



陽電子消滅法によって調べた高張力鋼 HT780 の繰返し軟化

吉田 政司*・浅野 鉄夫*²・藤城 泰文*²・白井 泰治*³

Cyclic Softening of the High-strength Steel HT780 Studied by Positron Annihilation Spectroscopy

Masashi YOSHIDA, Tetsuo ASANO, Yasufumi FUJISHIRO and Yasuharu SHIRAI

Synopsis : Cyclic softening mechanism of the high strength steel HT780 has been investigated using transmission electron microscopy (TEM) and positron annihilation lifetime spectroscopy. It has been found by the TEM observation that a high density of dislocation exists in the specimen before fatigue test, which moves from inside to the boundaries of ferrite grains in the rapid softening stage. The positron lifetime is found to increase rapidly in the rapid softening stage indicating that the positron lifetime of the mobile dislocation created by the fatigue test is longer than that of the dislocation which exists before the fatigue test. The positron lifetime becomes nearly constant as softening saturates. The positron lifetime at the saturation is longer as the strain amplitude is larger, showing that the density of the mobile dislocation depends on the strain amplitude while is kept constant during the cyclic deformation with a given strain amplitude.

Key words: TEM; positron lifetime; high strength steel; fatigue; cyclic deformation; softening; dislocation.

1. 緒言

金属材料に応力を繰返し負荷すると、負荷応力が静的な破壊応力よりも小さい場合であってもその材料が破壊してしまうことは良く知られており、このような繰返し応力下における材料の破壊は疲労破壊とよばれる。材料に繰返し変形を与えると、変形を与えるのに必要な応力は、ある場合には増加し（繰返し硬化）、ある場合には減少する（繰返し軟化）¹⁻³⁾。塑性変形は転位の運動に関係づけられるため、このような繰返し硬化、あるいは繰返し軟化現象の本質をさぐるためには、塑性変形に伴う転位の運動を明らかにしなければならない。

透過型電子顕微鏡(TEM)が開発され、金属の内部組織を直接観察することが可能になって以来、疲労現象の解明のため、繰返し変形を受けた種々の材料の転位組織の観察が、多くの研究者によっておこなわれてきた。銅や鉄単結晶では、繰返し変形を与えると、転位が生成、増殖し、やがて転位が絡み合ってセル構造を形成し、それに伴って硬化することがTEM観察によって明らかにされている^{1,4)}。このようにTEMは転位組織の観察に有効であるが、TEM観察をおこなうためには試料を薄膜にする必要があり、その過程で転位構造が変化する可能性があること、あるいは、TEMでは局所的な情報しか得られないなどの欠点がある。一方で、陽電子消滅法ではTEM観察の場合のような薄膜

試料の作製が不要で、バルク試料での測定が可能であり、また、試料全体の平均的な転位密度変化をとらえられる長所がある。また、転位の運動には点欠陥が重要な働きをもつことが指摘されているが⁵⁾、陽電子消滅法では、TEMでは不可能な、原子サイズの点欠陥の検出が行えるなど、TEMと相補的な情報が得られる。そのため、近年、塑性変形に伴う陽電子寿命変化の研究がおこなわれている⁶⁻¹⁰⁾。AlexopoulosとByrne⁶⁾およびWiderたち⁷⁾は、焼鈍した銅に繰返し変形を与え、硬化させることによって、陽電子寿命が長くなり、硬化の過程で、欠陥密度が増加することを指摘した。Parkたちは鉄単結晶に塑性変形を与えることによって142 psと165 psの2種類の陽電子寿命成分があらわれることを示し、それぞれ、らせん転位、および刃状転位にトラップされた陽電子寿命成分に同定している⁸⁾。一方、Hidargoたちは純鉄に塑性変形を与えた場合には寿命145 psの一成分のみが観測され、らせん転位と刃状転位の識別はできないと報告している⁹⁾。Barbieriたちは実用鋼であるSUS316に繰返し変形を与えたときの陽電子寿命変化を測定している¹⁰⁾。彼らは、繰返し変形によって初期にSUS316の陽電子寿命が急激に増加するが、寿命の40%程度で飽和がみられること、応力値が大きいほど、陽電子寿命の飽和値が大きいことを報告している。計算物理学の分野からの研究としては、Hakkinenたち¹¹⁾、およびKamimuraたち¹²⁾が分子動力学シミュレーションにより、

平成16年12月2日受付 平成17年1月18日受理 (Received on Dec 2, 2004; Accepted on Jan. 18, 2005)

* 宇部工業高等専門学校機械工学科 (Ube National College of Technology, 2-14-1 Tokiwadai Ube 755-8555)

* 2 住友金属テクノロジー (株) (Sumitomo Metal Technology Inc.)

* 3 大阪大学大学院工学研究科 (Graduate School of Engineering, Osaka University)

Al, Cu, およびFe単結晶中の転位の原子構造を求め、転位での陽電子寿命を計算している。

焼なまして欠陥密度を下げた、単一組織の金属結晶が繰返し硬化をおこすのに対し、複合組織をもつ高張力鋼は、一般に、顕著な繰返し軟化が起きることが知られている^{2,13)}。この軟化メカニズムを調べることは、実用的な観点からも重要であるが、組織が複雑な高張力鋼の軟化のメカニズムの陽電子消滅法による研究は、まだ、あまりおこなわれていない。LynnとByrneは熱処理を変えたAISI4340鋼の、疲労に伴う陽電子寿命変化を測定し、繰返し硬化が起きる場合には陽電子寿命が増加し、繰返し軟化が起きる場合には陽電子寿命が減少することを報告している¹⁴⁾。本研究では高張力鋼の軟化メカニズムを調べる目的で、高張力鋼HT780疲労試験片のTEM観察および陽電子寿命変化の測定をおこなった。

2. 実験方法

本研究で用いた高張力鋼HT780の化学組成をTable 1に示す。HT780の熱処理条件は、900°Cで1時間、保持した後、水焼入れし、その後、640°Cで1時間、焼戻しをおこなった。

この材料から、試験部の寸法が10φ×20hの丸棒試験片を作製し、機械加工後、600°Cで1時間、ひずみとり焼鈍をおこなってから、表面の酸化膜を1000番エメリー紙で除去し、最大荷重10トンの電気油圧サーボ疲労試験機島津サーボパルサーEHF-ED10-20Lを用いて、全ひずみ振幅0.7%または1.2%、ひずみ速度0.4%/秒の三角波形で、ひずみ制御完全引張圧縮試験をおこなった。破断試験片、およびいくつかの途中止め試験片を作製し、各試験片の中央部から、放電加工により10×10×1mm³の試験片を2枚、切り出し、バフ研磨をおこなった後、サンドイッチ法による陽電子寿命測定をおこなった。

陽電子線源は厚さ20ミクロンのカプトン樹脂に封入された1.8MBqの²²Na密封線源を使用し、ガンマ線の検出は、厚さ1インチのBaF₂シンチレーターを用い、光電子増倍管は浜松フォトリクスH3360を使用した。測定系の時間分解能は230ps (FWHM)であった。それぞれの試料について、陽電子消滅事象を1×10⁶回、積算し、測定された陽電子寿命スペクトルを、PATFITプログラム¹⁵⁾で解析をおこない、陽電子寿命を求めた。陽電子寿命測定法、およびデータ解析法については文献¹⁶⁾に詳細な解説がある。

陽電子線源内で消滅する陽電子寿命成分を求めるため、焼なました純鉄試験片の陽電子寿命測定をおこない、2成分解析をおこなった。その結果、105ps成分(強度78%)と375ps成分(強度22%)が得られた。105psは欠陥のない鉄の陽電子寿命^{8,9,12,17)}と一致している。以下の解析では、線源(NaClおよび密封用樹脂)の寿命成分として、寿命

Table 1. Chemical composition of HT80 (wt%).

Element	C	Si	Mn	P	S	Cu	Cr	Ni
Composition	0.13	0.13	0.97	0.009	0.003	0.02	0.73	0.03

Element	Mo	V	Ti	Al	N	B
Composition	0.24	0.04	0.018	0.028	0.0025	0.0010

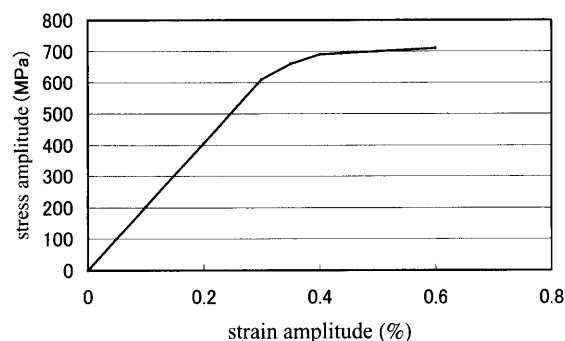


Fig. 1. Stress-strain curve for HT780.

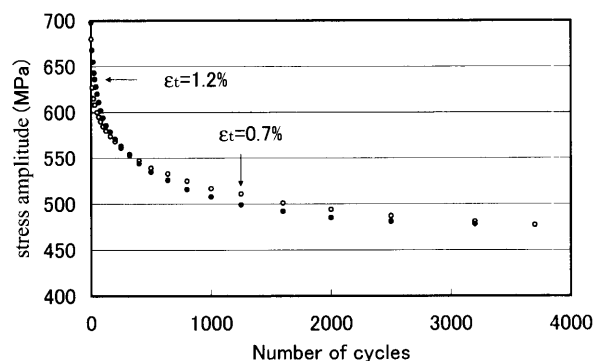


Fig. 2. Change of maximum stress amplitude for cyclic tension-compression test for HT780 with total strain amplitudes 1.2% (●) and 0.7% (○).

375ps, 強度22%を固定して解析をおこなった。

陽電子寿命測定後、引張試験片から薄膜を作成し、TEMによる転位組織の観察をおこなった。TEMは、加速電圧200kVの日本電子JT200CVを用いておこなった。

3. 実験結果

3.1 疲労試験

Fig. 1に疲労試験前のHT780の応力-ひずみ曲線を示す。応力-ひずみ曲線は600MPa付近で折れ曲がりを見せ、その後、ゆるやかに増加する。Fig. 2にHT780の、全ひずみ振幅0.7%、および1.2%のひずみ制御完全引張圧縮試験をおこなったときの応力振幅の変化を繰返し数に対して示す。応力振幅は、全ひずみ振幅0.7%、および1.2%のいずれの場合も、疲労初期に急激に低下し、その後、変化がゆるやかになり、ともに、応力値470MPa付近に漸近する傾向がみられた。全ひずみ振幅1.2%では繰返し数が3700回で破断した。

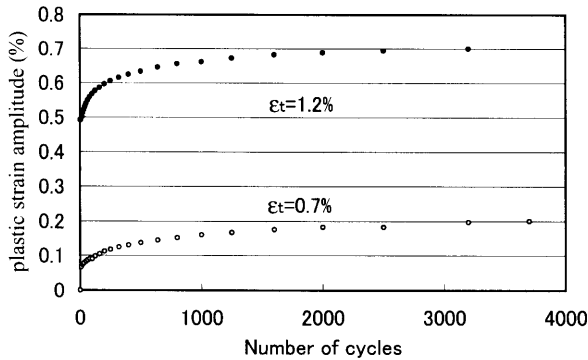


Fig. 3. Change of plastic strain amplitude during tension-compression test for HT780 with total strain amplitudes 1.2% (●) and 0.7% (○).

Fig. 3には全ひずみ振幅0.7%および1.2%の引張圧縮試験中の塑性ひずみ振幅の変化を示す。全ひずみ振幅1.2%のときの塑性ひずみ振幅は、繰返し初期は0.5%程度であったのが、繰返しとともに増加し（弾性ひずみ振幅が減少し）、0.7%程度で、ほぼ一定となる。全ひずみ振幅0.7%の場合は、塑性ひずみ振幅は、繰返しとともに増加し、ほぼ0.2%で一定になる。全ひずみ振幅から塑性ひずみ振幅を引いた弾性ひずみ振幅は、いずれの場合も、変化が飽和した後では、ほぼ0.5%となっている。

3・2 陽電子寿命測定結果

HT780引張圧縮試験片の陽電子寿命測定をおこない、平均陽電子寿命を求めた。結果をFig. 4に示す。疲労試験前の陽電子寿命は122 psである。全ひずみ振幅1.2%で疲労試験をおこなった試験片では、陽電子寿命は、繰返し数370回（損傷率 $N/N_f = 10\%$ ）までは急激に増加し、最大値152 psとなり、その後、繰返しにともなって147 psまで、ゆるやかに減少する。一方、全ひずみ振幅0.7%では、疲労の初期に、陽電子寿命は、134 psまで増加し、その後、131 psまで減少する。陽電子寿命値の統計誤差は1 ps以下であり、これらの寿命値の差は有意な値である。今回の試験では、別々の疲労試験片を用いて陽電子寿命測定をおこなっているので、試験片によるばらつきも考えられるが、陽電子寿命が疲労初期に急激に増加した後、ゆるやかに減少する傾向は確認できる。なお、寿命成分を2成分以上にした解析も試みたが、その場合には有意な解析結果は得られなかった。

3・3 TEM観察

Fig. 5に全ひずみ振幅1.2%で疲労試験をおこなったときの、損傷率0%、10%および100%のHT780疲労試験片のTEM写真を示す。損傷率0%の試料では、転位が密集した領域と、転位が、比較的、疎な領域があり、また、0.1 μm 程度の大きさの微細析出物がみられる。損傷率が10%の試料では、フェライト粒内の転位が、フェライト粒界にはきだされ、転位が束状に集積した領域が形成される。損傷率100%では、フェライト粒内からの転位のはきだしがさ

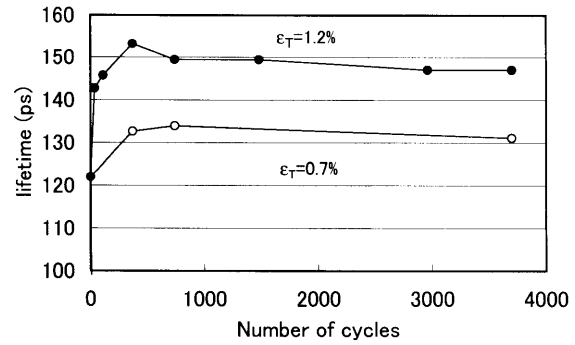


Fig. 4. Change of positron annihilation lifetime during tension-compression test for HT780 with strain amplitudes of 1.2% (●) and 0.7% (○). ▲ denotes positron lifetime of the specimen before fatigue test. The error bar is the same size as the marks.

らに進み、転位の束状に集積した粒界が、よりシャープになる傾向がみられる。

4. 考察

前章で、HT780は、疲労初期に急激に軟化すること、および軟化に伴って、転位分布が変化し、セル構造が造られることが示された。類似した繰返し軟化現象と転位分布の変化がThielenたち²⁾によって、4140鋼でも観測されている。彼らは、4140鋼の繰返し軟化が、固着雰囲気中に固定された転位が、ピン止めをはずれて、可動転位になることによってもたらされると考えている²⁾。

HT780の陽電子寿命は、疲労試験前には122 psであり、疲労初期の急激な軟化に伴って、急激に増加することが示された。ここで示されている陽電子寿命は、疲労試験に伴って導入される欠陥に捕獲されて消滅する陽電子と、疲労試験前に既に導入されている欠陥、または鉄完全格子で消滅する陽電子の寿命の平均と考えられる。

完全格子中での陽電子の消滅と欠陥による陽電子捕獲とは競合過程となる。陽電子の欠陥への捕獲速度を κ とすると κ は欠陥濃度 C_d に依存し、 $\kappa = \mu \cdot C_d$ と表される⁸⁾。 μ は比捕獲速度とよばれる定数である。一方、バルク中に拡がった状態での陽電子消滅速度 λ_B は寿命 τ_B の逆数で与えられる。欠陥に捕獲されて消滅する割合は $\kappa/(\kappa + \lambda_B)$ 、バルク状態で消滅する割合は $\lambda_B/(\kappa + \lambda_B)$ である。欠陥に捕獲された陽電子は欠陥固有の陽電子寿命 $\tau_d = 1/\lambda_d$ で消滅する。ただし λ_d は欠陥での陽電子消滅速度である⁸⁾。複数の種類の陽電子捕獲欠陥が存在する場合は、それぞれの欠陥への陽電子捕獲と各欠陥に固有の寿命での陽電子消滅を考えなければならない。

鉄の完全格子の陽電子寿命 τ_B は約105 psであり^{8,9,12,17)}、塑性変形をあたえたときに生成される欠陥に捕獲されて消滅する陽電子の寿命 τ_d はPark⁸⁾の報告では142 psと165 psの2種類、Hidargo⁹⁾の報告では145 psである。今回測定された、全ひずみ振幅1.2%の疲労試験をおこなったHT80の陽電子寿命は約152 psであり、これらの値と、ほぼ一致し

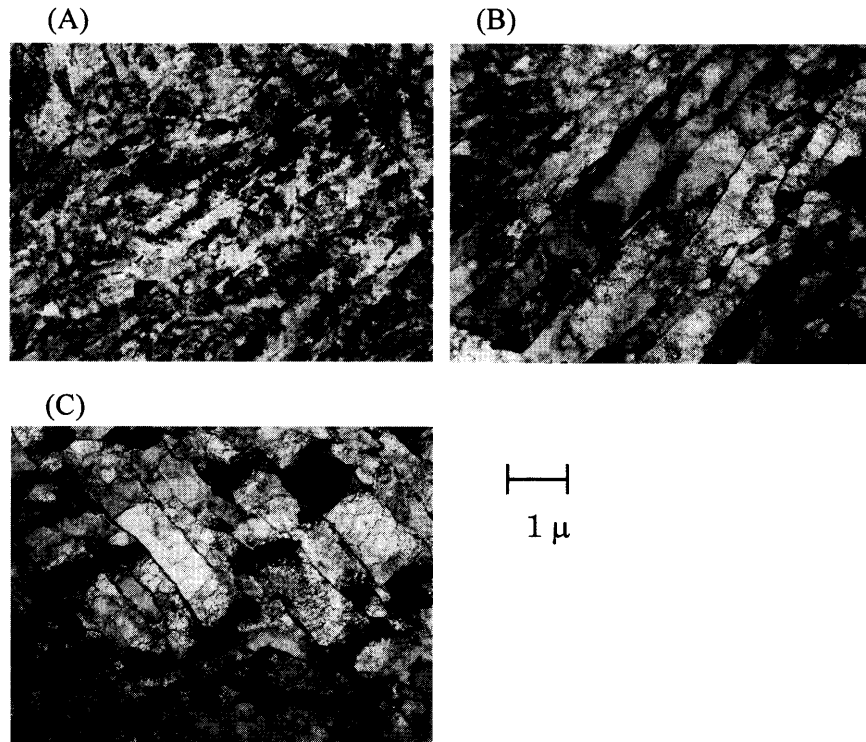


Fig. 5. (A) TEM image of HT780 before fatigue test. (B) TEM image of HT780 fatigue specimen ($N/N_f=10\%$) with strain amplitude 1.2%. (C) TEM image of HT780 fatigue specimen ($N/N_f=100\%$) with strain amplitude 1.2%.

ている。疲労試験前の陽電子寿命は122psであり、これは鉄の完全格子の陽電子寿命よりも長い。TEM観察によって示されているように、疲労試験前にも高密度の転位が導入されていることから、この陽電子寿命は、固着転位に付随した欠陥に捕獲されて消滅する陽電子寿命であると考えられる。

全ひずみ振幅0.7%の疲労試験をおこなった場合の陽電子寿命は約134psであり、これは疲労試験前の陽電子寿命よりも長い。全ひずみ振幅1.2%の疲労試験をおこなった場合の陽電子寿命より短い。全ひずみ振幅が0.7%の場合と1.2%の場合で、応力振幅は、疲労初期を除いて、ともに約470MPaであることから、変形に寄与している転位は同種の転位であり、この転位に付随した欠陥の陽電子消滅寿命は、両者で同じと考えられる。従って、全ひずみ振幅のちがひによる平均陽電子寿命の違いは欠陥密度の違いを反映していると考えられる。すなわち、全ひずみ振幅が0.7%の場合には、可動転位密度が低いために、固着転位に付随した短寿命の陽電子捕獲欠陥で消滅する陽電子の割合が大きいので、平均陽電子寿命が短いと考えられる。今回の測定結果は、固着転位に付随した陽電子捕獲欠陥と可動転位に付随した陽電子捕獲欠陥の2種類の欠陥を考えることによって説明できる。

陽電子寿命は、ひずみ幅が1.2%のときは、繰返し数370回（疲労寿命の10%）で最大値152psをもち、その後は、繰返しとともに、ゆるやかに減少している。ひずみ幅が0.7%の場合も、陽電子寿命値は133psまで増加した後は、

ゆるやかに減少する傾向が見られた。このことは、陽電子寿命が塑性ひずみ振幅 $|\Delta\epsilon_p|$ に依存するが、累積塑性ひずみ振幅 $\Sigma|\Delta\epsilon_p|$ には依存しないことを示している。全ひずみ振幅0.7%で $N=3700$ のときの累積塑性ひずみ振幅は $\Sigma|\Delta\epsilon_p|=670$ であり、これは全ひずみ振幅1.2%の変形を1000回繰り返したときの累積塑性ひずみ振幅に、ほぼ等しいが、前者の陽電子寿命は約130psで、後者のそれは約150psである。

変形を与えるために必要な転位密度が塑性ひずみ振幅によって決まり、急激な初期の軟化の後には、繰返しを続けても陽電子寿命が増加せず、むしろ少し減少することは、塑性ひずみ振幅が一定の繰返し変形では、同じ可動転位のみが運動するため、可動転位密度が増加せず、定常状態が実現していることを示している。この定常状態は、WattとHam¹⁸⁾が提案した転位のシャトルモデルでよく説明できる。すなわち、塑性変形を与えることによって、転位のうちの一部が可動転位となり、一定の応力下で、壁（転位が密集して動けなくなった束）の間をいったりきたりする。可動転位の密度は塑性ひずみ振幅の大きさと対応する。可動転位を動かすために必要な応力はPiquerasたち¹⁹⁾が指摘したような、転位が空孔列をひきずるための摩擦力と、ロングレンジの内部応力を打ち破るために必要な応力で決まり、その値は、HT780では、Fig. 2から、470MPa程度である。これは、複雑にからみあった転位の束における転位の運動に必要な力ではなく、転位密度の低い、セル内を運動する転位がうける応力と考えられる。

全ひずみ振幅一定の疲労試験では、陽電子寿命は、初期に急激に増加したあと、ゆるやかに減少する傾向がみられた。このことは、疲労初期に、塑性変形に必要な可動転位が作られたあと、余分の転位が再結合によって消滅していくために、転位密度が減少すると考えられる。

今回の研究で、TEM観察では、疲労試験による転位分布の変化が観測できたが、転位密度は、疲労試験前後で、顕著な変化は見られず、可動転位と固着転位の区別は、TEM観察では困難であった。一方、陽電子寿命測定では、疲労試験前の陽電子寿命は122 psであり、疲労試験によって、全ひずみ振幅が1.2%の場合に約150 psに、全ひずみ振幅が0.7%の場合に130 psに変化することが明らかになり、この陽電子寿命の変化は、可動転位密度の変化を反映していると考えられ、陽電子寿命測定では可動転位と固着転位の識別が可能であると考えられる。このような陽電子の消滅挙動の違いをもたらし可動転位と固着転位の原子レベルでの構造の違いが何であるかは、今後の課題である。

5. 結論

TEM観察、および陽電子寿命測定により、高張力鋼HT780の繰返し軟化のメカニズムを調べた。TEM観察の結果、HT780は、疲労試験前でも転位が高密度に導入されており、疲労にともなって、転位がフェライト粒内からはきだされ、粒界に集まり、束状構造をつくることが観測できた。陽電子寿命は、初期の急激な軟化過程で急激に増大するが、軟化がゆるやかになるにつれて、逆に、ゆるやかに減少することがわかった。また、急激な軟化後の陽電子寿命値は、塑性ひずみ振幅に依存し、塑性ひずみ振幅が大きいほど、陽電子寿命が長いことが示された。陽電子寿命

変化は、繰返し軟化過程で生成される可動転位密度の増加によるものと考えられ、陽電子消滅法によって可動転位と固着転位の区別が可能であることが示された。可動転位密度は、塑性ひずみ振幅が大きいほど大きいこと、一方、累積塑性ひずみ振幅には依存しないことが明らかになった。

文 献

- 1) J.C.Grosskreutz: *Phys. Status Solidi (b)*, **47** (1971), 11.
- 2) P.N.Thielen, M.E.Fine and R.A.Fournelle: *Acta Metall.*, **24** (1976), 1.
- 3) A.Abel and H.Muir: *Acta Metall.*, **21** (1973), 93.
- 4) H.Mughrabi, K.Herz and X.Stark: *Acta Metall.*, **24** (1976), 659.
- 5) P.O.Kettunen, T.Lepisto, G.Kostorz and G.Goltz: *Acta Metall.*, **29** (1981), 969.
- 6) Alexopoulos and Byrne: *Metall. Trans A*, **9A** (1978), 1829.
- 7) T.Wider, S.Hansen, U.Holzwarth and K.Maier: *Phys. Rev.*, **B57** (1998), 5126.
- 8) Y.K.Park, J.T.Waber, M.Meshii, C.L. Snead, Jr. and C.G.Park: *Phys. Rev.*, **B34** (1986), 823.
- 9) C.Hidalgo, G.Gonzalez-Doncel, S.Linderöth and J.S.Juan: *Phys. Rev.*, **B45** (1992), 7017.
- 10) A.Barbieri, S.Hansen-Ilzhofer, A.Ilzhofer and U.Holzwarth: *Appl. Phys. Lett.*, **77** (2000), 1911.
- 11) H.Hakkinen, S.Makinen and M.Manninen: *Phys. Rev.*, **B41** (1990), 12441.
- 12) Y.Kamimura, T.Tsutsumi and E.Kuramoto: *Phys. Rev.*, **B52** (1995), 879.
- 13) T.Nishijima, S.Matsuoka, E.Takeuchi, M.Yuyama and K.Kimura: *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng.*, **A435** (1984), 1011.
- 14) K.G.Lynn and J.B.Byrne: *Metall. Trans. A*, **7A** (1976), 604.
- 15) P.Kirkegaard, N.J.Pedersen and M.Eldrup: PATFIT-88: A Data-Processing System for Positron Annihilation Spectra on Mainframe and Personal Computers RISO-M-2740, Riso National Laboratory, Denmark, (1989).
- 16) Y.Shirai, *Materia Jpn.*, **37** (1998), 61.
- 17) Y.Shirai, H.E.Schaefer and A.Seeger: Positron Annihilation, ed. by L.Dorikens-Vanpraet *et al.*, World Scientific, Singapore, (1989), 419.
- 18) D.F.Watt and R.K.Ham: *Nature*, **13** (1966), 734.
- 19) J.Piqueras, J.C.Grosskreutz and W.Frank: *Phys. Status Solidi*, **11** (1972), 567.