繰返し変形を受けた Au の走査形トンネル顕微鏡による表面観察*

石 井 仁^{*1}, 宮 津 信^{*2}
名 倉 啓 二^{*3}, 東 郷 敬 一 郎^{*1}Observation of the Surface of Cyclically Deformed Au
by Scanning Tunneling MicroscopeHitoshi ISHII, Shin MIYAZU,
Keiji NAGURA and Keiichiro TOHGO

Surface topography of a cyclically deformed thin Au plate was observed using a scanning tunneling microscope (STM). Observation was made on the specimens subjected to alternating pure bending with a total strain amplitude of 0.2, 0.1 or 0.05% for various numbers of cycles. The surface became proportionately rough as the number of cycles increased. Heights of the hills and valleys were increased as the number of cycles increased, and they were 20 to 30 nm at most, irrespective of the strain amplitude. However, the average spacing between the hills and valleys became shortened as the strain amplitude increased. At least two slip systems had to be operated for the formation of these rough surfaces. Nucleation of microcracks resulted from concentrated deformation at some of the hills and valleys. Heights of hills and valleys adjacent to the grain boundary were much larger than those inside the grains.

Key Words: Fatigue, Measurement, Scanning Tunneling Microscope, Surface Morphology, Gold, Slip Band, Strain Cycling, Intrusion, Grain Boundary

1. 緒 言

金属の疲労破壊に至る一連の過程のうち表面における最初の変化, すなわち, すべり帯の形成についての検討は疲労き裂発生機構の解明に際し不可欠である。引張変形によって発生するすべり帯の断面形状やその寸法についてはレプリカ法を用いた電顕観察により相当明らかにされている⁽¹⁾が, 繰返し変形によって生じる表面の変化やすべり帯の形成, その形状などについては, 突出しあるいは入り込みが生じている相当発達した段階を除いて明らかではない⁽²⁾。しかし, 荷重あるいは変位の繰返しとともに平滑な面からすべり帯がどのように形成されてゆくのかといった初期の段階を根本的に解明するためには, 原子レベルでの評価・解析が必要となる。この種の研究に対する従来からの手法としては SEM, TEM などの利用が考えられるが, 試料作成等の制限も多く, 分解能, 特に三次元形状測定能力の点で十分明らかにし得ない点も多い。一方, 走査形トンネル顕微鏡 (STM: Scanning Tunneling

Microscope) は原子レベルの分解能で試料表面の形状観察が可能な装置として開発され⁽³⁾, 表面物理, 半導体などの分野での利用が盛んに進められている。また, 材料強度の分野においても注目され, 金属のすべり面や破面についての観察・研究^{(4)~(11)}も始まっており, 今後この分野に対する応用がますます期待されている。

本研究はひずみ一定の繰返し変形を加えた金属の表面で生じる変化, すべり帯形成の様子, その形状などを STM を用いて高倍率で観察し, 金属疲労研究の一助にしようとしたものである。

なお, すべり帯の発生には, き裂の発生およびその成長といったその後の過程と同様に環境が大きく影響することが考えられる。例えば変形方向の逆転に際し, 逆転前のすべりによって生じた新生面での酸素の吸着あるいは酸化膜形成の難易が同一面での逆方向すべりを可能とするか否かに影響することも考えられ⁽¹²⁾, 大気のようなマイルドな環境といえど材料によってはその効果を無視できない。このようなことから本研究では新生面に対し大気中でも酸素の吸着あるいは酸化膜形成を考慮する必要のない Au についての観察を行った。同様の理由でこの材料は試験後の大気中における STM 観察にも適する。

* 原稿受付 平成 5 年 3 月 29 日。

^{*1} 正員, 静岡大学工学部 (〒432 浜松市城北 3-5-1)。^{*2} 准員, 三菱電線工業(株) (〒664 伊丹市池尻 4-3)。^{*3} 学生員, 静岡大学大学院。

が明白である。

なお、以下に記述する室温大気中での STM 観察に際しては試料バイアス電圧を ± 1.5 V, トンネル電流を $0.1 \sim 2.0$ nA の範囲内に設定した最適な条件を選択して行った。

疲労試験には本研究のために製作した四点曲げ試験機を用いた。アクチュエータにステッピングモータを用い、パーソナルコンピュータで変位を制御する形式となっており、試験片には大気中にて繰返し速度 2 Hz のひずみ一定の繰返し変形を所定の回数だけ加えた。その後、STM にて試験片表面の観察を行った。また、比較のため引張りによる静的変形を加えた試料の観察をも行った。

観察に用いた STM 装置は研究室で製作したもので、そのシステム構成を図 1 に示す。なお、探針を三次元的に移動させるアクチュエータには積層形圧電素子 (PZT) を、探針としては Pt 90%-Ir 10% 合金を用いている。その最大走査範囲は約 $7 \times 7 \mu\text{m}^2$ 、高さ分解能は最高で約 0.1 nm であることが確認されており、 256×256 点における高さのデータが取得できる。図 2 にこの装置で観察した光ディスクの STM 像を SEM 写真とともに示す。SEM 写真でも平行な溝 (間隔 $1.6 \mu\text{m}$ 、幅 $0.2 \mu\text{m}$) とアドレスを記録するだ円形ピットの刻まれている様子や寸法は観察できるが、STM 像では深さ方向の情報が得られる点で圧倒的に有利であること

以下に変形試料の STM 像を示すが、荷重の負荷方向は各図面に記されている平面座標軸のうちの数値がわずかに小さい軸に平行となっている。また、表面形態の特徴についての記述は各図面の X と Y とを結ぶ線に垂直な方向に見られる模様に関するものである。

3・1 引張変形の場合 図3に引張変形させたAuのSTM像および図中のX-Y断面における表面形状を示す。ひずみが5%の(a)においては高さが20~30 nmの段が約1 000 nmの間隔で、またひずみが30%の(b)においては高さが100 nmの段が約2 000

図 2 光ディスクの SEM および STM 像

図 1 STM システム構成図

図 3 引張変形試料の STM 像

nm の間隔で一方向に配列している様相が観察できる。このような模様は変形前の研磨面では見られなかったことから変形により発生したすべり線に対応する段であると判断できる。このすべり線の形態は電子顕微鏡によって明らかにされた断面の形状や寸法⁽¹⁾とよく一致している。なお、ひずみが30%の場合について広範囲な領域を観察した結果によれば(a)で示したような高さが20~30 nm の小さな段が1 000 nm 程度の間隔で存在する箇所も多いことが確認された。

以上のように引張変形で生じるすべり線の断面は変形量の大小にかかわらず等間隔な段で構成されており、変形量とともにその高さが大きくなっていったことから、小さなひずみで発生した段の一部がひずみの増加に従って大きな段へ変化していったと推測できる。

3・2 繰返し変形の場合

3・2・1 繰返し数に伴う変化 ひずみ振幅を0.2%として繰返し変形を加えた場合の繰返し数に伴う表面形態の変化および図中のX-Yで示した箇所における断面形状を図4に示す。この図から明らかなように繰返し変形により形成されたすべり線は前述の引張変形によるものとはかなり異った形態を示している。

繰返し数 $N=10$ では(a)に示すよう一部の領域に

突出し(extrusion)のような高さ5~10 nm の起伏が120~130 nm 程度の間隔で存在していた。しかし、さらに高倍率で観察しても表面の大部分にはわずかな凹凸があるのみで、変形前の電解研磨面と大差なかった。 $N=20$ になると(b)に示すように高さは変化しないが、より多くの箇所で起伏の発生が認められた。 $N=40$ の結果を(c)に示すが、広範囲な領域において高さ10~20 nm の凹凸が150~300 nm の間隔で出現している。しかし、すべての領域で同様な形態が認められるわけではなく、ごく小さな起伏がいくつか局所的に存在する平坦な領域や数 nm 程度の凹凸で覆われている領域もあった。(d)に $N=100$ の結果を示す。高さ30 nm 程度の凹凸が大部分の領域で観察されとともに一部の領域では(e)に示すような大きな溝状の形態も存在していた。この溝状模様は開口部が500 nm、深さ150 nm 程度であり、溝を形成している面は周囲の凹凸と平行で、その先端は鋭角となっている。この形態は寸法、形状ともに既述の凹凸とは明らかに異なるものであり、微視き裂の発生につながってゆく入り込み(intrusion)と考えられる。図示は省略するが、 $N=100$ 以上では繰返し数の増加に伴う表面形態の変化はほとんど認められなくなり、 $N=5\,000$ における形態

図4 繰返し数に伴うSTM像の変化(ひずみ振幅0.2%の場合)

も $N=100$ の場合とほぼ同様であった。

以上のように繰返し変形によって形成される表面の形態は引張変形による段状のものとは異なって数百 nm の間隔ではほぼ高さの等しい凹凸があり、き裂の発生につながっていく箇所を除けばこの凹凸の高さは 30 nm 程度である。また、き裂の発生につながる大きな溝も小さな凹凸の集合から成り立っている。このような溝が出現する点も引張変形の場合とは異なる。

これら繰返し変形で形成するすべり帯を上記観察に基づき模式的に示すと図 5 のようになり、その凹凸の形成には一方向、すなわち一つのすべり系の活動のみではなく、互いに交差する二つ以上のすべり系の活動が必要となる。このような高さのほぼ等しい凹凸が等

図 5 繰返し変形で形成された表面形態の模式図

間隔に生じた後、特定の箇所に変形が集中し、疲労き裂の発生に至ると考えられる。

3・2・2 ひずみ振幅の影響 3・2・1 項のひずみ振幅 0.2% での結果に加え、振幅を 0.1 あるいは 0.05 に変化した場合の結果を次に述べる。図 6 はひずみ振幅が 0.1 の結果である。繰返し数 $N=100$ 程度までは表面形態の変化はほとんど見られなかったが、 $N=300$ になると (a) に示すように高さ 5 nm 程度の凹凸が 300 nm 程度の間隔で広範囲に形成されている。また、(b) に示すような高さ数 nm 程度の起伏も見られる。このような全般的な形態は $N=2000$ となっても変化しなかった。 $N=3000$ では (c) に示すように高さ 10 nm 程度の凹凸が 300~500 nm の間隔で存在しており、全体的には間隔が 1000~2000 nm で高さが 20 nm 程度の起伏を形成している。 $N=5000$ での結果を (d) に示すが、全体的な凹凸の高さは (c) と同様 20 nm 程度であるが、その間隔が 300 nm 程度と狭くなっている。繰返し数をさらに増し、 $N=30000$ とした場合の結果を (e) に示す。凹凸の間隔はほとんど変化していないが一部高さが 100 nm 程度まで増加している箇所もある。また、全般的な形状は繰返し数の少な

図 6 繰返し数に伴う STM 像の変化(ひずみ振幅 0.1% の場合)

図7 ひずみ振幅0.05%のときのSTM像

図8 結晶粒界近傍でのSTM像

い場合と比較して複雑になっている。

ひずみ振幅を0.05%とさらに減少させたときの繰返し数に伴う表面の変化も上述の場合と同様で、最初に600~800 nmの間隔で形成された高さ5 nm程度の凹凸は繰返し数とともにその間隔を減少しながら高さも20~30 nmへと増加する。N=5 000での例を図7に示すが凹凸の高さは変化していない。この形態はN=50 000と繰返し数を増しても間隔が300~400 nmとやや狭くなることを除けばほとんど同じである。なお、このようにひずみ振幅が小さな場合、数nm程度の凹凸のみが存在する領域もあった。また、表面形態もひずみ振幅が大である場合に比較して単純であり、凹凸の形状を特徴づける方向の数も少ない。

3・2・1項での結果とを総合することで、ひずみ振幅の変化によりすべり帯の形成に要する繰返し数や、その形成過程が相当変化することが明らかとなった。すなわち、ひずみ振幅が大なるほど凹凸の形成に必要な繰返し数が少なくなるとともにその高さは高く、間隔は狭くなった。

3・2・3 結晶粒界近傍での形態 これまでの結果はいずれ也多結晶体における結晶粒内での表面形態の特徴を述べたものである。多結晶体においては結晶粒界ですべりが阻止され、転位の集積が起こることはよく知られている。したがって、結晶粒界近傍における表面形態は上述した結晶粒内のものとは異なることが予想される。ひずみ振幅が0.1%でN=5 000のときの結晶粒界近傍での様相を図8に示す。図6(d)に示した同じ条件での結晶粒内における結果と比較して、凹凸の間隔は変わらないものの高さは70 nmと数倍大きくなっていると同時に形態も複雑で、粒界近傍での変形の集中が明らかである。

一方、引張変形の場合は既述の図3(b)の右上部に見られるように結晶粒界近傍よりむしろ粒内でより高い段が観察されている。干渉法による同様な観察例が今回用いたAuと同じ結晶構造のAlについても報告されている⁽¹³⁾。このように引張変形と繰返し変形に対

する結晶粒界存在の効果は明らかに異なっており、繰返し変形の際の結晶粒界での変形の集中がAu, AgあるいはCuといった純金属における疲労き裂が主として結晶粒界で発生するという結果⁽¹⁴⁾に対応していると考えられる。

4. 結 言

金属疲労研究への走査形トンネル顕微鏡の応用を目的として、大気中でひずみ振幅一定の繰返し変形を加えたAuの表面形態について観察を行い、次の結論を得た。

- (1) 結晶粒内の表面は複雑方向に規則正しく配列した凹凸で成り立っていた。この凹凸の高さは繰返し数とともに増加するが、ひずみ振幅の大小にかかわらず数十nmで飽和していた。
- (2) 隣合う凹凸との間隔は数100 nm程度であったが、ひずみ振幅が大なるほど狭かった。
- (3) 結晶粒界近傍での凹凸の程度は結晶粒内のものより大であり、結晶粒界でのひずみの集中が明らかとなった。
- (4) 微視き裂の核は一部の領域での凹凸の高さが増加することで発生すると考えられる。

本研究の一部は、平成2年度文部省科学研究費補助金「一般研究(B)02452093」によったものである。装置の設計等にあたっては本学精密工学科・佐々木彰教授の助言を、また製作にあたっては本学工作技術センターの協力を得た。併せて感謝の意を表したい。

文 献

- (1) 例えば、Brown, A. F., *Adv. in Physics Suppl. of Phi. Mag.*, **1** (1952), 427.
- (2) 例えば、S. コサンダ、(横堀監修、石井・田中訳)、金属疲労の解析と応用、(1981)、47、現代工学社。
- (3) Binning, G., Rohrer, H., Gerber, Ch. and Weibel, E., *Phys. Rev. Lett.*, **49** (1982), 57.
- (4) 松岡、鉄と鋼、**75-10** (1989), 1943.
- (5) 松岡・住吉・石川、機論、**56-530**, A (1990), 2091.
- (6) 住吉・松岡・石川・二瓶、機論、**57-541**, A (1991), 2237.

- (7) 升田・長島・松岡, 機論, 57-541, A (1991), 2270. *Mater.*, 40-10 (1992), 2769.
 - (8) 松岡・升田・池田・赤池・越智, 機論, 57-542, A (1991), 2602. (12) Fujita, F. E. (Drucker, D. C. and Gilman, J. J.編), *Fracture of Solids*, (1963), 657, Gordon and Breach.
 - (9) 石井・宮津・東郷, 機講論, No. 920-72 (1992-9), 611. (13) Jaoul, B. (幸田監修), 金属の塑性, (1969), 362, 丸善.
 - (10) 石井・名倉・東郷, 機講論, No. 934-1 (1993-3), 162. (14) 石井・宮津・東郷, 機講論, No. 910-71, A (1991-11), 110.
 - (11) Sriram, T. S., Fine, M. E. and Chung, Y. W., *Acta Met.*
-