Au 蒸着膜の疲労破壊*

保坂 哲也**

(昭和58年12月16日 受理)

Fatigue Fracture of Evaporated Au Films

Tetsuya HOSAKA

(Institute of Technology, Kanto Gakuin University, 4834 Mutsuura,
Kanazawa-ku, Yokohama-shi, Kanagawa 236)

(Received December 16, 1983)

The propagation of tensile fatigue fracture of vacuum-evaporated gold films was observed in the scanning electron microscope by mounting the film on rubber substrate. Gold films from 580 to 810 Å in thickness used in this study were heated at different temperatures ranging from 300 to 700°C. The fatigue tests were conducted at room temperature under tension-tension cycling using a strain range (0.3–0.6%), and a test frequency of one cycle per 2 seconds. The strain cycling was continued until distinct holes were observed in the film. Fatigue fracture was occurred by growth and coalescence of microholes within the plastic bands. Propagation of cracks in a linear array would be expected to induce total fracture only if resulting hole size approached the critical fracture width. The total cycles up to fracture (fatigue life) was usually of the order of 50 to 400 cycles.

1. ま え が き

真空蒸着膜に繰返し引張り歪を印加して、破壊伝播過程を直接観察することは、金属薄膜の疲労寿命を予測する上で重要と考える。従来、 μm オーダーの膜厚試料に繰返し応力を印加して、膜内に起こる転位の動きを連続的に透過電顕観察する研究が行われた¹⁻⁵⁾。しかし、蒸着膜の機械的強度については、静的引張り破壊⁶⁻¹⁴⁾の検討が多く疲労破壊観察を行った報告はないようである。

本研究は走査電顕内の引張り装置で、膜厚580~810 Å 範囲の Au 蒸着膜に、静的引張り破壊歪以下の繰返しサイクル歪 (0.3~0.6%) を与えながら、疲労破壊伝播を起こし走査電顕観察した。疲労破壊試料は、ネオプレンゴム基板に Au 膜を直接付着させて作製した^{13,15)}。さらに、膜破壊部分は伝播機構を詳しく調べるため、基板から剝離して透過電顕観察で検討した。

各膜厚での疲労破壊観察を行った結果、破壊過程はま

ず引張りサイクルで直線状の塑性変形部 (以下塑性バンドとよぶ) を形成する。次に、塑性バンドに沿って微小 hole 部を生じ、合体成長しながらクラック伝播を起こすことがわかった。この疲労破壊伝播は、すでに報告した静的引張り破壊¹³⁾の結晶学的な粒内破壊と比較して、明らかに異った破壊形態であった。また、Au 膜の疲労寿命は 50~400回の破壊サイクル数を示し、加熱処理温度の増加にしたがって低くなったので、これ等の結果について述べる。

2. 試料の作製法

Au 膜は抵抗加熱法により、約 5×10^{-6} Torr の真真空度で蒸着し、厚さが 580 Å, 690 Å として 810 Å の薄膜を石英ガラス板 (8 × 8 × 2 mm 厚) 上に得た。膜厚測定は水晶振動子と蛍光 X 線法により求めた。その後、Au 膜は、基板に平行な {111} 面をもつ結晶粒子を凝集成長させるために、ベルジャー内の円筒形アルミるつぼで、300~700°C 範囲の加熱処理を 10 分間行い、室温まで自然冷却した。疲労破壊試料の作製は、まず石英ガラス板上の

* 昭和58年 9 月 28 日 第44回応用物理学会学術講演会で講演

** 関東学院大学工学総合研究所 (神奈川県横浜市金沢区六浦町4834)

Fig. 1 Tensile fatigue spectrum of vacuum-evaporated Au film.

Au 膜をフッ酸水溶液中に浸せきして剥離する。次に、膜は蒸留水の入ったシャーレに移し、ネオプレンゴム基板 (10×45×1 mm 厚) の中央部に直接すくい上げ、余分な水分をろ紙で吸い取った後、自然乾燥させることによって付着した。

3. 観 察 法

疲労破壊観察は、ネオプレンゴム基板上に Au 膜を付着させて作った試料を、走査電顕内の歯車伝達式引張り装置に取り付け、繰返し引張り歪を印加しながら走査像観察した。本実験の歪振幅は、加熱処理した膜厚 400~800 Å 範囲の静的¹³⁾引張り破壊歪が、約 1.7% を示した結果から、0.3% と 0.6% 間に設定した。またサイクル周期は 2 秒とした。Fig. 1 は、基板に付着した Au 膜の弾性特性を調べた結果である。装置のノブ回転で起こる引張りサイクル歪は、約 40 倍の走査電顕像をノギスで測定した。図から明らかなように、Au 膜には 0.3~0.6% の引張り歪を印加した。Au 膜に発生する疲労破壊伝播は、50 サイクル毎に歪印加を停止して、膜全体の走査像観察 (約 40 倍) によって検出した。さらに膜破壊部分は、アロン A-10 H¹⁶⁾ の接着剤を塗った銅円柱で、ネオプレンゴム基板から剥離後、透過電顕観察で詳しく伝播機構の検討を行った。

4. 観察結果および考察

4.1 破壊サイクル数

Fig. 2 は、加熱処理した膜厚 580 Å, 690 Å, 810 Å の Au 蒸着膜に、0.3~0.6% 間で繰返し引張り歪を印加して、疲労破壊させた破壊サイクル数を示したものであ

Fig. 2 Effect of heating temperature on cycles to fracture of Au films.

Fig. 3 Scanning electron micrograph of the fatigue appearance in a 690 Å-thick Au film heated at 500°C. Cycles to fracture : 100.

る。各膜厚では、室温で 300~400 回の破壊サイクル数になったが、加熱温度の増加にしたがって 50~150 サイクルに低下した。また、膜厚 810 Å での破壊サイクル数は各温度での 580 Å, 690 Å 膜のそれと比べて高くなり膜厚依存性を示した。したがって、加熱処理した約 1000 Å 以下の Au 膜は、400 回以下の低サイクルで疲労破壊を起こすことがわかった。

4.2 破壊伝播過程の観察

Fig. 3 は、走査電顕内で繰返し引張り歪を膜厚 690 Å,

Fig. 4 (a) Scanning electron micrograph of the fracture propagation in a 580Å-thick Au film heated at 300°C. Cycles to fracture : 150. (b) Transmission electron micrograph corresponding to (a).

Fig. 5 Transmission electron micrographs of the fracture propagation in a 580Å-thick Au film heated at 500°C. Cycles to fracture : 100. (b) Same as (a), at a higher magnification.

500°C加熱処理膜に印加し、100サイクル後の疲労破壊状態を比較的低倍率で走査像観察した結果である。走査像から、引張りサイクル歪の印加方向に対して90°方向で直線状の塑性バンド（矢印A）が多数起こった。また、矢印Bで示した部分は、石英ガラス板上に蒸着したAu膜を加熱処理した際、半球状¹⁴⁾に剝離した状態であるが、塑性バンドの形成に影響を与えないものと考ええる。

Fig. 4 は膜厚 580 Å, 300°C加熱膜が 150サイクル後に疲労破壊を起こした状態である。Fig. 4(a)の走査像観察では、繰返し引張り歪で生じた塑性バンドに沿って数百Åの微小 hole（矢印A）、および合体部分（矢印B）が不連続に観察された。この伝播状態は、すでに報告^{13,15)}した引張り破壊観察で、(111)面結晶粒子が[110]方向に60°あるいは120°の粒内破壊伝播を示した結果と比較して、明らかに異っているため疲労破壊の特徴的なパター

ンであると考えられた。Fig. 4(b)は、Fig. 4(a)の膜破壊部分をネオプレンゴム基板から剝離して、透過電顕観察したものである。透過像から、黒帯状の塑性バンド（矢印A）に沿った結晶粒界で、クラック（矢印B）が伝播していた。

Fig. 5 は膜厚 580 Å, 500°C加熱膜が 100サイクルで起こした疲労破壊を、透過電顕観察した結果である。Fig. 5(a)の膜破壊状態は、塑性バンド方向に沿って伝播した粒子状破壊、および直線的なクラック（矢印）を示した。また Fig. 5(b)は、Fig. 5(a)の破壊伝播部分を高倍率で透過像観察したものである。膜内の結晶粒界では、Fig. 4と同様な数百Åの微小 hole（矢印A）、そして0.1 μm程度の粒子状破壊（矢印B）が明らかに観察され、連結合体してクラック伝播（矢印C）を起こしたことがわかった¹⁷⁾。

Fig. 6 (a) Scanning electron micrograph of the fracture propagation in a 690Å-thick Au film heated at 400°C. Cycles to fracture : 100. (b) Transmission electron micrograph corresponding to (a).

Fig. 7 Transmission electron micrographs of the tip of the fracture in 690Å-thick Au films. (a) as-evaporated, after 350 cycles. (b) heated at 300°C, after 200 cycles.

Fig. 6 は膜厚 690 Å, 400°C加熱膜が 100サイクルで疲労破壊伝播を起こした状態である。Fig. 6(a)の走査像観察から、約0.5 μm幅の塑性バンド領域に生じた微小 hole (矢印A) は、細長く合体成長して不連続破壊した。また破壊伝播部分からは、側面の膜内に疲労破壊(矢印B)を進展させた状態が観察された。Fig. 6(b)は、Fig. 6(a)の破壊状態を透過像観察したものであり、くさび型破壊(矢印)を結晶粒界で起こしたことが明らかにわかった。

Fig. 7 は、膜厚 690 Åの疲労破壊先端付近を透過電顕観察した結果である。加熱処理を行わない室温膜は、350サイクルで破壊伝播が起こった (Fig. 7(a))。膜破壊は、結晶粒子径が約 0.05 μmと微小¹⁸⁾なため、hole 状部(矢印)を生じながら顕著に不連続伝播を起こした。一方、300°C加熱膜になると、結晶粒子が大きく成長して

膜強度を低下させたため、200サイクルで疲労破壊伝播した (Fig. 7(b))。また破壊先端(A)からの伝播状態は、塑性バンドで局部的に膜を薄くしながら、不連続破壊(矢印)を起こしていることがわかった。

Fig. 8 は膜厚 810 Å, 500°C加熱膜が 150サイクル後に膜破壊を起こした状態である。走査像から、疲労破壊伝播は塑性バンド(矢印)に沿って、約0.5 μmのクラック幅で直線的に起こった (Fig. 8(a))。Fig. 8(b)は、Fig. 8(a)の破壊先端付近の伝播状態を高倍率で観察したものである。疲労破壊は直線的な塑性バンドに、約0.1 μmのhole 状部(矢印)を2 μm間隔で不連続伝播させた。また、先端部(A)を長時間観察した結果、膜表面は黒色状態になり走査像を不明瞭にした。これは、走査電顕内の真空度が 10^{-5} Torr 程度であるため、膜表面に吸着した残留ガスが電子ビームでコンタミネーションを起こしたも

Fig. 8 Scanning electron micrographs of the tip of the fracture in a 810 Å-thick Au film heated at 500°C. Cycles to fracture: 150. (b) Same as (a), at a higher magnification.

Fig. 9 Scanning electron micrographs of the fracture propagation in a 810 Å-thick Au film heated at 700°C. Cycles to fracture: 150. (b) Same as (a), at a higher magnification.

のと考える^{19,20)}。

Fig. 9 の走査像は、700°C加熱した 810 Å膜が、150サイクルで疲労破壊伝播を起こした状態である。Fig. 9(a)の走査像から、疲労破壊は高温加熱で生じた凝集破壊部(矢印)の間に、塑性バンドを形成して不連続伝播した。また Fig. 9(b)は、Fig. 9(a)の破壊伝播をさらに高倍率で観察した結果である。塑性バンドには、局部的に生じた微小 hole 部 (矢印A)、および粒子状破壊(矢印B)が明らかに認められた。

Fig. 10 は、Fig. 9 で走査像観察した膜厚810 Å、700°C加熱膜の疲労破壊状態を透過電顕観察した結果である。Fig. 10(a)は、加熱処理で生じた凝集破壊部から伝播した黒帯状の塑性バンドに、粒子状破壊(矢印)が形成した状態であり、Fig. 9(a)の走査像とよく対応した。Fig. 10(b)は、さらに高倍率で破壊部を透過像観察したものである。粒子状破壊(矢印)は、繰返し引張り歪の印加に

より起こった塑性バンド内で、局部的に膜を薄くしながら不連続伝播していた。

4.3 疲労破壊過程の検討

Table 1 は膜厚 580 Å、690 Åそして 810 Åの Au 膜に繰返し引張り歪を与えて、疲労破壊観察した結果をまとめたものである。各膜厚の膜面を(111)とする結晶粒子の直径は、加熱処理温度の増加で大きくなったが、疲労寿命は加熱温度が高くなるにしたがって低下した。膜厚 810 Åの破壊サイクル数は、500°C以上で150回を示し580 Å、690 Åの場合と比べて高い値になり、膜厚依存性が認められた。また、破壊伝播状態は各温度で数百 Å径の hole 状部を塑性バンドに沿って不連続に起こしたが、膜厚690 Å、400°C加熱膜の場合には、結晶粒界でくさび型の hole 状破壊を特徴的に示した。

Fig. 11 は走査像および透過像観察から、Au 膜に起こった疲労破壊過程を段階的に図示したものである。疲労

Fig. 10 Transmission electron micrographs corresponding to Fig. 9.

Table 1 Characteristics of observed results.

Film thickness (Å)	Heating temperature (°C)	Grain size range of (111) planes (μm)	Fatigue life (cycles)	Predominant type of fracture*
580	300	0.04–0.25	150	a
	500	0.15–0.3	100	a
690	Room temp.	0.02–0.05	350	a
	300	0.07–0.35	200	a
	400	0.09–0.4	100	b
810	500	0.05–0.45	150	a
	700	0.1–0.72	150	a

*Type a shows isolated holes. Type b shows wedge-shaped holes.

Fig. 11 Fatigue fracture propagation by microhole coalescence.

破壊はまず、繰返し引張り歪の印加方向に対して 90° 方向で形成した塑性バンドに、数百 Å の微小 hole を発生する (Fig. 11a)。次に、微小 hole が連結合体して粒子状に大きく破壊成長する (Fig. 11b)。さらにサイクル数の増加によって、直線状のクラック伝播を起こすも

のと考えられた (Fig. 11d)。

5. 結 論

真空蒸着した膜厚 580 Å, 690 Å そして 810 Å の Au 蒸着膜を加熱処理後、走査電顕内の引張り装置で繰返し引張り歪の印加を行い疲労破壊させた結果、以下のことが明らかになった。

1) Au 膜の疲労破壊は、ネオプレンゴム基板上に膜を直接付着させ、0.3%と0.6%間の歪振幅で引張りサイクルを与えることによって走査像観察することができた。さらに、膜破壊部分は伝播機構を検討するため、基板から剝離して透過電顕観察した。

2) 疲労破壊過程は、まずサイクル歪の印加で生じた塑性バンドに沿って、数百 Å の微小 hole を形成する。次に、連結合体で粒子状に破壊成長し、直線状のクラック伝播を起こすことがわかった。

3) 各膜厚の疲労寿命は、室温で300~400回の破壊サイクル数を示したが、加熱温度の増加にしたがって50~

150回に低下した。

今後は走査電顕内の引張り装置で、膜厚が1000Å以上のAu蒸着膜に、引張りサイクル歪を与えながら疲労破壊観察する予定である。

〔文 献〕

- 1) H. Saka, A. Yamamoto, K. Noda and T. Imura: Jpn. J. Appl. Phys. **15** (1976) 1977.
- 2) H. Mori and H. Fujita: J. Phys. Soc. Jpn. **38** (1975) 1342.
- 3) A. Berghezan and A. Fourdeux: J. Appl. Phys. **30** (1959) 1913.
- 4) J. C. Grosskreutz and P. Waldow: Acta Metall. **11** (1963) 717.
- 5) 山本厚之, 坂 公恭, 野田健治, 井村 徹: 豊田研究報告 **29** (1976) 37.
- 6) 井村徹: 応用物理 **48** (1979) 1142.
- 7) 金原 粲, 藤原英夫: 薄膜 (裳華房, 1979) p. 141.
- 8) D. W. Pashley: Proc. Roy. Soc. A, **255** (1960) 218.
- 9) H. Saka and T. Imura: Jpn. J. Appl. Phys. **9** (1970) 1185.
- 10) 木方 洋, 丸山宰治, 植田 夏: J. Electron Microscopy **17** (1968) 113.
- 11) S. Maruyama: J. Phys. Soc. Jpn. **25** (1968) 1392.
- 12) H. Fujita: J. Phys. Soc. Jpn. **21** (1966) 1605.
- 13) 保坂哲也: 真空 **24** (1981) 588.
- 14) 保坂哲也: 真空 **25** (1982) 5.
- 15) 保坂哲也: 真空 **25** (1982) 500.
- 16) 難波義捷, 毛利敏夫: 応用物理 **38** (1969) 1047.
- 17) 保坂哲也: 真空 **25** (1982) 770.
- 18) 金原 粲: 応用物理 **30** (1961) 647.
- 19) A. E. Ennos: Brit. J. Appl. Phys. **4** (1953) 101.
- 20) J. Hillier: J. Appl. Phys. **19** (1948) 226.