

平成 30 年 6 月 4 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K14118

研究課題名(和文)透過型HR-EBSDによるナノひずみ場評価法の開発

研究課題名(英文)Development of local strain measurement technique using transmission HR-EBSD

研究代表者

箕島 弘二 (MINOSHIMA, Kohji)

大阪大学・工学研究科・教授

研究者番号：50174107

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：ナノ薄膜の変形・破壊が生じる局所力学場の実測を目的として、高分解能電子後方散乱回折(HR-EBSD)によるひずみ測定法を含む各種評価手法を比較・検討した。まず、その場電界放射型走査電子顕微鏡観察/EBSD解析が可能な引張試験装置を開発した。これを用いて、銅ナノ薄膜切欠き材のひずみ場を透過型を含むEBSDひずみ解析法で求めた。併せて、電子線誘起堆積法により多数の標点を規則的に配置し、その標点変位より解析する手法を検討した。これらを比較・検討した結果、EBSD法による手法では、ひずみ場を定量的に評価できたのに対して、標点を用いる手法では、定量的に評価できることを示唆する結果を得た。

研究成果の概要(英文)：To evaluate a local strain distribution that causes deformation and fracture in nano-films, we compared usefulness of local strain measurement techniques including electron backscatter diffraction (EBSD) based ones. First, we developed a specially designed tensile testing machine that enabled in-situ field emission scanning electron microscope observation and EBSD analysis during a tensile test. Secondly, the strain distribution ahead of a notch in a Cu nano-film sample was evaluated by an EBSD strain measurement technique and a transmission one. A technique based upon displacement measurement of systematically arranged small gage marks formed by electron beam induced deposition was also used. The former techniques could qualitatively evaluate the local strain distribution, whereas the latter one might quantitatively evaluate the distribution.

研究分野：材料強度学

キーワード：材料強度学 ひずみ測定 金属薄膜

### 1. 研究開始当初の背景

研究代表者らは、金属ナノ薄膜の強度に関する体系的な研究に取り組み、ナノ薄膜の損傷・破壊を支配する力学を検討してきた。この目的のためには、き裂先端等の局所的な力学場（応力場・ひずみ場）を把握したうえで、変形・破壊の様子を高分解能で詳細に観察することが有効であると考え、電界放射型走査電子顕微鏡 (FESEM) によるその場観察下での強度実験方法を確立してきた。この過程で、蒸着法により製膜した金属ナノ薄膜は、結晶粒寸法が膜厚と同程度となる柱状組織を有しており、き裂先端や切欠き底等の応力集中部では、破壊の前駆現象として結晶粒界や双晶境界等の組織に依存した微視的すべり変形や損傷を生じ、これらを端緒として破壊がもたらされることを明らかにした。すなわち、ナノ薄膜の強度を決定づける支配力学の解明のためには、微視構造を考慮した局所力学場を明らかにすることが不可欠である。しかし、連続体力学による応力解析 (FEM 解析) では、複雑かつ微細な組織を有するナノ薄膜の局所力学場を正確に求めることが困難である。

一方、ひずみ・応力を測定する方法に、格子ひずみの変化を電子の回折により測定する方法がある。とくに極めて細く絞った電子線の後方散乱電子 (反射電子) を用いる高分解能電子後方散乱回折 (HR-EBSD) による格子ひずみ測定では、100 nm 程度の分解能で広い領域のひずみ分布 (ひずみ場) を評価できる。さらに研究代表者らは、電子が透過するナノ薄膜では、反射電子の代わりに透過電子の回折像を用いた HR-EBSD 技術を確立できれば、ひずみ測定の分解能を飛躍的に上げることが可能になり、これを自立金属ナノ薄膜の強度試験に適用すれば、上記の問題を克服した薄膜に対する局所ひずみ場 (ナノひずみ場) 評価法を確立できると考えついた。

### 2. 研究の目的

本研究では、ナノ薄膜の変形・破壊が生じる局所力学場を実測することを目的として、電子後方散乱回折によるひずみ測定法 (EBSD ひずみ測定法) を含む各種の局所ひずみ場評価手法の精度・信頼性を比較・検討し、金属ナノ薄膜に適用する上で適したナノひずみ場評価法を提案する。

### 3. 研究の方法

EBSD ひずみ測定法の概要を図 1 に示す。通常の EBSD 法では、集束させた電子線を試料表面に照射し、後方散乱電子 (反射電子) により結晶の実格子を反映した電子回折パターン (菊池パターン) を取得する。HR-EBSD ひずみ測定では、無負荷状態と応力負荷状態の高分解能回折パターン (晶帯軸) の変化を測定し、弾性ひずみテンソルを算出する。こ

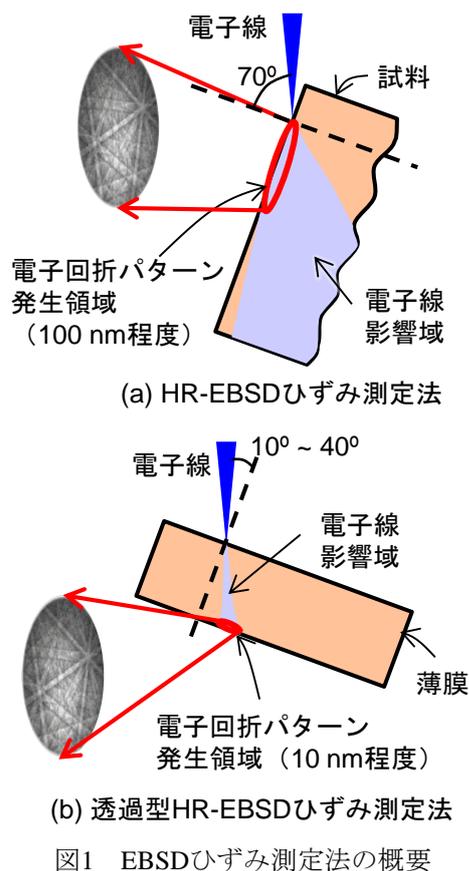


図1 EBSDひずみ測定法の概要

の場合、入射電子線を試料表面の法線から 70° 傾けて回折像を得るため、反射電子は 100 nm 程度の領域の影響を受ける。一方、透過型 HR-EBSD 法では、試料表面の法線方向から 10 ~ 40° 傾いた方向から電子線を入射させて、薄膜を透過した電子から回折パターンを取得するため、10 nm 程度の領域を反映した回折パターンとなり、高空間分解能のひずみ場解析が可能となる。

自立ナノ薄膜の局所力学場に対するナノひずみ場評価法を確立するために、本研究では、(1) 電子線の入射方向と EBSD 検出器の位置を考慮して自立ナノ薄膜に対して荷重を負荷できる小型その場 FESEM 観察/その場 EBSD 解析薄膜試料引張試験装置を開発し、さらに、(2) 局所ひずみ場の解明に適した測定手法を検討した。以下にそれぞれの詳細な研究方法を示す。

#### (1) 小型その場 FESEM 観察/その場 EBSD 解析薄膜試料引張試験装置の開発

EBSD ひずみ測定に対応したその場 FESEM 観察引張試験機を新たに開発する。薄膜に引張荷重を負荷した条件下で、(a) その場 FESEM 観察、(b) 通常の EBSD 解析と HR-EBSD ひずみ測定、さらに (c) 透過電子による回折像を EBSD 検出器で捉えられるように、試験片裏面と検出器の間の空間を確保して透過型 HR-EBSD ひずみ測定が可能に仕様とした。また、電子が透過する膜厚が数十 nm と薄い薄膜に対して精度よく引張荷重を負荷するため、膜厚約 500 nm の

薄膜試験片用に開発した現有試験機の荷重測定精度 ( $\pm 0.18$  mN) に比べて高い測定精度を有するロードセルを用い、かつサブ $\mu\text{m}$  オーダーの精度で変位制御が可能な精密引張ステージを用いた。

## (2) 局所ひずみ場測定法の検討

開発した試験装置および現有の引張試験機を用いて、切欠きを有する自立金属ナノ薄膜に対して HR-EBSD ひずみ測定を実施して、本手法の有用性を検討した。供試材には純度 99.999% の銅を蒸着源とする電子ビーム蒸着法によって製膜した膜厚約 500 ~ 600 nm の単結晶および多結晶銅薄膜を用いた。ここでは、単一の電子回折パターンとなり、解析が容易になる単結晶銅ナノ薄膜を用いて基礎的な検討を行った後、多結晶銅ナノ薄膜のひずみを測定することにより、ナノ薄膜に対する本手法の適用可能性を検討した。図 2 に試験片形状を示す。犠牲層エッチング法によって基板から自立した銅薄膜試験片を作製した後、集束イオンビーム (FIB) を用いて直線状または楕円状の中央切欠きを加工した。試験では、引張荷重を段階的に増大させ、各段階で変位を一定に保持して切欠き先端周囲の高分解能電子回折パターンを取得し、これを基にひずみ場を評価した。ひずみの算出には、HR-EBSD ひずみ測定ソフトウェア (BLG Productions 製, CrossCourt 3) を用いた。

つぎに、透過型 HR-EBSD ひずみ測定法の適用可能性を検討するために、鮮明な透過電子回折パターンを取得できる透過 EBSD 条件を検討した。これらの結果と HR-EBSD ひずみ測定で得られた知見を基に、透過型 HR-EBSD ひずみ測定法の有用性を検討した。また、EBSD ひずみ測定法以外のナノひずみ場評価法として、応力集中部周囲に標点を配置して変位場を実測する手法についても検討した。

## 4. 研究成果

### (1) 引張試験装置の開発

開発した小型その場 FESEM 観察/その場 EBSD 解析薄膜試料引張試験装置の外観と模式図を図 3 に示す。EBSD を具備する FESEM の試料室内で傾斜しても、内壁や検出器等と試験装置が接触しないように、現有の試験装

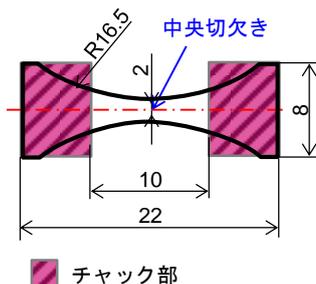


図2 自立ナノ薄膜試験片

置に比べて装置の外形寸法を小さくした。さらに、測定時の試験片裏面と EBSD 検出器の間の空間を確保しており、透過型 HR-EBSD ひずみ測定法で回折パターンを取得可能な構造となっている。荷重測定には測定精度  $\pm 0.04$  mN である微小荷重ロードセルを、また引張変位を与えるために最小変位量が数十 nm と極めて微小でありながら mm オーダーの変位を与えることが可能な piezo モーターで駆動する引張ステージを用いている。試験装置の制御は、LabVIEW<sup>®</sup> 上で作成したプログラムによって行う。

### (2) 適切なナノひずみ場評価法の検討

#### ① HR-EBSD ひずみ測定法の検討

膜厚約 600 nm の自立単結晶銅ナノ薄膜の切欠き (直線形状, 全長約 100  $\mu\text{m}$ ) 前方のひずみ場を HR-EBSD ひずみ測定法によって評価した結果を図 4 に示す。切欠きがないと見なした場合の試験片最小幅部分の断面積で引張荷重を除いて求めた公称応力が 67 MPa の時の切欠き周囲の FESEM 像および弾性ひずみ場を一例として示している。FESEM 像は 70° 傾斜して撮影した像を 0° に相当するように補正した像である。荷重負荷方向を x 軸、薄膜表面に対する法線方向を z 軸、それらと直交する方向を y 軸とした。各ひずみ成分の分布図より、荷重負荷方向のひずみ ( $\epsilon_{xx}$ ) が大きくなっており、切欠きの応力集中によって大きなひずみが生じていることを評価で

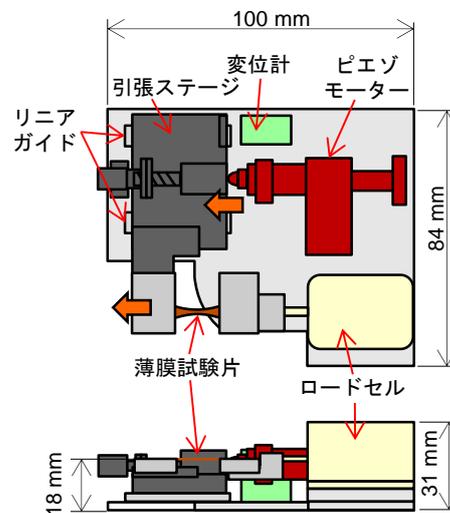


図3 小型その場FESEM観察/その場EBSD解析薄膜試料引張試験装置

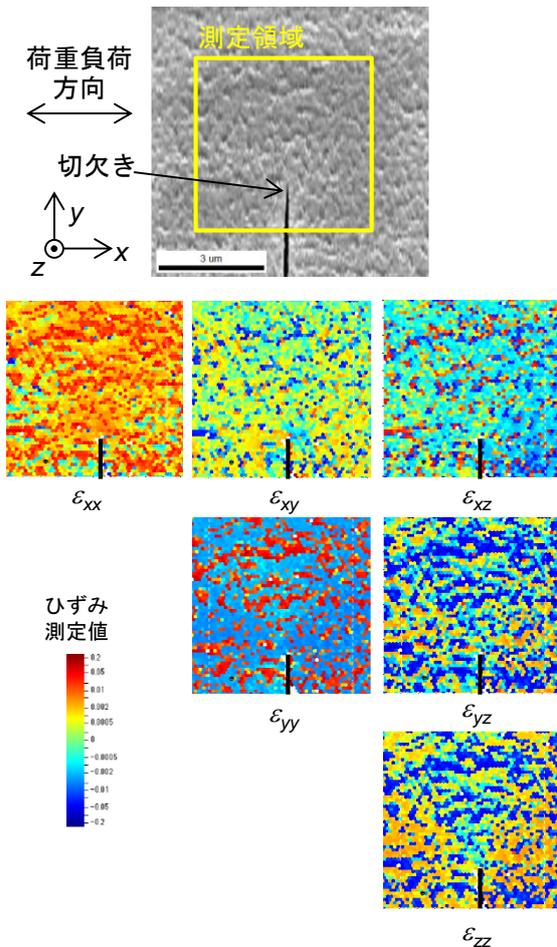


図4 HR-EBSDひずみ測定法による単結晶銅薄膜の切欠き前方のひずみ場評価 (67 MPa負荷時)

きています。しかしながら、いずれのひずみ成分においても、測定領域内の測定値がばらつく傾向が見られ、誤差が大きかった。加えて、負荷応力の増減とひずみ測定値の増減との相関は必ずしも得られず、ひずみ測定の定量性が不十分となる傾向が見られた。

つぎに、膜厚約 530 nm の自立多結晶ナノ薄膜の切欠き (楕円形状、長径約 40 μm、先端曲率半径 1.6 μm) 前方のひずみ場を HR-EBSD ひずみ測定法によって評価した結果を図 5 に示す。302 MPa の公称応力を負荷した時の切欠き周囲の FESEM 像および弾性ひずみ場を一例として示している。FESEM 像は 70°傾斜して撮影した像を 0°に相当するように補正した像である。FESEM 像より、切欠き前方にすべり線が見られた。各ひずみ成分の分布図を見ると、図中に A~C で示した領域において、周囲に比べて大きなひずみが生じていた。これは、FESEM 上ですべり線が見られた領域と一致しており、すべり変形を生じた部分の局所ひずみを HR-EBSD ひずみ測定法によって測定できたことを意味している。しかしながら、単結晶の場合と同様に、応力の増減と各ひずみ成分の増減との相関は得られず、測定値の定量性が不十分となる結果となった。

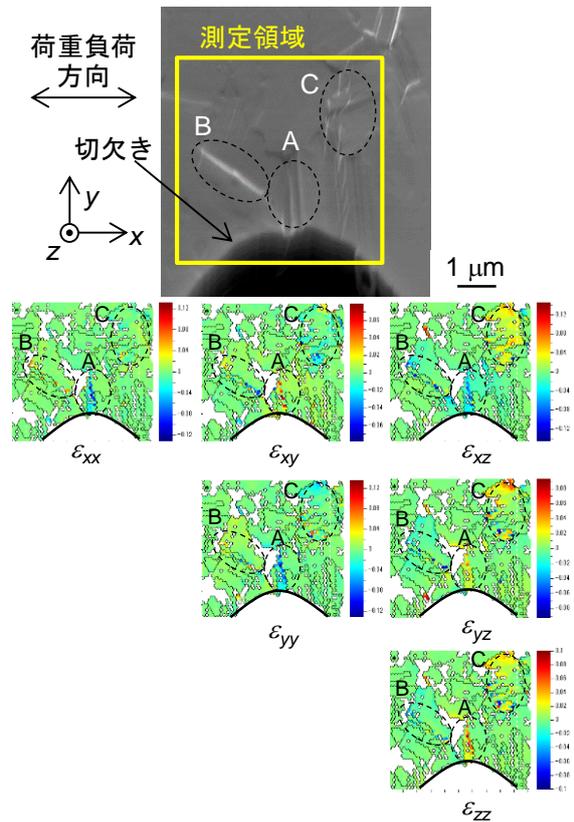


図5 HR-EBSDひずみ測定法による多結晶銅薄膜の切欠き前方のひずみ場評価 (302 MPa負荷時)

ひずみ測定値の定量性が不十分となる原因として、応力負荷時の薄膜の面外変形が回折パターンに影響を及ぼしたことが考えられる。すなわち、回折パターンは電子線照射位置と EBSD 検出器の位置関係によって変化するが、薄膜材料は剛性が小さく面外変形が容易であるため、引張荷重負荷によって面外変形を生じ、これに起因する回折パターン変化がひずみ測定値の誤差として現れたと考えられる。このため、荷重負荷による面外変形を抑制できる試験片形状や試験方法を検討し、面外変形の影響を抑制することで、安定した回折パターンを取得可能となり、ひずみ測定値の精度を向上できると考えられる。

## ② 透過型 HR-EBSD ひずみ測定法の検討

透過型 HR-EBSD ひずみ測定に適する鮮明な透過電子回折パターンを取得できる条件を検討するために、メッシュ状ジグに自立金属薄膜を取り付けて、電子線の条件 (加速電圧、照射電流、傾斜角度など) および薄膜の条件 (膜厚、微視組織など) を検討した。膜厚が約 30 nm の多結晶銅ナノ薄膜と膜厚が約 200 nm の単結晶銅ナノ薄膜を用いて検討した結果、多結晶銅薄膜では、膜厚が 30 nm まで小さくても明瞭な回折パターンを得ることが困難であった。本研究で用いた多結晶ナノ薄膜のように、膜厚が 10 nm オーダーまで小さくなると、結晶粒が極めて微細になるため、空間分解能が 10 nm 程度となる透過

型 HR-EBSD ひずみ測定法でも結晶粒界の影響で鮮明な回折パターンを得られなかったと考えられる。一方、結晶粒界が影響を及ぼさない単結晶薄膜では、薄膜が引張変形で引き伸ばされて膜厚が 10 nm オーダーまで小さくなった部分では高加速電圧、高照射電流の条件下で電子が透過し、比較的明瞭な回折パターンが得られた。これは、単結晶または粗大な結晶を有する 10 nm オーダー厚の自立ナノ薄膜に対しては透過型 HR-EBSD ひずみ測定法を適用できることを示唆する結果である。透過電子の回折パターンを取得できる 10 nm オーダー厚の自立ナノ薄膜を作製するとともに、HR-EBSD ひずみ測定法で得られた知見を基に信頼性の高い回折パターンを得られる試験片形状と試験方法を確立すれば、透過型 HR-EBSD ひずみ測定法によってナノひずみ場を評価できると考えられる。

### ③ 標点を用いた変位場の実測に基づくナノひずみ評価手法の検討

電子線誘起堆積 (EBID) 法によって、応力集中部の周囲に多数の微小な標点を規則的に並ぶように作製し、その標点の変位を基に荷重負荷時の変形場を実測する手法について検討した。膜厚が約 516 nm の自立多結晶銅ナノ薄膜試験片に対して FIB を用いて切欠きを加工した後、切欠き周囲に EBID 法で直径が約 50 nm の白金を 1  $\mu\text{m}$  間隔で作製して標点とした。切欠きを起点として疲労き裂が進展した直後の y 方向 (荷重負荷方向) の標点変位分布を図 6 に示す。無負荷時と荷重負荷時の標点群に対して画像相関法を用いた同一点探索により標点の変位を求め、変位分布を可視化して FESEM 像上に重ねて示している。き裂周囲の数  $\mu\text{m}$  の範囲の変位場を測定できていることがわかる。変位場の測定精度は、標点の間隔・配置や観察分解能などに依存するため、適切な標点配置および標点寸法を検討して変位測定の分解能を向上させれば、き裂先端近傍などの局所の変位場を精度よく評価できるようになる。これによって金属ナノ薄膜における変形・破壊を支配する局所の高ひずみ場を精度よく評価すれば、支配力学則を解明できると考えられる。

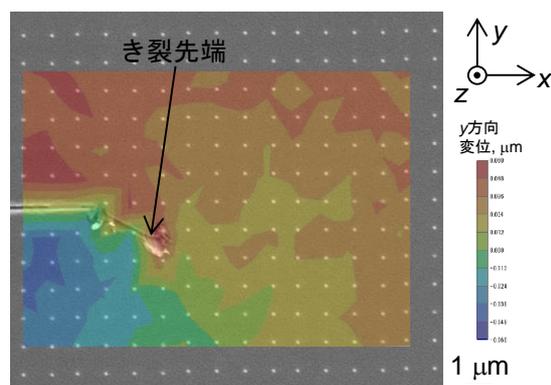


図6 疲労き裂進展開始後のき裂周囲の変位場 (104 MPa負荷時)

## 5. 主な発表論文等

[その他]

ホームページ等

<http://www-micro.mech.eng.osaka-u.ac.jp/home.html>

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

箕島 弘二 (MINOSHIMA, Kohji)  
大阪大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号：50174107

### (2)研究分担者

平方 寛之 (HIRAKATA, Hiroyuki)  
京都大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号：40362454

近藤 俊之 (KONDO, Toshiyuki)  
大阪大学・大学院工学研究科・助教  
研究者番号：70735042