

平成 21 年 6 月 1 日現在

研究種目：基盤研究 (C)
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19560071
 研究課題名 (和文) 階段マイクロインデンテーションによる
 電解めっき銅箔の弾・塑性・クリープマッピング
 研究課題名 (英文) ELASTO-PLASTIC-CREEP CHARACTERISTICS OF ELECTROPLATED COPPER FOIL
 AND ITS ESTIMATION BY STEPPED MICRO INDENTATION
 研究代表者
 大口 健一 (OHGUCHI KEN-ICHI)
 秋田大学・工学資源学部・准教授
 研究者番号：30292361

研究成果の概要：電解めっき銅箔の変形特性を正確に評価するための試験法を確立した。この方法により、電解めっき銅箔の変形は、室温でもクリープ変形の影響を受けることが明らかになった。繰返し引張・除荷による疲労試験も実施可能となった。また、クリープ構成則を導出し、これを用いた弾・塑性・クリープ構成則で電解めっき銅箔の変形が記述できることを明らかにした。一方で、階段マイクロインデンテーション試験によりクリープ構成則の材料定数を導出するための方法について検討した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	2,300,000	690,000	2,990,000
2008年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・機械材料・材料力学

キーワード：連続体力学

1. 研究開始当初の背景

エレクトロニクス機器の開発に当たってのキーワードは「小型化」、「高機能化」、「高性能化」といわれている。このため、電子部品の高密度実装化が進み、中でも銅配線の細線化は著しい。細線化された銅配線には、従来よりも高い強度信頼性が要求されるが、ほかにもさまざまな問題が出てきている。特に、スズめっき層からのウイスカの発生は高密度実装化を妨げる大きな要因であり、これを解決することが今後の更なる高密度化の成否を大きく左右する。

ウイスカの発生要因としては、鉛フリー化されたスズめっきが施された、銅配線内部の応力状態が第一要因として挙げられている。つまり、安全性・信頼性が高い高密度実装を実現するためには、高い強度信頼性の確保とウイスカ発生の抑制を可能とする微細配線の設計システムを構築しなければならない。

2. 研究の目的

1 で述べたような微細配線の設計システムを構築するためには、以下の問題を解決しなければならない。

(1) 変形特性のサイズ効果の把握

微細配線には、極薄の箔が得られる電解めっき法で製造した銅箔が用いられる。極薄の電解めっき銅箔の変形特性は、通常の銅パルク材とは異なることが指摘されている。このため、変形特性と材料のサイズとの関連性を把握しなければならない。

(2) 疲労特性とその負荷履歴依存性の把握

疲労を引起す繰返し負荷での応力状態には、負荷履歴依存性がある。このため、銅箔の応力状態を特定するには、銅箔の繰返し非弾性変形特性を把握し、負荷履歴依存性を特定する必要がある。しかし、箔に繰返し引張・圧縮負荷などを与えることはできず、繰返し変形特性の把握は困難である。

(3) 変形特性分布の把握

銅配線の強度信頼性の評価とウィスカ発生 of 数理的な解明のためには、スズめっきした銅箔内部の応力解析を実行する必要がある。(1)のひずみ速度依存性と、スズが室温でもクリープ変形を示すことを考慮すれば、この解析は弾・塑性・クリープ解析によることになる。しかし、めっき時の銅との合金化の影響で、銅箔の厚さ方向には異なる変形特性が分布する。このため、正確な応力解析を実行するには、箔の厚さ方向の変形特性分布を正確に把握しなければならない。

本研究では、以上3つの問題の解決方法について検討することで、高い強度信頼性をもつ微細配線の設計システムを構築するための知見を得ることを目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、上記(1)~(3)の問題について検討するために、以下の4項目を実施した。

(1) 電解めっき銅箔の変形特性評価

一般的に、銅箔の変形特性は、短冊状の試験片を用いた引張試験で評価されている。その試験では、ひずみは試験片つかみ部の移動距離から算出されている。このような方法では、銅箔の変形特性が正確に評価できているとは言い難い。そこで、短冊状試験片よりも正確に変形特性が評価できるドッグボーン型試験片の作製方法と、その試験片に生じるひずみの検出方法について検討した。そして、この方法に基づいて電解めっき銅箔の変形特性を調査した。

(2) 電解めっき銅箔の疲労特性評価

箔試験片に引張・圧縮による繰返し負荷を与えることが困難である。そこで、まず、箔試験片でも実施が可能な、繰返し引張・除荷で疲労試験を実施する方法について検討した。次いで、この方法による疲労試験を実施し、電解めっき銅箔の疲労特性を調査した。

(3) 電解めっき銅箔の構成モデル

微細配線の設計では、電解めっき銅箔の強度信頼性を有限要素法(FEM)による数値解

析で評価する必要がある。このためには、電解めっき銅箔の変形挙動をモデル化することが必須となる。そこで、電解めっき銅箔の変形挙動が記述できる構成モデルについて検討した。

(4) 階段マイクロインデンテーションによる変形特性評価方法

電解めっき銅箔上のスズめっき層の変形特性(弾・塑性・クリープ特性)は、引張り負荷による試験で評価することができない。

研究代表者は、ひずみ保持と瞬間的負荷を繰返す、階段負荷による引張試験のみでスズ合金の弾・塑性・クリープ特性を評価する方法を提案している。そこで、圧子を試験片に押し込むインデンテーション試験が、引張試験と同じ方向への負荷であることに着目し、階段波負荷をインデンテーション法に適用する方法について検討した。

4. 研究成果

(1) 電解めっき銅箔の変形特性評価

①ドッグボーン型試験片の作製

本研究では、フレキシブル銅配線に用いられる、銅張積層板(CCL)の銅層の変形特性を評価した。評価対象のCCLは、厚さ8 μm の電解めっき銅箔と厚さ38 μm のポリイミド(PI)層から成る。この非常に薄い電解めっき銅箔から、ひずみ集中部のあるドッグボーン型の試験片を作製する際には、大きな予ひずみを導入する可能性のある打ち抜きなど、箔に外力を加える方法は不相当である。

そこで本研究では、外力によらないフォトリソグラフィ法で試験片を作製することとした。試験片の形状は、評点部の長さや幅が各々20mmと5mm、つかみ部の長さや幅が各々15mmと10mmのドッグボーン型とした。試験片は、以下の手順で作製した。

- (i) CCLの銅層表面にフォトレジストを塗布する。
- (ii) 上記の試験片寸法で作製したマスクをフォトレジスト塗布後の銅層表面に置いて露光し、試験片のパターンをフォトレジスト上に転写する。
- (iii) 現像処理で、転写したパターン部以外のフォトレジストを剥離させる。
- (iv) フォトレジストで覆われていない銅層をエッチングで除去する。
- (v) PI層を溶解除去して試験片を得る。

以上の方法により、図1に示す電解めっき銅箔のドッグボーン型試験片を作製することができた。図1の評点部に設置されたピンについては、後述する。

②ひずみ計測方法

ひずみを正確に検出するためには、伸び計やひずみゲージの使用が考えられる。しかし、電解めっき銅箔の試験片は非常に薄く、上述



図1 電解めっき銅箔試験片

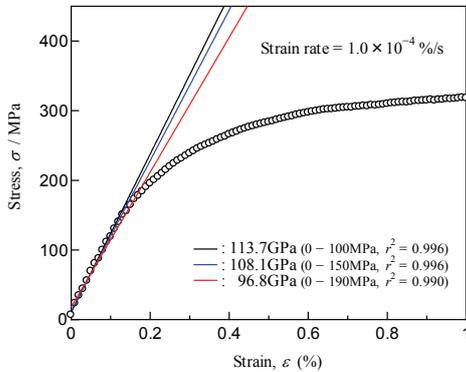


図2 電解めっき銅箔の応力-ひずみ曲線

のような接触式のひずみ検出機器を使用することができない。そこで、本研究では、図1のように、試験片の評点部に紙製のピンを2本立て、この間隔の変化を高速・高精度デジタル寸法測定器(KEYENCE・LS7500)で光学的に測定してひずみを算出した。

図2は、このひずみ検出法を用いた電解めっき銅箔の引張試験から得た応力-ひずみ曲線である。この引張試験は、室温、ひずみ速度 $1.0 \times 10^{-4} \%$ /s の条件で実施した。ひずみ速度は、検出したひずみ値をフィードバック信号に用いて制御した。図2には、応力範囲を0-100, 0-150, 0-190MPaと変えて求めたヤング率を示してある。これらの値は、いずれも一般的な銅のヤング率に近い値である。ヤング率は金属の結晶構造で定まる値であり、一般的な銅と電解めっき銅箔の間にヤング率の大きな違いが生じることはない。したがって、一般的な銅と同等のヤング率が得られる本研究のひずみ検出法は、電解めっき銅箔の変形特性を評価するために適切な方法と判断することができる。

③電解めっき銅箔の変形特性

電解めっき銅箔の引張試験を、室温で3種類のひずみ速度0.01, 0.1, 1.0%/sで実施した。引張試験で得た応力-ひずみ曲線を図3に示す。図3の応力-ひずみ曲線を比較すると、ひずみ速度の高低により応力-ひずみ曲線の応力レベルが変化し、ひずみ速度依存性が認められる。

応力-ひずみ曲線がひずみ速度依存性を示すことは、引張試験を実施した温度域で、その材料がクリープ変形することを意味する。しかし、一般的な銅は、室温ではクリー

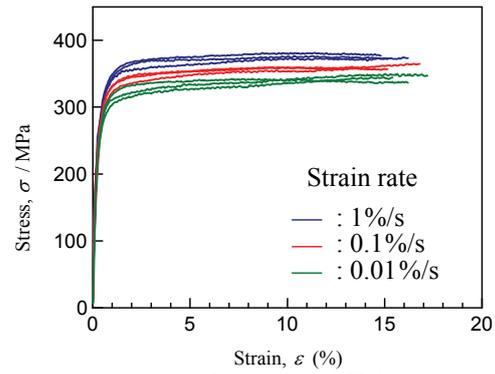


図3 ひずみ速度が異なる応力-ひずみ曲線の比較

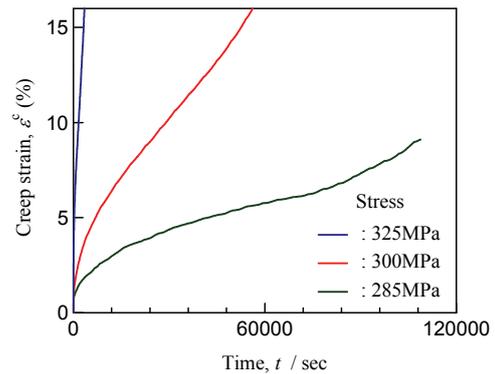


図4 電解めっき銅箔のクリープ曲線

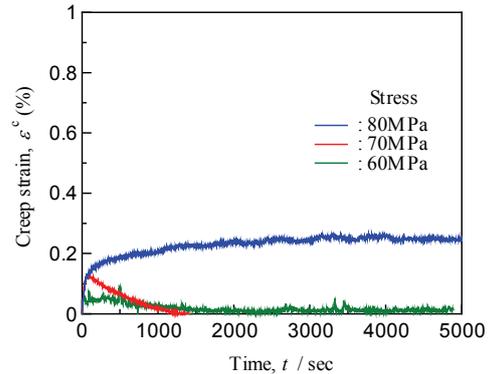


図5 圧延銅箔のクリープ曲線

プ変形しないとされている。そこで、ひずみ速度依存性を示したことが、電解めっき銅箔特有の現象であるのかを明確にするため、室温においてクリープ試験を実施した。

図3は、3種類の保持応力285, 300, 325 MPaでのクリープ曲線である。いずれの保持応力においても、クリープひずみが生じていることがわかる。したがって、電解めっき銅箔は、一般的な銅のパル材とは異なり、室温においてもクリープ変形する特性をもつ。

この特性は、(i)極薄の箔であること、あるいは(ii)電解めっき法により製造されたこと、のいずれかに起因すると考えられる。この原因を見極めるために、圧延銅箔を用いて、室温でクリープ試験を実施した。圧延銅箔の試験片は、フォトリソグラフィにより、図

1の形状と同じものを厚さ7 μm の圧延銅箔から、圧延方向を軸方向にして作製した。また、圧延時の予ひずみの影響を少なくするために、真空封入した状態で、400 $^{\circ}\text{C}$ 、1時間の焼鈍処理を施した。クリープ試験の保持応力は、0.2%耐力の $\pm 12.5\%$ の範囲で、60、70、80 MPaの3種類とした。

図5に圧延銅箔のクリープ曲線を示す。図5では、保持応力60、70MPaでは、クリープひずみがほとんど発生していない。また、80MPaでは、約0.25%のクリープひずみが生じた後は、ほとんどクリープひずみは発達していない。したがって、圧延銅箔は、室温ではクリープ変形しない材料といえる。そして、このことから、電解めっき銅箔が室温でクリープ変形する特性をもつことは、製法が電解めっき法であることに起因すると考えられる。

(2) 電解めっき銅箔の疲労特性評価

①疲労試験方法

最大応力 σ_{max} と最小応力 σ_{min} の間で、引張・除荷を繰返し試験を室温で実施した。試験は、表1に示すように、3種類の最大応力 σ_{max} のそれぞれについて、3種類の最小応力 σ_{min} を設定した9種類の条件で行った。

図6は、 $\sigma_{\text{max}} = 325\text{MPa}$ 、 $\sigma_{\text{min}} = 50\text{MPa}$ での繰返し引張・除荷による応力-ひずみ曲線である。電解めっき銅箔は、繰返し引張・除荷を与えると、引張方向にひずみが蓄積するラチェット変形を生じることがわかる。なお、この条件では、ラチェットひずみの蓄積により、185サイクルで破断に至った。

表1の条件での繰返し引張・除荷試験では、すべての条件で図6と同様のラチェット変形が生じ、試験片は破断に至った。このことから、繰返し引張・除荷試験は、電解めっき銅箔の疲労試験となり得ることが判明した。

②疲労特性評価

疲労特性の評価は、疲労寿命 N_f と高い相関を示すパラメータを見出し、それをを用いた疲労寿命予測式を導出する手順で行われる。

本研究では、そのパラメータとして、ラチェットひずみ増分 $d\varepsilon_n^r$ を用いることについて検討した。ラチェットひずみ増分 $d\varepsilon_n^r$ は、図7のように、 $n-1$ サイクル目と n サイクル目の除荷開始時のひずみ量の差と定義した。そして、表1の各試験で生じるラチェットひずみ増分 $d\varepsilon_n^r$ を2~10サイクルのサイクル毎に求め、その値と疲労寿命 N_f の相関を調べた。その結果の一例として、ラチェットひずみ増分 $d\varepsilon_3^r$ と疲労寿命 N_f の関係を図8に示す。図8中の近似直線の相関係数 r をみると、ラチェットひずみ増分 $d\varepsilon_3^r$ は疲労寿命と高い相関

表1 繰返し引張・除荷試験条件

No.	Maximum Stress, σ_{max} / MPa	Minimum Stress, σ_{min} / MPa
1	285	50
2		100
3		150
4	300	50
5		100
6		150
7	325	50
8		100
9		150

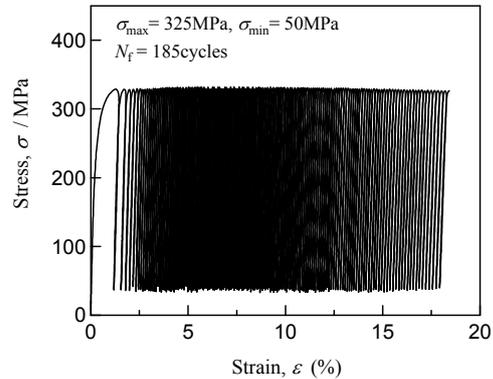


図6 繰返し引張・除荷による応力-ひずみ曲線 ($\sigma_{\text{max}} = 325\text{MPa}$, $\sigma_{\text{min}} = 50\text{MPa}$)

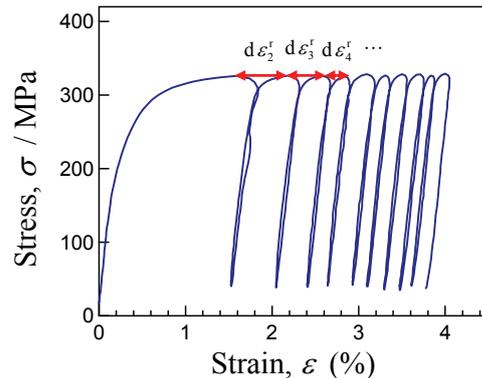


図7 ラチェットひずみ増分の定義を示すことがわかる。

図8の例だけではなく、他のサイクル数におけるラチェットひずみ増分も疲労寿命と高い相関を示した。しかし、任意の負荷条件での繰返し引張・除荷による電解めっき銅箔の疲労寿命をシミュレーションで予測する際には、計算コストを考慮すると、少ないサイクル数での $d\varepsilon_n^r$ を N_f との関係式に用いることが望ましい。この観点から、少ないサイクル数でのラチェットひずみ増分 $d\varepsilon_3^r$ を用いた図8中の式は、室温での繰返し引張・除荷による電解めっき銅箔の疲労寿命予測式として相応しいと考えられる。

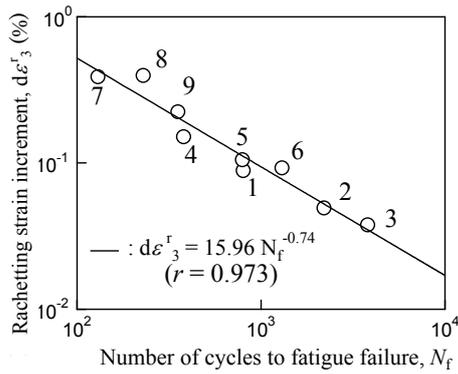


図8 疲労寿命とラチェットひずみ増分の関係

(3) 電解めっき銅箔の構成モデル

研究成果(1)で示したように、電解めっき銅箔は室温でも時間依存の変形挙動を示す。このような変形を記述するには、全ひずみを弾性、塑性、クリープひずみの和で表す弾・塑性・クリープ構成モデルが有効である。

弾・塑性・クリープ構成モデルで時間依存の変形を正確に表すためには、クリープ構成モデルの精度が重要となる。そこで、まず、研究代表者が構築したクリープ構成モデルを電解めっき銅箔に適用することを試みた。

このモデルでは、次式のように、相当クリープひずみ速度 $d\bar{\epsilon}^c/dt$ を遷移クリープひずみ速度 $(d\bar{\epsilon}^c/dt)_I$ と定常クリープひずみ速度 $(d\bar{\epsilon}^c/dt)_{II}$ の和で表す。

$$d\bar{\epsilon}^c/dt = (d\bar{\epsilon}^c/dt)_I + (d\bar{\epsilon}^c/dt)_{II} \quad (1)$$

$(d\bar{\epsilon}^c/dt)_{II}$ は、次式の Norton 則で表す。

$$(d\bar{\epsilon}^c/dt)_{II} = A\bar{\sigma}^n \quad (2)$$

式(2)で $\bar{\sigma}$ は相当応力、 A 、 n は材料定数である。

$(d\bar{\epsilon}^c/dt)_I$ は、次式のように、式(2)の定常クリープひずみ速度 $(d\bar{\epsilon}^c/dt)_{II}$ に比例する。

$$(d\bar{\epsilon}^c/dt)_I = C_1 \cdot (d\bar{\epsilon}^c/dt)_{II} \quad (3)$$

式(3)で C_1 は比例定数であり、遷移クリープひずみの増加により 0 に収束する次式で表す。

$$C_1 = C_1 \cdot \exp(-\bar{\epsilon}_1^c / C_2) \quad (4)$$

式(4)で C_1 、 C_2 は材料定数である。

図9は、式(1)~(4)によるクリープ曲線のシミュレーションと実験の比較である。図9では、実験とシミュレーションがほぼ一致している。このことから、電解めっき銅箔のクリープ変形は、式(1)~(4)の構成則で記述できることが判明した。

次に、式(1)~(4)と次の式(5)に基づく弾・塑性構成モデルを用いて、引張負荷の弾・塑性・クリープシミュレーションを行った。

$$\epsilon_t^{ep} = \frac{\sigma_t}{E} + \epsilon_0 \left(\frac{\sigma_t}{D} \right)^m \quad (5)$$

式(5)で ϵ_t^{ep} は単軸状態での弾・塑性ひずみを表し、右辺第一項目は弾性ひずみ、右辺第二

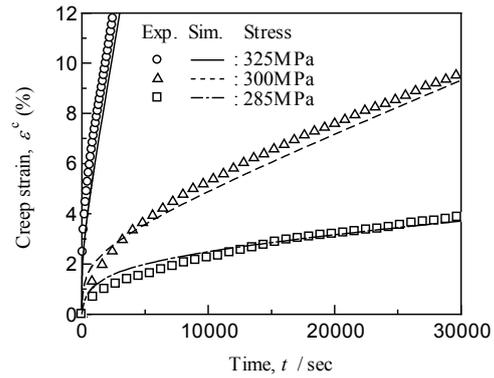


図9 クリープ曲線 (シミュレーションと実験の比較)

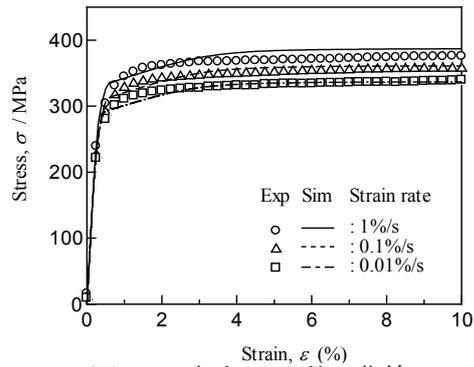


図10 応力-ひずみ曲線 (シミュレーションと実験の比較)

項目は塑性ひずみに相当する。また、 E はヤング率、 D は $\epsilon_0 = 5.0 \times 10^{-4}$ なる塑性ひずみが生じるときの基準応力、 m は硬化指数である。

図10は、引張負荷による応力-ひずみ曲線のシミュレーションと実験の比較である。シミュレーションは、応力-ひずみ曲線のひずみ速度依存性も含めて実験をよく表している。したがって、式(1)~(5)は、電解めっき銅箔の変形を記述する構成モデルとして有用である。なお、図9、10のシミュレーションには、次式(6)の材料定数を用いた。

$$A = 1.00 \times 10^{-86}, n = 33.2, C_1 = 125, C_2 = 0.467 \\ E = 104 \text{ [GPa]}, D = 245 \text{ [MPa]}, m = 6.02 \quad (6)$$

(4) 階段マイクロインデンテーションによる変形特性評価方法

マイクロビッカース用圧子の瞬間的押込みと押込み深さの保持を繰返す階段インデンテーションを Sn-3.0Ag-0.5Cu 材を試験材料として実施した。試験は、小型引張試験機に、電動アクチュエータで圧子の押込みを行う、自作の押込み負荷部を組込んで実施した。

図11は階段インデンテーションの結果であり、上図が圧子の押込み深さと時間の関係、下図がそれに対応する荷重と時間の関係である。階段負荷による引張試験では、ひずみ保持部で得られる応力緩和曲線からクリープ特性を評価する。図11の階段インデンテ

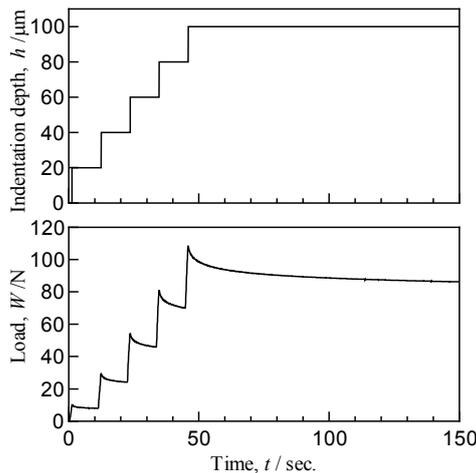


図 11 階段インデンテーション
(押し込み深さ-時間曲線と荷重-時間曲線)

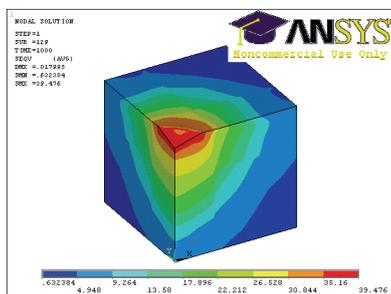


図 12 圧子押し込みの FEM 解析
(相当応力分布)

ーションにおいても、押し込み深さ保持部で荷重の緩和がみられる。したがって、この荷重緩和曲線を応力緩和曲線に置き換えることができれば、クリープ特性の評価が可能になる。しかし、このためには、以下の問題を解決する必要がある。

図 12 は、Sn-3.0Ag-0.5Cu 材にピッカース圧子を押し込む FEM 解析結果である。現在、インデンテーションでの応力は、荷重を圧子の接触面積で除して算出されることが多い。この方法で図 12 の状態での応力を算出すると、108MPa の圧縮応力となる。しかし、この値は、図 12 での相当応力の最大値 39.5MPa と大きく異なる。このことは、上述の応力算出方法に問題があることを示唆している。

一方、インデンテーションで、式(2)の Norton 則の定式化を試みる研究例が数多くある。これらの研究でも、応力は上述の方法で算出されている。その結果、 n の値はバルク材の引張荷重で得られる値とほぼ一致するが、 A の値は大きく異なることになっている。このことから、インデンテーション荷重を圧子の接触面積で除して応力を算出する方法には、問題があると考えられる。したがって、階段マイクロインデンテーションによる変形特性評価を可能とするためには、今後適切な応力算出法を確立する必要がある。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① K. OHGUCHI, K. SASAKI and Setsuo Aso, "Evaluation of Time-Independent and Time-Dependent Strains of Lead-Free Solder by Stepped Ramp Loading Test", Transactions of ASME, Journal of Electronic Packaging, 査読有り, Vol.131, 021003-1 - 021003-7, 2009.
- ② K. OHGUCHI, K. SASAKI and Setsuo Aso, "Evaluation of Time-Independent and Time-Dependent Strains of Lead-Free Solder by Stepped Ramp Loading Test", Proceedings of InterPACK'07, 査読有り, IPACK2007- 33663, 2007.

[学会発表] (計 5 件)

- ① 大口健一, 麻生節夫, 佐々木克彦, "繰返し階段負荷による Sn-3.0Ag-0.5Cu 材の塑性・クリープひずみ解析", 日本金属学会 2008 年秋季(第 143 回)大会, 2008 年 9 月 25 日, 熊本大学.
- ② 三浦裕太, 大口健一, 多田英司, 井口裕, 八木輝明, "ラチェット変形による電解めっき銅箔の疲労", 日本機械学会 M&M2008 材料力学カンファレンス, 2008 年 9 月 16 日, 立命館大学.
- ③ 大口健一, 佐々木克彦, 麻生節夫, "Sn-3.0Ag-0.5Cu 材の低サイクル疲労過程におけるクリープひずみ成分の定量化", 日本機械学会 2008 年度年次大会, 2008 年 8 月 6 日, 横浜国立大学.
- ④ 三浦裕太, 大口健一, 多田英司, 井口裕, 八木輝明, "電解めっき銅箔の非弾性変形におけるクリープ変形の効果", 日本機械学会 2008 年度年次大会, 2008 年 8 月 4 日, 横浜国立大学.
- ⑤ K. OHGUCHI, K. SASAKI and Setsuo Aso, "Evaluation of Time-Independent and Time-Dependent Strains of Lead-Free Solder by Stepped Ramp Loading Test", InterPACK'07, 2007.7.11, Vancouver, Canada.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大口 健一 (KEN-ICHI OHGUCHI)
秋田大学・工学資源学部・准教授
研究者番号：30292361

(2) 研究分担者

多田 英司 (EIJI TADA)
秋田大学・工学資源学部・准教授
研究者番号：40302260

(3) 連携研究者

なし