

平成30年6月27日現在

機関番号：13601

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K06460

研究課題名(和文) コールドスプレー法によるセラミック基板上への金属薄膜作製のための技術開発

研究課題名(英文) Development of technology for fabrication of metal thin coating on ceramic substrates by cold spray method

研究代表者

榊 和彦 (SAKAKI, Kazuhiko)

信州大学・学術研究院工学系・教授

研究者番号：10252066

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：パワーモジュールの基板と回路の接合で、高い信頼性と製造プロセスの簡素化のため、コールドスプレー法によるセラミック基板と銅回路の直接形成技術を開発した。すなわち、銅皮膜とセラミック基板の間に薄いアルミニウムの下地層の形成によって接合性を改善し、薄く平坦な金属皮膜作製のための技術開発と接合メカニズムの解明を行った。

(1) 数値シミュレーションと実験より、効率的な成膜パターン化のための矩形断面ノズルを開発した。(2) 酸化アルミより窒化アルミの基材の方がアルミニウム皮膜との密着力が高い要因は、非晶質層を介した結合と、基材と皮膜のアルミニウム原子の金属結合の格子不整合が小さいことに起因することを示唆した。

研究成果の概要(英文)：In order to achieve higher reliability and simplification of the manufacturing process at the junction of the power module substrate and circuit, we developed the technology of directly forming the ceramic substrate and the copper circuit by the cold spray method.

Specifically, a thin aluminum bond layer was formed between the copper coating and the ceramic substrate to improve the bondability. For that purpose, we developed technologies for thin and flat metallic coatings and further clarified the mechanism of joining. (1) Numerical simulation and experiments have been conducted to develop rectangular cross-section nozzles for efficient deposition patterning, (2) It was suggested that the reason why the aluminum nitride base material has a higher adhesion to the aluminum coating than the alumina substrate is that the bond through the amorphous layer and the lattice mismatch of the metal bond between the base material and the aluminum atom of the coating are relatively small.

研究分野：材料加工

キーワード：機能性複合材料 コールドスプレー セラミック基板 金属皮膜 パワーモジュール 異種材接合

1. 研究開始当初の背景

近年、電気鉄道、ハイブリット/電気自動車やロボットなどに使用されるモーター等の産業機器の高性能化に伴い、それらの制御機器として、大電流、高性能インバーターなどの大電力モジュールへの変遷が進み、半導体素子から発生する熱も増加の一途をたどっている。この熱を効率よく放散させるためセラミック基板と銅回路の接合は、アルミナ基板上に銅回路を直接接合する直接接合法 (DBC 法) から、より放熱特性のよい窒化アルミニウム基板にろう材で接合する活性金属接合法 (AMB 法) が開発され、主流になってきた。さらにより高い信頼性が求められ機械的強度の優れた銅回路窒化ケイ素基板が開発された。しかしながら、AMB 法は Ag-Cu 系のろう材を用いるため 800 程度の高温で処理が必要で、機械的強度の低い拡散層や銅板とセラミック板との間で熱応力が生じるなどの問題があり、より高い信頼性を得られないでいる。

2. 研究の目的

そこで、低温プロセスである新しいコーティング技術であるコールドスプレー (Cold Spray, 以下 CS 法という) 法によるセラミック基板に銅回路を直接形成する技術開発を行う。CS 法は、図 1 に示す金属、樹脂、サーメットなどやそれらの混合物の微粒子 (数  $\mu\text{m}$  ~ 50  $\mu\text{m}$  程度) を、材料粒子の融点よりも低温 (室温 ~ 1000 程度) の超音速ガス流により加速・加熱して高速 (約 100m/s ~ 約 1000m/s) で金属やセラミックスなどの基材に衝突させて成膜させる技術である。

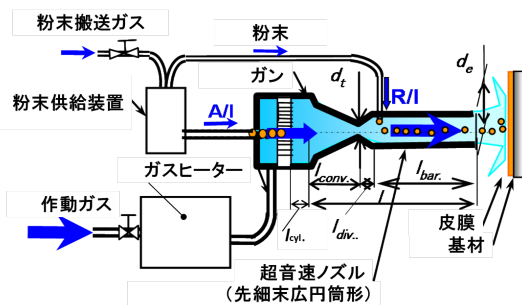


図 1 コールドスプレー法の概略

ガス温度は、図 1 のノズル入口部では高温であるが超音速化するためノズル末広部で膨張して温度が下がり、粒子や基材は高々 250 程度の温度であり、ろう接のような高温にはならない。さらに、CS 法は成膜速度が格段に高く、数十  $\mu\text{m}$  の薄膜から数 cm の厚膜や成形体の作製も可能で、かつ大気中で行うため生産性が優れ、電機・電子部品、自動車や航空宇宙機器、インプラント等の部材への適用も期待され、海外においては軍用航空機の部材の補修、国内外においてもスパッタのターゲットなどで実用事例も増えている。

しかしながら、研究代表者らのこれまでの研究で、CS 法の銅皮膜とセラミック基材との密着力が低いことを示してきた。そこで、文献『Reaction layer at the interface between aluminum particles and a glass substrate formed by cold spray』ではガラス基板でアルミニウムの金属のみが強固な接合し、それが TEM 観察結果より、酸素を含む中間層が形成されて、またその形成には粒径依存性があることを示した。よって、セラミック上に中間層を形成できる可能性の高いアルミニウムの薄い下地層を成膜して、その上に銅皮膜を形成することで解決を図る。

本研究では、これら課題の解決のため以下を研究目的とする。

- (1) 微粉末の安定供給、噴出技術の開発
- (2) 効率的な成膜パターン化のための適正な矩形断面ノズルの開発
- (3) CS 法によるパワーモジュール用セラミック基材上への信頼性の高い銅パターンの直接形成を行い、その接合メカニズムを明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 微粉末の安定供給、噴出技術の開発  
 局部流動床方式粉末供給装置を高圧仕様 (1MPa) にして購入し、信州大学で試作・開発した CS 装置に接続し、金属粉末を使用して成膜実験を行い、皮膜の付着率や組織などを評価する。

(2) 効率的な成膜パターン化のための適正な矩形断面ノズルの開発

これまでの研究成果から先細末広ノズル (矩形断面) で軸方向粉末投入が、粉末の付着率が高く、スプレーパターンがより均一であることがわかっている。よって、さらに作動ガス圧力に適した矩形断面の寸法およびノズル各部長さ (図 1  $l_{div}$ ,  $l_{conv}$ ) などの最適化を数値シミュレーション (ANSIS FLUENT: CFD) でを行い、その後、ノズルを製作し、成膜を行い、皮膜の付着率や組織、スプレーパターンなどを評価する。

(3) セラミック基材上への金属皮膜の直接形成と接合のメカニズムの解明

従来の CS 装置にて、パワーモジュール用セラミック ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{AlN}$ ) 基材上への Al ボンドコート (BC) の薄膜の形成を行い、さらにその Al 皮膜上に膜厚の異なる Cu 皮膜を形成する。まずは AIBC の密着力を評価する。また、CS 皮膜で重要となる基材との密着状態は、TEM などによる観察・評価を行ない、特にセラミック基材と Al 皮膜の接合メカニズムの解明を主眼に行なう。特に、セラミック基材の材質により密着力の差異を確認する。また、基材の結晶構造については、X 線回折装置および結晶構造可視化ソフトウェア VESTA を用いて検討した。

#### 4. 研究成果

(1) 微粉末の安定供給，噴出技術の開発  
 図2 (a)に購入した高圧仕様(1MPa)の局部流動床方式粉末供給装置(テクノサブ株式会社)を示す。この装置を用いて，図1の軸方

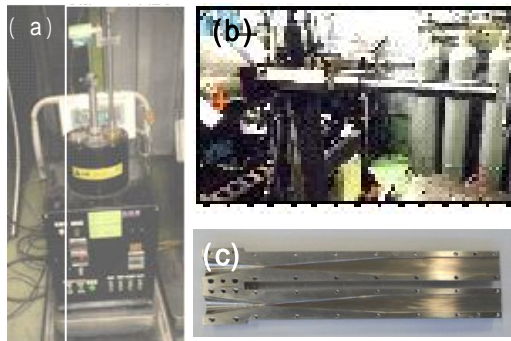


図2 (a) 高圧仕様(1MPa)の局部流動床方式粉末供給装置，(b) 試作した矩形断面ノズルを備えたコールドスプレースプレーガン，(c) 二つ割れの矩形断面先細末広平行ノズルの内面 ( $L_{div.}$  100 mm -  $L_{para.}$  100 mm)

向からの粉末投入(A/I)が圧力不足で困難であったが，半径方向投入(R/I)では3~4MPaのノズル入口部ガス圧でも，粉末が供給できることが分かった。

(2) 効率的な成膜パターン化のための適正な矩形断面ノズルの開発

数値シミュレーション(ANSIS FLUENT)によるCFD解析結果 銅粒子に対しては，ガス条件(窒素ガス，3MPa，350 )で，のど部断面積と末広部の断面積比(膨張比)が11.2(2×18 mmの矩形断面)で粒子速度が最大となり，さらに，図3に示すように末広部と平行部の長さ( $L_{div.}$  -  $L_{para.}$ )が100-100 mmから140-60 mm付近で銅粒子が速度が分布が比較的均一で，速度も高いことが分かった。

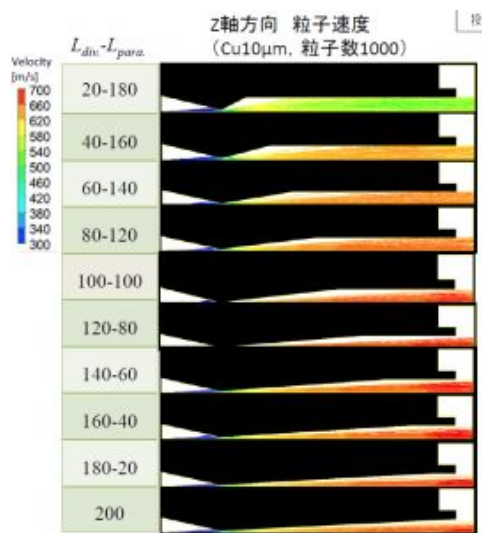


図3 銅粒子速度に及ぼす矩形断面ノズルの末広部と平行部の長さのCFD解析結果

成膜実験による結果 CFDの結果をもとに，3種のノズル(100-100, 140-60, 180-20 mm)を試作し，成膜実験を行った結果を図4に示す。

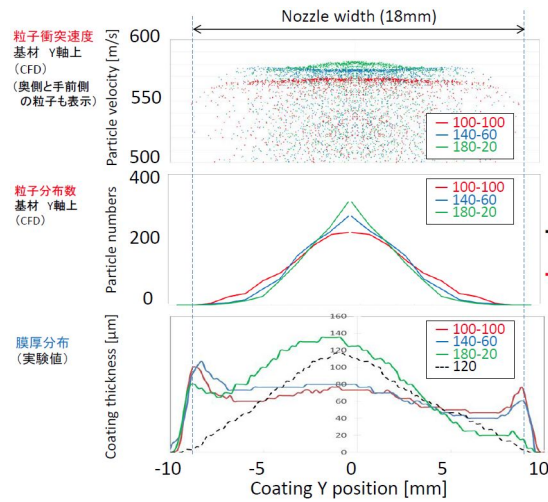


図4 CFDによる銅粒子の速度分布と銅皮膜膜厚分布

図4より矩形断面ノズルの末広部長さが長くなるとCFD結果のノズル中心部の銅粒子速度が高く不均一になり，成膜実験でも同様の結果となった。すなわち，ノズル末広部と平行部が100-100 mmのノズルは粒子速度は570m/s程度に下がるが，粒子の分布も均一で平坦な銅皮膜パターンが得られた。

<引用文献> 後述の学会発表

(3) セラミック基板上への金属皮膜の直接成形とアルミニウム皮膜とセラミックの接合のメカニズム解明  
 密着力と皮膜断面観察

セラミック( $Al_2O_3$ , AlN)基板上へのAlボンドコート(BC)の形成した密着力は， $Al_2O_3$ 基板の方が表面粗さ $Ra=0.18 \mu m$ と粗いが密着力は20MPaであるが，AlN基板は $Ra=0.09 \mu m$ であったが44MPaと高い密着力を示した。TEM観察の結果，AlN基板とAl皮膜間には，図5に示すようにアモルファス層が観察されたが，一方，図示しないが

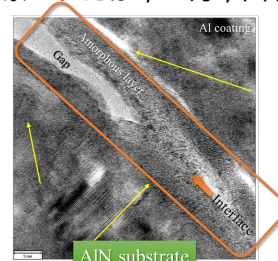


図5 AlN基板とAl皮膜間のTEM観察像

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 基板と Al 皮膜間には、観察用サンプル作成時に隙間が生じており、密着力が低いことを裏付けていた。

また、AlN 基板に AlBC を作製し、さらにその上に Cu 皮膜を被覆した密着力は、60MPa と高く、実用上問題ないレベルにあることが確認できた。

基材と Al 皮膜の結晶構造による解析

X 線回折試験の結果より、AlN 板はウルツ型構造、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 板はコランダム型構造、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 板は -Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 型構造であった。したがって、AlN 板の Al 原子とスプレーされた Al 粒子が金属結合する場合は約 8% の格子不整合が生じ、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 板と Al 粒子では約 15% の格子不整合が生じる。よって、AlN 板のほうが Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 板よりも密着力が高い結果が得られているが、この結果は基材の結晶構造に起因する可能性が示された。また、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> 板は、(321)面や(141)面のように 20% 以上の格子不整合が生じる格子面と、(210)面や(200)面のように、格子不整合が 2% ほどしか生じない格子面が混在しており、AlN 基材上の皮膜と比較して密着力が低くなった要因であると推察される。

以上の結果より、AlN 基板と Al 皮膜間の密着のメカニズムは、アモルファス層を介した化学的な結合または AlN 板の Al 原子と皮膜の Al 粒子が金属結合する場合は示唆された。

今後、より元素分析などを行い、接合のメカニズムを解明し、CS によるセラミック基板と金属皮膜のより信頼性の高い密着が得られる方策を検討したい。

<引用文献> 後述の学会発表

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表](計 10 件)

飯島清貴、榊和彦、傳田直史、低圧型コールドスプレーによるセラミックス基板上のアルミニウム皮膜の密着力に及ぼす基板予熱温度の影響、日本機械学会 北陸信越支部学生会 第 47 回学生員卒業研究発表講演会、2018

榊和彦、荒井晋治、高圧コールドスプレーにおける銅粒子の挙動に及ぼす矩形断面先細末広ノズルの長さとの粒子径の影響に関する数値シミュレーション、日本溶射学会第 106 回(2017 年度秋季)全国講演大会、2017

榊和彦、荒井晋治、高圧コールドスプレーによる銅皮膜の溶射パターンに及ぼす矩形断面ノズル形状の影響(CFD と実験によるノズル末広部と平行部長さの比の影響)、2017 年度日本機械学会年次大会、2017  
荒井晋治、榊和彦、高圧コールドスプレーによる銅皮膜の溶射パターンと皮膜組織

に及ぼす矩形断面ノズル形状の影響(ノズル末広部と平行部長さの比の影響)、一般社団法人 日本溶射学会第 104 回(2016 年度秋季)全国講演大会、2016  
榊和彦、近藤太郎、傳田直史、界面の観察からみたコールドスプレーアルミニウム皮膜の密着力に及ぼすセラミック基材材質の影響、日本金属学会 2016 年秋期講演大会、2016

K. Sakaki, S. Arai and T. Tagami, Influence of Position of Spray Pattern on Calculated Results of Gas Stream and Copper Particle with the Rectangular Cross-Section Nozzle of High-Pressure Cold Spraying, The 10th Asia-Pacific Conference on Fracture and Strength, APCFS2016, 2016

榊和彦、荒井 晋治、田上 達之、高圧コールドスプレーにおける矩形断面ノズルの形状の最適化(流れと銅粒子に及ぼすノズル末広部長さと平行部長さの比の影響)、2016 年度日本機械学会年次大会、2016。

K.SAKAKI, S.ARAI and T.TAGAMI, Influence of Length of Divergent and Parallel Section of the Rectangular Cross-Section Nozzle on Behavior of Particles of Copper in High-Pressure Cold Spray, International Thermal Spray Conference 2016

榊和彦、近藤太郎、傳田直史、コールドスプレーによるアルミニウム皮膜の密着力に及ぼす各種セラミック基材の結晶構造の影響に関する検討、日本金属学会 2016 年春期講演大会(第 158 回)大会、2016

榊和彦、荒井晋治、田上達之、高圧コールドスプレーにおける矩形断面ノズルの形状の最適化(ノズル末広部と平行部の長さの比の影響)、日本機械学会北陸信越支部第 53 期総会・講演会、2016

[図書](計 3 件)

監修：中田一博、桐原聡秀、著者：榊和彦ほか 9 名、日本溶接協会、多次元アディティブ・マニファクチャリング、2018、188 ページ

監修 沖幸男、上野和夫、著者 榊和彦ほか 56 名、日本溶射学会、溶射工学便覧(改訂版)、2017、984 ページ

Editor : Roman Gr. Maev and Volf Leshchynsky, Contributors: K.Sakaki et al., 7 people, Cold Gas Dynamic Spray, CRC Press, 2016, 334.

[その他]

ホームページ等

<http://www.mech.shinshu-u.ac.jp/laboratories/e/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

榊 和彦 (SAKAKI, Kazuhiko)  
信州大学・学術研究院工学系・教授  
研究者番号：10252066

### (3) 連携研究者

黒田 聖治 (KURODA, Seiji)  
独立行政法人物質・材料研究機構・先進高温材料ユニット・ユニット長  
研究者番号：50354220

長谷川 明 (HASEGAWA, Akira)  
独立行政法人物質・材料研究機構・表界面構造・物性ユニット・主幹研究員  
研究者番号：20354326

### (4) 研究協力者

傳田直史 (DENDA, Naofumi)  
長野県工業技術総合センター・材料技術部門・金属材料部・技師  
研究者番号：なし