マイクロ銅の引張圧縮疲労に関する
基礎的研究

Byungwoon KIM

目　次

第 1 章　緒　論 1
第 1 章の参考文献 7

第 2 章　引張圧縮繰り返し負荷を受けるマイクロ Cu 単結晶の疲労損傷その場観察 10
2.1.　緒　言 10
2.2.　実験方法 12
2.2.1.　供試材 12
2.2.2.　試験片 12
2.2.3.　試験システム 16
2.2.4.　試験条件 19
2.3.　結果および考察 22
2.3.1.　引張試験 22
2.3.2.　引張圧縮繰り返し負荷試験 22
2.4.　結　言 33
第 2 章の参考文献 35

第 3 章　引張圧縮負荷を受ける二重すべり方位のマイクロ Cu 単結晶の疲労損傷その場観察 38
3.1.　緒　言 38
3.2.　試験方法 38
3.2.1.　供試材 38
3.2.2.　試験片 39
3.2.3.　試験システムおよび試験条件 39
3.3.　結果および考察 44
3.3.1.　サイクル数の増加に対する $\Delta\delta/2$ および $\Delta\tau_{B4}/2$ の変化 44
3.3.2.　その場 FE-SEM 観察 44
3.3.3.　初期すべり段階 45
3.3.4.　陥没段階 48
3.3.5.　損傷段階 52
3.4.　結　言 58
第 3 章の参考文献 60

第 4 章　双晶境界を有するマイクロ Cu 双結晶の疲労挙動 63
4.1.　緒　言 63
4.2.　実験方法 64
4.2.1.　供試材 64
4.2.2.　試験片 64
4.2.3.　試験システムおよび試験条件 67
4.3.　解析方法 67
4.4.　結果および考察 69
4.4.1.　サイクル数の増加に対する $\Delta\delta/2$ および $\Delta\tau_{B4}/2$ の変化 69
4.4.2.　その場 FE-SEM 観察 69
4.4.3.　試験後の観察 69
4.4.4.　マイクロ Cu 双結晶試験片の疲労挙動 75
4.5.　結　言 82
第 4 章の参考文献 83

第 5 章　結　論 87

第 1 章　緒　論

金属は強度や可塑性の観点から，機械的に優れた材料であり，橋梁や輸送機器等の巨大構造物に用いられている．一方，金属は電気特性にも優れており，近年では，スマートフォン用の CPU（Central processing unit）や生成 AI に必須の GPU（Graphic processing unit）内，あるいはそれらのパッケージングの際に用いられる．微小配線は，ミクロンサイズ以下の銅（Cu），金（Au）およびアルミニウム（Al）等が用いられている．これらの電子製品の信頼性設計のためには，構成要素の正確な機械特性を把握しておく必要がある．

金属が有する機械特性は通常一定である．このため，試験片と呼ばれるサンプルから取得した機械特性によって，巨大な構造物の信頼性設計を行うことが可能である．一方，金属材料において，寸法がミクロンサイズ以下になると機械特性は変化する場合があることが知られており，微小金属の機械特性の評価は，近年とくに重要視されている．金属材料で重要な機械特性の一つは，降伏応力である．金属は結晶材料であり，その塑性変形は結晶面間のすべりによって起こる．このすべりを起こすための応力（臨界分解せん断応力）は材料固有の物性値であり，一般には同材料であればその値は大きく変わらない[1]．しかし，その寸法がミクロンサイズ以下まで小さくなると，その概念が崩れることが示されている．例えば，Volkert[2]らは，集束イオンビーム（Focused ion beam : FIB）加工を用いて 180 nm から 8 μm の直径を有する単結晶アルミニウムピラーを複数作製し，圧縮試験を行った．その結果，ピラー直径が小さくなると，降伏応力が急上昇することを明らかにした（図 1.1）．他のグループの研究でも同様に，材料寸法の縮小に伴う降伏応力の上昇が示されている[2-11]．その主な原因として，①自由表面からの鏡像力（Image force）の影響割合が大きくなり，転位源の活動が困難になる[12,13]，②材料中に存在する初期の転位増殖源（フランク・リード源）の数が減少し，活動に必要なせん断応力が高くなる[14]，および，③フランク・リード源の長さが材料寸法によって制限されることで活動に必要なせん断応力が高くなる[15]等が考えられている．

一方，金属構造物の破壊の多くの原因は，疲労破壊である[16,17]．疲労破壊では，一回では破壊されない負荷であっても，それを繰り返して与えることで材料表面にき裂が発生し，そのき裂が伝ぱすることで最終破断に至る．19 世紀の産業革命から広く普及した運送手段である鉄道の車軸の疲労破壊による事故をきっかけに，疲労に関する研究は現代まで活発に行われてきた．ドイツの研究者である Wöhler が発表した，一定の繰り返し負荷（応力）と破壊に至るまでの繰り返し数の関係を示す *S-N* 曲線がその代表である[18]．その後，解析的に取得した

理想強度よりも著しく低い塑性変形（すべり変形）開始応力を説明するため，Taylor，Orowan および Polanyi によって，結晶内の“しわ”と表される線欠陥－転位－が提案された[19-21]．20 世紀の半ばに開発された電子顕微鏡によって，金属結晶中の転位の存在およびその運動が直接的に観察され，金属の塑性変形および疲労き裂発生の基礎メカニズムの理解に寄与した[22]．その後，転位の形態，発生および運動を記述する転位論は，金属を含む結晶材料の塑性変形や機械的特性を理解できる重要な学問となった[23]．転位論に基づいて疲労破壊のメカニズムを検討した研究は現在に至るまで多数行われている．

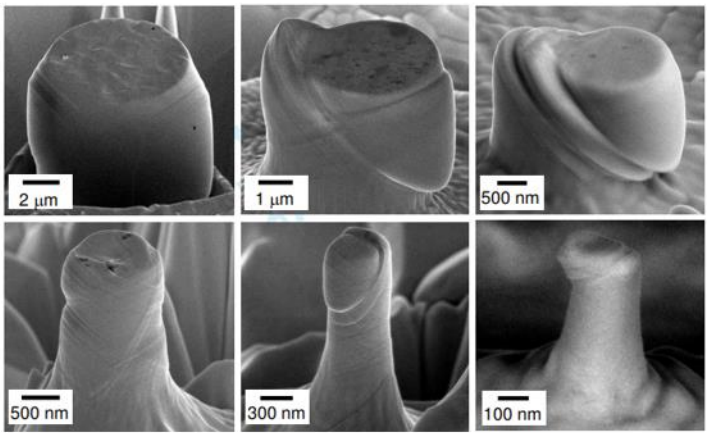
金属の疲労における基礎的な研究は，当初は，Cu に代表される面心立方（Face-centered cubic : FCC）構造を有する純金属が用いられてきた．図 1.2 は，単一すべり方位を有するバルク Cu 単結晶の室温における繰り返し応力－ひずみ線図（Cyclic stress strain curve : CSSC）を示している[24]．縦軸および横軸は，それぞれ飽和応力振幅および塑性ひずみ振幅を示す．CSSC は，塑性ひずみ振幅の大きさによって，低塑性ひずみ振幅領域（図中 A 領域），中塑性ひずみ振幅領域（図中 B 領域）および高塑性ひずみ振幅領域（図中 C 領域）の 3 つの領域に分けられる．

低塑性ひずみ振幅領域（領域 A）では，塑性ひずみ振幅の増加に伴い，飽和応力振幅も上昇する．この領域では，Cu 試験片内部において正と負の刃状転位がエネルギー的に安定になる転位双極子が高密度に集まった“ベイン”が形成される（図 1.3(a)[25]）．ベインは，その周辺の転位密度の低い領域（チャンネル）と比較し，約 3 桁高い転位密度を示す．ベインは安定的な構造であり，試験片は内部にベインを形成することで，繰り返し加工硬化を生じる．また，この領域では疲労き裂は発生しない[26,27].

中塑性ひずみ振幅領域（領域 B）では，特定の塑性ひずみ振幅（$\gamma_{pl\text{-}I}$）を境界に，飽和応力振幅が一定（τ_s*，約 27.5 MPa[24]）となる．この領域においては，ベインーチャンネル構造中に，転位双極子が集まった転位壁が規則的に配列した“はしご状構造”を生じ，“固執すべり帯（Persistent slip band : PSB）”と呼ばれる局所変形領域を形成する（図 1.3(b)[27]）．

塑性ひずみ振幅がさらに大きくなった高塑性ひずみ振幅領域（領域 C）では，特定の塑性ひずみ振幅（$\gamma_{pl\text{-}II}$）を境界に，飽和応力振幅は増加する．この領域では，複数のすべり系が同時に活動することで“ラビリンス構造”（図 1.3(c)[28]）や，“セル構造”（図 1.3(d)[29]）と呼ばれる転位構造が形成される．

(a)



(b)

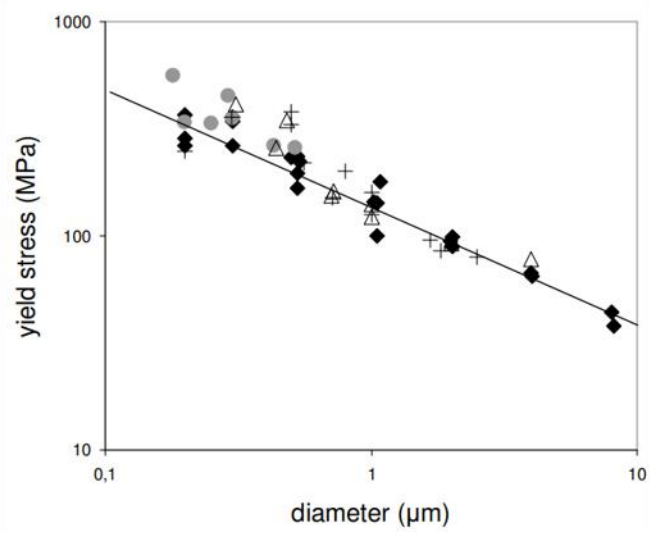


Fig. 1.1 Compression test result for micro-sized aluminium column in previous study. (a) SEM images of deformed aluminium columns, and (b) relationship between yield stress and diameter.

中塑性ひずみ振幅領域で形成される PSB は，母相（ベイン＋チャンネル）と比較して塑性ひずみを大きく受け持つため，材料表面に“入り込み/突き出し”と呼ばれる凹凸を発生する．PSB と母相との界面，および，入り込み底部には応力集中が発生するため，疲労き裂の優先的発生起点となる．すなわち，低塑性ひずみ振幅領域と中塑性ひずみ振幅領域との境界，もしくは，中塑性ひずみ振幅領域における飽和応力振幅は，疲労き裂の発生限界を示す．

疲労き裂の発生において重要な役割を果たす PSB やはしご状構造のサイズは，材料寸法と関係なく数ミクロン程度であることが報告されている[24-29]．したがって，ミクロンサイズ以下の金属では，寸法の観点から材料内部および表面に前述した疲労組織を内包できない．そのため，降伏応力の場合と同様に，ミクロンサイズ以下の金属材料では特有の疲労挙動を示すことが考えられる．しかし，ミクロンサイズ以下の金属に対する疲労研究は十分ではない．

本研究は，ミクロンサイズ FCC 金属を対象として引張圧縮繰り返し負荷試験を実施し，その疲労現象を明らかにすることを目的とした．

本論文は，本章を含め全 5 章から構成される．

第 1 章は，緒論であり，本論文における研究背景，および，本論文の構成を示した．

第 2 章では，単一すべりに配向され，一辺が 2 μm の正方形断面を有する Cu 単結晶試験片を作製し，完全両振り状態での引張圧縮繰り返し負荷試験に挑戦した結果について述べる．1 サイクル毎の試験片の変化をその場観察のもとで明らかにするとともに，疲労現象および疲労き裂発生の有無について検討する．

第 3 章では，実用の金属材料は多結晶且つその構成結晶粒の内部では複数のすべりが活動することを鑑み，二重すべり方位に配向された Cu 単結晶試験片を作製した．引張圧縮繰り返し負荷試験用に専用開発された負荷試験装置を用い，複雑な変形挙動の特定とともに，そのメカニズムについて検討した内容について述べる

第 4 章では，FCC 多結晶金属において疲労破壊に大きな影響を及ぼす Σ3(111) 整合双晶境界に着目し，Σ3(111)整合双晶境界を有するマイクロ Cu 双結晶試験片を作製した．引張圧縮疲労試験を実施した後，力学解析を援用し，Σ3(111)整合双晶境界が及ぼす力学効果を踏まえたうえで，その特有の疲労挙動を明らかにした結果を述べる．

第 5 章では，本研究で得られた結果を結論として総括する．

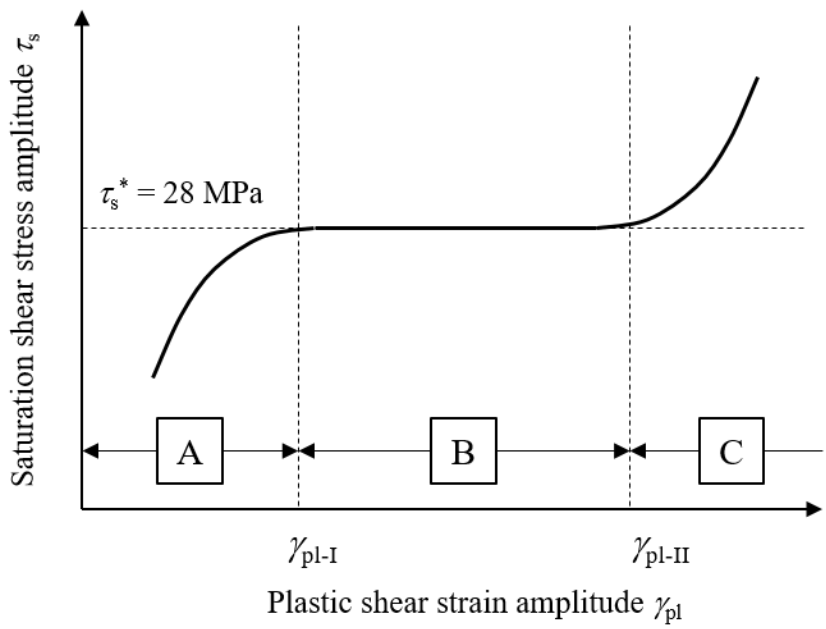


Fig. 1.2 Cyclic stress-strain curve (CSSC) of bulk single crystalline copper at room temperature.

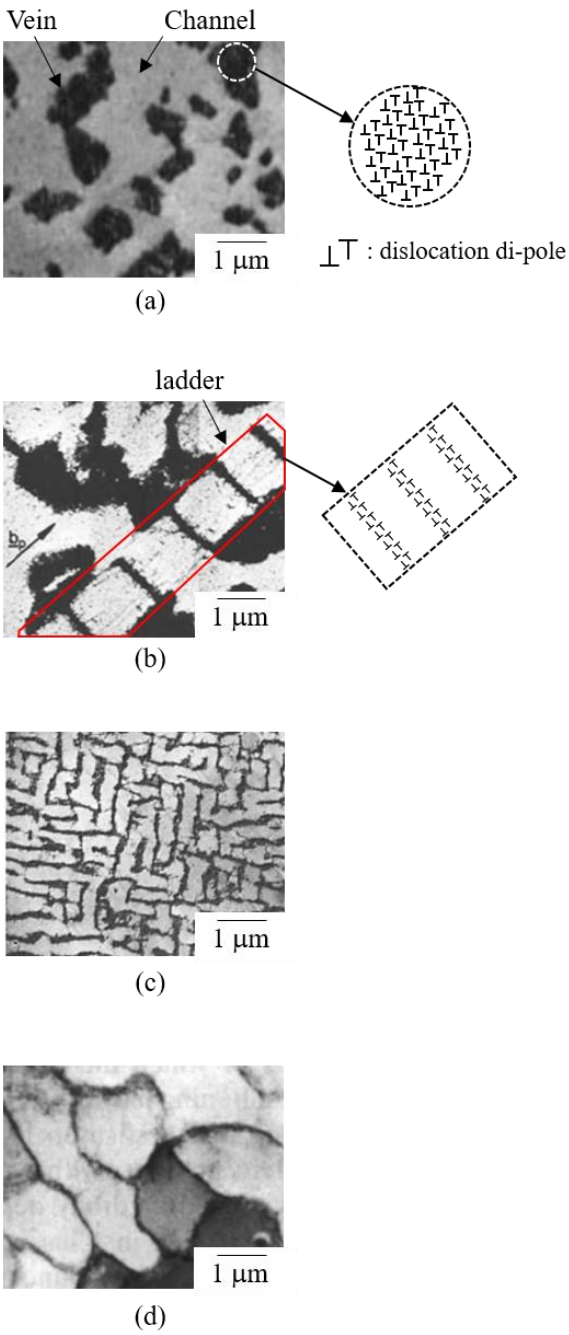


Fig. 1.3 TEM images of fatigue dislocation structures in copper single crystal: (a) vein-channel structure[25], (b) ladder-like structure[27], (c) labyrinth structure[28], and (d) cell structure [29].

第 1 章の参考文献

[1] R.W. Cahn, and P. Haasen,.Physical metallurgy. Vol. 1. Elsevier, 1996.

[2] C.A. Volkert, E.T. Lilleodeen “Size effects in the deformation of sub-micron Au columns.” Philosophical magazine. 86 (2006): 5567–5579

[3] D.M. Norfleet, D.M. Dimiduk, S.J. Polasik, M.D. Uchic, and M.J. Mills "Dislocation structures and their relationship to strength in deformed nickel microcrystals." Acta Materialia 56.13 (2008): 2988-3001.

[4] D. Kiener, and A.M. Minor "Source-controlled yield and hardening of Cu (100) studied by in situ transmission electron microscopy." Acta Materialia 59.4 (2011): 1328-1337.

[5] E. Demir, and D. Raabe "Mechanical and microstructural single-crystal Bauschinger effects: Observation of reversible plasticity in copper during bending." Acta Materialia 58.18 (2010): 6055-6063.

[6] S.H. Chen, and B. Feng. "Size effect in micro-scale cantilever beam bending." Acta Mechanica 219 (2011): 291-307.

[7] J. Gong, and A.J. Wilkinson "Anisotropy in the plastic flow properties of single-crystal α titanium determined from micro-cantilever beams." Acta Materialia 57.19 (2009): 5693-5705.

[8] D. Kiener, W. Grosinger, G. Dehm, and R. Pippan "A further step towards an understanding of size-dependent crystal plasticity: In situ tension experiments of miniaturized single-crystal copper samples." Acta Materialia 56.3 (2008): 580-592.

[9] D. Kiener, and A.M. Minor. “Source truncation and exhaustion: insights from quantitative in situ TEM tensile testing.” Nano letters 11.9 (2011): 3816-3820.

[10] D.M. Norfleet, D.M. Dimiduk, S.J. Polasik, M.D. Uchic, and M.J. Mills “Dislocation structures and their relationship to strength in deformed nickel microcrystals.” Acta Materialia 56.13 (2008): 2988-3001.

[11] S.V. Samaee, R. Gatti, B. Devincre, T. Pardoen, D. Schryvers, and H. Idrissi “Dislocation driven nanosample plasticity: new insights from quantitative in-situ TEM tensile testing.” Scientific reports 8.1 (2018): 12012.

[12] C.A. Volkert, E.T. Lilleodeen “Size effects in the deformation of sub-micron Au columns.” Philos. Magn. 86 (2006): 5567–5579

[13] P.M. Anderson, J.P. Hirth, and J. Lothe "Theory of dislocations." Cambridge University Press, 2017.

[14] F.C. Frank "The frank-read source." Proceedings of the Royal Society of London. A. Mathematical and Physical Sciences 371.1744 (1980): 136-138.
[15] T.A. Parthasarathy, S.I. Rao, D.M. Dimiduk, M.D. Uchic, and D.R. Trinkle "Contribution to size effect of yield strength from the stochastics of dislocation source lengths in finite samples." Scripta Materialia 56.4 (2007): 313-316.
[16] S.T. Rolfe, and J.M Barsom. “Fracture and fatigue control in structures: Applications of fracture mechanics.” ASTM International, 1977.
[17] M.R. Mitchell. "Fundamentals of modern fatigue analysis for design." ASM Handbook, (1996).
[18] Wöhler "Versuche zur Ermittlung der auf die Eisenbahnwagenachsen" Zeitschrift für Bauwesen 10; English summary (1867): Engineering 1860;4:160–1.
[19] E. Orowan "Zur kristallplastizität. III: Über den mechanismus des gleitvorganges." Zeitschrift für Physik 89.9 (1934): 634-659.
[20] G.I. Taylor "The mechanism of plastic deformation of crystals. Part I.—Theoretical." Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character 145.855 (1934): 362-387.
[21] M. Polanyi "Über eine Art Gitterstörung, die einen Kristall plastisch machen könnte." Zeitschrift für Physik 89.9 (1934): 660-664.
[22] P.B. Hirsch, R.W. Horne, and M.J. Whelan "LXVIII. Direct observations of the arrangement and motion of dislocations in aluminium." Philosophical Magazine 1.7 (1956): 677-684.
[23] P.M. Anderson, J.P. Hirth, and J. Lothe "Theory of dislocations." Cambridge University Press, 2017.
[24] H. Mughrabi "The cyclic hardening and saturation behaviour of copper single crystals." Materials Science and Engineering 33.2 (1978): 207-223.
[25] S.J. Basinski, Z.S. Basinski and A. Howie "Early stages of fatigue in copper single crystals." Philosophical Magazine 19.161 (1969): 899-924.
[26] N.Y. Jin "Formation of dislocation structures during cyclic deformation of FCC crystals—I. Formation of PSBs in crystals oriented for single-slip." Acta Metallurgica 37.7 (1989): 2055-2066.
[27] H. Mughrabi, F. Ackermann, and K. Herz, ASTM International (1979)
[28] C. Laird, P. Charsley, and H. Mughrabi "Low energy dislocation structures produced by cyclic deformation." Materials science and engineering 81 (1986): 433-450.
[29] C. Laird, Z. Wang, B. T. Ma, and H. F. Chai "Low energy dislocation structures produced by cyclic softening." Materials Science and Engineering: A 113 (1989): 245-257.

1. 緒　論

第 2 章　引張圧縮繰り返し負荷を受けるマイクロ Cu 単結晶の疲労損傷その場観察

2.1. 緒　言

三次元的にミクロンサイズの微小材料に対する疲労試験は，試験の容易さから繰り返し曲げ負荷試験[1-6]および繰り返し圧縮負荷試験[7-9]が実施されている．例えば，約 600 nm～6 μm 寸法の Au 単結晶において，共振を用いた繰り返し曲げ負荷試験の結果が報告されている（図 2.1(a)[6]）．この研究では，繰り返し負荷を受けたバルク金属材料において生じる入り込み/突き出しが観察されたが，その寸法はナノ～サブマイクロオーダーであり，試験片寸法に依存していた．また，この疲労損傷の形成に必要な応力は，バルク Au 単結晶より高い値を示した．Kiener らによって報告されたミクロンサイズ Cu 単結晶に対する繰り返し曲げ負荷試験の結果[2]では，フック形状の負荷チップを用いて試験片に繰り返し曲げ変形を与え（図 2.1(b)），試験片の応力集中部における局所的なすべり変形を観察した．また，試験片は局所的に硬化し，ひずみが材料全体に分配される様子を示した．しかし，そもそもバルク金属疲労において，疲労強度に影響を与えるのは，①応力振幅，②平均応力，③ひずみ勾配および④残留応力であることが知られており，ひずみ勾配の存在は，材料寸法の縮小とともに疲労強度を上昇させる[4-6]．ミクロンサイズ金属材料の疲労に関する純粋な寸法効果を明らかにするためには，平均応力，ひずみ勾配および残留応力の影響が排除された完全両振りでの引張圧縮繰り返し負荷試験を実施する必要がある．しかし，実験の困難さから，ミクロンサイズの試験片に対して引張圧縮繰り返し負荷試験を実施した報告例はない．

本章では，ミクロンサイズの Cu 単結晶に対する引張圧縮繰り返し負荷試験に挑戦した．試験をその場観察下で実施して，1 サイクル毎にその様相の変化を特定し，疲労損傷過程を明らかにした．

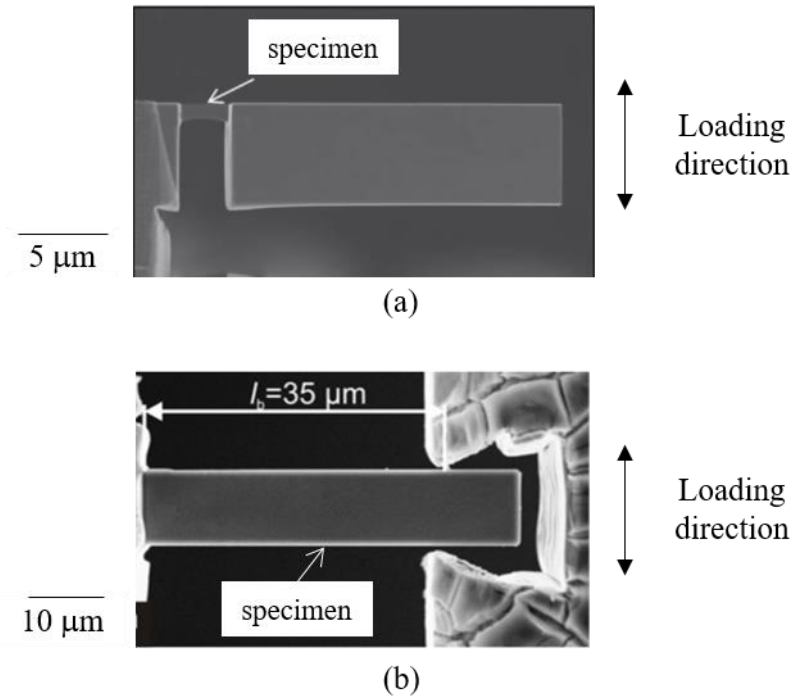


Fig. 2.1 Bending cyclic test specimens reported by (a) Fang et al., and (b) Kiener et al.

2.2. 実験方法

2.2.1. 供試材

供試材は，バルク金属疲労に関する研究例の多さ且つ配線材料としての重要度から，Cu とした．Cu 多結晶板（純度：99.999%）表面に対して，エメリー紙（#800，#1500，#2000，#3000 および#4000）を用いた湿式研磨および粒度 1 μm のバフ研磨を実施して鏡面に仕上げた後，800 ℃で 24 時間の真空加熱処理（真空度 ：8.1×10^{-6} Pa 以下）を行い，結晶粒の粗大化および残留ひずみの除去を行った．その後，電子線後方散乱回折（Electron back scattering diffraction : EBSD）法を用いて熱処理後の Cu 多結晶板表面の結晶方位および粒界形状を特定した．EBSD 法は，試料表面に電子線を入射し，試料から生じる反射電子回折模様を解析することで，結晶方位および結晶構造を特定する解析方法である．本実験では，単一すべり方位を有する試験片を作製することを考慮し，この方位を実現する所望の荷重軸が多結晶板表面と平行関係にある結晶粒を特定した．

2.2.2. 試験片

試験片は，2.2.1 項で特定した結晶粒から FIB 加工装置（Hitachi High-Tech., FB-2200）を用いて作製した．加工には，加速電圧 40 kV の下，粗加工で 10 nA，精密加工で 0.01 nA の電流を用いた．以下に試験片作製手順を示す．

1. Cu 多結晶板表面上の目的とする結晶粒から，ブロック（25 μm（高さ）×15 μm（幅）×8 μm（厚さ））を切り出す（図 2.2(a)）．その後，ブロック表面にマイクロプローブを接触させ，FIB が具備するタングステン局所蒸着によってプローブ先端をブロックに固定し，ピックアップする（図 2.2(b)）．
2. ピックアップしたブロックの底面を上表面と平行に加工し，別途用意した真鍮ピン先端の平坦部にタングステン蒸着を用いて固定する（図 2.2(c)）．
3. 真鍮ピンを適宜回転および傾斜させて調整した後，ブロックを所望の試験片形状に加工する（図 2.2(d)）．

FIB のイオン源として，一般的には加工性の良いガリウムイオンが用いられるが，被加工材の表面には数十 nm 程度の加工変質層が導入される．本研究で用いる試験片の寸法は，数ミクロン程度であることから，例え数十 nm の厚さであってもその機械的特性に対して加工変質層が大きな影響を及ぼす可能性がある．そこで，FIB によって導入された加工変質層を除去するために，アルゴン（Ar）イオンによるミリング処理（Technoorg-Linda, Gentle mill Hi）を施した．ミリン

グ処理では，300 V の加速電圧および 4 μA の電流を用いた．

図 2.3(a)は，作製した試験片の電解放出型走査電子顕微鏡（Field-emission scanning electron microscope : FE-SEM）観察像を示す．試験片は，つかみ部，試験部および土台部で構成されたドックボーン形状を有している．試験片に対して，負荷は y 軸に平行に与えられる．試験部は，一辺が 2 μm の正方形断面を有しており, 試験部の長さと幅の比は, 圧縮時の座屈を防止するため, 2:1 とした．

図2.3(b)は，試験片の結晶方位を表すステレオグラフを示す．FCC金属であるCuは，4つのすべり面（{111}面）上に6つのすべり方向（[110]方向）があり，計12個のすべり系を有する．図中では，荷重軸（y軸）を考慮してSchmidとBoasの表記法[10]に従い，4つのすべり面をA～D（A : 臨界すべり面，B : 主すべり面，C : 共役すべり面，D : 交差すべり面），6つのすべり方向を1～6の数字で表してある．また，試験片に与える荷重をP，試験部の断面積をAとすると，各すべり系における分解せん断応力τ_{ij}は，負荷方向とすべり面iがなす角をφ_i，負荷方向とすべり方向jがなす角をλ_jとした場合，次のように表される．

$$\tau_{ij} = P/A \cdot \cos\varphi_i \cos\lambda_j \ (i, j = \text{A-D, 1-6}). \tag{2.1}$$

式(2.1)において，$\cos\varphi_i \cos\lambda_j$は，シュミット因子と呼ばれる．また，試験部（変形領域）の長さを L，長手方向の変位量を u とすると，分解せん断ひずみ γ_{ij} は，以下の式で表される．

$$\gamma_{ij} = \frac{\sqrt{2\frac{u}{L} + \left(\cos\lambda_j\right)^2}}{\cos\varphi_i} \tag{2.2}$$

Schmid と Boas の表記法では，最も高いシュミット因子を持つすべり系（主すべり系）は“B4”として表される．

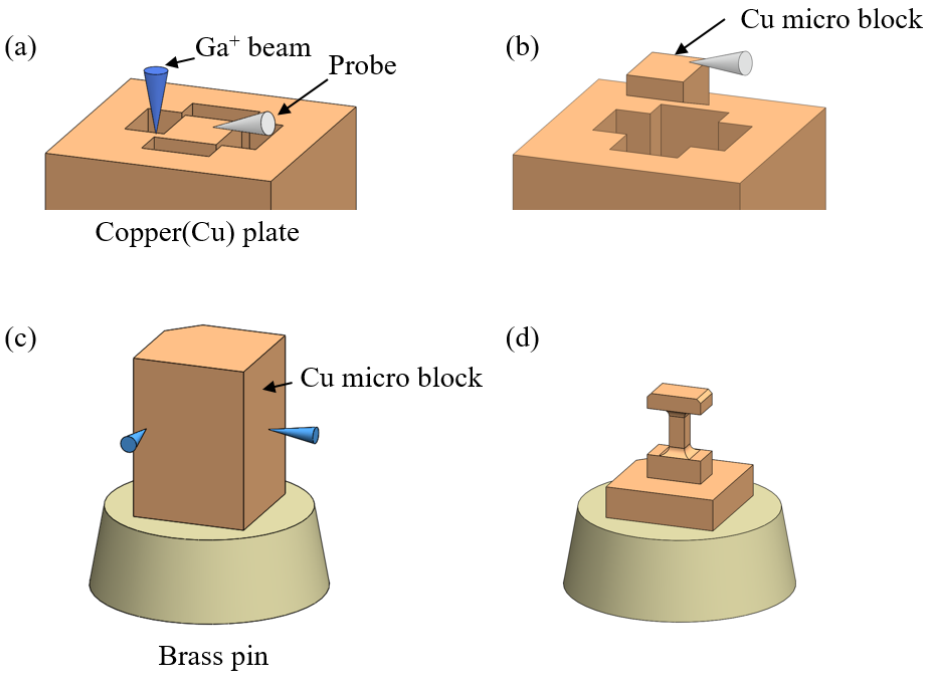


Fig. 2.2 Micro-sized copper specimen fabrication procedure.

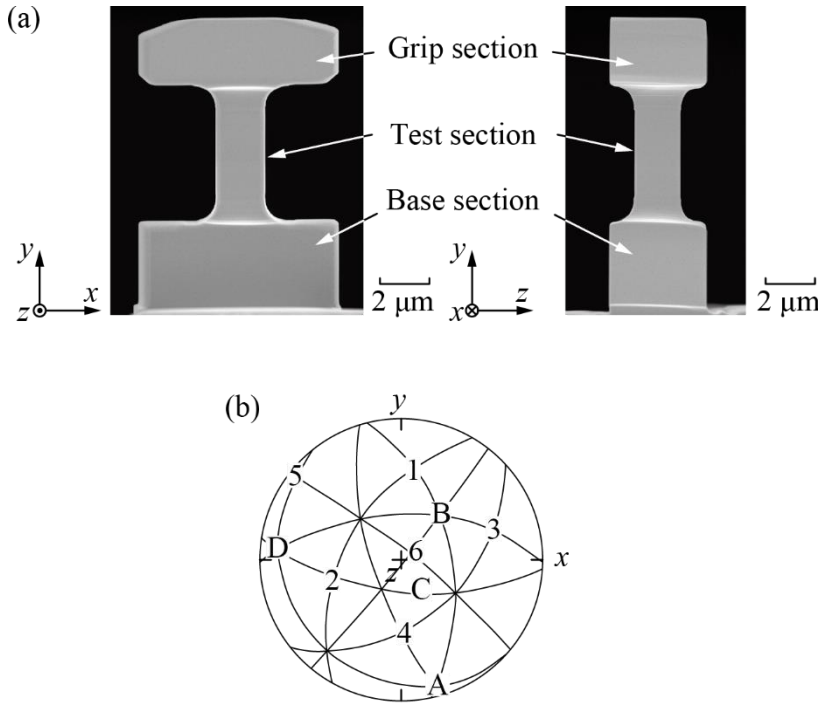


Fig. 2.3 (a) FE-SEM images and (b) stereographic projection for single crystal Cu micron-scale specimen fabricated by FIB.

図2.4(a)は，本試験片における12個のすべり系のシュミット因子を示す．図に示すように，すべり系B4の値が最も大きく，続いてB5の値が大きい．また，B4に対するB5の比は約0.78である．この値が0.9より小さい場合，低ひずみ領域においては一つのすべり系のみが活動することが経験的に知られている[11]．また，本試験片の4つの側面をそれぞれSide 1，Side 2，Side 3およびSide 4と呼称する（図2.4(b)）．図2.4(b)中の試験部には，主すべり系B4の幾何学的配置を模式的に示す．本試験片の長手方向の長さは4 μmであり，すべり系B4が試験片を貫通できる領域は，その傾きを考慮すると約400 nmである（図2.4(c)）．試験片は，同様の形状のものを3本用意した．2本に対して引張試験を行い，残り1本に対して引張圧縮繰り返し負荷試験を実施した．

2.2.3. 試験システム

試験システムは，セミインレンズ式の FE-SEM（Hitachi High-Tech., SU8230），微小負荷試験装置（HYSITRON, PI85 PicoIndenter）（図 2.5(a)）および制御・データ取り込み用の PC から構成される．微小負荷試験装置は，直交する 3 軸方向に移動が可能なステージ，静電容量型の荷重/変位センサおよび負荷チップで構成される．ステージの各軸方向の移動分解能は約 1 nm，荷重/変位センサの荷重 P および変位 u の分解能はそれぞれ 3 nN および 20 pm である．負荷チップの先端には，FIB 加工（加速電圧：40 kV，ビーム電流：10 nA）によって T 字型のスリットを設けた（図 2.5(b)）．試験片を先端に搭載した真鍮ピンは，別途用意したステンレスブロックの中央に設けられた穴に挿入し，ねじによって側面から固定した．ステンレスブロックは，カーボンテープを用いて微小負荷試験装置の可動ステージに固定した．負荷チップの移動方向に対して試験片の軸調整を行った後，FE-SEM 内に微小負荷試験装置を設置した．FE-SEM 内で観察を行いながらステージを移動させ，試験片のつかみ部を負荷チップの T 字型スリット内に挿入する．この状態から負荷チップを y 方向に移動させることで，試験片の長手方向と平行な負荷を与えることができる．

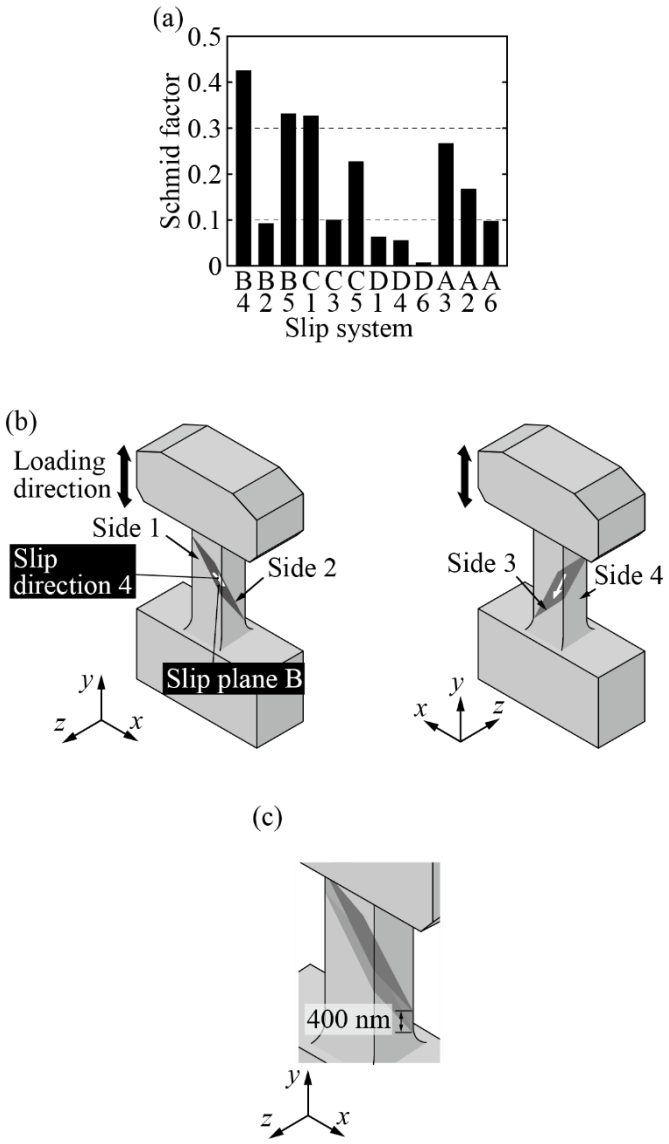


Fig. 2.4 (a) Schmid factors for specimen, (b) definition of four side surfaces and schematic of primary slip system B4 in test section, and (c) region that B4 can penetrate.

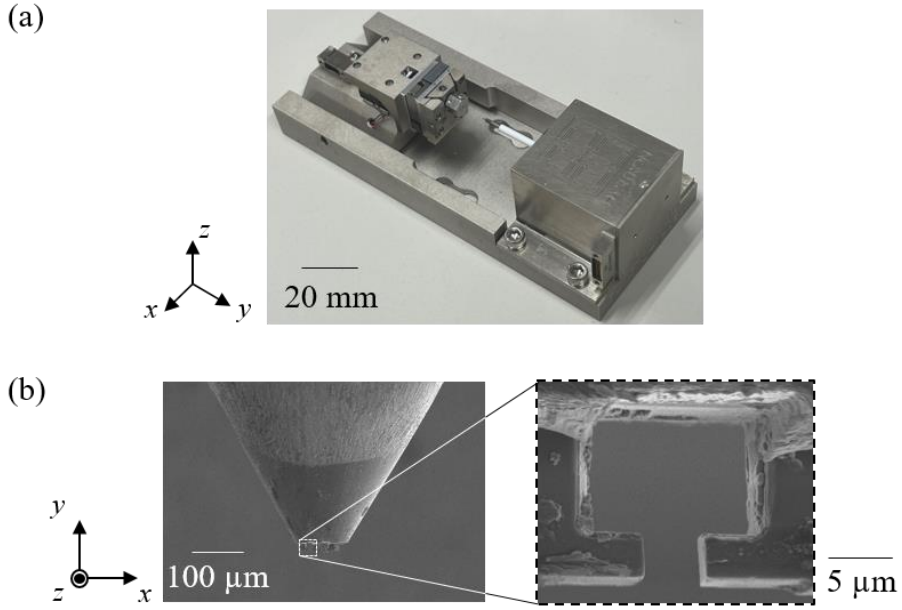


Fig. 2.5 (a) Mechanical loading apparatus(PicoIndenter), and (b) loading tip with T-shape slit.

2.2.4. 試験条件

試験片の長手方向に対して変位uを与えることで，引張圧縮繰り返し負荷試験を実施した．このとき，変位比R（u_{min}/u_{max}）は-1（u_{max} = 最大変位，u_{min} = 最小変位）とした．試験片への変位は，負荷チップを上下方向に動かすことで与えた（図2.6(a)および(b)）．負荷チップの変位速度は5 nm/sとし，$\Delta u/2$ = 300 nmの変位振幅（公称ひずみ振幅に換算すると$\Delta\varepsilon/2 = 7.5 \times 10^{-2}$）を試験片に与えた．試験片のつかみ部とT字型スリットの間には，ギャップが存在することから，以下の手順で試験片に負荷を与えた．

1 引張変位u_{t1}（$= \Delta u/2$）を試験片に与える．続いて，除荷を行い，荷重－変位関係から，試験片の残留変位u'_{t1}を求める（図2.7(a)）．
2 負荷チップを下方に移動して試験片のつかみ部上端面をT字型スリット下面に接触させ, 試験片に圧縮変位$-u_{c1}$（$= -(\Delta u/2 + u'_{t1})$）を与える（図2.7(b)）.
3 次のサイクル（2サイクル目）では，u_{t2}（$= \Delta u/2 + (u'_{c1} - u'_{t1})$）の引張変位を試験片に与え，その除荷後の荷重－変位関係から残留変位u'_{t2}を求める（図2.7(c)）．
4 試験片に圧縮変位$-u_{c2}$（$= -(\Delta u/2 + (u'_{t2} - ((u'_{c1} - u'_{t1}))))$）を与え，残留変位$u'_{c2}$を求める（図2.7(d)）．
5 1から4の過程を順次繰り返すことで，変位振幅一定の引張圧縮繰り返し負荷を試験片に与えることができる．本試験では，試験片に疲労き裂が生じた段階で負荷を停止した．

試験から取得した荷重Pを試験部断面積Aで除することで公称応力σを算出した．また，公称ひずみεは，変形が試験部のみに発生すると仮定し，試験から取得した変位uを試験部初期長さLで除することで算出した．

試験は，FE-SEM 内（真空度：1.0×10^{-4} Pa，加速電圧：2 kV）でその場観察を行いながら実施した．試験中の観察像は制御用 PC を用いて録画し，試験後には，インレンズ式の高分解能 FE-SEM（Hitachi Hi-Tech., S5500）を用いてその表面を詳細に観察した．

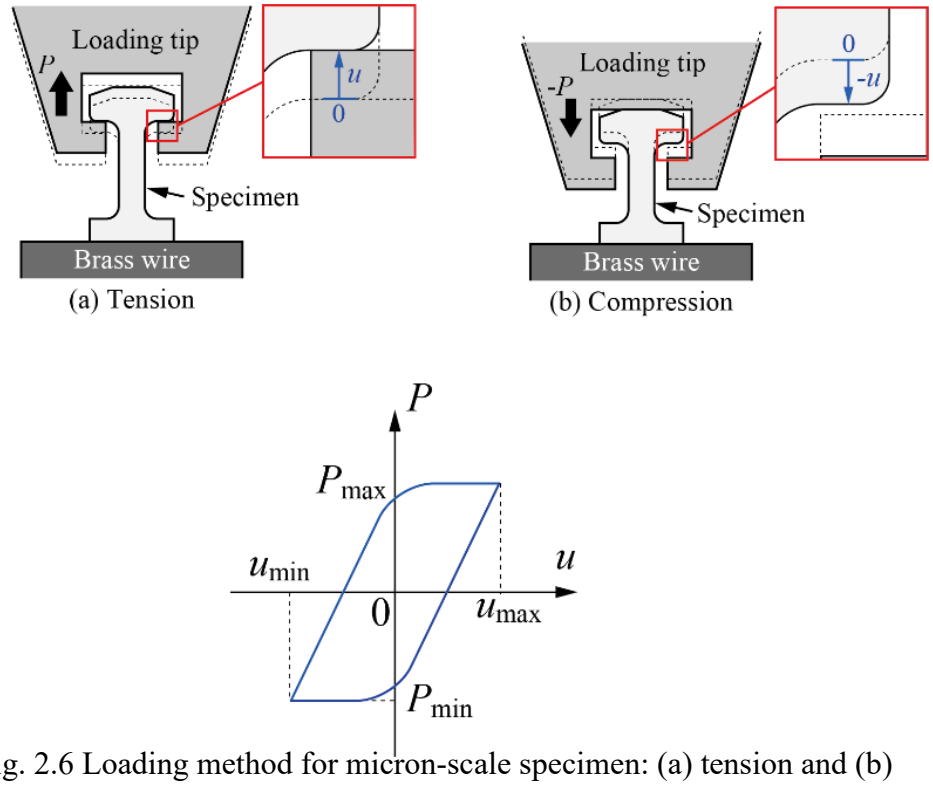


Fig. 2.6 Loading method for micron-scale specimen: (a) tension and (b) compression.

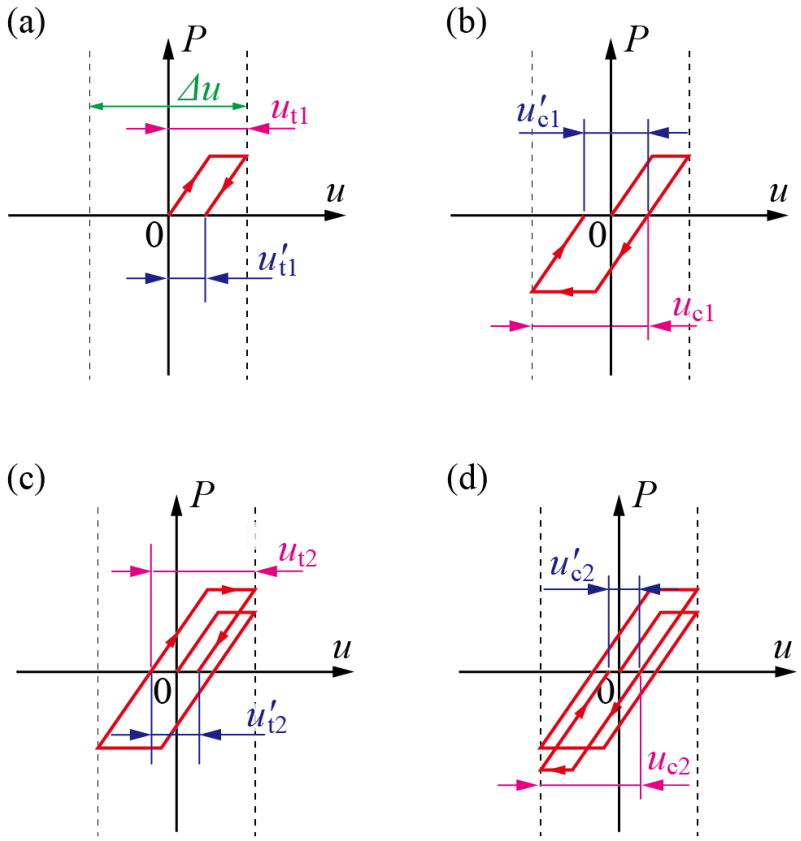


Fig. 2.7 Method of applying constant displacement amplitude to specimen.

2.3. 結果および考察

2.3.1. 引張試験

図2.8(a)は，引張試験におけるその場FE-SEM観察像を示す．試験開始時（図2.8(a)-i）には試験部に変化は見られなかったが，変位量が増えるにつれて表面に微細なすべり線が現れた（図2.8(a)-ii）．すべり線の方向から，このすべりは主すべり面Bの活動であることを特定した．その後，特定の負荷変位に達すると，試験片は不安定な変形挙動を示し，すべり線は試験部の広範囲に広がった（図2.8(a)-iii）．この変形の方向から，活動したすべり方向は4であることを特定した．図2.8(b)は，この引張試験における荷重P－変位uの関係を示す．図中のi~iiiは，図2.8(a)に示したその場FE-SEM観察像に対応している．試験の開始後，約50 nmの変位で傾きの変化が見られた．これは，負荷チップのT字型スリットと試験片のつかみ部の間の接触面が馴染んだことを意味している．その後，変位に対して荷重は線形的に増加し，約540 μNで降伏とみられる段が生じた（図2.8(b)中矢印a）．このときの降伏荷重，活動すべり系（B4）および式（2.1）を考慮して分解せん断応力を算出すると，降伏応力は約58 MPaと見積もられた．良く焼き鈍しされたバルクCu単結晶の降伏応力は0.5~0.7 MPa程度であることから[12,13]，第1章の緒論で示したように，ミクロンサイズの試験片は高い降伏応力を示すことがわかる．降伏後，荷重はさらに上昇を続け，805 μN（すべり系B4の分解せん断応力値として約88 MPa）に達すると（図2.8(b)中矢印b），不安定的なひずみの急増を生じた（ひずみバースト）．これは，試験片の変位の急増に対して，負荷試験装置が追従できなかったことによって生じたものと考えられる．このひずみバーストによって，試験部には多くの微細なすべり線が生じた．図2.8(c)は，別の試験片を用いて実施した引張試験について，試験前後の試験片の形状変化を観察したFE-SEM像（図2.8(c)-i）および試験後の試験片内部を観察した透過型電子顕微鏡（Transmission electron microscope : TEM）像（明視野象）（図2.8(c)-ii）を示す．図2.8(c)-iより，試験片はすべり変形によってネッキングを示していることがわかる．また，図2.8(c)-iiのTEM像では，試験部には膨大な数の転位が存在している．負荷応力が臨界値を超え，雪崩的に転位の増殖が生じ，ひずみバーストを生じたものと考えられる．

2.3.2. 引張圧縮繰り返し負荷試験

図2.9は，各サイクルにおいて，負荷荷重からすべり系B4を考慮して算出した分解せん断応力τ_{B4}の最大値$\tau_{B4,max}$および最小値$\tau_{B4,min}$のプロットを示す．一定の変位振幅を与えたにも関わらず，6サイクルまで最大値－最小値間の距離（応力幅）はサイクル数が進むにつれて増加しており，これは繰り返し加工硬化したこと

を示している．7サイクルにおける最大応力は6サイクルのそれを大きく下回ったため，試験片に大きな損傷が発生したものとして試験を終了した．

図2.10は，(a)1サイクル目のその場観察像，および，(b)分解せん断応力τ_{B4}－分解せん断ひずみγ_{B4}関係を示す．両図のアルファベットは，それぞれ対応している．負荷前の時点（点A）では，試験部表面に目立った欠陥やすべり線は観察されなかった．その後，引張負荷が加えられると，試験片は安定に変形するが，点Cに達するとひずみが不安定に増加し（ひずみバースト），点Dに至った．ひずみバースト発生前のτ_{B4}－γ_{B4}関係に注目すると，点Bにおいて段差が見られる．この時の応力値から降伏応力として56 MPaが得られ，この値は，バルクCu単結晶の臨界分解せん断応力（≒0.5~0.7 MPa[13,14]）より約2桁高い．また，この値は，別途実施した引張試験の結果（2.3.1項），および，これまでに報告されている同程度の断面積を有するCu単結晶の降伏応力[14,15]とほぼ一致する．材料寸法がナノ～ミクロンオーダーまで小さくなった場合に降伏応力が高くなる理由として，(a)初期転位源の数の減少[16,17]，(b)鏡像力による自由表面からの転位生成抑制[18]，および，(c)転位源を駆動させる応力の増加，などが挙げられる．本試験片については，以下のことが考えられる．

1. 得られた降伏応力はCuの理想強度（約5 GPa[19]）よりも2桁低い．これは，転位の増殖が試験片内部中に存在する転位源によって起こっていることを示している．
2. 材料内の転位源（フランク・リード源）から転位が増殖するために必要なせん断応力は以下の式で表される．

$$\tau = \frac{2Gb}{l} \tag{2.3}$$

ここで，Gは横弾性係数，bはバーガース・ベクトルの大きさおよびlはフランク・リード源のピン止め距離（長さ）を示す．バルクCuの臨界分解せん断応力は0.5 MPa程度であることを前述したが，この値およびCuのG = 43 GPa[20], b = 0.256 nm[21]を式(2.3)に入力すると，フランク・リード源の長さは約44 μmとなり，2 μm寸法の試験片中には存在できない．したがって，本試験片中のフランク・リード源の長さは，これより短くならざるを得ず，降伏応力が上昇したものと考えられる．逆に，本試験で求まった降伏応力から式(2.3)を用いて転位源の長さを見積もると，390 nmであった．

試験では，ひずみバーストは，τ_{B4}＝82 MPa（点C）で生じた．1サイクル目の続く圧縮変形では，試験片はτ_{B4} = -31 MPaで降伏を示した（点E），この値は，

引張負荷の場合の降伏応力（τ_{B4} = 56 MPa）と比べて低く，これはバウシンガー効果（逆方向への負荷時に生じる降伏点降下現象）を示している．その後，試験片は大きさの異なる数回のひずみバーストを繰り返しながら変形し，τ_{B4} = -75 MPa（点G）まで至った．その場観察（図2.10(a)）より，圧縮変形では，まず試験部においてすべり系B4に沿ったすべり変形が局所的に発生し（点F），ひずみバーストを生じた後には突き出しが成長していた（点H）．このように，圧縮変形時のすべりは引張変形時のすべりに対して不可逆であり，この不可逆性によって試験片表面には突き出しを生じた．図2.8(c)-iiで示したように，引張変形時には，ひずみバーストによって試験片内で膨大な転位が導入されるが，転位の密度は一定ではなくランダムに分布する．このような不均一な転位密度の分布は背応力（Back stress）のばらつきの原因となり，逆方向に変形を与えた場合には，局所領域の降伏応力を低下させる．このように，1サイクル目の逆方向の負荷によって導入された局所すべりは，その後の大きな損傷を引き起こす起点となりうる．

図2.11は，2サイクル目から試験終了（7サイクル）までのτ_{B4}－γ_{B4}関係を示す．2サイクル目（図2.11(a)）では，引張負荷および圧縮負荷において明確なひずみバーストが見られた．ひずみバーストによる変位の急増は，サイクル数が増えるにつれて減少しており，5サイクル目以降では確認できない．一方，このτ_{B4}－γ_{B4}関係における応力の急落は，4サイクル以降も引張および圧縮の両方の負荷で生じており，すべり変形が断続的に発生していることを示している．

図2.12は，半サイクルの負荷を実施した後に低スキャンスピードで撮影したFE-SEM観察像を示す．1サイクル目の引張負荷修了時には，ひずみバーストによって試験片全体に微細なすべり線が生じていた（図2.12(a)）．続く圧縮負荷後には（図2.12(b)），局所に集中したすべりの痕跡が見られた（図中矢印）．

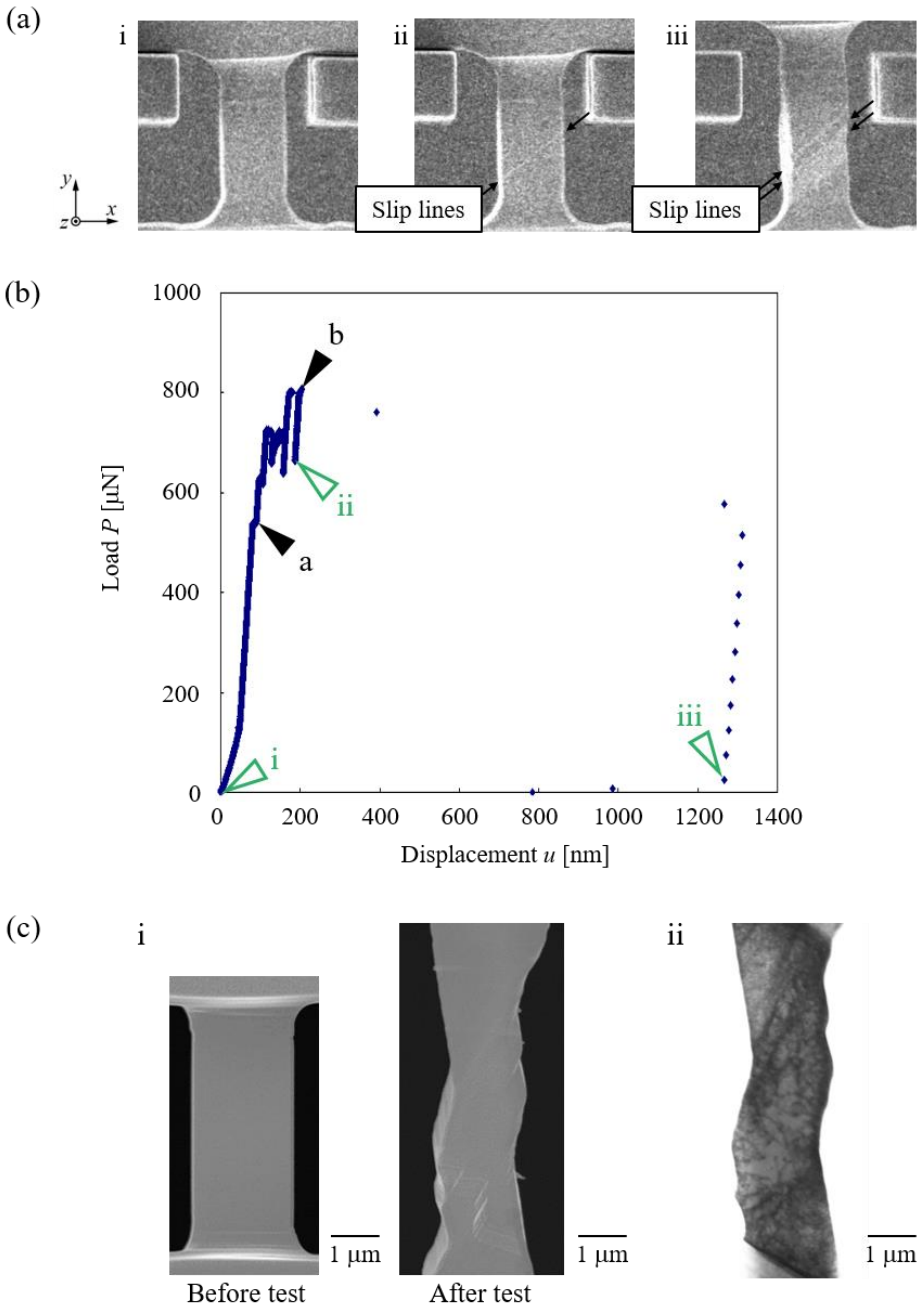


Fig. 2.8 Tensile test results. (a) *In-situ* FE-SEM images, (b) load-displacement curve, and (c) FE-SEM and TEM images of the specimen.

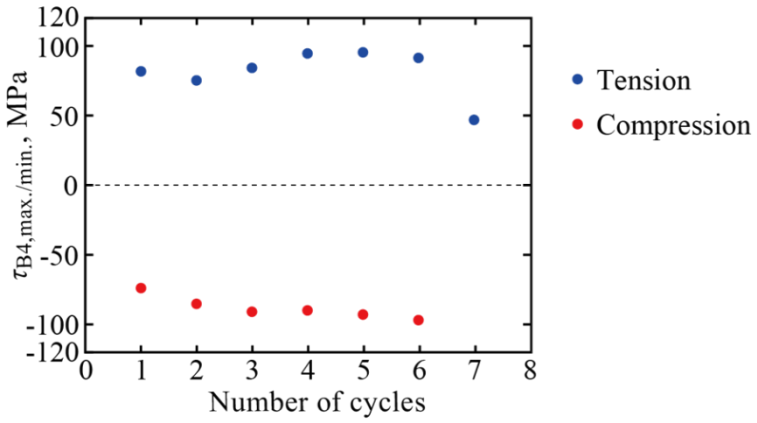


Fig. 2.9 Relationship between maximum/minimum τ_{B4} and number of cycles in tension-compression cyclic loading experiment.

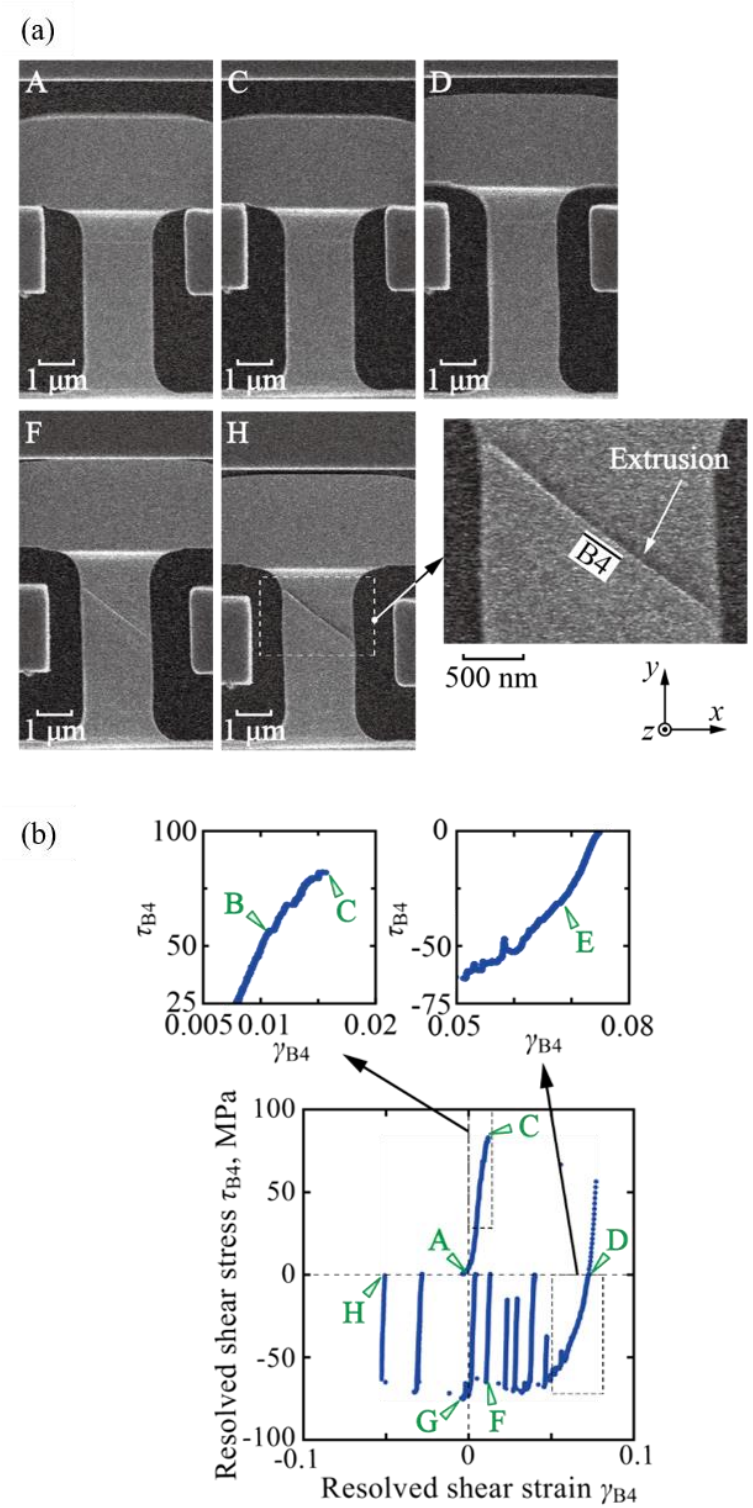


Fig. 2.10 (a) *In situ* FE-SEM images and (b) relationship between resolved shear stress and strain on primary slip system B4. The labels correspond to those in (a).

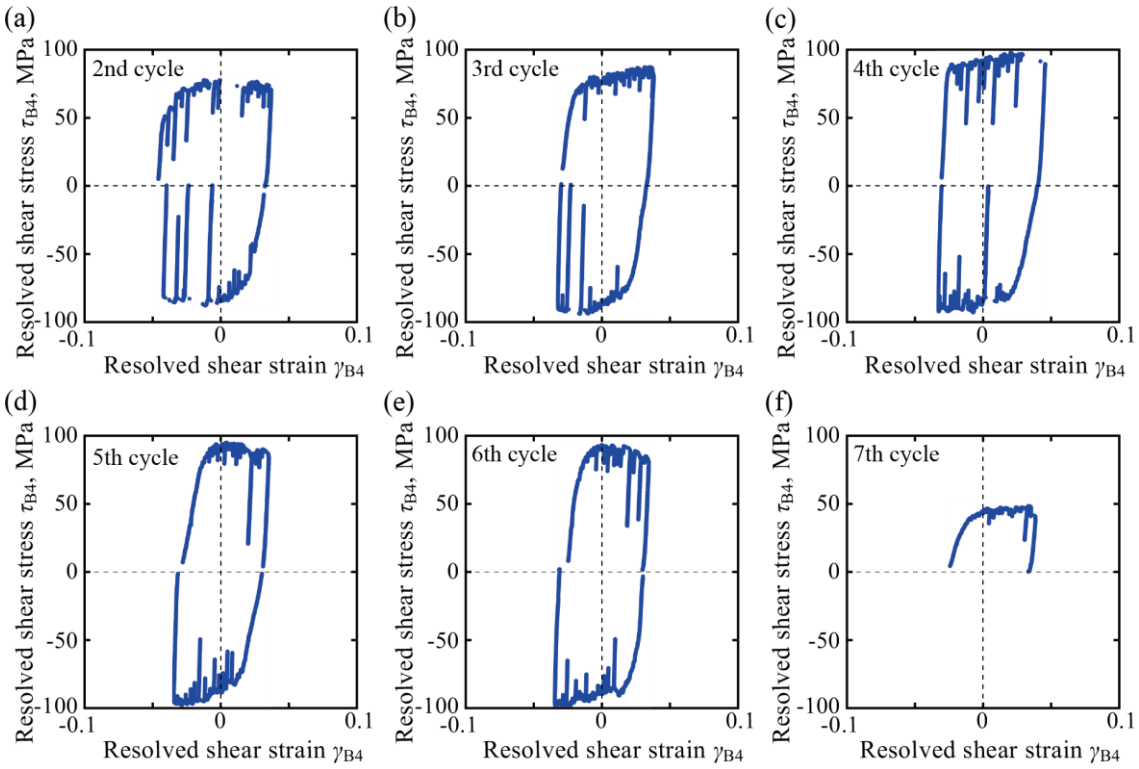
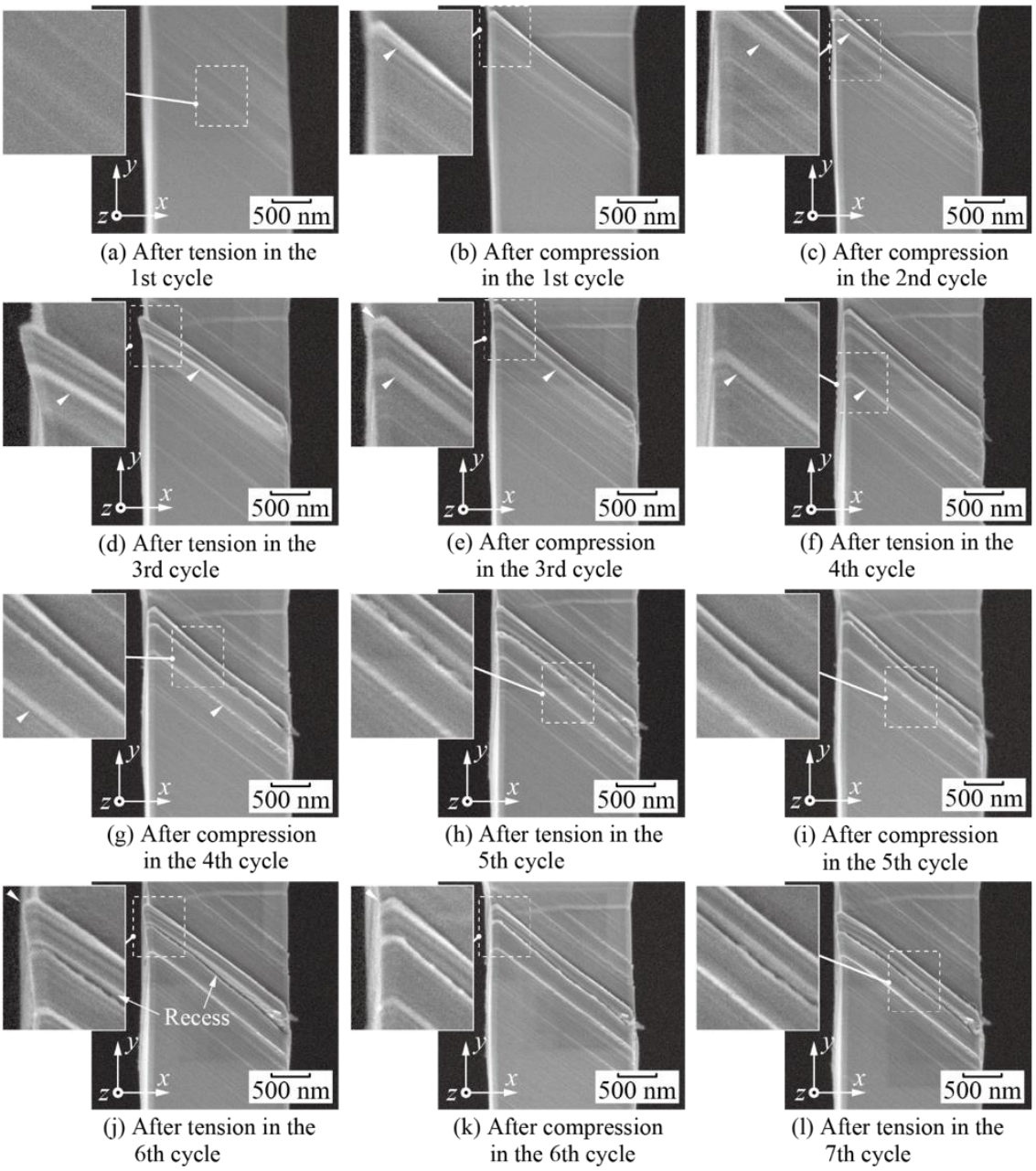


Fig. 2.11 τ_{B4} - γ_{B4} curves in 2nd to 7th cycles.

2 サイクル目から 3 サイクル目の FE-SEM 観察像（図 2.12(c)-(e)）では，1 サイクル終了時に形成していた既存のすべり帯の約 200 nm 下方において，新しいすべり帯が発生した（図中矢印）．3 サイクル目（図 2.12(d)）では，引張変形中に突き出しの先端が上昇する様子が確認された（拡大図参照）．4 サイクル目（図 2.12(f)および(g)）では，3 番目の局所的なすべり帯（図中矢印）が 2 番目のすべり帯と平行に形成された．2 番目と 3 番目のすべり帯の間の距離は約 350 nm であった．6 サイクル目（図 2.12(j)および(k)）と 7 サイクル目（図 2.12(l)）では，2 番目のすべり帯に深い窪みが観察された（図 2.12(j)中拡大図参照）．これらの結果は，逆方向の負荷によって複数の局所すべりが発生し，負荷の繰り返しによって入り込み/突き出しへ成長することを示している．

図 2.13 は，試験後の試験片に対する高分解能 FE-SEM による表面観察像を示す．図より，すべり系 B4 に沿った 100~300 nm の厚さを有するすべりプレートが試験片を貫通していることがわかる．Side 4 からの観察により（図 2.13(b)）Side 1 および Side 3 には高さ 170~430 nm の入り込み/突き出しが発生していることがわかった．これは，バルク Cu の表面で観察される入り込み/突き出し（幅：約 1 μm）[22]と類似した形状を有するが，その幅は 1/3 以下であり，制限された試験片寸法によってナノサイズの疲労損傷が引き起こされたことを示している．また，突き出しは，反対側の表面の入り込みに対応していた．バルク Cu 単結晶の PSB では，材料内部における正負の刃状転位の反応に伴って原子空孔が形成され（図 2.14(a)），体積膨張が起こることで表面に入り込み/突き出しが発生する（図 2.14(b)）[23]．すなわち，バルク Cu 単結晶では片方の側面と対向する側面の入り込み/突き出しは対応しないが，このマイクロ試験片はそれとは異なる挙動を示した．入り込み底ではすべり面の分離が見られ，入り込み底から疲労き裂が発生するバルク Cu の場合と同様であった[22]．しかし，単一すべり方位を有するバルク Cu 単結晶に対して本試験と同等の高ひずみ振幅を与えた場合，2 番目以降の大きさのシュミット因子を有するすべり系に作用する分解せん断応力も臨界値を超えることから，多重すべりを生じる．その結果，交差し合う変形帯中の微細なすべり帯の衝突によって疲労き裂が発生する[24]．すなわち，ミクロンサイズの Cu 単結晶試験片は，特有の疲労き裂発生挙動を有することがわかった．



(a) After tension in the 1st cycle
(b) After compression in the 1st cycle
(c) After compression in the 2nd cycle
(d) After tension in the 3rd cycle
(e) After compression in the 3rd cycle
(f) After tension in the 4th cycle
(g) After compression in the 4th cycle
(h) After tension in the 5th cycle
(i) After compression in the 5th cycle
(j) After tension in the 6th cycle
(k) After compression in the 6th cycle
(l) After tension in the 7th cycle

Fig. 2.12 Morphological change of Side 1 of test section.

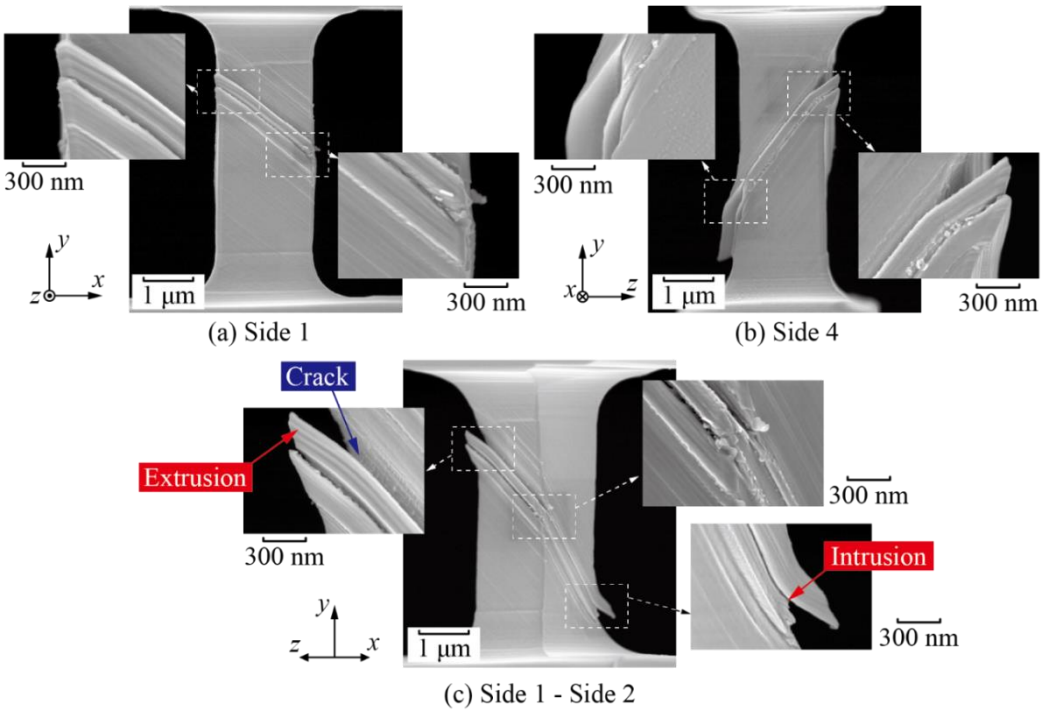


Fig. 2.13 High-resolution FE-SEM images of the specimen after uniaxial tension-compression testing.

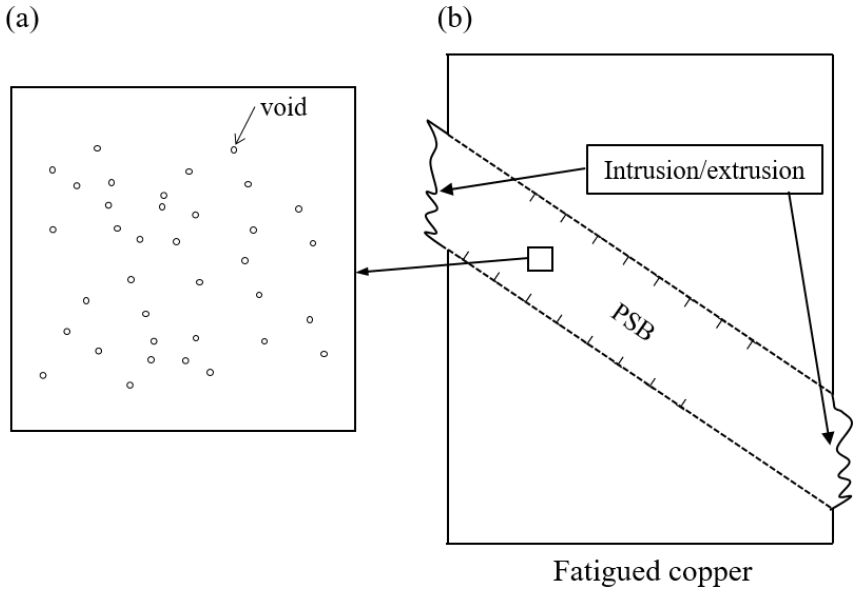


Fig. 2.14 Voids in PSB generated by reactions between edge dislocations.

2.4. 結　言

本章では，ミクロンサイズの Cu 単結晶の疲労挙動を明らかにすることを目的とし，完全両振りの引張圧縮繰り返し負荷試験をその場 FE-SEM 観察下で実施した．以下に得られた結果を示す.

1. ミクロンサイズの試験片を対象としたその場観察単軸引張圧縮繰り返し負荷試験手法を開発した．単一すべり方位に配向され，一辺が 2 μm の正方形断面を有する Cu 単結晶に対してこの試験手法を適用した.

2. 事前検討として, 引張試験を実施した. 荷重－変位関係の線形領域において, 最初に段差を示した荷重から降伏応力（活動したすべり系に対する分解せん断応力）を求めた結果，58 MPa であった．この値はバルク Cu 単結晶における降伏応力（0.5~0.7 MPa）より 2 桁高い．高い降伏応力の原因は，転位源の長さが材料内部の寸法に制限されたためであると考えられる.

3. 降伏後，更に応力は上昇し，88 MPa において不安定変形を示して変形が急増した（ひずみバースト）．試験後の内部観察では，試験部に無数の転位が確認され，ひずみバースト時に転位の急増が生じたことを示唆していた.

4. 引張圧縮繰り返し負荷試験では，1 サイクル目の引張変形において，試験片全体に渡って均一且つ微細なすべり線が観察された．続く圧縮変形では，不可逆変形を示し, 局所領域においてすべり帯が形成された. 引張変形時には, ひずみバーストによって試験片内で膨大な転位がランダムに分布する. 不均一な転位密度の分布によって，背応力（Back stress）にもばらつきを生じ, 逆方向負荷時に局所領域の降伏応力を低下させ, 局所すべりが発生したものと考えられる.

5. 繰り返し数の増加とともに，最初に発生したすべり帯は成長し，そのすべり帯の近傍では新たなすべり帯が発生した．また，新しいすべり帯の形成が試験部を長手方向に伝ぱしていく様子が見られた.

6. 引張応力の急増が起こった 7 サイクルの試験後の観察では, 試験片表面に入り込み/突き出しの形成を確認した．しかし，その幅は 100~300 nm であり, バルク Cu における入り込み/突き出しの幅（約 1 μm）とは異なっていた.

7. 高ひずみ振幅を受けるバルク Cu 単結晶では，多重すべりの活動によって異なるすべり系のすべり帯が衝突し，き裂発生に至る．しかし，本章で用いた試験片は，主すべり系のみが優先的に活動して表面に入り込み/突き出しを形成し，入り込み底部におけるすべり面分離によってき裂を生じた．

第 2 章の参考文献

[1] A. Wimme, W. Heinz, T. Detzel, W. Robl, M. Nellessen, C. Kirchlechnerd, and G. Dehm “Cyclic bending experiments on free-standing Cu micron lines observed by electron backscatter diffraction.” Acta Materialia. 83 (2015): 460-469.

[2] D. Kiener, C. Motz, W. Grosinger, D. Weygand, R. Pippan, “Cyclic response of copper single crystal micro-beams.” Scripta Materialia. 63 (2010): 500-503.

[3] E. Demir, D. Raabe, Mechanical and microstructural single-crystal “Bauschinger effects-observation of reversible plasticity in copper during bending.” Acta Materialia. 58 (18) (2010): 6055-6063.

[4] T. Sumigawa, K. Matsumoto, T. Tsuchiya, and T. Kitamura, “Fatigue of 1 mm-scale gold by vibration with reduced resonant frequency.” Materials Science and Engineering: A 556 (2012): 429-436.

[5] T. Sumigawa, R. Shiohara, K. Matsumoto, and T. Kitamura, “Characteristic features of slip bands in submicron single-crystal gold component produced by fatigue.” Acta Materialia. 61 (2013): 2692-2700.

[6] H. Fang, R. Shiohara, T. Sumigawa, and T. Kitamura, “Size dependence of fatigue damage in sub-micrometer single crystal gold.” Materials Science and Engineering: A 618 (2014): 416-423.

[7] Z.W. Shan, R.K. Mishra, S.A. Syed Asif, O.L. Warren, and A.M. Minor "Mechanical annealing and source-limited deformation in submicrometre-diameter Ni crystals." Nature materials 7.2 (2008): 115-119.

[8] H. C. Zhang, C. Jiang, and Y. Lu. "Low-cycle fatigue testing of Ni nanowires based on a micro-mechanical device." Experimental Mechanics 57 (2017): 495-500.

[9] M. Schamel, J. M. Wheeler, C. Niederberger, J. Michler, A. Sologubenko, and Spolenak, R. "Cyclic loading for the characterisation of strain hardening during in situ microcompression experiments." Philosophical Magazine 96.32-34 (2016): 3479-3501.

[10] E. Schmid, and W. Boas “Plasticity of crystals with special reference to metals.”, London F.A.Hughes & Co. Limited, (1950).

[11] A.S. Cheng, and C. Laird “Mechanism of fatigue hardening in copper single crystals: The effects of strain amplitude and orientation.” Materials Science and Engineering, Vol. 51 (1981): pp. 111-121.

[12] J. Garstone, R.W.K. Honeycombe, and G. Greetham "Easy glide of cubic metal crystals." Acta Metallurgica 4.5 (1956): 485-494.

[13] R.C. Daniel, and G.T. Hone "The Bauschinger effect and cyclic hardening in copper." Metallurgical transactions 2 (1971): 1161-1172.

[14] D. Kiener, W. Grosinger, G. Dehm, and R. Pippan, “A further step towards an understanding of size-dependent crystal plasticity: in situ tension experiments of miniaturized single-crystal copper samples.” Acta Materialia. 56 (2008): 580-592.

[15] D. Kiener, and A.M. Minor, “Source Truncation and Exhaustion: insights from quantitative in situ TEM tensile testing.” Nano Letter. 11 (2011): 3816-3820

[16] J.R. Greer, and W.D. Nix "Nanoscale gold pillars strengthened through dislocation starvation." Physical Review B 73.24 (2006): 245410.

[17] A.S. Budiman, S.M. Han, J.R. Greer, N. Tamura, J.R. Patel, and W.D. Nix, “A search for evidence of strain gradient hardening in Au submicron pillars under uniaxial compression using synchrotron X-ray microdiffraction.” Acta Materialia. 56 (2008): 602-608.

[18] J.P. Hirth, and J. Lothe, “Theory of Dislocations, second ed.” Krieger Pub. Co., Florida, (1982)

[19] A. Kelly, and K.M. Knowles. “Crystallography and crystal defects.” John Wiley & Sons, (2020)

[20] R.C. Weast “CRC Handbook of Chemistry and Physics” C.R.C. Press. (1978-1979)

[21] J. Hua, and A. Hartmaier. "Development of a method to determine Burgers vectors from atomistic data." Journal of Physics: Conference Series. 240 (2010): 1

[22] Z.S. Basinski, and S.J. Basinski, “Fundamental aspects of low amplitude cyclic deformation in face-centred cubic crystals.” Progress in Materials Science 36 (1992): 89-148.

[23] U. Essmann, U. Gösele, and H. Mughrabi "A model of extrusions and intrusions in fatigued metals I. Point-defect production and the growth of extrusions." Philosophical magazine A 44.2 (1981): 405-426.

[24] Z.F. Zhang, Z.G. Wang, Z.M. and Z. Sun "Evolution and microstructural characteristics of deformation bands in fatigued copper single crystals." Acta materialia 49.15 (2001): 2875-2886.

2. 引張圧縮繰り返し負荷を受けるマイクロ Cu 単結晶の疲労損傷その場観察

第 3 章　引張圧縮負荷を受ける二重すべり方位のマイクロ Cu 単結晶の疲労損傷その場観察

3.1. 緒　言

第 2 章においては，ミクロンサイズの微小試験片に対する低サイクルでの引張圧縮繰り返し負荷試験に挑戦し，一辺が 2 μm の正方形断面を有し単一すべり方位に配向された Cu 単結晶試験片における局所すべり帯の形成過程や入り込み底での疲労き裂の発生を明らかにした．その後，この研究で得られた知見をもとに，微小材料に対して高サイクルで引張圧縮繰り返し負荷を与えることのできる試験装置を本研究グループで開発し，同様の試験片に対して数千サイクルを与えた疲労試験結果が行われた[1-3]．その結果，バルク Cu 単結晶の疲労き裂発生限界を与える飽和分解せん断応力振幅（27.5 MPa[4,5]）より低い応力振幅（10 MPa）でも，入り込み/突き出しとそれに伴う疲労き裂を発生した[2]．さらに，この試験片で発生した入り込み/突き出しは，主すべり系の活動による厚さ約 15~20 nm の薄いすべりプレートのずれによって構成されていた（図 3.1）[1,2].

一方，電子デバイス等に用いられている微細な Cu 配線や電極など，実用的に用いられている金属材料は，一般に多結晶である．多結晶は，異なる結晶方位を有する結晶粒から構成されており，負荷を受けた際にはその多くの結晶粒内で複数のすべり系が活動する[7-10]．すなわち，単一すべり方位だけでなく，多重すべり方位を有するミクロンサイズの単結晶 Cu についての疲労挙動を明らかにすることは，学術のみならず産業的にも重要である．

本章では，高サイクル用引張圧縮繰り返し負荷試験装置を用いて，二重すべり方位に配向されたミクロンサイズの Cu 単結晶試験片に対する試験を実施し，その変形過程の特定と疲労損傷に至るメカニズムの解明を行った．

3.2. 試験方法

3.2.1. 供試材

表面の機械研磨（エメリー紙（#800，#1500，#2000，#3000 および#4000）による湿式研磨および粒度 1 μm のバフ研磨）後，真空加熱処理（真空度：8.0×10^{-6} Pa，保持温度：800℃，保持時間：24 h）を施した Cu 多結晶板（純度 99.999%）に対し，EBSD を用いて結晶粒表面の結晶方位を特定した．

3.2.2. 試験片

二重すべり方位を有する試験片を取得するために，EBSD 解析で得られた Cu 多結晶板表面の結晶方位に基づいて所望の結晶方位を有する結晶粒から FIB を用いて試験片を作製した. その後, 試験片に対して Ar イオンミリングを実施（加速電圧：300 V，電流：4 μA）し，FIB によって導入された加工変質層の除去を行った．作製した試験片は，つかみ部，試験部および土台部からなるドッグボーン形状を有する（図 3.2）．試験部の長さは 9 μm であり，断面は一辺が 2 μm の正方形形状を有している．試験部の上端とつかみ部，および，下端と土台部が接合する角部には，応力集中を軽減するため半径 1 μm の曲率を有する円弧形状に加工してある．試験部の四側面は，Side 1，Side 2，Side 3 および Side 4 と呼称する（図 3.2(a)）．図 3.2(b)は，試験片の結晶方位を表すステレオグラフを示す．本ステレオグラフでは，FCC 金属の 4 つのすべり面および 6 つのすべり方向をそれぞれ A～D（A：臨界すべり面，B：主すべり面，C：共役すべり面，D：交差すべり面）のアルファベット，および，1～6 の数字で示している[11]．図 3.2(c)は，試験片の 12 個のすべり系のシュミット因子を示す．すべり系 B4 および C1 のシュミット因子は近い値を示しており，この結晶は二重すべり方位に配向されている．図 3.3 は，試験片内におけるすべり系 B4 と C1 の幾何学的配置，および，試験片の Side 1 および Side 2 に現れうるすべり線の方位を示す.

3.2.3. 試験システムおよび試験条件

試験装置は，本研究グループで独自に開発した微小材料用引張圧縮繰り返し負荷試験装置[12]（図 3.4(a)）を用いた．本装置は，マイクログリッパー，ピエゾアクチュエーター，ロードセル（定格容量：200 mN，定格出力：1.5 mV/V）および容量型変位センサ（レンジ：20 μm，分解能：0.6 nm）によって構成されている．また，6 つの駆動モーターが配置されており，外部から直交する 3 軸に対する並進と回転を制御して試験片に対する正確な軸調整を行うことができる．さらに，マイクログリッパーを用いて試験片のつかみ部を把持し（図 3.4(b)），試験片に対して引張圧縮繰り返し負荷を与えながら荷重と変位を取得することができる．ロードセルおよび変位センサの出力については，試験前に校正を行った.

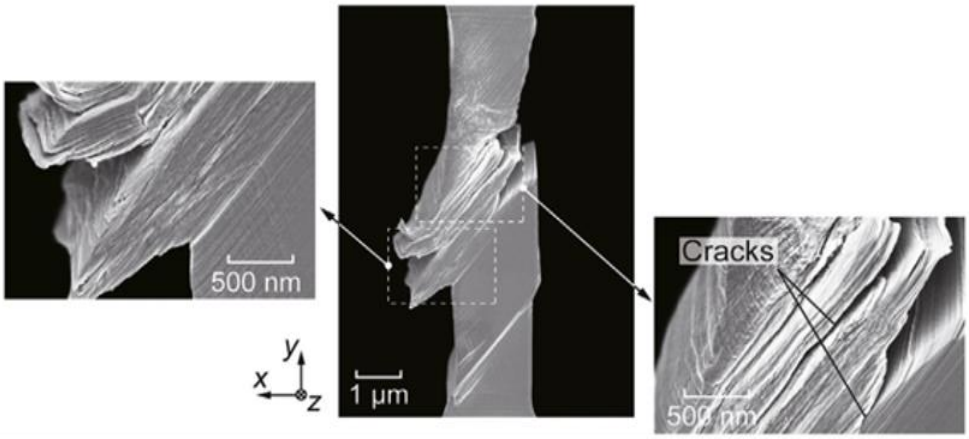


Fig. 3.1 SEM images of fatigued micro-sized copper single crystal.

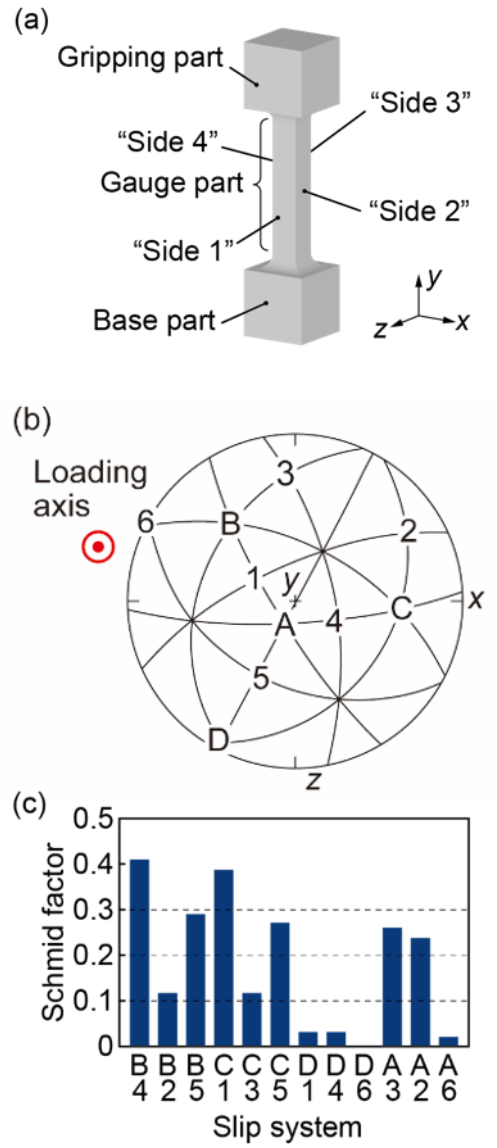


Fig. 3.2 (a) Diagram of micrometer-sized Cu specimen having dog-bone shape, (b) specimen stereographic projection, and (c) Schmid factors for 12 slip systems of specimen.

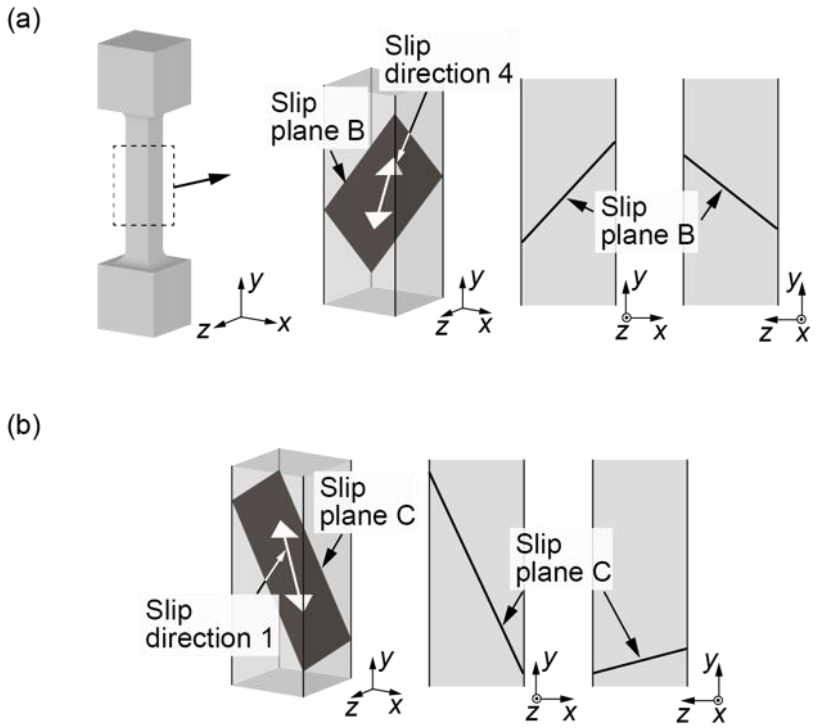


Fig. 3.3 Geometric arrangement and slip lines appearing on Side 1 and Side 2 of slip systems (a) B4 and (b) C1 in specimen.

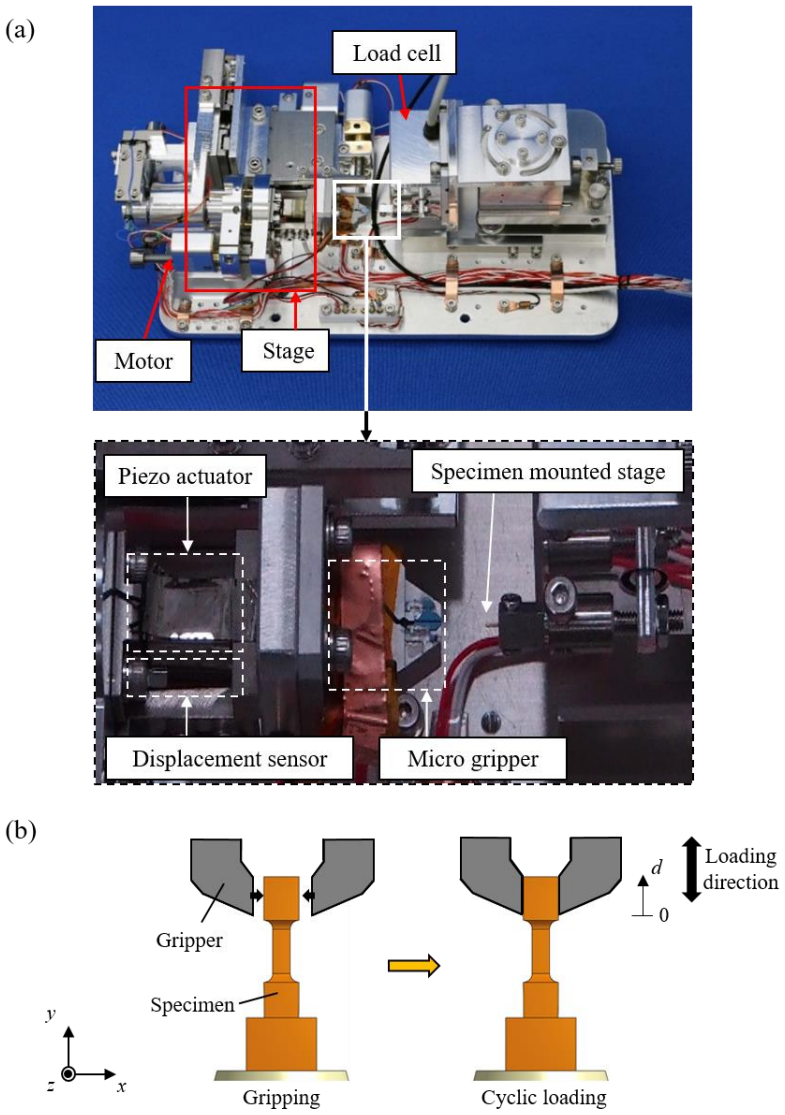


Fig. 3.4 (a) Configuration of cyclic tension-compression loading test system, and (b) specimen gripping for uniaxial tension–compression cyclic loading.

試験は，アウトレンズ式の FE-SEM（Hitachi High-Tech., SU5000）（加速電圧：3.0 kV，室温，真空度：2.0×10^{-3} Pa 以下）内で実施した．アウトレンズ式の FE-SEM は，第 2 章で実験に用いたセミインレンズ式の FE-SEM より分解能は劣るものの，大きな装置を真空チャンバー内に設置することができる．試験装置を FE-SEM のチャンバー内に設置して試験装置上で試験片を把持した後，12 時間放置し，熱ドリフトの影響がないことを確認してから試験を開始した．繰り返し負荷試験では，試験片の長手方向に対して両振り（$\delta_{min}/\delta_{max}=-1$）の変位振幅（$\Delta\delta/2$ = 75 nm，正弦波，1 Hz）を 10000 サイクル与えた．この変位振幅は，ロードセルの起歪体の変位も含まれていることに注意されたい．ロードセルおよび変位センサからの出力は，制御用 PC を用いて 0.01 秒ごとに計測した．疲労試験中は，特定のサイクル終了後に低スキャン速度で高解像度の画像を取得した．

3.3. 結果および考察

3.3.1. サイクル数の増加に対する $\Delta\delta/2$ および $\Delta\tau_{B4}/2$ の変化

図 3.5(a)は，試験中の変位振幅 $\Delta\delta/2$ とサイクル数 N の関係を示す．試験を通して，$\Delta\delta/2$ は目標値である 75 nm に保たれている．この変位振幅からロードセルの起歪体の変位を除去し，試験片の試験部のみで変形を生じていると仮定すると，ひずみ振幅は約 1.9×10^{-3} と推定される．図 3.5(b)は，本試験片において最も大きいシュミット因子を有するすべり系 B4 の分解せん断応力振幅 $\Delta\tau_{B4}/2$ とサイクル数 N の関係をプロットしたものである．$\Delta\tau_{B4}/2$ は，1500 サイクル程度までは若干の増減を示すが，その後はほぼ一定であった．本試験片とほぼ等しい二重すべり方位を有するバルク Cu 単結晶の場合，繰り返し負荷を与えると著しい加工硬化を示すことが報告されていることから[13-15]，その挙動は大きく異なる．また，5000 サイクル以降の $\Delta\tau_{B4}/2$ の平均値として，試験結果から計算した飽和分解せん断応力振幅 $\Delta\tau_{B4}/2$ は約 7 MPa である．この値は，バルク Cu 単結晶の PSB 形成応力且つ疲労き裂発生限界（27.5MPa[4,5]）の 1/3 以下である．

3.3.2. その場 FE-SEM 観察

図 3.6 は，特定のサイクルの終了後に取得した Side 1 の FE-SEM 画像を示す．負荷前の試験片（$N = 0$）には，表面にすべり線は観察されず，マイクログリッパーを用いた把持によって予ひずみは試験片に導入されていないことを示している．その場観察像から，疲労損傷の発生過程には段階があり，それらを以下の 3 つに分類した．

・ <u>初期すべり段階</u>：$N = 50$ 終了時には，すべり面 B とすべり面 C の活動による

微細なすべり線が観察された．その後，$N = 250$ の時点では，一層すべりは活動していた．また，このサイクルでは，試験片の側面（Side 2 および Side 4）において突起を生じ始めた．$N = 350$ 終了後，Side 2 の突起は高さ 270 nm にまで発達していた．

・ 陥没段階：$N = 550$~1100 において，Side 1 上に三角形状の巨大な陥没を生じた．

・ 損傷段階:三角形状の陥没の近くで,入り込み/突き出しが成長した（$N = 2000$）．$N = 4000$ 終了後には，Side 4 の奥側から Side 2 の手前側に向けてすべり面 B が活発に活動し，大きな入り込み/突き出しが発生した（$N = 4000$ および $N = 10000$ の図中矢印）．

本試験装置を用いて引張圧縮繰り返し負荷を与えた単一すべり方位を有するマイクロ Cu 単結晶試験片[1-3]では，一つのすべり面での単純なすべりの往復運動によって入り込み/突き出しが発生する（図 3.1）．二重すべり方位を持つミクロンサイズの Cu 単結晶では，それとは異なる複雑な疲労プロセスを示すことがわかる．次項より，三つの段階のプロセスについての考察を行う．

3.3.3. 初期すべり段階

図 3.2 で示したように，すべり系 C1 は，主すべり系 B4 に近いシュミット因子を有している．シュミット因子の大小からは，それらは大きな差がないことから二つのすべり系の活動による二重すべりが予想され，実際，初期のサイクルでは，すべり面 B およびすべり面 C の活動によるすべり線が観察された（図 3.6）．しかし，両者の活動はその後収束した．金属結晶において複数のすべり系が活動する場合，すべり系間の転位反応は材料の変形に関して重要な役割を果たす．FCC 金属では，一つのすべり系の刃状転位が他のすべり系の刃状転位と反応して両方のすべりを阻害する不動転位を形成することが知られており，これは Lomer-Cottrell の不動転位（Lomer-Cottrell sessile dislocation）として知られている（図 3.7）[16,17]．本試験片では，すべり系 B4 とすべり系 C1 上の刃状転位は，この不動転位を作る関係にあることから，この転位反応によって 2 つのすべり系が抑制された可能性が考えられる．同様の二重すべり方位を有するバルク Cu 単結晶の疲労において，Lomer-Cottrell 不動転位の形成によりすべり系の活動が抑制されたことが示されている[13-15]．すべり系 B4 とすべり系 C1 のシュミット因子は，両者ともに十分高い値を有するが，すべり系間の転位反応の結果，初期段階においてすべりが抑制されたものと考えられる．

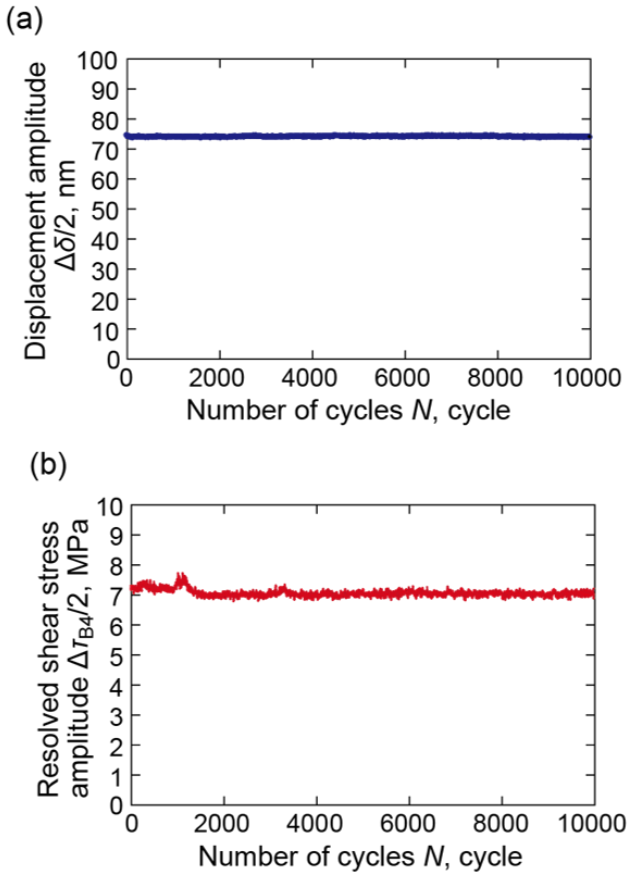


Fig. 3.5 (a) Relationship between displacement amplitude, $\Delta\delta/2$, and number of cycles, N, and (b) relationship between resolved shear stress amplitude, $\Delta\tau_{B4}/2$, on primary slip system B4 and number of cycles, N.

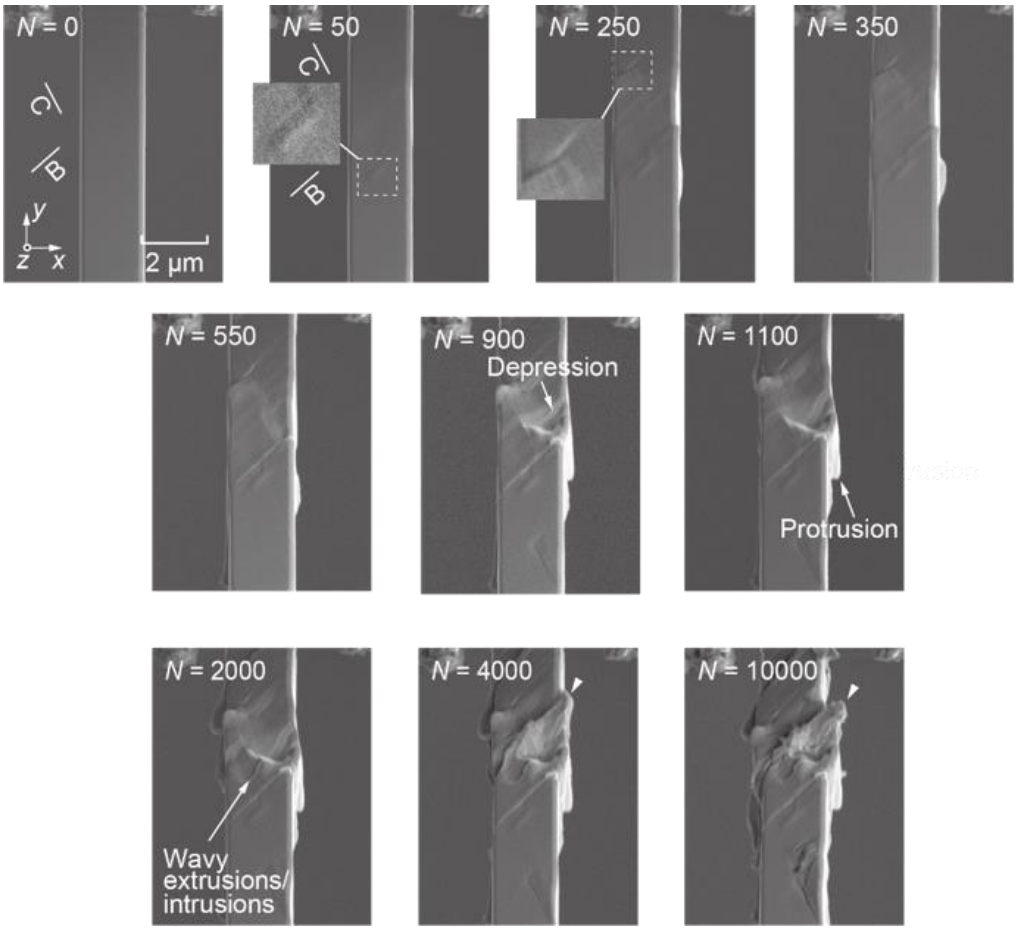


Fig. 3.6 Morphological changes of specimen during fatigue test as observed from Side 1.

図 3.8 は，疲労損傷過程における初期段階の FE-SEM 観察像を示す．その詳細を見ると，$N=100$ では，Side 1 表面にはうねりが生じており，$N=200$ では，小規模の入り込み/突き出し（すべり系 B5 によるもの）および段差（すべり系 B4 によるもの）が現れている．この入り込み/突き出しは，$N=350$ まで連続的に成長していたが，その後（$N=700$），逆方向のすべりによって縮小した．この挙動は，単一すべり方位を有するマイクロ Cu 単結晶試験片の挙動[1-3]と類似していた．これは，すべり系 B4 とすべり系 C1 の活動が抑制された後，局所ですべり系 B4 が活動し始めるとともに，3 番目のシュミット因子を有するすべり系 B5（シュミット因子 = 0.289）が活動したことを示している．すべり系 B4 とすべり系 C1 のシュミット因子の差は小さいが，若干値の大きいすべり系 B4 上の転位の総量が大きいため，一旦は両者の活動は停止するが，その後再度活動したものと考えられる．すなわち，入り込み/突き出しと段差は，それぞれすべり系 B5 とすべり系 B4 の活動によって引き起こされた．

3.3.4. 陥没段階

図 3.9 は，試験部における三角形状の陥没の発達過程を示す．陥没領域の淵の形状から，陥没部はすべり面 B とすべり面 C の活動によって生じたと判断でき，画像において右奥方向に陥没している．すべり面 B 上に存在するすべり方向は 4，2，および 5，すべり面 C 上に存在するすべり方向は 1，3 および 5 であるが，陥没の方向を考慮すると，すべり方向 5 が相当する．すなわち，試験片に生じた陥没は，すべり系 B5 およびすべり系 C5 の活動によって生じたものである．すべり系 B5 とすべり系 C5 は異なるすべり面上に存在するが，そのすべり方向は同じであり，らせん転位は交差すべりによって両方のすべり面を用意に移動することができる（図 3.10）[18,19]．つまり，すべり系 B4 とすべり系 C1 の活動が抑制された後に活動を始めたすべり系 B5 のらせん転位は，交差すべりによってすべり系 C5 を活性化させ，その結果三角形状の陥没が生じたと考えられる．

図 3.11(a)は，陥没がさらに進行した際の FE-SEM 像を示す．$N=850$~950 において陥没は深くなり，$N = 1450$ 終了後では，最初の陥没の左隣に 2 つ目の陥没が現れていた．これらの複数の陥没によって，試験片の表面には波状の入り込み/突き出しが発生した（$N=1700$）．図 3.11(b)は，すべり系 B5 とすべり系 C5 の活動による連続的な陥没の過程を模式的に示す．

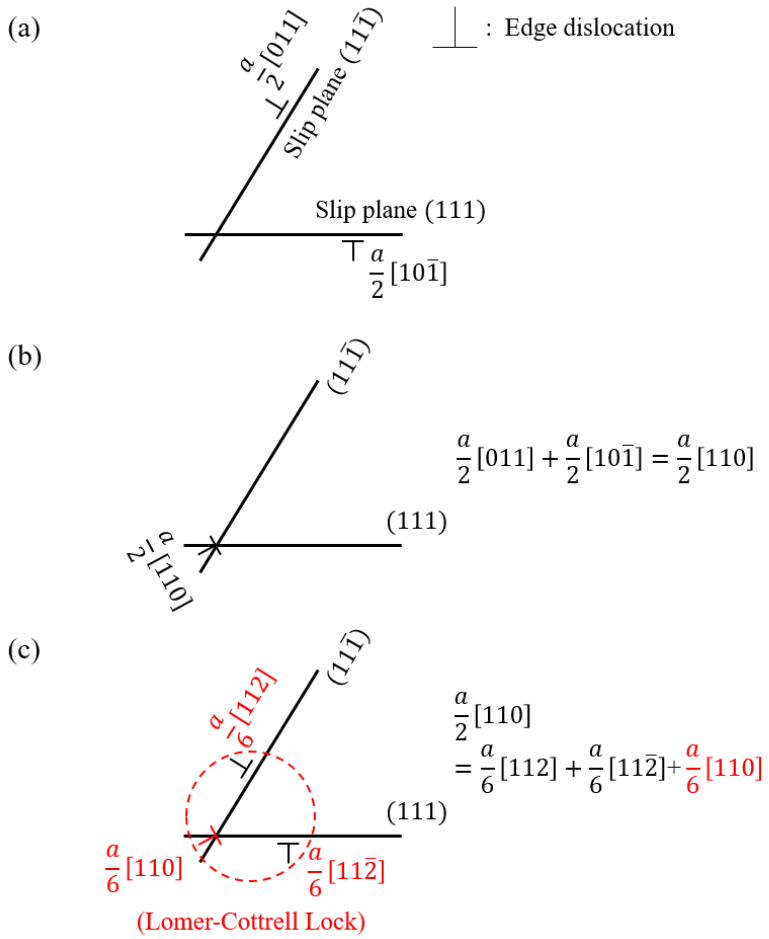


Fig. 3.7 Schematic image of Lomer-Cottrell sessile dislocation formation.

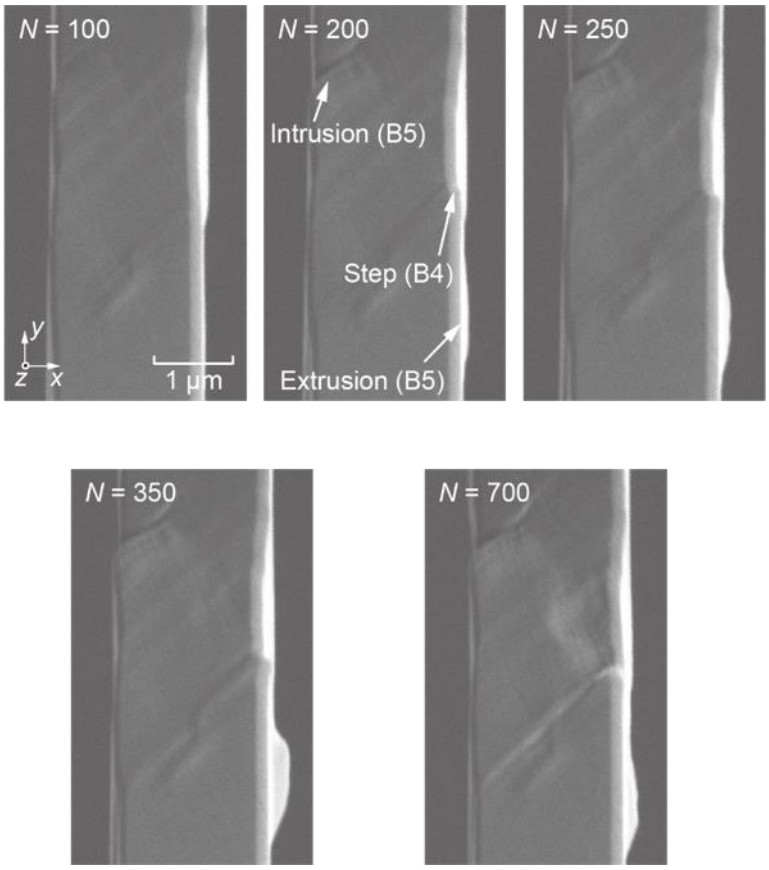


Fig. 3.8 FE-SEM images showing slip process in early stage of fatigue as observed from Side 1.

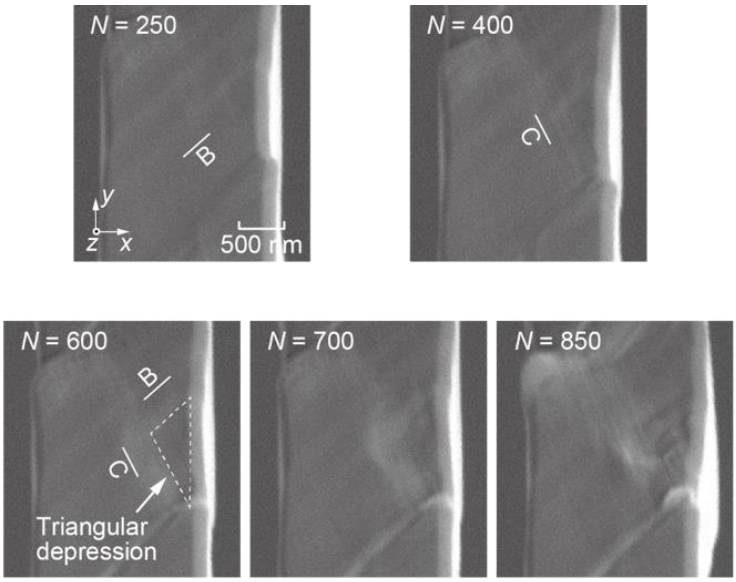


Fig. 3.9 Growth process for depression in gauge part observed from Side 1.

3.3.5. 損傷段階

図 3.12 は，試験後の試験部四側面の高分解能 FE-SEM（Hitachi High-tech, S-5500）観察像を示す．試験部大半において，すべり面 B の活動による入り込み/突き出しが発生していた．この入り込み/突き出しの成長方向から，すべり面 B 上の異なる 2 つのすべり方向が特定された．Side 1 から見た場合，1 つは Side 4 の奥側から Side 1 の右前へのすべり方向 4 であり，もう 1 つは Side 2 の奥側から Side 1 の左前へのすべり方向 5 であった．これらの方向は，その場観察から特定したものと同じである．

図 3.13(a)は，試験後の試験部の Side 3 と Side 2 の間の稜線方向から観察した高分解能 FE-SEM 観察像を示す．この画像では，すべり方向 4 は，ほぼ紙面に平行な配置となっている．すべりは薄いすべりプレートで構成され，すべり面 B による入り込み/突き出しは，すべり方向 4 に沿って試験部の Side 2 および Side 3 の大部分半で形成されていた．すべりプレート一枚の厚さは約 15 nm で，この寸法は同程度の飽和応力振幅で試験を行った単一すべり方位を有する Cu 単結晶試験片の場合[2]と同等であった．さらに，Side 2 ではすべり面分離によるき裂が見られた．

図 3.13(b)は，Side 3 と Side 2 の間の稜線から観察した高分解能 FE-SEM 観察像を示す．入り込み/突き出しは，すべり方向 5 の活動によって画像の左右方向にも発達していた．この結果は，試験片に致命的な破壊を発生させる疲労損傷は主すべり系 B4 の活動によって発達しているが，3 番目のシュミット因子を有するすべり系 B5 がその形成を助けていることを示している．

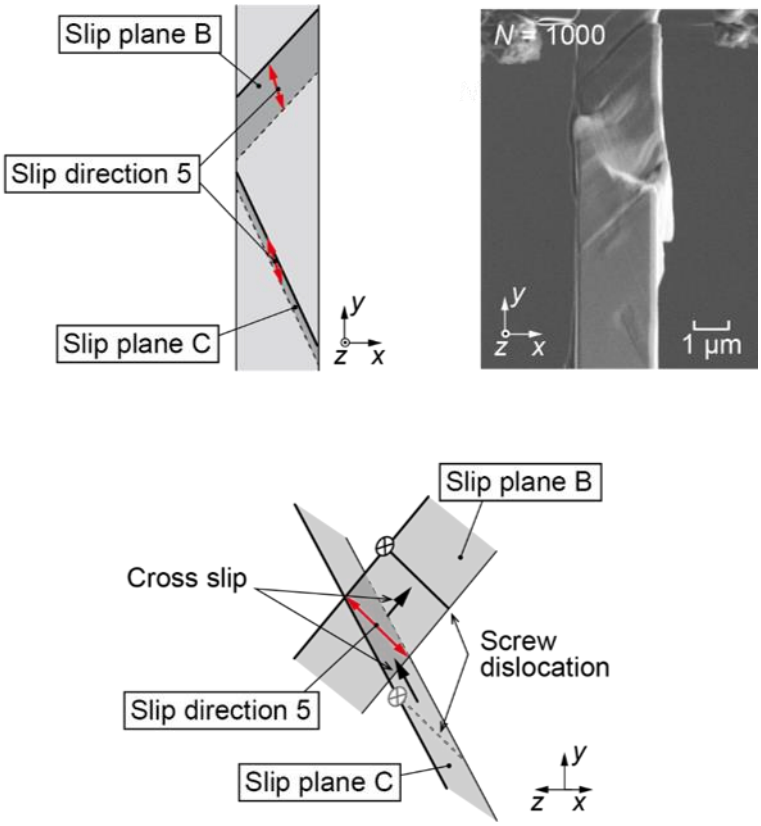


Fig. 3.10 Cross-slip between slip systems B5 and C5. The SEM image shows the specimen observed from Side 1.

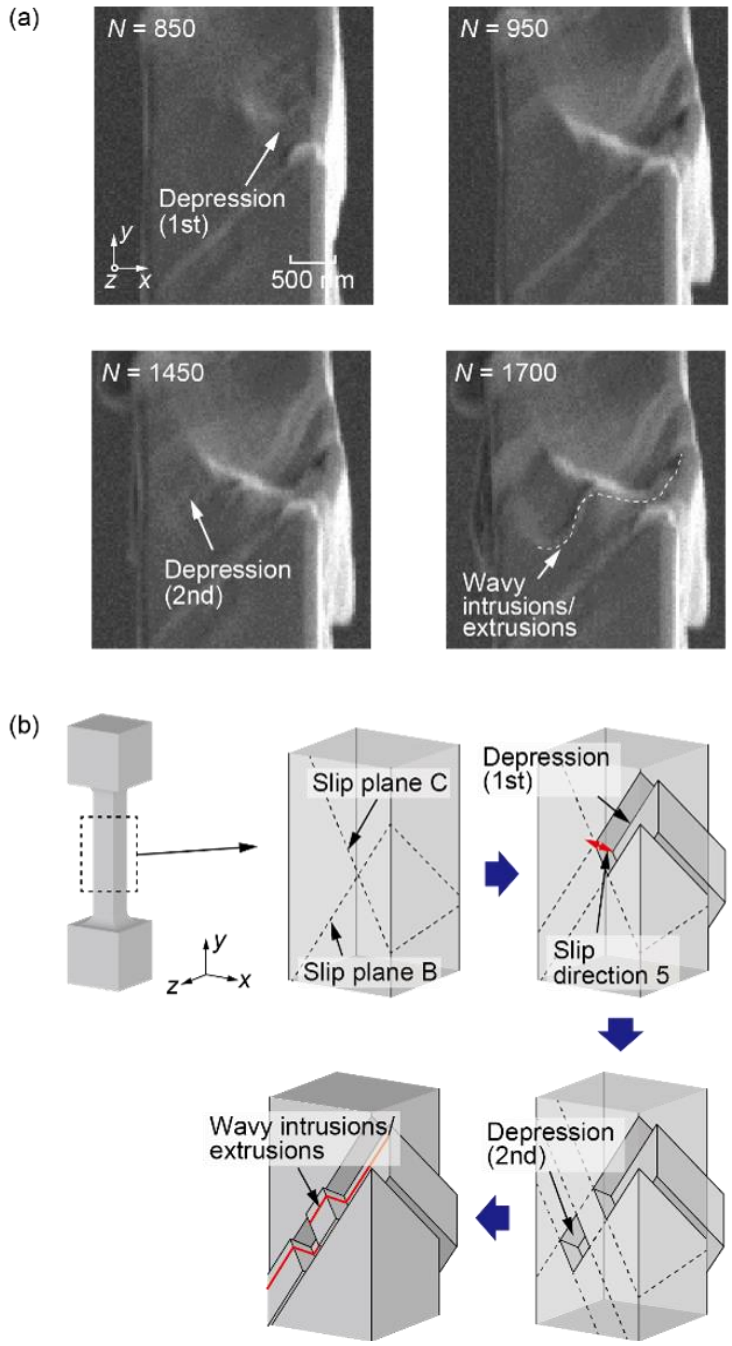


Fig. 3.11 Process of cave-in and formation of wavy undulation: (a) close-up view of process as observed from Side 1, and (b) schematic illustration of mechanism.

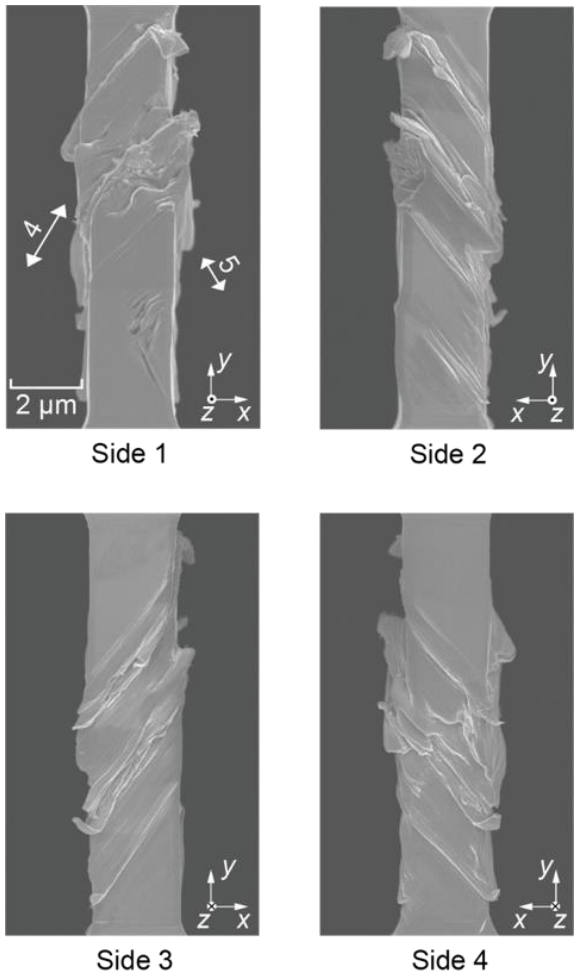


Fig. 3.12 FE-SEM images of gauge part after fatigue test for all four side surfaces, showing extrusions/intrusions due to two slip directions 4 and 5.

単一すべり方位を有するマイクロ Cu 単結晶試験片の結果[1-3]，および，二重すべり方位を有する Cu 単結晶試験片を対象とした本章の結果から，一辺が 2 μm の正方形断面を有するマイクロ単結晶 Cu 試験片の疲労損傷は，微細なすべりプレートのずれによる入り込み/突き出しによって生じており，結晶方位には大局的には関係ないことが確認された．また，本章で使用した試験片には，すべり系 B4 には約 7 MPa，および，すべり系 B5 には約 5 MPa の分解せん断応力が作用しており，それらのすべり系の活動によって疲労き裂が発生した．しかし，これらの値は，バルク Cu 単結晶の疲労き裂発生限界を与える飽和応力振幅である 27.5 MPa[4]よりも低く，単一すべり方位を有するマイクロ Cu 単結晶試験片の値[2]に近い値である．本章の実験では，サイクル数の増加とともにすべり変形が徐々に現れ，最終的に入り込み/突き出しが形成した．これは，繰り返し負荷を受ける試験片内部において転位が増殖・移動していることを示している．ミクロンサイズの金属単結晶では，転位は表面からの鏡像力によって表面に引き寄せられ，容易に外部へ射出される．これは，本章で用いた試験片が，同じ方位を有するバルク金属単結晶で見られる顕著な加工硬化を示さなかったことからも明らかである（図 3.5(b)参照）．その結果，低い応力振幅であっても表面では容易に入り込み/突き出しが形成され，入り込み底部での応力集中に起因したすべり面分離によって疲労き裂が発生した．

表面形状に支配される疲労き裂の発生は，単一すべり方位を有するマイクロ Cu 単結晶の場合と等しい．これは，最終的に活動をしていたすべり系 B4 およびすべり系 B5 が共通の主すべり面 B 上に存在したためである．異なるすべり面が活動する二重すべり方位の試験片の場合に，そのすべり面間の衝突が疲労き裂発生に影響を及ぼす可能性があり，今後，検討する必要がある．

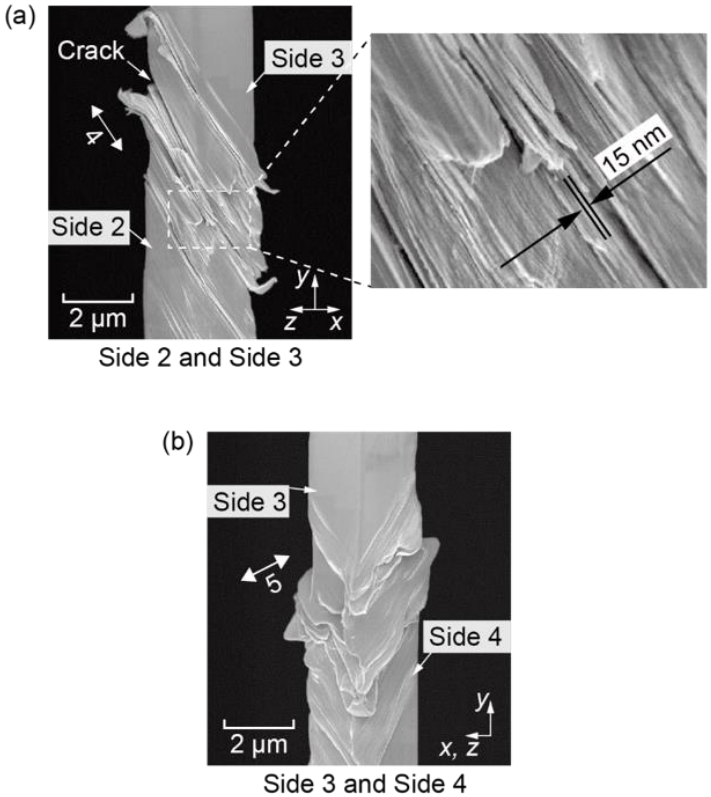


Fig. 3.13 FE-SEM images of gauge part after fatigue test showing extrusions/intrusions due to two slip systems B4 and B5 as observed (a) from corner between Side 2 and Side 3 and (b) from corner between Side 3 and Side 4.

3.4. 結　言

これまでに，単一すべり方位を有するマイクロ Cu 単結晶試験片に対して，数千サイクルの引張圧縮繰り返し負荷を与えた研究が行われており，主すべり系のみが活動し，さらにバルク Cu 単結晶よりも著しく低い応力振幅で疲労き裂が発生することが報告されている．本章では，複雑且つ，実用的な疲労破壊過程を明らかにするため，二重すべり方位を有するミクロンサイズの Cu 単結晶試験片を用いて試験を実施した．以下に得られた結果を示す．

1　最終的には，主すべり系の活動によって生じた入り込み底部からき裂を発生したが，複数のすべり系の活動および相互作用のため，その過程は単純ではなかった．疲労損傷過程は，初期すべり段階，陥没段階および損傷段階の 3 段階に分類された．

2　初期すべり段階では，少ない繰り返し数ではシュミット因子の高い 2 つのすべり系 B4 とすべり系 C1 が活動していたが，両者の活動はすぐに収束した．これは，Lomer-Cottrell の不動転位の形成によるものであると考えられる．以降の繰り返し変形では，すべり系 C1 は完全に活動を停止したが，すべり系 B4 はわずかに活動していた．この段階から，3 番目に高いシュミット因子を有する B5 によって入り込み/突き出しが形成された．

3　陥没段階では，すべり系 B5 とすべり系 C5 の活動によって，試験部表面に陥没を生じた．これは，すべり系 B5 のらせん転位が交差すべりによってすべり系 C5 を活性化したことが原因であると考えられる．また，連続した陥没の発生によって，波状の入り込み/突き出しが局所に発生した．

4　損傷段階では，すべり系 B4 およびすべり系 B5 が活動し，最も高いシュミット因子を有するすべり系 B4 によって巨大な入り込み/突き出しが形成され，入り込み底のすべり分離によって疲労き裂を発生した．この損傷のために活動したすべり系の分解せん断応力振幅は約 5~7 MPa であり，バルク Cu 単結晶の疲労き裂発生限界を与える応力振幅（27.5 MPa）よりも大幅に低かった．これは，表面から転位に作用する鏡像力の影響であると考えられる．

5　二重すべり方位を有するバルク Cu 単結晶の疲労では，1 番目と 2 番目に高いシュミット因子を有するすべり系が活動し，互いが衝突することで疲労き裂を生じる．さらに，この衝突によって大きな加工硬化を示す．一方，本章

で用いた試験片では顕著な加工硬化は示さず，すべり面 B の活動を中心とした段階的な疲労損傷を示した.

第 3 章の参考文献

[1] T. Sumigawa, S. Uegaki, T. Yukishita, S. Arai, Y. Takahashi, and T. Kitamura "FE-SEM in situ observation of damage evolution in tension-compression fatigue of micro-sized single-crystal copper." Materials Science and Engineering: A 764 (2019): 138218.

[2] K. Huang, T. Sumigawa, and T. Kitamura "Load-dependency of damage process in tension-compression fatigue of microscale single-crystal copper." International Journal of Fatigue 133 (2020): 105415.

[3] Y. Yan, T. Sumigawa, X. Wang, W. Chen, F. Xuan, and T. Kitamura "Fatigue curve of microscale single-crystal copper: An in situ SEM tension-compression study." International Journal of Mechanical Sciences 171 (2020): 105361.

[4] H. Mughrabi "The cyclic hardening and saturation behaviour of copper single crystals." Materials Science and Engineering 33.2 (1978): 207-223.

[5] Z.S. Basinski, and S.J. Basinski, “Fundamental aspects of low amplitude cyclic deformation in face-centred cubic crystals.” Progress in Materials Science 36 (1992): 89-148.

[6] U. Essmann, U. Gösele, and H. Mughrabi "A model of extrusions and intrusions in fatigued metals I. Point-defect production and the growth of extrusions." Philosophical magazine A 44.2 (1981): 405-426.

[7] P. Li, and Z.F. Zhang "Physical origin of surface slip morphologies induced by regular self-organized dislocation patterns in fatigued copper single crystals." Journal of Applied Physics 115 (2014): 3.

[8] P. Li, S.X. Li, Z.G. Wang, and Z.F. Zhang "Unified factor controlling the dislocation evolution of fatigued face-centered cubic crystals." Acta Materialia 129 (2017): 98-111.

[9] T. Fujii, T. Kajita, T. Miyazawa, and S. Arai "Characterization of dislocation microstructures in cyclically deformed [001] copper single crystals using high voltage scanning transmission electron microscopy." Materials Characterization 136 (2018): 206-211.

[10] T. Ma, K. Chahara, T. Miyazawa, and T. Fujii “Formation of dislocation structures during cyclic deformation in near-[001] multiple-slip-oriented copper single crystals.” International Journal of Fatigue 162 (2022):106953.

[11] E. Schmid, and W. Boas “Plasticity of crystals with special reference to metals”, London F.A.Hughes & Co. Limited, (1950).

[12] https://www.unisoku.co.jp/products/nanoprobeProber/MicroTensileTestingSystem.html
[13] N.Y. Jin, and A.T. Winter, "Cyclic deformation of copper single crystals oriented for double slip." Acta Metallurgica 32.7 (1984): 989-995.
[14] X.W. Li, Z.G. Wang, Y.W. Zhang, S.X. Li, and Y. Umakoshi "Dislocation Structure in Cyclically Deformed Coplanar Double-Slip-Oriented Copper Single Crystals." physica status solidi (a) 191.1 (2002): 97-105.
[15] X.W. Li, Y. Umakoshi, B. Gong, S.X. Li, and Z.G. Wang "Dislocation structures in fatigued critical and conjugate double-slip-oriented copper single crystals." Materials Science and Engineering: A 333.1-2 (2002): 51-59.
[16] W.M. Lomer "A dislocation reaction in the face-centred cubic lattice." The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science 42.334 (1951): 1327-1331.
[17] A.H. Cottrell "LX. The formation of immobile dislocations during slip." The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science 43.341 (1952): 645-647.
[18] J.P. Hirth, and J. Lothe, “Theory of Dislocations, second ed.” Krieger Pub. Co., Florida, (1982).
[19] P.R. Thornton, T.E. Mitchell, and P.B. Hirsch. "The dependence of cross-slip on stacking-fault energy in face-centred cubic metals and alloys." Philosophical Magazine 7.80 (1962): 1349-1369.

第 4 章　双晶境界を有するマイクロ Cu 双結晶の疲労挙動

4.1. 緒　言

第 3 章では，実用金属材料の多くが多結晶であり，その内部の結晶粒では複数のすべり系の活動が生じていることを鑑み，二重すべり方位を有するマイクロ Cu 単結晶試験片の疲労挙動を明らかにした．一方，多結晶材料の内部には多くの結晶粒界が存在する．とくに，FCC 金属である Cu 多結晶においては，焼きなまし双晶境界（Σ3(111)整合双晶境界，Coherent twin boundary，以降，単に「双晶境界」と呼称する）が形成されやすい[1,2]．この双晶境界は，境界上での原子配列の整合性が高く，その粒界エネルギーは単結晶と同等である[3]．よって，応力腐食割れや高温下での粒界すべりに対する耐性が高いことが知られている[4-6]．しかし，疲労においては，双晶境界近傍で優先的に塑性変形の局在化が起こり，PSB が発生する．さらに，PSB の発生に伴って表面に生じる入り込みから疲労き裂が発生することが報告されている[7-17]．これは，材料に負荷が加えられた際，結晶が有する弾性異方性に起因して双晶境界に隣接する結晶粒の変形量に大きな相違が生じ，双晶境界と表面との会合部に高い応力集中が生じることが原因とされている[18-20]．また，双晶境界は FCC 金属のすべり面（{111} 面）と平行であることから，境界に沿ったすべりを用意に生じることもその原因である．

これまでに，双晶境界を有する金属双結晶試験片を用いた研究により，双晶境界近傍に疲労損傷は，結晶粒の直交弾性異方性を考慮に入れた弾性解析で得られる応力場に従って生じることが指摘されている[21-25]．FCC 金属の双晶境界の他にも，対応粒界からの疲労き裂発生に関する研究も行われている．例えば，フェライト系ステンレス（組成：Fe-30%Cr）における Σ3(112)境界においても，その境界に沿って疲労き裂が優先的に発生することが明らかになっている[26]．しかし，ミクロンサイズの金属単結晶ではバルク材とは異なる疲労挙動を示すことから，双晶境界がその疲労に及ぼす影響についても異なる可能性がある．

本章では，Σ3(111)整合双晶境界を含むミクロンサイズの Cu 双結晶試験片を作製し，その引張圧縮疲労挙動を力学および結晶学的な観点から明らかにした．

4.2. 実験方法

4.2.1. 供試材

Cu 双結晶は, 縦型ブリッジマン法によって育成した. Cu 多結晶（純度 99.99 %）板から小片を切り出し，真空中（1×10^{-2} Pa 以下）にて単結晶のインゴットを育成した. X 線ラウエ法を用いて多結晶板表面の結晶方位を得た後, 放電加工によって所望の結晶方位を有する二本の種結晶を作製した．それらの種結晶をカーボン製モールドの先端に双晶関係となるよう設置し, 双晶境界を有する Cu 双結晶を得た．放電加工を用いて Cu 双結晶のインゴットをスライスし，表面に対して#400～#2000 のエメリー紙を用いた機械研磨を行った．その後，粒度 3 μm のダイヤモンドペーストを用いたバフ研磨により鏡面に仕上げた．残留ひずみの除去のために真空加熱装置（真空度：2.0×10^{-5} Pa 以下）を用いて 800 ℃で 12 時間の加熱処理を行った.

4.2.2. 試験片

EBSD 解析を用いて Cu 双結晶中の双晶境界の位置を特定した後，FIB 加工によって双結晶試験片を作製した. 図 4.1(b)は, Cu 双結晶試験片の模式図を示す. 本試験片は, FIB によって導入された表面の加工変質層を除去するために, Ar イオンミリング処理を施した．試験片は，つかみ部，試験部および土台部で構成されており，試験部の長手方向に対して負荷を与える．試験部は，一辺が 2 μm の正方形断面を有している．双晶境界は試験部長手方向に対して傾けて配置した. 以下では，試験部上方に位置する結晶を Crystal 1，および，下方に位置する結晶を Crystal 2 と呼称する．さらに, 試験部の 4 つの側面をそれぞれ Side 1，Side 2，Side 3 および Side 4 と呼称する（図 4.1(c)）．図 4.1(d)は，作製した試験部の FE-SEM 観察像を示す．試験片は，FIB が具備するタングステン蒸着によって真鍮製ピンの端部上に固定された．試験部の 4 つの側面は平坦であり，窪みや突起等は見当たらない. 作製した試験片において, 試験片長手方向に対する双晶境界の傾斜角は，Side 1（Side 3）上および Side 2（Side 4）上においてそれぞれ 53.8° および 90.8°であった.

図 4.2(a)および図 4.2(b)は，Crystal 1 および Crystal 2 の結晶方位を表すステレオグラフおよびシュミット因子をそれぞれ示す．FCC 金属である Cu は，4 つのすべり面とそれぞれのすべり面上に 3 つのすべり方向があり，計 12 個のすべり系を有している.

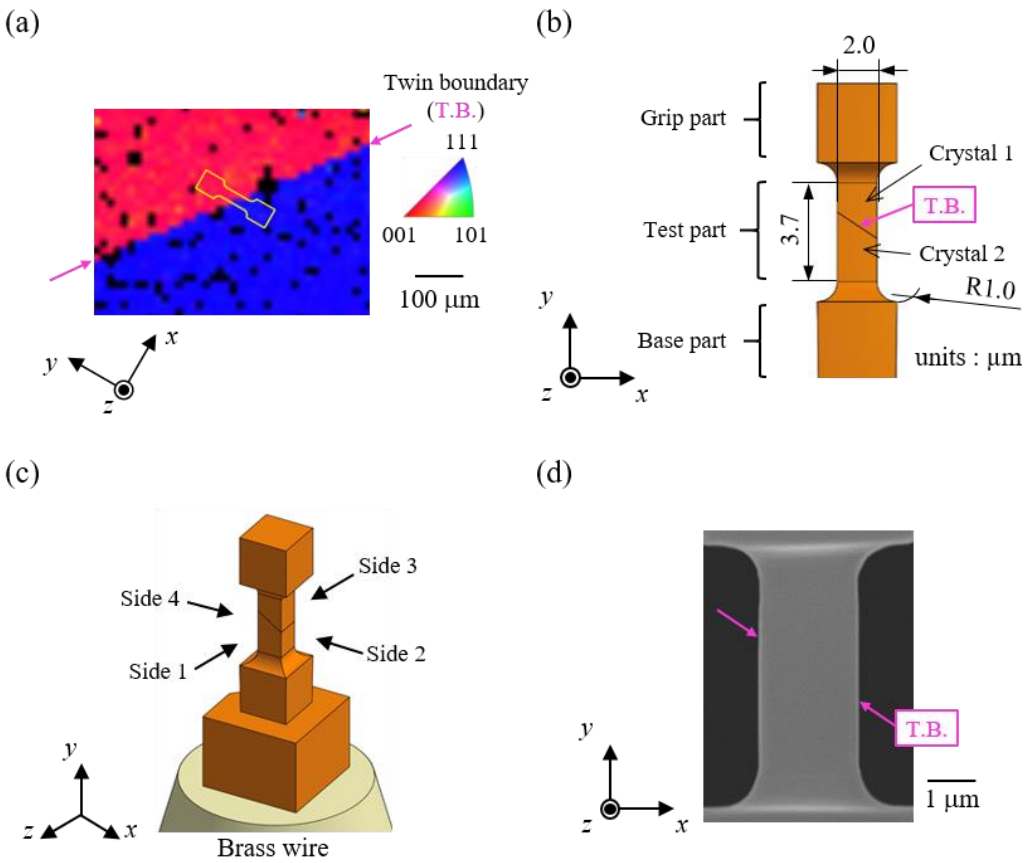


Fig. 4.1 (a)Inverse pole figure map including the Σ3(111) coherent twin boundary in the Cu bicrystal plate. The yellow line indicates where the specimen was obtained. (b)Shape and dimensions, (c)definition of the four side surfaces and (d)FE-SEM image of the gauge part (Side 1) of micron-sized Cu bicrystal specimen with the twin boundary.

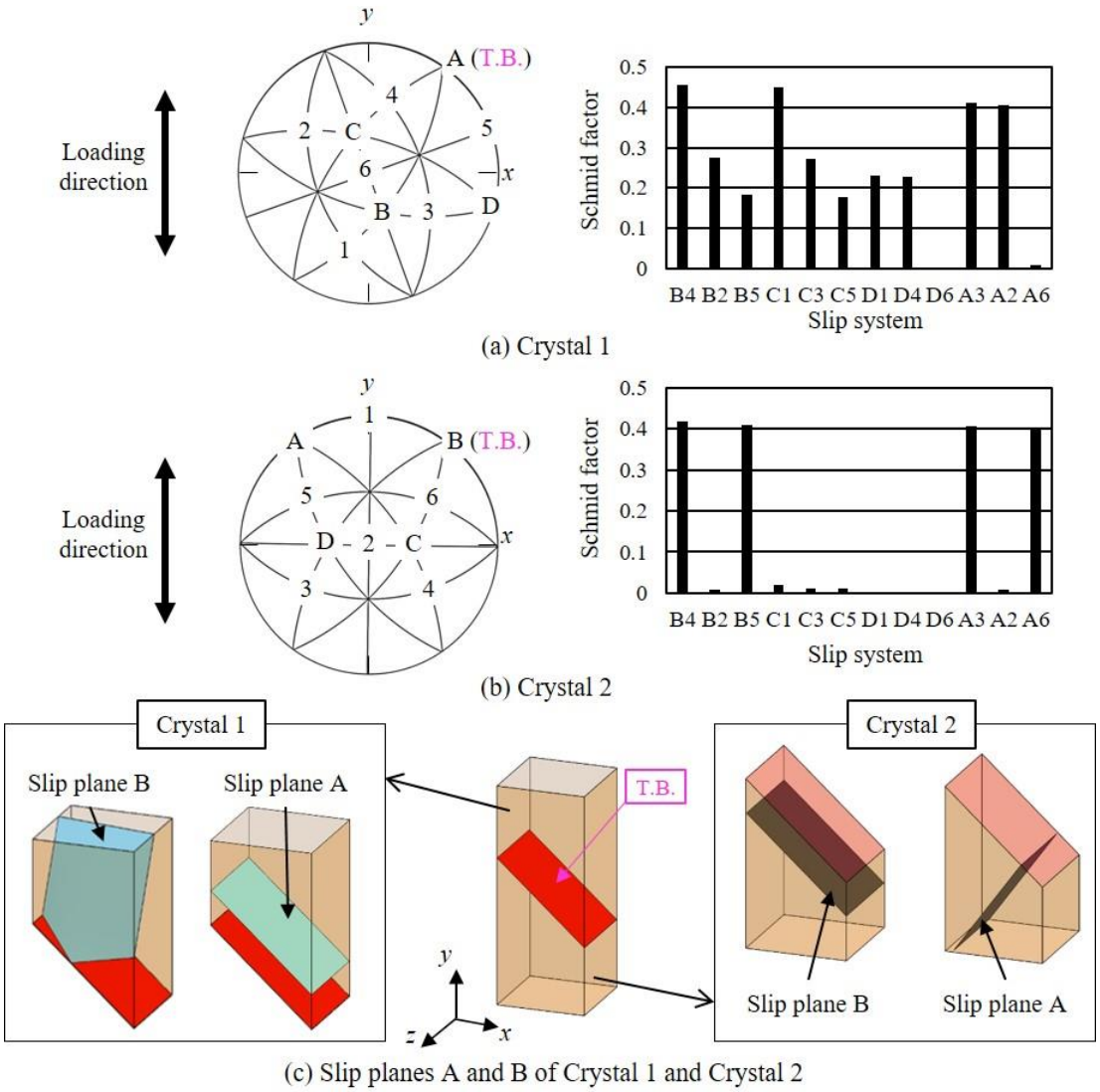


Fig. 4.2 Stereographic projections and Schmid factors on the 12-slip system of (a) Crystal 1 and (b) Crystal 2. (c) Arrangement of the slip planes with large Schmid factors.

本ステレオグラフでは，FCC 金属の 4 つのすべり面および 6 つのすべり方向をそれぞれ A~D（A：臨界すべり面，B：主すべり面，C：共役すべり面，D：交差すべり面）のアルファベット，および，1～6 の数字で示している[29]．Crystal 1 ではすべり系 B4 および C1，Crystal 2 ではすべり系 B4，B5，A3 および A6 の値が最大となっている．すなわち，両結晶は多重すべり方位となっている．図 4.2(c)は，Crystal 1 および Crystal 2 においてシュミット因子の大きいすべり面 A およびすべり面 B の配置を模式的に示す．Crystal 1 では，双晶境界に対してすべり面 B は角度を持っているのに対し，すべり面 A は平行である．一方．Crystal 2 では，双晶境界に対してすべり面 B は平行であるのに対し，すべり面 A は角度を有している．

4.2.3. 試験システムおよび試験条件

試験装置は，第 3 章で使用した微小材料用引張圧縮繰り返し負荷試験装置を用いた．試験は，アウトレンズ式の FE-SEM（Hitachi High-Tech., SU5000）（加速電圧 ：3.0 kV，真空度 ：2.0×10^{-3} Pa 以下）内で実施した．FE-SEM のチャンバー内に装置を設置して試験片を把持した後，12 時間放置し，熱ドリフトの影響がないことを確認して試験を実施した．繰り返し負荷試験では，試験片の長手方向に対して $\Delta\delta/2$ の両振り（$\delta_{min}/\delta_{max}$= -1）の変位振幅（$\Delta\delta/2$ = 115 nm，正弦波，1 Hz）を与えた．この変位振幅は，ロードセルの起歪体の変位も含まれていることに注意されたい．ロードセルおよび変位センサからの出力は，制御用 PC を用いて 0.01 秒ごとに計測した．疲労試験中において，特定のサイクル終了後に低スキャン速度で高解像度の画像を取得した．

4.3. 解析方法

有限要素法解析を用いて，双結晶試験片に生じる応力場を取得した．図 4.3 は，解析モデルのメッシュ分割図を示す．メッシュは六面体要素を用い，最小の要素は界面に隣接して配置してあり，寸法は約 20 nm である．解析モデルは，詳細な FE-SEM 観察から得られた画像を基に試験片形状および双晶境界の配置を正確に再現した．双晶境界上では，Crystal 1 および Crystal 2 には完全接合条件を課してある．Crystal 1 および Crystal 2 に対して，それぞれの結晶方位を考慮して Cu 単結晶の弾性定数（C_{11}＝168.4 GPa，C_{12}＝121.4 GPa，C_{44}＝75.4 GPa）[30]を入力した．解析モデルの下端には完全拘束を課し，上端に対して試験部の長手方向に実験から求まる飽和応力振幅 $\Delta\sigma_{sat}/2$ を与えた．解析には，汎用有限要素法解析コード ABAQUS（ver.6.23）を用いた．

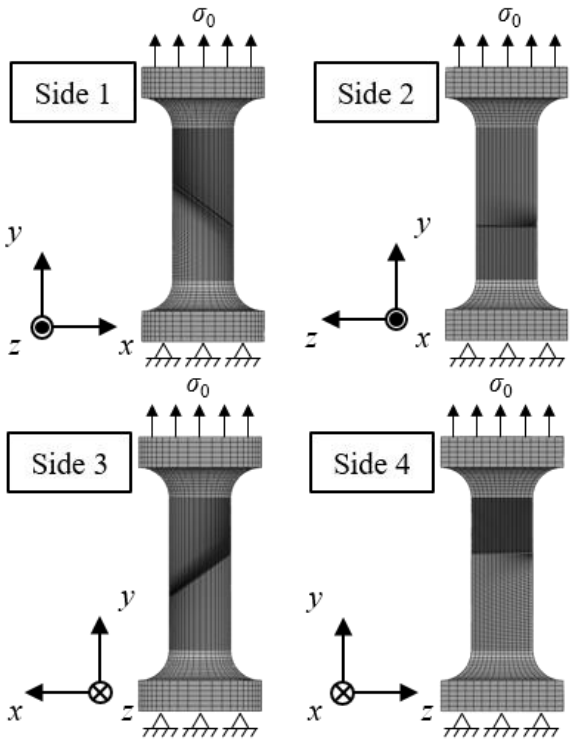


Fig. 4.3 Analytical model for stress analysis.

4.4. 結果および考察

4.4.1. サイクル数の増加に対する $\Delta\delta/2$ および $\Delta\tau_{B4}/2$ の変化

図 4.4 は，実験から得られた(a)変位振幅 $\Delta\delta/2$－繰り返し数 N 関係，および，(b)荷重振幅 $\Delta P/2$－繰り返し数 N の関係を示す．試験片には設定した 115 nm の $\Delta\delta/2$ が与えられている．$\Delta P/2$ はほぼ一定の値を示しており，顕著な加工硬化は示していない．飽和後の荷重振幅は 105.8 μN であり，FE-SEM 観察で得られた試験片の断面積（2.04 μm×2.02μm）を考慮すると，飽和公称応力振幅は 25.9 MPa である．また，二つの結晶において最大のシュミット因子を有する Crystal 1 のすべり系 B4 のシュミット因子を用いて算出した分解せん断応力を図の右軸に示す. Crystal 1 のすべり系 B4 に与えられた飽和分解せん断応力振幅 $\Delta\tau_{RSS}/2$ は，約 11.9 MPa であった．この値は，単一すべり方位を有するバルク Cu 単結晶の疲労き裂発生限界を与える $\Delta\tau_{RSS}/2 = 27.5$ MPa[31]の半分以下である．

4.4.2. その場 FE-SEM 観察

図 4.5 は，(a) $N = 0$，(b) $N = 500$ および(c) $N = 1000$ サイクルにおけるその場観察像を示す．$N = 0$ では，試験片にはすべり線等の塑性変形を示す痕跡は見受けられず，予ひずみを導入することなく試験片つかみ部の把持に成功していることがわかる．$N = 500$ では，Crystal 2 に微細なすべりの発生が見受けられた．このすべり線は，双晶境界と平行であった．$N = 1000$ になると，$N = 500$ で見られたすべりには大きな変化はなく，Side 4 側の双晶境界近傍で顕著な突き出しが形成していた．そのため，試験を中止した．

4.4.3. 試験後の観察

図 4.6 は，試験終了後の試験部の四側面に対する FE-SEM 観察像を示す．観察には，インレンズ式の高分解能 FE-SEM（Hitachi High-tech, S-5500）を用いた．四側面の観察像から，双晶境界近傍で発生した突き出しは，主に Crystal 2 において約 320 nm の幅で存在している．結晶方位から，このすべりは Crystal 2 中のすべり面 B によって生じたものであることを特定した．また，Side 2 では右側に入り込みが存在しており，Side 4 においては右側に突き出しが発生していることから，これらは Side 2 と Side 3 の稜線から Side 4 と Side 1 の稜線に向かうすべりによって生じたことがわかる．このすべりは，すべり方向 5 に対応する．すなわち，この双晶境界近傍の突き出しは，Crystal 2 におけるすべり系 B5 の活動によって生じたと考えられる（図 4.7）．

図 4.6(c)中の拡大図は，厚さ 20 nm のすべりプレートにより構成した試験片表面の入り込み/突き出しの発生を示す．入り込み/突き出しの形状はほぼ一致して

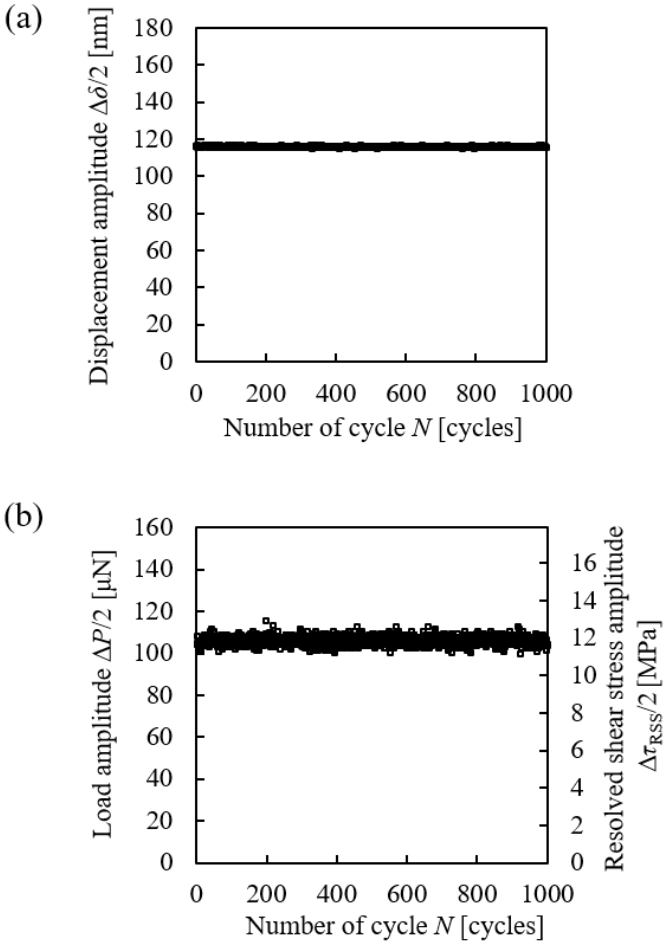


Fig. 4.4 (a) Displacement amplitude, and (b) load amplitude during tension–compression cyclic-loading test.

おり，各々の高さおよび深さは約 300 nm である．この入り込み/突き出しは，試験片を貫通するすべりプレートがずれることで生じたことを示している．繰り返し負荷を受けるバルク金属の入り込み/突き出しは，正と負の転位の反応によって空孔数が増加し, PSB の体積が膨張することで生じる[7,32-34]. すなわち，本試験片で生じた入り込み/突き出しの形状はバルク材の疲労のそれと類似するが, 異なるメカニズムを有している. このすべりプレートのずれによる入り込み/突き出しの形成挙動は，同じ断面積を有する Cu 単結晶に対する疲労試験結果[35-38]と等しく, 顕著な加工硬化を示さなかった. 荷重振幅－サイクル数の関係（図 4.4）から見ても，本試験片の寸法では転位は容易に内部を移動し，外部に射出されたものと考えられる.

さらに，Side 3 では，すべり面 A によるすべり線が見受けられる（図 4.6(c)中矢印）が，これは，Side 2 側で発生した入り込みによる応力集中に起因したものと考えられる．一方，Crystal 1 では，双晶境界から約 1 μm 離れた位置に双晶境界と平行なすべり線が存在する（図 4.6(a)中矢印）. 結晶方位から，このすべり線はすべり面 A の活動によるものである．しかし，その変形量が小さいため，すべり方向は特定できなかった.

図 4.8 は，試験後の試験片を FIB 加工により約 200 nm の厚さまで薄片化して Crystal 2 の Side 4 側の双晶境界近傍における TEM 像（暗視野像）を示す．この観察には，超高圧透過型電子顕微鏡（JEOL. JEM-1000K RS）を用いた．図 4.8 では，双晶境界を明確に特定することができ，突き出しは主に Crystal 2 内に生じたことがわかる．転位は，結晶内全体に存在しており，Crystal 2 では主にすべり面 B と平行な転位線が見受けられる．双晶境界近傍の約 320 nm のすべりが活発に活動した領域では，遠方領域と比較して転位密度が低下している．また，入り込み/突き出しが生じた領域にバルク材の PSB 中に見られる転位のはしご状構造は存在していない.

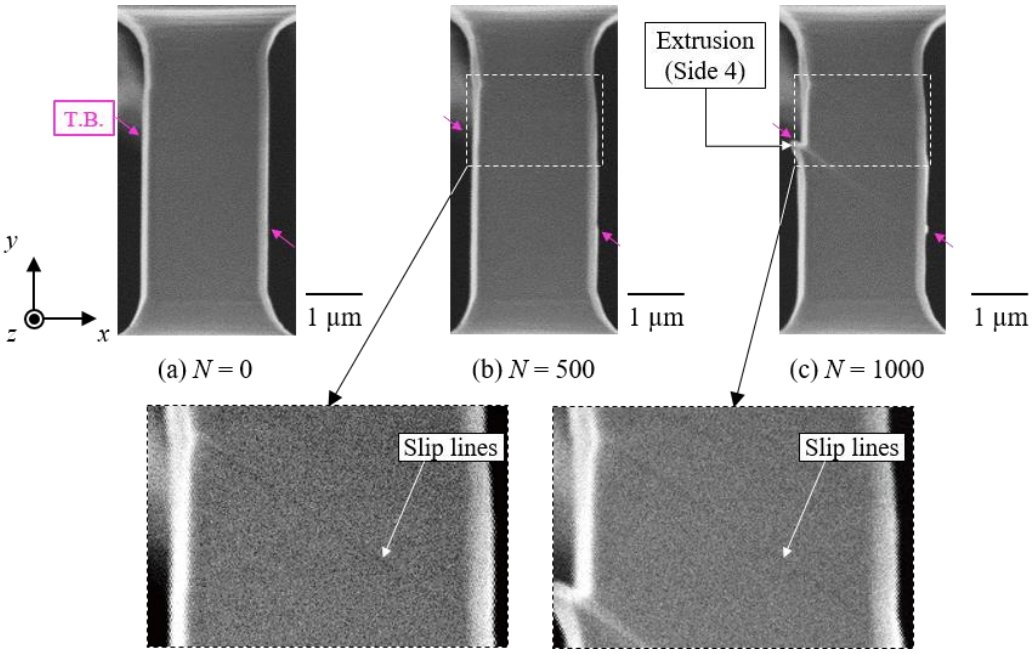


Fig. 4.5 *In-situ* FE-SEM images at (a) $N = 0$, (b) $N = 500$, and (c) $N = 1000$.

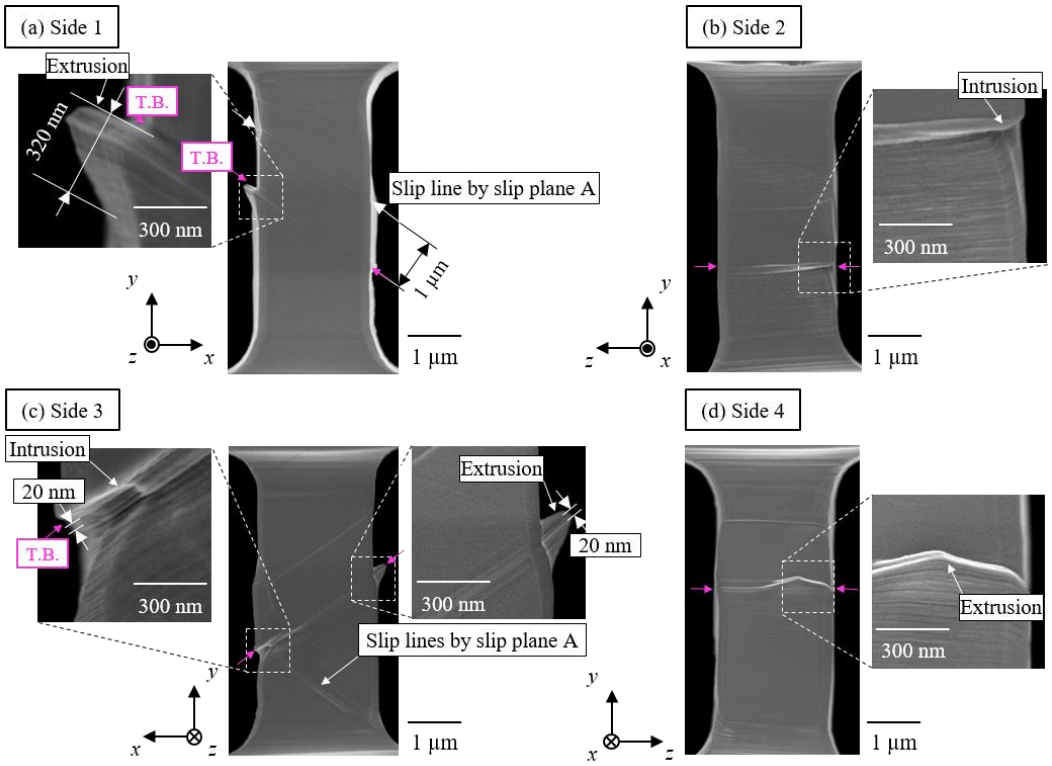


Fig. 4.6 FE-SEM images of the specimen after the tension–compression cyclic-deformation test.

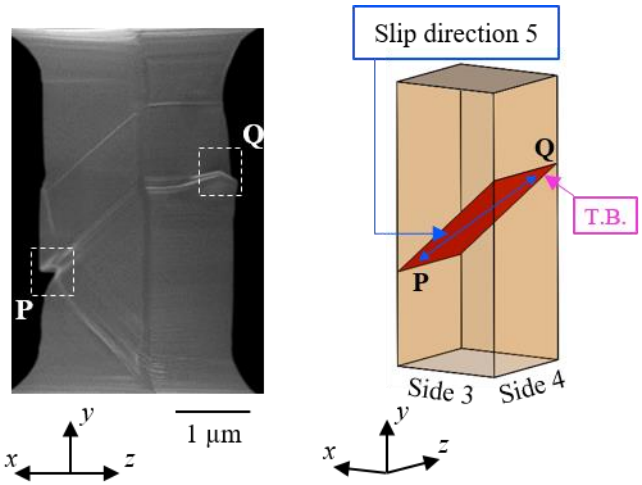


Fig. 4.7 Activated slip and the arrangement of the slip system B5.

4.4.4. マイクロ Cu 双結晶試験片の疲労挙動

図 4.9 は，FEM 解析より得られた試験部各側面の最大せん断応力 τ_{max} の分布を示す. せん断応力は, 試験片に加わる公称応力 σ_0 を用いて無次元化してある．双晶境界から離れた領域では，τ_{max}/σ_0 はほぼ 0.5 であり，双晶境界の影響は無いことを示している．しかし，Side 4 上の双晶境界近傍において応力集中が生じており，反対側の Side 2 上での応力は低下している．これらの応力状態は，Crystal 1 および Crystal 2 の弾性異方性によって生じた変形のミスマッチに起因している．同様の傾きの双晶境界を有するバルク Cu 双結晶試験片に対する疲労試験では, 結晶の直交異方性に起因した弾性応力状態に従って, 一側面のみの双晶境界近傍において応力が上昇し, その箇所で PSB が生じることが報告されている[25].

図 4.10 は，解析モデルの Side 4 および Side 2 の双晶境界近傍において Side 1 および Side 3 近傍の要素を抽出し 12 のすべり系に分解した際の τ_{rss}/σ_0 を Crystal 1 および Crystal 2 について示す．図 4.10 中ではシュミット因子の値も記載してある．双晶境界での変形拘束によって応力集中を生じた Side 4 を見てみると，τ_{rss}/σ_0 の値はシュミット因子とは異なり，Crystal 1 では A3 および A2 の値が高くなっている．一方，Crystal 2 では B4 および B5 の値が高くなっている．そして，Crystal 2 の B5 の値が最も高い．一方，Crystal 2 の Side 2 側ではすべてのすべり系において τ_{rss}/σ_0 は低下している．

図 4.11 は，試験片の四側面において，2 つの結晶粒で τ_{rss}/σ_0 の大きかったすべり系 B5 およびすべり系 A3 のせん断応力 τ_{rss} の分布を示す．図 4.11(a)では，両結晶粒ともにすべり系 B5，図 4.11(b)では，両結晶粒ともにすべり系 A3 の分布を示す．それぞれのせん断応力は，試験片に加わる公称応力 σ_0 を用いて無次元化してある．すべり系 B5 の分布では，Crystal 2 の Side 4 側において高い応力集中が生じている．この結果は，Side 4 において Crystal 2 の Side 1 側の双晶境界近傍に，すべり系 B5 の活動による突き出しが形成された結果と一致する．この箇所でのすべり系 B5 の τ_{B5}/σ_0 は 0.99 であった．Crystal 1 におけるすべり系 A3 の値も高くなっているが，このすべり系と平行である Crystal 2 中のすべり系 B5 が先にすべったことにより応力が緩和され，入り込み/突き出しは発生しなかったものと考えられる．一方，Side 2 側の双晶境界近傍では，すべり系 B5 およびすべり系 A3 の両方とも応力の低下がみられる．双晶境界を有するバルク Cu 双結晶[21-25]では，応力状態に従い，その箇所では入り込み/突き出しは発生しなったが，本試験片では，この面の Crystal 2 の双晶境界近傍においてすべり系 B5 の活動による入り込みが見られた．バルク Cu 単結晶では，繰り返し負荷による入り込み/突き出しは，正負の転位の反応によって空孔数が増加し，PSB の体積が膨張することで生じる上，対向する表面に十分な距離がある[7,32-34]．このため, 対向する側面ですべりは連動する必要が無く, 弾性応力状態に従った疲労挙

動を示す（図 4.12(a)参照）．一方，ミクロンサイズ Cu 単結晶では，入り込み/突き出しはすべりプレートのずれによって生じ，本試験結果でも同様の結果を得た．すなわち，すべりプレートの活動による入り込み/突き出しは試験片を貫通して生じるため，対向する側面同士に入り込み/突き出しは連動して形成する必要がある（図 4.12(b)参照）．このため，応力の低下が起こっている Side 2 においても入り込みが形成される．

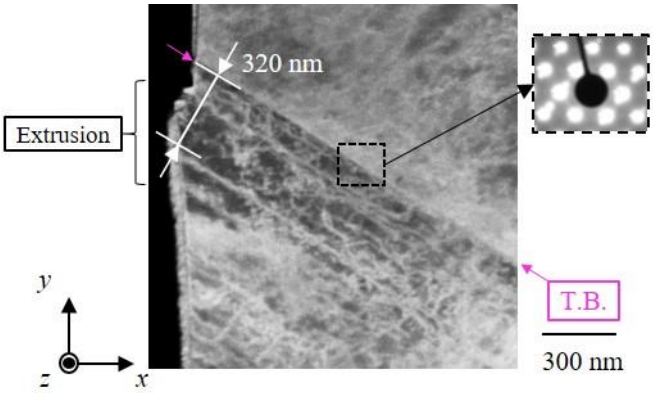


Fig. 4.8 TEM image(dark-field image) of the region near the twin boundary.

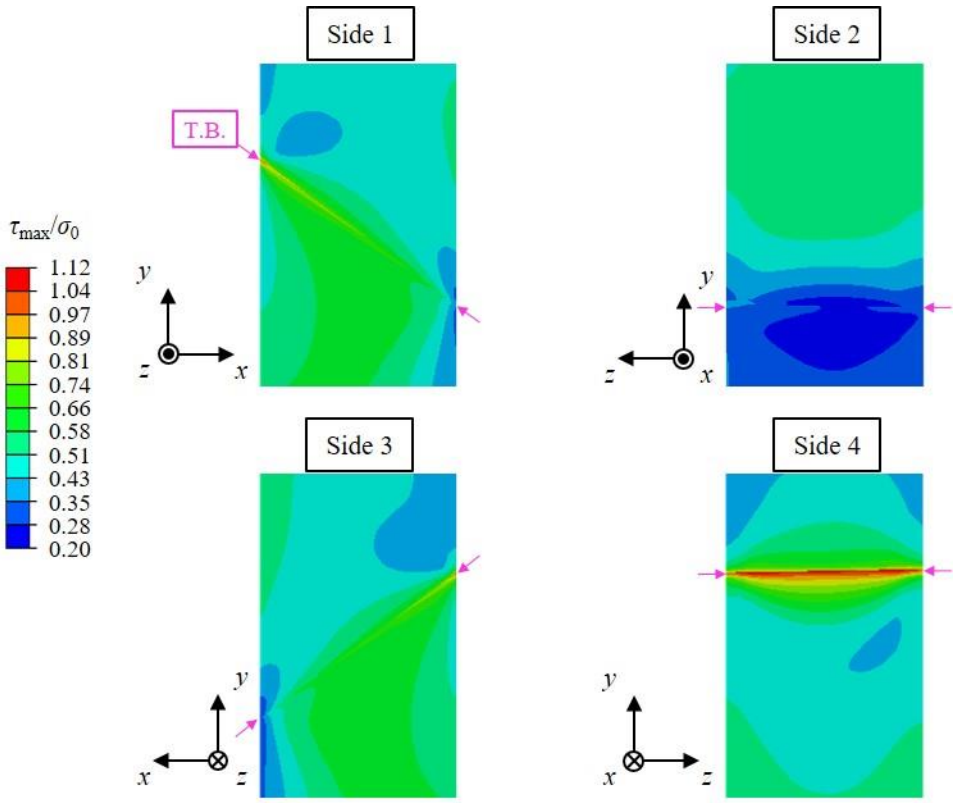


Fig. 4.9 Distribution of the normalized maximum shear stress, τ_{max}/σ_0, on the specimen surfaces.

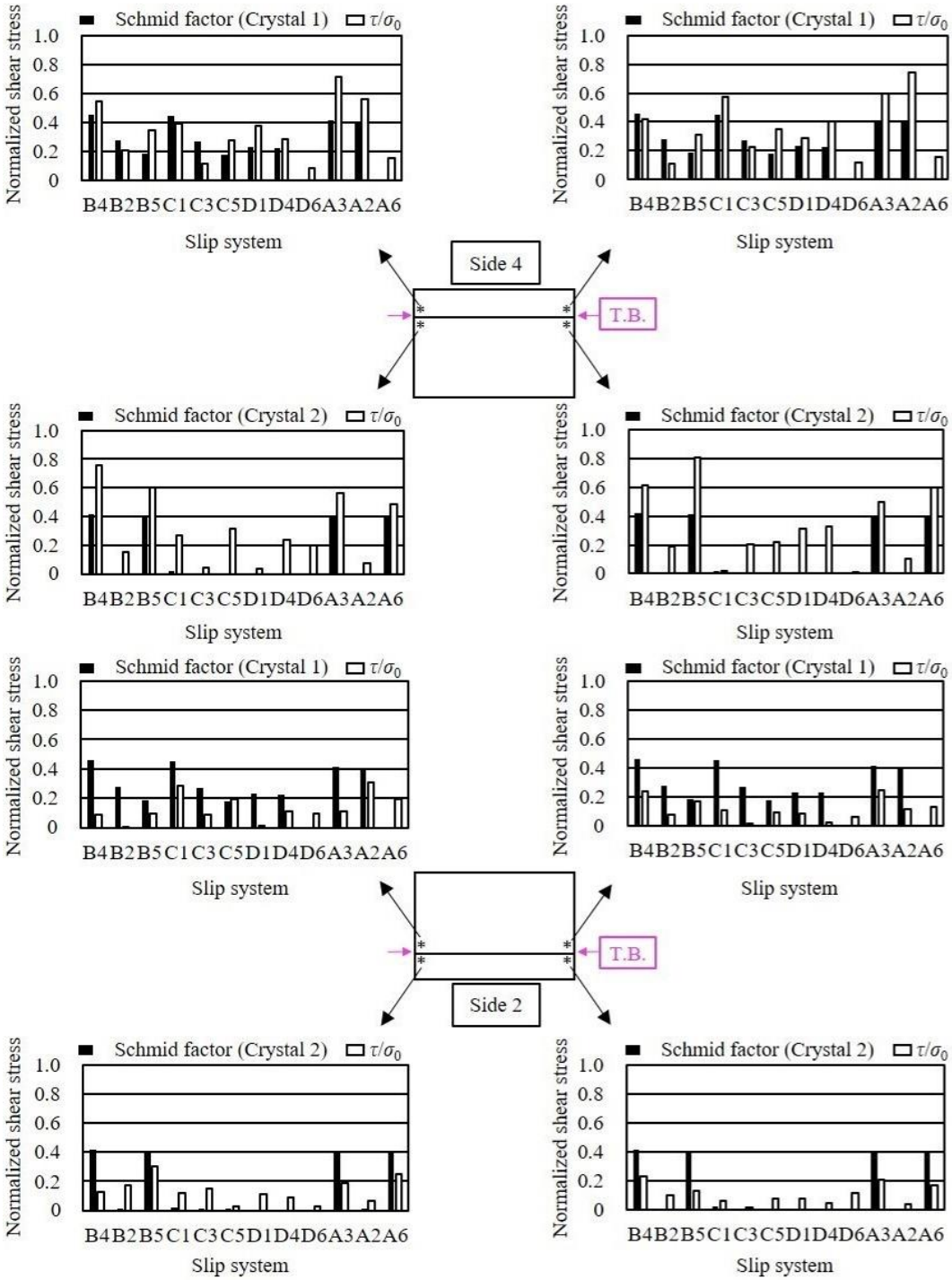


Fig. 4.10 Schmid factors and τ_{rss}/σ_0 values on the 12-slip system near the twin boundary.

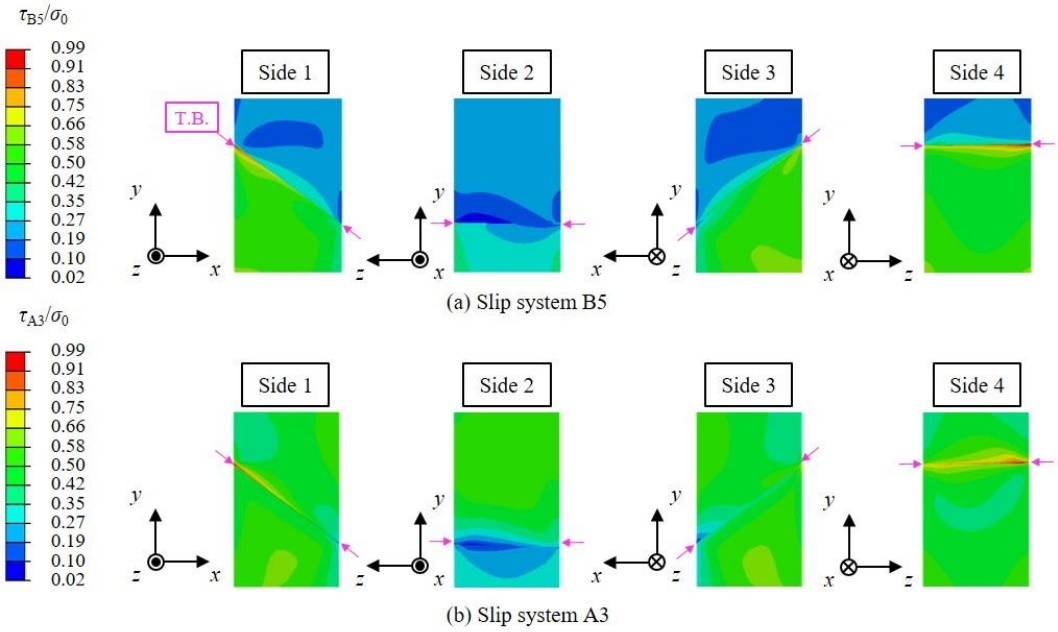


Fig. 4.11 Distribution of the normalized resolved shear stress, τ_{rss}/σ_0, for slip systems B5(τ_{B5}/σ_0) and A3(τ_{A3}/σ_0) on the specimen surfaces.

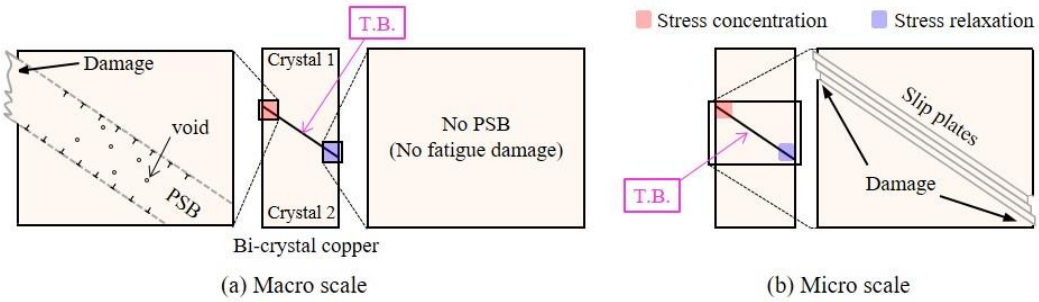


Fig. 4.12 Differences in fatigue damage in the (a) bulk and (b) micron-sized bicrystal with the Σ3(111) coherent twin boundary.

4.5. 結　言

本章では，ミクロンサイズの Cu の疲労損傷に及ぼす結晶粒界の影響を明らかにすることを目的とし，疲労においてとくに重要な Σ3(111)整合双晶境界に着目した．縦型ブリッジマン法で双結晶を育成した後，荷重軸に対して Σ3(111)整合双晶境界を斜めに配置したマイクロ試験片を作製し，引張圧縮繰り返し負荷試験を行った．以下に得られた結果を示す．

1　繰り返し負荷を受けた試験片は顕著な加工硬化を示さず，双晶境界近傍において疲労損傷（入り込み/突き出し）が優先的に発生した．これは，双晶境界に隣接した結晶粒の弾性異方性に起因した変形のミスマッチよって，試験片の一側面における双晶境界近傍で応力集中が発生したことが原因である．

2　応力集中が発生した側面に対向する側面では，双晶境界近傍に応力緩和を生じたが，疲労損傷はこの応力緩和に関係なく双晶境界に沿って試験片を貫通していた．

3　試験片の片方の表面に発生した突き出しの形状は，対向する側面上での入り込みの形状と対応しており，その内部で転位密度は大幅に減少していた．これは，ミクロンサイズの双結晶試験片では表面間の距離が短いため，応力集中部で発生した転位が対向する側面における応力緩和の効果を乗り越えて表面から射出されたことを示している．

4　表面からの転位の射出が容易であったため，バルク Cu における PSB の形成応力（27.5 MPa）より低い応力振幅でも入り込み/突き出しが形成された．このように，双晶境界を有するマイクロ Cu 双結晶試験片は，バルク材とは異なる特有の疲労挙動を示した．

第 4 章の参考文献

[1] S. Mahajan, C.S. Pande, M.A. Imam, and B.B. Rath "Formation of annealing twins in fcc crystals." Acta materialia 45.6 (1997): 2633-2638.

[2] V.Y. Gertsman, K. Tangri, and R.Z. Valiev (1994). "On the grain boundary statistics in metals and alloys susceptible to annealing twinning." Acta metallurgica et materialia 42.6 (1994): 1785-1804.

[3] K.X. Wei, S.L. Wang, W. Wei, Q.B. Du, I.V. Alexandrov, and J. Hu "Annealing effect on microstructure and mechanical properties of Cu-Al alloy subjected to Cryo-ECAP." Open Engineering 8.1 (2018): 377-381.

[4] C. Hu, S. Xia, H. Li, T. Liu, B. Zhou, W. Chen, and N. Wang "Improving the intergranular corrosion resistance of 304 stainless steel by grain boundary network control." Corrosion science 53.5 (2011): 1880-1886.

[5] M. Shimada, H. Kokawa, Z.J. Wang, Y.S. Sato, and I. Karibe "Optimization of grain boundary character distribution for intergranular corrosion resistant 304 stainless steel by twin-induced grain boundary engineering." Acta Materialia 50.9 (2002): 2331-2341.

[6] M. Michiuchi, H. Kokawa, Z.J. Wang, Y.S. Sato, and K. Sakai "Twin-induced grain boundary engineering for 316 austenitic stainless steel." Acta materialia 54.19 (2006): 5179-5184.

[7] H. Mughrabi, R. Wang, K. Differt, and U. Essmann "Fatigue crack initiation by cyclic slip irreversibilities in high-cycle fatigue." Fatigue mechanisms: advances in quantitative measurement of physical damage. ASTM International, (1983)

[8] Z.S. Basinski, S.J. Basinski "Fundamental aspects of low amplitude cyclic deformation in face-centred cubic crystals." Progress in Materials Science 36 (1992): 89-148.

[9] Seeger, J. Diehl, S. Mader, and H. Rebstock "Work-hardening and work-softening of face-centred cubic metal crystals." Philosophical Magazine 2.15 (1957): 323-350.

[10] Z.S. Basinski, A.S. Korbel, and S.J. Basinski "The temperature dependence of the saturation stress and dislocation substructure in fatigued copper single crystals." Acta Metallurgica 28.2 (1980): 191-207.

[11] H.J. Christ, and H. Mughrabi. "Cyclic stress-strain response and microstructure under variable amplitude loading." Fatigue & Fracture of Engineering Materials & Structures 19.2-3 (1996): 335-348.

[12] T. Tabata, H. Fujita, M.A. Hiraoka, and K. Onishi "Dislocation behaviour and the

formation of persistent slip bands in fatigued copper single crystals observed by high-voltage electron microscopy." Philosophical Magazine A 47.6 (1983): 841-857.

[13] M.A. Tschopp, B.B. Bartha, W.J. Porter, P.T. Murray, and S.B. Fairchild "Microstructure-dependent local strain behavior in polycrystals through in-situ scanning electron microscope tensile experiments." Metallurgical and Materials Transactions A 40 (2009): 2363-2368.

[14] Clair, M. Foucault, O. Calonne, Y. Lacroute, L. Markey, M. Salazar, V. Vignal, and E. Finot "Strain mapping near a triple junction in strained Ni-based alloy using EBSD and biaxial nanogauges." Acta Materialia 59.8 (2011): 3116-3123

[15] W.Z. Abuzaid, M.D. Sangid, J.D. Carroll, H. Sehitoglu, and J. Lambros "Slip transfer and plastic strain accumulation across grain boundaries in Hastelloy X." Journal of the Mechanics and Physics of Solids 60.6 (2012): 1201-1220.

[16] S.H. Daly "Digital image correlation in experimental mechanics for aerospace materials and structures." Encyclopedia of aerospace engineering (2010).

[17] P. Neumann "Low energy dislocation configurations: a possible key to the understanding of fatigue." Materials Science and Engineering 81 (1986): 465-475.

[18] M.A. Kumar, I.J. Beyerlein, C.N. Tomé "Effect of local stress fields on twin characteristics in HCP metals." Acta Materialia 116 (2016): 143-154.

[19] Y. Guo, D.M. Collins, E. Tarleton, F. Hofmann, J. Tischler, W. Liu, R. Xu, A.J. Wilkinson, and T.B. Britton "Measurements of stress fields near a grain boundary: Exploring blocked arrays of dislocations in 3D." Acta Materialia 96 (2015): 229-236.

[20] L.L. Li, Z.J. Zhang, P. Zhang, Z.G. Wang, and Z.F. Zhang "Controllable fatigue cracking mechanisms of copper bicrystals with a coherent twin boundary." Nature communications 5.1 (2014): 3536.

[21] J. Yang, Y. Li, S. Li, C. Ma, and G. Li "Mechanism for the formation of high cycle fatigue cracks at fee annealing twin boundaries." Metallurgical Transactions A 16 (1985): 873-880.

[22] Z. Wang, and H. Margolin "Mechanism for the formation of high cycle fatigue cracks at fee annealing twin boundaries." Metallurgical Transactions A 16 (1985): 873-880

[23] P. Peralta, L. Llanes, J. Bassani, and C. Laird "Deformation from twin-boundary stresses and the role of texture: application to fatigue." Philosophical Magazine A 70.1 (1994): 219-232.

[24] P. Gopalan, and H. Margolin "Elastic stresses, twin boundaries and fatigue cracking." Materials Science and Engineering: A 142.1 (1991): 11-23.

[25] T. Sumigawa, and T. Kitamura "Nucleation of slip bands near twin boundary in high-cycle fatigue." JSME International Journal Series A Solid Mechanics and Material

Engineering 47.2 (2004): 98-105.
[26] S. Hashimoto, H. Ikehata, A. Kato, H. Kato, and Y. Kaneko. "Fatigue crack nucleation at Σ3(112) boundary in a ferritic stainless steel." Interface Science 7 (1999): 159-171.
[27] E. Schmid, and W. Boas “Plasticity of crystals with special reference to metals”, London F.A.Hughes & Co. Limited, (1950).
[28] R. deWit "Elastic constants and thermal expansion averages of a nontextured polycrystal." Journal of mechanics of materials and structures 3.2 (2008): 195-212.
[29] H. Mughrabi "The cyclic hardening and saturation behaviour of copper single crystals." Materials Science and Engineering 33.2 (1978): 207-223.
[30] E.E. Laufer, and W.N. Roberts "Dislocations and persistent slip bands in fatigued copper." The Philosophical Magazine: A Journal of Theoretical Experimental and Applied Physics 14.127 (1966): 65-78.
[31] U. Essmann, U. Gösele, and H. Mughrabi "A model of extrusions and intrusions in fatigued metals I. Point-defect production and the growth of extrusions." Philosophical magazine A 44.2 (1981): 405-426.
[32] K. Differt, U. Esmann, and H. Mughrabi "A model of extrusions and intrusions in fatigued metals II. Surface roughening by random irreversible slip." Philosophical Magazine A 54.2 (1986): 237-258.
[33] K. Huang, T. Sumigawa, and T. Kitamura "Load-dependency of damage process in tension-compression fatigue of microscale single-crystal copper." International Journal of Fatigue 133 (2020): 105415.
[34] T. Sumigawa, S. Uegaki, T. Yukishita, S. Arai, Y. Takahashi, and T. Kitamura "FE-SEM in situ observation of damage evolution in tension-compression fatigue of micro-sized single-crystal copper." Materials Science and Engineering: A 764 (2019): 138218.
[35] T. Sumigawa, B. Kim, 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." Acta Materialia 153 (2018): 270-278.
[36] Y. Yan, T. Sumigawa, X. Wang, W. Chen, F. Xuan, and T. Kitamura "Fatigue curve of microscale single-crystal copper: An in situ SEM tension-compression study." International Journal of Mechanical Sciences 171 (2020): 105361.

第 5 章　結　論

本論文では, 金属に疲労き裂を発生させる微細組織（PSB, はしご状転位構造, 表面上の入り込み/突き出し）と寸法の近いミクロンサイズの Cu を対象とし，その疲労挙動を実験的に明らかにすることを目的とした．ミクロンサイズの金属試験片に対する繰り返し負荷試験は難しく，その実験例は繰り返し圧縮試験や繰り返し曲げ変形試験に限定されていた．これは, 前者は負荷圧子の接触のみで負荷できることが理由であり，後者は負荷軸の調整が比較的容易であることが理由である．一方, 疲労強度に影響を与える因子として，その影響度の大きさの順に①応力振幅，②平均応力，③ひずみ勾配および④残留応力が挙げられ，基礎的な疲労挙動の解明には, 最も影響の大きい応力振幅のみを対象とし, それ以外の因子を排除することが望ましい．しかし, 繰り返し圧縮試験では平均応力の影響が, 繰り返し曲げ変形試験ではひずみ勾配の影響がある．応力振幅の影響のみに注目するためには，完全両振り下で引張圧縮の繰り返し負荷試験を実施する必要がある．しかし，この試験では，圧縮変形時の座屈を防止するため，適切な試験片形状の決定と厳密な負荷軸の調整が必要となる．このため，ミクロンサイズ以下の試験片に対して引張圧縮繰り返し負荷試験を行った研究例はこれまで一切なかった．そこで本研究では，ミクロンサイズの Cu 試験片に対して世界初とする引張圧縮繰り返し負荷試験を実施し，その基礎的な疲労現象を詳細に明らかにした．ここでは，各章において得られた結果をまとめる．

第 2 章では，一辺が 2 μm の正方形断面を有し，単一すべり方位に配向された Cu 単結晶試験片を作製し，対象とした．試験片の下端は固定されており，試験片上端のつかみ部を T 字型のスリットを負荷チップに挿入することで試験片に負荷を与えた．負荷の前には，試験片の厳密な軸調整を行い，試験片つかみ部と T 字型スリット間のギャップを考慮して, 試験片に一定の変位振幅下で引張圧縮繰り返し負荷を与えた．1 サイクル目の引張負荷では，試験片は弾性変形の後に微細な降伏を示し，その後，不安定に変形した（ひずみバースト）．ひずみバースト後には, 試験片全体にわたって微細なすべり線が発生していた．続く圧縮負荷では，引張時よりも降伏応力は低く，バウシンガー効果を示した．さらに，試験部の表面には，局所にすべり帯が発生していた．試験片は，7 サイクル目の引張負荷において, 明らかに低い最大応力を示したことから, 大きな損傷が発生したものとして試験を中断した．試験後の試験片には，すべり帯の活動によって入り込み/突き出しが発生しており，入り込み底ではすべり帯分離による疲労き裂が発生していた．入り込みが形成され, 入り込み底から疲労き裂を発生したことは，バルク Cu 単結晶の疲労き裂発生過程と同様であるが，すべり帯内で空孔が

増加し，局所領域が膨張して入り込み/突き出しができるバルクの様相とは異なっていた．

第 3 章では，実用に用いられる金属は方位の異なる結晶粒で構成された多結晶であることを鑑み，複数のすべり系が活動する場合の疲労挙動に着目した．二つの異なるすべり面・すべり方向が組み合わさった二重すべり方位を有する Cu 単結晶を用意し，第 2 章で示した実験の後に我々の研究グループで開発した専用の装置を用いて引張圧縮繰り返し負荷試験を実施した．この試験片は，単一すべり方位を有する試験片に比べて複雑な疲労挙動を示し，き裂発生までの過程は①初期すべり段階，②陥没段階および③損傷段階の 3 段階に分類された．初期すべり段階では，二つのすべり系の活動とその活動が停止する様子が観察されたが，両すべり系上の転位の反応を考慮することで，その現象を説明することができた．陥没段階では，第三のすべり系の活動とそれに伴う第四のすべり系の活動のメカニズムをらせん転位の交差すべりを考慮することで説明した．また，損傷段階においては，最終的には主すべり面上の活動によって巨大な入り込み/突き出しが形成され，疲労き裂が発生することを示した．形成された入り込み/突き出しは，単一すべり方位の Cu 試験片の場合と同様に，厚さ約 20 nm のすべりプレートで構成されていた．また，入り込み/突き出しの形成応力は，5 MPa~7 MPa であり，バルク Cu 単結晶の疲労き裂発生限界を決める応力振幅より低い値を示した．これは，材料表面からの鏡像力によって，内部の転位が外部に容易に射出されることが原因であると結論づけた．

第 4 章では，ミクロンサイズの Cu に及ぼす結晶粒界の影響について着目した．とくに，FCC 金属多結晶中で，その粒界エネルギーの低さに起因して，焼きなまし双晶として多く存在する Σ3(111)整合双晶境界を対象とした．縦型ブリッジマン法によって双晶境界を有する双結晶を育成した後，双晶境界を一本含むマイクロ Cu 双結晶試験片を作製した．試験片において，双晶境界は負荷方向に対して斜めに配置されている．引張圧縮繰り返し負荷試験の結果，双晶境界近傍で入り込み/突き出しが優先的に発生した．この入り込み/突き出しは，単一すべり方位を有する Cu 単結晶試験片および二重すべり方位を有する Cu 単結晶試験片で観察された，厚さ約 20 nm のすべりプレートで構成されていた．入り込み/突き出しの発達箇所およびその発生に寄与したすべり系は，有限要素法を用いた力学解析から得られた最も高いせん断応力を有する箇所およびすべり系と一致していた．また，その疲労損傷は，試験部の一側面に生じた応力集中部のみでなく，試験片を貫通し，対向する側面にも達していた．これは，その応力集中部のみに疲労損傷が発生するバルク Cu 双結晶の場合とは異なる結果であり，自由表面間の距離が短く，表面からの鏡像力によって転位が容易に抜け出すマイクロ試験片特有の挙動であると考えられる．

金属材料の機械特性に対し，材料寸法がそれらの特性に与える影響を評価した研究は現在まで多数行われており，その特徴は明確に示されている．同様に，バルクから微小サイズまでの金属材料の疲労試験結果も報告されているが，その報告数は極めて少なく，しかも「基礎的」疲労挙動を明らかにする研究例は一切報告されていなかった．そこで，本研究では，引張圧縮繰り返し負荷試験を実施することで，ミクロンサイズ Cu の疲労挙動を解明することを目的とし，その基礎的挙動の把握に成功した．本研究における試験手法は，Cu や純金属だけでなく，最近注目されている高エントロピー合金を含め，ポリマー，ガラス，複合材料などにおける基礎的疲労挙動の解明にも役に立つことが期待される．なお，本研究では，微小金属材料の疲労挙動の特徴，および，それに影響を与える因子が詳細に議論されているため，シミュレーションを用いた疲労挙動の学術的考察にも重要な役割を果たすと考えられる．さらに，ミクロンサイズよりも小さい試験片の疲労における実験や現象の理解においても本研究の結果は重要であろう．

一方，近年，太陽光パネル内のパワーデバイス，半導体電子デバイス，小型の 2 次電池を含め，様々な分野においてミクロンサイズ以下の金属が用いられている．それらの信頼性設計に基づいた寿命の予測・向上は，それら産業分野において重要課題の一つとなっており，関連する様々な研究が行われている．とくに，「持続可能な社会」は，現在最も注目されているキーワードであり，その貢献のためには疲労挙動に基づいた寿命の向上に関する研究は重要である．

本研究を皮切りに，微小サイズ材料を対象とする疲労挙動に関する実験的研究は学問としての成果だけでなく，今後産業的にも主流となり，社会にも大きな貢献をすることが期待される．

関連する投稿論文

1. “In situ observation on formation process of nanoscale cracking during tension-compression fatigue of single crystal copper micron-scale specimen.”
Takashi Sumigawa, **Byungwoon Kim**, Yuki Mizuno, Takuma Morimura, Takayuki Kitamura
Acta Materialia 153 (2018): 270-278.

2. “Characteristic fatigue damage near the Σ3(111) coherent twin boundary in micron-sized copper specimen.”
Byungwoon Kim, Chihiro Yasui, Masataka Abe, Hiroyuki Shima, Yoshitaka Umeno, Takashi Sumigawa
Materials Science and Engineering: A 899 (2024): 146470.

3. “Unique damage process in micro-sized copper single crystal with double-slip orientation near [112] in response to tension-compression fatigue.”
Takashi Sumigawa, Sota Onozuka, **Byungwoon Kim**, Masataka Abe, Hiroyuki Shima, Yoshitaka Umeno, Takayuki Kitamura
Material science and engineering: A 909 (2024) 146842

謝　辞

本博士論文は，筆者が京都大学エネルギー科学研究科の博士後期課程において実施した研究した結果のまとめとなります.

本研究を行うことにあたって博士課程の学生として持つべき考え方を含め，研究者として持つべき嗜みに関する指導および，日々の生活や就職に関する助言まで惜しみなくしてくださったエネルギー材料設計研究室の澄川貴志教授には誠に感謝の言葉を申し上げます. 澄川貴志教授には，京都大学工学研究科の修士課程入学から博士後期課程卒業に至るまで約 10 年間お世話になっており，筆者が京都大学に入学した以来，すべての部分に最もお世話になった方だと考えております．改めて感謝申し上げます.

所属研究室の安部正高准教授には，研究室の研究会や，学会発表の際にご助言をいただき，3 年間の研究活動にお世話になりました. 心よりお礼申し上げます. また，所属研究室の秘書である和井内美和さんは，手間のかかる頼み事に関してもいつも親切に接していただき，また，澄川先生と同様に修士課程から大変お世話になっておりましたので，ここで感謝の言葉を申し上げたいと思います.

筆者が生活した 3 年間にお世話になった研究室の方（穴田悠樹氏，石坂大和氏，杉坂浩太氏，池本翔太郎氏，以下省略.）にも，研究に関する助言や研究室生活などの部分でお世話になりましたので，感謝申し上げます．特に，杉坂浩太氏は，研究室生活にお世話になっただけでなく，筆者の研究において実験装置の管理，実験結果に関する考察やアイデアに関しても大変お世話になりましたので，改めて感謝申し上げます.

筆者が留学生活中に抱えていた様々な悩みに関して，忙しい中にもいつでも相談に乗っていただいた，高校の同期であり，現東京工業大学博士後期課程の Kwak Kumpyo 氏にも，心より感謝申し上げたいと思っております.

博士後期課程として生活することにあたって，京都南ロータリークラブの米山奨学財団から，毎月多額の金銭的支援を頂き，研究に専念することができました．ここで感謝の言葉を申し上げます．特に，筆者の担当カウンセラーである林誠一郎（川崎機械工業株式会社　代表取締役社長）さんからは，人生の先輩として留学生活だけでなく，人間関係および就職に関する助言を含めて自分の未来に対するアドバイスをいただき，さらに，様々な行事へのお誘いなど，大変ご援助いただきましたので，感謝申し上げます.

最後，不足な長男である筆者に愛情を注ぐのはもちろん，筆者が精神的に大変な時も相変わらず信じてくださった両親にも大変お世話になっておりました．素敵な息子になるようにもっと努力します．ありがとうございます.

5. 結　論