

平成 30 年 6 月 26 日現在

機関番号：57301

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26249106

研究課題名(和文) 超顕微材料科学とマイクロ・フラクチャーメカニクスの融合による破壊靱性研究の革新

研究課題名(英文) Study on fracture toughness unifying nanomaterials science and micro fracture mechanics.

研究代表者

東田 賢二 (Higashida, Kenji)

佐世保工業高等専門学校・その他・校長

研究者番号：70156561

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 32,200,000円

研究成果の概要(和文)：{011}シリコンウェハから切り出した試料にビッカース硬度計を用いて圧痕を付与し亀裂を発生させ、更に高温で保持し亀裂先端に転位を導入した。亀裂先端に発生した転位を超高圧電子顕微鏡によって観察し、転位の三次元構造とバーガースベクトルを決定した。その結果、それら転位は亀裂先端を効率的に遮蔽していると共に破壊靱性値の上昇に寄与している事が明らかとなった。更にTi添加極低炭素鋼における脆性-延性遷移温度の変形速度依存性から遷移挙動を律速する転位運動の活性化エネルギーを測定した結果、その値は引張試験を行った歪速度の条件下において約50Kでの転位易動度と対応していることが明らかとなった。

研究成果の概要(英文)：Cracks were introduced on a specimen cut from a {011} silicon wafer by using a Vickers indenter. The sample was heated in order to introduce dislocations at the crack tip. The crack tip dislocations were observed by using high-voltage electron microscope, determining both three-dimensional structures and Burgers vectors of the dislocations at the crack tip. It was found that those dislocations shield the crack tip efficiently, which increases fracture toughness. In addition to that, the activation energy for controlling process of the brittle-to-ductile transition temperature was measured from the dependence of the transition temperature on the deformation rate. It was found the value is close to that of dislocation glide at 50K in the condition of the strain rate employed in the tensile tests performed in this study.

研究分野：金属強度学

キーワード：破壊 転位

1. 研究開始当初の背景

本研究の学術的背景は、1980年代に登場した破壊の物理にある (R.Thomson, *Solid State Physics*, vol.39 (1986)).その理論的基盤により、材料の破壊靱性という一見マクロな力学特性値が「亀裂-結晶格子欠陥相互作用」というミクロな材料科学的見地から定量的に取り扱える物性値となったことにある。

2. 研究の目的

「超顕微鏡構造解析」と遮蔽転位理論に基礎を置く「ミクロ破壊力学」とを融合し、破壊靱性及び脆性-延性遷移(BDT)制御のための指導原理を確立し、そのBCC金属への応用を図ることを目的とした。特に亀裂-転位間相互作用、離散型転位動力学に依拠するミクロ破壊力学に基づく観測結果のモデル化を試み、BDT基本因子を抽出、その制御指針を確立することを目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、まず厚さ630 μm の(011)シリコンウェハを用いた。その試料を8mm x 35mmに切断し、3点曲げ試験により1113Kで63MPaまで応力を負荷した。その後、加速電圧5kVでイオンミリング(Fischione, Model M-1050)により薄膜化した後、ミリング時に導入されたダメージ層を低減するため、2kV, 1kV, 0.5kVで最終仕上げを行った(Fichone, Model 1040)。その試料を収差補正付き透過電子顕微鏡(JEOL, ARM200F)を用いて観察した。

次にウェハ上にピッカース高度計(Mitutoyo, MVK-E3)を用いて負荷荷重0.5N、保持時間7sの条件で圧痕を負荷し、973Kで600s保持した。その後、亀裂先端部を含むようにイオンミリングにより薄膜化した。そして亀裂先端部を超高圧電子顕微鏡(JEOL-1250NEF)を用いて観察を行った。

更にbcc金属における脆性-延性遷移挙動の律速過程を明らかにするためにTi添加極低炭素鋼から1mm x 1mm x 24mmのミニチュア衝撃試験片を作製し、吸収エネルギーの温度依存性を測定した。なお、試料の片面にはノッチを導入し、試料を支えるスパンの間隔は18mmとした。なお衝撃試験はブレードを試験片に衝突させることによって行い、ブレード速度は2m/min, 20m/min, 200m/minで行った。

4. 研究成果

Fig. 1(a)に曲げ試験後のシリコン結晶中に導入された転位の高分解能電子顕微鏡像を示す。電子線の入射方向は[011]方向である。なお、図の右上には対応するトンプソンの四面体を示す。四面体の[011]方向は本来板面方向と平行であるが、 $\langle 110 \rangle$ 方向、 $\{111\}$ 面同士の関係が理解しやすいよう、[011]方向を軸に僅かに傾斜させて示している。赤で囲んだバーガース回路(p および q)は転位をそれぞれ一

つずつ含んでおり、extra-half planeを黄色の線で示している。Fig. 1(b)に完全結晶領域におけるバーガース回路を示す。FS/RHコンベンションに従ってバーガースベクトルを定義するとFig. 1(b)中で示した b_p 及び b_q がバーガースベクトルとなる。解析の結果、これら転位ペアはローマーの不動転位である事が明らかとなった。Fig. 1(c)にFig. 1(a)の結果を基にgeometrical phase analysisにより求めたローマーの不動転位周辺の弾性歪場を示す。なお、x軸は図中に示す様に $[0\bar{1}1]$ 方向、y軸は $[100]$ 方向とする。転位芯を堺にしてextra-half planeが存在する方向では圧縮の弾性歪場が存在し、extra-half planeが存在しない方向では引張の弾性歪場が存在していることが分かる。またこれら転位間の距離はシリコンのバーガースベクトルの大きさをbとすると、 $6b$ であった。観察より明らかとなったこれら転位のバーガースベクトルと位置座標から弾性論に基づく計算によって求めたこれら転位の弾性歪場をFig. 1(d)に示す。図中に示した弾性歪の値を示す等高線より、弾性歪の分布と絶対値がFig. 1(c)で示す実験で得られた結果と定量的にもよく一致している事がわかる。このように転位の周りに発生する弾性歪場を可視化することが可能となった。

次に、ピッカース圧痕で亀裂を導入し、高温で保持する事によって亀裂先端に転位を発生させた試料における亀裂先端近傍の明視野像をFig. 2に示す。亀裂は $[0\bar{1}1]$ 方向に進展し、転位は板面に垂直な亀裂前方の $(1\bar{1}\bar{1})$ 面及び、 $(\bar{1}1\bar{1})$ 面上に載っていた。これらの転位はいわゆるhinge-typeと呼ばれる形状変化を生じさせる塑性変形を引き起こす転位群である。試料ホルダー内で試料を $\pm 40^\circ$ 回転させ、転位の構造解析を行った。また、転位像に見られるコントラストの振動から、これらの転位の符号を求め、その性格を決定した。Fig. 3に亀裂先端転位のバーガースベクトル、迂り面毎に色分けを施した3次元再構築像を示す。亀裂先端では4つの異なる迂り系が活動しており、その内の3つが上述のhinge-typeの塑性変形を生じさせる転位である事が分かった。もう一種類の迂り系を持つ転位群は 45° shear typeと呼ばれる形状変化を引き起こす転位群である事がわかった。これらの結果を基に、hinge-typeの形状変化を生じさせる転位の局部応力拡大係数の計算を行った。その結果、これら転位は亀裂先端部全域にわたって有効に遮蔽していることが明らかとなった。 45° shear-typeの転位では、転位が乗っている迂り面が亀裂面に対して傾いているため、転位ループによって囲まれる亀裂先端領域のみが遮蔽されることから、亀裂全体を有効に遮蔽するためには、新たな転位が亀裂先端から増殖する必要がある。一方hinge-typeの塑性域を生じさせる転位では、一本の転位が発生することによって亀裂先端を有効に遮蔽することが明らかとなった。この遮蔽をもたらす弾性応力はFig. 1(a)で示した転位の弾性歪場であり、ナノレベルの弾性応力が、マクロな破壊靱性値の上昇を引き起こすこととなる事

が示された。

次に熱活性化過程である転位運動の変化を明らかにするため、転位運動の活性化エネルギーの温度依存性を明らかにした。Fig.4 に粒径が $9\mu\text{m}$ の Ti 添加極低炭素鋼における結果を示す。測定範囲は 100K から 200K の間である。得られた結果は 0K から比例関係にあり、その傾きは k をボツルマン係数、 T を温度とすると $27kT$ であった。

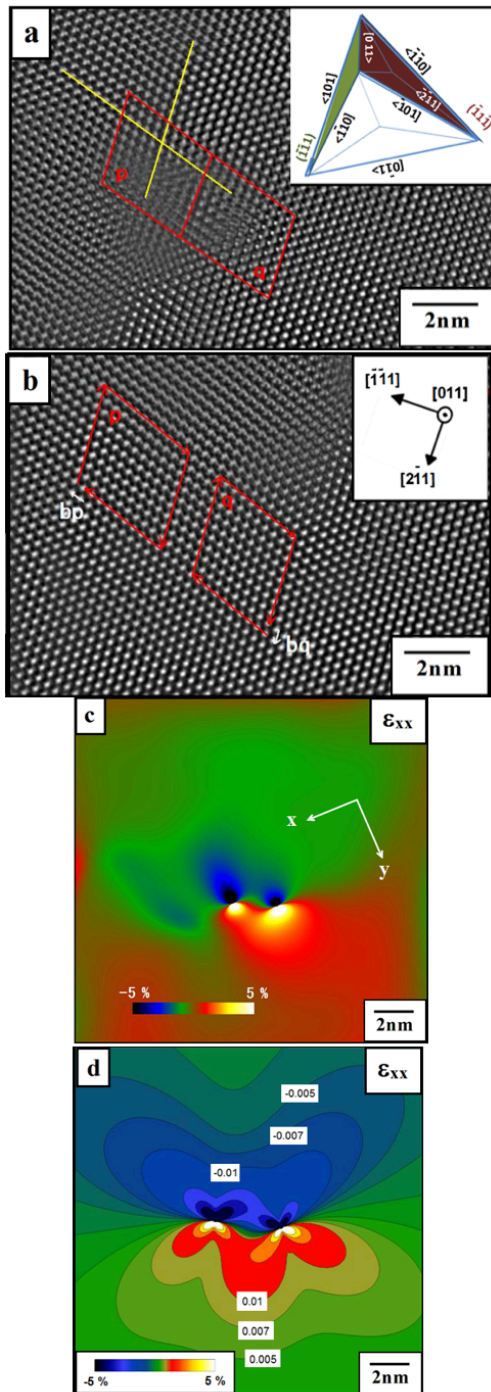


Fig.1 (a)ローマの不動転位の高分解能電子顕微鏡像、(b)完全結晶の高分解能電子顕微鏡像、(c)geometrical phase analysis による弾性歪場、(d)解析式より求めた弾性歪場。

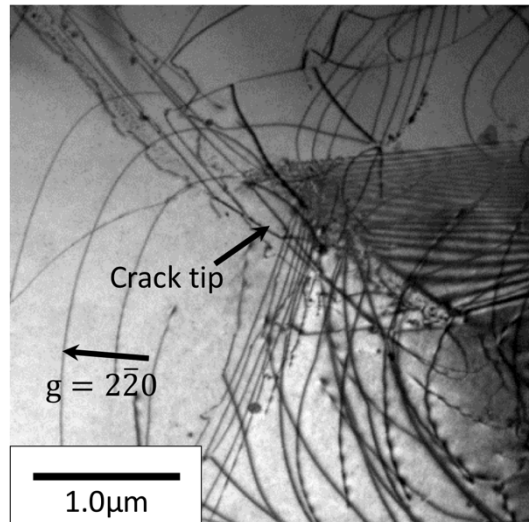


Fig.2 亀裂先端転位明視野像($g = [2\bar{2}0]$)

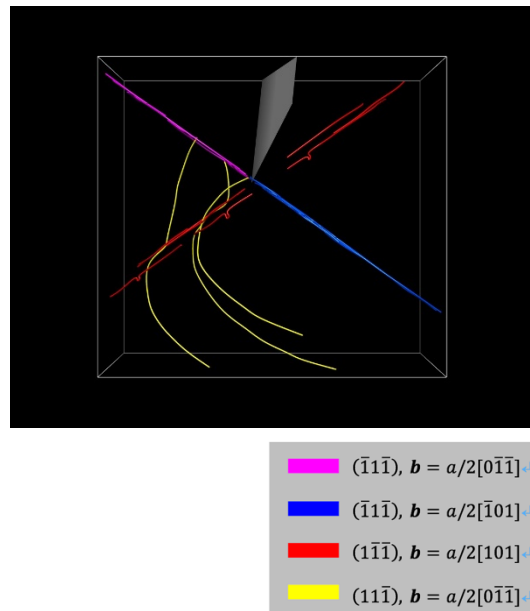


Fig.3 有限要素法で求めた各向き系における臨界分解剪断応力分布

脆性-延性遷移挙動を律速している転位運動の活性化エネルギーを測定するため、破壊靱性値の温度依存性と変形速度依存性を測定した。Fig. 5 に衝撃試験においてブレード速度を 2m/min , 20m/min , 200m/min として測定した吸収エネルギーの温度依存性を示す。何れのブレード速度においても非常に狭い温度域で吸収エネルギーが上昇している事が分かる。ブレード速度が 2m/min , 20m/min , 200m/min における遷移温度はそれぞれ 128K , 170K , 196K とブレード速度が早くなるほど遷移温度が高くなる事が分かった。ここで遷移温度を T_{BDT} とすると、歪速度と遷移温度との関係は次式で与えられることが知られている。

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_0 \exp\left(-\frac{\Delta G}{kT}\right) \quad (1).$$

なお、 $\dot{\epsilon}_0$ は温度に依存しない係数、 ΔG は遷移挙動を律速している素過程の活性化エネルギーであり、それは転位移動の活性化エネルギーとなる。Fig.5 および Eq.(1)より、活性化エネルギーを求めるとその値は $0.14 \text{ eV} \pm 0.01 \text{ eV}$ であった。この活性化エネルギーの値は、Fig.4 より引張試験を行った歪速度のオーダー ($4.2 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$)において 50K 付近での転位易動度に対応していることが分かる。

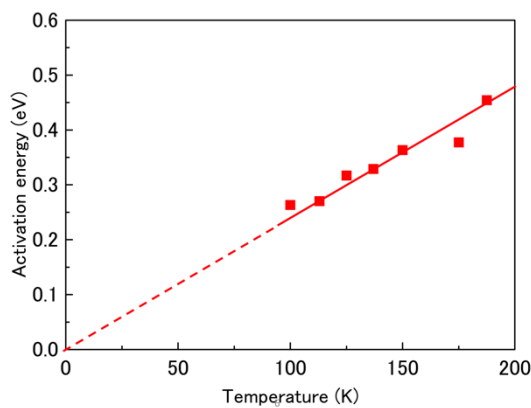


Fig.4 Ti 添加極低炭素鋼における転位易動度の温度依存性。

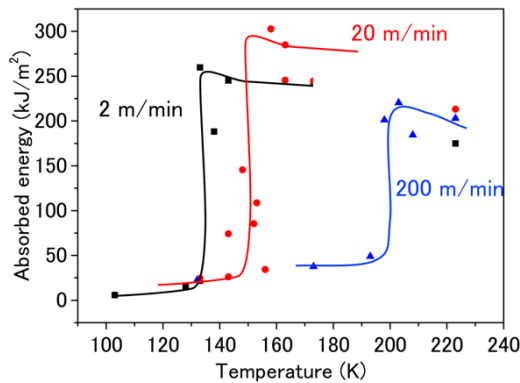


Fig.5 Ti 添加極低炭素鋼における吸収エネルギーの温度依存性

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 5 件)

[1] 田中将己, 定松直, 東田賢二, "亀裂先端転位と脆性-延性遷移挙動", まてりあ, 56, (2017), pp.597-603.

doi:10.2320/materia.56.597

[2] S. Sadamatsu, M. Tanaka, K. Higashida, S. Matsumura, "Transmission electron microscopy of bulk specimens over 10 μm in thickness", Ultramicroscopy, 162, (2016), pp.10-16.

doi:10.1016/j.ultramicro.2015.09.001

[3] 定松直, 田中将己, 東田賢二, 松村晶. エネルギーフィルター搭載超高压電子顕微鏡法による極厚膜試料中の転位観察, まてりあ, 55 (2016), p.597.

doi:10.2320/materia.55.597

[4] D.R. Adhika, M. Tanaka, T. Daio, K. Higashida, "Crack Tip Shielding Observed with High-Resolution Transmission Electron Microscopy", Microscopy, 64, (2015), pp.335-340.

doi: 10.1093/jmicro/dfv032

[5] D.R. Adhika, M. Tanaka, T. Yamamoto, K. Higashida, "Strain Field Around Lomer Sessile Dislocations in Silicon Measured using Geometric Phase Analysis", Trans. Mater. Res. Soc. Japan, 40, (2015), pp.227-233

doi: 10.14723/tmrsj.40.227

[学会発表] (計 12 件)

[1] R. Kato, T. Morikawa, M. Tanaka, "Strain Distribution Due to Martensitic Transformation in Fe-Ni Alloy Under Hydrogen Influence", 日本顕微学会第 60 回記念シンポジウム, ニューウェルンティ宮崎, 宮崎市, 2017 年 12 月 2 日.

[2] M. Tanaka, T. Morikawa, K. Higashida, "Thermally activated process of dislocation gliding at low temperatures in severely deformed metals", The 15th International Conference on Advanced Materials, Kyoto University, Kyoto, Japan, 29 Aug. (2017).

[3] 東田賢二, 田中将己, "結晶塑性と破壊靱性", 金属塑性の理解とモデリング, 山形大学, 米沢市, 2017 年 8 月 17 日.

[4] 下川智嗣, 大橋鉄也, 田中将己, 東田賢二, "ヘテロナノ組織金属の高強度・高延性化に向けた材料科学と連続体および原子モデリングの融合によるアプローチ", 金属塑性の理解とモデリング, 山形大学, 米沢市, 2017年8月17日.

[5] 田中将己, D.R. Adhika, 東田賢二, "高分解能電子顕微鏡法を用いたき裂先端応力遮蔽場の直接観察", M&M2015 材料力学カンファレンス, 慶應大学, 2015年11月21日.

[6] K. Higashida, M. Tanaka, "Understanding fracture toughness based on dislocation behaviors ", Asia Steel International Conference (Asia Steel 2015), Pacifico Yokoyama, Yokoyama, Japan, 6 Oct. (2015).

[7] 安井隼人, 森川龍哉, 田中将己, 東田賢二, "マルテンサイト鋼における脆性-延性遷移挙動と低温焼戻し脆化", 日本鉄鋼協会第168回秋季講演大会, 九州大学, 福岡市, 2015年9月17日.

[8] M. Tanaka, K. Higashida, "HVEM-tomography for crack tip dislocations", 17th International Conference on the Strength of Materials (ICSMA17), Bruno Convention and Exhibition Centre, Bruno, Czech Republic, 10 Aug. (2015).

[9] M. Tanaka, K. Higashida, "Dislocation mobility and low temperature toughness of bulk nanostructured metals", The 2nd International Workshop on Bulk Nanostructured Metals, Rakuyu Kaikan, Kyoto University, Kyoto, Japan, 4 Aug. (2015).

[10] T. Shimokawa, T. Tsuru, Y. Aoyagi, M. Tanaka, K. Higashida, "Influence of Grain Boundary Dislocation Sources on Mechanical Properties of Nanostructured Metals: A Molecular Dynamics Study", The 2nd International Workshop on Bulk Nanostructured Metals, Rakuyu Kaikan, Kyoto University, Kyoto, Japan, 4 Aug. (2015).

[11] 奥野晃弘, 定松直, 足立吉隆, 田中将己, 東田賢二, "HVEM-STEM法によるSi中亀裂先端転位群の3D構造解析", 日本金属学会九州支部・日本鉄鋼協会九州支部・軽金属学会九州支部平成27年度合同学術講演大会, 北九州国際会議場, 北九州市, 2015年6月6日.

[12] 田中将己, 定松直, 東田賢二, "超高压電子顕微鏡によるSi結晶中の亀裂先端転位三次元構造解析", 日本学術振興会第161委員

会 第90回研究会, 九州大学, 福岡市, 2015年3月5日.

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

東田 賢二 (HIGASHIDA, Kenji)
佐世保工業高等専門学校・校長
研究者番号: 70156561

(2) 研究分担者

田中 将己 (TANAKA, Masaki)
九州大学・工学研究院・准教授
研究者番号: 40452809

森川 龍哉 (MORIKAWA, Tatsuya)
九州大学・工学研究院・助教
研究者番号: 00274506

定松 直 (SADAMATSU, Sunao)
鹿児島大学・理工学域工学系・助教
研究者番号 10709554

(3) 連携研究者

松村 晶 (MATSUMURA, Syo)
九州大学・工学研究院・教授
研究者番号: 60150520

下川 智嗣 (SHIMOKAWA, Tomotsugu)
金沢大学・理工研究域・教授
研究者番号: 40361977

山口 正剛 (YAMAGUCHI, Masatake)
原子力研究開発機構・システム計算科学
センター・研究員
研究者番号: 50360417

(4) 研究協力者

なし