

令和 6 年 5 月 30 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01211

研究課題名（和文）変形・破壊素過程ナノ観察に基づく微小金属材料の破壊強度発現機構の解明

研究課題名（英文）Elucidation of strengthening mechanisms of small-scale metallic materials based on nanoscopic observation of deformation and fracture processes

研究代表者

近藤 俊之（KONDO, Toshiyuki）

九州大学・工学研究院・准教授

研究者番号：70735042

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,800,000円

研究成果の概要（和文）：微小金属材料の巨視的な変形・破壊の機構・強度と、材料内部の損傷の初生・発達過程を含めた微視的なスケールにおける変形・破壊過程との対応関係の解明を目的として、厚さがサブ μm オーダーの多結晶銅薄膜に対するその場ナノ観察引張・破壊じん性・疲労き裂進展試験を実施した。多結晶銅薄膜の塑性変形抵抗は膜厚に加えて結晶粒径にも依存し、かつ膜厚に応じて結晶粒界強化の傾向が異なった。また、き裂前方の微視的変形・破壊過程は微視組織に依存し、これに起因して巨視的なき裂発生強度・き裂進展特性に結晶粒径の影響が現れることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

材料の微視組織は変形・破壊の微視的過程と強度に強く影響を及ぼし、これが巨視的スケールにまで発達することで強度が発現する。しかし、微小金属材料においては変形・破壊の微視的過程そのものが解明されておらず、微小金属材料における強度の発現機構の理解は不十分である。本研究の成果は薄膜材料における変形・破壊の微視的過程を明らかにし、巨視的強度の発現機構について新たな知見を与えるものである。これらの知見は、微小金属材料の強度を確保するための材料設計指針を提供するとともに、微小金属材料を部材として用いるマイクロ・ナノデバイスや電子機器の強度設計基準を提供するものであり、学術的にも工業的にも重要なものである。

研究成果の概要（英文）：To clarify the correspondence between the macroscopic and microscopic mechanisms of deformation and fracture and strength of small-scale metallic materials, tensile, fracture toughness, and fatigue crack propagation experiments were conducted on submicrometer-thick freestanding copper thin films. The resistance to plastic deformation of the polycrystalline copper thin films depended on grain size as well as film thickness, and showed a tendency for grain boundary strengthening that varied with film thickness. The microscopic deformation and fracture processes in front of the crack depended on the microstructure, which in turn affected the macroscopic crack initiation strength and crack propagation properties.

研究分野：材料強度学

キーワード：材料強度学 ナノ材料 薄膜 塑性変形 破壊

1. 研究開始当初の背景

寸法が数 μm ~nm オーダーの微小金属材料は、転位の生成・増殖に対して表面の影響が増大することでバルク材料とは異なる塑性変形機構・特性を示し、またそれらに寸法依存性が現れる。ここで、材料の破壊は塑性変形を伴うため、微小金属材料に特有の塑性変形機構・特性は破壊の機構・強度にも影響を及ぼすと考えられる。しかし、微小金属材料が強度を発現する根源的な機構の解明には至っていない。これは、微小金属材料の巨視的な変形・破壊に対して、その素過程となる微視的なスケールにおける変形・破壊過程との対応関係が未解明であることに因る。

2. 研究の目的

本研究は、寸法がサブ μm オーダーとなる微小金属材料の一種である多結晶金属薄膜の変形・破壊の巨視的・微視的過程とその強度特性を明らかにして、微小金属材料の破壊機構と強度の発現機構を解明することを目的とする。

3. 研究の方法

膜厚がサブ μm オーダーの銅薄膜を製膜基板から取り外す(自立化する)ことで、基板の影響を排除して薄膜そのものの変形・破壊の機構と特性を評価できる自立薄膜試験片を作製した。さらに、結晶粒径が異なる薄膜を作製して、巨視的・微視的な変形・破壊の機構と特性に及ぼす微視組織の影響を検討した。

薄膜の巨視的な変形・破壊過程と強度特性のために、平滑材の引張試験による一様応力場に対する変形と、き裂材の破壊じん性試験・疲労き裂進展試験による局所力学場に対する変形・破壊について、電界放射走査型電子顕微鏡 (FESEM) その場観察力学試験を実施した。さらに、電子後方散乱回折 (EBSD) 解析によって微視組織を特定して微視的な変形・破壊と微視組織の対応を検討・考察し、加えて、その場 FESEM 観察像に対してデジタル画像相関 (DIC) 法を適用して微視的な変形・ひずみを定量評価した。以上によって明らかにした巨視的強度特性と微視的変形・破壊過程を対応付けることで、薄膜における強度の発現機構について考察した。

4. 研究成果

(1) 自立銅薄膜の塑性変形特性に及ぼす結晶粒径効果と膜厚効果

膜厚が約 500 nm の自立多結晶銅薄膜に対する引張試験で評価した降伏応力の結晶粒径依存性を図 1 に示す。図 1(a)のように、面内寸法が数 μm の短冊形状の微小試験片を大面積自立薄膜から集束イオンビーム (FIB) 加工で切り出し、試験片の両端をそれぞれアクチュエーター先端と荷重センサー先端に固定して単軸引張試験を実施し、応力-ひずみ関係を求めて降伏応力を評価した。銅薄膜の降伏応力 σ_y と結晶粒径 d の関係 ($\sigma_y-d^{1/2}$ 関係, Hall-Petch 関係)を図 1(b)に示し、銅バルク材の結果^①を併せて示している。膜厚が約 500 nm の自立銅薄膜の Hall-Petch 関係の傾きは銅バルク材とおおよそ一致しており、また銅薄膜の降伏応力は、評価した全ての結晶粒径において銅バルク材に比べて大きくなった。この結果は、膜厚が約 500 nm の自立多結晶銅薄膜における結晶粒界による強化(結晶粒微細化強化)の寄与は銅バルク材と同程度であり、寸法が約 500 nm まで小さくなくても結晶粒界が転位の運動に対する障害となっていることを示唆している。一方、単結晶微小金属材料では寸法が小さくなるほど降伏応力が増大する寸法効果^②が報告されていることから、結晶粒界による強化が寄与しない結晶粒内の降伏応力が銅バルク材に比べて高くなったことで、Hall-Petch 関係上で銅薄膜が銅バルク材に比べて高い降伏応力を示したと考えられる。

つぎに、膜厚が小さい約 100 nm 厚と約 40 nm 厚の銅薄膜の降伏応力に及ぼす結晶粒径の影響

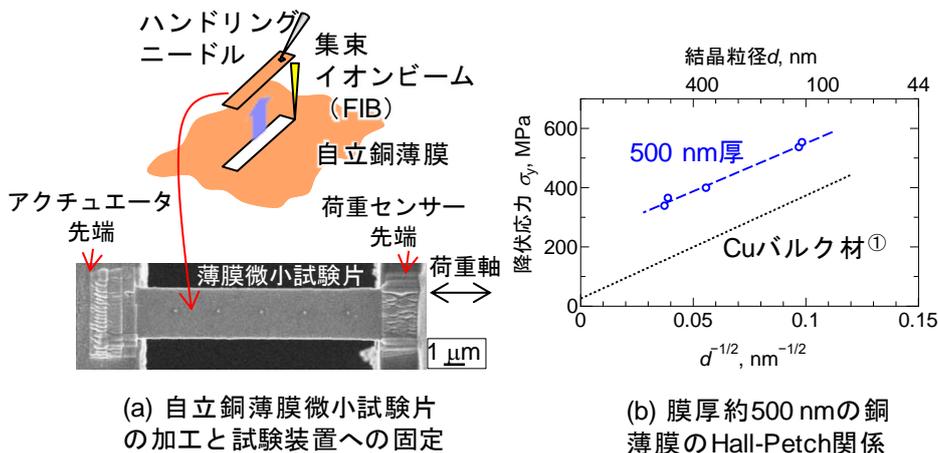


図1 自立銅薄膜微小試験片の引張試験による降伏応力の結晶粒径依存性評価。

を検討した結果、いずれの膜厚においても Hall-Petch 関係の傾きは銅バルク材および 500 nm 厚薄膜とは異なった。この結果は、膜厚の減少とともに転位の運動に対する結晶粒界の力学的役割が変化することを示唆していると考えられる。これらの成果は国際誌に投稿準備中である。

(2) 自立銅薄膜のき裂発生・進展の微視的過程と強度特性に及ぼす結晶粒径効果と膜厚効果

膜厚が約 500 nm で結晶粒径が数百 nm の多結晶銅薄膜に対するその場 FESEM 観察破壊じん性試験を実施した。切欠き先端位置でのき裂開口量 (COD) とき裂進展量 Δa の関係の一例と、各測定点 A~E におけるその場 FESEM 像を図 2 に示す。無負荷時 (点 A) から引張荷重を負荷すると、切欠き前方にすべり線が生じるとともに切欠き先端が鈍化し (点 B)、点 B と C の間で切欠き先端からき裂が発生した。さらに、き裂先端前方では大きく変形して薄膜が薄くなり、周囲に比べて白く見える部分が見られた。その後は点 D の FESEM 像に示すように、これらの強変形部でき裂が発生し、それらが主き裂と合体することで、点 E の FESEM 像に示すようにき裂が進展した。その後もき裂は安定進展を続けたのち、最終的に試験片は不安定破壊した。

図 2 の C における FESEM 像に対して DIC 法を適用し、切欠き前方の引張軸方向のひずみ分布を算出した結果を図 3 に示す。併せて、試験前に EBSD 解析で取得した切欠き前方の結晶方位分布図とき裂進展経路をひずみ分布図と対応させて示している。結晶方位分布図中の黒線は結晶粒界である。切欠き先端からのき裂発生は一つの結晶粒内で生じており、この粒内には高いひずみが生じている。その前方には、幅が 1 μm 程度の高ひずみ領域が帯状に形成されていた。高ひずみ領域の内部では、切欠き先端から離れた位置に、周囲に比べてひずみが大きい箇所が複数生じていた。これらの位置を結晶方位分布図と対照すると、図中に両矢印で示すように、結晶粒界の位置とおおよそ対応していた。図 2 の C~E の観察像と比較すると、高ひずみ領域に沿っ

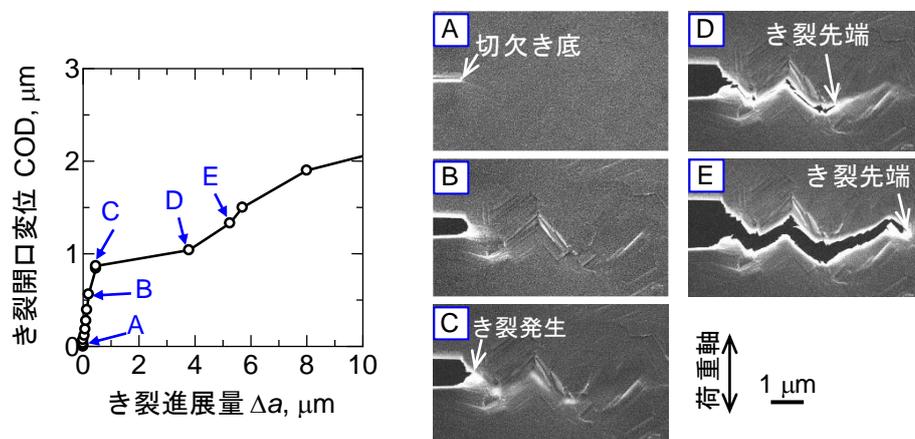


図2 自立銅薄膜の破壊じん性試験によるき裂発生強度・進展特性の評価とき裂進展の微視的過程の観察。

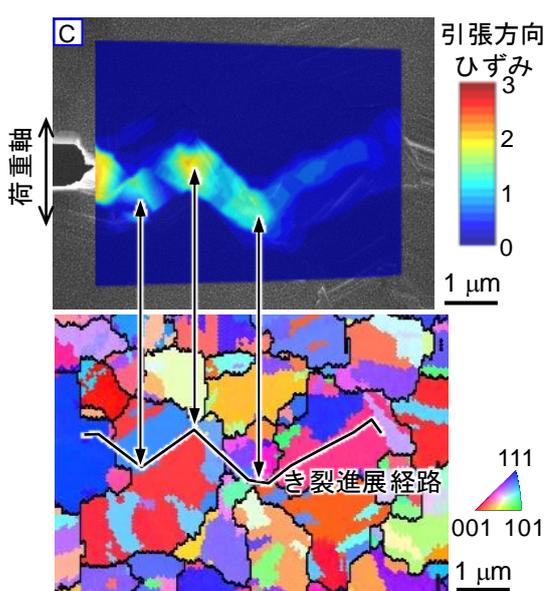


図3 膜厚約 500 nm の自立銅薄膜のき裂発生・進展経路のひずみの定量化と微視組織の対応。

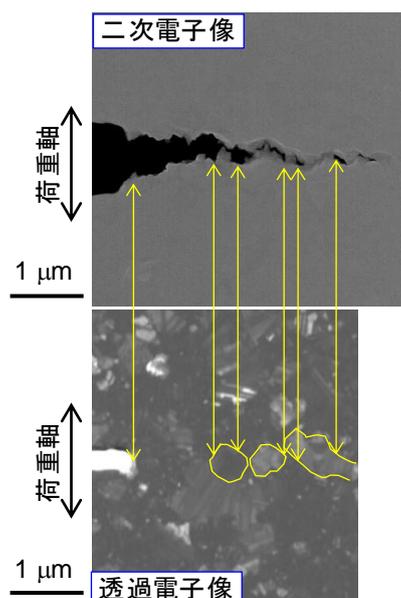


図4 膜厚約 100 nm の自立銅薄膜のき裂発生・進展過程の表面・内部その場 FESEM 観察像。透過電子像には試験前の観察像を示している。

てき裂が進展したことがわかる。加えて、高ひずみ領域内の一部の結晶粒界近傍で特に高いひずみが生じ、これが切欠き・主き裂先端前方で先行するき裂の発生箇所と対応していることがわかる。すなわち、結晶粒界における応力集中に起因して先行き裂が生じ、これらと主き裂が合体することでき裂が安定進展したと考えられる。

つぎに、き裂発生強度・進展特性に及ぼす結晶粒径の影響を検討するために、結晶粒径が数十 nm となる微細粒の多結晶銅薄膜においても同様にその場 FESEM 観察破壊じん性試験を実施した。その結果、結晶粒の微細化によってき裂発生強度が減少する傾向を示し、またき裂進展抵抗は増大した。その場 FESEM 観察と DIC 法によるひずみ場解析の結果、き裂前方の変形は局所化しており、結晶粒径が数百 nm の薄膜とは異なるき裂進展挙動を示した、これらの成果は細部を検証した後国際誌に投稿予定である。

また、膜厚が約 100 nm の銅薄膜において、その場 FESEM 観察下で薄膜表面の観察像（二次電子像）と薄膜内部の観察像（透過電子像）を同時に取得しながら破壊じん性試験を実施した。表面と内部の観察結果の一例を図 4 に示す。薄膜表面の観察像から、膜厚が約 500 nm の銅薄膜に比べて変形・破壊が局所化していることがわかる。これらの破壊過程について、薄膜内部の観察像と対応させると、膜厚が約 100 nm の銅薄膜において結晶粒界を起点とした破壊が先行して生じること、その後先行する複数のき裂の間・主き裂と先行き裂の間の結晶粒内で塑性変形を生じ、き裂間がつながることでき裂が進展することが明らかになった。

(3) 自立銅薄膜の疲労き裂進展特性に及ぼす微視組織効果

金属薄膜の疲労き裂進展に及ぼす結晶粒径の影響を検討するために、平均結晶粒径を約 70 nm から約 900 nm の範囲で 4 段階に制御した約 500 nm 厚の自立銅薄膜試験片を作製し、これらに対して疲労き裂進展試験を実施した。最大応力一定、初期切欠き長さ約 100 μm 、応力比 0.1 の同一条件下における各薄膜のき裂長さ a と応力繰返し数 N の関係を図 5(a) に示す。平均結晶粒径が大きくなるほど疲労破壊に要する N が増大した。つぎに、他の試験条件の結果も含めて、得られた a - N 関係を基に疲労き裂進展速度 da/dN を応力拡大係数範囲 ΔK で整理した結果、 ΔK がある程度大きい領域では平均結晶粒径が大きいほど da/dN が小さい傾向を示し、一方で ΔK が小さい領域では平均結晶粒径が大きいほど da/dN が大きく、また疲労き裂進展の下限界値が小さくなる傾向を示した。

このような巨視的な疲労き裂進展特性における結晶粒径効果の発現機構を検討するために、疲労き裂周囲の損傷を比較した結果の一例を図 5(b) に示す。同程度の ΔK においても、平均結晶粒径が小さくなると入込み・突出しの形成範囲が狭い傾向が見られた。薄膜における疲労き裂進展は、厚さ方向へ貫通する入込み・突出しの形成・成長が支配的であるため、結晶粒径の減少とともに転位の集団的運動と疲労損傷形成が困難となり、また厚さ方向への変形が結晶粒界に阻害される可能性が高くなると考えられる。これらによって疲労き裂周囲での入込み・突出しの形成可否は結晶粒径に依存し、これに起因して疲労き裂進展速度と下限界特性に粒径依存性が現れたと考えられる。これらの成果は国際誌に投稿準備中である。

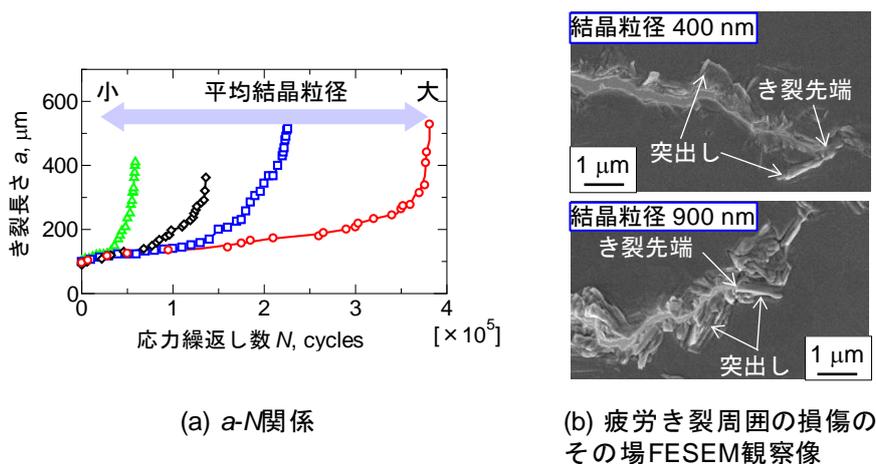


図5 膜厚約500 nmの自立銅薄膜の疲労き裂進展特性と疲労損傷性状に及ぼす結晶粒径の影響。

<引用文献>

- ① M. Meyers and K. Chawla, Mechanical behavior of materials second edition, Cambridge University Press (2009), pp. 346–347.
- ② M.D. Uchic, D.M. Dimiduk, J.N. Florando and W.D. Nix, Sample dimensions influence strength and crystal plasticity, Science, Vol. 305 (2004), pp. 986–989.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 近藤 俊之, 森國 友章, 伊達 虹貴, 箕島 弘二	4. 巻 90
2. 論文標題 サブミクロン銅薄膜の疲労き裂進展特性に及ぼす表面酸化層の影響	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 日本機械学会論文集	6. 最初と最後の頁 23-00323
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1299/transjsme.23-00323	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 近藤 俊之	4. 巻 72
2. 論文標題 金属薄膜の破壊強度の外的・内的寸法効果	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 材料	6. 最初と最後の頁 579 ~ 584
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2472/jsms.72.579	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計16件（うち招待講演 1件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 近藤俊之
2. 発表標題 金属薄膜の強度発現を担う外的・内的寸法効果の解明
3. 学会等名 ナノ力学若手交流会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 近藤俊之, 若池寛之, 定木脩, 箕島弘二
2. 発表標題 10 nm ~ 100 nmオーダー厚銅薄膜の塑性特性の結晶粒径・膜厚効果
3. 学会等名 日本機械学会マイクロ・ナノ工学部門 第14回マイクロ・ナノ工学シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 近藤俊之, 箕島弘二
2. 発表標題 銅薄膜のき裂発生・進展の微視的過程に及ぼす結晶粒界の影響
3. 学会等名 日本材料学会 高温強度・破壊力学合同シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 宇田千紘, 植木翔平, 近藤俊之, 濱田繁
2. 発表標題 自立Zr基金属ガラス薄膜の疲労き裂進展特性
3. 学会等名 日本機械学会九州支部九州学生会第55回学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 ジョンスンフム, 植木翔平, 近藤俊之, 濱田繁
2. 発表標題 自立銅薄膜のき裂前方の微視的変形・破壊の定量評価
3. 学会等名 日本機械学会九州支部九州学生会第55回学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 近藤俊之, 定木脩, 森国友章, 箕島 弘二
2. 発表標題 銅薄膜の弾塑性特性の結晶粒径/膜厚依存性
3. 学会等名 日本材料学会 第71期学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Toshiyuki Kondo, Koki Fukuda and Kohji Minoshima
2. 発表標題 Grain Size Effect on Fracture Toughness of Submicrometer-Thick Copper Thin Films
3. 学会等名 The 6th International Conference on Materials and Reliability (ICMR2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 若池寛之, 近藤俊之, 箕島弘二
2. 発表標題 10 nmオーダー厚銅薄膜の塑性特性評価
3. 学会等名 日本機械学会関西支部 第98期定時総会講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 近藤俊之, 森國友章, 箕島弘二
2. 発表標題 銅ナノ薄膜の疲労き裂進展における結晶粒径効果
3. 学会等名 日本材料学会 第70期学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 近藤俊之
2. 発表標題 電子顕微鏡その場観察・解析によるサブミクロン金属薄膜の変形・破壊の評価
3. 学会等名 日本物理学会 第31回 格子欠陥フォーラム (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 近藤 俊之, 箕島 弘二
2. 発表標題 サブミクロン銅薄膜の破壊じん性に及ぼす結晶粒径の影響
3. 学会等名 日本材料学会 第20回破壊力学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 池田隆文, 森國友章, 近藤俊之, 箕島弘二
2. 発表標題 サブミクロン銅薄膜の疲労き裂進展に及ぼす酸化層の影響
3. 学会等名 日本機械学会関西支部 第97期定時総会講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 定木脩, 森國友章, 近藤俊之, 箕島弘二
2. 発表標題 銅薄膜の弾塑性特性に及ぼす結晶粒径・膜厚効果
3. 学会等名 日本機械学会関西支部 第97期定時総会講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西岡朋晃, 近藤俊之, 箕島弘二
2. 発表標題 アルミニウムナノワイヤの機械的特性
3. 学会等名 日本機械学会関西支部 第97期定時総会講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 福田光輝, 森國友章, 近藤俊之, 箕島弘二
2. 発表標題 サブミクロン銅薄膜の破壊じん性に及ぼす結晶粒径効果
3. 学会等名 日本機械学会関西支部 第97期定時総会講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 福田太智, 近藤俊之, 箕島弘二
2. 発表標題 自立金属ガラス薄膜の破壊じん性
3. 学会等名 日本機械学会関西支部 第97期定時総会講演会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------