Osaka University Knowledge Archive

Title	レーザ加工を施した固体金属基板に対する液体金属の特異拡張濡れならびに金属・合金の固液界面エネルギーの測定・推算方法の検討
Author(s)	福田, 敦
Citation	大阪大学, 2016, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/59597
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　　福田　敦　　）	
論文題名	レーザ加工を施した固体金属基板に対する液体金属の特異拡張濡れ ならびに金属・合金の固液界面エネルギーの測定・推算方法の検討

論文内容の要旨

レーザ加工によって局所的に金属基板上に微細構造を作製して特異拡張濡れ現象を応用することを提案し，これによって任意の箇所にのみ特異拡張濡れが起こることを固体Cu試料と液体Biによって確認した．またレーザ照射によって作製した微細構造の任意の経路を作製し，液体金属の設置位置から離れた場所での接合が可能ではないかと考え，Cu試料上の離れた地点に液体Biを設置して接合箇所まで自発的に特異拡張濡れが生じて接合が可能か基礎的な検討を試みた．また化合物を生成する系での有効性を確認するために，Snやはんだを用いて濡れ実験，接合実験を行った．さらに汎用性の高い材料であるFeの基板に対してもレーザ加工により微細構造の作製および液体金属の濡れ実験を試みた．以上の特異拡張濡れ現象を通じて濡れ現象の知見を得る中で，金属固体表面の微細構造と同様に平滑な基板に対する基礎的な濡れ性が重要であることが示唆され，基礎的な液体金属の固体金属への濡れを支配する各種界面エネルギーの中でも特に知見の少ない合金系の固液界面エネルギーについての測定方法と，推算モデルの提案を行った．

第1章は序論であり，本研究の背景と局所的に特異拡張濡れを適用することの目的と意義を示すとともに，濡れ性に影響する各種界面エネルギーの値とその測定方法の確立の重要性について述べた．

第2章では，金属基板上に局所的に特異拡張濡れを生じさせるために必要な金属表面微細構造を形成する手法としてレーザ照射を提案し，Cu基板へレーザ照射を行い深く入り組んだ穴と突起物が並んだ複雑な形状の微細構造が確認された．本研究ではこの構造を“表面微細クレバス構造”と名付けた．また，Cu板上に作製した表面微細クレバス構造に対して液体Biが特異拡張濡れを生じることを確認した．さらに，2枚のCu基板およびCu基板と複雑な形状を有するCu材料の接合を試みた．

第3章では，Cuと化合物を生成するSnもしくはSn-Pbはんだを用いてCu板にレーザ照射して形成した表面微細クレバス構造上での濡れ性を調査して特異拡張濡れが起こることを確認した．さらに同濡れ現象を利用した2枚のCu板の接合が可能であることを確認した．

第4章では，Fe基板への表面微細クレバス構造の作製を試み，作製したFe基板表面に対して各種低融点金属Sn, In, Biを液相として供して濡れ性の評価を行った．液体Sn，液体InはFe基板上に作製した表面微細クレバス構造上で特異拡張濡れを示した．一方，液体Biは特異拡張濡れを示さないことを確認した．

第5章では，固液界面エネルギーの測定方法を確立するために，液滴用試料の組成中において固体基板の成分が不飽和である試料を用いて静滴法を行い，実験中に固体基板を自発的に溶解させて，Dupreの式が成り立つ液滴形状を作製する条件をAg-Bi，Cu-B，Ge-Cu合金系で検討した．Ag-Bi，Cu-B系は予め穿孔した基板試料を用いて静滴法を行うことによって得られた液滴の縁近傍の局所的な形状から観察される固気液三相界面の二面角の角度と，実験温度で平衡する合金液体の表面張力をDupreの式に代入して固液界面エネルギーと固体の表面エネルギーの値を得た．さらに，Ge-Cu系について平滑なGe基板を用い，Ge-Cu合金の亜共晶組成試料を用いて静滴法を行うことにより固気液三相が共存する液滴の縁近傍の局所計上を得ることが得ることができた．

第6章では，固液界面エネルギーを推算するモデルを提案するために、固液間界面自由エネルギーに対するエンタルピー項とエントロピー項の寄与について検討等を行った．また，実測が困難な高温条件の合金系の固液界面エネルギーの予測を行った．また，本研究で述べたモデルと計算状態図を求めることができる熱力学データを用いて報告値のない合金系の固液界面エネルギーの推算を行った．

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　福　田　敦　）			
論文審査担当者		（職）	氏　名
	主 査	教授	藤本公三
	副 査	教授	廣瀬明夫
	副 査	教授	田中敏宏
	副 査	教授	才田一幸
	副 査	教授	望月正人
	副 査	教授	南二三吉
	副 査	教授	荒井栄司
	副 査	教授	浅井 知

論文審査の結果の要旨

金属材料の接合には一般にはんだ付けが用いられているが、接合箇所の角にフィレットと呼ばれるはんだ材の付着部が存在する。フィレットは接合部の強度にも寄与しているが、被接合部が小さくなるとこれらのフィレットの大きさが被接合部の極小化を妨げる問題も生じている。そのため、接合部の強度を保ちつつ、フィレットを生じさせないための金属接合が実現できれば、はんだ付けによる金属接合の新たな手法の開発につながる可能性がある。一般にはんだ付けは固体金属基板と液体はんだ材との濡れ性が関係し、その濡れ性は固体－液体界面自由エネルギーに関与する。従来、液体あるいは固体金属・合金の表面自由エネルギーについては様々な測定・推算がなされているが、一方合金系に対する固体－液体間界面自由エネルギーについては測定手法や推算方法も確立されていないのが現状である。上述の新たな金属の接合方法の開発には、その現象解明のために固液間界面自由エネルギーの情報に基づくシミュレーションなどの解析が不可欠であると考えられるが、現時点では精確な物性値情報すら確立されていない状況にある。以上の背景を踏まえて、本研究では局所的な金属材料の表面改質と、その微細組織への液体はんだ材料の拡張濡れによるフィレットを生じさせない新たな接合方法の提案ならびにその現象に関わる固液界面自由エネルギーの測定手法・推算方法の検討を行っている。本研究で得られた成果は以下の通りである。

1．金属基板上にはんだ材の局所的に拡張濡れを生じさせるために必要な金属表面微細構造を形成する手法としてレーザ照射を提案し，Cu基板へレーザ照射を行い，深く入り組んだ穴と突起物が並んだ複雑な形状の微細構造を作製できる条件を見出している．本研究ではこの構造を“表面微細クレバス構造”と名付け．また，Cu板上に作製した表面微細クレバス構造に対して液体Biが毛細管現象に基づく浸透によって拡張濡れを生じることを明らかにしている．さらに，2枚のCu基板およびCu基板と複雑な形状を有するCu材料の接合に成功している．

2．Cuと化合物を生成するSnもしくはSn-Pbはんだを用いてCu板にレーザ照射して形成した表面微細クレバス構造上での濡れ性を調査し、浸透現象によって拡張濡れが生じることを見出している．特に、基板材料のCuと金属間化合物を形成するSnがはんだ材に含まれる場合においても、金属間化合物が微細組織を閉塞することなく、良好な拡張濡れが生じることを明らかにしている。さらに同濡れ現象を利用した2枚のCu板の接合が可能であることを見出している．

3．Fe基板への表面微細クレバス構造の作製を試み，作製したFe基板表面に対して各種低融点金属Sn，In，Biを液相として供して濡れ性の評価を行っている．その結果、液体Sn，液体Inに対してはFe基板上に作製した表面微細クレバス構造上で浸透現象によって拡張濡れが生じるが．液体BiはFe-Bi間の濡れ性悪さに起因して拡張濡れを示さないことを明らかにしている．

４．合金系における固液界面エネルギーの測定方法を確立するために，液滴用合金試料の組成において固体基板の成分が不飽和である液体試料を用いて静滴法を行い，固体基板を自発的に溶解させて，Dupreの式が成り立つ液滴形状を作製する条件をAg-Bi，Cu-B，Ge-Cu合金系で検討している．その結果、Ag-Bi，Cu-B系においては予め穿孔した基板試料を用いて静滴法を行うことによって，得られた液滴の縁近傍の局所的な形状から観察される固気液三相界面の二面角の角度と，実験温度で平衡する合金液体の表面張力をDupreの式に代入して固液界面自由エネルギーと固体の表面自由エネルギーの値を得ることができることを明らかにしている．さらに，Ge-Cu系については平滑なGe基板に対して，Ge-Cu合金の亜共晶組成試料を用いて静滴法を行うことにより，固気液三相が共存する液滴の縁近傍の局所形状を得ることができ、固液界面自由エネルギーの測定が可能であることを見出している．

５．純粋金属系ならびに合金系における固液界面エネルギーを推算するモデルを提案するために、固液間界面自由エネルギーに対するエンタルピー項とエントロピー項の寄与について検討を行っている．その結果に基づいて、平衡状態図推算用の熱力学データを利用することにより，純粋金属系ならびに 2 成分系合金における固液界面自由エネルギーの推算モデルを提案し，実測が困難な高温条件下の合金系の固液界面自由エネルギーの予測が可能であることを見出している。

以上のように，本研究では，金属基板表面にレーザーを利用して表面微細クレバス構造を作製し，それらの微細構造に液体はんだ材が毛細管現象に基づいて浸透することによってフィレットが生じない金属材料の新たな接合が可能であることを明らかにしている．さらに本現象に関わる合金系における固体 - 液体間界面自由エネルギーの測定手法ならびに推算方法を提案している．

本論文は金属材料の接合方法とその基礎現象に関わる固液界面物性値の測定ならびに推算手法に関する新たな知見を多数含んでおり，生産科学分野の発展に寄与するところが大きい。よって、本論文は学位論文として価値あるものと認める．

様式 9

学力確認の結果の要旨及び担当者

学位申請者氏名（　　福　田　　敦　　）			
学力確認の担当者		職　名	氏　　名
	主 査	教授	藤本公三
	副 査	教授	廣瀬明夫
	副 査	教授	田中敏宏
	副 査	教授	才田一幸
	副 査	教授	望月正人
	副 査	教授	南二三吉
	副 査	教授	荒井栄司
	副 査	教授	浅井 知

学力確認の結果の要旨

学位申請者　福田敦は、平成１８年３月大阪大学工学部応用理工学科卒業、平成２０年３月同大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻博士前期課程を修了後、同年４月同大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻博士後期課程に進学し、平成２３年７月より同大学院工学研究科三菱電機生産コンバージング・テクノロジー共同研究講座にて特任研究員(非常勤)として勤務し、平成２４年３月同大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻博士後期課程を単位修得退学し、同年４月工学研究科三菱電機生産コンバージング・テクノロジー共同研究講座特任研究員(常勤)となり現在に至っている。

この間、溶融金属の濡れ現象および合金系の界面エネルギーについての研究、また摩擦圧接やマイクロソルダリングに関連する接合技術の研究開発に従事し、６編（うち英文３編）の論文を国内外に発表するとともに、学協会で多数の講演を行っている。

以上の学歴並びに研究歴を考慮し、本学学位規程第１１条の規定により学位論文に関連のある専門科目及び外国語について試問を行い、本学大学院工学研究科博士課程を修了した者と同等以上の学力を有することを確認した。