精密 3 点曲げ法による電子デバイス用薄膜のヤング率測定*

張 聖徳^{*1}, 安藤 豪志^{*2}, 袁 志攀^{*2}, 小林 馨^{*3}, 寺田 健司^{*3}, 坂根 政男^{*4}

Young's Modulus Measurement of Thin Films for Electronic Devices by Precision 3-Points Bending Method

Shengde ZHANG^{*1}, Takeshi ANDO, Zhipan YUAN, Kaoru KOBAYASHI,
Kenji TERADA and Masao SAKANE

^{*1} Department of Mechanical Engineering, Ritsumeikan University,
1-1-1, Nojihigashi, Kusatsu-shi, Shiga 525-8577, Japan

This paper describes the Young's modulus of thin films for electronic devices measured by a 3-points bending method. Materials tested were rolled copper, electrolytic copper, direct current plated copper and pulse plated copper and liquid crystal polymer films. Young's moduli were calculated from the difference in the slope of the load-deflection line between aluminum substrate and that with the glued film. The direct current plated copper showed the largest Young's modulus among the copper films. The Young's modulus of the pulse plated copper was larger than those of the rolled copper and electrolytic copper. However, the Young's moduli of all the copper films were smaller than that of bulk copper. The difference of Young's modulus of the copper films was discussed in relation to the residual stress and crystal structure of the films observed by EBSD. The Young's modulus of the liquid crystal polymer was smaller than those of the copper films. Anisotropy of the Young's modulus was found in the liquid crystal polymer film, i.e. the injection direction showed the smaller Young's modulus compared with the transverse direction to it.

Key Words : Young's Modulus, 3-Points Bending Method, Copper Film, Liquid Crystal Polymer

1. 緒 言

電子デバイスに使用される部品は、熱膨張係数が異なる材料から構成されており、電源の on/off に伴って温度変化を生じ、異なる熱膨張係数の部品が接合された箇所では熱応力を生じる。とくに、電子デバイスの多層化基板のひとつとして広く使用されてきたビルドアップ配線板は、銅薄膜配線層と絶縁用樹脂薄膜の逐次層から構成されており、繰返し熱応力によってこれらの薄膜にき裂が発生・伝播することが報告されている⁽¹⁾。このような熱疲労問題の解決方法として、設計段階において数値解析で予め熱応力を予測し、材料や形状の最適化を行う方法がある。このような解析において薄膜の弾性定数の精度が解析結果の信頼性を大きく左右するため、正確な薄膜の弾性定数を用いることが重要である⁽²⁾。

薄膜の機械的特性はバルク材とは異なり、成膜方法、組織および寸法などに依存して大きく変化することが知られており、多くの研究が行われてきた。たとえば、玉川ら⁽³⁾⁻⁽⁴⁾は厚さ 10 μm の圧延銅箔および電解銅箔の機械的特性を評価し、ヤング率がそれぞれ 86GPa および 29GPa であり、バルク銅のヤング率 (130GPa) より小さいことを報告した。逆に、荒川ら⁽⁵⁾は SUS304 ステンレス鋼の薄膜のヤング率がバルクのそれより大きいことを報告した。一方、橋本ら⁽⁶⁾は厚さが 1 μm から 10 μm までの Co-Ta-Zr 薄膜のヤング率を計測し、4.5 μm 以上では薄膜のヤング率がバルク材のそれと同様であるが、厚さがさらに薄くなるとヤング率が大きくなることを報告した。

* 原稿受付 2010年 2月 8日

^{*1} 正員, 立命館大学理工学部機械工学科 (〒525-8577 滋賀県草津市野路東 1-1-1)

^{*2} 立命館大学理工学部機械工学科

^{*3} 京セラ SLC テクノロジー(株)

^{*4} 正員, フェロー, 立命館大学理工学部機械工学科

E-mail: zhangsd@se.ritsumeikan.ac.jp

これらのことから、薄膜のヤング率をバルク材の結果から直接推定することには信頼性上問題があり、実際に使用される薄膜と同じ製膜方法や同じ厚さの薄膜のヤング率を正確に評価することが重要であることがわかる。

これまでに、薄膜のヤング率の測定法として、バイメタル法⁽⁷⁾、バルジ法⁽⁸⁾、インデンテーション法⁽⁹⁾、振動リード法⁽¹⁰⁾、引張法⁽¹¹⁾および 3 点曲げ法^{(6), (12)-(16)}等が用いられてきている。バイメタル法とバルジ法はヤング率を決定する際に、ポアソン比が必要であり、薄膜のポアソン比が正確に求められていない場合には、信頼性に難点がある。インデンテーション法は試料作製や試験方法が困難であり、振動リード法は試料作製が容易であるが外乱による影響を受けやすいという問題点がある。それに対して、引張法と 3 点曲げ法は、他の弾性定数の介在なしで実験的にヤング率を求めることが可能であり、試料作製も容易である。とくに、組合せばりの理論に基づく 3 点曲げ法は、薄膜を基板に成膜した時と同様の状態で試験が行え、試験法が容易であるという特徴も有している⁽⁶⁾。

本研究では、精密 3 点曲げ法⁽⁶⁾を用いて、電子デバイスの配線層に用いられる 4 種類の銅薄膜および絶縁層に用いられる液晶フィルムのヤング率について考察した。併せて、薄膜のヤング率の測定に及ぼす基板および接着層の影響を考察するとともに、3 点曲げ法による薄膜のヤング率測定法について検討した。さらに、銅薄膜のヤング率に及ぼす薄膜の作製法の影響および液晶フィルムのヤング率の切出し方向依存性について検討した。

2. 解析方法

本研究では、図 1(a)および(b)に示すように厚さ h_s および幅 b の長方形断面を有する基板に膜厚が h_f の薄膜を接着した組合せばりの曲げ変形を考える。なお、接着層の厚さは h_a とした。この組合せばりが両端支持され、支点間距離 l の中央に集中荷重 P を受けるときの荷重点でのたわみ y の 2 階微分は次式で表せる。

$$\frac{d^2 y}{dx^2} = -\frac{M}{E_s I_s + 2E_a I_a + 2E_f I_f} \quad (1)$$

ここで、 M 、 E および I はそれぞれ曲げモーメント、ヤング率および断面 2 次モーメントであり、下添字の s 、 a および f はそれぞれ基板、接着層および薄膜を表している。基板、接着層および薄膜の組合せばりの断面 2 次モーメント I_s 、 I_a および I_f はそれぞれ

$$I_s = \frac{bh_s^3}{12}, \quad I_a = \frac{bh_a^3}{12} + \frac{(h_s + h_a)^2}{4}bh_a, \quad I_f = \frac{bh_f^3}{12} + \left(\left(\frac{h_s + h_f}{2} \right) + h_a \right)^2 bh_f \quad (2)$$

と表せる。

薄膜および接着層つき基板（以下、薄膜つき基板）の荷重点での変位 δ_{s+a+f} は、

Fig. 1 3-points bending of a composite beam

$$\delta_{s+a+f} = \frac{Pl^3}{48(E_s I_s + 2E_a I_a + 2E_f I_f)} \quad (3)$$

となる．ここで， P は荷重， l は支点間距離であり，下添字の $s+a+f$ は薄膜つき基板を表している．

また，基板のみおよび接着材つき基板の荷重点での変位 δ_s および δ_{s+a} は，それぞれ

$$\delta_s = \frac{Pl^3}{48E_s I_s}, \quad \delta_{s+a} = \frac{Pl^3}{48(E_s I_s + 2E_a I_a)} \quad (4)$$

となる．

基板のヤング率 E_s ，接着層のヤング率 E_a および薄膜のヤング率 E_f は，基板のみ，接着材つき基板および薄膜つき基板の 3 点曲げ試験で得られた荷重－荷重点変位関係の傾き m_s ， m_{s+a} および m_{s+a+f} から次式を使って求めることができる．

$$E_s = \frac{l^3 m_s}{48I_s}, \quad E_a = \frac{l^3 m_{s+a}}{96I_a} - \frac{E_s I_s}{2I_a}, \quad E_f = \frac{l^3 m_{s+a+f}}{96I_f} - \frac{E_s I_s}{2I_f} - \frac{E_a I_a}{I_f} \quad (5)$$

3. 試験方法

本研究での供試材は，ビルドアップ配線の配線層に用いられる圧延銅箔（以下，RC），電解銅箔（以下，EC），DC めっき（以下，DC）とパルスめっき（以下，PC）の 4 種類の銅薄膜および絶縁層に用いられる液晶フィルムである．なお，圧延銅箔については圧延による異方性の影響を確認するため，圧延方向（以下，RD）およびそれと垂直な方向（以下，TD）の 2 種類の供試材を用いた．液晶フィルム（以下，LCP）は図 2 に示すようにインフレーション法で作製される．同方法では，熔融 LCP を円筒状に押出して，直ちに内部空気圧により円筒を横方向にふくらませる．また，LCP は剛直な分子の集合体であり，成形時に分子が押出し方向に配向する傾向があるため，ヤング率に異方性がある可能性がある⁽¹⁷⁾．したがって，本研究では押出し方向に対して 0° （以下，MD）， 45° （以下，OB）および 90° （以下，TD）の方向に切出した供試材のヤング率を測定した．

基板には加工が容易であり，ヤング率が相対的に小さい $46\text{L} \times 8\text{W} \times 0.2\text{t mm}^3$ のアルミニウム合金を使用し，両面にポリミド系樹脂接着材を用いて薄膜を接着した．本研究では，薄膜を一定のプレス（ 0.8MPa ， 150°C ， 1800sec ）で基板に接着することにより，薄膜と基板との接着強度および一様性を高めた．使用する試験片は基板のみ，接着材つき基板および薄膜つき基板である．なお，基板（ h_s ），接着層（ h_a ）および薄膜（ h_f ）の厚さは分解能 0.001mm のマイクロメータで測定した．その結果，銅薄膜および接着層の平均厚さはそれぞれ $18\mu\text{m}$ および $15\mu\text{m}$ ，液晶フィルムおよび接着層の平均厚さはそれぞれ $28\mu\text{m}$ および $25\mu\text{m}$ であった．

試験装置には，機構を図 3 に示す独自に開発した精密 3 点曲げ試験装置⁽⁶⁾を用いた．本試験装置は，荷重負荷部，荷重計測部，変位計測部および支点部から構成されている．荷重は，最大移動量 15mm ，分解能 $0.1\mu\text{m}$ のエ

Fig. 2 Cutting directions of LCP film

ンコーダ式自動マイクロメータ（中央精機・AME-15）を用いて、ナイフエッジを取付けたステージを移動させることにより負荷する機構となっている．このマイクロメータにより、ナイフエッジの移動量を $0.1\mu\text{m}$ の精度で制御することが可能である．荷重計測部には、ナイフエッジに直結している最大秤量 2.94N 、分解能 $9.8\times 10^{-6}\text{N}$ の電子天びん用電磁平衡式ロードセル（エー・アンド・デイ・FX-300）を用いた．変位は、測定範囲 $\pm 500\mu\text{m}$ 、分解能 $0.05\mu\text{m}$ のレーザ式変位計（キーエンス・LD-2500）を使用することによって、非接触で計測した．支点部には、低起動ミニチュアベアリング（外直径 12mm ）を用い、試料の支点での回転摩擦を低減した．また、支点部は精密微動送りステージ（中央精機・LS-641）で構成されているため、支点間距離を $30\sim 50\text{mm}$ で正確に設定することが可能である．本試験装置は、負荷点での試験片の変位を直接計測できること、また負荷荷重が小さくマシンコンプライアンスの影響がほとんどないところが特徴である．

3 点曲げ試験は支点間距離を 30.00mm で大気中、常温で実施した．一定の初期荷重を与えた後、徐々に荷重を上げ、荷重－変位関係の傾きを求めた．3 点曲げ法による薄膜のヤング率の測定方法のフローを図 4 に示す．

- Step 1：基板の幅と厚さ、接着層および薄膜の厚さを分解能 $1\mu\text{m}$ の拡大投影機で測定する．幅および厚さは異なる 3 点での計測データの平均値とした．
- Step 2：基板のみについて 3 点曲げ試験を実施し、基板の荷重－変位関係の傾き m_s を求める．このとき 1 つの試料に対して毎回試験装置への取付け直しを行い、4 回試験を繰返し、それらの平均値をデータとして採用する．さらに式(5)より基板のヤング率 E_s を求める．
- Step 3：接着材つき基板について 3 点曲げ試験を実施し、荷重－変位関係の傾き m_{s+a} を求める．さらに E_s および式(5)より接着層のヤング率 E_a を求める．
- Step 4：薄膜つき基板について 3 点曲げ試験を実施し、荷重－変位関係の傾き m_{s+a+f} を求める．
- Step 5： E_s 、 E_a および式(5)より薄膜のヤング率 E_f を決定する．

Fig. 3 Schematic of a precision 3-points bending apparatus

Fig. 4 Flow for measuring Young's modulus of thin films

4. 試験結果および考察

4・1 基板および接着層のヤング率

図 5 に、銅薄膜用基板のみおよび接着材つき基板の試験片の代表的な荷重－変位関係を示す。同図から、両試験片ともに荷重－変位関係に良好な直線関係が成立していることがわかる。また、図示を略したすべての実験結果においても、良好な直線関係が得られており、本実験を行った荷重範囲では式(4)で示される荷重－変位の線形関係が成立することを確認した。

本研究で用いたアルミニウム基板の 3 点曲げ法で測ったヤング率の平均値は 67.9GPa であり、バルク基板のヤング率である 70.0GPa⁽¹⁸⁾と 3%の差しかなかった。このことより、本研究で用いた 3 点曲げ装置は十分な精度を有していることがわかる。

図 6 および表 1 に、式(5)から求めた基板および接着材のヤング率を示す。なお、表中の括弧内の値は相対偏差であり、各測定値と平均値との差を平均値で割った値である。変動係数は標準偏差を平均値で割った値であり、データのばらつきを示している。測定された各基板のヤング率は、平均値と比べて最大でも 5.7%の差しかなく、良好な測定精度を示している。しかし、各試験片の接着材のヤング率は平均値から最大 43.2%もの差があり、またばらつきも大きい。接着材のヤング率に大きなばらつきが生じた理由は、基板と接着材のヤング率の差が大きく、図 5 に示した基板や接着材つき基板の荷重－たわみ関係のわずかな差が接着材のヤング率に大きく反映したことによると考えられる。

4・2 銅薄膜および液晶フィルムのヤング率

図 7 および図 8 に、それぞれ銅薄膜つき基板および液晶フィルムつき基板の代表的な荷重－変位関係を示す。図中の実線は接着材つき基板の代表的な荷重－変位関係である。上述した図 5 と同様に、両種類の試験片ともに荷重－変位関係に良好な直線関係が成立している。また、図示を略したすべての実験結果においても、良好な直線関係が得られており、本実験を行った荷重範囲では式(3)で示される荷重－変位の線形関係が成立することがわかる。

Table 1 Young's moduli of substrate and adhesive

No.	Young's modulus E [GPa]						Coefficient of variation ξ [%]
	01	02	03	04	05	Average	
Substrate	71.8 (5.7%)	66.7 (-1.8%)	67.6 (-0.4%)	69.8 (2.8%)	63.7 (-6.2%)	67.9	4.5
Adhesive	2.1 (-43.2%)	3.8 (2.7%)	3.8 (2.7%)	5.3 (43.2%)	3.3 (-10.8%)	3.7	31.4

Fig. 5 Load-deflection relationship of substrate and substrate with adhesive

Fig. 6 Young's moduli of substrate and adhesive

Fig. 7 Load-deflection relationship of substrate with copper films

Fig. 8 Load-deflection relationship of substrate with LCP films

Table 2 Young's moduli of copper films [GPa]

No.	RC(RD)	RC(TD)	EC	DC	PC
01	75.1	72.5	75.1	100.8	77.1
02	70.0	90.2	75.9	91.6	92.2
03	78.8	79.5	70.7	109.4	94.3
04	79.2	81.7	79.6	112.6	87.6
05	77.4	85.6	74.8	113.4	87.1
06	69.2	79.1	74.5	100.0	96.0
07	74.6	72.6	73.5	113.6	84.4
08	71.8	78.3	77.5	93.0	80.5
09	65.5	81.1	91.8	112.0	79.4
10	76.0	67.0	76.0	98.0	83.4
Average	73.8	78.8	76.9	104.4	86.2
ξ[%]	6.1	8.5	7.4	8.3	7.4

Fig. 9 Comparison of Young's moduli of copper thin films

図 9 および表 2 に、4 種類の銅薄膜について各 10 本ずつのヤング率の測定結果を示す。図中の数値は各銅薄膜の平均値を示し、測定結果の最大値および最小値の範囲をバーで表示した。同図および同表からわかるように、各銅薄膜のヤング率の測定結果においては、変動係数が最大でも 8.5% とばらつき幅は小さい結果が得られた。

図 9 の各銅薄膜のヤング率を比べると、RC のヤング率に及ぼす圧延方向の影響はほとんどなく、RD 方向のヤング率の平均値は 73.8 GPa であり、これは TD 方向の 78.8 GPa より約 6.8% 小さい程度であった。EC のヤング率は RC(RD) と RC(TD) の中間の 76.9 GPa 程度であった。一方、DC のヤング率は最も大きく 104.4 GPa であり、PC のヤング率は DC のそれより小さく 86.2 GPa 程度となった。さらに、本研究で行ったすべての銅薄膜のヤング率はバルク銅のヤング率である約 130 GPa より小さく、他の研究結果^{(4),(9),(11)}と同様な傾向を示していた。たとえば、Cheng⁽¹¹⁾らが行った引張試験法による厚さ 2.53 mm の電解銅箔のヤング率の平均値は 78 GPa であり、バルク材のそれより小さいと報告している。

一般に、薄膜の弾性的性質は残留応力、柱状組織、集合組織および結晶粒間の不完全結合などに影響されることが知られており、以下これらの点について考察する。

薄膜に残留応力が作用するとき、薄膜の原子間距離が変化していることから弾性定数が異なると考えられるが、本研究で使用した銅薄膜、とくに RC および EC については 473 K で 1 時間の熱処理を実施した試験片であり、残留応力はほとんどないと考えられる。したがって、残留応力では各銅薄膜のヤング率が異なるとともにバルク材のヤング率より小さいことを説明することはできない。

柱状組織の影響について考察するために、図 10(a) および (b) に、EBSP による各銅薄膜の表面および断面の結晶方位の観察写真を示す。これらの写真では、結晶粒間の方位差が 15° 以上のものを粒界とし、色の違いで結晶粒

を示した。なお、RC については RD 方向と TD 方向のほぼ同じ観察結果が得られたことから、TD 方向の観察結果のみ示した。同図(a)の表面写真からすべての銅薄膜においてほぼ均一な結晶粒から成り立っていることがわかる。また、同図(b)の断面写真からわかるように EC だけ銅薄膜厚さ方向に柱状組織を有しており、ほかの銅薄膜では明瞭な柱状組織が観察されなかった。表 3 に、JIS G 0551⁽¹⁹⁾に基づいて各銅薄膜の表面結晶粒度を計測した結果を示す。RC の結晶粒が最も大きく $2.45\mu\text{m}$ であり、EC のそれが最も小さく $0.87\mu\text{m}$ となった。一方、DC および PC の結晶粒はそれぞれ $1.13\mu\text{m}$ および $1.11\mu\text{m}$ でほぼ同程度であった。図 11 に、各銅薄膜のヤング率と結晶粒の関係を示すが、ヤング率と結晶粒との間には明瞭な相関関係のないことがわかる。以上のことから、銅薄膜のヤング率に及ぼす結晶粒や柱状組織の影響は小さいと考えられる。

Fig. 10 Microstructure of copper films observed with EBSD

Fig. 11 Relationship between E and d for copper films

Fig. 12 Pole figure of (001) orientation for copper films observed with EBSD

Table 3 Grain sizes of copper films

Grain size	RC(TD)	EC	DC	PC
$d [\mu\text{m}]$	2.45	0.87	1.13	1.11

Table 4 Young's moduli of LCP films [GPa]

No.	MD	OB	TD
01	6.9	9.3	9.8
02	5.4	3.3	8.7
03	6.2	5.3	11.0
04	5.5	5.0	7.6
05	7.1	5.0	9.9
Average	6.2	5.6	9.4
$\xi [\%]$	13.9	43.6	27.5

Fig. 13 Comparison of Young's moduli of LCP films

集合組織の影響を考察するため、図 12 に、EBSP により計測した基本結晶方位の一つである (001) 方位の極点図を各銅薄膜試験片について示す。同極点図は、観察試料の座標系を固定して、(001) 方位を向いている方向を色の濃淡で表わした。なお、各図の中心、AD および WD はそれぞれ試験片の厚さ方向、長手方向および幅方向を示している。RC(RD)および RC(TD)の場合には、(001) 方位の明確な集中箇所が存在するが、これは薄膜を圧延することによって集合組織が形成されたためであると考えられる。一方、EC、DC および PC の場合は (001) 方位が比較的分散しており、明瞭な集中箇所はほとんどなかった。以上の集合組織の観察結果とヤング率の測定結果とを比較すると、両者の間には明瞭な関係はないことがわかる。すなわち、比較的集合組織を有する RC および明瞭な集合組織がない EC はほぼ同程度のヤング率を示すとともに、明瞭な集合組織がない EC、DC および PC でもヤング率はそれぞれ異なっていた。したがって、集合組織では各銅薄膜のヤング率の差を説明することはできない。

以上の考察からわかるように、銅薄膜のヤング率の差は残留応力、柱状組織および集合組織の面からは十分に説明することができなかった。したがって、それ以外の要因が大きく影響していると推察される。それ以外の要因としては、結晶粒間の結合状態および薄膜中の欠陥などが考えられるが、これらの要因の影響の大きさについては今後さらに検討する必要がある。

図 13 および表 4 に、各 5 本ずつ行った液晶フィルムの 3 方向のヤング率の測定結果を示す。各方向の液晶フィルムのヤング率は大きくばらついており、変動係数が最大 43.6% となり、銅薄膜のヤング率測定結果より大きくなった。このことは、液晶フィルムのヤング率はアルミ合金基板のヤング率より小さく、図 8 に示した接着材つき基板と液晶フィルムつき基板の荷重-たわみ関係のわずかな差が液晶フィルムのヤング率に反映したことによると考えられる。

また、3 方向におけるヤング率を比較すると、押出し方向と垂直な TD 方向のヤング率が最も大きく、MD 方向と OB 方向のヤング率は大きな差がなかった。液晶フィルムは剛直な分子の集合体であり、成形時に分子が押出し方向に容易に配向するため、配向方向のヤング率が大きくなる⁽¹⁷⁾。しかし、本研究で使用した液晶フィルムは、熔融 LCP を円筒状に押出して、直ちに内部空気圧により円筒を横方向にふくらませるインフレーション法で製膜したものであり、横方向にも分子が並んでいる。したがって、TD 方向のヤング率が逆に MD 方向より少し小さくなったと推察される。

4・3 薄膜のヤング率測定に及ぼす接着層の影響

本節では接着層のヤング率および厚さが薄膜のヤング率の測定結果に及ぼす影響を 3 種類の方法で検討する。3 種類の方法とは式(5)において、それぞれ

方法 I : 接着層のヤング率および厚さを考慮した方法、すなわち、 $E_a \neq 0$, $h_a \neq 0$,

方法Ⅱ：接着層のヤング率を考慮せず厚さだけ考慮する方法，すなわち， $E_a=0$ ， $h_a \neq 0$ ，

方法Ⅲ：接着層のヤング率および厚さを両方考慮しない方法，すなわち， $E_a=0$ ， $h_a=0$

である．方法ⅡおよびⅢによる薄膜のヤング率の計算式は，上記の条件を考慮して下式のようにになる．

方法Ⅱ：

$$E_f = \frac{l^3 m_{s+a+f}}{96I_f} - \frac{E_s I_s}{2I_f}, \quad I_f = \frac{bh_f^3}{12} + \left(\left(\frac{h_s + h_f}{2} \right) + h_a \right)^2 bh_f \quad (6)$$

方法Ⅲ：

$$E_f = \frac{l^3 m_{s+a+f}}{96I_f} - \frac{E_s I_s}{2I_f}, \quad I_f = \frac{bh_f^3}{12} + \frac{(h_s + h_f)^2}{4} bh_f \quad (7)$$

図 14(a)および(b)に，3 種類の方法で計算したヤング率の比較をそれぞれ銅薄膜および液晶フィルムについて示す．同図(a)からわかるように，方法Ⅱで計算した銅薄膜のヤング率は方法Ⅰのそれよりわずかに大きく，その差が最大でも 3.1%であった．方法Ⅲで計算したヤング率は方法ⅠとⅡのそれらに比べて大きく，方法Ⅰより 33.1%大きくなった．このことは，銅薄膜のヤング率の測定において，接着層のヤング率の影響は少なく，接着層の厚さのみを正確に計測することが重要であることを示している．

一方，同図(b)の液晶フィルムの結果をみると，方法Ⅰ，ⅡおよびⅢの順にヤング率が大きくなり，方法Ⅱから計算したヤング率は方法Ⅰのそれより 20.4%，方法Ⅲの場合は方法Ⅰより 58.3%大きくなった．これらのことは，接着層の厚さおよびそのヤング率の両者が液晶フィルムの測定結果に影響することを示している．また，3 種類の方法で計算したヤング率の測定差は，液晶フィルムのほうが銅薄膜のそれより大きく，液晶フィルムのヤング率の測定においては，接着層のヤング率および厚さを両方とも正確に計測することが重要であることがわかる．

4・4 薄膜のヤング率測定法の検討

4・2 から，銅薄膜のヤング率の測定精度は液晶フィルムのそれより良く，4・3 で考察した接着層の影響も銅薄膜と液晶フィルムによって異なった．したがって，本研究で提案した薄膜のヤング率を決定する式(5)についてさらに検討する．式(5)をさらに展開すると，次式となる．

$$E_f = \frac{l^3 (m_{s+a+f} - m_{s+a})}{96I_f} \quad (8)$$

Fig. 14 Comparison of Young's moduli of thin films calculated by three different methods

Fig. 15 Relationship between coefficient of variation and normalized Young's modulus of thin films

すなわち，薄膜のヤング率は薄膜つき基板および接着材つき基板の荷重－荷重点変位関係の傾きの差に依存することがわかる．式(5)と式(7)とを比べると，薄膜のヤング率が大きいほど，荷重－変位関係の傾きの差が大きいことがわかる．

本研究では，薄膜のヤング率を基板のヤング率で基準化した値を $\alpha(=E_f/E_s)$ とし，それに伴う銅薄膜および液晶フィルムのヤング率測定結果の変動係数を図 15 に示す．同図からわかるように， α が大きいほど，変動係数が小さくなった．とくに， α が 1 以上での変動係数は 10%以下であり，良好な測定精度を示した．すなわち，本研究で用いた精密 3 点曲げ試験法による薄膜のヤング率測定においては， α の大きい条件下での試験をすること，すなわち低いヤング率を有する基板を選択することが重要であることを示している．また，基板と薄膜の厚さの比も薄膜のヤング率の測定精度に影響を及ぼすので，今後，この点について検討する必要がある．とくに，ヤング率の低い基板を選択もしくはアルミニウム合金基板の厚さを薄くすることによって，液晶フィルムのヤング率の測定精度を向上する必要がある．

5. 結 言

- (1) 精密 3 点曲げ試験法を用いて 4 種類の銅薄膜および液晶フィルムのヤング率を測定した．アルミニウム合金基板のヤング率の測定結果，試料間でのバラツキが小さく，3 点曲げ試験で得られた荷重－荷重点変位関係の傾きから同基板のヤング率を求める方法が有効であることが確認された．
- (2) 電解銅箔，DC めっきおよびパルスめっきのヤング率はそれぞれ 76.9GPa，104.4GPa および 86.2GPa であった．圧延銅箔については，ヤング率に及ぼす圧延方向の影響はほとんどなく，圧延方向のヤング率が 73.8GPa であり，圧延方向と垂直な方向の 78.8GPa より約 6.8%小さい程度であった．また，すべての銅薄膜のヤング率はバルク銅のヤング率である約 130GPa より小さくなった．これらの各銅薄膜のヤング率の差は，残留応力，柱状組織及び集合組織の面から考察した．
- (3) 液晶フィルムのヤング率には異方性があり，押出し方向と垂直な方向のヤング率が押出し方向のそれより大きいことが判明した．
- (4) 銅薄膜の場合には接着層の厚さのみ考慮し，そのヤング率を考慮しなくても銅薄膜のヤング率の測定が可能であり，実際の値よりわずか 3%程度大きくなった．一方，液晶フィルムの場合には接着層の厚さおよびヤング率の両者を考慮する必要がある，両者を考慮しない場合実際の値より 58%程度大きくなることが判明した．
- (5) 薄膜のヤング率の測定精度は基板のヤング率の影響を大きく受け，後者のヤング率を下げる程，前者の測定精度が上がるということが明らかになった．

文 献

- (1) 坂根政男, 北村浩二, 関 廣志, 塚田 裕, “電子デバイス用樹脂薄膜の 4 点曲げ低サイクル疲労き裂の発生・進展特性”, 第 12 回「エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術」シンポジウム, (2006-2), pp. 207-210.
- (2) 坂根政男, “熱疲労破壊の新展開: 電子デバイスと熱疲労”, 材料, Vol. 56, No. 3 (2007), pp. 302-308.
- (3) 玉川欣治, 三浦英生, “電解めっき銅薄膜の微細組織と強度物性”, 日本機械学会 2006 年度年次大会講演論文集, No. 3951 (2006-9), pp. 897-898.
- (4) 作谷和彦, 玉川欣治, 三浦英生, “銅めっき薄膜の機械的特性評価”, 日本機械学会東北支部第 40 期総会・講演論文集, No. 218 (2004-3), pp. 86-87.
- (5) 荒井正行, 緒方隆志, “薄膜材のための小型疲労試験機の開発”, 日本機械学会論文集 A 篇, Vol. 68, No. 669 (2002), pp. 801-806.
- (6) 橋本清司, 坂根政男, 大南正瑛, 吉田敏博, “電子デバイス用薄膜のヤング率測定用精密 3 点曲げ試験装置の開発と測定例”, 材料, Vol. 43, No. 489 (1994), pp. 703-709.
- (7) Seino, Y., “A Survey on Precision Measurement of Mechanical Properties of Thin Film Materials”, *Bulletin of National Research Laboratory of Metrology*, Vol. 36, No.2 (1987), pp. 81-92.
- (8) 高野 登, 広瀬幸雄, 七山幸夫, “超薄膜の応力一ひずみ測定およびき裂発生挙動について”, 日本材料学会第 40 期学術講演会, (1990), pp. 161-163.
- (9) Hong, S.H., Kim, K.S., Kim, Y.M., Hahn, J.H., Lee, C.S. and Park, J.H., “Characterization of Elastic Moduli of Cu Thin Films Using Nanoindentation Technique”, *Composites Science and Technology*, Vol. 65 (2005), pp. 1401-1408.
- (10) 橋本清司, 坂根政男, 大南正瑛, “振動リード法による薄膜のヤング率測定装置の開発と測定例”, 材料, Vol. 44, No. 507 (1995), pp. 1456-1463.
- (11) Cheng, Y.W., Read, D.T., McColskey, J.D. and Wright, J.E., “A Tensile-Testing Technique for Micrometer-Sized Free-Standing Thin Films”, *The Solid Films*, Vol. 484 (1995), pp. 426-432.
- (12) Lee, S.H., Tekmen, C. and Sigmund, W.M., “Three-Point Bending of Electrospun TiO₂ Nanofibers Tests”, *Materials Science and Engineering A*, Vol. 398, No.1-2 (2005), pp. 77-81.
- (13) Sato, T., Katagiri, K., Hokari, T., Hatakeyama, Y., Murakami, A., Nyilas, A., Kasaba, K., Teshima, H. and Hirano, H., “Evaluation of Young’s Modulus of RE123 Bulk Superconductors by Three Point Bending Tests”, *Physica C: Superconductivity*, Vol. 445-448 (2006), pp. 422-426.
- (14) Katagiri, K., Hatakeyama, Y., Sato, T., Kasaba, K., Shoji, Y., Murakami, Teshima, H. and Hirano, H., “Evaluation of Mechanical Properties of Dy123 Bulk Superconductors by 3-Point Bending Tests”, *Physica C: Superconductivity*, Vol. 445-448 (2006), pp. 431-435.
- (15) Mujika, F., “On the Difference between Flexural Moduli Obtained by Three-Point and Four-Point Bending Tests”, *Polymer Testing*, Vol. 25 (2006), pp. 214-220.
- (16) Kam, T.Y., Chen, C.M. and Yang, S.H., “Material Characterization of Laminated Composite Materials using a Three-Point-Bending Technique”, *Composite Structures*, Vol. 88 (2009), pp. 624-628.
- (17) 馬場文明, 藤田章洋, 濱田泰以, “炭素繊維強化液晶ポリマー射出薄板成形品の構造と機械的特性”, 材料, Vol. 47, No. 12 (1998), pp. 1282-1286.
- (18) 日本機械学会編, 金属材料の弾性係数, 第 4 版 (2001), p. 159, 日本機械学会.
- (19) 日本工業標準調査会編, JIS G 0551: 鋼—結晶粒度の顕微鏡試験方法, (2005), p. 12, 日本規格協会.