

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 8 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26630009

研究課題名(和文) 金属ナノ材料を対象とした共振疲労試験手法の開発と疲労損傷メカニズムの解明

研究課題名(英文) Investigation of fatigue damage in nano-scale metals by resonant fatigue testing

研究代表者

澄川 貴志 (Sumigawa, Takashi)

京都大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：80403989

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)：ナノスケールの金属材料における疲労挙動を明らかにすることを目的として、共振疲労試験手法を開発した。1 $\mu\text{m}$ 以下の金単結晶微小試験片に対して疲労試験を実施した結果、試験部表面に微細なすべり帯が発生した。このすべり帯の形成応力は150 MPa以上と見積もられ、バルク材における固執すべり帯の形成応力よりも6倍以上大きい。試験後の試験片の断面観察では、試験片表面近傍に約60 nmの幅の突き出し/入り込みが形成されていた。複数の試験片を用いて実験を行った結果、10 $\mu\text{m}$ 以下の材料に発生する疲労損傷の様相は、バルク材の固執すべり帯と類似しているが、形成応力や形成寸法に寸法効果が存在することを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：In order to investigate the fatigue behavior of nano-scale metal, a resonant fatigue experiment is developed. In a single crystal gold specimen that possesses a test section with a width of submicron-order, crystallographic slip bands appear on the surface by fatigue. The slip bands are brought about by the activation of a slip system with the maximum resolved shear stress amplitude. The critical value for the formation is evaluated to be more than 150 MPa which is more than 6 times larger than those of persistent slip band (PSB). Cross-sectional FE-SEM observation elucidates that extrusion/intrusion with a width of approximately 60 nm is formed on the surface at the slip bands. Although the morphology of the slip bands is similar to that of PSBs in a bulk counterpart, the width is extremely narrower (bulk: larger than 1  $\mu\text{m}$ ).

研究分野：微小材料強度学, 金属結晶学

キーワード：ナノ マイクロ 疲労 金属

1. 研究開始当初の背景

構造物の故障原因の大半は疲労によるものであり、マクロな金属材料の疲労損傷については詳細なメカニズムが明らかにされている。例えば材料に  $10^{-4} \sim 10^{-3}$  程度の塑性ひずみ振幅が加わると、塑性変形の源である転位は他の転位との反応により自己組織化し、はしご型構造と呼ばれる数  $\mu\text{m}$  サイズの疲労転位構造を形成する。この部位は母材より一割程度柔らかく、同時に表面には“突き出し/入り込み”と呼ばれる凹凸が生じるため、母材との変形の不マッチや入り込み底部の応力集中によって、疲労き裂の発生および進展が起こる。

一方、近年の高集積デバイスの金属配線寸法は、サブミクロン～ナノサイズにまで微細化されているが、このようなサイズの材料には数  $\mu\text{m}$  サイズの疲労転位構造は形成し得ない。すなわち、従来とは異なる特有の疲労挙動を示す、あるいは疲労現象そのものが存在しないと考えられるが、その詳細は明らかにされていない。これは、形状や結晶方位を制御したナノサイズの試験片の作製、試験片のハンドリングおよび正確且つ精密な繰り返し微小荷重の負荷など、実験における困難が原因となっている。

2. 研究の目的

本研究では、サブミクロン～ナノサイズの微小材料に対して両振り・高サイクルの繰り返し負荷が可能な試験手法を開発する。その手法を金属単結晶試験片や多結晶試験片に適用し、微小材料における疲労挙動を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

図1は、本研究で開発した共振疲労試験手法を示す。片持ち梁形状の試験部の先端には錘を設けてある。試験片固有の共振周波数を用いて土台部を上下方向に加振させ、試験部に繰り返し曲げ変形を与える。引張試験等の一般的な負荷手法では、試験片の両端を機械的に把持する必要があるが、固定時に予ひずみが導入され易い。本手法では、試験片の固定は一端のみで良く、予ひずみの導入を抑制できる。また、サブミクロン以下の材料の共振周波数は、数十 GHz 以上である。この共振周波数を用いて試験片を振動させると、極めて高いひずみ速度となり、試験片は断熱変形を生じる可能性がある。さらに、一般的な疲労限界繰り返し数 ( $10^7$  サイクル) を 0.01 秒以下で達成してしまうことから、試験の制御が困難となる。本研究では、試験部の先端に錘を搭載させることで、共振周波数を数十 kHz 程度まで低減させることを試みた。

図2は、集束イオンビーム (FIB) 加工装置を用いて作製した金 (Au) 単結晶試験片を示す。試験片は、後方電子線散乱回折 (Electron backscatter diffraction: EBSD) 解析により粒界形状と結晶方位を特定した多結晶材料から

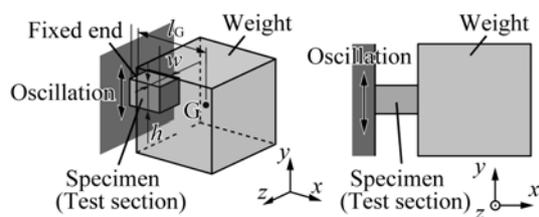


Fig. 1 Vibration model of three-dimensionally small specimen with a rectangular cross section.

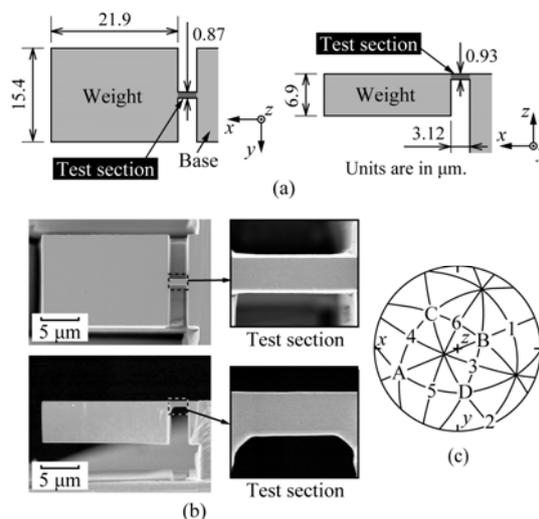


Fig. 2 (a) Shape and size, (b) SEM images and (c) stereographic projection of single-crystal gold specimen.

切り出したものであり、単一すべり方位を有する。図中のステレオグラフ中では、すべり面を A~D、すべり方向を 1~6 で表してあり (Schmid と Boas の表記法)、この表記法では、主すべり系は B4 と表される。また、粒界や異材界面に起因した微視的応力場が疲労損傷に及ぼす影響を明らかにするために、シリコン基板上に成膜した多結晶材料から切り出した積層試験片も作製した。試験は、走査型電子顕微鏡 (Scanning electron microscope: SEM) 内でその場観察を行いながら実施した。試験片先端の変位幅  $\Delta\delta_1$  は、SEM 観察像より特定した。

4. 研究成果

(1) 微小単結晶材料の疲労挙動

試験部先端に錘を付けることで、共振周波数を数十 kHz まで低減させることに成功した。図3は、試験中のその場 SEM 観察像を示す。試験片を振動させる piezoelectric actuator の入力電圧振幅  $\Delta V_{in}/2$  の増加に対応して試験片先端の変位振幅  $\Delta\delta_1$  は上昇し、 $\Delta V_{in} = 1.5 \text{ V}$  ( $\Delta\delta_1 = 1330 \text{ nm}$ ) まで試験部に顕著な変化は見られなかった。しかし、 $\Delta V_{in}$  が 2.25 V に達すると、 $\Delta\delta_1$  は一旦上昇した後、約  $2.7 \times 10^5$  サイクルで 980 nm に急減した。急落直後の

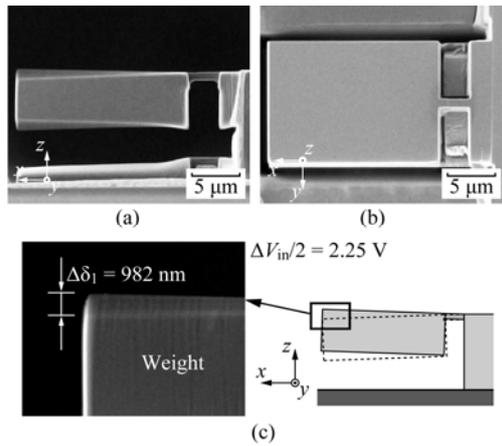


Fig. 3 In-situ SEM observation images of specimen during resonant oscillation: (a) side view, (b) top view, and (c) side view near weighted end (after 3200 cycles at  $\Delta V_{in}/2 = 2.25 \text{ V}$ ).

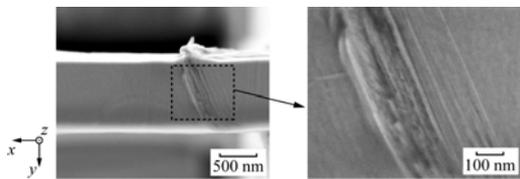


Fig. 4 Magnified view of straight traces on top surface.

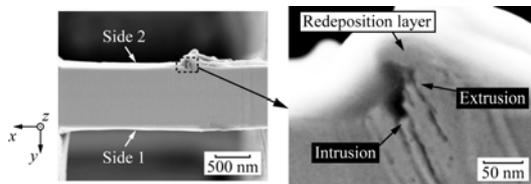


Fig. 5 Cross-sectional FE-SEM image of extrusion/intrusion near side 2 surface.

SEM 観察では、試験部に直線状の損傷が認められた。

図 4 は、試験終了後の試験部表面に対する SEM 観察像を示す。試験部を斜めに横断する直線状の凹凸が発生している。試験片の結晶方位を考慮すると、この凹凸は、主すべり系（最も大きいシュミット因子を有するすべり系：図 2 中の B4）の活動により形成されたすべり帯である。すべり帯の幅は約 270 nm であり、その中には幅約 10 ~ 15 nm の凹凸が存在する。

図 5 は、FIB を用いて試験部表面を約 50 nm 除去して得られたすべり帯の断面観察 SEM 像を示す。突き出しおよび入り込みの高低の差は、約 250 nm である。また、突き出し/入り込みの幅は約 60 nm 程度であり、10 ~ 15 nm 程度のプレートで構成されている。その様相は、マクロ材の疲労で発生する固執すべり帯 (Persistent slip band: PSB) の突き出し/入り込みと極めて類似しているが、その幅

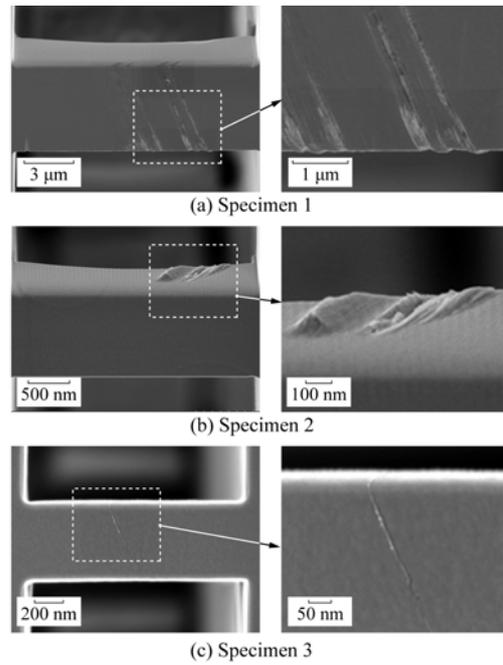


Fig. 6 Extrusion/intrusion generated at the test part in Specimen 1-3.

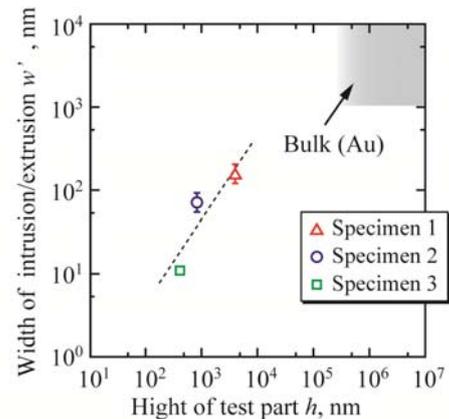


Fig. 7 Relation between width of extrusion/intrusion,  $w'$ , and height of test part,  $h$ .

はマクロ材のもの（幅 1 ~ 5 μm）に比べて著しく小さい。また、すべり帯が発生したときの変位幅 ( $\Delta\delta_1 = 1330 \text{ nm}$  から試験片土台部の変位幅を除去) を考慮して静的有限要素法 (Finite element method: FEM) 解析を実施し、すべり帯発生のための最小臨界せん断応力を見積もった結果、150 MPa 以上となることがわかった。この値は、マクロ材の PSB の臨界分解せん断応力 (23.4 MPa) と比較すると著しく大きい。すなわち、サブミクロンサイズ材料では、幅および形成応力ともにマクロ材とは大きく異なる疲労損傷が形成されることを明らかにした。

## (2) 疲労損傷の寸法効果

寸法の異なる Au 単結晶試験片を三本用意して実験を行い、材料寸法が突き出し/入り込

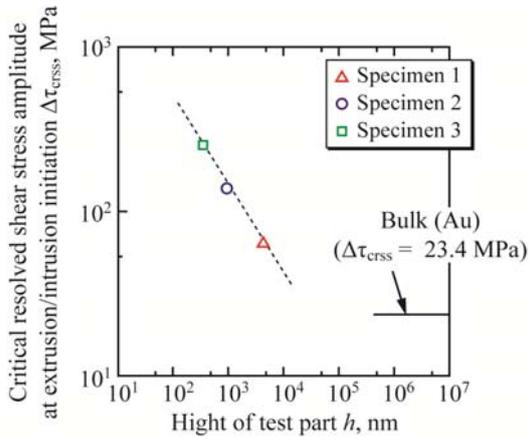


Fig. 8 Relation between critical resolved shear stress amplitude,  $\Delta\tau_{crss}$ , and height of test part,  $h$ .

みの幅や形成応力に与える影響を明らかにした (図 6) . 図 7 は, 得られた結果を基に, 縦軸に突き出し/入り込みの幅, 横軸に試験片寸法 (代表寸法として試験部の高さ  $h$  を使用) を取った両対数グラフを示す. 試験部が大きくなるにつれて形成する突き出し/入り込みの幅は増加し,  $h = 10 \mu\text{m}$  付近でマクロ材の突き出し/入り込みの幅に近づく. 図 8 は, 縦軸に突き出し/入り込み形成時の分解せん断応力振幅, 横軸に試験片寸法を取った両対数グラフを示す. マイクロ~サブミクロンサイズの Au 単結晶試験片に生じる突き出し/入り込みの形成応力振幅は材料寸法の低下とともに上昇し, 明確な寸法依存性を有している. また,  $h = 10 \mu\text{m}$  付近でマクロ材の突き出し/入り込み形成応力 ( $= 23.4 \text{ MPa}$ ) に近づくことがわかる.

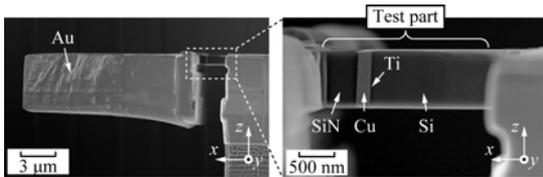


Fig. 9 SEM images of Specimen fabricated by FIB.

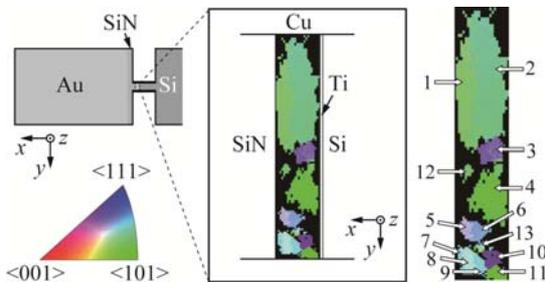


Fig. 10 Inverse pole figure map showing the orientation of individual grains on the upper surface of the Cu portion in the test section.

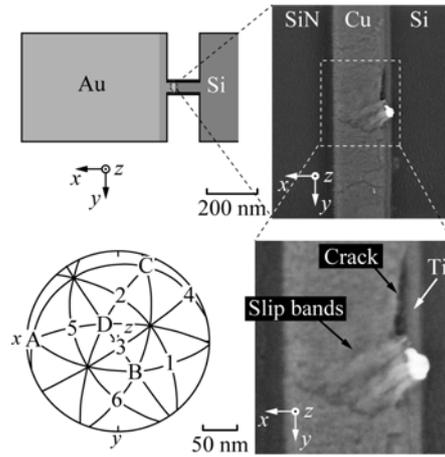


Fig. 11 FE-SEM images of the test section after the fatigue experiment.

### (3) ナノ多結晶材料の疲労挙動と疲労損傷を支配する力学因子

供試材は, Si (100)基板上に厚さ 200 nm の Cu および厚さ 1000 nm の SiN を順次堆積した積層材料である. Si と Cu の間には, 密着強度を向上させるために厚さ 10 nm の Ti 層を挿入した. 作製した材料に対して, 真空環境下 (真空度:  $1 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ ) において  $400^\circ\text{C}$ , 1 時間の熱処理を施した.

図 9 は, FIB を用いて作製した試験片の SEM 観察像を示す. 観察対象面は, 試験部の上面である. 本試験片では, 試験部上面に疲労損傷が生じやすいよう, 試験部の断面を台形形状にし, 下面よりも応力レベルが高くなるよう設計した. また, 試験部先端には共振周波数低減のための Au 製の錘を搭載してある. 図 10 は, 試験部上面の Cu 部に対して EBSD 解析を施して得られた  $y$  軸方向の結晶方位の分布を示す. 試験部上面の Cu 薄膜内部には, 13 個の粗大結晶粒 (“結晶粒 1, 2 ... 13” と記す) が存在し, 結晶粒径は 100-400 nm である.

図 11 は, 共振疲労試験後の試験部上面における Cu 薄膜の SEM 観察像を示す. Cu 内の局所領域で明確な凹凸が発生している. この凹凸は, 結晶粒 3 (図 10 参照) で発生していた. 凹凸は, 結晶粒内部に特定の方向 (引張軸に対して約  $30^\circ$  傾いた方向) に伸長した直線上に存在しており, 明らかに結晶のすべりによって生じたすべり帯である. このすべり帯上の凹凸は, バルク材で生じる突き出し/入り込みと類似しているが, その幅は約 30 nm であり, バルク材のもの (幅約  $1 \mu\text{m}$ ) とはサイズが大きく異なる. さらに, その突き出し/入り込みは Ti 層に衝突し, Cu/Ti 界面にき裂を生じさせている.

図 12(a)は, 試験部上面の Cu 部に存在する 13 個の結晶粒それぞれについて, 12 のすべり系に働くシュミット因子の最大値 (すべり系 B4 のシュミット因子) を示す. 最大のシ

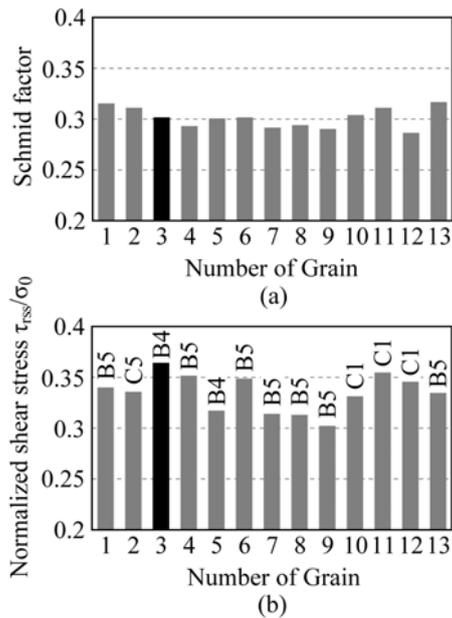


Fig. 12 (a) Schmid factor of the primary slip system B4 and (b) normalized maximum resolved shear stress in 12 slip systems in each grain.

シュミット因子を有する結晶粒は、結晶粒 1 および結晶粒 13 である。一方、すべり帯の発生した結晶粒 3 のシュミット因子の最大値は、それらより小さい。結晶粒 3 より大きなシュミット因子の最大値を有する結晶粒は、結晶粒 1, 2, 6, 10, 11 および 13 であるが、これらの結晶粒では、顕著なすべり帯は発生していない。

結晶粒界や異材 (Si 基板および SiN 層) からの変形拘束に起因した微視的応力場を得るために、結晶粒形状や結晶方位を考慮した有限要素法 (Finite element method: FEM) 解析を実施した。図 12(b)は、13 の各結晶粒について、解析より得られた各 12 通りのすべり系に働く分解せん断応力  $\tau_{rss}$  についてその最大値を示す。ここで、 $\tau_{rss}$  は、Cu 上表面に働く  $x$  方向垂直応力  $\sigma_0$  で無次元化してある。13 の結晶粒の中では、結晶粒 3 の B4 が最も高い  $\tau_{rss}$  を示す。SEM 像およびステレオグラフから、結晶粒 3 で発生したすべり帯もすべり面 B が活動したものであり、応力解析結果と一致する。すなわち、ナノサイズの結晶粒で構成された材料の疲労では、ナノサイズの微視的応力場に起因した疲労損傷が発生する。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 1 件)

① Hui Fang, Ryosuke Shiohara, Takashi Sumigawa, Takayuki Kitamura, Size Dependence of Fatigue Damage in Sub-micrometer Single Crystal Gold, Material Science and Engineering A, 618(2014) 416-423.

DOI: 10.1016/j.msea.2014.09.017

〔学会発表〕 (計 5 件)

① 澄川貴志, 松本健太, 北村隆行, ナノ多結晶銅の疲労すべり帯形成に及ぼす微視組織の影響, 機械学会 2014 年度年次大会, 2014/09.

② 澄川貴志, 塩原良祐, 北村隆行, マイクロ/サブミクロンスケール金単結晶の疲労すべり帯形成に関する寸法依存性, M&M2014 材料力学カンファレンス講演論文集, 2014/07.

③ 澄川貴志, 塩原良祐, 北村隆行, 高サイクル疲労下におけるサブミクロン金単結晶のすべり帯形成, 機械学会第 6 回マイクロ・ナノ工学シンポジウム, 2014/10/20.

④ 澄川貴志, ナノ・マイクロ微小構造体に対する力学実験と機械強度評価, 日本材料学会 マイクロマテリアル部門委員会・分子動力学部門委員会合同委員会, 2014/07.

⑤ 澄川貴志, マイクロ・ナノ金属の疲労, 日本材料学会理事会主催企画 微小材料強度学研究集会 実験編, 2014/12.

〔図書〕 (計 1 件)

① Takayuki Kitamura, Takashi Sumigawa, Hiroyuki Hirakata, and Takahiro Shimada, Fracture Nanomechanics second edition, Pan Stanford Publishing Pte. Ltd., (ISBN-13: 978-9814669047), USA, 2016, 323 pages.

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://kitamura-lab3.p2.weblife.me/>

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

澄川貴志 (SUMIGAWA, Takashi)

京都大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号: 80403989