

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 21 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2022～2023

課題番号：22K18754

研究課題名（和文）自己組織化転位構造の力学制御による可逆塑性しなやか金属の実現

研究課題名（英文）Realization of reversible plasticity in metals by mechanical control of self-organized dislocation structure

研究代表者

澄川 貴志（Sumigawa, Takashi）

京都大学・エネルギー科学研究科・教授

研究者番号：80403989

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：繰り返し負荷によってマイクロ金属単結晶の内部に形成される特異な自己組織化転位構造に着目し、可逆的な塑性変形を生じる材料の創出を目的とした。対象は一辺が2 μm の正方形断面を有するニッケル単結晶であり、マクロ材の疲労き裂発生限界よりも低い応力振幅で引張圧縮繰り返し負荷試験を実施した。特定の結晶方位に配向された試験片では、実験初期にはほぼ弾性的な変形を示したものの途中から大きな塑性ひずみを生じた。試験後の試験片の内部観察によって、マクロ材に見られるはしご型構造と同様の構造が材料全体に形成されていること、および、反応拡散系を対象とした解析によって表面の影響が特異な転位構造を生み出す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

本研究では、ミクロンサイズ材料では、繰り返し負荷によって形成される転位の自己組織化転位構造に対して表面の影響が材料全体に及ぼされることを実験および解析によって明らかにし、結晶方位や材料寸法を調節することで目的とする転位構造を材料全体に発現できる可能性を示した。本成果は、転位の自己組織化構造の制御によって材料に特有の機械特性を生み出すという新しい学術分野を開拓するものであることに加え、将来的にはこれを利用した高機能構造物の創出の可能性も見込まれることから、学術界のみならず産業界や社会へ大きく貢献するものである。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study was to create a material that undergoes reversible plastic deformation by focusing on the peculiar self-organized dislocation structure formed inside micro-sized single crystal metals under cyclic loading. Nickel single crystals with a square cross section of two micrometers on a side were subjected to tension-compression cyclic loading at stress amplitudes lower than the fatigue crack initiation limit of bulk Ni. The specimen oriented to a particular crystallographic orientation showed elastic deformation in the early stages, but exhibited large plastic strain from the middle of the testing. Internal observation of the specimen after the experiment revealed that a structure similar to the ladder-like dislocation one found in the bulk was formed throughout the gauge section of the specimen, and analysis of reaction-diffusion system revealed that surface effects produced the peculiar dislocation structure.

研究分野：材料力学、材料強度学

キーワード：自己組織化 転位構造 金属 可逆塑性 繰り返し負荷

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、パワーデバイス等に用いられる半導体電子デバイスの重要性が世界的に急拡大している。このようなデバイス中には、ナノ～マイクロサイズの金属素子が無数に存在するが、パッケージング時の接合に“硬い”鉛フリーはんだが用いられることでデバイスには大きな熱応力が生じ、金属素子が疲労破壊することが重大な問題となっている。金属の疲労対策では、一般的には「高い応力耐性を付与する」ことが行われるが、電子デバイスのような集積化構造の場合、金属素子の高応力耐性化は、結果として他の部位に大きな応力(ひずみ)を引き起こして破壊に至る。こうした問題の本質的な解決には、降伏を許容して降伏後の大きな繰り返し塑性ひずみに耐えることが求められる。

一方、金属材料が繰り返し変形を受けると内部では転位の自己組織化を生じる。低塑性ひずみ振幅を与えた場合には、内部では転位の双極子が集合した束状組織(vein)が形成される。この構造は安定組織として知られており、vein が分散した構造で材料内が占有される場合には疲労き裂は発生しない。一方、与える塑性ひずみ振幅を上昇させ、ある特定の値に達すると、固執すべり帯と呼ばれる局所的な塑性ひずみの集中領域が現れる。固執すべり帯の内部には、幅数100 nm程度の転位壁とその間の低転位密度領域(チャンネル)で構成されたはしご型構造が存在する。このとき、チャンネル内部では、らせん転位がほぼ可逆的に移動して大きな塑性変形を受け持っている。この局所的な塑性ひずみの集中領域と隣接する安定的な母相(veinとチャンネルで構成された相)との界面における変形の不マッチによって、固執すべり帯と母相の間で疲労き裂が発生する。尚、固執すべり帯やはしご型構造の寸法は、材料寸法には依存せず1～数ミクロンサイズであることが知られている。

申請者は近年、ミクロンサイズの金属単結晶に繰り返し負荷を与えると、表面の力学状態の影響を強く受けた自己組織化転位構造が発現することを見出した。ミクロンサイズの金属単結晶では、全体の体積に対する表面の影響領域の割合が大きいことから、その影響領域を利用することによって、内部の自己組織化構造を制御できると考えられる。すなわち、マクロ材における疲労き裂発生限界以下の応力振幅でははしご型構造と同等の構造を造り出し、可逆的な塑性ひずみ振幅を有する材料を創り出せる可能性がある。またこの時、ペインのような安定化構造の形成を抑制することで、変形の不マッチによる疲労き裂の発生を抑制できる可能性がある。

2. 研究の目的

マイクロ金属単結晶に対して引張圧縮繰り返し負荷を与えて形成される転位の自己組織化構造の支配的力学要因を実験と解析によって明らかにするとともに、人為的に転位構造を制御した「しなやか金属」実現の可能性について検討を行うことを目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、ミクロンサイズの金属単結晶試験片に対して繰り返し負荷試験を実施し、試験後の試験片に対して集束イオンビーム(FIB: Focused ion beam)を用いて数百nm厚さまで薄片化した後、透過透過型電子顕微鏡(TEM: Transmission electron microscope)を用いて内部構造を観察する。そこで、FIBを用いて薄片化を行った際に明瞭な透過像を得ることのできるニッケル(Ni)を対象材料とした。純度99.999%のNi多結晶板を用意し、真空環境下で熱処理(800、24h)を実施した。続いて電子線後方散乱回折によって多結晶板表面の結晶情報および粒界形状を得た後、FIBを用いて所望の結晶方位を有する結晶粒からミクロンサイズの単結晶ブロックを切り出し、真鍮製のピンの先端に搭載した後、土台部、ゲージ部およびつかみ部から構成されたドッグボーン型の試験片を切り出した。ゲージ部は正方形断面を有しており、その一辺は2 μmである。これまでの研究で、Ni単結晶に繰り返し負荷を与えた際、内部の自己組織化転位構造の形成に影響を及ぼす領域は、表面から約1 μmの範囲であることを明らかにしている。すなわち、幅2 μmの試験片は、その体積の大半が表面からの影響領域で占有されている。面心立方金属であるNiは、4つのすべり面のそれぞれに対して3つのすべり方向を有し、計12個のすべり系が存在する。本研究に用いた試験片は、そのうち一つのすべり系の分解せん断応力が高くなる単一すべり方位に配向した。疲労試験には、独自開発の引張圧縮繰り返し負荷試験装置を用いた。本試験装置は、試験片のつかみ部を把持できる機構および負荷軸の調整機構を有しており、ミクロンサイズの試験片に対して正確な引張圧縮繰り返し負荷を与えることができる。負荷装置を電界放出型走査型電子顕微鏡(FE-SEM: Field emission-scanning electron microscope)内に設置し、その場観察下で試験を実施した。試験片には、定変位振幅のもとマクロ材の疲労き裂発生限界(52 MPa)以下の応力振幅となるよう調整した繰り返し負荷を3500回与えた。

加えて、マイクロ試験片中の自己組織化転位構造に及ぼす表面の力学的な影響を明らかにするために、反応拡散系を用いた解析によって検討を行った。本解析は、以下に示すWalgraf-Aifantis(W-A)モデルをベースに実施した。

$$\frac{\partial \rho_s}{\partial t} = D_s \nabla^2 \rho_s + \alpha(\rho_{0s} - \rho_s) - \beta \rho_s + \gamma \rho_m \rho_s^2 \quad (1)$$

$$\frac{\partial \rho_m}{\partial t} = D_m \nabla^2 \rho_m + \beta \rho_s - \gamma \rho_m \rho_s^2 \quad (2)$$

ここで、 ρ_s および ρ_m は、それぞれ不動転位密度および可動転位密度を表す。上記の式に対して、より結晶での塑性変形挙動に近い解析にするために、式(1)および式(2)の間での転位の増殖項の移動および転位双極子の形成項の追加を行った改良版モデルを提案した。

4. 研究成果

実験では、マイクロ Ni 単結晶試験片は、応力振幅（主すべり系への分解せん断応力振幅）が約 35 MPa で飽和した。単一すべり方位を有するマクロ（バルク）Ni 単結晶に引張圧縮繰り返し負荷を加えた際、疲労き裂を発生させる飽和応力振幅は約 52 MPa である。3000 回の繰り返し負荷後、試験片表面には主すべり系の活動による凹凸が見受けられたが、その後凹凸の成長は無かった。試験後、FIB を用いて試験片を約 200 μm の厚さまで薄片化し、さらに FIB によって導入されたダメージ層の除去のために超低加速アルゴンイオンミリングによる表面処理を施した。その後、超高压走査透過電子顕微鏡（JEM-1000K RS）を用いて内部観察を実施した。本応力振幅では、マクロ材の場合、内部には安定なベインが存在する。しかし、試験片にはベインの存在は見受けられず、代わりに試験片中央部にすべり方向と垂直に近い方向に伸びる壁構造が形成されていた（図 1(a)）。さらに、その両側の低転位密度領域にはすべり方向に伸びる転位が観察された。すべり方向と転位の方向から、この転位はらせん転位であると考えられる。すなわち、この構造は、マクロ材におけるはしご状構造（すべり方向に垂直な転位壁が存在し、その間の低転位密度領域においてらせん転位が活動する）に近い。

図 1(b)は、反応拡散系を用いた解析によって得られた結果を示す。拡散係数が平面内で等方である場合（図 1(b)-i）にはベイン構造が形成され、直交軸方向に対して拡散係数に異方性がある場合（図 1(b)-ii）には、壁構造が形成された。ミクロンサイズの金属単結晶の場合、表面からの鏡像力によって、マクロ材に比べて転位の移動に対する異方性が強くなる。このため、マイクロ試験片にはベインではなく、壁構造が形成されたものと考えられる。

図 2 は、実験で得られた分解せん断応力 - 変位関係を示す。1 サイクル目では試験片は弾性的な挙動を示し、約 50 サイクルまでは同様であった。その後徐々に塑性変形を生じ始め、終盤では 1 サイクル毎に引張側と圧縮側で交互に塑性変形を生じる挙動を示すことを確認した。

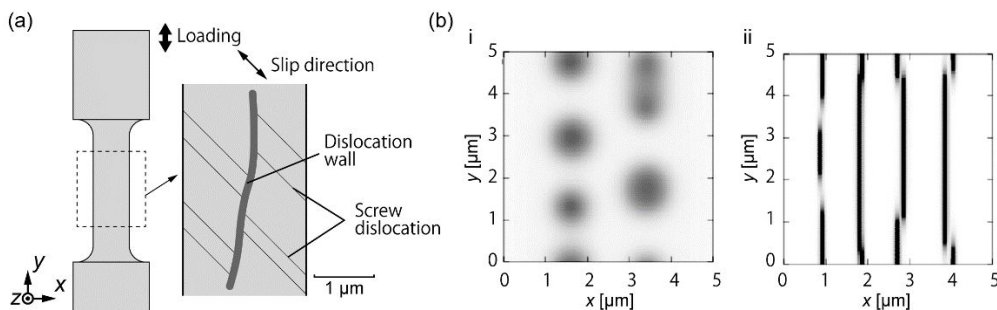


図 1 (a)試験片内に形成された転位構造の模式図，(b)反応拡散系での解析結果。

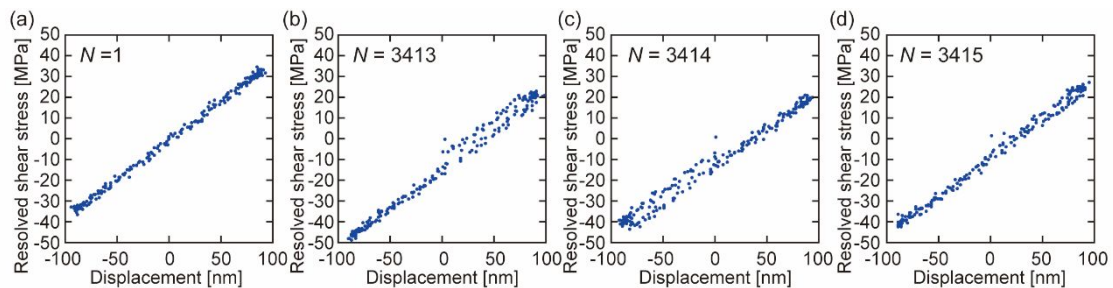


図 2 分解せん断応力 - 変位関係：(a) $N = 1$ ，(b) $N = 3413$ ，(c) $N = 3414$ ，(d) $N = 3415$ 。

マイクロサイズの単結晶金属を対象として、転位の自己組織化構造の制御の観点から、新しい機能を有する材料を創り出すことは国内外でも行われておらず、インパクトは大きい。今後は、降伏応力の上昇を実現する転位構造など、更なる発展が望まれる。

<引用文献>

T. Sumigawa, et al., FE-SEM in situ observation of damage evolution in tension-

compression fatigue of micro-sized single-crystal copper, *Materials Science and Engineering A*, Vol.764, 2019, 138218.

D. Walgraef and E. C. Alfantis, Dislocation patterning in fatigued metals as a result of dynamical instabilities, *Journal of Applied Physics*, Vol.58, 1985, 68-691.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Shima Hiroyuki, Umeno Yoshitaka, Sumigawa Takashi	4. 巻 9
2. 論文標題 Analytic formulation of elastic field around edge dislocation adjacent to slanted free surface	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Royal Society Open Science	6. 最初と最後の頁 220151
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1098/rsos.220151	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Shima Hiroyuki, Sumigawa Takashi, Umeno Yoshitaka	4. 巻 15
2. 論文標題 Nonsingular Stress Distribution of Edge Dislocations near Zero-Traction Boundary	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Materials	6. 最初と最後の頁 4929
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/ma15144929	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Umeno Yoshitaka, Kawai Emi, Kubo Atsushi, Shima Hiroyuki, Sumigawa Takashi	4. 巻 16
2. 論文標題 Inductive Determination of Rate-Reaction Equation Parameters for Dislocation Structure Formation Using Artificial Neural Network	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Materials	6. 最初と最後の頁 2108
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/ma16052108	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Shima Hiroyuki, Umeno Yoshitaka, Sumigawa Takashi	4. 巻 15
2. 論文標題 Spot-Ladder Selection of Dislocation Patterns in Metal Fatigue	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Symmetry	6. 最初と最後の頁 1028 ~ 1028
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/sym15051028	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 安部 正高, 澄川 貴志, 三戸 慎也, 宮澤 和紀	4. 巻 89
2. 論文標題 日本機械学会論文集A編	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Transactions of the JSME (in Japanese)	6. 最初と最後の頁 22-00319
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1299/transjsme.22-00319	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 -

1. 著者名 Kubo Atsushi, Kawai Emi, Sumigawa Takashi, Shima Hiroyuki, Umeno Yoshitaka	4. 巻 31
2. 論文標題 Defect formation mechanisms in metal nanowire under cyclic loading: a molecular dynamics study	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering	6. 最初と最後の頁 065020 ~ 065020
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-651X/acea3b	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 -

1. 著者名 Tobise Akihiro, Shima Hiroyuki, Akiba Yuri, Umeno Yoshitaka, Kawai Emi, Kubo Atsushi, Abe Masataka, Sumigawa Takashi	4. 巻 65
2. 論文標題 Surface outflow effect on dislocation structures in micrometer-sized metals	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Extreme Mechanics Letters	6. 最初と最後の頁 102094 ~ 102094
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.eml.2023.102094	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19件 (うち招待講演 6件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 Takashi Sumigawa
2. 発表標題 Observation of fatigue dislocation structure in micro-sized Ni single crystal specimen
3. 学会等名 2023 International Joint Symposium on Convergence Technology of Mechanical Engineering (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Takashi Sumigawa
2. 発表標題 In Situ Observation of Fracture Dominated by a Single Dislocation and its Governing Mechanics
3. 学会等名 MS&T22 Technical meeting and Exhibitio (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takashi Sumigawa
2. 発表標題 Experimental Investigation of the Fatigue Behavior of Three-dimensionally Small Micro-sized Metals
3. 学会等名 MATERIALS STRUCTURE & MICROMECHANICS OF FRACTURE (MSMF10) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高木 敏行
2. 発表標題 曲げ負荷を受けるBaTiO ₃ ナノ単結晶のドメイン構造変化の観察
3. 学会等名 日本材料学会第8回材料WEEK
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 石坂 大和
2. 発表標題 単一すべり方位を有するナノNi単結晶のTEM内引張圧縮負荷挙動観察
3. 学会等名 日本材料学会第8回材料WEEK
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 穴田 悠樹
2. 発表標題 引張圧縮負荷を受けるマイクロNi単結晶の疲労転位組織形成過程観察
3. 学会等名 日本材料学会第8回材料WEEK
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 角田 純平
2. 発表標題 VO2単結晶ナノ薄膜のモット転移に関する面内単軸ひずみ感受性評価
3. 学会等名 日本機械学会 M&M 2022 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 飛世 昂大
2. 発表標題 マイクロ金属の疲労転位組織形成パターンに関する数値シミュレーション
3. 学会等名 日本機械学会 M&M 2022 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 飛世 昂大
2. 発表標題 疲労した金属の転位組織形成メカニズム解明への数理的アプローチ
3. 学会等名 日本材料学会第7回マルチスケール材料力学シンポジウム 2022年5月
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takashi Sumigawa
2. 発表標題 Characteristic Fatigue of Micro-Sized Single Crystal Nickel
3. 学会等名 The 6th International Conference on Materials and Reliability (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 澄川貴志
2. 発表標題 ナノインデンターを用いた電子顕微鏡内その場観察力学実験
3. 学会等名 フルカージャパン ナノ表面計測事業部 SEM・TEM中の力学試験で微小材料の特性を探る ~ In-situナノインデンター評価技術セミナー ~ (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 澄川貴志
2. 発表標題 転位を起点とするナノ SrTiO ₃ の破壊とその力学基準
3. 学会等名 日本セラミックス協会 第36回秋季シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 杉坂 浩太
2. 発表標題 引張圧縮負荷を受けるマイクロ Ni 単結晶中の疲労転位構造形成過程の観察
3. 学会等名 日本機械学会 M&M 2023 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kim Byungwoon
2. 発表標題 異材界面を有するマイクロ金属単結晶の疲労
3. 学会等名 日本機械学会 M&M 2023 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 杉坂 浩太
2. 発表標題 引張圧縮繰返し負荷を受けるマイクロNi単結晶試験片の疲労転位組織形成過程の観察
3. 学会等名 日本材料学会 第9回材料WEEK
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kim Byungwoon
2. 発表標題 3(111)境界を有するマイクロ銅双結晶試験片の引張圧縮疲労損傷
3. 学会等名 日本材料学会 第9回材料WEEK
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 池田 大輝
2. 発表標題 ナノ金属の引張圧縮疲労試験手法の開発
3. 学会等名 ナノ金属の引張圧縮疲労試験手法の開発
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kota Sugisaka
2. 発表標題 Elucidation of formation mechanism of fatigue dislocation structures in micro-sized Ni single crystal under tension-compression cyclic load
3. 学会等名 The Advanced Technology in Experimental Mechanics and International DIC Society Joint Conference 2023 (ATEM-iDICs '23) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 澄川 貴志
2. 発表標題 ナノ～マイクロ材料に関するその場観察力学実験
3. 学会等名 電子情報通信学会 システムナノ技術に関する特別研究専門委員会主催 第5期 第3回研究会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>京都大学大学院 エネルギー科学研究科 エネルギー変換科学専攻 エネルギー材料設計研究室 http://www.force.energy.kyoto-u.ac.jp/</p>

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
研究協力者	高木 敏行	京都大学	
	(Takagi Toshiyuki)	(14301)	

6. 研究組織（つづき）

	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
研究協力者	石坂 大和 (Ishizaka Yamato)	京都大学 (14301)	
研究協力者	穴田 悠樹 (Anada Yuki)	京都大学 (14301)	
研究協力者	角田 純平 (Tsunoda Junpei)	京都大学 (14301)	
研究協力者	飛世 昂大 (Tobise Akihiro)	京都大学 (14301)	
研究協力者	杉坂 浩太 (Sugisaka Kota)	京都大学 (14301)	
研究協力者	キム ビョンウン (Kim Byungwoon)	京都大学 (14301)	
研究協力者	池田 大輝 (Ikeda Daiki)	京都大学 (14301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------