

機関番号：14401

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2011～2013

課題番号：23686025

研究課題名(和文) ナノ構造界面の時間依存型変形と破壊

研究課題名(英文) Time-dependent deformation and fracture at interfaces of nanostructures

研究代表者

平方 寛之(Hirakata, Hiroyuki)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：40362454

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 20,900,000円、(間接経費) 6,270,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、10 nm オーダーの金属ナノ構造体の界面を対象として、時間依存変形であるクリープによる界面破壊の支配力学を明らかにすることを目的として、斜め蒸着法によりSi基板上に成長させたTi傾斜ナノコラムに対するクリープ実験を行った。Tiナノコラムは、室温下においてクリープ変形し、Si基板との界面で破壊した。実験結果を基にTiナノコラムのクリープを考慮した応力解析を実施した。同様の破断寿命であった応力特異性が異なる2種類の試験片で、破壊が生じた界面端近傍の5 nmの領域で応力場の強さが良く一致した。このことは、ナノスケールの局所応力場がクリープ界面破壊を支配することを示唆している。

研究成果の概要(英文)：The dominant mechanics of creep fracture at interfaces on the nanoscale was evaluated on the basis of creep experiments conducted at room temperature on Ti oblique nanocolumns grown on a Si substrate using glancing angle deposition. The specimens deformed in a time-dependent manner under a constant applied force, and then the Ti nanocolumns fractured at the interface. The local stress distribution along the Ti/Si interface during the creep experiments was analyzed while giving due consideration to the creep of the Ti nanocolumn. The stresses near the interface edge in the region of about 5 nm were very close in the two types of specimens with similar fracture lives although they had different singularities at the edge. This suggested that the creep interfacial fracture was dominated by the local stress field in the nanoscale region.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械材料・材料力学

キーワード：マイクロ材料力学 ナノ構造 クリープ 界面 破壊

1. 研究開始当初の背景

先端電子デバイスやナノ電子機械システム (NEMS) は、多彩な機能を実現するため物理的性質の異なる多種の材料から構成されている。異種材料の組み合わせによって生じる界面は、応力集中が生じるため、優先的に破壊が進行する箇所である。研究代表者はこれまでに、時間に依存しない弾塑性変形を伴うナノ材料の界面強度について、体系的な研究を行ってきた。とくに、マクロな材料について妥当性が検討されてきた連続体力学およびそれに基づく界面端部やき裂先端近傍の応力特異場の強さに着目した破壊力学の寸法的適用限界について検討し、ナノ領域の応力特異場が支配する界面破壊の力学的クライテリオンを明らかにしてきた。

一方、構成要素としての金属の使用や、高温下に晒されるデバイスの使用環境を勘案すると、上記クライテリオンよりもはるかに低い応力下においても、原子拡散に起因する時間依存型変形 (クリープ) が生じ、破壊に至ることが大きな問題である。このため、長期にわたって高い強度・信頼性を確保するには、ナノ材料のクリープ、およびそれに起因する界面破壊に関する基礎的な理解が不可欠である。

ナノ材料の特筆すべき構造的特徴は、寸法の縮小に伴い表面や界面の影響が支配的になることである。原子拡散が支配する時間依存型変形では、高速拡散路である表面や界面の割合が増加することによってクリープ速度が加速することが予測される。ところが、ナノ構造体界面の時間依存型破壊に関する研究は、国内外ともに稀少であった。

2. 研究の目的

本研究では、次世代ナノデバイスの中核を担う寸法が 10 nm オーダーの金属ナノ構造体の界面を対象として、(1) クリープ界面強度実験法を開発するとともに、(2) 変形・破壊機構の解明を通じてクリープ界面破壊の支配力学を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 供試材

図 1 に、供試材の断面 FESEM 像を示す。供試材は、Si 基板、Ti 傾斜ナノコラム (高さ $h = 439 \pm 10$ nm)、および Ti 均質薄膜から構成されており、Ti ナノコラムと Si 基板の界面が評価対象である。Ti ナノコラムと基板の界面部の寸法は約 40 nm であり、Ti ナノコラムの基板法線からの傾斜角は約 48° である。Ti 均質薄膜層は、後述する強度試験における負荷伝達のためのものである。Ti ナノコラムおよび均質薄膜の作製は、電子ビーム蒸着によって行った。蒸着角 (基板法線方向からの角度) $\alpha = 85^\circ$ からの斜め蒸着によってナノ傾斜コラムを作製したのち、蒸着角を $\alpha = 0^\circ$ に変化させ、Ti 均質薄膜を製膜した。

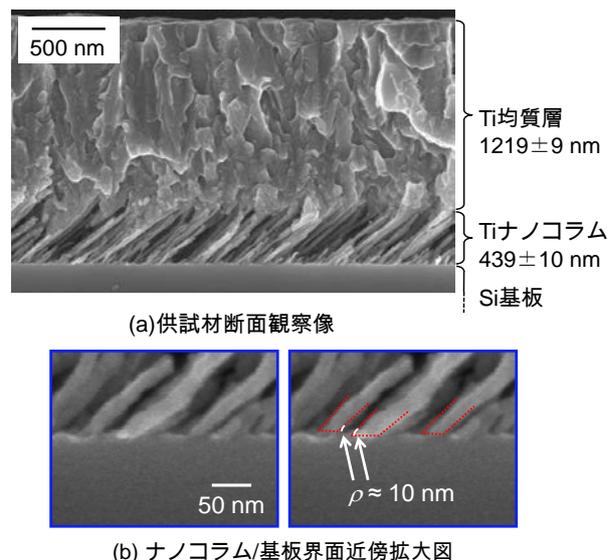


図 1 供試材の FESEM 像

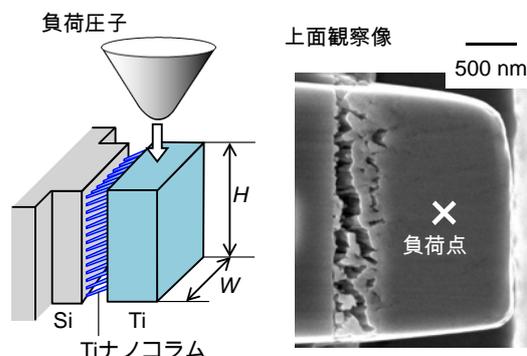


図 2 界面強度評価試験方法

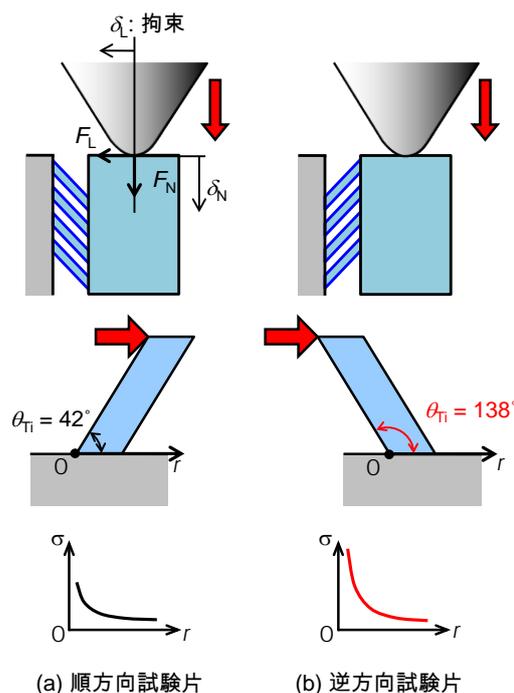


図 3 順方向試験片と逆方向試験片

(2) 実験方法

図2に、界面強度試験の概要を示す。基板、ナノコラム層、および均質薄膜の3層からなるサンドイッチ型の微小試験片をFIB加工によって作製する。均質薄膜層の上面にダイヤモンド圧子を用いて下方へ負荷を与えることによって、ナノコラムと基板の界面にはく離駆動力を負荷する。図3に示すように、ナノコラムは基板法線に対して傾斜した構造を有しており、負荷方向によって高い引張応力が生じる側の界面端角度(θ_{Ti})が異なるため、界面端に生じる応力特異性(応力拡大)が異なる。そこで、要素の傾斜方向に対する負荷方向を変えた強度試験を実施することにより、ナノスケールの局所応力が実際に破壊を支配するかどうかを検討することができる。コラムの傾斜方向と負荷方向が同じである試験片を順方向試験片(図3(a))、逆である試験片を逆方向試験片(図3(b))と称する。図2中に示した試験片寸法 W は $2.4 \sim 2.7 \mu\text{m}$ 、 H は $1.6 \sim 2.3 \mu\text{m}$ である。

試験には、原子間力顕微鏡に圧子に作用する垂直・水平方向の微小荷重(F_N , F_L)および変位(δ_N , δ_L)の測定・制御が可能な力学試験装置(Hysitron社製TriboScope)を取り付けた試験システムを用いた。圧子には、頂角 60° および先端曲率半径約 $1 \mu\text{m}$ のダイヤモンド円錐圧子を用いた。試験は室温下で実施した。ナノスケールの変形を精密に評価するには、熱ドリフトの影響を極力小さくすることが不可欠である。そこで、試験装置全体を、精密空調機を用いた恒温ブース内に設置するとともに、試験片近傍部を断熱チャンバーで囲うことにより、試験中の試験片近傍の温度変化が $\pm 0.015 \text{ K}$ 以内となるように制御した。まず、負荷速度一定($dF_N/dt = 50 \mu\text{N/s}$)の単調増加荷重下における試験を実施し、非時間依存型破壊における破断荷重を評価した。その後、一定荷重下における時間依存型破壊試験を以下の手順で実施した。まず、垂直荷重 F_N を上記破断荷重の $67\% \sim 95\%$ である設定荷重まで負荷速度一定($dF_N/dt = 50 \mu\text{N/s}$)で増加させた。その後、 F_N を一定に制御し、垂直変位(δ_N)の時間変化を評価した。なお、全ての試験において、水平方向の変位を拘束($\delta_L = 0$)した。

4. 研究成果

(1) 単調増加荷重に対する強度

順方向と逆方向試験片ともに、荷重の増加に伴い変位がほぼ線形に増加した後、荷重-変位関係に傾きが低下する非線形性が見られた。その後、TiナノコラムとSi基板の界面で破壊した。破断荷重を試験片の見かけの界面部面積($W \times H$)で除した破壊公称せん断応力 $\tau_C = F_{NC}/WH$ は、順方向で $77.2 \pm 7.6 \text{ MPa}$ (5本)、逆方向で $26.3 \pm 4.7 \text{ MPa}$ (4本)となり、順方向が逆方向の約3倍となった。これは、単調増加荷重に対する界面破壊では、界面端部の応力特異性の高い逆方向の試験片

のほうが、低い荷重であっても界面端部には高い応力が生じるためである。

(2) クリープ界面破壊試験

図4に、単調増加荷重試験における破壊荷重の約79%($F_N = 313 \mu\text{N}$: $\tau_{ap} = F_N/WH = 61.2 \text{ MPa}$)の大きさの一定荷重を負荷した順方向試験片における変位 δ_N と時間 t の関係を示す。図には、白金抵抗体を用いて測定した試験片近傍の温度 T を併せて示す。試験中の温度変化量は $\pm 0.01 \text{ K}$ 以下であり、別途実施した検討によりこの程度の温度変化による熱ドリフトは試験中の変位に比べてほぼ無視できる水準であることを確認している。変位 δ_N は試験開始からの時間 $t = 6.3 \text{ s}$ において設定荷重($F_N = 313 \mu\text{N}$)に到達し、このときの変位 δ_N は 40.4 nm であった。その後、荷重 F_N がほぼ一定であるにもかかわらず、変位 δ_N が時間の経過とともに増加する時間依存型の変形が見られた。時間 $t = 0.2 \text{ ks}$ あたりまで、変位速度が減少する遷移クリープに類似の挙動が見られ、それ以降 $t = 1.66 \text{ ks}$ あたりまで、変位速度がほぼ一定の定常クリープ域が見られた。その後、変位速度は加速し、 $t = 1.67 \text{ ks}$ において試験片が破断した。試験前後のFESEM観察像を図5に示す。大部分のTiナノコラムはSi基板との界面もしくはその極近傍で破壊していた。他の負荷荷重および逆方向の試験片においても定性的に同様な挙動を示した。

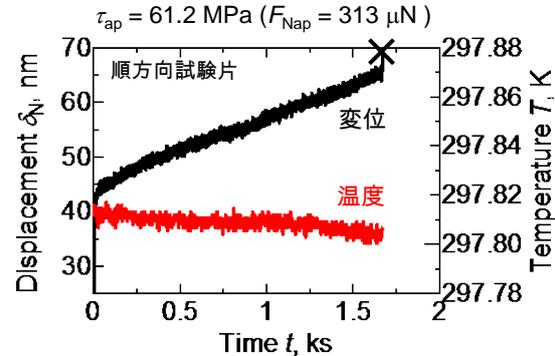


図4 クリープ試験結果(順方向試験片)

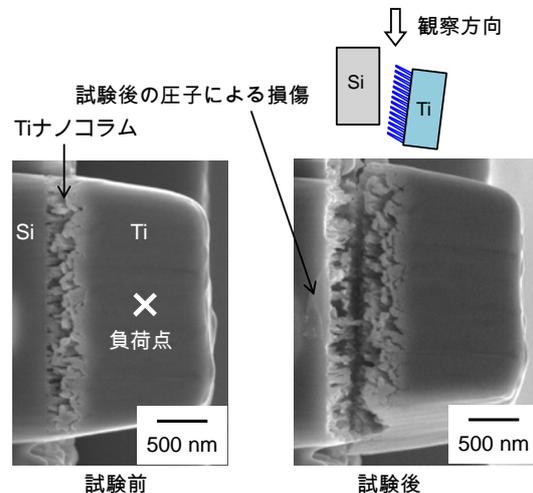


図5 試験前後のFESEM観察像

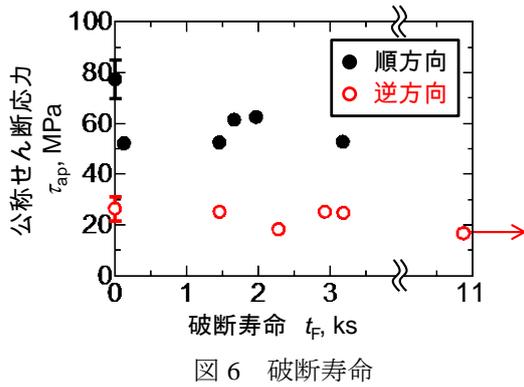


図6 破断寿命

図6に破断寿命 t_F と公称せん断応力 τ_{ap} ($= F_N/WH$) の関係を示す。図には、単調増加荷重に対する強度 τ_c の平均値と標準偏差を縦軸上に示している。順方向と逆方向の試験片ともに、単調増加荷重に対する強度 τ_c 以下の負荷応力においてクリープ破壊が生じた。順方向試験片では、 $\tau_{ap} = 52\text{--}62$ MPa の応力に対して破断寿命 t_F が $0.1\text{--}3.2$ ks であった。一方、逆方向試験の破断寿命 t_F は、 10.9 ks で破断しなかった一つの試験片を除くと $1.5\text{--}3.2$ ks であり、順方向と同程度のオーダーであった。逆方向試験片の負荷応力 τ_{ap} ($= 18\text{--}25$ MPa) は順方向の τ_{ap} の ($= 52\text{--}62$ MPa) の半分以下である。図3に示したように、逆方向試験片の界面端応力特異性は順方向よりも大きいため、逆方向試験片では小さな公称応力 τ_{ap} で界面端には高い応力が負荷される。上記の結果は、ナノスケールの界面端の応力拡大が、Ti ナノコラムと Si 基板のクリープによる界面破壊に大きく関与することを示唆している。

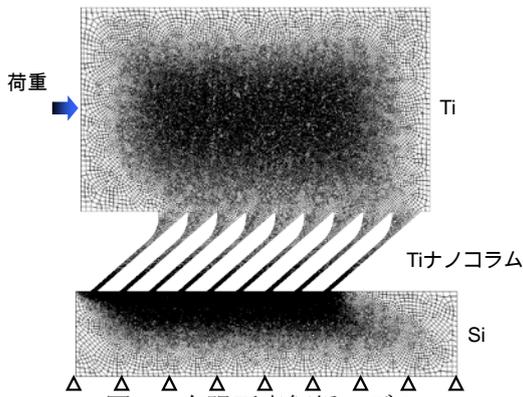


図7 有限要素解析モデル

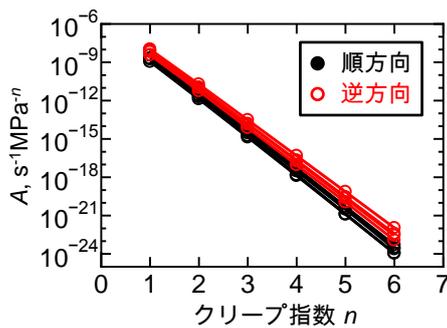


図8 クリープ特性の推定

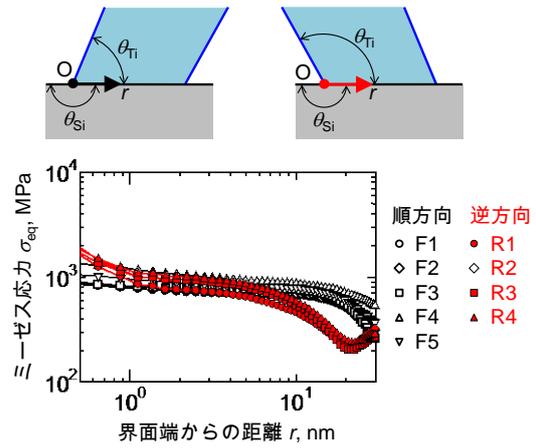


図9 界面上の応力分布

(3) クリープ界面破壊の支配力学

界面端部の特異応力場がナノコラムのクリープ界面破壊に及ぼす影響を検討するため、Ti ナノコラムのクリープを考慮した有限要素法応力解析を行った。Ti ナノコラムの変形が Si 基板と Ti 均質層に拘束される試験片構造を考慮して平面ひずみを仮定した。Ti は室温クリープを示すことが知られており、Si は室温下ではクリープを示さないため、Ti を(1)式で表されるべき乗則クリープに従う変形体であると仮定し、Si を線形弾性体とした。

$$\dot{\epsilon}_{eq} = A \sigma_{eq}^n \quad (1)$$

ここで、 $\dot{\epsilon}_{eq}$ と σ_{eq} はミーゼスの相当ひずみ速度と相当応力である。材料定数 A と n は、クリープ実験により得られた変位速度を再現するように後述する方法で決定した。ヤング率とポアソン比は、それぞれ $E = 106$ GPa, $\nu = 0.34$ (Ti)、 $E = 130$ GPa, $\nu = 0.28$ (Si) とした。図7に解析モデルを示す。まず弾性解析を実施し、クリープ試験において設定荷重に到達した際の変位 δ_N を負荷点に課し、その際の反力の変位 δ_N を負荷荷重として一定荷重下のクリープ解析を実施した。

Ti ナノコラムの定常クリープ特性 A と n を以下の方法により推定した。クリープ指数 $n = 1, 2, \dots, 6$ に対して、各試験片に対するクリープ実験で得た変位速度 ($d\delta_N/dt$) を最も良く再現する A の値をパラメトリック解析により決定した。図8に得られた結果をまとめて示す。図には全試験片に対して解析した結果を併せて示している。 n の低下にともない A の対数線図上のばらつきは減少し、 $n = 1$ で最小となった。したがって、本材のクリープ指数を $n = 1$ と推定し、全試験片の $n = 1$ に対する A の幾何平均より $A = 4.0 \times 10^{-9} \text{ s}^{-1} \text{ MPa}^{-1}$ と推定した。

順方向と逆方向試験片ともに、負荷圧子に最も近いナノコラムの応力が最大となったため、以降の議論では最も端部のナノコラムの応力場を検討した。Ti ナノコラムと Si 基板界面上の応力場は時間の経過とともに変化し、界面端近傍の応力は緩和したが、試験時間中の緩和量はわずかであったため、破断時

間 t_F における応力場でクリープ試験中の応力場をおおよそ特徴づけることができる。図 9 は、破断時間 t_F における Ti ナノコラムと Si 基板の界面上のミーゼス応力 σ_{eq} の分布を示す。図には、3.2 ks までに破断したすべての試験の結果を併せて示す。界面端からの距離が $r = 1-5$ nm の領域で、すべての試験の結果が良く一致している。一方、その遠方の領域では順方向と逆方向の試験片の応力分布が大きく異なっている。順方向と逆方向の試験片は同一の供試材から作製したものであるため、Ti/Si 界面の本質的な強度は同じである。また、これらの試験片は同じオーダーの破断寿命 ($t_F = 0.1-3.2$ ks) を示した。これらの事実は、本材のクリープ界面破壊は、界面端形状や負荷方向によらず界面端近傍の約 5 nm の領域の応力場に支配されていることを示唆している。

これまでに単調増加荷重に対する単純な破壊に関しては、界面端近傍のナノスケールの特異応力場が破壊強度を支配することが明らかになっている。本研究により、時間依存型変形であるクリープによる破壊においても、ナノスケールの応力集中場が大きく関与することを示す結果が得られた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

① Hiroyuki Hirakata, Yoshiaki Tsutsumi, Kohji Minoshima, Creep Fracture at Interfaces of Titanium Nanocolumns on Silicon Substrate, Engineering Fracture Mechanics, Vol.117, 2014, 71-83, 査読有

DOI:

<http://dx.doi.org/10.1016/j.engfracmech.2014.01.008>

② Hiroyuki Hirakata, Naomichi Fukuhara, Shoichi Ajioka, Akio Yonezu, Masayuki Sakihara, Kohji Minoshima, The effect of thickness on steady state creep properties of freestanding aluminum nano-films, Acta Materialia, Vol.60, 2012, 4438-4447, 査読有

DOI: 10.1016/j.actamat.2012.04.036

③ Hiroyuki Hirakata, Taku Nishihira, Akio Yonezu, Kohji Minoshima, Interface Strength of Structured Nanocolumns Grown by Glancing Angle Deposition, Engineering Fracture Mechanics, Vol.78, 2011, 2800-2808, 査読有

DOI: 10.1016/j.engfracmech.2011.08.005

〔学会発表〕(計 13 件)

① 田上孟史, 平方寛之, 箕島弘二, 基板上に成長させたナノコラムのクリープ特性, 日本機械学会関西支部第 89 期定時総会講演会, 2014 年 3 月 18-19 日, 大阪府立大学

② 鹿嶋友樹, 平方寛之, 崎原雅之, 箕島弘二, 自立アルミニウムナノ薄膜のクリープき裂

伝ば特性, 日本機械学会関西支部第 89 期定時総会講演会, 2014 年 3 月 18-19 日, 大阪府立大学

③ 田上孟史, 平方寛之, 箕島弘二, 基板上に成長させたナノコラムのクリープ強度, 日本材料学会第 8 回若手シンポジウム, 2013 年 12 月 6-7 日, 大阪府東大阪市

④ 田上孟史, 平方寛之, 箕島弘二, 基板上に成長させたナノコラムのクリープ界面強度, 第 57 回日本学術会議材料工学連合講演会, 2013 年 11 月 25-26 日, 京都テルサ

⑤ 平方寛之, 田上孟史, 堤芳明, 箕島弘二, 基板上に成長させたチタンナノコラムのクリープ変形と界面破壊, 日本機械学会 M&M2013 材料力学カンファレンス, 2013 年 10 月 12-14 日, 岐阜大学

⑥ 竹内恭介, 平方寛之, 箕島弘二, ナノ形状制御によるチタンナノコラムの強度評価, 日本機械学会 M&M2013 材料力学カンファレンス, 2013 年 10 月 12-14 日, 岐阜大学

⑦ 堤芳明, 平方寛之, 箕島弘二, チタンナノコラムのクリープ界面破壊特性, 日本機械学会関西支部第 88 期定時総会講演会, 2013 年 3 月 16 日, 大阪工業大学

⑧ 堤芳明, 平方寛之, 箕島弘二, チタンナノコラム構造の時間依存型界面破壊, 第 56 回日本学術会議材料工学連合講演会, 2012 年 10 月 30 日, 京都テルサ

⑨ Hiroyuki Hirakata, Naomichi Fukuhara, Akio Yonezu, Kohji Minoshima, Size Effects on Creep Property in Aluminum Nano-films, Asia Pacific Conference on Fracture and Strength - Mechanics and Materials (APCFS-MM 2012), 2012 年 5 月 15 日, Busan, Korea

⑩ 福原直道, 平方寛之, 米津明生, 崎原雅之, 箕島弘二, 自立 Al ナノ薄膜の定常クリープ特性に及ぼすサイズ効果, 日本機械学会関西支部第 87 期定時総会講演会, 2012 年 3 月 17 日, 関西大学

⑪ 松永健史, 平方寛之, 米津明生, 箕島弘二, 動的斜め蒸着法により作製した Ti ナノ構造要素の塑性変形特性, 日本機械学会関西支部第 87 期定時総会講演会, 2012 年 3 月 17 日, 関西大学

⑫ Hiroyuki Hirakata, Taku Nishihira, Akio Yonezu, Kohji Minoshima, Interface Fracture of Titanium Oblique Nanocolumns Grown by Glancing Angle Deposition, International Conference on Advanced Technology in Experimental Mechanics 2011 (ATEM'11), 2011

年 9 月 21 日, 神戸国際会議場

⑬ Hiroyuki Hirakata, Taku Nishihira, Akio Yonezu, Kohji Minoshima, Interface Fracture Mechanics of Nanoscale Components on A Substrate, The Nineteenth Annual International Conference on Composites or Nano Engineering (ICCE-19), 2011 年 7 月 28 日, 上海 (中国)

[その他]

ホームページ

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

6. 研究組織

(1) 研究代表者

平方 寛之 (HIRAKATA, Hiroyuki)

大阪大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号: 40362454