銅めっき応力測定法に関する基礎的研究*
(成長粒子およびすべり帯発生の繰返し速度依存性)

泉 沢 正 郎**, 長 瀬 康 男**, 福 井 一 恭***

A Fundamental Study on the Copper Electroplating Method
of Stress Analysis
(Frequency-Dependence of Grain Growth and Slip-Initiation)

by Masaro IZUMISAWA, Yasuo NAGASE, and Kazuyasu FUKUI

In the copper electroplating method of stress analysis, frequency effects of cyclic stresses on the proper stress τ_p for grain growth and slip-initiation in the copper plating foil, and τ_s for slip-initiation in the copper foil were investigated within the range of 1~15 kHz. The following results were obtained: (1) The proper stress τ_p increases and grown grains appear finely with an increase in frequency. (2) τ_p depends on strain rate remarkably as compared with τ_s . (3) This is due to the fact that the grain growth in the plating foil is dominated by both the test period and strain rate for the slip in crystals, while the slip-initiation in the copper foil is dominated only by the strain rate. (4) The relation between τ_p for grain growth and the test period is represented by one curve, regardless of the frequency within 1~150 Hz.

Key Words: Experimental Stress Analysis, Copper Electroplating Method, Frequency, Fatigue, Slip-Band

1. 緒 言

銅めっき応力測定法⁽¹⁾は、銅めっき層が繰返しひずみを受けるとき、ひずみ繰返し数の増加に伴って電着結晶粒が成長する現象、または成長した結晶粒の中に疲労すべりが起こる現象を利用する。すなわち、成長粒子またはすべり帯発生の限界せん断応力 τ_p と繰返し数 N との関係曲線をめっきの較正值とし、被測定物に施した銅めっき層に現れる上記現象を観測して弾性的表面応力を測定する。これらの現象は試験温度の影響を受け、温度が高くなるにしたがって同一の N に対する τ_p が低下すること⁽²⁾⁽³⁾、めっき層に予加熱を施せば一定温度下においても τ_p が低下すること⁽³⁾などが明らかにされている。また、電着銅の成長粒子発生密度の増加速度と素地表面の応力振幅との関係は、強く冷間加工された高純度銅の再結晶速度と加熱温度との関係にきわめて類似している⁽⁴⁾。その原因は、再結晶では熱エネルギーであるが、成長粒子では主として機械的エネルギーであり⁽⁴⁾⁽⁵⁾、これが電着結晶粒内の格子欠陥の増加を引き起こし、結晶粒成長の原動力

となるものと考えられている⁽⁵⁾。

試験片に作用する応力の繰返し速度が異なれば、銅めっき層が受ける繰返しひずみ速度および試験時間が相違するから、成長粒子およびすべり帯の発生に基づいた τ_p - N 関係は、繰返し速度の影響を受けるものと考えられる。これは、銅めっき法を作動時の機械要素に適用する場合に考慮すべき重要な問題であるばかりでなく、成長粒子の発生・成長に及ぼすひずみ速度および試験時間の影響を確認する基礎的な問題として、ぜひとも解明する必要があるものと考えられる。しかしながら、銅めっき層の組織変化に及ぼす繰返し速度の影響については、調査が必ずしも十分ではない⁽¹⁾。

以上の観点から、本研究では繰返し速度の相違が銅めっきはく成長粒子およびすべり帯発生の限界応力に及ぼす影響を調査するとともに、銅めっき層に起こる組織変化のひずみ速度依存性および試験時間依存性について明らかにすることを目的とした。すなわち、銅めっきはくを接着した鋼製丸棒の繰返しねじりおよび回転曲げ試験に対しては $f=1\sim 150$ Hz の範囲の速度を選び、引張・圧縮試験に対しては $f=15$ kHz の高速度を採用して、各繰返し速度下で成長粒子およびすべり帯発生の限界応力曲線 (τ_p - N 曲線) を求めるとともに、成長粒子とすべり帯の発生状況を観察し

* 昭和 61 年 7 月 18 日 東海支部豊橋地方講演会において講演、原稿受付 昭和 61 年 1 月 21 日。

** 正員、静岡大学工学部 (〒432 浜松市城北 3-5-1)。

*** 正員、吉原工業高校 (〒417 富士市比奈 2300)。

た。また、銅めっきはくに再結晶化の焼なましを施して銅薄膜を製作し⁽⁶⁾、これを鋼製丸棒に接着して上述と同様の繰返し荷重下の試験を行い、各速度のもとで薄膜に起こるすべり帯発生の限界応力曲線(τ_s - N 曲線)を求めて、銅薄膜の疲労すべり変形に及ぼすひずみ速度の影響を調査した。

2. 実験方法

2.1 $f=1\sim 150$ Hz における限界応力の測定

2.1.1 試験機および試験片 試験機は、繰返しねじりにはシェンク式疲労試験機(78 N・m, $f=1, 6$ Hz), 回転曲げには小野式疲労試験機(98 N・m, $f=60, 150$ Hz)を用いた。試験片素材には炭素工具鋼SK-3($\phi 19$ mm)を用い、図1に示すようなテーパ付き較正試験片を製作して、テーパ部に接着した銅めっきはくまたは銅薄膜の限界応力を測定した。

2.1.2 銅めっきはくおよび銅薄膜の製作と接着 銅めっきはくは、バフ研磨により鏡面仕上げを行ったステンレス鋼板(150 mm×135 mm)を素地とし、これに硫酸銅浴を用いた1層の酸性銅めっきを施した後、めっき層を板からはがして製作した。この場合に、めっき浴の組成、めっき方法などは従来の研究⁽⁷⁾と同様であり、めっきはくの厚さは約10 μ mである。めっきはくを3 mm×20 mmの長方形に細分し、図1の試験片のテーパ部分に接着して限界応力を求めたが、瞬間接着剤(アロン α)を用いてめっき層の初期電着面がすべり帯の観察面となるように裏向きに接着した⁽⁷⁾。また、銅めっきはくに真空中で600°C, 1.5 h保持の再

結晶化焼なましを施して銅薄膜(平均結晶粒径: 約15 μ m)を製作し、これを細分してテーパ部に接着して、疲労すべり帯の発生を観察して限界応力を測定した。

2.1.3 限界応力の測定 図1(a)および(b)の試験片を用い、銅めっきはくに対する繰返しねじりおよび回転曲げの較正試験を行って、成長粒子またはすべり帯発生の限界せん断応力 τ_p および限界引張・圧縮応力 σ_p を次式を用いて求めた。

$$\text{繰返しねじり: } \tau_p = 16 T / \pi d^3 \cdots \cdots (1)$$

$$\text{回転曲げ: } \sigma_p = 32 M / \pi d^3 \cdots \cdots (2)$$

ただし、 T および M はそれぞれ作用したねじりおよび曲げモーメント、 d は成長粒子またはすべり帯が発生し始める限界の位置における試験片直径である。めっきはくは1本の試験片に4枚使用して、横断面の周をほぼ四等分する位置に、軸に平行に接着した。成長粒子またはすべり帯発生の限界位置はこの4箇所を測定し、その平均をとって定めた。なお、成長粒子およびすべり帯の観察には倍率100倍の光学顕微鏡を用いた。

銅薄膜の限界応力 τ_s および σ_s も銅めっきはくの場合と同様の方法で求めたが、初期の疲労すべり帯が微細であるため、倍率400倍の光学顕微鏡を用いて観察した。

2.2 $f=15$ kHz における限界応力の測定

2.2.1 試験機および試験片 試作した超音波疲労試験機の概略を図2に示す。これは、超音波によって一定の長さを有する両端自由の試験片に縦振動を与え、試験片の中央断面に起こる振動の節に引張り・圧縮の繰返し応力が発生するようにしたものである^{(8)~(12)}。図示のように、2段めの振幅拡大用コンカルホーンの振動の節の位置にひずみゲージを接着し、この位置のひずみ振幅を測定して試験片に所定の

S: 成長粒子またはすべり帯発生の限界位置までの距離

図1 テーパ付き較正試験片の形状・寸法

図2 超音波疲労試験機の概略図⁽¹¹⁾⁽¹²⁾

応力を負荷するようにした。また、試験片の中央部は内部摩擦による発熱が著しいため、試験片を水槽に浸し、水道水を循環させて冷却した。

図3には試験片の形状・寸法を示した。これは中央のテーパ部が指数曲線状に変化するように各断面の直径を定めたものであり⁽⁸⁾⁽¹²⁾、素材は炭素工具鋼SK-4($\phi 10$ mm)である。テーパ部の各断面に生ずる応力は、振動方程式を解いて変位を求め⁽⁸⁾、これを微分して得られたひずみに素材の縦弾性係数 E を乗ずれば、次式のように表すことができる。

$$\sigma(x) = Eu_0 e^{\gamma(x-a)/2} \cos(\beta a) \{ [\gamma/2] \sinh\{D(a+b-x)\} \times (a+b-x) - D \cosh\{D(a+b-x)\} \} / \sinh(D \cdot b) \quad \cdots \cdots (3)$$

ただし、 u_0 は自由端 $x=0$ における変位振幅、 $a=15.21$ mm、 $b=30$ mm、 $\gamma=8.0265 \times 10^{-2}$ mm⁻¹、 $\beta=\omega/c$ (ω :角振動数、 c :試験片中を伝ばする音速)、 $D=\sqrt{\gamma^2/4-\beta^2}$ である。図3には試験片に生ずる応力 σ の分布を中央断面の最大応力 $\sigma_{\max}$ との比で示した。なお、上式中の u_0 は容量形変位計を用いて測定したが、実験上の便宜のために、これをホーンに接着したひずみゲージ(図2)の出力電圧の関数として求めておき、実際の実験では出力電圧を測定することにより u_0 を定めた。試験は一定の u_0 のもとで行い、成長粒子またはすべり帯の発生限界位置までの距離 x を測定し、上式を用いて引張り・圧縮に対する限界応力 σ_p を定めた。銅めっきはくまたは銅薄膜は1本の試験片に2枚使用し、対称位置に軸に平行に接着した。

2・2・2 銅めっきはくの限界応力に及ぼす冷却水温度の影響 $f=15$ kHzの場合は $f=150$ Hz以下の場合と異なり、高速度の繰返しひずみのために試験片には内部摩擦による発熱が起こる。また、めっきはく自体にも発熱があるものと考えられる。そこで、めっきはくの温度上昇が限界応力に与える影響をあらかじめ

調査するため、図3の試験片の中央部表面にC・A熱電対をはんだ付けし、3種類の繰返し応力を与えて、種々の冷却水温中で表面温度を測定した。その結果を図4に示す。作用応力振幅 $\sigma_{\max}$ および冷却水温度の相違にかかわらず、中央断面の表面温度は水温より約10°C高い。したがって、室温(20°C)で求めた $f \leq 150$ Hzの実験結果と15 kHzの実験結果を比較する場合には、10°Cの冷却水を採用することにした。

次に、 $N=1.0 \times 10^6$ に指定して種々の冷却水温度のもとですべり帯および成長粒子発生 σ_p を求め、その結果を図5に示した。この場合には試験時間がほぼ60 sにすぎないが、 σ_p は冷却水の温度上昇とともに低下し、 σ_p に及ぼす冷却水温度の影響は著しいことがわかる。なお、図4および図5における各実験点はそれぞれ試験片1本に対応する。

3. 実験結果および考察

3・1 銅めっきはくの τ_p - N 曲線 室温(20°C)において、種々の繰返し速度下で求めた成長粒子発生 σ_p の限界せん断応力曲線を図6に示した。図6中の各実験

図4 超音波試験における冷却水温度と試験片表面温度の関係

図3 $f=15$ kHz用試験片と応力分布⁽⁸⁾⁽¹²⁾

図5 銅めっきはくの限界応力に及ぼす冷却水温度の影響

点は、それぞれ試験片1本に対応する。図示のように、一定の N に対する τ_p は f の増加とともに大きくなっており、これに伴って成長粒子は微細になり、発生密度が増加することが認められた。繰返し数が少ないほど、また試験温度が低いほど τ_p が高くなって、成長粒子が微細化することは従来の研究⁽¹⁾⁽³⁾で明らかにされているが、繰返し速度の増加も τ_p および成長粒子の発生に同様な効果をもたらすことがわかった。なお、 $f=15\text{ kHz}$ の場合の τ_p は試験片を 10°C の水で冷却しながら測定したが、後述するように、予期する値よりも著しく低くなることが確かめられた。

3・2 銅めっきはくおよび銅薄膜の限界応力の繰返し速度依存性 20°C において再結晶化焼なましを施した銅薄膜に繰返しひずみを与え、疲労すべり帯の発生に基づいた限界応力曲線を求めれば、図7のようになる。図7の実験点は、各繰返し速度に対して数本の試験片を用いて求めたものである。図7において、3種類の N に対する結果を限界応力 τ_s と $1/4$ サイクル当たりの平均ひずみ速度 $\dot{\gamma}$ との関係として両対数で表示すれば、図8の実線のようになる。また、図6から銅めっきはくの成長粒子発生の限界応力 τ_p についての同様な関係を求め、図中に破線で示した。図示のように、銅薄膜では $\tau_s - \dot{\gamma}$ 関係が本実験の全速度範囲においてほぼ直線で示されるのに対して、銅めっき

はくでは $\tau_p - \dot{\gamma}$ の直線関係が $f=15\text{ kHz}$ において明白に成立しなくなる。また、直線のこう配すなわちひずみ速度依存性は、銅めっきはくの場合に比較して銅薄膜の場合はかなり小さくなる。これは、銅めっきはくでは繰返しひずみによって成長する結晶粒を観測するのに対して、銅薄膜ではあらかじめ存在する再結晶粒の疲労すべり帯を観測するのであるから、 τ_p には電着結晶粒の疲労すべり変形に関与するひずみ速度と試験時間が影響し、 τ_s には疲労すべり変形に関与するひずみ速度のみが影響することが要因と考えられる。すなわち、一般に銅などの fcc 金属では、塑性流動応力 σ_f と $\dot{\gamma}$ の両対数関係が $\dot{\gamma}$ の広い範囲にわたって直線的であり、かつその傾斜が小さいが、本実験で得られた銅薄膜の τ_s は σ_f と同様の特性を有することを示すといえる。なお、銅めっきはくの τ_p の試験時間依存性を検討するため、図6の $\tau_p - N$ 曲線を τ_p と試験時間 $t(=N/3600f)$ との関係に書き直せば、図9のようになる。図9から明らかなように、 $f=15\text{ kHz}$ の場合を除けば、 $\tau_p - t$ 関係は繰返し速度に関係なくほぼ1本の曲線で表すことができ、銅めっきはくの結晶粒の成長は試験時間 t への依存度が高いことがわかる。

なお、銅めっきはくのすべり帯発生の τ_p とひずみ速度 $\dot{\gamma}$ との関係も、図8の成長粒子発生の τ_p と $\dot{\gamma}$ との関係とほぼ同様であることが確かめられた。

図6および図8から明らかなように、 $f=15\text{ kHz}$ における銅めっきはくの τ_p は 150 Hz 以下の場合から予測される値より著しく小さいが、この原因については次のように考えられる。 $f=15\text{ kHz}$ の場合には、図4の結果から冷却水の温度を 10°C に選び、試験温度 20°C における τ_p を求めたが、めっきはくの表面温度は 20°C に達していても、試験片内部との間の温度差の

図6 銅めっきはくの成長粒子発生に対する $\tau_p - N$ 曲線 (20°C)

図7 銅薄膜の $\tau_s - N$ 曲線 (20°C)

図8 τ_s および τ_p に及ぼすひずみ速度の影響

ために、はくの厚さ方向に熱の移動が起こって温度こう配が生ずるものと考えられる。さらに、高い繰返し速度のために、はく自身に発熱が起こることも考えられる。以上の理由から、はくの見掛けの温度は 20°C であっても、これは単に表面温度を表すものであって、はくの内部はこれよりもかなり高い温度に達しているものと推定される。

3.3 銅めっきはくの限界応力に及ぼす試験休止時間の影響 前節において、銅めっきはくの成長粒子発生の τ_p と試験時間 t との関係を求めた結果、繰返し速度の大きさにかわらず、ほぼ 1 本の曲線で表し得ることがわかった。そこで本節では、上記の試験時間 t のほかに、無負荷の状態で放置する時間 t_r を与えた場合に、限界応力にいかなる影響を与えるかについて調査した。すなわち、 $f=1$ および 60Hz の 2 種類の繰返し速度を選び、めっきはくに試験前または試験途中において種々の長さの休止時間を与えて、 $N=2 \times 10^5$ における成長粒子発生の τ_p を求めた。一例として、試験途中で休止した場合の結果を図 10 に示す。図 10 において、 t_a は試験時間の全体を表し、 $t_r=0$ の τ_p はそれぞれ図 9 における $t=1\text{h}$ および 60h の値を示す。

本実験の休止時間 t_r の範囲では、いずれの繰返し速度の場合も試験休止による τ_p の低下はきわめて小さい。また、試験前に休止した場合の結果も全く同様の傾向であった。常温中に放置されためっきはくの限界応力は、はくの製作後約 10^3h までほとんど変化しないが、その後は時間の経過とともに低下することが明らかにされている⁽¹⁴⁾。しかし、本実験の結果から、休止時間が $2 \times 10^3\text{h}$ 程度までならば、試験前ばかりでなく、試験途中で休止を与えても限界応力にはほとんど影響を及ぼさないことがわかった。

4. 結 言

$f=1 \sim 15\text{kHz}$ の範囲の各種の繰返し速度下で銅め

図 9 銅めっきはくの成長粒子発生の τ_p と試験時間 t との関係

っきはくの成長粒子およびすべり帯発生の $\tau_p - N$ 曲線を求めるとともに、再結晶化の焼なましを施した銅薄膜のすべり帯発生の $\tau_s - N$ 曲線を求めて、成長粒子およびすべり帯発生に及ぼすひずみ速度、試験時間などの影響について検討した。得られた結果を要約すると以下ようになる。

(1) 銅めっきはくの成長粒子発生の τ_p は繰返し速度が増加するにしたがって大きくなり、成長粒子は微細になるとともに、発生密度が高くなることが認められた。

(2) 銅薄膜の疲労すべり帯発生の τ_s とひずみ速度 $\dot{\gamma}$ の両対数関係は、 $f=1 \sim 15\text{kHz}$ の範囲において直線で示され、そのこう配は小さい。すなわち、 τ_s の $\dot{\gamma}$ 依存性は少ない。

(3) 銅めっきはくの τ_p のひずみ速度依存性は、銅薄膜の τ_s のそれに比較して著しく大きい。これは、 τ_p には電着結晶粒の疲労すべり変形に関与するひずみ速度と試験時間の両者が影響するのに対して、 τ_s には再結晶粒の疲労すべり変形に関与するひずみ速度のみが影響するからである。

(4) 銅めっきはくの τ_p を試験時間 t について整理すれば、 $f=1 \sim 150\text{Hz}$ の範囲で繰返し速度に関係なくほぼ 1 本の曲線で表すことができる。すなわち、この範囲では銅めっきはくの組織変化は試験時間に依存する割合が高いといえる。しかしながら、試験休止時間が $2 \times 10^3\text{h}$ までの範囲では、 τ_p に及ぼす試験休止の影響はほとんど無視することができる。

(5) $f=15\text{kHz}$ の場合に、銅めっきはくの成長粒子またはすべり帯の発生に要する試験時間がきわめて短い、限界応力に及ぼす試験温度の影響は著しく大きい。

終わりに、本研究の結果について懇切なご検討を賜

図 10 成長粒子発生の限界応力に及ぼす試験休止の影響 (試験途中で休止)

った名古屋大学工学部 清家政一郎教授に厚くお礼申し上げます。超音波疲労試験機および試験片の製作について種々ご教示いただいた静岡大学工学部 石井仁教授に厚くお礼申し上げます。また、実験にご助力いただいた静岡大学の吉田始技官に謝意を表する。

文 献

- (1) Ōkubo, H., *Memoirs Fac. Eng., Nagoya Univ.*, 20-1 (1968), 1.
 - (2) 大久保・ほか2名, 機論, 33-248 (昭42), 548.
 - (3) 清家・ほか2名, 機論, 39-325 (昭48), 2677.
 - (4) 加藤, 機論, 49-446, A (昭58), 1344.
 - (5) 鈴木・ほか2名, 日本金属学会会報, 9-3 (昭45), 169.
 - (6) 北岡・長瀬, 機論, 50-451, A (昭59), 456.
 - (7) 清家・ほか3名, 機論, 48-427, A (昭57), 291.
 - (8) 栗谷, 機論, 26-170 (昭35), 1382.
 - (9) 菊川・ほか2名, 機論, 32-235 (昭41), 363.
 - (10) 江原・ほか3名, 材料試験技術, 26-3 (昭56), 177.
 - (11) Ebara, R. and Yamada, Y., *Ultrasonic Fatigue*, (1982), 349, AIME.
 - (12) 石井, 未公表 静岡大学修士論文, (昭59).
 - (13) 野老山・福本, 音響学会講演論文集, (昭35), 135.
 - (14) 清家・北岡, 機論, 50-452, A (昭59), 813.
-