アルミニウム/窒化アルミニウム界面の 冷熱サイクル試験による破壊機構

長友義幸¹ 北原丈嗣¹ 長瀬敏之¹
黒光祥郎¹ Harini Sosiati² 桑野範之³

¹三菱マテリアル株式会社中央研究所

²九州大学超高压電子顕微鏡室

³九州大学産学連携センター

J. Japan Inst. Metals, Vol. 72, No. 6 (2008), pp. 433-439

© 2008 The Japan Institute of Metals

Fracture Mechanism of Interface between Aluminum and Aluminum Nitride during Thermal Cycling

Yoshiyuki Nagatomo¹, Takeshi Kitahara¹, Toshiyuki Nagase¹,
Yoshiro Kuromitsu¹, Harini Sosiati² and Noriyuki Kuwano³

¹Central Research Institute, Mitsubishi Materials Corporation, Naka, 311-0102

²High Voltage Electron Microscopy Laboratory, Kyushu University, Fukuoka 812-8580

³Art, Science and Technology Center for Cooperative Research, Kyushu University, Kasuga 816-8580

Fracture mechanism of the interface between an aluminum layer and an aluminum nitride plate during thermal cycling was studied. Observation of the interface with an ultrasonic flaw detector indicated that a crack was generated at an edge of the aluminum layer after approximately 2000 thermal cycles. Cross-section observation using SEM-ASB (Angle Selective Backscattered electron detector) revealed that the crack propagated into the aluminum layer and ran along the interface. The size of aluminum grains around the tip of the crack is 0.2–1.0 μm . This size is much smaller than that in the initial aluminum layer, which was approximately 500 μm . It is considered that the reduction in the size of aluminum grains was due to the accumulation of strains in the aluminum layer during the thermal cycling. Observations using SEM-ASB of higher magnification and TEM revealed that the crack was formed in the aluminum layer during thermal cycling, and propagated along the aluminum grain boundaries.

(Receives December 4, 2007; Accepted February 27, 2008)

Keywords: aluminum, aluminum nitride, interface, scanning electron microscope–electron backscatter diffraction, scanning electron microscope–angle selective backscattered electron detector, transmission electron microscopy, fatigue fracture

1. 緒 言

Y_2O_3 などの助剤を添加して作製された AlN 焼結体は高い電気絶縁性と熱伝導率を有することから、高出力スイッチング素子実装用の絶縁回路基板に広く用いられている。これら絶縁回路基板には、AlN 板の両面に Cu を接合した Cu 回路基板と、Al を接合した Al 回路基板がある。従来は電気伝導性、熱伝導性に優れた Cu 回路基板が多く用いられてきたが、冷熱サイクル試験において AlN 内にクラックが発生するなど、耐久性に問題があり、高信頼性を要求される用途については Al 回路基板が積極的に用いられるようになってきている¹⁾。冷熱サイクル試験における Cu 回路基板と Al 回路基板の差異は、塑性変形領域での Cu と Al の変形応力挙動の差で説明できることが弾塑性熱応力解析により明らかとなっている。すなわち、冷熱サイクル試験において、Cu と Al は AlN との熱膨張係数差から繰返し塑性歪みを受けており、加工硬化がより顕著な Cu においては、塑性歪みの蓄積により変形応力が上昇し、それに伴って AlN などへの負荷

も大きくなっていく。一方、Al では塑性歪みを蓄積しても、加工硬化は顕著には見られないため、AlN への負荷に経時変化はほとんど見られないという結果が得られている^{2,3)}。

Al 回路基板の製造方法には、Al-Si 系や Al-Cu 系などのろう材を用いて接合するろう付け法と、AlN がセットされた鋳型に溶融 Al を流し込み、溶融 Al を凝固させることで製造する鋳造法の 2 種類がある。いずれの方法も溶融 Al を AlN に接触させることで Al/AlN 間の接合を確保する製法である。溶融 Al と AlN は濡れ性が悪く、界面反応が起こりにくい系であるとされているが⁴⁾、第一原理計算によれば Al/AlN 界面結合力は、界面反応が起こらなくても、Al 母材の結合力とほぼ同じであると見積もられている⁵⁾。実際、Al/AlN ナノ複合材を破壊した際に界面破壊モードが見られないという実験結果⁶⁾は、界面反応がなくても十分な界面結合力を確保できることを示すものである。

冷熱サイクル試験における Al 回路基板の有効性は、パワーモジュールなどのシステム評価や熱応力解析においては実証されている。しかしながら、更なる高信頼性化へ向けて

の材料学的な検討はほとんどなされていない．特に Al/AlN 界面近傍には冷熱サイクル試験によって大きなせん断歪みが発生するので，Al/AlN 界面近傍の微構造は信頼性を決定する重要な因子であると推測される．そこで本研究では，Al/AlN 界面の冷熱サイクル試験における微構造の変化を明らかにし，冷熱サイクル試験における Al/AlN 界面の破壊機構を明らかにすることを目的とする．

2. 実験方法

2.1 試料作製条件

Fig. 1 に冷熱サイクル試験に供した試料の断面図を示す．Al/AlN 接合体は純度 99.99% の Al 板 (17 mm × 29 mm × 0.6 mm) に Al-Si 系のろう材を介して AlN 板 (19 mm × 31 mm × 0.635 mm) の両面に接合して作製した．接合は約 10–3 Pa の真空中，約 922 K で行った．その後この接合体を厚さ 5 mm の Al 合金 (A6063) に真空ろう付けし，これを冷熱サイクル試験用試料とした．A6063 の Al 合金を Al/AlN 接合体に接合することで，冷熱サイクル試験時の裏面 Al/AlN 界面 (Fig. 1 矢印で示した界面) への負荷が大きくなり，試験を加速させることが可能になる．試料中の接合界面は冷熱サイクル試験に投入する前に超音波探傷 (Fine SAT 200 : 日立建機ファインテック製) で裏面 Al/AlN 界面の接合面積を測定した結果，全面で接合しており，剥離は認められなかった．

Fig. 1 Schematic image of a specimen-set for thermal cycle test. Cracks are expected near the interface marked with an arrow.

2.2 冷熱サイクル試験

冷熱サイクル試験は 233 K および 378 K に制御されたフッリナートを用意し，それぞれ各 5 分ずつ上記試料を交互に浸漬することで実施した．試験機はエスベック社製の液相冷熱試験機 TSB-51 を用いた．界面の破壊進行状況を見るために 1000 サイクルごとに試料を取り出し，超音波探傷で接合面積を測定した．

2.3 組織観察方法

冷熱サイクル試験による破壊進行過程を観察するために，試料の断面組織観察を行った．組織観察は走査電子顕微鏡 (SEM)，透過電子顕微鏡 (TEM) を用いて行った．SEM 観察用試料は，ダイヤモンドソーにより断面を切り出しエメリー紙による研磨の後，観察面の平滑化および加工歪除去のためアルゴンイオンビームによるイオン研磨を行った．SEM 観察では，電子線後方散乱回折 (Electron Back Scattered Diffraction: EBSD) 解析 (S4300 : 日立製作所製) および ASB 検出器 (Angle Selective Backscattered Electron Detector) による反射電子像解析 (Ultra 55: Carl Zeiss 製) を 15–20 kV 程度の加速電圧で行った．ASB 検出器は，SEM のポールピース先端に設置された環状の検出器で，試料距離や加速電圧などの条件を変えることで，試料表面に対して比較的低角度に回折した反射電子を選択的に検出することができる．こうして得られた ASB 像では，通常の反射電子像よりも回折コントラストが強調されるので，サブグレインや転位などの，TEM 像とはほぼ同様の情報を得ることができる⁷⁾．TEM 観察用試料は，集束イオンビーム (Focused Ion Beam: FIB) 装置 (FB2000K : 日立製作所製) を用いて作製した．TEM (JEM-2000EX/T : 日本電子製) 観察では電子線回折，明視野像および暗視野像による解析を行った．とくに冷熱サイクル試験により破壊が発生した箇所に注目して観察を行った．

3. 結果および考察

3.1 冷熱サイクル試験前の Al/AlN 界面近傍組織

Fig. 2 は冷熱サイクル試験前の Al/AlN 界面近傍について

Fig. 2 IPF map of aluminum/aluminum nitride interface before thermal cycle test.

の EBSD による Al 結晶方位マップである。図中矢印の方向、すなわち Al/AlN 界面に対して法線方向の Al 結晶方位を示している。Al は、ほぼ全域にわたって [001] Al 方位が Al/AlN 界面に対して垂直になっていることがわかる。純度 99.99% 以上の Al 板は、圧延加工後の熱処理により立方体方位粒が優先的に成長することがよく知られている⁸⁾が、本試料のロウ付け時の熱処理においても、立方体方位粒の優先成長が起きたと推察される。これら Al 板の立方体方位粒の粒径は、接合面方向で 0.5~1 mm、垂直方向で 0.6 mm であった。また、Al ロウと Al 板との結晶方位による区別は明確にはできない。このことから、溶融した Al ロウは、ロウ付け中に成長した Al 板の立方体方位を引き継ぎながら凝固したと考えられる。

Fig. 3 Observation of aluminum/aluminum nitride interface with ultrasonic flaw detector. Specimen for cross-section observation was prepared with cutting along the brake line.

3.2 冷熱サイクル試験による Al/AlN 界面剥離の進展

Fig. 3 は前述試料に冷熱サイクル試験(4000 サイクル)を施した後、Al/AlN 界面の接合状態を接合面に垂直方向から超音波探傷で観察した結果を示す。探傷画像中の白い場所が Al/AlN 界面で剥離が進行している部分である。剥離は 2000 サイクル程度から Al の端部より発生し始め、徐々に中央に向かって進展していく。特に Al コーナー部は剥離の進展が速い。これは Al コーナー部への応力集中によるものと考えられる。

3.3 Al/AlN 界面剥離部の断面組織観察

剥離部の微構造解析をするために、剥離の進展の速い Al コーナー部(Fig. 3 中の破線部)を切断し、断面観察試料を作製し、SEM 観察に供した。Fig. 4 は冷熱サイクル試験 4000 サイクル後の剥離発生・進展が顕著に見られた部位の SEM による ASB 像で、Fig. 5 はその一部を拡大したものである。Fig. 4, Fig. 5 中、上側の明るいコントラストを呈している領域が Al である。Fig. 4 の矢印は超音波探傷で観察された剥離である。剥離は Al/AlN 界面近傍で、AlN 側に Al を数 μm 程度残しながら Al 内部を進展しているクラックによるものであることがわかる。これは、今回確認された剥離は Al の繰返し歪みによる疲労破壊の結果であることを示唆している。Fig. 4, Fig. 5 の Al 内には Al 結晶方位に依存した回折コントラストが観察される。Al の結晶粒は冷熱サイクル前(Fig. 2)と比べて、繰返し歪みの影響で約 3 μm 以下にまで細かくなっている。特に Al/AlN 界面から約 100 μm 以内の領域における Al 結晶粒の微細化は顕著である(Fig. 5)。これは、冷熱サイクル試験による繰返し塑性歪みが Al/

Fig. 4 SEM-ASB image of aluminum/aluminum nitride interface after thermal cycle test. Arrows show the crack in aluminum layer.

Fig. 5 SEM-ASB image of crack in aluminum layer.

Fig. 6 IQ map and IPF map of aluminum/aluminum nitride interface after thermal cycle test.

Fig. 7 SEM-ASB image of tip of crack in aluminum layer. Aluminum grains are observed clearly with diffraction contrast.

Fig. 8 Diffraction pattern and TEM images of aluminum nearby tip of crack after thermal cycle test. (a): bright field image and (b): dark field image.

AlN 界面近傍に集中していることを示唆する。

Fig. 6 はクラック先端近傍領域の SEM-EBSD による IQ (Image Quality) マップと Al 結晶方位マップを示したものである。微細化した Al の結晶方位は、冷熱サイクル試験前に見られた立方体方位がほぼ消失した状態になっていることがわかる。またクラック近傍の Al の結晶方位は Al/AlN 界面

に対して垂直な方向に、 $[111]_{\text{Al}}$ 方位がそろっている傾向が見られる。これは冷熱サイクルによって生じたせん断歪みによって、Al のすべり面 $(111)_{\text{Al}}$ 面が配向しながらクラックが進展したものと思われる。クラック先端をさらに高倍率で観察すると、このクラックは微細化した Al の結晶粒界に沿って進展していることがわかる (Fig. 7)。クラック先端の Al

Fig. 9 Diffraction patterns and bright field image around the tip of crack in aluminum layer.

結晶粒径は $0.2 \sim 1.0 \mu\text{m}$ 程度まで微細化されている。ASB 像のコントラストは、試料表面近傍で回折した反射電子から得られるので、TEM の回折コントラストと類似した情報が得られると考えられる。Al の結晶粒内は転位などによる歪みが要因と思われるコントラストが散見される。

以上の結果より、Al は冷熱サイクルにより塑性歪みを蓄積した結果、立方体方位を壊しながら Al 結晶粒微細化が進行すると考えられる。結晶粒微細化はおよそサブミクロンのオーダーまで進行し、最終的には Al 結晶粒界での破壊に至ると考えられる。

3.4 Al/AlN 界面のクラック発生・進展機構

上述の Al 結晶粒微細化およびクラックの発生・進展機構を明らかにするために、別の試料を用いてクラック近傍の組織を TEM で観察した。

Fig. 8 はクラック近傍から FIB によりマイクロサンプリングした Al 結晶粒の TEM 像である。(a) は明視野像、(b) は $hkl=200$ 反射による暗視野像である。画面中央の結晶粒は、結晶粒内に発達した横方向(この結晶粒では $[100]$)の転位の束が束ねられて粒界が形成されている様子がわかる。これに伴い結晶粒の左側から窪んできており(矢印 S)、変形が進んで結晶粒が上下に分割しつつある。これに対して、左右にはほとんど同じ方位の結晶粒(P)はほとんど繋がりを見せている。すなわち、結晶粒の変形により横方向に長い結晶粒の形成が進行している。このように、繰返し歪みにより転位の発生と集合がおこることで、新しい粒界が形成され、Al の結晶粒微細化が進行するものと思われる。このような転位の集合が繰り返され、遂にはクラックへと発展するものと考えられる。

Fig. 9 は、クラックが発生した Al/AlN 界面を含む領域の TEM 像である。クラック先端部付近の Al 結晶粒は、上述

Fig. 10 Variation of sub-grain size of aluminum with alternating stress (σ_f) and number of cycles. The arrows show the points of crack generation⁹⁾.

の ASB 像と同様に、 $1 \mu\text{m}$ 程度ときわめて小さくなっている。①、②の結晶粒はともにほとんど同じ結晶方位をもつが、②の粒からの回折パターンからもわかるように結晶粒の回転が認められる。像コントラストから、結晶粒①の内部はさらに細かい領域に分割している様子が伺われる。これは Fig. 8 で示したように転位の集合により亜粒界が形成されていることを示している。

Al の引張・圧縮繰返し試験により発生した疲労クラック先端付近の Al 結晶粒サイズは、振幅応力値によらず常に一定になることが知られている (Fig. 10)⁹⁾。今回 Al/AlN 界面

近傍で観察された Al 内クラック先端近傍部の Al の結晶粒サイズが、複数の試料においてサブミクロンから数 μm オーダーのサイズで一致していたという結果は、Al/AlN 界面近傍のクラックが Al の疲労破壊で発生・進展したことを支持するものであると考えられる。また、転位の発生・移動により Al 結晶粒微細化が進行したことを考慮すると、疲労破壊抑制には、Al 結晶粒サイズの疲労破壊臨界値(サブミクロン～数 μm)に至るまでに、分散粒子などを析出させるなどして転位の移動を妨げ、Al 結晶粒微細化の進行を遅らせることが有効であると予想される。

4. 結 言

(1) Al/AlN 接合体に冷熱サイクル試験を実施し、約 2000 回以降の高サイクルで Al 端部からクラックが生じた。

(2) このクラックは主に Al/AlN 界面から 10 μm 以内の Al 内部で進展していた。これより Al/AlN 接合体の冷熱サイクルによる破壊モードは Al の疲労破壊であると考えられる。

(3) クラック近傍の Al 結晶粒サイズは 0.2～1 μm 程度であった。これは冷熱サイクル前のサイズよりかなり細かく、冷熱サイクル試験により繰返し歪みを受けることで微細化が

進行した結果であると推察される。

(4) クラックは繰返し歪みにより微細化した Al 結晶粒界に沿って進展している。

(5) Al 結晶粒微細化は繰返し歪みによって発生・移動した転位が収束することで元々の結晶粒を分割するように亜粒界を形成しながら起こると考えられる。

本研究の SEM 観察にご協力いただいたエスアイアイナノテクノロジー㈱の花田剛氏(現：株式会社シーゼットアイ)、立花繁明氏に謝意を表する。

文 献

- 1) T. Harada and Y. Baba: Proceedings of EVS-15, (1998).
- 2) Y. Nagatomo, T. Nagase and S. Shimamura: J. Japan Inst. Electronic Packaging **3**(2000) 330.
- 3) Y. Nagatomo and T. Nagase: Proceedings of EVS-17, (2000).
- 4) H. Fujii and H. Nakae: Materia Japan **34**(1995) 1269.
- 5) N. Ogata and H. Kitagawa: J. Japan Inst. Metals, **60**(1996) 1079.
- 6) S. W. Lai and D. D. L. Chung: Electronic Packaging Materials Science VII Symposium, (Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 323) (1994) 207.
- 7) K. Shimizu, T. Mitani, S. Tachibana and H. Habazaki: J. Japan Inst. Light Metals **56**(2006) 454.
- 8) F. Seki : J. Japan Inst. Metals **64**(2000) 218.
- 9) S. Karashima: Kinzoku-gokinn no kyoudo (in Japanese), (1972) 173.