

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料  
〔平成29年度研究進捗評価用〕

平成26年度採択分  
平成29年3月23日現在

金属ナノ薄膜の強度に及ぼす寸法効果の本質的理解

Essence of Size Effects on Strength of Metallic  
Nano-Films

課題番号：26220901

箕島 弘二 (MINOSHIMA KOHJI)

大阪大学・大学院工学研究科・教授



研究の概要

本研究では、10 nm から 1,000 nm オーダーの金属薄膜（金属ナノ薄膜）を対象として、変形・破壊に及ぼす表面自然酸化層と変形・破壊を生じる時の新生面の酸化・酸化層の影響を明らかにし、これにより純粋な表面効果を分離・抽出することにより、金属ナノ薄膜の機械的特性・強度に及ぼす寸法（膜厚）効果の本質を解明する。

研究分野：機械工学 機械材料・材料力学

キーワード：マイクロ材料力学、材料強度学、破壊、疲労、クリープ、金属薄膜

1. 研究開始当初の背景

厚さが 10 nm から 1,000 nm オーダーの金属多結晶薄膜（金属ナノ薄膜）の機械的特性や強度は膜厚に強く依存する。これは膜厚が薄くなると結晶粒微細化による転位運動の拘束、体積の縮小による転位源の枯渇に加え、変形・破壊に対する表面の影響が異なることに因る。しかも、これらの薄膜構造による効果に加え、大気環境下では薄膜表面の自然酸化層が特性に影響を与えることが考えられる。しかし、ナノ薄膜の強度に及ぼす自然酸化層の影響は未解明であり、強度に及ぼす寸法効果の本質は不明である。

2. 研究の目的

本研究では、金属ナノ薄膜（Cu, Au）を用いて、変形・破壊に及ぼす表面自然酸化層と変形・破壊を生じる時の新生面の酸化・酸化層の影響を明らかにし、これにより純粋な表面効果を分離・抽出することにより、金属ナノ薄膜の機械的特性・強度に及ぼす寸法（膜厚）効果の本質を解明することを目的とする。

3. 研究の方法

研究代表者らが開発してきた自立金属ナノ薄膜作製技術、および金属ナノ薄膜に対する引張・破壊じん性・クリープ・疲労強度試験技術を基礎として、(1) 環境（酸素ガス分圧）制御下での高倍率その場観察（ナノスケール損傷・破壊機構解明）、(2) 薄膜表面の酸化層除去・制御、および (3) 変形・破壊現象（引張・破壊じん性、クリープ、疲労）に依

じたその場観察強度実験を実現するための実験システムを開発する。本システムを用いて体系的な強度実験を実施して、ナノ薄膜の変形・破壊特性と破壊機構に及ぼす「表面酸化層の影響」を分離・抽出して、寸法（膜厚）効果の本質を明らかにする。

4. これまでの成果

実験システム、実験方法の開発

4 kPa までのガス環境下においても高分解能で損傷・破壊過程観察が可能な環境質制御電界放射型走査電子顕微鏡（FESEM）に、表面酸化層を除去するためのスパッタイオン銃を組み合わせたシステムを開発した。さらにこの FESEM 内で稼働し、その場電子線後方散乱回折（EBSD）解析実験も可能な単調引張負荷、疲労、およびクリープ負荷試験に特化した 3 種類の実験装置を開発した。

Cu 薄膜の破壊じん性に及ぼす膜厚効果

厚さ約 100 nm から 2,700 nm の単結晶および多結晶 Cu 薄膜に対して、その場 FESEM 観察（真空環境）下で破壊じん性試験を実施

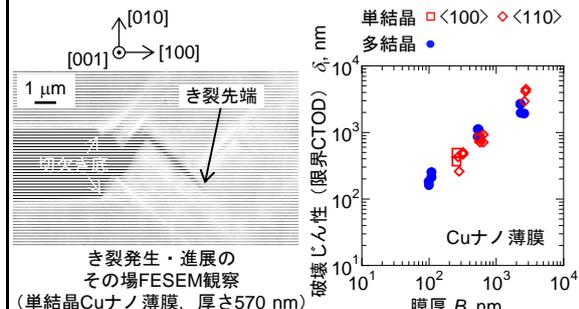


図1 Cuナノ薄膜の破壊じん性に及ぼす膜厚効果

した。その結果、破壊じん性（限界き裂先端開口変位）は膜厚が薄くなるにしたがいほぼ比例して低下すること、しかも組織（単結晶、多結晶）に鈍感であることを明らかにした（図1）。この結果は、局所変位場に基づく破壊基準において、組織に鈍感な寸法効果則が存在することを示しており、薄膜の材料強度設計に極めて重要な指針を与える。

#### Cu 薄膜の疲労き裂進展特性に及ぼす酸化の影響

大気中と FESEM の真空環境中で、厚さ約 500 nm の多結晶 Cu 薄膜の疲労き裂進展試験を行った。表面疲労損傷（入込み・突出し）を介して進展する中程度の $\Delta K$  領域では、大気中の疲労き裂進展速度に比べて真空環境中のほうが減速したのに対して、下限界値は逆に真空中のほうが大気中よりも小さくなった。しかも、疲労進展をもたらす表面疲労損傷の形成ならびに破面性状は真空環境と大気環境で異なった。このように、薄膜の疲労き裂進展速度に及ぼす真空環境効果は $\Delta K$ の大小によりその影響が異なり、バルク材のき裂進展特性に及ぼす真空環境効果とは異なる特性を呈することが明らかになった。

#### Cu 薄膜の疲労き裂進展に及ぼすき裂閉口の影響

厚さ約 500 nm の多結晶 Cu 薄膜の疲労き裂進展におけるき裂閉口の有無およびき裂閉口の影響を解明するために、大気中で進展した疲労き裂の開閉口挙動をその場 FESEM 観察した。その結果、ナノ薄膜においてもき裂閉口が生じることを明らかにした。さらに、FESEM 像を基に求めた有効応力拡大係数範囲 $\Delta K_{\text{eff}}$ を用いて進展特性を整理した結果、応力拡大係数範囲 $\Delta K$ を用いて整理した場合に比べて応力比依存性が小さくなった。この結果は、薄膜においても疲労き裂進展の支配力学量が $\Delta K_{\text{eff}}$ であることを意味している。

#### Au 薄膜のクリープ変形・クリープき裂進展特性

クリープに及ぼす酸化の影響は複雑であると予測しており、まず大気中で不活性である Au 薄膜を対象として、表面酸化層がない場合の本質的なクリープき裂進展特性と膜厚効果の解明に取り組んだ。厚さ約 400 nm の Au 薄膜に対するクリープき裂進展試験とクリープを考慮した有限要素法応力解析を実施して、進展機構と支配力学を検討した。その結果、Au 薄膜は室温下においてもクリープき裂が安定進展すること、クリープき裂進展速度はき裂先端の特異応力場の強さを表すクリープ J 積分により決定されることを解明した。さらに、クリープき裂進展過程をその場 FESEM 観察した結果、き裂先端前方におけるボイド発生・成長、およびそれらと主き裂の合体を繰り返して進展することを明らかにした。

10 nm オーダーの自立超ナノ薄膜試験片作製

酸化層の影響（環境効果）が顕著になると考えられる厚さ 10 nm オーダーの超ナノ薄膜の強度実験方法を、当初計画を前倒して開発した。湾曲基板上に薄膜を製膜することでウェットエッチングによる薄膜自立化時の内部応力低減を実現し、かつ円孔基板を用いて薄膜を保持したまま大気中に取り出すことにより薄膜試験片端部からの破壊を抑制する方法を考案した。これにより、厚さ約 30 nm の円孔基板支持自立 Cu 薄膜試験片の作製、および破壊じん性試験が可能になった。

#### 5. 今後の計画

開発した実験システム・実験方法を用いて、100 nm ~ 1,000 nm 厚さの金属ナノ薄膜に対して、(1) 破壊じん性、(2) 疲労き裂発生・進展、(3) クリープ特性に及ぼす酸化層・酸化の影響を解明して、これらの影響を分離・抽出することにより、寸法効果の本質を解明する。さらに、10 nm オーダーの自立超ナノ薄膜の破壊じん性、疲労・クリープ特性と寸法効果を解明する。

#### 6. これまでの発表論文等（受賞等も含む） 発表論文

1. “Fatigue crack propagation properties of submicron-thick freestanding copper films in vacuum environment”, Toshiyuki KONDO\*, Akihiro SHIN, Hiroyuki HIRAKATA, Kohji MINOSHIMA, *Procedia Structural Integrity*, Vol. 2 (2016), pp. 1359-1366.

2. “Effects of film thickness on critical crack tip opening displacement in single-crystalline and polycrystalline submicron Cu films”, Hiroyuki HIRAKATA\*, Takuya YOSHIDA, Toshiyuki KONDO, Kohji MINOSHIMA, *Engineering Fracture Mechanics*, Vol.159 (2016), pp. 98-114.

3. “Creep crack propagation in gold submicron films at room temperature”, Hiroyuki HIRAKATA\*, Takumi KAMEYAMA, Ryota KOTOGE, Toshiyuki KONDO, Masayuki SAKIHARA, Kohji MINOSHIMA, *International Journal of Fracture*, Vol. 201 (2016), pp. 127-141. 外

5件  
受賞

「自立銅ナノ薄膜の疲労き裂進展機構と膜厚依存性」

近藤俊之, 石井孝樹, 平方寛之, 箕島弘二  
日本材料学会第32回疲労シンポジウム,  
2014.11.6-7, 優秀研究発表賞, 外3件  
国際会議発表8件、国内会議発表28件  
ホームページ等

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