

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 5 月 28 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01636

研究課題名（和文）ポーラスインサート材を用いた自発的液相浸透接合法の開発

研究課題名（英文）Development of spontaneous liquid phase infiltration bonding using porous interlayer

研究代表者

福本 信次（Fukumoto, Shinji）

大阪大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：60275310

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 12,200,000円

研究成果の概要（和文）：次世代パワー半導体のための新しいダイボンド法として、液相浸透接合を開発した。粉末冶金法によって作製した銀および銅のポーラスインサート材に、毛細管圧力を駆動力として各種の錫合金を溶浸させ、低温・短時間・低接合荷重の条件で銅同士を接合した。ポーラス銀は溶融錫と反応し、Ag<sub>3</sub>Sn単相の接合層が得られた。一方、ポーラス銅を用いた場合には、銅と金属間化合物が双ネットワーク構造を有する接合層が得られた。この接合層は熱伝導性に優れた銅が連結した構造であるため、その熱伝導率ははんだ合金の2倍以上であった。ポーラス銀および銅のいずれのインサート材を用いた場合でも、約50MPaのせん断強度を有する継手が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究によって開発した液相浸透接合によって、低温、短時間かつ低接合荷重の条件下で銅同士が接合できることが明らかになった。連続孔を有する多孔質材には溶融金属が毛細管現象によって自発的に浸透する。毛細管圧力を駆動力とした接合方法であり、多孔質体の構造および材質、また浸透材料の種類との組み合わせで様々な物理的性質を接合層に付与できることが従来の接合法とは異なる。半導体産業は下工程である接合技術がなければ成り立たない。本接合法は次世代パワー半導体のダイボンド法として期待できるため、カーボンニュートラル社会の実現に役立つ技術となり得る。

研究成果の概要（英文）：Liquid-phase infiltration bonding has been developed as a new die bonding method for next-generation power semiconductors. Copper-to-copper bonding was achieved under low temperature, short time, and low bonding load conditions due to capillary pressure as the driving force to infiltrate various tin alloys into silver and copper porous insert materials fabricated by powder metallurgy. Porous silver reacted with molten tin to produce an Ag<sub>3</sub>Sn single-phase bonding layer. On the other hand, when porous copper was used, a bonding layer with a co-network structure of copper and intermetallic compounds was obtained. The thermal conductivity of this bonding layer was more than twice that of the solder alloy because of the interconnected structure of copper, which is an excellent thermal conductor. Joints with shear strengths of approximately 50 MPa were obtained with both porous silver and copper insert materials.

研究分野：溶接工学

キーワード：ダイボンド 液相浸透接合 毛細管現象 固液反応 多孔質体 微細組織 銅 すず合金

## 様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

自動車の電動化は避けられない情勢であり、日本、米国ならびに中国を中心にその開発に注力している。電気自動車の根幹技術の一つが電力制御のためのパワーデバイスである。現在はまだ Si 半導体が市場の中心であるが、高周波用途に GaN、大電流・高耐圧用途に SiC の次世代半導体に置き換わろうとしている。しかしながら、これらの次世代半導体の実用化についてはその足回り技術、特に半導体チップと基板との接合技術(ダイボンド)が追いついていないのが現状である。ダイボンドのプロセス条件には温度、荷重、材料、雰囲気など制約が多く、また接合部には高放熱性、高耐熱性、低電気抵抗、耐温度サイクル性などが求められる。現在の選択枝は高温鉛はんだ、ナノ粒子焼結接合、液相拡散接合などであるがどれも一長一短である。信頼性の高い次世代パワー半導体のダイボンド技術を確立すれば、電力制御を必要とするあらゆる分野への展開が可能となる。そこで本研究では新しいダイボンド技術としてポーラスインサート材を用いた自発的液相浸透接合プロセスの開発を目指す。

### 2. 研究の目的

現在、一部実用化されている金属ナノ粒子を用いた焼結接合においては、粒子同士の焼結を低温で進行させ、いかに充填率の高い焼結体を作製するかに重点を置いた材料開発が行われてきた。しかし、充填率を増加させるためには接合時に長時間の荷重負荷が必要となり、薄化が進む SiC チップの接合には好ましくない。これはナノ粒子接合においては「焼結層=接合層」であるため焼結プロセスと接合プロセスを同時に進行させなければならないからである。本研究では、接合層の骨格構造(ポーラス構造体)を焼結、圧粉等のプロセスで別途作製し、それをインサート材として接合時に液相を自発的に浸透させることで短時間かつ低荷重で接合を行う点に独自性がある。

本研究の主な目的は、(i) 多孔質(ポーラス)構造を有するインサート層の材料設計と作製、および(ii) 溶融金属の自発的浸透現象を活用した接合法の開発である

### 3. 研究の方法

#### (1) 供試材料とポーラス体の作製法

被接合材料は無酸素銅棒および板を用いた。接合面 10% 塩酸溶液で酸洗浄後、アセトンで脱脂した。浸透材料として、Sn-58Bi ソルダペースト(融点 139 °C)、Sn-3.0Ag-0.5Cu ソルダペースト(融点 217 °C) および Sn-8Zn-3Bi ソルダペースト(融点 196 °C) を用いた。また銅とぬれ性に優れた Sn-37Pb ソルダペースト(融点 183 °C) も参照材料として用いた(いずれも mass%)。以降これらを Sn-Bi ペースト、SAC ペースト、Sn-Zn-Bi ペーストおよび Sn-Pb ペーストと記す。

ポーラス Ag シートを作製するために Ag 粒子(平均粒径 2 $\mu$ m) を出発材料として用いた。Ag 粒子を有機溶媒と混合して Ag ペーストを形成し、厚さ 150 $\mu$ m のステンシルマスクを用いてガラス板に印刷し、温度を 300~500°C、焼結時間を 1.0~3.6 ks と変化させて大気雰囲気中で焼結した。また、ポーラス Cu 作製の出発材料として Cu 粉末(平均粒径 10 および 20  $\mu$ m) を用いた。Cu 粉末と有機溶媒を混合した銅ペーストを銅板上にマスク印刷し、真空雰囲気下で 500~800°C で 3.6 ks 保持し、焼結した。

#### (2) 液相浸透接合法

銅棒と銅板の接合のセットアップの模式図を Fig.1 に示す。ポーラスインサート層の 4 隅に各種ソルダペーストをそれぞれマスク印刷し、その中心に銅棒を治具で固定した。接合温度は 220~250°C、接合時間は 10~3600 s と変化した。

接合部は電子顕微鏡観察ならびにせん断試験によってそれぞれ微細組織ならびに継手強度の評価を行った。

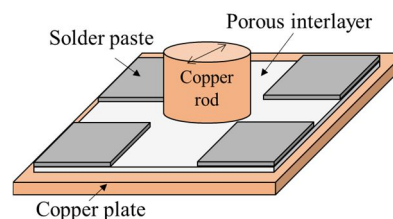


Fig. 1 液相浸透接合の模式図

### 4. 研究成果

#### (1) ポーラス体の構造評価とソルダの浸透性

代表的な Ag 粉末および Cu 粉末の焼結体の断面写真を Fig.2 に示す[1, 2]。Ag 粉末および Cu 粉末の焼結体は多くの空隙を含むポーラス構造を有していた。焼結温度および時間の増加に伴いネッキング形成が進行した。空孔率は焼結条件に依存し、ポーラス Ag の空孔率は約 5~24%、ポーラス Cu の空孔率は約 14~22%であった。Fig.2 で示した Ag および Cu 焼結体の空孔率ならびに

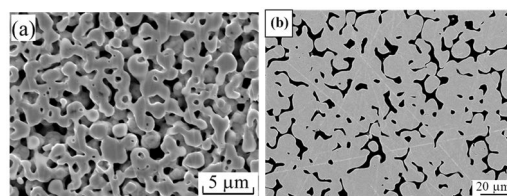


Fig. 2 焼結体の断面組織, (a)Ag, (b) Cu [1,2]

細孔径はそれぞれ、24vol%,  $\phi 0.9 \mu\text{m}$  および 14vol%,  $\phi 4.8 \mu\text{m}$  であった。液相浸透接合を実現するためには、ポーラス体はオープンセル構造である必要がある。そこで作製した焼結体における溶ダペーストの浸透性を評価した。Fig. 3 は溶ダペーストを載せたポーラス Cu の加熱後の外観写真を示したものである [3]。Sn-Bi, Sn-Pb および SAC ペーストはポーラス Cu に溶浸した。すなわち、Fig. 2b に示したポーラス Cu はオープンセル構造であることが示された。一方、Sn-Zn-Bi ペーストは溶浸せずにポーラス Cu 上にそのまま残存した (Fig. 3d)。また 240 での浸透実験も同様に Sn-Zn-Bi は溶浸せず、残り 3 つはすべて溶浸した。ここで、毛細管中の液体のメニスカスに作用する毛細管圧力  $P$  は式 (1) で表されることが知られている。

$$P = \frac{2\gamma_{LV} \cos \theta}{r} \quad (1)$$

( $r$ : 毛細管半径,  $\theta$ : 接触角,  $\gamma_{LV}$ : 液体の表面張力)

この式を用いてそれぞれ溶ダペーストのポーラス銅中の空隙における毛管圧力を算出した結果を Table 1 に示す。毛細管半径  $r$  にはポーラス銅空隙の円相当径  $4.8 \mu\text{m}$  の 1/2 の値を用いた。毛細管圧力は Sn-Pb が最も大きく、SAC, Sn-Bi, Sn-Zn-Bi の順番に小さい値となった。毛細管圧力が最も小さい Sn-Zn-Bi がポーラス Cu に浸透しなかったことから、本系における浸透の駆動力は毛細管圧力であると考えられる。また、粉末冶金法で作製したポーラス Cu はオープンセル構造を有していることが明らかになった。同様にポーラス Ag に対しても SAC ペーストは速やかに浸透し、オープンセル構造であることが示された。以降、これらのポーラス体をインサート材とし、銅同士の液相浸透接合を実施した。

## (2) 液相浸透接合

ポーラス Ag インサート材を用いた液相浸透接合

粉末焼結で作製したポーラス Ag をインサート材として SAC ペーストを接合面の外部から浸透させて銅同士を接合した。250 で接合したときの接合層の二次電子像を Fig. 4 に示す [1]。250 での保持時間が 0s の接合部でさえ、ポーラス層内のほとんどの空隙は浸透してきた溶融 SAC によって充填されていた。Ag は溶融 SAC と反応することで  $\text{Ag}_3\text{Sn}$  となり、接合層は  $\text{Ag}_3\text{Sn}$  と残留 SAC (C 点) で構成されていた。接合時間の増加とともに接合層は  $\text{Ag}_3\text{Sn}$  単相構造となった。また母材の Cu とインサート材は  $\text{Cu}_6\text{Sn}_5$  を介した接合となっていた。この界面に生成する Cu-Sn 系金属間化合物 (IMC) は接合時間および接合温度の増加とともに厚くなった。接合界面のせん断強度を Fig. 5 に示す [1]。接合温度が 250 の場合、接合時間の増加とともに強度は増加し、接合時間 60s で最大せん断強度 46 MPa に達した。接合温度 300 では、接合時間の増加とともに接合強度は低下した。接合時間および温度が増加すると、過剰な量の IMC が Cu/接合層界面に成長し、強度が低下することがわかった。

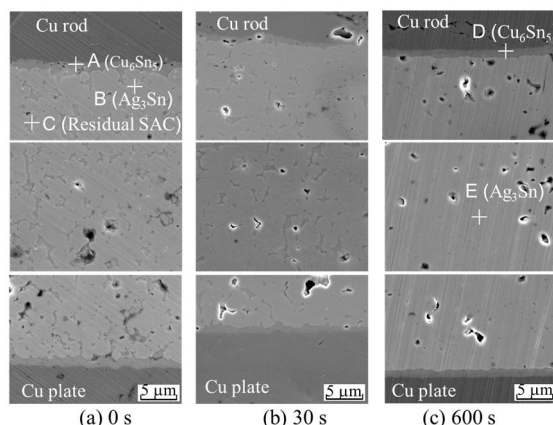


Fig. 4 ポーラス Ag インサート材を用いた液相浸透接合部の断面微細組織 (接合温度: 250) [1]

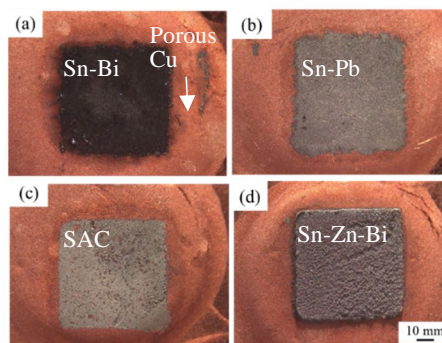


Fig. 3 220 /60 s 加熱後のポーラス銅上の溶ダペーストの外観。(a)Sn-Bi, (b)Sn-Pb, (c)SAC, (d)Sn-Zn-Bi. [3]

Table 1 220 における各合金の毛細管圧力の概算値 (孔径  $4.8 \mu\text{m}$ )

Solder	Capillary pressure: $P$ (kPa)
Sn-Bi	254
Sn-Pb	381
SAC	373
Sn-Zn-Bi	234

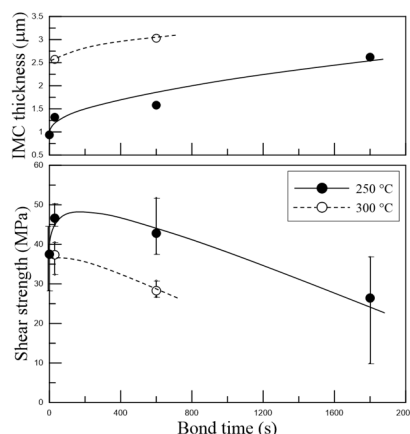


Fig. 5 ポーラス Ag インサート材を用いた Cu-Cu 液相浸透接合界面のせん断強度と接合層/Cu 母材界面の金属間化合物厚さ [1]



ポラス銅インサート材を用いた液相浸透接合

銅粉末を焼結して作製したポラス銅をインサート材とし、種々の Sn 合金ペーストを浸透することで銅同士を接合した。Fig. 6 は 220 °C で接合を行った接合層の上接合界面（銅棒/ポラス銅）および下接合界面（ポラス銅/銅板）近傍の微細組織を示したものである [3]。ポラス銅/銅棒の上界面およびポラス銅内部のほぼすべての空隙部にソルダが浸透していた (Figs. 6a, 6c, 6e)。一方、銅ペーストを銅板上で焼結しているため、ポラス銅/銅板の下界面では銅と銅が焼結により直接接合しており、銅/銅および銅/浸透材界面で構成されていた (Figs. 6b, 6d, 6f)。空隙であった場所に浸透した溶融 Sn 合金中に銅が溶解し、固液反応によって形成した IMCs が浸透相に認められた。接合層の内部はポラス銅の骨格が維持されており、生成した IMC と双ネットワーク構造を有していた。浸透材の合金種によって浸透相の組織は異なっていた。

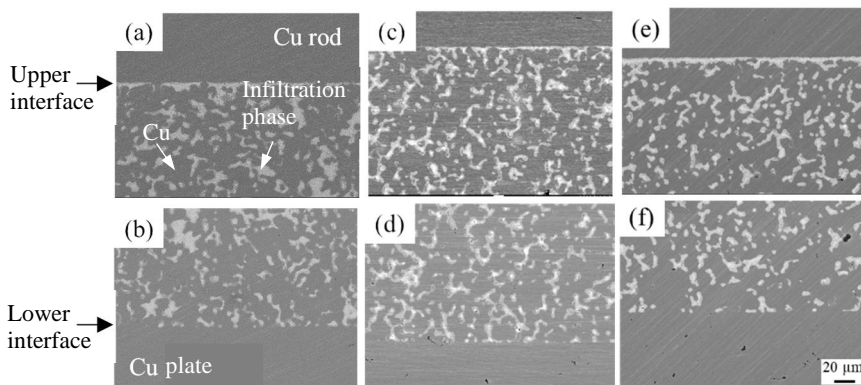


Fig. 6 ポラス Cu インサート材を用いた銅同士の接合部断面微細組織 (a)(b)Sn-Bi ペースト浸透, (c)(d)Sn-Pb ペースト浸透, (e)(f)SAC ペースト浸透. 接合温度 220 °C [3]

浸透材料が Sn-Bi および SAC の場合の浸透相の詳細を Fig. 7 に示す[3]。どちらのソルダを浸透させた場合も、銅と浸透材料の界面には溶融浸透した Sn 合金液相と銅が反応して生成した Cu-Sn 系 IMC が認められた。Sn-Bi ペーストの場合、空隙だった箇所を中心部付近に Bi リッチの相 (点 A) が認められた。Sn-Bi 合金は 139 °C で溶融し、浸透を開始する。Sn-58Bi 組成の液相が空隙中を浸透する過程で銅が溶解し、Cu-Sn 系 IMC を形成することで液相の Sn 濃度が減少する。それによって昇温中あるいは 220 °C 保持中に Bi が晶出し、(Bi + Sn-Bi 共晶) の微細組織となったと考えられる。SAC ペーストの場合、接合温度 220 °C において、接合層内の IMC は  $Cu_6Sn_5$  が支配的であり、その中心部に Sn リッチな相が認められた (点 B)。これは固液反応によって消費されなかった残留 SAC 液相である。また、一部にわずかではあるが  $Ag_3Sn$  の晶出も認められた。

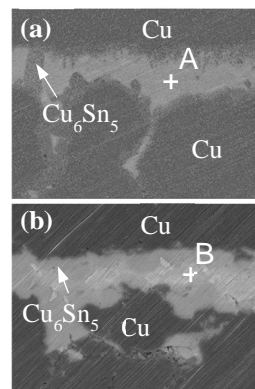


Fig. 7 上界面近傍の微細組織。(a)Sn-Bi ペースト浸透, (b)SAC ペースト浸透 接合温度: 220 °C [3]

ポラス銅インサート材を用いて液相浸透接合をした場合の接合界面せん断強度を Fig. 8 に示す[3]。破断は全て上界面（銅棒/ポラス層）で生じた。SAC ならびに Sn-Pb ペーストを浸透させた場合、40-60 MPa 程度のせん断強さが得られた。これはナノ粒子焼結や液相拡散接合に匹敵する強度である。一方、浸透材料が Sn-Bi ペーストの場合は、10 MPa 以下の低強度であった。これは、Fig.7a に示したように、破断箇所である上界面を支配している相が Bi リッチであるためと考えられる。

および Fig. 8 に示したようにオープンセル構造のポラス Ag, ポラス Cu をインサート材として用い、Sn 合金ソルダペーストを浸透させることで低温、短時間かつ低荷重で銅同士の接合が可能であることが示された。ただし、ポラス体材料やその骨格構造、また浸透材料との組み合わせ次第で接合層の相構成が異なった。Ag は溶融 Sn 中への溶解速度が大きいいため、浸透する溶融 Sn 中にほとんどの Ag が溶解し、接合後には  $Ag_3Sn$  単相の接合層が得られた。それに対してポラス Cu インサートを用いた液相浸透接合においては、溶融 Sn 浸透後も Cu は接合前の骨格構造を維持していた。これは Cu の溶融 Sn に対

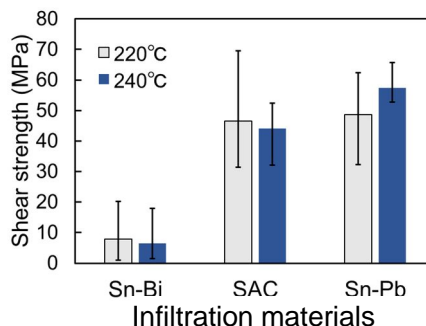


Fig. 8 ポラス Cu インサート材を用いた Cu-Cu 液相浸透接合界面のせん断強度 [3]

する溶解速度が Ag よりも小さく[4]，また本研究で作製したポーラス Cu の骨格（セル壁）が太かったためと考えられる．その結果，Fig. 6 で示したように Cu 相が IMC 相に分断されることなく連結したネットワーク構造が得られた．Cu 相の分布状態は接合層の電気および熱伝導を左右するため，連結していることが望ましい．本研究における一例を挙げると，接合層内の Cu ネットワークの体積含有率が 42.5% のとき，接合層は 130W/mK の熱伝導率を示した．この値は SAC の熱伝導率の 2 倍以上である．溶融 Sn の毛細管現象を利用した類似の接合法として，Cu 圧粉体に Sn を用浸させるダイボンドが報告されているが[5]，接合層は Cu 粒子分散 IMC の構造となっており，熱・電気伝導性の点からは望ましい微細組織ではない．

本研究において開発した液相浸透接合はポーラス体の材料および構造（空孔率，孔径ならびにセル壁厚さ），浸透材料の組み合わせにより，接合層の熱伝導率，電気抵抗率，ヤング率，線膨張係数などの特性をある程度自由に設計できる長所がある．今後は，ポーラス構造を最適化することで信頼性に優れたダイボンドへの展開が期待できる．

#### 参考文献

- [1] S. Fukumoto, R. Yagane, M. Matsushima, J. Materials Science: Materials in Electronics, 34, 2023, 1485.
- [2] R. Miyajima, R. Yagane, M. Matsushima, S. Fukumoto, J. Materials Science: Materials in Electronics, 35, 2024, 344.
- [3] 黒岩慎太郎，宮島領，松嶋道也，福本信次，エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術シンポジウム論文集，Vol.29，2023，114-119．
- [4] D. Hillman, R. Wilcoxon, T. Pearson, P. Mckenna, J. Electronic Materials, 48 (8), 2019, 5241-5256.
- [5] H. Shao, A. Wu, Y. Bao, Y. Zhao, G. Zou, L. Liu, Materials Science & Engineering A, 724, 2018, 231-238.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Fukumoto Shinji, Yagane Ryota, Matsushima Michiya	4. 巻 34
2. 論文標題 Transient liquid phase infiltration bonding of copper using porous silver insert sheet	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Materials Science: Materials in Electronics	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10854-023-10895-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Miyajima Ryo, Yagane Ryota, Matsushima Michiya, Fukumoto Shinji	4. 巻 35
2. 論文標題 Transient liquid-phase infiltration bonding of copper using porous copper interlayer	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Journal of Materials Science: Materials in Electronics	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10854-024-12116-3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 福本信次, 屋金峻太, 松嶋道也
2. 発表標題 多孔質体における毛管現象を利用した銅の液相拡散接合
3. 学会等名 2022年度溶接学会春季全国大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 宮島領, 屋金峻太, 松嶋道也, 福本信次
2. 発表標題 ポラス銅への低融点金属の浸透を利用した銅の接合
3. 学会等名 2022年度溶接学会秋季全国大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 福本信次, 黒岩慎太郎, 宮島領, 松嶋道也
2. 発表標題 すず合金溶浸による銅の液相拡散接合
3. 学会等名 2022年度スマートプロセス学会学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 福本信次, 屋金峻太, 松嶋道也
2. 発表標題 多孔質体への液相浸透現象を利用した銅の接合
3. 学会等名 日本金属学会 2022年春期 第170回講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 黒岩慎太郎, 宮島領, 松嶋道也, 福本信次
2. 発表標題 ポーラス銅インサート層を用いた銅の液相浸透接合
3. 学会等名 第29回エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 舛田陽祐, 黒岩慎太郎, 松嶋道也, 福本信次
2. 発表標題 ポーラスインサート材の構造および浸透材料が液相浸透接合におよぼす影響
3. 学会等名 2023年度溶接学会秋季全国大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Shinji Fukumoto, Shintaro Kuroiwa, Ryo Miyajima, Yosuke Masuda, Michiya Matsushima
2. 発表標題 Transient liquid phase infiltration bonding of copper for die-attach
3. 学会等名 5th International Conference on Nanojoining and Microjoining (NMJ), Leipzig, Germany, 27-29th, November (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 尾関慎太郎, 宮島領, 松嶋道也, 福本信次
2. 発表標題 毛細管圧力を駆動力とした液相浸透ダイアタッチ技術
3. 学会等名 第30回エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術シンポジウム
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	松嶋 道也  (Matsushima Michiya)  (90403154)	大阪大学・大学院工学研究科・助教   (14401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------