

平成 30 年 6 月 12 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H02210

研究課題名(和文) ナノ金属材料の特異な疲労損傷機構の解明とその力学基盤の構築

研究課題名(英文) Elucidation of characteristic fatigue behavior of nano-scale metals and construction of its mechanical foundation

研究代表者

澄川 貴志 (Sumigawa, Takashi)

京都大学・工学研究科・准教授

研究者番号：80403989

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、マイクロ・ナノサイズの金属材料の引張・圧縮疲労挙動を明らかにすることを目的とした。対象材料は銅単結晶とした。低サイクル疲労においては、1サイクル目の引張り負荷でひずみバーストを生じ、続く圧縮負荷によってナノサイズの突き出しを発生した。繰り返し数の増加に伴って突き出し/入り込みが成長し、き裂発生に至った。これは、多数の繰り返し変形により特徴的な転位組織が形成するマイクロ材の突き出し/入り込み発生機構とは大きく異なる。専用の試験装置を開発することで高サイクル疲労も実現し、数百サイクル後からの突き出し/入り込みの成長の観察に成功し、疲労挙動の特定およびそのメカニズムの解明を行った。

研究成果の概要(英文)：In this project, we aimed to examine the tension-compression fatigue behavior of micron- and nano-scale metals. Target material was copper single crystal. In low cycle fatigue, strain burst occurred during tensile deformation in the first cycle. In the compressive half cycle, a nano-scale extrusion was brought about owing to localized reverse slip. Extrusions/intrusions were grown with increasing of number of cycles, resulting in nano-scale cracking. This fatigue behavior was significantly different from that of bulk counterparts where micron-scale extrusions/intrusions with characteristic dislocation structure formation are grown. A special loading device, which was developed in this project, enabled us to realize high cycle fatigue experiment. In the experiment, although noticeable strain burst did not occur, the nano-scale extrusion/intrusion grew from several hundred cycles. On the basis of these results, we clarified the specific fatigue mechanism of micron- and nano-scale metals.

研究分野：微小材料強度学、金属結晶学

キーワード：Fatigue Micron Nano Metal Tension-copmpression In situ observation Single crystal Copper

### 1. 研究開始当初の背景

構造体の破壊原因の多くは繰り返し負荷によって生じる疲労であり、金属材料では、その詳細な疲労メカニズムが明らかにされている。金属材料に繰り返し負荷が加わると、材料内部では塑性変形の源である転位の自己組織化が起こる。塑性ひずみ振幅が大きくなるにつれて、ペイン構造、はしご構造およびセル構造等の特徴的な疲労転位構造が形成される<sup>①</sup>。

一般的に疲労破壊を生じる塑性ひずみ振幅  $\Delta \gamma_{pl}$  の限界は、はしご型構造ができる下限 (銅 (Cu) 単結晶の場合、 $\Delta \gamma_{pl} = 5 \times 10^{-4}$  程度) と一致する。転位のはしご型構造の形成に伴い、局所的に塑性変形を受け持つすべり帯 (固執すべり帯) が現れ、材料表面には入り込み/突き出しと呼ばれる凹凸を生じる<sup>②,③</sup>。入り込み底部では応力集中を生じるため、優先的に疲労き裂が発生する。すなわち、繰り返し変形に伴う突き出し/入り込みの形成は、疲労破壊の重要な役割を担っている。これらの疲労構造の寸法は材料寸法に依存せず、Cu の場合でははしご型構造および固執すべり帯の幅は 1~2  $\mu\text{m}$  程度、セル構造で 0.5~1  $\mu\text{m}$  程度であることが知られている。

半導体デバイスや MEMS (Micro electro mechanical systems) は、その内部にマイクロ~ナノメートルオーダーにまで微細化された金属要素を有する。これらのデバイスの使用時には、機械的振動や繰り返し熱負荷が加わる。しかし、その微細な要素の中には、寸法の観点から数ミクロンサイズの疲労転位構造は存在し得ない。すなわち、マクロ材とは異なる特有の疲労挙動を有するものと考えられる。

バルク金属における突き出し/入り込みの形成には正と負の転位を必要とすることから、両振りの繰り返し負荷を実施する必要がある。これまでに、サブミクロン~マイクロサイズの金属単結晶に対して両振りの曲げ変形を与える研究例が報告されている<sup>④</sup>。しかし、疲労強度には、応力勾配が影響を及ぼすことが知られている。すなわち、微小材料の疲労強度に関する純粋な寸法依存性を評価するためには、応力勾配のない引張・圧縮試験を実施する必要がある。しかし、実験の困難に起因してその実施例は皆無であり、その詳細は一切明らかになっていない。

### 2. 研究の目的

本研究では、制御された形状と結晶方位を有するマイクロ~ナノスケールの微小金属試験片を作製し、引張圧縮疲労試験を実施して、その特異な疲労損傷メカニズムの解明を行うことを目的とした。また、その場観察高サイクル引張圧縮疲労試験を実現するための 6 自由度微小負荷試験装置を開発した。

### 3. 研究の方法

供試材は、銅 Cu 多結晶基板とした。真空

環境下で熱処理を行い、結晶粒の粗大化と残留応力の除去を行った後、集束イオンビーム (FIB: Focused ion beam) (日立ハイテック製、FB2200) 加工を用いて、土台部、試験部およびつかみ部からなるドッグボーン型微小試験片を作製した (図 1)。FIB 加工によって試験片表面に導入された厚さ数十 nm の加工層は、疲労挙動に大きな影響を及ぼすことがわかったため、超低エネルギーアルゴンイオンミリング (日立ハイテクノロジー製、Gentle mill Hi) を用いて除去を行った。試験片は、単一すべり方位を有しており (図 2(a))、図 2(a) 中の表記では、最大の分解せん断応力を有する主すべり系は B4 として記述してある。また、便宜上、試験部の側面を Side 1~Side 4 と呼称する (図 2(b))。本試験片では、主すべりが試験部を貫通する領域は 400 nm 程度である (図 2(c))。

低サイクル引張圧縮負荷試験には、走査型電子顕微鏡 (SEM: Scanning electron microscope) 内に設置可能な微小負荷試験装置 (Hysitron 社製、PI85) を用いた。装置が有するダイヤモンド製負荷チップを鉤型に加工し、試験片のつかみ部にはめ込むことで、引張圧縮試験を実現した (図 3)。実験は、セ

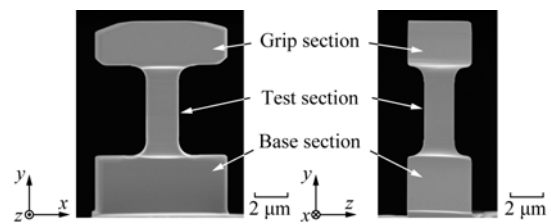


Fig. 1 SEM images of specimen fabricated by FIB.

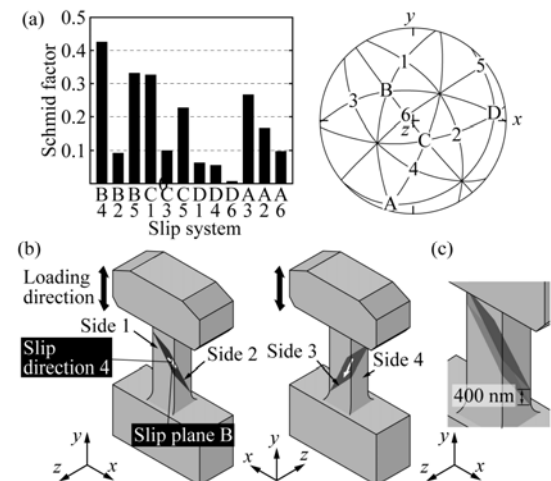


Fig. 2 (a) Schmid factors for specimen, (b) definition of four side surfaces and schematic of primary slip system B4 in test section, and (c) region that B4 can penetrate.

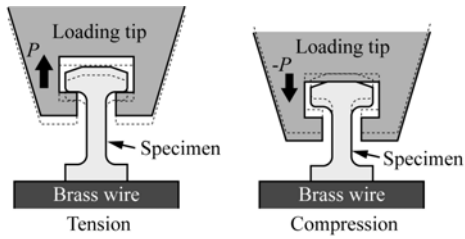


Fig. 3 Loading method of tension-compression low-cycle fatigue experiment.

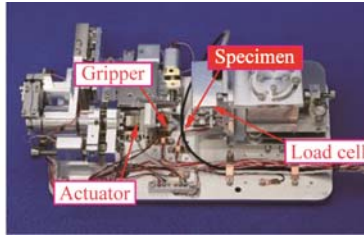


Fig. 4 Developed apparatus for tension-compression high-cycle fatigue experiment.

ミインレンズ式電界放出型走査型電子顕微鏡 (FE-SEM) (日立ハイテク製、SU8230) 内で実施した。

高サイクルでの引張圧縮負荷試験を実現するために開発した 6 自由度微小負荷試験装置を図 4 に示す。本装置においては、精密な軸調整のための三軸方向の並進移動と回転移動を可能にする機構を組み込み、試験片を把持するためのグリッピング機構および試験片への正確な軸方向負荷を与えるための小型スライダ機構を専用開発した。実験は、アウトレンズ式 FE-SEM (日立ハイテク製、SU5000) 内で実施した。

#### 4. 研究成果

図 5 は、低サイクル引張圧縮負荷試験 ( $\Delta \epsilon_a = 7.5 \times 10^{-2}$ 、7 サイクル目で疲労き裂発生) における 1 サイクル目のその場 SEM 観察像および応力-ひずみ関係を示す。引張負荷を与えた最初の半サイクルでは、試験片は弾性変形を示した後、 $\tau_{B4} = 56$  MPa 近傍で降伏を示し、その後  $\tau_{B4} = 82$  MPa に達した際、不安定且つ急速なひずみの増加 (ひずみバースト) を生じた。別途実施した引張試験によって、ひずみバーストが生じた際、試験片内には大量の転位が導入されることを透過型電子顕微鏡 (TEM: Transmission electron microscope) 観察によって特定した。また、この降伏応力は、バルク材の値 (約  $0.5 \text{ Pa}^{\text{⑤}}$ ) に比べると 100 倍以上大きい。残りの半サイクル (圧縮負荷) では、弾性変形挙動を示した後、 $\tau_{B4} = -31$  MPa 近傍で降伏する。すなわち、試験片は降伏点降下現象 (バウシinger 効果) を生じた。その後、加工硬

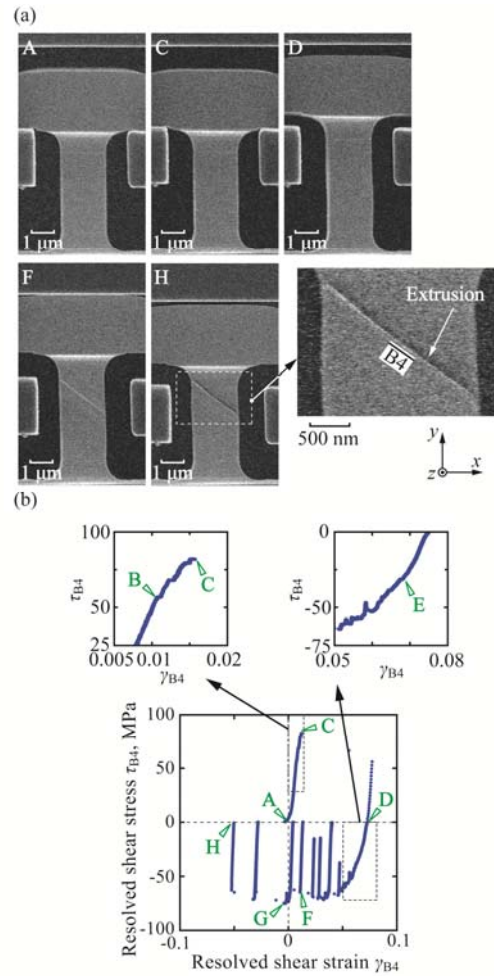


Fig. 5 (a) In situ FE-SEM images and (b) relationship between resolved shear stress and strain on primary slip system in the 1st cycle. The labels correspond to those in (a).

化を伴いながら変位振幅の急増と荷重振幅の急減を繰り返し、 $\tau_{B4} = -75$  MPa (図中 G 点) で圧縮側のひずみバーストを生じた。1 サイクルを終えた時点での SEM 観察像では、圧縮負荷によって試験片中に明瞭な段差が発生していることがわかる。このような段差は、別途実施した一方向引張試験において同等のひずみ (累積ひずみ) を与えた際には生じなかった。圧縮負荷中に試験片は座屈を生じておらず、本手法によって精度良く引張圧縮繰り返し負荷を実現できていることがわかる。

図 6 は、1~6 サイクル終了後の試験片に対して、低スキャンスピードで取得した FE-SEM 観察像を示す。1 サイクル目の引張負荷におけるひずみバーストによって試験片全体に薄いすべり線が生じることに對し、圧縮負荷 (図 6 (a)) では、局所的なすべりの集中が見られる。続く 2 サイクル目でも見られるように、この局所変形は不可逆である。繰り返し

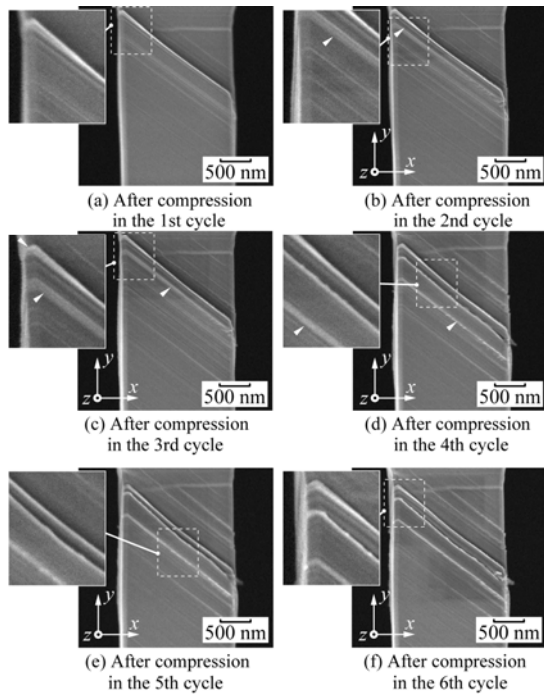


Fig.6 Morphological change of Side 1 of test section.

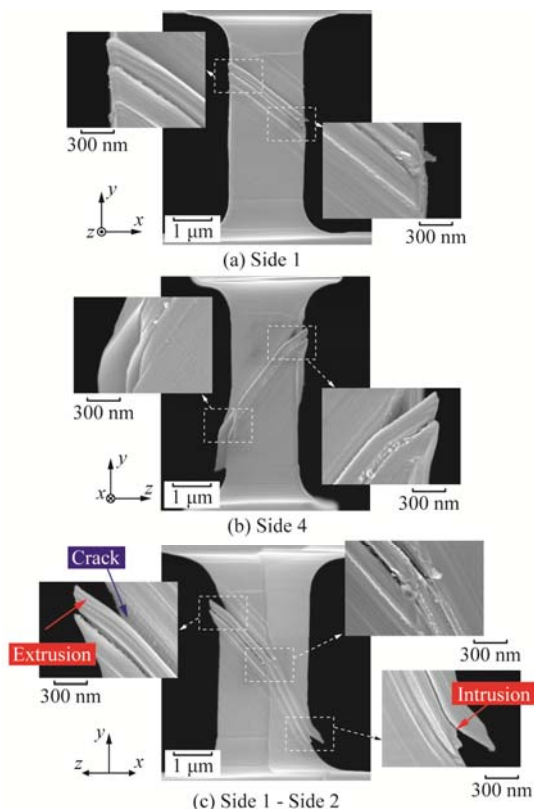


Fig.7 High-resolution FE-SEM images of specimen after uniaxial tension-compression testing.

数の増加と共に局所すべりによって突き出し/入り込みは成長・伸展し、最終的には入り込み底部からき裂を発生する。7 サイクル

面の引張負荷では、設定した変位振幅に対応する荷重の低下が見られたため、試験片にき裂が発生したものと判断し、試験を終了した。図 7 は、試験後の高分解能 FE-SEM 画像を示す。優先的に活動した主すべり系に沿った 100~300 nm の厚さを有する結晶学的なプレートが試験部を貫通している。Side 1 と Side 3 では、170~430 nm の高さの突き出し/入り込みが形成されている。これらの突き出し/入り込みは、バルク Cu の表面上に観察されるもの (幅 1 μm 程度)<sup>⑦</sup> と類似の特徴を有するが、その幅は非常に狭い。片方の面の突き出しは、反対側の面の入り込みに対応している。7 サイクル目においては、鋭い角度を有する入り込み部からき裂が生じたものと考えられる。疲労き裂の発生原因となる突き出し/入り込みは、数サイクルの繰り返し変形のみで形成された。すなわち、その形成機構は、材料内部で転位が自己組織化し、その結果として表面に形成されるバルク Cu の突き出し/入り込み (固執すべり帯形成に伴って生じる突き出し/入り込み) のそれとは明らかに異なっている。また、バルク Cu の場合には、本試験で用いたひずみ振幅では多重すべりを生じ、すべり帯と交差する巨視的変形帯との衝突によって疲労き裂が発生する<sup>⑧</sup>。しかし本試験片では、き裂発生に至るまで平面的なすべりが変形を支配し、入り込み底からき裂が発生した。

高サイクル引張圧縮負荷試験においては、1 サイクル目においては、低サイクル引張圧縮負荷試験と同様のひずみバーストは示さないものの、サイクル数の増加とともに塑性ひずみが増えていく様子が確認された。一方で、応力範囲の顕著な変動は見られなかった。2500 サイクル後には、試験部では高さ数百 nm の巨大な突き出し/入り込みが形成されていた。試験後の TEM 観察から、マクロ材とは大きく異なる下部構造によって突き出し/入り込みが形成されていることを特定した。特に、試験部においてすべりの貫通が抑制される領域では、ナノサイズの疲労転位構造が形成されていることを特定した。また、寸法を変えた試験片を用いて実施し、その疲労寿命に関して、寸法効果があることを示した。ナノ・マイクロスケールの金属の特徴的な疲労現象について、転位動力学法や分子静力学法を用いたシミュレーションを実施し、その力学について検討を行った。その結果、数 nm 程度まで材料寸法が小さくなると、疲労現象が存在しなくなる可能性を見出した。

以上のように、本研究では、微小材料に対する引張圧縮繰り返し負荷試験装置および試験手法を開発し、疲労挙動の詳細を明らかにした。現在においても、現象の重要性に反して、国内外において同様の実験成果は報告されていない。本研究において世界で初めて明らかにした引張圧縮負荷を受けた材料の表面の疲労損傷、内部の下部組織およびその疲労メカニズムは、学術分野だけでなく、産

業界に対しても極めて高いインパクトを与えるものである。

<引用文献>

- ① Mughrabi, H, in: Haasen, P, Gerold, V, Kostorz, G (Eds.), *The Strength of Metals and Alloys*, Pergamon Press, Oxford, 1980, 1615-1639.
- ② Winter, ST, Pedersen, OR, Rasmussen, KV, *Dislocation microstructures in fatigued copper polycrystals*, *Acta Metall.* Vol.29(5), 1981, 735-748.
- ③ Mughrabi, H, *The cyclic hardening and saturation behaviour of copper single crystals*, *Mater. Sci. Eng.*, Vol. 33(2), 1978, 207-223.
- ④ Kiener, D, Motz, C, Grosinger, W, Weygand, D, Pippan, R, *Cyclic response of copper single crystal micro-beams*, *Scr. Mater.* Vol.63, 2010, 500-503.
- ⑤ Garstone, J, Honeycombe, RWK, Greetham, G, *Easy glide of cubic metal crystals*, *Acta Metall.*, Vol.4, 1956, 485-494.
- ⑥ Hirth, JP, Lothe, J, *Theory of Dislocations*, second ed., Krieger Pub. Co., Florida, 1982.
- ⑦ Basinski, ZS, Basinski, SJ, *Fundamental aspects of low amplitude cyclic deformation in face-centred cubic crystals*, *Prog. Mater. Sci.* Vol.36, 1992, 89-148.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計11件)

- ① T. Sumigawa, K. Byungwoon, Y. Mizuno, T. Morimura, and T. Kitamura, *In situ observation on formation process of nanoscale cracking during tension-compression fatigue of single crystal copper micron-scale specimen* (peer-reviewed), *Acta Materialia*, Vol. 153, 2018, 270-278.  
<https://doi.org/10.1016/j.actamat.2018.04.061>
- ② M. Bazilchuk, T. Sumigawa, T. Kitamura, Z. Zhang, H. Kristiansen and J. He, *Deformation and fracture of micron-sized metal-coated polymer spheres: an in-situ study* (peer-reviewed), *Advanced Engineering Materials*, 2018, 1800049-1-6.  
<https://doi.org/10.1002/adem.201800049>
- ③ Y. Yan, T. Sumigawa, T. Kitamura, *A robust in-situ TEM experiment for characterizing the fracture toughness of the interface in nanoscale multilayers* (peer-reviewed), *Experimental Mechanics*, 2018, 1-11.  
<https://doi.org/10.1007/s11340-018-0375-6>

375-6.

- ④ T. Sumigawa, S. Chen, T. Yukishita, T. Kitamura, *In situ observation of tensile behavior in a single silicon nanospring* (peer-reviewed), *Thin solid films*, Vol. 636, 2017, 70-77.  
<https://doi.org/10.1016/j.tsf.2017.05.036>
- ⑤ Y. Yan, K. Huang, T. Sumigawa, T. Kitamura, *Fracture criterion of mixed-mode crack propagation along the interface in nanoscale components* (peer-reviewed), *Engineering Fracture Mechanics*, Vol. 193, 2018, 137-150.  
<https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2018.02.014>
- ⑥ F. Shang, H. Guo, X. Zhang, B. Pan, and T. Sumigawa, *A modified single-arm source model for the size-dependent strain-hardening behavior of metallic micropillars* (peer-reviewed), *International Journal of Mechanical Sciences*, Vol. 133, 2017, 438-448.  
<https://doi.org/10.1016/j.ijmecsci.2017.08.058>
- ⑦ T. Sumigawa, T. Shimada, S. Tanaka, H. Unno, N. Ozaki, S. Ashida, and T. Kitamura, *Griffith Criterion for Nanoscale Stress Singularity in Brittle Silicon* (peer-reviewed), *ACS Nano*, Vol. 11(6), 2017, 6271-6276.  
<http://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/acsnano.7b02493>
- ⑧ K. Huang, Y. Yan, T. Sumigawa, L. Guo, T. Kitamura, *Crack initiation at interface edge by nanometer scale plastic stress intensity* (peer-reviewed), *Engineering Fracture Mechanics*, Vol. 178, 2017, 392-400.  
<https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2017.03.004>
- ⑨ Y. Zou, P. Okle, H. Yub, T. Sumigawa, T. Kitamura, S. Maiti, W. Steurer, R. Spolenak, *Fracture properties of a refractory high-entropy alloy: In situ micro-cantilever and atom probe tomography studies* (peer-reviewed), *Scripta Materialia*, Vol. 128, 2017, 95-99.  
<http://dx.doi.org/10.1016/j.scriptamat.2016.09.036>
- ⑩ P. Gallo, T. Sumigawa, T. Kitamura, F. Berto, *Evaluation of the Strain Energy Density control volume for a nano-scale singular stress field* (peer-reviewed), *Fatigue & Fracture of Engineering Materials & Structures*, Vol. 39(12), 2016, 1557-1564.,  
[10.1111/ffe.12468](https://doi.org/10.1111/ffe.12468)
- ⑪ Y. Zou, P. Kuczera, A. Sologubenko, T.

Sumigawa, T. Kitamura, W. Steurer and R. Spolenak, Superior room-temperature ductility of typically brittle quasicrystals at small sizes (peer-reviewed), Nature communications, Vol. 7, 2016, article number 12261. 10.1038/ncomms12261

[学会発表] (計8件)

- ① 澄川貴志, 銅単結晶マイクロ試験片の繰り返し負荷応答, 日本機械学会 M&M2017 材料力学カンファレンス, 2017年10月7日, 北海道大学(札幌市)
- ② 澄川貴志, 電子顕微鏡内力学実験によるナノ・マイクロ材料の強度特性評価, 名古屋大学 材料バックキャストテクノロジー研究センター(MBT)セミナー, 2018年1月12日, 名古屋大学(名古屋市)
- ③ Takashi Sumigawa, Evaluation on mechanical strength of nano-/micro-scale component, 6th ESISM (Elements Strategy Initiative for Structural Materials) International Workshop, 2/28/2018, Kyoto University (Kyoto)
- ④ 澄川貴志, Cu マイクロ単結晶試験片に対するその場観察引張圧縮試験, マルチスケール材料力学シンポジウム, 2016年5月27日, 富山大学(富山市)
- ⑤ 澄川貴志, 単一すべり方位を有する Cu マイクロ単結晶の低サイクル疲労, 機械学会 2016年度年次大会, 2016年9月12日-28日, 九州大学(福岡市)
- ⑥ 澄川貴志, Cu ナノらせん要素集合薄膜の疲労特性評価, 第二回材料WEEK, 2016年10月12日, 京都テルサ(京都市)
- ⑦ Takashi Sumigawa, Effect of Microscopic Structure on High-cycle Fatigue Damage in Poly-crystalline Nano-copper, 21st European Conference on Fracture (ECF21), 6/20/2016, Catania (Italy)
- ⑧ Takashi Sumigawa, Strain Localization in Polycrystalline Nano-copper Sandwiched between Dissimilar Materials under Fully-reversed Loading, 10th Asia-Pacific Conference on Fracture and Strength (APCF2016), 9/19/2016, Toyama (Japan)

[図書] (計1件)

- ① T. Kitamura, T. Sumigawa, H. Hirakata, T. Shimada, Pan Stanford Publishing Pte. Ltd., Fracture Nanomechanics second edition, 2015, 323頁.

[その他]

ホームページ等

<http://kitamura-lab.mercury.bindcloud.jp/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

澄川 貴志 (SUMIGAWA, Takashi)  
京都大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号: 80403989

### (2) 研究分担者

中村 篤智 (NAKAMURA, Atsutomo)  
名古屋大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号: 20419675

嶋田 隆広 (SHIMADA, Takahiro)  
京都大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号: 20534259

### (3) 連携研究者 なし