

機関番号：14501

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2008 ～ 2010

課題番号：20560076

研究課題名（和文）マイクロマシン用超微細結晶粒  $\alpha$  黄銅の開発とその強度特性に関する研究研究課題名（英文）Development and Strength Evaluation of Ultra-fine Grain  $\alpha$ -brass for Micromachines

研究代表者 中井 善一（YOSHIKAZU NAKAI）  
 神戸大学・大学院工学研究科・教授  
 研究者番号：90155656

研究成果の概要（和文）：

繰り返し圧延法によって、平均結晶粒径微細結晶粒  $1.0 \mu\text{m}$  の  $\alpha$  黄銅微細結晶粒材を作成することに成功した。結晶粒径と引張り強さ、疲労限度の間には Hall-Petch の関係が成立し、通常の結晶粒材よりも著しく強度の高い材料を開発できた。また、工業用純鉄細線を用いて引張試験、疲労試験を行った結果、線径が小さくなると降伏現象が消失することを発見した。降伏現象の消失が疲労挙動にも大きく影響を及ぼしていることも明らかになった。さらに、Zr 基バルク金属ガラスを用いて疲労試験を行った結果、バルク金属ガラスは板厚方向に強度の不均質性を有することと、切欠きに極めて敏感であることがわかった。

研究成果の概要（英文）：

Ultra-fine grain  $\alpha$ -brass with average grain size of  $1.0 \mu\text{m}$  was successfully obtained by repetitive rolling and heat-treatment. Hall-Petch relationships were found between the strengths and the grain size, and then the strengths of the ultra-fine grain material were extremely higher than that of conventional materials. Tensile tests and fatigue tests of thin wires of commercially pure iron were conducted. With decreasing the diameter of specimen, the yield phenomenon was disappeared and the fatigue behavior of the thin wire was strongly dependent on the yielding. Fatigue tests of Zr-based metallic glass (BMG) were also conducted, and found that the BMG plate had inhomogeneity in the thickness direction, where the strength was highest at the surface, and it was lowest in the midsection. The fatigue strength of the BMG was very sensitive to notch.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2009 年度	600,000	180,000	780,000
2010 年度	1,100,000	330,000	1,430,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・材料力学

キーワード：マイクロマシン，マイクロマテリアル，超微細結晶粒材，Hall-Petch の関係，疲労強度，再結晶， $\alpha$  黄銅，薄膜

## 1. 研究開始当初の背景

機械工学の最先端技術を結集したマイクロマシンの実現は、すべての産業分野への波及効果が期待されるために大きな注目を集めている。従来のマイクロマシン研究においては、微小機械要素の加工技術について精力的に研究が行われ、製作に関しては実用化の目処がついている。しかしながら、実用に耐え、寿命予測の可能なマイクロマシンを開発するためには、実際にマイクロマシンで使われるサイズの微小寸法材料の強度および寿命を正確に把握することによって、健全性を保証する必要がある。

半導体素子の微細加工技術がそのまま使えるために、マイクロマシン用材料としてシリコンが有望視されてきたが、ぜい性材料であるため欠陥に敏感であり、強度のばらつきが大きく、機械材料として優れているとは言い難い。そこで、申請者は、工業用材料として広く使われている鉄、アルミニウムに注目して、マイクロマテリアルの強度に関する研究を行ってきた。その結果、通常の方法を加工により微小化した場合、それに伴って結晶粒径と試験片断面の比が小さくなるが、強度は最小断面部に含まれる結晶粒の方位に大きく影響されるため、この場合も疲労強度のばらつきが極めて大きいことを明らかにしていた。また、本課題着手以前に、板厚 3 mm の  $\alpha$  黄銅板を冷間圧延、熱処理を 3 回繰り返すことにより、板厚 0.1 mm、結晶粒径 1.5  $\mu\text{m}$  の材料の作成が可能となっていた。

## 2. 研究の目的

本課題の目的は、塑性加工と熱処理を繰り返すことにより、マイクロマシン用材料に適した超微細結晶粒多結晶金属材料を開発して、その強度特性を明らかにすることである。また、材料を微小化した場合、バルク材との強度特性の相違についても明らかにする。

## 3. 研究の方法

(1) マイクロマシン用金属材料として有望であると考えられる  $\alpha$  黄銅の結晶粒の微細化法を開発する。

従来の圧延による方法では、1 回の加工ごとに板厚が減少し、多数回の圧延が困難であるため、本課題では、加工回数に制限のない ECAP(Equal Channel Angular Pressing)法についても、その適用性を検討する。

(2) 工業用純鉄細線について、最小直径 0.18 ~ 0.8 mm 試験片を作成し、その精度良い引張試験方法および疲労試験方法を開発するとともに、強度と直径の影響を詳細に調べ、寸法効果のメカニズムを調べる。

(3) 結晶粒を微細化した極限として、アモルファス金属の強度特性を調べる。そのため、最も実用化に近いと考えられている Zr 基バ

ルク金属ガラスを用いて、疲労試験を行う。

## 4. 研究成果

### (1) $\alpha$ 黄銅

厚さ 6.0 mm、平均結晶粒径 33.8  $\mu\text{m}$  の試料を用い、圧延および熱処理を繰り返すことにより、平均結晶粒径 1.0  $\mu\text{m}$  の微細結晶粒材を作製した。図 1 に示すように、結晶粒径 1.0  $\mu\text{m}$  の材料の引張強さは 590 MPa であり、従来得られたものより大幅に上昇したが、破断延性は大きく低下した。

図 2 に示すように、疲労限度は 180 MPa であり、これも従来の材料よりも高かった。また、電解研磨を行った試験片の S-N 曲線のばらつきは、電解研磨を行わなかった試験片のばらつきよりも小さかった。これは電解研磨により機械研磨による表面の微小な凹凸(表面粗さ)が減少したためであると考えられる。

図 3 に示すように、薄膜材においても引張強さ  $\sigma_B$  および疲労限度  $\sigma_{w0}$  には、Hall-Petch 則が成立し、これらは結晶粒径の平方根の逆数  $d^{-1/2}$  に比例して増加した。

ECAP 法については、型の形状が重要であり、種々の型を製作した結果、図 4(a) に示すような曲がり角  $90^\circ$  では加工に要する圧縮荷重が大きいため、プランジャーが破壊することが分かった。また、図 4(b) に示す曲がり角  $120^\circ$  の場合、プランジャーは破壊しな

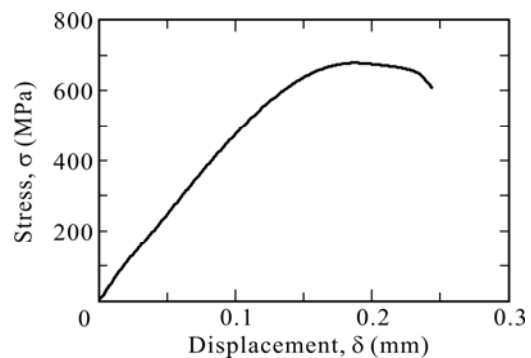


図 1  $\alpha$  黄銅微細結晶粒材の応力-伸び関係。

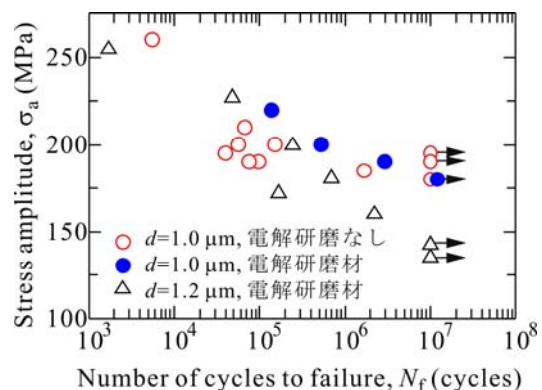


図 2  $\alpha$  黄銅微細結晶粒材の S-N 曲線。

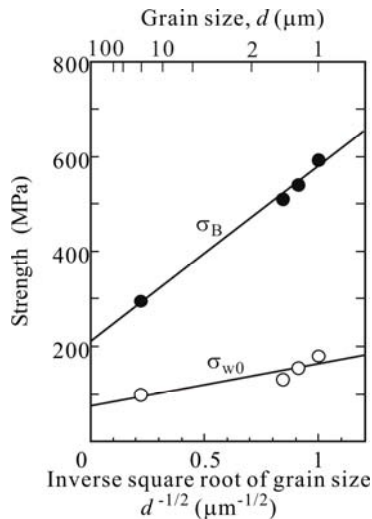


図3 α黄銅微細結晶粒材の強度に及ぼす結晶粒径の影響。

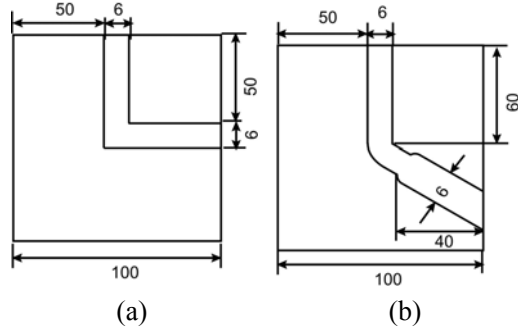


図4 ECAP型。

ったものの座屈した。出口側の溝幅を大きくすることにより成功の目処はつき、今後とも研究を継続実施していきたい。

本課題の成果により、金属製マイクロマシン部材は、今後その実用化が加速されるものと考えられる。現段階では、疲労き裂発生機構の解明には至っていないが、本課題の実施によってブレークスルーが図られたので、今後とも研究を継続していく。

## (2) 工業用純鉄細線

試験片材料には線径 1.45 mm、純度 99.5 % の純鉄線を用いた。ひずみ取り熱鈍後の平均結晶粒径は約 25 μm である。それより、加工変質層が生じにくい電解研磨加工によって、緩やかな直径変化を有する、最小線径  $D_{\min}$  が 800, 700, 500, 180 μm の 4 種類の試験片を作製した。

0.5 mm/min の速度で引張試験を行った。その例として、 $D_{\min} = 700 \mu\text{m}$  の試験片で得られた応力-伸び曲線を図 5 に示す。上下降伏点のある明確な降伏現象がある場合とない場合があることがわかる。 $D_{\min} = 800 \mu\text{m}$  の試験片では 7 本中すべてが明確な降伏現象を示したが、 $D_{\min} = 700 \mu\text{m}$  では 7 本中 2 本、 $D_{\min} = 500 \mu\text{m}$

では 7 本中 1 本が明確な降伏現象を示し、 $D_{\min} = 180 \mu\text{m}$  では全ての試験片で明確な降伏現象を示さなかった。

繰返し速度 40 Hz、応力比 0.1 の軸力による部分片振りで疲労試験を行った結果、試験開始直後に急激に伸びが増加した後、ほぼ一定の速度で伸びが増加し、再び急激に伸びが増加して破壊に至る場合と、試験開始からほとんど伸びの増加はみられず、破壊直前に同様に变形し破壊に至った試験片があった。前者をラチェット変形型と称し、後者を疲労降伏遅れ型と称することにする。疲労降伏遅れ現象は、静的引張試験において明確な降伏現象を示す材料で現れた。

S-N 曲線を図 6 に示す。ラチェット変形型 (R) を中実記号、疲労降伏遅れ型 (DY) を中空記号で表している。同図より  $D_{\min} = 700 \mu\text{m}$  および  $D_{\min} = 800 \mu\text{m}$  の試験片では、ほとんどが疲労降伏遅れ型、 $D_{\min} = 500 \mu\text{m}$  ではほとんどがラチェット変形型、 $D_{\min} = 180 \mu\text{m}$  では全ての試験片がラチェット変形型によって破壊していることがわかる。特に  $D_{\min} = 700 \mu\text{m}$  の試験片では静的引張試験において、ほとんど明確な降伏現象がみられなかったにもかかわらず、疲労試験では疲労降伏遅れ型が多くみられた。また、 $D_{\min} = 180 \mu\text{m}$ 、500 μm の試験片よりも比較的線径が大きく疲労降伏遅れ

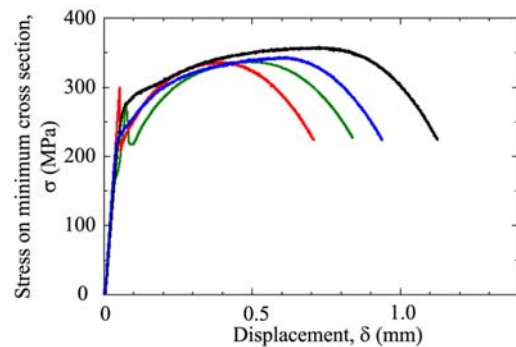


図5 工業用純鉄細線の応力-伸び関係。

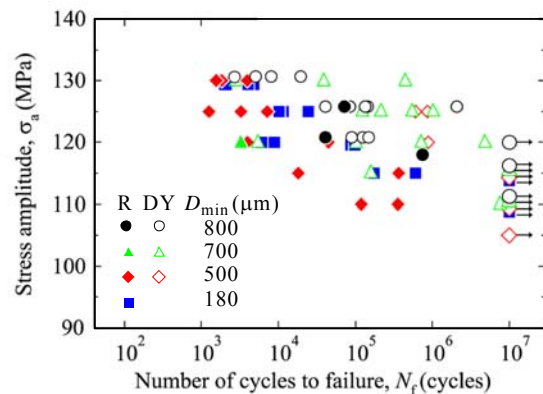


図6 工業用純鉄細線の S-N 曲線。

型になりやすい $D_{\min} = 700 \mu\text{m}$ ,  $800 \mu\text{m}$ の試験片の方が、疲労寿命のばらつきが大きいことがわかる。

以上より、疲労寿命のばらつきの主因は疲労降伏遅れ現象の有無であると考えられる。

### (3) Zr 基バルク金属ガラス

本研究で用いた材料は、 $\text{Zr}_{55}\text{Cu}_{30}\text{Ni}_5\text{Al}_{10}$  (at%)の高圧鋳造材である。その引張強さは1560 MPa、ヤング率は87 GPaであり、引張り試験における破断伸びはほぼ0%である。試験片は、厚さ2.0 mmの板材より、放電加工によって作成した。平滑材の浅い切欠きによる応力集中率は1.03 (面外曲げ), 1.07 (面内曲げ), および1.10 (軸力)である。疲労試験は、応力比 $R=-1$ で行った。曲げ試験および軸力試験の場合、繰返し速度を30 Hzとした。

S-N 曲線を図7に示した。面内曲げと軸力疲労の疲労限度はほぼ等しく、面外曲げの疲労限度はそれよりも高いことが分かる。

金属ガラスは、微視組織をもたず均一・等方性であると考えられてきたが、実際には図8に示すような、板厚中央の強度が板表面の強度よりも低い不均質な材料であることがこの原因であると考えられる。これは、鋳造時の冷却速度が板表面と内部で異なっており、内部の冷却速度が遅いためであると考えられる。面外曲げ疲労試験の結果は、板表面の強度を反映しており、面内曲げおよび軸力疲労試験の結果は、板厚方向の最弱部の疲労強度を反映している。実際に、図9に示したように、軸力試験の破面より、き裂は側面中

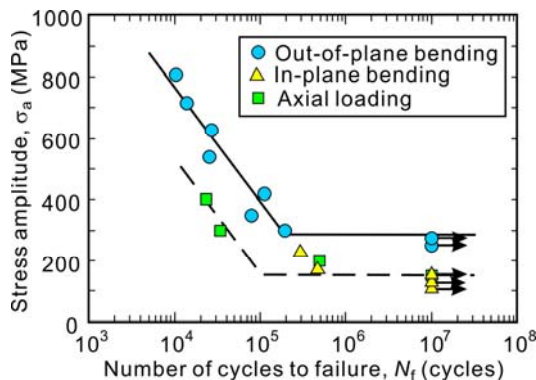


図7 Zr 基バルク金属ガラスのS-N 曲線。

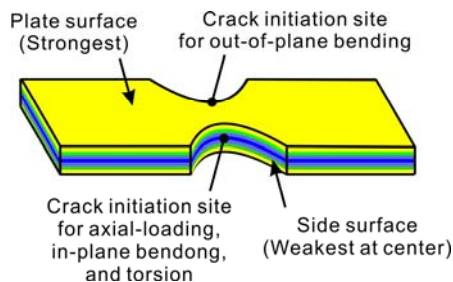


図8 Zr 基バルク金属ガラスの不均質性。

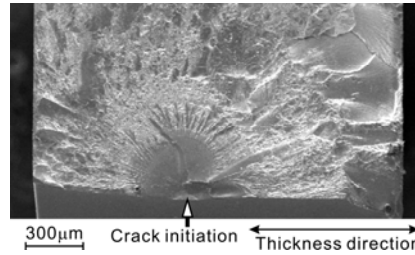


図9 Zr 基バルク金属ガラスの軸力疲労における、き裂発生場所。

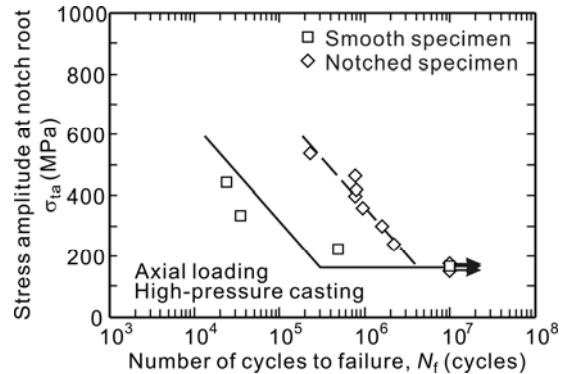


図10 Zr 基バルク金属ガラスの平滑材と切欠き材のS-N 曲線の比較。

央部付近から発生していることがわかる。

切欠き半径0.2 mm, 応力集中率5.9の鋭い切欠き材と平滑材の軸力による疲労試験の結果を図10に示した。縦軸は切欠き先端における応力振幅(正味応力 $\times$ 応力集中率)である。このような鋭い切欠き材に対しても切欠き係数は応力集中係数にとほぼ等しいことが本材料の特徴であり、通常の結晶材料とは大きく異なっている。

本課題に関して、2008年より毎年、The Metallurgical Society (TMS)の年次大会で招待講演を行っている。また、International Conference on Advanced Materials (THERMEC)では、2009年に招待講演を行い、次回の2011年8月にも招待講演を行うことになっている。さらに、Materials Science & Technology 2010 Conference & Exhibition (MS&T'10)でも招待講演を行った。このように、本研究課題の成果は、国外でも高く評価されている。

### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計13件)

- ① Y. Nakai, K. Sakai, and K. Nakagawa, Fatigue of Zr-based Bulk Metallic Glass under Compression-compression Stress, Advanced Engineering Materials, Vol. 10, No.11, pp.1026-1029 (2008). (査読有)
- ② 中井善一, 吉岡泰典, Zr基バルク金属ガラ



- スの環境助長き裂伝ば, 材料, Vol.58, No.3, pp.219-224 (2009). (査読有)
- ③ Y. Nakai and Y. Yoshioka, Environmentally Assisted Cracking and Corrosion Fatigue Crack Growth of Zr-based Bulk Metallic Glass, Proceedings of the 12th International Conference on Fracture (ICF-12), CD-ROM (2009). (査読有)
- ④ D. Shiozawa, Y. Nakai, T. Kurimura and K. Kajiwara, Observation of Fretting Fatigue Cracks by Micro Computed Tomography with Synchrotron Radiation, Proceedings of the 12th International Conference on Fracture (ICF-12), CD-ROM (2009). (査読有)
- ⑤ Y. Nakai, K. Fujihara, N. Sei, and B. K. Kim, Fatigue Crack Initiation and Propagation at a Sharp Notch in Zr-based Bulk Metallic Glass, Materials Science Forum, Vols. 638-642, pp.1659-1664 (2010). (査読有)
- ⑥ 中井善一, 藤原康平, 清 真樹, 安藤州央, Bok Key Kim, Zr基バルク金属ガラス切欠き材の疲労強度, 材料, Vol.59, No.2, pp.104-109 (2010). (査読有)
- ⑦ Y. Nakai and Y. Yoshioka, Stress Corrosion and Corrosion Fatigue Crack Growth of Zr-based Bulk Metallic Glass in Aqueous Solutions, Metallurgical and Materials Transactions A, 41A, pp.1792-1798 (2010). (査読有)
- ⑧ Y. Nakai, D. Shiozawa, T. Kurimura and K. Kajiwara, Observation of Fretting Fatigue Cracks by Micro Computed-Tomography using Ultrabright Synchrotron Radiation, Fourth International Conference on Experimental Mechanics, edited by C. Quan, K. Qian, A. Asundi, F. S. Chau, Proc. of SPIE Vol. 7522, 75224B, pp.1-7 (2010). (査読有)
- ⑨ Y. Nakai, K. Fujihara, N. Sei, K. Ando, and B. K. Kim, Fatigue Strength of Sharp Notched Plate of Zr-based Bulk Metallic Glass, Procedia Engineering, Vol. 2, Issue 1, pp.147-154 (2010). (査読有)
- ⑩ D. Shiozawa, Y. Nakai, and T. Murakami, Observation of Crack Propagation under Torsion Fatigue Tests by Synchrotron  $\mu$ CT Imaging, Procedia Engineering, Vol. 2, Issue 1, pp.1413-1419 (2010). (査読有)
- ⑪ Y. Nakai and D. Shiozawa, Observations of Corrosion Pits and Cracks in Corrosion Fatigue of High Strength Aluminum Alloy by Computed-tomography using Synchrotron Radiation, EPJ Web of Conferences 6, 35004 (2010). (査読有)
- ⑫ Y. Nakai, Importance of Inhomogeneity on Fatigue Strength of Bulk Metallic Glass, Fatigue of Materials, Advances and Emergences in Understanding, Edited by T.S. Srivatsan and M. Ashraf Imam, John Wiley & Sons, Inc., pp.395-409 (2010). (査読有)
- ⑬ Y. Nakai and D. Shiozawa, Initiation and Growth of Corrosion Fatigue Pits and Cracks in High Strength Aluminum Alloy Observed by Micro Computed-tomography Using Ultra-bright Synchrotron Radiation, Proceedings of the International Conference on Experimental Mechanics (ICEM 2010), CD ROM (2010). (査読無)
- [学会発表] (計 33 件)
- ① 中井善一, 酒井耕治, 中川憲一, Zr基バルク金属ガラスの繰り返し片振り圧縮応力下での疲労, 日本材料学会第 57 期通常総会学術講演会, 鹿児島市 (2008.5.24).
- ② 中井善一, Zr基金属ガラスにおける疲労き裂の発生と成長, 日本材料学会第 40 回マイクロマテリアル部門委員会第 6 回金属ガラス部門委員会・Zr系、Ti系およびCu系の大形状金属ガラス国際共同研究会, 神戸市 (2008.6.18).
- ③ 中村太郎, 田中 拓, 中井善一, 宮部成央, 微小断面を有する金属細線の疲労特性に及ぼす結晶粒径の影響, 日本材料学会第 4 回マイクロマテリアルシンポジウム, 東京都 (2008.9.23).
- ④ 宮部 成央, 田中 拓, 中井善一, 中村 太郎, 結晶粒径の異なる工業用純鉄細線の疲労損傷評価, 日本材料学会・第 29 回疲労シンポジウム, 京都市 (2008.11.19).
- ⑤ Y. Nakai and Y. Yoshioka, Stress Corrosion and Corrosion Fatigue Crack Growth in Zr-based Bulk Metallic Glass, TMS 2009, 138th Annual Meeting & Exhibition, 2008, San Francisco, CA, USA (2008.2.16).
- ⑥ 小山泰基, 日和千秋, 中井善一,  $\alpha$  黄銅微細結晶粒薄膜材の開発とその疲労強度, 関西学生会平成 20 年度学生員卒業研究発表講演会, 東大阪市 (2009.3.15).
- ⑦ 吉岡泰典, 中井善一, 二口悠, Zr基バルク金属ガラスにおける腐食疲労および応力腐食割れき裂伝ば, 日本機械学会関西支部第 84 期定時総会講演会, 東大阪市 (2009.3.16).
- ⑧ 藤原康平, 中井善一, 安藤州央, Zr基バルク金属ガラス切欠き材の疲労強度, 日本機械学会関西支部第 84 期定時総会講演会, 東大阪市 (2009.3.16).
- ⑨ 中井善一, 藤原康平, Zr基バルク金属ガラスの疲労強度に及ぼす応力勾配の影響, 日本材料学会第 58 期学術講演会, 松山市 (2009.5.23).
- ⑩ Y. Nakai and Y. Yoshioka, Environmentally Assisted Cracking and Corrosion Fatigue Crack Growth of Zr-based Bulk Metallic Glass, The 12th International Conference on

- Fracture (ICF-12), Ottawa, Canada (2009.7.13).
- ⑪ Y. Nakai, D. Shiozawa, T. Kurimura and K. Kajiwara, Observation of Fretting Fatigue Cracks by Micro Computed Tomography with Synchrotron Radiation, The 12th International Conference on Fracture (ICF- 12), Ottawa, Canada (2009.7.13).
- ⑫ 塩澤大輝, 中井善一, 中川和土,放射光 $\mu$ CTイメージングによる腐食疲労損傷の観察, 日本機械学会M&M2009 材料力学カンファレンス, 札幌市 (2009.7.24).
- ⑬ Y. Nakai, K. Fujihara, N. Sei, and B. K. Kim, Fatigue Crack Initiation and Propagation at a Sharp Notch in Zr-based Bulk Metallic Glass, THERMEC' 2009, Berlin, Germany (2009.8.26).
- ⑭ 中井善一, 日和千秋, 牧坂光浩, 小山泰基,  $\alpha$ 黄銅超微細結晶粒材の創成とその疲労強度, 日本機械学会 2009 年度年次大会講演会, 盛岡市 (2009.9.15).
- ⑮ Y. Nakai, D. Shiozawa, T. Kurimura and K. Kajiwara, Observation of Fretting Fatigue Cracks by Micro Computed-Tomography using Ultrabright Synchrotron Radiation, The 4th International Conference on Experimental Mechanics (ICEM 2009), Singapore (2009.11.18).
- ⑯ Y. Nakai, K. Fujihara, N. Sei, K. Ando, Effect of Stress Gradient on Fatigue Strength of Zr-based Bulk Metallic Glass, TMS2010, 139th Annual Meeting & Exhibition, Seattle, WA, USA (2010.2.15).
- ⑰ 中川憲一, 中井善一, 三上恒平, Zr基バルク金属ガラスの疲労強度に及ぼす平均応力および組合せ応力の影響, 日本機械学会関西支部第 85 期定時総会講演会, 神戸市(2010.3.16).
- ⑱ Y. Nakai, K. Fujihara, N. Sei, K. Ando, and B. K. Kim, Fatigue Strength of Sharp Notched Plate of Zr-based Bulk Metallic Glass 10th International Fatigue Congress (Fatigue 2010), Prague, Czech Republic (2010.6.7).
- ⑲ Y. Nakai and D. Shiozawa, Observations of Corrosion Pits and Cracks in Corrosion Fatigue of High Strength Aluminum Alloy by Computed-tomography using Synchrotron Radiation, 14th International Conference on Experimental Mechanics (ICEM 14), Poitiers, France (2010.7.7).
- ⑳ Y. Nakai, Importance of inhomogeneity on Fatigue Strength of Bulk Metallic Glass, International Symposium on Fatigue of Materials Advances and Emergences in Understanding, Houston (2010.10.18).
- ㉑ 中井善一, 中川憲一, 三上恒平, Zr基バ

- ルク金属ガラス平板のねじりによる疲労, 日本材料学会第 30 回疲労シンポジウム, 高知市 (2010.10.30).
- ㉒ 宮部成央, 田中 拓, 赤穂健太, 中井善一, 異なる線径を有する工業用純鉄細線の疲労損傷評価, 日本材料学会第 30 回疲労シンポジウム, 高知市 (2010.10.30).
- ㉓ ① Y. Nakai, K. Nakagawa, and K. Mikami, Fatigue of Zr-based Bulk Metallic Glass under Cyclic Shear Stress, TMS 2011, 140th Annual Meeting & Exhibition, San Diego, USA (2011.3.1).
- ㉔ 安藤州央, 中井善一, 北平大河, Zr基バルク金属ガラスの疲労強度に及ぼす材料の不均質性の影響に関する研究, 日本機械学会関西支部第 86 期定時総会講演会, 京都市 (2011.3.19).
- ㉕ 宮部成央, 赤穂健太, 田中 拓, 小林亮太, 中井善一, 工業用純鉄細線の疲労寿命に及ぼす降伏現象の影響, 日本材料学会第 60 期学術講演会講演論文集, 大阪市 (2011.3.19).

[図書] (計 1 件)

- ① 中井善一, 田中 拓, 日和千秋, 日本材料学会, 界面強度評価ハンドブック, p.105, p.111, p.114 (2011).

[その他]

ホームページ等

<http://www.research.kobe-u.ac.jp/eng-fracture/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

中井善一 (YOSHIKAZU NAKAI)  
神戸大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号：9015565

### (2) 研究分担者

田中 拓 (HIROSHI TANAKA)  
神戸大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号：80236629

日和 千秋 (CHIAKI HIWA)  
神戸大学・大学院工学研究科・助教  
研究者番号：80294198  
(H20~H21)

塩澤 大輝 (DAIKI SHIOZAWA)  
神戸大学・大学院工学研究科・助教  
研究者番号：60379336