



Title	超高真空下における常温凝着接合過程に関する研究
Author(s)	松坂, 壮太
Citation	大阪大学, 1999, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3161837
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

超高真空下における常温凝着接合過程に関する研究

平成11年5月

松坂 壮太

目次

第1章 緒論	1
1. 1 緒言	1
1. 2 常温接合に関する研究の現状と問題点	2
1. 3 本研究の目的および方針	4
1. 3. 1 目的	4
1. 3. 2 方針	4
1. 3. 3 本論文の流れおよび構成	5
第2章 接合過程の支配要因に関する予備的考察	7
2. 1 接合過程に影響を及ぼす接合機構の分類とイオン照射の影響	7
2. 1. 1 接合過程に影響を及ぼす接合機構の分類	7
2. 1. 2 アルゴンイオン照射が材料表面に及ぼす影響	10
2. 2 接合によって生じる界面近傍の応力状態	12
2. 2. 1 弹性接触論	12
2. 2. 2 接合時に界面に生じる残留応力	14
2. 3 界面での空孔拡散による応力緩和現象	14
2. 4 結言	16
第3章 接合強度の時間依存性に関する実験的検討	17
3. 1 実験装置及び実験方法	17
3. 1. 1 実験装置及び試料の具備すべき点	17
3. 1. 2 実験方法	18
3. 2 接合強度の時間依存性に及ぼす保持温度及び接合応力の影響	20
3. 2. 1 保持温度の影響	20
3. 2. 2 接合応力の影響	26
3. 3 実験結果に基づく接合強度の支配要因の検討	27
3. 4 結言	28

第4章 空孔拡散による応力緩和過程の数値計算手法	29
4. 1 計算モデル	29
4. 1. 1 接合部のモデル化と前提条件	29
4. 1. 2 塑性変形を考慮した界面での応力分布	30
4. 2 界面拡散過渡現象の定式化及び数値計算方法	32
4. 2. 1 界面拡散過渡現象を表現する基礎方程式の導出	32
4. 2. 2 基礎方程式の数値計算方法	37
4. 2. 3 初期応力分布の残差法近似の方法	40
4. 2. 4 n 及び Δt の最適値の決定	41
4. 3 接合界面での応力分布の時間的変遷	44
4. 4 結言	48
 第5章 数値計算に基づく接合強度の支配要因の検討	50
5. 1 接合強度の時間依存性と計算による応力緩和過程との対応性	50
5. 1. 1 保持温度の影響	50
5. 1. 2 接合応力の影響	54
5. 1. 3 計算結果に基づく接合強度の支配要因の検討	56
5. 2 応力緩和過程に対する諸因子の影響	60
5. 2. 1 ワイヤ径の影響	61
5. 2. 2 保持温度・接合応力の影響	63
5. 2. 3 応力緩和時間から見た接合条件の選択	64
5. 3 無加圧常温接合の実現に向けた指針	67
5. 4 結言	70
 第6章 結論	72
謝辞	75
参考文献	76
本研究に関連した発表論文	80

第1章 緒論

1. 1 緒言

常温接合とは一般に、接合材料の温度が常温近傍で行われる接合方法全体、すなわち機械的な方法で表面酸化皮膜を除去し、清浄表面を露出させて行う冷間圧接や常温での超音波ボンディング、或いはイオンビーム照射等の物理的な方法で表面の清浄化を行う表面活性化接合等の接合方法の総称である。しかし本研究でこれらすべてを対象にするわけではない。清浄な2表面を原子レベルで近づけると、その間に結合が生じることはよく知られており、この現象を「凝着」と称する場合もある。しかし接触領域全体で考えた場合、無荷重或いはごく低荷重では、見かけの接触面積に比べて実際接触面積は非常に小さく、その強度もまた小さい。このような状態は「付着」(attach, adhesional contact)と呼ばれ、ふつう接合部と呼ぶべきほどの結合領域は見られない。これに対して、わずかに荷重を与えることによって接触領域全面にわたって結合が生じ、接合部の形成が見られる。この状態を「凝着」(adhesion)或いは「固着」(cohesion)と呼んで「付着」とは区別している。本研究で取り扱う常温凝着接合とは、表面活性化接合の中でも、清浄表面同士の凝着現象を積極的に利用した低荷重接合を対象としたものである。

常温凝着接合では、一般的に、超高真空中でアルゴンイオンビーム照射等を行い、あらかじめ清浄化した表面同士を接合するため、接合中の表面酸化皮膜の破壊分散等の処理過程は不要である。このため、従来の熱圧着法や冷間圧接のような大変形を必要とせず、比較的低荷重・低変形の接合が可能であるという特長を有する。

また常温凝着接合過程は、清浄な表面を持つバルク同士の直接接触によって生じる最も基本的な接合過程であり、これを理解することは今後様々な接合界面を設計する上でも非常に重要であると言える。

さらに最近、Au, Cu等の比較的軟らかい材料を低荷重で常温接合した場合に、接合時間、或いは接合後の時間経過に伴って接合強度が上昇するという現象も報告されている。この現象は、接合部の状態が時間とともに刻々と変化するためと推察される。

しかしながら、これまでの研究では、接合の生じる材料の組み合わせや接合条件を調べたもの、或いは接触による界面での力学を扱ったものがほとんどであり、最も単純と思われる同一金属間での接合についてすら接合過程を捉えようとした研究は数少ない。

そこで本研究では、常温凝着接合過程を実験、理論の両面から理解し、接合強度の時間依存性の原因を解明することを試みた。

本章ではまず、これまでに行われた研究の大まかな流れとその問題点を述べ、次に本研究を進めるまでの目的、方針を述べる。

1. 2 常温接合に関する研究の現状と問題点

常温接合に関するこれまでの研究を調査すると、まず接合の生じる材料の組み合わせや条件等を実験的に調査したものが数多く認められる[1～11]。Bowden ら[1,2]は、固体間の見かけの接触面積と真実接触面積、或いは表面張力による固体間凝着等の、常温接合に関する最も基本的な概念を述べている。その後、真空技術、表面活性化技術の発達とともに、多くの実験的研究がなされた結果、表面が清浄であれば、様々な金属間、金属-セラミックス間で凝着現象が見られることが分かってきた。これらのうち、初期の研究[1～8]では凝着現象を「摩擦、潤滑」の観点から捉え、凝着係数や摩擦係数を計算することに主眼をおいていたので、接合過程や接合機構を理解しようとはしていない。「接合」を目的とした最近の研究[9～11]においても、界面における結晶構造観察を主体にした研究が多く、接合過程に注目したものは少ない。なお、これらの中には圧接のような高荷重での接合についても凝着(adhesion, cohesion)と称しているもの[5,6]もあるが、このような接合は、本研究でいう凝着接合には含めない。

Cuthrell ら[12]はアルゴンイオンビームを照射した Au 同士の接触に関して、接合時間とともに接合面積および接合強度が増加すること、また接合面積の増加の割合は接合荷重に影響されることを報告し、その原因是低温クリープにあると結論づけた。しかし荷重や接合部の寸法が明確に説明されておらず、接合部がどのような機構によって形成されたのか分からぬ点に問題がある。

また平田ら[13], 藤井[14], 及び河野ら[15]はそれぞれ, Au-Au, Cu-Cu, Cu-Cu(ただしインサート金属としてIn-Sn合金を用いている)の組み合わせについて常温接合を行い, 平田らと藤井の研究では, 接合時間によって, また, 河野らの研究では, 接合後の時間経過によって接合強度が上昇することが報告している. しかし, これらの研究においても, 時間依存性の原因や接合の進行過程についてはほとんど言及されていない.

最近, Kizukaら[16,17]は高分解能電子顕微鏡(HRTEM)内に設置したピエゾ駆動式の試料ホルダーを用いて, Au-Auの原子レベルでの接合過程を直視観察した結果を報告している. 彼らの研究は, 接合過程を動的に, しかも目に見える形で示しており, いかなる低荷重接合といえども非常に微視的に見れば, 界面では原子の再配列や移動が生じていると想像できる. しかし, ランダムな原子の動きはHRTEMでも観察できないため, これは拡散接合現象の直視観察ではない. また, このような微視的な現象と接合強度のような巨視的な量との関係性を説明するまでには至っておらず, 接合現象を微視的観点から説明できる理論が必要となる.

一方, Bowdenらの研究[1,2]の後, Johnson[18]は固体間の接触に関して, 弾性論から接触面積や接触荷重除去前後の接触界面での応力分布の変化を計算した. また, Johnsonらは後に, 凝着エネルギー $\Delta\gamma$ の接触に対する影響を考慮したJKR理論を提案し, 荷重が小さい場合や接触物体が微細である場合には, $\Delta\gamma$ の接触に及ぼす影響が無視できなくなることを報告している[19]. またMaugisやPollock[20]は, このような凝着接觸に関して, 降伏条件を考慮した応力分布を計算している. JKR理論は最近Takahashiら[21]によって再検討が加えられている. しかしJKR理論は, 接合部が微細でかつ低荷重での接合となる常温凝着接合を考える上で非常に重要な理論ではあるものの, 当然ながら静的な場を取り扱う理論であるため, 接合過程のような時々刻々変化する現象を説明することはできない. また, 完全弾性体の接觸(接合ではない)を仮定しているため, 破断強度が接合荷重に依らないという点で, 現実の接合現象とはかなりの矛盾がある.

これまで, 高温($>0.5T_m$: T_m は融点)での固相接合に関しては, 接合過程の理論的・実験的検討が数多く行われてきた[22~30]. これらの研究はいずれも, 表面・界面自

己拡散，クリープ変形，弾塑性変形等の接合に寄与するであろう機構を抽出し，モデル化を行っていくという点で一致している。常温接合過程にこれらのモデルをそのまま適用することはできないが，研究の進め方としては同様の手法を採用することにした。

1. 3 本研究の目的および方針

1. 3. 1 目的

本研究では，まず，常温凝着接合過程に影響を及ぼす要因，機構について考察する。そして接合過程を実験，理論の両面から理解し，接合強度の時間依存性の原因を解明することを試みる。最終的には，常温凝着接合，さらには常温無加圧接合の実現に向けて，接合条件の選択に指針を与えることを目的とする。

1. 3. 2 方針

上記の目的を遂行するため，以下に示す方針で研究を進める。まず，高温での固相接合に関してこれまでに行われた研究を参照しながら，常温凝着接合過程に影響を及ぼす要因，機構について検討する。そしてこれらの機構を考慮しながら，最も単純な系であると考えられる同種金属間で接合実験を行い，接合強度の時間依存性に関する知見を得る。接合部の評価は，接合強度及び破断面のSEM観察を併用して行う。これは接合部が非常に微細かつ脆弱であって，応力状態や原子の拡散挙動の直接観察を行うことが困難なためである。また実験に対応した接合部の数値計算モデルを作成し，それぞれの機構が接合に及ぼす影響や機構間の関係性を調べる。最後に，得られた結果に基づいて，常温凝着接合，さらには常温無加圧接合の実現に向けた接合条件について論じ，本研究で得られた結果を総括する。

1. 3. 3 本論文の流れおよび構成

本論文は本章を含めて 6 章から構成されている。その流れを Fig. 1-1 に示す。

第 1 章では、常温接合に関するこれまでの研究の大まかな流れを述べ、その問題点を指摘した上で本研究の目的および方針を述べている。

第 2 章では、接合過程や接合強度に影響を与える要因、機構について予備的考察を行い、いくつかの機構の中から最も影響の大きい機構として弾塑性変形機構と拡散機構の 2 つを挙げている。さらに両機構について詳しく検討を行い、接合部における応力状態とこれに起因する拡散現象を連成した理論によって接合過程を理解する必要があることを指摘している。

第 3 章では、接合後の保持温度と接合応力の 2 つのパラメータに着目して接合強度の時間依存性についての実験的検討を行い、接合強度の支配要因について考察している。

第 4 章では、まず第 2 章での考察に基づいて接合部をモデル化し、接合界面における空孔拡散の過渡現象を表現する基礎方程式を導出している。そして、界面拡散による応力緩和過程の数値計算手法について説明している。

第 5 章では、第 3 章で得られた実験結果と第 4 章で得られた接合過程の計算結果との対応性を吟味し、接合強度の支配要因について考察している。また、開発したシミュレータを利用して応力緩和過程に影響を及ぼす要因について検討している。そして接合条件の最適化に向けた指針として、無加圧常温接合を行う上での必要条件を提示している。

第 6 章では、本研究で得られた知見を総括している。

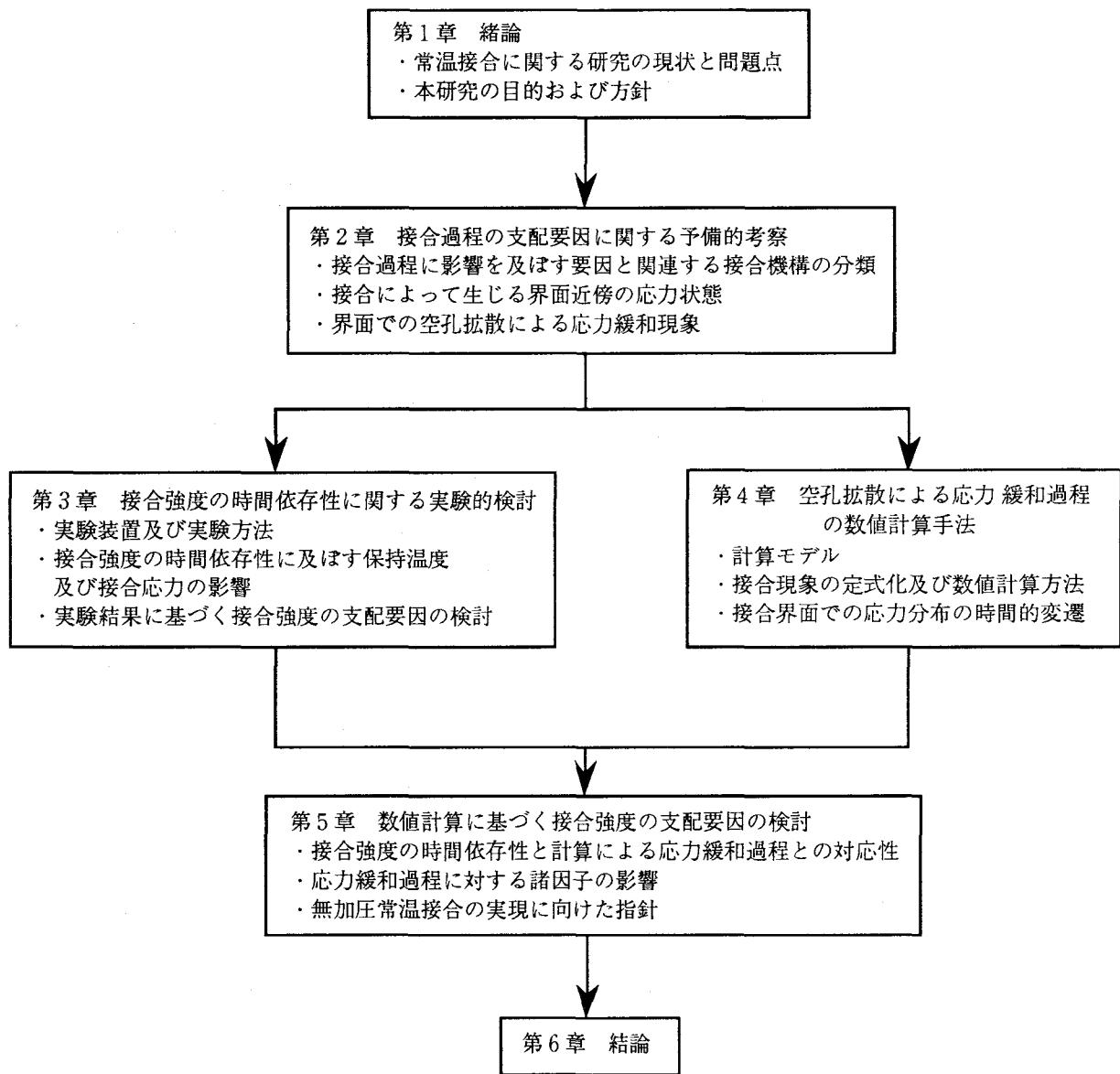


Fig. 1-1 Flowchart of the present study.

第2章 接合過程の支配要因に関する予備的考察

本章では、次章以降で実験や接合部のモデル化を行うことを念頭に置いて、接合過程や接合強度に影響を与える要因、機構について予備的考察を行う。すなわち、高温での固相接合に関してこれまでに行われた研究を参照しながら、常温低荷重における短時間接合を対象とすることによって、新たに考慮が必要となる機構と考慮の不必要的機構を明確にする。そしてこれらの機構が接合過程に与える影響について考察する。

2. 1 接合過程に影響を及ぼす接合機構の分類とイオン照射の影響

2. 1. 1 接合過程に影響を及ぼす接合機構の分類

高温 ($> 0.5 T_m$: T_m は融点) での固相接合に関する高橋らの研究[25,29]によれば、密着過程に影響を及ぼす主な機構は、塑性変形機構、クリープ変形機構、拡散機構の3つであると言われている。以下では、まずこれらの機構の常温凝着接合過程への影響について検討する。

(1) 塑性変形機構

金属材料は $0.5 T_m$ 以上の高温では大きく軟化するが、 $0.5 T_m$ より低温になるに従って、接触に対する弾性成分の影響を無視できなくなり、特に低荷重では、弾性変形主体の変形になる。従って常温凝着接合では、接合材料同士の接触を弾塑性論を用いて理解する必要がある。またこれは次節で述べるように、接合後の界面に残留応力が発生することを意味している。

(2) クリープ変形機構

高橋らのモデル[25]を用いれば、接合応力 σ_B を与えた場合の、クリープ変形による接合率 S の増加率 dS/dt は次式で表される。

$$\frac{dS}{dt} = A_{bc} \frac{D_b G b}{kT} \cdot \frac{S(\frac{\sqrt{3}}{2})^{n+1}}{(1 - S^{2/n})^n} \cdot \left\{ \frac{2\sigma_B}{nG} \left(\frac{1-S}{S} \right) \right\}^n \quad (2-1)$$

ここで、 D_b ：界面拡散係数、 G ：剛性率、 b ：バーガースベクトルの絶対値、 k ：ボルツマン定数、 T ：絶対温度、 A_{0c} ：定数、 n ：応力指数であり、 D_b は、

$$D_b = D_{b0} \exp\left(-\frac{Q_b}{RT}\right) \quad (2-2)$$

ただし、 D_{b0} ：界面拡散係数の頻度因子、 Q_b ：界面拡散の活性化エネルギー、 R ：気体定数である。これらの材料定数値を Table 2-1 に示す。例えば、 $T = 350$ K の Cu について、 $\sigma_B = 10$ MPa を与え約 2 % の接合率が得られたと仮定して計算を行うと、 $dS/dt = 1.4 \times 10^{-10}$ s⁻¹ となる。従って、本研究で取り扱う温度範囲で、数十秒程度の短時間接合を行う場合、密着に対するクリープ変形機構の寄与は非常に小さく無視できる。

(3) 拡散機構

高橋ら[26]による接合機構領域図を参照すると、低温低荷重になるに従って、接合過

Table 2-1 Physical properties of Cu.

Name of properties (unit)	Symbols	Value
Non-dimensional constant in creep rate equation of the low temperature type creep	A_{0c}	4.0×10^{10}
Boundary self-diffusion coefficient (m ² /s)	D_b	$D_b = D_{b0} \exp(-Q_b/RT)$ $D_{b0} = 1.0 \times 10^{-5}$ (m ² /s) $Q_b = 1.045 \times 10^5$ (J/mol)
Shear modulus (N/m ²)	$G(T)$	$G(T) = a_G(T/T_m)^2 + b_G(T/T_m) + c_G$ $a_G = -4.7013 \times 10^{10}$ $b_G = 1.34597 \times 10^{10}$ $c_G = 4.59576 \times 10^{10}$
Absolute value of Burgers vector (m)	b	2.56×10^{-10}
Boltzmann's constant (J/K)	k	1.38×10^{-23}
Stress exponent of low temperature type dislocation creep	n_c	8.0
Poisson's ratio	ν	0.33
Young's modulus (N/m ²)	$E(T)$	$E(T) = 2(1+\nu)G(T)$
Thickness of bond-interface (m)	δ_b	5.12×10^{-10}
Atomic volume (m ³)	Ω	1.18×10^{-29}

程に対する拡散の寄与が大きくなることが理解できる。さらに彼らは後の研究[27]において、界面拡散の過渡現象について詳しく検討を行っている。その中で彼らは、界面拡散過渡現象に対する時定数 τ を式(2-3)のように定義している。

$$\tau = \frac{4(1-\nu^2)kTX^3}{ED_b\delta_b\Omega} \quad (2-3)$$

ただし、 ν : ポアソン比、 X : 接合幅、 E : ヤング率、 δ_b : 界面厚さ、 Ω : 原子空孔体積である。Fig. 2-1 は、温度 T と τ との関係を示したものである。この図から、低温になると従って、界面拡散が定常に至るまでの時間が指数関数的に長くなることが分かる。すなわち、(2-3)式から示唆されるように、高温では定常現象として取り扱うことのできる拡散現象でも、低温では時間とともに変化する現象として捉える必要がある。

河野ら[15]は Cu-Cu (ただしインサート金属として In-Sn 合金を用いている) を常温接合した場合に、接合後の時間経過とともに接合強度が徐々に上昇することを報告した。この中で彼らは、Fig. 2-2 に示すように、試料を接合後 77 K, 室温, 333 K の 3 つの条件下で保持したところ、77 K ではほとんど強度上昇が見られなかったのに対し、333 K では急速に強度が上昇したことから、強度上昇の原因が拡散によるものと推測

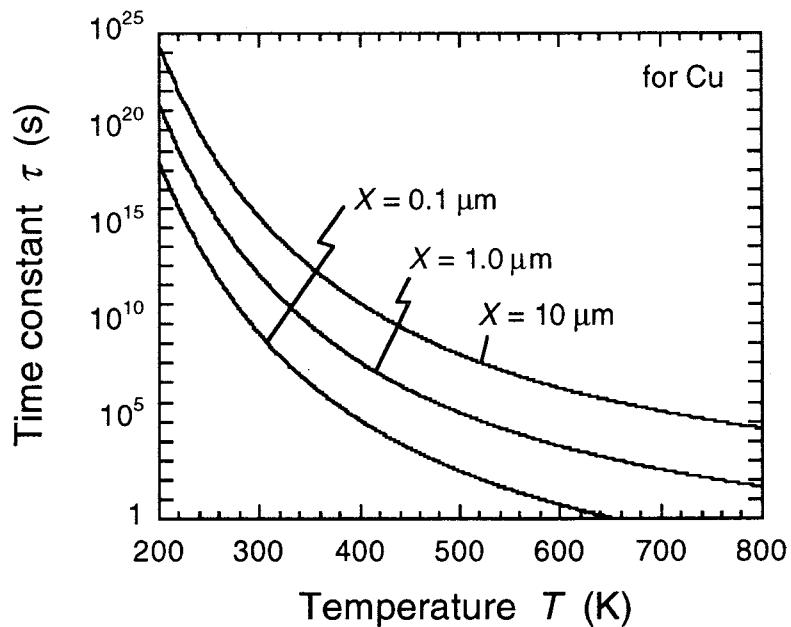


Fig. 2-1 Effect of temperature on time constant. (by Takahashi et al.)

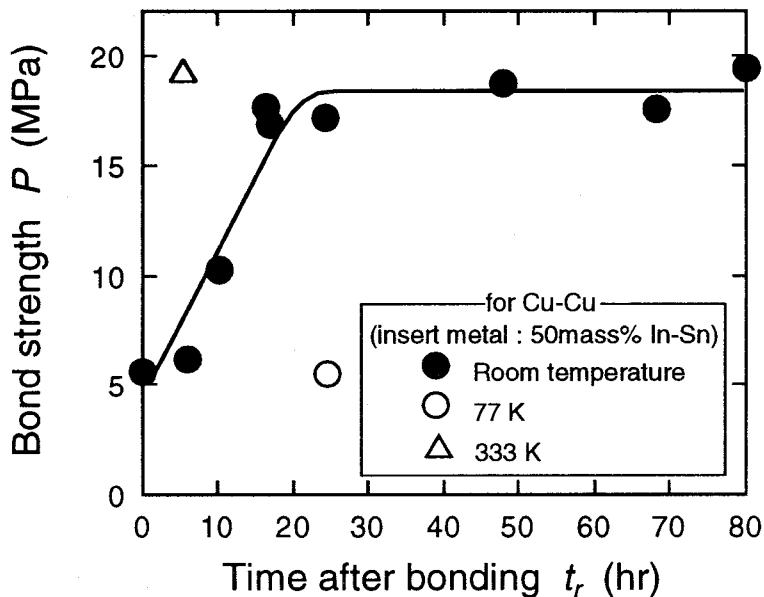


Fig. 2-2 Change in bond strength with time after bonding. (by Kohno et al.)

している。この報告からも、常温接合過程に対して拡散機構の寄与を考慮する必要性が示唆される。

2. 1. 2 アルゴンイオン照射が材料表面に及ぼす影響

前章で述べたように、常温凝着接合では何らかの方法で材料表面を清浄化する必要があるが、その中で現在最も一般的に行われているのが、アルゴンイオンを表面に照射し、表面汚染層をスパッタする方法である。この方法は、初期の研究[2]で行われたような試料の加熱によって汚染層を蒸発させる方法に比べて、容易にかつ確実に清浄化を行える点で優れているが、一方で材料表面にある程度の影響を及ぼすことが知られている。ここでは、これまでに行われた研究をもとに、第3章の接合実験で行う2kVのアルゴンイオン照射が材料表面に与える影響について検討する。

北田ら[31]は、Alにアルゴンイオンを照射し、照射量が増加すると表面硬度が2倍程度まで高くなることを報告した。しかし彼らの研究は、材料へのイオン注入を目的としたものであって、イオン加速電圧は45 kVであり、これは表面の清浄化を目的とした一般的な加速電圧2～5 kVに比べてはるかに高い。

大橋ら[32]は、北田らと同様に Cu にアルゴンイオンを照射し、その表面硬度に対する影響を調査している。彼らの研究は、照射による表面の清浄化を目的としたものであり、イオン加速電圧は 2 ~ 5 kV である。彼らの報告によると、最表面層では、未照射と 5 kV での照射との間に 10 % 程度の硬さの違いが見られるものの、未照射と 2 kV との間では硬さの違いはほとんど見られない。

大橋ら[32]はさらに、イオン照射が表面粗さに与える影響についても報告している。それによれば、未照射と 5 kV との間では表面粗さは 2 倍程度に大きくなっているが、未照射と 2 kV との間ではほとんど違いが見られない。

一方、平田ら[13]は、Au にアルゴンイオンを照射し、その表面拡散に対する影響を調査している。それによれば、20 kV の加速電圧で照射した場合、表面拡散係数が未照射の場合に比べて約 3 倍に上昇したと報告している。彼らは、拡散係数の上昇の原因について、表面が活性化されたためとしか述べていないが、おそらくその原因是、表面の汚染層が除去されると同時に、材料内部に空孔が多量に形成されたためと考えられる。しかし、彼らの加速電圧は 20 kV であり、通常の 2 ~ 5 kV の加速電圧であれば空孔の形成量も少なく、その形成領域もさらに表面近傍に限られると考えられる。従って、イオン照射によって表面近傍に形成される空孔量は、第 5 章で述べるような加工によって材料内部に形成される空孔量に比べればはるかに少なく、拡散係数の上昇も彼らの報告ほどは大きくないと考えられる。

以上の予備的考察から、常温凝着接合において密着過程を担う主な機構は初期接触を達成するための「弾塑性変形機構」と、接合中及び接合後の原子の「拡散機構」とに大別できることが分かった。また、アルゴンイオン照射が材料表面に与える影響は、イオンの加速電圧が 2 kV 程度であれば、表面硬さ、表面粗さ、拡散係数のいずれに対してもそれほど大きくないと考えられる。

以下では、接合機構に対する弾塑性変形機構と拡散機構の影響を明確にするため、まず弾性論にもとづいた物体間の接触について述べ、さらに接触界面での応力分布に起因する拡散現象について説明する。

2. 2 接合によって生じる界面近傍の応力状態

2. 2. 1 弹性接觸論

実際の材料表面には表面粗さと呼ばれる表面凹凸が存在するため、2つの物体間の接觸は複雑な問題となる。そこで問題を簡単化するため、まず、2つの球の接觸問題（注）について簡単に説明する。

2つの球の接觸問題は Hertz によって初めて解かれた[33]。すなわち、Hertz の解は接觸部における圧力の分布とそれによる変位の分布が球の接觸の境界条件を満足するような解である。

Johnson ら[19]によって提案された JKR 理論は、Hertz の解に凝着エネルギー $\Delta\gamma$ の影響を考慮したものにほかならない。ここで $\Delta\gamma$ とは、固体同士を接觸させた場合の、接觸前後での単位面積当たりの表面と界面とのエネルギー差であり、

$$\Delta\gamma = \gamma_1 + \gamma_2 - \gamma_{12} \quad (2-4)$$

で表される。 γ_1 、 γ_2 は接觸表面のエネルギー、 γ_{12} は接觸界面のエネルギーである。弾性体同士、或いは弾性体を剛体に接觸させる場合の系の全エネルギーは、接觸部の面積を A として、

$$E_{total} = E_{elastic} + E_{interface} = E_{elastic} - \Delta\gamma \cdot A \quad (2-5)$$

で表される。一般的には $\Delta\gamma > 0$ であり、 $\Delta\gamma = 0$ の場合に比べると、たとえ、ある程度弾性体が変形してひずみエネルギー項が増加しても、 $-\Delta\gamma \cdot A$ 項によって全エネルギーが減少した方がエネルギー的に安定になる平衡状態が存在する。従って、JKR 理論から計算される接觸面積は、Hertz 理論によるそれに比べて大きくなる。ただし、力の釣り合いを保つため、面積の増加部分には大きな引張応力が生じることになる。Fig. 2-3 は、これを示した模式図である。文献[19]から分かるように、 $\Delta\gamma$ の影響は物体が微小

(注) 一方の球の半径を無限大とおくことによって、球と平面との接觸問題と捉えることも可能であり、同様に、一方の球の弾性率を無限大とおくことによって、弾性体と剛体との接觸問題と捉えることも可能である。

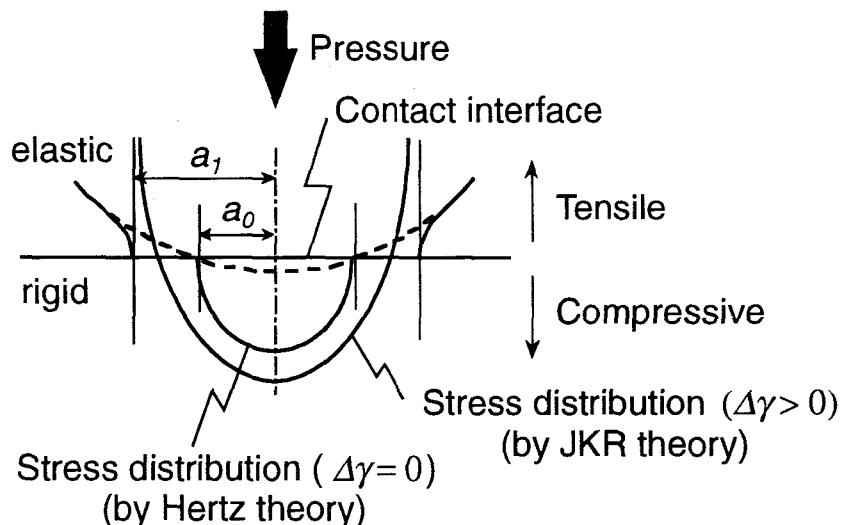


Fig. 2-3 Effect of Dupré energy $\Delta\gamma$ on contact between elastic and rigid bodies.

になるほど、また荷重が小さくなるほどより顕著になるため、本研究においてもこれを考慮する必要がある。

JKR 理論によれば、 $\Delta\gamma > 0$ ならば荷重を除去してもある程度の接触面積が生じ、2つの物体を分離するためには、弾性球と剛体平面との接触の場合、

$$F = \frac{3}{2}\pi \Delta\gamma R \quad (2-6)$$

の引張力が必要であるとされている (Fig. 2-4 (a),(b),(c)). ここで R は弾性球の半径である。しかしこの式を見ると、破断強度は接触荷重に依存しない、すなわち、いかなる荷重で接合を行っても、強度は R のみによって決まることが分かる。実際には接合荷重が大きくなるほど、接合強度が上昇するのが一般的であり、事実、高橋ら[34]の行った実験においても、接合強度の加圧力依存性が認められる。これらの相違は高橋らも述べているように、(2-6)式が完全弾性体を前提としている（塑性変形を考慮していない）ことが原因である。また実際には表面の清浄な金属同士を接触させれば、密着が生じる。従って接合過程をモデル化するためには、弾性論に基づきながら塑性変形や界面での密着現象を考慮することが必要である。

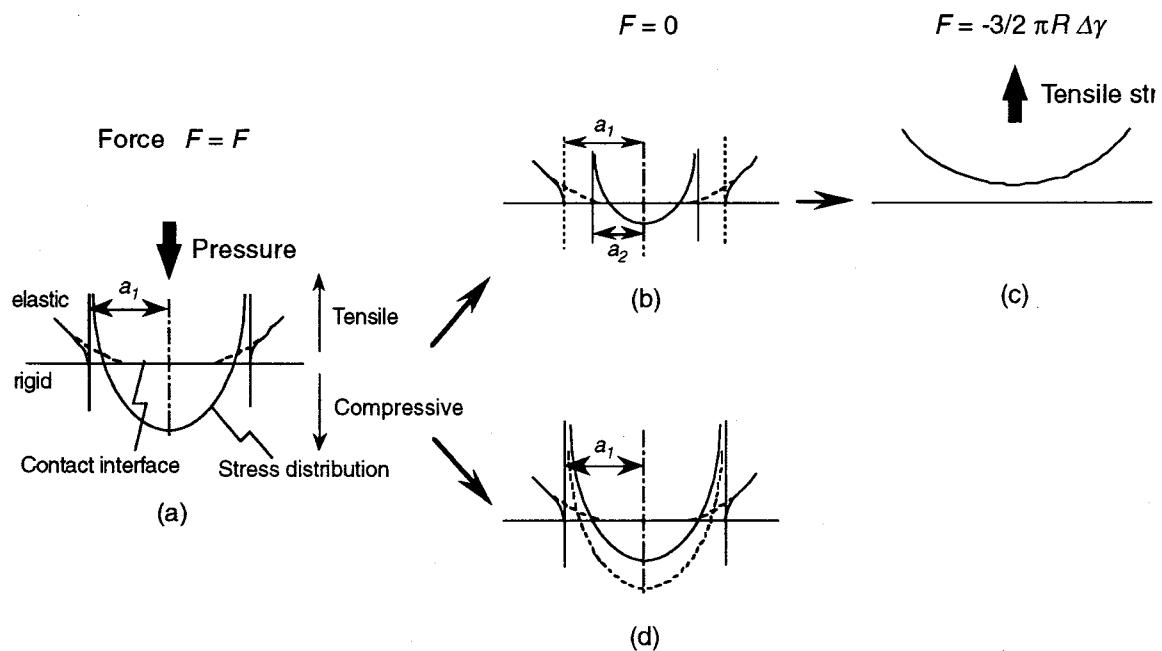


Fig. 2-4 Schematic illustrations of contact between two bodies by JKR theory.

(a) Force $F = F$, (b) $F = 0$, (c) $F = -3/2 \pi R \Delta\gamma$, (d) $F = 0$ when the contact area remains after the bonding force is removed.

2. 2. 2 接合時に界面に生じる残留応力

2つの固体を接触させ、その固体間に密着が生じた場合の応力分布について考えてみる。ある接触荷重によって凝着した界面が、荷重の除去によっても剥離しない、すなわち接触面積が減少しないと仮定すると、除去されるべき応力分布は、およそ Fig. 2-4 (d) のようになる。この図から分かるように、接合荷重除去後の接合界面端部には、非常に大きな引張残留応力が発生する。このため接合強度を確保するためには、何らかの方法でこの残留応力を消失させることが必要であると考えられる。

2. 3 界面での空孔拡散による応力緩和現象

高温での固相接合に関する高橋ら[27]の研究によれば、接合界面に応力分布が存在すると、応力の勾配に起因した空孔拡散が生じ、この空孔拡散によって逆に応力分布が

変化する。この応力分布と拡散の相互作用によって応力の緩和が生じ、最終的には定常状態に落ち着くと言われている。その原理はおよそ次のようなものである。

熱力学の法則から、物体内のある場所における空孔濃度 C と過剰化学ポテンシャル $\Delta\mu$ 、及びその場所に加わる圧力 P との間には次の関係式がある。

$$C = C_0 \exp\left(-\frac{\Delta\mu}{kT}\right) = C_0 \exp\left(-\frac{P\Omega}{kT}\right) \quad (2-7)$$

ここで、 C_0 ：平衡空孔濃度、 Ω ：原子空孔体積、 k ：ボルツマン定数、 T ：絶対温度である。この関係式から分かるように、Fig. 2-3 の接触問題では、圧縮応力の働く界面の中心部で空孔濃度が低く、引張応力の働く界面端部で空孔濃度の高い状態が生まれる (Fig. 2-5)。この空孔濃度の勾配を駆動力として界面に沿った原子の拡散が生じ、応力分布が時間とともに変化することになる。

文献[27]によれば、1000 K程度の高温において、凹凸の幅及び高さがそれぞれ8 μm、1 μm程度の表面粗さをもつCu同士を接合した場合、わずか数十秒でほぼ定常状態に至ることが示されている。その一方で、この定常状態に至るまでの時間は、温度が下がると指数関数的に長くなること、また表面粗さが大きくなると寸法の3乗に比例して長くなることが示されている。従って、常温接合過程において（現実性のある時間の範囲内で）同様の応力緩和現象が生じるか否かは、接合部の寸法や接觸によって生じる応力状態、またこれに起因する拡散現象を連成した理論を用いて、改めて検討する必要がある。

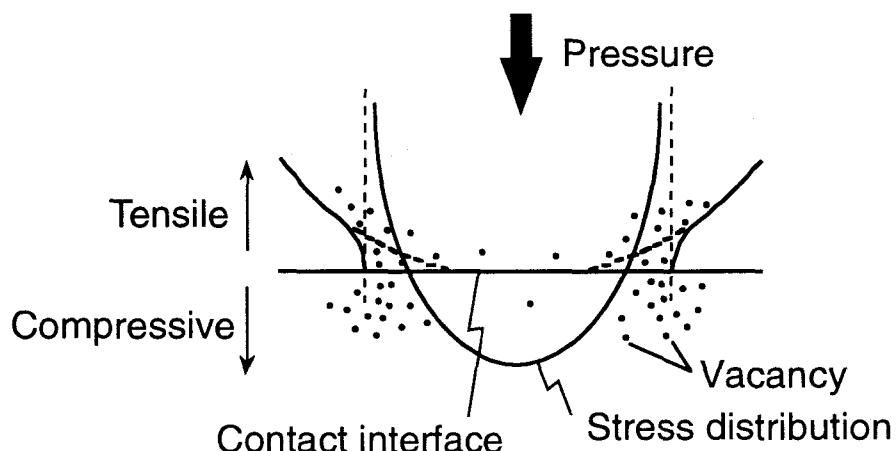


Fig. 2-5 Schematic illustration of vacancy diffusion mechanism.

2. 4 結言

本章ではまず、高温での固相接合に関してこれまでに行われた研究を参考にしながら、接合過程や接合強度に影響を与える要因、機構について予備的考察を行った。その結果、常温凝着接合において密着過程を担う主な機構は弾塑性変形機構及び拡散機構であることが分かった。また、アルゴンイオン照射が材料表面に与える影響は、イオンの加速電圧が2 kV程度であれば、表面硬さ、表面粗さ、拡散係数のいずれに対してもそれほど大きくなかった。そこで次にこの2つの機構が接合過程に及ぼす影響について考察を行い、以下の事項が明らかとなった。

- (1) 凝着エネルギー $\Delta\gamma$ が固体間の接触に及ぼす影響は物体が微小になるほど、また荷重が小さくなるほどより顕著になるため、本研究においてもこれを考慮する必要がある。
- (2) 接合過程をモデル化するためには、材料同士の接触を弾塑性論によって捉え、また接触界面での密着現象を考慮することが必要である。
- (3) 接合荷重除去後の接合界面端部には、非常に大きな引張残留応力が発生するため、接合強度を確保するためには、何らかの方法でこの残留応力を消失させることが必要である。
- (4) 常温接合過程において、界面での空孔拡散による残留応力の緩和が可能か否かは、接合部の寸法や接触によって生じる応力状態、またこれに起因する拡散現象を連成した理論を用いて、改めて検討する必要がある。

第3章 接合強度の時間依存性に関する実験的検討

本章では、まず常温凝着接合を行うにあたって必要となる実験装置及び試料の具備すべき事柄について調査し、これに基づいて実験装置を製作する。そして接合後の保持温度と接合応力の2つのパラメータに着目して接合強度の時間依存性についての実験的検討を行い、接合強度の支配要因について考察する。

3. 1 実験装置及び実験方法

3. 1. 1 実験装置及び試料の具備すべき点

金属間の凝着現象に及ぼす表面汚染層や吸着ガスの影響を調べた研究[3,4]によれば、アルゴンイオンビームの照射がこれらの汚染層の除去に効果的であり、また清浄化した表面を維持するためには 10^{-8} Pa 程度の雰囲気圧力が必要であると考えられている。これは固体表面に入射するガスの分子数が单分子層の分子数に達するまでの時間が、 10^{-4} Pa 程度の圧力ではおよそ3秒であるのに対して、 10^{-7} Pa 程度の圧力では約1時間であること[35]による。須賀ら[36]は、 10^{-4} Pa 程度の高真空中でも常温接合自体は可能であると報告しているが、一方ではこのような条件下で作成された接合界面には酸素を含む中間層が見られたとも報告しており、この程度の圧力では本研究の目的を遂行するためには適切ではない。そこで本研究でも、 10^{-8} Pa 程度まで排気可能な排気系、アルゴンイオンビームによる表面清浄化装置を備えた接合装置を製作する。

また、前章で述べたように凝着現象は接合物が微小になるほど、また荷重が小さくなるほど顕著になる。さらに拡散の効果を明確にするという点からみても接合部の寸法はできるだけ小さい方が望ましい。従って、少なくとも数 MPa 程度の接合応力で数 μm 程度の接合部を形成することが必要となる。そこで、加圧治具の寸法・位置決め精度やロードセルの精度、さらに次章で行う接合部のモデル化を考慮して、直径 $100 \mu\text{m}$ のワイヤと基板とを接合することにした。

3. 1. 2 実験方法

上記の点を考慮して, Fig. 3-1 に示す 3 つのチャンバーからなる常温凝着接合装置を作製した。すなわち接合装置は試料準備室, アルゴンイオン照射室, 接合室から成り, これらはゲートバルブを介して結ばれている。各室の到達圧力はそれぞれ 6.5×10^{-6} Pa, 3.0×10^{-6} Pa, 1.0×10^{-8} Pa である。アルゴンイオン銃はアルバック・ファイ社製 USG-3 であり, イオン照射室を 3.0×10^{-6} Pa まで排気後, 超高純度アルゴンガス(99.9999 %)を 6.5×10^{-3} Pa まで導入してイオン照射を行った。イオンビームの加速電圧は 0.5 ~ 2.0 kV の間で可変であり, ビーム電流密度は照射面上でおよそ $50 \mu\text{Acm}^{-2}$ である。

接合試料（基板, ワイヤ）は, アセトン, エチルアルコール, 蒸留水で超音波洗浄した後, 接合装置に搬入した。実験手順としては, まず基板を接合装置に搬入し, アルゴンイオン照射室で表面洗浄後, 接合室に搬送し試料ホルダーに装着する。次にワイヤを同様の手順でイオン洗浄した後, 接合室の試料ホルダーに装着し, 上から接合治具によって接合を行った。接合荷重は試料ホルダ下部に取り付けたワッシャ状ロードセルにより計測している。

接合強度に関しては, 接合後に接合装置から試料を取り出し, 所定の時間大気中で

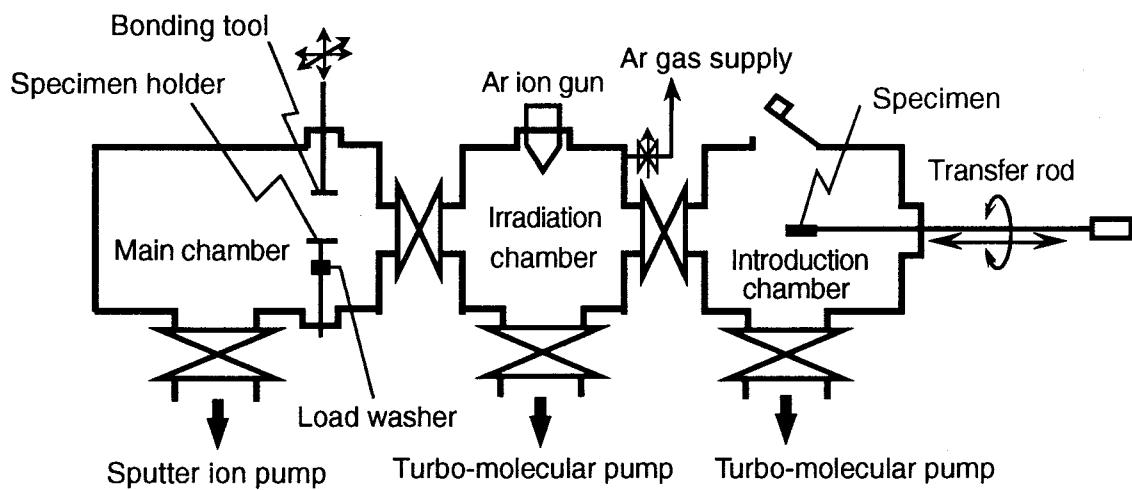


Fig. 3-1 Schematic illustration of bonding apparatus.

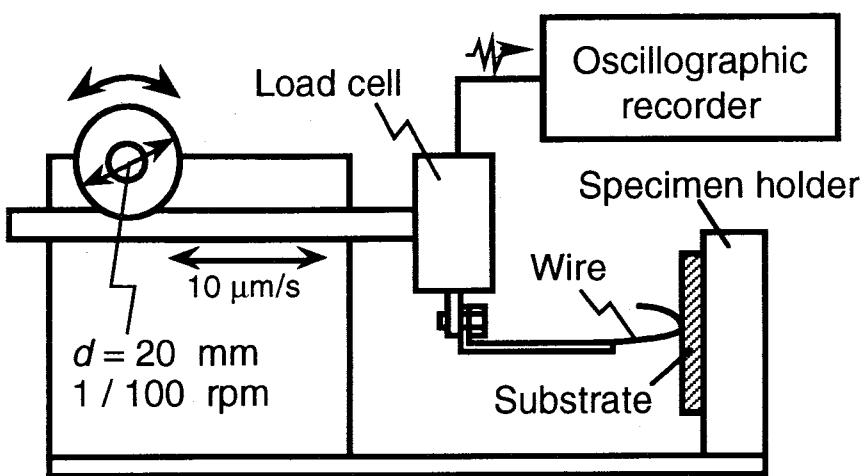


Fig. 3-2 Schematic illustration of peel test equipment.

保管した後、ピール試験に供しその強度で評価した（次頁脚注）。Fig. 3-2 にピール試験機の概略を示す。なお、ここでの接合強度の時間依存性は、接合後の時間経過に関するものである。

今回行った実験では、縦 $10 \text{ mm} \times$ 横 $10 \text{ mm} \times$ 厚さ $50 \mu\text{m}$ の Au 箔（99.95 mass%）と直径 $100 \mu\text{m}$ の Au ワイヤ（99.95 mass%）との組み合わせについて接合を行った（Fig. 3-3）。なお、同サイズの Ni 箔（99.7 mass%）と Ni ワイヤ（99.9 mass%）の組み合わせについても実験を行ったが、アルゴンイオン照射 $2 \text{ kV} \times 18 \text{ ks}$ で清浄化した後、接合応力を 100 MPa まで負荷しても凝着接合が生じなかったため、実験結果には含めていない。

Fig. 3-4 にアルゴンイオン照射 $2 \text{ kV} \times 1.8 \text{ ks}$ 、接合応力 10 MPa で接合した試料の SEM 写真を示す ((a) $\times 30$, (b) $\times 300$)。この図から分かるように、この程度の接合応力ならば、変形量の非常に小さい接合が可能となっている。また、Fig. 3-5 に代表的な引張試験の結果と Au 箔側の破断面の SEM 写真を示す。写真中で、山状に白く見える部分がワイヤの内部で破断した部分であり、接合部を表している。

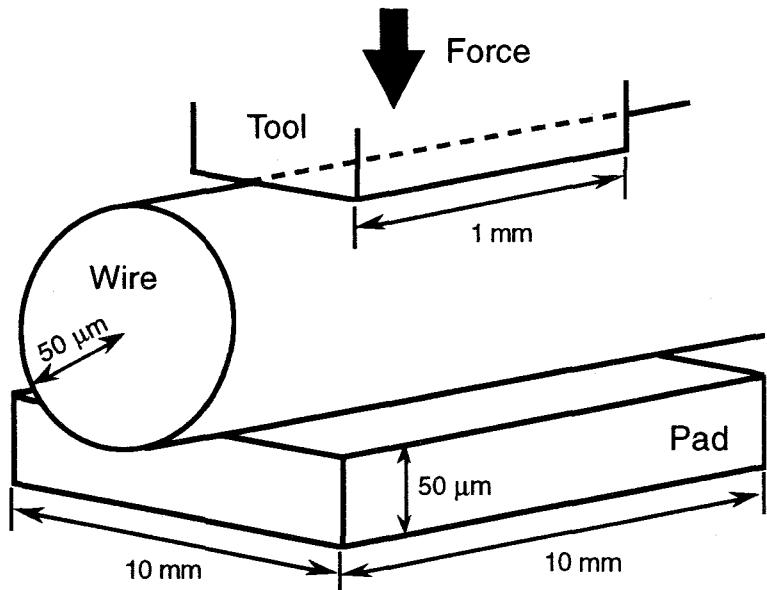


Fig. 3-3 Dimensions of specimens.

3. 2 接合強度の時間依存性に及ぼす保持温度及び接合応力の影響

3. 2. 1 保持温度の影響

Fig. 3-6 に、アルゴンイオン照射の加速電圧 2 kV, 照射時間 1.8 ks, 接合応力 5 MPa, 接合時間 60 s の試料について、接合後の時間経過に伴う接合強度の変化を調べた結果を示す。接合後の保持温度が強度変化に及ぼす影響を比較するため、293 K (室温), 253 K 及び 343 K で保持した試料を作成した。ただし接合時間が 60 s であることから

(注) ピール試験では、ワイヤ全体に均一な垂直引張応力を加えることができず、ワイヤの長手方向に沿って不均一な応力分布が生じる。このため、厳密にはピール試験によっては接合部の垂直上方への引張強度を評価することはできない。しかし、接合部全体の破断が Fig. 3-5 (a) に示すように瞬時に生じていること、また接合部はワイヤに比べて非常に微細かつ脆弱であって、接合部に対してはワイヤが剛体であると考えられることから、ピール強度であっても接合部の垂直上方への引張強度をかなり反映していると考えられる。

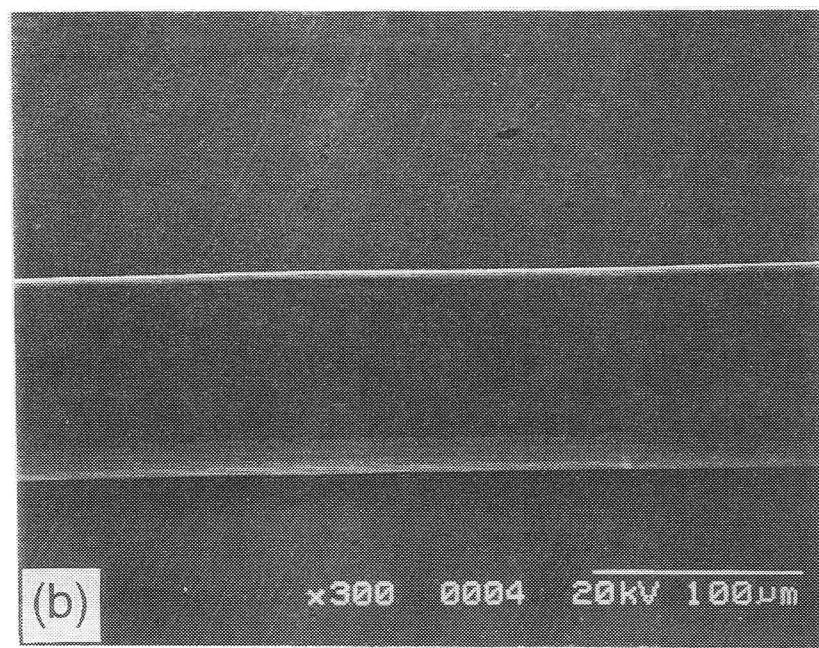
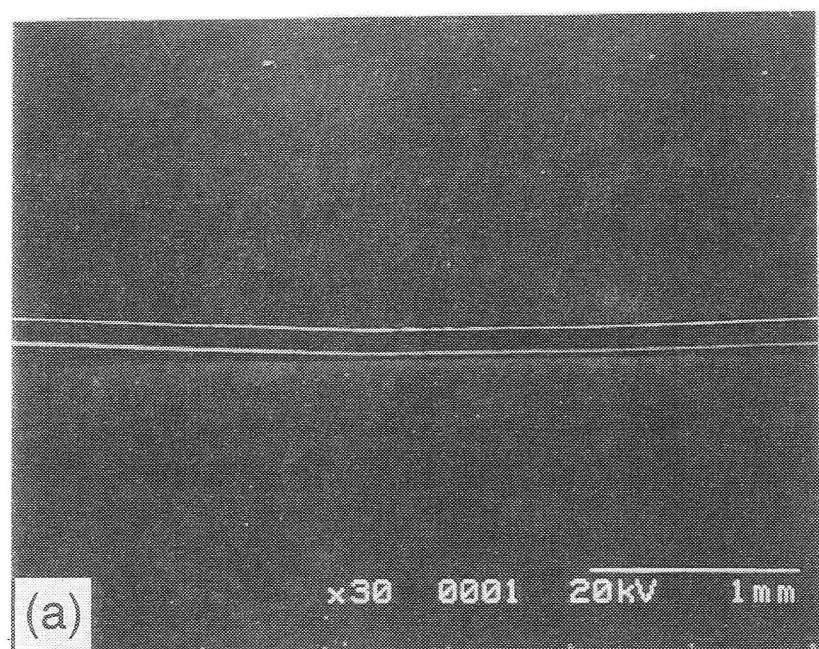
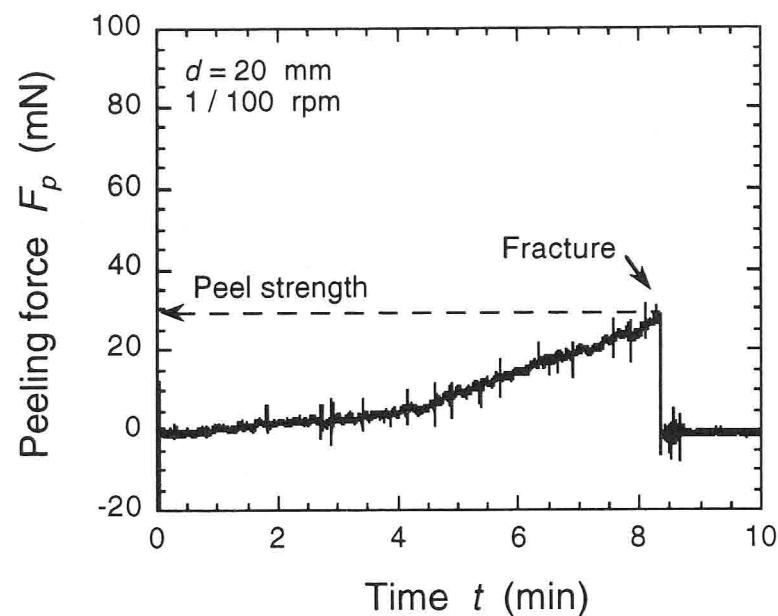
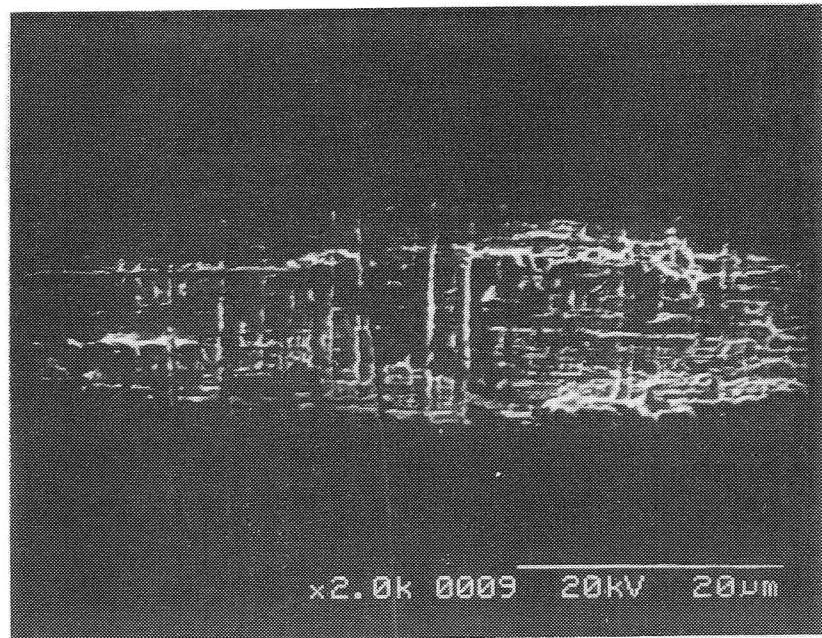


Fig. 3-4 SEM images of gold wire bonded to gold pad. (a) x30, (b) x300



(a)



(b)

Fig. 3-5 Typical result of peel test. (a) peel strength, (b) SEM image of fractured surface of Au film.

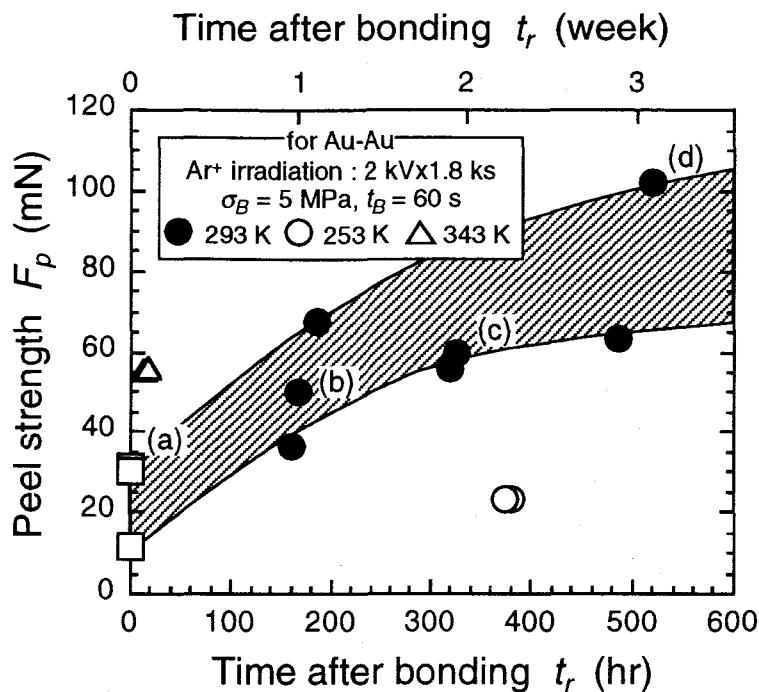


Fig. 3-6 Change in peel strength with time after bonding.

分かるように、平田らの報告にあるような短い接合時間($\sim 3.6 \text{ ks}$)では接合が生じないという現象は観察されず、接触と同時に良好な接合部が得られている。Fig. 3-6 から、室温で保持した試料については、ある程度のばらつきは見られるものの、接合後 3 週間にわたって接合強度が徐々に上昇していくことが分かる。一方、253 K で保持した試料では、接合後 2 週間が経過しても接合強度の上昇は見られなかった。また 343 K で保持した試料では、接合後 15 時間程度で接合強度はほぼ 2 倍に上昇した。また、Fig. 3-7 (a)~(d)は Fig. 3-6 中の(a)~(d)の破断面の SEM 写真を示したものであり、Fig. 3-8 中の(a)~(d)はこの写真から計測した接合面積を示したものである。これらの図から分かるように、接合荷重が小さいため接合面積にある程度のばらつきは見られるものの、時間経過に伴った接合強度の上昇に対応するほどの、接合面積の顕著な増加は認められなかった。Fig. 3-9 は Fig. 3-6 (a)~(d)の接合強度を、それぞれの接合面積で除して応力表示したものである。当初、約 4 MPa であった接合強度が 3 週間後には約 12 MPa まで上昇していることが分かる。ただし、強い加工の行われていない場合の金の降伏応力は約 100 ~ 120 MPa であると言われており、これに比べると強度上昇後にお

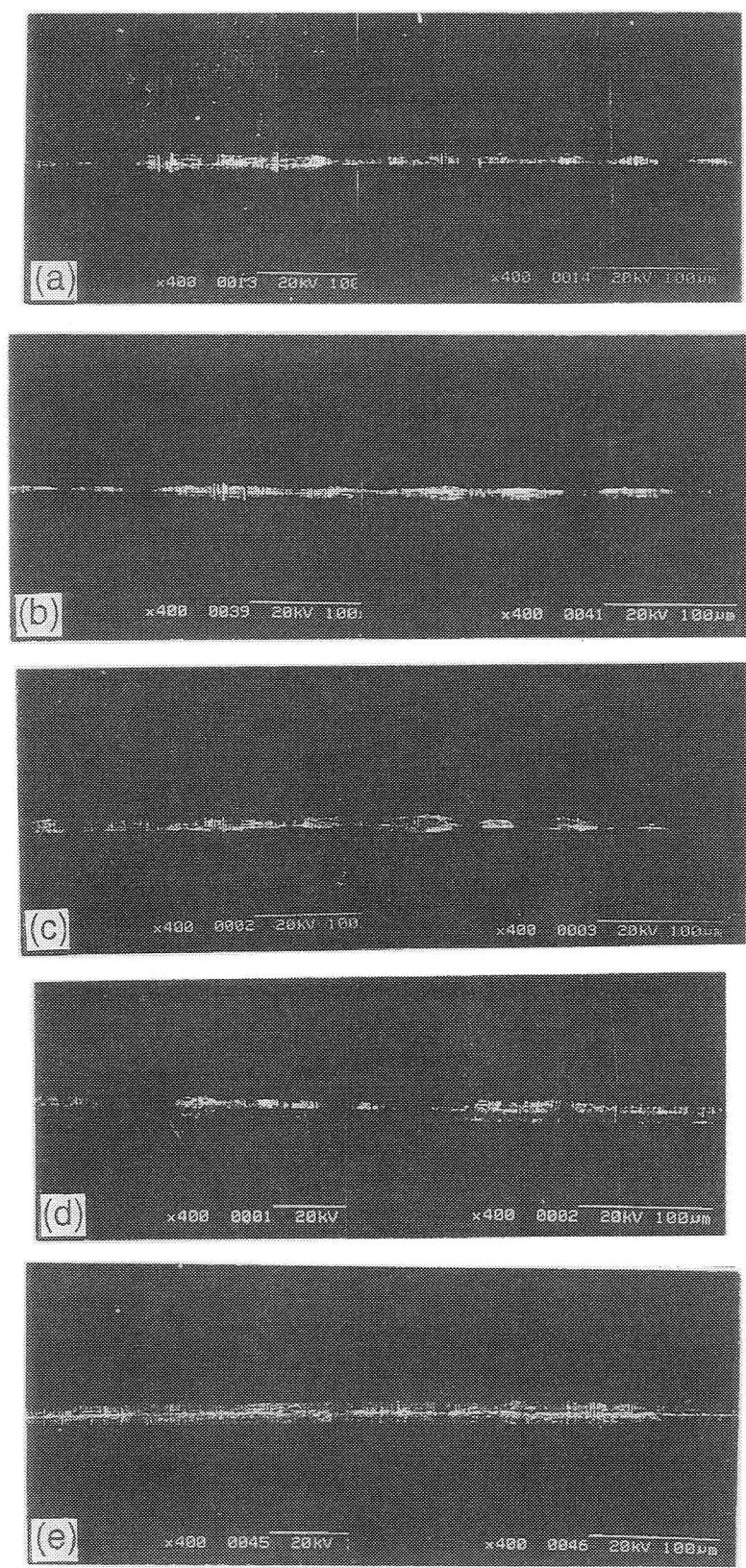


Fig. 3-7 SEM images of fractured surface of Au film. Ar⁺ irradiation : 2kV x 30min, $t_B = 1\text{min}$
(a) $\sigma_B = 5\text{MPa}$, $t_r = 30\text{min}$, (b) $\sigma_B = 5\text{MPa}$, $t_r = 167\text{hr}$, (c) $\sigma_B = 5\text{MPa}$, $t_r = 326\text{hr}$,
(d) $\sigma_B = 5\text{MPa}$, $t_r = 519\text{hr}$, (e) $\sigma_B = 20\text{MPa}$, $t_r = 30\text{min}$.

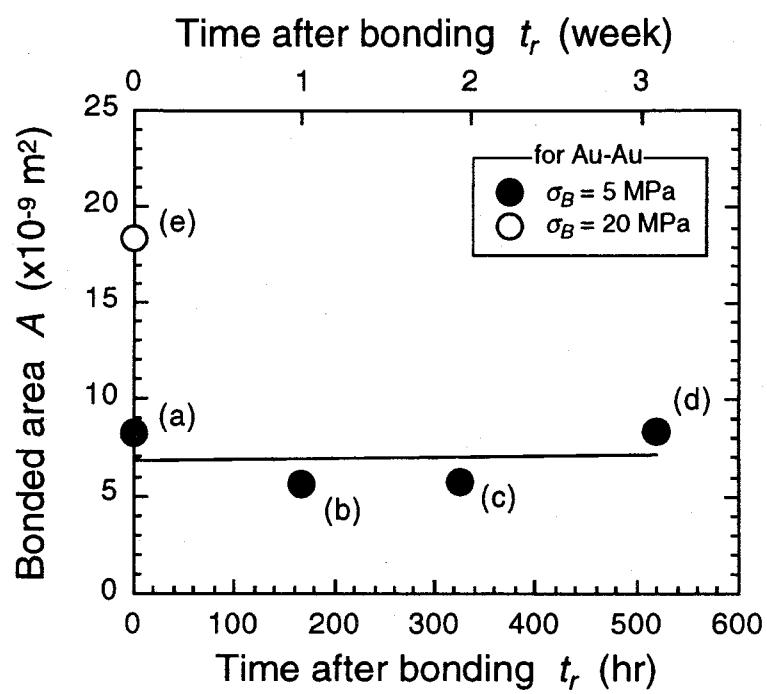


Fig. 3-8 Change in bonded area with time after bonding.

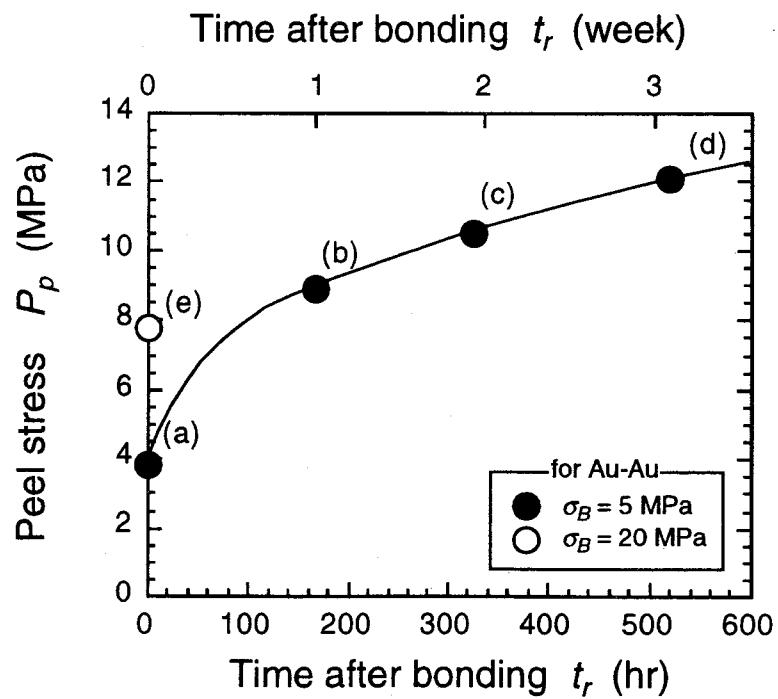


Fig. 3-9 Change in peel stress with time after bonding.

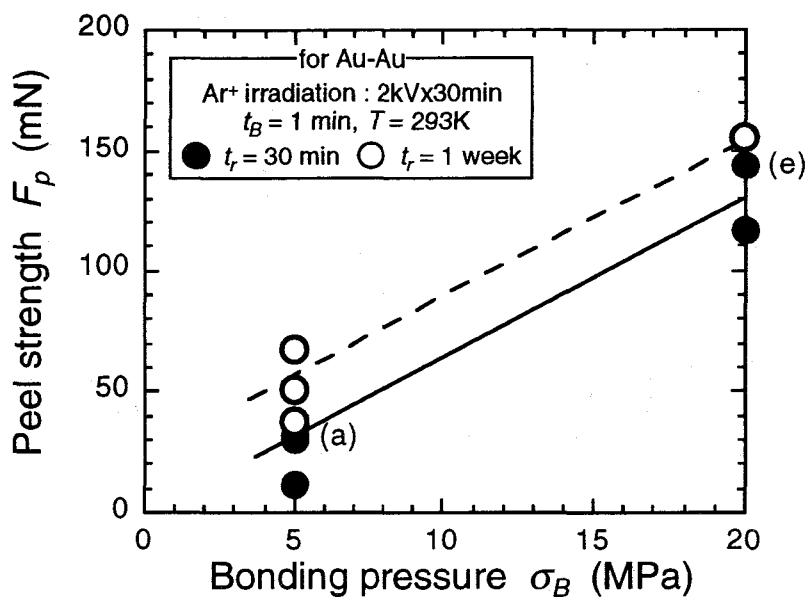


Fig. 3-10 Effect of bonding pressure on increase of bond strength.

いても約1/10の強度にとどまっている。これは、引張試験時に接合領域の周辺部で何らかの応力集中があったためと考えられる。

3. 2. 2 接合応力の影響

次に, Fig. 3-10 は接合1週間後までの接合強度の上昇に及ぼす接合応力の影響を見たものである。この図から分かるように、接合応力が5 MPa の場合は、約2倍程度まで接合強度が上昇しているのに比べて、20 MPa の場合では、約20 %程度の強度上昇にとどまっている。また、図中の試料(e)の破断面のSEM写真を Fig. 3-7 (e)に、またこの写真から計測した接合面積を Fig. 3-8 の図中(e)に示す。両図中の(a)と比較すると、接合応力の増加によって接合面積(接合幅)が拡大していることが分かる。また、Fig. 3-9 (e)は接合強度を応力で表したものであるが、図中(a)に比べて、接合直後から高い界面強度が得られている。

3. 3 実験結果に基づく接合強度の支配要因の検討

前節で得られた実験結果の中では注目されるのは、接合面積がほとんど変化していないにもかかわらず接合強度が上昇している、すなわち単位面積当たりの強度が上昇している点である。このことは、強度の上昇が接合界面内部での応力状態の変化によることを示唆している。

さらに、接合強度の支配要因を考えるにあたっては次の2点が重要である。

(1) 100 K程度の温度変化によって、強度上昇の速度が非常に異なっていること

前章で考察したように「時間」に関係する機構の中で、今回の実験の温度範囲で強度上昇に関係しうるのは拡散機構である。拡散係数は100 Kの温度変化によって3～4桁変化することも起こりうる。接合面積にほとんど変化が見られないことから分かるように、空孔の拡散量は一般的な高温での拡散接合[25]に比べて非常にわずかであると考えられるものの、接合界面内部で空孔拡散を介した応力緩和現象が生じたために、接合強度が変化した可能性は非常に高い。

(2) 接合応力が高い場合には、接合直後から単位面積当たりの強度が高く、また応力の低い場合に比べて強度の上昇の割合が少ないこと

接合応力の異なる2つの試料間で、応力除去直後において既に単位面積当たりの強度が異なっているのは、これらの接合界面における応力状態の違い、さらに言えば、残留応力の有無によるものと考えられる。すなわち、接合応力が高く、界面近傍が塑性変形主体の変形となった場合、その領域での残留応力は少なくなると考えられ、一方、応力が低く、弾性変形主体の変形では、Fig. 2-3(d)で示したように大きな残留応力が生じてしまうと考えられる。

さらに前章で示したように、応力緩和現象は空孔拡散による弾性回復によって生じると考えられることから、弾性変形主体となる低荷重域で強度の上昇の割合が大きい実験結果はこの点でも拡散による応力緩和の可能性を示唆している。

3. 4 結言

本章ではまず、アルゴンイオンビームによる表面清浄化装置を備え、最高到達圧力 1.0×10^{-8} Pa の接合室を持つ常温接合装置を製作した。そしてこの装置を用いて接合後の保持温度及び接合応力をパラメータとした常温凝着接合実験を行い、接合強度の支配要因について検討した。本章で得られた結果をまとめると以下のようになる。

(1) 接合後、室温(293 K)で保持した試料では 3 週間にわたって接合強度の上昇が見られたのに対し、253 K で保持した試料では、2 週間後においても強度の上昇は見られなかった。また 343 K で保持した試料では接合後 15 時間程度で接合強度はほぼ 2 倍に上昇した。これらの試料の接合部破断面を SEM 観察したところ、接合強度の上昇に対応するほどの接合面積の増加は認められなかった。これらの結果は、強度の上昇が接合界面内部での応力状態の変化によること、また応力状態の変化が界面内部での空孔拡散を介した応力緩和現象によることを示唆している。

(2) 接合応力が 5 MPa の場合には、接合直後の単位面積当たりの強度は約 4 MPa であったのに対し、20 MPa の場合には約 8 MPa となった。また、接合 1 週間後までの接合強度の上昇に及ぼす接合応力の影響を見ると、接合応力が 5 MPa の場合は、約 2 倍程度まで接合強度が上昇しているのに比べて、20 MPa の場合では、約 20 % 程度の強度上昇にとどまっている。これは応力が高くなるに従って界面近傍が塑性変形主体の変形となり、接合応力除去後に残留応力が小さくなることから、接合直後から高い強度が得られ、また応力緩和による強度上昇の効果も現れにくくなつたためと考えられる。

第4章 空孔拡散による応力緩和過程の数値計算手法

本章では、第2章での考察に基づいて接合部をモデル化し、接合界面における空孔拡散の過渡現象を表現する基礎方程式を導出する。そして、界面拡散による応力緩和過程の数値計算手法について説明する。

4. 1 計算モデル

4. 1. 1 接合部のモデル化と前提条件

接合部のモデル化にあたって次のような前提条件を設ける。

- (1) 霧囲気は超高真空であり、表面は物理化学的に清浄であるとみなせる。
- (2) 母材の変形は十分に小さく、また、クリープ（粘塑性）変形及び粘弾性変形は生じない。
- (3) 接合界面近傍に界面拡散層 δ_b を仮定し、界面拡散は原子或いは空孔がこの拡散層内を移動することによって生じる。
- (4) 接合に対する体積拡散の寄与は界面拡散のそれに比べて十分小さく、無視できる。
- (5) 表面拡散係数は界面拡散係数に比べて十分大きく、界面から掃き出された物質は表面に分配されるため、接合を律速しない。

以上のような前提条件の下で、Fig. 4-1 に示すような、ワイヤを基板に接合する場合を考える。ワイヤおよび基板は十分に長く、2次元モデル（平面ひずみ）によって接合現象を記述できると仮定した。ワイヤ上部から与えられる接合荷重によってワイヤと基板が接触し、弾塑性変形によって密着部が形成される。その後、界面に生じた応力分布に起因する空孔拡散によって接合が進行するものとした。

Table 4-1, Table 4-2 に本論文で使用する主な記号、物性値を示す。

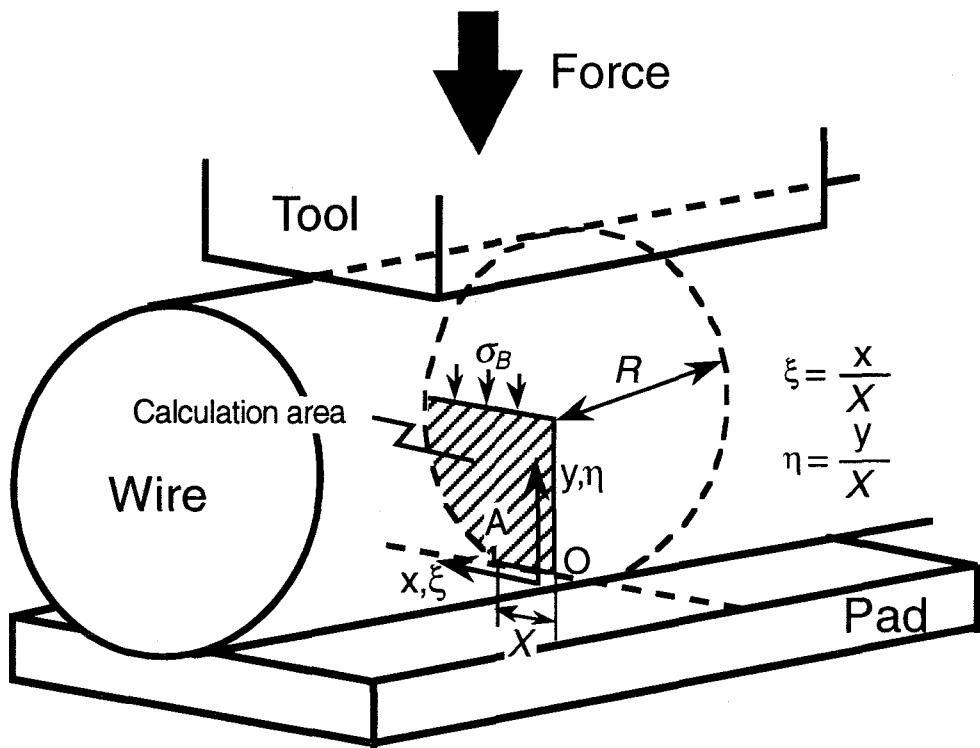


Fig. 4-1 Schematic illustration of numerical model.

4. 1. 2 塑性変形を考慮した界面での応力分布

ワイヤと基板とが接触することによって生じる応力分布は、JKR理論[19]に基づいて決定した。応力が塑性域に入る場合は、Fig. 4-2 に示すような、力の釣り合いのみを考慮した簡便法を用いて降伏現象を考慮した。この時、圧縮側では斜線部A, Bの面積が等しくなるように接触幅を増加させ、引張側では斜線部C, Dの面積が等しくなるよう応力分布を補正した。降伏条件 σ_{yield} は、von Mises の条件を用いて、平面ひずみのすべり線場解析[37]から、

$$\sigma_{yield} = \frac{2}{\sqrt{3}} \left(1 + \frac{\pi}{2}\right) \sigma_Y \approx 3\sigma_Y \quad (4-1)$$

と与えられる。ただし、 σ_Y は単純引張での降伏応力である。

接合荷重を除去した後の応力分布については、荷重除去後も界面が剥離しないと仮

Table 4-1 Main symbols in the present study.

Symbols	Name of symbols	Symbols	Name of symbols
R	Radius of wire	ν	Poisson's ratio
X	Half of bonded width	G	Shear modulus
σ_B	Bonding pressure	D_b	Boundary self-diffusion coefficient
r	Radius of curvature at the edge of bonded area	D_{b0}	Frequency factor of D_b
T	Temperature	Q_b	Activation energy of boundary self-diffusion
T_m	Melting point	γ_b	Boundary tension
t	Time	γ_s	Surface tension
t_B	Bonding time	$\Delta\gamma$	Dupré energy of adhesion
t_r	Time after bonding	Ω	Atomic volume
k	Boltzmann's constant	δ_b	Thickness of bonded interface ($= 2 \times \delta$)
$\Delta\mu$	Excess chemical potential	E	Young's modulus
u_r	Rigid body displacement	σ_Y	Yield stress
u_e	Elastic body displacement		

定し、連続き裂に対する Muskhelishvili の応力分布[38],

$$T_r(\xi) = \sqrt{2}\sigma_B \frac{\sin \frac{\pi(R - X\xi)}{2R}}{\sqrt{\cos \frac{\pi(R - X)}{R} - \cos \frac{\pi(R - X\xi)}{R}}} \quad (4-2)$$

を上述の方法で塑性域補正した応力分布を、荷重除去直前の応力分布に重ね合わせることによって計算した。

また、ワイヤと基板との接触界面端部の曲率半径の初期値 r_0 については、上で計算した接触幅 X を用いて、Fig. 4-3 の 2 つの斜線部 (OO'B と ABC) の面積が互いに等しく、かつ点 C でワイヤに接するような曲率半径として計算した。

Table 4-2 Physical properties of gold.

Name of properties (unit)	Symbols	Value
Poisson's ratio	ν	0.42
Melting point (K)	T_m	1336
Thickness of bond-interface (m)	$\delta_b^{(*)}$	5.76×10^{-10}
Atomic volume (m ³)	Ω	1.70×10^{-29}
Surface tension (J/m ²)	γ_s	1.485
Boundary tension (J/m ²)	γ_b	0.36
Shear modulus (N/m ²)	$G(T)$	$G(T) = a_G(T/T_m)^2 + b_G(T/T_m) + c_G$ $a_G = -9.88215 \times 10^9$ $b_G = -6.20764 \times 10^9$ $c_G = 3.10090 \times 10^{10}$
Young's modulus (N/m ²)	$E(T)$	$E(T) = 2(1+\nu)G(T)$
Boundary self-diffusion coefficient (m ² /s)	$D_b^{(*)}$	$D_b = D_{b0} \exp(-Q_b/RT)$ $D_{b0} = 1.0 \times 10^{-5}$ (m ² /s) $Q_b = 0.870 \times 10^5$ (J/mol)
Yield stress (N/m ²)	$\sigma_Y(T)$	$\sigma_Y(T) = \sigma_{Y0} G(T)/G(T_0) \times \Gamma(T)$ $\sigma_{Y0} = 1.0 \times 10^8$ (N/m ²) $T_0 = 300$ (K) $\Gamma(T) = a_\Gamma(T/T_m)^3 + b_\Gamma(T/T_m)^2 + c_\Gamma(T/T_m) + d_\Gamma$ $a_\Gamma = 0.0$ $b_\Gamma = -0.854965$ $c_\Gamma = 0.342016$ $d_\Gamma = 0.95905$

(*) $\delta_b D_b$ cannot inherently be separated, because this term means flow of atoms (or vacancies) in the vicinity of bond-interface. Here, δ_b , D_b are treated separately for convenience in modelling.

4. 2 界面拡散過渡現象の定式化及び数値計算方法

4. 2. 1 界面拡散過渡現象を表現する基礎方程式の導出

界面自己拡散による接合過程の定式化は、文献[27,39]と同様に次のようにして行った。接合部に Fig. 4-1 のように(x-y), (ξ - η)座標系を定義する。ただし、 $\xi = x/X$, $\eta = y/X$ である。

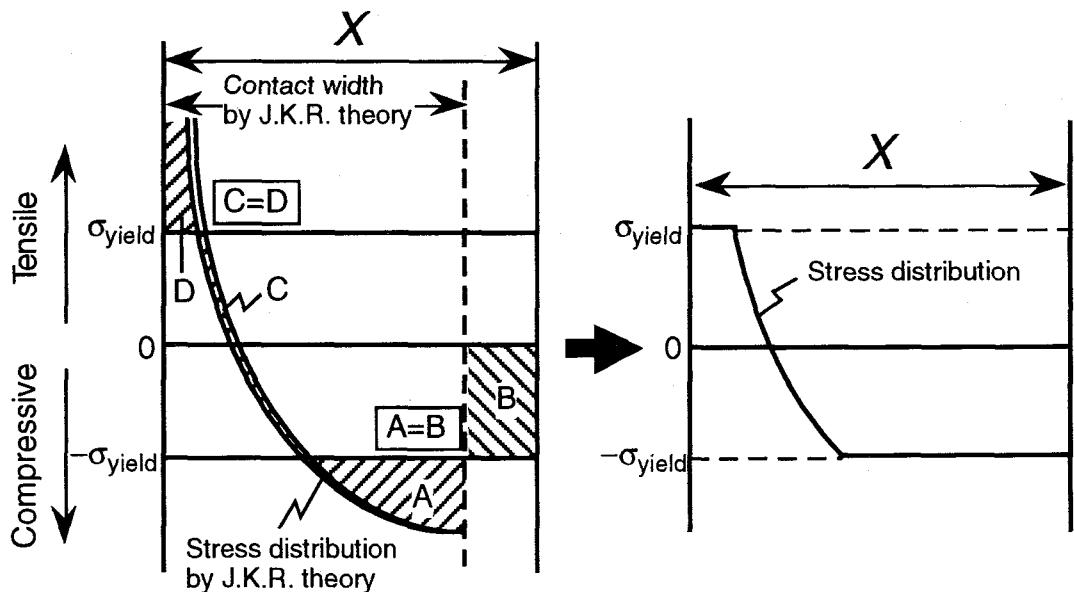


Fig. 4-2 Method for modifying stress distribution.

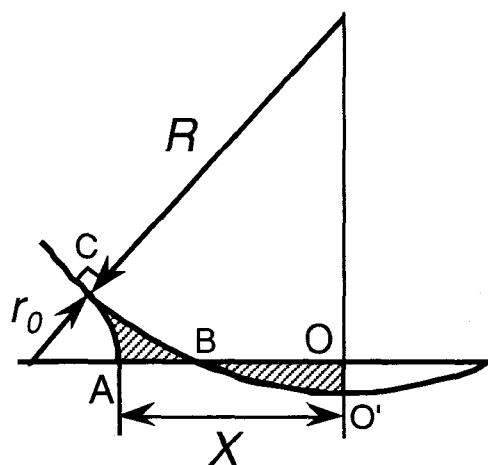


Fig. 4-3 Method for initial radius of curvature at the edge of bond-interface.

まず、Fick の法則から、原子の拡散流束 J_b は、

$$J_b = -\frac{D_b}{kT\Omega} \text{grad } \Delta\mu \quad (4-3)$$

となる[39]. 特に、接合界面では仮想仕事の原理から、界面に作用する垂直応力 $T_n(x)$ と $\Delta\mu$ との間に、

$$\Delta\mu = -T_n(x) \Omega \quad (4-4)$$

という関係があるので、式(4-3), (4-4)から、

$$J_b = \frac{D_b}{kT} \operatorname{grad} T_n \quad (4-5)$$

となる。この式から界面に作用する垂直応力とその勾配によって生じる拡散流束との関係が理解できる。

接合界面における界面自己拡散は、Fig. 4-4 に示すような界面拡散層を原子が流れることによって生じる。この界面拡散層での質量保存則から、

$$\frac{\partial u}{\partial t} + \delta \Omega \beta = 0 \quad (4-6)$$

が成り立つ。ただし、 u はバルクの変位、 β はバルクを構成している原子が単位時間に

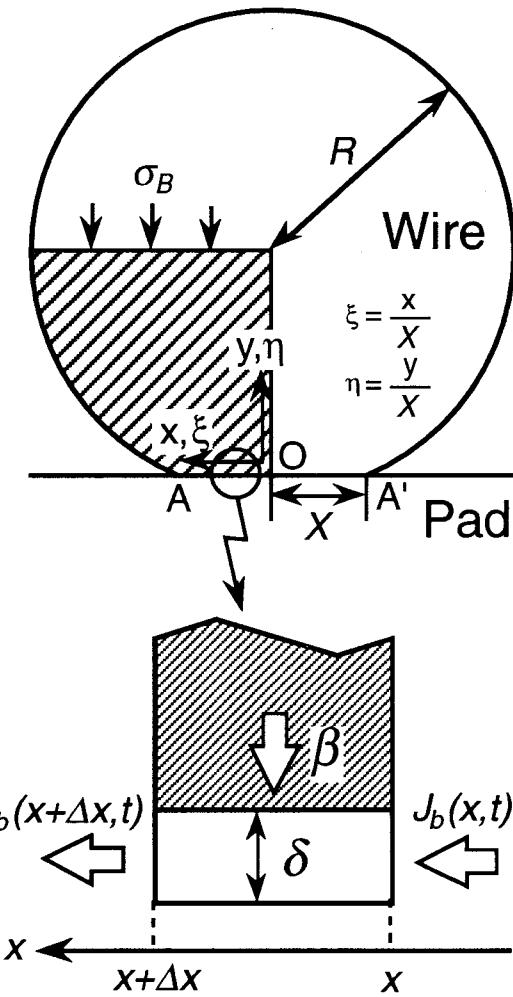


Fig. 4-4 Schematic illustration of bond-interface.

単位体積当たりに界面に湧き出る原子数であり,

$$\beta = \operatorname{div} J_b = \frac{\partial J_b}{\partial x} \quad (4-7)$$

である。式(4-5), (4-6), (4-7)より

$$\frac{\partial u}{\partial t} = -\frac{\delta \Omega D_b}{kT} \operatorname{div} \operatorname{grad} T_n = -\frac{\delta \Omega D_b}{kT} \nabla^2 T_n \quad (4-8)$$

となる。

この微小変位量 Δu は、原子が接合端部で界面から表面に流出（或いは表面から界面に流入）し、バルクが陥没（流入した場合は上昇）して生じる剛性変位 Δu_r とバルクの弾性的な伸縮による弾性変位 Δu_e とに分割して考えることができる。Fig. 4-5 はこれを表した模式図である。従って、 Δu と Δu_r 、 Δu_e との間には次式が成り立つ。

$$\frac{\partial u}{\partial t} = \frac{\partial u_r}{\partial t} + \frac{\partial u_e}{\partial t} \quad (4-9)$$

剛性変位量 Δu_r に関しては、接合端部における流束を用いて、

$$-\Delta u_r \cdot X \cdot 1 = J_b|_{x=X} \cdot \delta \cdot 1 \cdot \Delta t \cdot \Omega \quad (4-10)$$

となるので、

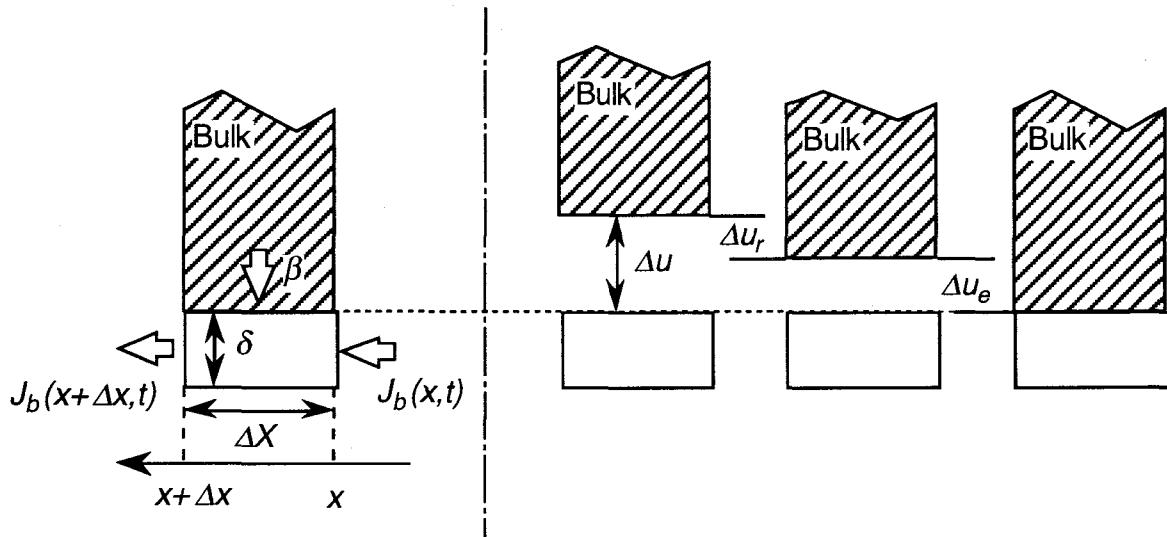


Fig. 4-5 Schematic illustration of bulk displacement which consists of elastic and rigid body displacement.

$$\frac{\partial u_r}{\partial t} = -\frac{\delta \Omega D_b}{kTX} \text{grad} T_n|_{x=X} \quad (4-11)$$

と表せる。

弾性変位量 Δu_e に関しては、弾性論から次のようにして計算できる。

先の Fig. 4-4 の斜線部に次のような応力関数を定義する。

$$\Phi(\xi, \eta) = \Theta \sum_{n=1}^{\infty} c_n (1 + a_n \eta) \exp(-a_n \eta) \sin(a_n(1 - \xi)) + \frac{1}{2} \frac{\gamma_s}{r} (X\xi)^2 \quad (4-12)$$

$$a_n = \frac{2n-1}{2} \pi \quad (4-12a)$$

$$\Theta = X \left(\frac{\gamma_s}{r} X - R \sigma_B \right) \quad (4-12b)$$

$$\sum_{n=1}^{\infty} c_n a_n = 1 \quad (4-12c)$$

なお、最後の項は表面張力に起因するものであり、(4-12a)は $x = 0$ のところで対称なモデルであること、(4-12b)、(4-12c)は計算領域の最上部で力の釣り合い条件を満足する必要があることから得られる境界条件である。この応力関数から、界面での y 方向の応力分布 σ_y が、

$$\sigma_y = \frac{\Theta}{X^2} \sum_{n=1}^{\infty} c_n (1 + a_n \eta) \exp(-a_n \eta) (-a_n^2) \sin(a_n(1 - \xi)) + \frac{\gamma_s}{r} \quad (4-13)$$

と表せる。ただし c_n は応力分布をフーリエ級数近似する際の係数である。

ここで、平面ひずみであるという条件から、ひずみの y 成分 ε_y は、

$$\begin{aligned} \varepsilon_y &= \frac{1}{E} \{ \sigma_y - v(\sigma_z + \sigma_x) \} \\ &= \frac{(1+v)\Theta}{EX^2} \sum_{n=1}^{\infty} c_n (1 - 2v + a_n \eta) \exp(-a_n \eta) (-a_n^2) \sin(a_n(1 - \xi)) + \frac{(1-v^2)\gamma_s}{Er} \end{aligned} \quad (4-14)$$

となる。弾性変位量 u_e は ε_y の積分値として得られるので、その不定積分を求めるとき、

$$\begin{aligned} \int \varepsilon_y dy &= \frac{(1+v)\Theta}{EX} \sum_{n=1}^{\infty} c_n a_n (2 - 2v + a_n \eta) \exp(-a_n \eta) \sin(a_n(1 - \xi)) \\ &\quad + \frac{(1-v^2)\gamma_s X \eta}{Er} + \text{Const.} \end{aligned} \quad (4-15)$$

となる。ただし、*Const.* は積分定数である。 Δt の間の界面での弾性変位量 Δu_e は、無限遠方での弾性変位を基準として、

$$\Delta u_e = \left[\int_{\infty}^0 \varepsilon_y dy \right]_{t=t+\Delta t} - \left[\int_{\infty}^0 \varepsilon_y dy \right]_{t=t} = \left[\frac{2(1-\nu^2)\Theta}{EX} \sum_{n=1}^{\infty} c_n a_n \sin(a_n(1-\xi)) \right]_{t=t}^{t+\Delta t} \quad (4-16)$$

と表せる。よって、

$$\frac{\partial u_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial t} \left[\frac{2(1-\nu^2)\Theta}{EX} \sum_{n=1}^{\infty} c_n a_n \sin(a_n(1-\xi)) \right] \quad (4-17)$$

となる。また、式(4-8), (4-11)に(4-13)を代入することにより、

$$\frac{\partial u}{\partial t} = -\frac{\delta \Omega D_b \Theta}{kTX^4} \sum_{n=1}^{\infty} c_n a_n^4 \sin(a_n(1-\xi)) \quad (4-18)$$

$$\frac{\partial u_r}{\partial t} = -\frac{\delta \Omega D_b \Theta}{kTX^4} \sum_{n=1}^{\infty} c_n a_n^3 \quad (4-19)$$

となる。以上をまとめると、式(4-9)から

$$\frac{\partial}{\partial t} \left[\frac{2(1-\nu^2)\Theta}{EX} \sum_{n=1}^{\infty} c_n a_n \sin(a_n(1-\xi)) \right] = \frac{\delta \Omega D_b \Theta}{kTX^4} \left\{ \sum_{n=1}^{\infty} c_n a_n^3 - \sum_{n=1}^{\infty} c_n a_n^4 \sin(a_n(1-\xi)) \right\} \quad (4-20)$$

という関係式が得られる。これが界面拡散過渡現象を表す基礎方程式となる。

なお、接合端部における界面から表面への物質移動に関しては、Fig. 4-6 に示すように、界面から掃き出された物質が B 点を通り、2 つの斜線部 (OO'AB と ABC) の面積が等しく、かつ点 C でワイヤに接するようなある曲率半径 r をもって表面に堆積すると仮定して計算を行った。表面から界面に物質が流入する場合も同様である。

4. 2. 2 基礎方程式の数値計算方法

前項における式(4-20)が界面拡散現象を表す基礎方程式となるが、 c_n と X の両方が時間に依存するため、解析的にこれらを求めるることは困難である。そこで式(4-20)において微小時間 Δt を設定し、その間は X が一定であるとする。関数の直交性を利用して両辺に $\sin(a_m(1-\xi))$ をかけ、 $\xi = 0$ から $\xi = 1$ まで積分することにより、

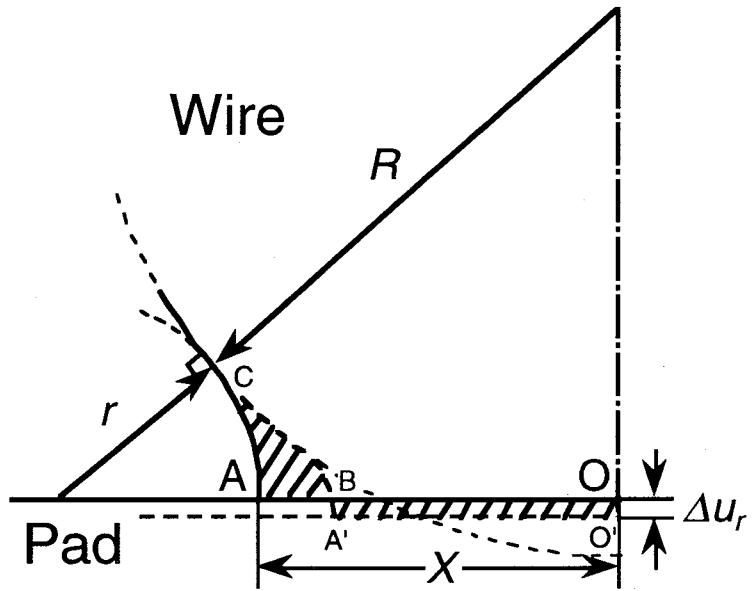


Fig. 4-6 Method for calculating radius of curvature at the edge of bond-interface.

$$\Delta c_m = \frac{E\delta\Omega D_b}{2(1-\nu^2)kTX^3} \left(\frac{2}{a_m^2} \sum_{n=1}^{\infty} c_n a_n^3 - c_m a_m^3 \right) \Delta t \quad (4-21)$$

が得られる。式(4-21)から、 Δt を与えることによって c_n の変化量 Δc_n が計算でき、式(4-13)によって応力分布の変化を知ることができる。

実際の計算においてはタイムパラメータを

$$\tau = \frac{2(1-\nu^2)kTX^3}{E\delta\Omega D_b} \quad (4-22)$$

と定義し、 $\Delta t/\tau$ が十分小さくなるような時間ステップ Δt を与えて計算を行った。 τ が大きくなると Δt も大きくなり、応力緩和に必要な時間も長くなる。従って、 τ は応力緩和に必要な時間を表す指標となる。計算のフローチャートを Fig. 4-7 に示す。フローチャートの前半は接合中、後半は接合荷重除去後を示している。反復計算中は前述の規格化条件、

$$\sum_{n=1}^{\infty} c_n a_n = 1 \quad (4-12c)$$

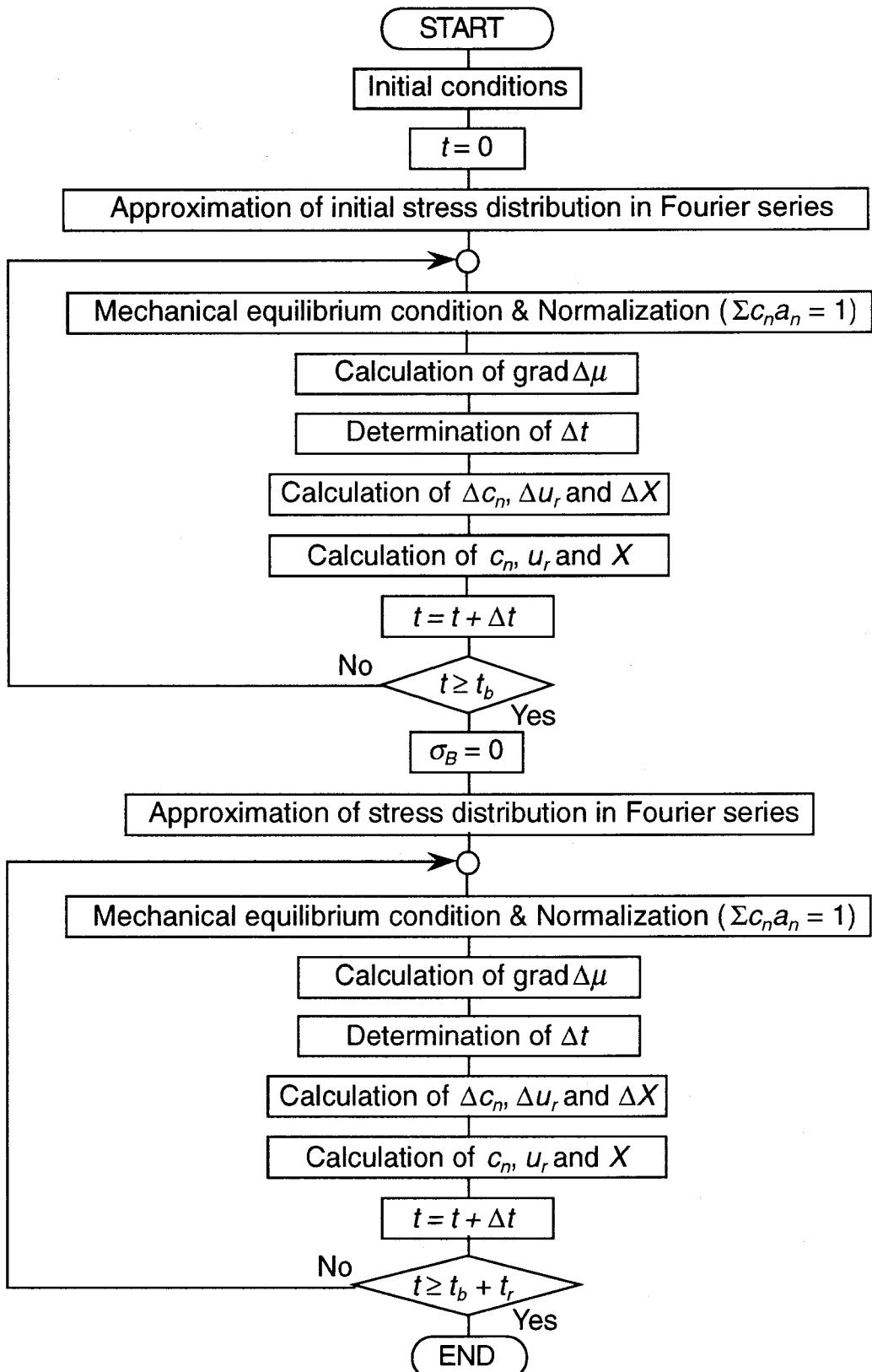


Fig. 4-7 Flowchart for numerical calculation.

を満足するように配慮している。この規格化条件は無限級数からなる応力関数を次項で述べる残差法近似する際の補正条件となっている。なお、 n 及び Δt の最適値については後項で検討する。

4. 2. 3 初期応力分布の残差法近似の方法

前節で求めた初期応力分布は連続関数ではないため、そのフーリエ級数近似に際しては、まず応力分布を m 個に分割し、その各点 $\xi_k (k = 1 \sim m)$ での応力 $T(\xi_k)$ を求め、これと級数近似式、

$$T_n(\xi) = \frac{\Theta}{X^2} \sum_{n=1}^{\infty} c_n (-a_n^2) \sin(a_n(1-\xi)) + \frac{\gamma_s}{r} \quad (4-23)$$

との残差2乗和、

$$S = \sum_{k=1}^m (T_n(\xi_k) - T(\xi_k))^2 \quad (4-24)$$

が最小になる条件から係数 c_n の初期値を算出した。 c_n は連立方程式、

$$[a_{ij}] [x_j] = [b_i] \quad (4-25)$$

ただし、

$$a_{ij} = \sum_{k=1}^m \sin(a_i(1-\xi_k)) \sin(a_j(1-\xi_k)) \quad (4-25a)$$

$$b_i = \frac{X^2}{\Theta} \sum_{k=1}^m (T(\xi_k) - \frac{\gamma_s}{r}) \sin(a_i(1-\xi_k)) \quad (4-25b)$$

$$x_j = (-a_j^2) c_j \quad (4-25c)$$

を解くことにより決定できる。なお本研究では、近似の精度を考慮して、 $m = 1000$ とした。

4. 2. 4 n 及び Δt の最適値の決定

Fig. 4-8 は、初期応力分布をフーリエ級数近似した場合の、残差 2 乗和 S に対する n の影響を示したものである。 n を増加させた方が、初期応力分布との誤差は減少するが、減少の程度は接合応力に大きく影響される。これは、Fig. 4-9 に示すように、高応力になると、接合部中央の圧縮の塑性変形域の割合が増加し、接合端部の引張応力分布が急峻な形状となり、 n が小さい場合には端部での誤差が大きくなるためである。従って本研究では、 $\sigma_B = 5 \text{ MPa}$ 以下の計算を行う場合には、計算時間短縮のため $n = 25$ とし、これ以上の高応力の計算では $n = 100$ とすることにした。

また、Fig. 4-10 は、計算開始から時間ステップ Δt 経過後の応力分布の計算結果である。なお、 $n = 25$ である。 $\Delta t / \tau = 10^{-4}$ では時間ステップが大きすぎるために計算が発散しており、 $\Delta t / \tau = 10^{-6}$ 以下であれば、正常に計算が進行していることが分かる。ただし、この場合、 τ は 10^9 s 程度の非常に大きな値となるため、 $\Delta t / \tau = 10^{-6}$ 程度の時間ステップでは、1 ステップが数時間に相当する。後章で実験結果と計算結果との比較

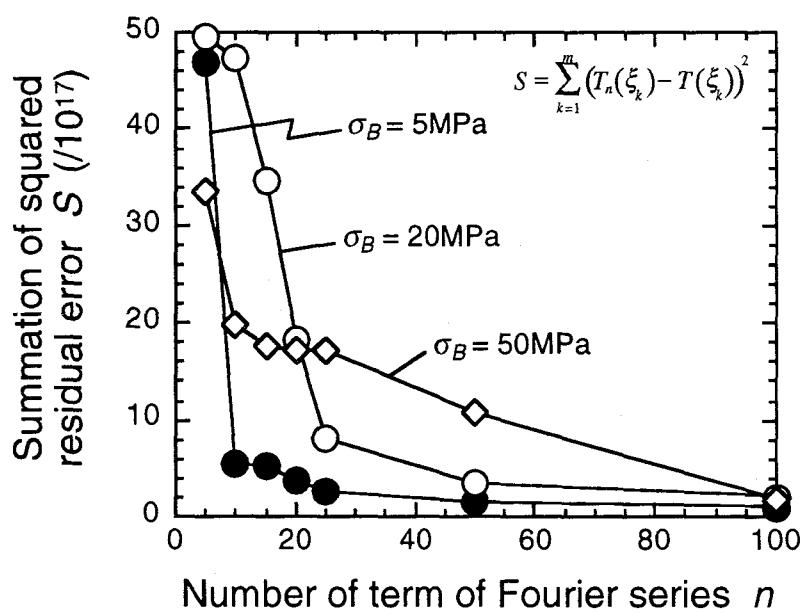


Fig. 4-8 Effect of number of term in Fourier approximation on summation of squared residual error.

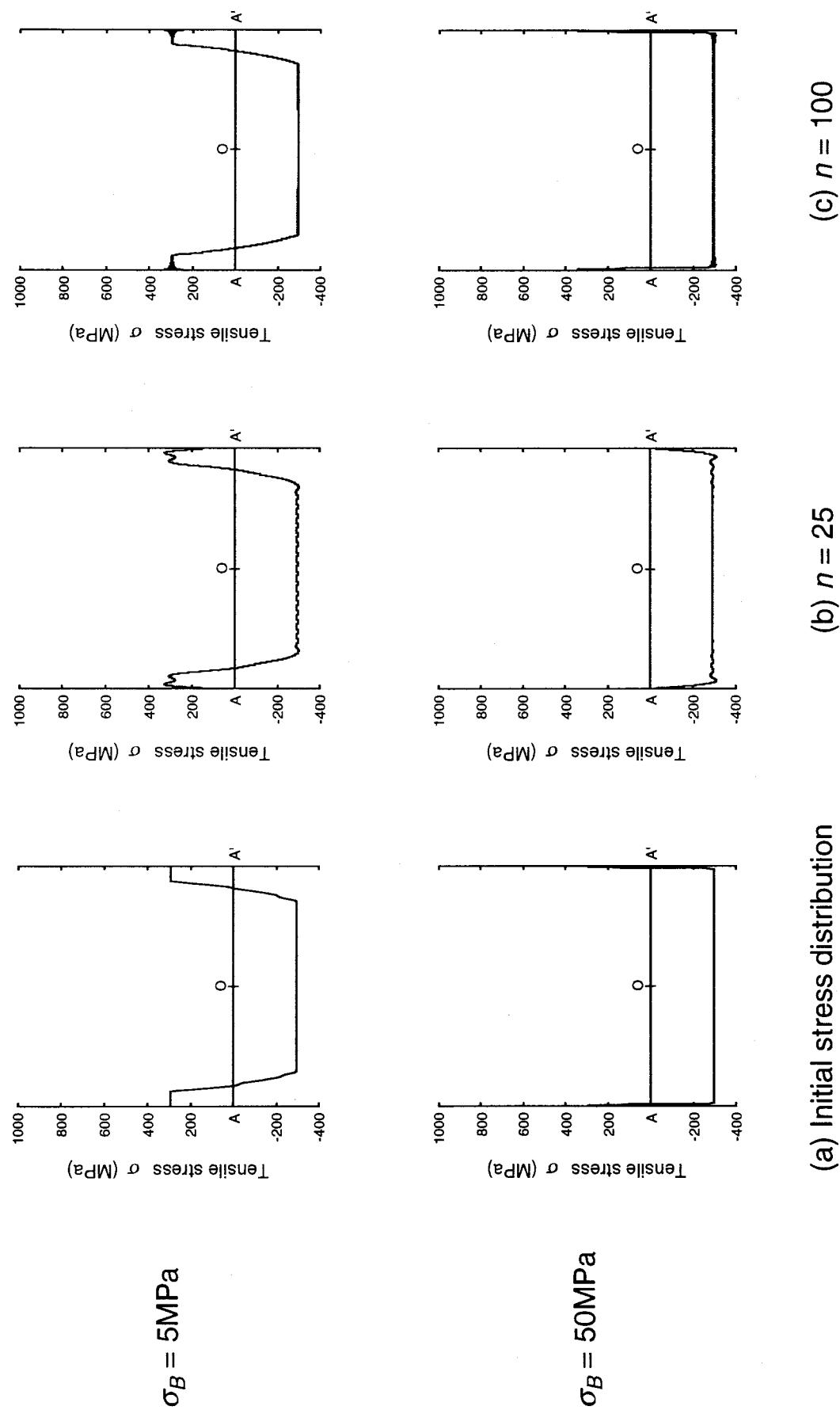
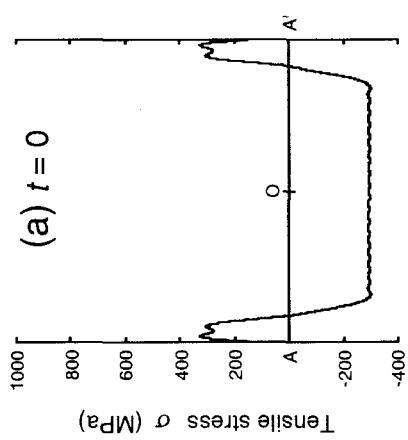


Fig. 4-9 Fourier approximation of stress distribution. (a) approximated distribution, (b) terms of Fourier series $n = 25$, (c) $n = 100$.



after one time step Δt

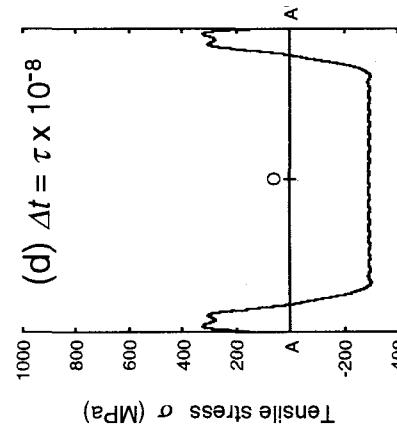
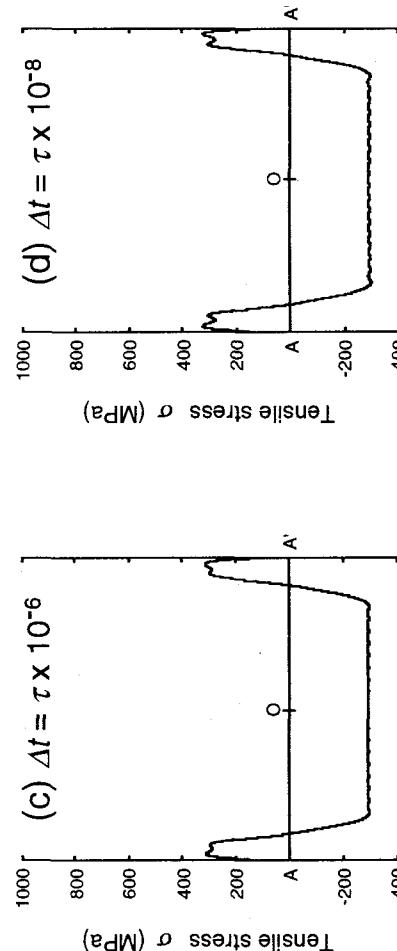
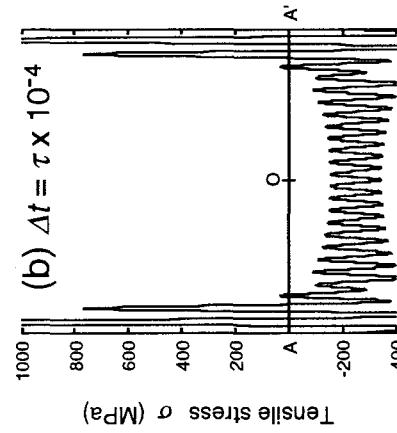


Fig. 4-10 Influence of time step on calculation. Stress distribution at (a) $t = 0$,
 (b) $t = \Delta t = \tau \times 10^{-4}$, (c) $t = \Delta t = \tau \times 10^{-6}$, (d) $t = \Delta t = \tau \times 10^{-8}$.

を行う関係上、1ステップは数十秒程度が望ましく、本研究では、 $\Delta t/\tau = 10^{-8}$ を採用することにした。

4. 3 接合界面での応力分布の時間的変遷

前節までに構築した応力緩和過程のシミュレータを利用して、半径 $R = 50 \mu\text{m}$ のAuワイヤとAu基板とを接合応力 $\sigma_B = 20 \text{ MPa}$ で接合した場合の、接合界面における応力分布の時間的変遷を数値計算した。Fig. 4-11は材料を完全弾性体と仮定して（すなわち、塑性域補正を行わずに）計算を行った結果である。Fig. 4-11は計算の前半、すなわち接合応力負荷からその除去に至るまでを示している。まず、Fig. 4-11 (a)は、接合直後の応力分布であり、接合時間 $t_B = 60 \text{ s}$ 経過後の応力分布がFig. 4-11 (b)である。これらから分かるように、この程度の接合時間では、応力分布の変化はほとんど見られない。この時点では応力を除去すると、Fig. 4-11 (b)の分布にFig. 4-11 (d)で表されるMuskhelishviliの応力分布を重ね合わせることにより、残留応力分布はFig. 4-11 (c)のようになる。ただしこの図から分かるように、塑性域補正を行わない場合には、応力値がGPa単位の大きなものとなり、実際の応力分布を表しているとは言えない。

そこで次に、Fig. 4-11と同じ接合条件で、塑性変形を考慮した計算結果をFig. 4-12, 4-13に示す。Fig. 4-12は計算の前半を示しており、Fig. 4-13は後半、すなわち接合応力の除去後を示している。Fig. 4-12 (a)から分かるように、この場合、接合領域の大部分で塑性変形が生じている。そして、時間の経過とともにFig. 4-12 (b)の応力分布となり、この時点で接合荷重を除去することによって、Fig. 4-12 (c)の分布に至る。その後、Fig. 4-13 (a)～(c)のように、接合後の時間経過に伴って、接合端部の引張応力が徐々に緩和されて、平坦な応力分布に近づいていくことが分かる。

なお、Fig. 4-12 (c)の応力分布の中央部に見られる山状の圧縮応力は、Muskhelishviliの応力分布（Fig. 4-12 (d)中の破線）を塑性域補正したもの（Fig. 4-12 (d)中の実線）を(b)の応力分布に重ね合わせたことに起因するものである。しかし実際には、もう少し緩やかな圧縮応力分布（Fig. 4-13 (d)）になると考えられる。そこで、これらの2つの応力分布（Fig. 4-13 中の(a)と(d)）の違いが計算結果にどれほどの影響を与えるかを調

Flow of calculation

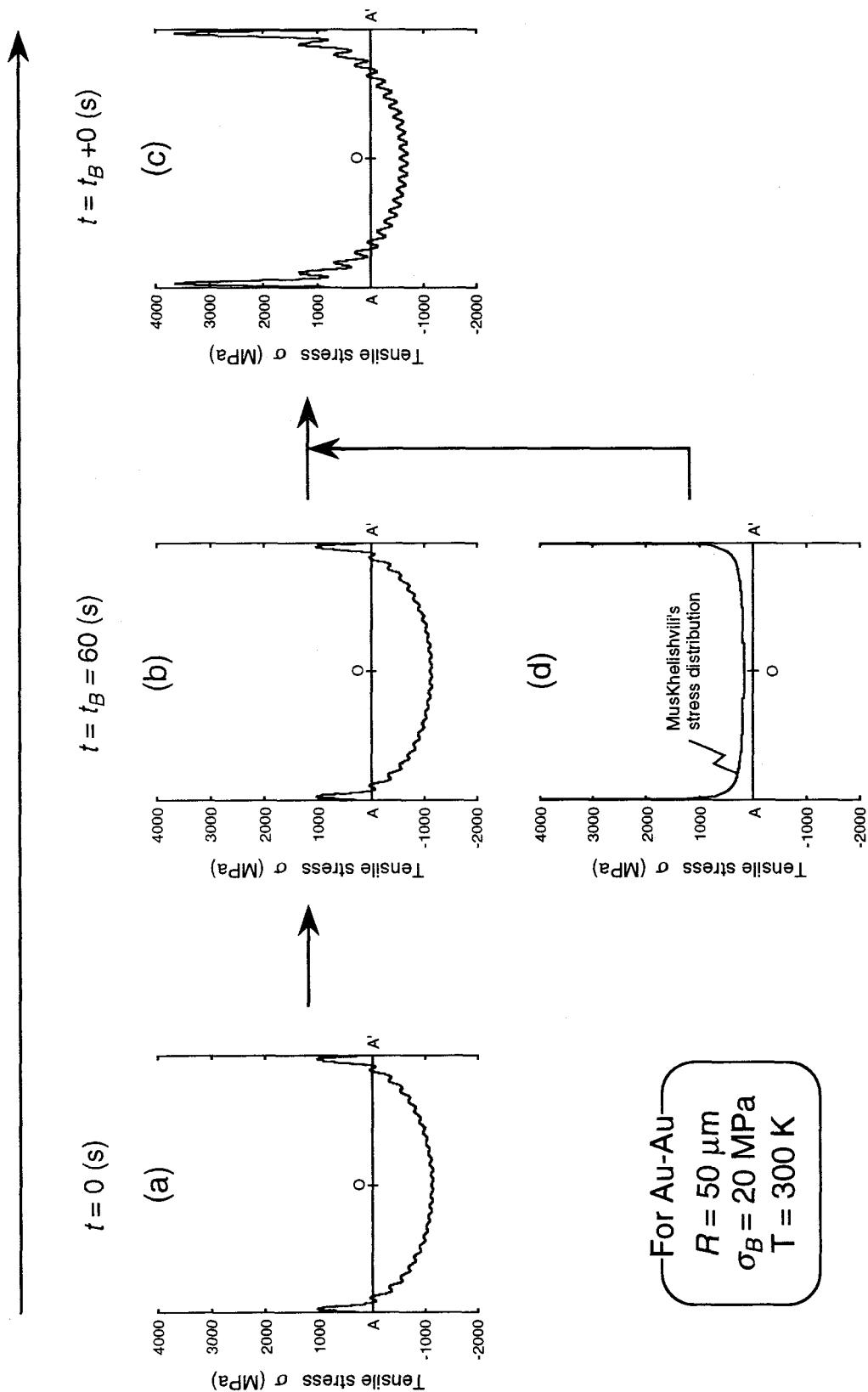


Fig. 4-11 Change in stress distribution with bonding time (elastic solution).
Stress distribution at (a) $t = 0$, (b) $t = t_B = 60 \text{ s}$, (c) $t = t_B + 0$, immediately
after pressure is removed. (d) Muskhelishvili's stress distribution.

Flow of calculation

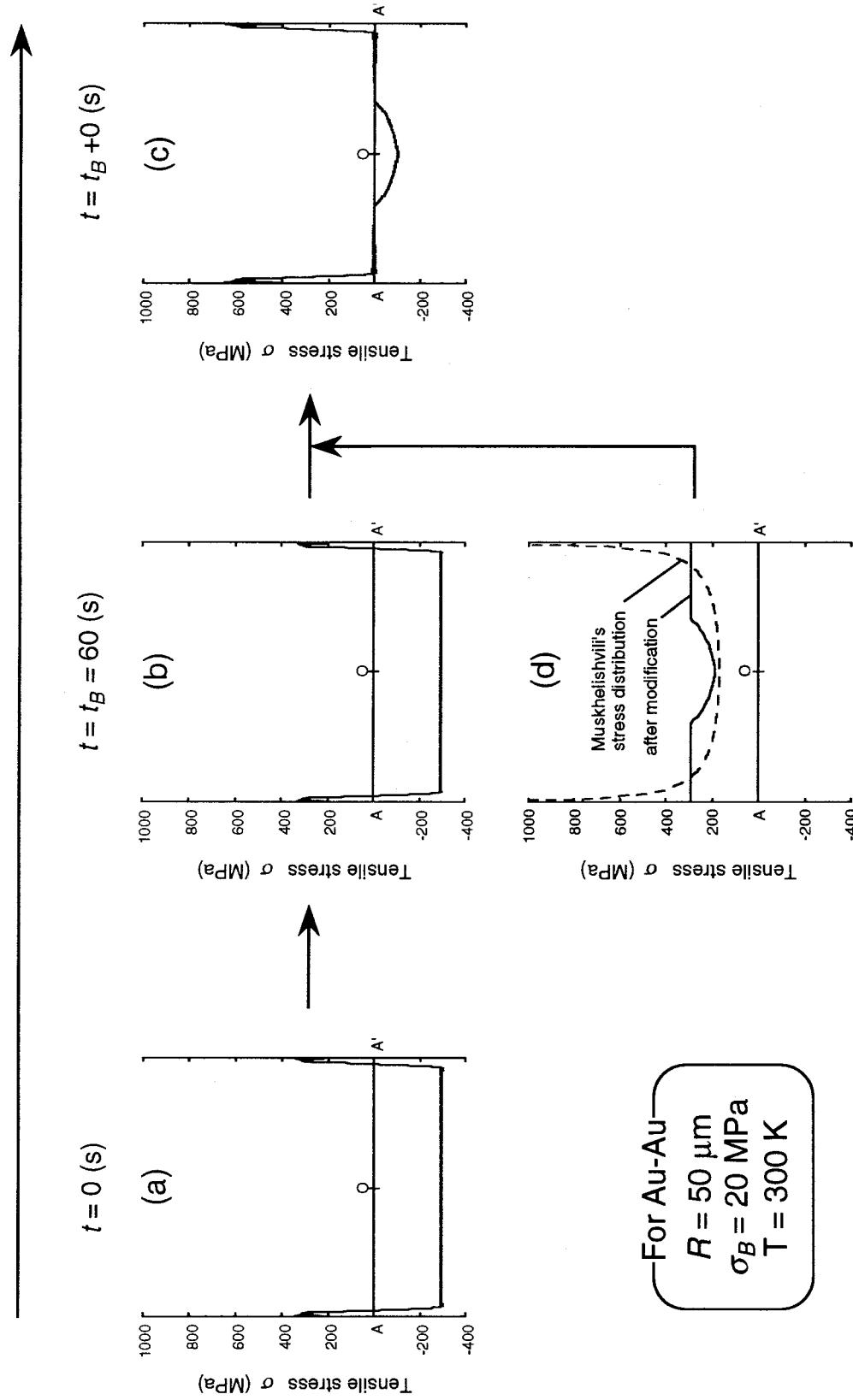


Fig. 4-12 Change in stress distribution with bonding time. Stress distribution at
 (a) $t = 0$,
 (b) $t = t_B = 60 \text{ s}$, (c) $t = t_B + 0$, immediately after pressure is removed.
 (d) Muskhelishvili's stress distribution (broken line) and modified one (solid line).

Flow of calculation

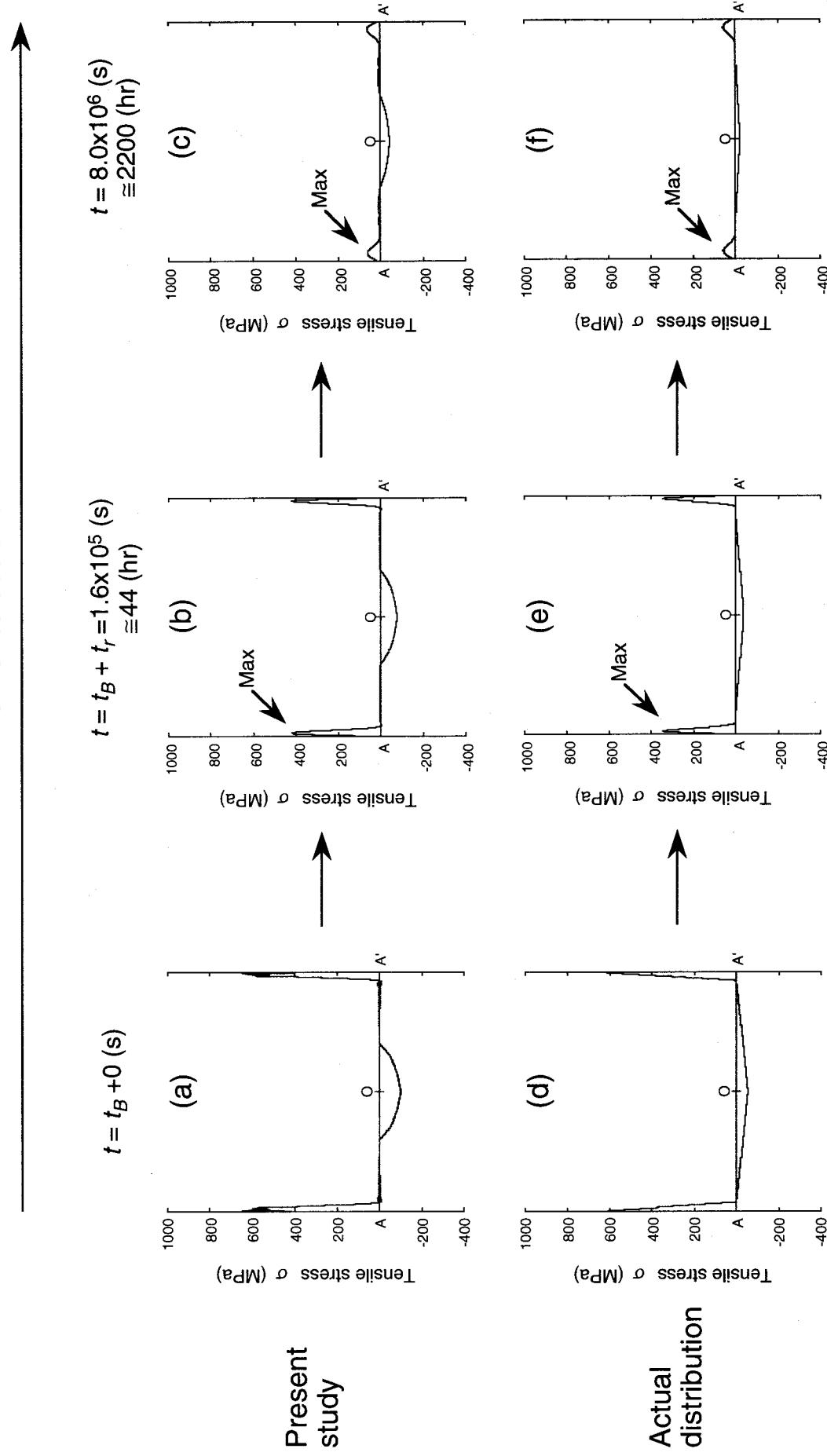


Fig. 4-13 Change in stress distribution with time after bonding.
(Effect of difference in stress distribution on stress relaxation.)
Stress distribution at (a),(d) $t = t_B + 0 = 60 \text{ s}$, (b),(e) $t = t_B + t_r = 1.6 \times 10^5 \text{ s}$, (c),(f) $t = 8.0 \times 10^6 \text{ s}$.

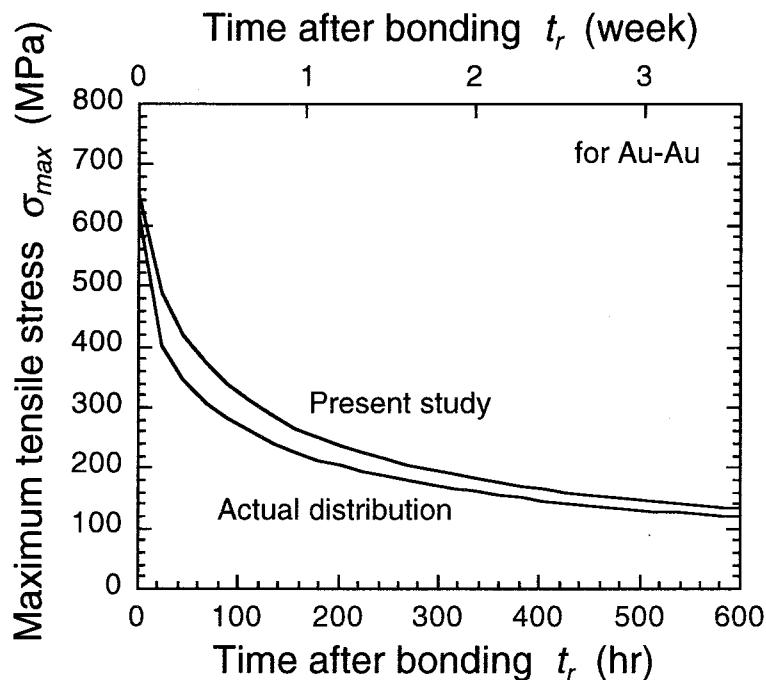


Fig. 4-14 Effect of difference in stress distribution on stress relaxation.

べた。Fig. 4-13 (e)～(f)は、(d)の応力分布で計算を行ったものである。応力の緩和は(e)～(f)の方が若干速く進んでいるが、(b)～(c)との間に、それほど大きな差は見られない。Fig. 4-14 は、Fig. 4-13 (b)(c), (e)(f)中に矢印で示した、接合端部の引張残留応力の最大値 σ_{max} の時間変化を表している。この図から分かるように、緩和過程の初期には最大20 %程度の違いが見られるが、時間の経過とともにその差は小さくなり、最終的には10 %以下となる。従って、これらの応力分布の違いが計算に与える影響は小さいと判断し、以下では Fig. 4-13 (a) と同様の応力分布を用いて計算を行うことにした。

4. 4 結言

本章では、第2章で行った予備的考察をもとに、ワイヤ-基板間の接合部をモデル化し、接合界面における空孔拡散の過渡現象を表現する基礎方程式を導出した。そして、界面拡散による応力緩和過程の数値計算手法について説明し、計算に必要ないいくつか

のパラメータについて最適値を決定した。また、接合中から接合後に至る一連の過程を実際に数値計算し、計算の流れを説明した。本章で構築したシミュレータの妥当性、実験結果との対応性については次章で詳しく検討する。

第5章 数値計算に基づく接合強度の支配要因の検討

本章では、第3章で得られた実験結果と第4章で得られた接合過程の計算結果との対応性を吟味し、接合強度の支配要因について考察する。また、開発したシミュレータを利用して応力緩和過程に影響を及ぼす要因について検討する。そして最後に接合条件の最適化に向けた指針として、無加圧常温接合を行う上での必要条件を提示する。

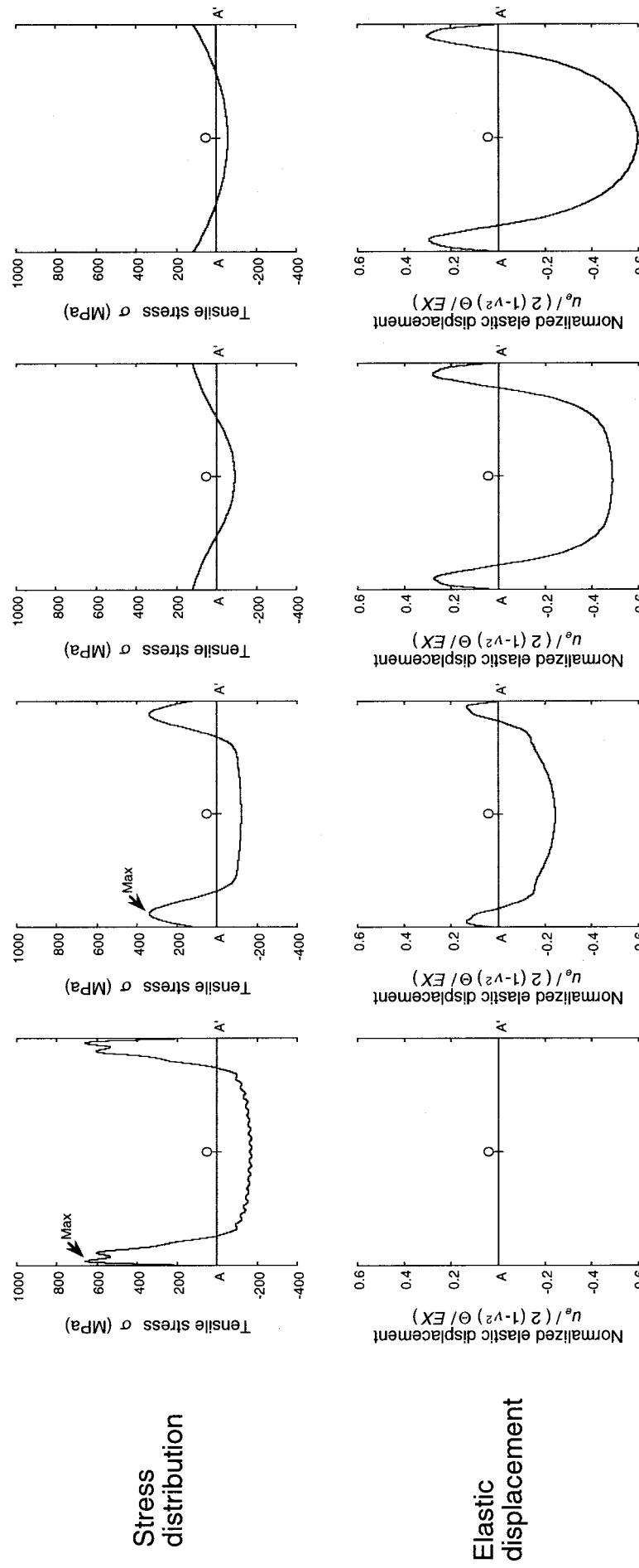
5. 1 接合強度の時間依存性と計算による応力緩和過程との対応性

5. 1. 1 保持温度の影響

Fig. 5-1 は、Au ワイヤと Au 基板とを接合した場合の、接合荷重除去後の界面 AOA' における応力分布と弾性変位の時間的変遷を計算したものである。界面 AOA' は、Fig. 4-4 に示した領域に対応しており、ワイヤの半径は $R = 50 \mu\text{m}$ 、接合条件は、 $t_B = 60 \text{ s}$ 、 $\sigma_B = 5 \text{ MPa}$ 、 $T = 300 \text{ K}$ である。Fig. 5-1 (a) に示すように、接合応力除去直後、すなわち $t_r = 0$ では接合端部に大きな引張残留応力が存在することが分かる（注）。この応力勾配により、原子は界面中央部及び表面側から引張応力領域に流入することになる。この作用により、引張応力領域では弾性回復が生じ、凸状の引張応力は徐々に減少し(Fig. 5-1 (b))、消失する(Fig. 5-1 (c))。なお、Fig. 5-1 (c) の点 O (及び O') に存在する引張応力は、点 O における曲率半径 r と表面張力 γ_s によって決まる値 γ_s/r である。この後、さらに計算を続けると、最終的に界面の応力分布は放物線状の準定常解(Fig. 5-1 (d)) に至る[42]。また、この一連の応力緩和過程における接合幅の変化率は、接合幅に対して ± 1 % 未満であり、接合幅はほとんど変化しないと考えてよい。

(注) 応力分布に見られる高周波成分は、応力分布をフーリエ級数近似したために生じるものであるが、短時間で消失するため、計算には大きな影響を及ぼさないと判断し、無視することにした。

$R = 50 \mu\text{m}$, $\sigma_B = 5 \text{ MPa}$, $T = 300 \text{ K}$



(a) $t_r = 0 \text{ (s)}$ (b) $t_r = 1.5 \times 10^6 \text{ (s)}$ (c) $t_r = 3.6 \times 10^7 \text{ (s)}$ (d) $t_r = 3.6 \times 10^8 \text{ (s)}$

Fig. 5-1 Change in stress distribution and elastic displacement with time after bonding.
(a) $t_r = 0 \text{ s}$, (b) $t_r = 1.5 \times 10^6 \text{ s}$, (c) $t_r = 3.6 \times 10^7 \text{ s}$, (d) $t_r = 3.6 \times 10^8 \text{ s}$.
A, O and A' is referred to Fig. 4-4.

Fig. 5-2 は Fig. 5-1 で示した接合端部の引張残留応力の最大値 σ_{max} の変化を時間を横軸にとって示したものである。図中には同条件で接合を行った後、 $T = 250\text{ K}, 350\text{ K}$ で保持した場合の計算結果も示している。これらの計算条件は、Fig. 3-6 に示した実験条件に対応する。Fig. 5-2 を見ると、 $T = 300\text{ K}$ では、接合後 3 週間にわたって最大引張応力 σ_{max} が徐々に減少しているのに対し、 $T = 250\text{ K}$ では引張応力はほとんど減少していない。また $T = 350\text{ K}$ では、接合後約 60 h の間に、 σ_{max} は急速に減少し、その後はほぼ一定値となっている。一方、Fig. 3-6 を見ると、 $T = 293\text{ K}$ では接合後 3 週間にわたって接合強度が徐々に上昇している。また $T = 253\text{ K}$ では接合強度の上昇がほとんど見られず、 $T = 343\text{ K}$ では接合後 20 h の間に、接合強度が急速に上昇していることが分かる。従って、実験結果、計算結果のいずれにおいても、接合面積に顕著な変化が見られないことを考慮すれば、接合強度の時間的な変化は界面での応力状態の変化、すなわち界面に残留する引張応力の緩和現象によってかなりうまく説明できる。

なお、Fig. 5-1, Fig. 5-2 は Table 4-2 に基づいて行った計算結果であるが、この材料定数は高温でのそれから外挿したもので、常温付近での拡散係数はこれとは若干異なる可能性がある。すなわち、室温での空孔の量は、融点付近から完全に熱的に平衡に冷却したとすれば、融点付近での空孔形成の活性化エネルギーから外挿して、1 モル当たりにおよそ 10^6 個と計算できる[40]。一方、強く加工された材料の転位密度はおよそ 10^{12} 本 cm^{-2} であると言われており、空孔が同程度存在するとしても 1 モル当たり 10^{12} 個以上となって、空孔の量は、熱平衡状態に比べてはるかに過剰になっている。界面拡散の活性化エネルギー Q_b は、空孔の生成の活性化エネルギー Q_f と移動の活性化エネルギー Q_m との和で表される、すなわち、

$$D_b = D_0 \exp\left(-\frac{Q_b}{kT}\right) = D_0 \exp\left(-\frac{Q_f}{kT}\right) \exp\left(-\frac{Q_m}{kT}\right) \quad (5-1)$$

と表現される。しかし、上で述べたように常温付近では空孔は平衡状態よりもはるかに多く、空孔を新たに生成するためのエネルギーは不必要となる。従って、温度に依存するのは、 Q_m に関する項だけとなり、

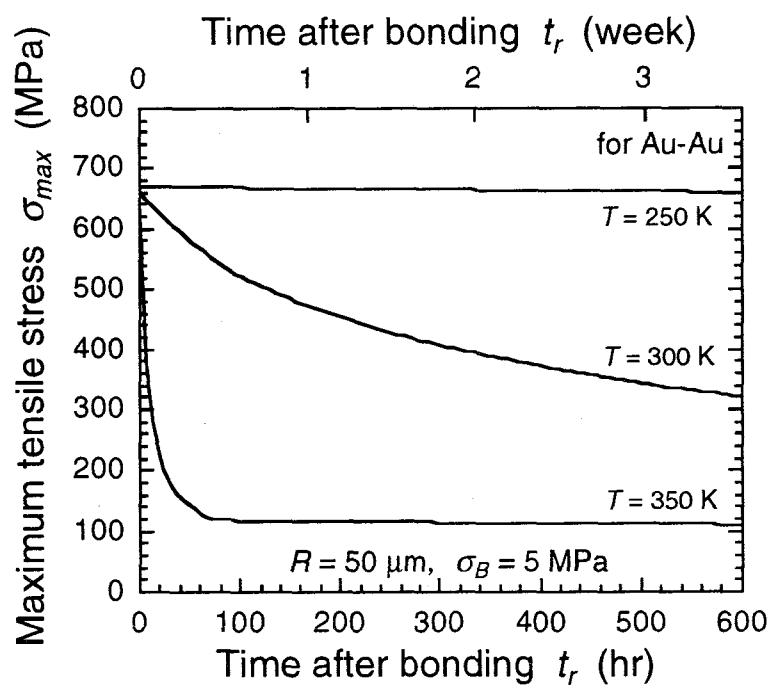


Fig. 5-2 Effect of temperature on stress relaxation.

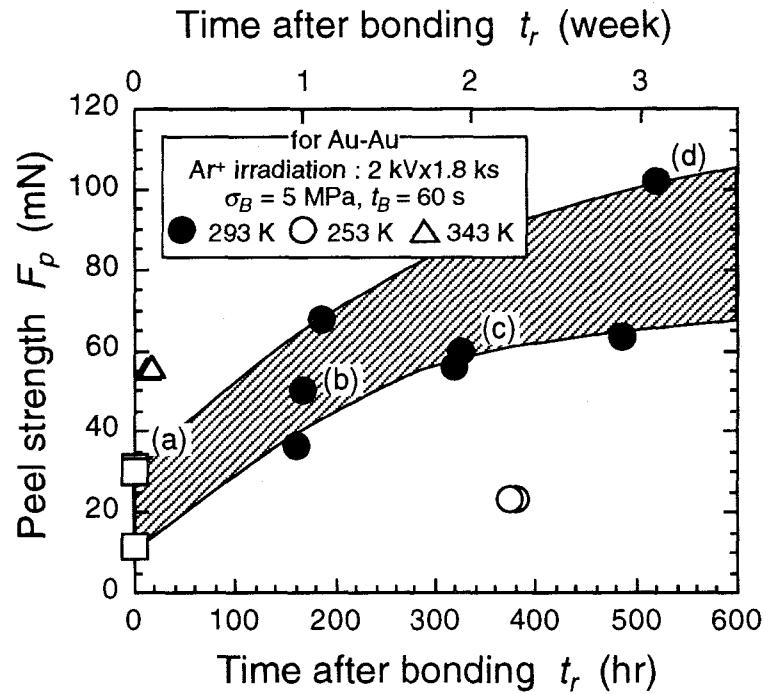


Fig. 3-6 Change in peel strength with time after bonding.

$$\begin{aligned}
D_b &= D_0 \exp\left(-\frac{Q_f}{k \cdot 300}\right) \exp\left(-\frac{Q_m}{kT}\right) \\
&= D_0^* \exp\left(-\frac{Q_m}{kT}\right)
\end{aligned} \tag{5-2}$$

と表せて、見かけ上、活性化エネルギーは低くなる。 Q_f 、 Q_m はそれぞれ Q_b の半分程度と言われており、界面拡散係数はおよそFig. 5-3に点線で示すような温度依存性となる。このため、拡散による応力緩和が上で示した計算結果よりも、高温側では若干遅くなり、逆に低温側では緩和が速くなるという可能性も生じる。

5. 1. 2 接合応力の影響

Fig. 5-4 (a) は σ_{max} の時間的変化に対する、接合応力の影響を示す計算結果である。計算条件は、Au ワイヤー-Au 基板、 $R = 50 \mu\text{m}$ 、 $t_B = 60 \text{ s}$ 、 $T = 300 \text{ K}$ である。この条件は、第3章で行ったFig. 3-10 の実験条件に対応している。また第4章で述べたように、

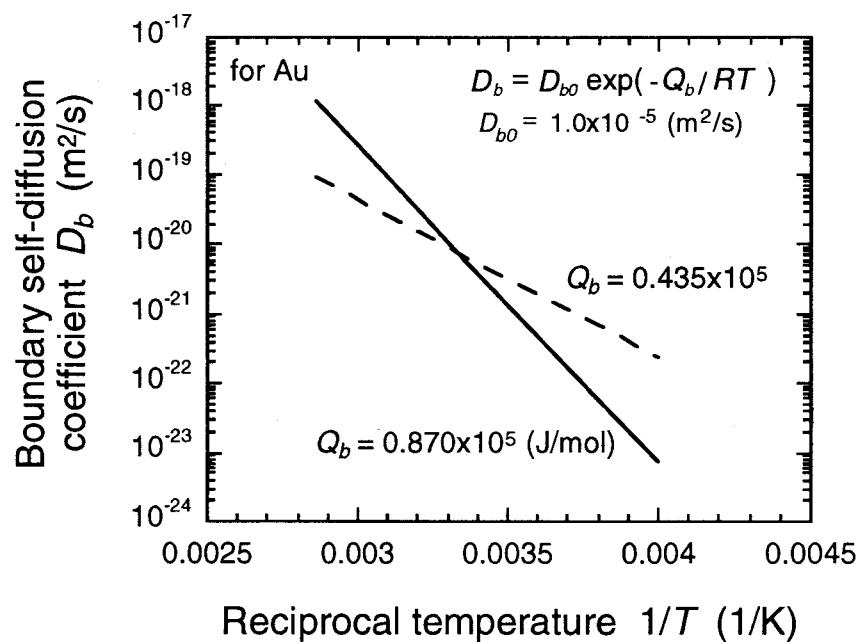


Fig. 5-3 Arrhenius plot of boundary self-diffusion.

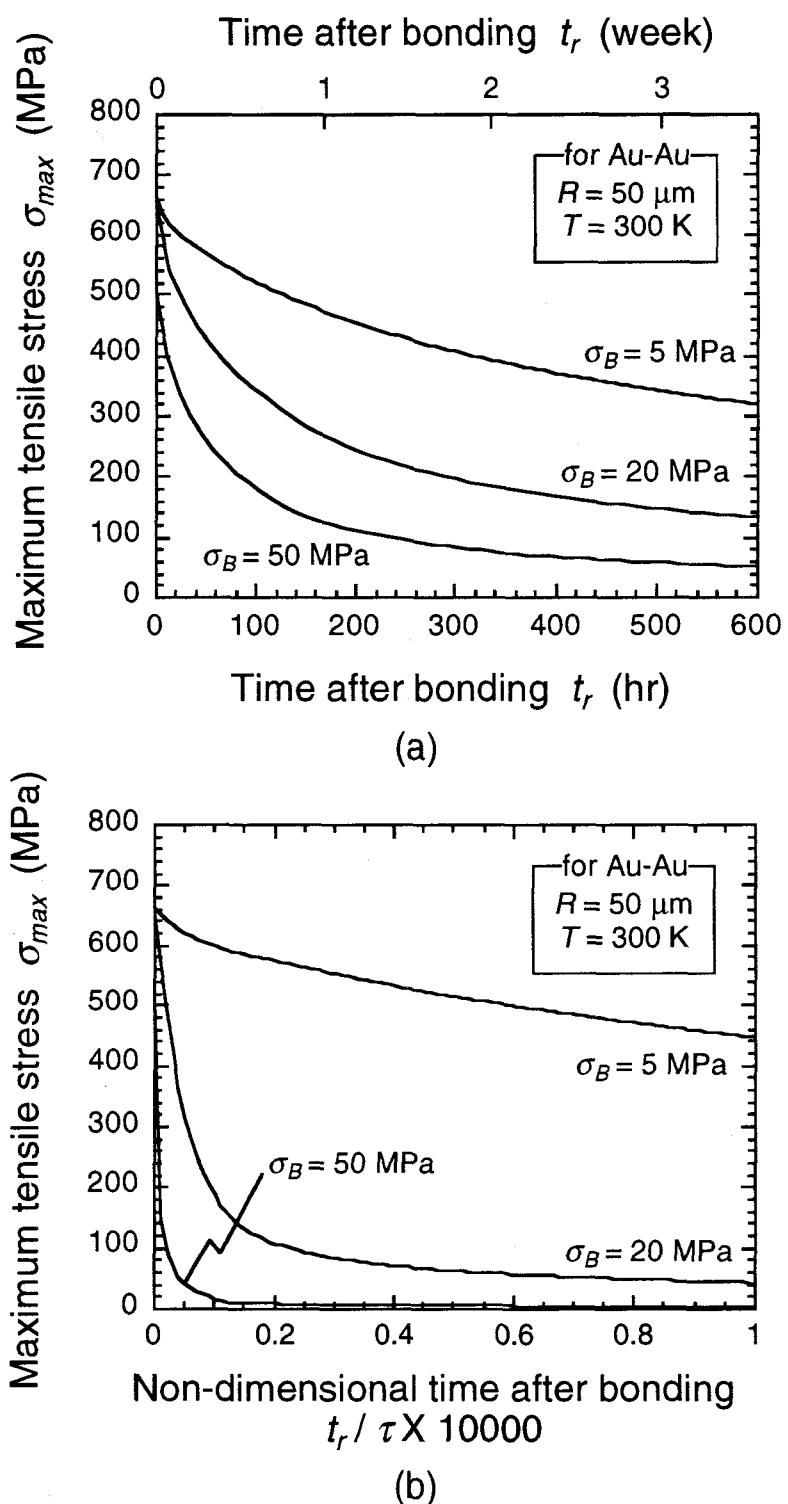


Fig. 5-4 Effect of bonding pressure on stress relaxation.

- (a) Maximum tensile stress vs. time after bonding,
- (b) Maximum tensile stress vs. non-dimensional time after bonding.

接合端部での応力分布の近似の精度を上げるため、応力分布の近似の次数は $n = 100$ としている。Fig. 5-4 (a) から分かるように、接合応力が大きくなると接合幅が大きくなるにも拘わらず（注）、引張残留応力の減少は速くなっている。その原因は、接合荷重除去直後の応力分布の形状にある。Fig. 5-5 は、接合応力除去前後の界面での応力分布を示したものである。Fig. 5-5 から分かるように、接合応力が大きくなると塑性変形領域が拡大し、弾性変形領域は相対的に小さくなるため、接合荷重除去後の残留応力は Fig. 5-5 のように接合端部の非常に狭い領域にのみ存在することになる。このため周囲から原子の流入が生じやすく、残留応力の緩和が進みやすくなつたと考えられる。

一方、接合応力を変化させた場合の実験結果 Fig. 3-10 を見ると、 $\sigma_B = 5 \text{ MPa}$ では約 2 倍程度まで接合強度が上昇している。一方、 $\sigma_B = 20 \text{ MPa}$ では約 20 % の強度上昇にとどまっている。すなわち、これらの結果から、界面での残留応力の緩和現象のみによっては、強度上昇の程度までは予測できないことが理解できる。

5. 1. 3 計算結果に基づく接合強度の支配要因の検討

前項の考察で明らかになったように、接合強度の時間依存性及びその強度上昇の程度は、界面における応力状態の変化だけでは説明できない。そのためここでもう一度、

（注）接合応力が高いと接合幅は大きくなるが、応力緩和の速さの指標であるタイムパラメータ τ は前出の式(4-22)，

$$\tau = \frac{2(1-\nu^2)kTX^3}{E\delta\Omega D_b} \quad (4-22)$$

から分かるように、接合幅 X の 3 乗に比例して長くなる。Fig. 5-4(a) はこの点を考慮していない。次項で示すように、この接合条件の場合、接合幅は 5 MPa の場合に比べて、20 MPa では約 2.8 倍、50 MPa では約 6.5 倍となる。そこで Fig. 5-4 (a) から接合幅の影響を除去するため、接合後の経過時間をタイムパラメータで除した無次元化時間を横軸にとって引張応力の変化を見たものが Fig. 5-4 (b) である。いずれにしても応力が高くなるほど急速に応力の緩和が進んでいることが分かる。

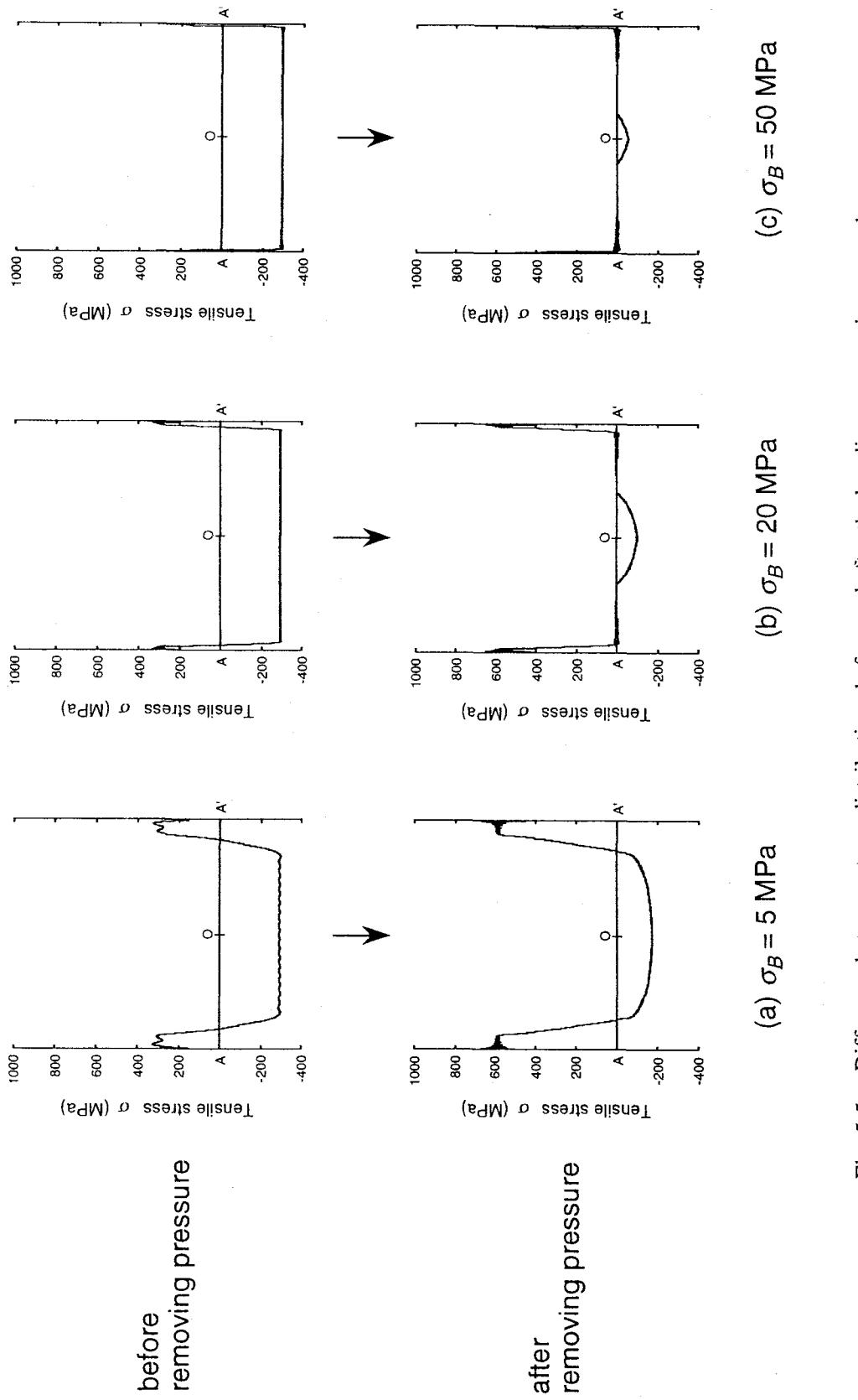


Fig. 5-5 Difference between stress distributions before and after the bonding pressure is removed.
 (a) $\sigma_B = 5 \text{ MPa}$, (b) $\sigma_B = 20 \text{ MPa}$, (c) $\sigma_B = 50 \text{ MPa}$.

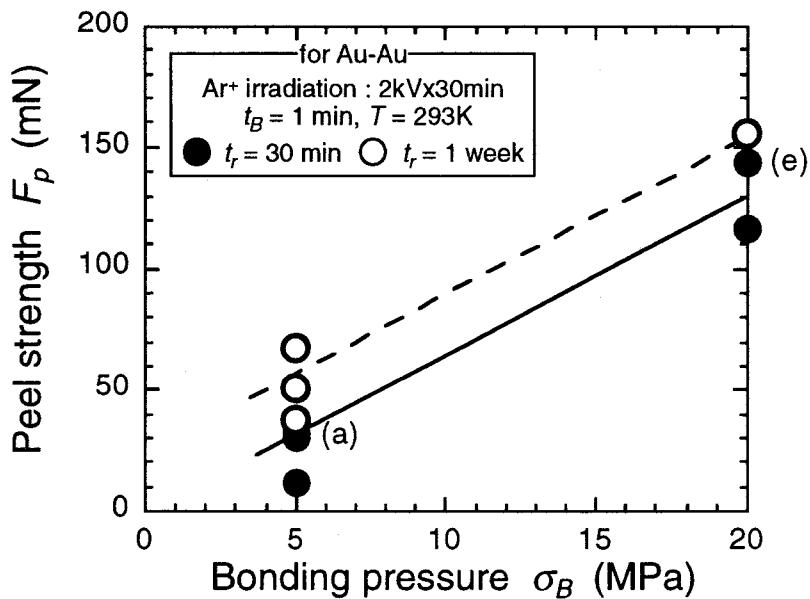


Fig. 3-10 Effect of bonding pressure on increase of bond strength.

接合荷重除去前後の界面での応力状態を考えてみる。

Fig. 5-6 は $R = 50 \mu\text{m}$ の場合の接合応力と初期接触率との関係を示したものである。図中の実線は JKR 理論による解（弾性解）およびこれに塑性域補正を施した解（弾塑性解）を示しており、点線はこの弾塑性解のうち、圧縮の塑性変形領域の割合を示している。また Fig. 5-7 は、 $t_B = 60 \text{ s}$ の接合後、接合荷重を除去した際の残留応力分布について、接合幅に占める圧縮応力領域、引張応力領域の割合を示したものである。Fig. 5-5, Fig. 5-6, 及び Fig. 5-7 から分かるように、初期接触時に圧縮の降伏状態にあった領域は、接合荷重除去後にはほとんど応力の働かない領域となっており、高荷重になるほど応力の働かない領域の割合は大きい。

圧縮方向の残留応力は接合強度にプラスに働き、引張方向の残留応力はマイナスに働く。そこで例えば非常に単純に、圧縮領域の割合から引張領域の割合を差し引いた領域が強度に寄与すると考えてみよう。そうすると、Fig. 5-7 から接合応力除去直後には、 $\sigma_B = 5 \text{ MPa}$ では $74 - 26 = 48\%$, $\sigma_B = 20 \text{ MPa}$ では $93 - 7 = 86\%$ が強度に寄与する割合となる。その後これらの残留応力が完全に緩和され、接合領域全体が強度を支えうると考えると、それぞれの強度上昇は、 $\sigma_B = 5 \text{ MPa}$ で $100 / 48 = 2.08$, $\sigma_B = 20 \text{ MPa}$ で

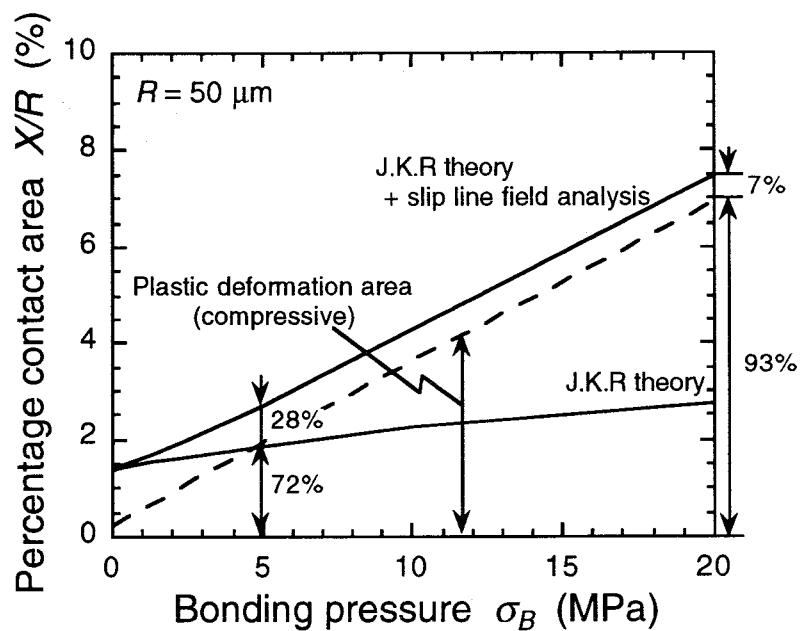


Fig. 5-6 Percentage of plastic deformation area in initial contact area.

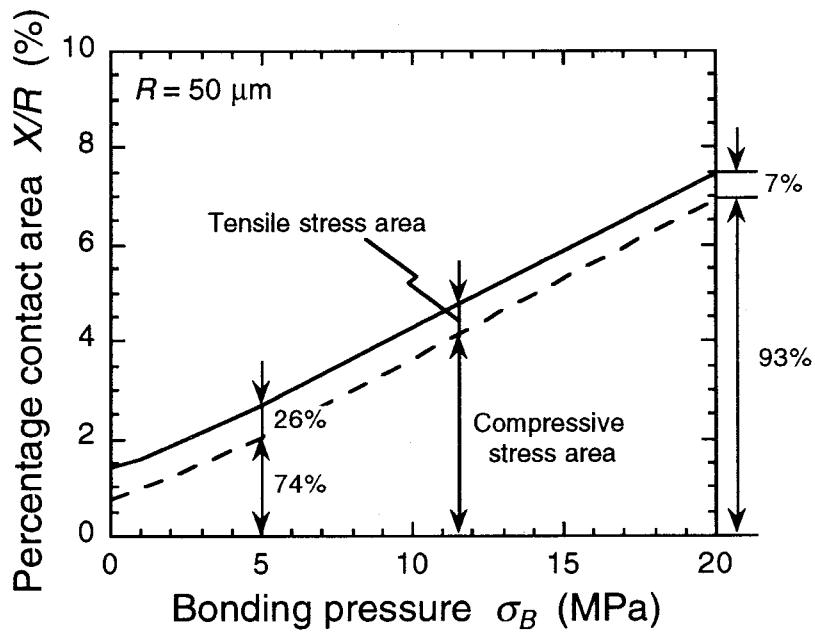


Fig. 5-7 Percentage of compressive stress area in bonded area after the bonding pressure is removed.

$100/86=1.16$ となる。この接合強度の上昇率は先に示した実験結果(Fig. 3-10)における強度の上昇率に近い値となる。また、例えば、界面近傍が完全に塑性変形するほどの大きな荷重を受けた場合を考えると、 $100/100=1$ となって、強度上昇はほとんど起こらないと推察される。これは、接合強度の上昇が、常温「凝着」接合にのみ見られる現象であり、高荷重での常温接合においてそのような報告例がないことの一因と考えられる。

以上の考察から、常温凝着接合における接合強度の上昇は、界面での残留応力の緩和過程によって説明できること、また、強度上昇の程度は、界面近傍の塑性変形領域の割合によって決まることが分かった。ただし、ここでの考察は、あくまで非常に単純な評価の一例であって、厳密には破壊力学的な手法を用いて評価する必要がある。実際、JKR理論と破壊力学との関連性についての研究[41]も発表されている。しかしこのような研究では当然ながら拡散現象の影響は考慮されておらず、今後、拡散による応力状態の変化と接合強度とを結びつける評価方法が確立されれば、強度の予測も可能になると期待できる。

5. 2 応力緩和過程に対する諸因子の影響

前節における、実験結果と計算結果との比較から、本研究で提案した応力緩和過程の数値計算モデルが、接合強度の時間依存性を理解する上で有効な手段となることが分かった。そこで本節では、このシミュレータを用いて、応力緩和過程に対する諸因子の影響を検討する。ここでは、残留応力の減少速度を評価するために、次のような応力緩和時間 t_{relax} を定義しておく。Fig. 5-1 で示したように、接合後の界面端部に存在する凸状の引張残留応力は、時間とともに減少、消失する。そこで、接合応力除去からこの引張応力の消失に至るまでの時間を応力緩和時間 t_{relax} と定義し、応力緩和の進行速度を表す指標とする。

5. 2. 1 ワイヤ径の影響

Fig. 5-8 は、 $R = 5 \sim 100 \mu\text{m}$ のワイヤを、条件 ($t_B = 60 \text{ s}$, $\sigma_B = 5 \text{ MPa}$, $T = 300 \text{ K}$) で接合を行った場合の、接合後の界面での最大引張応力 σ_{\max} の変化を見たものである。この図から、ワイヤ径が小さくなるほど、残留応力の緩和が急速に進むことが分かる。ただし、 σ_{\max} 値はワイヤ径が小さいほど大きな値に収束している。これは、ワイヤ径が小さいと接合部も小さくなり、Fig. 5-9 に示すように、接合部の端点 O における曲率半径 r も非常に小さくなる。その結果、前節で述べた点 O における引張応力値 γ_s / r が大きくなるのである。なお、Fig. 5-8 中 * で示した点が、それぞれのワイヤ径に対する応力緩和時間 t_{relax} を表す。また、Fig. 5-10 は応力緩和時間に対するワイヤ径の影響を示したものである。この図からも、ワイヤ径が小さくなると緩和時間が急速に短縮されることが理解できる。このように、ワイヤ径が小さくなるに従って、応力の緩和が急速に進む原因は、タイムパラメータの定義式(4-22)からも予想されるように、接合部寸法が小さくなることによって、界面拡散が生じやすくなるためである。

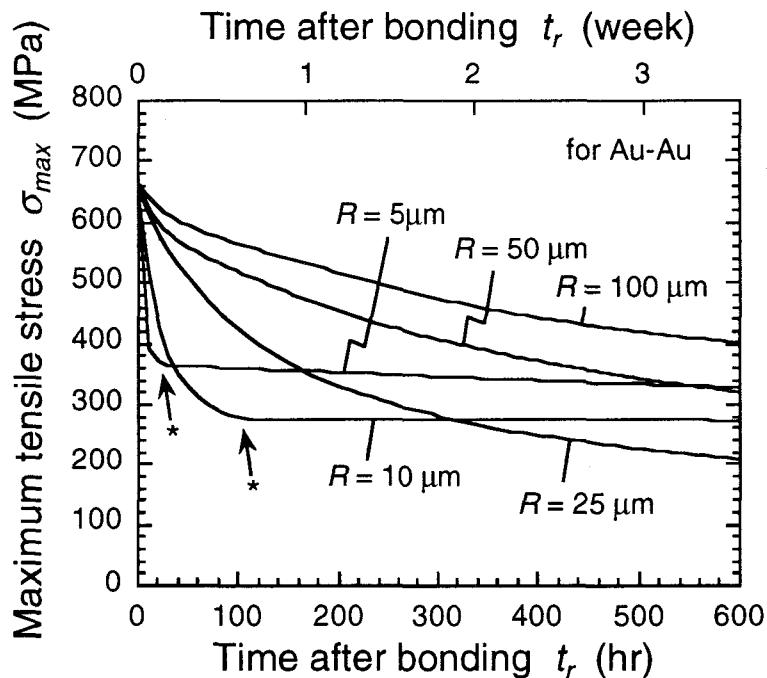


Fig. 5-8 Effect of wire-radius on stress relaxation.

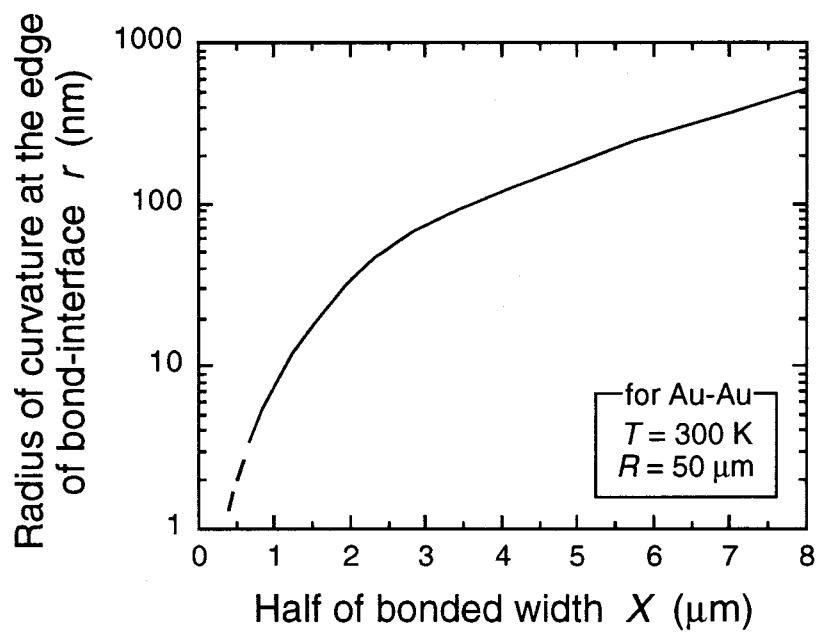


Fig. 5-9 Radius of curvature at the edge of bond-interface, depending on half of bonded width.

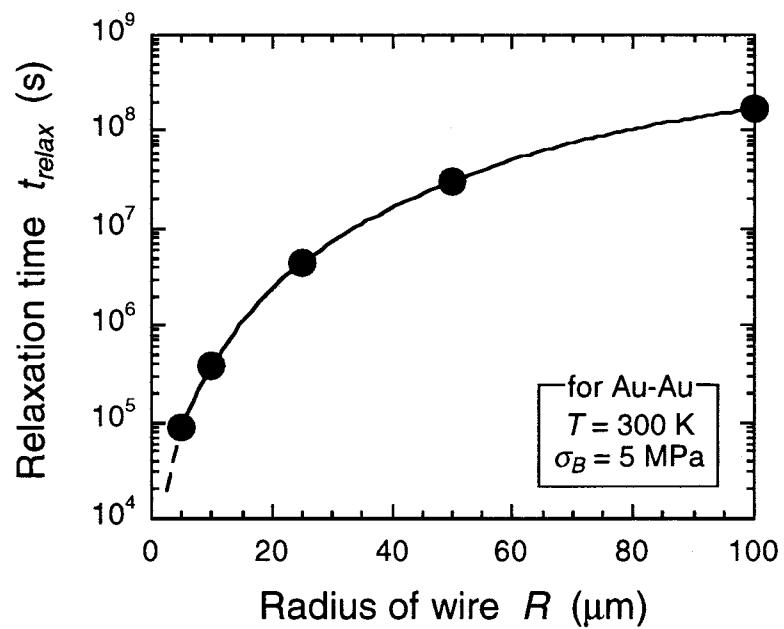


Fig. 5-10 Effect of wire-radius on relaxation time.

5. 2. 2 保持温度・接合応力の影響

接合温度及び接合応力が、残留応力の緩和に大きく影響することは前節で述べたとおりである。Fig. 5-11, Fig. 5-12 はそれぞれ、応力緩和時間 t_{relax} に対する保持温度及び接合応力の影響を示したものである。Fig. 5-11 から、100 K 程度の加温により界面拡散が促進され、残留応力の緩和に非常に有効であることが分かる。一方、Fig. 5-12 は、接合応力が増加すると、緩和時間が増加することを示している。この結果は、一見、Fig. 5-4 (a), (b) の結果、すなわち接合応力の増加によって引張応力の減少が速まるという結果に矛盾するように見える。これは、次のような理由による。すなわち、接合応力が増加することによって接合幅が増加し、Fig. 5-9 に示したように、接合部の端点 O での曲率半径が増加する。このため点 O における引張応力値 γ_s / r が小さくなり、結果として完全に引張応力が緩和するまでに時間を要し、緩和時間が長くなる。

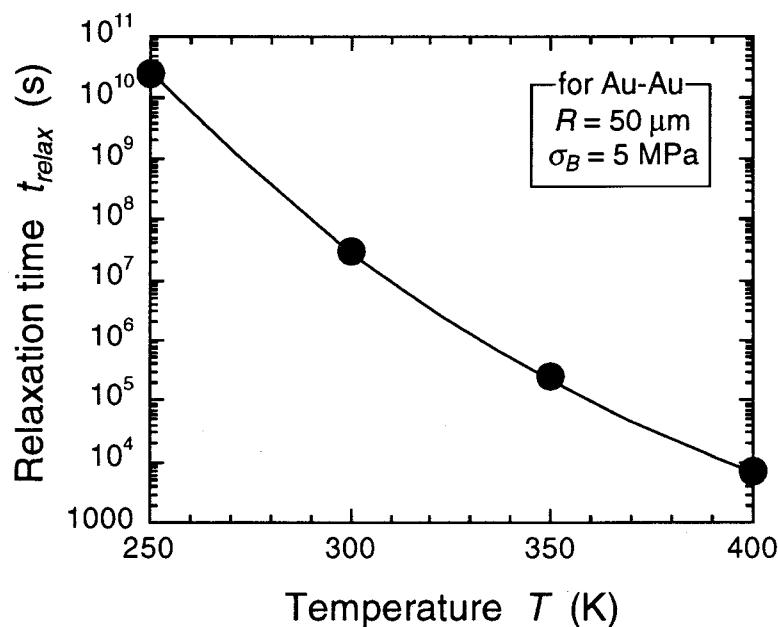


Fig. 5-11 Effect of temperature on relaxation time.

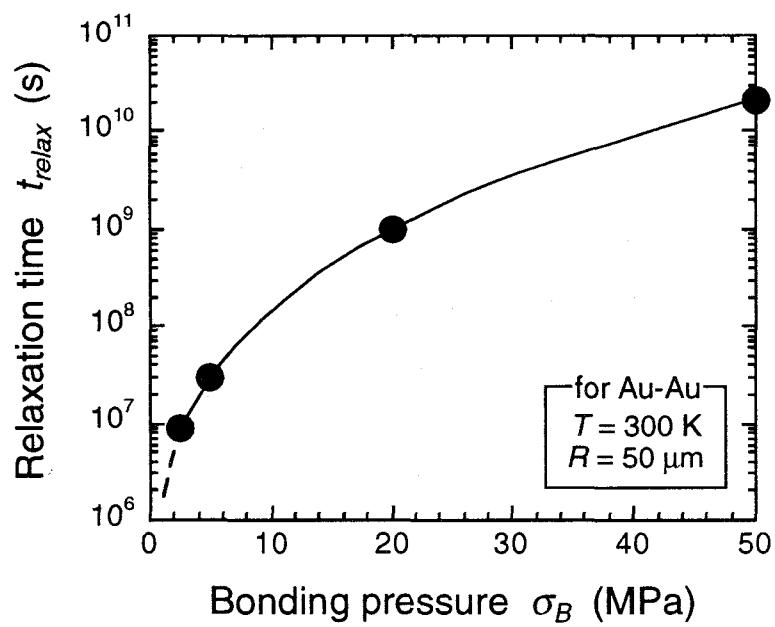


Fig. 5-12 Effect of bonding pressure on relaxation time.

5. 2. 3 応力緩和時間から見た接合条件の選択

Fig. 5-13 は、これまでに得られた結果をまとめ、ワイヤ径と温度をパラメータとして応力緩和時間を計算したのである。(a) $\sigma_B = 5 \text{ MPa}$, (b) $\sigma_B = 20 \text{ MPa}$ の場合を表す(注)。これらの図から、応力緩和時間に対するワイヤ径と温度との影響が視覚的に理

(注) 前項で述べたように Fig. 5-13においても $\sigma_B = 5 \text{ MPa}$ の場合よりも $\sigma_B = 20 \text{ MPa}$ の場合の方が応力緩和時間が長くなっている。ここでいう応力緩和時間とは界面での応力分布がほぼ定常状態に至るまでの時間を表すが、実際に強度の上昇に大きく影響するのは、応力除去直後の引張残留応力の緩和であると考えられる。そこで、応力除去から界面端部の引張残留応力の最大値 σ_{max} が 90% に減少するまでの時間を 10% 応力緩和時間 $t_{10\%relax}$ と定義し、この指標によって応力緩和の進行速度を評価した。その結果を Fig. 5-14 に示す。この場合には、応力の高い場合の方が緩和時間は約 1 術程度短くなっている。

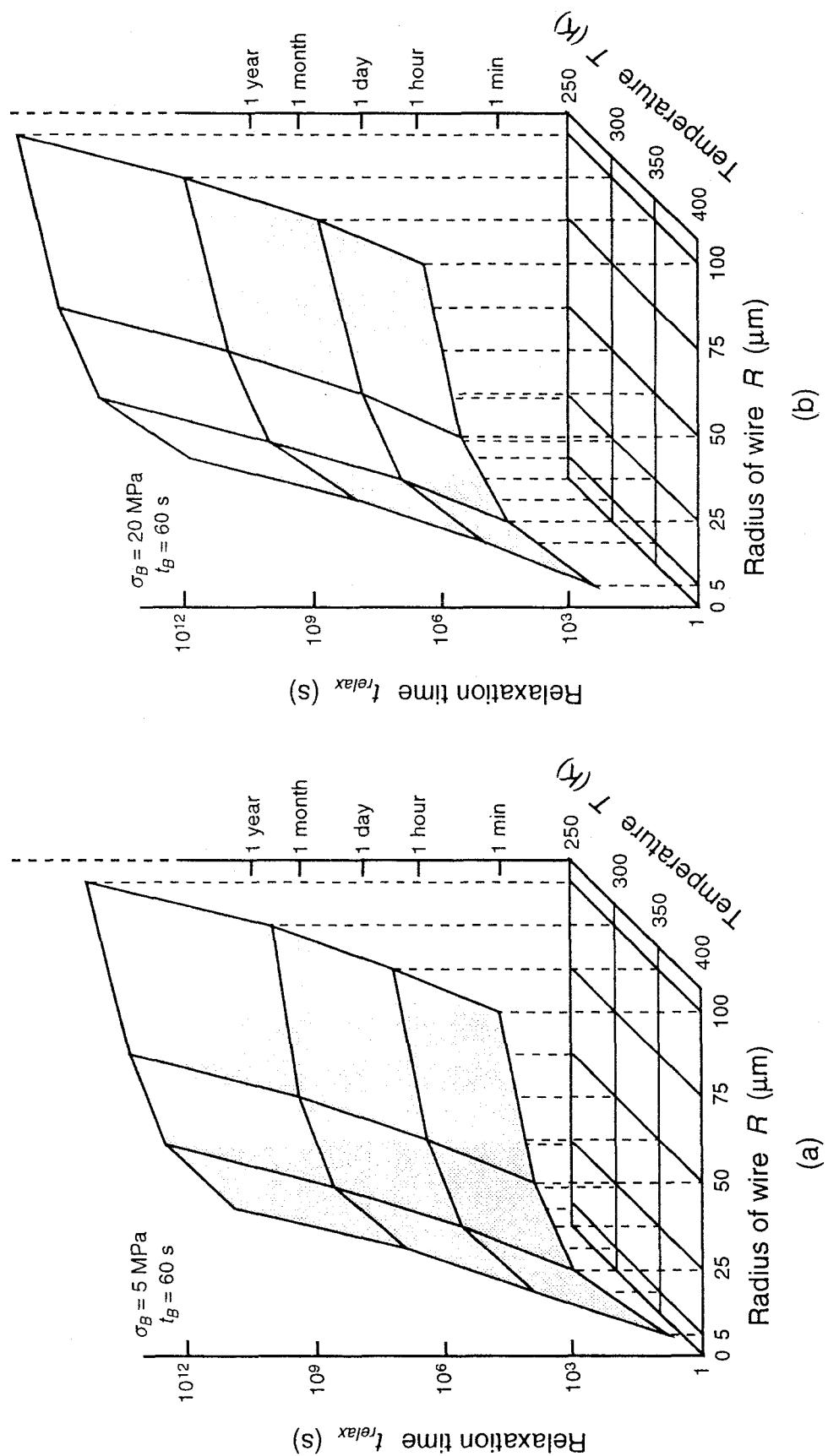


Fig. 5-13 Diagrams of relaxation time t_{relax} as a function of wire-radius and temperature.
 (a) $\sigma_B = 5 \text{ MPa}$, (b) $\sigma_B = 20 \text{ MPa}$.

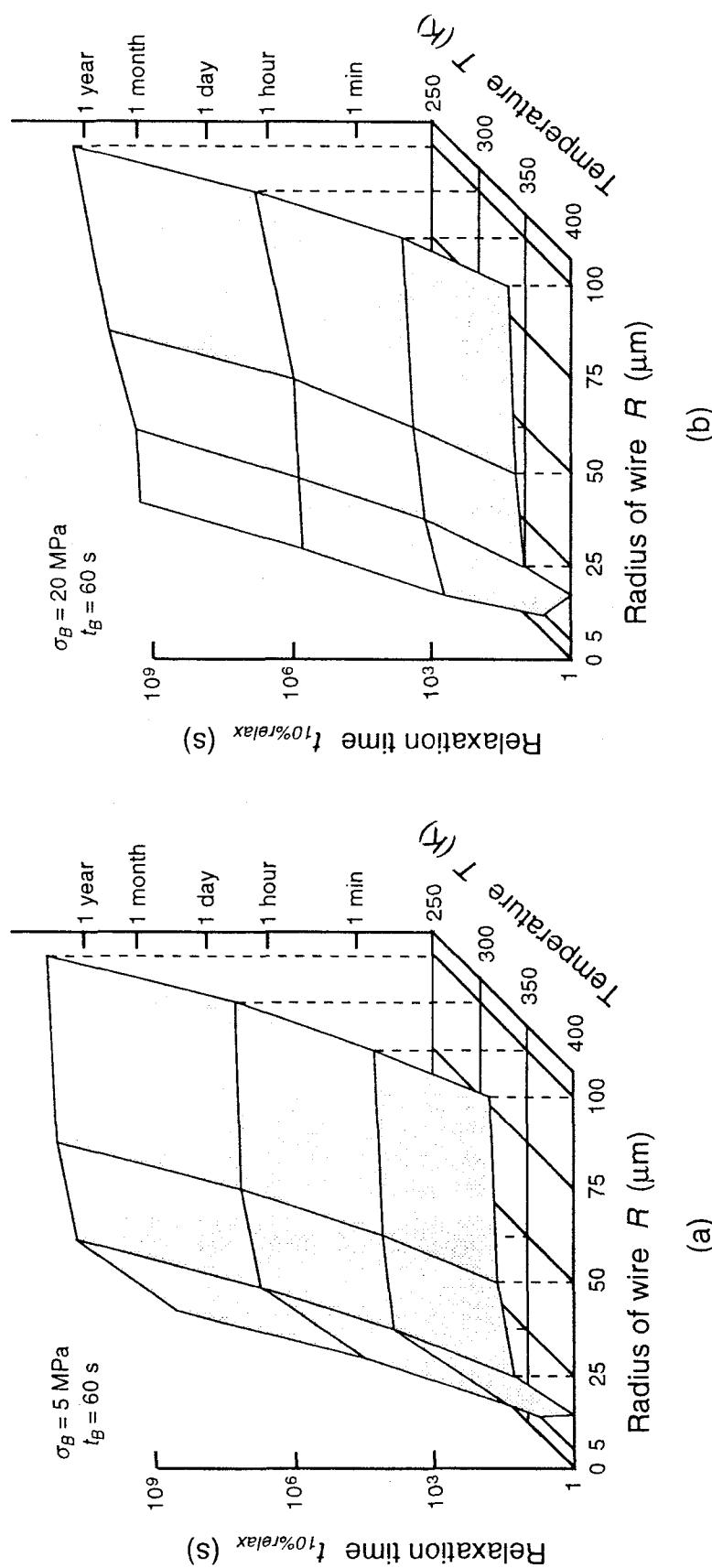


Fig. 5-14 Diagrams of relaxation time $t_{10\%relax}$ as a function of wire-radius and temperature.
 (a) $\sigma_B = 5 \text{ MPa}$, (b) $\sigma_B = 20 \text{ MPa}$

解できる。例えば、大きな接合部を低温で保持した場合、すなわち図中の右上になるに従って、応力緩和時間は膨大な長さになっており、現実的には残留応力の緩和是不可能であることが分かる。

残留応力を緩和し、接合強度を上昇させるためには、応力緩和時間はできるだけ短いことが望ましい。しかし実際には、過度の加熱を行うと材料の熱的変質や熱応力が生じ、また変形量にも許容範囲があるため、接合応力にも制約がある。すなわち、接合条件の選択は、温度や荷重、ワイヤ径の制約条件のもとで、応力緩和時間（目的関数）を最小化する問題と捉えることができる。

5. 3 無加圧常温接合の実現に向けた指針

これまでの考察から、超高真空中等の清浄な雰囲気中で、清浄な表面をもつ同種金属間の固相接合を行う場合には、接合過程や接合強度に影響を及ぼすパラメータは、主に接合温度、接合部寸法、接合荷重の3つであることが分かった。ではこれらのパラメータをどのように設定すれば最適な接合条件に近づくのであろうか？ ある程度の加熱や応力の負荷が強度の面で有利であることは前節までに述べたとおりである。しかし、当初の目的、すなわち常温凝着接合をいかに行うかという点では、これらは解決法になっていない。従って、結局、残るパラメータは接合部の寸法（接合部の形状も含めて）となる。そこで本節では第4章で提案した接合モデルを利用して、接合部の寸法や形状がある条件をみたせば、2つの平面が常温無加圧においても完全密着しうることを示し、そのために必要な条件を考えることを通じて、接合条件の最適化への指針を考えてみる。

第4章で提案した接合モデルはワイヤと基板との接合を想定したものであったが、ワイヤ径を非常に小さくとれば、これを材料の表面凹凸の1つと捉えることも可能である。Fig. 5-15 のような2平面を考えると、第2章で述べたように材料表面が活性化され表面のエネルギーが大きくなれば、JKR理論から、無加圧でも、ある一定の接触面積が得られることになる。従って、もしJKR理論から得られる接触幅 X が図中の L よりも大きいならば、これらの2平面は常温無加圧でも完全に密着することになる。

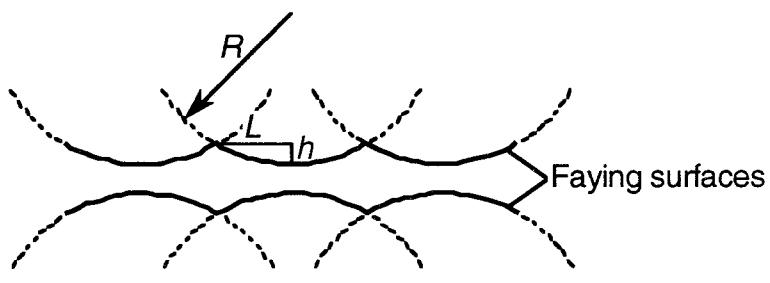


Fig. 5-15 Schematic illustration of two faying surfaces.

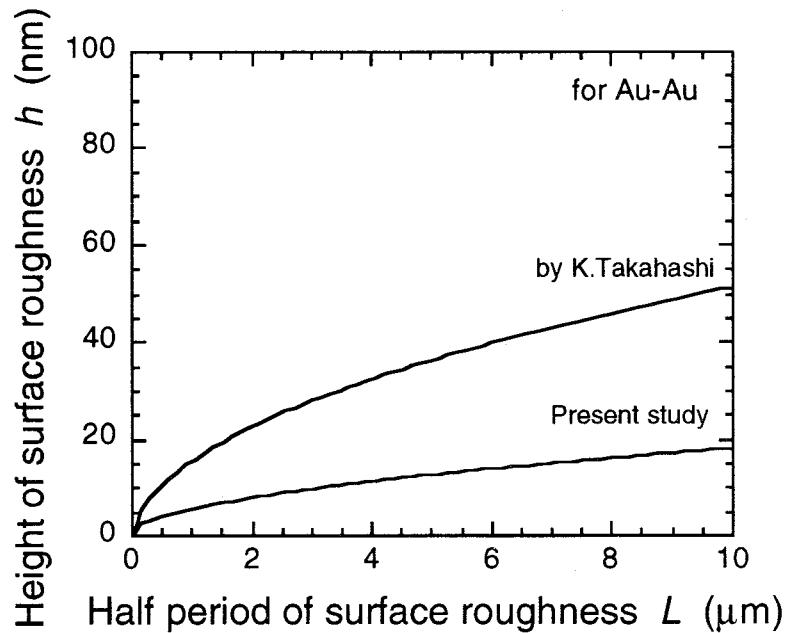


Fig. 5-16 Criterion of surface roughness for perfect contact.

Fig. 5-16 はこの完全密着のための表面粗さ L , h に対する必要条件を示したものである。図中には高橋[42]によって計算された必要条件も示している。高橋による計算は表面凹凸をもつ剛体を弾性平面に押し込む場合の条件を計算したもので、本研究で行った計算とは若干条件が異なるものの、結果は同程度の必要条件を示している。

そこで次にこの必要条件をみたす表面粗さをいくつか選び、そのそれについて接触により生じる応力分布とその緩和現象を計算した。計算に用いた表面粗さは $L = 0.1 \mu\text{m}$, $0.5 \mu\text{m}$, $2.5 \mu\text{m}$ の 3 つであり、それぞれに対する h は Fig. 5-16 から決定した。これらの凹凸が幅 $5 \mu\text{m}$ にわたって接触すると仮定して計算した結果を Fig. 5-17 に示

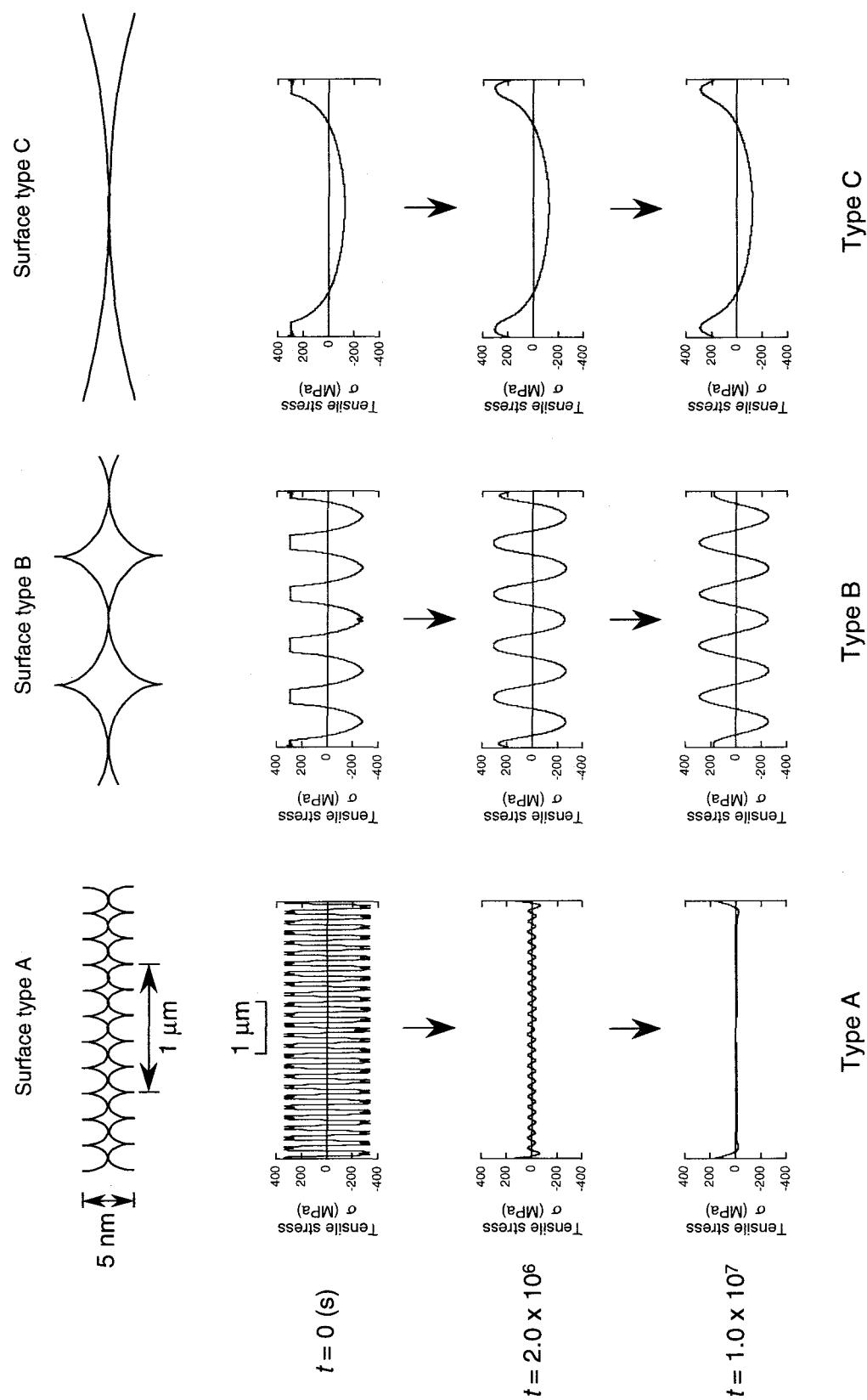


Fig. 5-17 Effect of surface roughness on stress relaxation.

す。この図から分かるように、完全密着といえどもその応力状態やその緩和過程は材料の表面凹凸によって大きく異なる。細かい表面凹凸を持つ場合には、圧縮と引張との間の応力の勾配が大きく、また原子の拡散距離も短くなるため応力の緩和は急速に進む。一方、表面凹凸が緩やかな場合には、逆に応力の緩和はほとんど生じていない。この結果は次のようなことを示唆している。

もし、非常に (Fig. 5-17 の Type C よりもさらに) 平滑な平面を作製することができるならば、応力分布の非常に緩やかな、従って引張領域に比べて圧縮領域の大きな接触が得られる。この場合、応力の緩和は非常に遅くなるが、5. 1節でも考察したようにこのような応力分布は接合強度にあまり悪影響を及ぼさない。このタイプの極端な例は 2 平面が完全に平滑な場合であって、この場合残留応力分布は全く生じない。一方、表面の凹凸が非常に (Fig. 5-17 の Type A よりもさらに) 微細であれば、接触直後には圧縮と引張が交互に数多く並ぶ応力分布となるが、このような応力分布は急速に緩和され、比較的短時間で応力分布のない密着界面が形成される。従って、無加圧常温接合を目指すにあたっては、接合面を原子レベルで平滑化し、これらの面を同レベルの精度で対向させる制御技術[43]、すなわち残留応力分布を生じさせない技術を開発することも 1 つの方向性ではあるが、同時にイオンビーム照射等の表面活性化手法が表面の形状や表面のエネルギーに与える影響を詳しく調べ、生じた残留応力をうまく解消する手法を開発することも重要であると考えられる。

5. 4 結言

本章では、まず第 4 章で述べた接合過程の数値計算結果をもとに、第 3 章で行った実験結果について考察し、接合強度に影響を及ぼす要因について検討した。その結果、本研究で提案した応力緩和過程の数値計算モデルが、接合強度の時間依存性を理解する上で有効な手段となることが分かった。そこで、このモデルを用いて応力緩和過程に対する諸因子の影響を検討した。さらに接合条件の最適化に向けた指針として、無加圧常温接合を行う上での必要条件を提示した。本章で得られた結果をまとめると次のようになる。

- (1) 接合後の保持温度を変化させた実験・計算結果を比較すると、接合強度の上昇と接合界面での残留応力の減少による対応が見られ、接合強度の時間による変化は、界面での残留応力の緩和過程によってうまく説明できる。
- (2) 接合応力を変化させた実験・計算結果を比較すると、応力の高い場合には残留応力の減少は速いにも拘わらず接合強度の上昇は小さく、応力の低い場合にはその逆となった。応力によって強度上昇の程度が異なるのは、応力負荷時の塑性変形領域の割合に違いがあったためである。またこのことから、接合強度の時間依存性に寄与するのは、主として弾性変形領域であることが分かった。
- (3) 応力緩和の進行速度を表す指標として、応力緩和時間 t_{relax} を定義し、これに対する諸因子の影響を調べた。その結果、ワイヤ径の微細化、保持温度の適度な上昇が、緩和時間の低減に非常に有効であることが分かった。
- (4) 第4章で提案した接合モデルのワイヤ径を非常に小さくとることによって、これを接合材料の表面粗さと捉え、常温無加圧の条件下で材料同士が完全密着するための必要条件を計算した。また、完全密着といえどもその応力状態やその緩和過程は材料の表面凹凸によって大きく異なることが分かった。
- (5) 緩やかな表面凹凸及び微細な凹凸が、常温無加圧において完全密着したと仮定して界面での応力分布の変遷を計算した結果、前者では応力分布は平坦であるが応力の緩和は遅く、後者では圧縮と引張の細かく混じりあう応力分布となるが応力の緩和は急速に進むことが分かった。
- (6) 常温接合における最適接合条件に近づくためには、2つの方法、すなわち残留応力を生じさせない技術の開発、および生じた残留応力をうまく解消させる技術の開発が考えられる。

第6章 結論

本研究では、まず、高温での固相接合に関してこれまでに行われた研究を参照しながら、常温凝着接合過程に影響を及ぼす要因、機構について検討した。そしてこれらの機構を考慮して、最も単純な系であると考えられる同種金属間で接合実験を行い、接合強度の時間依存性に関する知見を得た。また実験に対応した接合部の数値計算モデルを作成し、それぞれの機構が接合に及ぼす影響や機構間の関係性を調べた。さらに、常温無加圧接合の実現に向けて必要となる接合条件について述べた。本論文の各章で得られた結果を以下に要約する。

第2章では、接合過程や接合強度に影響を与える要因、機構について予備的考察を行った。その結果、常温凝着接合において密着過程を担う主な機構は、弾塑性変形機構及び拡散機構であることが分かった。さらに、本研究で対象としたような微細低荷重接合においては、凝着エネルギー $\Delta\gamma$ が接触に及ぼす影響が無視できなくなること、弾性変形中心の変形となるため、接合後の界面に大きな残留応力が発生すること、が明らかとなった。また、界面に存在する応力分布と空孔拡散の相互作用による応力緩和現象について説明した。一方、アルゴンイオン照射が材料表面に与える影響を検討した結果、イオン加速電圧が 2 kV 程度であれば、その影響は表面硬さ、表面粗さ、拡散係数のいずれに対してもそれほど大きくないことが分かった。

第3章では、アルゴンイオンビームによる表面清浄化装置を備え、最高到達圧力 1.0×10^{-8} Pa の接合室を持つ常温接合装置を製作した。そしてこの装置を用いて接合後の保持温度及び接合応力をパラメータとした常温凝着接合実験を行い、接合強度の支配要因について検討した。その結果、次の 2 つの重要な結果が得られた。すなわち、100 K 程度の温度変化によって、強度上昇の速度が非常に異なること、及び、接合応力が高い場合には接合直後から単位面積当たりの強度が高く、また応力の低い場合に比べて強度の上昇の割合が少ないこと、である。これらの結果から、接合強度の上昇が界面内部での空孔拡散による応力状態の変化によること、また強度上昇の程度は、界面における弾性域・塑性域の割合に大きく依存することが示唆された。

第4章では、第2章で行った予備的考察をもとに、ワイヤ-基板間の接合部をモデル

化し、接合界面における空孔拡散の過渡現象を表現する基礎方程式を導出した。そして、界面拡散による応力緩和過程の数値計算手法について説明し、計算に必要ないくつかのパラメータについて最適値を決定した。

第5章では、まず、第4章で述べた接合過程の数値計算結果をもとに、第3章で行った実験結果について考察し、接合強度に影響を及ぼす要因について検討した。その結果、接合強度の時間による変化は、界面での残留応力の緩和過程によってうまく説明できること、また、応力によって強度上昇の程度が異なるのは、応力負荷時の塑性変形領域の割合が異なるためであることが分かった。このような計算結果と実験結果との対応性から、本研究で提案した応力緩和過程の数値計算モデルが、接合強度の時間依存性を理解する上で有効な手段となることが分かった。そこで次に、このモデルを利用して応力緩和過程に対する諸因子の影響を検討した。その結果、ワイヤ径の微細化、保持温度の適度な上昇が、応力緩和に必要な時間の低減に非常に有効であることが示された。さらに、接合モデルのワイヤ径を非常に小さくすることによって、これを接合材料の表面粗さと捉え、常温無加圧の条件下で材料同士が完全密着するための必要条件を計算した。その結果、完全密着といえどもその応力状態やその緩和過程は材料の表面凹凸によって大きく異なることが分かった。すなわち、緩やかな表面凹凸同士の接触では、残留応力分布は平坦であるが、その緩和は遅く、微細な凹凸同士の接触では、圧縮と引張の細かく混じりあう残留応力分布となるが、その緩和は急速に進む。この結果は、最適接合条件に近づくための方向性として、残留応力を生じさせない技術の開発ばかりでなく、生じた残留応力をうまく解消させる技術の開発も視野に入れる必要があることを示唆している。

本研究で得られた成果は、清浄な表面を持つバルク同士の直接接触という、最も基本的な接合過程を理解する上で基礎となるばかりでなく、例えば、次のような応用も考えられる。電子機器の小型化に伴って、その内部の電子材料は年々高機能化し、また、高い精度をもつ配線技術の開発が必要不可欠となっている。このため、これまでのような、溶融、或いは大変形を伴う接合技術では、既にその限界が見え始めているのが現状である。常温凝着接合技術は、このような用途に適した低エネルギー接合法であるといえる。今後、破壊力学等との融合により、さらに研究が進めば、その強度

評価や信頼性の確保も可能となり、次世紀の電子デバイス実装における基盤技術になりうると期待できる。

謝辞

本研究は、大阪大学教授 井上勝敬博士の御指導と御教示のもとに遂行し得たものであり、先生に心から感謝の意を表します。

本論文の作成にあたり、有益な御助言と御討論を賜った大阪大学教授 仲田周次博士、大森明博士に心からお礼申し上げます。

本研究を進めるにあたり、公私にわたり終始、御助言及び御教唆を頂いた大阪大学助教授 高橋康夫博士に心から感謝いたします。また、多くの御助言と御激励を頂いた東京工業大学助教授 高橋邦夫博士、岡山県立大学助教授 大久保雅史博士、さらに大阪大学助手 津村卓也博士をはじめ大阪大学接合科学研究所の諸先生方に心から感謝いたします。

また、実験装置の製作にあたって御協力いただいた株式会社豊栄製作所 窪田匡男氏に深くお礼申し上げます。

最後になりましたが、多くの御支援、御協力を頂いた徐源贊博士、逢強氏をはじめ、井上研究室の卒業生、在学生の方々に心から感謝いたします。

参考文献

- [1] F.P. Bowden and D.Tabor, "Friction and lubrication of solids", Oxford University Press (1950).
- [2] F.P.Bowden and G.W.Rowe, "The adhesion of clean metals", Proceedings of the Royal Society of London, Series A, vol.233, p.429 (1956).
- [3] K.I.Johnson and D.V.Keller, "Effect of contamination on the adhesion of metallic couples in ultra-high vacuum", Journal of applied physics, Vol.38, No.4, p.4224 (1967).
- [4] D.H.Buckley, "Influence of chemisorbed films of various gases on adhesion and friction of tungsten", Journal of applied physics, Vol.39, No.9, p.4224 (1968).
- [5] H.Conrad and L.Rice, "The cohesion of previously fractured fcc metals in ultrahigh vacuum", Metallurgical transactions, Vol.1, p.3019 (1970).
- [6] G.H.Walker and B.W.Lewis, "A study of the adhesion of copper to nickel", Metallurgical transactions, Vol.2, p.2189 (1971).
- [7] J. ルーゲ, 「固相接合機構について」, 溶接学会誌, 第47卷, 第7号, p.402 (1978).
- [8] K.Miyoshi and D.H.Buckley, "Adhesion and friction of transition metals in contact with non-metallic hard materials", Wear, Vol.77, p.253 (1982).
- [9] T.Suga, Y.Takahashi, H.Takagi, B.Gibbesch and G.Ellsner, "Structure of Al-Al and Al-Si₃N₄ interfaces bonded at room temperature by means of the surface activation method", Acta metallurgica et materialia, Vol.40, p.s133 (1992).
- [10] 須賀唯知, 宮沢薰一, 高木秀樹, 「表面活性化法によるAlおよびCu常温接合界面のTEM観察」, 日本金属学会誌, 第54卷, 第6号, p.713 (1990).
- [11] Y.Kashiba, K.Machida, T.Okuda, W.Shimada and S.Nakata, "Energy-free Bonding of Materials with Fine Controlled Surfaces in Ultrahigh Vacuum", Materials Research Society Symposium Proceedings, Vol.108, p.371 (1988).
- [12] R.E.Cuthrell and D.W.Tipping, "Electric contacts. I. Application of interference fringe microscopy to electric contact problems", Journal of applied physics, Vol.44, No.7, p.3277 (1973).

R.E.Cuthrell and D.W.Tipping, "Electric contacts. II. Mechanics of closure for gold contacts", Journal of applied physics, Vol.44, No.10, p.4360 (1973).

[13] 平田好則, 長村誠, 黄地尚義, 「常温接合におけるイオンビーム照射の効果」, 溶接学会全国大会講演概要, 58, p.216 (1996).

[14] 藤井正沸, 「常温接合の実用化のために」, 溶接技術, 1996年2月号, p.141.

[15] 河野顯臣, 堀野正也, 田口啓二, 「低温接合技術の開発」, 溶接技術, 1989年5月号, p.74.

[16] T.Kizuka, K.Yamada, S.Deguchi, M.Naruse and N.Tanaka, "Cross-sectional time-resolved high-resolution transmission electron microscopy of atomic-scale contact and noncontact-type scannings on gold surfaces.

[17] T.Kizuka, K.Yamada, S.Deguchi, M.Naruse and N.Tanaka, "Time-resolved high-resolution electron microscopy of atomic scale solid-state direct bonding of gold tips", Journal of electron microscopy, Vol.46(2), p.151 (1997).

[18] K.L.Johnson, "A note on the adhesion of elastic solids", British journal of applied physics, Vol.9, p.199 (1958).

[19] K.L.Johnson, K.Kendall and A.D.Roberts, "Surface energy and the contact of elastic solids", Proceedings of the Royal Society of London, Series A, vol.324, p.301 (1971).

[20] D.Maugis and H.M.Pollok, "Surface forces, deformation and adherence at metal microcontacts", Acta metallurgica, Vol.32, No.9, p.1323 (1984).

[21] K.Takahashi, R.Mizuno and T.Onzawa, "Influence of the stiffness of the measurement system on the elastic adhesional contact", Journal of adhesion science and technology, Vol.9, No.11, p.1451 (1995).

[22] Y.Takahashi and K.Inoue, "Recent void shrinkage models and their applicability to diffusion bonding", Materials science and technology, Vol.8, p.953 (1992).

[23] G.C.Kuczynski, "Self-diffusion in sintering of metallic particles", Transactions of AIME, Vol.185, p.169 (1949).

[24] R.Raj and M.F.Ashby, "On grain boundary sliding and diffusional creep", Metallurgical transactions, Vol.2, p.1113 (1971).

- [25] 西口公之, 高橋康夫, 「基本的な接合機構に基づく固相接合過程の定量的検討（第1報）, (第2報), 溶接学会論文集, 第3巻, 第2号, p.303 (1985).
- [26] 西口公之, 高橋康夫, 小口力, 「接合機構領域図による固相接合過程の検討」, 溶接学会論文集, 第4巻, 第2号, p.311 (1986).
- [27] 西口公之, 高橋康夫, 高橋邦夫, 「固相接合における界面拡散の過渡現象とその促進効果」, 溶接学会論文集, 第4巻, 第3号, p.586 (1986).
- [28] K.Nishiguchi and Y.Takahashi, "Fundamental study of solid state bonding", Annual assembly of IIW, Tokyo, Japan, July (1986), Doc No. I-815-86/0E.
- [29] A.Hill and E.R.Wallach, "Modelling solid-state diffusion bonding", Acta metallurgica, Vol.37, No.9, p.2425 (1989).
- [30] Y.Takahashi, K.Takahashi and K.Nishiguchi, "A numerical analysis of void shrinkage process controlled by coupled surface and interface diffusion", Acta metallurgica et materialia, Vol.39, p.3199 (1991).
- [31] 北田正弘, 鴨下源一, 「B, N および Ar イオンを打込んだ Al の性質について」, 日本金属学会誌, 第37巻, 第12号, p.1284 (1973).
- [32] 大橋修, 目黒獎, 「アルゴンイオン衝撃表面処理の Cu または Ti の拡散接合への影響」, 日本金属学会誌, 第60巻, 第3号, p.324 (1996).
- [33] S.Timoshenko and J.N.Goodier, "Theory of elasticity 3rd edition, McGraw-Hill, New York, p.409 (1951).
- [34] 水野亮二, 高橋邦夫, 恩澤忠男, 「金とシリコンの間に働く固体間凝着力の計測」, 溶接学会論文集, 第14巻, 第3号, p.523 (1996).
- [35] 金持徹, 「真空技術ハンドブック」, 日刊工業新聞社, p.56 (1990).
- [36] 須賀唯知, 「常温接合」, 日本金属学会会報, 第29巻, 第11号, p.944 (1990).
- [37] W. A. バッコーフェン, 「金属塑性と加工」, コロナ社, p.146 (1980).
- [38] 石田誠, 「き裂の弾性解析と応力拡大係数」, 培風館, p.86 (1976).
- [39] 高橋康夫, 「表面・界面における空孔挙動」, 溶接学会誌, 第64巻, 第4号, p.289 (1995).
- [40] 幸田成康, 「改訂 金属物理学序論」, コロナ社, p.85 (1974).

- [41] D.Maugis and M.Barquins, "Fracture mechanics and the adherence of viscoelastic bodies", Journal of physics D, Applied physics, Vol.11, p.1989 (1978).
- [42] 高橋邦夫, 「弾性連続体の完全密着に対する表面粗さのクライテリオン」, 溶接学会「若手会員の会」, 「無加熱・無加圧による超精密接合の大面積化」研究発表・討論会資料, p.24 (1996).
- [43] 清宮紘一, 「超平滑化平面研磨技術」, 溶接学会誌, 第64卷, 第4号, p.273 (1995).

本論文に関連した発表論文

- [1] Souta MATSUSAKA, Yasuo TAKAHASHI, Katsunori INOUE, "Numerical Study of Relaxation Process of Residual Stress at Bond-Interface during Room Temperature Bonding", Proceedings of the 6th International Welding Symposium of Japan Welding Society, Vol.2, p.563 (1996).
- [2] 高橋康夫, 松坂壮太, 井上勝敬, 「金細線の常温凝着プロセスの数値解析 ~界面に働く残留応力の低減策~」, Proceedings of the 3rd Symposium on Microjoining and Assembly Technology in Electronics, Vol.3, p.143 (1997).
- [3] Yasuo TAKAHASHI, Souta MATSUSAKA, Katsunori INOUE, "Time Dependence of Room Temperature Bonding Strength", Proceedings of International Symposium on Environment-Conscious Innovative Materials Processing with Advanced Energy Sources, p.533 (1998).
- [4] 松坂壮太, 高橋康夫, 井上勝敬, 「金細線の常温凝着接合に関する研究」, Proceedings of the 5th Symposium on Microjoining and Assembly Technology in Electronics, Vol.5, p.11 (1999).
- [5] 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」, 溶接学会論文集投稿中.