金属膜材の疲労に伴う結晶方位変化の定量的評価法[†]

清水 憲一* 鳥居 太始之* 森 俊之**

Quantitative Evaluation Method of Crystal Rotation with Fatigue in Metal Films

by

Kenichi SHIMIZU*, Tashiyuki TORII* and Toshiyuki MORI**

The fatigue crack initiation and propagation behaviors were examined for commercially-pure iron films of 100 μ m thickness. The cold rolled films were annealed and adhered to cover a circular through hole in a base plate. The base plate was subjected to constant cyclic stress with a stress ratio of $R = 0$. In order to discuss correlation between fatigue crack propagation and change of crystal orientation, crystal orientation on the surface of the film materials was measured before and after fatigue testing. The crystallographic information of these films was analyzed using the Electron Back-scatter Diffraction (EBSD) system and the quantitative evaluation method for the crystal rotation angle and the rotation axis, the rotation direction with fatigue was developed. As a result, the crystal rotation angle near the fatigue crack is larger than that apart from the crack and the crystal rotation was quantitatively larger around the transgranular crack than the intergranular crack.

Key words : Fatigue, Iron film, Crack, EBSD method, Crystal rotation

1 緒 言

近年、マイクロマシンやICパッケージ部品、プリント回路基盤、コーティング強化材などにおいて、金属膜材が多く用いられている。¹⁾ところが金属膜材は厚さに対する結晶粒数が少ないために、個々の結晶粒の変形が生じやすいことが考えられ、膜表面に生じたすべりなどの疲労損傷がその疲労破壊特性に及ぼす影響も、バルク材に比べて増加することが予想される。同様に、結晶方位や結晶粒界などのミクロ組織の影響も増大することが考えられる。このため同一材料であっても、膜材はバルク材とは異なった性質を示す可能性がある。特に疲労破壊は機能の損失や性能の低下に直接関係するため、膜材の疲労試験を行い、その疲労破壊特性を知ることが製品の安全性や信頼性を高める上で重要である。また、その際結晶方位や結晶粒界などのミクロ組織が、疲労き裂の発生や伝ばに及ぼす影響を明らかにするとともに、疲労に伴うミクロ組織の変化について検討する必要がある。

著者らは、チャック可能な板状のバルク材に貫通穴を開けたものを試験片母材として用い、この貫通穴を覆うように膜材を接着して、母材に繰返し応力を負荷する疲労試験法を提案し、鉄膜材や銅膜材の疲労特性に関して報告を行っている。^{2)~6)}また前報⁷⁾では、膜厚 $t_f = 100\mu\text{m}$ の冷間圧延された工業用純鉄を焼なました鉄膜材について疲労試験を行い、電子線後方散乱回折 (EBSD: Electron Back-Scatter Diffraction) 法⁸⁾を用いて疲労き裂周辺の結晶方位解析を行って結晶方位や結晶粒界などのミクロ組織について検討した。そして疲労試験前後の同一箇所における結晶方位の変化や、き裂先端近傍の局所的領域

における結晶配向性の変化について検討した結果、疲労試験後のき裂周辺では結晶方位が変化することを定性的に示し、結晶方位の変化に着目した疲労損傷評価の可能性について述べた。そこで本研究では、これらの結晶方位の変化量を定量的に評価する方法を開発し、疲労き裂周辺の結晶方位変化の特徴について検討するとともに、この方法の妥当性について検証を行った。

2 実験方法

2.1 試験片および疲労試験

実験に用いた膜材は前報⁷⁾と同じ膜厚 $t_f = 100\mu\text{m}$ の冷間圧延された工業用純鉄である。また膜材を貼り付ける母材も前報⁷⁾と同じ中炭素鋼 (S45C) である。Fig. 1 に膜疲労試験片の形状を示す。詳細な作製方法は前報⁷⁾に示した通りである。

疲労試験は、電気油圧式疲労試験機サーボパルサー EHF10 型 (島津製) を用いた。詳細な疲労試験条件は前報⁷⁾と同様であるが、本報告では母材に負荷する応力振幅 $(\sigma_a)_b = 30\text{MPa}$ の場合についてのみ検討を行っている。 $(\sigma_a)_b$ は貫通穴を考慮しない母材の断面応力である。

Fig. 1. Dimensions of the film and the base specimen.

[†] 原稿受理 平成 16 年 11 月 1 日 Received Nov. 1, 2004

* 正 会 員 岡山大学大学院自然科学研究科 〒700-8530 岡山市津島中, Dept. of Mech. Eng., Okayama Univ., Tsushima-naka, Okayama, 700-8530

** 学生会員 岡山大学大学院 〒700-8530 岡山市津島中, Dept. of Mech. Eng., Okayama Univ., Tsushima-naka, Okayama, 700-8530

このとき母材貫通穴縁の変位が接着層を介して膜材に繰返し変形を与えるので、膜単体の疲労試験が可能となる。また、膜内応力は Eshelby のだ円体介在物理論より一様となり、膜材には母材の負荷応力振幅 $(\sigma_a)_b$ の約 3.1 倍の一様応力が負荷されることがわかっている。⁹⁾

2・2 結晶方位測定

結晶方位測定は走査型電子顕微鏡 (SEM : Scanning Electron Microscope, HITACHI 製, S-3500N) に取りつけた結晶方位解析装置 Link Opal (Oxford 製) を用いて、EBSD 法により行った。結晶方位の測定範囲は $128 \times 168 \mu\text{m}$ 、測定点数は $100 \times 128 = 12800$ 点とした。

2・3 結晶方位の回転角度

EBSD 法により得られた方位行列を用いて疲労前後における結晶方位の角度変化を定量的に評価した。Fig. 2 に示すように、試料の圧延方向、圧延方向と直交方向および法線方向をそれぞれ X 軸、Y 軸、Z 軸としたときに、立方晶の [100] 方位とそれぞれの軸がなす角度を α_1 , β_1 , γ_1 とする。同様に [010] 方位とそれぞれの軸がなす角度を α_2 , β_2 , γ_2 , [001] 方位とそれぞれの軸がなす角度を α_3 , β_3 , γ_3 とする。方位行列は試料軸に対する結晶の絶対方位を表しており、方位行列 A は以下のように表される。

$$\begin{pmatrix} \cos \alpha_1 & \cos \beta_1 & \cos \gamma_1 \\ \cos \alpha_2 & \cos \beta_2 & \cos \gamma_2 \\ \cos \alpha_3 & \cos \beta_3 & \cos \gamma_3 \end{pmatrix}$$

このとき、ベクトル $\mathbf{z} = (\cos \gamma_1, \cos \gamma_2, \cos \gamma_3)$ は試料法線方向に対する優先方位となる。同様に、圧延方向に対する優先方位は $\mathbf{x} = (\cos \alpha_1, \cos \alpha_2, \cos \alpha_3)$ 、圧延方向と直交方向に対する優先方位は $\mathbf{y} = (\cos \beta_1, \cos \beta_2, \cos \beta_3)$ で表される。

疲労試験前のある測定点の方位行列を A_2 、疲労試験後の同一箇所の方位行列を A_1 とすると結晶方位の回転角度 θ は A_1 , A_2 を用いて次のように求められる。

$$M_{21} = A_2^{-1} A_1 \quad (1)$$

$$\cos \theta = \frac{\text{Tr} M_{21} - 1}{2} \quad (2)$$

ここで、 M_{21} は A_2 から A_1 への回転を表す行列、 $\text{Tr} M_{21}$ は M_{21} の対角成分の和である。また M_{21} の成分を

$$M_{21} = \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} & m_{13} \\ m_{21} & m_{22} & m_{23} \\ m_{31} & m_{32} & m_{33} \end{pmatrix} \quad (3)$$

Fig. 2. Definition of specimen axes and crystal axes.

とすると、 $l_1 = m_{23} - m_{32}$, $l_2 = m_{31} - m_{13}$, $l_3 = m_{12} - m_{21}$ を用いて長さ 1 の回転軸 $\mathbf{l} = (l_x, l_y, l_z)$ が次のように求められる。

$$\mathbf{l} = \left(\frac{l_1}{\sqrt{l_1^2 + l_2^2 + l_3^2}}, \frac{l_2}{\sqrt{l_1^2 + l_2^2 + l_3^2}}, \frac{l_3}{\sqrt{l_1^2 + l_2^2 + l_3^2}} \right) \quad (4)$$

しかし、EBSD 法によって得られる方位行列は結晶の対称性を考慮していないので、図形上の実際の回転角度よりも過大に評価される可能性がある。そこで、本研究では鉄 (立方晶) の結晶の対称性を考慮し、試料法線方向の結晶方位が極点図上で [001] - [011] - $\bar{[111]}$ あるいは [001] - [011] - [111] ステレオ三角形内に存在するように X 軸、Y 軸、Z 軸に関して $n \pi/2$ ($n=1, 2, 3$) 回転を行った。次に、試料法線方向に対する優先方位を示すベクトル $\mathbf{z}$ を軸として $m \pi/2$ ($m=1, 2, 3$) 回転を行い、圧延方向に対する優先方位を示すベクトル $\mathbf{x}$ の成分がすべて正の値となるようにした後に式 (1), (2) より、回転角度 θ を求めた。

2・4 疲労試験前後における対応点の決定

疲労試験前後における、同一箇所の結晶方位変化量を計算するために疲労試験後のある測定点に対応する点を、疲労試験前の測定領域の中から探索する必要がある。本研究では残差逐次検定 (SSDA : Sequential Similarity Detection Algorithm) 法¹⁰⁾を用いて、疲労試験後のある点 P_1 から疲労試験前の対応点 P_2 を決定した。まず Fig. 3 に示すように疲労試験後の測定領域中の、点 P_1 周辺の $n \times n$ 個の正方形領域 (マスク) を取り出す。次に、疲労試験前の測定領域中の対応点 P_2 が存在すると考えられる $N \times N$ ($N > n$) の領域 (探索領域) にマスクを重ね合わせ、重なった各点における回転角度 θ の総和を計算する。探索領域全域でこの操作を行い、回転角度の総和が最小となる箇所 P_2 を対応点とした。以上の操作をすべての測定点 ($100 \times 128 = 12800$ 点) について行い、対応点を決定し、結晶方位測定範囲における結晶方位の変化を計算した。従来 SSDA 法を用いた画像のマッチングには画像の輝度情報が用いられる場合が多いが、膜表面のように輝度の変化が少ない場合には表面に微小粒子を塗布したりして標点を導入する必要がある。また、後述する結晶方位の

Fig. 3. Explanation of the method to determine the same point before fatigue testing and after fatigue testing.

マッピング図 (COM : Crystal Orientation Map) の輝度情報を用いる場合、試料法線方向に対する COM 図と同時に圧延方向に対する COM 図についても画像のマッピングを行う必要があり、独立な二変数について同時に SSDA 法を行うことは困難である。(圧延方向と直交方向に対する COM 図は、他の二つの COM 図より一意に決まる。) これらのことから、SSDA 法を用いて疲労試験前後の同一箇所のマッピングを行う際、両者の方位行列から求められる回転角度の最小値を用いる方法が適当であると考えられる。

3 実験結果および考察

3・1 疲労き裂周辺の結晶方位解析

Fig. 4 に疲労試験終了後のき裂の SEM 写真を示す。なお、このときのき裂長さおよび繰返し数は、 $a = 1.97 \text{ mm}$, $N = 1.03 \times 10^6 \text{ cycles}$ である。き裂はすべりを伴いながら屈曲して伝播している。

Fig. 4 に示した領域“A”および領域“B”の疲労試験前の結晶方位を、濃度で図示した COM 図を Fig. 5 に示す。一般に COM 図を用いて結晶方位を表す場合、一つの測定領域について試料法線方向 (Normal direction) に対する配向性と圧延方向 (Rolling direction) に対する配向性、圧延方向と直交方向 (Transverse direction) に対する配向性の三種類の COM 図が用いられるが、ここでは圧延方向に対する配向性のみを示した。同様に、領域“A”および領域“B”の疲労試験後の COM 図を Fig. 6 に示す。なお疲労試験後は、膜表面に発生したすべりや酸化膜の影響によって、結晶方位測定の際に得られる回折図形 (Kikuchi pattern) が不明瞭になり、測定精度が低

Fig. 4. SEM micrograph of fatigue crack in the film ($a = 1.97 \text{ mm}$, $N = 1.03 \times 10^6 \text{ cycles}$).

Fig. 5. Crystal orientation map obtained from regions “A” and “B” before fatigue testing.

下する場合が多いことから、表面層を電解研磨により数 μm 除去した後に測定を行った。Fig. 5 および Fig. 6 において、同一濃度で表された箇所は結晶粒に対応していることから、結晶粒径は $30 \sim 150 \mu\text{m}$ とばらつきが大きいことがわかる。また Fig. 5 と Fig. 6 を比較すると、疲労試験後に表面層を電解研磨したことによって結晶粒の形状が若干異なっているようである。疲労試験後の Fig. 6 を見ると、領域“A”では、き裂は主に破線で示す結晶粒“I”内を伝ばし、領域“B”では結晶粒“II”と“III”の粒界を伝ばしている。図中の黒矢印は、き裂周辺の一つの結晶粒内で濃度が異なる箇所を示しており、き裂周辺で結晶方位が変化したことを表している。

Fig. 7 は、Fig. 6 に示した領域中をき裂が伝ばしたときの繰返し数とき裂長さの関係を示している。き裂長さの測定は、繰返し数 $1 \times 10^4 \text{ cycles}$ ごとに疲労試験機を止めて行っており、き裂は一時的な停留を伴いながら連続的に伝ばしている。図中の①、②、③はき裂の一時的な停留を示しており、それぞれに対応する点を Fig. 6 にも示した。①は、き裂が結晶粒界で一時的に停留したことを示している。これに対して②、③は結晶粒内であり、②から③ではき裂は高速に伝ばしている。

Fig. 6. Crystal orientation map obtained from regions “A” and “B” in Fig. 3 ($(\sigma_a)_b = 30 \text{ MPa}$).

Fig. 7. Relationship between stress cycles and crack length ($(\sigma_a)_b = 30 \text{ MPa}$).

3・2 結晶方位変化の定量的評価

Fig. 8 に結晶方位の回転角度 θ の大きさの分布を濃度により示した. 明るい箇所ほど角度の変化が大きい. なお分布は疲労試験後の箇所 P_1 における θ の値を示している. SSDA 法によって疲労試験前後の対応点を決定する際, Fig. 6 中に繰返し塑性域と弾性変形領域が存在すると, 繰返し塑性域内の結晶方位回転角の大きい箇所では, 弾性変形領域中の回転角の小さい点を対応点として決定してしまう可能性がある. この場合, 対応点の移動量が実際の移動量よりも大きくなると考えられるので, 正方形領域 (マスク) の大きさ n と, 探索領域 N の大きさを変化させ, 対応点の移動量が出来るだけ小さくなるようにした. このようにして求められた疲労試験前後の同一点の移動量は, 膜面内における剛体移動分を差し引くと

平均で $7.8\mu\text{m}$ 程度であった. また測定領域の外周部付近では疲労試験前後の対応点のマッチングが不可能な場合が多いことから, 実際に角度の変化が計算できる領域は $128 \times 168\mu\text{m}$ よりも小さくなっている. Fig. 9 には, Fig. 8 図中のそれぞれ A-A', B-B' 線上の結晶方位の変化量を示している. これらの結果より粒内き裂, 粒界き裂の場合とも, き裂に近い箇所ほど結晶方位の変化が大きいことがわかる. ただし, Fig. 8 と Fig. 9 でそれぞれ (a), (b) を比較すると粒内き裂の方が, 全体的に結晶方位の変化量が大きいことがわかる.

Fig. 10 に回転軸 L を試料法線方向から見た様子を示す. Fig. 11 は, 試料法線方向から回転軸 L を見た場合の見え方と回転の方向を示した模式図である. 回転軸の長さはすべて 1 なので, 試料法線方向から見て短い場合

Fig. 9. Distribution of crystal rotation angle across the fatigue crack with fatigue testing.

Fig. 10. Distribution of crystal rotation axis around the fatigue crack.

Fig. 11. Explanation of the rotation axis and the rotation direction indicated in Fig. 10.

Fig. 12. Explanation of the rotation direction observed from the sample normal.

ほど、回転軸が試料法線方向に向いていることを示している。ただし、この場合回転軸に関して時計周りあるいは反時計周りのどちらの方向の回転であるかは表示できない。そこで Fig. 12 に示すように、試料法線方向の単位ベクトル $e_z = [001]$ が、疲労によって $e_z = M_{12}e_z$ に変化したときのベクトルの差 $e_z' - e_z$ を用いて、試料法線方向から見た場合の結晶方位回転方向を求めた。ベクトルの差 $e_z' - e_z$ の長さはすべて異なるが、回転角度の大きさは Fig. 8 に示しているの、回転方向のみを長さの等しい矢印を用いて Fig. 13 に示した。これらの図より、き裂から離れた結晶粒内では、各結晶粒ごとに回転軸がほぼ平行であり、回転方向も同一方向を向いていることがわかる。これは、各結晶粒の結晶方位によって力学的に回転の生じ易い軸および方向が決まるためであると考えられる。これに対して、き裂周辺では同一結晶粒内でも回転軸および回転方向は種々の方向を向いており、複雑な結晶方位の回転をしていることが予想される。また Fig. 10 および Fig. 13 でそれぞれ (a) と (b) を比較すると、き裂が結晶粒内を伝ばした場合は、き裂を挟んで回転軸の方

向が異なっているのに対して、回転方向は比較的同一方向を向いている。逆にき裂が結晶粒界を伝ばした場合は、回転軸の方向が比較的同一方向を向いているのに対して、回転方向は逆方向を向いている。これらのことより、き裂が結晶粒内あるいは粒界を伝ばする場合、き裂先端の変形挙動が異なることが予想されるが、さらに種々の粒内き裂および粒界き裂についても同様の測定を行うことによって、き裂が粒内および粒界を伝ばする場合のき裂伝ば機構の相違の解明につながることを期待される。また Fig. 10 および Fig. 13 の (b) 中に、Fig. 6 および Fig. 7 においてき裂の一時的な停留が見られた箇所③と同一箇所を示しているが、き裂が図中の左側から右方向へ伝ばする際、経路上の③付近で結晶方位の回転軸および回転方向が変化していることがわかる。これは、き裂先端で動作するすべり系が変化し、結晶方位の回転軸や回転方向が変化する際に、き裂の停留が生じやすいことを示唆している可能性がある。逆に、き裂の停留は何らかの別の原因によって生じ、多くの繰返し負荷を受けるうちに

Fig. 13. Distribution of direction of crystal rotation with fatigue testing.

結晶方位の回転軸や回転方向が変化した可能性も考えられるので、き裂の停留が観察された際に、繰返し負荷とともに結晶方位がどのように回転するかをEBSD測定で詳細に検討し、き裂の停留と結晶方位の回転の相関に関するメカニズムを明らかにすることが今後の検討課題である。なお、このような結晶方位の回転はき裂の伝ばによって生じるので、Fig. 8およびFig. 9に示した回転角度の大きさを評価することによって、き裂周辺の繰返し塑性域の評価などに応用できると考えられる。

4 結 言

本研究では、膜材表面の結晶方位を測定できるEBSD法を用いて疲労試験前後の同一箇所における純鉄膜の結晶方位の変化を定量的に評価する方法を示し、き裂が粒内あるいは粒界を伝ばする場合の結晶配向性の変化の特徴について検討した。

(1) 疲労試験前後の同一箇所におけるき裂周辺の結晶方位を測定した結果、疲労に伴って結晶方位が変化することを定量的に示した。

(2) 疲労に伴う結晶方位の変化は、き裂に近い箇所ほど大きくなっていた。また結晶方位の変化が大きい場合、き裂は主に粒内を伝ばし、小さい場合は粒界を伝ばしていた。また粒内き裂と粒界き裂におけるき裂周辺の結晶方位変化を比較すると、結晶方位の回転軸と方向に相違が見られた。

(3) き裂伝ば経路に沿って結晶方位の回転軸および回転方向が変化している箇所では、き裂が一時的に停留する可能性がある。

参 考 文 献

- 1) 河合末男, 材料学会講演会講演論文集, No.910-71, 94 (1991).
- 2) 鳥居太始之, 本田和男, 松葉 朗, 谷田 睦, 日本機械学会論文集, A-59, 1575 (1993).
- 3) 鳥居太始之, 伊場田 晶, 本田和男, 材料, 44, 637, (1995).
- 4) 鳥居太始之, 清水憲一, 中村明英, 日本機械学会論文集, A-65, 461 (1999).
- 5) 清水憲一, 鳥居太始之, 山本文彦, 日本機械学会論文集, A-67, 74650 (2001).
- 6) 清水憲一, 鳥居太始之, 日本機械学会論文集, A-69, 654 (2003).
- 7) 清水憲一, 鳥居太始之, 越智宏臣, 材料, 53, 987 (2004).
- 8) V. Randle, "icrotexture Determination and its application" p.18 (1992) The Institute of Materials.
- 9) 村外志夫, 森 勉, "マイクロメカニクス", p.29 (1976) 培風館.
- 10) D. I. Barnea and H. F. Silverman, IEEE Trans., C-21-2, 179 (1972).