Al/サファイヤ常温接合体の界面欠陥成長に関する破壊力学的考察：はく離試験および有限要素法による解析

朴 永朝* 榎 学 須賀唯知 岸 輝雄

東京大学先端科学技術研究センター

J. Japan Inst. Metals, Vol. 64, No. 6 (2000), pp. 444-450
© 2000 The Japan Institute of Metals

Fracture Mechanical Approach to the Growth of Interfacial Defects in Al/Sapphire Joint Fabricated by SAB: Tearing-Off Test and Analysis by Finite Element Method

Young Jo Park¹, Manabu Enoki, Tadatomo Suga and Teruo Kishi

Research Center for Advanced Science and Technology, The University of Tokyo, Tokyo 153-8904

Bonded area is largely affected by the surface morphology and mechanical properties of materials, because the room temperature bonding process is carried out under a low temperature and pressure for a short time. Accordingly, interfacial defects cause unavoidable problems in many cases. For an application of this technology, it is important to elucidate the effect of interfacial defects on fracture behavior. Fracture mechanism and criterion for the growth of interfacial defects were investigated using the Al/Sapphire joint known for easy control of bondability. The results clearly showed that the growth of an interfacial defect was the dominant factor for the crack propagation. A critical stress intensity factor for the growth of interfacial defects was estimated by the analysis of FEM calculation and experimental observation.

(Received December 3, 1999; Accepted April 24, 2000)

Keywords: interfacial defect, fracture mechanism, fracture criterion, room temperature bonding

1. 緒 言

従来、金属、半導体、セラミックスなどの直接接合は、多くの場合加熱を行うことで接合材料間に拡散や反応を生じさせている。従って熱ひずみや熱応力の発生¹⁾、脆い反応層の形成²⁾、接合可能な材料・デバイスの制約といった問題が指摘されてきた。それに対して、表面活性化常温接合法(Surface Activated Room Temperature Bonding: SAB)は、被接合材の表面をイオン衝撃またはラジカルビーム処理などの物理的手法を用い、超高真空中で清浄かつ活性な表面を作製、コントロールし、それらを相互接触させることによって低エネルギーでの接合を実現する新技術として注目を浴びている³⁾。このような魅力的かつ画期的な新しい接合法について、その原理から接合強度といった実験データまで、様々な研究結果が報告されている。

しかしながら、今までの研究は主に、結合原理や接合強度に関する接合条件の影響などの解明を中心として行われたため、破壊についてはまだ十分な知見が得られていない。真空中での凝着現象の理解を目的として行われて来た、50年代からの摩擦係数または付着係数の測定試験と⁴⁾、近年になっ

てようやく接合体の接合強度程度が報告されている⁵⁾。常温接合のプロセスにおいて接合面積率は被接合体の表面形状、力学特性などの物理的な因子に大きく依存するため⁶⁾、多くの場合界面欠陥(未接合部)は避けられないことになる。そのため破壊挙動に関する界面欠陥の影響を明確にすることが、常温接合体の実用化を目指す上で重要な課題になっている。また、金属/セラミックスのような異種材接合体の場合は弾性係数の差に起因する混合モード解析が必要とされる^{1,7-10)}。しかし、異種材界面き裂の混合モード応力拡大係数を簡易的に評価する方法がないため、有限要素法などの数値解析手法を用いる必要がある。

そこで、本研究では他の系に比べて常温接合性に優れたAl/サファイヤからなる接合体を対象として、供試材の力学特性も含めた接合条件を調節し、界面欠陥構造を制御した接合体のはく離試験を行い、有限要素法による解析と実験結果との比較を行い、常温接合体の破壊機構および破壊クライテリオンの導出を試みた。

2. 常温接合体の作製およびはく離試験

2.1 常温接合体の作製

供試材としてc-面研磨されたサファイヤと機械研磨および電解研磨後焼鈍を施した多結晶Alを用いた。Alの純度は

* 東京大学大学院生(Graduate Student, Tokyo University)

99.5%, 99.999% であり, 以下ではそれぞれ Al 2nine, Al 5nine と表記する. 両材を超高真空中で冷陰極型高速原子源(Fast Atom Beam)照射によって表面を清浄化し, 表面の再汚染が生じない条件を保って圧力を加え接合体を作製した. 接合圧力は Al 5nine の降伏応力である 30 MPa より低い 20 MPa と, より高い 40 MPa の二つにした. Al 母材の純度と接合圧力との組み合わせによって接合面積率を変えた試験片を作製して, 界面欠陥構造の破壊挙動への影響を調べた. 界面欠陥の大きさと空間的分布は透明なサファイヤ側から共焦点型レーザー顕微鏡(CLSM)を用いて直接観察を行って測定した. 詳細な作製プロセス, 接合装置および接合界面の観察結果は前報⁶⁾に報告した通りである.

2.2 はく離試験

試験片は T 字型で 5 mm×5 mm の接合面積を有する. き裂進展を容易にさせる目的で厚さ 1 μm の Al フォイルを接合体の界面端に挟んで予き裂を設けた. はく離試験は接合体のサファイヤ側を固定し, Al 側を一定速度(0.1 mm/min)で引張り, き裂を進展させる方法で行った(Fig. 1). この際き裂進展過程をサファイヤ側からのビデオマイクロスコプで収録し, き裂進展荷重および界面欠陥の成長領域の長さを測定した. また, き裂進展の途中に除荷した試験片の主き裂および界面欠陥の成長様子と破壊後破断面の観察はそれぞれ共焦点型レーザー顕微鏡(CLSM)と走査型電子顕微鏡(SEM)を用いて行った.

3. 有限要素法による界面欠陥の応力特異性の計算

供試材として用いた Al は降伏応力が低く弾塑性変形を示す. そのため界面欠陥部の応力状態は汎用構造解析プログラムを用いた数値シミュレーションによって求めた. 実験で測定した破壊荷重での界面欠陥の応力拡大係数の導出は次の二つの方法でそれぞれ求め, 試験での観察と比較することによってその妥当性の検討を試みた. まず, 方法 I としては有限要素のメッシュに界面欠陥を導入しない条件で, 主き裂による界面部の応力場(σ_1 と τ_1)を計算した. この応力場を界面欠陥の境界条件として用い, 次式によって界面欠陥の応力拡大係数 $K = (K_1^2 + K_2^2)^{1/2}$ を求めた¹¹⁾.

$$K_1 = \frac{\sqrt{a}}{\cosh \pi \varepsilon} \{ \sigma^i [\cos(\varepsilon \log 2a) + 2\varepsilon \sin(\varepsilon \log 2a)] + \tau^i [\sin(\varepsilon \log 2a) - 2\varepsilon \cos(\varepsilon \log 2a)] \}$$

Fig. 1 Schematic illustration of tearing-off test.

$$K_2 = \frac{\sqrt{a}}{\cosh \pi \varepsilon} \{ \tau^i [\cos(\varepsilon \log 2a) + 2\varepsilon \sin(\varepsilon \log 2a)] - \sigma^i [\sin(\varepsilon \log 2a) - 2\varepsilon \cos(\varepsilon \log 2a)] \} \quad (1)$$

ここで, a は界面欠陥の半径, ε は異材間の接合体の適合性を特性付ける Dunders パラメータ β で表され, $\varepsilon = (1/2\pi) \ln((1-\beta)/(1+\beta))$ のパイメタル定数である.

次に, 方法 II のシミュレーション方法は, 主き裂からの距離(d_c)に大きさ $2a$ の界面欠陥があるとして計算を行い, その応力特異性を式(2)を用いて近似して界面欠陥の応力拡大係数を求めた¹⁰⁾.

$$K_1 = \lim_{r \rightarrow 0} \sqrt{2\pi r} (\sigma \cos Q + \tau \sin Q) \\ K_2 = \lim_{r \rightarrow 0} \sqrt{2\pi r} (\tau \cos Q - \sigma \sin Q) \quad (2)$$

ただし, $Q = \varepsilon \ln(r/2a)$ である. 同時に仮想き裂進展法による界面欠陥成長に伴う J 積分を計算し¹²⁾, 前述した方法で求めた値との比較を行った. この際界面欠陥の塑性鈍化を避ける手段として, 接合界面の Al 側には Fig. 2 に示した模式図のような厚さ h の SSV モデルによる弾性層を導入した¹³⁻¹⁵⁾. 要素構成としては 2 次元平面ひずみを仮定し, 計算の便宜上界面欠陥は貫通き裂とした. メッシュは全て 4 節点平面ひずみ要素とし, 要素の数は最大で 5400 個, 要素の一番短い長さは界面欠陥の大きさの 1000 分の 1 であった. 収束性を確かめるため, 粗いメッシュから要素の数を増やしながら計算を繰り返した. 計算の入力データとして用いた接合体の形状寸法および力学特性は Table 1 に示した.

4. 結果および考察

4.1 き裂進展機構

接合体の界面観察から, 不純物の多い Al 2nine の接合体は Al 母材に多く存在する第 2 相の電解研磨エッチピットによって, Al 5nine の接合体に比べて界面欠陥の大きさは小さく, 頻度は大きい分布を示した. はく離試験を行った結果, 90% 以上の接合面積率を得た Al 5nine の 40 MPa 接合体ではき裂は進展せず, Al 自体の変形あるいはサファイヤ

Fig. 2 Schematic illustration of SSV Model.

Table 1 Properties and size of materials.

Al		Sapphire	
Polycrystal	99.5%, 99.999%	Single crystal	(c-plane)
Specimen size	5 mm×7 mm×3 mm	Specimen size	5 mm×10 mm×2 mm
Yield stress	30 MPa	Treated as elastic	
Work-hardening ($\sigma = k\varepsilon^n$)		$E = 420$ GPa	
$k = 179$ MPa		$\nu = 0.2$	
$n = 0.4$			

側の破壊を示した。また、Al 2nine の 20 MPa 接合体は試験および解析に十分な接合は得られなかった。そこで、以下にき裂進展挙動が明確にとらえられた Al 2nine の 40 MPa 接合体(以下 2nine-40 MPa 材)と Al 5nine の 20 MPa 接合体(以下 5nine-20 MPa 材)の試験結果を述べる。

き裂進展の際主き裂および主き裂の前方に存在する界面欠陥の挙動を詳しく調べるため、き裂進展直後除荷した試験片のき裂先端部を共焦点型レーザー顕微鏡によって観察を行った(Fig. 3)。主き裂とき裂進展方向を図に示した。両接合体とも主き裂前方の領域で界面はく離による界面欠陥の成長・合体が観察された。Fig. 3(b)の 5nine-20 MPa 材において図示した部分は、界面はく離によって島状に孤立したまだ接合されている部分を示している。界面欠陥は成長に伴って大きく鈍化することが、深さ方向の波紋状コントラストおよび SEM 観察で分かった。このような部分では荷重増加によって Al 自体の延性破壊が推定される。一方、Fig. 3(a)の 2nine-40 MPa 材では界面欠陥の顕著な鈍化は見られなかった。本論文では、界面欠陥成長領域の長さを臨界距離と定義し、その値はき裂進展開始の際 2nine-40 MPa 材と 5nine-20 MPa 材においてそれぞれ約 200 μm と 330 μm 程度であった。Fig. 4 に破断面の SEM 写真を示した。Fig. 4(a)は 2nine-40 MPa 材の Al 側であり、これに対するサファイヤ

側では Al の接痕が見つからなかったことから界面はく離のみによってき裂が進んだことが分かった。一方、5nine-20 MPa 材の場合はサファイヤ側で Al の接痕が観察され、界面欠陥の成長および残った Al の破壊によってき裂が進むことが明らかになった(Fig. 4(b))。すなわち、延性金属/セラミックス接合体でよく知られているように、主き裂先端は鈍化しているため主き裂自体の進展は不可能である¹⁵⁾。代わりに、界面欠陥が成長し、合体することによって見かけ上主き裂が進展した。また、2nine-40 MPa 材の場合は矢印で表示される直径 10 μm 程度の界面欠陥は成長しないことが観察され、これを成長が生じない臨界欠陥大きさとした。しかしながら、5nine-20 MPa 材の場合は破断面から臨界欠陥大きさの区別はできなかった。以上のように Al 2nine 接合体と Al 5nine 接合体で異なる破壊機構は、AE 原波形解析による微視破壊の非破壊評価によっても確認できた¹⁶⁾。

4.2 主き裂の応力場による界面欠陥成長のクライテリオン

主き裂の前方に存在する界面欠陥は、外部荷重を加えたとき主き裂の応力場によって与えられる応力集中を受ける。特に、本研究のような異材界面上のき裂は負荷様式によらず弾性係数の差に起因して必ず混合モード破壊を示すことが知られている。そこで今節と次節においては前節の観察を通して

Fig. 3 *In-Situ* observation of crack propagation through transparent sapphire (CSLM $\times 700$).
(a) Al 2nine-bonded at 40 MPa, (b) Al 5nine-bonded at 20 MPa.

Fig. 4 SEM micrographs of fracture surface.
(a) Al side of Al 2nine-bonded at 40 MPa ($\times 1000$), (b) Sapphire side of Al 5nine-bonded at 20 MPa ($\times 500$).

き裂進展挙動を支配することが明らかになった，界面欠陥の混合モード成長クライテリオンを破壊力学的手法で考察を行った。

まず，界面欠陥がないときの主き裂による応力場を有限要素法で計算して，主き裂から任意の距離にある界面欠陥での応力拡大係数を求めた．Fig. 5 は 2nine-40 MPa 材の臨界距離 200 μm に位置する貫通型および円盤型界面欠陥の半径と応力拡大係数の関係をプロットしたものである．接合界面で観察される最大欠陥大きさである直径 30 μm の範囲では，両者がほぼ一致する傾向を示すことが分かる．本論文では 2 次元解析を行うため，以下では貫通型界面欠陥を対象とした。

界面欠陥の臨界応力拡大係数を求めるためには，先ほどの臨界距離，臨界欠陥大きさに加えて最大欠陥大きさのデータが必要となる．Fig. 6 は界面欠陥の大きさ分布の測定結果である．2nine-40 MPa 材と 5nine-20 MPa 材において，最大欠陥大きさはそれぞれ約 30 μm と 100 μm 程度と観察された．界面欠陥成長に関する特性値を Table 2 にまとめた．Fig. 7 には種々の界面欠陥の大きさに対する，主き裂先端からの距離での応力拡大係数を示した．2nine-40 MPa 材の場

合(Fig. 7(a))，臨界欠陥大きさである半径 5 μm の界面欠陥を用いて臨界応力拡大係数は約 0.3 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ と認められた．また，接合まま材の最大欠陥大きさ約 30 μm の欠陥は，こうして求めた臨界応力拡大係数を用いた場合界面欠陥の成長領域は約 200 μm になって，除荷試験片で実験的に観察された臨界距離と一致した．5nine-20 MPa 材の場合にも，観察された臨界距離約 330 μm および最大欠陥大きさ約 100 μm を用いて 2nine-40 MPa 材とほぼ等しい臨界応力拡大係数が得られた(Fig. 7(b))．

一方，接合まま材の界面欠陥の高さは接合前の Al の表面粗さおよび接合まま材の界面欠陥観察によって 1 μm 以下であった．成長が止まったところの界面欠陥の高さは約 5 μm 以上であった．一旦成長し始めた界面欠陥が，ある程度の大きさで成長が止まって未接合部に囲まれた Al 自体の破壊に移るのは，界面欠陥の塑性変形によるき裂の鈍化に伴う応力拡大係数の減少のためであると考えられる．

以上で用いた式(1)は弾性解析による厳密解であるが，供試材 Al は弾塑性変形を有するためそれを適用した場合には妥当性が問われる．しかしながら，本研究のはく離試験において破壊荷重での von Mises 条件による降伏領域は，臨界距離より小さかったので，式(1)を用いることは十分妥当であると考えられる．

4.3 界面欠陥の応力特異性および J 積分による界面欠陥成長のクライテリオン

界面欠陥成長をモデル化して Fig. 2 で示したメッシュを構成し，界面欠陥部の応力特異性の計算を試みた．界面欠陥の要素は臨界距離の位置に最大欠陥大きさで構成された．SSV モデルの仮定に基づいて，接合界面に沿う Al 側の弾性層は母材 Al と同じ弾性係数およびポアソン比を有するものとした．このような弾性層の導入は材料に存在する転位の平均間隔を考慮した計算結果から行われた¹³⁾．また，延性材料のき裂先端での塑性鈍化を伴わない応力集中を説明する目的で行われてきた^{14,15)}．弾性層の厚さ h は 0.1~1 μm 程度と報告されている．本研究の観察からも主き裂の鈍化は観察されたが，界面欠陥はある大きさまでは成長することが明らかとなった．予備計算として界面欠陥を入れない条件で，弾

Fig. 5 Stress intensity factor for interfacial defects of Al 2nine located at the critical distance of 200 mm.

Fig. 6 Distribution of interfacial defect size.

(a) Al 2nine-bonded at 40 MPa, (b) Al 5nine-bonded at 20 MPa.

性層の厚さを $1\ \mu\text{m}$ と $10\ \mu\text{m}$ にしたときの応力状態を調べた。その結果、大差のない値が得られたことおよび界面欠陥を導入する際要素構成の便宜上弾性層の厚さを $10\ \mu\text{m}$ とし

て計算を行った。

上述の方法で求めた応力場を式(2)に代入し、その極限值として界面欠陥の応力拡大係数を求めた(Fig. 8)。臨界応力拡大係数は両接合体とも破壊荷重($L_{\text{ext}}/L_f=1.0$)で $0.1\sim 0.2\ \text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ 程度に計算された。Fig. 9 には界面欠陥近傍で行われた J 積分の結果を示した。外部荷重の増加に伴いエネルギー解放率は高くなる。一方、同じ荷重の場合はある大きさの界面欠陥のところで最大値を示すことが分かった。同様な傾向が金属と剛体との接合体を想定した引張試験をモデル化した計算で報告されている¹⁵⁾。最大欠陥大きさと破壊荷重から得られる臨界エネルギー開放率は $1.3\sim 2.3\ \text{J}/\text{mm}^2$ 程度となった。サファイヤ単体の破壊エネルギーは $12\ \text{J}/\text{mm}^2$ でありこの値より大きいので、界面欠陥の成長は界面に沿う経路を持つ界面はく離であることを意味する。また、

Table 2 Characteristic values for the determination of critical stress intensity factor.

	Al 2nine-bonded at 40 MPa	Al 5nine-bonded at 20 MPa	Measurement
Critical distance distance within which the growth of interfacial defect was observed	200 μm	330 μm	<i>in-situ</i> specimen Video-Microscope
Critical defect size (radius) limit size not to grow	5 μm		Fracture surface SEM
Maximum defect size (radius)	15 μm	50 μm	as-bonded CSLM

Fig. 7 Determination of critical stress intensity factor for the growth of interfacial defect (at $L_{\text{ext}}=L_f$) by Method I. (a) Al 2nine-bonded at 40 MPa, (b) Al 5nine-bonded at 20 MPa (where, L_{ext} : external load, L_f : fracture load).

Fig. 8 Derivation of stress intensity factor from the stress distribution near the interfacial defect by Method II. (a) Al 2nine-bonded at 40 MPa, (b) Al 5nine-bonded at 20 MPa (where, L_{ext} : external load, L_f : fracture load).

Fig. 9 Calculation of J -integral by VCEM (Virtual Crack Extension Method) for interfacial defects located at critical distance. (a) Al 2nine-bonded at 40 MPa, (b) Al 5nine-bonded at 20 MPa (where, L_{ext} : external load, L_f : fracture load).

Fig. 10 Conversion of calculated J -integral value into stress intensity factor. (a) Al 2nine-bonded at 40 MPa, (b) Al 5nine-bonded at 20 MPa.

異材界面の応力拡大係数とエネルギー解放率は次式のように関係付けられる¹⁷⁾。

$$G = \frac{1}{16 \cosh^2(\varepsilon\pi)} \left(\frac{\chi_1 + 1}{\mu_1} + \frac{\chi_2 + 1}{\mu_2} \right) (K_1^2 + K_2^2) \quad (3)$$

Fig. 9 の破壊荷重 ($L_{ext}/L_f=1.0$) でのエネルギー解放率を式 (3) によって応力拡大係数に換算し、その結果を Fig. 10 にプロットした。これによって臨界応力拡大係数は、2nine-40 MPa 材 (Fig. 10(a)) では最大欠陥大きさの 30 μm で約 0.4 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$, 5nine-20 MPa 材 (Fig. 10(b)) では最大欠陥大きさの 100 μm で約 0.5 $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ と得られた。方法 I の界面欠陥を要素構成に入れなかった方法の結果と比べると、方法 II の界面欠陥の応力特異性から計算した値は小さく J 積分から換算した値は大きいことが指摘される。これは SSV モデルによる弾性層の外側にある Al 母材の塑性変形の影響が原因であると考えられる。また、主き裂と界面欠陥の相互

作用 (interaction) を考慮しない応力法より、その影響を考慮できるエネルギー法 (J 積分) の方が有効であると考えられる。

5. 結 論

接合条件を変化させ、接合面積率および界面欠陥構造を制御した Al/サファイヤ常温接合体のはく離試験と FEM 解析を行い、以下の知見が得られた。

(1) 2nine-40 MPa 接合体は界面欠陥の成長のみで、5nine-20 MPa 接合体は界面欠陥の成長および Al 母材の延性破壊によってき裂は進展する。また、90%以上の接合面積率を有する 5nine-40 MPa 接合体の場合にはき裂進展は起こらなかった。

(2) き裂進展を支配する因子は界面欠陥の成長有無であることが明らかになった。

(3) 有限要素法による数値解析結果と実験観察との比較を行い, 異材界面に存在する界面欠陥成長クライテリアを導出できた。

(4) 常温接合の応用分野として有望な表面実装のウェーハボンディングのような弾性体の界面破壊に関しては, 本研究で行った解析手法が有効であることが示された。

最後に本研究は日本学術振興会未来開拓学術研究推進事業(JSPS-RFTF96P00404)の一環として行われたことを記し謝意を表する。

文 献

- 1) R. Yuuki and J. Q. Xu: Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng., **60**(1994), 2544-2552.
- 2) A. G. Evans and B. J. Dalgleish: Acta metall. mater., **40**(1992), s295-s306.
- 3) T. Suga, Y. Takahashi, H. Takagi, B. Gibbesch and G. Elssner: Acta metall. mater., **40**(1992), S133-S137.
- 4) S. V. Pepper: J. Appl. Phys., **47**(1976), 801-808.
- 5) Y. Takahashi, H. Takagi, T. Suga, B. Gibbesch, G. Elssner and Y. Bando: J. Japan Inst. Metals, **9**(1991), 1002-1010.
- 6) Y. J. Park, M. Enoki, T. Suga and T. Kishi: J. Japan Inst. Metals, **63**(1999), 1485-1489.
- 7) R. Yuuki, J. Q. XU and Y. Mutho: J. Japan Inst. Metals, **60**(1994), 2544-2552.
- 8) G. E. Beltz and J. S. Wang: Acta metall. mater., **7**(1992), 1675-1683.
- 9) S. T. Raveendra and P. K. Banerjee: Engineering Fracture Mechanics, **40**(1991), 89-103.
- 10) 結城良治: 界面の力学, 培風館, (1993).
- 11) G. C. Sih: *Handbook Stress Intensity Factors*, Institute of Fracture and Solid Mechanics, Lehigh University, (1973).
- 12) D. M. Parks: Int. J. Fract., **10**(1974), 487-502.
- 13) Z. Suo, C. F. Shih and A. G. Varias: Acta metall. Mater., **41**(1993), 1551-1557.
- 14) A. G. Varias, Z. Suo and C. F. Shih: J. Mech. Phys. Solids, **39**(1991), 963-986.
- 15) M. Y. He, A. G. Evans and J. W. Hutchinson: Acta mater., **44**(1996), 2963-2971.
- 16) Y. J. Park, M. Enoki, T. Suga and T. Kishi: Proc. 9th International Symposium on Nondestructive Characterization of Materials, ed by R. E. Green, Jr., Sydney in Australia, (1999), pp. 21-26.
- 17) B. Malyshev and R. Salganik: Int. J. Fract. Mech., **1**(1965), 114-119.