

令和 2 年 6 月 8 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2017～2019

課題番号：17H01239

研究課題名（和文）金属ナノ構造体のクリープ破壊の力学

研究課題名（英文）Mechanics of creep fracture in metallic nanostructures

研究代表者

平方 寛之（Hirakata, Hiroyuki）

京都大学・工学研究科・教授

研究者番号：40362454

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 35,100,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、金属ナノ構造体のクリープ機構を解明して、クリープ破壊の力学基盤を構築することを目的とする。このため、電子顕微鏡その場観察下におけるクリープ実験方法を開発して、AuおよびAl単結晶ナノ構造体に対するクリープ実験を実施した。その結果、クリープ特性には「小さいほど強い」寸法効果が存在すること、微小転位ループを導入することによりクリープ抵抗が向上すること、および、クリープ強度は切欠きにより弱化的であることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

微細構造物の構成要素として用いられる寸法がサブ μm からnmオーダーの金属ナノ構造体では、クリープが主要な変形・破壊機構になる。しかし、金属ナノ構造体のクリープ現象の詳細は解明されていなかった。本研究成果は、典型的な金属ナノ構造体のクリープ特性、とりわけクリープ変形機構とクリープ破壊の力学に関する新たな知見を与えるものであり、ナノデバイスの長期信頼性設計に合理的な指針を提供するものである。

研究成果の概要（英文）：This study aims to elucidate the creep mechanisms of metallic nanostructures and establish the mechanics dominating the creep fracture. We have developed in-situ SEM and TEM creep experiment methods for nanoscale specimens. Creep experiments were performed on nanoscale Au and Al single crystals. The results indicated that the size effect "smaller is stronger" is present in the creep properties, that the creep resistance is improved by introducing the nanoscale dislocation loops, and that the creep strength is weakened by the presence of notch.

研究分野：材料力学

キーワード：ナノ・マイクロ材料力学 微小材料強度学 破壊力学 クリープ

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

寸法がサブ μm から nm オーダーの金属ナノ構造体では、表面の鏡像力や転位・転位源の微小化・枯渇により転位の運動が拘束され塑性変形が生じにくくなる一方、表面拡散や粒界拡散、転位芯拡散などの影響度合いが増大するため、クリープが主要な変形・破壊機構になる。ところが、金属ナノ構造体のクリープ現象の詳細は解明されていなかった。とくに、破壊はき裂先端等の局所に支配される現象であるが、その局所力学場（応力集中場）の役割が未解明であった。

2. 研究の目的

本研究は、金属ナノ構造体に対する走査型および透過型電子顕微鏡（SEM および TEM）によるその場観察クリープ実験方法を開発して、局所力学場を制御した種々のクリープ実験を実施することにより、金属ナノ構造体特有のクリープ機構を解明して、クリープ破壊の力学基盤を構築することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) Au ナノ構造体のクリープ特性評価

供試材には Czochralski 法により作製した純度 99.999% の Au 単結晶を用いた。図 1 に示すダンベル型の試験片を集束イオンビーム（FIB）により加工した。試験片表面は(001)面であり、引張軸方向は[100]方向である。クリープ特性に及ぼす寸法効果を解明するため、試験片の幅 W と厚さ B が約 $0.5 \mu\text{m}$ および約 $1.5 \mu\text{m}$ である二種類の試験片を作製した。クリープ試験には、微小荷重の負荷・制御が可能な静電気力負荷方式の力学試験装置を用いた。試験片ヘッド部にダイヤモンド製グリッパーを用いて一定の荷重 F を与え、試験片の変位 δ をその場観察した SEM 像を基に評価した。

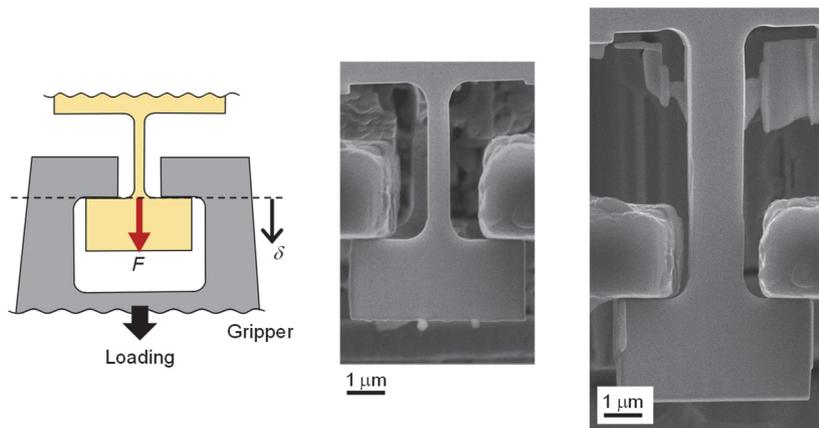


図1 Au単結晶ナノ構造体に対するその場SEM観察クリープ試験方法

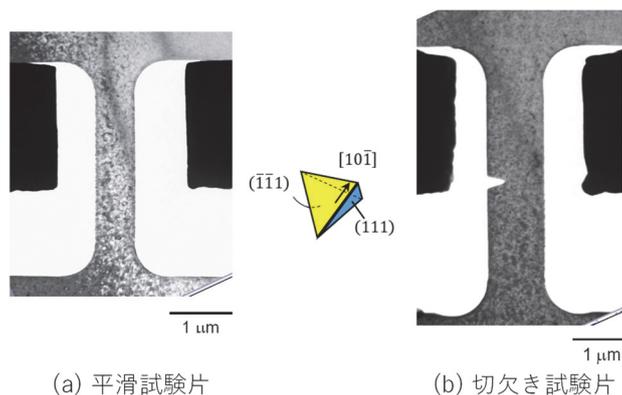


図2 Al単結晶ナノ構造体に対するその場TEM観察クリープ試験方法

(2) Al ナノ構造体のクリープ特性評価

① その場 TEM 観察クリープ実験

純度 99.999% の Al 多結晶から、FIB 加工によりダンベル型の単結晶試験片を作製した。図 2(a) は、試験片の TEM 像及びトンプソンの四面体を示す。結晶方位は荷重方向に対して単一すべりとなる方位とした。厚さ B は電子が透過するように $0.4 \sim 0.5 \mu\text{m}$ 程度とし、試験片平行部の幅 W を約 $0.6 \mu\text{m}$ とした。

FIB 加工では Ga イオンの衝突により、試験片の表面近傍の Al 原子が元の原子配置から弾き飛ばされ、点欠陥（空孔や格子間原子）が生成される。これらの点欠陥が拡散によって凝集することで微小転位ループが形成される。クリープ特性に及ぼすこのような微小転位の影響を検討す

るため、微小転位の低減を目的として一部の試験片に対して真空アニール処理を行った。

クリープ試験には、微小荷重の負荷・制御が可能である静電気力負荷方式の力学試験装置を用いた。試験片ヘッド部にダイヤモンド製グリッパーを用いて一定荷重 F を与え、試験片の変位 δ をその場観察した TEM 像を基に評価した。

② 切欠きからのクリープ破壊実験

応力集中部からのクリープ破壊特性を検討するため、①と同様の供試材に対して FIB 加工により切欠きを有する試験片を作製した。図 2(b)は、切欠き試験片を示す。切欠き底部幅を平滑試験片平行部の幅 W と同程度の約 $0.6 \mu\text{m}$ とした。弾性変形時の応力集中係数は約 4.7 である。試験装置および試験方法は①と同様である。

4. 研究成果

(1) Au ナノ構造体のクリープ特性に及ぼす寸法効果

① クリープ特性

図 3 は、試験片寸法 $D = \sqrt{WB} = 0.46 \mu\text{m}$ の試験片に対して実施したクリープ試験結果を示す。本試験では $\sigma = 318 \text{ MPa}$ で 25.2 ks (7 h) の試験の後、除荷して直ちに、 $\sigma = 325 \text{ MPa}$ で 25.2 ks (7 h) の試験を行った。試験で得たひずみ ϵ - 時間 t 関係 (図 3(a)) より、時間の経過とともにひずみ速度が低下する遷移クリープが見られた。 $t = 41\text{--}50 \text{ ks}$ の領域ではほぼひずみ速度が一定とみなすことができる。すなわち、本材のクリープには定常クリープ領域が存在した。14 h のクリープにより ϵ が約 0.12 まで増大し、ほぼ均一に変形した。図 3(b)は、寸法の大きい $D = 1.43 \mu\text{m}$ の試験片に対して $\sigma = 117 \text{ MPa}$ で実施したクリープ試験結果を示す。定性的には高応力下で実施した $D \approx 0.5 \mu\text{m}$ の試験片と同様の挙動を示した。本試験においても概ね均一変形であり、14 h でひずみは約 0.035 に達した。また、いずれの寸法の試験片においても、低応力下の試験ではほとんど変形が起きず、断続的なひずみの増大を伴った変形挙動を示した。

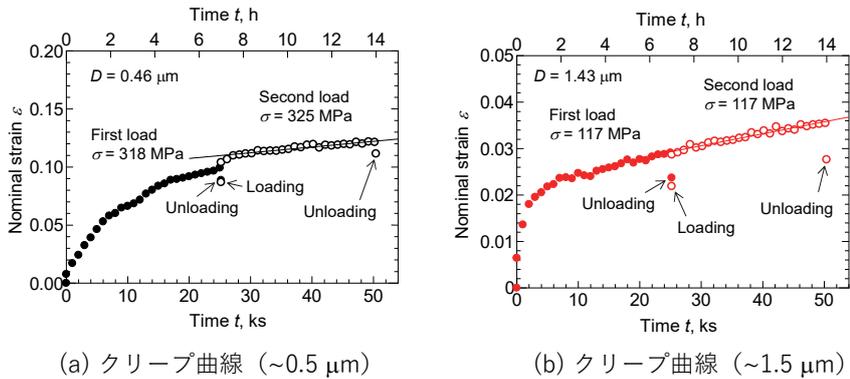


図3 Auナノ構造体のクリープ試験結果

② 寸法効果

図 4 は、各クリープ試験 (一回目の 7 h 試験のみ) における平均クリープひずみ速度と負荷応力の関係を示す。いずれの寸法 ($D \approx 0.5 \mu\text{m}$, $1.5 \mu\text{m}$) でも、応力の増大に伴いひずみ速度が高くなった。同じひずみ速度に達するのに試験片寸法 D が小さい試験片ほど高い応力を有する。すなわち、クリープ変形抵抗は寸法の縮小に伴い向上した。Au ナノ構造体の時間依存型変形であるクリープにおいて「小さいほど強い」寸法効果が存在するが明らかとなった。

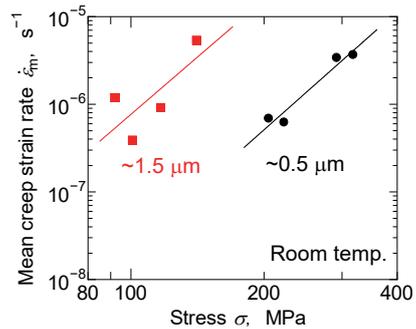


図4 Auナノ構造体のクリープ特性に及ぼす寸法効果

(2) Al ナノ構造体のクリープ特性に及ぼす微小転位の影響

① 熱処理結果

図 5 は、温度 573 K の熱処理 (アニール) 前後の TEM 観察像を示す。アニール前に多数観察されたナノスケールの微小転位ループは、アニール後はほとんど見られず、転位の大半は $100\text{--}300 \text{ nm}$ 程度の寸法になった。また、その TEM 観察アニールにより、FIB 加工した試験片には、寸法や消失しやすさの異なる多様な転位が存在することが分かった。

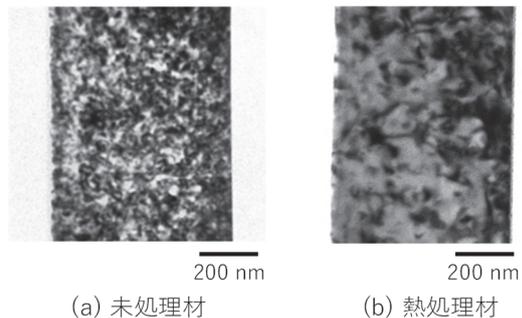


図5 熱処理によるAl単結晶ナノ構造体の微小転位低減

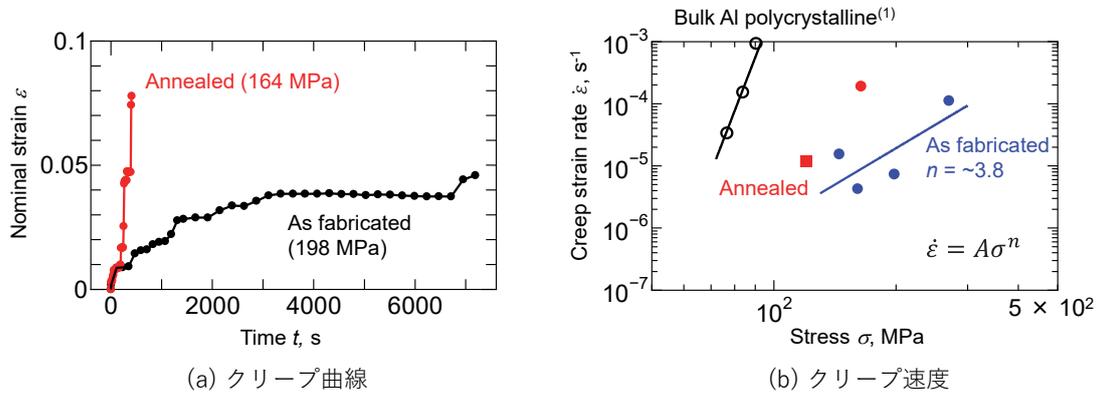


図6 Alナノ構造体のクリープ特性に及ぼす熱処理の影響

② クリープ特性

図 6(a)は、未処理およびアニール処理試験片に対するクリープ試験における $\epsilon - t$ 関係を示す。未処理試験片では、荷重保持開始後、断続的なひずみバーストを伴いながらひずみが増大した。ひずみの増大は荷重保持開始後からおよそ 3200 s まで続いた。しかし、ひずみの増大は徐々に緩やかになる加工硬化が生じた。約 3200 s から約 6800 s の間にはひずみはほとんど増大しなかった。その後、 $t = 6800$ s 付近から再びひずみが増大した。試験時間内 (7200 s) に試験片は破壊には至らなかった。本材のクリープ曲線は、ひずみが増大する増大領域、ひずみが一定になる停滞領域、および局所的な変形を伴いひずみが急増する加速領域からなることが分かった。これは、ひずみ速度一定の定常クリープが現れるバルク材のクリープ特性とは異なる。一方、アニール試験片では断続的なひずみバーストを伴いながらひずみが増大し、試験片は約 410 s で破壊に至った。アニール材では未処理材よりもひずみの増大が短時間で急速に起きた。また、負荷応力が低いにも関わらず、未処理材で現れた長時間の停滞領域は出現しなかった。

図 6(b)は、未処理およびアニール処理試験片の平均クリープ速度を示す。図にはバルク Al 多結晶⁽¹⁾の結果を併せて示す。未処理材に対して、べき乗則クリープを仮定して評価した応力指数 n は約 3.8 となり、本材のクリープ機構は転位クリープ機構であると考えられる。また、未処理試験片はアニール処理試験片よりもクリープ抵抗が小さくなった。これは FIB 加工によって微小転位ループを導入することにより、クリープ抵抗を強化できることを示している。クリープ変形中の転位運動のその場 TEM 観察により、無数の微小転位ループを金属材料に導入することにより、クリープ下における転位運動を抑制し、長時間のクリープ変形の停滞をもたらすことで、クリープ抵抗を強化できることが明らかになった。一方、アニール試験片においてもバルク材よりもクリープ抵抗が高くなった。これは転位源寸法の縮小などによる塑性変形 (転位増殖) 抵抗の増大がクリープの寸法効果をもたらしたと考えられる。

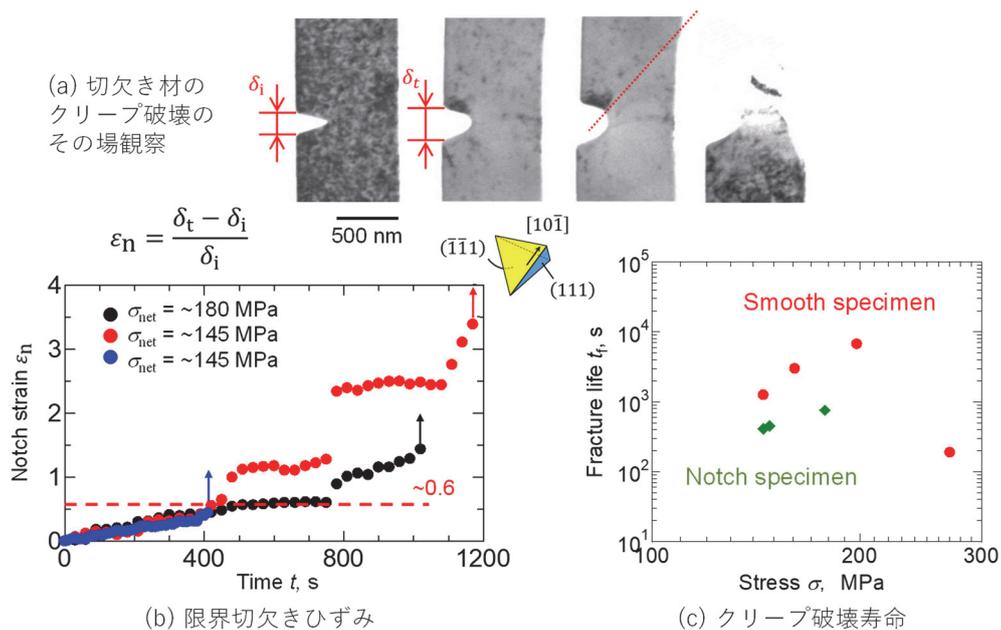


図7 Alナノ構造体のクリープ破壊に及ぼす切欠き効果

(3) Al ナノ構造体のクリープ破壊特性

図 7(a)は、切欠き試験におけるクリープ破壊のその場 TEM 観察像を示す。本材にはアニール処理は行っておらず、試験片には FIB 加工により導入された多数の初期微小転位が存在していた。負荷開始後、転位が活発に運動する様子が観察された。試験片は断続的なひずみバーストを伴いながら、時間の経過とともに切欠き部が変形して開口していく様子が観察された。その後、切欠き底を起点として変形の局所化が生じ、主すべり系に沿った局所的なすべり変形が生じ、破壊へと至った。なお、試験の途中から転位が確認できなくなるが、これは試験片の角度がわずかにずれたことによるもので、破壊後再び転位が確認できることから明確な転位の枯渇は生じていなかったと考えられる。

切欠き材のクリープ試験では変形が切欠き底近傍部に集中したことから、その場 TEM 観察像を基に切欠き開口変位 δ_k を計測して、切欠きひずみ $\epsilon_0 = (\delta_k - \delta_i) / \delta_i$ を定義・評価した。図 7(b)は、3本の切欠き試験片の δ_k-t 関係を示す。すべての試験片で約 400 s まで概ね曲線が一致しており、切欠きひずみ ϵ_0 が約 0.6 に達したとき、ひずみの急増が生じた。このひずみ急増は切欠き底で変形が局所化し、主すべり系に沿う局所的すべり変形が生じたことによる。この結果は、切欠き底のひずみがある限界値に達したときに、主すべり系に沿う局所すべり変形が開始することを示している。すなわち、クリープ破壊をもたらす局所すべりの開始にはひずみに基づく力学的クライテリオンが存在することを示唆した。

図 7(c)は、平滑材と切欠き材のクリープ破壊寿命を示す。試験片の変形が局所化すると、実断面積の減少により、クリープ変形は加速し破壊に至る。したがって、変形の局所化までの時間を破断寿命 t_f と定義した。切欠き材の破断寿命は平滑材と比べ、著しく短くなった。すなわち、Al ナノ単結晶は切欠き弱化的傾向を示した。

<引用文献>

① H. Luthy, A.K. Miller, O.D. Sherby, “The stress and temperature dependence of steady-state flow at intermediate temperatures for pure polycrystalline aluminum”, Acta Metallurgica 28 (1979) 169-178.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Hirakata Hiroyuki, Shimbara Kousuke, Kondo Toshiyuki, Minoshima Kohji	4. 巻 1
2. 論文標題 Size effect on tensile creep behavior of micrometer-sized single-crystal gold	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Materialia	6. 最初と最後の頁 221 ~ 228
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1016/j.mtla.2018.05.004	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 2件／うち国際学会 5件）

1. 発表者名 Kotaro YAMAGUCHI, Ryoma KISHINO, Takahiro SHIMADA and Hiroyuki HIRAKATA
2. 発表標題 Creep properties of submicrometer-sized single-crystal Al
3. 学会等名 15th Asia-Pacific Conference on Fracture and Strength (APCFS2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hiroyuki HIRAKATA, Hiroyuki INOUE, Toshiyuki KONDO and Kohji MINOSHIMA
2. 発表標題 Creep crack propagation in submicrometer-thick Au films
3. 学会等名 15th Asia-Pacific Conference on Fracture and Strength (APCFS2018) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山口功太郎, 岸野遼馬, 嶋田隆広, 平方寛之
2. 発表標題 サブミクロン単結晶 Al のクリープ特性と寸法効果
3. 学会等名 日本機械学会2018年度年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 平方寛之
2. 発表標題 ナノ・マイクロ構造体・薄膜のクリープ特性
3. 学会等名 日本材料学会第161回破壊力学部門委員会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hiroyuki HIRAKATA, Takayuki NAGASHIMA, Kotaro YAMAGUCHI, Takahiro SHIMADA
2. 発表標題 Size effects on creep and creep fracture mechanisms of single-crystal metallic nanomaterials
3. 学会等名 2019 MRS Fall Meeting and Exhibits, Boston, USA（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hiroyuki HIRAKATA, Takayuki NAGASHIMA, Kotaro YAMAGUCHI, Takahiro SHIMADA
2. 発表標題 Creep and fracture mechanisms in submicron-sized single crystal metals
3. 学会等名 The 6th Joint-Symposium on Mechanics of Advanced Materials & Structures 2019 (JSMAMS 2019), Hamanako Resort & Spa The Ocean, Hamamatsu, Shizuoka, Japan（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takayuki NAGASHIMA, Kotaro YAMAGUCHI, Takahiro SHIMADA, Hiroyuki HIRAKATA
2. 発表標題 Creep fracture of submicrometer-sized single crystal Al
3. 学会等名 International Conference on Advanced Technology in Experimental Mechanics 2019 (ATEM '19), TOKI MESSE (Niigata Convention Center), Niigata, Japan（国際学会）
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	近藤 俊之 (Kondo Toshiyuki) (70735042)	大阪大学・工学研究科 ・助教 (14401)	