断面 TEM 像であ る. (a)に示されるように、3×8個の規則的に並んだ場所に 圧入荷重を加えても、場合によっては圧痕が形成されないケ ースが発生する. 例として、最下列の $1\sim3$ に着目すると、 それらに対応する荷重-変位曲線が(b)の $1\sim3$ である.ケー ス2では、(a)において圧痕が全く形成されておらず、それ に対応する(b)の荷重-変位曲線は負荷と除荷の曲線が重な る完全弾性変形を示しており、(c)の TEM 像でも転位は観 察されない. 一方, ケース3は, (b)の荷重-変位挙動によ ると pop-in 直後に除荷が開始されており、したがって(c)に 観察される転位は、ほぼすべてが pop-in 時に導入されたも のと判断される. pop-in 後に塑性変形が進行したケース1 と比較すると、ケース1と3の転位組織は分布範囲や多数 の複雑な転位線が観察される点などにおいて大きな違いはな い. これら3つのケースの比較から, pop-inの瞬間に多数 の転位が発生してある程度の距離までそれぞれ運動し、その 後の変形では徐々に転位組織が発達しながら変形が進行する ものと考察される. すなわち, pop-in の瞬間は式(9)の増 殖支配型の変形が、その後は式(8)の移動度支配型の変形 が進行するものと考えられる.

2つのモデルの関係に議論の余地はあるものの、どちらのモデルも塑性変形の機構を議論する上で非常に重要である。従来は、個々の転位運動を直接的に捉えることは難しく、平均的な取り扱いをせざるを得なかった面があったため、式(8)のモデルに基づく議論が多かったように思われる。これに対して、最近の新しい観察・解析技術は、ミクロンまたはそれ以下の微小スケールにおける挙動に迫ることが可能になり、より精緻な素過程解析が可能になりつつある。従来の知見と先端的な研究アプローチによる新知見とがどう整合するのか、あるいは整合しないのか、固定概念にとらわれずに検証することが必要である。

5. 体心立方結晶構造における転位易動度と力学挙動

体心立方結晶中の 1/2<111>らせん転位は、原子配列の特

異性や転位芯構造によってパイエルス力が大きくなることが指摘されており(31)-(33), 刃状転位に比べて著しく易動度が低いとされる. 実験的には、bcc 単結晶中の変形後の転位組織において、直線的ならせん転位が圧倒的に多いことが観察されており、これが一つの根拠となっている. この挙動は、低温域において bcc 結晶が fcc 結晶よりも降伏応力が高くなること、あるいは降伏応力の温度依存性が大きいことや、CRSS がせん断方向に依存する塑性異方性を示す(Schmid 則の不成立)ことなどの理由として理解されている.

一般に、転位の易動度 \bar{v} と外力 τ の関係は、Johnston-Gilman の理論で取り扱われているように以下の式で表現される $^{(34)}$.

$$\bar{v} \propto \tau^m$$
 (10)

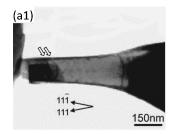
指数mは結晶などによって異なる値であり、半導体やイオン結晶では比較的小さく、金属材料は大きな値となる。式(8)と式(10)より、ひずみ速度 γ と応力 τ の関係は、

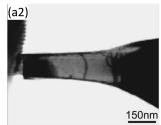
$$\dot{\gamma} \propto \rho b \tau^m \tag{11}$$

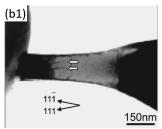
と表現されるので、変形中の転位密度 ρ が一定の条件においては、mが小さい場合はひずみ速度依存性が大きくなり、転位の移動度が降伏応力を支配する。これが、らせん転位の易動度が低いことが、bcc 結晶の降伏応力の温度依存性が高いことの一つの理解である。

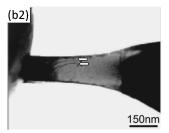
この転位の易動度と応力の関係を,筆者らは Fe 合金単結晶を用いた TEM in-situ マイクロピラー圧縮変形解析によって直接的に捉えた $^{(35)}$.

図10(a), (b)は、TEM in-situ 圧縮試験中の変形の様子を 記録した動画から抽出したスナップショットである. (c)に は、観察と同期して記録された荷重-変位のデータを示して おり、転位の挙動と力学応答の関係を知ることができる. ピ ラーの圧縮軸は〈110〉に平行で、バーガースベクトルとして 取り得る2つの〈111〉方位を紙面に投影した方向を図10(a), (b)中に矢印で示している. 〈111〉バーガースベクトルの方 向から転位の成分を大まかに判断すると、ピラーの圧縮軸に 平行な転位線はらせん成分が支配的であり、垂直な転位線は 刃状転位が支配的である. 図10(a)に示された転位は、その 転位線の方向から刃状成分が支配的と判断される. 図10(a) に示される2つの画像(a1), (a2)は、1/30秒間隔で撮影され たものであり、その間に刃状転位は図中の左端から右に瞬時 に移動していることから,移動速度が極めて高い運動である ことがわかる. この様子が観察された瞬間に対応する力学挙 動は、図10(c)の荷重-変位曲線上の矢印1で示される点で あり、応力が比較的低い変形の前半である. これに対して (b)に示される転位は、転位線が〈111〉にほぼ平行であるこ とから、らせん成分が支配的と判断できる. (a)と同様に動 画から移動速度を検討するため約3秒間隔で撮影された (b1), (b2)を比較すると, (a1), (a2)の10倍近い時間間隔で あるのに対してその間に移動した距離はわずかであり、らせ ん成分が支配的な場合は刃状転位に比べて低速度であること がわかる.この瞬間に対応する力学挙動は、(c)の矢印2で 示される位置であり、(a)の刃状転位の場合よりも応力が高









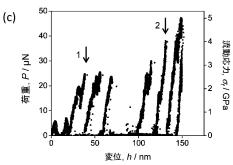


図10 Fe-3 mass % Si 単結晶における TEM *in-situ* 圧縮試験中の動画から抽出した TEM 像. (a) は刃状転位を(b) はらせん転位の運動の様子を表す. (c) は同時に測定された荷重-変位曲線. (a), (b) が観察された条件は矢印 1, 2 にそれぞれ対応する⁽³⁵⁾.

い. これらの結果は、bcc 金属において、らせん転位の易動 度が刃状転位に比べて極端に低いこと、またそれによって流 動応力が高くなることを実測した例である.

また, IF 鋼に対する TEM in-situ 変形解析では, 圧倒的 にらせん転位が多い条件における転位密度と流動応力の関係 を動的に捉えることに成功した(36). 試料は、高さと幅が約 600 nm で厚さが 80 nm 程度のブレード状の形状である. 図 11(a)は、TEM 観察と同時に測定された真応力-真ひずみ曲 線で、再現性を示すために 2 例を示している. (b) \sim (f) は、 TEM その場変形によって記録された動画から抜き出したス ナップショットである. 圧縮軸は水平方向で、図の左側から ダイヤモンドのパンチが試料に荷重を負荷している. (b)に 示されるように、降伏前の転位密度は極端に低い. また, (a)から求められる降伏応力は 1.0 GPa を超えており、バル クの降伏応力よりも桁違いに高い.これは、4節で述べたサ イズ依存性の挙動と一致している. 降伏後, 応力は徐々に低 下する傾向を示す。それと同時に、転位密度も徐々に増加し ていることが観察されている. これら流動応力と転位密度の 関係を以下に考察する. この条件の場合, 図2のケースと は異なり、転位密度の増加はゆるやかであることから短時間

318 最近の研究

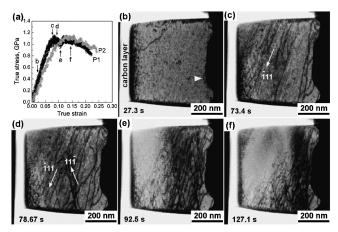


図11 IF 鋼の単結晶における TEM in-situ 圧縮試験中の動画から抽出した TEM 像. (a)は同時に測定された荷重-変位関係から求めた真応力-真ひずみ曲線. (b) \sim (f)はひずみの増加とともに転位密度が増加する様子を表す⁽³⁶⁾.

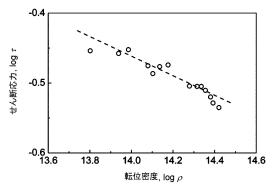


図12 図10の結果から求めた流動応力τと転位密度ρ の関係⁽³⁶⁾.

における転位数は一定と見なすことができ、増殖支配ではなく易動度支配の変形と判断され、マクロな塑性ひずみ速度と転位密度の関係は、式(8)で議論すべきである。転位の易動度と外力の関係は式(10)で与えられるので、塑性変形を担う転位の移動速度 \bar{v} が同一の条件においては、せん断応力 τ と転位密度 ρ の関係は以下に整理される。

$$\log \tau \propto A - \frac{1}{m} \log \rho \tag{12}$$

ここで、A は定数である。IF 鋼の動的観察において求められた流動応力と画像から求めた転位密度の変化を式(12)でフィットしたものが図12である。このプロットから、指数 m 値が約7 と求められた。文献(37)によると、Fe-Si 合金においてせん断応力と刃状転位の移動速度の関係を実験的に求めた結果から得られた m 値は、40程度とされている。これに対して図12の結果は 1/6 程度の低い値である。これは、bcc 中のらせん転位の易動度が刃状転位よりも低いことに起因していると考察され、これまでのらせん転位の易動度に関する理解と整合する。さらに、この応力指数 m の値に関して、以下の考察を行った。式(11)において、転位密度が一

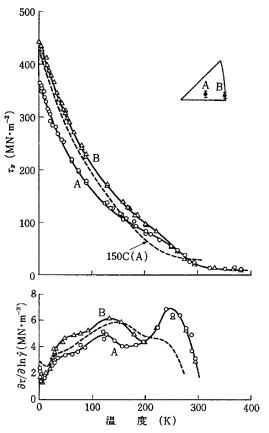


図13 純鉄単結晶における降伏応力とそのひずみ速度 以前性の温度変化⁽³⁸⁾.

定の条件下においては、ひずみ速度と応力の関係を以下の式 に表現できる.

$$\frac{\partial \ln \dot{\gamma}}{\partial \tau} = \frac{m}{\tau} \tag{13}$$

一方、純鉄単結晶の降伏応力およびそのひずみ速度依存性について、図13の結果が示されている⁽³⁸⁾. 室温における降伏応力とそのひずみ速度依存性は、それぞれ20 MPaと3 MPaと読み取ることができる. これを式(13)を用いて m値を求めると、およそ7と算出された. この値は、図11のプロットから得られる値とよく一致しており、興味深い. これらの結果は、転位密度と流動応力の関係を表現した Johnston-Gilman モデルをリアルタイムで実証した初めての例であり、これも新たな観察・解析技術によって転位挙動と力学応答の関係の素過程に迫るものと言えよう.

6. おわりに

ナノスケールにおける力学挙動を直接的に解析する方法であるナノインデンテーションや、転位運動との関係をリアルタイムで捉える TEM in-situ 変形解析の紹介を行った。新しい解析方法により、ナノスケールにおける挙動を詳細に捉えることができるようになり、これまで明確でなかった粒界の転位源としての働きや、粘性運動以外の転位運動が関係す

る変形挙動,さらには、転位の性格と力学応答との関係などに関する新しい知見が得られつつある.塑性現象の機構をさらに詳細に解明するためには、応力と並んで重要な外部状態変数である温度の影響を明確化することが必要であり、室温以下の低温や逆に高温での測定技術の向上が望まれる.冒頭に述べた10⁶ のギャップを乗り越えるためには、新しい知見をもとにした材料の挙動モデルを構築する必要がある.これは、従来の転位論でも完全には乗り越えられなかった壁であるが、新しい実験解析手法などの先進的な取り組みにより、さらなる挑戦を続けていきたい.

本稿を執筆するにあたり、竹内 伸先生(前東京理科大学 長、東京大学名誉教授)に多くのご助言をいただきました。 深く感謝いたします。

文 献

- (1) 大村孝仁, 津崎兼彰:まてりあ, 46(2007), 251-258.
- (2) 大村孝仁: 軽金属, 63(2013), 65-72.
- (3) T. Ohmura, S. Matsuoka, K. Tanaka and T. Yoshida: Thin Solid Films, 385(2001), 198–204.
- (4) W. W. Gerberich, J. C. Nelson, E. T. Lilleodden, P. Anderson and J. T. Wyrobek: Acta. Mater., 44(1996), 3585–3598.
- (5) T. Ohmura, K. Tsuzaki and S. Matsuoka: Philos. Mag. A, **82** (2002), 1903–1910.
- (6) A. A. Zbib and D. F. Bahr: Metall. Mater. Trans., 38A(2007), 2249–2255.
- (7) A. Gouldstone, H.-J. Koh, K.-Y. Zeng, A. E. Giannakopoulos and S. Suresh: Acta Mater. 48(2000), 2277-2295.
- (8) K. L. Johnson: Contact mechanics, Cambridge University Press, Cambridge, UK, (1985), 84–106.
- (9) A. M. Minor, S. A. S. Asif, Z. Shan, E. A. Stach, E. Cyrankowski, T. J. Wyrobek and O. L. Warren: Nat. Mater. 5 (2006), 697–702.
- (10) T. Ohmura, L. Zhang, K. Sekido and K. Tsuzaki: J. Mater. Res., $\bf 27$ (2012), 1742–1749.
- (11) E. O. Hall: Proc. R. Soc., **B64**(1951), 747-753.
- (12) N. J. Petch: J. Iron Steel Inst., 174 (1953), 25-28.
- (13) J. C. M. Li: Trans. AIME, 227 (1963), 239-247.
- (14) J. J. Hauser and B. Chalmers: Acta Matell., 9(1961), 802–818.
- (15) W. E. Carrington and D. McLean: Acta Matell., 13(1965), 493–499.
- (16) Z. Shen, R. H. Wagoner and W. A. T. Clark: Acta Metall., 36 (1988), 3231–3242.
- (17) K. J. Kurzydlowski, R. A. Varin and W. Zielinski: Acta Metall.,

- **32**(1984), 71–78.
- (18) T. C. Lee, I. M. Robertson and H. K. Birnbaum: Met. Trans., 21A (1990), 2437–2447.
- (19) T. Ohmura, K. Tsuzaki and F. Yin: Mater. Trans., 46 (2005), 2026–2029.
- (20) Y. Shibutani and A. Koyama: J. Mater. Res., 19(2004), 183– 188.
- (21) K. Sekido, T. Ohmura, L. Zhang, T. Hara and K. Tsuzaki: Mater. Sci. Eng. A, 530 (2011), 396–401.
- (22) K. Sekido, T. Ohmura, T. Hara and K. Tsuzaki: Mater. Trans., **53**(2012), 907–912.
- (23) S. Takeuchi and T. Suzuki: Strength of Metals and Alloys, eds. P. O. Kettunen, T. K. Lepisto and M. E. Lehtonen, Pergamon Press, Oxford, (1989), p. 161.
- (24) T. Suzuki and S. Takeuchi: Lattice Defects in Ceramics, eds. S. Takeuchi and T. Suzuki, Publication Office of Jpn. J. Appl. Phys., Tokyo, (1989), p. 9.
- (25) S. S. Brenner: J. Appl. Phys., 27 (1956), 1484.
- (26) 竹内 伸:結晶塑性論,内田老鶴圃,東京,(2013),82-83.
- (27) M. D. Uchic, D. M. Dimiduk, J. N. Florando and W. D. Nix: Science, 305 (2004), 986.
- (28) T. Ohmura, K. Tsuzaki, N. Tsuji and N. Kamikawa: J. Mater. Res., 19 (2004), 347–350.
- (29) L. Zhang, T. Ohmura, S. Emura, N. Sekido, F. Yin, X. Min and K. Tsuzaki: J. Mater. Res., 24 (2009), 2917–2923.
- (30) L. Zhang and T. Ohmura: Physical Review Letters, $\mathbf{112}$ (2014), 145504.
- (31) 鈴木秀次: 転位論入門, アグネ, 東京, (1967), 238.
- (32) M. S. Duesbery and V. Vitek: Acta. Mater., 46 (1998), 1481.
- (33) 鈴木敬愛, 竹内 伸:まてりあ, 40(2001), 164-171.
- (34) 加藤雅治:入門転位論,裳華房,東京,(1999),116.
- (35) L. Zhang, T. Ohmura, K. Sekido, T. Hara, K. Nakajima and K. Tsuzaki: Scripta Mater., **67**(2012), 388–391.
- (36) L. Zhang, N. Sekido and T. Ohmura: Mater. Sci. Eng. A, accepted.
- (37) D. F. Stein and J. R. Low: J. Appl. Phys., **31**(1960), 362.
- (38) Y. Aono, E. Kuramoto and K. Kitajima: Rep. Res. Inst. Appl. Mechanics, Kyu-shu Univ., XXIX, (1981), 127.



大村孝仁

1996年 東京大学大学院工学系研究科博士課程修了 科学技術庁金属材料技術研究所入所

2001年 物質·材料研究機構研究員

2002-2003年 カリフォルニア大学バークレー校客員 研究員

2013年- 現職

2014年- 九州大学連係大学院教授

専門分野:ナノインデンテーション技術における評価 手法と応用に従事.

◎鉄鋼材料をはじめとする構造材料の局所力学特性とマクロ特性の関係に関する研究を展開。
