

## 亀裂先端でのプラストン

田中將己\* 定松 直\*\* 奥山彫夢\*\*\*

## 1. はじめに

BCC 金属や Si などの半導体材料は転位移動度に強い温度依存性があり、明瞭な脆性-延性遷移 (BDT: brittle-to-ductile transition) 挙動を示す。Si 単結晶の場合、パイエルスポテンシャルが高いため、常温では亀裂先端で転位が発生せず亀裂が容易に進展し脆性的に破壊してしまう。しかし、ある一定温度以上になると、転位易動度が増し、亀裂先端で転位が発生・増殖が起こることによって亀裂の進展が抑制され延性的になる<sup>(1)</sup>。亀裂先端では応力集中が生じ、そこにかかる局所的応力は遠方応力と比較して極めて高くなる。高応力下で発生するプラストンは平閘材内で発生するプラストンとは異なる可能性が考えられ、亀裂先端におけるプラストン学理の構築も極めて重要となる。そこで本研究は、超高圧電子顕微鏡法 (high-voltage electron microscopy: HVEM) とコンピュータトモグラフィ (computed tomography: CT) を組み合わせ、Si 結晶中の亀裂先端近傍に発生した転位の 3 次元構造を明らかにし、亀裂先端でのプラストンの核生成挙動を明らかにした結果について述べる。

## 2. 微視的格子欠陥の巨視的破壊靱性への寄与

亀裂先端近傍の応力  $\sigma_{ij}$  は、亀裂先端を原点として極座標  $(r, \theta)$  の位置において次式で与えられる。

$$\sigma_{ij} = \frac{K_I f_{ij}(\theta)}{\sqrt{r}} \quad (1)$$

ここで、 $K_I$  は外力による応力拡大係数、 $f_{ij}(\theta)$  は  $\theta$  に依存す

る関数である。亀裂先端近傍に転位が導入されると、それら転位により生み出される亀裂先端近傍の応力場も式 (1) と同様の形式で、式 (2) のように書ける。

$$\sigma_{ij}^D = \frac{k_D f_{ij}(\theta)}{\sqrt{r}} \quad (2)$$

ここで  $k_D$  は転位による応力拡大係数への寄与である。そこで、戴荷状態で転位が存在する場合の応力  $\sigma_{ij}^T$  は、式 (3) のように書ける。

$$\sigma_{ij}^T = \sigma_{ij} + \sigma_{ij}^D = \frac{k_I f_{ij}(\theta)}{\sqrt{r}} \quad (3)$$

ここで

$$k_I = K_I + k_D \quad (4)$$

と表され、 $k_I$  は局部応力拡大係数と呼ばれ、外力からの寄与  $K_I$  ばかりでなく、亀裂端近傍に存在する転位など弾性特異点からの内部応力の寄与  $k_D$  も考慮した、亀裂先端に実質的に存在する応力拡大係数である<sup>(1)(2)</sup>。転位が導入された場合、その転位による  $k_D$  は、一般に外力による応力集中を緩和する (遮蔽する) ように働く。すなわち引張外力のもとで導入された転位の内部応力場は圧縮場として作用し、 $k_D < 0$  となる。この圧縮応力場は、外力による引張応力集中を緩和 (遮蔽) し、破壊靱性値を上昇させる。

## 3. 実験方法

本研究では、供試材として板面 {100} または {110}、厚さ 0.63 mm の Si 単結晶ウェーハを用いた。そのウェーハを 10 mm × 10 mm に切りだし、マイクロビッカース硬度計を用いて、荷重 200 g、保持時間 5 s で 170 μm × 500 μm 間隔で約

\* 九州大学大学院工学研究院材料工学部門; 教授 (〒819-0395 福岡市西区元岡744)

\*\* 鹿児島大学大学院理工学研究科工学専攻機械工学プログラム; 准教授

\*\*\* 木更津工業高等専門学校電子制御工学科; 准教授

Plaston at a Crack Tip; Masaki Tanaka\*, Sunao Sadamatsu\*\* and Yelm Okuyama\*\*\* (\*Department of Materials, Kyushu University, Fukuoka. \*\*Department of Mechanical Engineering, Kagoshima University, Kagoshima. \*\*\*Department of Control Engineering, National Institute of Technology, Kisarazu College, Kisarazu)

Keywords: *plaston, dislocation, crack, fracture, toughness, high-voltage electron microscopy*

2022年7月11日受理 [doi:10.2320/materia.61.844]

140個圧痕を付与し圧痕の四方から亀裂を導入した．その後600℃～700℃で1時間保持し亀裂先端に転位を発生させた．その後，亀裂先端近傍を含む領域をイオンミリングにより薄膜化し観察に供した．トモグラフ観察を行うために，試料ホルダーを約2°ステップずつ傾斜させ像を取得した<sup>(4)(5)</sup>．

#### 4. 亀裂先端転位のHVEM観察

図1に試料を薄膜法線方位[011]から傾斜させて観察した転位発生極初期の(100)亀裂先端近傍におけるHVEM明視野(BF)像を示す．図1(a)において，亀裂前縁にはモアレフリンジを伴った1本の転位と，亀裂からやや離れた位置に3本の転位セグメントが観察される．転位の消滅実験より，これらモアレフリンジを伴わない三本の転位のバーガースベクトルは， $a$ を格子定数として，何れも $a/2[\bar{1}01]$ であった．明視野と暗視野で生じる転位の振動コントラストの反転を利用して，バーガースベクトルの符号も決定した<sup>(6)(7)</sup>．その結果，これらの転位はFS/RHコンベンション<sup>(8)</sup>で定義すると左巻きらせん成分と正の刃状成分をもつ60°転位であることが明らかとなった．次に亀裂前縁に見られる積層欠陥を伴った転位の性格付けを行った．

モアレフリンジは積層欠陥の変位ベクトルを $\mathbf{R}$ とすると， $\mathbf{g} \cdot \mathbf{R} = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$ の条件で消滅する<sup>(9)</sup>．図1(b)に $\mathbf{g} = 202$ におけるBF像を示す．この回折条件では，図1(a)では見られていたモアレフリンジは消え，亀裂先端から伸びる転位セグメントが観察される． $\mathbf{g} = 202$ においてモアレフリンジは消滅するが，モアレフリンジを生じさせる積層欠陥の端にある転位が消滅しないことから，この積層欠陥は，先行部分転位のバーガースベクトルが $a/6[\bar{2}1\bar{1}]$ となる90°部分転位であることが明らかとなった．ここで注目すべき点は，亀裂先端で放出される転位は，完全転位では無く拡張転位である事である．これは，亀裂先端でのプラストンからバーガースベクトルが $a/2[\bar{1}01]$ となる完全転位では無く， $a/6[\bar{2}1\bar{1}]$ となる拡張転位が励起され放出されたことを示している．そこで

この拡張転位発生の選択が力学的に起こりうるかを検証するために，転位放出のための局部応力拡大係数の計算を行った．

2次元問題において，Mode Iの変位に対して完全転位が放出されるための局部応力拡大係数は次式で与えられる．

$$k_{Ie, perfect} = \frac{\mu}{\sqrt{2\pi r_c}} \frac{b_s^2 + b_e^2 (1-\nu)^{-1}}{b_e \sin \theta \cos \frac{\theta}{2}} \quad (5)$$

なお， $b_e$ は転位の刃状成分の大きさ， $b_s$ はらせん成分の大きさ， $r_c$ は転位コアの半径， $\theta$ は迂り面と亀裂面との角度である．

部分転位が放出される場合には，積層欠陥を伴うので積層欠陥エネルギーを $\gamma_{SF}$ とすると，次式で与えられる．

$$k_{Ie, partial} = \frac{\mu}{\sqrt{2\pi r_c}} \frac{b_s^2 + b_e^2 (1-\nu)^{-1}}{b_e \sin \theta \cos \frac{\theta}{2}} + \frac{2\sqrt{2\pi r_c}}{b_e \sin \theta \cos \frac{\theta}{2}} \cdot \gamma_{SF} \quad (6)$$

ここでシリコンの物性値である $\mu = 0.681 \times 10^{11}$  Pa,  $\nu = 0.218$ ,  $a = 5.431 \times 10^{-10}$  m,  $\gamma_{SF} = 50 \times 10^{-3}$  Jm<sup>-2</sup>を用い<sup>(8)</sup>，亀裂コアサイズを $r_c = 2.716 \times 10^{-9}$  mとして亀裂先端から完全転位，60°転位，90°転位が放出される際の局部応力拡大係数を計算した．その結果，それぞれ0.46 MPa·m<sup>1/2</sup>, 0.31 MPa·m<sup>1/2</sup>, 0.54 MPa·m<sup>1/2</sup>となり，60°転位を放出させるための局部応力拡大係数が最も小さいことが明らかとなった．このことは，先のHVEM観察による解析結果と一致する．

次に，やや転位の増殖が進んだ際の亀裂先端HVEM像を図2に示す．亀裂前方および側面において転位に起因するコントラストが見られる．この二次現象からだけでは，転位の3次元構造が不明であるため，試料ホルダーを±約50°傾斜させて，転位の3次元構造解析を行った．その結果，これらの転位は(1 $\bar{1}$ 1)面上に乗っている事が明らかとなった．また，亀裂側面にある転位セグメントは(1 $\bar{1}$ 1)面から(11 $\bar{1}$ )面に交叉迂りを起こしている事が明らかとなった．また，これら転位のバーガースベクトルは消滅実験より $a/2[011]$ である事も明らかとなった．この観察結果から考えられる亀裂先端での初期転位発生過程を示す．まず，図3(a)に示すよう

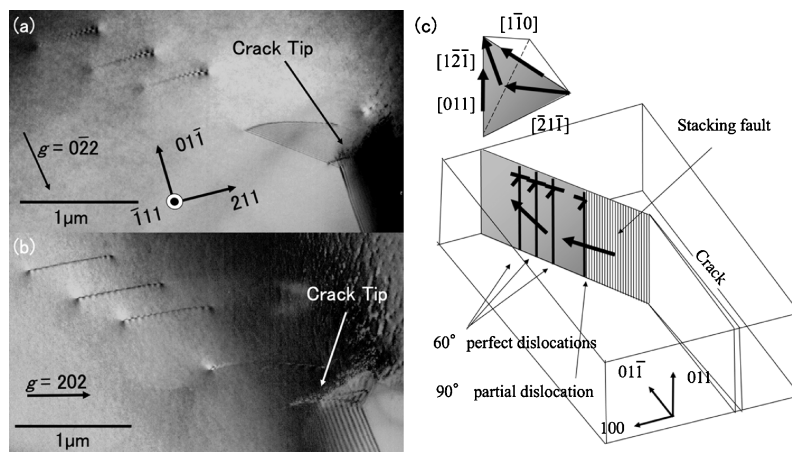


図1 (a) 板面(01 $\bar{1}$ )のSiウェーハに導入された亀裂と先端のHVEM-BF像．[ $\bar{1}11$ ]入射， $\mathbf{g} = 022$ ．(b) [ $\bar{1}11$ ]入射， $\mathbf{g} = 202$ ，(c) 亀裂先端転位の模式図．

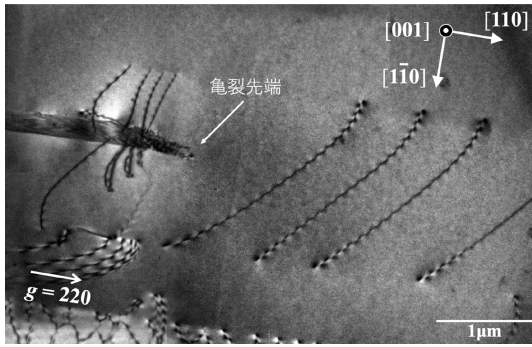


図2 板面(001)のSiウェーハに導入された亀裂と先端のHVEM-BF像.

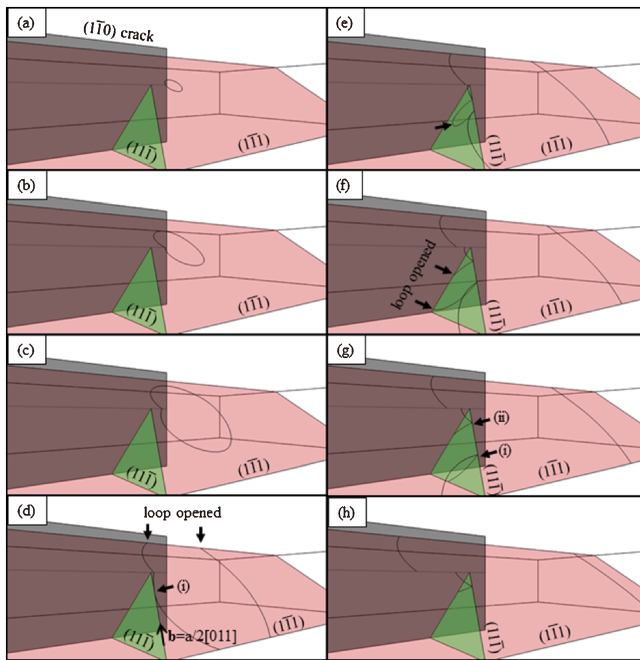


図3 図2で見られた転位構造への発達過程.

に、 $(\bar{1}10)$ 亀裂前縁上にある転位源から $(1\bar{1}1)$ すべり面に乗った転位ループが発生する。そしてそのループは(a)~(c)で示すように、ループ形状を保ったまま成長する。この時、(d)で示すように転位ループの一部が試料表面に到達し外に抜けるため、試料内部では開いた転位ループが直線状に残る。(d)中(i)で示している転位セグメントはバーガースベクトルが $a/2[011]$ の純らせん転位であり、 $(1\bar{1}1)$ 面から $(11\bar{1})$ 面に交叉迂りを起こす。更に、そのセグメントは(e)で示すように亀裂面に向かって運動し、亀裂面に到達して表面へ抜け、(d)中の(i)、(ii)で示しているノードが試料内部に残される。ノード(i)は試料下部へ運動できるが、ノード(ii)はそのノードを引っ張る転位の線張力がお互いにキャンセルし合うため、動く事が出来ず亀裂側面に留まる。その結果、亀裂周辺には(f)で示すような転位セグメントが薄膜内に残される事になる。更に亀裂先端から転位が放出されると、同様のプロセスをたどり最終的には(f)と同様の構造になるが、交

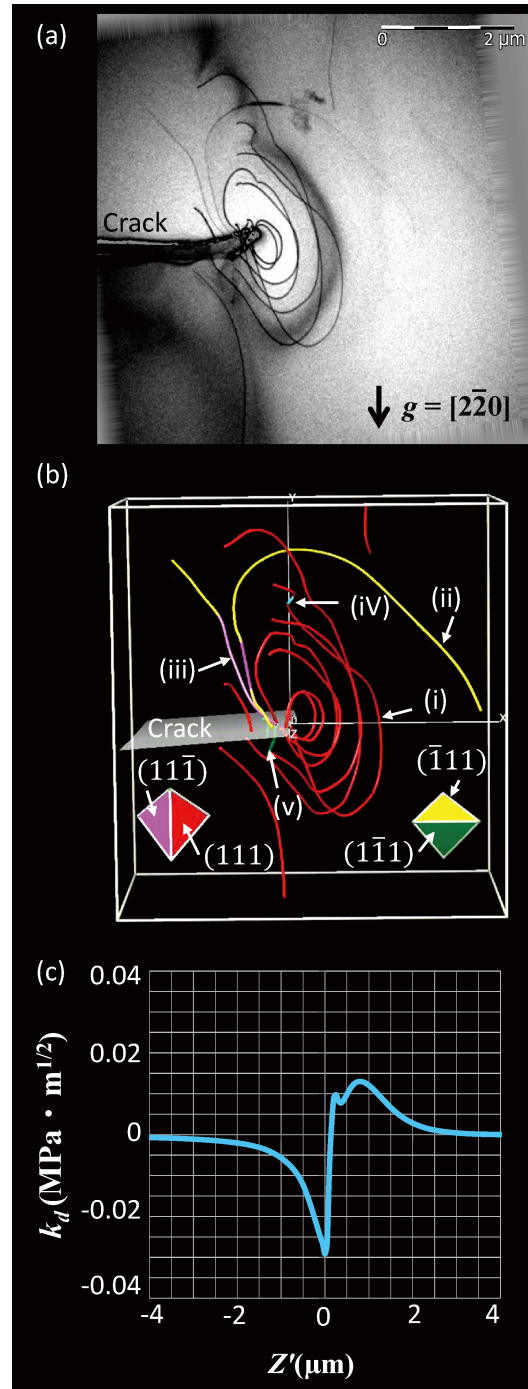


図4 (a) 亀裂先端 HVEM 像. (b) 転位の 3次元再構成像, (c) 観察された転位による局部応力拡大係数.

交叉迂りを起こす際には最初に交叉迂りを起こした転位セグメントが乗っている面と将に同じ $(11\bar{1})$ 面ではなく、平行に並んでいる別の $(11\bar{1})$ 面上に交叉迂りを起こす。3番目4番目に亀裂先端から放出される転位も同様のプロセスをたどる事によって図2で見られた転位構造になる。

図4(a)に亀裂先端での転位増殖が更に進んだ試料で観察したBF像を示す。亀裂先端に異なる迂り面の乗っている多数の転位ループが観察された。トモグラフ観察により、これら転位の構造とバーガースベクトルを決定した結果を図4

(b)に示す。転位の回り系ごとに色分けをし、(i), (ii), (iii), (iv), (v)で示す転位の回り系はそれぞれ(111)[1 $\bar{1}$ 0], ( $\bar{1}$ 11)[101], (11 $\bar{1}$ )[101], (11 $\bar{1}$ )[1 $\bar{1}$ 0], (1 $\bar{1}$ 1)[101]であった。電子線トモグラフィーの利点は、これら転位の3次元座標を得ることができる点にある。

転位による局部応力拡大係数は、亀裂前縁の各座標によって異なる。ここで亀裂の進展方向をx軸、亀裂前縁をz軸上に取ると、亀裂前縁上の座標(0, 0, z')におけるmode Iの局部応力拡大係数は次式で与えられる<sup>(10)</sup>。

$$k_{Ii}(z') = -2\mu b_j \oint_c D_{jk}^i dx_k \quad (7)$$

ここで、 $b_j$ (j=x, y, or z)はバーガースベクトルの成分、 $dx_k$ (k=x, y, or z)は転位線に沿った積分経路の各成分、 $D_{jk}^i$ はBuecknerポテンシャルの偏微分である。

これら転位による局部応力拡大係数の値を図4(c)に示す。横軸は亀裂前縁の座標、縦軸が局部応力拡大係数である。転位ループの中心では、局部応力拡大係数の値が負になっており、局所的に亀裂前縁が圧縮応力を受けている事が分かる。一方、転位ループの外側(ループの中心から約1 $\mu$ m離れた所)では局部応力拡大係数の値が正になっており、局所的に引張の応力集中が生じている事が分かる。図4(b)より、実際に観察された亀裂前縁での転位源間隔も約1 $\mu$ mであり、解析結果と良く対応する。このことから、亀裂前縁では先に発生した転位によって生じる引張の応力集中部で新たなプラストンの核生成が励起され、そこから新しい回り転位が発生している事が明らかとなった。

## 5. おわりに

亀裂先端に発生するHVEM観察を用いた、亀裂先端で転位解析より、プラストンからどのような転位が励起されるかが明らかとなった。まず、積層欠陥エネルギーがあまり高くない結晶では、亀裂先端からの転位は、完全転位では無くショックレーの拡張転位として積層欠陥を伴って放出される。先行転位の発生後、しばらくしてから後続転位が発生する。後続転位発生直後は、積層欠陥エネルギーから期待される幅よりも広い積層欠陥幅となるため、発生後直ちに期待される積層欠陥幅まで後続転位が追いつき、亀裂先端にあった積層欠陥は収縮する。

一端転位ループが発生すると、回り面が亀裂前縁に対して傾いている場合、転位ループの内にある亀裂前縁は転位による圧縮の応力を受けるが、転位ループの外側では、引張の応力を受けるため、その引張の応力拡大係数がピークとなる点

で次のプラストンの核生成が励起され、そこから新たな転位が発生する。亀裂先端のプラストンから発生する転位の亀裂進展抑制効果が亀裂面と回り面との関係で異なることも明らかになってきており、これらの結果は亀裂進展抑制効果の高い微細組織の方位制御による靱性向上と言う設計指針へと繋がる事が期待される。

本研究の一部は、文部科学省・元素戦略プロジェクト、京都大学・構造成材料元素戦略研究拠点からの助成を受けて行われたものである。同拠点から頂いた種々の御支援に感謝申し上げます。

## 文 献

- (1) I. H. Lin and R. Thomson: *Acta Metall.*, **34**(1986), 187–206.
- (2) N. Narita, K. Higashida and S. Kitano: *Script. Metall.*, **21**(1987), 1273–1278.
- (3) A. A. Griffith: *Philos. Trans. R. Soc. London Ser. A*, **221**(1921), 582–593.
- (4) S. Hata, H. Miyazaki, S. Miyazaki, M. Mitsuhashi, M. Tanaka, K. Kaneko, K. Higashida, K. Ikeda, H. Nakashima, S. Matsumura, J. S. Barnard, J. H. Sharp and P. A. Midgley: *Ultramicroscopy*, **111**(2011), 1168–1175.
- (5) M. Tanaka, K. Higashida, K. Kaneko, S. Hata and M. Mitsuhashi: *Scr. Mater.*, **59**(2008), 901–904.
- (6) K. Higashida, N. Narita, M. Tanaka, T. Morikawa, Y. Miura and R. Onodera: *Philos. Mag. A*, **82**(2002), 3263–3273.
- (7) M. Tanaka and K. Higashida: *J. Electron Microscopy*, **53**(2004), 505–509.
- (8) J. P. Hirth and J. Lothe: *Theory of dislocations*, McGraw-Hill, (1986), 19–25.
- (9) L. Reimer: *Transmission electron microscopy*, Springer, (1997), 381–383.
- (10) H. Gao: *J. Mech. Phys. Solids*, **39**(1991), 157–172.

★★

田中將己  
2005年 九州大学大学院工学府博士後期課程修了  
2012年4月–2018年7月 九州大学工学研究院材料工学部門准教授  
2018年8月–現職  
専門分野：結晶塑性学、金属破壊学  
◎転位論を基盤としミクロな挙動とマクロな破壊挙動の関連付けを進める研究を中心に活動。

★★



田中將己



定松 直



奥山影夢