

令和 4 年 6 月 7 日現在

機関番号：12101

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2021

課題番号：18K04769

研究課題名（和文）超音波接合における表面-界面遷移過程の動的直視

研究課題名（英文）Dynamic direct observation of surface/interface transition process in ultrasonic welding

研究代表者

岩本 知広 (Iwamoto, Chihiro)

茨城大学・理工学研究科（工学野）・教授

研究者番号：60311635

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：透過型電子顕微鏡内で試料に超音波印加が可能な試料ホルダーを新たに開発した。これにより超音波接合過程における材料の微細組織変化をナノレベルで動的に観察することが可能になった。実際にこのホルダーを用いることで、ナノ結晶に起因する新たな接合界面形成機構が明らかになった。またフェーズフィールドクリスタル法を接合に応用した接合シミュレーションでは、接合される2つの結晶の相対方位角や移動速度に依存した接合界面構造、空孔数変化を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、今まで実験的に究明することが困難であった超音波接合におけるナノレベルでの接合界面形成機構に対して、現象を動的直視する新たな研究手法を開発することが出来た。さらに開発手法によりナノ結晶による接合機構を見出すことが出来た。今後、この研究手法を進めることで、超音波下の格子欠陥の挙動など様々な基礎現象を明らかに出来ると考えられる。シミュレーションにおいては、原子レベルで長時間の組織変化を追うことが出来るフェーズクリスタル法を初めて接合に応用しその可能性を確認出来たことで、さらなる展開への道筋を切り開いた。

研究成果の概要（英文）：We have developed a new sample holder that can ultrasonically bond two samples in a transmission electron microscope. This sample holder enabled us to observe the microstructure variation in the ultrasonic bonding process at the nanoscale. Using the developed holder, we revealed a new interface formation process with fine grains during ultrasonic bonding. In the bonding process simulation, we applied the phase-field crystal method to joining. It was found that when the relative orientation of the two crystals to be bonded changes, the interface structure and number of vacancies differ significantly.

研究分野：接合界面工学

キーワード：透過型電子顕微鏡 超音波接合 界面構造 その場観察 シミュレーション

### 1. 研究開始当初の背景

超音波接合は室温、大気中で行うことができ、また接合時間も短いことから、集積回路などの高温に弱く接合箇所が多い素子の端子接合に使われている。また熱源の要らない低エネルギー接合であり、溶接材料も必要なくコストパフォーマンスに優れることから、構造材料などへの広い応用も期待されている。

ところで超音波接合では、2つの比較的厚さの薄い部材に対して応力を印加しながら、超音波を応力と垂直方向にかけることで接合を達成する。界面では2つの部材が擦りあわせられ大きな塑性流動、摩擦による温度上昇が起こる。微細組織観察では界面近傍における結晶粒の微細化や亜粒界生成などが示され、接合中に動的再結晶や粒成長などが起こっていることが示唆されている。

しかしながら、接合性を左右する界面直上における超音波印加中の現象については直接的な知見がほとんどない。一般的に超音波接合中では、局所的に2枚の板が接触した領域に生成したマイクロボンドが、超音波により破壊、生成を繰り返しながらその領域を拡大し、接合が達成すると考えられている。しかしながら実際に超音波接合中にマイクロボンドがどのような形態で生成しているのか、どのような挙動を示すのか不明である。

超音波接合後の組織観察から接合界面近傍では、転位の生成、消滅、再配列などが起こると言われている。しかしこれにとどまらず、接合中の高エネルギー領域に生成すると考えられているナノ粒子のコロニーが見いだされている。また界面上の高密度転位のジョグに生成する、ポイドによる溶質原子の高速拡散も示唆されている。以上から申請者は超音波接合中のマイクロボンド領域では、転位のみには依らない流動的な組織が形成されるのではと考えているが、これを明らかにするためには組織変化の直接観察が不可欠である。

このように超音波により被接合体表面が接合界面に遷移する過程において、ナノレベルでどのような現象が起こっているのかということは、超音波接合法を理解するための本質的な問題である。

### 2. 研究の目的

本研究では超音波接合中の界面微細組織形成過程に直接アプローチする手法として、透過型電子顕微鏡その場観察法による実験と、粒子法などを用いたコンピューターシミュレーションの2つの手法を開発し、知見を得ることを目的とする。

一般的に超音波接合の微細組織による解析では、様々な接合条件において試料を作成し、それらの微細組織を観察することにより、接合中に何が起こっているか推測する。例えばAl/ガラス超音波接合界面の組織観察ではAl中に微細な亜粒界が多数生成しており、接合中の多数の転位生成、温度上昇による回復などが示唆される。しかしながらこれらの組織は接合後、超音波印加が終わった後の平衡状態に達した安定組織であり、超音波印加中の界面上の非平衡遷移状態の組織は不明である。

本研究では透過型電子顕微鏡のその場観察法により超音波印加中における非平衡組織を直接明らかにしようとするものである。このために試料に超音波を印加することができる新たな透過型電子顕微鏡試料ホルダーを開発する。さらにこのホルダーを実際に使い、微細組織を観察しながら超音波接合をすることでその組織変化を直接明らかにする。

また、シミュレーション研究においては、近年粒子法などによる材料組織形成の研究が盛んになってきている。粒子法は連続体モデルに基づく現象論的な手法で、材料の様々なプロセスへの応用が広がっている。本研究ではこの手法などを超音波接合に応用することで、超音波接合中の界面現象に迫ることが目的である。

### 3. 研究の方法

まず超音波を試料に印加することが可能な試料ホルダーを開発する。これには、試料の形状、取り付け方法、試料の移動機構、超音波の印加方法など様々な項目を検討し、試料ホルダーの設計を行う必要がある。本研究ではまずプロトタイプホルダーを設計製作し、実際に透過型電子顕微鏡でその場観察実験を行った。不具合がある箇所を検討、改良を加え、再度実験を行うというプロセスを繰り返すことで、最終的な試料ホルダーを開発した。

また透過型電子顕微鏡内その場観察実験では、実際にウェッジボンディングなどで用いられているAlを対象の材料とした。試料は透過型電子顕微鏡で観察可能なように、イオン研磨などで薄片化した。このAl箔をまず開発ホルダーの可動軸に取り付け、透過型電子顕微鏡内で超音波を印加しその組織変化を観察した。さらに固定した1枚のAlに対して、超音波を印加したAl箔を接触させることで、その接触部分における組織変化をナノレベルで観察した。

接合シミュレーションでは、原子レベルでありながら長時間のシミュレーションが可能な、フェーズフィールドクリスタル法を初めて接合に応用した。今回は加圧プロセスの原子状態変化を計算した。系は2次元系とし、方位が異なり正弦波の表面を持つ2つの結晶を徐々に近づけた。結晶の方位差、相対位置、圧着速度と原子構造や系のエネルギー変化の相関関係を調べた。

#### 4. 研究成果

##### (1) 透過型電子顕微鏡超音波印加試料ホルダーの開発

本研究の基盤となるその場観察用超音波印加ホルダーの開発では、まず安定に高精度で2枚の試料を接触させることが出来る試料ホルダーを製作した。この試料ホルダーは固定ステージと3軸方向に移動可能な可動ステージからなる機構を有している。可動機構は piezo素子による3軸微動と piezo素子とステッピングモーターによる3軸粗動を組み合わせることで、試料の幅広い領域に対して、精密に位置合わせをすることが可能になった。この可動ステージに超音波振動子を取りつけた。可動軸先端の振動状態を確認しながら、超音波振動子の位置を調整することで、設計通りに可動ステージを超音波振動させることが出来た。この可動ステージに固定した試料を超音波振動させ、それを固定ステージにセットされた試料に接触させることにより、超音波接合が可能になる機構を開発することが出来た。

実際にホルダーに試料を取り付け、透過型電子顕微鏡により観察しながら超音波振動を加えたところ、入力エネルギーを増加させると試料の振幅が増加することが確認された。また、試料ホルダーの分解能及び、超音波の微細組織への影響を確認するために、まず開発ホルダーに1枚の Al 試料を取り付け、微細組織を観察しながら試料に超音波を印加した。この結果、超音波印加中は分解能が低下し、入力エネルギーの大きさによっては格子欠陥などの観察は難しくなるものの、超音波印加しない状態では微細組織の観察は十分可能であった。また実際に超音波の印加前後の組織観察から、転位や粒界など格子欠陥の形態はほとんど変化しないことがわかった。これより単に試料に超音波を印加しただけでは微細組織を変化させることはできず、固定されている試料に接触させることにより塑性振動を与える必要があることが明らかになった。

##### (2) 透過型電子顕微鏡超音波接合その場観察

固定ステージと可動ステージのそれぞれに Al の薄片試料を取り付け、超音波を印加しながら接触させる超音波接合実験を行った。超音波印加中では、接触部近傍に数十 nm の大きさの多数のナノ結晶が生成した。これらのナノ結晶はランダムに薄片試料間を動き回り、大きく成長したり、試料間に集積し微細粒領域を形成したりした。Fig.1 は、Al 試料の接触部分に集積したナノ結晶の明視野像である。数 100nm の大きさのナノ結晶はさらに小さい数 10nm 程度のナノ結晶が集まって形成されていることが分かる。このナノ結晶から電子線回折図形を取得したところ、Al の微結晶とアモルファスのパターンが観察された。これより、ナノ結晶の集積物は母材の Al と母材表面に存在している Al の酸化物からなることが分かった。接触領域が少ない場合はその領域が切削される傾向が観察された。切削部の形状は鋭く大きな塑性変形などは見られなかった。切削部では転位が生成、移動している様子が観察された。また、接触領域が広い場合には2つの Al 試料間のナノ結晶の集積を介して接合することが可能であった。Fig.2 は接合した領域の明視野像である。左右の試料の間の中央部にナノ結晶が集積しており、この部分で試料が接合されている。この接合体に対して引張試験を行ったところ、クラックはナノ結晶の集積した接合部を進行した。また破断時の試料の挙動から、接合部はある程度の接合強度を有していることが確認された。これより微細粒領域が接合界面形成に一定の寄与をしていることが示唆された。

これらの研究より、超音波接合過程では Al 試料が高速で擦りあわされることで表面が切削されると同時に多量のナノ結晶が生成する。それが試料間に堆積、成長することで微細結晶が生成した接合界面が形成されるという、ナノ結晶を介した接合プロセスが存在することを見出した。

##### (3) 接合過程シミュレーション

圧着速度を変えて2つの結晶を加圧、接合させ、その時の接合部の原子構造を計算した。圧着速度が速い場合は接合界面にボイドが残存することが分かり、良好な接合状態を実現するには最適な速度が存在することが確認された。また、接合過程における自由エネルギー変化は、圧着速度によらず、原子が接触した時点でエネルギーが急激に減少した。さらに2つの結晶の相対方位角を変化させ圧着させたところ、エネルギー値や原子構造が異なる接合界面が得られた。今回の実験条件下では、相対方位角が小さいほどエネルギー値が小さくなっていった。

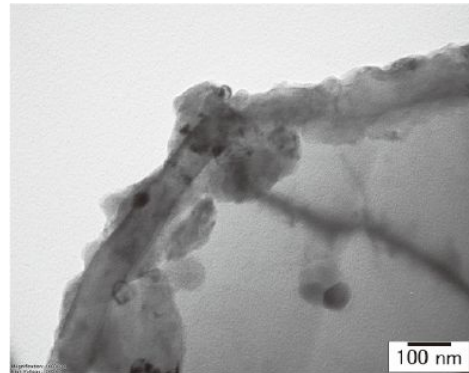


Fig. 1 Al 試料上に堆積したナノ結晶の明視野像

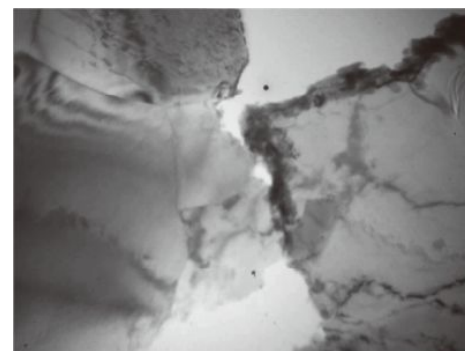


Fig. 2 透過型電子顕微鏡内で超音波接合された2つの Al 試料

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 堀内涼太郎、岩本知広、濱田賢祐	4. 巻 2
2. 論文標題 ウェッジボンディングにおける接合界面形成過程	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Mate2022	6. 最初と最後の頁 112,113
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 篠嶋妥、小野澤亮祐、畠山慎吾、岩本知広	4. 巻 2
2. 論文標題 フェーズフィールドクリスタル法による加圧ボンディングプロセスのシミュレーション	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Mate2022	6. 最初と最後の頁 242,243
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 岩本知広、濱田賢祐
2. 発表標題 超音波接合TEM観察ホルダーの開発
3. 学会等名 溶接学会春季全国大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大谷良美、岩本知広
2. 発表標題 超音波接合その場観察法の開発
3. 学会等名 日本顕微鏡学会第78回学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岩本知広、堀内涼太郎、濱田賢祐
2. 発表標題 超音波接合過程のその場観察
3. 学会等名 溶接学会秋季全国大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岩本知広
2. 発表標題 超音波接合界面の微細組織
3. 学会等名 表面分析研究会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 堀内涼太郎、岩本知広、濱田賢祐
2. 発表標題 ウェッジボンディングにおける接合界面形成過程
3. 学会等名 第28回エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 篠嶋妥、小野澤亮祐、畠山慎吾、岩本知広
2. 発表標題 フェーズフィールドクリスタル法による加圧ボンディングプロセスのシミュレーション
3. 学会等名 第28回エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術シンポジウム
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	永野 隆敏  (Nagano Takatoshi)  (70343621)	茨城大学・理工学研究科(工学野)・講師   (12101)	
研究 分担者	篠嶋 妥  (Sasajima Yasushi)  (80187137)	茨城大学・理工学研究科(工学野)・教授   (12101)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------