TV ホログラフィ干渉法を用いためっき膜生成片持ちはりの変形測定*

格内 敏** 林原弘道*** 坂本 亨** 松田 均† 伊藤 潔††

Measurement of the Bending of Cantilever Beam Produced in Electroless Plating by Television Holographic Interferometry

Satoshi KAKUNAI, Hiromichi HAYASHIHARA, Tohru SAKAMOTO, Hitoshi MATSUDA and Kiyoshi ITOH

Recently, an electroless plating process is widely used for electronic industry. But, the plating film is often detached from the substrate owing to the internal stress. The origin of the stress in films is not certain. In order to determine the origin of stress in films, measurements of film stress are required in the earliest stages of film growth. This paper shows the possibility of applying TV holographic interferometry to such experiments. The macrostress can be obtained by measuring the bending produced in a thin substrate by the action of the film. In this study, TV holography, which can capture holographic image at TV frame rates, is used to measure sensitively the deflection of the free end of the cantilever beam. Continuous in-situ measurement of the film stress during plating was readily accomplished with this technique. The relation between film thickness and the internal stress for a Cu plating on a Be-Cu substrate was discussed.

Key words: Television Holography, ESPI, Internal Stress, In-situ Measurement, Electroless Deposits, Plating Thickness, Cantilever Beam

1. 結 言

安価でシンプルな薄膜作製装置で構成できる無電解めっき法は、不規則な表面への均一なめっきや、不導体へのめっきを可能とするなどの特徴がある。特に近年のエレクトロニクス産業においては、電子回路への応用など、その需要が急速に拡大している。しかし、成膜過程において内部応力が発生すると、薄膜の表面割れ・破壊・はく離などの原因となるので、この内部応力を詳細に調べることは、耐久性のある薄膜作製において重要である。ただし、薄膜の内部応力は直接には測定できないために、一般にはひずみやたわみ測定を通して評価される。微視的には顕微鏡による薄膜結晶の格子歪を測定する方法や、巨視的には薄膜生成による基板のたわみを測定する方法があり、古くから多くの研究が行われてきた^{1)~4)}。一方、成膜中の内部応力発生メカニズムを解明するには、測定感度の高い測定方式を構築することが重要である。いままでに静電容量型のギャップセンサ^{5)~9)}、光てこ¹⁰⁾、干渉計¹¹⁾などによる片持ちはりのたわみ測定が行われてきた。しかし、これらの方法は無電解めっき法における浴中物体のたわみを、その場で連続的に検出するには適さなく、具体的な測定例はまだ見かけないように思える。

本研究では非接触で高感度測定が可能なホログラフィ干渉法^{12)~14)}を用いて、無電解めっき膜生成時の片持ちはりのたわみ測定から、薄膜の内部応力を測定する方法について検討した。なお、ホログラフィ干渉法はレーザ光を照射した領域の全視野における物体の変形挙動を観察できるために、その場の実験状況も把握できて、信頼性のあるデータを得ることができる。変形

の連続的な測定法にはサーモプラスチック乾板等を用いた実時間ホログラフィ干渉法があるが、はじめの現象処理に少しの時間を要するために、めっき膜生成初期の変形挙動を捕らえることができない。また、変形の測定範囲を連続的に拡大できないなどの欠点がある。本研究ではテレビジョン(TV)ホログラフィ干渉法¹⁵⁾を用いて、めっき膜の生成直後から任意の時間間隔で、さらに変形方向を判別して、成膜過程の片持ちはりの変形を連続的に測定することを試みた。その結果、本手法で測定されたデータを基に Stoney 等の式^{16)~19)}から、めっき膜の内部応力の“その場測定”が可能であることを提案した。

2. 測 定 原 理

TV ホログラフィ干渉法は、簡単な光学系と CCD カメラおよびコンピュータの構成によって、物体の変形パターンを TV レートで取得することができる。本研究では、この技術をめっき膜生成過程の内部応力の“その場測定”へ応用することを試みた。片持ちはりの片面にめっき膜が生成されると、その内部応力によって基板がわずかにたわむ。このたわみ量を精度良く正負の方向を含めて連続的に測定し、自由端のたわみ量を求めて Stoney の式を用いると、成膜過程の内部応力が算出できる。

めっき膜生成中の片持ちはりのたわみ測定は、片持ちはりにレーザ光を照射し、反射される物体の変形(位相)情報を持つスペckルパターンを、参照光と共に CCD 素子で記録することによって行う。図 1 (a), (b) に TV ホログラフィの記録方法を示す。スペckルサイズ S は (1) 式の関係で表されるので、光学系の最小分解能である CCD 素子サイズ程度になるように、レンズ開口径 d を調整する。

$$S = \frac{1.2\lambda f}{d} \quad (1)$$

ここで、 f はレンズの焦点距離で、 λ は使用光源の波長である。

* 原稿受付 平成 14 年 10 月 9 日

** 正 会 員 姫路工業大学大学院工学研究科(姫路市書写 2167)

*** 姫路工業大学大学院

† 姫路工業大学大学院工学研究科

†† 松下電子部品(株)生産技術センター(門真市大字門真 1006)

なお CCD 素子は従来のホログラフィ乾板に比べて分解能が低いために、物体光と参照光の角度差における影響を受けやすい。図 1 (b) に示すように物体光と参照光の角度が θ だけ傾くと、隣り合った素子間には位相差 $\Delta\phi$ が生じる。例えば、この位相差 $\Delta\phi$ を $2\pi/5$ に抑えるには、(2) 式を満足する必要がある。

$$\Delta\phi = \frac{2\pi}{\lambda} A \sin \theta < \frac{2\pi}{5} \quad (2)$$

ここで、 A は素子の幅である。(2) 式に実験に用いる Ar^+ レーザの波長 $\lambda = 0.488\mu\text{m}$ および CCD 素子径 $A = 8\mu\text{m}$ を代入すると、このときの許容角度 θ は $\theta < 0.62$ が得られる。したがって、物体光と参照光との角度を低く抑えるために、参照光はカメラ前方に置かれたビーム・スプリッタからカメラに入射する。

変形時のスペックルパターンは、一定の時間間隔ごとにサンプリングしてコンピュータに蓄積する。その後に、適当なフレーム間隔の 2 つのスペックルパターンを取り出し、その差を計算して変形を現すホログラフィ干渉縞を得る。片持ちはりのたわみ量は、干渉縞を数えることによって算出する。なお、めっき膜の内部応力が圧縮または引張方向に発生すると、片持ちはりの変形方向が異なる。本実験では、物体の変形方向を判別するために、変形パターンの記録と、さらに光路長をわずかに正・負に既知量だけ与えて記録した。すなわち、片持ちはりの変形方向が、加えた光路長の方向であれば干渉縞数は増加し、逆であれば減少して現れる。このことから、変形方向を判別した。

図 2 にホログラフィ干渉縞と変位量の関係を示す。物体の任意点 P が P' に変位し、その変位ベクトルを U とする。レーザ光が P 点を照明する方向の単位ベクトルを S_i 、観察方向の単位ベクトルを S_o とすると、 P 点の位相変化(干渉縞) ϕ は次式となる。

$$\phi = \frac{2\pi U(S_o - S_i)}{\lambda} \quad (3)$$

基準点から P 点までの干渉縞の次数から ϕ がわかり、 S_i 、 S_o は光学系で決まるために、変位ベクトル U が決定できる。干渉縞は S_i 、 S_o の二等分線方向の等変位成分を表す。

薄膜の内部応力 σ は、片持ちはり(基板)のたわみ測定量をもとに、Stoney 等の式から (4) 式で表せる。

$$\sigma = \frac{E_s T^2 \delta_E}{3L^2 D(1-\nu)} \quad (4)$$

ここで、 E_s : 基板の弾性係数、 T : 基板厚さ、 δ_E : 自由端のたわみ量、 L : 基板長さ、 D : 膜厚、 ν : ポアソン比である。自由端のたわみ量 δ_E は、測定視野内の干渉縞から 2 点間での相対たわみ量を求めて、たわみの理論式に代入して算出した。図 3 の等分布荷重 w がかった片持ちはりにおいて、2 点間の測定値から導出した自由端のたわみ量を (5) 式に表す。

$$\delta_E = \frac{\delta_2 - \delta_1}{\frac{4(X_1 - X_2)}{3L} + \frac{X_2^4 - X_1^4}{3L^4}} \quad (5)$$

ここで、 $\delta_2 - \delta_1$ は片持ちはりの 2 点 X_2 、 X_1 間の相対たわみ量である。なお、薄膜が収縮すれば、基板は膜面を内側にしていたわみ(引張応力)、薄膜が膨張すれば膜面を外側にしていたわみ(圧縮応力)。膜厚 D の測定は、コーティング膜を剥がした片持ちはり基板を準備し、たわみの実験と同じ条件でめっき膜を一定

時間だけ生成して取り出し、その基板の重量変化を科学天秤で測り、その基板面積で除することによって算出した。

(a) Airy disk (speckle) size with a limited aperture

(b) Comparison of reference beam phase variation with pixel size

Fig.1 Geometry for recording a TV hologram

Fig.2 Geometry for showing changes of optical path length due to displacement of a surface point

Fig.3 Displacement of a cantilever beam by uniform load

3. 実験

実験装置の概略を図 4 に示す。Ar⁺ レーザ光源から放射されたレーザ光は、ビーム・スプリッターで物体照明光と参照光に分ける。参照光は CCD カメラ前に置かれたビーム・スプリッターによってカメラ方向に入射する。物体照明光は、PZT (Piezoelectric transducer) に取り付けられたミラーを介して片持ちを照射する。このミラーは、ホログラム記録時に変位方向を判別するために、PZT によって正負の方向に微小変化を与えて光路長を変化させる。本実験光学系では、片持ちの法線方向に対して 17° 方向への面外成分が、1 縞あたり約 0.3μm の干渉縞として現れる。

測定試料の片持ちはりと、その取り付けジグを図 5 に示す。基板は Be-Cu 合金製 (Specialty testing & development Co, INC. 製) で、厚さ 0.05mm の薄片からなり、片面にはめっき膜が生成しないようにコーティングが施されている。スペックルパターンの記録は、めっき膜で表面性状が変化しないコーティング面で行う。表 1 に Stoney の式で用いたパラメーターの既知量を示す。なお、ヤング率とポアソン比はデータブックから引用した²⁰⁾。表 2 に無電解めっき液の組成を示すが、ホルマリンを還元剤に用いたアルカリ性 Cu めっき液を用いた。実験室の温度は、常時 25℃ に保った。ホログラム再生像の干渉縞密度は、取り出す 2 枚のスペックルパターンのフレーム時間間隔で決まり、めっきの反応速度に依存する。実験では、ジグに取り付けられた基板をめっき浴に挿入して、10 秒後に最初の記録(取込時間は約 0.05 秒)を行い、2 分までは 10 秒間隔で記録した。その後の 5 分までは 30 秒間隔、その後は 1 分間隔で記録を行った。

4. 実験結果と考察

無電解めっき浴中の片持ちはりにおいて、変形状態が異なる 2 枚のスペックルパターンと、このスペックルパターン画像の差から得られるたわみを現すホログラフィ干渉縞を図 6 に示す。スペックルパターンには、光学素子による回折ノイズが多く見られるが、スペックルの差を取ると、ノイズ成分は減少されて変形を表す干渉縞が現れる。干渉縞には回転やねじれなどが見られないことから、取り付けの不備やめっき液の流れの影響がほとんど現れていないことが推察できる。

図 7 (a), (b) にたわみ方向判別の測定例と解析手順を示す。図 (a)-① はめっき膜生成を始めて約 19 分後と 20 分後の 1 分間のホログラフィ干渉縞である。図 (a)-② は ① の記録直後に、正の方向に光路長を与えて記録し、③ は逆に負の方向に光路変化を与えて記録したときに、19 分後と 20 分後の間のホログラフィ干渉縞を示す。また、④ は 20 分後と 21 分後におけるホログラフィ干渉縞を表す。①-④ 間では干渉縞が増加しているのに対して、②は ① に比べて干渉縞が増加するが、③ では ② に比べて減少する。したがって、①-④ 間でののはりの変形方向は、② で光路長を変化させた方向の正方向に変形していることが推察できる。図 7 (b) にこれらの解析手順を示す。一定の取込み間隔の解析結果から推察される変形を表す破線の変形に対して、図 (b)-② では干渉縞(変位量)が多く現れ、逆に図 (b)-③ では干渉縞が少なくなる。図 8 に、得られためっき生成初期における基板のたわみ方向の模式図を示す。なお、一ヶ所で片持ちりの変形方向が特定できると、それぞれの取込み時間におけるホログラフィ干渉縞を連続的に比べることによって、全変形挙動が決定できる。

Fig.4 Optical apparatus for TV holographic interferometry

Fig.5 Test setup for bending

Table 1 Parameter

E_s (MPa)	T (mm)	L (mm)	ν_s
127400	0.04	75	0.33

Table 2 Component of Cu plating liquid

Copper (II) Chloride	0.03mol/L
Formaldehyde	0.30mol/L
Rochelle Salt (II) and EDTA	0.30mol/L
Sodium Hydroxide	0.20mol/L
Stabilizer	small quantities
Humectant	small quantities

Fig.6 Holographic fringes obtained with subtraction of the original state with the deformed state of the object

めっき膜の内部応力を評価するために、片持ちりの 2 点間のたわみ量を求めて (5) 式に代入し、自由端のたわみ量 δ_E を算出した。このたわみ量をめっき初期から全て加え合わせることで、片持ちりの自由端における累積たわみ量を求めた。

Fig.7 Hologram recording method for discriminating displacement direction

Fig.8 Deflection of a cantilever beam owing to the compression stress

図 9 に約 2 時間における変形挙動の測定結果を示す。図 10 には、図 9 に示された位置での単位時間あたりのホログラフィ干渉縞を示す。めっき初期の図 10 (a) の 3.5-4 分では変位量が著しく、(b) の 9-10 分では変位方向が反転しているために、1 分間での見かけの縞数は少なくなった。(c) の 29-30 分では、変形初期に比べて変形の勾配が緩やかになった。図 9 の約 40 分後には、はりのたわみは初期の状態に戻り、その後はほぼ一定の速度で変形が続いた。なお、この変形挙動は、繰り返し実験においても、変形方向を含めてほぼ同様な結果が得られた。

次に、Stoney 等の式を用いて、めっき膜の内部応力変化を算出することを試みた。膜厚 D の測定は、基板の重量変化を科学天秤で測り、その基板面積から膜厚の平均値を算出した。膜厚と図 9 の自由端の累積たわみ量を用いて、(4) 式から求めためっき膜厚と内部応力 σ の関係を図 11 に示す。なお、図 11 の横軸の膜厚は、図 9 の横軸のめっき時間に相当する。図から膜厚が約 $0.03\mu\text{m}$ あたりまでは、圧縮応力が急激に増加して極大値をとり、その後は圧縮応力が減少するが、始めは急な応力勾配で、その後は緩やかな応力勾配を示した。なお、膜厚約 $0.25\mu\text{m}$ 以降は低い引張の内部応力が発生している。このような内部応力の挙動については、薄膜の生成方法が異なるが、他の文献においても散見できる^{5)7)8),10)11)}。なお、本実験で算出した内部応力は予想以上に大きな値になった。この原因については、今後さらに無電解めっき膜の内部応力の発生メカニズムを微視的観点からも詳細に検討すると共に、理論式に代入した基板の弾性係数 E_s 、ポアソン比 ν の妥当性、Stoney 式の適用方法などを含めて、現在検討中である。

図 11 の応力が大きく変動する近辺における Cu めっき膜の SEM 観察結果を図 12 に示す。めっき膜生成の約 5 分後(膜厚 $0.019\mu\text{m}$)では、基板に白く斑点状に Cu めっき粒子の付着が見られる。15 分後では、これらの粒子がかなり成長している。なお 30 分後ではめっき膜は十分に成長し、厚くて密になっている様子が伺える。図 11 に見られるめっき膜の初期の急激な変化は、基板に小さなめっき粒子が離散的に付着している時に起こっていることが推察される。

Fig.9 Deflection of the free end of a cantilever beam

Fig.10 Temporal change of interference fringes owing to the interval stress

5. 結 言

TV ホログラフィ干渉法を用いて、めっき膜が生成される片持ちはりの変形挙動を測定する方法を提案し、めっき膜の初期内部応力変化の算出を試みた。Be-Cu 合金製片持ちはりに対する無電解 Cu めっき実験で得られた知見を以下に示す。

- (1) 従来の実時間ホログラフィ干渉法では、最初に現像処理時間を要するが、TV ホログラフィ干渉法を用いると、現像時間を必要としないために、めっき膜生成初期からの変形挙動を捕らえることができる。
- (2) 内部応力の圧縮・引張の判定は、片持ちはりの変形方向を判別することによって可能である。
- (3) 片持ちはりのコーティング膜側を測定することによって、めっき膜生成挙動を連続的に測定可能である。
- (4) TV ホログラフィ干渉法によって得られる連続したたわみ量を、Stoney の式に代入することによって、めっき膜の内部応力の“その場測定”が可能である。
- (5) めっき初期においては著しい圧縮応力が生じ、膜厚約 $0.03\mu\text{m}$ で最大圧縮応力を示した。その後、圧縮応力はしばらくは急激に、そして緩やかに緩和される。なお、膜厚約 $0.25\mu\text{m}$ あたりから、内部応力は引張応力に変わった。

今後は、めっき液に含まれているサッカリンなどの応力緩和剤の含有率における影響、めっき初期における粒子状態の詳細な観察、およびめっき析出による膜厚のリアルタイム測定法等の実験を行うことによって、薄膜の内部応力の推定と発生原因について詳しく検討する予定である。

参 考 文 献

- 1) 田中啓介：表面処理層の内部応力，表面処理，**43**, 7, (1992) pp.624-629
- 2) 生地文也：膜の内部応力評価，表面技術，**40**, 12, (1989) pp.1350-1354
- 3) 馬来国弼：薄膜の内部応力の推定法と発生原因，応用物理，**57**, 12, (1988) pp.1856-1867
- 4) 金原 榮，藤原英夫：薄膜，装華房，(1988) pp.127-140
- 5) E.Klokhholm: An apparatus for measuring stress in thin films, The review of Scientific Instruments, **40**, 8 (1969) pp.1054-1056
- 6) H.Horikoshi and N.Tamura: Internal stress and electrical resistivity of evaporated antimony films, Japanese Journal of Applied Physics, **2**, 6, (1963) pp.328-336
- 7) J.D.Wilcock and D.S.Campbell: A sensitive bending beam apparatus for measuring the stress in evaporated thin films, Thin Solid Films, **3**, (1969) pp.3-12
- 8) 生地文也，永田三郎：低圧プラズマスパッタリング法による金属薄膜の内部応力，応用物理，**42**, 2, (1973) pp.115-123
- 9) M.A.Paessler and H.Fritzsche: Measurement of internal stress in thin films, Rev. Sci. Instrum., **45**, 1, (1974) pp.114-115
- 10) J.R. Maser, R.Buhl and H.K.Pulker: Mechanical stresses in dielectric films measured with a new optical monitoring device, Proc. 7th Intern. Vac. Congr. & 3rd Int. conf. Solid surfaces, Vienna, (1977) pp.1761-1765
- 11) A.E.Ennos, Stress developed in optical film coatings, Appl. Opt., **5**, 1, (1996) pp.51-61
- 12) C.H.VEST: Holographic interferometry, John Wiley & Sons, (1978) pp.146-253
- 13) P.Hariharan: Optical Holography, Cambridge University Press, (1984) pp.207-231
- 14) K.Creath and J.C.Wyant: Optical Shop Testing, D.Malacara ed., "Holographic and speckle Tests", (1992) pp.599-651
- 15) 例えば：J.C.Davies and C.H.Buckberry: Optical Methods in Engineering Metrology, edited by D.C.Williams, "Television holography and its applications", CHAPMAN & HALL, (1993) pp.275-338
- 16) G.G.Stoney: The tension of metallic films deposited by electrolysis, Proc. Roy. Soc., **A82**, (1909) pp.172-175
- 17) A.Brenner and S.Senderoff: J.Research National Bureau of Standards, **42**, (1949) pp.105
- 18) N.N.Davidenkov: Measurement of residual stress in electrolytic deposits, Sov. Phys. -Solid State **2**, (1961) pp.2595-2598
- 19) R.W.Hoffman: in Thin Films, Am. Soc. Metals, (1963) pp.99
- 20) 伸鋼品データブック編集委員会：伸鋼品データブック，日本伸鋼協会，(1997) pp.350-351

Fig.11 Relation between thickness and internal stress for a Cu plating on a Be-Cu substrate

Fig.12 SEM photograph of electroless deposits produced on the substrate