

平成 21 年 5 月 27 日現在

研究種目：若手研究 (B)
研究期間：2007～2008
課題番号：19760065
研究課題名 (和文) TEM 内圧縮試験による単結晶微小構造体のサブミクロン寸法効果の解明
研究課題名 (英文) Investigation of size-effect of single crystal by compression test in transmission electron microscopy
研究代表者
澄川 貴志 (SUMIGAWA TAKASHI)
京都大学・工学研究科・講師
研究者番号：80403989

研究成果の概要：サブミクロンサイズの単結晶構造体を作製し、透過型電子顕微鏡の内部でその場観察圧縮試験を行った。降伏に伴う挙動を観察し、転位の増殖前に構造体中を変形帯が進行することを確認した。臨界分解せん断応力は約 300 MPa と、一般的な単結晶のそれよりも大きな値を示した。サブミクロンレベルの構造体では、変形に必要な初期転位が枯渇していることが原因であると考えられる。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	2,600,000	0	2,600,000
2008 年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	210,000	3,510,000

研究分野：材料強度学

科研費の分科・細目：機械工学 機械材料・材料力学

キーワード：寸法効果、単結晶、透過型電子顕微鏡、転位、アルミニウム、降伏応力、圧縮試験、サブミクロン

1. 研究開始当初の背景

単結晶を用いた曲げ変形において、構造体の寸法をマイクロ・ナノサイズまで小さくすると降伏強度が増加する現象が報告されている。曲げ試験では、降伏応力の上昇は変形に対して幾何学的に必要な転位の数と、曲げ変形を受ける構造体内部の急なひずみ勾配とのミスマッチに起因するものとして解釈されている。しかし、均一な変形を受け、ひずみ勾配がない場合の寸法効果については、これまで研究は殆どなされていない。

2. 研究の目的

- (1) サブミクロンスケールの材料に対する圧縮試験手法を開発すること。
- (2) 巨視的降伏現象と転位の運動との関連を明らかにすること。
- (3) 寸法効果のメカニズムを明らかにすること。

3. 研究の方法

- (1) 直径数十 nm の試験片を作製し、透過型電子顕微鏡 (Transmission Electron Microscope: TEM) 内にて圧縮試験を実施する手法を開発する。

- (2) TEMを用いた転位のその場観察を実施し、応力-ひずみ関係と転位の運動との関連について定性的・定量的な議論を行う。
- (3) 降伏に伴う転位の運動と寸法効果との相関について考察する。
- (4) マイクロ・ナノサイズの他材料についても変形試験を実施し、比較及び考察を実施する。

4. 研究成果

(1) 試験片作製と圧縮試験法の開発

図1は、本研究で用いた HT-GLAD (high-temperature glancing angle deposition) 法によるアルミニウムナノコラムの作製方法を示す。金ワイヤの先端に電子ビームを用いてアルミニウム (純度 99.999%) を蒸着する。蒸着の間、ワイヤの温度は $400 \pm 10^\circ\text{C}$ 、チャンバ内の真空度は $6.7 \times 10^{-3} \text{Pa}$ に設定する。図2には、作製したアルミニウムナノコラムの TEM 画像を示す。直径は約 60 nm である。図3は、試験片に荷重を与えるための負荷装置を示す。ピエゾ素子によりワイヤを取り付けたステージが移動し、ナノコラムに荷重を与えることができる。試験は図3に示した負荷装置を透過型電子顕微鏡内に組み込み、その場観察を行いながら実施する。試験は、真空度 $1.5 \times 10^{-5} \text{Pa}$ 、TEM の加速電圧 200 kV の条件下で実施する。

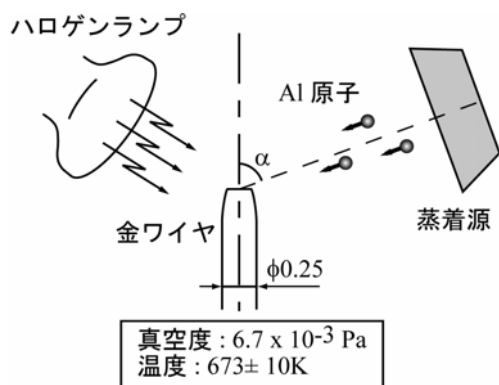


図1 アルミニウムナノコラムの作製方法

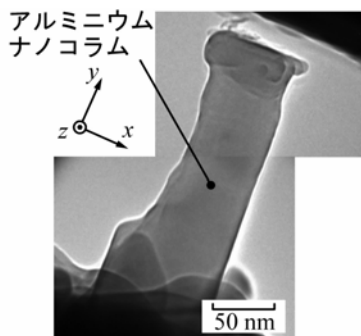


図2 ナノコラムの TEM 画像

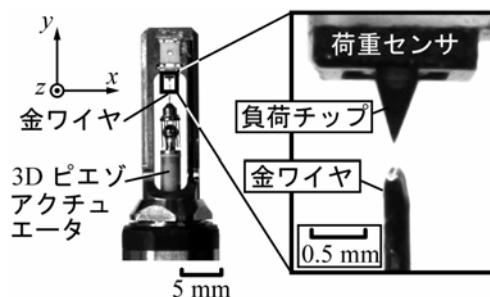


図3 負荷装置

(2) 圧縮試験結果

図4は、実験より得られた荷重-変位曲線を示す。図中の右軸と上軸は、ナノコラムの初期断面積と初期長さを基準とした公称応力と公称ひずみを表している。得られた曲線は、尖った降伏点 (点 B)、容易すべり領域 (点 C ~ 点 G)、加工硬化領域 (点 G ~ 点 I) で特徴付けられている。負荷開始直後から変位は線形増加し、公称応力 750 MPa まで上昇する。その後荷重は急速に減少し、200 MPa から 750 MPa の範囲でのこぎり状にひずみ量は増加する。点 B から点 G におけるひずみの増加量は約 0.25 である。この領域を過ぎると、応力は加工硬化に伴って上昇する。

図5は圧縮試験におけるその場観察写真を示す。A~I の記号は荷重-変位曲線中の記号に対応している。ナノコラムは、曲げを起さず降伏点 (B 点) まで変形する。容易すべり領域 (点 C-G) においては、ナノコラム上部において太さが増加し、その領域はナノコラム下部に向かって進展する様子が見受けられた。点 G まではナノコラム内部に目立った転位の運動は見受けられず、加工硬化領域になると、多くの転位が活動を始め、その後増加を続ける。変形を通してナノコラムに座屈は生じなかった。

ナノコラム軸方向の結晶方位 $\langle 110 \rangle$ を考慮して、降伏点における分解せん断応力は、約 300 MPa と見積もられた。この値は、アルミニウム単結晶バルク材の臨界分解せん断応力 (約 10 MPa) よりも著しく大きい。室温における金属の塑性変形は転位の運動・増殖に起因している。巨視的な降伏現象においては、増殖源における転位の増殖が必要となる。ナノコラムの内部では、その寸法に起因して、初期転位の数、転位の増殖源の数が著しく少ないと考えられる。つまり、ナノコラム内部に存在する初期転位や転位源の数では、塑性変形を開始させるのに十分ではなく、転位を増殖させるためには高い応力が必要となる。このような理由から、ナノコラムでは高い降伏応力が観察されたものと考えられる。

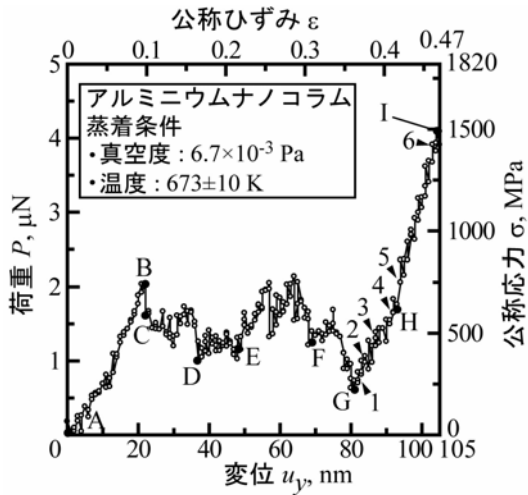


図4 荷重-変位曲線

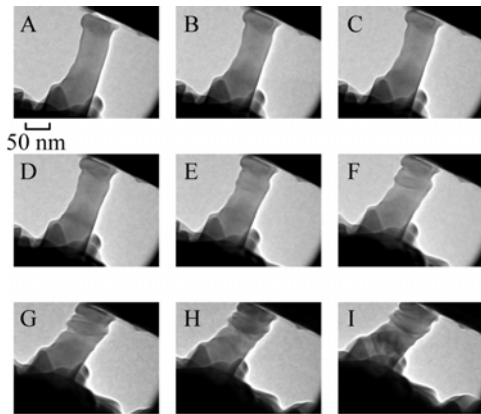


図5 その場観察像

(3) 降伏に伴う転位運動

バルク単結晶の応力-ひずみ曲線中の塑性変形領域は、一般的に容易すべり領域と加工硬化領域に分けられる。負荷方向を $\langle 110 \rangle$ 方向とする面心立方金属では、多重すべりが生じることから、その応力-ひずみ曲線では小さいひずみ量においても加工硬化が生じ、明確な容易すべり領域は現れない。図4では、広範囲にわたる容易すべり領域が現れているおり、これは、加工硬化よりも前にナノコラム中を変形帯が進行したことによるものである。その場観察においては明確な転位の移動は観察されていないことから、バルク材とは異なった挙動を示すことが明らかとなった。これはウィスカーに見られる挙動であり、ナノコラムはウィスカーと同じ挙動を示すことが明らかとなった。変形帯がナノコラム全体を覆った後、転位の移動及び増殖が観察された。点Gを超えると転位は増殖し、変形帯から多くの転位が放

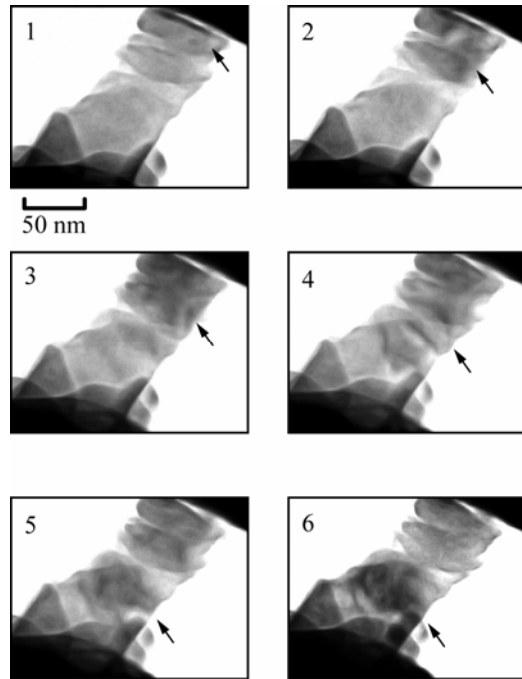


図6 転位の増殖の様子

出される様子が確認された。このとき、転位が絡み合う様子が確認された。転位は、ナノコラム表面の凸凹部から発生しやすいことも明らかになった。以上のように、点G以降の明確な加工硬化は転位の増殖と相互作用によって特徴付けられる。

(4) 他材料との比較

図6は、これまでに報告されてる様々な手法を有する他の材料の臨界分解せん断応力とアルミニウムの理想強度を纏めたものを示す。ナノコラムにおける臨界分解せん断応力は、理想強度の約1/7である。アルミニウムと銅におけるバルク材の臨界せん断応力はほぼ等しいが、直径の減少に伴う降伏応力の上昇は銅に比べると小さい。

更に比較のため、転位運動が困難なセラミック材料 (Ta_2O_5)、両側を硬質層で拘束された20 nm厚さの銅薄膜についても変形試験を実施した。セラミック材料の場合には、寸法の異なる試験間で応力-ひずみ曲線はほぼ一致した。また、銅薄膜では拘束層の影響により拘束層が無いものに比べて降伏応力が上昇することが確認された。これらの結果は、寸法効果に転位運動が影響しており、ナノ構造体中の転位は界面(表面)の影響を強く受けることを示唆している。

直径数十 nm の金属単結晶材料に対する圧縮試験は、現在でも国内外において見受けられない。本研究成果によって初めてナノコラムへの圧縮試験に成功し、その場観察に基づく考察がなされた。今後は力学解析等を用い

たより詳細なメカニズムの解明が期待される。

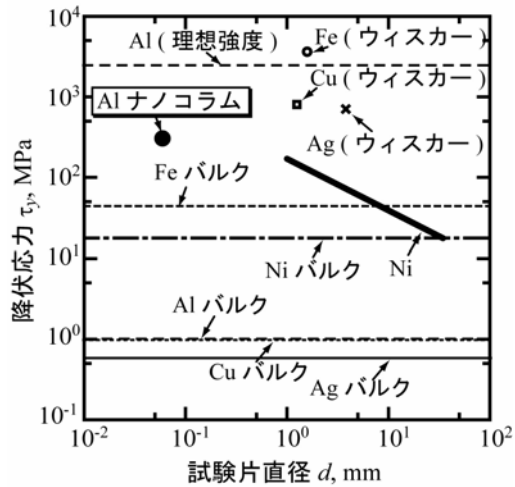


図 6 降伏応力の比較

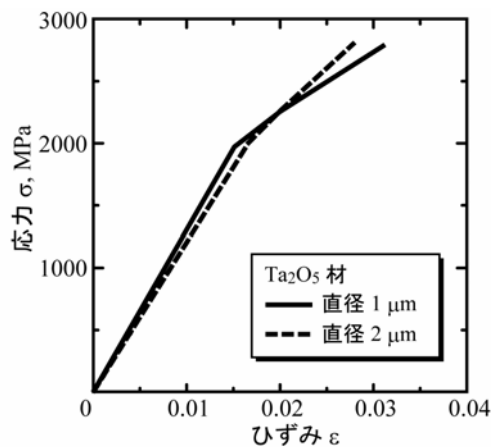


図 7 Ta₂O₅ の応力-ひずみ曲線

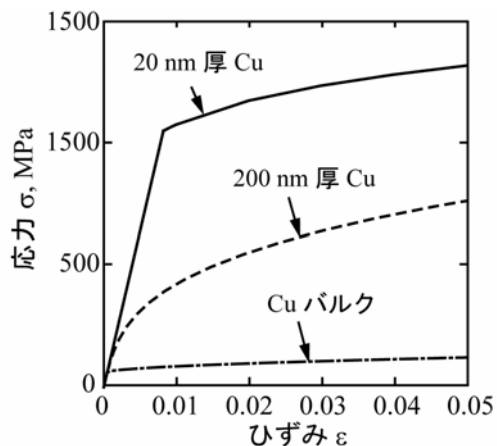


図 8 銅 20 nm 薄膜の応力-ひずみ曲線

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① Takashi Sumigawa, Taisuke Sueda, Yuya Futamura, Motofumi Suzuki and Takayuki Kitamura, "Effect of interface layer consisting of nanosprings on stress field near interface edge", *Engineering Fracture Mechanics*, Vol. 76, pp. 1336-1344 (2009), with peer review
- ② Takashi Sumigawa, Hiroyuki Hirakata, Masaki Takemura, Shohei Matsumoto, Motofumi Suzuki, and Takayuki Kitamura, "Disappearance of Stress Singularity at Interface Edge due to Nanostructured Thin Film", *Engineering Fracture Mechanics*, Vol. 75, pp. 3073-3083(2008), with peer review

[学会発表] (計 5 件)

- ① 大倉康孝、澄川貴志 他、“酸化タンタル薄膜の弾塑性変形特性評価”、日本機械学会 M&M2008 材料力学コンファレンス、2008年9月17日、立命館大学(草津市)
- ② 澄川貴志 他、“ナノらせん要素配列界面層き裂先端における応力場とその破壊基準”、日本機械学会 M&M2008 材料力学コンファレンス、2008年9月16日、立命館大学(草津市)
- ③ 宍戸徹也、高橋可昌、澄川貴志 他、“20 nm 厚 Cu 薄膜の界面端はく離き裂発生クライテリオン”、日本機械学会 M&M2008 材料力学コンファレンス、2008年9月16日、立命館大学(草津市)
- ④ 澄川貴志、井出修平 他、“微小曲げ試験片を用いた Ta₂O₅ 薄膜の変形特性評価”、日本機械学会 日本材料学会 第 57 期通常総会、2008年5月24日、鹿児島大学(鹿児島市)
- ⑤ 末田泰介、澄川貴志 他、“ナノらせん要素配列薄膜端部における破壊特性評価”、日本機械学会 日本材料学会 第 57 期通常総会、2008年5月24日、鹿児島大学(鹿児島市)

[その他]

- (1) ホームページ
<http://cyber.kues.kyoto-u.ac.jp/>
- (2) 期間内の受賞
日本材料学会関西支部長賞

6. 研究組織

(1) 研究代表者

澄川 貴志 (SUMIGAWA TAKASHI)

京都大学・工学研究科・講師

研究者番号：80403989