

平成 30 年 4 月 13 日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K14412

研究課題名(和文) マイクロピラー圧縮試験を利用した異相界面強度の実験的測定法の確立

研究課題名(英文) Trial measurement of interfacial strength in multi-phase materials using micropillar compression tests

研究代表者

高田 尚記 (Takata, Naoki)

名古屋大学・工学研究科・准教授

研究者番号：70432523

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、金属(アルミニウム)の単結晶マイクロピラー圧縮試験によって測定される強度の試験片寸法及び形状の依存性を系統的に調査した。アルミニウム単結晶マイクロピラーは、直径1～10 μm の範囲において強度の試験片寸法依存性を示すことを見出した。円柱状の単結晶マイクロピラーを用いた強度評価には、試験片上部直径と下部直径の比が0.5以上の試験片形状に作製する必要がある。また、金属/セラミックス複合材料からマイクロピラーを作製した。金属/セラミックス二相のマイクロピラーは同じ応力下において大変形を示した。この応力が、異相界面の強度もしくは界面近傍の局所的な変形抵抗に対応すると推察される。

研究成果の概要(英文)：We have examined the compression response of single-crystal cylindrical micropillars with different diameters (approximately ranging from 1 to 10 micrometers) and shape parameters prepared on the sample surface of pure aluminum (Al) sheets. The compression tests for micropillars with various sizes demonstrated the flow stress of micropillars increases with decreasing pillar diameter. The compression response of micropillars with different d_1/d_2 (ratio of top diameter (d_1) to bottom diameter (d_2) of cylindrical micropillars) revealed higher d_1/d_2 than 0.5 is required for precisely measuring their strength. In order to evaluate the interfacial strength between metal and ceramics, the two-phase micropillars were prepared from Co/WC composites. These micropillars exhibit the strain burst at a fixed stress level. The measured stress level would correspond to the interfacial strength (stress level required for localized deformation in the vicinity of the interface).

研究分野：材料強度学

キーワード：マイクロピラー 強度 変形 アルミニウム 複合材料

1. 研究開始当初の背景

マイクロピラー圧縮試験は、集束イオンビーム (Focused Ion Beam: FIB) 加工により観察試料の特定箇所から大きさ数 μm ~ 数 100 nm の圧縮試験片 (マイクロピラー) を作製し、直径 10 μm 以上の平板型圧子を装着したナノインデントを用いた圧縮試験により、微小領域の機械的性質を調べる手法である。

マイクロピラー圧縮試験の有用性は走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope: SEM) 観察用試料の中の微細かつ特定の領域から作製した試験片の応力-ひずみ曲線を比較的簡便に取得できることにある。例えば、鉄鋼材料において DR (Dual Phase) 鋼 (フェライト+マルテンサイト) に代表される高強度二相鋼板は広く知られているが、本手法は複相組織内部の構成相そのものの機械的性質を実験的に調査可能である。また、単結晶だけでなく単一粒界を含んだ双結晶マイクロピラーの作製は多結晶中の強度・変形に及ぼす結晶粒界の影響を直接的に調べることも可能である。たがって、もし多結晶及び多相体から作製した単一の界面を含むマイクロピラーの圧縮試験が出来れば、その界面強度の実験的測定だけでなく変形に及ぼす界面の役割を直接調べることが可能となると期待される。

一般に、試験片直径数 μm のマイクロピラーの強度は試験片寸法や試験片形状の影響を受ける。しかし、本研究で対象としたアルミニウムの強度の試験片寸法依存性に関する実験はほとんどない。また、マイクロピラーの作製は試験片上方向からイオン加工されるため、試験片が台形型の形状になるのは不可避である。しかし、強度に及ぼす試験片形状の影響を検討した例はない。

2. 研究の目的

本研究では、先ず予備実験として代表的な fcc 金属である $\alpha\text{-Al}$ 単結晶マイクロピラーの強度に及ぼす寸法及び試験片形状の影響を調べた。また、金属/セラミックス異相界面を含む複合材料からマイクロピラーを作製し、異相界面強度測定の可能性について検討した。

3. 研究の方法

高純度アルミニウム (純度 99.99%, 4N) をアルミナ製タンマン管に入れ、高周波誘導炉を用いてアルゴン雰囲気下 (0.02 MPa) で炉内温度を 800°C まで昇温させた後、400°C になるまで炉冷、その後空冷させてインゴットを溶製した。作製したインゴットに冷間圧延 (54%) を施し板状にした後、焼鈍 (300°C, 1 h) を施した。その試料の平均結晶粒径は 623 μm である。作製した試料に SiC エメリー紙 (#800, #1200, #2400) による粗研磨を施した後、コロイダルシリカにより鏡面仕上げを施した。さらに、10%過塩素酸-エタノール混合溶液を用いて電解研磨 (35 V, 20 s) を施した。

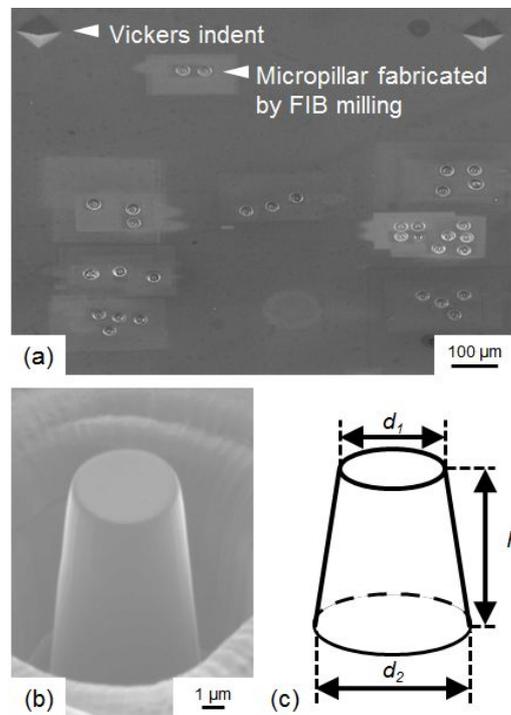


図 1 (a) 試料表面上に作製したマイクロピラーと (b) 典型的な SIM 像 及び (c) 作製したマイクロピラーの模式図。

この供試材表面に微小硬度計 (FM-700e, 株式会社フューチャテック製) を用いてビッカース圧痕を導入し正方形 1000 μm × 1000 μm の領域を複数用意した。なお、本研究で用いた純アルミニウムのビッカース硬さは 14 HV であった。このビッカース圧痕で囲まれた領域 1000 μm × 1000 μm で電子線後方散乱回折 (Electron Back-Scattering Diffraction: EBSD) 法による結晶方位解析を行った。解析には電界放射型走査電子顕微鏡 (JSM-7001FA, 株式会社日本電子製) を用い、加速電圧 20 kV, Step size 5 μm の条件で測定を行った。また試料の一部からツインジェット電解研磨装置を用いて透過型電子顕微鏡 (TEM) 薄膜試料を作製し、JEM-2100Plus (株式会社日本電子製) を用いて試料内部の転位下部組織の観察を行った。また金属/セラミックス複合材料として Co/WC 複合材料を供試材として用い、その試料表面を同様に機械研磨により鏡面仕上げを施した。その試料から、同様に直径約 3 μm の円柱状マイクロピラーを作製した。

マイクロピラー圧縮試験片の作製には集束イオンビーム加工装置 (JEM-9320FIB, 株式会社日本電子製) を用いた。加速電圧 30 kV, エミッション電流 $I_e = 2.0 \mu\text{A}$ にて、加工初期の粗削り工程ではプローブ電流 $I_p = 5000 \text{ pA}$ および $I_p = 1000 \text{ pA}$, 仕上げ工程では $I_p = 500 \text{ pA}$ および $I_p = 300 \text{ pA}$ とした。Dose 量を 3~18 $\text{nC}/(\mu\text{m}^2)$ で変化させて試験片高さおよび加工時間を調整した。作製したマイクロピラーの観察には $I_p = 50 \text{ pA}$ を使用した。供試材は $\alpha\text{-Al}$ の多結晶体であるが、全て単一の結晶粒内から作製することで内部に粒界を含まない $\alpha\text{-Al}$ 単結晶マイクロピラーとなる。図 1 に

(a)供試材表面に複数作製した α -Al 単結晶マイクロピラーの SEM 像, (b)代表的な単結晶マイクロピラーの SIM (Scanning Ion Microscope) 像, (c)マイクロピラーの直径と高さ測定の模式図を示す. 図 1(a)で隅に観察される四角錐型の圧痕はピッカース硬度計により導入されたピッカース圧痕であり, マイクロピラー作製時の目印となる. 本研究で作製した円柱状マイクロピラー (図 1(b)) の直径 d は, 試験片上部直径 d_1 と下部直径 d_2 の平均値とした (図 1(c)). h は試験片高さである. d_1, d_2, h は, マイクロピラーの SIM 像 (図 1(b)) を用いて測定した.

圧縮試験には直径 $20 \mu\text{m}$ の平面圧子が装着された荷重制御型ダイナミック超微小硬度計 (DUH-211S, 株式会社島津製作所製) を用いた. 荷重負荷速度は $5.0 \times 10^{-3} \text{ mN/s}$ と設定し, 試験力レンジは試験片直径 d が約 $10 \mu\text{m}$ の時は 19.61 mN , また約 $10 \mu\text{m}$ 以下の時は 1.96 mN に設定した. なお, 試験片の初期ひずみ速度は約 $5.0 \times 10^{-4} /\text{s}$ である. すべての圧縮試験は室温にて実施した. 得られた荷重-変位曲線から, 試験片直径 d および高さ h を用いて応力-ひずみ曲線を作成した. 変形後のマイクロピラーの観察には電界放射型走査電子顕微鏡 (JSM-7001FA, 株式会社日本電子製) を用い, SEM 像から活動すべり面およびすべり方向の同定を行った.

4. 研究成果

図 2 に圧縮方向 $\langle 3 \ 13 \ 21 \rangle$ の圧縮試験から得られた α -Al 単結晶マイクロピラーの公称応力-公称ひずみ曲線を試験片直径 d ごとに示す. 黒塗りの逆三角形で示した応力は各マイクロピラーがすべり変形を開始したと考えられる応力 (Initial slip stress σ_i) である. 試験片直径 d が比較的小さい場合 ($d = 1.2 \mu\text{m}$), 試験片は応力約 160 MPa で降伏し, その後急激なひずみ増加 (Strain burst) が数回確認された. これは, ナノインデンテーション試験における Pop-in の現象に対応すると考えられる. 一方, 試験片直径 d が比較的大きい場合 ($d = 10.2 \mu\text{m}$), 試験片は応力約 30 MPa で降伏し, 典型的なミリメートルサイズの単結晶試験片における低ひずみ域の挙動に類似した連続的な降伏が確認された. 試験片直径 d ごとの Initial slip stress σ_i を比較すると, およそ $d = 1 \sim 10 \mu\text{m}$ では試験片直径 d が小さい程強度が大きくなる強度のサイズ依存性を確認できる. 特に, およそ $d = 1 \sim 2 \mu\text{m}$ の間で応力上昇がより顕著に認められた.

図 3 に圧縮試験後の α -Al 単結晶マイクロピラー ((a) $d = 1.2 \mu\text{m}$, (b) $d = 3.3 \mu\text{m}$, (c) $d = 10.2 \mu\text{m}$) の SEM 像を示す. いずれの試験片直径 d でも塑性変形時に生じたと考えられるすべり跡 (slip trace) が観察された. これは, 活動したすべり系のすべり面に対応する. これらの観察結果から, 一部で 2 次すべりが認められるが, すべての試験片の変形は主に一次すべりで担われていることがわかった. ま

たすべり跡の数は, 試験片直径の増加に伴い少なくなる傾向が認められた. それぞれの応力-ひずみ曲線と比較すると, すべり跡の数は Strain burst の回数に対応していると考えられる. なお, すべての圧縮試験後の試験片の観察の結果, 座屈による変形は起きていないことを確認した. これは, 本研究で作製したマイクロピラーのアスペクト比 ($h/d = 2 \sim 9$) が圧縮によるすべり変形を評価するために適切であったことを示す.

図 4 に単結晶マイクロピラーの Initial slip stress σ_i およびひずみ 5% 時の応力 $\sigma_{5\%}$ を同定

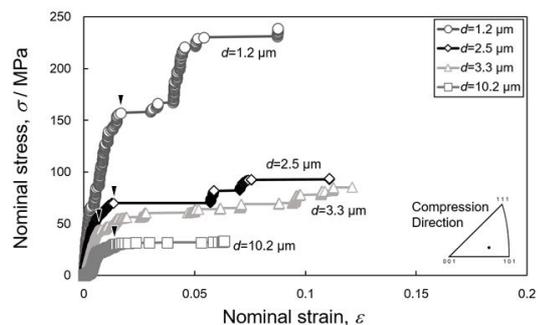


図 2 直径が異なる Al 単結晶マイクロピラーの応力-ひずみ曲線.

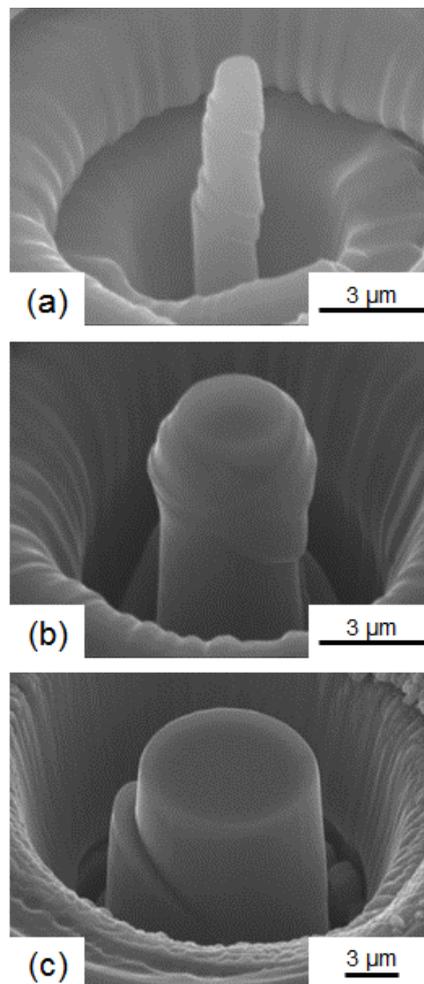


図 3 圧縮試験後の直径が異なる Al 単結晶マイクロピラーの SEM 像: (a) $d = 1.2 \mu\text{m}$, (b) $d = 3.3 \mu\text{m}$ and (c) $d = 10.2 \mu\text{m}$.

したシュミット因子を用いて計算した(a)臨界分解せん断応力 τ_c (CRSS: Critical Resolved Shear Stress)および(b) ひずみ 5%時のせん断応力 $\tau_{5\%}$ と試験片直径 d の関係を示す. 比較として, 純度 5N(9.999%)および純度 3N(99.9%)の単結晶マイクロピラーの強度も併せて示す. なお, σ_1 の理論的な最大値である理想せん断強度と最小値であるバルク試験片(大きさ数ミリメートルの試験片)の CRSS を図 4 (a)に示す. τ_c および $\tau_{5\%}$ の両方で試験片直径 d の増加に伴う強度の低下が観察され, 強度のサイズ依存性が他の fcc 金属同様, 純アルミニウムでも認められた. また, 本研究の純度 4N アルミニウムの強度のサイズ依存性の傾向に純度 5N および 3N の結果が良く一致した. したがって, 純度 3N から 5N の範囲においてアルミニウムの強度のサイズ依存性に及ぼす純度の影響はほとんどない.

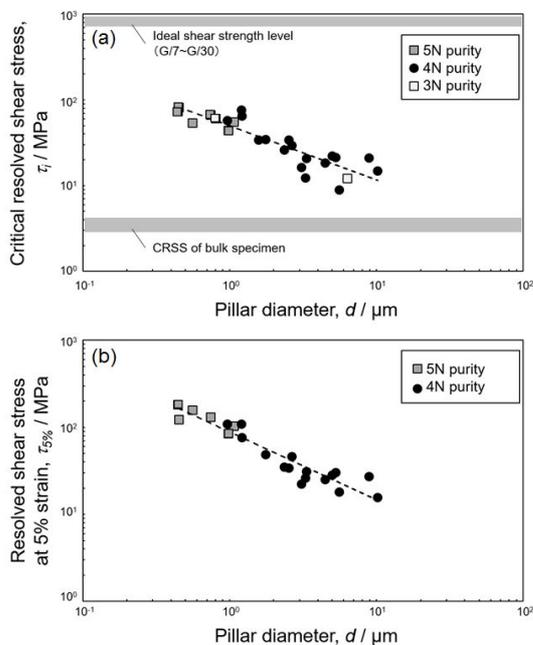


図 4 本研究で作製した純度 4N Al 単結晶マイクロピラーの(a) 臨界分解せん断応力 τ_c および(b) ひずみ 5%時のせん断応力 $\tau_{5\%}$ と試験片直径 d の関係。(純度 3N 及び 5N は先行研究から引用.)

本研究では単結晶マイクロピラーの強度と変形に及ぼす試験片形状の影響を明らかにするため, 同一の試験片直径 d (約 $3.3 \mu\text{m}$)を持つが異なる上部試験片直径 d_1 と下部試験片直径 d_2 を持つ単結晶マイクロピラーを作製し, それらの圧縮試験を行った. 図 5 に異なる d_1/d_2 を持つマイクロピラーの圧縮試験から得られた公称応力-公称ひずみ曲線を示す. d_1/d_2 は 0 以上 1 以下の値となり, 円柱状マイクロピラーの上部から下部の傾斜が小さい程 d_1/d_2 は 1 に近い値を示す. $d_1/d_2 = 0.51$ および 0.71 では応力約 35 MPa で降伏し, 同程度の強度が認められた. 一方, $d_1/d_2 = 0.24$ では応力約 20 MPa で降伏が認められ, 同じ試験片直径 d であっても比較的小さい強度として測定される. これら圧縮試験後の単結晶

マイクロピラー (a) $d_1/d_2 = 0.24$, (b) $d_1/d_2 = 0.43$) の SEM 像を図 6 に示す. $d_1/d_2 = 0.24$ および 0.43 の場合, マイクロピラーの比較的上部で不均一な変形が生じており, 図 3 で認められたような単一すべり系の活動を示すすべり跡は観察されなかった. d_1/d_2 がおよそ 0.5 以上の試験片表面では, 図 3 で示される形状のすべり跡が観察された. したがって, d_1/d_2 が 0.5 以下の単結晶マイクロピラーで測定される強度は試験片上部の局所的な不均一変形に起因し, 試験片の単一すべり系の活動に対応しない.

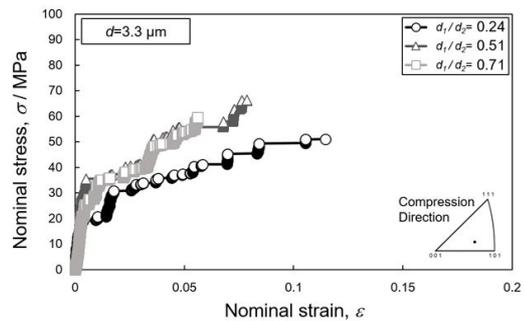


図 5 d_1/d_2 が異なる Al 単結晶マイクロピラーの応力-ひずみ曲線 (平均直径 $d = 3.3 \mu\text{m}$).

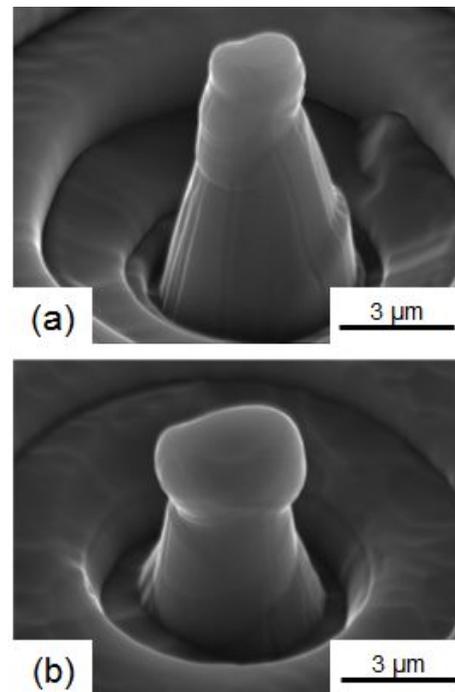


図 6 圧縮試験後の d_1/d_2 が異なる Al 単結晶マイクロピラーの SEM 像: (a) $d_1/d_2 = 0.24$, (b) $d_1/d_2 = 0.43$.

図 7 に $d = 3.3 \mu\text{m}$ の単結晶マイクロピラーのひずみ 5%時の応力 $\sigma_{5\%}$ と d_1/d_2 の関係を示す. $d_1/d_2 = 0.5$ 以上の場合, 測定される応力はほぼ一定である. 一方で $d_1/d_2 = 0.5$ 以下の場合, d_1/d_2 の値が小さい程測定される応力は小さくなる傾向にある. これは, 実際には d_1 と d_2 の平均値として算出される試験片直径 d よりも小さな直径の断面積で変形が生じるためと推察される. 以上の結果より, 試験片

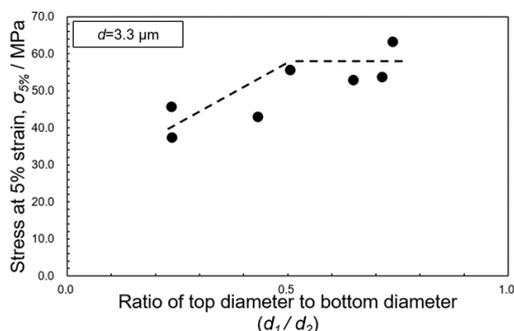


図7 単結晶マイクロピラーのひずみ 5%時の応力 $\sigma_{5\%}$ と d_1/d_2 の関係

直径約 $3\mu\text{m}$ の高純度アルミニウムの単結晶マイクロピラーの強度評価には、少なくとも $d_1/d_2 = 0.5$ 以上の試験片形状に作製する必要があると結論される。

これらの結果を基に、適正な圧縮試験による強度評価が可能である平均直径約 $3\mu\text{m}$ の円柱状のマイクロピラー作製を試みた。図8に Co/WC 複合材料から作製した2相マイクロピラーの公称応力-公称ひずみ曲線を示す。いずれの試験片も応力約 5 GPa で降伏し、その後急激なひずみ増加 (Strain burst) が認められた。試験片の観察によって、その変形は Co/WC 界面部の局所的な変形であることが示唆された。これは硬質/軟質の複相マイクロピラーを用いることによって、異相界面近傍の変形に起因する応力を検出できる可能性を示している。今後は複相構造の形態制御を行ったマイクロピラー圧縮試験を行うことによって、異相界面強度の測定を実証する必要があると考えられる。

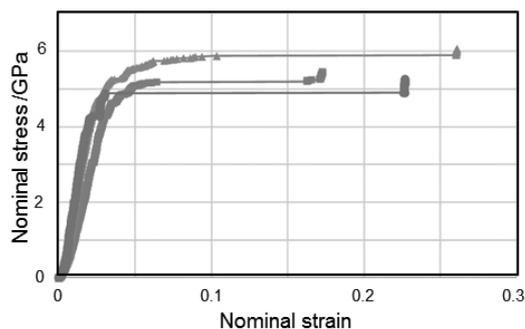


図8 金属/セラミックス複相マイクロピラーの公称応力-ひずみ曲線 (平均直径約 $3\mu\text{m}$)。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計1件)

竹安 崇一郎、高田 尚記、鈴木 飛鳥、小橋 眞、高純度アルミニウム単結晶マイクロピラーの強度に及ぼす試験片寸法及び形状の影響、軽金属、査読有、68 巻、2018、印刷中

〔学会発表〕(計5件)

竹安 崇一郎、高田 尚記、小橋 眞、純

Al 単結晶マイクロピラーの強度に及ぼす試験片寸法の影響、軽金属学会春期講演大会、2017

高田 尚記、竹安 崇一郎、小橋 眞、マイクロピラー圧縮試験を用いた局所力学特性評価のアルミニウム合金への適用、軽金属学会春期講演大会、2017

竹安 崇一郎、高田 尚記、鈴木 飛鳥、小橋 眞、 α -Al 単結晶マイクロピラーの強度のサイズ効果に及ぼす予加工の影響、軽金属学会秋期講演大会、2017

高田 尚記、竹安 崇一郎、鈴木 飛鳥、小橋 眞、マイクロピラー圧縮試験を用いた金属材料の局所力学特性評価とその課題、高温変形の組織ダイナミクス研究会「平成29年度 夏の学校」、2017

高田 尚記、竹安 崇一郎、鈴木 飛鳥、小橋 眞、マイクロピラー圧縮試験によるアルミニウム合金の局所力学特性評価、高日本金属学会/鉄鋼協会東海支部 若手冶金エンジニアリング研究会、2017

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計0件)

取得状況 (計0件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.numse.nagoya-u.ac.jp/P6/kobashi/program1.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高田 尚記 (TAKATA, Naoki)

名古屋大学 大学院工学研究科・准教授

研究者番号: 7043523

(2) 研究協力者

〔主たる渡航先の主たる海外共同研究者〕

なし

〔その他の研究協力者〕

小橋 眞 (KOBASHI, Makoto)

名古屋大学 大学院工学研究科・教授

研究者番号: 90225483