

金属基ナノ複合材料の塑性不安定現象の解明

東京大学大学院工学系研究科 マテリアル工学専攻

准教授 井上純哉

(平成19年度一般研究開発助成 AF-2007033)

1. 研究の目的と背景

ナノスケールの薄膜金属同士の積層材料は、従来の材料では実現できなかった様々な機械的・電気的・磁気的特性が得られることから、近年特に注目を集めてきている¹⁾。この様なナノスケールの金属基積層材料の作製は、従来スパッタや蒸着により層毎に形成する手法がとられてきた。しかし、最近ではプレス加工や圧延加工により、バルク金属の積層材料からナノ積層材料を作製する加工プロセスによる手法の開発に大きな期待が寄せられてきている。これは、コスト面や商用化へのスケールアップという観点から加工プロセスが有利であるという理由のみではなく、プレス加工や圧延加工を通して得られる集合組織が、最終的な材料特性の向上に有利に働く可能性が強いという側面もあるからである²⁾。



しかし一般に、異種金属同士の積層材料を強加工すると、硬質層が破断し、微少な変形領域で全体的な破断に至る事が知られている³⁾。そのため、この硬質層破断のメカニズムの解明なしには、加工プロセスによる金属基ナノ積層材料の実現は不可能であると考えられている。そのため、近年数多くの研究がこの硬質層破断現象の解明に注がれてきた⁴⁾⁵⁾⁶⁾。しかし、現状では個々の材料の組み合わせに対する加工条件は明らかになっていても、いまだに硬質層破断に対する一般的な発生条件は明らかになっていない。また、層厚がナノスケールとなる領域では、バルク材料とは異なり粒界、積層欠陥、異相界面と言ったヘテロな界面の影響を大きく受けると考えられ、ナノ領域における塑性変形現象は全く未開と言える⁷⁾。

そこで本研究では、まず金属基積層材料の硬質層破断現象に関する一般的な条件を導出ならびに、ナノ結晶材料の変形過程を明らかにすることを目的とした。

2. 金属基積層材料の硬質層破断現象

金属基積層材料に限らず、一般の積層材料の一樣変形を阻害する変形様式としては、「単独破断」と「はく離を伴った破断」の2つが存在する (Table 1)。前者は Tunneling crack⁹⁾ と呼ばれ、後者は H-shape crack¹⁰⁾ とよばれる。前者は、単純なき裂進展問題であるが、後者は界面剥離を誘起すると考えられる界面不安定現象¹¹⁾ とき裂進展現象が相互に関連していると考えられる。本研究では、金属基材料におけるこれらの破壊形態の発生条件の検討を行った。

Table 1 Deformation mechanisms considered.

破断形態	Tunneling crack	
	H-shape crack	

3. Tunneling crack による高強度層の発生条件

一樣変形中に高強度層が単独で脆性破断する形態は一般的には Tunneling crack と呼ばれ、高強度層と高延性層の両者が弾性変形をする場合は、その発生条件は以下のように導かれている⁹⁾：

$$t \geq \frac{4 \Gamma_B E}{\pi \sigma_{inf}^2} \quad (1)$$

ここで、 t は高強度層の層厚、 E はヤング率、 Γ_B は破壊靱性値である。この場合、Tunneling crack が進展するための条件は、き裂先端でのエネルギー解放率 G_{Iun} が高強度層の破壊靱性値 Γ_B を上回ることとされている。また、一軸引張応力 σ_{inf} を負荷された複層型材料に内在する層厚 t の構成層の層厚方向に Tunneling crack が内在するとき、き裂進展先端でのエネルギー解放率 G_{Iun} は近似的に $G_{Iun} = \pi \sigma_{inf}^2 t / 4E$ で与えられることが用いられている。しかし、このように求められた高強度層の破断条件は、あくまでも構成材料が弾性変形することが前提であり、20%以上の塑性変形を前提としている複層鋼板には直接適用は出来ない。そこで我々は、材料が塑性変形を考慮した破断条件の導出を試みた。Fig.1 に高強度層に Tunneling crack が生じたときの塑性域の形態と高延性層の加工硬化指数の関係を有限要素法により求めた結果を示す。図から明らかのように、高延性層の加工硬化指数の低下に従い、高延性

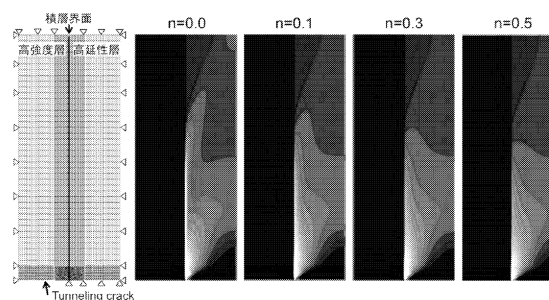


Fig.1 Distribution of plastic strain around tunneling crack

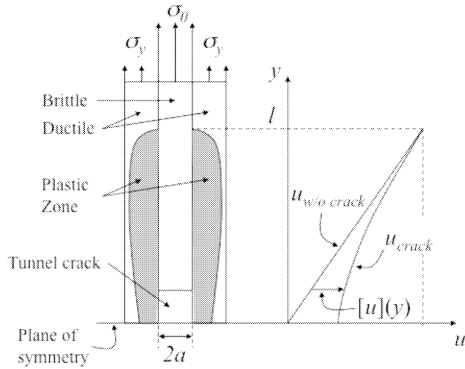


Fig.2 Schematic showing deformation mode assumed in the shear lag limit.¹¹⁾

層内の大きな塑性変形を示す領域は界面近傍の限られた領域に集中していき、最終的には Shear Lag Limit¹¹⁾と呼ばれる界面のみが大きなせん断変形を受け持つ変形様式へと遷移していく。これに伴い、き裂先端でのエネルギー解放率は単調に増大し、完全弾塑性挙動に対応する加工硬化指数が $n=0$ の時に最大となる。つまり、塑性変形を考慮する必要がある場合には、材料が完全弾塑性体であると仮定することで得られる条件と、完全弾性体であると仮定することで得られる条件を考えれば、破断条件の上限および下限が推定できるものと考えられるのである。Fig.2 に高延性層が完全弾塑性体であると仮定した場合の界面におけるせん断変形の模式図を示す。このような仮定の下では、界面におけるせん断変形量 $[u]$ は解析的に求めることが可能であり、エネルギー解放率は弾性ひずみエネルギーと塑性ひずみエネルギーの差として、以下のように求まる¹¹⁾：

$$\begin{cases} W_c = t\Gamma_B \\ W_e = \frac{t\sigma_{inf}^2}{E} - \frac{t}{2} \int_{-l}^l \frac{\sigma(y)^2}{E} dy \\ W_p = 2 \int_{-l}^l \frac{\sigma_y}{\sqrt{3}} [u](y) dy \end{cases} \quad (2)$$

$$W_m = W_e - W_p = \frac{t^2 \sigma_{inf}^3}{2\sqrt{3}E\sigma_y} > t\Gamma$$

ここで、 σ_y は高延性層の耐力、 σ_0 は各伸びひずみにおける高強度層の変形抵抗である。Fig.3 に式(1)・(2)より求まる高強度層の破断伸びの一例を、高強度層の破壊靱性値、高強度層の厚さの関数として示す。

以上の結果より、界面強度がはく離することなく高強度層が単独で破断する場合は、複層材料の破断伸びは Fig.3 に示される上限値と下限値の間の値を示すと予測される。

3.1 実験方法

式(1)・(2)から求まる高強度層の限界層厚の上限値と下限値の妥当性を検証するため、高強度層には熱処理条件により破壊靱性値が 20~40MPa/m^{1/2} の間で制御可能なマルテ

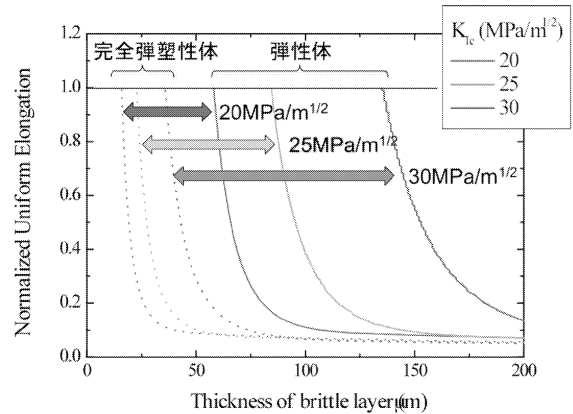


Fig.3 Upper and lower limit of critical thickness of brittle layer for tunneling crack formation

ンサイト系ステンレス鋼の SUS420J2 を、高延性層には Fig.4 に示すように耐力は同等であるが、加工硬化特性が大きく異なる 2 つの鋼種 (SPCC, SUS304) を用いた。供試材料は高強度層と高延性層の体積分率が 1:1 となるように積層し、四周溶接により接合したスラブを、1200℃で熱間圧延後に冷間圧延することで得た。高強度層の最終厚さは 25~200μm の間で制御され、保持温度 (保持時間 2 分) と冷却速度を制御することで高強度層の破壊靱性値を制御した (Table 2)。得られた供試材料からゲージ長さ 5cm の JIS13 号 B 試験片を切り出し、ひずみ速度 1.0x10⁻³/s で

Table 2 熱処理条件(保持温度・冷却速度)と破壊靱性値

熱処理	1100℃ WQ	1000℃ WQ	1100℃ AC	1000℃ AC
靱性値	20	25	30	40

引張試験を行った。

3.2 結果及び考察

Fig.5 に 1000℃2 分間保持後水冷した供試材料の公称応力-公称ひずみ曲線を示す。高強度層の層厚の減少と共に、曲線の形状を維持したまま破断伸びだけが上昇することが分かる。また、高延性材料の加工硬化指数がより大きな値を示す SUS304 を用いた方が、限界層厚は大きな値となることが分かる。Fig.6 に、高強度層の破壊靱性値を

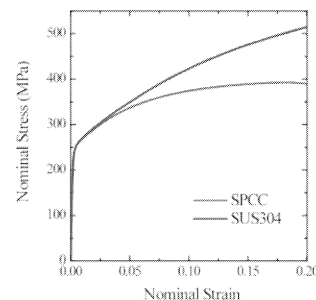


Fig.4 Stress-Strain curve of ductile components

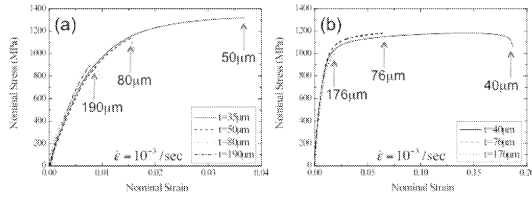


Fig.5 Stress-Strain curve of laminated steel composite water-quenched after annealing at 1000°C.
a) SPCC/SUS420J2 b) SUS304/SUS420J2

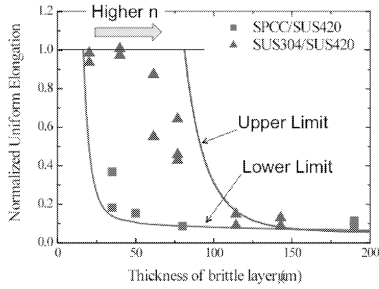


Fig.6 Comparison between theoretical prediction and experimental results (SPCC/SUS420J2, SUS304/SUS420J2 annealed at 1000°C for 2min and WQ)

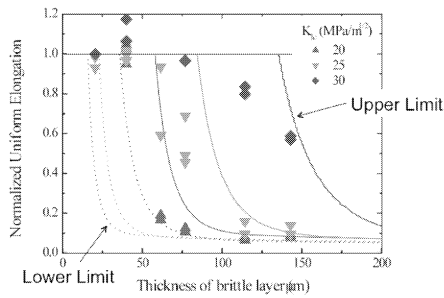


Fig.7 Comparison between theoretical prediction and experimental results (SUS304/SUS420J2)

25MPa/m^{1/2} (1000°Cで2分間保持後水冷した場合のSUS420J2の破壊靱性値)とすることで得られる限界層厚の上限値及び下限値と、実験で得られた破断伸びを示す。加工硬化指数の大きなSUS304を用いた試料は、弾性解から得られる上限値に、加工硬化指数の小さなSPCCを用いた試料は、高延性層に完全弾塑性体を仮定することで得られる下限値に近い値となっていることが分かる。Fig.7に、SUS420J2の破壊靱性値を変化させた場合の破断伸びの変化を示す。各層厚毎の破断伸びは、SUS420J2の破壊靱性値から予測される理論値と良く対応することが示された。

4. 界面はく離を伴った高強度層の破断条件

一様変形中に界面はく離を伴って高強度層が脆性破断する形態としては、H-shape crackと呼ばれる破壊形態が考えられる。また、H-shape crackの起点となる異相界面に直行する応力の発生には、塑性不安定現象の一形態である界

面不安定現象が寄与していると考えられる。H-shape crackの進展条件は、高強度層内で生じたモードIのき裂が異相界面でキンクし、界面はく離が生じる条件として与えられる。このようなモードIのき裂が異相界面でキンクする時のエネルギー解放率 G_{del} は Ho らにより与えられており⁹⁾、ヤング率とポアソン比が界面を挟んで等しい場合、近似的に $G_{del}=0.13\pi\sigma_{inf}^2t/E$ となることが知られている。したがって、積層材料中に H-shape crack が発生する条件は、エネルギー解放率 G_{del} が界面の破壊靱性 Γ_{int} を上回る条件として次式で求まる：

$$0.13 \frac{\pi\sigma_{inf}^2}{E} \geq \Gamma_{int} \quad (3)$$

一方で界面不安定現象の発生条件は、一様変形から不均一変形に移行する塑性不安定現象の分岐点を導出することで導かれる。この分岐点の導出には摂動法による分岐解析が有効である¹¹⁾¹³⁾。構成材料がJ2変形理論に従うとし、相当応力-相当ひずみ関係には n 乗硬化則を仮定し、変位場および公称応力場における微小な摂動がそれぞれ v_i および \dot{T}_{ij} とすると、構成方程式は以下で与えられる¹¹⁾：

$$\begin{aligned} \dot{T}_{11} &= (\mu^* - \sigma)v_{1,1} - \mu^*v_{2,2} + \dot{p}, \quad \dot{T}_{22} = \mu^*(v_{2,2} - v_{1,1}) + \dot{p}, \\ \dot{T}_{12} &= (\mu + \sigma/2)v_{2,1} + (\mu - \sigma/2)v_{1,2}, \quad \dot{T}_{21} = (\mu - \sigma/2)(v_{2,1} + v_{1,2}) \end{aligned} \quad (4)$$

ここで $\mu=(K/2)\epsilon^n \coth(2\epsilon)$, $\mu^*=(K^n/4)\epsilon^{n-1}$ であり、 \dot{p} は平均応力の摂動である。平衡状態では $\dot{T}_{ij,i} = 0$, $v_{i,i} = 0$ を満たすことから、摂動を $v_1 = a_1 e^{ikx_1 + \alpha x_2}$, $v_2 = a_2 e^{ikx_1 + \alpha x_2}$, $\dot{p} = ce^{ikx_1 + \alpha x_2}$ とすることで以下の特性方程式が得られる¹⁴⁾：

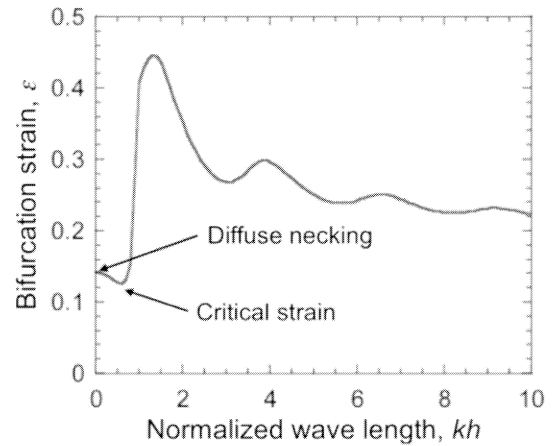


Fig.8 Critical bifurcation strain for laminate structure

$$\begin{bmatrix} -(\mu^* - \sigma)k^2 + (\mu - \sigma/2)k^2 & ik\tau(\mu - \mu^* - \sigma/2) & ik \\ ik\tau(\mu - \mu^* - \sigma/2) & (\mu + \sigma/2)k^2 + \mu^*\tau^2 & \tau \\ ik & \tau & 0 \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} a_1 \\ a_2 \\ c \end{Bmatrix} = 0 \quad (5)$$

この特性方程式が非自明解を得る条件ならびに界面における連続条件から、各波数 k に対応する対称および反対称モードの分岐発生ひずみ $\varepsilon^{\text{crit}}$ が導出される。Fig.8 に高延性層と高強度層の加工硬化指数がそれぞれ 0.4 と 0.04 となる場合の分岐点の一例を示す。モノリシックな材料では常に拡散くびれと呼ばれる波数がゼロとなる分岐解が最小の分岐発生ひずみを示すのに対し、複層型材料においては拡散くびれよりも小さなひずみ領域に分岐発生ひずみが存在することが分かる。

以上の結果より、界面強度が弱く H-shape crack を抑制できない場合は、界面はく離を伴った高強度層の脆性破断が生じる可能性があること、またその場合は、拡散くびれより小さな分岐発生ひずみにおいて破断することが予測される。

4.1 実験方法

式(3)と(5)で示されるはく離を伴った脆性層の破断条件の妥当性の検証を行った。複層鋼板としては界面強度の制御が可能な冷間圧延プロセスで作製したものをを用いた。この場合、冷間圧延後の熱処理条件を変えることで、界面強度が異なる試験片の作成が可能となる。高強度層には SCM415 を、高延性層には SUS304 を適用した。

4.2 結果及び考察

得られた界面強度と伸びの関係を Fig.9 に示す。破断伸びは界面強度によって 3 つのタイプに分類されることがわかる。Fig.10 にそれぞれのタイプ毎の破壊形態を示す。界面強度が無視できるほど弱い試料においては、高強度層である SCM415 の破断伸びにおいて SCM415 層が破断を

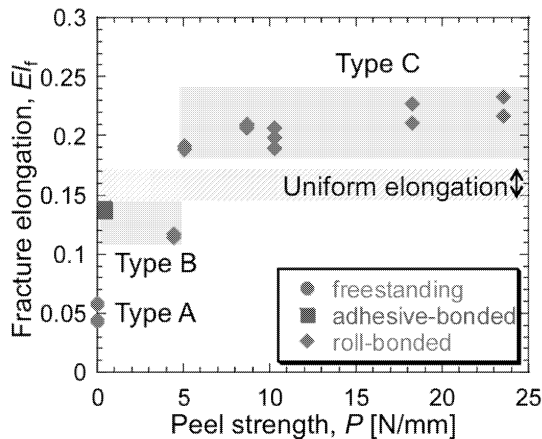


Fig.9 Relationship between peel strength and fracture elongation. The uniform elongation obtained by experiment

し、界面全体ではく離が生じる。一方で界面強度が少しでも上昇すると延性は一樣伸び付近まで一気に向上し、SCM415 層の破断部近傍の界面のみがはく離する破断形態を示すようになる。この場合の破断伸びは、式(5)から推定される最小の分岐発生ひずみに良く対応することが確認された。さらに界面強度が増大すると、積層試料は一樣伸びを示した後にネッキングともなって延性破断するに至った。また、はく離を伴った破断形態から延性破断に遷移する界面強度は、式(3)で推定される H-shape crack の抑制に必要な界面強度と良い対応を示すことが確認された。

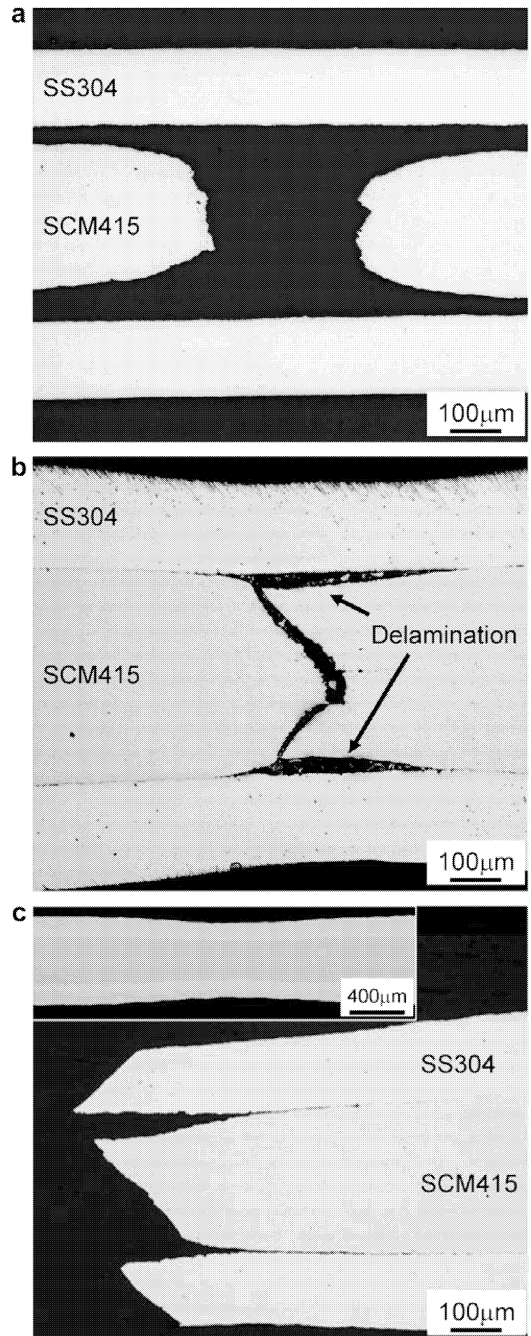


Fig.10 Optical micrographs of fracture profiles: (a) type A, (b) type B and (c) type C.

5. 結言

本研究では、半導体など従来塑性変形を考慮する必要のない積層材料における破壊様式として確認されている、硬質層の「単独破断」と「界面はく離を伴った破断」のそれぞれの変形様式に対し、材料の塑性変形を考慮した破断条件を求め、実験によりその妥当性の検証を行った。得られた破断条件は、実験値をよく対応しており、金属基積層材料における硬質層の破断は、硬質層の破壊靱性値ならびに層厚、高延性層の加工硬化特性、界面強度から推定可能であることが示された。

謝辞

本研究をご支援頂いた(財)天田金属加工機械技術振興財団に感謝の意を表します。

参考文献

- 1) B.A. Movchan et al., Mater. Sci. Eng. A224 (1997) 136-145
- 2) 例えば W.C. Crone et al., Mater. Sci. Forum 386-388 (2002) 597-602
- 3) N.H. Hai et. al., J. Magn. Magn. Mater. 262 (2003) 353-360
- 4) I.W. Chen et.al., Mater. Sci. Eng. A317 (2001) 226-235
- 5) R.J. Herbert et al., Scripta Mater. 50 (2004) 807-812
- 6) O. Yazar et.al., Acta Mater. 53 (2005) 375-381
- 7) A. Misra et.al., Journal of Material Science 42(2007) 1765-1771
- 8) D.R. Lesuer et al., International Materials Reviews, **41-5** (1996) 169-197
- 9) S. Ho et al., Journal of Applied Mechanics, **60** (1993) 890-894
- 10) A.S.J. Suiker et al., International Journal of Fracture, **125** (2004) 1-32
- 11) J. Inoue et al., Scripta Materialia, **59** (2008), 1055-1058
- 12) P.S. Steif, International Journal of Solids and Structures, **22-2** (1986) 195-207
- 13) R. Hill et al., Journal of Mechanics and Physics of Solids, **23** (1975) 239-264
- 14) S. Nambu et al., Comp. Sci. Tech., 69 (2009) 1936-1941