Al/サファイヤ常温接合体の引張り特性および界面欠陥成長の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. 8 (2000), pp. 684-690
© 2000 The Japan Institute of Metals

Tensile Properties and Analysis of Growth of Interfacial Defects by Finite Element Method in Al/Sapphire Joint Fabricated by SAB Process

Young Jo Park*, Manabu Enoki, Tadatomo Suga and Teruo Kishi

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

The generation of interfacial defects is an unavoidable problem in the room temperature bonding. For an application of this technology, it is important to elucidate the effect of interfacial defects on fracture behavior. Fracture mechanism and criterion were investigated using the Al/Sapphire joint known for easy control of bondability. The findings of this paper are summarized as follows. (1) Bondability at peripheral region appeared to be superior to that of central region, which was caused by higher compressive stress during the bonding. (2) The results showed clearly that the growth of interfacial defects is the dominant factor for the crack propagation and the location of fracture origin showed good agreement with the prediction made by the observation of as-bonded interface and by the calculation of stress field using FEM simulation. (3) A critical stress intensity factor for the growth of interfacial defect was also estimated by the analysis of FEM calculation and experimental observation.

(Received February 21, 2000; Accepted July 11, 2000)

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

1. 緒 言

電子デバイスの高機能化や高精度化に伴い、その組立、実装における低温・低圧力化は重要な課題となっている^{1,2)}。従来の一般化されている接合法である高温接合の場合、熱ひずみや熱応力の発生、脆い反応層の形成、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る³⁻⁵⁾。一方、半導体製造技術や表面分析技術の進展に伴って、超高真空を積極的に利用する加工技術が普及してきた結果、接合分野でも機能材料の複合化など実製品への適用を目指した技術の確立が望まれるようになってきた。表面活性化常温接合法(Surface Activated Room Temperature Bonding: SAB)はその一つで、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⁶⁻⁸⁾。期待される応用例としては、電子デバイス、パッケージングなどを含むMEMS(Micro Electronic Memory System)、真空装置のシーリングパーツ、また寿命を終えた後破棄されるような一回の使用ではなく、接合と分離が自由自在な材料のリサイクルを考えた、可逆的 inter-connection⁹⁾等の分野が考えられる。

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てきたため、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¹⁰⁻¹⁴⁾、近年になってようやく接合体の接合強度⁶⁾などが報告されている。常温・低加圧・短時間といった常温接合プロセスの特徴から、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^{15,16)}、多くの場合界面欠陥(未接合部)は避けられない。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は、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。この場合、金属/セラミックスの異種材接合体で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^{17,18)}。異種材接合体で考慮すべき問題として、同じく弾性係数の差に起因する変形拘束による多軸応力状態が知られている¹⁹⁻²²⁾。

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/サファイヤ接合体を対象として、先ほど指摘した異種界面の問題に着目し、欠陥を有する常温接合体の破壊源の位置、破壊機構および破壊クライテリオンの導出を試みた。前報のはく離試験²³⁾に続き、本報では引張り試験と有限要素法による応力場解析を行い、はく離試験による結果との比較検討も行った。

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

2. 試験片の作製および引張り試験

2.1 常温接合法による試験片の作製

供試材として機械研磨および電解研磨した純度99.999%の多結晶 Al と c-面研磨されたサファイヤを用いた。Al は圧延板材から直方体に切り出して、接合性および等方性を得る目的で400°Cで30 min 焼鈍を施した。また、接合体界面部の応力場解析を容易にするため直方体の一端を円柱型に加工して接合面とした。一方、サファイヤの方は厚さ2 mmの板を用いた。材料の形状、寸法および力学特性は Table 1 に示した。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軸方向の圧力を加え接合体を作製した。接合時間は10 min、接合圧力はAlの降伏応力である30 MPaより低い20 MPaと、より高い40 MPaの二つとした。以下それぞれ20 MPa接合体、40 MPa接合体と表記する。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¹⁶⁾に報告した通りである。

2.2 引張り試験

引張り試験は直径4 mmの穴を開けたストッパーに接合体のサファイヤを引っ掛けAlを軸方向に引っ張る方法で行った(Fig. 1)。負荷速度は0.1 mm/minと一定にした。この際破壊過程を透明なサファイヤ側からのビデオマイクロスコープで収録し、破壊源の位置および破壊荷重を測定した。Alの円柱型以外の部分はSUS304タブを全体に付けて試験を行った。応力場の数値シミュレーションの際、Al側の要素は円柱型部分だけで行った。

3. 圧縮変形および引張り負荷時の界面部応力場の数値計算

3.1 圧縮変形のシミュレーション

弾性体と弾塑性体との常温接合の場合、接合面積率は弾塑性体側の変形能に強く依存することが著者らによって明らかになっている¹⁶⁾。従って、円柱型Alが平板サファイヤに対して接合圧力で押されると、接合界面において半径方向に生じる応力場によって欠陥構造も半径方向に変わることが予測

できる。シミュレーションのメッシュは4節点軸対称要素で構成されており、サファイヤは弾性変形、Alは加工効果を示す弾塑性変形するものとした(Table 1)。異材間の圧縮負荷による界面のすべり問題は摩擦形式、摩擦係数および着脱条件を考慮する必要がある。本研究では、摩擦力は垂直力と相対表面速度に支配されるCoulombモデルを仮定し、摩擦係数は金属とセラミックス間の理論値である1を用いた²⁴⁾。また、すべりによる節点の着脱を判定する分離力を与えるパラメータである相対表面速度係数は相対表面速度の100分の1とした。

3.2 引張り負荷による界面欠陥の応力特異性の計算

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。実験で測定された破壊荷重での界面欠陥の応力拡大係数の導出は二つの段階で行った。まず、界面欠陥のない完全接合体において外部荷重による界面部の応力場を計算した。次に軸対称の中心に界面欠陥を導入した要素を構成し、実験の観察で判定された破壊源の位置での応力が、界面欠陥を導入した中心部にかかるように境界条件を与えた。即ち、予備計算を行い中心部が破壊応力と一致する外部荷重を境界条件とした。これによって求めた界面欠陥の応力特異性を解析して界面欠陥の成長クライテリオンである臨界応力拡大係数を導出した。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(Z. Suo, C. F. Shih and A. G. Varias)モデルによる弾性層を導入した^{19,25)}。要素の数は最大で4950個、要素の一番短い長さは界面欠陥の大きさの約300分の1であった(Fig. 3)。

Table 1 Properties and size of materials.

Al	Sapphire
Polycrystal 99.999%	Single crystal (c-plane)
Specimen size	Specimen size 5 mm × 10 mm × 2 mm
total length 14 mm	Treated as elastic
cylinder part $\phi=3$ mm, $h=4$ mm	$E=420$ GPa
Yield stress 30 MPa	$\nu=0.2$
Work-hardening ($\sigma=ke^n$)	
$k=179$ MPa	
$n=0.4$

Fig. 1 Schematic illustration of tensile test.

Fig. 2 Schematic illustration of SSV model for the calculation of stress state near the interfacial defect.

Fig. 3 Finite element model for a bimaterial joint.
(a) without interfacial defect, (b) with interfacial defect.

Fig. 4 Lasermicroscope observation of as-bonded joint.
(a) bonded at 20 MPa, (b) bonded at 40 MPa.

4. 結果および考察

4.1 接合体の界面欠陥構造の観察および圧縮変形のシミュレーション結果

透明なサファイヤ側からの観察による接合界面の欠陥構造を Fig. 4 に示した。Fig. 4(a) は降伏応力以下で接合された 20 MPa 接合体であり、大きさ $10\ \mu\text{m}$ から $100\ \mu\text{m}$ 程度までの界面欠陥が規則的に分布している。これに対して、Fig. 4(b) は降伏応力以上での 40 MPa 接合体の場合は、電解研磨の選択性による粒界と接合圧力によるすべり線を除く領域では良い接合性が認められた。レーザー顕微鏡観察によるコントラストの違いによる接合性を判断した。5 カ所での平均を取り、接合面積率はそれぞれ 0.6 と 0.9 程度に測定された。接合面積率の数値シミュレーションによっても測定値と一致する値が得られ、界面欠陥構造の制御が可能であることが示されている¹⁶⁾。

ところで、接合面積率の低い 20 MPa 接合体では試験片の中心部と周辺部が異なる欠陥構造を示すのが観察された。Fig. 5 は 20 MPa 接合体の周辺部を観察したもので、Fig. 4(a) の界面欠陥を多く有する中心部に比べてほぼ欠陥のな

Fig. 5 Enhanced bonded area at the vicinity of periphery of bonded at 20 MPa.

いことが分かる。この半径方向の接合性の不均一の原因としては、接合圧力を加えたとき周辺部で高い応力場が生じることが考えられる。これを定量的に求めたシミュレーション結

果を Fig. 6 に示した. 図で横軸は Al 中心部から半径方向の距離であり, 縦軸は界面の Al 側の積分点における von Mises 応力を降伏応力で正規化した値である. 平らなサファイヤに対して, Al の表面が平らな場合とのこぎり状の場合に接合圧力 20 MPa および 40 MPa の場合について計算を行った. 20 MPa を与えたときの値は 1 より小さいものの, 周辺部で高い分布を有することから, この部分では塑性変形が中心部より起こりやすいことが推定された. また, 実際の表面条件に近いと考えられる, 粗さを有する場合の方が平らな場合より中心部の接合性が高くなると予測された.

4.2 引張り負荷による接合体の破壊挙動

引張り試験における伸び率-荷重曲線を Fig. 7 に示した. 20 MPa 接合体は伸び率が低い段階で破壊に至った. 破断面の観察から界面欠陥を破壊源とする典型的なディンプル延性破壊機構によることが分かった. 一方, 40 MPa 接合体の場合は最高荷重 S_u で Al 母材にくびれが生じ, 接合体の強度

は Al 自体の強度に支配された. 図の縦軸を応力ではなく荷重で表した理由は, 不完全接合のため実際の界面部応力を一義的に決められないからである. Fig. 8 の (a) と (b) は 20 MPa 接合体のビデオマイクロスコブによる, Fig. 7 に記した最大荷重 A 点と破壊進行中 B 点に相当する荷重での破壊の様子である. 白いコントラストは界面欠陥の成長部分であり, 黒いコントラストはまだ接合されている部分である. 図で O1, O2 は第 1 破壊源, 第 2 破壊源であり, 破壊の進展方向は矢印で表した. はく離試験²³⁾および AE 原波形解析結果²⁶⁾から明らかになったように, 破壊開始の前に界面欠陥の成長が先行することが観察された. また, 破壊源の位置は界面欠陥が多く分布している中心部ではなく, やや周辺部寄りであることが判明した. そこで, 引張り荷重を加えたときの応力状態を調べ, その解明を試みた.

Fig. 9 は外部荷重が Al の降伏応力以下の場合 (25 MPa), 降伏応力以上の場合 (40 MPa) および破壊荷重を Al の全面積で割って得られた見かけ上の破壊応力 (45 MPa) において, 完全接合体に対する引張り応力と平均応力の分布の計算

Fig. 6 Radial distribution of equivalent von mises stress for the compression of deformable body against plane rigid body. (σ_{evm} : equivalent von mises stress, σ_y : yield stress)

Fig. 7 Comparison of load-elongation behavior of joints bonded at 20 MPa and 40 MPa. Joint bonded at 20 MPa fractured at the interface and joint bonded at 40 MPa showed necking at bulk of Al.

Fig. 8 Video-microscope observation of fracture origin. (a) point A at Fig. 6 (load=310 N), (b) point B at Fig. 6 (load=300 N).

Fig. 9 Distribution of tensile and mean normal stress at the interfacial region developed by external tensile loading. (a) tensile stress, (b) mean normal stress.

結果である。両方とも界面端近傍で最大値を示し、さらに破壊が観察された界面部の応力状態を数値でプロットした。図(a)と図(b)はそれぞれ接合体の中心から半径方向の引張り応力と平均応力をAlの降伏応力で正規化した値を示したものである。両方とも中心部で低く界面端近傍で最大値を有し、見かけ上の破壊応力である外部負荷45 MPaのとき降伏応力の約2倍になっている。実際観察された破壊源の位置は応力場の最大値のところより内部側であったが、これは前節で考察したように周辺部には界面欠陥がほぼ存在しない完全接合が得られていることが考えられる。一方、弾性率の高い材料に拘束され塑性変形しにくい状況の場合、柔らかい材料の方に大きい多軸応力状態が発生する。この際、平均応力/降伏応力で表される応力多軸度の値が臨界値に達すると、低ひずみを示すディンプル延性破壊が生ずることが知られている^{19,21)}。臨界多軸応力度は両材の力学特性および負荷方式によって決まる状態量であるが、一般に約4程度が報告されている²²⁾。図(b)から本研究の接合体では多軸応力度が最大で約2程度であるため、完全接合体に近い40 MPa接合体では母材の塑性不安定による破壊が多軸応力による破壊に優先したことが説明できた。

4.3 界面欠陥の応力特異性による界面欠陥成長のクライテリア

破壊源の位置と破壊荷重のデータを用いて界面欠陥成長の臨界応力拡大係数の導出を試みた。この際、軸対称要素で界面欠陥を中心に持つことによって実際の形状である円盤型き裂の解析ができた。破壊源の位置はビデオマイクロスコープ観察から中心から約1 mmの距離であり、見かけ上の破壊応力(45 MPa)がかかったとき破壊源の界面部応力は40 MPa程度と計算された(Fig. 9(a))。そこで、中心部が40 MPaになるように境界条件を求めて、界面欠陥を導入した要素構成で界面欠陥近傍の応力場を得た。その結果を

Fig. 10 Calculated tensile and shear stress near the interfacial defect tensile stress normal to the interface without interfacial defect is set up to 40 MPa.

Fig. 10に示した。引張り成分は界面欠陥の先端で特異性を持つことが分かる。また、界面欠陥から十分遠いところでは40 MPa程度になり、与えた境界条件の検証ができた。一方、せん断成分はほぼゼロに近くモードIの負荷様式を見せた。界面欠陥の応力特異性を次式を用いて近似的に界面欠陥の応力拡大係数を求めた。

$$\begin{aligned} K_1 &= \lim_{r \rightarrow 0} \sqrt{2r} (\sigma \cos Q + \tau \sin Q) \\ K_2 &= \lim_{r \rightarrow 0} \sqrt{2r} (\tau \cos Q - \sigma \sin Q) \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、 K_1, K_2 はそれぞれモードI、モードIIの応力拡大係数であり、 $Q = \varepsilon \log(r/(r+2a))$ である。 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、 $\varepsilon = (1/2\pi) \ln((1-\beta)/(1+\beta))$ のバイメタル定数である。近似の結果をFig. 11に示した。 K_1 と K_2 が r がゼロの近傍ではそれぞれ $0.1 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ とゼロ程度が得られ、ほぼモード

Fig. 11 Derivation of stress intensity factor from the stress field near the interfacial defect. Tensile stress normal to the interface without interfacial defect is set up to 40 MPa.

Fig. 12 Tensile to shear stress ratio developed at the interface.

I による破壊になっている。

しかしながら、混合モードの割合は界面欠陥の位置によって変わるので、第一段階での応力場を用いて混合モードの補正を試みた。モードⅡの成分がゼロになるのは界面欠陥を中心に設けたことから予想される結果であり、実際の破壊源の位置においては混合モードの割合が異なっていると推定された。そこで、界面部における引張り応力に対するせん断応力の比を計算した (Fig. 12)。破壊源の位置である中心から 1 mm の距離の前後では、その比は 2 と 3 の間にあることが図から分かる。実際の臨界応力拡大係数は上記のせん断応力によるモードⅡの成分を考慮して得られる。しかしながら、用いた試験片はほぼ全界面に渡って欠陥を有しているため、実際の応力場はそれに影響を受け完全接合を仮定した計算とは異なる。従って、接合面積率の影響および混合モードをより正確的に解析するためには、3 次元解析が必要であると考え

えられる。本研究において、界面破壊を示し解析に用いた接合率 0.6 程度の 20 MPa 接合体は極端な場合であり、実際にはより接合率の高い材料が作製可能であり、その場合は本解析による誤差は大幅に減少することが推測される。そのため予き裂の導入および臨界距離、臨界欠陥大きさ、最大欠陥大きさなど特性値²³⁾の測定が必要なく離試験による解析と比べ、この論文で提案したアプローチ法は有効であると言える。

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引張り試験および FEM 解析を行い、以下のことが明らかになった。

(1) 試験片の中心より周辺部で接合面積率が大きいことが観察された。その原因は接合圧力がかかったとき、中心部より周辺部で高い圧縮応力がかかるためであり、それは計算によって確かめられた。

(2) 引張り試験時の連続観察から破壊源の位置は試験片の中心から 1 mm 程度の距離であった。これは有限要素法による界面部応力場の計算および接合体の界面欠陥構造のかわいによって決まり、予想できる結果であった。

(3) 引張り試験および有限要素法による数値解析を行うことにより、異材界面に存在する界面欠陥成長クライテリアの導出方法を提案できた。

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) T. Suga, T. Fujiwaka and G. Sasaki: 9th Eur. Hybrid Microelec. Con., (1994), 314-321.
- 2) Y. Kashiba and K. Machida: Journal of JWS, **59**(1990), 100-104.
- 3) A. Bartlett and A. G. Evans: Acta metall. mater., **41**(1993), 497-504.
- 4) H. P. Kirchner, J. C. Conway and A. E. Segall: J. Am. Ceram. Soc., **70**(1987), 104-109.
- 5) Y. Iino and G. Elssner: Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng., **53**(1987), 33-38.
- 6) T. Suga, Y. Takahashi, H. Takagi, B. Gibbesch and G. Elssner: Acta metall. mater., **40**(1992), S133-S137.
- 7) H. Funakubo and M. Akaike: J. Japan Inst. Metals, **46**(1982), 935-943.
- 8) J. Ruge: Journal of JWS, **47**(1978), 402-408.
- 9) N. Hosoda, L. Yang, Y. Kyogoku and T. Suga: The journal of Japan Institute for Interconnecting and Packaging Electronic Circuits, **11**(1996), 510-513.
- 10) S. V. Pepper: J. Appl. Phys., **47**(1976), 801-808.
- 11) H. Conrad and L. Rice: Metall. Trans., **1**(1970), 3019-3029.
- 12) W. P. Gilbreath: ASTM Spe. Tech. Publ., **431**(1967), 128-148.
- 13) D. H. Buckley: ASTM Spe. Tech. Publ., **431**(1967), 248-271.
- 14) D. V. Keller: Wear, **6**(1963), 353-365.
- 15) M. M. Chaudhri: ImechE, **C158/87**(1987), 1003-1012.
- 16) Y. J. Park, M. Enoki, T. Suga and T. Kishi: J. Japan Inst. Metals, **63**(1999), 1485-1489.
- 17) R. Yuuki: KAIMENNORIKIGAKU (Baihuukan), (1993), 11-48.
- 18) D. B. Bogy: J. Appl. Mech., **35**(1968), 146-154.
- 19) M. Y. He, A. G. Evans and J. W. Hutchinson: Acta mater.,

- 44(1996), 2963-2971.
- 20) M. C. Tolle and M. E. Kassner: *Acta metall. mater.*, **43**(1995), 287-297.
- 21) A. G. Varias, Z. Suo and C. F. Shih: *J. Mech. Phys. Solids*, **39**(1991), 963-986.
- 22) V. Tvergaard: *Acta metall.*, **39**(1991), 419-426.
- 23) Y. J. Park, M. Enoki, T. Suga and T. Kishi: *J. Japan Inst. Metals*, in press.
- 24) T. Suga: *Materia Japan*, **29**(1990), 944-947.
- 25) Z. Suo, C. F. Shih and A. G. Varias: *Acta metall. Mater.*, **41**(1993), 1551-1557.
- 26) 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.