

今振り返ってみて、行間にこめた思い、エピソード

# 転位易動度と脆性―延性遷移挙動\*

Dislocation Mobility and Its Relationship to Brittle-to-ductile Transition

田中將己 Masaki Tanaka 九州大学工学研究院 材料工学部門 准教授



今回から新企画として「私の論文」の掲載がスタートした。 これは鉄と鋼、ISIJ Internationalに掲載された論文をより楽 しく(?)読んで頂けるように、本文中に書き切れなかったこ とや、行間を埋めるような解説、裏話等を執筆者によって紹 介する企画との事である。僭越ながら第1回目の記事として 投稿する機会を頂いたので、本稿では拙著「フェライト鋼へ のNi添加に伴う転位易動度変化と脆性—延性遷移<sup>11</sup>」に関し て、この論文を執筆するに至った「背景の背景」を解説する。

## 2 該当論文の概要

まず該当論文<sup>11</sup>を概説する。この論文では、フェライト鋼 の脆性-延性遷移(brittle-to-ductile transition:BDT)温度 が添加元素によって受ける影響を転位運動の観点から明ら かにする事を目的としている。その中でも、これまで鋼の低 温靭性を向上させることがよく知られているNiに着目した。 まず、Ni添加の効果以外を排除するため、Tiを添加した極低 炭素鋼を用いるとともに、熱処理条件を変えることで、粒径 をほぼ揃えた供試材を用いた。衝撃試験により遷移温度のNi 濃度依存性を測定したところ、これまで報告されている様に Ni添加に伴い遷移温度は低下した。更に、降伏応力の温度依 存性を測定したところ、低温ではNi添加とともに0.2%耐力 が低下し、いわゆる固溶軟化現象が見られた。低温でのフェ ライト中の転位運動はキンク対形成が律速していると考えら れており、歪速度急変試験から活性化体積を求め、このキン ク対形成エネルギーのNi濃度依存性を測定した。その結果、 Ni添加量が増えるに従って、キンク対形成エネルギーは低下 する事が明らかとなった。このことは、Ni添加量が増えると 低温で転位速度が上昇する事を意味しており、先の固溶軟化 現象と良く対応する。更に、転位易動度を変えて破壊靭性値 の温度依存性を転位動力学計算により求めたところ、転位速 度の増加が遷移温度の低下を引き起こすことが示された。即 ち、Ni添加に伴う転位易動度の上昇がNi添加鋼において低 温靭性を向上させるメカニズムである事が示された。

# 3、応力遮蔽効果

当該論文の基本コンセプトは応力遮蔽効果である。Bilby、 Cottrell、Swiden<sup>20</sup>は、亀裂と塑性域を一次元に単純化し、亀 裂を亀裂面上に連続的に分布する転位として表現するいわ ゆるBCSモデルを提案した。このモデルでは、亀裂前方の 転位分布を、亀裂面上の仮想連続転位の相互作用と釣り合 うような転位密度関数とすることで与えた。しかし、このモ デルでは、転位の分布関数は求まるものの、亀裂先端局所応 力状態の変化を示す式を与えないことや、亀裂先端で転位 密度が無限大に発散すると言った問題点があった。なお、後 にThomsonによって与えられた応力遮蔽理論の式を用いて BCS亀裂の局部応力拡大係数を計算すると、その正味の値は 零になる。

RiceとThomson<sup>3)</sup>は、亀裂前方r(転位芯半径)の距離に 仮想的においた転位cを亀裂先端からその前方へ押し出すよ うな力が転位運動に対する抵抗力を超えると、この仮想転位 は実際に発生すると考え、亀裂先端からの転位発生条件を示 した。亀裂先端が原子直径程度の大きさを持つ非常に鋭い亀

\*[今回の対象論文] 前野圭輝,田中將己,吉村信幸,白幡浩幸,潮田浩作,東田賢二:「フェライト鋼へのNi添加に伴う転位易動度の変化と 脆性-延性遷移挙動」,鉄と鋼, Vol.98 (2012), No.12, pp.667-674 (第76回俵論文賞受賞)



Fig.1 An atomically sharp crack is blunted when a dislocation is emitted from the crack tip when the Burgers vector has a normal component to the fracture plane<sup>3)</sup>.

裂から転位が発生すると、Fig.1で示すように、亀裂先端が バーガースベクトル一本分の大きさだけ開口する。この時に 亀裂先端にかかる力を求めたところ、その力は亀裂先端を押 さえ込むように働いており、転位による遮蔽効果の存在を示 唆していた。MajumdarとBurns<sup>4</sup>は、ModeIII亀裂のまわり にラセン転位を置き、亀裂先端局所応力拡大係数を求めたと ころ、そのらせん転位は亀裂先端の応力集中を減ずる働きを 持っていることを導き出した。これらの考えがいわゆる応力 遮蔽効果である。LinとThomson<sup>5)</sup>はこの理論をMode Iおよ びMode II亀裂に拡張し、二次元系で一般的に成り立つ局部 応力拡大係数を遮蔽効果を考慮して導出した。

ここで、この応力遮蔽効果を直感的に示すために、亀裂先 端近傍に転位線方向が紙面に垂直である刃状転位が二つペア で並んでいる時の亀裂周辺の応力場をThomosn potentialを 用いて計算した結果をFig.2に示す<sup>6,7)</sup>。ここで示した応力成 分は亀裂面に垂直な σ<sub>yy</sub>で、外力は全く負荷されていないた め、応力場の発生源は転位の弾性応力のみである。転位芯で は等高線が集中し、応力集中が生じていることはもちろんで あるが、ここで注目すべき点は、それに加え亀裂先端にも応 力集中が生じている事にある。この等高線は2MPa毎に描い たもので、さらに陰影を施した領域が負の値、即ち圧縮場を 示している。この圧縮応力場は、外力による引張り応力集中 を緩和(遮蔽)するため、破壊靭性値は上昇することになる。 この亀裂先端近傍に発生した転位が巨視的破壊靭性へ与える 影響に関する詳細は、「鉄と鋼」に掲載されたレビュー記事を 参照して頂きたい<sup>8)</sup>。



Fig.2 Shielding effect by a couple of dislocations: (a) A couple of edge dislocations in front of a crack. (b) Contour map of stress induced by the dislocations. The stress comportment is normal to the crack plane. Shaded area indicates compressive stress. The unit of the stress is MPa.

### 4、応力遮蔽効果の実証

応力遮蔽効果はその起源が転位によって生じる弾性応力で あり、弾性論を基盤としてまず理論的に予測され、次にその 実証が進められた。東田らは、まず透過性のNaCl単結晶を用 いて、転位による応力遮蔽場を光弾性法により可視化した<sup>6,7)</sup>。 光弾性法は複屈折を利用して結晶内の応力場を可視化するこ とができる手法である。彼らは亀裂を導入したNaCl単結晶 にmode Iの開口が生じるような荷重を加え、除荷後の亀裂 先端近傍の光弾性観察を行った。その結果、mode Iの開口を キャンセルするような応力場が残留している事を透過光の 色によって識別し、遮蔽場の存在を初めて実証した。さらに、 高温で転位を導入し、除荷した後に室温で再度同じ試料に荷 重を負荷する実験も行った。外力負荷にともなう引張応力の 増加にともなって、圧縮の応力を示していた光弾性像は弱く なり、転位による圧縮応力がキャンセルされるところで、光 弾性像は消失する。この際の負荷応力拡大係数を求めること で、転位による遮蔽量を実測した。更に、試料を室温で破断 させ、そのときの破壊靭性値を求めたところその時の破壊靭 性値の上昇量は、先に求めた転位による遮蔽量とほぼ一致し ていた。

これらマクロな視点による実証の後に、メゾスコピックな 解析も行われ、亀裂先端に発生した転位を超高圧電子顕微鏡 法によって直接観察する試みも進められた<sup>912)</sup>。そこでは、亀

裂先端を選択的に薄膜化し、亀裂先端近傍に発生した転位の 三次元構造とともに、転位のバーガースベクトルをその符号 まで含めて詳細に決定している。それらの値から、転位によ る局部応力拡大計数を実測し、発生した転位は亀裂先端を遮 蔽するタイプの転位である事を実証している。 更に近年で は、高分解能電子顕微鏡法を用いた原子オーダーでの弾性歪 解析により<sup>13)</sup>、転位を視野に含む亀裂先端の弾性歪場が実 測され、亀裂先端近傍の弾性歪が確かに転位の弾性応力場に よって生じる圧縮場である事も実験的に示された<sup>14)</sup>。

### ○5、応力遮蔽理論とBDT温度

St.JohnはSi単結晶を用いて、BDT温度(T<sub>BDT</sub>)と歪速度 (*ɛ*)の間には、

 $\dot{\varepsilon} = \varepsilon_0 \exp\left(-\frac{\Delta G_{BDT}}{kT_{BDT}}\right)$ (1)

なる関係がある事を示した。なお、ΔG<sub>BDT</sub>は遷移温度の歪速 度依存性から求まる活性化エネルギー、T<sub>BDT</sub>は遷移温度、k はボツルマン定数、ε₀は係数である。彼は遷移温度と歪速度 のアレニウスプロットを取る事で、その活性化エネルギーを 測定し、AGBDTの値がシリコン中の転位移動の活性化エネル ギー  $(\Delta G_d)$  とほぼ等しいことを示した。これによって、変 形温度上昇に伴って破壊モードが脆性的から延性的に遷移す る挙動を支配しているのは転位の移動である事を示した。こ の論文のポイントはBDT挙動を亀裂先端近傍での弾性応力 場の広がりと転位運動の観点から考えたことである。彼は、 負荷応力拡大係数の増加に伴う亀裂先端近傍の弾性応力集 中場の広がりと、亀裂先端の塑性域(転位速度)の競争を考 えており、転位速度が弾性場の広がりに十分ついて行けるほ ど早くなる温度が遷移温度となると言う考えを示した。この 研究が契機となり、比較的パイエルス応力の高い幾つかの単 結晶を用いて(鉄合金では無いことに注意されたし)、 $\Delta G_{\rm BDT}$ と $\Delta G_{\rm d}$ の比較が行われた。Table  $1^{15-20)}$ にそれらの値を比較 して示すが、両者に良い一致が見られている。このことから、 BDTの発現を制御・律速している素過程は転位運動である と結論づけられる。即ち転位が動き易い結晶では遷移温度が 低く、動き難い結晶では遷移温度が高くなる。

更にTable 1中の単結晶Siの結果に注目してみる。n-type Si は純度の高いIntrinsic SiにPやAsを添加しているものを指す が、Intrinsic Siに比べて $\Delta G_d$ が低い。このことは、PまたはAs 添加により転位易動度が上昇していることを示しており、遷移 温度の低下が期待される。実際にSiにこれら元素を添加した場 合、遷移温度が低下する事が報告されている<sup>21,22)</sup>。転位が動き やすくなることによって、亀裂先端からより多くの転位が放出

Material	∆G <sub>BDT</sub> (eV)	⊿G <sub>d</sub> (eV)	
Intrinsic Si <sup>15)</sup>	2.1	2.2	
n-type Si <sup>15)</sup>	1.6	1.7	
Sapphire <sup>16)</sup>	3.2	3.2	
Intrinsic Ge <sup>17)</sup>	1.54	1.58	
GaAs <sup>18)</sup>	1.3 (+0.8 / -0.4)	$1.1 \pm 0.1$	
Diamond <sup>19)</sup>	3.06 ± 0.25	2.6 ± 0. 5	
Mo <sup>20)</sup>	0.49	0.49	

Table 1  $\Delta G_{BDT}$  values for various materials.

され遮蔽量が多くなるため、より低温でも延性が増すことにな り、結果として遷移温度が低下する23,24)。

鋼には多くの添加元素が含まれており、それぞれの添加元 素が転位易動度に影響を直接与えるならば、それに伴って遷 移温度も変化する事が期待される。BDT挙動の研究は主に 単結晶モデル材料に限定されていたが、近年は遮蔽理論のコ ンセプトを鉄鋼材料へ応用しようという試みが進められてい る<sup>25-29)</sup>。そのような中で当該論文は、数多ある添加元素の中 でまずはNiに着目し、Niが転位易動度そしてBDT挙動に与 える影響について検討したものである。

### **6** おわりに

「私の論文」として、「フェライト鋼へのNi添加に伴う転位 易動度変化と脆性-延性遷移」の「背景の背景」について解説 した。鋼のBDT挙動を理解するには、まずは各種添加元素が 単独に転位移動と結合性に与える影響をそれぞれ理解する必 要がある。本稿では、主にBDT挙動に与える転位易動度の影 響に着目して述べたが、BDT挙動にはGriffith 理論<sup>30)</sup> が示す ように破壊表面エネルギーも考慮する必要がある。さらに組 織の影響まで含めて考えていくと、考慮すべき因子は膨大と なる。しかし、これらを一つ一つ地道に明らかにしていくこ とで鋼のBDT挙動の理解が深まると考えている。近年我々 のグループでは、極低炭素フェライト鋼に及ぼすAl、Mnの 影響<sup>31,32)</sup>や、高窒素オーステナイト鋼に及ぼすCuの影響<sup>33,34)</sup> などについても研究を進めているので、あわせてご笑覧頂け れば幸いである。

### 参考文献

- 1) 前野圭輝, 田中將己, 吉村信幸, 白幡浩幸, 潮田浩作, 東 田賢二:鉄と鋼,98 (2012),667.
- 2) B.A.Bilby, A.H.Cottrell and K.H.Swinden : Proc.Roy. Soc.London, A272 (1963), 304.
- 3) J.R.Rice and R.Thomson : Philos.Mag., 29 (1974), 73.
- 4) B.S.Majumdar and S.J.Burns : Acta Metall., 29 (1981),

579.

- 5) I.H.Lin and R.Thomson: Acta Metall., 34 (1986), 187.
- K.Higashida and N.Narita : JJAP Ser.2, Lattice Defects in Ceramics, (1989), 39.
- 7) N.Narita, K.Higashida, T.Torii and S.Miyagi : Mater. Trans.JIM, 30 (1989), 895.
- 8) 東田賢二, 田中將己: 鉄と鋼, 97 (2011), 195.
- 9) K.Higashida, S.Okazaki, T.Takahashi, N.Narita, T.Morikawa and R.Onodera : Mater.Sci.Eng.A, 234 (1997), 537.
- K.Higashida, N.Narita, M.Tanaka, T.Morikawa, Y.Miura and R.Onodera : Philosophical Magazine A, 82 (2002), 3263.
- M.Tanaka, K.Higashida, K.Kaneko, S.Hata and M.Mitsuhara: Scripta Mater., 59 (2008), 901.
- 12) M.Tanaka and K.Higashida : Mater.Sci.Eng.A, 400-401 (2005), 426.
- M.J.Hÿtch, J.-L.Putaux and J.-M.Pénisson : Nature, 423 (2003), 270.
- D.R.Adhika, M.Tanaka, T.Daio and K.Higashida : Microscopy, In press, doi : 10.1093/jmicro/dfv032.
- 15) J.Samuels and S.G.Roberts : Proc.R.Soc.Lond.A, 421 (1989), 1.
- H.S.Kim and S.Roberts : Journal of the American Ceramic Society, 77 (1994), 3099.
- F.C.Serbena and S.G.Roberts : Acta Metall., 42 (1994), 2505.
- S.Fujita, K.Maeda and S.Hyodo : Philos.Mag.A, 65 (1992), 131.
- V.I.Trefilov, Y.V.Milman and O.N.Grigoriev : Prog. Crystal Growth Charact., 16 (1988), 225.

- P.B.Hirsch, A.S.Booth, M.Ellis and S.G.Roberts : Scripta Mater., 27 (1992), 1723.
- 21) M.Brede and P.Haasen : Acta Metall., 36 (1988), 2003.
- Y.-J.Hong, M.Tanaka and K.Higashida : Mater.Trans., 50, (2009), 2177.
- 23) P.B.Hirsch, S.G.Roberts and J.Samuels : Proc.R.Soc. Lond.A, 421 (1989), 25.
- 24) A.Hartmaier and P.Gumbsch : Philos.Mag.A, 17-18 (2002), 3187.
- 25) T.D.Joseph, M.Tanaka, A.J.Wilkinson and S.G.Roberts: J.Nuc.Mater., 367-370 (2007), 637.
- 26) M.Tanaka, A.J.Wilkinson and S.G.Roberts : J.Nuc. Mater., 378 (2008), 305.
- 27) M.Tanaka, N.Fujimoto and K.Higashida : Mater. Trans., 49 (2008), 58.
- 28) K.Ha, C.Yang and J.Bao : Scripta Metallurgica Et Materialia, 30 (1994), 1065.
- M.Tanaka, S.Takano and K.Higashida : Mater.Trans., 54 (2013), 1624.
- 30) A.A.Griffith : Trans.R.Soc.London Ser.A, 221 (1921), 163.
- 31)田中將己,前野圭輝,吉村信幸,星野学,植森龍治,潮田 浩作,東田賢二:鉄と鋼,100 (2014), 1267.
- 32) M.Tanaka, K.Maeno, K.Higashida, M.Fujikura and K.Ushioda : ISIJ Int., 51 (2011), 999.
- 33) M.Tanaka, T.Onomoto, C.Furusho, T.Tsuchiyama and K.Higashida : ISIJ Int., 54 (2014), 1735.
- 34) M.Tanaka, T.Onomoto, T.Tsuchiyama and K.Higashida : ISIJ Int., 52 (2012), 915.

(2015年9月11日受付)