電着銅薄膜の粒子成長過程に着目した応力測定法*
(第3報, 粒子成長速度を利用した応力測定法の低温下への適用)北岡 征一郎*¹, 大嶋和彦*²On the Stress Measurement Method Using the Grain Growth
Process of Electrodeposited Copper Foil(3rd Report, Adaptation of Stress Measurement Method
to Low Temperatures Using Grain Growth Rate)

Seiichiro KITAOKA and Kazuhiko OHSHIMA

The relation between the mean grain growth rate of grown grains in the electro-deposited copper foil by cyclic stress and the testing temperature was examined. The accuracy of the stress measurement method using mean grain growth rate and the propriety of the adaptation of its method to low temperatures were investigated. The grain growth process by cyclic stress is heat activated and the mean grain growth rate is expressed by an Arrhenius-type equation. The method proposed here is applicable to low temperature ranges where the conventional electroplating method cannot be applied.

Key Words : Experimental Stress Analysis, Copper Foil, Grown Grain, Grain Growth Rate, Low Temperature, Stress Measurement

1. 緒 言

電着銅薄膜の粒子成長過程に着目した応力測定法は, めっき層に発生した成長粒子が繰返し応力の作用によって成長する状況を観測することにより, 成長粒子の発生現象を利用した従来のめっき法⁽¹⁾に比較して, より高感度の応力測定を目指したものである。

前報⁽²⁾⁽³⁾では, この測定法の特徴, 利点を調査し, 実機に対する適用の可能性を検討して, 2種類の測定法を考案した。すなわち, (a) 粒子成長の下限界に基づく応力測定法, および(b) 個々の成長粒子の成長速度を利用した応力測定法である。

(a) の手法はめっき層に一旦発生した成長粒子は, 作用応力が成長粒子発生の下限界応力以下であっても成長を持続し, しかも粒子成長の下限界においては, 成長速度の初期粒径依存性⁽²⁾が軽微となる点に着目した測定法である。この手法のひずみ感度はめっき法に比較して格段に高く, 低い繰返し荷重の下で高精度の応力測定が実施できる。しかしながら, 負荷の大きさを変えることができない場合には, 粒子成長の下限

界に対する作用応力の大きさを判定できても, 応力値自体を決定することはできない。

(b) の手法は, 成長粒子の成長速度が作用応力に依存する点に着目した応力測定法であり, 手法(a)のような制約はない。しかしながら, 粒子成長速度はその初期粒径に依存し, しかも初期粒径が等しくても同一の作用応力に対して必ずしも同じとはならない⁽²⁾。したがって, 較正試験によって得られた任意の初期粒径をもつ成長粒子の成長速度を基準にして, 被測定物に接着しためっきはく内の同一初期粒径の粒子成長速度を測定することにより, 高精度の応力測定を実施することは困難である。しかしながら, 繰返し応力, 繰返し数, 雰囲気温度および繰返し速度などめっき層に成長粒子を発生させる条件を厳密に規定し, 複数個の成長粒子を対象にして成長速度の平均値を採れば, この手法により作用応力の測定精度を向上できるものと考えられる。

ところで, 稼働中の機械要素に対する応力測定は, 種々の温度環境下で行う必要があり, 粒子成長速度を利用した応力測定法はめっき法に比較して格段にひずみ感度に優れているから, めっき法ではひずみ感度が著しく低下して測定が困難となる低温雰囲気中における実機の応力測定に対し, 特に有効な手法になるもの

* 平成元年8月25日 北陸信越支部北陸地方講演会において講演, 原稿受付 昭和63年11月24日。

*¹ 正員, 名古屋大学工学部 (〒464 名古屋市千種区不老町)。

*² 正員, 名古屋大学大学院。

と考えられる。

以上の観点から、本報告では、手法 (b) に基づく測定法の低温雰囲気への適用の可能性を検討することを目的とし、種々の温度雰囲気中における粒子成長速度と繰返し応力の関係を詳細に調査するとともに、測定精度の検討を行った。

2. 実験方法

2・1 試験片および試験機 めっきはくを接着する試験片素材には、SK-5、 $\phi 19\text{mm}$ の引抜き丸棒を使用した。低温下では、成長粒子の発生に高応力の繰返しが必要となる⁽⁴⁾。そこで、素材の強度を高めるため、 800°C 、1h保持後、油焼入れ、 200°C 、1h保持の焼戻しを施し、図1の形状・寸法の試験片に加工した。なお、めっきはくを接着する被測定部に対してはいずれも#600の紙やすりで研磨仕上げを施した。使用した試験機はシェンク式疲労試験機 (3600 rpm) である。

試験片の冷却は、液体窒素をガス化し、これを試験片冷却そう内に導くことにより実施した。図2に冷却装置の概観を示す。雰囲気温度は試験片表面に取り付けたアルメル・クロメル熱電対 (AC) により検出し、温度制御用データロガーのオン・オフ制御および電圧調整器により、液体窒素容器内の加熱器に流す電流を加減して冷却そう内に流入する窒素ガスの量を制

御し、所定の温度に保持するようにした。この結果、温度変動を $\pm 0.5^\circ\text{C}$ 以内とすることが可能となった。

2・2 銅めっきはくの作製および接着 前報⁽²⁾の条件および方法により作製した厚さ $11\mu\text{m}$ のめっきはくを $30\text{mm} \times 2\text{mm}$ の短冊形に細分し、試験片の軸に平行に、かつ横断面の周を等分する位置に2~3枚、ひずみゲージ用瞬間接着剤 (CC-15A) により接着した。

2・3 実験方法 雰囲気温度を 30°C 、 0°C 、 -20°C 、 -40°C および -60°C の5種類に設定し、図1 (a) に示したテーパ付較正試験片を用いて成長粒子発生限界応力曲線 (τ_p -N曲線) を求めた。この結果に基づいて、観察に適する大きさおよび密度で成長粒子が発生するように、初期応力、初期繰返し数および初期雰囲気温度を設定し、図1 (b) の平滑試験片を用いて成長粒子を発生させ、上述の雰囲気温度の下で試験を実施し、成長粒子の成長状況を観測した。なお、 τ_p -N曲線を求めるに当たっては倍率100倍、成長粒子の成長状況の観測には倍率400倍の光学顕微鏡を使用した。

3. 実験結果および考察

3・1 成長粒子発生限界応力 種々の雰囲気温度に対して得られた τ_p -N曲線を図3に示す。雰囲気温度の低下に伴い成長粒子発生限界応力 τ_p は著しく上昇し、測定不能な応力範囲が拡大することに

図1 試験片の形状寸法

なる。また、発生する成長粒子も次第に微細となり、発生密度も低下するため、顕微鏡による成長粒子の確認が次第に困難となる。

3・2 成長粒子の粒子成長速度 図3の $\tau_p - N$ 曲線に基づいて、観察に適する大きさおよび密度で成長粒子が発生するように、初期応力 τ_i 、初期繰返し数 N_i および初期雰囲気温度 t_i をそれぞれ $\tau_i = 98.0$ MPa, $N_i = 1.5 \times 10^6$ 回, $t_i = 30^\circ\text{C}$ に設定した。この条件の下で、図1(b)の平滑試験片を用いて成長粒子が発生させ、次いで、前述の5種類の試験雰囲気温度 t_r の下で、試験応力 τ_r を39.2 ~ 196.0 MPaの間で数種類設定し、それぞれの (τ_r, t_r) の組合せに応じて繰返し数 $N_r = 4.0 \times 10^5 \sim 4.0 \times 10^6$ 回程度の試験を実施した。

試験前後において個々の成長粒子を倍率400倍の光学顕微鏡により写真撮影し、成長状況を観測して前報と同様の手順により粒子成長速度 r を求めた。さらに、測定の対象とした30個以上の成長粒子の r の平均値をとり、これをその雰囲気温度における繰返し応力による粒子成長速度 r^* とした。

図4に粒子成長速度 r^* の測定結果を示す。図から明らかなように、 r^* は繰返し応力 τ と雰囲気温度 t に依存し、 τ が大きいほど、また t が高いほど速くなる。さらに、いずれの温度雰囲気においても成長粒子は成長粒子発生の下限界応力 τ_{sp} 未満の応力でも成長を持続し、 r^* は τ および t に固有な値をとる。した

がって、これらの曲線を較正曲線として応力測定を実施することが可能であり、従来のめっき法に比較してひずみ感度に優れ、特に低温雰囲気中での応力測定に有効に適用できるものと考えられる。

酸化、腐食などの化学反応をはじめとして、速度過程全般の温度依存性を表示する式としてアレニウス型の式⁽⁵⁾

$$r = A \exp(-U/KT) \quad \text{----- (1)}$$

が知られている。ここに、 r は反応速度、 A は定数、 U は活性化エネルギー、 T は絶対温度、 K はボルツマン定数である。

応力が関与する速度過程では、 U は応力に依存するが⁽⁶⁾、応力一定の条件下では、 r は T のみの関数となる。そこで、 $-U/K = B$ とおけば

$$r = A \exp(B/T) \quad \text{----- (2)}$$

となる。

図4の試験結果に基づき、繰返し応力 τ が $\tau = 98.0$ MPa, 117.6 MPa および 137.2 MPa の各場合について r^* と t との関係を求め、図5に○, △, □印で示した。これらの測定点に基づいて式(2)の回帰曲線を求めれば、図中の曲線となる。測定点と回帰曲線はよく一致しており、繰返し応力による成長粒子の成長現象はアレニウス型の式により表わされる速度過程の一現象と見なすことができる。

次に、 r^* を雰囲気温度と作用応力とに依存するアレニウス型の関数として表わすことを試みた。式(1)

図2 冷却装置の概観

図3 成長粒子発生の限界応力曲線

の活性化エネルギーの応力依存性は、対象となる現象の機構によって決まるから、一般に現象が異なれば相違することになる。繰返し応力下における粒子成長現象の温度および応力依存性を速度過程から検討した研究は見当たらないので、従来他の現象に対して提案さ

れている形式と類似の形で表示してみた。

$$r^* = X(T) \exp \{ B(T) \ln \tau \} \quad (3)$$

雰囲気温度一定の条件下では r は τ のみの関数となるから、各試験温度について図4の結果を式(3)により回帰して、 $X(T)$ 、 $B(T)$ の値を求めた。

(a) Temperature 30 °C, 0 °C

(b) Temperature -20 °C, -40 °C, -60 °C

図4 粒子成長速度 r^* に及ぼす雰囲気温度および繰返し応力の影響

図5 粒子成長速度と雰囲気温度の関係

図6 $B(T)$ および $X(T)$ と雰囲気温度の関係

図6はこれらの値と雰囲気温度との関係を示したものである。X(T), B(T) をTの4次関数として表わせば、次式を得る。

$$\left. \begin{aligned} X(T) &= aT^4 + bT^3 + cT^2 + dT + e \\ B(T) &= \alpha T^4 + \beta T^3 + \gamma T^2 + \delta T + \varepsilon \end{aligned} \right\} \text{----- (4)}$$

ここに, $a = 6.3290 \times 10^{-16}$, $b = -6.1880 \times 10^{-13}$, $c = 2.2686 \times 10^{-10}$, $d = -3.6900 \times 10^{-8}$, $e = 2.2481 \times 10^{-6}$, また, $\alpha = 4.9332 \times 10^{-8}$, $\beta = -5.1447 \times 10^{-5}$, $\gamma = 1.9991 \times 10^{-2}$, $\delta = -3.4246$, $\varepsilon = 2.1993 \times 10^2$ となる。

したがって、粒子成長速度 r^* は雰囲気温度 t および τ の関数として次式で表わされる。

$$r^* = X(t+273) \exp \{ B(t+273) \ln \tau \} \quad (\mu\text{m/cycle}) \text{----- (5)}$$

図7は式(5)により先に設定した5種類の試験温度について得られる曲線を、図4の試験結果と併せて示したものである。図から明らかなように、測定点に対して曲線はよく一致しており、粒子成長速度を温度と繰返し応力との簡単な関数として表示した式(5)は実際の粒子成長現象をおおむね捕らえているものといえる。

したがって、式(5)を用いれば、本実験の温度範囲における任意の雰囲気温度および繰返し応力における粒子成長速度を求めることができるものと考えられる。

3・3 測定精度の検討 前節の結果に基づいて r^* を利用し、図1(c)に示した平面切り取り部を有する丸軸のねじりに対する応力集中率を測定し、測定精度の検討を行った。

まず、 $\tau_1 = 98.0 \text{ MPa}$, $N_1 = 1.5 \times 10^6$ 回, $t_1 = 30^\circ\text{C}$ で予め成長粒子を発生させた薄膜を、試験片の平面切り取り部の中央に軸に平行に接着した。試験雰囲気温度を 30°C , -20°C および -60°C の3種類に選び、各試験雰囲気温度において薄膜を接着した数本の試験片に対し、称呼応力 τ_a を適宜設定して繰返しねじり試験を実施し、薄膜のa点近傍にある成長粒子の平均粒子成長速度 r^* を求めた。次いで、式(5)の $r^* - \tau$ 曲線を校正曲線として、各試験雰囲気温度に対してその粒子成長速度に対応する繰返し応力、すなわち相当応力 τ_{eq} を求めた。ここで、直径 d の丸軸のねじり応力を基準とした応力集中率 k は

$$k = \tau_{eq} / \tau_a \text{----- (6)}$$

で与えられる。

表1に測定結果を示す。 $\theta = 30^\circ$ および 60° に対しては大久保の理論解を利用して求めた計算値⁽⁷⁾、 $\theta = 90^\circ$ に対しては厳密解⁽⁸⁾を併記した。いずれの雰囲気温度においても、測定値と計算値の相違はほぼ5%以内にある。したがって、式(5)に基づけば、本実験の範囲内の他の任意の試験温度においても被測定箇所

(a) Temperature 30°C , 0°C

(b) Temperature -20°C , -40°C , -60°C

図7 粒子成長速度の回帰曲線

表1 応力集中率の実験値と計算値

Temperature ℃	Specimen	Nominal stress τ_d MPa	Growth rate r^* $\times 10^{-5} \mu\text{m}/\text{cycle}$	Equivalent stress τ_{eq} MPa	k	Previous results
30	a	21.6	6.30	97.5	4.51	4.49 ⁽⁸⁾
	b	52.4	6.51	99.0	1.89	1.91 ⁽⁷⁾
	c	78.0	6.46	98.5	1.26	1.24 ⁽⁷⁾
-20	a	26.2	1.24	119.6	4.56	4.49 ⁽⁸⁾
	b	61.5	1.18	116.9	1.90	1.91 ⁽⁷⁾
	c	95.0	1.38	125.4	1.32	1.24 ⁽⁷⁾
-60	a	30.1	0.28	129.4	4.30	4.49 ⁽⁸⁾
	b	72.6	0.38	149.0	2.05	1.91 ⁽⁷⁾
	c	109.4	0.34	140.0	1.28	1.24 ⁽⁷⁾

Dimension a : d = 12 mm, h/d = 0.50 1 MPa = 0.102 kgf/mm²
 b : d = 9 mm, h/d = 0.75
 c : d = 8 mm, h/d = 0.93

における r^* を測定することにより, その点に作用する応力をほぼ妥当な値で簡便に推定できるものと考えられる。

試験温度 -60℃ の場合に注目すれば, 従来のめっき法では図3に示した τ_p - N 曲線の下限界応力 $\tau_{sp} = 145$ MPa 未満の繰返し応力を測定することは不可能である。また, これ以上の応力においても発生する成長粒子は著しく微細化して光学顕微鏡による確認が困難となって測定精度の低下を来す恐れがある。これに対し, 粒子成長速度を利用したこの測定法では, 予め, 観察に適する大きさおよび密度で成長粒子を発生させておくため, 粒子成長の状況を容易に観察でき, しかも τ_{sp} 未満の繰返し応力に対しても精度よく容易に応力測定を実施できることが確かめられた。したがって, 本測定法は, 従来のめっき法の適用が困難となる低温下における繰返し応力の測定に特に有効な手法になるといえる。

4. 結 論

電着銅薄膜の粒子成長過程に着目して, 成長粒子の成長速度と作用応力および雰囲気温度との相互関係を調査し低温雰囲気中への粒子成長速度を利用した応力測定法の適用の可否を検討した。得られた結果を要約すれば以下ようになる。

(1) 雰囲気温度の低下に伴い, 発生する成長粒子は著しく微細化して発生密度も低下し, 粒子発生の限界応力が著しく上昇する。このため, -60℃ 以下では, 成長粒子の発生を利用するめっき法の測定精度は低下を来すおそれがある。

(2) 一定の応力下における複数の成長粒子の粒子成長速度の平均値を r^* とすれば, この値は雰囲気温

度 T によって規定され, 両者の関係は速度過程の温度依存性を表すアレニウス型の式

$$r^* = A \exp(B/T)$$

によって表示できる。

(3) さらに, r^* は作用応力 τ および雰囲気温度 T によって規定され, これらの間には

$$r^* = X(T) \exp\{B(T) \ln \tau\}$$

の関係が成立する。

(4) したがって, 上述の r^* を利用することにより, 従来のめっき法に比較して高感度の応力測定が可能であり, 任意の雰囲気温度の下で作用応力を簡便に推定できるものと思われる。

(5) 所定の初期条件で予め成長粒子を発生させ, この r^* を計測する手法は, めっき法のひずみ感度が低下する低温雰囲気中の繰返し応力の測定に特に有効となる。

文 献

- (1) 大久保, 銅めっき応力測定法, (昭40), 朝倉書店。
- (2) 北岡・ほか3名, 機論, 53-487, A (昭62), 646。
- (3) 北岡・大嶋, 機論, 54-498, A (昭63), 385。
- (4) 清家・ほか2名, 機論, 39-325, (昭48), 2677。
- (5) Glasstone, S., Laidler, K.J. and Eyring, H., The Theory of Rate Processes, (1941), McGraw-Hill.
- (6) 横堀, 材料強度学, (昭49), 245, 岩波全書。
- (7) Ohkubo, H., J. Appl. Mech., 17-4, (1950), 359。
- (8) Timoshenko, S.P. and Goodier, J.N., Theory of Elasticity, (1970), 314, McGraw-Hill.

討 論

〔質問〕 長瀬 康 男〔静岡大学工学部〕

粒子成長速度および応力依存性の詳細な検討から、電着銅粒子の成長現象を定量化する基本関係式を導かれたご研究を興味深く拝見した。

以下の点についてご教示願いたい。

(1) 粒子の成長速度は、成長粒子の短径および長径のいずれを用いて求めたのか、また、初期粒径はどの程度か。

(2) 1個の成長粒子の成長速度を求めるのには、繰返し数を種々変化させるなどの、平均を求める操作が必要か。

(3) 成長粒子を発生させる際の実験条件は、その後の粒子成長速度に影響を及ぼすとのことであるが、温度および応力の差異はどのような相違をもたらすか。

〔回答〕 (1) 第1報で述べたように、粒子成長速度はほぼ円形状を呈する成長粒子の長径に着目して求めたものである。また、設定した初期条件のもとで発生する成長粒子の初期粒径は長径でおおむね $40\ \mu\text{m}$ ~ $50\ \mu\text{m}$ に収まっている。

(2) 第1報および第2報において、一定応力振幅のもとでは、ある繰返し数範囲において成長粒子の粒子径と応力繰返し数との間には線形性が成立することを明らかにしている。したがって、上述の繰返し数範囲で個々の成長粒子の成長速度を求める際には、ご指

摘のような操作は必要ないものと考えられる。

そこで、本実験においては成長状況の観察が容易になるように、試験繰返し数を試験温度および試験応力に応じて適宜設定し、成長前(試験前、すなわち初期成長粒子)および成長後(試験後)の2回の観察により、粒子径の増加分を試験繰返し数で除して粒子成長速度を求めるものとした(付図1)。

(3) 成長粒子の発生や成長過程は、一種の再結晶現象であり、繰返し応力が関与する熱活性化過程とみなすこともできる。すなわち、熱的再結晶現象が時間の経過とともに進行するのと同様に、成長粒子を利用する銅めっき応力測定法のひずみ感度は電着層生成後において時間の経過とともに向上する(付1)。したがって、成長粒子を発生させる際に与える試験条件、すなわち繰返し応力値、応力繰返し数および雰囲気温度などの疲労履歴が成長粒子のその後の成長に影響を及ぼすことは十分に考えられる。その条件の差異が粒子成長速度に及ぼす影響について詳細な検討は加えていないが、種々の初期応力のもとで発生させた成長粒子に対して粒子成長の下限界応力(粒子成長速度が零に相当する応力)を求めたところ、初期応力が大きな場合ほど下限界応力が上昇する傾向が認められた。

(付1) 清家・北岡、機論、50-452、A(1984)、813。

付図 1 成長粒子の成長状況と粒子成長速度