0710 高分子薄膜/ガラス基板界面のクリープはく離特性

Delamination between polymer thin film and glass substrate in creep

○横山雅憲 (京大院) 正 平方寛之 (京大工) 正 北村隆行 (京大工)

Masanori YOKOYAMA, Hiroyuki HIRAKATA and Takayuki KITAMURA

Department of Engineering Physics and Mechanics, Kyoto University, Kyoto, 606-8501

Key Words: Creep, Delamination, Interface Strength, Crack Growth, Thin Film, Polymer

1 はじめに

高分子薄膜は、LSIの絶縁層やフォトレジスト、有機薄膜トランジスタなどの様々な工業製品として用いられている。これらの高分子薄膜は金属やセラミックスなどの硬い基板に堆積した構造で用いられることが多い。しかし、その接合界面の強度は必ずしも十分でなく、製造プロセス中または使用中に生じるはく離が問題となっている。とくに、高分子材料は室温でクリープを示すため、高分子薄膜と基板の界面はクリープによる破壊が生じると考えられる。しかし、従来のクリープ破壊に関する研究はマクロな均質材に対するものがほとんどであり、クリープを示す薄膜と基板の界面に対するクリープ破壊特性は解明されていない。本研究の最終的な目的は高分子薄膜のクリープ界面強度を支配する力学法則を明らかにすることである。

その解明には、まず、クリープによる界面き裂伝ば挙動の観測が不可欠である。本研究では、その場観察が可能なクリープ界面き裂進展試験法を開発し、厚さがミクロンオーダーのエポキシ薄膜とガラス基板の界面に適用した。

2 試験片および試験方法

試験片および試験システムを図1に示す。本研究では高分子材としてエポキシ樹脂(ペルノックスXW-2310)を用いた。本材は、溶剤で希釈することによって硬化前の粘性を低く(10 mPa·s)設定でき、スピコート法による薄膜化および膜厚の均一化が容易である。本材を厚さ1 mmのガラス基板上にスピコート法で製膜し、298 Kで2時間風乾して溶剤を揮発させた。その上に、薄膜に負荷を加えるためのSi基板(厚さ0.3 mm)をおき、ドライオープン中(423 K, 1 h)で硬化させた。硬化後の膜厚は約8 μmである。薄膜の破壊を防止するため、基板で挟まれていない部分のエポキシは除去した。また、ぜい性的なSi基板が試験中に破壊することを防止するため、Si基板背面にステンレス四角柱を接合した。

ガラス基板を治具に固定し、図1の負荷点に荷重、 P_s に相当する質量の錘を懸垂した。 P_s は予備試験により求めた静的はく離荷重以下に設定した。き裂進展挙動を詳細に観察するため、光学顕微鏡による界面き裂のその場観察を行った。本試験片では基板としてガラスを用いているため、エポキシ/基板界面を図1に示す方向からガラス越しに観察することが可能である。デジタルカメラを用いた自動撮影システムにより、試験中の界面の様子を5分ごとに撮影した。負荷、 P_s を変えた2回の試験(試験片1と2)を、一定温度下(298 K)、大気中で行った。

Fig. 1 Specimen and testing system for in-situ creep test

3 試験結果および考察

図2に試験片1($P_s = 0.9$ N)のエポキシ膜の光学顕微鏡写真を経過時間、 t 、ごとに示す。試験中に発生したき裂が色の異なる部分として明瞭に確認でき、時間の経過とともにき裂が安定進展している様子がわかる。き裂は試験開始直後に両側のエポキシ/ガラス界面端角部から発生し、界面に沿って進展した(図2(a))。 $t = 2$ h(図2(b))では、両端部から発生したき裂が合体しており、その後、き裂は試験片全幅で進展した(図2(c), (d))。 $t = 13.5$ h(図2(d))の直後に、き裂は不安定進展し全面破断に至った。試験片2のき裂進展挙動も試験片1と同様であった。以上の結果より、本材(エポキシ薄膜/ガラス基板)界面のクリープき裂伝ばが存在することが明らかになった。

クリープき裂進展速度を評価するため、光学顕微鏡写真を基にき裂長さ、 a 、を求めた。図3に試験片1の a と時間、 t 、の関係を示す。ただし、試験片中央(I)と端部から200 μm(II)における結果をプロットした。(I)と(II)ともに、き裂は発生後しばらく減速し、ほぼ一定の速度で進展した後、加速して不安定進展に至る。き裂の発生は端部近傍(I)の方が早く、遅れて中央部(II)で発生する。その後、中央部のき裂は大きく加速し、端部のそれに近づいた後、不安定進展する。き裂前縁は一樣に進展するわけではないので、き裂が進展した面積を試験片幅(2.0 mm)で除したものを平均き裂長さとして定義し、図中に併せて示す。 $a-t$ 線図の全体的な傾向は(I)と(II)のものと同様である。この平均き裂長さ a と t の関係からき裂進展速度、 da/dt 、を算出した。図4に、試験片1と2の da/dt

と a の関係を示す。 $da/dt-a$ 関係の概形は試験片 1 と 2 で同様であり、ほぼ一定の速度で進展した後、加速する。 da/dt が一定の領域は、試験片 1 では約 0.3 mm、試験片 2 では約 0.25 mm である。また、荷重、 P_s 、が大きい試験片 2 の方が、

Fig. 2 Interface crack growth behavior in creep test (specimen 1)

き裂進展速度が速い。本試験では、一定荷重を負荷しているため、き裂が進展するにつれてき裂先端近傍の負荷が高くなる。伝ばに伴ってき裂が加速するのはこのためであると考えられる。しかし、本材のクリープき裂伝ばの支配法則を解明するには、薄膜のクリープ特性を考慮した解析を行い、き裂先端近傍の力学状態（非線形破壊力学パラメータ）を評価することが不可欠である。

4 まとめ

その場観察が可能な高分子薄膜／基板界面のクリープき裂進展試験法を開発した。本試験法を厚さがミクロンオーダーのエポキシ薄膜とガラス基板の界面に適応し、クリープき裂進展速度を実験的に評価した。今後、得られた結果を基に非線形有限要素解析を行い、クリープ界面き裂進展を支配する力学法則について検討する予定である。

Fig. 3 Relationship between crack length and time in specimen 1

Fig. 4 Relationships between crack growth rate and crack length