

# Schlussbericht vom 31.03.2023

zu IGF-Vorhaben Nr. 20896 BG

# Thema

Modellbasiertes reaktives Fügen zur Erhöhung der Prozesssicherheit und -zuverlässigkeit (MoReBond)

# **Berichtszeitraum**

01.11.2019 bis 30.09.2022

# Forschungsvereinigung

Hahn-Schickard-Gesellschaft für angewandte Forschung e.V.

# Forschungseinrichtungen

1. Hahn-Schickard Wilhelm-Schickard-Str. 10 78052 Villingen-Schwenningen

2. Fraunhofer-Gesellschaft e.V.
 Fraunhofer-Institut f
 ür Werkstoff- und Strahltechnik IWS
 Winterbergstraße 28
 01277 Dresden

3. Hochschule Niederrhein
IMH - Institut f
ür Modellbildung und Hochleistungsrechnen
Reinarzstraße 49
47805 Krefeld



Gefördert durch:



Bundesministerium für Wirtschaft und Klimaschutz

aufgrund eines Beschlusses des Deutschen Bundestages

# Inhalt

The	ma	1
Beri	chtszeitraum	1
Fors	schungsvereinigung	1
Fors	schungseinrichtungen	1
Inha	lt	2
1.	Kurzfassung	4
2.	Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse	6
	AP1 Spezifikation	6
	Angestrebte Ziele	6
	Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse	6
	Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen	6
	AP2 Ermittlung der temperaturabhängigen Materialdaten	6
	Angestrebte Ziele	6
	Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse	7
	Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen	. 16
	Meilenstein 1:	. 16
	AP3 Modellierung und Simulation	. 16
	Angestrebte Ziele	. 16
	Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse	. 16
	Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen	. 32
	Meilenstein 2	. 32
	AP4 Entwicklung, Bereitstellung und Strukturierung von RMS	. 32
	Angestrebte Ziele	. 32
	Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse	. 32
	Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen	. 48
	AP5 Bereitstellung von Testsubstraten mit Vormetallisierung	. 48
	Angestrebte Ziele	. 48
	Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse	. 48
	Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen	. 50
	AP6 Fügeversuche	. 50
	Angestrebte Ziele	. 50
	Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse	. 50
	Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen	. 61
	AP7 Analyse der Fügeverbindungen	. 61

Angestrebte Ziele	61
Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse	62
Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen	64
AP8 Erstellung der Funktionsmuster	64
Angestrebte Ziele	64
Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse	64
Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen	73
Meilenstein 3	73
AP9 Erstellung eines Prozesshandbuchs	73
Angestrebte Ziele	73
Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse	74
Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen	74
Meilenstein 4	74
3. Verwendung der Zuwendung	74
4. Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit	74
5. Wissenschaftlich-technischer und wirtschaftlicher Nutzen der erzielten Ergebnisse	75
Wissenschaftlich-technischer Nutzen der erzielten Ergebnisse:	75
Wirtschaftlicher Nutzen der erzielten Ergebnisse:	76
6. Plan zum Ergebnistransfer in die Wirtschaft	77
Durchgeführte Transfermaßnahmen	77
Geplante Transfermaßnahmen	78
Einschätzung der Realisierbarkeit dieses Transferkonzeptes	78
Danksagung	79
Literatur	80
Anhang	82

# 1. Kurzfassung

Das Ziel dieses Forschungsvorhabens bestand darin, die reaktive Fügetechnologie durch Erhöhung der Prozesssicherheit und -zuverlässigkeit für industrielle Anwendungen zugänglicher zu machen. Weiterhin sollen Einstiegshürden in die reaktive Fügetechnologie für Kleine und Mittelständische Unternehmen (KMU) abgebaut werden. Die mathematische Modellierung und numerische Simulation des reaktiven Fügeprozesses und der reaktiven Multischichtsysteme (RMS) trägt dazu bei, die Technologie "maßgeschneidert" an verschiedene Anwendungsfälle anpassen zu können, ohne aufwändige, experimentelle Parameterstudien ausführen zu müssen. Der folgende Bericht fasst die wichtigsten erzielten Ergebnisse, aufgeteilt nach den einzelnen Arbeitspaketen, zusammen.

Zu Projektbeginn wurden zunächst die zu untersuchenden reaktiven Multischichtsysteme (RMS) auf die Materialpaarungen Ni/AI und Zr/AI festgelegt. Als repräsentatives Weich- bzw. Hartlot wurden Zinn bzw. InCuSil ABA (AgCuInTi) gewählt. Unter Berücksichtigung der realen Anwendungsfälle in den Firmen des projektbegleitenden Ausschusses ist die Wahl der Fügepartner für Testsubstrate auf die Materialien Borosilikatglas und Silizium gefallen. Die bereitgestellten Funktionsmuster der pA-Firmen umfassten zusätzlich Keramik, Kunststoffe und Stahl.

Beim Fraunhofer IWS und beim Kompetenzzentrum "Surface Technology Applied Research" (STAR) des IMH wurde die Entwicklung und Herstellung von binären RMS auf Ni/Al- und Zr/Al-Basis vorangetrieben. Ziel war es, freitragende Folien bereitzustellen, anhand derer die für die Simulation mit dem IWS-Modell benötigten Eingangsgrößen Reaktionsfrontgeschwindigkeit und Energiegehalt bestimmt werden können (siehe AP 2). Zudem dienten diese Folien und Direktbeschichtungen als Versuchsmaterial für die in AP 6 und 8 durchgeführten Fügeversuche mit Testsubstraten bzw. Funktionsmustern.

Als Eingangsgrößen für die verschiedenen Simulationsmodelle und zum Abgleich der simulierten zu gemessenen Parameter werden geeignete Materialdaten benötigt. Temperaturabhängige Daten, insb. Wärmeleitfähigkeit, Dichte und spezifische Wärmekapazität von Raumtemperatur bis in den relevanten (Hoch-)Temperaturbereich, ließen sich über Literaturrecherchen ermitteln. Experimentelle Untersuchungen liefern ergänzend Reaktionsfrontgeschwindigkeiten, Temperaturverläufe und Reaktionsenthalpie (Energiegehalt) der RMS. Für diese experimentelle Charakterisierung der RMS sind wegen der großen Dynamik der Reaktion spezielle Messmethoden notwendig, die im Rahmen des Projektes entwickelt wurden.

Es wurden zwei unterschiedliche mathematische Modelle entwickelt:

- "IMH-Modell": Simulation über physikalische Betrachtung der Stoffkonzentration. Als Eingangsgrößen dienen lediglich Materialdaten, z.B. Literaturwerte. Simulationen können für physisch noch nicht existierende RMS verwendet werden, sind jedoch, insb. bei 3D-Simulationen, sehr rechenzeitintensiv.
- "IWS-Modell": Simulation über Wärmestromdichte. Zusätzlich zu den Materialdaten dienen die RMS-Reaktionsfrontgeschwindigkeit und -Energiegehalt als Eingangsgrößen. Dieses Modell ist deutlich ökonomischer, aber beschränkt auf bereits real existierende und charakterisierte RMS.

Weiterhin können die beiden Modelle gekoppelt werden, um den reaktiven Fügeprozess für die gesamte Bauteilgeometrie einschließlich angrenzender Gebiete in vertretbarer Rechenzeit simulieren zu können. Im Ergebnis liefern die Simulationen Aussagen zum Temperaturverlauf der

Reaktion, unter anderem zu Maximaltemperaturen, Wärmeeinflusszonen und Randeffekten, Schmelzzeiten der Lotschichten und Temperaturverteilung in den Bauteilen.

Darüber hinaus wurden von Hahn-Schickard die vorhandenen mathematischen Modelle zur numerischen Simulation der thermo-mechanischen Spannungsverteilung erweitert. Testaufbauten mit zwei Substraten, als auch zwei 3D-Funktionsmuster wurden so simuliert.

Zur Modellvalidierung fand ein Vergleich von 2D-Simulationen (IMH-Modell) für Ni/Al- und Zr/Al-RMS mit experimentellen Messungen statt. Für Ni/Al betrug die Abweichung der Reaktionsfrontgeschwindigkeit bei verschiedenen simulierten Geometrien zwischen annähernd 0 und 11 %.

Die 3D-Simulationsmodelle (IWS-Modell) wurden bereits auf einige Funktionsmuster der Industriepartner des projektbegleitenden Ausschusses angewendet. Basierend auf den zur Verfügung stehenden Layoutdaten wurde für vorbelotete Ni/AI-RMS jeweils die Temperaturverteilung und die zu erwartende Schmelzdauer des Lots vorhergesagt.

- "LTCC-Gehäuse" (Muster vorgeschlagen durch PA-Mitglied VIA Electronic GmbH)
- "IR-Emitter" (Muster vorgeschlagen durch PA-Mitglied Micro-Hybrid Electronic GmbH)

Im Ergebnis liegen Ni/Al-RMS mit verschiedenen Eigenschaftskonfigurationen am Fraunhofer IWS vor. Sowohl für freistehende Folie als auch für Direktabscheidung auf Bauteilen lässt sich der Prozess stabil und gezielt führen.

Die Belotung kann mit Weich- oder Hartlot erfolgen, sowohl für Folien als auch bei Direktbeschichtung. Sie kann entweder inline beim RMS-Herstellungsprozess, oder im Nachgang über Galvanisieren erfolgen.

Eine Strukturierung der RMS ist z.B. über Lacke oder Schattenmasken (Inline), aber auch im Nachhinein über Laserverfahren oder Rollmesser möglich.

Die Bereitstellung der Simulationsmodelle an die Industriepartner ermöglicht diesen eine Einschätzung der Anwendungsmöglichkeiten reaktiver Fügetechnologie, sowie eine Auslegung der Fügung mit einfachen Mitteln. Aus den im Projekt dokumentierten Entwicklungsschritten kann eine maßgeschneiderte Prozessführung zur RMS-Herstellung abgeleitet werden.

Darüber hinaus werden die gesammelten Erkenntnisse unter Mitwirkung aller beteiligten Forschungseinrichtungen in einem separaten Prozesshandbuch zusammengefasst, welches den PA-Mitgliedern als Hilfestellung und Anleitung bei der Anwendung des modellbasierten reaktiven Fügens dienen soll.

Die Ergebnisse dienen außerdem als Grundlage für zukünftige Entwicklungs- und Industrieprojekte.

#### Die Ziele des Vorhabens wurden erreicht.

# 2. Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

# **AP1 Spezifikation**

#### Angestrebte Ziele

- Wahl der zu untersuchenden reaktiven Multischichtsysteme (RMS)
- Auswahl der einzusetzenden Lote
- Festlegung der zu fügenden Werkstoffe und Metallisierungen und der Chip- und Substratgrößen

#### Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

Die zu untersuchenden RMS und die einzusetzenden Lote wurden gemäß der im Forschungsantrag gemachten Vorschläge durch die Forschungseinrichtungen gemeinsam festgelegt. Lediglich beim hochenergetischen Zr/Si-System stellte sich während der laufenden Arbeit heraus, dass dieses nur durch den zusätzlichen Einsatz von Barriereschichten stabil und sicher hergestellt werden kann. Die Arbeiten zur Entwicklung und Herstellung der RMS basierend auf Zr und Si wurden daher im parallel laufenden IGF-Vorhaben "Join-ZiSi" durchgeführt [1] und im vorliegenden Vorhaben nicht mehr weiterverfolgt. Die Auswahl der Werkstoffe und Geometrien für die Funktionsmuster und Testsubstrate erfolgte in Abstimmung mit dem Projektbegleitenden Ausschuss. Die Ergebnisse der Spezifikation sind in Tabelle 1 zusammenfasst.

RMS	$Zr + AI \rightarrow ZrAI$ mit Weichlot
	Ni + AI $\rightarrow$ NiAl mit Weichlot, evtl. Hartlot
Lote	Zinn (Sn) als Weichlot
	Incusil® - ABA™ [2] (59,0% Ag, 27,25% Cu, 12,5% In, 1,25%
	Ti) als (Aktiv-) Hartlot
Werkstoffe und Geometrien für	Si oder SiC auf metallisierte Keramik, 10 x 10 mm <sup>2</sup>
Funktionsmuster	Si auf Si 2 x 3 mm <sup>2</sup>
	Passive Bauelemente auf metallisiertes Polymer,
	1 x 1 mm <sup>2</sup>
	Metall auf metallisierte Keramik
Werkstoffe und	Borosilikatglas auf Borosilikatglas, 80 x 20 x 3 mm <sup>3</sup>
Geometrien für Testsubstrate	Si auf Si, Borosilikatglas auf Borosilikatglas, 4 x 2 mm <sup>2</sup>
Werkstoffe und Geometrien für Funktionsmuster Werkstoffe und Geometrien für Testsubstrate	Si oder SiC auf metallisierte Keramik, 10 x 10 mm <sup>2</sup> Si auf Si 2 x 3 mm <sup>2</sup> Passive Bauelemente auf metallisiertes Polymer, 1 x 1 mm <sup>2</sup> Metall auf metallisierte Keramik Borosilikatglas auf Borosilikatglas, 80 x 20 x 3 mm <sup>3</sup> Si auf Si, Borosilikatglas auf Borosilikatglas, 4 x 2 mm <sup>2</sup>

Tabelle 1: Zusammenfassung der Spezifikationen.

#### Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen

Die Ziele dieses Arbeitspakets wurden vollständig erreicht.

### AP2 Ermittlung der temperaturabhängigen Materialdaten

#### Angestrebte Ziele

Ermittlung der für die Modellierung und Simulation erforderlichen temperaturabhängigen Eingangsgrößen

- Dichte
- Energieinhalt
- Spezifische Wärmekapazität
- Reaktionsfrontgeschwindigkeit
- Thermischer Ausdehnungskoeffizient
- Wärmeleitfähigkeit

Seite 7 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG

• Spezifischer elektrischer Durchgangswiderstand

der zu untersuchenden RMS durch Literaturrecherche und durch experimentelle Untersuchungen.

#### Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

#### Literaturrecherche

Eine detaillierte und umfangreiche internationale Literaturrecherche wurde durchgeführt, um die Materialdaten temperatur- und konzentrationsabhängig zu ermitteln. Die Quellen wurden in der Form einer Excel Tabelle zur Verfügung gestellt.

#### Entwicklung und Anpassung der Charakterisierungsmethodik

Für einige Charakterisierungsmethoden der RMS ist freistehende Folie nötig, die sich in ihren Eigenschaften und Reaktionsverhalten von anderen Proben unterscheidet. Es werden besondere Mess- und Auswerteverfahren notwendig, die zunächst entwickelt werden mussten.

Insbesondere für die Enthalpie und die Reaktionsfrontgeschwindigkeit der RMS, die als Eingangsgrößen für das IWS-Modell benötigt werden, konnte vor der Entwicklung dieser Verfahren die benötigte Genauigkeit und Vergleichbarkeit nicht erreicht werden.

Mit den im Folgenden dargestellten Charakterisierungsmethoden können verlässliche Daten als Simulationseingangsgrößen und zur Prozesskontrolle gewonnen werden.

#### **Dynamische Differenzkalorimetrie (DSC)**

Vor dem Start des AiF-Projekts MoReBond lag am Fraunhofer IWS eine eigens entwickelte Wafer-Messmethode zur Bestimmung der RMS-Energie vor. Dabei wird eine RMS direkt auf einen 4"-Wafer abgeschieden und in einem isolierten Behälter gezündet. Die freigesetzte Energie wird während des RMS-Reaktionsprozesses über ein Thermoelement bestimmt. Hierbei lassen sich durch die schnelle Reaktion keine Temperatur-Zeit-Verläufe aufnehmen, sondern nur die kumulative Gesamtenergie mit begrenzter Genauigkeit. Eine Kalibrierung und somit absolute Messwerte sind nicht möglich. Um zielführende Modelleingangsgrößen zu produzieren, war neben dieser Messmethode eine genauere und aussagekräftigere Methodik notwendig. Dafür wurde für das Projekt ein Hochtemperatur-Differenzkalorimeter aus externen finanziellen Mittel angeschafft, siehe Abbildung 1. Dies ermöglicht die zeitlich sehr gut aufgelöste Analyse der Enthalpie inklusive einzelnen Phasenumwandlungen.



Abbildung 1: DSC-Messgerät der Fa. Linseis Messgeräte GmbH mit Peripherie (links); Messsäule mit Proben- und Referenztiegel (rechts)

Die Dynamische Differenzkalorimetrie (DSC) ist ein thermisches Verfahren zur Bestimmung des Wärmestroms in einer Probe. Durch den Temperaturabgleich mit einer Referenz, z.B. einem leeren Tiegel, können so unter anderem die Enthalpie (Energiegehalt) der RMS, sowie der Temperaturverlauf einer Reaktion dargestellt werden. Die Reaktion läuft dabei nicht selbstfortschreitend, sondern getrieben durch einen Ofen mit einer kontrollierten Aufheizrate ab.

#### Messverfahren

Essentiell für dieses empfindliche Messverfahren sind gleichbleibende Bedingungen in den Tiegeln während und zwischen den Messungen. Dazu gehört insbesondere ein guter und konstanter Kontakt der Probe zum Temperatursensor, der sich unter dem Tiegelboden befindet. Es sollte nur mit freistehender RMS-Folie gemessen werden, damit das Substrat als nichtreaktive Masse die Sensitivität nicht verringert, oder durch eigene thermische Effekte die Messung beeinflusst. Die Hauptprobleme beim Messen von RMS sind das Aufwölben während des Aufheizens, sowie – je nach Materialsystem – das Reißen und Wegflittern der RMS-Folie. Beides hat zur Folge, dass der thermische Kontakt zum Sensor nicht mehr gegeben oder zumindest nicht konstant ist. Die dadurch nötige Probenfixierung sollte auch bei den auftretenden hohen Temperaturen keine starken thermischen Effekte aufweisen. Als praktikable und vergleichsweise ökonomische Lösung haben sich zwei Varianten bewährt, Abbildung 2:

- 1. Klemmung der Probe mit einem Aluminiumoxidstück, das am Tiegelrand festgeklemmt wird. Diese Variante ist geeignet für Folien, die sich zwar aufwölben, aber nicht zu rissig sind, um während der Messung zu zerfallen.
- 2. Einstempeln einer Folie aus einem hochtemperaturbeständigen Metall in den Tiegel. Durch diese Metallfolie wird die Probe ganzflächig auf dem Tiegelboden fixiert, sodass auch flitternde RMS gemessen werden können. Bei Temperaturen unter 800 °C ist ggf. Kupfer geeignet. Für höhere Temperaturen wurde erfolgreich Platinfolie verwendet.



Abbildung 2: Probenfixierung mit Keramikklemmstück (links) und Platinfolie (rechts)

Beide Varianten sind mit einem gewissen Präparationsaufwand und Verschleiß an Tiegeln und Metallfolien verbunden, ermöglichen aber kontrollierbare Messbedingungen sowie reproduzierbare und vergleichbare Messergebnisse.

Aus Kostengründen wurde die zweite Variante nur in Ausnahmefällen angewendet. Ebenso wurde auf die Nutzung von spezialangefertigten Platin-Schraubtiegeln verzichtet.

Der verwendete Tiegelaufbau wurde im Referenztiegel wiederholt. Zum Ausgleich der thermischen "Trägheit" wurde als Referenz inertes Aluminiumoxidpulver mit einer der Probe angepassten absoluten Wärmekapazität verwendet.

#### Auswerteverfahren

Zur Isolierung derjenigen thermischen Effekte, die der RMS-Reaktion zuzuordnen sind, müssen die irreversiblen Anteile der Messkurven abgetrennt werden. Dafür wurden nacheinander je zwei Heiz-/ Abkühlzyklen gefahren und subtrahiert, Abbildung 3.

Seite 9 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG



Abbildung 3: DSC-Messkurven einer RMS-Folie: erster und zweiter Heizzyklus (pink und grün), subtrahierte Messkurve (braun)

Durch die irreversible Veränderung der RMS während der Reaktion kommt es bei manchen Materialsystemen zu einer größeren Änderung der Wärmekapazität der Probe. Es stellt sich dann keine so lineare Nulllinie wie in Abbildung 3 gezeigt ein. Für diese Fälle wurde als Auswerteverfahren die nichtlineare "Reaktionsfortschrittsbasislinie" implementiert, Abbildung 4. Da die Änderung der Wärmekapazität mit dem Fortschreiten der Reaktion stattfindet, wurde eine Änderung der Basislinienhöhe nach Grad des Reaktionsfortschritts angewendet. Der Reaktionsfortschritt kann als prozentualer Anteil der bereits umgesetzten Enthalpie an der Gesamtenthalpie gesehen werden.



Abbildung 4: Nichtlineare Auswertung der RMS-Enthalpie mit Reaktionsfortschritts-Basislinie

Durch diese Mess- und Auswerteverfahren stellt sich eine gute Basislinie ein, die eine systematische Auswertung ermöglicht. Die Reproduzierbarkeit der Messungen und Vergleichbarkeit verschiedener RMS kann so hergestellt werden, Abbildung 5.



Abbildung 5: Drei Messkurven eines Zr/Al-RMS (Material bereitgestellt von HS Niederrhein - STAR)

#### Reaktionsfrontgeschwindigkeit

#### Versuchsaufbau

Zur Bestimmung der Reaktionsfrontgeschwindigkeit von RMS wurde in Absprache mit den Projektpartnern ein Versuchsaufbau entwickelt, der auch für die Simulationseingangsgrößen nutzbar ist. Zum Einsatz kam dabei eine Hochgeschwindigkeitskamera mit 50.000 frames per second. Diese Technik ist notwendig, da die RMS-Reaktion sehr schnell abläuft.



Abbildung 6: Versuchsaufbau der High-Speed-Aufnahmen der RMS-Reaktionsfront

In Abbildung 6 ist der Versuchsaufbau dargestellt. Zwischen zwei 3 mm dicken Borosilikatgläsern mit Dimensionen von 100 x 20 mm<sup>2</sup> wird ein genauso großer RMS-Streifen platziert. Darunterliegend befindet sich ein Titanblech als Wärmebarriere. Der komplette Aufbau wird über die Enden der Gläser mit zwei Klemmen am Tisch fixiert. Genau über dieser Anordnung befindet sich die Hochgeschwindigkeitskamera und nimmt die RMS-Reaktion auf. Die Initiierung erfolgt dabei an einer Seite des RMS mittels eines elektrischen Funkens.

#### **Messverfahren und Auswertung**

Prinzipiell kann eine Strecke von 100 mm aufgenommen und ausgewertet werden. Durch die Fixierung über Klemmen wurde dieser Bereich etwas eingeschränkt, so dass eine Strecke von 75 mm zur Auswertung herangezogen wurde. Nach ersten Versuchen erwies sich diese Streckenlänge für ausreichend, da sich die RMS-Reaktionsfront schon nach wenigen Millimetern homogen einstellt. Folglich wurde die Zeit, welche die RMS-Reaktion für die ausgewählte Strecke benötigt, erfasst und im Anschluss die Reaktionsfrontgeschwindigkeit berechnet. Pro RMS-Typ wurden 10 Messungen vorgenommen, um eine gewisse Reproduzierbarkeit vorliegen zu haben.

#### Ergebnisse der Charakterisierung

Im neuen Herstellungsverfahren (Kap. 0) wurden unterschiedliche Ni/Al-Folien produziert, um den Einfluss verschiedener Prozessparameter, wie z.B. der Periodenanzahl (Gesamtdicke des RMS) und der Periodendicke, zu klären.

Durch die in Kapitel 0 beschriebene Entwicklungsarbeit kann die Enthalpie und Reaktionsfrontgeschwindigkeit von freistehenden RMS systematisch und reproduzierbar gemessen und ausgewertet werden. Auch KMUs ohne eigene Labore können so Messungen beauftragen, die als Eingangsgröße für Simulationen oder zur Prozesskontrolle geeignet sind.

Zu diesen Zwecken wurden auch die im Projekt verwendeten RMS charakterisiert. Die Ergebnisse sind im Folgenden dargestellt.

#### Enthalpie

#### Ni/Al-RMS

Es zeigt sich eine leicht ansteigende Enthalpie mit zunehmender RMS-Dicke, Abbildung 7. Als wohl wichtigste Einflussfaktoren sind Deckschickten und Rauigkeiten zu nennen. Weitere Einflüsse wurden nicht untersucht.

Als Oxidationsschutz und zur besseren Anbindung können Deckschichten aus verschiedenen Materialien verwendet werden. In diesem Fall wurde eine Nickelschicht eingesetzt. Diese Deckschicht nimmt kaum an der Reaktion teil und senkt die gewichtsbezogene Enthalpie der Folie. Der Einfluss der konstanten Deckschicht tritt mit zunehmender RMS-Dicke in den Hintergrund, weshalb die Enthalpie zunimmt.

Rauigkeiten in der Schicht sorgen für einen gegenläufigen Effekt. Eine höhere Rauigkeit führt zu einer erhöhten Vormischung der Phasen und somit zu mehr passivem Material. Auf der sehr geringen Grundrauigkeit des Substrats wächst die Schicht zunächst ebenso glatt auf, mit zunehmender Schichtanzahl nimmt die Gesamtrauigkeit aber tendenziell zu.



Abbildung 7: Gesamtenthalpie des Ni/Al-RMS über die Gesamtdicke, bei konstanten stöchiometrischem Verhältnis und Periodendicken

Der absolute Anteil der vorgemischten Phase als passives Material am RMS sinkt mit zunehmender Periodendicke. Es zeigt sich also erwartungsgemäß eine ansteigende Enthalpie des Gesamtsystems mit zunehmender Periodendicke, Abbildung 8.



Abbildung 8: Gesamtenthalpie des Ni/Al-RMS über verschiedene Periodendicken dp (in nm) für RMS-Dicken von 20 - 80 μm

#### Zr/AI-RMS

Außer den beim Fraunhofer IWS hergestellten Ni/AI-RMS wurden auch die am STAR (Hochschule Niederrhein) produzierten Zr/AI-RMS, die zur Verfügung gestellt worden, charakterisiert, Abbildung 9. Eine genauere Beschreibung des Systems ist im Bericht des STAR zu finden, siehe Abschnitt "Herstellung und Charakterisierung der Zr/AI-RMS:".





Abbildung 9: Zr/Al-RMS des STAR, zwei Chargen, aus 09/21 (links) und 03/22 (rechts)

Die RMS der zweiten gemessenen Charge (03/22) wies eine geringere Eigenspannung und Wölbung auf, außerdem bessere Homogenität der Reaktionsverläufe besonders im Randbereich. Die dritte Charge (10/22) wies eine höhere Enthalpie als die vorherigen, sowie eine gute Homogenität auf. Eine Unterscheidung der Folienbereiche fand hier nicht statt.



Abbildung 10: Gesamtenthalpie des Zr/Al-RMS im Vergleich mit anderen RMS

Das niederenergetischere Zr/Al-System auf der linken Seite zeigt – entsprechend der Literatur – eine geringere Enthalpie als die anderen untersuchten RMS rechts, Abbildung 10.

#### Reaktionsfrontgeschwindigkeit

In Abbildung 52 ist in der Bildreihe beispielhaft eine Hochgeschwindigkeitskamera-Aufnahme einer RMS-Reaktionsfront abgebildet. Dabei erfolgt die Initiierung der RMS-Reaktion auf dem linken Bild am linken Rand. Die selbstfortschreitende Reaktionsfront läuft dann innerhalb weniger Millisekunden zur gegenüberliegenden Seite, rechtes Bild. In den Aufnahmen ist sowohl das Glühen, also die Freigabe der Wärme, als auch die Abkühlung der RMS zu sehen. Beides passiert innerhalb weniger Millisekunden. Auf Grundlage solcher Aufnahmen wurde die Reaktionsfrontgeschwindigkeit von verschiedenen RMS bestimmt.



Abbildung 11: Ablauf einer selbstfortschreitenden RMS-Reaktionsfront

#### Ni/Al-RMS

Zunächst wurden die Reaktionsfrontgeschwindigkeiten von den am Fraunhofer IWS hergestellten Ni/Al-RMS untersucht. Näher betrachtet wurde dabei der Einfluss der RMS-Gesamtdicke und - Periodendicke.

In Abbildung 12 ist die Entwicklung der Reaktionsfrontgeschwindigkeit in Abhängigkeit von der RMS-Gesamtdicke, 20 µm bis 100 µm, abgebildet. Mit 6,9 m/s bei einer 40 µm Ni/AI-RMS liegt der gemessen Wert wie in der Literatur angegeben und gleicht dem Wert in der Simulation. Weiterhin ist festzustellen, dass mit zunehmender Gesamtdicke die Reaktionsfrontgeschwindigkeit sinkt, was durch die Zunahme der Rauheit mit steigender Gesamtdicke zu erklären ist. Die sehr geringen Standardabweichungen weisen darauf hin, dass die RMS sehr homogen ist und über die gesamte Fläche die gleichen Eigenschaften besitzt.

Vergleichsweise ist noch eine 40 µm Ni/Al-RMS mit beidseitig Zinnlot gemessen worden. Das Lot entzieht der RMS Energie zum Aufschmelzen, wodurch sich die Reaktionsfrontgeschwindigkeit verlangsamt.



Abbildung 12: Reaktionsfrontgeschwindigkeit von Ni/AI-RMS in Abhängigkeit der Gesamtdicke

Neben der RMS-Gesamtdicke besitzt die Periodendicke einen noch größeren Einfluss auf die Reaktionsfrontgeschwindigkeit, Abbildung 13. Bei den Untersuchungen von 20 µm, 40 µm und 80 µm Ni/AI-RMS mit verschiedenen Periodendicken, 25 nm bis 100 nm, sinkt die Reaktionsfrontgeschwindigkeit mit steigender Periodendicke. Auch diese Tendenz ist plausibel, da sich der zurückzulegende Diffusionsweg mit steigender Periodendicke erhöht. Wiederum weisen die sehr geringen Standardabweichungen auf eine homogene RMS hin, die über die gesamte Fläche die gleichen Eigenschaften besitzt. Teilweise werden Reaktionsfrontgeschwindigkeiten von über 10 m/s erreicht.



Abbildung 13: Reaktionsfrontgeschwindigkeit von Ni/AI-RMS in Abhängigkeit der Periodendicke

#### Zr/AI-RMS

Neben den Messungen zu Ni/Al-RMS wurde dem Fraunhofer IWS seitens der Hochschule Niederrhein Zr/Al-RMS zur Charakterisierung zur Verfügung gestellt. Hierbei handelt es sich um zwei Chargen, siehe Kapitel 0. Das Reaktionsverhalten (Rissbildung, Verlauf) ist sehr ähnlich dem von Ni/Al-RMS.

Die in Abbildung 14 dargestellte 1. Charge ergab Reaktionsfrontgeschwindigkeiten von um die 4,5 m/s. Dabei variierte diese in Abhängigkeit vom Bereich der RMS, aus dem die Streifen herausgeschnitten wurden. Sowohl die Bereiche Oben/Unten als auch Mitte zeigten zum Teil große Abweichungen, was auf eine inhomogene RMS schließen lässt. Die Reaktionsfrontgeschwindigkeit ist niedriger als bei Ni/AI-RMS, da es sich um eine etwas niederenergetischere RMS handelt.



Abbildung 14: Reaktionsfrontgeschwindigkeit der 1. Charge von Zr/Al-RMS

Im Vergleich zur 1. Charge weist die 2. Charge eine deutlich bessere RMS-Homogenität auf, Abbildung 15. Nur noch der RMS-Bereich Oben zeigt eine Inhomogenität. Die Reaktionsfrontgeschwindigkeit liegt je nach Bereich zwischen 4 m/s bis über 5 m/s und findet sich im RMS-Bereich Mitte und Unten mit ähnlichen Werten wie bei der 1. Charge wieder.



Abbildung 15: Reaktionsfrontgeschwindigkeit der 2. Charge von Zr/AI-RMS

#### Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen

Die Ziele dieses Arbeitspakets und der Meilenstein 1 wurden vollständig erreicht.

#### Meilenstein 1:

Spezifikationen erstellt, und Materialdaten des Referenzsystems, die zur Simulation benötigt werden, stehen zur Verfügung.

#### **AP3 Modellierung und Simulation**

#### Angestrebte Ziele

- Optimierung der numerischen Parameter Gittergröße und Zeitschrittweite bei der Modellbildung
- Ermittlung der räumlichen und zeitlichen Temperaturverteilung durch numerische Strömungssimulationen mittels Computational Fluid Dynamics (CFD)
- Modellierung und Simulation der entstehenden mechanischen Spannungen durch FEM
- Validierung durch Vergleich der Simulationsergebnisse mit Messungen

#### Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

IMH:

#### Literaturrecherche

RMS bestehen aus zwei Materialien, die durch Diffusion ineinander thermische Energie (Mischungsenthalpie) freisetzen, die sich wellenförmig und parallel zu den Schichten ausbreitet. Dabei sind die Mischungsenthalpie, die Frontgeschwindigkeit, die Maximaltemperatur, der Wärmeeintrag in die Bauteile und die Schmelztemperaturen wichtige zu untersuchende Faktoren und Parameter.

Nach einer umfangreichen Literaturrecherche war es möglich, die Reaktion in den RMS durch zwei mathematische Modelle zu beschreiben. Das erste Modell stammt von Jayaraman et al [3], der Quellterm Q der Energiegleichung wurde über die Konzentrationsänderung C der verschiedenen Komponenten definiert. Das zweite Modell wurde 1973 von Hardt et al. [4] veröffentlicht. Der Quellterm in der Energiegleichung wurde hier als Funktion des unreagierten Anteils beschrieben.

Um ein Modell für die Simulationen zu bestimmen, wurden die beiden mathematischen Modelle analysiert. Der Vergleich wurde auf der Grundlage der gefundenen Literatur, der Komplexität des mathematischen Modells, der physikalischen Bedeutung des Quellterms und des Rechenaufwandes durchgeführt.

Das Modell des "konzentrationsabhängigen Quellterms" wird in der Literatur häufig angewandt, was ein besseres Verständnis und eine bessere Validierung des Modells anhand von Simulationen und experimentellen Ergebnissen ermöglicht.

In Bezug auf die numerische Komplexität sind die beiden Modelle vergleichbar. Allerdings sind im Modell "Quellterm als Funktion des unreagierten Anteils" mehr Gleichungen zu lösen.

Da das erste Modell physikalischer aufgebaut ist, ist es auch flexibler in Bezug auf die Berücksichtigung zusätzlicher physikalischer Effekte wie Strahlung, Oxidation, Wärmeaustausch etc. Die folgende Tabelle fasst die Bewertung zusammen und soll durch die Gewichtung der verschiedenen Kriterien als Grundlage für die Auswahl dienen.

	Q von C abhängig	Unreagierte Fraktion
Anzahl der validierten Paarungen	2	4
numerische Komplexität	4	3
Abweichung der Simulationen von den Messwerten	4	3
Anzahl der Modifikationen des Modells	5	3
Physikalisch begründet	4	3
Flexibilität hinsichtlich zusätzlicher physikalischer Effekte	5	2
Einschränkungen	-	-
	24	18

Tabelle 2: Bewertung der zwei mathematischen Modelle

Das Modell "Quellterm konzentrationsabhängig" wurde für die Simulationen in diesem Projekt ausgewählt und wurde in den folgenden Schritten als Grundlage für das sogenannte "Modell IMH" verwendet.

#### **Mathematische Modellierung**

Es wird im Inneren der RMS-Folie folgende Energiegleichung in jeder Gitterzelle gelöst:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho E) + \nabla(\vec{v}(\rho E + p)) = \nabla(k_{eff}\nabla T + \sum_{j} h_{j}\vec{J}_{j} + (\bar{\bar{\tau}}_{eff}.\vec{v})) + S$$
(1)

Mit:

- $\rho$ : Die Dichte in  $kg/m^3$
- E: Die Totalenergie in J
- $\vec{v}$ : Die Geschwindigkeitsvektor in m/s
- p: Der Druck in Pa
- T: Die Temperatur in K
- $k_{eff}$  steht für die effektive Wärmeleitfähigkeit W/m.K
- $\vec{j}_j$ : Der Diffusionsstrom der Spezies in  $kg/m^2 s$

Seite 18 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG

- h: Die spezifische Enthalpie in J/kg
- $\bar{\bar{\tau}}_{eff}$ : Das Spannungstensor in *Pa*
- $S = \frac{\partial \bar{Q}(C)}{\partial t} = -\overline{\rho c_p} \Delta T_f \frac{\partial}{\partial t} (\frac{1}{\delta} \int_0^{\delta} C^2(x, y, t) dy)$ : Quellterm innerhalb des Fluidelements in  $W/m^3$

Die Wirkung des Enthalpie-Transports aufgrund von Spezies-Diffusion wurde ignoriert. (In Fluent wird dieser Term bei einem "pressure-based" Solver automatisch mitgerechnet. Um den Term auszuschließen, muss man "species" in Fluent deaktivieren (off)) [5].

Aus Gleichung (1) und den obengenannten Vereinfachungen bekommt man die folgende Energiegleichung:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho E) = \nabla(k\nabla T) + S \tag{2}$$

Der Quellterm (Gleichung (2)) des IMH Modells basiert auf den Publikationen von Salloum et al. [6 bis 8]. Das Modell stützt sich auf eine Reihe von Annahmen, die sich für das Ni/Al-System als besonders geeignet erwiesen haben. Dazu gehören:

Der atomare Mischprozess kann mittels der Analogie zum Fick'schen Ansatz für die Wärmeleitung und mit einem einzigen, temperaturabhängigen, binären Diffusionskoeffizienten D beschrieben werden.

Die Wärmeleitfähigkeit des Materials ist unabhängig von Temperatur und Zusammensetzung.

Es herrscht ein schnelles, diffusionsbegrenztes Reaktionsregime vor.

$$S = \frac{\partial \bar{Q}(C)}{\partial t} = -\overline{\rho c_p} \Delta T_f \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{1}{\delta} \int_0^\delta C^2(x, y, t) dy\right)$$
(3)

- $\bar{Q}(C)$ : ist eine Kopplungsfunktion, die die Freisetzung thermischer Energie während der Diffusion mit der Änderung der Konzentration C in Beziehung setzt in  $J/m^3$
- C: Shvab-Zeldovich Variable für die Konzentration mit:
   <sup>t=</sup>
  - $\circ$  C = 1 für reines Aluminium
  - $\circ$  C = -1 für reines Nickel
  - $\circ$  *C* = 0 für reines Ni/Al.
- 4w ist die Dicke der Vormischphase bei t = 0

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D(T) \frac{\partial^2 C}{\partial v^2}$$



- Mit der atomaren Diffusivität:  $D = D_0 \exp\left(-\frac{E}{RT}\right)$
- $\overline{\rho c_p}$ : Das gemittelte Produkt aus der Dichte und der spezifischen Wärmekapazität  $\overline{\rho c_p} = \frac{\rho^{Al} c_p^{Al} + \gamma \rho^{Ni} c_p^{Ni}}{1 + \gamma}.$
- $\Delta T_f = \Delta H_{rx} / \overline{\rho c_p}$  = 1660 K steht für die Differenz zwischen der adiabatischen Flammentemperatur  $T_{f0} = 1960 K$  und der Umgebungstemperatur  $T_0 = 300 K$ , und

 $-\Delta H_{rx}$  entspricht der durch die während der Diffusion freigesetzten thermischen Energie (Mischungsenthalpie).

Der Quellterm aus Gleichung (3) wird mit einer speziellen Programmiersprache von FLUENT und der Programmiersprache C in die Simulation eingeführt (Abbildung 16; Anhang 1). Um den Quellterm zu berechnen, muss man zunächst eine Reihe von Gleichungen lösen. Diese Gleichungen stellen die Berechnung von Variablen und Parametern dar, die sich mit der Zeit, der Temperatur oder anderen Faktoren ändern und daher nach jedem Zeitschritt neu berechnet werden sollten.

Das folgende Flussdiagramm in (Abbildung 16) gibt diese Gleichungen wieder.



Abbildung 16: Flowchart zur Lösung der Energiegleichung

#### **Numerisches Modell**

Fluent bietet durch UDFs (User-Defined Function) die Möglichkeit, den Quellterm für die Massen, Impuls- und Energiegleichungen hinzuzufügen. In dieser Arbeit wurde der Quellterm aus Gleichung (3) für die Energiegleichung programmiert.

UDF ist eine C oder C++ Funktion, die dynamisch in den ANSYS Fluent Solver geladen werden kann, um dessen Standardfunktionen zu erweitern. Man kann sie verwenden, um folgendes zu ermöglichen:

- Anpassen von Randbedingungen, Definitionen von Materialeigenschaften, Oberflächenund Volumenreaktionsraten, Quelltermen in ANSYS FluentTransportgleichungen
- Initialisierung einer Lösung
- Berechnung der Durchflussmengen zu bestimmten Zeitpunkten
- Verbesserung der Postprocessing

#### Algorithmus zur Bestimmung der Reaktionsfrontgeschwindigkeit

Um die Frontgeschwindigkeit rechnerisch bestimmen zu können, wurden zwei Algorithmen verwendet:

 In der ersten Methode wird die Frontposition aus dem ersten Moment des Reaktionsquellterms (Gleichung (5) geschätzt Abbildung 17A), x ist die Ausbreitungsrichtung der Front, Ω stellt den gesamten Rechendomain dar

$$x_{f} = \frac{\int_{\Omega} x \frac{\partial \bar{Q}}{\partial t} dy}{\int_{\Omega} \frac{\partial \bar{Q}}{\partial t} dy}$$
(5)

 In der zweiten Methode wird die genaue Position des maximalen Quellterms x<sub>max</sub> verfolgt (Abbildung 17B)



Abbildung 17: Quellterm als Funktion der Position entlang des RMSs A: Erste Methode; B: Zweite Methode

Die beiden Methoden sind in Bezug auf den Programmieraufwand und die Ergebnisse vergleichbar (Abbildung 18).

Seite 21 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG



Abbildung 18: A: Erste Methode; B: Zweite Methode

In Abbildung 18 sind die Simulationsergebnisse für  $\delta$  = 12 nm und w = 0,6 nm dargestellt. Die mit der ersten Methode berechnete Geschwindigkeit beträgt v=5,75 m/s und mit der zweiten Methode betrug die Frontgeschwindigkeit v=5,76 m/s. Die Frontgeschwindigkeit kann sowohl mit der ersten als auch mit der zweiten Methode berechnet werden. Der Unterschied zwischen den beiden Methoden zeigt sich jedoch in der Kurve der Position in Abhängigkeit von der Zeit, wobei bei der ersten Methode mehr Schwankungen als bei der zweiten zu beobachten sind. (Zu den Algorithmen, die zur Bestimmung der Frontgeschwindigkeit verwendet werden, siehe Anhang 2).

#### Rechendomäne

#### 1. Zündmethode

Die Frontgeschwindigkeits- und Temperaturverteilung in einem RMS System (ohne angrenzende Komponenten) wurde der Minimierung der Rechenzeiten wegen mittels 2D-Simulationen ermittelt. Die Rechendomäne hat die Form einer rechteckigen Fläche. Zur Diskretisierung der Domäne wurde ein feines Gitter verwendet. Die Zellgrößen in xund y-Richtung werden mit  $\Delta x$  bzw.  $\Delta y$  bezeichnet.

Um die Reaktion auszulösen, müssen die Funkenbreite  $F_z$  und die Zündtemperatur  $T_z$  angegeben werden, um eine ausreichende Funkenenergie für die Reaktion zu erhalten. Zu diesem Zweck wurden 3 Zündmethoden (Abbildung 19) getestet.



Abbildung 19: Die Zündmethoden a) Randinitiierung mit einer Temperatur  $T_z$ ; b) Initiierung in einer rechteckigen Funkenbreite; c) Initiierung mit einem Temperaturprofil (siehe Diagramm)

Bei der Simulation mit der ersten Zündmethode fand keine Zündung (keine Frontbildung) statt. Tabelle 3 fasst die Ergebnisse der zweiten Zündmethode für unterschiedliche Zündtemperaturen und Funkenbreiten zusammen. Die rote Markierung steht für gezündete Reaktionen und die blaue für nicht gezündete Reaktionen.

Tabelle 3: Der Zündungstest von Ni/AI (mit den erreichten Höchsttemperaturen) für die verschiedenen Zündtemperaturen und Schichtdicken

		Zündtemperatur $T_z$ (K)				
		900	1000	1200	1300	1500
	10	• 1274	• 1297	• 1280	• 1363	• 1500
(ш	30	• 996	• 1477	• 1531	• 1540	• 1556
δ (n	960	• 960	• 1145	• 1670	• 1675	• 1748
	900	• 900	• 1060	• 1733	• 1813	• 1852

Die dritte Zündmethode führte zu vergleichbaren Ergebnissen wie die zweite Methode.

Die Simulationen der drei Zündmethoden wurden auch für das Zr/AI-RMS durchgeführt. Die zweite Zündmethode ergab die besten Ergebnisse und ist daher für die Simulation der beiden RMS-Paarungen Ni/AI und Zr/AI besser geeignet:

- Funkenbreite:  $F_z(Ni/AI) = 0.5 \text{ mm}; F_z(Zr/AI) = 0.5 \text{ mm}$
- Zündtemperatur:  $T_z$ (Ni/Al) = 1500 K;  $T_z$ (Zr/Al) = 1000 K

#### 2. Gitter- Zeitschrittkonvergenz

Es wurde eine Konvergenzstudie zur Bestimmung des Gitters und der Zeitschrittweite durchgeführt. Der Zeitschritt und die Gittergröße wurden für die beiden RMS-Paarungen Ni/Al und Zr/Al variiert, wobei die Frontgeschwindigkeit als Funktion der Schichtdicke bewertet wurde. Die Ergebnisse sind im Folgenden zusammengefasst:

• Ni/Al: Untersuchungen für drei Werte der Schichtdicke:  $\delta = 6, 12 \text{ und } 24 \text{ nm}$ 

Geschwindigkeitsdifferenz zwischen *GO* ( $0,5 \mu m * 0,5 \mu m$ ) und *GI* ( $1 \mu m * 1 \mu m$ ) liegt bei maximal 3,3 % (Abbildung 20A)

Geschwindigkeitsdifferenz zwischen  $\Delta t = 1e - 10 s$  und  $\Delta t = 1e - 11 s$  liegt bei maximal 3,6 % (Abbildung 20B)



Abbildung 20: A: Gitterkonvergenz Studie; B: Zeitschrittkonvergenzstudie (die Änderung der Reaktionsfrontgeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Schichtdicke für verschiedene Gittergrößen (0,5  $\mu$ m bis 1,5  $\mu$ m) und Zeitschritte ( $\Delta t = 1e - 9 s bis \Delta t = 1e - 11s$ ))

- Empfohlen wird für Ni/Al ein Gitter von:  $1 \mu m * 1 \mu m$  und eine Zeitschritt von:  $\Delta t = 1e 10 s$
- Zr/AI: Untersuchungen für Werte der Schichtdicke zwischen:  $\delta = 5 \text{ und } 20 \text{ nm}$

Die berechnete Geschwindigkeit mit  $\Delta t = 1e - 9 s$  und  $\Delta t = 1e - 10 s$  (Abbildung 21) ist nah am Experiment aus [9]



Abbildung 21: Zeitschrittkonvergenzstudie (Zr/Al)

Geschwindigkeitsdifferenz in der Gitterkonvergenzstudie (Abbildung 22) liegt bei maximal 6 % in x-Richtung und 2,3 % in y-Richtung

#### Seite 24 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG



Abbildung 22: Gitterkonvergenzstudie (Zr/Al)

Empfohlen wird für Zr/Al ein Gitter von:  $2 \mu m * 4,4 \mu m$  und eine Zeitschritt von:  $\Delta t = 1e - 9 s$ 

#### Verlauf des Quellterms als Funktion von Zeit und Ort

Die Dynamik von selbstausbreitenden Reaktionsfronten in RMS kann jedoch unter bestimmten Bedingungen komplex sein, selbst wenn die Schichten (oder die Mikrostruktur) im Wesentlichen gleichmäßig sind. So wurden beispielsweise Anzeichen für eine oszillierende Frontbewegung rechnerisch vorhergesagt und experimentell beobachtet [10].



Abbildung 23: Verlauf des Quellterms als Funktion der Zeit (Ni/Al  $\delta = 12 nm$ )

Die Schwankungen des Quellterms (Abbildung 23) werden in der Literatur bestätigt. Die folgenden Maßnahmen helfen, die Schwankungen des Quellterms zu reduzieren:

- Gitter: Fein (1 µm \* 1 µm)
- Zeitschritt: 1 e -10 s
- Algorithmus: Zuerst wird die Mischungsenthalpie berechnet, und der Quellterm wird aus der zeitlichen Änderung der Mischungsenthalpie bestimmt



Abbildung 24: Der Quellterm ist in der Form eines Peaks, das sich entlang der Geometrie propagiert ((Zr/Al  $\delta = 10 nm$ )

Fluent bietet die Möglichkeit, Ergebnisse und Parameter schrittweise über die sogenannten UDMs (User-Defined Memory) zu speichern. Man kann in Fluent bis zu 500 UDMs verwenden [11]. Mit diesem Werkzeug ist es möglich, die Änderung der verschiedenen programmierten Parameter (Konzentration, Quellterm, etc.) während der Simulation in Textdokumenten zu speichern. Dies hat die Überprüfung der Ergebnisse und die Erkennung von Fehlern erleichtert. Mit Hilfe von Taschenrechnern und Software wie Matlab wurden die in diesem Abschnitt vorgestellten Ergebnisse schrittweise verifiziert.

Die Programmierung wurde Schritt für Schritt vorgenommen und korrigiert. Für die Berechnung der Ableitungen der konsekutiven Terme wurde eine Diskretisierung zweiter Ordnung verwendet. Die Ergebnisse haben die Erwartungen erfüllt, die Änderung der Konzentration, des Quadrats der Konzentration, der Wärme und des Quellterms war plausibel.

In der Praxis sieht eine Frontausbreitung wie in Abbildung 24 aus.

#### Verlauf der Temperatur als Funktion von Zeit und Ort

Nachdem die Reaktion im Funkenbereich vollständig ist, erreicht die Konzentration (oder das Konzentrationsquadrat) sehr niedrige Werte  $\overline{C} \approx 0$ , hier bemerkt man einen Peak der Temperatur in der vorderen Position, dieser Peak bewegt sich dann entlang der Folie mit der Reaktionsfront.



Abbildung 25: Temperaturprofil entlang Zr/Al-RMS für  $\delta = 10 nm$  in t = 0,012 s

#### IWS:

Am Fraunhofer IWS wurde das "IWS-Modell" in Comsol Multiphysics in 1D und 2D implementiert und für Simulationen genutzt. Es stützt sich auf ein 2015 am IWS weiterentwickeltes Modell der gaußförmigen Ausbreitung der Wärmestromdichte durch die RMS (Formel 1, [12]).

Formel 1: Grundlage "IWS-Modell"

$$S = \frac{q \cdot v}{\sqrt{2 \cdot \pi} \cdot w_{Gau\beta}} \cdot e \frac{-\left(x - v \cdot (t - 0,00039)\right)^2}{2 \cdot w_{Gau\beta}^2}$$

q... RMS-Energie (J/m<sup>3</sup>)

v... Reaktionsfrontgeschwindigkeit (m/s)

 $w_{Gaus}$ ...Gaußbreite 5.10<sup>-4</sup> (m)

- t... Zeit (s)
- x... x-Position (m)

Als Eingangsgrößen werden die Geschwindigkeit der Reaktionsfront und die Enthalpie der RMS benötigt, sodass nur bereits existierende und charakterisierte RMS simuliert werden können. Ein Vorteil ist aber die sehr viel kürzere benötigte Rechenzeit. Etablierte RMS-Materialsysteme können so schnell für unterschiedliche Anwendungen ausgelegt werden.

#### 1D-Modell

Vor dem Start des AiF-Projekts MoReBond lag das 1D-Modell in Grundzügen bereits am Fraunhofer IWS vor. Im Rahmen des AiF-Projekts wurde dieses ausgebaut und aus den im folgenden Abschnitt "2D-Modell" genannten Gründen auf ein 2D-Modell erweitert. Anschließend wurde nur noch die 2D-Variante verwendet.

Das 1D-Modell simuliert einen linienförmigen Schnitt durch den Schichtaufbau, Abbildung 26 rechte Seite. Es wird dabei ein ausreichender Abstand zu Bauteilrändern oder Geometrieübergängen vorausgesetzt. Allerdings hat im 2D-Modell bei einfachen

Schichtaufbauten, Abbildung 26 links, bereits ein Randabstand von 0,1 mm gleichbleibende Simulationswerte gezeigt.



Abbildung 26: Schichtaufbau und 1D-Schnitt durch eine simulierte RMS-Fügung

Mit dem 1D-Modell können beispielsweise Maximaltemperaturen und Temperaturverläufe in einem Punkt bestimmt werden. Vorteile gegenüber dem 2D-Modell liegen hauptsächlich in der noch geringeren Rechenzeit im Bereich von Sekunden. Dieser Unterschied ist eigentlich nur relevant, wenn Sweeps über sehr große Parameterkombinationen nötig werden oder iterative Anpassungen am Modell durchgeführt werden müssen. Meist ist schon ein grobes Prozessfenster bekannt, sodass das 2D-Modell verwendet werden kann.

#### **2D-Modell**

Die Erweiterung des Fraunhofer IWS-Modells auf 2D ermöglicht einige zusätzliche Aussagen:

- Flächige Temperaturverteilung
- Wärmeeinflusszonen
- Effekte am Bauteilrand
- Strukturierte RMS / Strukturierte Bauteile

Außerdem kann im Vergleich zum 1D-Modell die Temperaturverteilung im Bauteil anschaulicher visualisiert werden. Zudem werden flächige Effekte berücksichtigt, wodurch dank der Vielzahl an in der Fläche verteilten Netzknoten die genannten Faktoren genauer bestimmt werden können, Abbildung 27 rechte Seite. Hier sind die weit auseinandergehenden Schichtdickenverhältnisse zu sehen. Die RMS mit Lot- und Deckschichten (unten im Bild) benötigt ein sehr feines Gitter. Für die zu fügenden Bauteile (oben) müssen deutlich größere Zellen gewählt werden, um die Rechenzeit im Rahmen zu halten.



Abbildung 27: Schichtaufbau und 2D-Netz einer simulierten RMS-Fügung (Schnitt durch die Schichten)

In Abbildung 28 ist beispielhaft eine 2D-Simulation einer RMS-Fügung zwischen zwei Silizium-Bauteilen dargestellt. In der Bildfolge ist zunächst die Zündung am linken Bauteilrand zu sehen, anschließend die fortschreitende Reaktionsfront mit Erwärmung der RMS und der anliegenden Bauteilbereiche, und schließlich die Abkühlung des RMS-Reaktionsprozesses hin zum rechten Bild. Die für die Bauteile potenziell schädlichen, aber zum Fügen notwendigen hohen Temperaturen sind räumlich auf das Lot begrenzt. Nur in einen sehr geringen Bereich der Bauteile angrenzend an die RMS, wenige Mikrometer, dringt die moderate freigesetzte Restwärme der RMS-Reaktion ein. Dadurch ist ein materialschonendes Fügen möglich.



Abbildung 28: Fortschreiten der simulierten Reaktionsfront durch eine Si-Si-Fügung

Außer diesen Animationen, die einen Überblick über den Fügeprozess geben und ihn veranschaulichen, gibt es viele weitere mögliche Daten und Fakten, die aus der Simulation gewonnen werden können. Für die Anwendung ist der Temperatur-Zeit-Verlauf am interessantesten, Abbildung 29. Damit kann z.B. ermittelt werden, ob und wie lange das Lot aufgeschmolzen wird, oder ob kritische Temperaturen lokal überschritten werden. Die meistgenutzte Simulation war daher der Temperatur-Zeit-Verlauf an der Grenzfläche Lot-Bauteil bei variierender Gesamtdicke der RMS.



Abbildung 29: Temperaturverlauf in der Grenzfläche zwischen Bauteil und Lot, verschiedene RMS-Gesamtdicken von 20 - 30 µm (Si-Si-Fügung)

Die Berechnungszeit ist beim 2D-Modell stark abhängig von der Größe und Komplexität der simulierten Geometrie. Für einfache Schichtabfolgen kann sie zwischen 5 - 30 Minuten pro Parameterkombination betragen.

Das 2D-Modell bietet somit einen guten Kompromiss aus Geschwindigkeit und gewonnenen Informationen, Aussagen und Anschaulichkeit.

Im Ergebnis kann – insbesondere für bereits existierende RMS – mit geringem Zeit- und Rechenaufwand eine gute Abschätzung der Fügeergebnisse erzielt werden. Langwierige und teure praktische Versuche können so eingespart werden.

#### Kopplung IWS-IMH Modell

Das IMH-Modell basiert auf einem konzentrationsabhängigen Quellterm in der Energiegleichung. Als Eingangsdaten benötigt man ein feines 2D-Gitter (in Mikrometergröße) und die variablen Materialdaten. Das Modell sagt die Frontgeschwindigkeit und die freigesetzte thermische Energie voraus, seine Verwendung ist aber für 3D-RMS mit angrenzenden Bauteilen sehr rechenaufwändig und daher für 3D-Simulationen bei den derzeitig verfügbaren Rechenressourcen unrealistisch.

Für die Berechnung der Wärmeausbreitung in den angrenzenden Bauteilen eignet sich das sogenannte IWS-Modell. Als Eingangsdaten benötigt man ein gröberes 3D-Gitter (im Vergleich zum IMH-Modell), die Frontgeschwindigkeit (simuliert oder gemessen) und die Wärmemenge (Abbildung 31). Das Modell sagt die Wärmeausbreitung und die Schmelzzeit des Lots voraus und liefert schnelle Ergebnisse für physikalisch gemessene oder zuvor simulierte Frontgeschwindigkeit und RMS-Energie. Daher sind die Untersuchungsmöglichkeiten für neue und noch nicht experimentell charakterisierte RMS-Paarungen mit diesem Modell begrenzt.

Für die Kopplung mit dem IMH-Modell wurde aus dem 1D-IWS-Modell ein 3D-IWS-Modell entwickelt. Dieses hat den Charme, reale Komponenten simulieren zu können. Das endgültige 3D-CFD Modell ist schließlich eine Kopplung der beiden mathematischen Modelle (2D-IMH Modell und 3D-IWS Modell) und ermöglicht die Nutzung der Vorteile beider Modelle.

Die ausgewählten mathematischen Modelle (Abbildung 30) werden mittels ANSYS FLUENT 2020 R1 für Zr/Al- und Ni/Al-Folien simuliert.



Max 4 Wochen

Abbildung 30: 3D CFD Modell

#### **Implementierung in Fluent**

#### 1. Geometrie und Randbedingungen (Beispiel MHE Geometrie CMOSI-500)

Die CAD-Daten der 3D-Geometrie wurden vom Projektpartner HS auf der Grundlage, der von der Firma MHE bereitgestellten Informationen generiert (Abbildung 31). Im IMH wurde das numerische Gitter mit etwa 5 Millionen Zellen in ANSYS ICEM 2020 erzeugt, und die numerischen Simulationen wurden in ANSYS Fluent 2020 R1 durchgeführt. Die Randbedingungen sind an allen Rändern adiabat.



Abbildung 31: MHE 3D Geometrie (CMOSI-500): Geometrie und numerisches Gitter

#### 2. Auswerten der Ergebnisse

Um vorherzusagen zu können, ob die Bauteile durch die übertragene Wärme beschädigt werden können oder nicht, ist es notwendig 3D-Simulationen des Wärmeeintrags durch die RMS durchzuführen. Abbildung 32 zeigt, wie tief die Temperaturen in den oberen und unteren Bauteilen dringen, die Simulationsergebnisse sind für die MHE-Geometrie mit einem Ni/AI-RMS (dp=50), wobei die X-Achse die Temperatur und die Y-Achse die Position (Tiefe) darstellt.



Abbildung 32: Wärmeausbreitung in der MHE-Geometrie mit Ni/Al-RMS (dp=50) zum Zeitpunkt t = 0,0008 s (Links: die Geometrie mit den Messlinien, Rechts: Wärmeausbreitung an den Messlinien)

Aus 2D-Simulationen von RMS-Filmen mit dem 2D-IMH-Modell mit einer Periodendicke dp=50 nm (Ni/AI) wurde eine Reaktionsfrontgeschwindigkeit von 5,7 m/s berechnet. Diese Geschwindigkeit wurde dann zusammen mit der aus den Simulationen entnommenen Mischungsenthalpie in das 3D-IWS-Modell eingegeben.

Da das Schmelzen des Lots ein entscheidender Faktor für die Qualität der Verbindung ist, wurde im gekoppelten Modell die Vorhersage der Schmelzzeit des Lots durchgeführt. Die für die Experimente zuständigen Projektpartner gehen davon aus, dass eine bessere Verbindung der Bauteile (Abbildung 33) aus dem gleichzeitigen Aufschmelzen des gesamten Lotes resultiert, was bedeutet, dass das gesamte Lot für eine bestimmte Zeit in einem flüssigen Zustand sein sollte. Die experimentelle Bestimmung dieser Schmelzzeit bleibt jedoch eine offene Frage für die nächsten Projekte.



Abbildung 33: Momentaufnahme zum Zeitpunkt t = 1,2 ms der Wärmeausbreitung im Testaufbau CMOSI-500 (Ni/AI-RMS mit dp=50)

Mit Hilfe der Wärmeausbreitungssimulation (Abbildung 33) lassen sich die Schmelzzeit des Lotes (Zeit, in der das gesamte Lot aufgeschmolzen ist) und die erreichten Maximaltemperaturen in den verschiedenen Bauteilen vorhersagen und damit Aussagen über die Qualität der Verbindung soweit der Schädigung grenzender Bauteile treffen.



Abbildung 34: Temperatur als Funktion der Zeit und daraus abgeleitete Schmelzdauer an drei verschiedenen Punkten in der Grenzfläche zwischen Lot und Bauteil (CMOSI-500, 80 µm Ni/Al; Lot: 10 µm, Schmelztemperatur: 505 K)

	CMOSI-100	CMOSI-500
38 µm Ni/Al	0,1 ms	0 ms
60 µm Ni/Al	0,4 ms	0,09 ms
80 µm Ni/Al	0,8 ms	0,7 ms

Tabelle 4: Berechnete Schmelzdauern des Lots (10 µm Zinn, Schmelztemperatur 505 K)

• CMOSI-100: 1,9 x 2,2 x 0,525 mm<sup>3</sup> • CMOSI-500: 3,7 x 4,1 x 0,525 mm<sup>3</sup>

Die Schmelzzeit ist stark von der Dicke des RMS abhängig; je größer die Dicke, desto länger die Schmelzzeit. Umgekehrt sinkt die Schmelzzeit mit zunehmender Bauteilgröße. In Tabelle 4 sind die Simulationsergebnisse für verschiedene Komponenten und RMS-Dicken zusammengefasst.

#### Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen

Die Ziele dieses Arbeitspaketes zur CFD-Simulation wurden vollständig erreicht, es wurde ein mathematisches Modell zur Simulation des RMS entwickelt, mit dem die Frontgeschwindigkeit (2D IMH-Modell) und die Temperaturverteilung an den angrenzenden Bauteilen vorhergesagt werden kann.

#### Meilenstein 2

Das validierte Simulationsmodell für Folien liegt vor.

#### AP4 Entwicklung, Bereitstellung und Strukturierung von RMS

#### Angestrebte Ziele

- Herstellung von Zr/Al-, Ni/Al- und Zr/Si-RMS, sowohl als freistehende Folien als auch direkt auf Testsubstraten und Wafern abgeschieden, zur Ermittlung der temperaturabhängigen Materialdaten, zur Durchführung von Fügeprozessen an Testsubstraten und der Funktionsmuster
- Belotung und Strukturierung der hergestellten RMS

#### Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

#### Weiterentwicklung des RMS-Herstellungsverfahrens

RMS werden mittels physikalischer Gasphasenabscheidung (PVD), speziell mit dem Vakuumverfahren Magnetron-Sputter-Deposition (MSD), hergestellt. Dabei rotiert das Substrat vielfach um die direkt am Herstellungsprozess beteiligten Targets, wodurch Hunderte von Einzelschichten abgeschieden werden und das RMS aufgebaut wird. Dieses Verfahren beinhaltet einige einzustellende Prozessparamater, wie z.B. Vakuumdruck, Gasmenge, Sputterleistung, welche Einfluss auf den Beschichtungsprozess ausüben und somit gezielt aufeinander abgestimmt werden müssen.

#### Abscheideratenbestimmung

Um die Abweichung der Ziel- zur Realdicke der RMS zu reduzieren, wurde im Laufe des Projekts ein neuer Prozess zur Bestimmung der Abscheiderate entwickelt und zur Herstellung der RMS genutzt.

Durch die Vielzahl an Einzelschichten gibt es viele Grenzflächen in der RMS. Dort findet eine undefinierte Vormischung im Beschichtungsprozess statt, getrieben durch Diffusion bei erhöhten Prozesstemperaturen. Diese vorgemischte Phase hat eine andere Dichte als die Einzelmaterialien, sodass ihr Einfluss bei der Abscheideratenbestimmung berücksichtigt werden muss.

Obwohl es unvermeidbare Prozessunterschiede zwischen Ratenbestimmung und "scharfer" Beschichtung gibt, ist das Ziel, die Auswirkungen auf Toleranzen in der RMS möglichst gering zu halten.

Dazu wurden im Ratenprozess die wichtigsten Prozessparameter auf den realen Beschichtungsprozess abgestimmt (z.B. Targetleistung, Gas, Druck, ...). Ein Schichtsystem mit 3 Stapeln à 15 Perioden unterschiedlicher Periodendicken, das durch Röntgenreflektometrie (XRR) charakterisiert werden kann, wurde abgeschieden. In jedem Stapel wird die Sputterleistung eines Materials auf eine von zwei Leistungsstufen gesetzt.



Abbildung 35: Schichtaufbau des Ni/Al-Abscheideratenprozesses

Durch eine Prognose der entstehenden Periodendicken kann eine eindeutige XRR-Auswertung garantiert werden. In einem Gleichungssystem (Formel 2) werden Umdrehungsgeschwindigkeiten, Leistungen und Schichtdicken ausgewertet und so möglichst viele Informationen aus dem Beschichtungsprozess genutzt.

Formel 2: Gleichungssystem zur genaueren Ratenbestimmung

$$P_{Ni_{1}} \cdot r_{Ni}(u_{Ni}) + P_{Al_{1}} \cdot r_{Al}(u_{Al}) = dp_{1}$$

$$P_{Ni_{1}} \cdot r_{Ni}(u_{Ni}) + P_{Al_{2}} \cdot r_{Al}(u_{Al}) = dp_{2}$$

$$P_{Ni_{2}} \cdot r_{Ni}(u_{Ni}) + P_{Al_{2}} \cdot r_{Al}(u_{Al}) = dp_{3}$$

Mit

- *P*<sub>Ni1</sub>... Leistungsstufe 1 Nickel (kW)
- *r*<sub>Ni</sub>... Abscheiderate Nickel bei Drehzahl (nm/kW)
- *u*<sub>Ni</sub>... Drehzahl Nickel (u/min)
- *dp*<sub>1</sub>... Periodendicke Stapel 1 (nm)

Es resultiert eine messbare Verbesserung der Soll-/Ist-Abweichung (s. Tabelle 5), die die Basis für verlässliche Aussagen zu verschiedenen Einflüssen auf die RMS-Eigenschaften bildet.

Periodendicke [nm]	Abweichung Alt [nm]	Abweichung Neu [nm]
11,5 (Stapel 1)	-0,699	0,180
8,2 (Stapel 2)	-0,699	0,103
7,2 (Stapel 3)	-0,699	-0,055

Einige der so neu hergestellten RMS-Folien wurden im hochauflösenden REM analysiert, um den Ratenprozess anhand des "scharfen" RMS-Beschichtungsprozesses zu kontrollieren:



Abbildung 36: REM-Aufnahmen verschiedener Ni/Al-RMS

Die Schicht- und Periodendicken wurden über Grauwerte analysiert. Aussagen zu Einzelschichtdicken und Stöchiometrie sind aufgrund der Interdiffusionszonen mit diesem Verfahren nicht möglich.

Tabelle 6: Bestimmung der Realschichtdicken über Grauwertanalyse

		MSL2288	MSL2292	MSL2293
Gesamtdicke [µm]	SOLL	80	20	20
	IST	79,4	19,4	20
Periodendicke [µm]	SOLL	100	25	100
	IST	99,2	24,2	100



Schwarz markiert: mittlerer Grauwert

Es zeigt sich eine geringe Abweichung sowohl für die Gesamt- als auch Periodendicke von < 4 % bei einer Periodendicke von 25 nm und < 1 % für 100 nm.

#### RMS

Eine der grundlegenden Voraussetzungen zur Realisierung der Projektziele ist die Erlangung eines vertieften Prozessverständnisses. Daher wurden RMS mit bisher nicht vorliegenden Parameterkombinationen zur Analyse verschiedener Einflüsse und zum Abgleich mit Simulationswerten hergestellt.



Abbildung 37: Freistehende Ni/Al-RMS-Folie, 430 x 220 mm²



Abbildung 38: Direkt abgeschiedene, strukturierte RMS auf Stahl- und Si-Wafer

Nach diesen Entwicklungsergebnissen liegen Ni/Al-RMS mit konfigurierbaren, weiter verbesserten Eigenschaften am Fraunhofer IWS vor. Sowohl für freistehende Folie als auch für Direktabscheidung auf Bauteilen lässt sich der Prozess stabil und gezielt führen, Abbildung 37 und Abbildung 38. Eine Belotung kann jeweils mit Weich- oder Hartlot erfolgen, entweder inline beim RMS-Herstellungsprozess, oder im Nachgang über Galvanisieren.

Ebenso besteht bei der Strukturierung der RMS die Wahl zwischen Inline-Varianten, z.B. über Lacke oder Schattenmasken, oder auch im Nachhinein über Laserverfahren oder Rollmesser.

#### Wirtschaftlichkeitsbetrachtung

Die RMS-Herstellung erfolgt im normalen Betrieb mit moderaten Prozessparameter (mittleren Sputterleistungen und Substratbewegungen), um eine zuverlässige und reproduzierbare Herstellung zu gewährleisten. Dies hat längere Prozesszeiten und somit preisintensivere Kosten zur Folge, so dass RMS momentan noch recht teuer sind. Den größten Einfluss auf die Kosten besitzt dabei die Substratbewegung. Je schneller das Substrat rotiert, desto kürzer sind die Prozesszeiten und folglich geringer die Kosten.

Tabelle 7: Abhängigkeit der Prozesszeit von Substratbewegung

Rotationsgeschwindigkeit [rpm]	Prozesszeit [h]	Abscheiderate [µm/h]
0,8 (Standard)	33,33	2,4
4	6,66	12

In Tabelle 7 ist beispielhaft die Abhängigkeit der Prozesszeit von der Rotationsgeschwindigkeit des Substrates dargestellt. Dabei wurde eine 80 µm Ni/Al-RMS als Referenz verwendet. Mit etwa 25 % Einsparpotential hat die Prozessgeschwindigkeit den größten Einfluss auf die RMS-Kosten. Durch eine schnellere Substratbewegung kann die Prozesszeit deutlich verkürzt werden. Innerhalb des Projektes wurde dies durch eine Verdoppelung der Rotationsgeschwindigkeit von üblicherweise 0,8 rpm auf 1,6 rpm realisiert, ohne dass eine Eigenschaftsveränderung bei den RMS festgestellt werden konnte. Somit sind RMS weiterhin reproduzierbar und zuverlässig herstellbar. Das gesteckte Ziel die RMS-Kosten zu senken, konnte gleichzeitig erreicht werden. Hinsichtlich der Rotationsgeschwindigkeit gibt es noch weiteres Einsparpotential, in dem diese weiter erhöht wird, was aber innerhalb des Projektes nicht weiter untersucht wurde.

Weiteres Potential zur Kostenreduzierung besitzen mit etwa 20 % Anlagen- und Materialkosten, sowie mit 10 % die Personalkosten, also die Bediener der Beschichtungsanlage.

Durch den Forschungs- und Entwicklungscharakter von Fraunhofer dominieren die F&E-Kosten. Sobald ein anwendungsspezifisch geeignetes RMS gefunden wurde, lassen sich RMS in größeren Serien noch deutlich wirtschaftlicher produzieren.

#### Herstellung und Charakterisierung der Zr/Al-RMS:

Für die Herstellung der Zr/AI-RMS wurde am Kompetenzzentrum Surface Technology Applied Research (STAR) die PVD-Beschichtungsanlage CemeCon CC800/8-Hi verwendet. Die Beschichtungsanlage ist mit vier DC-Magnetronsputterquellen ausgestattet. Für die Herstellung von Zr/AI-RMS wurden sechs Substrathalter mit einer beschichtbaren Substratfläche von 400x150 mm<sup>2</sup> hergestellt. Die Abbildung 39 (a) zeigt den Substrathalter und die Abbildung 39 (b) zeigt den Chargiertisch der mit sechs gerüsteten Substrathaltern.



Abbildung 39: Schematische Darstellung (a) Substrathalter und (b) Chargiertisch
Für die Herstellung der Zr/AI-RMS wurden Zirkontargets mit einer Reinheit von 99,2 wt% gemäß ASTM B551 / B551M - 12 Grade R60702 und Aluminiumtargets der Reinheit 99,999 wt% verwendet. Die Auswahl der Zirkontagets mit der Reinheit 99,2 wt% wurde aus ökonomischen Gründen einer höheren Reinheit bevorzugt. Hier konnte eine Kosteneinsparung im Vergleich zu höheren Reinheiten um den Faktor vier erzielt werden. Die Herstellung der der RMS konnte mit den verwendeten Targets erfolgreich durchgeführt werden. Für die Zr/Al-RMS Herstellung wurde jeweils alternierend mit einem Target beschichtet. Im ersten Schritt der Herstellung von Zr/Al-RMS wurden die Abscheideraten der eingesetzten Targets bei unterschiedlichen Leistungen bestimmt. Hierzu wurden je Targetmaterial Objektträger mit einer Größe von 26 mm x 76 mm auf den Substrathaltern angebracht und für jeweils 2 h bei konstanter Sputterleistung beschichtet. Die anschließende Auswertung der Schichtdicke erfolgte dann mit dem Kalottenschliffverfahren. Das Kalottenschliffverfahren und die lichtmikroskopische Auswertung sowie Vermessung der Kalotten diente hierbei als einfaches und schnelles Verfahren für die Bestimmung der Schichtdicke und der Berechnung der Abscheideraten. Die Abscheiderate für ein Target bei bestimmter Leistung wurde dann mithilfe der Anzahl an vollen Umdrehungen (360° = 1 U) des Chargiertisches in der Einheit Nanometer pro Umdrehung (nm/U) bestimmt. Der Chargiertisch besitzt eine feste Rotationsgeschwindigkeit wobei eine volle Umdrehung 40 Sekunden benötigt. Die Wahl der Schichtratenbestimmung in der Einheit nm/U bei fixer Targetleistung diente anschließend für das theoretische Design der herzustellenden Zr/AI-RMS. Beispielhaft ist in der Abbildung 40 eine lichtmikroskopische Aufnahme von einem Kalottenschliff der zweistündigen Abscheidung von Zirkon auf einem Objektträger aus Floatglas dargestellt. Die abgeschiedene Schichtdicke beträgt hierbei 1,74 µm. Bei einer zweistündigen Abscheidung ergeben sich insgesamt 180 Umdrehungen des Chargiertisches, womit die Abscheiderate zu 9,6 nm/U für die Leistung von 1 kW ermittelt werden konnte. Dieselbe Methode wurde für die Bestimmung der Abscheiderate von Aluminium verwendet. Die Sputterleistung wurde je Target zwischen 900 W bis 1100 W variiert.



Abbildung 40: Kalottenschliff 2 h Zirkon auf Objektträger (konstante Sputterleistung)

Diese Methode diente als erste Annäherung an ein gewünschtes Stoffverhältnis der herzustellenden Zr/AI-RMS da die Schichtdickenmessung mittels Kalottenschliff aufgrund der manuellen optischen Auswertung einer gewissen Fehlertoleranz unterliegt. Aufbauend auf den Vorauslegungen konnten erste noch dünne Zr/Al-RMS Chargen hergestellt werden, die Substrattemperatur überwacht werden und das sich einstellenden Stoffverhältnis analysiert sowie Rückschlüsse für die Prozessführung gezogen werden. Um die theoretischen Vorauslegungen der Zr/Al-RMS zu untersuchen wurden zunächst drei Chargen (ZA11-1010, ZA21-1010 und ZA31-1010) jeweils mit einer Gesamtschichtdicke von 7,8 µm hergestellt und analysiert. Hierbei galt es zu Prüfen ob der Beschichtungsprozess stabil und reproduzierbar durchführbar ist und das vorausgelegte Atomverhältnis von 50 at.% Aluminum zu 50 at.% Zirkon mit den eingestellten Beschichtungsparametern getroffen werden kann. Bei der EDX-Elementanalyse wurden etwaige Unreinheiten vernachlässigt und nur das Verhältnis von Aluminium zum Zirkon in weitere Optimierungsschritte einbezogen. Nach drei Iterationen zur Abscheidung der Zr/AI-RMS konnten geeignete Beschichtungsparameter für die Einstellung des idealen Atomverhältnisses gefunden werden. Ferner ergab die Elementanalyse der Zr/Al-RMS, dass obwohl die Reinheit des Zirkontargets 99,2 wt% beträgt und eine Verunreinigung bis maximal 4,5 wt% Hafnium im Targetmaterial möglich ist, der Anteil an Hafnium in der abgeschiedenen Zr/AI-RMS nur 0,9 wt% beträgt. Der Anteil an Hafnium in der RMS wurde daher im Folgenden als vernachlässigbar angesehen. Die Abbildung 41 zeigt eine solche Elementanalyse der Zr/Al-RMS. Für die Elementanalyse wurde die Zr/AI-RMS aus Sicherheitsgründen nur im reagierten Zustand analysiert. Die Zr/Al-RMS der Charge ZA31-1010 kommt mit 300 abgeschiedenen Perioden (Periode = Stapel aus jeweils einer Schicht Aluminium und Zirkon) auf eine Gesamtdicke von 7,8 µm. Für die theoretische Berechnung der Einzelschichtdicken wurde der Hafniumanteil von 0,3 at% vernachlässigt und es wurde mit einem Verhältnis von 50,0 at% Zirkon zu 50,0 at% Aluminium für weitere Optimierungsschritte gerechnet. Dies lässt sich in Gewichtsprozent (Zirkon 77,2 wt%, Aluminium 22,8 wt%) und schließlich in Volumenprozent darstellen (Zirkon 58,4 vt.%, Aluminium 41,6 vt.%). Unter Heranziehung der gemessenen Gesamtschichtdicke sowie der im Beschichtungsprozess eingestellten Periodenzahl der Werkstoffe lässt sich eine theoretische Einzellagendicke von 10,8 nm für Aluminium und 15,2 nm für Zirkon ermitteln. Die theoretische Periodendicke beträgt somit 26 nm in der Charge ZA31-1010.



Abbildung 41: EDX-Elementverteilungs-Spektrum Charge ZA31-1010

In Abbildung 42 wird der RMS-Aufbau schematisch dargestellt. Bei der Herstellung von RMS können Aufgrund von erhöhten Beschichtungstemperaturen zwischen den alternierend aufeinander abgeschiedenen Einzelschichten Bereiche mit vorgemischten Elementen entstehen. Diese vorgemischten Bereiche werden als "Intermixing Zone" (Abbildung 42) bezeichnet und können sich nachteilig auf die Reaktion und Wärmemenge der RMS auswirken. Bei der Herstellung von RMS mittel PVD-Technik müssen daher die Substrathalter idealerweise mit einer

aktiven Kühlung ausgestattet sein. Die PVD-Beschichtungsanlage CemeCon CC800/8-Hi konnte nicht mit einer aktiven planaren Substratkühlung betrieben werden. Die Prozessparameter für die Herstellung der Zr/Al-RMS waren nur in einem eingeschränkten Prozessfenster möglich. Für die Überwachung der Substrattemperatur wurde daher ein aktives Temperaturmesssystem implementiert. Im Rahmen einer im Kompetenzzentrum durchgeführten Bachelorarbeit ist das in der Abbildung 43 dargestellte Temperaturmesssystem entwickelt und in den Beschichtungsprozess implementiert worden. Der dreiteilige Messaufbau besteht aus einer Messdatenerfassungseinheit welche frei außerhalb der Beschichtungskammer platziert werden kann. Die Echtzeitdaten von insgesamt vier Temperatursensoren werden auf einem Display angezeigt und können fortlaufend auf einer Speicherkarte abgespeichert werden. Das Aufzeichnungsintervall beträgt hierbei 30 Sekunden. Ferner ist die Messeinrichtung mit einem Zwischensender und einer Messeinheit ausgestattet. Die Messeinheit kann in den Beschichtungsprozess eingebracht werden und dort die Substrattemperatur mittels rückseitiger Kontaktierung erfassen. Hierbei können drei Sensoren an beliebig gewählten Stellen der Substrathalter angebracht werden.



Abbildung 42: Schematische Darstellung RMS-Aufbau, Intermixing Zone



(a)

Abbildung 43: Temperaturmess-System zur Echtzeit-Überwachung der Substrattemperatur im Beschichtungsprozess; (a) Design, (b) Umsetzung [13]

Der vierte Temperatursensor ist in der Messeinheit selbst verbaut und dient zur Überwachung der Messelektronik. Die gesamte Elektronik der Messeinheit wird in einem vakuumdichten Edelstahlgehäuse untergebracht. Drei Sensoren für die Erfassung der Substrattemperatur werden über eine elektronische Vakuumdurchführung zur Messelektronik verbunden. Durch zweier Lithium-Ionen-Akkus der Größe 18650 konnte die Verwendung minimale Aufzeichnungsdauer 200 h erreicht werden und somit durchgehende von eine Temperaturerfassung sicherstellen. Die Messeinheit befindet sich im Beschichtungsprozess nicht im direkten Beschichtungsplasma und wird durch eine Vollbestückung des Chargiertisches mit Substrathaltern (Abbildung 39 (b)) nahezu vollständig vom Targetplasma abgeschirmt. In der Abbildung 44 ist die die Aufzeichnung der Temperaturdaten aus dem Beschichtungsprozess der Herstellung der Charge ZA41-0910 (RMS-Dicke 35,6 µm) dargestellt. Die Messdatenerfassung wurde mit dem Beginn des Vakuumaufbaus gestartet. Der Beschichtungsabstand der Sputterguellen zum Substrathalter ist unveränderlich und betrug in allen Beschichtungen 10 cm (Abstand der Targetoberfläche zum Substrat). Der Abstand der Heizung zum Substrat ist unveränderlich und betrug 10 cm. Die Heizphase wurde mit 3,5 kW Leistung bei 10 Minuten betrieben. Anschließend erfolgte eine Abschaltung der Vorheizung und eine Wartezeit von 20 Minuten vor dem Start des Beschichtungsprozesses. Die Wartezeit nach der Heizphase dient hierbei Ausgasungszeit etwaiger Kondensation von Luftfeuchtigkeit als auf der Substratoberfläche. Ferner gibt die Heizung noch weiterhin Wärme an das Substrat. Die Substrattemperatur vor den Beginn der Beschichtung betrug 70°C. Aus Vorversuchen zur Zr/Al-RMS Herstellung konnte ermittelt werden das die maximale gemittelte Sputterleistung bei der die Substrattemperatur in einem konstanten Prozessfenster bleibt bei 0,5 kW bis 0,6 kW liegt. Der Beschichtungsprozess wurde dahingehend auf die alternierende Beschichtung in Kombination mit Pausenzeiten bei Targetleistungen von maximal 1,1 kW ausgelegt. Die Gesamtzeit für eine einzelne Zr/Al-RMS Periode betrug hierbei 320 Sekunden, wobei jeweils 80 Sekunden lang einzeln Zirkon und einzeln Aluminium abgeschieden wurde und jeweils nach einer Einzellage eine Pausenzeit von 80 Sekunden eingehalten wurde. Die Substrattemperatur konnte dadurch über den gesamten Beschichtungsprozess unterhalb 85 °C gehalten werden. Die maximale Temperatur der Messelektronik lag auch nach 40 h Prozesszeit unterhalb 50 °C. Die Charge ZA41-0910 wurde nach der erfolgreichen Herstellung auf die relevanten Eigenschaften analysiert.



Abbildung 44: Substrattemperaturmessung Beschichtungsprozess Charge ZA41-0910

Seite 41 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG

Die Abbildung 45 zeigt eine Aufnahme des Querschnitts der Charge ZA41-0910 im Rasterelektronenmikroskop und die Vermessung der Gesamtdicke der Zr/Al-RMS. Ausgewertet wurde eine Bruchfläche eines unreagierten Probenstückes der Zr/Al-RMS. Die Gesamtdicke der Charge ZA41-0910 betrug hierbei 35,6 µm. Die Abbildung 47 zeigt ebenfalls ein Elektronenbild der Charge ZA41-0910 im Querschnitt. Diese Aufnahmen sind bei der Firma Hitachi in Krefeld entstanden und wurden dort mit einem hochauflösenden Rasterelektronenmikroskop ausgeführt. In Abbildung 47 (b) sind die Einzellagen der Zr/Al-RMS dargestellt. In der Abbildung 46 ist die Auswertung der Elementanalyse der Charge ZA41-0910 dargestellt. Es ist zu sehen das der Anteil an Zirkon 44,2 at% beträgt. Die Targetleistung für Zirkon wurde in diesem Prozess von 1,0 kW auf 0,9 kW reduziert. Die Targetleistung für Aluminium betrug in diesem Prozess 1,0 kW. Die Reaktionsfrontgeschwindigkeit der Charge ZA41-0910 variierte zwischen 3,6 m/s bis 7,2 m/s. Die noch relativ hohe Schwankung der Reaktionsfrontgeschwindigkeit wird auf die noch leichte Abweichung von idealen Atomverhältnis der Zr/Al-RMS zurückgeführt. Für die nachfolgenden Zr/Al-RMS-Chargen wurde der Beschichtungsprozess nochmal angepasst.



Abbildung 45: Elektronenbild Querschnitt Charge ZA41-0910 (a) Übersicht (b) Dickenmessung



Abbildung 46: Elementverteilungs-Spektrum Charge ZA41-0910



Abbildung 47: Elektronenbild Charge ZA41-0910, Querschnitt Zr/AL-RMS(a) Gesamtübersicht ZrAl-RMS, (b) Betrachtung der Einzellagen in hoher Vergrößerung, (Hitachi Krefeld)

Die Abbildung 48 zeigt eine umfassende Untersuchung des Einflusses der elektrisch angelegten Zündspannung für die Aktivierung der Zr/Al-RMS. Hierbei wurden zum einen die Spannungen 9 V, 12 V und 15 V untersucht und eine Kombination unterschiedlicher Kontaktierung der Zr/Al-RMS in Betracht gezogen. Die Kontaktierung wurde in vier Varianten ausgeführt. Zum einen wurde eine seitliche Kontaktierung ausgeführt wobei die Zündspitzen längs der RMS jeweils am Anfang und Ende des RMS-Probenstücks aufgelegt wurden. Zwei weitere Methoden der Kontaktierung (oben oder unten) lagen darin beide Zündspitzen im Abstand von 5 mm auf einer Seite der RMS aufzulegen.



Abbildung 48: Untersuchung der Auswirkung unterschiedlicher Zündspannungen und Arten der Zündkontaktierung der RMS (Zündspannung 9 V, 12 V, 15 V; Zündspitzenkontaktierung seitlich = entlang der RMS-Probenlänge, unten = einseitig unten, oben = einseitig oben, oben&unten = jeweils eine Zündspitze oben und unten, Q = horizontal geschnittene Probenstücke, L = vertikal geschnittene Probenstücke)

Hierbei wurde auch betrachtet, ob es einen herstellungsbedingten Unterschied der RMS-Decklagen von Unterseite (von Substratträger aufwachsende RMS-Seite, allererste abgeschiedene Einzelschicht der RMS) und Oberseite (Kontaktierung der allerletzten abgeschiedenen RMS Einzelschicht) gibt. Zusätzlich wurden die Zr/AI-RMS Probenstücke längs (L) und quer (Q) präpariert. Dies bedeutet, dass die RMS Proben mit einer Größe von 2 cm x 5 cm jeweils entweder horizontal (Querprobe) oder vertikal (Längsprobe) aus dem hergestellten RMS-Folie (wie auf dem Substrathalter in Abbildung 39 (a) abgeschieden) ausgeschnitten sind. Die Auswertung der unterschiedlichen Kontaktierungsarten konnte keine sonderlich großen Unterschiede darlegen. Lediglich die seitliche Kontaktierung hat hierbei zu etwas geringeren Reaktionsgeschwindigkeiten geführt. Der Effekt ist jedoch nicht signifikant genug, als dass daraus eine Empfehlung abgeleitet werden kann. Vielmehr wird bestätigt, dass vielfältige Kontaktierungsmethoden zu gleichmäßigen Ergebnissen führen. Am praktikabelsten hat sich die Methode der Kontaktierung der RMS von einer Seite (Abstand 5 mm der Zündspitzen) bewährt. Der Unterschied wurde jedoch größer, wenn eine andere Richtung für das Zuschneiden der RMS-Proben gewählt wurde. Hier waren durchwegs die Querproben (horizontal aus der RMS-Folie vom Substrathalter ausgeschnitten) im Vergleich zu den Längsproben (vertikal aus der RMS-Folie vom Substrathalter ausgeschnitten) mit deutlich geringeren Reaktionsgeschwindigkeiten auffällig. Da das Substrat eine gewalzte Trägerfolie ist, liegt hierin die Vermutung der sich abbildenden Rauheiten entgegengesetzt zur Reaktionsfrontausbreitung ein Hindernis darstellen. Die Abbildung 49 zeigt die Auswertung der Reaktionsfrontgeschwindigkeit einer Längsprobe. Die abgebildete Messung zeigt die höchste gemessene Geschwindigkeit der Zr/Al-RMS. Die Messung erfolgte hierbei nach einer Zündung und dem Einlaufen der Reaktionsfront von 1 cm. Anschließend wurden 5 cm Reaktionsweg ausgewertet. Nach diesem Prinzip wurden weitere Messungen ausgeführt.



Abbildung 49: Reaktionsfrontgeschwindigkeitsmessung Zr/Al-RMS Probe (a) Start der Zeitaufzeichnung bei 1 cm Einlauf, (b) 2 ms Zeitverlauf, (c) 4 ms Zeitverlauf, (d) 6 ms Zeitverlauf und Reaktionsfront bei 5 cm Messstrecke

Für die Reaktionsfrontgeschwindigkeitsmessungen wurden die RMS-Probenstücke zwischen zwei Objektträger gelegt. Die Platzierung zwischen Objektträgern diente der Fixierung der RMS-Proben. Für die Zündung aller RMS-Proben wurde nach den Erkenntnissen aus der Untersuchung unterschiedlicher Zündarten und Spannungen (Abbildung 48) die Methode der

einseitigen Zündung mit der Zündspannung 15 V verwendet. Die Auswertung der Reaktionsfrontgeschwindigkeiten der unterschiedlichen Zr/Al-RMS-Chargen ist in der Abbildung 50 dargestellt. Die Beschichtungsprozesse der Chargen ZA41-0910, ZA61-1010 und ZA71-1110 wurden iterativ und nach erfolgter Auswertung optimiert. Die Annäherung an das gewünschte Atomverhältnis wurde final in der Charge ZA71-1110 erreicht. Hier zeigte die Auswertung der Reaktionsfrontgeschwindigkeit mit einem Bereich von 2,8 m/s bis 4,5 m/s die geringste Streuung unter den hergestellten RMS-Chargen. Die Streuung Charge ZA61-1010 lag im Bereich von 3,2 m/s bis 5,4 m/s und bei der Charge ZA41-0910 mit einem Bereich von 3,6 m/s bis 7,2 m/s am höchsten. Vereinzelt wurde in der Charge ZA41-0910 auch die höchste Reaktionsfrontgeschwindigkeit wird auf Abweichung vom gewünschten Stoffverhältnis (50 at% zu 50 at%) zurückgeführt. Der Messaufbau zum Erfassen der Reaktionsfrontgeschwindigkeit ist in der Abbildung 14 (a) dargestellt.



Abbildung 50: Auswertung der Streuung der Reaktionsfrontgeschwindigkeiten der Zr/Al-RMS Chargen ZA41-0910, ZA61-1010, ZA71-1110, Zündspannung 15 V, einseitige Kontaktierung, Zündspitzenabstand 5 mm, (jeweils 10 Messungen)

Die Zr/AI-RMS Chargen wurden zu Beginn überwiegend mit Decklagen aus ca. 150 nm Zirkon hergestellt. Die Ausführung der RMS mit den Decklagen aus Zirkon hat sich bei dem nachfolgenden Handling und der galvanischen Beschichtung mit Zinn als nachteilig erwiesen. Als alternativer geeigneter Werkstoff für die Herstellung der Decklagen auf der Zr/AI-RMS wurde Kupfer gewählt. Hierfür wurde zunächst ein entsprechendes Target aus dem Werkstoff CW004A, 99,9 wt% Kupfer in Eigenfertigung hergestellt und die benötigten Schichtraten für das Target ermittelt. Die Kupferdecklage wurde hierbei jeweils angrenzend an die vorherigen Zirkon-Decklagen hergestellt. Somit blieb der generelle Zr/AI-RMS-Aufbau gleich und wurde um zwei Kupfer-Decklagen von jeweils ca. 500 nm erweitert. Die Chargen ZA61-1010 und ZA71-1110 wurden mit den Kupfer-Decklagen hergestellt. Das anschließende Handling der Zr/AI-RMS wurde dadurch deutlich verbessert und eine nachfolgende galvanische Behandlung im Vergleich zu den Zirkon-Decklagen erleichtert. Die Abbildung 51 zeigt die geöffnete Beschichtungskammer nach

einem abgeschlossenen Beschichtungsprozess mit der Ausführung von Kupfer-Decklagen auf der Zr/Al-RMS.



Abbildung 51: Abgeschlossener Beschichtungsprozess, Blick in die Beschichtungskammer der Beschichtungsanlage CC800/8-Hi, Zr/Al-RMS mit Kupfer-Decklagen

Für die Ermittlung der maximalen Reaktionstemperatur sowie des Reaktionstemperaturverlaufs wurde ein Hochgeschwindigkeits-Quotienten-Pyrometer der Firma Sensortherm verwendet. In Versuchsaufbau der Abbildung 52 ist der zur kombinierten Messung der Reaktionsgeschwindigkeit (Hochgeschwindigkeitskamera VW 9000 der Fa. Keyence) und der (Hochgeschwindigkeits-Quotientenpyrometer Reaktionstemperatur Metis H322, Fa. Sensortherm) dargestellt.



Abbildung 52: Versuchsaufbau für die Messung der Reaktionsgeschwindigkeit und der Reaktionstemperatur von RMS

Für die Messung der Reaktionstemperatur der RMS-Proben musste der das Pyrometer direkt auf die Oberfläche der RMS-Proben ausgerichtet werden. Hierzu wurde ein Probenhalter entworfen welcher es ermöglichte, in einen Spalt von 2 mm auf der RMS-Oberfläche zu messen. Als Boden und Deckelgläser wurden hierbei Objektträgergläser verwendet (Abbildung 53).



Abbildung 53: Platzierung von RMS-Proben im Probenhalter zur Auswertung der Reaktionstemperatur

Die Abbildung 54 zeigt die Auswertung von NiAl-RMS-Probenmaterial (Lieferschein 17.06.2022) welches durch das IWS bereitgestellt wurden. Ermittelt wurden für jede Chargenposition jeweils fünf kombinierte Messungen der Reaktionstemperatur und Reaktionsgeschwindigkeit.



Abbildung 54: Auswertung von NiAl-RMS (IWS-Probenmaterial), kombinierte Messung, 5 Messungen je Chargenposition; (a) Reaktionsgeschwindigkeit, (b) maximale Reaktionstemperatur

Die Abbildung 55 zeigt die den Reaktionstemperaturverlauf einer 60 µm NiAl-RMS (IWS-Probenmaterial – links) und die Auswertung von einer 75 µm Zr/Al-RMS.



Abbildung 55: Auswertung vom Temperaturverlauf an freistehend reagierender RMS; (a) Charge MSL 1857 60 µm NiAl-RMS (IWS), (b) 75 µm ZrAl-RMS (RMS-Decklage: Kupfer, ca. 500 nm), Ermittelt mit dem Hochgeschwindigkeits-Quotientenpyrometer Metis H322

#### Strukturierung

Zur Durchführung der Fügeversuche mit Testsubstraten in AP 6 bzw. für die Funktionsmuster in AP 8 wurden die bereitgestellten und beloteten RMS-Folien aus Ni/AI bzw. Zr/AI durch Laserschneiden in die entsprechenden Formen gebracht. Hierfür steht bei Hahn-Schickard ein Laserbeschrifter (Rofin PowerLine E-25 SHG) und die zum sicheren Schneiden notwendigen Prozessparameter zur Verfügung. Abbildung 66 zeigt Beispiele von laserstrukturierten RMS-Folien.

# Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen IWS:

Die Ziele dieses Arbeitspakets wurden vollständig erreicht.

# STAR:

Die angestrebten Projektziele der Arbeitsgruppe STAR konnten innerhalb der Projektlaufzeit erfüllt werden. Relevante Zr/Al-RMS Eigenschaften wurden in Form von Präsentationen aufbereitet und dem Projektteam zur Verfügung gestellt. Dies beinhaltet die Messdaten zu der Substrattemperatur während des Beschichtungsprozesses, elektronenmikroskopische Aufnahmen der Schichtdicke und Elementanalyse der jeweils hergestellten Zr/Al-RMS Chargen. Die Elementverteilungsanalysen wurden auch für die Optimierung des Beschichtungsprozesses genutzt und wurden für die theoretischen Berechnungen der Periodendicke und Einzellagendicke verwendet. Die Berechnungen zu den Einzellagendicken, Messungen der Gesamtdicke, Auswertung der Gesamtperiodenzahl wurden den Projektpartner in aufbereiteter Form bereitgestellt. Im Projektverlauf wurden insgesamt vier auswertbare und freistehende Zr/AI-RMS Chargen hergestellt. Die wesentlichen Ergebnisse dazu sind in der Tabelle 8 zusammengefasst dargestellt.

Foliendicke in µm	Perioden- dicke in nm	Perioden	at% [Zr/Al]	Reaktions- geschwindigkeit in m/s	Maximale Reaktionstemperatur (Metis H322) in °C
7,8	25,3	300	51,0/49,0	1,8 – 3,1	1763
35,6	23,6	1500	44,7/55,3	3,6 – 7,2	1882
55	23,0	2400	47,3/52,7	3,2 - 5,4	1875
75	24,0	3125	50,0/50,0	2,8-4,5	1752

Tabelle 8: Übersicht relevanter Zr/Al-RMS Eigenschaften

# **AP5 Bereitstellung von Testsubstraten mit Vormetallisierung**

#### Angestrebte Ziele

• Entwurf und Herstellung von Testsubstraten für die Fügeversuche in AP 6.

## Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

Um Fügeversuche mit den bereitgestellten und vorbeloteten RMS-Folien aus Ni/Al und Zr/Al durchführen zu können, wurden bei Hahn-Schickard Testchips entworfen und hergestellt. Als Materialien wurden hierfür Silizium und Borosilikatglas [14] gewählt, zwei Materialien, die für mikrosystemtechnische Anwendungen relevant sind und stark unterschiedliche Temperaturleitfähigkeiten besitzen (Silizium 91 mm<sup>2</sup>/s, Borosilikatglas 0,7 mm<sup>2</sup>/s, jeweils bei Raumtemperatur). 100 mm Wafer aus Silizium und Borosilikatglas wurden zunächst einseitig durch Sputtern mit einer Haftschicht aus TiW und anschließend mit Benetzungsschichten aus Ni bzw. Ni und Au versehen. Tabelle 9 zeigt in einer Übersicht die Varianten der hergestellten Testsubstrate.

Seite 49 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG

Variante	Glas 1	Glas 2	Glas 3	Silizium 1	Silizium 2	Silizium 3
Material	Borosilikat-	Borosilikat-	Borosilikat-	Silizium	Silizium	Silizium
	glas	glas	glas			
Schicht-	100 nm TiW	100 nm TiW	unbe-	50 nm	400 nm	200 nm
folge	500 nm Ni	500 nm Ni	schichtet	TiW	SiO <sub>2</sub>	SiO <sub>2</sub>
		200 nm Au		100 nm Ni	50 nm TiW	50 nm TiW
					200 nm Ni	200 nm Ni
					200 nm Au	200 nm Au
Dicke in mm	1,0	0,5	1,0	0,525	0,525	0,525

Tabelle 9: Varianten der hergestellten Testsubstrate

Die Wafer wurden daraufhin mit der Wafersäge in Deckelchips und Substratchips für Ni/Al-Testaufbauten (Tabelle 10) und für Zr/Al-Testaufbauten (Tabelle 11) in unterschiedlichen Größen vereinzelt.

Tabelle 10: Für Ni/Al-Testaufbauten eingesetzte Varianten aus Tabelle 9, sowie Form und Abmessungen der Testsubstrate und der RMS-Preforms

Einsatzzweck	Fügeversuche und Geschwindigkeits- messungen	Testaufbauten IR-Emitter C-MOSI 500	Testaufbauten IR-Emitter C-MOSI 100
Deckelchip,	Glas 1 + 2, Silizium 1 + 2,	Silizium 3	Silizium 3
Varianten	4 X 2 mm <sup>2</sup>	3,7 X 4,1 mm <sup>2</sup>	1,9 x 2,2 mm <sup>2</sup>
RMS-Preform	5 x 2 mm <sup>2</sup> , rechteckig	3,65 x 3,95 mm <sup>2</sup> , U-Form	1,9 x 2,2 mm², U-Form
Fügefläche	4 x 2 mm <sup>2</sup> , rechteckig	2 Streifen à 3,58 x 0,35 mm <sup>2</sup>	2 Streifen à 1,87 x 0,16 mm <sup>2</sup>
Substratchip,	Glas 1 + 2, Silizium 1 + 2,	Silizium 3,	Silizium 3
Varianten	5 x 2 mm²	3,7 x 4,1 mm <sup>2</sup>	1,9 x 2,2 mm <sup>2</sup>
3D-Darstellung			

Tabelle 11: Für Zr/Al-Testaufbauten eingesetzte Varianten aus Tabelle 9, sowie Form und Abmessungen der Testsubstrate und der RMS-Preforms

Einsatzzweck	Fügeversuche und	Zündversuche und
	Geschwindigkeitsmessungen	Geschwindigkeitsmessungen
Deckelchip, Varianten	Glas 2, Silizium 3, 6 x 4 mm <sup>2</sup>	Glas 3, 7 x 7 mm <sup>2</sup>
RMS-Preform	6 x 4 mm <sup>2</sup> , rechteckig	6 x 4 mm <sup>2</sup> , rechteckig
Fügefläche	5 x 4 mm <sup>2</sup> , rechteckig	5 x 4 mm <sup>2</sup> , rechteckig
Substratchip, Varianten	Glas 2, Silizium 3, 6 x 4 mm <sup>2</sup>	Glas 3, 7 x 7 mm <sup>2</sup>
3D-Darstellung		

## Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen

Die Ziele dieses Arbeitspakets wurden vollständig erreicht.

# **AP6 Fügeversuche**

#### Angestrebte Ziele

• Durchführung von Fügeversuchen mit den Testsubstraten

### Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

Im Rahmen dieses Projekts diente zum reaktiven Fügen von Testsubstraten und der Funktionsmuster ein kommerzieller Flip Chip Bonder FINEPLACER ® Pico (Finetech GmbH) mit (Abbildung 56, manuellem Bondkraftmodul. links). Dieser Bonder basiert auf der Schwenkarmtechnologie. Die Ausrichtung der Fügepartner geschieht dadurch, dass das am Platzierkopf befindliche Bauteil und das Substrat simultan mithilfe eines Strahlteilers beobachtet werden können. Die maximale Anpresskraft beträgt bei diesem Modul 100 N. Zusätzliche Elastomerauflagen sorgen für eine Nachführung der Fügepartner, um die Schwindung der RMS und den lateralen Lotausfluss auszugleichen. Die Zündung erfolgt durch Aufsetzen von Elektroden und Anlegen einer Gleichspannung von 15 V. Sowohl der Platzierkopf als auch die Substratplatte sind jeweils mit einem regelbaren Heizmodul ausgestattet, so dass sowohl das Bauteil als auch das Substrat bei Bedarf beheizt werden können. Abbildung 56 rechts zeigt in einer Momentaufnahme den Zündvorgang an einem Testsubstrat.



Abbildung 56: Prinzipieller Vorgang beim Ausrichten, Anpressen und Zünden mit dem Flip Chip Bonder FINEPLACER ® (links) und Momentaufnahme beim Zünden (rechts)

Das Fügeprozessgerät wurde mit einem Beschleunigungssensor (ACH-01-03, TE Connectivity [15]) zur Bestimmung der Reaktionsfrontgeschwindigkeit erweitert, Abbildung 57. Mit diesem kann der Zeitpunkt, sobald die Reaktionsfront das Ende des Deckelchips erreicht hat, detektiert werden. Die Sensordaten werden mit einem Digitaloszilloskop (TPS 2024, Tektronix) erfasst und gespeichert. Mithilfe der Sensorkalibrierdaten werden die Spannungswerte in reale Beschleunigungen umgerechnet. Die Messkurven wurden mittels exponentieller Glättung vom Rauschen befreit. Die Reaktionsfrontgeschwindigkeit ergibt sich durch Division der Laufstrecke und der mittels Sensor gemessenen Laufzeit.

Seite 51 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG



Abbildung 57: Schematische Anordnung des reaktiven Fügens mit Beschleunigungssensor

### Fügeversuche mit Ni/Al-RMS

### Geschwindigkeitsmessungen

Für die Fügeversuche für Geschwindigkeitsmessungen wurden vorbelotete Ni/Al-RMS-Preforms verwendet, die vom IWS bereitgestellt wurden (Charge MSL1991, Herstellung 2020). Anhand von REM-Aufnahmen einer Bruchfläche wurde die Dicke des RMS, die Lotschichtdicke sowie die Periodendicke vermessen. Zum Vergleich wurde eine kommerziell verfügbare RMS-Folie (Indium Corporation, NF40Sn10, Lot# 3-335170, hergestellt am 24.08.20) beschafft [16] und ebenfalls mit dem REM analysiert (Abbildung 58). Die Ergebnisse der REM-Analysen sind in Tabelle 12 zusammengefasst.



40 µm Ni/Al + beidseitig 10 µm Sn, IWS MSL1991







40 µm Ni/AI + beidseitig 10 µm Sn, IWS MSL1991

Abbildung 58: REM-Analyse der eingesetzten vorbeloteten Ni/Al-RMS-Folien

Tabelle 12: Ergebnisse der REM-Analysen der eingesetzten vorbeloteten Ni/Al-RMS-Folien

Hahn-Schickard

RMS-Folie	IWS MSL1991	IWS MSL1857	IWS MSL1898	Indium Corp. NF40Sn10
Lotschicht oben	8 µm Sn	7,2 µm Sn	10,8 µm Sn	15 µm Sn
RMS-Dicke	38 µm Ni/Al	55,4 µm Ni/Al	77,2 µm Ni/Al	38 µm Ni/Al
Periodendicke	53 nm	46 nm	45 nm	45 nm
Lotschicht unten	8 µm Sn	5,5 µm Sn	8,5 µm Sn	15 µm Sn

00136156

Abbildung 59 zeigt schematisch die Anordnung der Testsubstrate für die Fügeversuche mit Ni/Al-RMS sowie die zur Geschwindigkeitsmessung verwendete Laufstrecke.



Abbildung 59: Schematische Anordnung der Testsubstrate und des RMS-Preforms (links), im Querschnitt (Mitte) und in der Aufsicht (rechts) für die Testanordnung der Größe 1. Die für die Geschwindigkeitsmessung verwendete Laufstrecke ist rot eingezeichnet

Mit den unter AP 5 bereitgestellten Testsubstraten wurden unter Verwendung der o. g. RMS-Preforms Fügeversuche durchgeführt und dabei die Reaktionsfrontgeschwindigkeiten ermittelt. Abbildung 60 zeigt von einigen ausgewählten Testsubstraten exemplarisch Fotos sowie die jeweils aufgezeichneten Sensorsignale. Deutlich ist ein starkes positives Sensorsignal zu erkennen, welches auf einen plötzlichen Setzvorgang des Bauteils hindeutet, der in dem Moment eintritt, wenn das Lot unter dem Deckelsubstrat vollständig aufgeschmolzen ist. Da die Lotschmelze unmittelbar an den Reaktionsfortschritt gekoppelt ist, lässt sich aufgrund des Zeitpunkts, wann der Peak auftritt, auf die Laufzeit der Reaktionsfront unter dem Deckelsubstrat hindurch zurückschließen. Der Laufweg unter dem Deckelsubstrat beträgt etwa 4,26 mm (Abbildung 59 rechts).





Seite 54 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG



Abbildung 60: Fotos und Sensorsignale von ausgewählten gefügten Testsubstraten. Der Zeitpunkt, wann die vollständige Lotschmelze eingetreten ist, ist jeweils mit einem Pfeil markiert

Abbildung 61 zeigt die statistische Auswertung der gemessenen Geschwindigkeiten aus allen Fügeversuchen mit den Substratvarianten aus Tabelle 9 und den beiden RMS-Folien. Die Reaktionsfrontgeschwindigkeiten sind bei der IWS-Folie deutlich niedriger als bei der NF40Sn10, was durch die unterschiedliche Periodendicke erklärt werden kann (Tabelle 12). Dahingegen wirken sich die unterschiedlichen Substratmaterialen (Borosilikatglas und Silizium) sowie deren Dicken und die unterschiedlichen Kontaktmetallisierungen nicht signifikant aus. Die tatsächliche Ausbreitungsgeschwindigkeit dürfte etwas höher sein, da die Zeit zwischen Wärmefreisetzung innerhalb des RMS und der Lotverflüssigung nicht berücksichtigt wurde. Somit lässt sich der

Unterschied zur Kameramessung (4,18 m/s, Abbildung 12) bei der beidseitig beloteten IWS-Folie erklären.





#### **Testaufbauten für IR-Emitter**

In Vorbereitung für die Fügeversuche mit realen IR-Emitterchips für die späteren Funktionsmuster wurden Testaufbauten mit Deckelchips ohne Kavitäten und mit einer Schichtfolge, deren Temperaturleitfähigkeit ungefähr derjenigen der Emitterchips entspricht, durchgeführt. Als Substratchips dienten dieselben Chips wie die Deckelchips. Die Geometrie und Schichtfolge ist in der Tabelle 10 aufgelistet. Es wurden Ni/Al-RMS-Folien in drei unterschiedlichen Dicken (40 µm Ni/Al, MSL1991; 60 µm Ni/Al, MSL1857; 80 µm Ni/Al, MSL1898), jeweils beidseitig mit 10 µm Zinn vorbelotet, eingesetzt. Diese wurden mit dem Laser in U-Form auf die beiden Chipgrößen zugeschnitten. Zum Fügen wurde zunächst die RMS-Preform auf dem Substratchip ausgerichtet. Anschließend wurde der Deckelchip versetzt aufgesetzt, so dass die RMS-Preform zum Zünden mit den Zündelektroden zugänglich ist (Abbildung 62). Die Fügeverbindung besteht dann aus zwei parallelen Streifen am Chiprand, während die Chipmitten nicht miteinander verbunden sind.



Abbildung 62: Testaufbau IR-Emitter C-MOSI 500. Links: Substratchip mit aufgelegtem RMS-Preform. Rechts: Mit zusätzlich aufgesetztem Deckelchip

Während des Fügevorgangs befindet sich der Testaufbau zwischen dem Keramikgehäuse des unten liegenden Beschleunigungssensors und dem von oben auf den Deckelchip drückenden Platzierkopf aus WCu.





C-MOSI 500, 80 µm Ni/Al

Abbildung 63: Sensorsignale von ausgewählten Fügeverbindungen

Wie zu erwarten war, ist die Laufzeit bis zum ersten Signalanstieg beim Chip C-MOSI 100 aufgrund dessen Baugröße deutlich kleiner als beim C-MOSI 500. Auffallend ist jedoch die deutlich größere Signalamplitude beim kleineren C-MOSI 100. Der Grund für die offenbar größere Beschleunigung liegt im stärkeren Lotaustritt, siehe die Erklärungen im folgenden Arbeitspaket (Abbildung 71). Zur Berechnung der Frontgeschwindigkeiten werden die Laufstrecken der Reaktionsfronten bei den beiden Testaufbauten benötigt (Abbildung 64). Manche Sensorsignale weisen zwei Peaks in zeitlichem Abstand auf. Dies könnte ein Hinweis darauf sein, dass die Reaktionsfront nur von einer Zündstelle aus startet. Somit laufen die Fronten durch die beiden RMS-Seitenarme zeitlich versetzt. In diesen Fällen wurde zur Geschwindigkeitsberechnung immer der erste Peak herangezogen.

Seite 57 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG



Abbildung 64: Gefügte Testaufbauten C-MOSI 100 (links) und C-MOSI 500 (rechts) und Laufstrecken der Reaktionsfront

Abbildung 65 zeigt die statistische Verteilung der gemessenen Geschwindigkeiten. Jede Messung wurde fünfmal durchgeführt. Auffallend ist die niedrigere Geschwindigkeit bei der Folie 40 µm Ni/Al. Offenbar wirkt sich der Einfluss durch die Vorbelotung bei dieser Foliendicke am stärksten aus.



Abbildung 65: Statistische Auswertung der mittels Sensor gemessenen Frontgeschwindigkeiten

#### Fügeversuche mit Zr/AI-RMS

Für diese Versuche waren vom Kompetenzzentrum STAR Zr/Al-Folien bereitgestellt worden. Die Folien stammten aus der Charge ZA61-1010, hatten eine Dicke von 55 µm und waren beidseitig mit 10 bzw. 15 µm Zinn vorbelotet. Bei Hahn-Schickard wurden gemäß Tabelle 10 mit dem Laser entsprechende Preforms ausgeschnitten (Abbildung 66).

Seite 58 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG



Abbildung 66: Mit 10 µm Sn vorbelotete Zr/Al-RMS-Preform, hergestellt durch Laserschneiden

Da der Energiegehalt der Zr/AI-RMS im Vergleich zur Ni/AI-RMS niedriger ist und die Belotung erwartungsgemäß zu einer zusätzlichen Abnahme der Reaktionsausbreitungsgeschwindigkeit führen wird, wurden die ersten Zündversuche zunächst mit unmetallisierten Substratplättchen aus Borosilikatglas durchgeführt (Tabelle 10, rechte Spalte). Abbildung 67 zeigt die Anordnung für die Zündversuche mit unmetallisierten Glasplättchen.



Abbildung 67: Anordnung für die Zündversuche mit unmetallisierten Glasplättchen (links), und in Aufsicht mit Reaktionsweg (rechts)

Das Ergebnis eines erfolgreichen Zündversuchs mit einer beidseitig beloteten RMS-Folie zeigt Abbildung 68. Im Gegensatz dazu kam es beim Versuch in Abbildung 69 zu einem Erlöschen der Reaktion. Im entsprechenden Sensorsignal ist die Phase der Erwärmung erkennbar, jedoch ist die Kontraktion bei der vollständigen Lotschmelze ausgeblieben. Die Verteilung der Lotaufschmelzung auf der Vorder- und Rückseite zeigt, dass die Reaktion durch alle Schichten hindurch stattgefunden hat.

#### Seite 59 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG



Abbildung 68: Foto des RMS-Preforms nach der Reaktion (oben, Vorder- und Rückseite). Die vollflächige Aufschmelzung des Lots weist auf ein vollständiges Durchreagieren des RMS hin. Das Sensorsignal unten weist auf einen Setzvorgang nach etwa 4 ms hin, was einer Reaktionsfrontgeschwindigkeit von etwa 1,4 m/s entspricht



Abbildung 69: Foto eines RMS-Preforms nach unvollständiger Reaktion (oben). Die Lotaufschmelzung auf Vorder- und Rückseite zeigt, dass die Reaktion durch alle Schichten hindurch stattfindet. Das dazugehörige Sensorsignal (unten) zeigt die Expansion während der Erwärmung, die Kontraktion während der vollständigen Lotaufschmelzung fehlt jedoch

Für die Versuche mit Metallisierung, die zu einer Lötverbindung führen sollten, wurden sowohl Borosilikatglas- als auch Siliziumchips eingesetzt. Die entsprechende Versuchsanordnung ist in Abbildung 70 zu sehen.



Abbildung 70: Anordnung für die Fügeversuche mit metallisierten Substraten. Die Zündpositionen und der Reaktionsweg sind gleich wie bei den Versuchen ohne Metallisierung

Bei den Versuchen wurden die Substrate unterschiedlich miteinander kombiniert. Die Versuchsergebnisse sind in Tabelle 13 und Tabelle 14 zusammengefasst, wobei für jede

Materialkombination die Anzahl der Versuche mit vollständiger Reaktion, mit stoppender Reaktion sowie mit keiner Reaktion zusammengefasst sind.

Kombination	Glas	Glas, metallisiert	Silizium, metallisiert
Glas	4 x Reaktion vollständig	Keine Versuche	Keine Versuche
	1 x keine Reaktion		
Glas, metallisiert	1 x Reaktion vollständig	3 x Reaktion vollständig	Keine Versuche
	_	1 x Reaktion stoppt	
		1 x keine Reaktion	
Silizium, metallisiert	1 x Reaktion stoppt	Keine Versuche	1 x keine Reaktion

Tabelle 13: Ergebnisse der Fügeversuche mit 10 µm Sn

#### Tabelle 14: Ergebnisse der Fügeversuche mit 15 µm Sn

Kombination	Glas	Glas, metallisiert	Silizium, metallisiert
Glas	1 x Reaktion vollständig	Keine Versuche	Keine Versuche
	1 x Reaktion stoppt		
	5 x keine Reaktion		
Glas, metallisiert	Keine Versuche	Keine Versuche	Keine Versuche
Silizium, metallisiert	Keine Versuche	Keine Versuche	Keine Versuche

Die Ergebnisse der Fügeversuche mit Zr/Al-RMS-Folien können wie folgt zusammengefasst werden:

- Es wurden nur Fügeversuche mit der Charge ZA61-1010 durchgeführt.
- Die Reaktion wird durch die Belotung stark beeinflusst. Aufgrund der Wärmeableitung durch das Lot wird die Reaktion mit zunehmender Lotschichtdicke behindert.
- Fügeverbindungen konnten nur mit Glas-Glas-Substraten und mit 10 μm Zinn realisiert werden.
- Anhand von Beschleunigungsmessungen konnte die Erwärmung während der Reaktion und der Zeitpunkt vollständiger Lotaufschmelzung detektiert werden.

Leider standen bis zum Projektende keine beloteten Zr/Al-RMS aus der letzten Charge ZA71-1110 zur Verfügung, so dass hiermit keine Fügeversuche mehr durchgeführt werden konnten.

#### Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen

Die Ziele dieses Arbeitspakets wurden vollständig erreicht.

## AP7 Analyse der Fügeverbindungen

#### Angestrebte Ziele

Analyse der Fügeverbindungen durch

- Anfertigung von Querschliffen
- Untersuchungen mittels REM und EDX
- Mikrohärteprüfung
- Messung der Schwindung der Fügeschichten
- Beschleunigte Alterung durch Temperaturwechsel
- Messung der Scherfestigkeit

und Vergleich mit den durch Modellbildung und Simulation vorhergesagten Eigenschaften

### Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

Ein großer Teil der Analysen der Fügeverbindungen wurde begleitend zu den Fügeversuchen in AP 6 durchgeführt und dementsprechend bereits dort beschrieben. Hierzu zählen in erster Linie Mikroskopaufnahmen der gefügten Bauteile, Beobachtungen des Reaktionsfortschritts und der Lotaufschmelzung, sowie qualitative Ermittlung der Festigkeiten der Fügeverbindungen mit der Pinzette. Es hat sich während der Projektarbeiten herausgestellt, dass gerade die Reaktionsausbreitung und die damit einhergehende Lotaufschmelzung ein wichtiges Kriterium darstellt, ob die durch mathematische Modellbildung und numerische Simulation vorhergesagte Temperaturverteilung und –ausbreitung im Lot und somit in der Fügeverbindung stattfindet.

Bei den Testaufbauten für das Funktionsmuster IR-Emitter wurden folgende Analysen durchgeführt:

- Untersuchung der Fügezonen anhand von Querschliffen
- Quantitative Bestimmung der Schwindung der RMS- und der Fügeschichtdicken
- Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit den durchgeführten Simulationen

Abbildung 71 zeigt Lichtmikroskopaufnahmen von Querschliffen repräsentativer Testaufbauten der beiden IR-Emittervarianten und unter Verwendung von vorbeloteten Ni/Al-RMS-Folien unterschiedlicher Dicke. Auffallend ist die größere Anzahl von Poren im Lot bei der größeren Bauteilvariante C-MOSI 500. Dies ist in erster Linie auf die größere Laufzeit der Reaktionsfront durch das Bauteil hindurch zurückzuführen. Die Lotschmelzdauer reicht offenbar nicht aus, um ein vollständiges gleichzeitiges Lotaufschmelzen im gesamten Bauteil zu ermöglichen.



C-MOSI 100, 60 µm Ni/Al

C-MOSI 500, 60 µm Ni/Al

Seite 63 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG



C-MOSI 100, 80 µm Ni/AI

C-MOSI 500, 80 µm Ni/AI

Abbildung 71: Mikroskopaufnahmen von Querschliffen der IR-Emitter-Testaufbauten

Um die Veränderung der Fügeschichtdicke während des Fügeprozesses zu quantifizieren, wurde die Fügeschicht nach der Reaktion mit derjenigen vor der Reaktion verglichen. Hierzu wurde an jedem Querschliff an drei Positionen (links, mitte, rechts) jeweils die Schichtdicke des reagierten RMS und des erstarrten Lots ausgemessen und daraus der Mittelwert gebildet (Abbildung 72). Die entsprechenden Dicken vor der Reaktion wurden anhand von REM-Aufnahmen von Bruchbildern unreagierter und vorbeloteter RMS gewonnen (Tabelle 12).



Abbildung 72: Links: Gemessene RMS-Dicke vor der Reaktion (grau) und nach der Reaktion für Testaufbauten C-MOSI 100 (blau) und C-MOSI 500 (orange). Rechts: Entsprechende Messwerte für die Lotschichten

Wie zu erwarten, bewirkt die Reaktionsschwindung im Mittel eine relative Abnahme der RMS-Dicke um etwa 6 % (Abbildung 72, links). Interessanter ist die Veränderung der Lotschichtdicke (Abbildung 72, rechts). Diese nimmt bei beiden Chipvarianten mit zunehmender RMS-Dicke ab. Allerdings ist bei der kleineren Chipvariante C-MOSI 100 die verbleibende Lotschichtdicke deutlich kleiner als beim Chip C-MOSI 500, was auf eine bessere Lotverdichtung ohne Porenbildung und einen zunehmenden Lotaustritt aus der Fügezone hinweist (siehe auch Sensormessungen, Abbildung 63). Insbesondere ist bei der Variante C-MOSI 500 mit 40 µm Ni/AI infolge zahlreicher Lufteinschlüsse sogar eine Zunahme der Lotschichtdicke zu beobachten, was darauf hinweist, dass das Lot zu keiner Zeit auf der gesamten Fügefläche in flüssigem Zustand war, so dass sich die Bauteile nicht "setzen" konnten. Dieses Ergebnis stimmt sehr gut mit den durch numerische Simulation errechneten Werte der Lotschmelzdauern (Dauer, während der das Lot auf der gesamten Fügefläche flüssig ist), überein (siehe Tabelle 4 in AP 3).

### Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen

Obwohl nicht alle der im Forschungsantrag aufgezählten Analyseverfahren an den gefügten Testsubstraten angewandt wurden, konnte der Vergleich der experimentellen Versuchsergebnisse mit den durch Modellbildung und Simulation vorhergesagten Eigenschaften durchführt werden. Die experimentelle Validierung der Simulation war erfolgreich.

# **AP8 Erstellung der Funktionsmuster**

#### Angestrebte Ziele

- Erstellung der Funktionsmuster in enger Abstimmung mit dem PA
- Modellierung und Simulation der Temperatur- und der mechanischen Stressverteilung
- Validierung der Fügeverbindungen

### Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

Zunächst wurden die Firmen des PA nach möglichen Funktionsmustern befragt. Es kamen folgende Vorschläge zusammen (Tabelle 15):

Funktions- muster	LTCC-Gehäuse	IR-Emitter	Si auf Stahl	Folie auf Stahl	Leistungs- elektronik
Vorge- schlagen durch	VIA Electronic GmbH	Micro-Hybrid Electronic GmbH	ZF Friedrichs- hafen AG	ZF Friedrichs- hafen AG	Siemens AG
Basis- werkstoffe	LTCC (low temperature cofired ceramics)	Silizium	Silizium Stahl (16MnCr5)	Kunststofffolie Stahl (16MnCr5)	Silizium, SiC DCB (direct copper bonded)
Bauteil- abmes- sungen	Ca. 8 x 5 mm²	Ca. 2 x 2 mm², ca. 4 x 4 mm²	Ca. 10 x 10 mm²	Ca. 10 x 10 mm²	Ca. 10 x 10 mm²
Füge- fläche	Rechteckiger Rahmen	U-Rahmen	Rechteck ganzflächig	Rechteck ganzflächig	Rechteck ganzflächig
Symbol- bild					

Tabelle 15: Liste der vorgeschlagenen Funktionsmuster

Da aus Zeit- und Kapazitätsgründen im Rahmen des Forschungsvorhabens nicht alle vorgeschlagenen Funktionsmuster in der erforderlichen Tiefe behandelt werden konnten, wurde zunächst eine Vorauswahl getroffen. Die in den Funktionsmustern eingesetzten Materialien unterscheiden sich stark in ihren thermischen Eigenschaften. Zudem wird der Rechenaufwand bei der Simulation entscheidend durch die Bauteildimensionen bestimmt. Um eine möglichst große Bandbreite abzudecken, wurden die Funktionsmuster daher zunächst anhand der thermischen Leitfähigkeiten der verwendeten Materialien und der Bauteildimensionen einsortiert (Abbildung 73). Die Wahl fiel daraufhin auf die Funktionsmuster LTCC-Gehäuse und IR-Emitter.



Abbildung 73: Einsortierung der vorgeschlagenen Funktionsmuster anhand ihrer Bauteildimensionen und der Temperaturleitfähigkeiten der Basiswerkstoffe

### LTCC-Gehäuse

Bei dieser Anwendung soll ein Deckel aus LTCC (low temperature cofired ceramics) mit einer Bodenplatte aus demselben Material fest und möglichst dicht verbunden werden. Der Deckel ist innen hohl, so dass die Fügefläche ein rechteckiger Rahmen ist, der durch die Seitenwände des Deckels gebildet wird (Abbildung 74).



Abbildung 74: Schematische Darstellung des LTCC-Gehäuses. Links die Einzelkomponenten, rechts das Gehäuse im gefügten Zustand (ganz und in Schnittdarstellung). Das zum Fügen vorgesehene RMS-Preform ist ebenfalls mit dargestellt

Von der Firma VIA-Electronic wurden einige Deckel und Bodenplatten als Versuchsmaterial beigestellt. Die Komponenten bestanden aus LTCC-Materialien von zwei unterschiedlichen Herstellern, siehe Tabelle 16. Die Kontaktflächen sind vormetallisiert.

Seite 66 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG

	Tabelle <sup>·</sup>	16:	Verwendete	LTCC-Werkstoffe
--	----------------------	-----	------------	-----------------

Hersteller	DuPont™	KOA Corp.
Bezeichnung	Green Tape™ 951 [17]	KLC [18]
Farbe	blau	weiß
Metallisierung	Ca. 10-20 µm Pd/Ag [19]	Ca. 30 µm Ag

Die Vermessung der Kontaktflächen mit einem optischen Profilmessgerät (FRT MicroProf) hat ergeben, dass die Unebenheiten bei den Komponenten aus dem Werkstoff DuPont 951 beim Deckel etwa 25 µm und bei der Bodenplatte etwa 10 µm betragen, wobei die tiefsten Stellen in den Ecken der Fügefläche liegen (Abbildung 75). Beim Werkstoff KLC betragen die Unebenheiten sogar etwa 30 bzw. 12 µm (Abbildung 76).



Abbildung 75: Fotos der Fügeflächen der LTCC-Komponenten aus dem Werkstoff DuPont 951 (links), sowie die gemessenen Oberflächenprofile (rechts).



Abbildung 76: Fotos der Fügeflächen der LTCC-Komponenten aus dem Werkstoff KOA KLC (links), sowie die gemessenen Oberflächenprofile (rechts)

Aufgrund dieser gemessenen Unebenheiten wurden zum Fügen vorbelotete Ni/Al-Folien mit beidseitig 30 µm galvanischer Vorverzinnung ausgewählt, damit genügend flüssiges Zinn vorhanden ist, um die Unebenheiten auszugleichen. Für die Versuche wurden 40 µm Ni/Al (MSL 2267) bzw. 60 µm Ni/Al (MSL 1494) durch das IWS bereitgestellt und bei Hahn-Schickard durch Laserschneiden strukturiert. Anschließend wurde der reaktive Fügeprozess durchgeführt (Abbildung 77).



Abbildung 77: Reaktiver Fügeprozess. Links: Vorbelotetes RMS-Preform auf einer LTCC-Bodenplatte (DuPont). Rechts: Gehäusekomponenten im Fineplacer mit aufgesetzten Zündelektroden

Zündversuche mit der 40 µm dicken Ni/AI-RMS, beidseitig vorbelotet mit 30 µm Sn, führten zu der Erkenntnis, dass der durch diese dicke Vorbelotung hervorgerufene Energieverlust die Ausbreitung der Reaktion innerhalb der Folie verhindert, so dass die Reaktion unmittelbar nach dem Zünden stoppt (Abbildung 78). Aus diesem Grund wurden alle weiteren Fügeversuche mit der vorbeloteten 60 µm dicken Ni/AI-RMS-Folie durchgeführt, mit der die vollständige Durchreaktion gelang.



Abbildung 78: Zündversuch mit einem beidseitig 30 µm Sn vorbeloteten 40 µm Ni/Al-RMS-Preform.

Die gefügten Bauteile wurden zunächst fotografiert (Abbildung 79). Außen im Fügebereich ist stellenweise flüssiges Lot ausgetreten und wieder erstarrt. Dies deutet darauf hin, dass genügend Energie zum Aufschmelzen des Lots vorhanden war.

Seite 68 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG



Abbildung 79: Seitenansicht eines gefügten Bauteils aus dem Werkstoff DuPont (links) bzw. aus KLC (rechts)

Anschließend wurden mechanische Querschliffe angefertigt, und die Fügezone wurde unter dem Mikroskop analysiert. Abbildung 80 zeigt die Fügezone eines gefügten Bauteils aus dem Werkstoff DuPont 951 im Querschliff, sowohl aus dem mittleren Bereich als auch aus dem Randbereich. In beiden Bereichen ist eine gute Aufschmelzung und Anbindung des Lots an die Bauteiloberflächen zu erkennen. Im mittleren Bereich, wo aufgrund der Topografie der Oberfläche der höchste Anpressdruck vorhanden war, wurde Lot aus der Fügezone herausgepresst, und es sind wenige Fehlstellen erkennbar. Dahingegen war der Anpressdruck im Randbereich so gering, dass sich im Lot zahlreiche Poren gebildet haben. Dennoch kann diese Fügeverbindung als akzeptabel bezeichnet werden. Sie könnte durch Verwendung von Bauteilen mit weniger unebenen Oberflächen noch verbessert werden. Abbildung 81 zeigt die Fügezone eines gefügten Bauteils aus dem Werkstoff KLC, ebenfalls im Querschliff. Es ist zu erkennen, dass das am RMS anhaftende Lot aufgeschmolzen ist, jedoch war die Anbindung an die Ag-Metalloberfläche größtenteils nur ungenügend, so dass es letztlich zu einer Delamination geführt hat. Ein Grund dafür könnte die größere Dicke der Metallisierung der LTCC-Oberflächen mit der damit verbundenen größeren Wärmeableitung sein. Ein weiterer Grund könnte in der chemischen Veränderung der Ag-Oberfläche an der Luft sein. Abhilfe könnte hier eine chemische oder mechanische Vorbehandlung der Metalloberfläche unmittelbar vor dem Fügevorgang leisten. Aus Zeitgründen konnten leider keine weiteren Fügeversuche mehr durchgeführt werden.



Abbildung 80:Mikroskopaufnahmen eines Querschliffs durch die Fügezone eines DuPont-Bauteils. Links: Mittlerer Bereich, rechts: rechter Randbereich

Seite 69 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG



Abbildung 81: Mikroskopaufnahmen eines Querschliffs durch die Fügezone eines KLC-Bauteils. Links: Mittlerer Bereich, rechts: rechter Randbereich

#### Vergleich der Experimente mit der Simulation und Validierung

Tabelle 17 zeigt in einem Vergleich die durch Simulation gemachten Vorhersagen der Lotschmelzdauer und die im Experiment gemachten Beobachtungen zum Lotfluss innerhalb der Fügezone. Bei einer angenommenen Reaktionsausbreitungsgeschwindigkeit von etwa 4 m/s (Kameramesswert für belotete Ni/Al-Folie, siehe Abbildung 12) und einem Laufweg von 9 mm, muss die Lotschmelzdauer mindestens etwa 2,3 ms betragen, damit das Lot am Anfang des Reaktionswegs noch flüssig ist, während die Reaktionsfront das Bauteilende erreicht hat (Grenzfall). Ist die Lotschmelzdauer kleiner, kann es zu keinem Setzvorgang und somit zu einer guten Benetzung mit Lot kommen. Laut der Simulationsergebnisse ist demnach die zu erwartende Lotschmelzdauer ausreichend, um für alle angenommenen RMS-Dicken für ein gutes Fügeergebnis zu sorgen. Allerdings muss bei dieser Betrachtung berücksichtigt werden, dass die Simulationen mit dem 3D-IWS-Modell durchgeführt wurden. Das bedeutet, dass eine Reaktionsausbreitungsgeschwindigkeit angenommen wurde, die aus einer 2D-IMH-Modellbildung gewonnen worden war. Das Stoppen der Reaktion konnte somit durch diese Simulation nicht abgebildet werden. Schlussendlich stehen die Simulationsergebnisse somit nicht im Widerspruch zu den experimentellen Ergebnissen.

Tabelle 17: Vergleich der Experimente mit der Simulation

RMS + Vorbelotung	Simulation	Experiment (DuPont)
40 μm Ni/Al + beids. 30 μm Sn	Lotschmelzdauer 8 ms	RMS reagiert nicht durch
60 μm Ni/Al + beids. 30 μm Sn	Lotschmelzdauer 23,2 ms	RMS reagiert durch, guter Lotfluss
80 μm Ni/Al + beids. 30 μm Sn	Lotschmelzdauer 43,3 ms	Nicht durchgeführt

#### **IR-Emitter**

Bei dieser Anwendung, vorgeschlagen durch die Firma Micro-Hybrid Electronic GmbH, handelt es sich um einen IR-Emitterchip auf Siliziumbasis, der fest mit einem Trägerchip aus Silizium verbunden werden soll. Es existieren zwei Bauformen, die sich im Wesentlichen durch ihre Abmessungen unterscheiden, C-MOSI 100 und C-MOSI 500 (Abbildung 82). Auf der Unterseite des Emitterchips befindet sich eine Kavität. Die Oberseite wird durch eine Membran aus Siliziumnitrid gebildet, auf der sich das Heizelement befindet. Die Fügeflächen befinden sich im Randbereich, eine hermetisch dichte Verbindung ist nicht erforderlich.

#### Seite 70 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG



Abbildung 82: Abmessungen und Aufbau des IR-Emitterchips C-MOSI 100 (oben) und C-MOSI 500 (unten) mit Trägerchip. Konstruktion: Micro-Hybrid Electronic GmbH

Abbildung 83 zeigt schematisch die bei Hahn-Schickard geplante Umsetzung der Aufbauten. Wie bei den Testaufbauten wird eine vorbelotete Ni/AI-RMS in U-Form verwendet (siehe Abbildung 62).





Abbildung 83: Geplante Umsetzung der Aufbauten des IR-Emitterchips C-MOSI 100 (oben) und C-MOSI 500 (unten) bei Hahn-Schickard. Rechts: Schnittansicht

Für die Aufbauten wurden durch die Fa. Micro-Hybrid Electronic GmbH funktionsfähige Emitterchips bereitgestellt (Abbildung 84).



C-MOSI 500 Oberseite

**C-MOSI** Unterseite

Abbildung 84: Fotos der von Fa. Micro-Hybrid Electronic GmbH beigestellten Emitterchips

Folgende Prozesschritte waren zum Aufbau vorgesehen:

- Herstellung der Trägerchips
- Aufbringen einer lötfähigen Metallisierung im Randbereich auf der Unterseite der Emitterchips
- Herstellung der RMS-Preforms
- Fügeprozess
- Analyse der gefügten Bauteile

### Herstellung der Trägerchips

Bei Hahn-Schickard wurden 100 mm Siliziumwafer zunächst beidseitig mit 200 nm thermischem SiO2 versehen und danach einseitig durch einen Sputterprozess mit 50 nm Wti, 200 nm Ni und 200 nm Au beschichtet. Anschließend wurden die Wafer mit der Wafersäge in Chips der Größe 1,9 x 2,2 mm<sup>2</sup> für die Aufbauten C-MOSI 100 und in 3,7 x 4,1 mm<sup>2</sup> für C-MOSI 500 vereinzelt.

### Metallisierung der Emitterchips

Um die Rückseiten der Emitterchips zu beschichten, wurde eine Halterung aus Aluminium angefertigt, in der die Chips eingelegt werden. Um zu verhindern, dass die Membranunterseiten mitbeschichtet werden, wurde durch Laserschneiden zusätzlich eine Schattenmaske aus 300 µm dickem Silizium angefertigt (Abbildung 85). Abbildung 86 zeigt die Chips nach der Metallisierung mit 50 nm Wti, 200 nm Ni und 200 nm Au.



Abbildung 85: Sputterhalterung zur Beschichtung der Rückseiten der Emitterchips. Rechts: Mit aufgesetzter Schattenmaske



Abbildung 86: Emitterchips in der Sputterhalterung nach der Metallisierung
#### Herstellung der RMS-Preforms

Die Preforms wurden aus der beidseitig vorbeloteten 60 µm Ni/Al-Folie, IWS MSL1857, durch Laserschneiden hergestellt (Abbildung 87).



Abbildung 87: RMS-Preforms aus 60  $\mu$ m Ni/Al, beidseitig mit 10  $\mu$ m Sn vorbelotet, für beide C-MOSI-Varianten

#### Fügeprozess

Insgesamt wurden drei Muster C-MOSI 500 und ein Muster C-MOSI 100 durch rektives Fügen aufgebaut (Abbildung 88) und zur weiteren Analyse der Firma Micro-Hybrid Electronic GmbH zur Verfügung gestellt.



Abbildung 88: Fotos von Musteraufbauten C-MOSI 100 (links) und C-MOSI 500 (rechts)

# Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen

Die Ziele dieses Arbeitspakets wurden vollständig erreicht.

#### Meilenstein 3

Mindestens ein aufgebautes und validiertes Funktionsmuster liegt vor.

#### **AP9 Erstellung eines Prozesshandbuchs**

#### Angestrebte Ziele

Zusammenfassung der gesammelten Erkenntnisse in einem Prozesshandbuch

#### Durchgeführte Arbeiten und Ergebnisse

Die wichtigsten Erkenntnisse und Handlungsempfehlungen sind im Prozesshandbuch zusammengefasst. Dieses separate Dokument wird nach ihrer Fertigstellung den Mitgliedern des projektbegleitenden Ausschusses zur Verfügung gestellt.

## Vergleich der erzielten Ergebnisse mit den Zielen

Nicht relevant

#### Meilenstein 4

Das Prozesshandbuch befindet sich kurz vor seiner Fertigstellung.

### 3. Verwendung der Zuwendung

- wissenschaftlich-technisches Personal (Einzelansatz A.1 des Finanzierungsplans)
- Geräte (Einzelansatz B des Finanzierungsplans)
- Leistungen Dritter (Einzelansatz C des Finanzierungsplans)

	Hahn-Schickard	Fraunhofer IWS	IMH
Wisstechn. Personal (PM)	32,7	24,51	46,39
Geräte		-	
Leistungen Dritter		-	

## 4. Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit

Hahn-Schickard:

Die bei Hahn-Schickard geleisteten Arbeiten waren notwendig und angemessen, um die gesetzten Projektziele zu erreichen. Diese Arbeiten setzten erhöhte Anforderungen an die Kenntnisse und Fähigkeiten voraus und mussten daher weitestgehend durch wissenschaftliche Mitarbeiter durchgeführt werden. Dies beinhaltet insbesondere Arbeiten zur Modellierung und Simulation, Design und zur Herstellung von Testsubstraten, Durchführung von Fügeversuchen, sowie Analyse der Fügeverbindungen, Abstimmung mit Firmen des Projektbegleitenden Ausschusses und Konzeptionierung der Funktionsmuster, Erstellung des Prozesshandbuchs, Projektmanagement und Berichterstellung.

Fraunhofer IWS:

Die beschriebenen Arbeiten inklusive derer Ergebnisse hinsichtlich Literaturrecherche der aus der Spezifikation und Konzeption hervorgegangenen Materialien und RMS, sowie der Herstellung und Charakterisierung von Ni/Al- und zum Teil Zr/Al-RMS und der Aufbau eines 2D-Simulationsmodells waren notwendig und angemessen, um den Fortschritt der verschiedenen Arbeitspakete zu gewährleisten und die gesteckten Projektziele zu erreichen. Dies erforderte spezielle Fähigkeiten und Kenntnisse, für die wissenschaftliche Mitarbeiter und Graduierte erforderlich waren. Die Literaturrecherche und ein Teil der RMS-Charakterisierung wurde zudem von einer studentischen Hilfskraft unterstützt. Darüber hinaus waren konstruktive und feinmechanische Arbeiten zum Bau von Beschichtungsvorrichtungen sowie Hilfsvorrichtungen für die Charakterisierung notwendig, für welches technisches Personal eingesetzt wurde. Die Durchführung und Auswertung von Charakterisierungsmethoden wurde von wissenschaftlichen Mitarbeitern und Graduierten übernommen.

#### Hochschule Niederrhein

#### IMH:

Die CFD-Simulation war in diesem Projekt ein unschätzbares Werkzeug, das es ermöglichte, die Experimente der Projektpartner zu begleiten und die RMS-Paarungen besser zu verstehen. Die umfangreiche Literaturauswertung im Hinblick auf Materialdaten und mathematische Modelle war von großem Nutzen und hat zu einer besseren Charakterisierung der Ni/Al- und Zr/Al-RMS beigetragen. Das mathematische Modell des IMH hat Ergebnisse geliefert, die gut mit den experimentellen Ergebnissen übereinstimmen, so dass in Zukunft die Frontgeschwindigkeit mit großer Genauigkeit vorhergesagt werden kann, wodurch viele teure Experimente eingespart werden können. Durch die Kopplung der beiden mathematischen Modelle (IMH- und IWS-Modell) wurde der Simulationshorizont erweitert, um reale 3D-Bauteile zu simulieren und so die Schmelzdauer des Lots und die Temperaturverteilung in den angrenzenden Bauteilen zu bestimmen. Diese Ergebnisse dürften bei der Bestimmung der Lotschicht- und RMSSchichtdicke sehr hilfreich sein, und so die Entwicklungskoten und -zeiten für neue Fügeaufgaben verringern. Die Kopplung der beiden Modelle hat auch den Vorteil, dass sie rechnerisch schneller ist und sich daher gut für den industriellen Einsatz eignet.

#### STAR:

Die Arbeitsgruppe STAR (läuft organisatorisch unter IMH): In der Projektlaufzeit konnte die Arbeitsgruppe STAR mit der iterativen Entwicklung, Herstellung und begleitenden Analytik von ZrAI-RMS planmäßig voranschreiten. Die relevanten Analyseergebnisse wurden aufbereitet und den Projektpartnern für die Validierung zur Verfügung gestellt. Hierbei wurden Zr/Al-RMS-Chargen zu Beginn zunächst jeweils einer Elementanalyse unterzogen und die Gesamtschichtdicke wurde im Rasterelektronenmikroskop bestimmt. Die Elementanalyse in Kombination mit der Gesamtschichtdicke und der jeweiligen Periodenzahl dienten aus Ausgangsgrößen für die Berechnung der theoretischen Einzellagendicken und Periodendicke der Zr/AI-RMS. Rückschlüsse aus dem Beschichtungsprozess und der Analytik dienten anschließend der Optimierung des Beschichtungsprozesses nachfolgender Zr/AI-RMS-Chargen. Umfangreiche Messungen der Reaktionsfrontgeschwindigkeit der hergestellten Zr/AI-RMS-Proben wurden in aufbereiteter Form bereitgestellt. Ferner wurde zusätzlich ein Messsystem zu Hochgeschwindigkeitserfassung der Reaktionstemperatur implementiert. Das Hochgeschwindigkeitstemperaturmesssystem wurde für Zr/Al-RMS-Probenmaterial eingesetzt und auch für die Auswertung vom Fraunhofer IWS bereitgestelltem Ni/Al-RMS-Probenmaterial eingesetzt. Dem Fraunhofer IWS wurden zwei Chargen freistehendes ZrAI-RMS-Probenmaterial für DSC-Messungen bereitgestellt. Belotetes Zr/Al-RMS-Probenmaterial wurde Hahn-Schickard für Lotversuche bereitgestellt. Für die Durchführung und Sicherstellung der Arbeitsergebnisse wurde ein wissenschaftlicher Mitarbeiter (50 % Teilzeit) eingesetzt.

## 5. Wissenschaftlich-technischer und wirtschaftlicher Nutzen der erzielten Ergebnisse

#### Wissenschaftlich-technischer Nutzen der erzielten Ergebnisse:

Der wissenschaftlich-technische Nutzen lässt sich direkt aus der Erreichung der gesteckten Projektziele ableiten. Das wichtigste Projektziel war die Erhöhung der Prozesssicherheit und – zuverlässigkeit beim reaktiven Fügen durch Erlangung eines vertiefenden Prozessverständnisses der RMS-Fügetechnologie. Dieses Prozessverständnis konnte durch

Bereitstellung und Anwendung geeigneter Werkzeuge zur mathematischen Modellierung und numerischen Simulation der reaktiven Multischichtsysteme und des RMS-Fügeprozesses sowohl in zwei (für RMS-Folien) als auch in drei Dimensionen (für RMS mit angrenzenden Bauteilen) erlangt werden. Unterstützend dazu war die Entwicklung und Herstellung von freitragenden binären RMS-Folien auf Ni/Al- und Zr/Al-Basis zur Bestimmung der für die Simulation mit dem IWS-Modell benötigten Eingangsgrößen Reaktionsfrontgeschwindigkeit und Energieinhalt, sowie als Versuchsmaterial für die Fügeversuche mit Testsubstraten und industriell relevanten Funktionsmustern. Letztlich gelang anhand von ausgewählten Beispielen die experimentelle Validierung der durch Simulation vorhergesagten Wärmeverteilung innerhalb der Fügezone.

Zusammenfassend die wichtigsten wissenschaftlich-technischen Ergebnisse des Vorhabens:

- Zur numerischen Simulation der RMS und des reaktiven Fügeprozesses stehen mathematische Modelle auf der Basis von ANSYS Fluent zur Verfügung. Zur vereinfachten 3D-Simulation der Wärmeausbreitung in Bauteilen steht darüber hinaus ein mathematisches Modell basierend auf Comsol Multiphysics bereit. Eine Kopplung dieser beiden mathematischen Modelle ermöglicht die Nutzung der Vorteile beider Modelle.
- Das Know-How zur Herstellung von angepassten, freitragenden RMS-Folien auf Ni/Alund Zr/Al-Basis einschließlich deren Belotung, sowie deren Strukturierung mittels Laser, steht zur Verfügung. Ferner können die Reaktionsfrontgeschwindigkeit, der Energiegehalt und die Reaktionstemperatur der RMS-Folien bestimmt werden.
- Durch umfangreiche Literaturrecherchen, ergänzt durch gezielt durchgeführte Messungen, stehen temperaturabhängige Materialdaten der wichtigsten RMS, Lote, sowie der in der Mikrosystemtechnik gängigen Basismaterialien bereit.
- Mit den vorhandenen Prozessgeräten können reaktive Fügeprozesse auf Chip- und Bauteilebene durchgeführt werden. Bei Bedarf besteht zusätzlich die Möglichkeit der simultanen Messung der Reaktionsfrontgeschwindigkeit während des Fügeprozesses. Zur Analyse der Fügeverbindungen stehen geeignete Verfahren bereit.

Die gesammelten Erkenntnisse werden zusätzlich in Form eines Prozesshandbuchs den Mitgliedern des projektbegleitenden Ausschusses zur Verfügung gestellt. Das Prozesshandbuch sowie der vorliegende Schlussbericht werden über die Webseite von Hahn-Schickard für die interessierte Öffentlichkeit abrufbar sein [20].

#### Wirtschaftlicher Nutzen der erzielten Ergebnisse:

Das modellbasierte reaktive Fügen ermöglicht eine zuverlässige Anpassung des RMS-Fügeprozesses ohne aufwändige vorherige experimentelle Parameterstudien und bedeutet somit eine bedeutende Zeit- und Kostenersparnis. Zudem wird durch den Zuwachs an Prozesssicherheit das Risiko der Beschädigung von wertvollen Einzelkomponenten minimiert. Vorhandene kommerzielle Prozessgeräte zur Schichtabscheidung, zur Folienstrukturierung und zum Bonden von Einzelchips oder –bauteilen können zum RMS-Fügen eingesetzt werden.

Die wirtschaftliche Bedeutung der im Projekt erzielten Ergebnisse wird am besten durch die im folgenden aufgeführten Einschätzungen von Firmen des projektbegleitenden Ausschusses unterstrichen:

Dr. Knuth Baumgärtel, General Manager Micro-Hybrid Electronic GmbH, Hermsdorf:

"Die Technologie des reaktiven Lötens ist für unser Unternehmen insbesondere für die Aufbauund Verbindungstechnologie für elektronische Hochzuverlässigkeitsmodule und Komponenten der IR-Sensorik von außerordentlichem Interesse. Anwendungsfelder sind unter anderem der Aufbau von Sensorkomponenten und Gassensormodule im Hochzuverlässigkeitsbereich. Mit den reaktiven Multischichten besteht die Möglichkeit, eine organikfreie und zugleich temperaturstabile (-40 °C ... +180 °C) Fügung verschiedener Substrate / Fügepartner zu erzeugen. Für das attraktive Ziel eines langzeitstabilen Betriebs hermetisch gehauster Komponenten und Systeme sind diese Parameter essenziell. Gegenüber herkömmlichen Löttechnologien können mit dieser Technologie Verbindungen mit sehr geringen thermo-mechanischen Verspannungen trotz unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten der Fügepartner erzeugt werden. Auf Basis der Technologie des reaktiven Fügens können somit die Zuverlässigkeit und die Widerstandsfähigkeit unserer Elektronik- und Sensormodule gegenüber äußeren rauen Umwelteinflüssen weiter optimiert werden. Zudem eröffnen sich neue Möglichkeiten für Vakuum gehauste Komponenten."

Pavel Muravyev, Stv. Leiter Forschung und Entwicklung, IL Metronic Sensortechnik GmbH, Ilmenau:

"Die Firma IL Metronic Sensortechnik GmbH stellt seit über 30 Jahren Glasdurchführungen, Druck-, Feuchte- und UV-Sensoren her. Daher spielt das Thema Verbindungstechnik bei uns eine sehr bedeutende Rolle. Die von Ihnen angestrebte Technologie weist zahlreiche Vorteile auf und ist dementsprechend für unsere Firma interessant. Wir sehen folgende Anwendungsfelder der zu entwickelnden Technologie in unserer Firma:

- Biokompatibler Verschluss von additiv gefertigten Implantatgehäusen aus Glas
- Verbindung von Keramikteilen bei der Herstellung von Sensoren
- Herstellung von Glasdurchführungen mit integrierter Elektronik

Die erfolgreiche Entwicklung und Umsetzung der angestrebten Technologie kann nicht nur helfen, bestehende Herstellungsprozesse zu verbessern und damit die Produktpalette zu erweitern, sondern ermöglicht auch die Erschließung neuer Märkte für unsere Firma."

## 6. Plan zum Ergebnistransfer in die Wirtschaft

#### Durchgeführte Transfermaßnahmen

Maßnahme	Ziel	Ort / Rahmen	Datum / Zeitraum
Sitzungen des Projektbegleitenden Ausschusses (PA)	Villingen-Schwenningen / Kick-Off-Treffen Videokonferenz Videokonferenz	06.02.2020 01.10.2020 22.04.2021	
	<ul> <li>Vorgehen</li> <li>Beratung des PA</li> </ul>	Videokonferenz	08.12.2021
		Videokonferenz	18.05.2022
		Villingen-Schwenningen + Videokonferenz / Abschlusstreffen	21.09.2022
Weitergabe Zwischenberichte und Abschlussbericht an PA und an interessierte Unternehmen	Transfer der Projektergebnisse		Gesamte Projektlaufzeit

Weitergabe Prozesshandbuch an PA und an interessierte Unternehmen	Transfer der Projektergebnisse		Projektende
Veröffentlichung der Projektergebnisse	Transfer der Projektergebnisse	Internetauftritt IWS / HS / IMH, Einbindung der Projektpartner	HS-Homepage seit 2019 IWS- Homepage 2021
Präsentation der Ergebnisse auf einer Tagung oder Fachmesse	Gewinnung weiterer Interessenten	Donaueschingen / InnovationForum Smarte Technologien und Systeme, Vortrag [21]	31.03.2022
		Aachen / 9. GMM- Workshop Mikro-Nano- Integration, Kurzvortrag und Poster [22]	2122.11.2022
Direkte Ansprache neuer Firmen	Gewinnung weiterer Interessenten		
Beratung von Unternehmen, Aufklärung über RMS- Technologie	Transfer der Projektergebnisse	Bilaterale Akquisition	Gesamte Projektlaufzeit
Aufnahme der Ergebnisse in die Lehre bzw. Durchführung von Bachelor- und Masterarbeiten	Ausbildung der Studenten verschiedener Studienrichtungen	TU Dresden, IMH, HS	Gesamte Projektlaufzeit
	Integration in die Lehre	TU Dresden	Gesamte Projektlaufzeit

## Geplante Transfermaßnahmen

Maßnahme	Ziel	Ort / Rahmen	Datum / Zeitraum
Transfer der Projektergebnisse	Präsentation auf einer Tagung oder Fachmesse • Präsentation der	St. Georgen / VDC Zentrum für Digitale Produktentwicklung	Q1 2023
	Ergebnisse zur Gewinnung weiterer	Dresden / MST- Kongress	2023
	<ul> <li>Interessenten</li> <li>Direkte Ansprache interessierter Unternehmen</li> </ul>	CASCON CADFEM ANSYS Conference	2023
Veröffentlichung der	Ergebnisbereitstellung für	Jahresbericht IWS / HS	2022
Projektergebnisse	ein breites Publikum	Internetauftritt IWS / HS / IMH, Einbindung der Projektpartner	Nach Projektende
Aufnahme der Ergebnisse in die Lehre bzw. Durchführung von Bachelor-	Ausbildung der Studenten verschiedener Studienrichtungen	TU Dresden, IMH	Nach Projektende
und Masterarbeiten	Integration in die Lehre	TU Dresden	Nach Projektende

#### Einschätzung der Realisierbarkeit dieses Transferkonzeptes

Während der Laufzeit des Vorhabens konnte bereits eine Vielzahl der zum Projektbeginn geplanten Transfermaßnahmen umgesetzt werden, so dass sich dieses Transferkonzept durchaus als realisierbar erwiesen hat. Nach Projektende werden weitere Maßnahmen folgen.

### Danksagung

Das IGF-Vorhaben Nr. 20896 BG der Forschungsvereinigung Hahn-Schickard-Gesellschaft für angewandte Forschung e.V. wurde über die AiF im Rahmen des Programms zur Förderung der industriellen Gemeinschaftsforschung (IGF) vom Bundesministerium für Wirtschaft und Klimaschutz aufgrund eines Beschlusses des Deutschen Bundestages gefördert.

Die Forschungseinrichtungen, das Fraunhofer-Institut für Werkstoff- und Strahltechnik Dresden, die Hochschule Niederrhein und Hahn-Schickard Villingen-Schwenningen, möchten für diese Förderung und Unterstützung an dieser Stelle ausdrücklich danken.

Weiterhin bedanken sich die Forschungseinrichtungen bei den Mitgliedern des projektbegleitenden Ausschusses für deren Unterstützung während der Bearbeitung des Forschungsvorhabens durch die fruchtbaren Diskussionen und kritischen Anmerkungen bei der Planung des Projektes, in den Sitzungen des projektbegleitenden Ausschusses und bei den Arbeitstreffen in den Unternehmen und in den Forschungseinrichtungen. Besonderer Dank gilt den Unternehmen für die Materiallieferungen, sowie die Beistellung der Versuchsproben und - bauteile.

Die Mitglieder des projektbegleitenden Ausschusses waren (in alphabetischer Reihenfolge):

PA-Mitglied	Ansprechperson
AXO Dresden GmbH	Reiner Dietsch
Deutsche Nanoschicht GmbH	Prof. Dr. Michael Bäcker
Empa	Dr. Bastian Rheingans
Endress + Hauser GmbH + Co. KG	Daniel Sixtensson
Häcker Automation GmbH	Max K. Körner
Hugo Kern und Liebers GmbH & Co.	Heiko Müller
IL Metronic Sensortechnik GmbH	Dr. Christina Schütze
	Pavel Muravyev
IST AG	Yannick Barb
MAHLE International GmbH	Dr. Hans Heinrich Angermann
	Prof. Dr. Matthias Türpe
Mair Elektronik GmbH	Moritz Lanio
Micro-Hybrid Electronic GmbH	Steffen Biermann
	Andrea Bauer-Hohlfeld
	Annett Isserstedt-Trinke
Paroteq GmbH	Udo Hartwig
Reinert Enabling Technologies	Dr. Wolfgang Reinert
RWM GmbH	Dr. Uwe Weiß
SEHO Systems GmbH	Dr. Andreas Reinhardt
Siemens AG München	Axel Ganster
Sindlhauser Materials GmbH	Alfred Willer
	Dr. Rodrigue Ngoumeni
Team Nanotec GmbH	Samuel Kalt
VIA Electronic GmbH	Marc Bochard
	Thomas Herbst
	Dr. Uwe Krieger
WIKA Alexander Wiegand SE & Co. KG	Christian Lorenz
	Fabian Pfeifer
Würth Elektronik GmbH & Co. KG	Dr. Alina Schreivogel
ZF Friedrichshafen AG	Dr. Erwin Biegger

## Literatur

- [1] Optimierte reaktive Bondtechnologie auf der Basis neuartiger Zirkonium-Systeme für den Einsatz in der Mikrosystemtechnik (Join-ZiSi). AiF-IGF-Verbundvorhaben Nr. 21347 BG, Laufzeit: 01.09.2020 31.05.2023
- [2] Morgan Advanced Materials: Incusil(R) ABA(TM). Datasheet, 2018, abgerufen am: 12.08.2019
- [3] Jayaraman, S., Mann, A. B., Knio, O. M., van Heerden, D., Bao, G. u. Weihs, T. P.: Modeling Self-Propagating Exothermic Reactions in Multilayer Systems. MRS Online Proceedings Library 481 (1997), S. 563–568
- [4] Hardt, A. P. u. Phung, P. V.: Propagation of gasless reactions in solids—I. Analytical study of exothermic intermetallic reaction rates. Combustion and Flame 21 (1973) 1, S. 77–89
- [5] ANSYS, Inc. and ANSYS Europe: ANSYS Fluent Theory Guide. R1. 2020, S. 150–155
- [6] Salloum, M. u. Knio, O. M.: Simulation of reactive nanolaminates using reduced models: I. Basic formulation. Combustion and Flame 157 (2010) 2, S. 288–295
- [7] Salloum, M. u. Knio, O. M.: Simulation of reactive nanolaminates using reduced models: II. Normal propagation. Combustion and Flame 157 (2010) 3, S. 436–445
- [8] Salloum, M. u. Knio, O. M.: Simulation of reactive nanolaminates using reduced models: III. Ingredients for a general multidimensional formulation. Combustion and Flame 157 (2010) 6, S. 1154–1166
- [9] Vohra, M., Winokur, J., Overdeep, K. R., Marcello, P., Weihs, T. P. u. Knio, O. M.: Development of a reduced model of formation reactions in Zr-Al nanolaminates. Journal of Applied Physics 116 (2014) 23, S. 233501
- [10] Alawieh, L., Knio, O. M. u. Weihs, T. P.: Effect of thermal properties on self-propagating fronts in reactive nanolaminates. Journal of Applied Physics 110 (2011) 1, S. 013509-1 – 013509-14
- [11] ANSYS, Inc. and ANSYS Europe: ANSYS Fluent Customization Manual. R1, Canonsburg 2019
- [12] Rühl, J. M.: Prozessmodellierung von Reaktiv-Multischicht-Systemen (RMS), Technische Universität Dresden Dissertation 2015
- [13] Brands, T.: Aufbau und Inbetriebnahme einer Funkmessstrecke f
  ür die Temperaturmessung in einem Plasmaprozess, Hochschule Niederrhein Bachelorthesis. Krefeld 2020
- [14] SCHOTT Technical Glass Solutions GmbH: BOROFLOAT(R)33. Allgemeine Informationen, 2020. www.schott.com/borofloat
- [15] TE Sensor Solutions: ACCELEROMETER ACH-01. Specifications, 2017
- [16] Indium Corporation: NanoFoil(R). Product Data Sheet Form No. 98569 (A4) R4, 2021. https://www.indium.com/technical-documents/product-data-sheets/download/4810/, abgerufen am: 15.06.2022
- [17] DuPont: Green Tape 951 Low temperature ceramic system. Product description, 2011. www.mcm.dupont.com
- [18] KOA Corp.: KLC LTCC Multilayer Co-Fired Ceramics. Technical Data Sheet, 2020
- [19] DuPont: 6146 Pd/Ag Co-fire Conductor. Green Tape System, 1998
- [20] Hahn-Schickard: Modellbasiertes reaktives Fügen zur Erhöhung der Prozesssicherheit und -zuverlässigkeit (MoReBond). Projektbeschreibung. https://www.hahn-schickard.de/projektdetail/modellbasiertes-reaktives-fuegen-zur-erhoehung-der-prozesssicherheit-undzuverlaessigkeit

- [21] Schumacher, A., Folkmer, B., Knappmann, S., Dehé, A., Belguanche, A., Benachour, A., Farber, P., Desch, N., Lake, M., Pflug, E., Böttcher, J. u. Dietrich, G.: Modellierung und Simulation des reaktiven Fügeprozesses. 13. InnovationForum Smarte Technologien & Systeme. 2022
- [22] Belguanche, A., Schumacher, A., Desch, N., Benachour, A., Böttcher, J., Dietrich, G., Pflug, E., Spies, I., Meyer, P., Folkmer, B., Knappmann, S., Farber, P., Gräbel, J., Lake, M. u. Dehé, A.: Modellbasiertes Reaktives Fügen. Mikro-Nano-Integration. GMM-Fachbericht 105. Beiträge des 9. GMM-Workshops. VDE Verlag GmbH 2022, S. 81–86

Seite 82 des Schlussberichts zu IGF-Vorhaben 20896 BG

# Anhang

```
/* Anhang 1 */
#include "udf.h"
/*the atomic diffusion D, is assumed to follow the Arrhenius depence on the temperature */
DEFINE_INIT(Konz_ini, d)
{
cell_t c;
Thread *t;
double w=0.6e-9;
double delta=6e-9;
double Konz= 1-(w/delta);
thread_loop_c(t,d)
{
begin_c_loop_all(c,t)
{
       C_UDMI(c,t,1)=Konz;
}
end_c_loop_all(c,t)
}
}
DEFINE_ADJUST(Atomic_Diffusivity, d)
{
cell_t c;
Thread *t;
double D;
double D0= 2.18e-6;
double E= 137e3;
double R=8.314;
thread_loop_c(t,d)
{
       begin_c_loop(c,t)
        D=D0*exp(-E/(R*C_T(c,t)));
       C_UDMI(c,t,0)=D;
end_c_loop(c,t)
}
double delta=6e-9;
double physical_dt=RP_Get_Real("physical-time-step");
thread_loop_c(t,d)
begin_c_loop(c,t)
       if (C_UDMI(c,t,1) <= 0.5)
       {
       C_UDMI(c,t,2)=C_UDMI(c,t,1)-physical_dt*(C_UDMI(c,t,0)/(delta*delta))*2*C_UDMI(c,t,1);
       C UDMI(c,t,1)= C UDMI(c,t,2);
        C_UDMI(c,t,3)=physical_dt*(C_UDMI(c,t,0)/(delta*delta))*(1/(2*(1-C_UDMI(c,t,1))));
                       C_UDMI(c,t,11)= delta;
       }
       else
       C_UDMI(c,t,2)=C_UDMI(c,t,1)-physical_dt*(C_UDMI(c,t,0)/(delta*delta))*(1/(2*(1-
       C_UDMI(c,t,1))));
       C_UDMI(c,t,1) = C_UDMI(c,t,2);
       C_UDMI(c,t,3) = physical_dt^{(C_UDMI(c,t,0)/(delta^delta))^{(1/(2^{(1-C_UDMI(c,t,1))))})}
       C_UDMI(c,t,11)=2*delta*(1-C_UDMI(c,t,1));
```

```
}
       C_UDMI(c,t,12)=C_UDMI(c,t,11)/delta;
       end_c_loop(c,t)
}
double Konz_qua;
thread_loop_c(t,d)
{
begin_c_loop(c,t)
       if (C_UDMI(c,t,1)<= 0.5)
       ł
       Konz_qua=(4/3)*C_UDMI(c,t,1)*C_UDMI(c,t,1);
       }
       else
       {
       Konz_qua=(4*C_UDMI(c,t,1)-1)/3;
       }
       C_UDMI(c,t,8) = C_UDMI(c,t,4);
       C_UDMI(c,t,4)=Konz_qua;
       end_c_loop(c,t)
       }
  int T_0=300;
  double Rho_Al= 2700;
  double Cp_Al= 904;
  double Rho_Ni=8908;
  double Cp Ni=445;
  double AM Al=26.981539;
  double AM_Ni=58.6934;
  double A;
  double gamma;
  double Q;
  gamma= (Rho_Al*AM_Ni)/(Rho_Ni*AM_Al);
  A=((Rho_Al+gamma*Rho_Ni)/(1+gamma))*((Cp_Al+gamma*Cp_Ni)/(1+gamma));
thread_loop_c(t,d)
{
begin_c_loop(c,t)
                      Q=A*1660*C_UDMI(c,t,4);
                      C UDMI(c,t,9)=A;
                      C_UDMI(c,t,6) = C_UDMI(c,t,5);
                      C_UDMI(c,t,5)=Q;
              end_c_loop(c,t)
       }
}
DEFINE_PROPERTY(cell_thermal_conductivity_avg, c, t)
{
  double Rho_Al= 2700;
  double Rho Ni=8908;
  double AM Al=26.981539;
  double AM_Ni=58.6934;
  double k_Al=205;
  double k_Ni=91;
  double gamma;
  double k_avg;
```

```
double k konz;
  gamma= (Rho_Al*AM_Ni)/(Rho_Ni*AM_Al);
  k_avg= (k_Al+gamma*k_Ni)/(1+gamma);
  k_konz= ((k_avg-92)*C_UDMI(c,t,1))+92;
  C_UDMI(c,t,3) = k_konz;
  return k_konz;
}
DEFINE PROPERTY(cell density avg, cell, thread)
{
  double Rho_Al= 2700;
  double Rho Ni=8908;
  double AM_Al=26.981539;
  double AM_Ni=58.6934;
  double gamma= (Rho_Al*AM_Ni)/(Rho_Ni*AM_Al);
  double Rho_avg=(Rho_Al+gamma*Rho_Ni)/(1+gamma);
  return Rho_avg;
}
DEFINE_SPECIFIC_HEAT(cell_specific_heat, T, Tref, h, yi)
{
  double Rho_Al= 2700;
  double Cp_Al= 904;
  double Rho_Ni=8908;
  double Cp Ni=445;
  double AM Al=26.981539;
  double AM_Ni=58.6934;
  double cp;
  double gamma= (Rho_Al*AM_Ni)/(Rho_Ni*AM_Al);
       cp=(Cp_Al+gamma*Cp_Ni )/(1+gamma);
       *h = cp*(T-Tref);
       return cp;
}
DEFINE_SOURCE(energy, c, t, dS, eqn)
{
  int T_0=300;
  double Rho Al= 2700;
  double Cp_Al= 904;
  double Rho_Ni=8908;
  double Cp_Ni=445;
  double AM_Al=26.981539;
  double AM Ni=58.6934;
  double A;
  double gamma;
  double Sh;
  double physical_dt=RP_Get_Real("physical-time-step");
  gamma= (Rho Al*AM Ni)/(Rho Ni*AM Al);
  A=(Rho_Al*Cp_Al+gamma*Rho_Ni*Cp_Ni )/(1+gamma);
       Sh=((C_UDMI(c,t,6)-C_UDMI(c,t,5))/physical_dt);
       C_UDMI(c,t,10)=Sh;
       return Sh;
```

```
}
```

```
/* Anhang 2 */
#include "udf.h"
DEFINE_EXECUTE_AT_END(velocity)
{
       Domain *d;
       Thread *t;
       cell_t c;
       d = Get_Domain(1);
       real X[2];
       double max_x = 0;
    double S_max=0;
       double Smax=0;
       thread_loop_c(t,d)
       {
               begin_c_loop(c,t)
               {
                      if(C_UDMI(c,t,10)> S_max)
                      {
                              S_max= C_UDMI(c,t,10);
                              C_CENTROID(X,c,t);
                              if(X[0] > max_x)
                              {
                                     max_x = X[0];
                              }
                      }
               }
               end_c_loop(c,t)
       }
       FILE * out;
       out = fopen("velo.out", "a");
       Smax = PRF GRHIGH1(S max);
       if (Smax==S_max && max_x>0)
       fprintf(out, "%e %e %e\n", CURRENT_TIME, max_x, max_x / (double)CURRENT_TIME);
       fclose(out);
}
DEFINE_EXECUTE_AT_END(velocity1)
{
       Domain *d;
       Thread *t;
       cell_t c;
       d = Get_Domain(1);
       real X[2];
       double xo;
       double xu;
       double xa;
       double xf;
       double physical_dt=RP_Get_Real("physical-time-step");
       thread_loop_c(t,d)
       {
```

```
begin_c_loop(c,t)
       {
                       C_CENTROID(X,c,t);
                       xo += X[0]* C_UDMI(c,t,10);
                       C_UDMI(c,t,17) = xo;
                       xu += C_UDMI(c,t,10);
                       C_UDMI(c,t,18) = xa;
                       xa = xo/xu;
                       C_UDMI(c,t,16)= C_UDMI(c,t,15);
                       C_UDMI(c,t,15)=xa;
                       xf= (C_UDMI(c,t,15)-C_UDMI(c,t,16));
       }
       end_c_loop(c,t)
}
FILE * out;
out = fopen("velo2.out", "a");
if (xf>0)
fprintf(out, "%e %e %e %e \n", CURRENT_TIME, xa, xf, xf/physical_dt);
fclose(out);
```

```
}
```