

# 金属ナノ薄膜のクリープと疲労



箕島 弘二\*

Creep and fatigue fracture behavior in metallic nano-films

Key Words : Fracture, Creep, Fatigue, Thin films, Metallic nano-films

## 1. はじめに

マイクロ/ナノ電子機械システム (MEMS/NEMS) や電子デバイスの信頼性を確保しかつ向上させるためには、構造材料として用いられている外形寸法が  $\mu\text{m}$  オーダーより小さい微小材料の機械的・強度特性を破壊機構と併せて明らかにする必要がある。MEMS 材料として重要な単結晶・多結晶 Si は、バルク材では疲労を生じず、強度には  $\text{H}_2\text{O}$  は影響を及ぼさないが、 $\mu\text{m}$  オーダーの微小材料では  $\text{H}_2\text{O}$  の存在下で疲労荷重を受けると破壊する<sup>(1)</sup> など、バルク材とは異なる現象が生じる。金属材料でも、例えば膜厚が薄くなるほど塑性変形抵抗が増大する寸法効果<sup>(2)</sup> を示すこと等が明らかになっている。一方で、長期信頼性確保で重要となる時間依存・繰返し数依存の強度特性には不明の点が多い。これは、薄膜そのものを対象として長期間にわたって微小荷重を精密に負荷することが困難であること等による。

著者らは膜厚がサブ  $\mu\text{m}$  オーダーであるにもかかわらず面内寸法が mm オーダーの金属薄膜試験片等を作製する独自技術<sup>(3)</sup> やそのハンドリング技術<sup>(3~5)</sup>、電界放出形走査電子顕微鏡 (FESEM) や高倍率光学顕微鏡その場観察下で動作する微小材料用力学試験装置 (準静的負荷<sup>(3)</sup>、一定<sup>(5,6)</sup>/変動<sup>(4,6)</sup> 荷重負荷) を開発して、電子ビーム蒸着等により製膜した金属薄膜そのものの強度特性や破壊機構、信

頼性向上法について検討している。ここでは長期信頼性を確保する上で重要となる一定荷重下のクリープと変動荷重下の疲労に焦点をあて、近年明らかになった基礎特性について述べる。

## 2. クリープ特性

厚さが 100 nm ~ 800 nm の Al 薄膜のクリープ試験を室温、大気中で実施して求めた応力と定常クリープひずみ速度 (クリープ速度) の関係を図 1<sup>(5)</sup> に示す。薄膜の場合も応力が大きくなるとクリープ速度が大きくなり、応力とクリープ速度には Norton 則が成立する。図には純 Al (5N) バルク材の結果も示すが、バルク材のほうがクリープ速度やクリープ指数が大きな値をとる。これは両者でクリープの機構が異なることによる。すなわち、バルク材ではクリープ指数が 5 ~ 7.5 の値を有することから分か

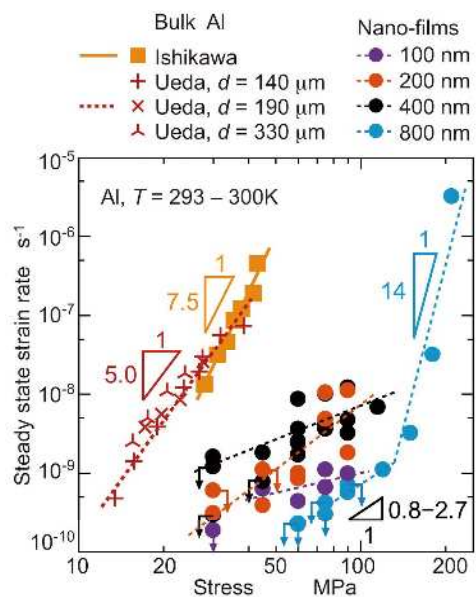


図1 Al 薄膜の応力と定常クリープひずみ速度の関係 (室温大気中, Al 薄膜の凡例中の数値は膜厚, Al バルク材の凡例中の  $d$  は結晶粒径を意味する。)



\* Kohji MINOSHIMA

京都大学大学院工学研究科機械工学専攻  
博士後期課程修了 (1985年)  
現在、大阪大学大学院工学研究科機械工  
学専攻 教授 京都大学工学博士 材料  
強度学, 環境強度学, 微小材料強度学  
TEL : 06-6879-7240  
FAX : 06-6879-7243  
E-mail : minoshima@mech.eng.osaka-u.  
ac.jp

るように転位クリープが支配している。一方、薄膜では結晶粒径が小さいこと（膜厚 100 nm: 約 49 nm, 膜厚 800 nm: 約 92 nm）により高速拡散路である粒界面積や薄膜表面の面積が体積に比べて極めて大きくなることから拡散クリープを生じやすい。一方で、転位運動は粒界により阻止され、しかも体積が小さいが故に Frank-Read 源のような転位増殖機構が働きにくい上、表面からの転位排出が促進されて転位枯渇状態になりやすい。したがって、拡散クリープが支配的となり、クリープ指数は 0.8 ~ 2.7 と拡散クリープ支配のクリープ指数 (=1) に近い値をとる。

図 2<sup>(5)</sup>に、膜厚とクリープ速度（応力: 90 MPa）の関係を示す。膜厚が大きい領域では膜厚が小さいほどクリープ速度が増大するものの、さらに膜厚が小さくなると逆に低下する薄膜特有の膜厚効果を示す。膜厚が大きい領域では、膜厚が小さくなるほど結晶粒径が小さくなることにより、拡散クリープが促進されてクリープ速度が増大したものである。図 3<sup>(5)</sup>に、微小な応力（1 MPa）を負荷したときの膜

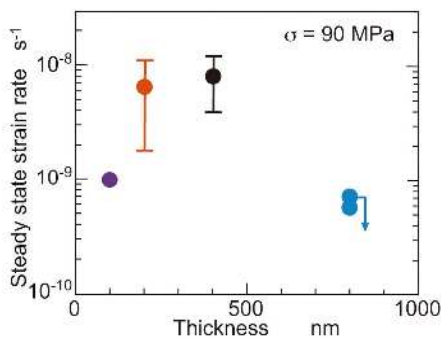


図 2 Al 薄膜の膜厚と定常クリープひずみ速度の関係（室温大気中、応力: 90MPa）

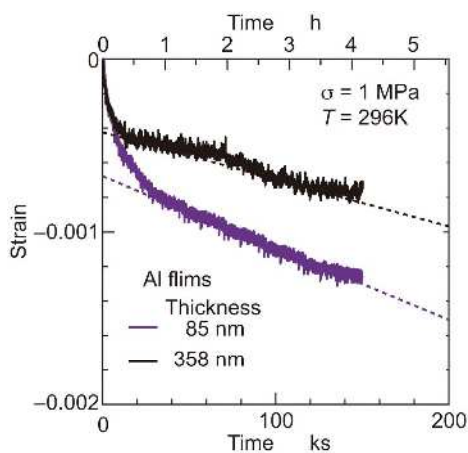


図 3 Al 薄膜の時間とひずみの関係（クリープ曲線、室温大気中、応力: 1MPa）

厚 85 nm と 358 nm のクリープ線図（時間とひずみの関係）を示すが、薄膜が徐々に収縮する特異なクリープ現象（負のクリープ速度）を呈し、しかも膜厚が小さいほうが大きな負のクリープ速度をとる。これは、薄膜では表面・粒界拡散によりクリープは促進されるが、膜厚が 100 nm 程度まで小さくなるとエネルギーの高い表面を減らそうとする駆動力が支配的となって、膜厚が小さくなるとクリープ速度が低下したことを示している。

一方、融点の高い Au 薄膜（膜厚: ~ 400 nm<sup>(7)</sup>, ~ 240 nm<sup>(8)</sup>）では、絶対温度で表した融点（ $\approx 1338\text{K}$ ）の 1/3 より低い室温でも遷移・定常・加速クリープからなる典型的なクリープ挙動（クリープ指数: 3.6 ~ 6.0）を呈すること、クリープき裂進展速度はクリープ J 積分で整理できる<sup>(7)</sup>ことが明らかになっている。さらに、クリープき裂進展過程をその場で高分解能 FESEM 観察と電子後方散乱 (EBSD) 解析を実施した<sup>(9)</sup>結果、主き裂前方で面外クリープ変形によって窪み状変形を生じた後、その領域の粒界でボイド形成、続いてボイド同士・ボイドと主き裂の合体によりき裂が進展した。ボイド発生箇所はバルク材で見られる粒界三重点や荷重負荷方向に対して直角方向の粒界ではなく、面外方向に変形して形成された窪んだ領域であること、膜厚が小さいことに起因して面外方向のクリープ変形が支配的になることを特徴とし、バルク材と大きく異なる。

### 3. 疲労特性

厚さ 500 nm の Cu 薄膜の疲労き裂進展速度  $da/dN$  に及ぼす応力比  $R (= K_{\min}/K_{\max}, K_{\min}$ : 最小応力拡大係数,  $K_{\max}$ : 最大応力拡大係数) の影響を応力拡大係数範囲  $\Delta K$ , 最大応力拡大係数  $K_{\max}$  で整理した結果を図 4<sup>(10)</sup>に示す。 $\Delta K$  で整理すると  $R$  が大きいほど  $da/dN$  が加速し、き裂進展の下限界値  $\Delta K_{\text{th}}$  が低下する。一方、 $K_{\max}$  で整理すると、高  $K_{\max}$  領域 ( $K_{\max} \geq 4.5 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ ) の  $da/dN$  には  $R$  の影響は見られない。これは、静的破壊モードが支配的になったためであり、き裂先端前方に面外すべりによる窪み状変形が生じて破壊し、破面は過負荷破壊（引張・破壊じん性試験<sup>(3)</sup>）と同様に破面中央が引き延ばされたチゼルポイント型破面を呈する。一方、低  $K_{\max}$  領域では、 $R$  が小さいほど  $da/dN$  は加速する。このときの疲労き裂の FESEM 像を図 5<sup>(10)</sup>に示すよ

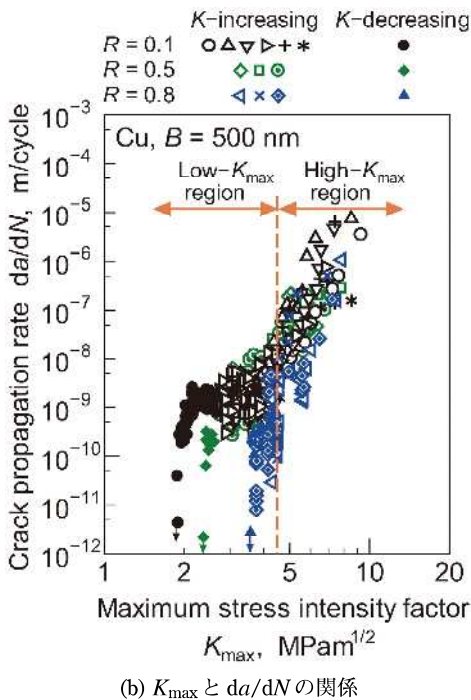
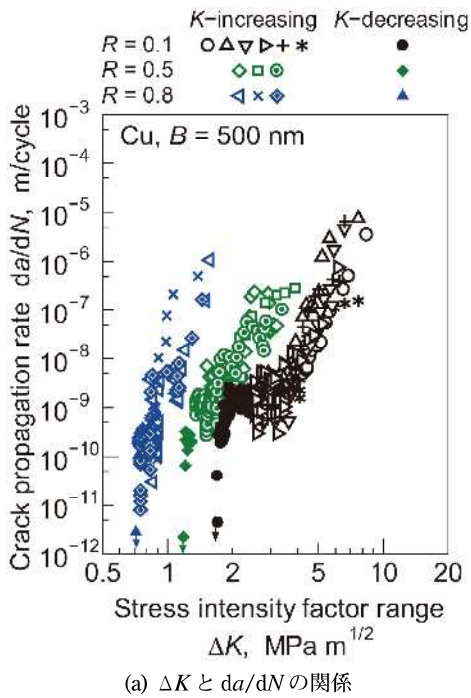


図4 Cu 薄膜（膜厚：約500nm）の室温大気中の疲労き裂進展特性に及ぼす応力比の影響

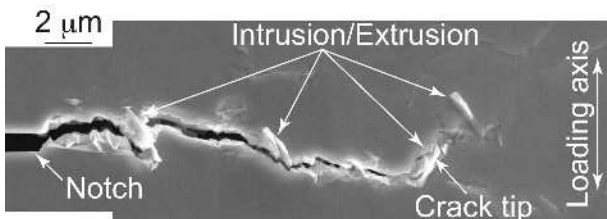


図5 Cu 薄膜（膜厚：～500nm）の疲労き裂のFESEM像（室温大気中、 $R = 0.1$ 、低  $K_{max}$  ( $\Delta K$ ) 領域： $K_{max} = 2.8$   $MPa m^{1/2}$ 、 $\Delta K = 2.5$   $MPa m^{1/2}$ ）

うに、き裂先端前方に双晶境界に沿った面外方向の入込み・突出し状損傷が形成され、き裂はそれらを経由して進展する。このように、バルク材では疲労き裂発生段階のみで現れる面外の表面損傷形成機構が薄膜の疲労き裂進展を支配することを特徴とする。膜厚が100 nmとさらに小さくなると、膜厚500 nmの $\Delta K_{th}$ より小さい $\Delta K$ でもき裂は進展するものの、結晶粒径が極めて小さい箇所ではき裂進展の停留現象が見られる<sup>(11)</sup>。

疲労き裂発生<sup>(12)</sup>についてみると、厚さ500 nmのCu薄膜では、柱状晶のうち膜厚方向に貫通し、しかも分解せん断応力が最大となる双晶境界に沿って入込み・突出しを生じ、それを起点として疲労き裂が成長する。この時の入込み・突出しを生じる分解せん断応力は単結晶・双結晶Cuバルク材に比べて極めて大きくなる。一方、疲労き裂進展特性を微細結晶粒（結晶粒径：500 nm）を有するCuバルク材（板厚：5 mm）と比較すると、バルク材の $\Delta K_{th}$ は500 nm厚のCu薄膜より若干大きいものの近い値をとるが、安定成長領域の $da/dN$ は薄膜のほうが大きい<sup>(10)</sup>。したがって、応力集中部を有する薄膜微小構造体では下限界特性が特に重要となり、下限界値を上昇させるような薄膜構造を解明することが必要となる。

#### 4. 終わりに

金属薄膜のクリープ・疲労の基礎特性について述べたが、破壊じん性値は膜厚が小さくなるとともに低下する<sup>(3, 13)</sup>こと、真空中の疲労き裂進展速度は、安定成長領域ではバルク材と同様に真空中のほうが大気中より低下するものの、下限界値は逆に真空中のほうが小さくなること<sup>(14)</sup>、さらに表面酸化皮膜の有無が薄膜の破壊じん性値<sup>(15)</sup>等に影響を及ぼすことなど、バルク材の場合とは異なる強度特性や現象が現れることが明らかになりつつある。MEMS/NEMSや電子デバイス等の合理的な設計基準の確立や信頼性を確保するためには、薄膜等の微小材料の種々の条件下の強度特性やその支配力学を一刻も早く解明することが重要となる。

金属薄膜の破壊じん性、クリープ、疲労特性に関する研究は主として科学研究補助金・基盤研究(A) (No. 23246026) 及び基盤研究(S) (No. 26220901) の助成を受けて実施した。記して謝意を表する。

## 参考文献

1. 例えば K. Komai, K. Minoshima and S. Inoue, *Microsyst. Technol.*, **5**, 1998, 30; K. Minoshima, T. Terada and K. Komai, *Fatigue Fract. Eng. Mater. Struct.*, **23**, 2000, 1033; C.L. Muhlstein, E.A. Stach and R.O. Ritchie, *Appl. Phys. Lett.*, **80**, 2002, 1532.
2. 例えば H.D. Espinosa, B.C., Prorok and B. Peng, *J. Mech. Phys. Solids*, **52**, 2004, 667.
3. H. Hirakata, O. Nishijima, N. Fukuhara, T. Kondo, A. Yonezu and K. Minoshima, *Mater. Sci. Eng. A-Struct. Mater.*, **528**, 2011, 8120.
4. 近藤, 今岡, 平方, 米津, 崎原, 箕島, 日本機械学会論文集A編, **78**, 2012, 808.
5. H. Hirakata, N. Fukuhara, S. Ajioka, A. Yonezu, M. Sakihara and K. Minoshima, *Acta Mater.*, **60**, 2012, 4438.
6. 近藤, 秦, 平方, 崎原, 箕島, *材料*, **65**, 2016, 869.
7. H. Hirakata, T. Kameyama, R. Kotoge, T. Kondo, M. Sakihara and K. Minoshima, *Int. J. Fract.*, **201**, 2016, 127.
8. H. Hirakata, R. Kotoge, T. Kameyama, T. Kondo, M. Sakihara and K. Minoshima, *Procedia Struct. Integrity*, **2**, 2016, 1335.
9. 近藤, 井上, 平方, 箕島, *材料*, **67**, 2018, 1050.
10. T. Kondo, T. Imaoka, H. Hirakata, M. Sakihara and K. Minoshima, *Acta Mater.*, **61**, 2013, 6310.
11. T. Kondo, H. Hirakata and K. Minoshima, *Int. J. Fatigue*, **103**, 2017, 444.
12. T. Kondo, X. Bi, H. Hirakata and K. Minoshima, *Int. J. Fatigue*, **82**, 2016, 12.
13. T. Kondo, K. Hiramane, H. Hirakata and K. Minoshima, *Eng. Fract. Mech.*, **200**, 2018, 521.
14. T. Kondo, A. Shin, M. Akasaka, H. Hirakata and K. Minoshima, *Fatigue Fract. Eng. Mater. Struct.*, DOI: 10. 1111/ffe. 12976, in press.
15. 近藤, 三木, 平方, 箕島, 日本機械学会 M&M2018 材料力学講演会講演論文集, No. 18-53, 2018, GS-152.

