

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 5 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25630012

研究課題名(和文)ハイブリッドデジタル画像相関法によるナノ薄膜の局所高ひずみ塑性特性評価

研究課題名(英文)Evaluation of large-strain plasticity of nano-films by a hybrid digital image correlation method

研究代表者

箕島 弘二 (MINOSHIMA, Kohji)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：50174107

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、意図的に導入した局所高ひずみ領域の変形場をデジタル画像相関法(DIC)により評価して、この結果を基にナノ薄膜の高ひずみ塑性特性を推定する方法を開発した。切欠きを導入した厚さ500 nmのCu薄膜に対するその場FESEM観察引張試験を実施して、破壊に至るまでの高ひずみ変形場をDICにより取得した。取得した変形場と弾塑性FEM解析結果を比較して塑性特性を推定した。本手法により、引張試験における破断ひずみが1%程度しかない本Cu薄膜に対して、約6%までの高ひずみ領域における塑性特性を推定できた。さらに、本手法をCu薄膜の疲労き裂に適用して、き裂開閉口の定量評価が可能であることを示した。

研究成果の概要(英文)：We developed a method for estimating large-strain plasticity of metallic nano-films on the basis of local large-strain deformation field, which was intentionally introduced and was evaluated by a digital image correlation (DIC) method. We conducted in situ field emission scanning electron microscopy (FESEM) tensile testing for a 500-nm-thick Cu film with a notch, and evaluated the large-strain deformation field around the notch root by DIC. Based on the deformation field, we estimated the plastic properties of the films with the aid of elastic-plastic finite element analysis. This method enabled us to estimate large-strain plasticity up to ~6% of the films whose fracture strain was less than 1% in conventional tensile testing. As an application, we applied the method to the fatigue crack closure of Cu films. The results showed that the method could quantitatively evaluate the fatigue crack closure.

研究分野：材料強度学

キーワード：薄膜 塑性変形特性

1. 研究開始当初の背景

膜厚がサブ μm から nm スケールの金属薄膜では、膜厚が薄くなるほど塑性変形抵抗が大きくなる寸法効果が現れる。これは、膜厚が薄くなることによる結晶粒の微細化により、相対的に割合が大きくなる粒界による転位運動の拘束、表面の鏡像力による転位の排出、および体積が小さくなることによる転位源の枯渇などに因る。このため、薄膜は延性に乏しい性質を持ち、純金属 (Cu, Au, Al など) の自立ナノ薄膜の引張試験では、1%以下の引張ひずみによって破断する。

研究代表者らは膜厚以外の寸法が mm スケールである自立ナノ薄膜に対する引張・疲労試験方法を開発し、その強度特性評価に取り組んできた。その中で、厚さが約 500 nm の自立 Cu 薄膜の引張試験では、延性的な金属であるにも関わらず、巨視的には大きな塑性変形を伴わずにセラミックスのようにぜい性的に破断した。しかし、 nm スケールの局所領域では、数%以上の塑性ひずみを伴う大きな塑性変形を呈して延性的に破壊した。すなわち、膜厚方向以外に大きな寸法を持つ薄膜では、広い面内に存在する微小欠陥を起点として破壊がもたらされるため、巨視的にはぜい性的に破壊したものである。したがって、破壊じん性や疲労き裂進展特性などの局所の応力場が支配する強度を定量的に明らかにするためには、ナノ薄膜の高ひずみ領域 (数%) における塑性変形特性、すなわち構成則を明らかにすることが不可欠である。しかし、巨視的には低ひずみ (1%以下) で破壊するナノ薄膜に対する高ひずみ塑性特性を精度よく評価する方法は存在しない。

このような問題に対しては、薄膜試験片に有限の曲率半径を有する微小切欠きを導入することで、局所に制御された応力集中場を創り出し、その応力集中部における局所の変形を、デジタル画像相関法 (DIC) を用いて精密に計測することができれば、ナノ薄膜の高ひずみ領域における塑性特性を推定することに研究代表者らは気づき、本手法の開発に着手した。

2. 研究の目的

本研究では、薄膜試験片に制御した局所応力集中場を創り出して、その領域の変形場をデジタル画像相関法によって計測・評価する「ハイブリッドデジタル画像相関法」を確立し、評価した変形場に基づいてナノ薄膜の高ひずみ領域における塑性特性を推定する方法を開発する。さらに、応用課題として本手法をナノ薄膜の疲労き裂開口挙動の定量評価に適用して、本手法の有用性を確認する。

3. 研究の方法

(1) ハイブリッドデジタル画像相関法による塑性特性推定法の開発

① 試験方法 供試材は純度 99.999% の Cu を蒸着源とする電子ビーム蒸着法によって製

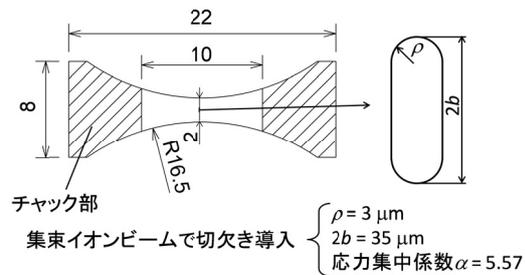


図1 自立 Cu ナノ薄膜試験片



図2 その場 FESEM 観察引張試験装置

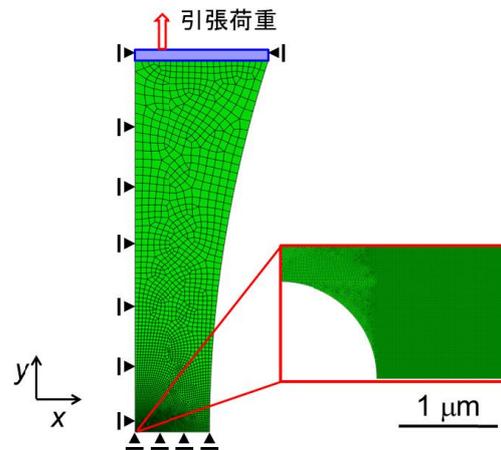


図3 FEM モデル

膜した膜厚約 500 nm の Cu 薄膜である。本材料は柱状晶で構成されており、平均結晶粒径は 610 nm である。犠牲層エッチングによって自立 Cu ナノ薄膜試験片 (図 1) を作製し、集束イオンビーム (FIB) 装置を用いて切欠き長さ $2b = 35 \mu\text{m}$ 、先端曲率半径 $\rho = 3 \mu\text{m}$ の中央微小切欠きを導入した。応力集中係数は約 5.6 であり、切欠き底近傍には遠方応力のおよそ 5.6 倍の応力が負荷される。これにより、大きな塑性変形が生じる領域を切欠き底近傍に限定する。薄膜表面は平坦であるため、製膜のままでは SEM 像から変形場を評価することは困難であった。そこで試験片の表面に対応点探索の標点として直径数十 nm の酸化マグネシウム粒を付着させ、FESEM により試験片表面の変形場を観察した。

引張試験には、図 2 に示すその場 FESEM 観察引張試験機を用いた。切欠きを含めない試験片最小幅部（幅: 2 mm）の面積で荷重を除いた応力 σ を約 20 MPa 増大させる毎に変位を一定に保持し、切欠き底周辺の FESEM 像を得た。FESEM 像の倍率は 5,000 倍（分解能 0.019 $\mu\text{m}/\text{pixel}$, 観察領域 17.8 $\mu\text{m} \times 23.7 \mu\text{m}$ ）である。本研究ではこの観察領域を対象として、塑性特性を推定した。この領域の大きさは薄膜の結晶粒径に対して十分に広く、かつ多数の結晶粒を有するため、 μm オーダーの領域の平均的な塑性特性を推定できる。

② 塑性特性推定方法 試験片の形状を模した有限要素法 (FEM) モデル (図 3) を作成した。解析には汎用コード ABAQUS 6.13 を用いた。平面応力状態を仮定し、対称性を考慮して試験片の 1/4 の領域をモデル化した。試験片に導入した切欠きの寸法と形状を忠実に再現した。切欠き先端は DIC による変位解析結果と比較するため、切欠き先端の FESEM 像の画素と同じ大きさで、基盤状に節点を配置して、酸化マグネシウム粒標点に対応する位置の変位を評価した。薄膜の弾性特性には Cu 薄膜の値 (ヤング率 $E = 90 \text{ GPa}$, ポアソン比 $\nu = 0.34$) を使用した。塑性変形が Mises の降伏条件、および式(1)で表されるべき乗硬化則にしたがうと仮定した。

$$\sigma = \sigma_Y \left(\frac{E}{\sigma_Y} \right)^n \varepsilon^n \quad (1)$$

ここで、 σ は相当応力、 ε は相当ひずみであり、 σ_Y , n は塑性特性を特徴づける材料定数である降伏応力、および加工硬化指数である。この 2 つの定数 (σ_Y , n) を実験により得た変位場と弾塑性 FEM の解析結果を比較することで推定する。

(2) 疲労き裂開閉口現象への応用

本研究で提案する局所ひずみ評価技術が開発されれば、高ひずみ塑性特性評価以外にも様々な応用が期待できる。将来的な展開を見据えた応用課題として、ここではナノ薄膜の疲労き裂開閉口挙動の解明に適用した。疲労き裂開閉口現象がナノ薄膜で生じるか否かは未解明の課題である。これは一つには、ナノ薄膜では膜厚が極めて薄い故に、バルク材で適用されているひずみゲージを用いた除荷弾性コンプライアンス法などの既存の手法によりき裂開閉口を検出することができないことに因る。そこで、本開発手法を用いてデジタル画像を基にき裂先端周囲の変形場を直接計測することによって、き裂開閉口の有無を確認し、き裂開閉口が生じる場合は、き裂開口点の定量評価を試みた。

供試材は、(1)で用いた薄膜と同一の方法で製膜した膜厚約 500 nm の Cu 薄膜である。試験片は平行部幅 2 mm, 平行部長さ 8 mm の形状とした。試験片自立化後に、FIB 装置を用いて試験片平行部に片側切欠きを導入した。つぎに、DIC により疲労き裂開閉口挙動を評

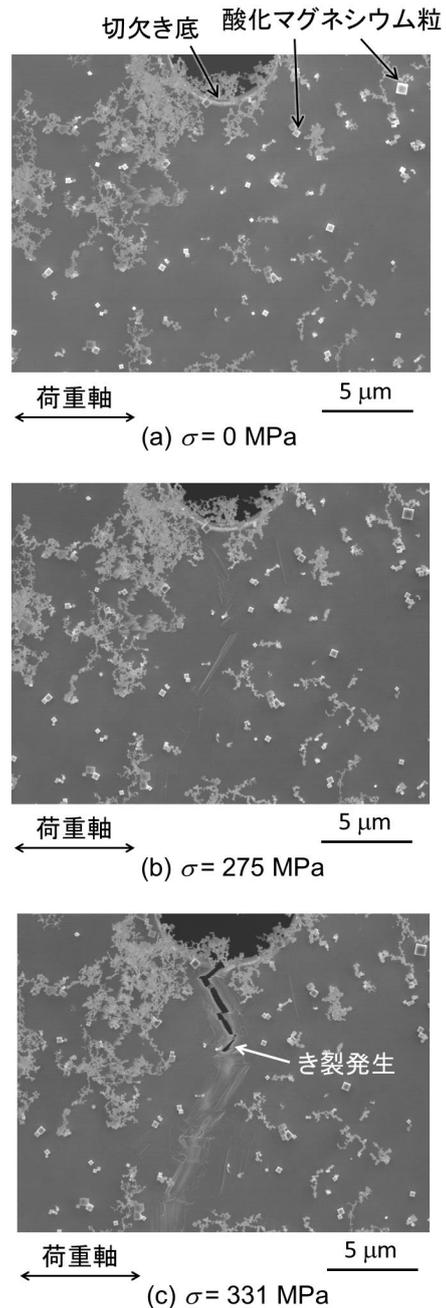


図 4 切欠き底近傍のその場 FESEM 観察像

価するための標点として、試験片表面に酸化マグネシウム粒を付着させた。

疲労き裂進展試験には、ピエゾアクチュエータとロードセルを組み合わせて開発した自立ナノ薄膜用疲労試験機を用いた。応力比 $R = K_{\min}/K_{\max}$ (K_{\min} : 最小応力拡大係数, K_{\max} : 最大応力拡大係数) を 0.1, 0.5, 0.8 の 3 段階に変化させ、温度 $298 \pm 5 \text{ K}$ の実験室大気中で応力拡大係数 K 漸増および K 漸減試験を実施した。応力繰返し速度は K 漸増試験では 10 Hz, K 漸減試験では 30 Hz とした。

疲労き裂がある程度進展した後に試験を中断し、試験片を図 2 に示したその場 FESEM 観察引張試験機に付け替えて、き裂開閉口挙動のその場 FESEM 観察を行った。試験片の荷重 (変位) を段階的に増加あるいは減少さ

せ、各段階で荷重を保持した状態で疲労き裂の FESEM 像を取得した。観察像を基にき裂開閉口挙動を定量的に評価するために、疲労き裂を挟む2つの酸化マグネシウム粒を標点として DIC 解析を実施し、 K と2標点間距離の関係を評価した。

4. 研究成果

(1) ハイブリッドデジタル画像相関法によるひずみ解析法の開発

① 試験結果 図4に切欠き底近傍のその場観察 FESEM 像を示す。意図したとおり切欠き底に変形を集中させ、局所領域の破壊に至るまでの塑性変形が進行する様子を取得できた。図5に、 $\sigma = 275$ MPaにおける画像を基に DIC 法によって得た酸化マグネシウム粒標点の変位ベクトルを20倍に拡大して示す。切欠き底に近いほど変形が大きく、また切欠きを開口する方向に変形した。図中の白丸で囲んだ標点間の荷重軸方向のひずみは5.8%であった。その場 FESEM 観察引張試験と DIC 法を併用した本手法により、切欠き底近傍でひずみが1%を大きく超える変形場を取得できた。

② 塑性特性の推定 DIC により得た変位場と FEM により解析した変位場を比較して、塑性特性を推定する。図6に示すように、原点と座標系を定義して、DIC によって求めた各標点の変位ベクトルを $(\Delta x_{i,D}, \Delta y_{i,D})$ 、FEM により求めた変位ベクトルを $(\Delta x_{i,F}, \Delta y_{i,F})$ として、式(2)で示す指標 z_j を求めた。

$$z_j = \sum_{i=1}^N \sqrt{(\Delta x_{i,F} - \Delta x_{i,D})^2 + (\Delta y_{i,F} - \Delta y_{i,D})^2} \quad (2)$$

ここで、 N は標点の数であり、図5に示した薄膜試験片では $N = 37$ である。遠方応力が197 MPa ($j = 1$) から275 MPa ($j = 5$)の5段階の応力における z_j を求め、それらの和 $Z = \sum_{j=1}^5 z_j$ が最も小さくなる塑性特性 (σ_Y, n) を本薄膜の塑性特性とみなした。図7に、塑性特性 (σ_Y, n) と評価指標 Z の関係を示す。 Z が最小になる点より、本材の塑性特性を $n = 0.35, \sigma_Y = 190$ MPa と推定した。推定した応力-ひずみ曲線を、図8に示す。図には膜厚約500 nmのCu薄膜の引張試験結果を併せて示している。図5に示したように、本評価では6%程度までのひずみ場を対象としており、引張試験では評価できない高ひずみ領域の塑性特性を推定することができた。

(2) 疲労き裂開閉口現象への応用

$R = 0.1, K_{\max} = 4.0$ MPam^{1/2}における疲労き裂開閉口挙動をその場 FESEM 観察した結果を図9に示す。負荷過程では、 K が小さい場合は K の増大にも関わらずき裂は閉口状態であった。しかし、ある K を境にき裂が開閉し、その後は K が大きくなるとともに開口量も大きくなった。除荷過程では、 K が小さくなる

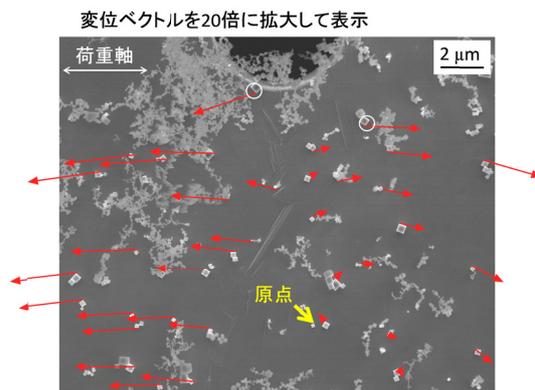


図5 DIC法による変位場評価

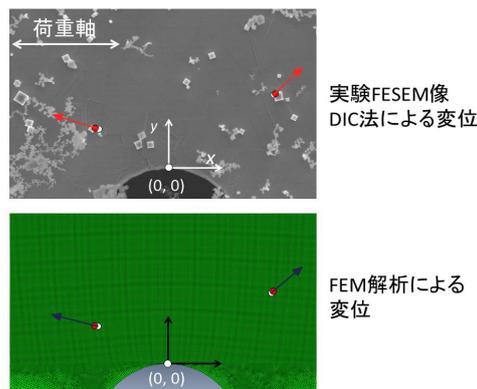


図6 実験 (DIC) と解析 (FEM による) 変位場の対照による塑性特性の推定

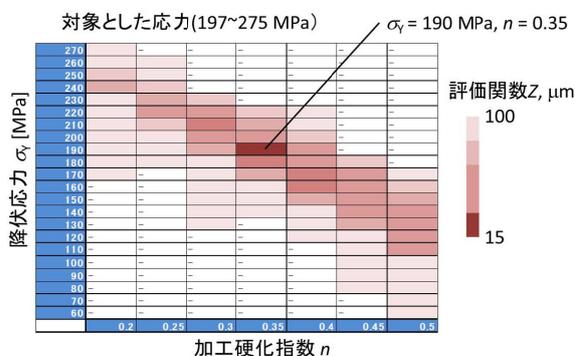


図7 塑性特性の推定結果

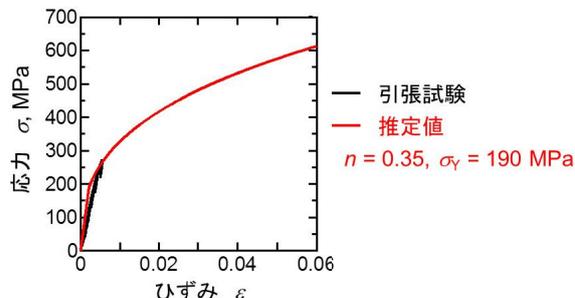


図8 推定した塑性特性 (応力-ひずみ関係)

とともにき裂の開口量が減少し、ある K においてき裂面同士が接触した後は、き裂は閉口状態となった。すなわち、ナノ薄膜でも疲

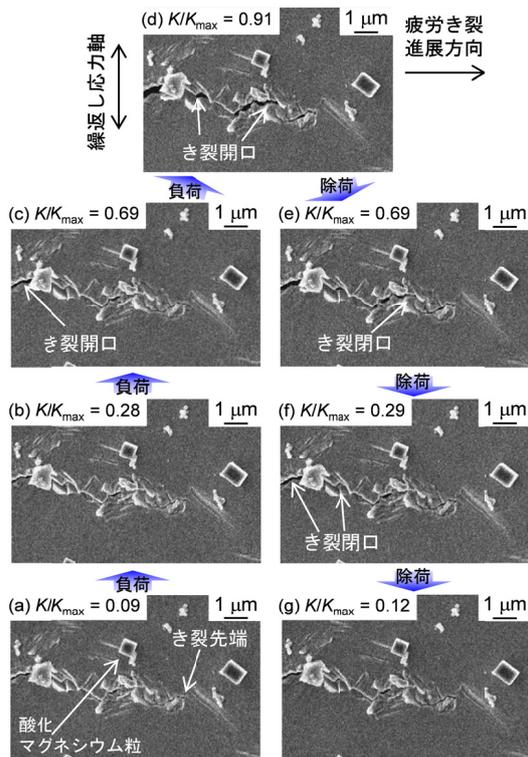


図9 き裂開閉口挙動のその場 FESEM 観察 ($R=0.1$)

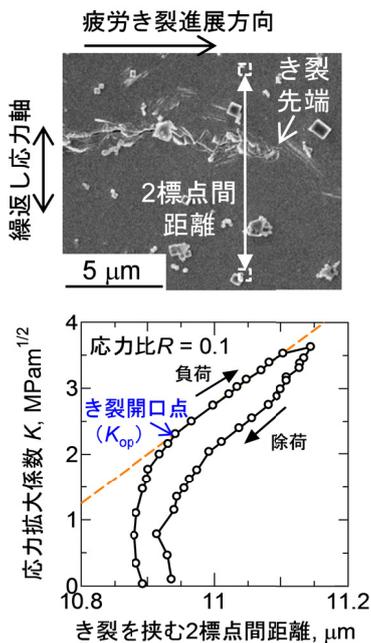
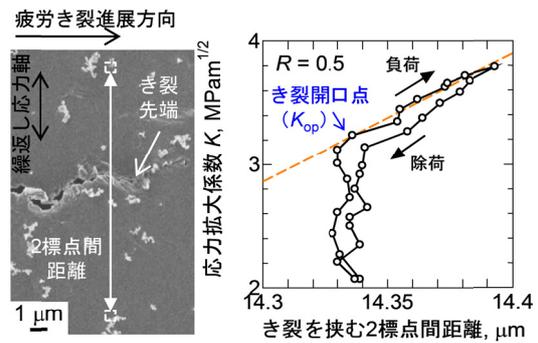
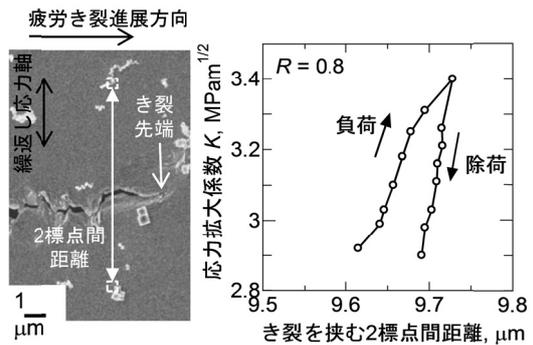


図10 き裂開閉口挙動の定量評価 ($R=0.1$)

疲労き裂開閉口を生じることを明らかにした。き裂開閉口挙動のその場 FESEM 像を基に、 K とき裂を挟む 2 標点間距離の関係の評価した結果を図 10 に示す。負荷過程の K_{\min} 近傍では、 K の増大にも関わらず 2 標点間距離はおおよそ一定であった。しかし、 K の増大に伴って曲線の傾きが小さくなり、 K_{\max} 近傍では 2 標点間距離は K に対して線形に増大した。除荷過程でも、 K_{\max} 近傍では 2 標点間距離は K に対して線形に減少したが、その後曲線の



(a) K -2標点間距離関係 ($R=0.5$)



(b) K -2標点間距離関係 ($R=0.8$)

図11 き裂開閉口挙動の定量評価 ($R=0.5, 0.8$)

傾きが大きくなり、 K_{\min} 近傍では 2 標点間距離はおおよそ一定となった。 K - 標点間距離関係とその場観察 FESEM 像を比較すると、2 標点間距離がおおよそ一定であった領域はき裂が開いた状態であり、2 標点間距離が増大または減少した領域はき裂が開いた状態であった。このように、その場 FESEM 観察像を基に K - 標点間距離関係を求めることで、き裂開閉口挙動を定量的に評価できた。

同様に、 $R=0.5$ および 0.8 の疲労き裂開閉口挙動をその場 FESEM 観察し、 K とき裂を挟む 2 標点間距離の関係を求めた結果を図 11 に示す。 $R=0.5$ の K - 標点間距離関係には、き裂の開閉口に対応する折れ曲がりが見られ、 $R=0.1$ と同様にき裂閉口が生じたことがわかる。一方、 $R=0.8$ では負荷・除荷過程ともに、2 標点間距離がおおよそ一定となる領域は見られず、全領域で K に対しておおよそ線形に増大、または減少した。したがって、 $R=0.8$ ではき裂閉口が生じなかったことがわかる。

種々の K_{\max} における K - 標点間距離関係を求め、これを基にき裂開口点を決定した。ここでは、図 10、あるいは図 11(a)に示すように、負荷過程の線形領域を直線近似し、その直線から外れる K をき裂開口応力拡大係数 K_{op} として決定した。各 R における K_{op} と K_{\max} の関係を図 12 に示す。各 R で $K_{op} = K_{\min}$ となる条件を破線で示している。 $R=0.8$ ではき裂は常に開口状態であったため、 K_{op} は K_{\min} と一致する。 $R=0.1$ および 0.5 では、 K_{\max} の増大に伴って K_{op} が増大した。

疲労き裂進展速度 da/dN を応力拡大係数範囲 $\Delta K = K_{max} - K_{min}$ および有効応力拡大係数範囲 $\Delta K_{eff} = K_{max} - K_{op}$ を用いて整理した結果を図 13 に示す。 ΔK で整理した結果を中実プロットで、 ΔK_{eff} で整理した結果を中空プロットで示している。なお、 $R = 0.8$ ではき裂は常に開口状態であったため、 $\Delta K_{eff} = \Delta K$ である。また、先に報告した本材料と同一の薄膜の da/dN を ΔK で整理した場合のデータ範囲もハッチングで示している。疲労き裂閉開口挙動を評価した試験の da/dN と ΔK の関係は、それぞれの R における da/dN - ΔK 関係のデータ範囲内にあること、また、応力比依存性が見られることが分かる。一方、 ΔK_{eff} を用いて整理すると、 da/dN の R による差は小さくなり、応力比依存性は明瞭には見られなくなった。これは、 ΔK_{eff} がナノ薄膜の疲労き裂進展速度の支配力学パラメータであることを示唆している。

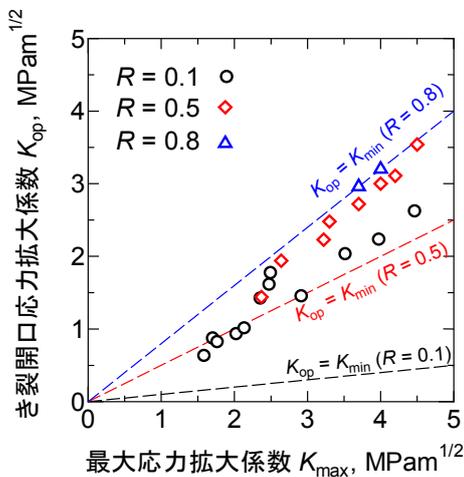


図 12 K_{op} と K_{max} の関係

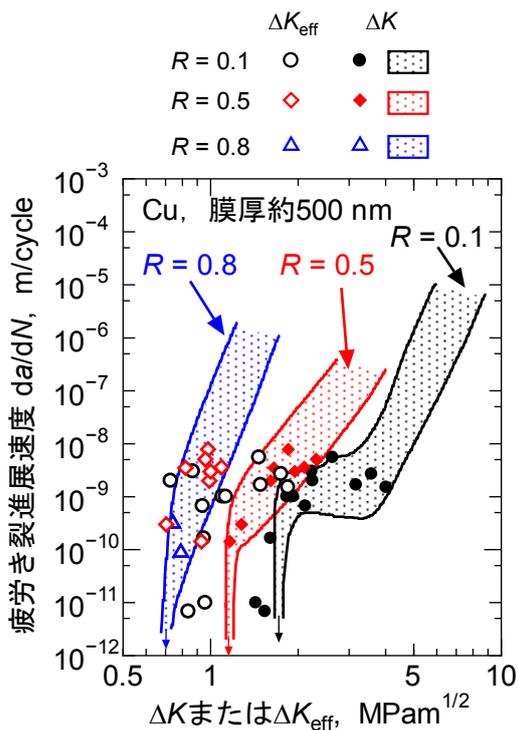


図 13 da/dN と ΔK または ΔK_{eff} の関係

5. 主な発表論文等

[学会発表] (計 4 件)

① 田村拓, 近藤俊之, 平方寛之, 箕島弘二, FESEM 局所変形場評価によるナノ薄膜の高ひずみ塑性特性評価法の開発, 日本機械学会関西支部第 90 期定時総会講演会, 2015.3.16-17, 京都大学

② 石井孝樹, 近藤俊之, 平方寛之, 箕島弘二, 自立銅ナノ薄膜の疲労き裂進展におけるき裂閉開口挙動, 日本機械学会関西支部第 90 期定時総会講演会, 2015.3.16-17, 京都大学

③ 近藤俊之, 石井孝樹, 平方寛之, 箕島弘二, 自立銅ナノ薄膜の疲労き裂進展機構と膜厚依存性, 日本材料学会第 32 回疲労シンポジウム, 2014.11.6-7, 高山市民文化会館 (岐阜県高山市)

④ 石井孝樹, 近藤俊之, 平方寛之, 箕島弘二, 自立銅ナノ薄膜の疲労き裂進展下限界近傍におけるき裂閉開口挙動, 第 58 回日本学術会議材料工学連合講演会, 2014.10.27-28, 京都テルサ (京都市)

[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)

大阪大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号: 40362454