マイクロビッカース圧子の圧入による
ガラスセラミック基板の焼結残留応力測定法*土 居 博 昭^{*1}, 保 川 彰 夫^{*2}Micro-Vickers Indentation for Measuring Residual Sintering Stress
in a Glass-Ceramic SubstrateHiroaki DOI^{*3} and Akio YASUKAWA^{*3} Mechanical Engineering Research Laboratory, Hitachi, Ltd.,
502 Kandatsu, Tsuchiura-shi, Ibaraki, 300-0013 Japan

A method for measuring residual sintering stress in glass-ceramic substrates with multilayer copper circuits has been investigated. This method uses the length of a crack produced from a Micro-Vickers impression on the substrate. First, the relation between the stress and the crack length is obtained by applying the method to mechanically stressed glass-ceramic plates without copper. Next, we determine the conditions under which we can apply this method to substrates with multilayer copper circuits. If the measurement is conducted very near to a copper layer, the crack produced bends toward the copper. From finite-element stress analyses, we found that this bending is caused by the indentation-produced bending deformation of the substrate. This deformation only occurs where the substrate has been softened by the presence of copper. Therefore, to prevent such crack bending, the regions to which our method is applicable are restricted to those at distances of more than 50 μm from the copper.

Key Words: Stress Intensity Factor, Fracture Mechanics, Ceramics, Residual Stress, Experimental Stress Analysis, Micro-Vickers, Glass-Ceramic

1. 緒 言

ガラスセラミック多層配線基板は配線密度が高く、信号伝達が高速であるため、高速シリコンデバイス搭載用配線基板として使用が拡大してきた。この基板の焼結工程ではガラスセラミックと配線銅の線膨張係数差によって生じる熱応力が焼結条件の変動により増加し、ガラスセラミック中にマイクロクラックを生じる恐れがある。このため熱応力を低減する適切な焼結条件を用いることが重要である。しかしガラスセラミックの残留応力を測定する適当な方法が見あたらないため、マイクロビッカース圧子の圧入を応用した測定の適用性を検討した。

マイクロビッカース圧子の圧入によるセラミックの残留応力測定は、Marshall と Lawn により提案され⁽¹⁾、ガラスセラミック基板のろう付け部⁽²⁾や誘電体セラミック⁽³⁾に対して適用されている。しかし、

これらの測定は単独のセラミックを対象としたものであるため、この測定方法を微細な銅配線を有するガラスセラミック基板にそのまま適用できるかは不明である。また、この応力測定は圧痕に伴うき裂の長さとの関係式^{(4)~(6)}に基づいている。この関係が材料や圧痕のき裂長さなどによって影響を受けるという報告⁽⁷⁾があるため、ガラスセラミックに対して本測定法から得た応力を真の応力で校正しておく必要が有る。更に、き裂長さに伴うばらつきによる測定精度への影響が、実用的に許容できる範囲であることを確認することも重要である。

本研究では、基板の配線間の微細なガラスセラミック部分に適用するために圧痕に伴うき裂長が 100 μm 以下になる場合の残留応力とき裂長さの関係を把握し、実験式を作成した。また破壊靱性の知られた石英ガラスについて、この破壊靱性と作成した実験式から得た破壊靱性を比較し手法の確認を行った。その上で配線近傍に圧子を圧入した場合に生じるき裂の湾曲と残留応力の関係について応力解析結果を元に検討し、本測定法を適用できる基板領域を明らかにした。

2. き裂長さとの関係

* 原稿受付 2002 年 5 月 9 日。

^{*1} 正員, (株)日立製作所機械研究所(☎ 300-0013 土浦市神立町 502)。^{*2} 正員, (株)日立製作所自動車機器グループ(☎ 312-8503 ひたちなか市大字高場 2520)。

E-mail: doi@merl.hitachi.co.jp

21 実験方法 圧痕のき裂長さと応力の関係をガラスセラミックと石英ガラスについて定量的に把握した。石英ガラスは強度が知られ、試験片内部のき裂の観察が可能であるので測定法の確認を行うために使用した。試験片形状は両者とも長さ 30 mm、幅 5.2 mm、厚さ 2 mm の直方体で、表面はき裂の観察が容易なように鏡面研磨した。ガラスセラミックには銅配線は入っていない。図 1(a), (b) はそれぞれ 4 点曲げにより試験片表面に引っ張り応力と圧縮応力を作用させた状態で、マイクロビッカース圧子を圧入した方法を示す。試験後、圧痕に伴うき裂長さを測長顕微鏡で測定した。き裂は圧入後の圧子除荷時から 30 s 以内に十分形成され、以後き裂長さは一定の値を保つことが判明したため、き裂長さ測定は圧入後の除荷時から 30 s 以降、60 s 以前の間にいった。圧入の試験荷重は応力が 0 の状態で明瞭なき裂が形成される範囲で最低値に設定した。この荷重はガラスセラミックでは 2.94 N、石英ガラスでは 4.90 N となった。なお、荷重の保持時間は 15 s である。応力は試験片下面に張り付けたひずみゲージで測定したひずみに縦弾性係数（ガラスセラミック: $E=80.6 \text{ GPa}$ 、石英ガラス: $E=76.3 \text{ GPa}$ ）を掛けて求めた。この方法で試験片の応力を変えながら各応力について 4 回の圧入を行った。

22 実験結果と検討 図 2, 3 はガラスセラミックと石英ガラスに対して応力を負荷した状態で形成し

た圧痕の例を示す。応力はそれぞれ紙面の上下方向に負荷され、応力値はガラスセラミックの図 2(a), (b), (c) では 0 MPa, 57.0 MPa, -32.2 MPa、石英ガラスの図 3(a), (b), (c) では 0 MPa, 37.9 MPa, -30.5 MPa である。き裂は圧痕の 4 つの頂点からそれぞれ紙面の上下左右方向に進展している。これらき裂の内、応力の

Fig. 1 Stress applying method for the plate specimen

Fig. 2 Examples of indentation crack patterns on glass-ceramic plate with or without stresses

方向に垂直方向(紙面の左右方向)のき裂の長さが応力により変化している。このき裂長さを測定した。き裂長さは応力が無い場合の(a)に比べ、引っ張り応力の(b)では増加し、圧縮応力の(c)では減少している。石英ガラスではこれらのき裂に付随して圧痕中心から放射状に進展したき裂や圧痕を囲む円形のき裂が内部に見ら

(a) no stress

(b) 37.9 MPa

(c) -30.5 MPa

Fig. 3 Examples of indentation crack patterns on quartz-glass plate with or without stresses

(a) Glass-ceramic

(b) Quartz-glass

Fig. 4 Relation between stress and crack length

れたが、これらのき裂には応力の影響は少ないようである。ガラスセラミックと石英ガラスについて得られたき裂長さと応力の関係を図 4(a), (b)に示す。図中の丸印は同じ応力に対する 4 個のき裂長さ測定値の平均値、丸印に付いた横線は 4 個の測定値の最大値と最小値の範囲を示す。また、曲線は下記のように導出した実験式を表す。

図 5 に圧痕の模式図を示す。(a)はき裂面を含む断面図、(b)は試験片の表面を示す図である。試験片に残留応力の無い場合のき裂長さを C_0 とする。ビッカース圧子を圧入し圧子を除去した後に半円形のき裂が生じる現象の実験的検討と破壊力学的検討から、圧子の負荷 P とき裂長さ C_0 を用いて応力拡大

係数 $K(C_o)$ は次式で表され、この応力拡大係数が破壊靱性 K_c に等しいことが知られている⁽⁴⁾⁽⁵⁾。

$$K(C_o) = \alpha P C_o^{-1.5} \dots\dots\dots (1)$$

$$K_c = K(C_o) \dots\dots\dots (2)$$

ここに α は比例係数である。

(a) Side view

(b) Surface view

Fig. 5 Schematic of Vickers-produced indentation-fracture system

Fig. 6 Subsurface view of crack in quartz-glass plate without stress

(a) Schematic of indentation crack pattern on multilayer substrates

(b) Indentation crack pattern ($L = 60 \mu m$)

(c) Indentation crack pattern ($L = 28 \mu m$)

Fig. 7 Indentation crack patterns on multilayer substrates

試験片に残留応力がある場合の、ビッカース圧子を圧入し圧子を除去した後のき裂に生じる応力拡大係数を以下に検討する。この場合のき裂長さを C_i とする。残留応力がある場合の圧痕のき裂形成は十分解明されていないようである。このため Marshall と

Fig. 8 Relation between distance and crack length

Lawn による提案を採用し残留応力 σ がある場合のき裂に生じる応力拡大係数を求める。この応力拡大係数は式(1)を長さ C_i のき裂に適用して得られる負荷 P による応力拡大係数 $K(C_i)$ と残留応力 σ による応力拡大係数 $F\sigma(\pi C_i)^{0.5}$ (ここに F はき裂形状による補正係数) 重畳したものとなると仮定する⁽¹⁾。この応力拡大係数も破壊靱性値に一致することから

$$K_C = K(C_i) + F\sigma(\pi C_i)^{0.5} \quad \text{.....(3)}$$

式(2)と(3)を用いると図4のき裂長さと応力の関係は式(4)で表される。

$$\sigma = \frac{1}{F\sqrt{\pi}} C_i^{-0.5} \{K(C_o) - K(C_i)\} \quad \text{.....(4)}$$

式(1)を用いて式(4)を具体的に表すと

$$\sigma = AC_i^{-0.5} (B - C_i^{-1.5}) \quad \text{.....(5)}$$

ここに

$$A = \frac{\alpha P}{F\sqrt{\pi}} \quad \text{.....(6)}$$

$$B = C_o^{-1.5} \quad \text{.....(7)}$$

式(5)が図4の丸印のデータの中央値を表すとして、最小自乗法を用いて定数 A , B を定めた。ガラスセラミックについては $A = 8.39 \times 10^{-2} \text{ MPa} \cdot \text{m}^2$, $B = 7.44 \times 10^6 \text{ m}^{-1.5}$, 石英ガラスについては $A = 1.35 \times 10^{-1}$

$\text{MPa} \cdot \text{m}^2$, $B = 4.77 \times 10^6 \text{ m}^{-1.5}$ となった。図4(a), (b)では個々の測定点にはばらつきがあるが、同じ応力で測定した4個の平均値を用いれば式(5)の実験式からの誤差は少なく、実験式が良い近似となっている。また、き裂形状を半円と仮定し石英ガラスのポアソン比 0.17 を用いて得た補正係数 $F=0.647$ ⁽⁸⁾ と上記の定数 A , B を式(1), (6), (7)へ適用して求めた石英ガラスの破壊靱性値 $0.736 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ は、き裂付試験片の曲げ試験によって求められた文献値 $0.749 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ ⁽⁹⁾ と良く一致した。なお、石英ガラス試験片は圧痕形成後にき裂に沿って破壊し、破面に見られたき裂形状を SEM(走査型電子顕微鏡)で観察した。図6にき裂形状の SEM 像を示す。図ではき裂の一部のみが観察されたが、き裂はほぼ半円形状であることが確認された。

3. 配線基板への適用性

3.1 実験の方法と結果

試験片は厚さ $10 \mu\text{m}$ の全面銅層を多数積層したガラスセラミック多層配線基板を切断し断面を鏡面研磨したものである。この試験片の断面のガラスセラミック部分に対して本方法を適用した。図7(a)に示すようにガラスセラミックの断面上の銅層からの距離 L を変えた位置に圧痕を形成し、距離 L によるき裂形状の変化を観察し、銅層の長手方向のき裂長さ C_i を測定した。図7で(b)は距離 L が $60 \mu\text{m}$, (c)は L が $28 \mu\text{m}$ の例を示す(銅層長手は紙面の左右方向)。き裂は銅層の長手方向ではこれに垂直な方向より長くなった。更に L が $50 \mu\text{m}$ 以下の銅層に近い位置に形成した圧痕では、長手方向のき裂の先端が銅層の方向に近づく向きに湾曲した。この実験で得た圧痕の銅層からの距離 L とき裂長さの関係を図8に示す。き裂長さはき裂先端間の直線距離を示す。き裂長さは銅層から離れると急速に減少し、距離が約 $50 \mu\text{m}$ 以上ではほぼ一定となった。

3.2 実験結果の検討

3.2.1 圧痕のき裂長さ

3.1 節の実験で得られたように圧痕のき裂の長さが位置により変化したり、き裂が湾曲したりする理由を解明するために、有限要素法応力解析によってガラスセラミックの応力を予測した。圧痕を形成した試験片の断面の表面には、焼結後 650°C のガラス転移温度から 20°C への冷却過程においてガラスセラミックと銅の熱収縮の差により生じた熱応力に断面を形成することによる応力変化が重畳している。この応力を解析するために、図9(a)のブロックを 650°C から 20°C まで冷却した後、平面 5-6-7-8 で切断した場合を考える。なお、切断後の平面 5-6-7-8 が前節にて応力計測を行った面となる。まず、ECDF 部

Fig. 9 Area of stress analysis and its finite element mesh

分をモデル化した図 9(b)のメッシュ 1 を用いて冷却時の応力変化を求める。さらにその状態から線 AB より右部分の要素を消去することで形成した図 9(c)のメッシュ 2 から切断時の応力変化を求めた。使用した要素は 2 次元平面ひずみ 4 節点要素である。境界条件はメッシュ 2 の境界 AB は自由境界、メッシュ 1, 2 のその他の境界には直線保持を設定した。解析に使用した材料定数は銅については縦弾性係数 $E = 127 \text{ GPa}$ 、ポアソン比 $\nu = 0.3$ 、ガラスセラミックについては $E = 80.6 \text{ GPa}$ 、 $\nu = 0.213$ 、銅とガラスセラミックの線膨張係数差は $10.75 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ とした。

20°C への冷却後のメッシュ 1 の AB に沿う X 方向応力成分は、(a)の試験片断面上の AB に沿う水平(X)方向応力成分を表す。この応力の分布を図 10 に示す。

Fig. 10 Stress distribution (σ_x) along the line AB

Fig. 11 Stress distribution (σ_z) along the line AB

この応力成分はガラスセラミック内ではほぼ一定の圧縮応力、銅層内では引っ張り応力となる。なお、ガラスセラミック中の応力 σ_x は断面形成による断面に垂直な応力成分 σ_y が解放されるため、断面形成前の応力のほぼ $(1-\nu)$ 倍の値となっている (ν はガラスセラミックのポアソン比)。このため断面形成後の計測応力値をそのまま断面形成前の応力値とすることはできない。しかし本応力測定が焼結残留応力の厳密な値の取得よりむしろ、焼結条件の変動による残留応力変動をモニターすることを目的としたため、断面形成による応力変化は本測定法の重大な欠点とはならないと思われる。断面 AB を形成した後のメッシュ 2 の AB に沿う Z 方向応力成分は、(a)の試験片断面上の AB に沿う垂直(Z)方

Fig. 12 Object of stress analysis

Fig. 13 The principal stress distribution near crack

向応力成分を表す。この応力の分布を図 11 に示す。この応力は銅層の中央(A)で最小値を取り、銅層から離れるに従い急激に増加し、銅層とガラスセラミックの界面から $30 \mu\text{m}$ を越えるとほぼ一定の引っ張り応力になる。この解析からガラスセラミック断面には銅層の長手方向に圧縮応力が生じ、長手方向に垂直な方向に引っ張り応力が生じていることが示された。この応力解析結果によって、3.1 節に示した圧痕のき裂の長さが銅層の長手方向で長くこれに垂直方向で短くなる理由が説明された。なお、図 11 に示した応力分布では銅層とガラスセラミックの界面において特異場応力が生じることが考えられる。しかし、本解析でその

Fig. 14 Direction of maximum principal stress axis in front of crack tip

Fig. 15 The resulting deformation near crack

応力が見られなかったのは、特異場応力の発生範囲がごく狭い領域に限定されていたためと思われる。

3.2.2 圧痕のき裂の湾曲 き裂の湾曲は以上の熱応力解析で得たガラスセラミックの残留応力では説明できない。この原因を解明するため、圧子が圧入されることにより生じる応力を解析した。この応力を精度良く解析するためには圧子と試験片の接触状態の変化を考慮した解析が必要となる。しかしここではき裂の湾曲の定性的な理解を目指して、弾性応力解析による単純化した検討を行った。図 12 に試験片の断面の解析領域を示す。解析モデルには銅

層から $30\text{ }\mu\text{m}$ の位置に銅層に平行な長さ $100\text{ }\mu\text{m}$ のき裂を導入した。使用した要素は 2 次元平面ひずみ 4 節点要素である。圧子によってき裂面に働く力 $P' = 0.422\text{ N}$ は実験荷重 $P = 2.94\text{ N}$ と圧子の稜線のなす角度 $2\phi = 148^\circ$ から次式を用いて推定した⁽⁴⁾。

$$P' = \frac{P}{2 \tan \phi} \quad \cdots \cdots (8)$$

この力により長さ $100\text{ }\mu\text{m}$ の半円形き裂面に均一な圧力 (107 MPa) が生じると仮定した。解析モデルのき裂面にこの圧力を設定し弾性応力解析を行った。材料定数は前節の値を使用した。この解析の結果、銅層に 93.2 MPa の相当応力が生じることが判明した。銅の耐力は約 50 MPa であるため、圧子の圧入で銅層が塑性変形していると考えられる。

次にこの解析モデルに対し、銅層の縦弾性係数をひずみ硬化率に相当する 127 GPa とした弾性応力解析を実施し、銅層に塑性変形が生じた後の変形挙動を予想した。この解析では圧子によってき裂面に働く圧力は 1 Pa とした。図 13 にき裂先端付近の図 12 に示す領域の主応力ベクトル図を示す。この図からき裂先端付近のき裂延長線上の最大主応力軸方向を求め図 14 に示す。き裂先端付近では最大主応力軸がき裂延長線の垂線に対し $60 \sim 70$ 度の方向を向いている。き裂は最大主応力軸に垂直な方向へ進展するため、この応力はき裂を銅層方向に進展させると考えられる。図 15 に図 12 に示す領域の変形図を示す。この図では銅層の圧縮変形により銅層に近い方のき裂面が銅層の方向に大きく変形していることが示されている。この解析結果からき裂の湾曲は焼結時の熱応力によるものではなく、圧子が圧入される時の負荷による銅層の塑性変形に起因するものと考えられる。

以上の検討から銅層付近のガラスセラミックの応力を測定する場合、銅層の塑性変形によるき裂の湾曲を避けることが必要で、このためには銅層とガラスセラミックの界面から $50\text{ }\mu\text{m}$ 以上離れた位置で測定を行うことが必要であることが判明した。

3.2.3 配線基板の応力 図 8 の距離 L が $80\text{ }\mu\text{m}$ の位置でのき裂長さ $31.7\text{ }\mu\text{m}$ を実験式(4)に用いて求めた応力は 28 MPa となった。図 11 に示されたこの位置の応力の解析値 22 MPa は測定値 28 MPa には十分一致しないものの、配線基板表面に生じる銅層に垂直方向の引っ張り残留応力を予測した。このため、解析モデルは実際の焼結残留応力発生挙動をほぼ表していると考えられる。

4. 結 言

マイクロビッカース圧子の圧入を用いた応力測定法のガラスセラミック多層配線基板の焼結残留応力測定への適用性を検討した。その結果は次の通りである。

- (1) 機械的に応力を与えたガラスセラミックへ圧痕を形成して得たき裂長さと応力の関係は、Lawn らのき裂の長さと破壊靱性の関係式を応用した実験式で表すことができる。
 - (2) 応力を負荷した試験片に対する個々のき裂長さの測定値はばらつきを持つが、各応力について 4 個以上のき裂長さの測定値を平均すれば、上記の実験式を基板の残留応力測定に適用することが可能である。
 - (3) 本測定法を用いて厚さ $10\text{ }\mu\text{m}$ の銅層付近のガラスセラミックの応力を測定する場合、銅層とガラスセラミックの界面から $50\text{ }\mu\text{m}$ 以内の位置ではき裂の湾曲が起こる。この湾曲はガラスセラミックの残留応力状態を反映したものではなく、圧子の負荷によって生じた銅層の塑性変形によるものである。この湾曲を避けるため、応力測定は界面から約 $50\text{ }\mu\text{m}$ 以上離れた位置で行うことが必要である。
- 最後に、本研究遂行に当たりご討論を頂いた(株)日立製作所エンタープライズサーバ事業部の笠井憲一氏、同生産技術研究所の山田収氏、河合通文氏に感謝いたします。

文 献

- (1) Marshall, D.B. and Lawn, B.R., J. Am. Ceram. Soc., **60**, 1-2 (1977), 86-87.
- (2) Shih, D-Y., et al., IEEE Trans. Comp., Hybrids, Manuf. Technol., **15-2**, (1992), 369-377.
- (3) Okazaki K., J. Am. Ceram. Soc. Bull., **63-9**, (1984), 1151-1157.
- (4) Lawn, B.R. and Fuller, E.R., J. Mat. Sci., **10**, (1975), 2016-2024.
- (5) Lawn, B.R., Evans, A.G. and Marshall D.B., J. Am. Ceram. Soc., **63-9-10**, (1980), 574-581.
- (6) Anstis, G.R., Chantikul, P., Lawn, B.R., and Marshall, D.B., J. Am. Ceram. Soc., (1981), **64-9**, 533-538.
- (7) Li, Z., Ghosh, A., Kobayashi, A.S. and Bradt, R.C., J. Am. Ceram. Soc., **72-6**, (1989), 904-911.
- (8) Murakami, Y., Stress Intensity Factors Handbook, **2**, (1987), 701, Pergamon Press.
- (9) 石川博幸・新開紀彦, 材料, **30-337**, (1981), 1025-1031.