

Cu-W 人工積層複合材料の熱疲労と高温変形挙動

森川, 龍哉
九州大学大学院総合理工学研究科材料開発工学専攻

大津山, 隆
九州大学大学院総合理工学研究科材料開発工学専攻 : 横河ヒューレットパッカード

村上, 浩章
九州大学大学院総合理工学研究科材料開発工学専攻 : トヨタ自動車 (株)

中島, 英治
九州大学大学院総合理工学研究科材料開発工学専攻

他

<https://doi.org/10.15017/17276>

出版情報 : 九州大学大学院総合理工学報告. 14 (3), pp.305-316, 1992-12-01. 九州大学大学院総合理工学研究科
バージョン :
権利関係 :



Cu-W 人工積層複合材料の熱疲労と高温変形挙動

森 川 龍 哉* ・ 大津山 隆** ・ 村 上 浩 章***
中 島 英 治**** ・ 後 藤 正 治***** ・ 吉 永 日出男*****
(平成4年8月31日 受理)

Thermal Fatigue and High-Temperature Deformation Behavior of Cu-W Artificial Lamellar Composite

Tatsuya MORIKAWA*, Takashi OHTSUYAMA**, Hiroaki MURAKAMI***
Hideharu NAKASHIMA****, Shoji GOTO***** and Hideo YOSHINAGA*****

In order to investigate the thermal fatigue characteristic and high temperature deformation behavior of Cu-W artificial lamellar composite, three patterns of thermal cycles which have different ranges of temperature and holding time at maximum temperature were used and the compression tests were carried out at 773K ~ 973K under strain-rates from $5 \times 10^{-6} \text{s}^{-1}$ to $2 \times 10^{-4} \text{s}^{-1}$. Plastic deformation of Cu layer of the composite and the interfacial sliding between Cu and W layers were observed during the thermal cycles. The result of the compression test suggests that the mechanical property of the composite depends on the atomic structure of the interface between the layers.

1. 緒 言

近年、異なった材料を組み合わせ、それぞれの特徴を生かし優れた材料をつくる目的で、材料の複合化がさかに行われている。融点が高く耐熱性に優れているが脆い材料を、延性に富む材料と複合させることによって強靱化することができるため、複合材料は耐熱材料としての期待が大きい。このような用途には、高温、長時間の使用中有るいは常温と高温の間の熱サイクルに対して組織劣化を起こさないことが要求される。

複合材料の中でも積層強化複合材と繊維強化複合材は、負荷応力を異相界面を通して強化相に伝達し、負荷を強化相に分担させる。特に積層強化複合材は、転位の運動が強化相によって完全にブロックされることから、転位がオロウワーループを残して強化相の間を通過することのできる分散強化材や繊維強化材に比べて高強度化が期待できる。ところが、高温では拡散が活発になるため、界面すべりやボイドの発生による界

面劣化が起こり、負荷応力の強化相への有効な伝達ができなくなる¹⁾²⁾³⁾⁴⁾⁵⁾。また、異なる材料を複合化させているため、温度が変動する環境のもとでは、熱膨張係数の違いから母相の塑性変形や界面の劣化といった熱疲労が生ずる⁶⁾⁷⁾⁸⁾⁹⁾。このため、積層強化材における異相界面の高温における性質を知ることは非常に重要であり、これまで共晶合金を利用した積層材の高温における変形挙動の研究がさかに行われてきた¹⁰⁾¹¹⁾¹²⁾¹³⁾。しかし、これらの材料では、界面近傍での反応相の形成による界面劣化が生じ、高温変形挙動に及ぼす異相界面の効果を確かめるには問題がある場合が多い

そこで本研究では、互いに全く固溶せず反応相も形成しない銅とタングステンを構成材料とする積層強化材をモデル材料として選択し、熱疲労による異相界面の劣化と、異相界面の高温強度に及ぼす影響について検討した。タングステンに対する銅のぬれ角は0度¹⁴⁾とぬれ性もよいため、この組み合わせは複合化しやすく、これまでも繊維強化複合材の研究にしばしば用いられている⁷⁾⁸⁾⁹⁾¹⁵⁾¹⁶⁾。

2. 実 験 方 法

2.1 Cu-W 積層複合材の作製

複合材の作製には以下の2通りの方法を用いた。

*材料開発工学専攻博士課程

**材料開発工学専攻修士課程：現、横河ヒューレットパッカード

***材料開発工学専攻修士課程：現、トヨタ自動車(株)

****材料開発工学専攻

*****材料開発工学専攻：現、秋田大学鉱山学部物質工学科

(a) 溶浸法

積層複合材のタングステンには、粉末焼結の後圧延された純度99.9wt%、厚さ0.1mmのタングステン箔（株東芝製）を用いた。このタングステン箔は、bcc金属の典型的な圧延集合組織を持ち、圧延面が $\{100\}$ 、圧延方向が $\langle 110 \rangle$ である¹⁷⁾。これを25mm×10mmの寸法に切りだした後に酸洗し、この4隅に銅溶浸用のスパーサーとして同じ厚さで2mm角のタングステン箔を点溶接し、これらを10枚積層させて、タングステン線で縛った。酸洗には、フッ酸30%、酢酸30%及び硝酸40%の体積比の溶液を用いた。この積層体をアルミナ製のるつばの底に立て、その上に純度99.99 wt%の銅箔（日本電球工業（株）製）約170gを詰めた。このるつばを、 1.0×10^{-4} Paの真空中で高周波誘導加熱によって銅の融点直上で2時間保持し、積層体中に銅を溶浸させた。溶浸後は、20mm/sの速度でるつばをワークコイル中で降下させ一方向凝固させた。これは、凝固の際に銅層内にマイクロポアが発生するのを防ぐためである。

(b) 溶着法

純度99.99wt%の銅箔（0.1mm×20mm×15mm）と純度99.9wt%のタングステン箔（0.1mm×20mm×15mm）の表面を酸洗し、銅箔とタングステン箔を交互に積層させた。銅箔の酸洗には、硝酸10%溶液を用いた。この積層体をタングステン線で縛った後、 1.0×10^{-4} Paの真空中で赤外線瞬間加熱ゴールドイメージ炉（真空理工（株）製 RHLE-410P）を用いて銅の融点直上まで加熱して約3分間保持し溶着一体化させた。強度試験に用いた試料は、すべてこの方法によって作製したものである。得られた複合材の光学顕微鏡写真をFig. 1に示す。複合材の銅相の厚さは約0.1mmであり、溶着前の銅箔の厚さとほぼ同じである。

2.2 試験片

試験片は、溶着法で作製した積層複合材より、Fig. 2の説明図に示すように異相界面が高さ方向（応力負荷方向）に対して45°の角度になるように低速切断機（アイソメット TM、ビューラー社製）を用いて切り出し、エメリー研磨の後、試験片の表面を粒度約1 μ mのダイヤモンドペーストを用いたバフ研磨により鏡面仕上げして2mm×2mm×3mmの寸法にした。異相界面を45°に傾けた理由は、界面にせん断応力をかけ、複合材の変形に及ぼす界面すべりの効果を調べるためである。

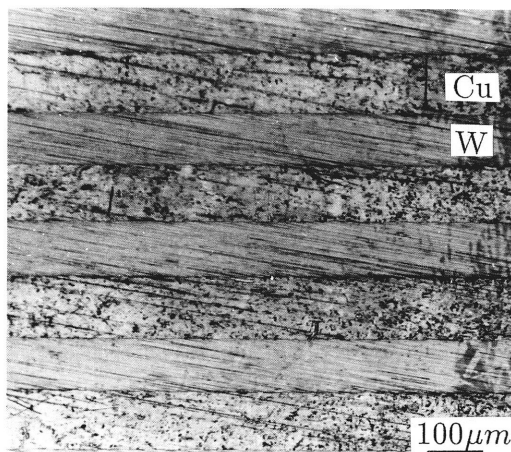


Fig. 1 Specimen of a lamellar composite as fabricated.

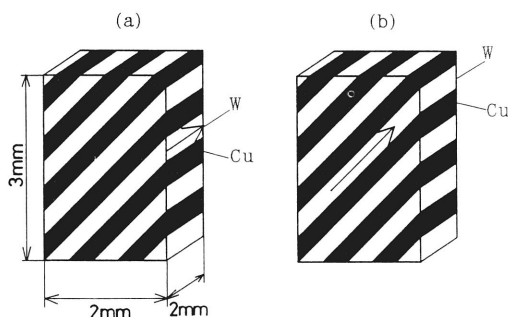


Fig. 2 Schematic figures of specimens for compression test. The arrows indicate the rolling direction of the tungsten foil.

予備実験で本 Cu-W 複合材の高温変形挙動は、タングステン箔の圧延方向とせん断変形方向とのなす角によって著しく異なることが知られたので、この角が0°と90°になるような2種類の試験片を用意した。Fig. 2の矢印は、タングステン箔の圧延方向を示したもので(a)は上述の角度が90°、(b)は0°のものである。これらの試験片は、溶着法で作製した一つの積層材より切りだし方を変えて作ったので、それぞれの試験片における界面の密着性のばらつきは少ないと思われる。この後、Fig. 2(a), (b)の試料をそれぞれ試料(a)と試料(b)と呼ぶことにする。

また、変形中の界面すべりの挙動を直接観察するた

めに、界面に垂直にダイヤモンド針によりけがき線をつけた。

2.3 熱疲労試験

溶浸法で作製した積層材から $4\text{mm} \times 4\text{mm} \times 3\text{mm}$ の寸法に切りだした試験片に、赤外線ゴールドイメージ炉を用い、Table 1 に示す3種類の熱サイクルを与えた。冷却速度は温度が下がると小さくなり、冷却中で一様ではなかった。Table 1 の冷却速度は冷却開始点での値である。また、界面すべりの有無を調べるために、一部の試験片には界面に垂直なけがき線をつけた。

Table 1 Three patterns of thermal cycle.

	A	B	C	D	E	F
Cycle 1	473	10.0	1073	600	6.7	1230
Cycle 2	773	10.0	1073	600	20.0	735
Cycle 3	473	10.0	1073	0	5.0	690

A: Minimum Temp. (K) D: Holding Time (sec)

B: Heating Rate (K/sec) E: Cooling Rate (K/sec)

C: Maximum Temp. (K) F: Total Time per Cycle (sec)

2.4 強度試験

強度及び変形特性は圧縮試験によって調べた。圧縮試験にはサーボバルサ EHF2 型疲労試験機(株島津製作所製)を改良したものを用いた¹⁸⁾。定速圧縮試験は $773 \sim 973\text{K}$ の温度範囲、 $5 \times 10^{-6} \sim 2 \times 10^{-4}\text{s}^{-1}$ の初期ひずみ速度範囲で、定荷重圧縮クリープ試験は $773 \sim 1073\text{K}$ の温度範囲、 $11.3 \sim 54.4\text{MPa}$ の応力範囲で行った。試験はいずれも $1.3 \times 10^{-4}\text{Pa}$ 以下の真空中で行った。試験片の加熱は Fig. 3 の説明図に示したタングステン製のサスセプターを高周波誘導加熱して、間接的に行った。通常、圧縮試験では変形を開始するとともに試験片の温度が急激に低下するが、試験片を圧縮する治具に熱伝導率の小さなクロセラム(黒崎窯業(株)製、反応焼結法によって作製した窒化珪素)を用いることにより試験中の温度低下を 10K 以下に抑えることができた。また、試験中の温度は Pt-13%Rd 熱電対を試験片に点溶接して直接測定した。さらに、Fig. 3 の加熱用のサスセプターに開けた穴(直径約 3mm)から、真空チャンバーのガラス窓を通して、試験片上の界面に垂直につけたけがき線の動きを、実体顕微鏡を用いてその場観察することにより変形中の異

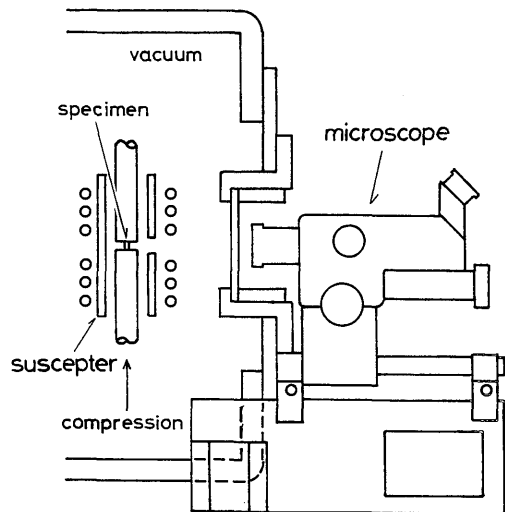


Fig. 3 Schematic illustration of the apparatus used for observing the deformation behavior of the composite.

相界面すべりの様子を調べた。

試験片の形状から、圧縮の際には圧縮治具と試験片の上面と下面が接するため、銅、タングステン各層の端面の一部が拘束される。そのため、変形に寄与する層は銅、タングステンそれぞれ3層であった。

3. 実験結果と考察

3.1 熱疲労試験

Fig. 4 は、Table 1 に示したサイクル3を442回与えた後の試験片端部の走査型電子顕微鏡(日立製作所(株)製 S-510 型)写真である。熱膨張係数の相違により、柔らかい構成相の銅層が塑性変形し、界面に平行に伸びが生じた様子がわかる。また、端部の一部よりクラック(界面剥離)が生じていることがわかる。

Fig. 5 は熱サイクルを与えた回数と積層方向に平行な方向への銅層の伸びとの関係を示す。伸びの量は、サイクル数が多いほど増加しているが、その増え方はサイクル1を与えた場合が最も大きく、ついでサイクル3、サイクル2の順に大きくなった。Table 1 と対比すると温度差が大きいほど、高温での保持時間が長いほど伸びが大きいくことがわかる。

熱膨張率の異なる材料を積層させ、その界面が強固であるときには、加熱及び冷却の際に界面応力が生ず

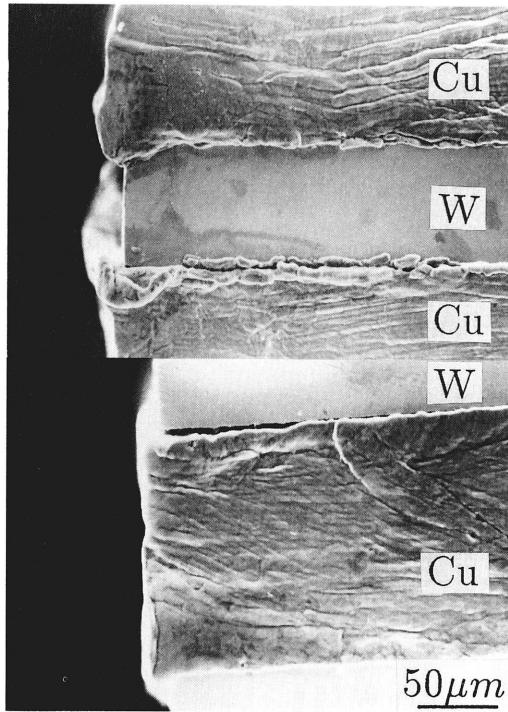


Fig. 4 Elongation of Cu layer observed on an edge of the composite after thermal cycled 442 times by cycle 3.

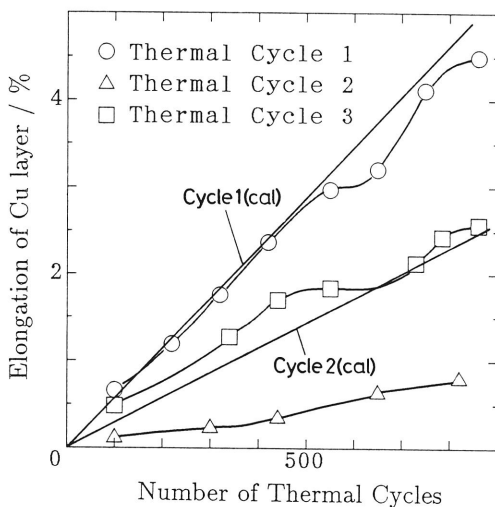


Fig. 5 Elongation of Cu layer as a function of the number of thermal cycles.

る。熱膨張率の大きい構成相（軟相の銅）は加熱の際に熱膨張率の小さい構成相（硬相のタングステン）から圧縮応力を受け、冷却の際には引張応力を受ける。この応力は次のように見積もられる。

今、銅箔とタングステン箔を積層接合し、これに内部応力零の温度（基準温度）からの温度差 ΔT を与えたときを考える。銅の熱膨張係数を α_{Cu} 、タングステンの熱膨張係数を α_W 、温度差 ΔT による銅の拘束のないときの伸び率 (eigen ひずみ) を ϵ_{Cu} 、複合材のひずみを ϵ とすると、界面すべりや塑性変形がなければ、 $\epsilon - \epsilon_{Cu}$ が弾性ひずみとなるので、銅に働く応力 σ_{Cu} は

$$\sigma_{Cu} = E_{Cu} (\epsilon - \epsilon_{Cu}) \quad (1)$$

となる。ここで E_{Cu} は銅のヤング率である。同様に温度差 ΔT によるタングステンの無拘束下での伸び率を ϵ_W 、タングステンのヤング率を E_W とすると、タングステンに働く応力 σ_W は

$$\sigma_W = E_W (\epsilon - \epsilon_W)$$

である。これらの応力は界面を通して構成相が互いに他に及ぼすものである。本複合材ではこれらの相の体積分率が等しいので、つりあいの条件より

$$\sigma_{Cu} + \sigma_W = 0$$

となる。したがって、複合材の伸び率は

$$\epsilon = \frac{E_{Cu} \epsilon_{Cu} + E_W \epsilon_W}{E_{Cu} + E_W}$$

で与えられる。また、 $\epsilon_{Cu} = \alpha_{Cu} \Delta T$ 、 $\epsilon_W = \alpha_W \Delta T$ なので、

$$\epsilon = \frac{E_{Cu} \alpha_{Cu} + E_W \alpha_W}{E_{Cu} + E_W} \Delta T$$

である。上式と式 (1) から熱膨張係数差による応力 σ ($= \sigma_{Cu} = -\sigma_W$) は

$$\sigma = \frac{E_{Cu} E_W}{E_{Cu} + E_W} (\alpha_W - \alpha_{Cu}) \Delta T \quad (2)$$

で与えられる。これより、残留内部応力は熱膨張率の差と材料に与える基準温度との温度差に比例することがわかる。本研究では銅とタングステンの複合化を銅の融点直上で行っているため、基準温度は銅の融点

1356K としてよいであろう。また、 $\alpha_{\text{Cu}} (= 1.41 \times 10^{-5} \text{K}^{-1}) > \alpha_{\text{W}} (= 0.444 \times 10^{-5} \text{K}^{-1})$, $\Delta T < 0$ なので、作製した複合材には銅相に引張応力、タングステン相に圧縮応力が作用しているであろう。ヤング率として室温の値、 $E_{\text{Cu}} = 1.23 \times 10^2 \text{GPa}$, $E_{\text{W}} = 4.07 \times 10^2 \text{GPa}$, ΔT として銅の融点 1356K と室温 298K との差 1058K を用いると、式(2)から室温での本複合材の残留内部応力は約 970MPa となる。また、サイクル1とサイクル3の温度差(600K)を ΔT としたときの内部応力は、約 530MPa となる。

このように複合材の作製温度から室温までの温度差による界面での残留内部応力は、銅の降伏応力に比べ非常に大きい。そのため、室温においてこのような内部応力が残留しているとは考えにくく、冷却の過程で塑性緩和されているものと思われる。このことは、熱サイクルの最高温度に保持した試料に銅層の伸びやボイドの発生がほとんど見られなかったことや、Fig. 5 において熱サイクル数の増加に伴い銅層の伸びがほぼ一様であることからわかる。そこで、複合材の銅層の伸びは、1サイクルごとの温度差による残留内部応力に起因するものと考えられる。

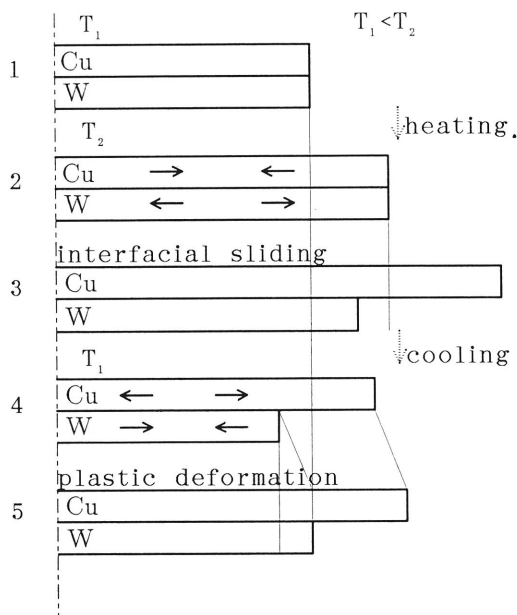


Fig. 6 Schematic illustration for explanation of residual stress caused by a thermal cycle and its relaxation.

Fig. 6 は、本複合材の熱サイクル中の残留内部応力とその緩和過程の説明図である。先に述べたように、試料作製温度から室温まで冷却したときに発生した残留内部応力は塑性緩和したと考えられる。その状態(状態1)から温度 $T_2 (> T_1)$ に加熱すると、タングステン層には引張応力、銅層には圧縮応力のかかる状態2になる。Fig. 6 に示した矢印の方向は銅層とタングステン層に作用している残留内部応力の方向を示している。これらの応力を緩和するには、各層において応力を緩和する方向に変位が生じればよい。ここで、銅層とタングステン層の界面ですべりが起これば、界面における両層の弾性ひずみの連続性は失われるので、銅層に作用している圧縮応力とタングステン層に作用している引張応力は緩和される。その結果、銅層が伸びタングステン層が縮んだ様子を表したのが状態3である。このようにして T_1 から T_2 への加熱による残留応力が零の状態になる。この状態から冷却し初期温度 T_1 にすると、タングステン層には圧縮応力、銅層には引張応力がかかる状態4になる。これらの応力が銅層の塑性変形によって緩和された様子を示したのが状態5である。タングステン層には温度 T_1 における界面の拘束がない状態へと弾性的な伸びが生じ、層の長さは状態1と同じになる。また、低温では界面すべりは起こりにくいため、銅層では塑性伸びが生じることによって引張応力が緩和する。このように、1サイクルにおける銅層の伸びは、高温では圧縮応力を緩和するための界面すべり、低温では引張応力を緩和するための塑性変形の寄与であると考えられる。1サイクルごとにこの機構が繰り返されることによって、連続した銅層の伸びが観察されたのであろう。このことは、

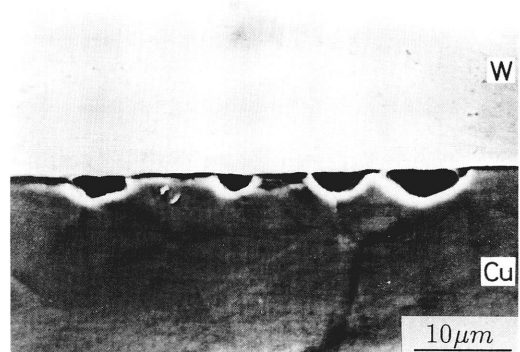


Fig. 7 Interface of the Cu-W composite after thermally cycled 100 times by cycle 2.

熱サイクルを与えた後の試験片には銅層に塑性変形したことを表す多くのすべり線が見られ、界面すべりによると思われるけがき線のずれも観察されたことから裏付けられる。

高温保持時間600秒のサイクル1と高温保持時間0秒のサイクル3は温度変化幅は等しいので、この2つの結果によって高温保持中の界面すべりによる残留内部応力の緩和の程度が比較できる。Fig. 5 に示したようにサイクル1での銅層の伸びはサイクル3より大きく、これは高温保持時間が長いほど残留応力の緩和がより進んだことを意味している。また、サイクル3でも銅層の伸びが観察されたことから、界面すべりは最高保持温度でのみではなく、保持温度近傍ですでに起こっていると思われる。サイクル1とサイクル2では、温度変化幅の大きいサイクル1の方がより残留内部応力が大きいために、銅層の伸びもサイクル1の方が大きかったであろう。

熱膨張率の差で生じた界面拘束がすべて界面すべりによって緩和されるとすると、1サイクル当たりのすべり量は1サイクルの温度差で生ずる銅とタングステンの熱膨張の差になるはずである。これに熱サイクルの回数を乗じ、銅層の伸びをサイクル1とサイクル2について計算したものを Fig. 5 中に直線で示した。サイクル1では500回付近まで実験値と計算値は一致している。これはサイクル1では高温保持時間が長く、内部応力の緩和がほとんど界面すべりによって生じたことを意味する。また500回以降はボイド等の発生のため界面劣化が起り、界面拘束が失われた可能性がある。サイクル2では実験値は計算値を大きく下回っている。これは熱サイクルの最低温度が773Kと高いため、冷却後の銅層が緩和するのに界面すべりの効果が大きく、塑性伸びによる緩和の割合が低下したことによるものと思われる。

熱サイクルを与えた試料には、わずか5サイクル与えたものでもボイドの発生が見られた。Fig. 7 に示すのはサイクル2を100回与えたものの走査電子顕微鏡像である。このボイドの発生が、真空における赤外線加熱による銅の昇華によるものではないことを確認するため、熱サイクルと同じ時間、同じ真空条件で高温保持を行ったが、ボイドの発生は認められなかった。したがって、ボイドの発生は熱サイクルを与えたことに特有の現象である。

ボイドの発生機構は以下のように考えられる。銅と

タングステンの熱膨張率の違いから発生する内部応力を緩和するために、銅相中で塑性変形が起こる。このため、転位の上昇運動、交差すべり、対消滅によって、空孔が形成される。また銅相中に多数のすべり線が観察されたことから、すべり面上を転位が運動し、界面近傍に堆積したと考えられる。このとき、堆積転位による応力集中を界面上に空孔を形成することによって緩和した可能性がある。また、銅相の界面に平行な伸びは界面すべりを伴っている。これが界面転位の運動によるものとする、銅相中を運動し界面に到達した刃状転位が界面転位になる際に、界面に垂直なバーガースベクトルを持つ転位が生み出される可能性がある¹⁹⁾。この転位が上昇運動することによる空孔の形成も可能であると考えられる。このようにして形成された空孔が合体してボイドが成長したものと思われる。

以上のように複合材の熱疲労試験から、温度差によって生じる内部応力が銅相の塑性変形を引き起こし、界面劣化の原因をつくることがわかった。そこで次に、圧縮試験により複合材に界面に平行なせん断応力をかけ、変形挙動を調べた。

3.2 圧縮試験

Fig. 8 に773K～973Kにおける圧縮試験で得られた応力-ひずみ曲線を示す。圧縮の途中で試験機のクロスヘッド速度を変えたところを矢印で表し、それと対応するひずみ速度を図中に示した。

タングステン箔の圧延方向が、圧縮試験のせん断方向に垂直な試料(a)では、773Kと873Kで変形の進行とともに変形応力がいったん増加した後に急激に低下し、その後変形応力はほぼ一定の値となっている。ただし初期ひずみ速度が最も低い $5.1 \times 10^{-6} \text{s}^{-1}$ においては急激な変形応力の低下は見られなかった。973Kでは変形応力のレベルが低く、急激な低下は見られないが、加工硬化の後約10MPaの鋸歯状の変動が見られる。

一方、タングステン箔の圧延方向と圧縮試験のせん断方向が平行な試料(b)では、試料(a)に見られた応力の急激な低下は、行った試験のどの温度、どのひずみ速度でも観察されなかった。973Kでは試料(a)と同じく、変形応力はひずみ約5%まで加工硬化した後、鋸歯状に変動している。この変動にはひずみ速度の影響がなかった。773Kと873Kでは、973Kでのような変形応力の変動は見られなかった。

圧縮試験中に変形応力が急激に低下した試料(a)の

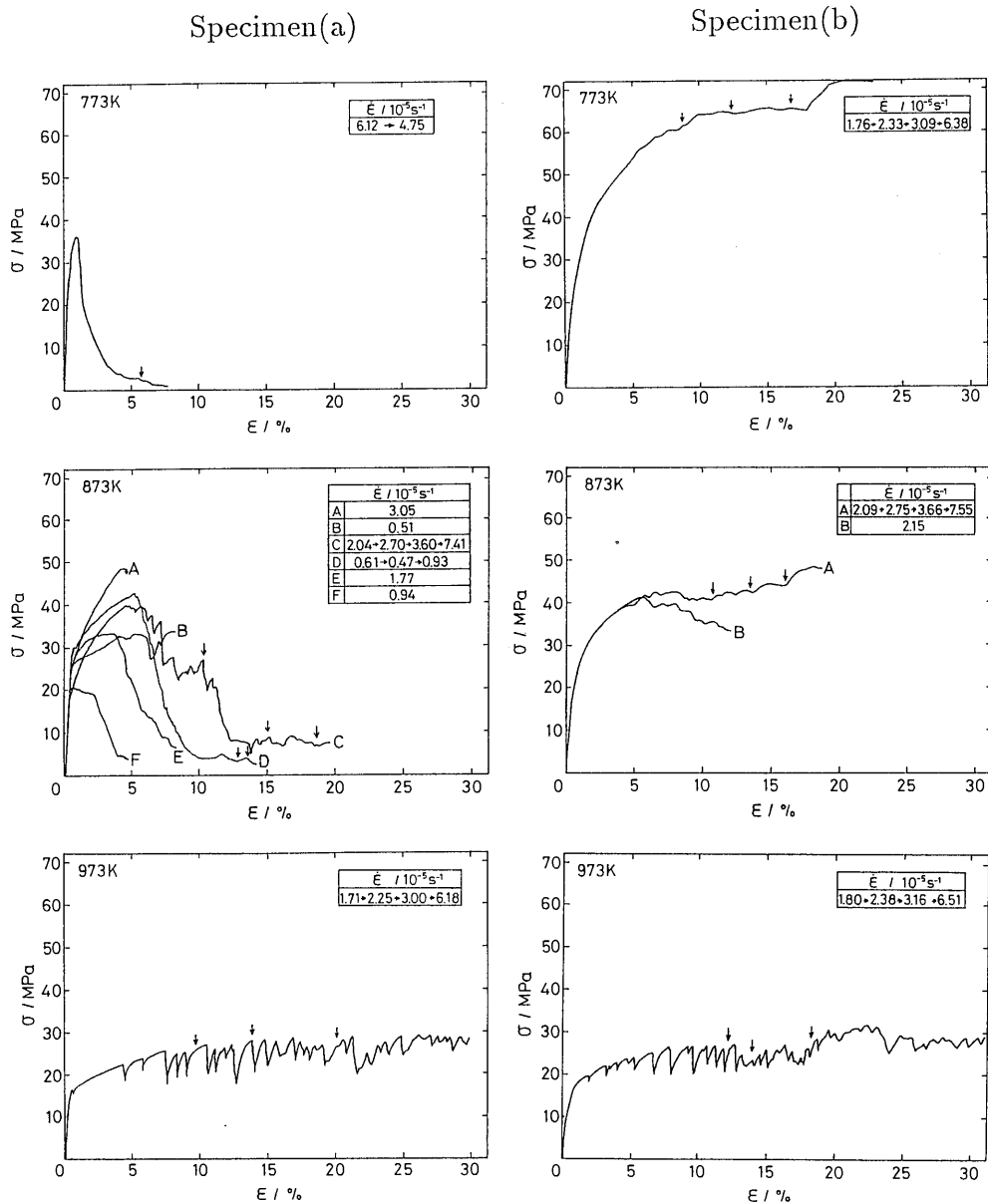


Fig. 8 Strain-stress curves of the Cu-W lamellar composite deformed at 773K~973K.

873K, ひずみ速度 $2.0 \times 10^{-5} \text{s}^{-1}$ におけるけがき線の
その場観察の結果を Fig. 9 に示す。図の各写真中に
矢印で示したように、ひずみの増加とともに銅相とタ
ングステン相のけがき線に異相界面上でずれが見られ、
界面すべりを生じていることがわかる。Fig. 10 は試
料(a)の圧縮試験で観察されたけがき線のずれ量を、

時間に対してプロットしたもので、873K の例である
図中には圧縮変形がすべて界面すべりによるものと仮
定して変形量から求めた理想的なずれ量と変形応力の
変化も併せて示した。変形応力は、界面すべりが観察
されない変形の初期には単調に増加しているが、界面
すべりが起こり始めると急激に低下することがわかる

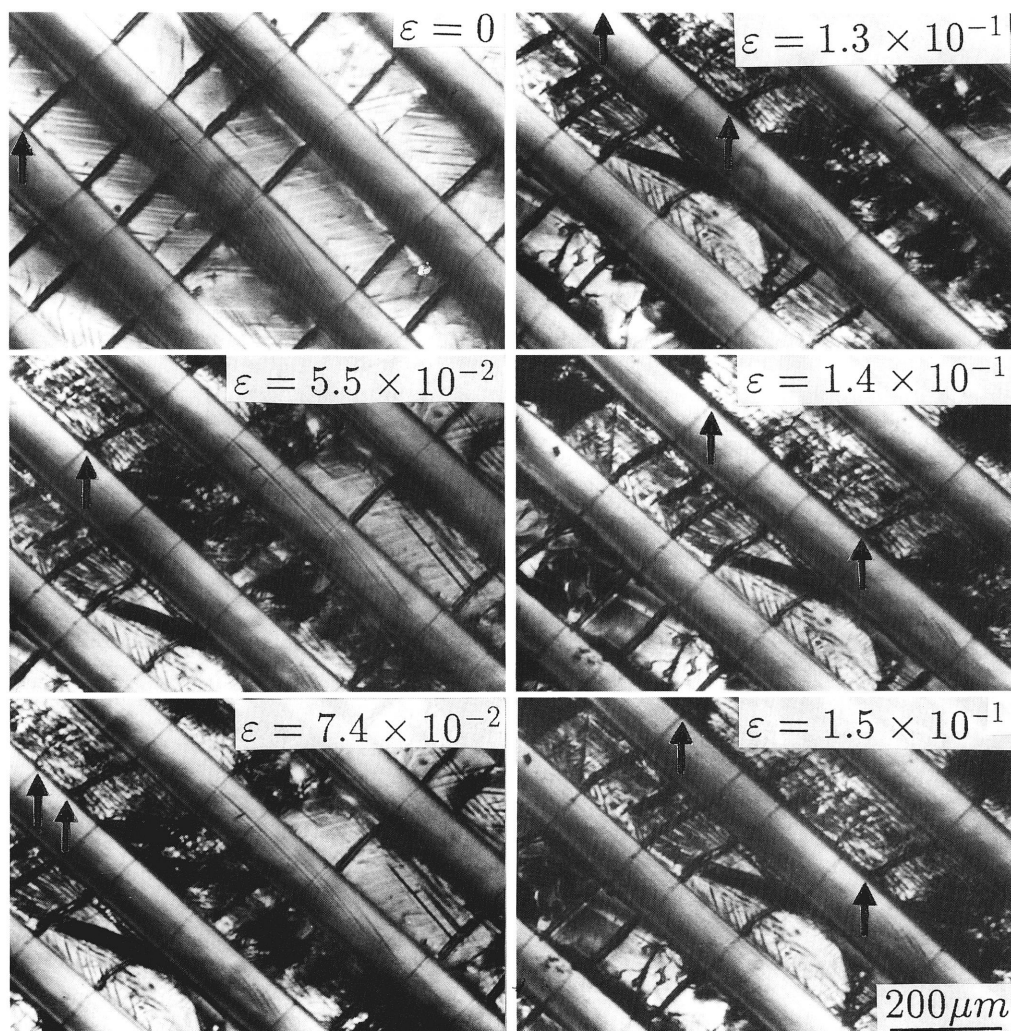


Fig. 9 In-situ observation of interfacial sliding of the Cu-W lamellar composite (specimen (a)) during compression at 873K under a strain rate of $2.0 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$. Arrows show the places where the interfacial sliding occurs.

他の温度、ひずみ速度の条件でも界面すべりが明確に観察され始めると同時に応力-ひずみ曲線上で急激な応力の低下が観察された。これより、試料(a)の圧縮試験で観察された変形応力の低下は異相界面すべりが原因であることがわかる。また、界面すべりの量の実測値と変形量から求めた計算値の時間依存性がほぼ平行であることから、界面すべりがいったん起こり始めれば本積層複合材の変形はほとんどのこのすべりによって生ずることがわかる。応力低下を示さなかった試験

片(b)ではこのような界面すべりは観察されなかった。

次に、**Fig. 8**の応力-ひずみ曲線において変形応力がほぼ一定となったときの変形応力をもって定常変形応力とし、これをひずみ速度に対してプロットした結果を**Fig. 11**に示す。図中には定荷重圧縮クリープ試験の結果も、最小ひずみ速度をクリープ応力に対してプロットして示した。界面すべりによって変形が進行する場合には著しく強度は低下し、このときの複合材の変形応力は、界面すべりに必要な応力で決まるもの

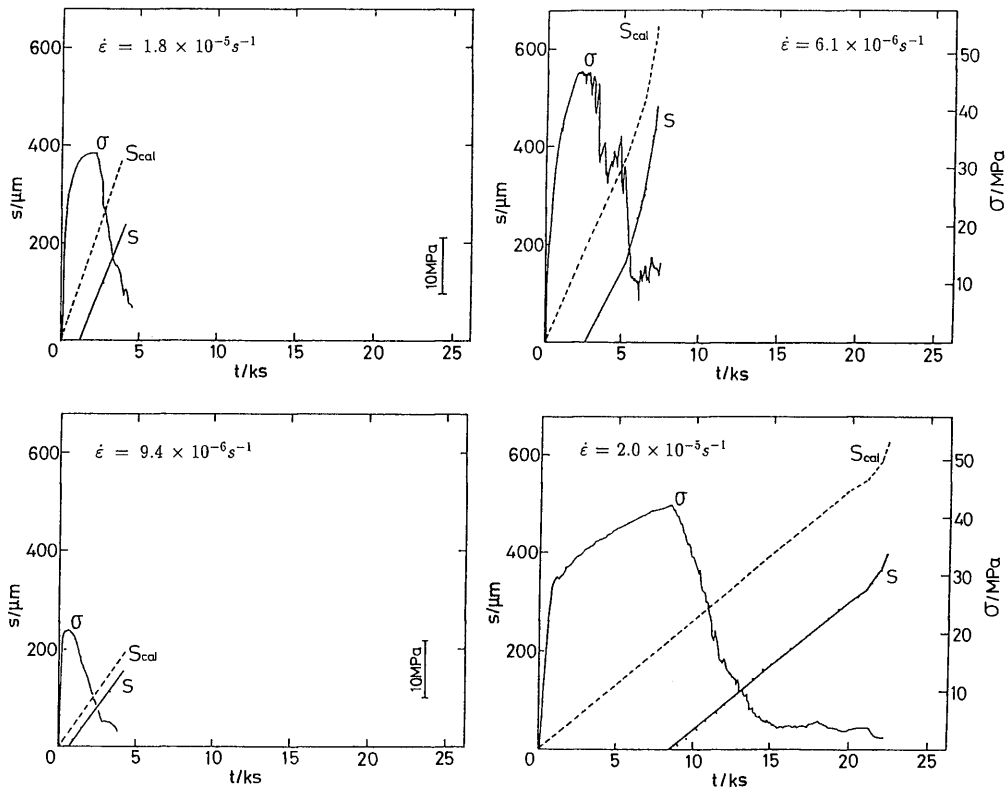


Fig. 10 Solid lines S and σ respectively show the amount of the observed interfacial sliding and flow stress as a function of time. Broken line shows the ideal amount of interfacial sliding calculated from the amount of deformation. Specimen (a) at 873K.

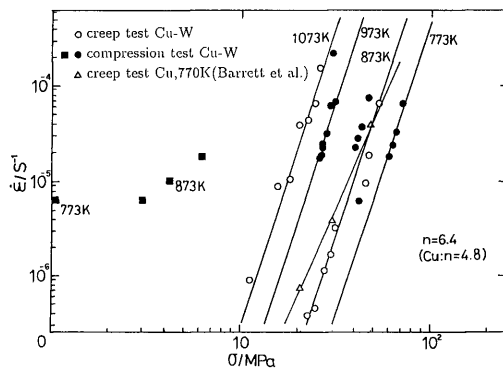


Fig. 11 Steady-state stress as a function of strain rate in compression test and minimum strain rate as a function of stress in creep test.

と思われる。しかし、今回の実験ではすべりが起こる際の応力に変動があり、応力値を定めることができたのは **Fig. 11** に示した 4 点のみであった。従って、今後はデータの蓄積とすべりの機構の解明が必要である。すべりが起こらないときの各測定点は直線で近似でき、図の勾配より求めたひずみ速度の応力指数は 6.4 である。図中には、Barrett ら²⁰⁾ の得た 770K における銅単相材のクリープ試験による結果も示したが、複合材の強度が大きいことがわかる。これは界面による強化が働いていることを示唆している。**Fig. 12** は、**Fig. 11** をもとにして得た変形応力 σ が 39.8MPa のときのひずみ速度のアレニウスプロットである。図中の直線の勾配より求めた変形の活性化エネルギー Q は 172kJ/mol であり、これは銅の自己拡散の活性化エネルギーの値 (208kJ/mol²¹⁾) に近い。したがって、界面すべりが起こらないときの変形は単相金属材料と同様

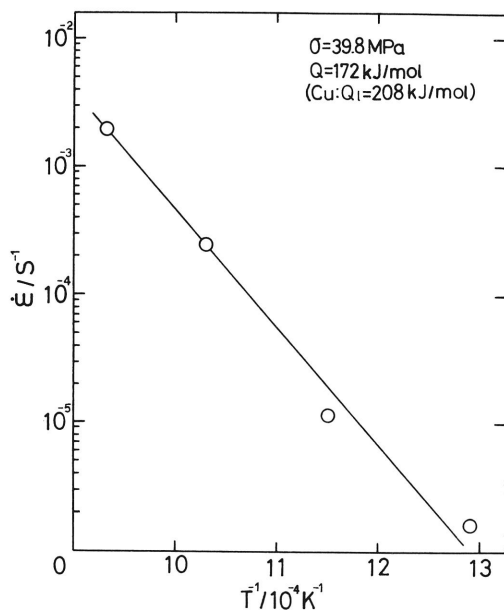


Fig. 12 Temperature dependence of strain rate.

の一般式によって表せる.

$$\dot{\epsilon} = A \left(\frac{\sigma}{E} \right)^n \exp \left(- \frac{Q}{RT} \right)$$

ここで, A は温度と応力に依存しない定数, n は応力指数で本複合材では6.4, 純銅で4.8, R は気体定数, T は絶対温度, Q は活性化エネルギーで本複合材では172kJ/mol, 純銅で208kJ/molである. 界面すべりが起こらないときには本複合材の変形は界面で拘束された銅相の変形として理解される. 圧縮試験時の試験片表面のけがき線の様子からも, タングステン相は塑性変形していないようである (Fig. 9 参照).

3.3 界面付近の構造

Fig. 13 に, 界面近傍の銅相の透過電子顕微鏡像を示す. 試料の薄膜化は, イオンビーム薄膜作製装置 (JIT-100 型日本電子(株)製) を用いアルゴンイオン照射によって行った. 観察に使用した電子顕微鏡は材料開発工学専攻 JEM-2000EX (日本電子(株)製) である. 図中右下の白い部分は薄膜化の際にできた試料の穴で, 左上の写真の枠外にタングステン相がある. 図中に Cu-W 界面に垂直に伸びる結晶粒界が見える. また, 電子線回折の解析により銅の観察面は粒界を挟んだい

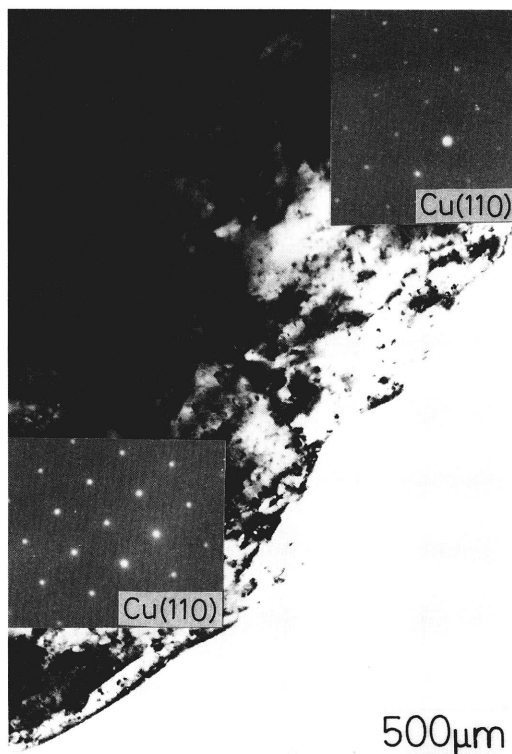


Fig. 13 Microstructure of Cu layer near Cu-W boundary observed by TEM.

ずれの結晶粒においても $\{110\}$ で, 粒界は双晶面であることが知られた. fcc 金属の双晶面は一般に $\{111\}$ なので, この粒界と観察面に垂直な Cu-W 界面は $\{211\}$ であることがわかる. 以上より Cu-W 界面には, 銅側に $\{211\}$ 面が優先的に表われていることがわかった. また, タングステン箔の圧延集合組織は $\{100\}$ であることから, これで異相界面の両側の原子面の情報が得られたことになる. これをもとに異相界面の原子マッチングの様子を調べたものが Fig. 14 である. この図より W の $\langle 110 \rangle$ 方向 (圧延方向) と Cu の $\langle 111 \rangle$ 方向を一致させると原子マッチングに明らかな異方性のあることがわかる. この異方性が試験片 (a) と試験片 (b) の界面すべりに大きな差を生じさせた可能性が強い. しかし本研究では界面において W 箔と Cu 箔がこのような方向性を持っているという確証は得られなかった. 原子マッチングの異方性による強度の違いについては, 単結晶を用いて精緻に接合された界面による実験が必要であろうと思われるが,

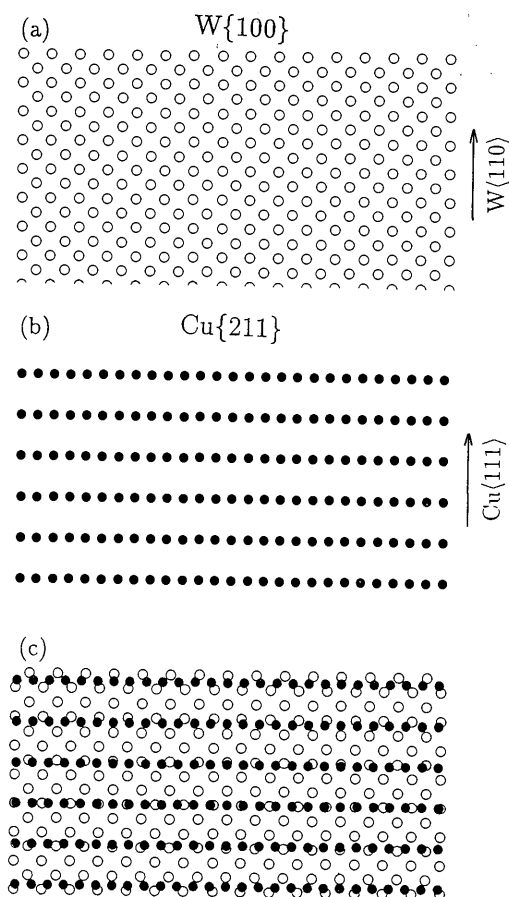


Fig. 14 Atomic plane of W {100} (a), Cu {211} (b) and their overlapping (c).

今後の課題としたい。しかし、今回の研究で界面構造設計の重要性が示唆されたものと思われる。

4. 結 論

Cu-W 人工積層複合材料における熱疲労特性及び高温変形挙動について検討し次の知見を得た。

1. 熱履歴の異なる熱疲労試験より、温度変化の幅が大きく、高温保持時間の長い条件ほど銅相の伸びが著しく、界面でのボイド生成が促進されることがわかった。これは銅とタングステンの熱膨張率の違いから生ずる内部応力の効果として説明される。延性に富む金属系複合材料でも高温用には構成相の熱膨張係数の適合性が重要である。

2. 高温における圧縮試験より、異相界面にかかる

せん断応力とタングステンの圧延方向とが垂直の場合と、平行の場合とで、複合材の強度に大きな差が生じることが知られた。垂直な場合には、変形とともに変形応力はいったん上昇するが、その後急激に低下するのに対し、平行な場合にはそのような低下は生じない。

3. 界面のその場観察により、強度の低下は異相界面すべりによることがわかった。また、2の結果と界面近傍の構造の観察から、異相界面すべりは界面構造の制御により阻止できる可能性のあることが示唆された。

4. 本複合材の高温変形挙動は、界面で拘束を受けた銅相の変形として理解できる。

謝 辞

本研究に用いられた試料を提供頂いた(株)東芝と、実体顕微鏡支持台ならびに窓付き真空チャンバー蓋の作製に快く協力して頂いた九州大学工学部材料工学科工作室の技官の方々に心から感謝の意を表する。

また、タングステン箔の集合組織の測定は新日本製鐵(株)第二技術研究所において行われたものである。なお、本研究の一部は軽金属奨学会と文部省科学研究費の助成金によって行われたものである。ここに特記して深甚な感謝の意を表する。

参 考 文 献

- 1) K. K. Chawla: Phil. Mag., **28** (1973), 401.
- 2) R. Raj, M. F. Ashby: Acta Metall., **23** (1975), 653.
- 3) T. G. Langdon, V. Raman: Grain Boundary and Related Phenomena Proceedings of JIMIS4, (1986), 747.
- 4) D. S. Wilkinson: Acta Metall., **33** (1987), 1251.
- 5) V. Raman, T. C. Reiley: J. Mat. Sci. Letters, **6** (1987), 549.
- 6) K. Wakashima, T. Kawakubo, S. Umekawa: Metall. Trans., **6A** (1975), 1755.
- 7) S. Yoda, N. Kurihara, K. Wakashima, S. Umekawa: Metall. Trans., **9A** (1978), 1229.
- 8) S. Yoda, R. Takahashi, K. Wakashima, S. Umekawa: Metall. Trans., **10A** (1979), 1796.
- 9) 依田真一, 高橋玲樹, 若島健司, 梅川莊吉: 日本金属学会誌, **44** (1980), 283.
- 10) R. D. Schmidt-Whitley: Z. Metallkde, **64** (1973), 552.
- 11) A. Eberhardt, M. Suéry, B. Baudelet: Scripta Metall., **9** (1975), 1231.
- 12) R. B. Vastava, T. G. Langdon: Acta Metall., **27** (1979), 251.
- 13) M. Ignat, R. Bonnet: Acta Metall., **31** (1983), 1991.
- 14) 村松祐治, 原田幸明, 檜 武弘, 磯田幸宏: 日本金属学会誌, **54** (1990), 679.

- 15) A. Kelly, W. R. Tyson: J. Mech. Phys. Solids, **13** (1965), 329.
- 16) A. Kelly, L. Lilholt: Phil. Mag., **20** (1969), 311.
- 17) 長嶋晋一：集合組織，丸善，(1984)，73.
- 18) 吉永日出男：金属，**49** (1979)，No. 4, 15.
- 19) D. Mclean: Phil. Mag., **23** (1970), 467.
- 20) C. R. Barrett, O. D. Sherby: Trans. Metal. Soc. AIME, **230** (1964), 1322.
- 21) M. F. Ashby: Acta Metall., **20** (1972), 887.