

432 銅と各種金属の拡散接合に及ぼす銅中の酸素の影響

新潟大学大学院

○吉岡隆幸

新潟大学工学部生 (現 北海道大学大学院)

山口知良

新潟大学工学部生 (現 IHI)

大橋博行

新潟大学大学院

大橋 修

Effect of oxygen content in copper on diffusion bonding
between copper and several metals

by Takayuki Yoshioka, Tomoyoshi Yamaguchi, Hiroyuki Ohashi and Osamu Ohashi

1.はじめに

酸素量が異なる二種類の Cu (タフピッチ銅; TPC および無酸素銅; OFHC) と, W あるいは Ag を拡散接合したところ, Cu-W では Cu 中の酸素量増加に伴い, 継手引張強さが小さくなるが, Cu-Ag では, Cu 中の酸素量による継手引張強さに違いが見られない。このような Cu 中の酸素量, および接合対の組み合わせによる強度低下発現の原因として, 接合界面における酸化物形成が考えられるが, その詳細は十分に検討されてはいない。本研究では, 上述の二種類の Cu と各種金属を拡散接合し, 接合体の引張試験, 破面観察, XRD, AES 等から, 特に界面の酸化物形成に着目し, 熱力学的な観点から検討した。

2.実験方法

供試材は, OFHC(0.0004at%O), TPC(0.14at%O), 相手金属として Mo, Ni および Pt を用いた。接合面をエメリー研磨#600 仕上とした後, アセトン中で超音波洗浄を行ない, OFHC あるいは TPC の間に相手金属を挟み込む様式で接合対を形成し, 真空容器内に取り付け, 加圧, 加熱して接合体を得た。

3.結果および考察

Fig.1 に接合温度と継手引張強さの関係を示す。Cu-Mo 接合体では, TPC-Mo 継手強さはいずれの接合温度においても低い値を示し, OFHC-Mo 継手強さは接合温度の上昇に伴って高い値を示すようになる。Cu-Ni および上述した Cu-W 接合体で同様の結果が得られる。これに対し, Cu-Pt および Cu-Ag では TPC, OFHC の違いによる強さの違いは顕著ではない。各試料の破面を観察したところ, TPC-Mo, TPC-Ni は比較的平坦な破面形態であり, OFHC-Mo, OFHC-Ni および強さに違いが見られない Cu-Pt の破面形態はディンプル構造をしている。Fig.2 に破面における XRD 測定結果を示す。TPC-Mo では, Mo 側破面から MoO_2 が同定された。これに対し, OFHC-Mo では界面に酸化物の存在は認められない。また, Cu-Pt では OFHC, TPC いずれの試料からも Pt 酸化物は認められない。以上のように, 接合対の組み合わせによ

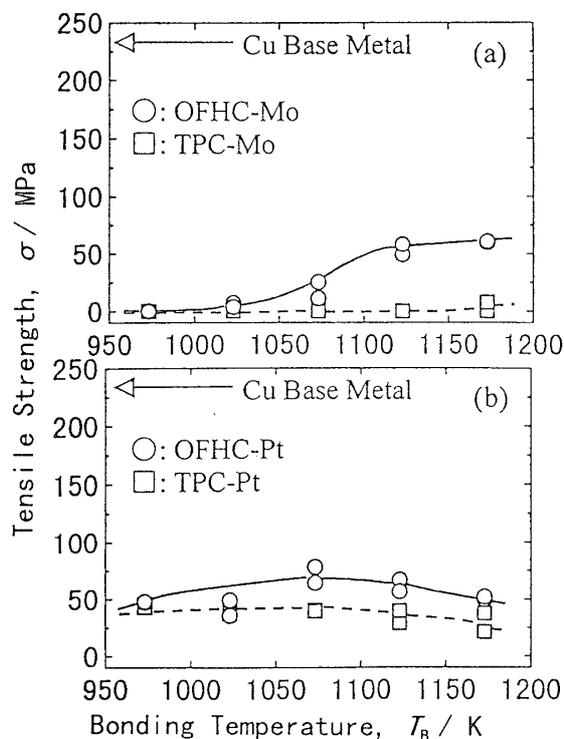


Fig.1 Relationship between bonding temperature and tensile strength on diffusion bonding of molybdenum-copper(a) and platinum-copper(b).

り、また、同じ金属においても Cu 中の酸素量の違いによって継手強さに違いが見られ、継手強さの低い接合体の界面にはいずれも相手金属の酸化物が形成していることが確認された。

以下において、界面酸化物の形成について考察する。まず相手金属が酸化物を形成する反応を考える。



(Me:接合相手金属)

(1)式の自由エネルギー変化 ΔG は、 $\Delta G = \Delta G^0 + RT \ln\{a(\text{MeO}_2) / p\text{O}_2 \cdot a(\text{Me})\} \quad \dots (2)$ と表すことができる。

ここで a は活量、 $p\text{O}_2$ は酸素分圧である。実際の実験条件では O は Cu 中から供給されるので、Cu 中の O 活量を知ればその値を(2)式に代入し ΔG を求めることで酸化物形成の可否を推定することができる。TPC の場合、Cu と Cu_2O の二相混合領域組成であるので、TPC 中の O 活量は Cu_2O 解離酸素分圧として求めることができる。この酸素分圧を(2)式に代入すると、Mo、Ni および W では $\Delta G < 0$ となり酸化物形成が可能である。Ag では $\Delta G > 0$ となり酸化物が形成し得ない。OFHC の場合においても OFHC 中の O 活量を知ることで同様に考えることができる。

さらに TPC と OFHC での違いを詳細に検討するため、試料加熱時の AES 測定を行ない、Cu 中の酸素の挙動を調査した。その結果 Fig.3 に示すように、OFHC では温度の上昇に伴い表面の酸素濃度は低下するが、これに対し TPC では表面に酸素が偏析することが確認された。このことから TPC が接合界面でより酸素を供給しやすい状態であることがわかる。

4.まとめ

酸素含有量の異なる Cu と各種金属の接合体は、継手強さ、破面形態などから、二つのグループに大別ができ、それは界面酸化物の有無に対応していた。酸化物が形成する可能性のある接合対の組み合わせは、実験条件における O 活量を知ることにより、相手金属の酸化物生成反応の ΔG を求めることで判別することができる。また、加熱時において TPC 表面に酸素が偏析し、この現象が TPC-Mo や TPC-W など界面に一様に酸化物が形成する一因であると考えられる。

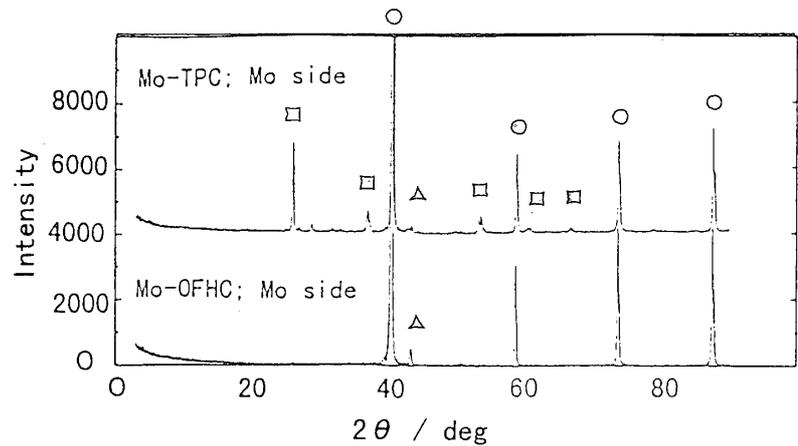


Fig.2 XRD patterns of Mo-TPC and Mo-OFHC bonding.
○: Mo □: MoO_2 △: Cu

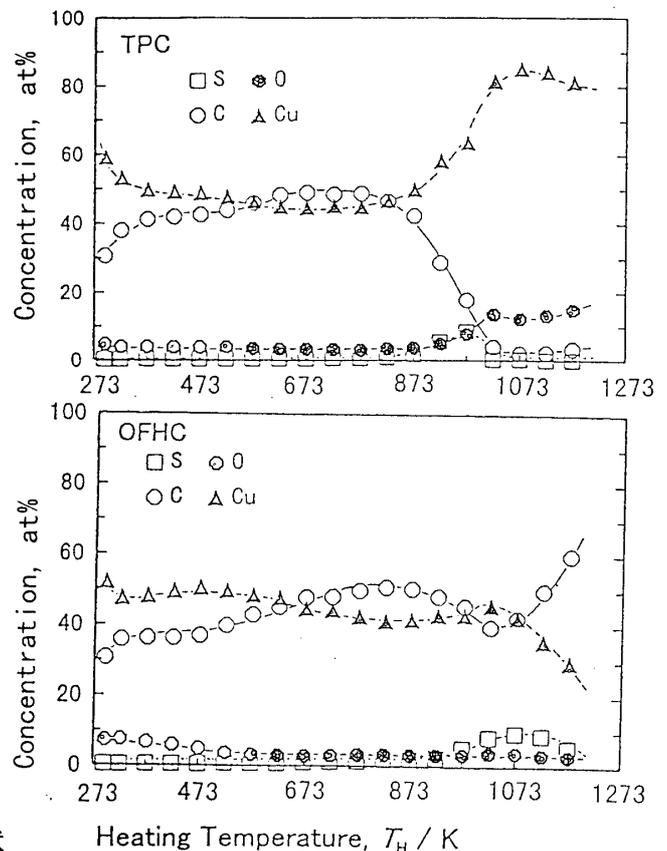


Fig.3 Results of Auger electron spectroscopy under the heating condition.