

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 25 日現在

機関番号：17701

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K21250

研究課題名(和文)4D-HVEM-tomograph観察による亀裂先端転位群増殖過程の解明

研究課題名(英文)Investigation of multiplication process of crack tip dislocations by 4D-HVEM-tomograph

研究代表者

定松 直 (SADAMATSU, Sunao)

鹿児島大学・理工学域工学系・助教

研究者番号：10709554

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：シリコンにおける亀裂先端に発生した転位を広域に観察することで、従来の観察で見落としていた亀裂先端から離れた転位の応力遮蔽効果について検討を行った。その結果、亀裂先端から離れて存在する転位は亀裂先端近傍の転位とは異なる性格を持っていることが分かった。これらの転位による局部応力拡大係数を計算したところ、亀裂先端に存在する転位のモードIIとモードIIIの応力拡大係数を打ち消す転位であることが分かった。以上のことから、亀裂先端にはモードの応力がかかっており、そこで発生、増殖する転位はこのモードを遮蔽し、その他のモードは互いにキャンセルするように発生、増殖しているということが分かった。

研究成果の概要(英文)：We investigated the stress shielding effect of dislocations away from the crack tip by observing dislocation generated in the tip of crack in silicon in a wide area. The result shows that the dislocations were found to have a different character from the dislocations near the crack tip. The local stress intensity factor by these dislocations was calculated and found to be a dislocation that cancels the stress intensity factor of mode II and mode III of dislocation existing at the crack tip. Therefore, It is found that the stress is applied, the dislocation occurring and increasing there shields this mode, and the other modes are generated and multiplied so as to cancel each other.

研究分野：材料工学

キーワード：脆性破壊 脆性 - 延性遷移 転位 亀裂 電子顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

BCC 金属や共有結合結晶などのパイエルスポテンシャル(転位運動の単範囲障壁)が高い結晶材料は低温でその破壊靱性値が著しく減少する脆性-延性遷移挙動(Brittle-to-Ductile Transition:BDT)を示す。

この挙動に起因する社会問題として、古くは船の接合部における脆性破壊事故、現代では原子炉圧力容器隔壁脆化の問題などがあり、過去から現在におけるまでその例は枚挙に暇がない。これらの問題を解決するためには BDT 挙動の根本的な理解が必須である。BDT 挙動を支配しているメカニズムに関する研究は 1975 年、St. Jhon のシリコン単結晶を用いた仕事を契機に盛んに行われるようになり、1978 年に R. Thomson によって「転位による亀裂先端での応力遮蔽効果」が提唱された。それから約 30 年が過ぎた現在、亀裂先端における応力遮蔽効果は理論シミュレーションでは再現されるようになってきたが、実験的な転位増殖過程の解明にはほとんど至っていないのが現状である。なぜ未だに亀裂先端での転位増殖過程が未解明であるか?理由は大きく 2 つ挙げられる。

1) 一本一本の転位を分解し観察できる手法が透過型電子顕微鏡法に限られ、汎用電子顕微鏡では高々数百 nm の厚さの試料しか観察できないため、十分にバルク情報を反映した観察ができていないこと。

2) 脆性-延性遷移温度において転位増殖が爆発的に起こるが、その転位の増殖を時分割で、なおかつ、3 次元的に観察する手法が確立されていないこと。

本研究では、これらの問題を解決し、亀裂先端における転位の増殖過程を明らかにする。

2. 研究の目的

本研究ではシリコン単結晶を用い、従来の転位 3 次元構造解析法である TEM-tomography を「より厚い膜の試料」、「より広域な視野での観察」、「時間分割」で行う手法を確立し、結晶材料脆化現象の本質に直結する「亀裂先端転位の増殖過程」を 4D 観察すると共に、そのモデル化に挑む。

3. 研究の方法

(1) TEM 試料の作成方法

供試材にはオリエンテーションフラット [110]盤面が[001]の単結晶シリコンウェハを用いる。以下の手順によって、TEM 用の試料を作成する。

①シリコンウェハからステップカッターを用いて、35mm×35mm の試料片を切り出す。

②切り出した試料片にビッカース硬度計を用いて、圧痕を付与し、亀裂を導入する。

③試料を加熱し、残留応力を駆動力とし、亀裂先端に転位を発生させる。

④試験片を機械研磨により、約 20 μ m の厚さに研磨する。

⑤試料をピンセットにより、割り出し、割り

出した試料をビオデンメッシュセメントにより Mo 単孔グリッドに貼り付ける。

⑥イオンミリング装置を用いて、亀裂先端部をさらに薄膜化する。

(2) 超高压電子顕微鏡観察

以上の手順により作成した試料を九州大学所有の超高压電子顕微鏡 JEM-1300NEF を用いて観察を行う。

観察では、TEM-Tomograph 法を用いるため、連続的な傾斜観察において常に一定の二波励起条件を満足するように試料をセットする。

今回は厚膜の観察を行うため、エネルギーフィルタ法を導入し、結像に用いる余分なエネルギーの電子をカットすることで、厚膜試料でも十分にシャープな像を得た。

4. 研究成果

(1) 連続傾斜観察結果

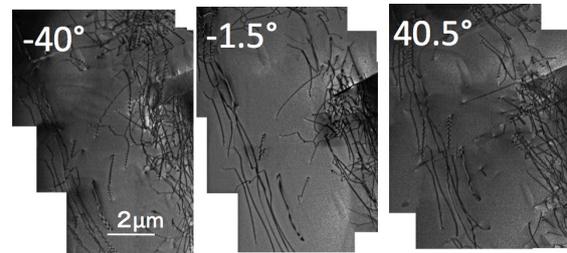


図1 連続傾斜像のスナップショット

図1に連続傾斜像の一部を示す。試料を約2度毎に傾斜させ、撮像を行い、-40度~+40.5度の範囲で観察を行った。このように連続的に傾斜して観察を行うことで、転位の3次元構造が把握できる。この観察結果より、亀裂の近傍に転位が集中していることが確認される。また、亀裂から遠く離れた領域にも転位が存在しており、これらは先に発生した転位が亀裂遠方まで運動したものと考えられる。

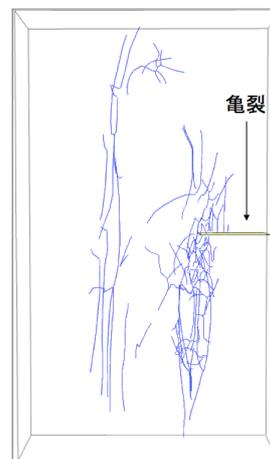


図2 亀裂先端近傍における
転位の3次元モデル

(2) 転位の3次元モデル

図2に連続傾斜像より作成した転位の3次元モデルを示す。従来は見落としていた亀裂から遠く離れた領域にも亀裂先端から発生したと見られる転位が存在していることがわかった。

(3) すべり面の解析結果

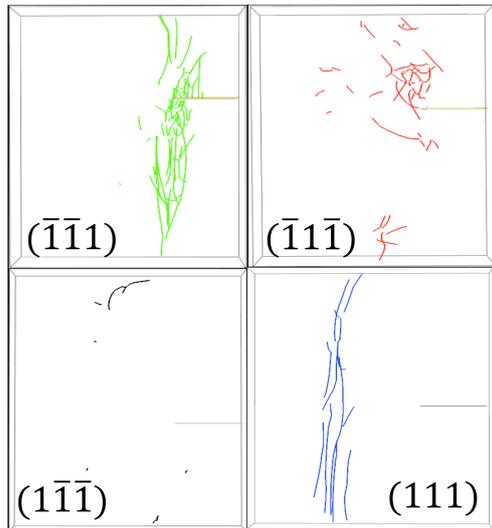


図3 すべり面の解析結果

図3にすべり面の解析結果を示す。この結果より、亀裂先端に近い転位の殆どは(111)面もしくは(111)面上の転位であるのに対して、亀裂から遠く離れた転位は(111)面上に存在していることが明らかになった。

(4) 亀裂遠方にある転位と近傍にある転位それぞれの応力遮蔽効果

転位による応力遮蔽効果を検討するために、それぞれの転位群について、転位による局部応力拡大係数を計算した結果を次に示す。亀裂先端においては、応力が無限大に発散してしまうため、応力の発散度合いを表す応力拡大係数にて破壊の議論を行う。脆性的破壊は、亀裂先端の応力拡大係数、 K_{IC} が破壊靱性値に達した時に起こる。転位は応力場を持っており、その転位の応力場による亀裂先端での応力拡大係数を計算することで、発生している転位が破壊靱性値を上昇させるものかどうかを確認できる。ModeIに関して言えば、転位による応力拡大係数の値が負になっているものは亀裂を開こうとする応力を緩和する遮蔽転位であるといえる。

図4にそれぞれの計算結果を示す。亀裂にかかる応力状態は開口型のModeI、面内せん断型のModeII、面外せん断型のModeIIIの3Modeがあり、すべての応力状態はこの3Modeの足し合わせによって表現することが出来る。上段が亀裂遠方転位、下段が、亀裂

近傍転位の計算結果である。

グラフのピンク色で示す部分が亀裂先端の

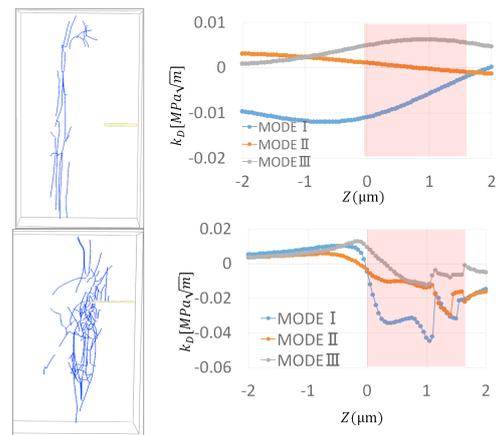


図4 転位による局部応力拡大係数

座標と対応している。この結果を見ると、どちらの転位も主にModeIの値が負になっていることから、亀裂を開こうとするModeIの応力をこれらの転位が緩和していることが分かる。また、遠方の転位でも遮蔽効果を持っていることも分かった。

ModeI以外のModeに着目すると、亀裂遠方の転位と、亀裂近傍の転位のModeIIが逆転していることが分かる。これは、転位はModeIを主に遮蔽しつつも、その他のModeは遮蔽する必要が無いため、発生する転位が互いにModeI以外のModeを打ち消し合うように発生しているものと考えられる。つまり、今回観察した亀裂先端近傍の転位のすべり系を決定しているのは、先に生じた亀裂先端から遠く離れた転位であると言える。このことから、亀裂先端近傍の転位観察においては、従来見逃していた、亀裂先端から離れた転位の解析も重要であり、すべての転位を解析することで、その増殖プロセスが明らかになると言える。

また、遠く離れた転位は(111)面という亀裂先端近傍に発生している転位のすべり系とは違うすべり系を有していると述べたが、この原因は亀裂先端近傍の応力状態にあると考えられる。亀裂先端近傍の応力状態を計算してみると、亀裂近傍に発生しているすべり系の分解せん断応力よりも、亀裂遠方にある転位の持つすべり系の分解せん断応力が高いことがわかった。このことから、遠方に存在している(111)の転位群は、もともとは亀裂先端で発生した(111)面もしくは(111)面の転位が交差迂りをしたものであると推測できた。

(4) 亀裂先端以外の転位源

亀裂先端のみが転位源になるだけでは転位の増殖速度に限界があり、急峻な脆性-延性遷移挙動は起こりえない。そこで、亀裂先端以外の転位源の存在が示唆される。

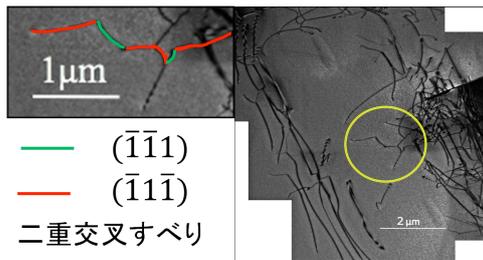


図5 転位反応による転位源生成

図5に今回観察した転位群の中で転位反応によって、そのすべり面が段差的に変わっている箇所の解析結果を示す。

このような転位構造は二重交差り機構と呼ばれ、図左の真ん中赤色で示された転位セグメントが、フランクリード源として働くことが知られている。このように、転位増殖初期段階から、転位反応により、亀裂先端以外の転位源が存在していることが明らかとなった。このような亀裂先端以外の転位源の存在が、さらに転位増殖が進むにつれ増えることで、転位の爆発的な増殖を生み、爆発的に増殖した転位の応力遮蔽効果により、脆性-延性遷移挙動が引き起こされるものと考えられる。

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)

[学会発表] (計 2件)

- ① 山崎 俊二, 定松 直
超高压電子顕微鏡を用いたSi単結晶中亀裂先端転位群の三次元構造解析, 日本金属学会, 金属学会 2017年秋季講演大会, 2017年
- ② 山崎 俊二, 定松 直
HVEMによるSi単結晶中の亀裂先端転位群の三次元構造解析, 日本金属学会, 平成29年度 合同学術講演大会, 2017年

6. 研究組織

(1)研究代表者

定松 直 (SADAMATSU Sunao)
鹿児島大学・理工学域工学系・助教
研究者番号: 10709554

(4)研究協力者

山崎 俊二 (YAMAZAKI Syunji)