

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 15 日現在

機関番号：73905

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03896

研究課題名(和文) ナノ結晶組織制御した微小構造体の疲労強度設計法の開発

研究課題名(英文) Development of fatigue design method of small-sized structures based on controlled nano-crystalline microstructure

研究代表者

田中 啓介 (Tanaka, Keisuke)

公益財団法人名古屋産業科学研究所・研究部・上席研究員

研究者番号：80026244

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：電着法で創製した2種類のニッケル薄膜において切欠きが疲労強度低下に及ぼす影響について検討した。結晶粒径が384nmの超微細粒(UFG)と、17nmのナノ結晶(NCG)である。マイクロ切欠きはFIBにより導入した。切欠きにより疲労強度は低下するが、いずれの切欠き深さにおいてもNCGの方が高強度となった。疲労限度はき裂発生で決まっており、仮想き裂モデルにより疲労強度の低下が予測できた。特性き裂長さはNCGの方がUFGより非常に小さい。UV-LIGA法で創製されたマクロ切欠き試験片の疲労強度低下も仮想き裂モデルにより予想可能である。疲労の微視機構をSEMおよびEBSD観察を基に検討した。

研究成果の概要(英文)：The effect of notches on the fatigue strength reduction was studied using two types of nickel thin films were produced by electrodeposition: ultra-fine grained film (UFG) with the grain size of 384 nm and nano-crystalline grained film (NCG) with that of 17 nm. Micro-sized notches introduced by FIB. The fatigue strength decreased with increasing depth of micro-notches. NCG had much higher strength than UFG compared at the same notch depth. The fatigue limit was controlled by crack initiation. A fictitious crack model successfully predicted the reduction of the fatigue limit due to micro-notches. The characteristic crack length of NCG was much smaller than that of UFG. Macro-notched specimens produced by the UV-LIGA process also follow the fatigue strength reduction predicted by the fictitious crack model. Micro-mechanisms of fatigue crack initiation and propagation on nanocrystalline thin films were examined based on SEM and EBSD observations.

研究分野：材料強度学

キーワード：機械材料・材料力学 疲労 破壊力学 薄膜 ナノ結晶 き裂進展 結晶粒径依存性 微小構造体

## 1. 研究開始当初の背景

ニッケル薄膜は LIGA (Lithographie, Galvanoformung, Abformung) プロセスで製作された MEMS (Micro-Electro-Mechanical Systems) デバイスの主要な構造材料として期待されている。この長期使用に対する健全性保証のためには、薄膜の疲労微視機構の解明と疲労寿命評価法の開発、さらに結晶組織を制御した高い疲労強度を有する構造体の創成法の開発が望まれている。薄膜の高強度化技術としてナノ結晶化が注目されているが、疲労強度および微視機構に及ぼすナノ結晶化の影響に関する検討は少ない。

このような状況を鑑み、申請者らは電着法を用いたニッケルナノ結晶薄膜の創製と疲労機構の解明および疲労強化法の開発を目的として研究を行ってきた。スルファミン酸ニッケル溶に光沢剤量、温度、電流密度などの電着条件を制御することから、粒径が 384 nm 程度の超微細結晶 (UFG: ultra-fine grain) から 17 nm までのナノ結晶 (NCG: nanocrystalline grain) の薄膜を創成することに成功した。疲労限度は結晶微細化により上昇し、粒径が約 10nm 程度までは、ホール・ペッチ関係が成立する。一方、結晶微細化は、き裂進展下限界近傍でのき裂進展抵抗の低下を引き起こすことが明確になった。

実際の微小構造体の疲労破壊は、材料中の欠陥あるいは応力集中部を起点とすることが予想されるために、微小構造体の疲労設計法の開発のためには、疲労微視機構に立脚し、ナノ結晶薄膜の疲労強度に及ぼすマイクロ欠陥やマクロ切欠きの影響を評価することが不可欠となるため、本研究の企画に至った。

## 2. 研究の目的

(1) 電着法で創製した微小構造体には、電着に起因するマイクロ欠陥の存在が予想されるため、電着法で創製したニッケル薄膜中のマイクロ欠陥と疲労強度低下との関係を明らかにする。疲労強度低下と欠陥寸法の関係に及ぼす結晶粒径の影響を求める。

(2) UV-LIGA プロセスにより創製した微小構造体の疲労強度に及ぼすマクロ応力集中の影響を明らかにするために、UV-LIGA プロセスにより種々の切欠きを有するモデル薄膜試験片を創製し、疲労試験をおこない、切欠き効果を電着法で創製した2種類のニッケル薄膜 UFG と NCG について検討する。

(3) 疲労過程中的の薄膜の走査型電子顕微鏡

(SEM)、電子線後方散乱 (EBSD) などによるその場観察を通して、結晶学的観点からナノ結晶薄膜構造体特有のき裂発生・進展における微視機構を明らかにする。

(4) ニッケルナノ結晶薄膜において、応力集中が疲労き裂発生および進展寿命に及ぼす影響の検討を基に、微小構造体の疲労寿命の予測法と疲労強度設計法の基礎を固める。

## 3. 研究の方法

(1) 電着法で創製した超微細結晶(UFG)とナノ結晶(NCG)の薄膜に、FIB (focused ion beam) により、寸法が 8 から 150  $\mu\text{m}$  のマイクロ切欠きを導入し、疲労強度、寿命に及ぼす影響を求める。

(2) UV-LIGA プロセスにより、種々の応力集中を有する切欠き薄膜を UFG と NCG について創製する。疲労限度に及ぼす切欠きの影響を明らかにする。

(3) UFG と NCG のマイクロ・マクロ切欠き薄膜の疲労寿命を、き裂発生寿命とき裂進展寿命の分離してその予測手法を検討する。

(4) 薄膜での疲労き裂の発生・進展過程を SEM および EBSD で観察し、き裂発生・進展の結晶学的微視機構を明らかにする。疲労き裂を有する薄膜に対して負荷除荷サイクルで DIC (digital image correlation) によりき裂の開閉口挙動を測定し、き裂閉口の役割を求める。ナノ結晶のニッケルのバルクを創製し、疲労強度に及ぼす板厚の影響を検討し、ナノ結晶薄膜の疲労の特徴を抽出する。

(5) 仮想き裂モデルを基に、微小構造体中存在するマイクロ欠陥、マクロ切欠きが疲労強度に及ぼす影響を定量的に予測する手法を開発し、疲労強度設計法の基礎とする。疲労寿命をき裂発生寿命とき裂進展寿命に分離し、全寿命の評価法を提案する。

## 4. 研究成果

### (1) マイクロ切欠き付き薄膜の疲労特性

UFG の粒径は 384nm で 001 繊維配向しており、NCG の粒径は 17nm でランダム配向である。NCG は UFG に比較して、ランダム配向のためヤング率が高く、また、耐力と引張強さは細粒化により約 2.3 から 2.4 倍となる。

図 1 に試験片形状を示す。マイクロ切欠きのない試験片を平滑試験片 (SM) として、中央部に FIB により幅 2 $\mu\text{m}$  で深さ 8, 20, 50, 120, 150 $\mu\text{m}$  とした。これらを MN08, MN20, MN50, MN120, MN150 試験片と称する。疲労試験は

室温大気中で、応力比  $R = 0.1$ , 周波数 20 Hz で行った。SM 材の応力集中係数は  $K_t = 1.043$  である。負荷応力はマイクロ切欠きを無視した SM 材の最小断面の最大応力で表示する。つまり、最小断面の公称応力  $\sigma$  に  $K_t$  を掛けた値で表示する。SM 材の最小断面の片側から発生する片側き裂（長さ  $a$ ）の応力拡大係数を FEM により求めた。次式で表される。

$$K = \sigma^* \sqrt{\pi a} \cdot F(a/W) \quad (1)$$

$$F(\xi) = 1.1215 - 0.2592\xi + 4.060\xi^2 - 5.800\xi^3 + 4.116\xi^4$$

ここで、 $\sigma^*$  は最小断面の最大応力である。

図 2 には UFG 材の  $S-N$  曲線を示す。切欠き深さが大きくなると疲労強度が低下する。

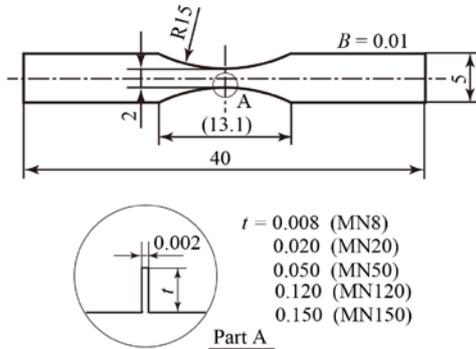


図 1 マイクロ切欠き付き薄膜試験片

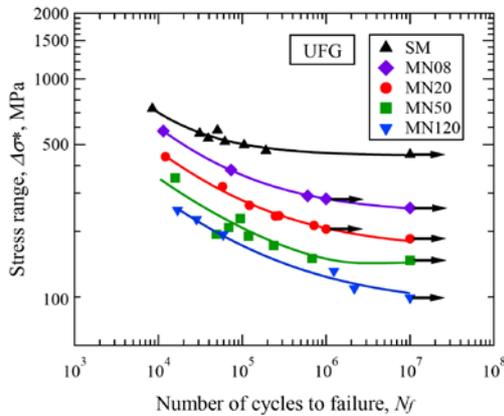


図 2 UFG の  $S-N$  関係

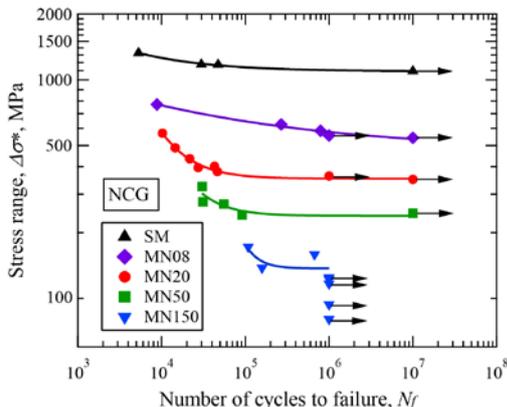


図 3 NCG の  $S-N$  関係

表 1 UFG と NCG の疲労限度

Specimen	Notch length $t$ , mm	Equivalent length, $a^*_{eq}$ , mm	Fatigue limit $\Delta\sigma^*_{w0}$ , MPa	Threshold SIF, $\Delta K_{th}$ , MPam <sup>1/2</sup>
UFG SM	0	0	451	n/a
MN08	8	10.04	273	1.54
MN20	20	25.06	191	1.77
MN50	50	62.43	149	2.09
MN120	120	150.35	105	2.29
NCG SM	0	0	1143	n/a
MN08	8	10.04	564	3.17
MN20	20	25.06	374	3.32
MN50	50	62.43	242	3.39
MN150	150	189.02	135	3.28

また、図 3 には NCG の  $S-N$  曲線を示す。UFG より明らかに高い強度であり、 $S-N$  曲線は明確に折れ曲がり、 $N=10^6$  程度では水平である。

表 1 には疲労限度の応力幅と、マイクロ切欠きをき裂と見なし、式(1)で求めた下限 SIF の値も示す。また、次式で等価き裂長さ  $a^*_{eq}$  を定義する。

$$\Delta K_{th} = \Delta\sigma^*_{w0} \sqrt{\pi t} \cdot F = \Delta\sigma^*_{w0} \sqrt{\pi a^*_{eq}} \quad (2)$$

$$a^*_{eq} = a \cdot F^2 \quad (3)$$

UFG では下限  $\Delta K_{th}$  は欠陥が短くなるほど小さくなるが、NCG ではほぼ一定である。

切欠き底近傍の疲労破面の SEM 観察を行った。切欠き底のいずれの破面にも欠陥は認められない。UFG の破面は少し荒く、電着柱状粒に対応した縦の平行縞が認められる。NCG の破面は滑らかで、非常に小さな粒状模様が認められる。SM 材の破面では、UFG では材料欠陥は認められなかったが、NCG では破壊起点と考えられる電着時の材料欠陥が認められた。

## (2) 仮想き裂モデルによる疲労限度の予測

欠陥寸法が疲労限度に及ぼす影響を予測するモデルの一つとして仮想き裂モデル (fictitious crack model) がある。実際のき裂の先端に仮想的に特性長さ (characteristic crack length) のき裂を追加して、そのき裂の SIF が一定となる条件で疲労限度を与える。き裂半長が  $a_{eq}$  の孤立き裂を考え、その先端に  $a_0$  のき裂追加した仮想き裂の SIF が一定となる条件は次式となる。

$$\Delta K_{th} = \Delta\sigma^*_{w0} \sqrt{\pi (a^*_{eq} + a_0)} \quad (4)$$

平滑材の疲労限度  $\Delta\sigma^*_{w0}$  は  $a^*_{eq} = 0$  のときの応力幅に対応する。これから  $a_0$  は次式となる。

$$a_0 = \left( \Delta K_{th} / \Delta\sigma^*_{w0} \right)^2 / \pi \quad (5)$$

したがって、疲労限度  $\Delta\sigma^*_{w0}$  と欠陥寸法の関係

は次式となる。

$$\Delta\sigma_w^*/\Delta\sigma_{w0}^* = \left[ a_0 / (a_{eq}^* + a_0) \right]^{1/2} \quad (6)$$

表2にはUFGとNCGの $a_0$ と算出に用いた値をまとめる。下限界のSIFとして最も欠陥寸法が大きい場合の値を採用した。特性き裂長さ $a_0$ はUFGで8.14 $\mu\text{m}$ 、NCGで2.61 $\mu\text{m}$ であり、結晶粒径が小さい方が小さな値となるが結晶粒径の20倍から150倍である。

図4にはUFGの疲労限度と欠陥寸法との関係を示す。図中の自拔きのデータは破壊しなかった応力で、塗りデータが破壊した応力である。図中の破線が式(6)の関係を示すが、実験データはこの関係にほぼ一致している。また、図5にはNCGに対する関係を示す。また、この図では平滑SM材の破面に欠陥が認められたので、その欠陥面積 $area$ より等価き裂長さを次式で求めた。

$$a_{eq}^* = (\Delta K / \Delta\sigma)^2 / \pi = 0.423 \sqrt{area} \quad (7)$$

この欠陥寸法と負荷した公称応力幅の関係プロットした。実験データはほぼ $\Delta K_{th}$ が一定の線上に有り、また、SM材のデータもこれに近い。つまり、NCGでは欠陥寸法が数ミクロン程度でも線形破壊力学が適用できて、 $\Delta K_{th}$ によって疲労限度が予測できる。

以上の仮想き裂モデルの適用においてUFG材ではSM材の疲労破面では材料欠陥は認められないのに対して、NCGでは電着時に形成されたのミクロ欠陥が存在し破壊起点

表2 UFGとNCGの特性き裂長さ

Material	Threshold SIF	Fatigue limit		Characteristic crack length
	$\Delta K_{th}$ MPam <sup>1/2</sup>	$\Delta\sigma_{w0}$ MPa	$\Delta\sigma_{w0}^*$ MPa	$a_0$ $\mu\text{m}$
UFG	2.29	432	451	8.14
NCG	3.28	1096	1143	2.61

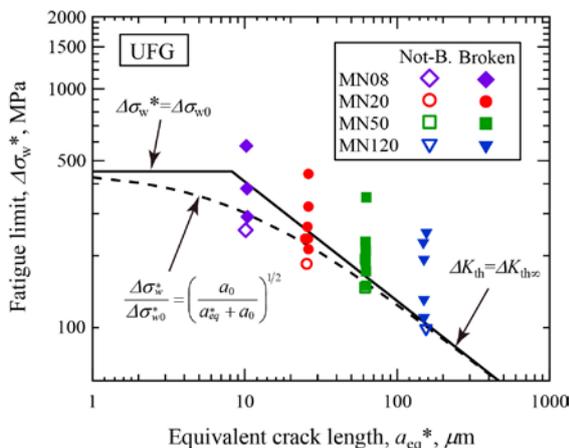


図4 UFGの疲労限度と欠陥寸法の関係

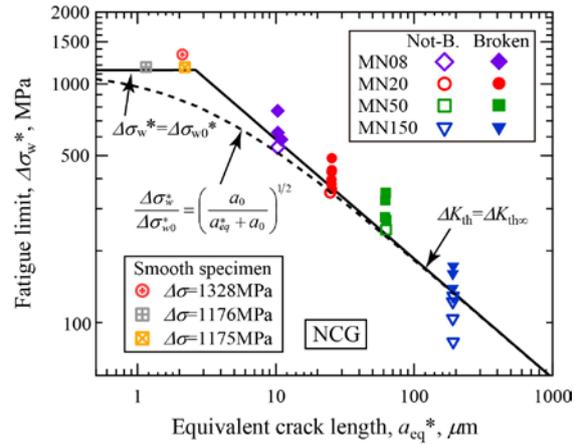


図5 NCGの疲労限度と欠陥寸法の関係

となった。よって、SM材の疲労限度は無欠陥材の疲労限度とはみなしがたい。無欠陥材の疲労限度はさらに高いと考えられ、実際の $a_0$ はさらに小さい値であると予想される。

### (3) UV-LIGA プロセスによる切欠き薄膜の疲労強度評価

種々の応力集中を有する切欠き試験片を作成した。試験片形状を図6に示す。深さ0.5mmの片側切欠きで、先端の曲率半径が0.8, 0.5, 0.1 mmを持つNA, NB, NC試験片である。これらはMEMSデバイスのモデル試験片をみなされマクロ切欠きが薄膜の疲労強度に及ぼす影響の検討を行う。フォトマスクのパターンを使用して、一度に11個の同一形状の試験片を多数製作することが可能である。実際には電着による試験片の厚さが周辺の試験片で大きくなる傾向があるため、中央部の7本の試験片を疲労試験に使用した。

UFGの試験片のS-N曲線を図7に示す。切欠き先端の曲率半径が小さくなると疲労強度も低下する。NCGの結果を図8に示す。同一切欠き形状では後者の方が高い。製作した試験片の欠陥がデータのばらつきの原因となっている。

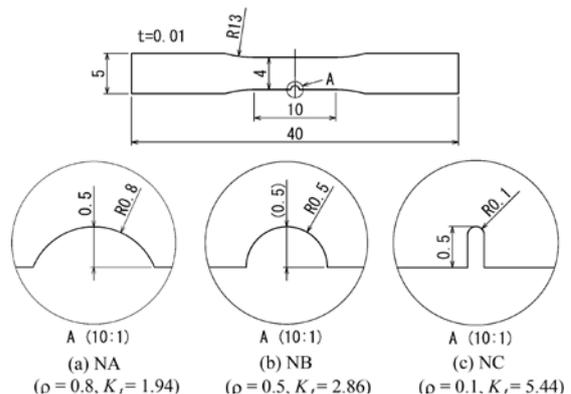


図6 UV-LIGAにより作成した切欠き試験片

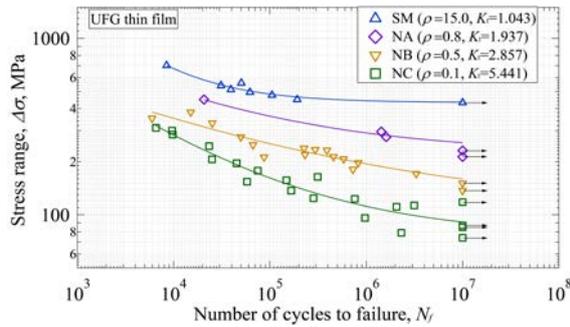


図7 UFGのUV-LIGA試験片のS-N関係

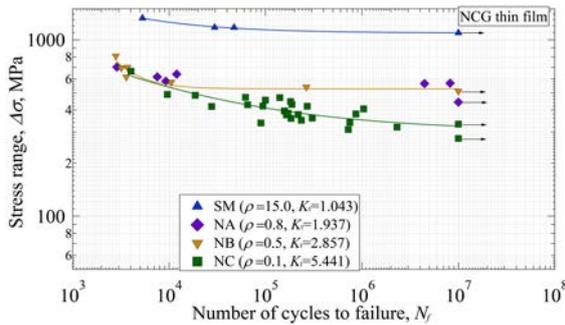


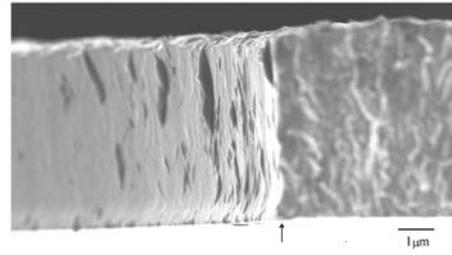
図8 NCGのUV-LIGA試験片のS-N関係

#### (4) 疲労き裂発生と進展の微視機構

切欠き底での疲労き裂の発生の微視的様相の観察を行った。図9はUFGのUV-LIGAのNC切欠き材の破断後の切欠き底近傍のSEM写真であるが、破断面の近傍に突き出しが認められる。また、図10はUFGのMN20材でのき裂発生直後に試験を中断してSEM観察を行った。切欠き底近傍に発生したジグザグのき裂が認められる。つまり、UFGでは従来のマイクロオーダーの結晶粒径の金属材料と同様に、突き出しを伴うすべり変形によってき裂が形成されるものと考えられる。このときに変形単位は4から8mm程度で表2に示す $a_0$ 値に近い。一方、NCGでは粒内の変形はほとんど認められず、粒界変形でき裂が形成されるものとみなされる。

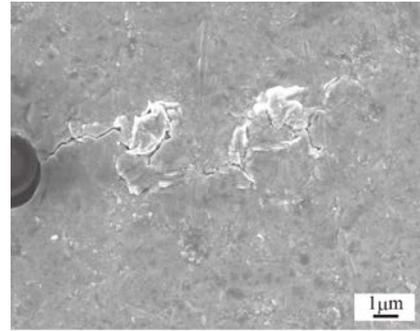
進展中の疲労き裂近傍のSEM観察例を図11に示す。UFGではき裂は粒内のすべり変形を伴いながらジグザグに進展している。一方、NCGではき裂は直線的に進展している。この観察では、SEM内で少し荷重を负荷した状態で観察した。荷重を负荷しなければき裂を識別することも困難で、き裂進展において変形をほとんど伴っていない。

薄膜中を下限界近傍の低速で進展中の疲労き裂に対してDIC法によりき裂開閉挙動を測定した。その結果UFGにはき裂開口が認められたが、NCGではき裂開口は観察されなかった。つまり、NCGの下限界値2.19 MPam<sup>1/2</sup>は有効SIF範囲に等しく、一方、UFG



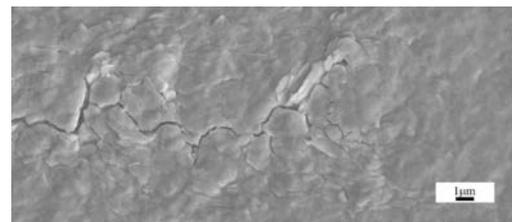
UFG, NC specimen,  $\Delta\sigma = 137$  MPa,  $N_f = 1.66 \times 10^5$

図9 UFG、NC材の切欠き底のSEM

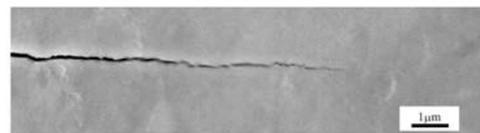


UFG, MN20,  $\Delta\sigma^* = 355$  MPa,  $c = 13.28 \mu\text{m}$

図10 UFG、MN20材の切欠き底の発生き裂



(a) UFG,  $\Delta K = 7.98 \text{ MPam}^{1/2}$ ,  $da/dN = 1.14 \times 10^{-8}$  m/cycle



(b) NCG,  $\Delta K = 9.31 \text{ MPam}^{1/2}$ ,  $da/dN = 2.73 \times 10^{-8}$  m/cycle

図11 進展中の疲労き裂近傍のSEM写真

での下限界値である  $4.26 \text{ MPam}^{1/2}$  はき裂開口を含むものとみなされる。このため、UFGのマイクロ切欠きはき裂開口がないため、き裂発生限界がこれより低くなったものと理解される。一方、NCGではき裂先端の曲率半径の影響によりマイクロ切欠きのき裂発生限界SIFが増大したと考えられる。

電着法で製作した板厚1mm程度のバルク材において疲労き裂近傍のEBSD測定観察を行った。NCGでは分解能以下のため観察できないが、粒径が50nm程度以上になると観察可能である。疲労き裂の進展経路は、粒径が小さくなると粒界の割合が大きくなり、また同一粒径ではき裂進展速度が速くなると粒界の割合が大きくなる。なお、NCGではき裂はほぼ100%近く粒界を進展する。

## (5) 微小構造体の疲労寿命予測と強度設計

微小構造体の疲労寿命  $N_f$  は、き裂発生寿命  $N_i$  とき裂進展寿命  $N_p$  に分けられる。

$$N_f = N_i + N_p \quad (8)$$

切欠き薄膜の疲労過程のビデオスコープによる連続観察により、き裂長さ  $10 \mu\text{m}$  までのき裂発生寿命とそれ以降のき裂進展寿命に分けると、き裂進展寿命は長いき裂の Paris 則の積分によって予測可能である。

微小構造体では切欠きから発生したき裂の停留はなく、疲労限度はき裂発生限度に対応する。き裂開口を有する UFG においても停留き裂が生じないのは構造体の寸法が小さいことに起因する。また、NCG ではき裂開口がないためき裂は停留しない。き裂発生限度の予測にはマイクロ切欠きに対して実証した仮想き裂モデルが有力である。UV-LIGA で作成したマクロ切欠きに対しても適用できることが予想できる。

き裂発生寿命の評価には、疲労限度の予測に用いた仮想き裂モデルから導かれる次のパラメータがローディングパラメータとして利用できるものと期待される。

以上、マクロおよびマイクロ切欠きを有する薄膜の疲労特性の評価を基に微小構造体の疲労寿命評価および疲労強度設計の基礎的な考え方についてまとめた。この後、実際の微小構造体への適用を通して確立されることが期待される。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① K. Tanaka, Y. Murase, H. Kimachi, Effect of micro-notches on fatigue strength of electrodeposited nanocrystalline nickel thin films, MATEC Web of Conferences, 査読有り, Vol. 165, 2018, 04011  
<https://doi.org/10.1051/mateconf/201816504011>
- ② 田中啓介, 竹下峻平, 大塚一史, 佐野勝基, 來海博央, 電着銅薄膜の疲労特性に及ぼす結晶粒径の影響、材料、査読有り、64 巻、2015、915-925  
<https://www.jstage.jst.go.jp/browse/jsms/-char/ja>

[学会発表] (計 6 件)

- ① K. Tanaka, Y. Murase, H. Kimachi, Effect of micro-notches on fatigue strength of electrodeposited nanocrystalline nickel thin films, Fatigue 2018, 2018 年 5 月 30 日、

Futuroscope Convention Center,  
(Poitiers Futuroscope, France)

- ② 石田幸也, 田中啓介, 清水憲一, 村瀬優太, “電着ニッケル薄膜のき裂開口計測に基づく疲労き裂進展特性の評価”, 日本材料学会主催 第 18 回破壊力学シンポジウム、2017 年 12 月 2 日、くまもと県民交流館パレア (熊本)
- ③ 村瀬優太, 長谷光司, 田中啓介, 來海博央, 電着ニッケルナノ結晶薄膜の疲労強度に及ぼす微小切欠き形状の影響 UV-LIGA プロセスによるナノ結晶薄膜試験片の創製と切欠き疲労強度評価、日本材料学会主催 第 18 回破壊力学シンポジウム、2017 年 12 月 2 日、くまもと県民交流館パレア (熊本)
- ④ 伊賀友一郎, 小林大純, 村瀬優太, 田中啓介, 來海博央, 電着ナノ結晶バルク材の疲労特性に及ぼす結晶粒径の影響、M&M2017 材料力学カンファレンス、日本機械学会主催、2017 年 10 月 8 日、北海道大学 (札幌)
- ⑤ 田中啓介, 村瀬優太, 長谷光司, 來海博央, 電着ニッケルナノ結晶薄膜の切欠きによる疲労強度低下の予測、M&M2017 材料力学カンファレンス、日本機械学会主催、2017 年 10 月 8 日、北海道大学 (札幌)
- ⑥ 田中啓介, 永田寛茂, 原口正義, 村瀬優太, 來海博央, 電着ニッケル薄膜切欠き試験片における疲労き裂の発生と進展、日本材料学会、第 66 期学術講演会、2017 年 5 月 27 日、名城大学 (名古屋)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

田中 啓介 (TANAKA Keisuke)  
公益財団法人 名古屋産業科学研究研究所  
研究部 上席研究員  
研究者番号 : 80026244

### (2) 研究分担者

來海 博央 (KIMACHI Hirohisa)  
名城大学 理工学部 教授  
研究者番号 : 30324453

### (3) 研究分担者

清水 憲一 (SHIMIZU Kenichi)  
名城大学 理工学部 准教授  
研究者番号 : 50294434