

レーザー誘起表面微細周期構造を有する金属材料の常温接合特性

千葉大学大学院工学研究科 人工システム科学専攻機械系コース

助教 松坂壮太

(平成 23 年度一般研究開発助成 AF-2011214)

キーワード：レーザー誘起表面微細周期構造(LIPSS), 銅, 表面活性化, 常温接合

1. 研究背景と目的

近年、電子デバイスの高機能・高密度化が進んでおり、その実装工程において素子等への負担を軽減するため、低温・低応力下での接合方法の確立が求められている。その一例として、Fig. 1 に示すように、高真空中において試料表面の汚染層を除去し活性化させることで、常温で接合を可能とする技術が提案されている。しかし、常温においては、金属の変形能が低く、また接合界面における原子の拡散が起こりにくいことから、十分な接合面積・強度が得られないことが知られている。金の細径ワイヤ同士の常温接合を行った先行研究¹⁾によれば、ワイヤ径が微細になるにつれて、凝着力の影響が顕著になり接合率が上昇すること、また接合界面における原子の拡散が促進され、接合強度が上昇することが示されている。したがって、あらかじめ接合面全体に微細な構造物を形成することが可能となれば、常温付近の比較的低温環境下においても接合面積や強度の向上が期待できる。

そこで本研究では、常温接合の前処理として、超短パルスレーザー照射によって形成されるレーザー誘起微細周期構造(Laser-Induced Periodical Surface nano-Structure: LIPSS)の利用を提案した。このような微細周期構造を有する金属表面に対し、高真空中でのアルゴンイオンビーム照射による表面活性化を行い、2 つの表面間の常温接合性を調査した。

2. 実験方法

2.1 接合面への LIPSS 形成

レーザー光源としてパルス幅 150 fs、波長 775 nm のフェムト秒レーザー(Clark-MXR 社製 CPA-2110i)を使用し、試料表面に垂直にレーザー光を照射しながら試料ステージを移動させることにより、接合面全面に LIPSS を形成した。また、供試試料として銅棒(15 mm × 15 mm × 0.010 mm)と銅箔(φ10 mm × 6.6 mm)を用いた。Table 1 にレーザー照射条件、ステージ走査条件を示す。

適切なレーザー照射条件として、ステージ走査速度：4 mm/s、スキャンピッチ：30μm、レーザーフルエンス：0.8

J/cm² の条件を選択し、銅棒、銅箔の被接合面全面に LIPSS を形成した。形成した LIPSS の SEM 写真を Fig. 2 に、AFM による分析結果を Fig. 3 に示す。同図より形成した LIPSS は周期が約 700 nm、高さが約 150 nm であることが分かった。

2.2 常温接合

アルゴンイオンビーム照射による被接合面の活性化と、その後の接合を 1 つの容器内で実施可能な真空装置の製作を行った。製作した接合用真空装置の概略図を Fig. 4 に示す。同図に示すように、本装置は、真空排気系、試料洗浄用アルゴンイオン銃(PSP 社製電子振動型イオン源 ISIS300)、接合用加重機構、接合用治具などから構成されている。本装置の最高到達圧力は 1.0×10^{-6} Pa である。文献²⁾によれば、清浄な表面上に気体の単分子層が形成されるまでの時間 t は表面の気体補足率を最大値の 1 と仮定した場合、次式で表される。

$$t = 1.20 \times 10^{-5} \times (MT)^{0.5} / (Pr^2) \quad (1)$$

ここで、M: 分子量, T: 温度(K), P: 圧力(Pa), r: 分子半径(Å)である。温度を 300K とし、酸素分子を例として t を求めると、 1.0×10^{-6} Pa においては、活性化状態の接合面を約 130 s 間保つことが可能であると考えられる。なお、本接合装置において、接合圧力は約 2~15 MPa に制御可能である。

上述の接合装置と、被接合面へ LIPSS を形成した試料を用いて常温接合実験を行った。実験装置を 1.0×10^{-6} Pa まで排気後、超高純度アルゴンガスを

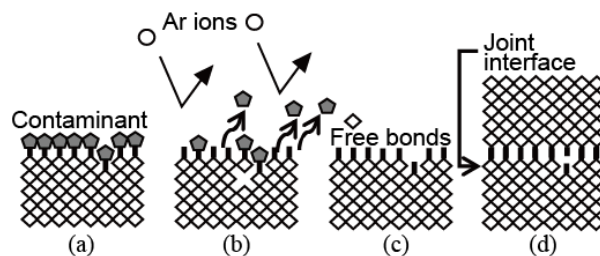


Fig. 1 Schematic illustration of bonding process. (a) Contaminated surface, (b) Surface cleaning, (c) Activated surface, (d) Bonding.

Table 1 Laser irradiation conditions

Pulse repetition rate [kHz]	1
Spot diameter [μm]	60
Fluence [J/cm^2]	0.7~1.5
Drive speed [mm/s]	1,2,3,4
Scanning pitch [μm]	10~60

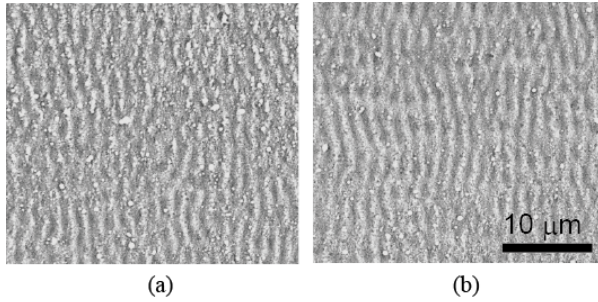


Fig. 2 SEM images of LIPSS formed on (a) Cu rod, (b) Cu film by femtosecond laser irradiation with scan speed of 2 mm/s, scanning pitch of 30 μm , fluence of 0.8 J/cm^2 .

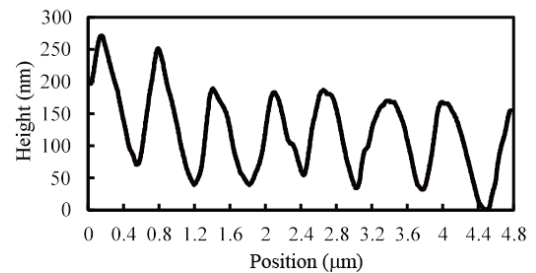
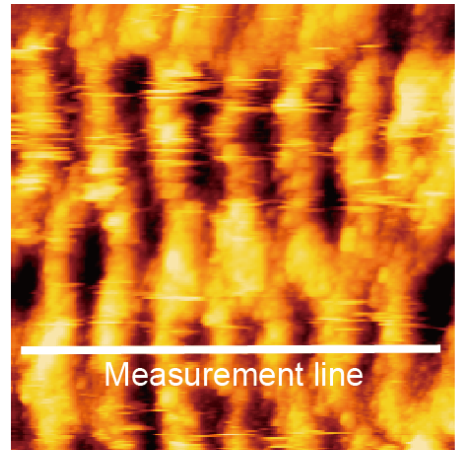


Fig. 3 AFM observation of cross-sectional profile of LIPSS.

8.6 $\times 10^{-3}$ Pa まで導入し、装置左右の治具に設置した被接合面(鏡面研磨した銅棒と銅箔)に対して、照射時間 1 h, 加速電圧 2.0 kV, 照射角度 45 deg.の条件でアルゴンイオンビーム照射を行った。その後、活性面に酸化膜等が再付着すると考えられる約 130 s 以内に、活性化面が重なるように試料を移動・回転し、上から接合治具によって 10 MPa の圧力を負荷し常温で接合を行った。また、常温で接合した試料の他に、これを熱処理した試料を作製した。これらの試料を引張試験に供するとともに、SEM による破断面の観察を行った。また、得られた接合面積・接合強度に対し、接合面の LIPSS の有無や熱処理の効果について比較・考察した。試料表面条件、熱処理条件を Table 2 に示す。

3. 結果と考察

まず、アルゴンイオンビーム照射後の試料に対して、AFM による形状測定を行い、ビーム照射が LIPSS 形状に与える影響を調査した。その結果、周期は 700 nm と照射前と変化はなかった一方、イオンビームのスパッタリング効果により、高さが 120 nm と約 30 nm 減少していた。

Fig. 5 に、各接合条件における銅棒側の破断面の代表的な外観写真を示す。同図から分かるように、熱処理を行わなかった試料(a), (a)'については、LIPSS の有無にかかわらず、明瞭な接合部は観察されなかった。一方、熱処理を行った試料について

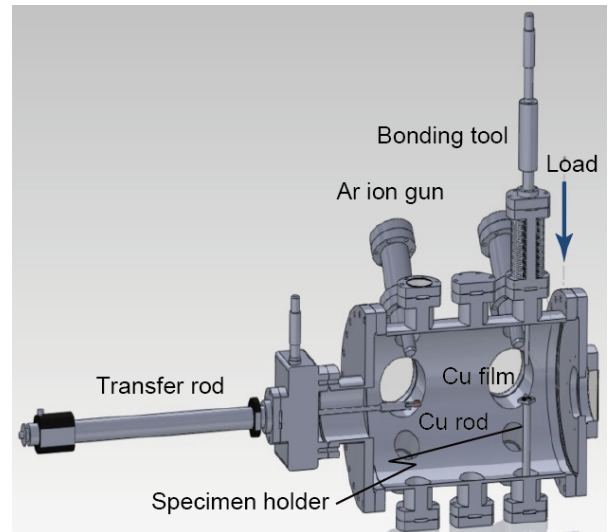


Fig. 4 Schematic illustration of bonding apparatus.

Table 2 Bonding conditions.

Condition	Cu rod	Cu film	Heat treatment
(a)	Without LIPSS	Without LIPSS	No heat treatment
(b)	Without LIPSS	Without LIPSS	473K, 1h
(c)	Without LIPSS	Without LIPSS	473K, 2h
(a')	With LIPSS	Without LIPSS	No heat treatment
(b')	With LIPSS	Without LIPSS	473K, 1h
(c')	With LIPSS	Without LIPSS	473K, 2h

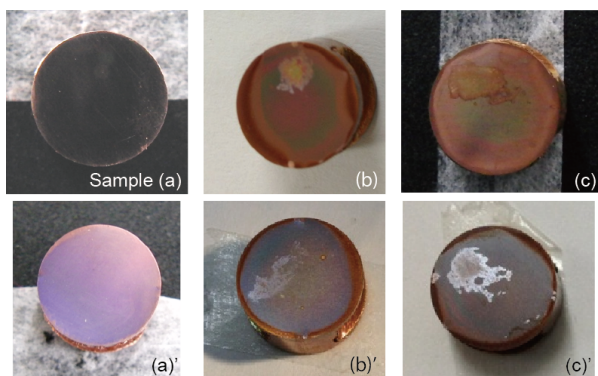


Fig. 5 Appearance of fracture surfaces of copper rods.

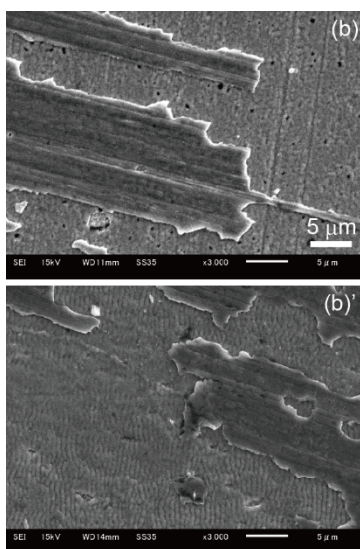


Fig. 6 SEM images of fracture surfaces of copper rods.

は、銅棒表面に存在する僅かなうねりや、接合ツールの面精度の不足により、試料全面での接合は困難であったものの、部分的には接合が達成されていた。熱処理前には明確な接合部が見られなかったにもかかわらず、熱処理後には接合部が形成されていることから、熱処理前の試料では清浄な面同士が密着してはいるものの、十分な強度を有した接合部は形成されておらず、熱処理に伴う原子拡散の促進と界面での残留応力の緩和³⁾により、強固な接合部が形成されたことが示唆される。Fig. 6は、Fig. 5中の(b)および(b)'の破断面のSEM観察像である。Fig. 6から分かるように、破断部にLIPSSの有無による違いは認められず、いずれにおいても銅棒（紙面奥）に接合された銅箔（紙面手前）の表面が剥がれたような破断形態が観察された。なお、今回の銅棒、銅箔の表面観察においては、それらの接合界面で破断したと思われる部位は観察されず、全てFig. 6のような破断形態となっていた。そのため、銅箔と銅棒間の真実接触領域については、観察を行うことができなかった。

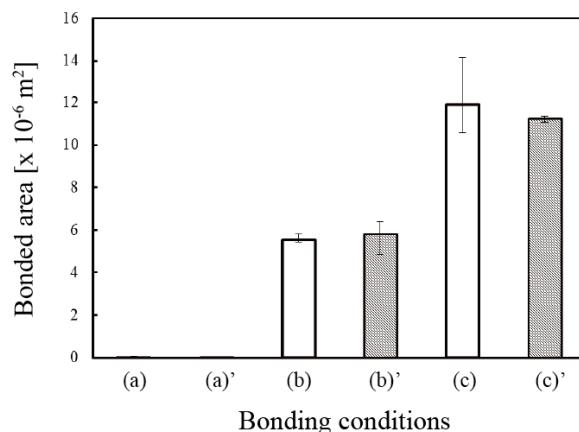


Fig. 7 Change in bonded area with surface conditions and heat treatment conditions.

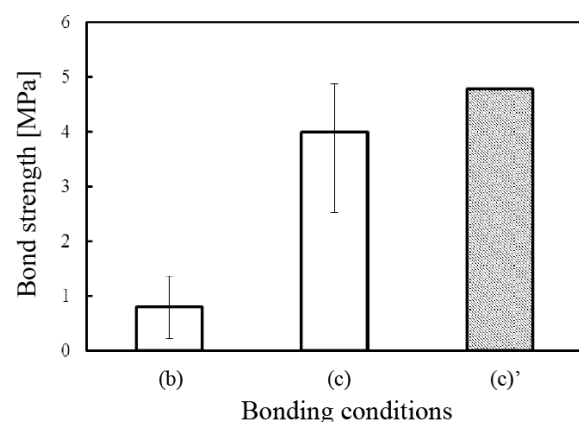


Fig. 8 Change in bond strength with surface conditions and heat treatment conditions.

Fig. 7に、Fig. 5の各試料から計測した見かけの接合面積を示す。同図より、LIPSSの有無による試料間の違いはほとんど見られず、熱処理時間に比例して接合面積が増加していることが分かる。Fig. 8は、各接合試料の引張試験の結果とFig. 7の見かけの接合面積から算出した引張強度である。なお、条件(a), (a)', (b)'の試料については、接合強度が低く、強度測定が困難であったため、ここには記載していない。Fig. 8より、200 K程度の熱処理により、接合強度が大きく向上していることが分かった。また、Fig. 7とFig. 8の(b)および(c)に着目すると、熱処理時間を2倍にすることによって接合面積が約2倍に増加する一方、接合強度は約5倍に増加している。このような接合部の強化は、前述のように熱処理による原子拡散の促進と、それに伴う内部残留応力の緩和に起因するものと考えられる。

なお、今回の実験結果においては、LIPSSの有無の接合強度への影響は小さかった。その原因として、接合部の破断が銅箔の表面近傍で生じており(Fig. 6)、銅棒と銅箔との界面強度が正確に測定で

きなかった点が挙げられる。今回の実験では、接合面間の接触を重視したため、片側の試料として銅箔を使用した。今後は十分な面精度を有する銅棒同士の接合を行うことによって、正確な界面強度を把握する必要がある。

4. 結論

本研究では、金属材料の常温接合において、被接合面への LIPSS の形成が接合性に与える影響について検討した。まず表面活性化と接合実験を 1 つの容器中で実施可能な真空装置の製作を行った。また、フェムト秒レーザを用いて表面に幅 700 nm、高さ 150 nm 程度の LIPSS を形成した銅棒と銅箔との常温接合実験を行った。接合試料を引張試験に供し、LIPSS の有無や熱処理が接合強度に与える影響を検討した。その結果、473K、2h の熱処理により、接合強度が大きく向上することが分かった。その一方で、LIPSS の有無が接合強度に与える影響は小さかった。これは、銅箔試料の強度が小さく、界面強度を正確に測定できていなかったことが一因と考えられる。今後は、接合試料や接合ツ-

ルの精度向上を図り、LIPSS 形成の有無が接合プロセスに与える影響を詳細に検討する予定である。

謝 辞

本研究の遂行に当たり、天田財団より一般研究開発助成(AF-2011214)を賜りました。ここに厚く御礼申し上げます。また、レーザ加工実験にご協力頂いた大阪大学接合科学研究所 阿部信行先生、塚本雅裕先生に心より御礼申し上げます。また接合実験にご協力頂いた、千葉大学大学院 梅翔午氏(現 旭化成(株))に感謝致します。

参考文献

- 1) Y.Takahashi, K.Uesugi, Stress induced diffusion along adhesional contact interfaces, *Acta Materialia* **51**, 2219-2234 (2003).
- 2) 加柴良裕, 町田一道, 「超高真空中での常温接合」, *溶接学会誌*, **59**, 100-104 (1990).
- 3) 松坂壮太, 高橋康夫, 井上勝敬, 「常温凝着接合における接合強度の時間依存性に関する研究」, *溶接学会論文集*, **17**, 583-588 (1999).