繊維配向を有する立方晶多結晶体の X 線応力測定法[†]

田中啓介* 石原啓策** 井上馨**

A Method of X-Ray Stress Measurement for Cubic Polycrystals with Fiber Texture

by

Keisuke TANAKA*, Keisaku ISHIHARA** and Kaoru INOUE**

A new method of X-ray stress measurement was proposed for cubic polycrystals having the [111] fiber texture with the fiber axis perpendicular to the specimen surface. The relation between the strain measured by the X-ray method and the stress was derived on the bases of Reuss and Voigt models. The procedure to determine the residual stresses in aluminum thin films having the [111] fiber texture was presented. The X-ray strain was measured at the inclination angle $\psi=0^\circ$ and 70.5° for 222 diffraction, and $\psi=29.5^\circ$ and 58.5° for 311 diffraction. The values of in-plane stresses, σ_{11} , σ_{22} and σ_{12} , and out-of-plane stress, σ_{33} , were determined from the measured strains. For the case of equi-biaxial stresses, i. e. $\sigma_{11}=\sigma_{22}=\sigma$, both models give the identical relation between the X-ray strain and $\sin^2\psi$. The stress can be determined from the slope of the linear relation.

Key words: X-ray stress measurement, Cubic crystal, Fiber texture, Reuss model, Voigt model

1 緒言

ランダムな方位を有する多結晶体の X 線応力測定には、いわゆる $\sin^2\psi$ 法が用いられる。これはひずみと $\sin^2\psi$ (ただし ψ は回折面法線と試料面法線とのなす角) とが直線関係になることを利用し、回帰直線の勾配より応力を決定する¹⁾。しかし、多結晶体が配向しているとき、 $\sin^2\psi$ 線図は必ずしも直線とはならない。

英²⁾らは、六方晶の窒化アルミニウム (AlN) の c 軸 ([001] 方向) が、試料面垂直方向に配向した場合に関して、等 2 軸応力状態の仮定のもとにひずみと $\sin^2\psi$ が直線関係になることを見出し、それをもとにした X 線応力測定法を提案した。このとき、c 軸は試料面に垂直となる繊維組織 (Fiber texture) をしており、試料面内では回転対称で横等方性を示す。

この様な多結晶体の繊維組織は最近の新素材において多く認められる。例えば、アルミニウム (Al) 薄膜をシリコン (Si) ウェーハ上にスパッタリングした場合^{3),4)}、ステンレス基板上にモリブデンをスパッタリングした場合⁵⁾、 β -Si のウィスカが一方に並んだ Al 複合材料の場合⁶⁾などは、いずれも立方晶の [111] 方向を繊維軸とする繊維配向をしている。また、クロムめっき膜も [111] 繊維配向を持つ⁷⁾。

本研究では、立方晶が [111] 方向を繊維軸とする繊維組織を有し、かつ繊維軸が試料表面に垂直の場合について、Reuss モデル⁸⁾、および Voigt モデル⁹⁾による 3 軸応力の X 線解析の手法を提案する。

2 立方晶の [111] 繊維軸が試料面に垂直の場合

合の Reuss モデルによる解析

2.1 ひずみと応力の関係

Fig. 1 に示すように、測定試料の座標系 (P_i) を原点を O として P_3 軸が板面に垂直となる様にとる。さらに、実験室座標系 (L_i) を図に示すようにとるとともに、原点 O に結晶座標系 (X'_i) を定める。これら 3 座標系間の変換行列を Fig. 2 に示すように、 γ , π , ω とする。また、 P_i 系、 X'_i 系、 L_i 系の応力テンソル、ひずみテンソルを $(\sigma_{ij}, \epsilon_{ij})$, $(\sigma'_{ij}, \epsilon'_{ij})$, $(\sigma^L_{ij}, \epsilon^L_{ij})$ で表す。

結晶座標系 (X'_i) は [111] を X'_3 とするもので、立方晶における結晶座標系 (X_i) に対して Fig. 3 に示す関係にある。このときの座標変換行列を $\alpha_{ij}(X'_i = \alpha_{ij}X_j)$ とすると、 X'_i 系のコンプライアンス s'_{ijkl} は、結晶座標系 (X_i) のコンプライアンス s_{ijkl} より、次式で求まる。

$$s'_{ijkl} = \alpha_{ip}\alpha_{jq}\alpha_{kr}\alpha_{ls} s_{pqrs} \quad (1)$$

ここで、同一添字で総和規約を用いる。座標変換行列は

Fig. 1. Coordinates of specimen system, P_i , laboratory system, L_i , and crystal system, X'_i .

[†] 原稿受理 平成 8 年 2 月 1 日 Received Feb. 1, 1996

* 正会員 名古屋大学工学研究科機械工学教室 〒464-01 名古屋市中種区不老町, Dept. of Mech. Eng., Nagoya Univ., Chikusa-ku, Nagoya, 464-01

** 学生会員 名古屋大学大学院 〒464-01 名古屋市中種区不老町, Graduate Student, Nagoya Univ., Chikusa-ku, Nagoya, 464-01

次式で与えられる.

$$\{\alpha_{ij}\} = \begin{bmatrix} 1/\sqrt{6} & 1/\sqrt{6} & -\sqrt{2/3} \\ -1/\sqrt{2} & 1/\sqrt{2} & 0 \\ 1/\sqrt{3} & 1/\sqrt{3} & 1/\sqrt{3} \end{bmatrix} \quad (2)$$

この変換座標系に対するコンプライアンス s'_{ijkl} を Voigt の表示を用いて行列表示すると次のようになる.

$$\{s_{ij}\} = \begin{bmatrix} s'_{11} & s'_{12} & s'_{13} & 0 & s'_{15} & 0 \\ s'_{12} & s'_{11} & s'_{13} & 0 & -s'_{15} & 0 \\ s'_{13} & s'_{13} & s'_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & s'_{44} & 0 & -2s'_{15} \\ s'_{15} & -s'_{15} & 0 & 0 & s'_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -2s'_{15} & 0 & 2(s'_{11}-s'_{12}) \end{bmatrix} \quad (3)$$

ただし, 式中の s'_{ij} は立方晶のコンプライアンス s_{11} , s_{12} , s_{44} と次の関係がある.

$$\left. \begin{aligned} s'_{11} &= \frac{1}{2}s_{11} + \frac{1}{2}s_{12} + \frac{1}{4}s_{44} \\ s'_{12} &= \frac{1}{6}s_{11} + \frac{5}{6}s_{12} - \frac{1}{12}s_{44} \\ s'_{13} &= \frac{1}{3}s_{11} + \frac{2}{3}s_{12} - \frac{1}{6}s_{44} \\ s'_{33} &= \frac{1}{3}s_{11} + \frac{2}{3}s_{12} + \frac{1}{3}s_{44} \\ s'_{44} &= \frac{4}{3}s_{11} - \frac{4}{3}s_{12} + \frac{1}{3}s_{44} \\ s'_{15} &= -\frac{\sqrt{2}}{3}s_{11} + \frac{\sqrt{2}}{3}s_{12} + \frac{\sqrt{2}}{6}s_{44} \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

X 線法では L_3 方向の垂直ひずみ ϵ'_{33} を測定するが, これと試料座標系で与えられるマクロ応力 σ_{pq} との関係を求める. Reuss モデルでは, 各結晶に加わる応力はマクロ応力に等しい. ここで, 応力およびひずみの変換公式と単結晶の応力ひずみの関係は次のようになる.

$$\epsilon'_{33} = \gamma_{3i} \gamma_{3j} \epsilon_{ij}^* \quad (5)$$

$$\epsilon_{ij}^* = s_{ijkl} \sigma_{kl}^* \quad (6)$$

$$\sigma_{kl}^* = \pi_{pk} \pi_{ql} \sigma_{pq} \quad (7)$$

従って, ϵ'_{33} として次式が求まる.

$$\epsilon'_{33} = \gamma_{3i} \gamma_{3j} s_{ijkl} \pi_{pk} \pi_{ql} \sigma_{pq} \quad (8)$$

式(8)を式(3)の s'_{ij} を使って展開する.

$$\epsilon'_{33} = [\gamma_{31}^2 (s'_{11} \pi_{p1} \pi_{q1} + s'_{12} \pi_{p2} \pi_{q2} + s'_{13} \pi_{p3} \pi_{q3} + s'_{15} \pi_{p3} \pi_{q1}) + \gamma_{32}^2 (s'_{12} \pi_{p1} \pi_{q1} + s'_{11} \pi_{p2} \pi_{q2} + s'_{13} \pi_{p3} \pi_{q3} - s'_{15} \pi_{p3} \pi_{q1}) + \gamma_{33}^2 (s'_{13} \pi_{p1} \pi_{q1} + s'_{15} \pi_{p3} \pi_{q1} + \gamma_{33}^2 (s'_{13} \pi_{p1} \pi_{q1} + s'_{13} \pi_{p2} \pi_{q2} - 2s'_{15} \pi_{p1} \pi_{q2}) + \gamma_{33} \gamma_{31} (s'_{15} \pi_{p1} \pi_{q1} - s'_{15} \pi_{p2} \pi_{q2} + s'_{44} \pi_{p3} \pi_{q1}) + \gamma_{31} \gamma_{32} (-2s'_{15} \pi_{p2} \pi_{q3} + 2(s'_{11} - s'_{12}) \pi_{p1} \pi_{q2})] \sigma_{pq} \quad (9)$$

ここで, 座標変換行列 ω は, Fig. 1 を参照して次式となる.

$$\omega = \begin{bmatrix} \cos\phi \cos\phi & \cos\phi \sin\phi & -\sin\phi \\ -\sin\phi & \cos\phi & 0 \\ \sin\phi \cos\phi & \sin\phi \sin\phi & \cos\phi \end{bmatrix} \quad (10)$$

また, γ は ω および π と次の関係にある.

$$\gamma_{ij} = \omega_{im} \pi_{mj} \quad (11)$$

Fig. 1 に示すように P_3 方向に $X'_3[111]$ 軸が一致しており, X'_1 軸と P_1 軸の間の角を β とすると,

$$\pi = \begin{bmatrix} \cos\beta & \sin\beta & 0 \\ -\sin\beta & \cos\beta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (12)$$

このとき, γ は式(11)より

$$\gamma = \begin{bmatrix} \cos\phi \cos(\phi+\beta) & \cos\phi \sin(\phi+\beta) & -\sin\phi \\ -\sin(\phi+\beta) & \cos(\phi+\beta) & 0 \\ \sin\phi \cos(\phi+\beta) & \sin\phi \sin(\phi+\beta) & \cos\phi \end{bmatrix} \quad (13)$$

式(12), (13)を式(9)に代入して, 整理すると次式を得る.

$$\begin{aligned} \epsilon'_{33} &= [(s'_{11} + s'_{12} - s'_{13})\sigma_{11} - s'_{13}\sigma_{22} \\ &\quad + (s'_{13} - s'_{33})\sigma_{33}] \sin^2\psi \\ &\quad + s'_{13}(\sigma_{11} + \sigma_{22}) + s'_{33}\sigma_{33} \\ &\quad + [(\sigma_{22} - \sigma_{11})(s'_{11} \sin^2\phi + s'_{12} \cos^2\phi) \\ &\quad + (s'_{11} - s'_{12})\sigma_{12} \sin 2\phi \\ &\quad + s'_{15}(\sigma_{31} \cos(2\phi + 3\beta) \\ &\quad - \sigma_{32} \sin(2\phi + 3\beta))] \sin^2\psi \\ &\quad + \left[\frac{s'_{15}}{2} (\sigma_{11} - \sigma_{22}) \cos(\phi + 3\beta) \right. \\ &\quad \left. - 2\sigma_{12} \sin(\phi + 3\beta) + \frac{s'_{44}}{2} (\sigma_{31} \cos\phi \right. \\ &\quad \left. + \sigma_{32} \sin\phi) \right] \sin 2\psi \end{aligned} \quad (14)$$

ついで, $\sigma_{31} = \sigma_{32} = 0$ とすれば,

$$\begin{aligned} \epsilon'_{33} &= [(s'_{11} + s'_{12} - s'_{13})\sigma_{11} - s'_{13}\sigma_{22} \\ &\quad + (s'_{13} - s'_{33})\sigma_{33}] \sin^2\psi \\ &\quad + s'_{13}(\sigma_{11} + \sigma_{22}) + s'_{33}\sigma_{33} \end{aligned}$$

Fig. 2. Transformation of matrices.

Fig. 3. Transformation of cubic crystal axes.

を得る。式(15)が Clemens と Bain が求めた式と一致することは容易に確かめられる。

$$\varepsilon_{33}^L = (s'_{11} + s'_{12} - 2s'_{13})\sigma \sin^2 \Psi + 2s'_{13}\sigma \quad (16)$$

$$\epsilon_{33}^L = \frac{1}{2}s_{44}\sigma \sin^2\psi + \frac{1}{3}(2s_{11} + 4s_{12} - s_{44})\sigma \quad (17)$$

2・2 測定ひずみからの応力の決定

本研究で提案する測定法を、次報ではシリコンウェハ上にスパッタリングしたアルミニウム薄膜に応用することを第一の目的としている。この場合、特性 X 線 $\text{Cr-K}\alpha$ 線を使用して 222 回折および 311 回折のひずみを測定する。

$$\bar{\varepsilon}_{33}^L = S'_{13}(\sigma_{11} + \sigma_{22}) + S'_{33}\sigma_{33} \quad (18)$$

$$\begin{aligned} \varepsilon_{33}^L = & [(\sigma'_{11} - \sigma'_{13})\sigma_{11} + (\sigma'_{12} - \sigma'_{13})\sigma_{22} \\ & + (\sigma'_{13} - \sigma'_{33})\sigma_{33}] \sin^2 \Psi \\ & + \frac{\sigma'_{15}}{2} (\sigma_{11} - \sigma_{22}) \sin 2\Psi \\ & + \sigma'_{13} (\sigma_{11} + \sigma_{22}) + \sigma'_{33} \sigma_{33} \end{aligned} \quad (19)$$

一方, 311 回折は, $\psi=29.5^\circ$ および 58.5° で起こる. $\phi=0^\circ$ の場合に, 回折に寄与する回折面の β 角を Table I にまとめる. 測定ひずみは, $\psi=29.5^\circ$ で $\beta=\pm 60^\circ$ お

Fig. 4. Stereographic projection of poles for cubic crystal.

Table I. Orientation of diffracting crystals.

Ψ	29.5°	58.5°	70.5°
β	60° [13]	30° [$1\bar{3}\bar{1}$]	
	-60° [$3\bar{1}\bar{1}$]	-30° [$3\bar{1}\bar{1}$]	0° [$1\bar{1}\bar{1}$]
	180° [$1\bar{1}\bar{3}$]	90° [$\bar{1}\bar{3}\bar{1}$]	120° [$\bar{1}\bar{1}\bar{1}$]
		-90° [$3\bar{1}\bar{1}$]	-120° [$1\bar{1}\bar{1}$]
		150° [$\bar{1}\bar{1}\bar{3}$]	
		-150° [$\bar{1}\bar{1}\bar{3}$]	

$$\begin{aligned} \bar{\varepsilon}_{33}^L = & [(s'_{11} - s'_{13})\sigma_{11} + (s'_{12} - s'_{13})\sigma_{22} \\ & + (s'_{13} - s'_{33})\sigma_{33}] \sin^2 \Psi \\ & + \frac{s'_{15}}{2} (\sigma_{22} - \sigma_{11}) \sin 2\Psi \end{aligned}$$

$$+ s'_{13}(\sigma_{11} + \sigma_{22}) + s'_{33}\sigma_{33} \quad (20)$$

 $\psi = 58.5^\circ$ のとき

$$\begin{aligned} \bar{\varepsilon}_{33}^L = & [(s'_{11} - s'_{13})\sigma_{11} + (s'_{12} - s'_{13})\sigma_{22} \\ & + (s'_{13} - s'_{33})\sigma_{33}] \sin^2 \Psi \\ & + s'_{13}(\sigma_{11} + \sigma_{22}) + s'_{33}\sigma_{33} \end{aligned} \quad (21)$$

$\phi=45^\circ, 90^\circ$ の場合には, Fig. 4 から $\phi=0^\circ$ のときの各回折角の β 角 (Table I に示されている) を β_0 としたときに $\beta=\beta_0-45^\circ, \beta=\beta_0-90^\circ$ とそれぞれ置き換えれば $\phi=0^\circ$ の場合と同様に考えることができる.

$\phi=45^\circ$ の場合の測定ひずみと応力の関係式は $\phi=0^\circ$ のとき

$$\bar{\varepsilon}_{33}^L = S'_{13}(\sigma_{11} + \sigma_{22}) + S'_{33}\sigma_{33} \quad (22)$$

 $\psi = 29.5^\circ$ のとき

$$\begin{aligned} \bar{\varepsilon}_{33}^L = & \frac{1}{2}[(s'_{11} + s'_{12} - 2s'_{13})(\sigma_{11} + \sigma_{22}) + 2(s'_{13} - s'_{33})\sigma_{33} \\ & + 2(s'_{11} - s'_{12})\sigma_{12}]\sin^2\psi - s'_{15}\sigma_{12}\sin 2\psi \\ & + s'_{13}(\sigma_{11} + \sigma_{22}) + s'_{33}\sigma_{33} \end{aligned} \quad (23)$$

 $\psi = 58.5^\circ$ のとき

$$\bar{\varepsilon}_{33}^L = \frac{1}{2} [(s'_{11} + s'_{12} - 2s'_{13})(\sigma_{11} + \sigma_{22}) + 2(s'_{13} - s'_{33})\sigma_{33} + 2(s'_{11} - s'_{12})\sigma_1] \sin^2 \Psi$$

$$+s'_{13}(\sigma_{11}+\sigma_{22})+s'_{33}\sigma_{33} \quad (24)$$

$\phi=70.5^\circ$ のとき

$$\begin{aligned} \bar{\epsilon}_{33}^L = & \frac{1}{2}[(s'_{11}+s'_{12}-2s'_{13})(\sigma_{11}+\sigma_{22})+2(s'_{13}-s'_{33})\sigma_{33} \\ & +2(s'_{11}-s'_{12})\sigma_{12}]\sin^2\Psi + s'_{15}\sigma_{12}\sin 2\Psi \\ & +s'_{13}(\sigma_{11}+\sigma_{22})+s'_{33}\sigma_{33} \end{aligned} \quad (25)$$

同様に $\phi=90^\circ$ の場合を考えると, $\phi=0^\circ$ のとき

$$\bar{\epsilon}_{33}^L = s'_{13}(\sigma_{11}+\sigma_{22})+s'_{33}\sigma_{33} \quad (26)$$

$\phi=29.5^\circ$ のとき

$$\begin{aligned} \bar{\epsilon}_{33}^L = & [(s'_{12}-s'_{13})\sigma_{11}+(s'_{11}-s'_{13})\sigma_{22} \\ & +(s'_{13}-s'_{33})\sigma_{33}]\sin^2\Psi + \frac{s'_{15}}{2}(\sigma_{11} \\ & -\sigma_{22})\sin 2\Psi + s'_{13}(\sigma_{11}+\sigma_{22})+s'_{33}\sigma_{33} \end{aligned} \quad (27)$$

$\phi=58.5^\circ$ のとき

$$\begin{aligned} \bar{\epsilon}_{33}^L = & [(s'_{12}-s'_{13})\sigma_{11}+(s'_{11}-s'_{13})\sigma_{22} \\ & +(s'_{13}-s'_{33})\sigma_{33}]\sin^2\Psi + s'_{15}(\sigma_{11}+\sigma_{22}) \\ & +s'_{33}\sigma_{33} \end{aligned} \quad (28)$$

$\phi=70.5^\circ$ のとき

$$\begin{aligned} \bar{\epsilon}_{33}^L = & [(s'_{12}-s'_{13})\sigma_{11}+(s'_{11}-s'_{13})\sigma_{22} \\ & +(s'_{13}-s'_{33})\sigma_{33}]\sin^2\Psi \\ & +\frac{s'_{15}}{2}(\sigma_{22}-\sigma_{11})\sin 2\Psi \\ & +s'_{13}(\sigma_{11}+\sigma_{22})+s'_{33}\sigma_{33} \end{aligned} \quad (29)$$

次に, 式(18)~(29)をもとにして応力を求める方法について述べる. まず, 測定ひずみより次式で定義する F_I , F_{II} を求める.

$$F_I = \frac{\bar{\epsilon}_{33}^L(\phi=0^\circ)+\bar{\epsilon}_{33}^L(\phi=90^\circ)}{2} \quad (30)$$

$$F_{II} = \frac{\bar{\epsilon}_{33}^L(\phi=0^\circ)-\bar{\epsilon}_{33}^L(\phi=90^\circ)}{2} \quad (31)$$

次に, ϕ の関数 Y を定義する.

$$Y = \frac{s'_{11}-s'_{12}}{2}\sin^2\Psi + \eta \cdot \frac{s'_{15}}{2}\sin 2\Psi \quad (32)$$

ただし,

$$\left. \begin{aligned} \eta &= -1 \quad (\Psi=29.5^\circ) \\ \eta &= 0 \quad (\Psi=58.5^\circ) \\ \eta &= 1 \quad (\Psi=70.5^\circ) \end{aligned} \right\} \quad (33)$$

とする. このように求まる F_I , F_{II} は, ϕ 角にかかわらず次の関係が成立する.

$$\begin{aligned} F_I = & \left[\frac{s'_{11}+s'_{12}-2s'_{13}}{2}(\sigma_{11}+\sigma_{22})+(s'_{13} \right. \\ & \left. -s'_{33})\sigma_{33} \right] \sin^2\Psi + s'_{13}(\sigma_{11}+\sigma_{22})+s'_{33}\sigma_{33} \end{aligned} \quad (34)$$

$$F_{II} = (\sigma_{11}-\sigma_{22})Y \quad (35)$$

ここで, 式(34)では F_I と $\sin^2\phi$ の間, 式(35)では F_{II} と Y の間に各々直線関係があり, 各々の傾きと切片から3つの未知応力成分 σ_{11} , σ_{22} , σ_{33} を決定することができる.

次に $\phi=45^\circ$ の場合の測定ひずみより σ_{12} を求める. 実験より得られるひずみ $\bar{\epsilon}_{33}^L(\phi=45^\circ)$ と式(34), (35)より得られた応力値 σ_{11} , σ_{22} , σ_{33} から次式で定義される F_{III} を各 ϕ 値について求める.

$$\begin{aligned} F_{III} = & -\left[\frac{s'_{11}+s'_{12}-2s'_{13}}{2}(\sigma_{11}+\sigma_{22})+(s'_{13} \right. \\ & \left. -s'_{33})\sigma_{33} \right] \sin^2\Psi + \bar{\epsilon}_{33}^L(\phi=45^\circ) \end{aligned} \quad (36)$$

このとき, 式(22)~(25)から

$$F_{III} = 2\sigma_{12}Y + s'_{13}(\sigma_{11}+\sigma_{22})+s'_{33}\sigma_{33} \quad (37)$$

が得られ, F_{III} と $2Y$ の間に直線関係があることがわかる. σ_{12} はこの直線の傾きから得られる.

上式において $\sigma_{33}=0$ の場合, 式(34)で F_I と $\sin^2\phi$ の直線関係の勾配および F_{II} と Y の間の直線関係の勾配から σ_{11} , σ_{22} が決定できることになり, 通常の $\sin^2\phi$ 法の場合と同様に無ひずみでの回折角の測定誤差が応力値に与える影響は小さい.

2・3 機械的コンプライアンス

Reuss モデルによる機械的弾性定数は, 式(15)において β を 0 から 2π まで平均して求まるマクロひずみ $\bar{\epsilon}_{33}^L$ とマクロ応力 σ_{pq} との関係から定まる. その関係には s'_{15} が含まれず, 他のコンプライアンスはそのままである. つまり, 式(3)において $s'_{15}=0$ とおいたものが機械的コンプライアンスである. 機械的⁽¹⁾コンプライアンスは六方晶のコンプライアンスと同一の型となり, $[111]$ 軸に垂直な面内で横等方性を持つ.

3 立方晶の $[111]$ 繊維軸が試料面に垂直の

場合の Voigt モデルによる解析

3・1 Voigt モデルによる弾性定数

式(1)~(4)と同様の計算手順より, 結晶座標系 (X_i) における弾性定数 c'_{ij} は, X_i 系の弾性定数 c_{11} , c_{12} , c_{44} を用いて次の様に行列表示される.

$$\{c'_{ij}\} = \begin{bmatrix} c'_{11} & c'_{12} & c'_{13} & 0 & c'_{15} & 0 \\ c'_{12} & c'_{11} & c'_{13} & 0 & -c'_{15} & 0 \\ c'_{13} & c'_{13} & c'_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & c'_{44} & 0 & -c'_{15} \\ c'_{15} & -c'_{15} & 0 & 0 & c'_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -c'_{15} & 0 & \frac{1}{2}(c'_{11}-c'_{12}) \end{bmatrix} \quad (38)$$

ただし,

$$\left. \begin{aligned} c'_{11} &= \frac{1}{2}c_{11} + \frac{1}{2}c_{12} + c_{44} \\ c'_{12} &= \frac{1}{6}c_{11} + \frac{5}{6}c_{12} - \frac{1}{3}c_{44} \\ c'_{13} &= \frac{1}{3}c_{11} + \frac{2}{3}c_{12} - \frac{2}{3}c_{44} \\ c'_{33} &= \frac{1}{3}c_{11} + \frac{2}{3}c_{12} + \frac{4}{3}c_{44} \\ c'_{44} &= \frac{1}{3}c_{11} - \frac{1}{3}c_{12} + \frac{1}{3}c_{44} \\ c'_{15} &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left[-\frac{1}{3}c_{11} + \frac{1}{3}c_{12} + \frac{2}{3}c_{44} \right] \end{aligned} \right\} \quad (39)$$

Voigt モデルでは各結晶のひずみはマクロひずみ ϵ_{pq} と等しい. Fig. 1 に示す L_3 方向の垂直応力 σ_{33}^L とマクロひずみ ϵ_{pq} の関係を求めると次式の様になる.

$$\begin{aligned} \sigma_{33}^L = & [(c'_{11}+c'_{12}-c'_{13})\epsilon_{11}-c'_{13}\epsilon_{22}+(c'_{13} \\ & -c'_{33})\epsilon_{33}]\sin^2\Psi + c'_{13}(\epsilon_{11}+\epsilon_{22})+c'_{33}\epsilon_{33} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 &+[(\varepsilon_{22}-\varepsilon_{11})(c'_{11}\sin^2\phi+c'_{12}\cos^2\phi) \\
 &+(c'_{11}-c'_{12})\varepsilon_{12}\sin 2\phi+2c'_{15}\varepsilon_{31}\cos(2\phi \\
 &+3\beta)-\varepsilon_{32}\sin(2\phi+3\beta)]\sin^2\psi \\
 &+[c'_{15}(\varepsilon_{11}-\varepsilon_{22})\cos(\phi+3\beta)-2\varepsilon_{12}\sin(\phi+3\beta)] \\
 &+c'_{44}(\varepsilon_{31}\cos\phi+\varepsilon_{32}\sin\phi)]\sin 2\psi \quad (40)
 \end{aligned}$$

式(38)において $\varepsilon_{31}=\varepsilon_{32}=0$ とし, β が 0 から 2π まで変化するときの平均をとれば, マクロ応力 $\bar{\sigma}_{33}$ とマクロひずみの関係式として次式を得る.

$$\begin{aligned}
 \bar{\sigma}_{33}^L &=[(c'_{11}+c'_{12}-c'_{13})\varepsilon_{11}-c'_{13}\varepsilon_{22} \\
 &+(c'_{13}-c'_{33})\varepsilon_{33}]\sin^2\psi \\
 &+[(\varepsilon_{22}-\varepsilon_{11})(c'_{11}\sin^2\phi+c'_{11}\cos^2\phi) \\
 &+(c'_{11}-c'_{12})\varepsilon_{12}\sin 2\phi]\sin^2\psi \\
 &+c'_{13}(\varepsilon_{11}+\varepsilon_{22})+c'_{33}\varepsilon_{33} \quad (41)
 \end{aligned}$$

上式において, c'_{15} を含んだ項は存在しない. このとき, 機械的な弾性定数を行列表示すれば,

$$\{\tilde{c}_{ij}'\} = \begin{bmatrix} c'_{11} & c'_{12} & c'_{13} & 0 & 0 & 0 \\ c'_{12} & c'_{11} & c'_{13} & 0 & 0 & 0 \\ c'_{13} & c'_{13} & c'_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & c'_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & c'_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{2}(c'_{11}-c'_{12}) \end{bmatrix} \quad (42)$$

となる. これに対応するコンプライアンス s'_{ij} を行列表示すれば, 立方晶のコンプライアンス s_{11} , s_{12} , s_{44} を用いて次式の様になる.

$$\{s'_{ij}\} = \begin{bmatrix} s'_{11} & s'_{12} & s'_{13} & 0 & 0 & 0 \\ s'_{12} & s'_{11} & s'_{13} & 0 & 0 & 0 \\ s'_{13} & s'_{13} & s'_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & s'_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & s'_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 2(s'_{11}-s'_{12}) \end{bmatrix} \quad (43)$$

ただし,

$$\left. \begin{aligned} s'_{11} &= \frac{1}{3}s_{11} + \frac{2}{3}s_{12} + \frac{11}{24}s_{44} - \frac{3s_{44}^2}{8(4s_{11}-4s_{12}+s_{44})} \\ s'_{12} &= \frac{1}{3}s_{11} + \frac{2}{3}s_{12} - \frac{7}{24}s_{44} + \frac{3s_{44}^2}{8(4s_{11}-4s_{12}+s_{44})} \\ s'_{13} &= \frac{1}{3}s_{11} + \frac{2}{3}s_{12} - \frac{1}{6}s_{44} \\ s'_{33} &= \frac{1}{3}s_{11} + \frac{2}{3}s_{12} + \frac{1}{3}s_{44} \\ s'_{44} &= \frac{3s_{44}(s_{11}-s_{12})}{s_{11}-s_{12}+s_{44}} \end{aligned} \right\} \quad (44)$$

3・2 測定ひずみと応力の関係

式(43)で示されるコンプライアンス s'_{ij} は六方晶単結晶の場合と同一の形をしており, その形から結晶座標 X_3 軸に垂直な面内では横等方性を示すことがわかる. また, このことは次に述べる式(45)が結晶方位 β に依存しないことからわかる. 多結晶体の変形に対する Voigt モデルによる X 線の弾性定数は, 機械的な弾性定数と一致する. 従って, Voigt モデルにおける L_3 方向の垂直ひずみ ε_{33}^L と試料座標系における負荷応力 σ_{pq} の関係式はコンプライアンス s'_{ij} を用いて前2・1節と同様の手法にて求められる.

X 線法で測定される垂直ひずみ ε_{33}^L は式(14)を参照して応力 σ_{pq} との関係式として次式で表される.

$$\begin{aligned}
 \varepsilon_{33}^L &=[(s'_{11}+s'_{12}-s'_{13})\sigma_{11}-s'_{13}\sigma_{22} \\
 &+(s'_{13}-s'_{33})\sigma_{33}]\sin^2\psi \\
 &+s'_{13}(\sigma_{11}+\sigma_{22})+s'_{33}\sigma_{33} \\
 &+[(\sigma_{22}-\sigma_{11})(s'_{11}\sin^2\phi+s'_{12}\cos^2\phi) \\
 &+(s'_{11}-s'_{12})\sigma_{12}\sin 2\phi]\sin^2\psi \\
 &+\frac{s'_{44}}{2}(\sigma_{31}\cos\phi+\sigma_{32}\sin\phi)\sin 2\psi \quad (45)
 \end{aligned}$$

ついで, 上式で $\sigma_{31}=\sigma_{32}=0$ とすれば, ε_{33}^L と $\sin^2\phi$ の関係が直線関係になる. ここで, $\phi=0^\circ$ のとき

$$\begin{aligned}
 \varepsilon_{33}^L &=[(s'_{11}-s'_{13})\sigma_{11}+(s'_{12}-s'_{13})\sigma_{22} \\
 &+(s'_{13}-s'_{33})\sigma_{33}]\sin^2\psi \\
 &+s'_{13}(\sigma_{11}+\sigma_{22})+s'_{33}\sigma_{33} \quad (46)
 \end{aligned}$$

$\phi=90^\circ$ のとき

$$\begin{aligned}
 \varepsilon_{33}^L &=[(s'_{12}-s'_{13})\sigma_{11}+(s'_{11}-s'_{13})\sigma_{22} \\
 &+(s'_{13}-s'_{33})\sigma_{33}]\sin^2\psi \\
 &+s'_{13}(\sigma_{11}+\sigma_{22})+s'_{33}\sigma_{33} \quad (47)
 \end{aligned}$$

また, $\phi=45^\circ$ 方向では,

$$\begin{aligned}
 \varepsilon_{33}^L &=\frac{1}{2}[(s'_{11}+s'_{12}-2s'_{13})(\sigma_{11}+\sigma_{22}) \\
 &+2(s'_{13}-s'_{33})\sigma_{33} \\
 &+2(s'_{11}-s'_{12})\sigma_{12}]\sin^2\psi \\
 &+s'_{13}(\sigma_{11}+\sigma_{22})+s'_{33}\sigma_{33} \quad (48)
 \end{aligned}$$

である. $\phi=0^\circ, 45^\circ, 90^\circ$ 方向の ε_{33}^L と $\sin^2\phi$ の関係より, σ_{11} , σ_{22} , σ_{33} および σ_{12} の 4 成分を決定することができる.

上式において $\sigma_{33}=0$ とすると, $\phi=0^\circ$ と 90° における ε_{33}^L と $\sin^2\phi$ の直線関係の勾配のみから σ_{11} , σ_{22} が決まり, 無ひずみの回折角 θ_0 の測定精度は問題とならない.

さらに $\sigma_{33}=0$ で, かつ等 2 軸応力 $\sigma_{11}=\sigma_{22}=\sigma$ のとき, 式(46)~(48)より

$$\varepsilon_{33}^L = (s'_{11}+s'_{12}-2s'_{13})\sigma\sin^2\psi + 2s'_{13}\sigma \quad (49)$$

を得る. ここで, 式(44)を用いて s'_{ij} に書き直すと次式となる.

$$\varepsilon_{33}^L = \frac{1}{2}s_{44}\sigma\sin^2\psi + \frac{1}{3}(2s_{11}+4s_{12}-s_{44})\sigma \quad (50)$$

この等 2 軸応力の場合の式(50)は, 式(17)と同一となり, Voigt モデルと Reuss モデルの関係式は一致する. この場合も通常の $\sin^2\phi$ 法と同様に, ε_{33}^L と $\sin^2\phi$ の直線関係から得られる勾配のみから応力が決定できる.

4 結 言

[111] 繊維配向する立方晶多結晶中で繊維軸が試料面に垂直な場合について, Reuss モデルおよび Voigt モデルにより X 線応力測定の基礎式を導出した. ついで, アルミニウム薄膜への適用を目的として, Cr-K α 線を使用した場合の傾斜角 $\phi=0^\circ$ と 70.5° の 222 回折および $\phi=39.5^\circ$ と 58.5° の 311 回折による測定ひずみを用いた応力決定法を提案した.

試料表面上のせん断応力 $\sigma_{13}=\sigma_{23}=0$ のとき, Reuss モデルでは $\phi=0^\circ$ と $\phi=90^\circ$ のひずみの和と差が ϕ の関数と直線関係にあることから, σ_{11} , σ_{22} , σ_{33} を決定し, $\phi=45^\circ$ の測定より σ_{12} を決定する. 一方, Voigt モデルで

は, $\phi=0^\circ, 45^\circ, 90^\circ$ のいずれにおいても測定ひずみと $\sin^2\phi$ は直線関係となり, その傾きと縦軸との切片より, $\sigma_{11}, \sigma_{22}, \sigma_{33}, \sigma_{12}$ を決定できる.

さらに, 等 2 軸応力状態 $\sigma_{11}=\sigma_{22}=\sigma$ のときには, 両モデルにおいて測定ひずみと $\sin^2\phi$ は直線関係となり, その傾きより σ が決定される.

次報では, この方法をシリコンウェーハ上にスパッタリングしたアルミニウム薄膜中の残留応力測定に適用する.

参 考 文 献

- 1) 日本材料学会編, “X 線応力測定法”, p.54 (1981) 養賢堂.
- 2) 英 崇夫, 富永喜久夫, 藤原晴夫, 材料, **42**, 90 (1993).
- 3) 河野有美子, 山本 浩, 太田与洋, 片山道雄, 日本材料学会第29回 X 線材料強度に関する討論会講演論文集, p.45 (1992).
- 4) M. A. Korhonen and C. A. Paszkiet, Scripta Met., **23**, 1449 (1989).
- 5) M. Zaouali, J. L. Lebrun and P. Gergaud, Surf. Coat. Technol., **50**, 5 (1991).
- 6) P. J. Withers, D. J. Jensen, H. Lilholt and W. M. Stobbs, Proc. ICCM-6/ECCM-2, **2**, 255 (1987) Elsevier.
- 7) H. U. Baron and V. Hauk, Z. Metallkde, **79-2**, 127 (1988).
- 8) A. Reuss, Z. angew. Math. Mech., **9**, 49 (1929).
- 9) W. Voigt, Lehrbuch der Kristallphysik, p. 962 (1928) Teubner, Leipzig.
- 10) B. M. Clemens and J. A. Bain, MRS Bulletin, **17-7**, 46 (1992).
- 11) J. F. Nye, Physical Properties of Crystals, p. 141 (1957) Oxford Science Publication.