

氏名	塚原祐輔
授与学位	工学博士
学位授与年月日	平成2年5月9日
学位授与の根拠法規	学位規則第5条第2項
最終学歴	昭和51年3月 早稲田大学理工学部物理学科卒業
学位論文題目	擬セザワ波を用いた超音波スペクトロスコピーによる 膜の評価法に関する研究
論文審査委員	東北大学教授 中鉢 憲賢      東北大学教授 山之内和彦 東北大学教授 中村 僖良      東北大学助教授 櫛引 淳一

## 論文内容要旨

近年、機能性薄膜、高分子被膜、セラミクスコーティング、メッキ膜などの薄膜が多く用いられるとともに、それらの弾性的特性や厚さあるいは接着性などの定量的測定が重要な課題となっている。超音波による測定は非破壊的に行えるため、工学的に重要であると共に品質管理の手段としても有用であり、薄膜への展開が注目されていた。そこで本研究は、まず半導体集積回路(IC)に用いられるリードフレームの金メッキ厚の測定方法の研究から始め、さらに工業的に用いられている多くのメッキ膜について膜厚測定の可能性を検討した。また研究の過程に於て、膜物質の物性がバルクの特性和異なる場合が多いことを見だし、本研究の方法が膜の品質評価に応用できることを確認した。さらに、筆者は高分子被膜を取り上げその膜厚、弾性的特性、および接着性の検討を行った。高分子被膜は、近年工業的に多用されている重要な技術であるが、数ミクロン～数十ミクロンの厚さにおける弾性的特性の測定が緊急の課題となっているためである。

擬セザワ波を用いた超音波スペクトロスコピーは、層状物質における超音波反射係数の周波数および入射角依存性に現われる、ディップの発見に基づいている。本研究は、理論および実験的検討により、この現象が漏洩弾性表面波の一つである擬セザワ波の励起によって引き起こされることを明らかにするとともに、密度、弾性定数、膜厚、密着性などの特性に対する依存性を明らかにした。

本方法は、(1)ディップが反射係数の極小によってもたらされその影響範囲も波長程度であるため平面波の近似がよく成り立ち、ビームの寸法形状などによらずに材料の特性だけを測定できる：(2)センサーの走査や入射角の変化などの機械的動作ではなく反射信号のスペクトル解析によって測定するため、容易に安定な定量測定が実現でき工業的な応用に用いやすい：などの利点を有する。

以上のように、本論文は膜を有する固体基板上に斜に入射する超音波のスペクトルを理論的ならびに実験的に解析することにより、超音波を用いて短時間に機械的走査等なしに膜の評価を行なう新規な方法を提案し、その有用性を実証した研究をまとめたものであり、全7章からなる。

## 第2章 膜を有する半無限固体表面における反射超音波のスペクトルの解析

第2章では、表面に膜を有する半無限固体表面に入射する超音波平面波の反射係数を数値計算によって求め、膜の横波音速が基板の横波音速より遅い場合には反射係数にディップが現われることを見いだした。また、超音波を斜入射させ反射波のスペクトルを観察する実験によって反射係数のディップの存在を実証した。次に、膜を有する固体表面を伝搬する表面波の分散関係との比較から、反射係数のディップが擬セザワ波の励起によって引き起こされることを明らかにした。

さらに、本章では反射係数の複素波数ベクトル平面上の解析性の検討によって、擬セザワ波によるディップが複素波数ベクトル平面上のゼロと極（特にゼロ）の振る舞いから説明されることを示すと共に、現象が膜の横波音速に強く依存することを示した。

以上のように本章では、擬セザワ波を用いたスペクトロスコーピーについて現象の理論的解明を行ない、以下の章における工学的応用への準備を行った。

## 第3章 擬セザワ波を用いた超音波スペクトロスコーピーシステムの構成

第3章では、第2章で行った反射係数の解析に基づいて超音波スペクトロスコーピーシステムを試作し、測定機としての有効性を実証した。応用として特に膜厚測定の実用化を念頭におき、システムの特性を評価した。これは、膜と基板の物性が既知であれば、ディップ周波数 $f$ を測ることで膜厚 $d$ が得られることを利用したものである。システムは斜入射インパルス超音波の周波数解析を基本とする。この方法はセンサーの機械的走査なしに短時間に膜厚が測定できるため、工業的な測定方法として特に有用である。

ICのリードフレームに用いられる42%Ni-Fe合金(42合金)上の金メッキを試料として、20MHz～150MHzの周波数を用い、温度変化に対する依存性を評価する実験を行ない、校正曲線を得た。同時に、測定の安定性と精度について検討し、それぞれ0.2%と1%以内が得られた。またセンサーの位置設定の許容量も評価した。

次に、センサーから放射される超音波ビームの幅が及ぼす影響を理論的に検討した結果、レイリー波の場合と異なり擬セザワ波においては平面波の近似が良く成り立つことを示した。

以上のようにして得られた特性は実用的に十分なものであり、本システムはすでに工業的な測定機として実用化されている。

## 第4章 各種の膜における超音波スペクトロスコーピーの実験的検討

固体基板上に形成された膜の弾性的特性を評価することは工学的に重要な課題である。擬セザワ波の分散は膜の弾性的特性、特に横波音速に大きく依存するため、他の方法であらかじめ膜厚を測定しておき分散の実験値を理論値と比較すれば、膜の品質評価が可能になると期待される。

第4章では、リードフレームにおける42合金上の金メッキ（以下で金/42合金と記す）、および金/銅、金/しんちゅう、銀/銅、錫/鉄鋼、亜鉛/鉄鋼、フッ素樹脂/鉄鋼の試料について、擬セザワ波の分散を測定して理論値と比較した。特にフッ素樹脂被膜とリードフレームにおいては $fd$ 値（ディップ周波数 $f$ と膜厚 $d$ の積）が理論値と異なっており、膜の特性がバルクと大きく異なっていることを示している。リードフレームはメッキ液をジェット噴射して大電流で高速にメッキするので、これが原因と思われる。また金/銅の試料では $fd$ 値がメッキ膜の厚さによって異なり、厚いほど大きな $fd$ が観測された。これは、同じ金メッキ膜でも膜厚によって弾性的特性の異なったものができることを示している。

以上のように本章では、擬セザワ波を用いた超音波スペクトロスコピーが膜の非破壊的な品質評価に用いることができることを示した。

## 第5章 膜を有する薄板における反射超音波のスペクトルの解析

薄膜を有する試料においては、基板の厚さが数百マイクロン以下の場合がしばしばあり、そのような場合には100MHz帯の入射超音波によって擬セザワ波以外に板波もまた励起され、そのため反射波のスペクトルに多数のディップが現われて膜の評価に困難を生ずる。そこで本研究では、反射係数を検討すると共に、スリットを持つ吸音材のマスクを試料面に置くことで板波の励起を阻止する方法を提案し、その効果を実験と理論計算によって実証した。

また、薄板上に膜が形成されている場合には、板の材料中での超音波の伝搬減衰が反射波のスペクトルに影響することを利用して、板の横波の減衰定数を推定することを試みた。縦波の減衰定数については、垂直入射波を用いて実測した。その周波数依存性はStanke, Kinoのモデルによって予言されたものと一致しており、はなはだ興味深いものである。

以上のように本章では、擬セザワ波を用いた超音波スペクトロスコピーを、薄い板に形成された膜にも適用すると共に、板の減衰定数の及ぼす影響についても検討を加えた。

## 第6章 反射超音波のスペクトルの解析による膜の接着不良の評価

接着状態のキャラクタライゼーションは工学的に重要な課題であり、超音波の理論及び実験による研究も多く行われてきた。特に、slip bonding（粒子変位ベクトルの成分のうち境界面に平行な成分が境界面において不連続となるような場合）の検出と評価が困難な課題となっている。

このような状況を踏まえ第6章では、膜にPETフィルム、基板に鋼板を取り上げ、膜と基板の間に極く薄い層を仮定することでslip bondingの場合の反射係数を理論的に研究した。完全接着とslip bondingの場合について、垂直入射では反射係数の周波数依存性が同一であるが、入射角20~40度では両者に定性的な違いがあることを明らかにした。次に、25~27度の入射角を用いてスペクトルの測定を行ない、良好な接着面では理論計算どおりにディップのペアが観測されるがslip bondingと思われる面ではそのディップペアが単独のディップになる事を確認した。

以上のように本章では、膜と基板の間の境界条件（特にslip bonding）に関する依存性に焦点を合わせて検討し、薄膜の接着面におけるslip bondingの検出方法を提案し、実験的に実証した。

以上のように本研究は、反射超音波のスペクトルを検討することにより擬セザワ波を用いた膜の評価方法を提案し、膜厚測定方法を実用化するとともに膜の品質評価、接着状態の評価について有効性を実証した。今後さらに、微小部分におけるスペクトルの評価を実現することで、超音波マイクロスペクトロスコピーの発展に寄与していくものと期待される。

## 審 査 結 果 の 要 旨

近年、電子産業分野においては機能性薄膜やメッキ膜などの薄膜が多く用いられ、それらの厚さの制御、弾性的特性あるいは接着性などの定量的評価が重要な課題となっている。超音波による測定は、非破壊的に行えるため材料研究および品質管理の手段として重要であり、薄膜技術への応用が望まれていた。

そこで著者は、層状物質における超音波反射係数の周波数および入射角依存性を理論的ならびに実験的に解析し、漏洩弾性表面波の一つのモードである擬セザワ波に着目すれば精度よく薄膜の定量評価ができることを見出した。さらに、超音波スペクトロスコピーの手法を用いて短時間に膜の評価を行なう方法と装置を開発し、その有用性を実証した。本論文は、これらの成果をまとめたもので、全編7章よりなる。

第1章は序論である。

第2章では、膜を有する半無限固体表面に入射する平面超音波の反射係数を詳しく解析している。膜の横波音速が基板の横波音速より遅い場合には擬セザワ波が励起されて反射係数にディップが生ずることを理論的ならびに実験的に明らかにし、斜入射した超音波の反射スペクトルからこのディップを測定し、薄膜の特性を評価する方法を提案している。これらは新しい知見であり、優れた成果である。

第3章では、前章の結果を踏まえて擬セザワ波を用いた超音波スペクトロスコピーシステムを試作し、膜厚測定に対してその特性を評価している。システムの安定性と測定精度、およびセンサの位置設定の許容量を測定し、そのシステムが工業的な測定装置として実用上十分な特性を備えていることを示している。

第4章では、本計測システムを各種の金属基板上に形成された膜の品質評価に適用し、その有用性を実証している。特にフッ素樹脂皮膜や金属メッキ膜の弾性的特性がバルクの特性と異なっていることを明らかにしている。

第5章では、基板の厚さが薄い場合に測定上障害となる板波の励起の問題とその解決策について論じている。スリットを持つ吸音材のマスクを試料面に設置することにより板波の励起を阻止する方法を提案し、その有用性を実証している。

第6章では、薄膜と基板間の接着性に関して、ずり接合モデルを考慮に入れた新しい評価方法を提案し、実験的に検証している。これは優れた成果である。

第7章は結論である。

以上要するに本論文は、斜入射超音波の反射スペクトルを解析することにより擬セザワ波を用いた新しい薄膜の評価方法と超音波スペクトロスコピーシステムを開発したもので、電気計測学、超音波工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。