

氏 名	むらき なおき 村木 直樹
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	博 乙 第 132 号
学位授与の日付	平成 16 年 11 月 25 日
学位授与の要件	学位規程第 3 条第 4 項該当
学 位 論 文 題 目	Application of Piezo Spectroscopy to Microscopic Stress Determination of Ceramics and Polymer/Ceramic Composite (ピエゾ・スペクトロスコピーのセラミックスと高分子系複合材料の微小部応力評価への応用) (主査)
審 査 委 員	教授 PEZZOTTI Giuseppe 教授 播磨 弘 教授 岩本正治

論文内容の要旨

本論文は、ラマンバンドや蛍光線と応力の関係を利用して微小領域の応力評価を行うピエゾ・スペクトロスコピー(分光学的応力評価法)の応用に関するものである。

セラミックスなどの脆性材料の場合で、非常に小さいクラックが起点となって破壊が生じるため、微小部の応力は材料全体の破壊挙動と密接に関連している。最近の工業界は、微細加工技術を必要とする高付加価値製品へ傾倒しており、微小部の応力評価はますます必要となっている。また、これら先端材料の信頼性確保のために、微小部の応力評価手法を開発することが不可欠となっている。

ピエゾ・スペクトロスコピーの物理的原理は、応力によって引き起こされる対象物の格子振動や電子準位の変化にある。微小な歪みのもとでは、バンドのピーク周波数シフトは応力とほぼ線形な関係にあることが知られており、その比例係数はピエゾ・スペクトロスコピック係数と呼ばれる。したがって、測定箇所の応力値は応力によって誘起されるバンドピークシフトとピエゾ・スペクトロスコピック係数から得ることができる。応力評価に従来最も頻繁に用いられる X 線回折法と比較した場合の最大の利点は、その高い空間分解能(最小 $0.5 \mu m$)にある。X 線回折法の場合は、シンクロトロン放射光を用いた場合でもおよそ 5 ミクロン程度である。

本論文の内容は大きく二つに分類される。一つは、ピエゾ・スペクトロスコピーをいくつかのエンジニアリングセラミックスとその破壊力学に適用することである。ここでは、窒化ケイ素および窒化アルミニウムを取り上げた。これらは、単体および複合セラミックスとして用いられる構造セラミックスである。破壊解析の推定や破壊メカニズムの解明のためには、これらセラミックス材料の微小部の応力評価を行うことが重要である。ピエゾ・スペクトロスコピーの応用として、インデンテーション周辺の微小部の残留応力分布をこの方法で評価した。さらに、ピエゾ・スペクトロスコピーの最も効果的で優れた例で破壊力学的な応用として、クラック周辺の応力測定の *in-situ*(その場)観察方法を開発した。ここでの方法論は、破壊力学試験をラマン散乱測定によりその場で行うこと、および、あらかじめクラックを生成しておいた試料に外部加重を与えることで、微小な引っ張り応力をクラック架橋部に生じさせることにある。この方法論で、高韌性セラミックス材料である窒化ケイ素のマクロ的な脆性挙動とタフネスを微小部の応力場に基づいて評価することができる。

て説明することができた。

本研究の第二の目的は、ピエゾ・スペクトロスコピーの高分子系複合材料への適用である。このような高分子系複合材料は特に半導体パッケージ産業で広く用いられる。ピエゾ・スペクトロスコピーは、従来、高分子材料への適用が難しいと言われている。理由は、これらの材料はバンドピーク周波数の正確な測定が可能なシャープで強いラマンバンドを持っていないためである。さらに半導体パッケージで通常用いられる熱硬化性樹脂はブロードな蛍光を発するため、精度の高いラマンスペクトルの測定は一般に不可能である。本論文では、高分子材料にフィラーを混入させることで残留応力を測定する新しい手法を開発した。この方法論のカギとなるのは、微小部の応力計測のセンサーとして、シャープで非常に強い蛍光を有するアルミナ粒子を混入させる点にある。導入されたアルミナ粒子蛍光線の応カシフトを計測することによって、高分子系複合材料内部の残留応力を検出するとともに、半導体モデルパッケージについて封止樹脂内部の微小部の応力分布評価を行い、FEM(有限要素法)によって数値計算された応力分布との比較から測定結果の妥当性を確認した。

本論文では、上述した研究結果に加え、ピエゾ・スペクトロスコピーの原理と実験法に関する記述、および、X線回折や歪みゲージを用いた従来の残留応力評価法との多面的な比較についての記述も加え、ピエゾ・スペクトロスコピーによる残留応力評価の応用について総合的な議論を行った。

論文審査の結果の要旨

本論文は、高韌性セラミックス材料である窒化ケイ素について、そのマクロ的な脆性挙動とタフネスを微小部の応力場計測に基づいて検証した部分と、アルミナ粒子蛍光線の応力シフト計測に基づいて高分子系複合材料内部残留応力を検証した部分の大きな2つの章から構成され、ラマン散乱及び蛍光分布計測をもとにミクロンスケールの応力解析を実現したことが実証されている。さらに一測定につきミクロンスケールで数万ポイントを自動測定するシステムも試作している。

近年工業界では、微細加工技術を要する高付加価値製品に注目しており、微小部の応力評価はますます必要となってきている。本論文の応力解析手法は微細加工材料の変形・破壊力学、及びデバイスのミクロ応力解析に大きく貢献し、将来の先端デバイスの信頼性を高める手法として、様々なデバイス材料の非破壊検査に広く応用されるものと期待される。

以上のことより、本論文は工業的に有用であり、高く評価できる。

本論文作成の基礎となった学術論文5編は、レフェリー制度の確立している学術雑誌に掲載されたものであり、1編を除き全て申請者が筆頭著者である。この他に、本論文の内容に関連するものとして、参考論文7編が公表されている。その他レフェリー制学術論文は総数16編、著書(共著・出版準備中)は2冊ある。

学位論文作成の基礎となった学術論文リスト

- 1)" Mapping of Residual Stresses around an Indentation in β -Si₃N₄ Using Raman Spectroscopy." Naoki Muraki, Gen Katagiri, V. Sergio, and G. Pezzotti, *J. Mater. Sci.* 32 (1997):5419-23.
- 2)" Raman Piezo-Spectroscopic Behaviour of Aluminium Nitride." Naoki Muraki, Valter Sergio,

Giuseppe Pezzotti, Gen Katagiri, Sergio Meriani, and Toshihiko Nishida, *Appl. Spec.* 51(1997) : 1761–65.

3)" *In situ* Measurement of Bridging Stresses in Toughened Silicon Nitride Using Raman Microprobe Spectroscopy." Giuseppe Pezzotti, Naoki Muraki, Naoki Maeda, Kouji Satou, and Toshihiko Nishida, *J. Am. Ceram. Soc.* 82(1999) :1249–56.

4)" Determination of Thermal Stress Distribution in a Model Microelectronic Device Encapsulated with Alumina Filled Epoxy Resin Using Fluorescence Spectroscopy." Naoki Muraki, Nobuhiro Matoba, Takayuki Hirano, and Masanobu Yoshikawa, *Polymer* 43(2002) :1277–85
5)" Residual Stress Mapping of Epoxy Molding Compound in a Ball Grid Array Microelectronic Package Using a Fluorescent Sensor." Naoki Muraki, Nobuhiro Matoba, Takayuki Hirano, Masanobu Yoshikawa, and Giuseppe Pezzotti, *Appl. Spec.* 58(2004) :152–59.