

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 25 日現在

機関番号：12301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24560396

研究課題名(和文) SiCパワーデバイス用高機能樹脂/金属異相界面の創製

研究課題名(英文) Producing high functional resin/metal heterogeneous interface for SiC power devices

研究代表者

荘司 郁夫 (Shohji, Ikuo)

群馬大学・大学院理工学府・教授

研究者番号：00323329

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：次世代パワーデバイスとして期待されるSiCパワー半導体モジュールの高効率・高信頼性化には、樹脂/金属の異相界面の高機能化が重要となる。本研究では、高機能異相界面の創製を目指して、樹脂材自身の薄膜硬化物の機械的特性(弾性率、引張強度、破断伸び、疲労特性、粘弾性特性)を調査し、その特性に及ぼす添加剤(SiO₂フィラーおよびカップリング剤)の影響を明らかにした。更に、樹脂/銅界面の密着強度および高温・高温高湿環境下における劣化挙動を調査し、カップリング効果の高温での維持が劣化抑制に有効となることを示した。

研究成果の概要(英文)：To achieve a high efficiency and high reliability of SiC power module which is expected to be a next generation power module, it is important to achieve high functionality of the resin/metal interface. The aim of this study is to create high-performance heterogeneous interfaces. Mechanical properties which are elastic modulus, tensile strength, fracture strain, fatigue properties and viscoelastic properties of cured thin-film of resin have been investigated. The effects of additives such as SiO₂ filler and coupling agent on the mechanical properties have been also investigated. In addition, adhesive strength of a resin/copper interface and its degradation behaviors under high temperature and high-humidity/temperature conditions have been investigated. The results indicate that the preservation of coupling effect at high temperatures is effective to inhibit the degradation of the adhesive strength.

研究分野：金属組織学

キーワード：電子実装 パワーモジュール 樹脂実装 マイクロ接合 機械的特性 密着強度 界面

1. 研究開始当初の背景

国内では、2030 年以降を目途に本格的な電気自動車(EV)の量産化を目指した開発が進んでおり、車載用パワーデバイスは、Si からより高パワー密度のSiCへの転換が検討されている。SiC 半導体を用いた次世代パワーモジュールでは、封止材やアンダーフィル(UF)材などの樹脂材料が主要材となり、金属との異相界面が多くなる。SiC 半導体の特徴である高温動作、高パワー密度を活かすには、樹脂材自身に加え、樹脂/金属などの異相界面における伝熱・導電・機械的特性の向上が鍵となる。そのため、樹脂/金属界面の熱機械的特性の出現に關与する、樹脂材の材料物性値、界面の官能基密度および結合状態の微視的構造の役割を解明し、異相界面のマクロ特性を制御し、その最適化によりパワーモジュールを高効率化することが期待されている。

2. 研究の目的

本研究では、電気自動車用パワーデバイスとして期待されるSiCパワー半導体モジュールの高効率・高信頼性化の鍵を握る異相(高分子/金属)界面を研究対象として、異相界面のマクロ特性出現機構を解明し、高性能異相界面を創製することを目的とした。目的を達成するために、以下の3つの項目について研究を行った。

- (1) 樹脂材の薄膜硬化物の機械的特性
- (2) 樹脂材の薄膜硬化物の機械的特性に及ぼす添加剤の影響
- (3) 樹脂/銅界面の密着特性とその劣化挙動

3. 研究の方法

樹脂材の機械的特性などは、母材樹脂および添加物に強く依存するため、化学成分の明確な試料にて評価を行うことが重要である。

表1 樹脂材仕様1

	UF材 [wt% ratio]		
	A1	A2	A3
ビスフェノールFジグリシジルエーテル	100	100	100
ビス(4-アミノ-3-エチルフェニル)メタン	40	40	40
3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン	0	1.1	2.5
球状シリカ(SiO ₂ フィラー) [平均粒径: 1.98 μm]	0	60	142
シリカ含有率 [wt%]	0	29.8	49.9
ガラス転移温度 T _g [°C] (DSC: 10°C/min)	111.9	112.7	112.9

表2 樹脂材仕様2

成分	UF Type [wt ratio]			
	UF _m	UF _f	UF _{cd}	UF _{cw}
ビスフェノールFジグリシジルエーテル	100			
ビス(4-アミノ-3-エチルフェニル)メタン	40			
3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン	0		2.5	
球状シリカ(SiO ₂ フィラー) [平均粒径: 1.98 μm]	0		142	
SiO ₂ フィラー含有率 [wt %]	0		49.9	
ガラス転移温度 T _g [°C] (DSC: 10°C/min)	108.2	109.1	108.4	108.5

UF_{cd}: 乾式カップリング処理
 UF_{cw}: 湿式カップリング処理

本研究では、ビスフェノールF型エポキシ樹脂を母材とし、添加する硬化剤、充填剤およびカップリング剤を規定した標準樹脂材を作製した。表1および表2に樹脂材の仕様を示す。本研究では、半導体のUF材を想定した材料を作製した。ビスフェノールFジグリシジルエーテル、ビス(4-アミノ-3-エチルフェニル)メタンおよび3-グリシドキシプロピルトリメトキシシランは、それぞれマトリクス樹脂、硬化剤、カップリング剤である。

(1) 樹脂材の薄膜硬化物の機械的特性調査

図1に示す JIS 7号試験片に準拠した試験片を、テフロン型を用いて 80 2h+150 4h の硬化条件で作製した。ひずみ速度 8.3x10⁻³ s⁻¹ にて、室温(R.T.)、80 および 120 の温度にて引張試験を行った。引張試験は表1および表2の全試料について実施した。また、図1の試験片より、20x2x1 mm の形状に切り出した表2のUF_m、UF_fおよびUF_{cw}について、疲労試験を行った。疲労試験は、周波数: 0.5 Hz、試験温度: R.T.、応力比: R=-1 の条件にて実施した。さらに、図1の試験片より、32x5x1 mm の形状に切り出した表2の4種の試料について、動的粘弾性測定(Dynamic Mechanical Analysis: DMA)を行い、粘弾性特性を調査した。

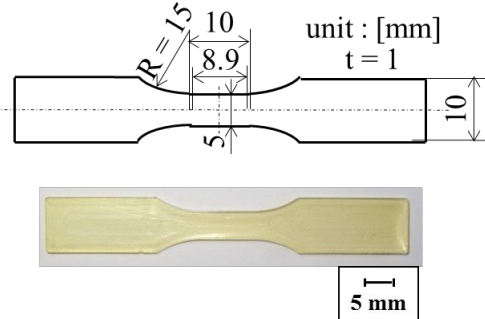


図1 引張試験用試験片の形状と外観(A1)

(2) 樹脂/銅界面の密着特性とその劣化挙動

表2に示したUF_m材を用いて、銅板上に0.8 mm、高さ60 μmの円柱状樹脂材突起との接合試料を作製した。試料は、未処理銅板、カップリング処理を施した銅板、カップリング溶液(濃度2 wt%)をUF_m材に15 wt%添加した3種類のものを作製した。せん断試験により接着強度を調査した。せん断試験は、せん断高さ: 10 μm、せん断速度: 1 mm/s、試験温度: R.T.、80、120 の条件で行った。界面の劣化挙動を調査するために、高温放置試験(85 および 120)および高温高湿試験(85 85%R.H.)を行い、室温にてせん断強度の劣化挙動を調査した。

4. 研究成果

(1) 樹脂材の薄膜硬化物の機械的特性

引張特性に及ぼすフィラー添加量および温度の影響

引張試験により応力-ひずみ線図を評価し、引張特性に及ぼすフィラー添加量および温度の影響を調査した。図2に、弾性率に及ぼすフィラー添加量および温度の影響を示す。フィラー添加量の増加に伴い、マトリクス樹脂とフィラーの複合効果が顕著となり、弾性率は増加する。温度については、上昇に従い樹脂のガラス転移に伴う高分子鎖の運動性の向上が顕著になると、弾性率は低下する。特にガラス転移温度(T_g)以上の温度である120では、弾性率は急激に低下する。

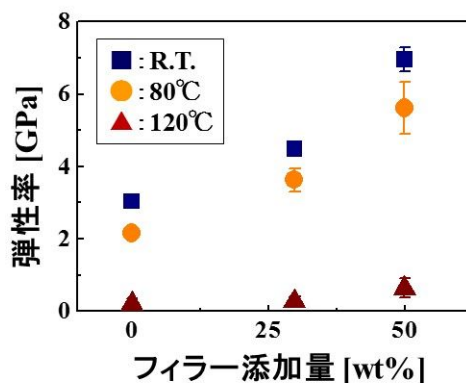


図2 弾性率に及ぼすフィラー添加量および温度の影響

図3に、引張強度に及ぼすフィラー添加量および温度の影響を示す。フィラー添加量の増加に伴い、引張強度は若干増加する傾向を示す。これは、フィラーのカップリング効果によるものと考えられる。また、温度上昇に伴い、引張強度は低下する。弾性率の傾向とは異なり、温度の上昇に伴い一様に低下し、 T_g 以上における急激な低下は認められなかった。 T_g 以上では、高分子鎖が引張方向に配向することにより、急激な強度低下が抑制されるものと考えられる。

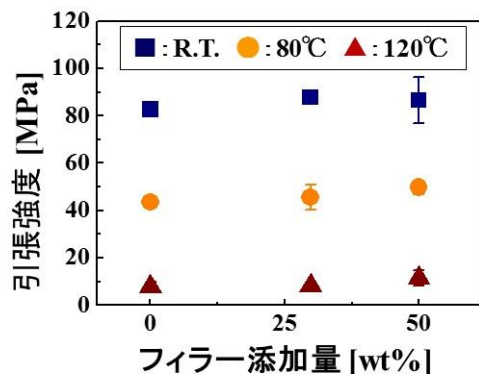


図3 引張強度に及ぼすフィラー添加量および温度の影響

図4に、破断ひずみに及ぼすフィラー添加量および温度の影響を示す。フィラー添加量の増加に伴い、破断ひずみは減少する。これは、マトリクス樹脂の体積率の減少に伴い高

剛性のフィラーの影響が強くなるためである。温度については、 T_g 以下では破断ひずみに及ぼす影響はほとんど認められなかったが、 T_g 以上では、マトリクス樹脂のガラス転移により高分子鎖の運動性が大きくなると、破断ひずみも増大する傾向が見られた。

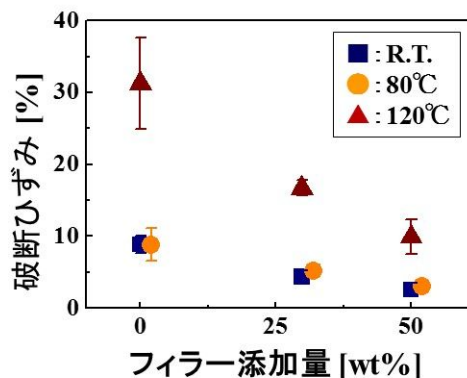


図4 破断ひずみに及ぼすフィラー添加量および温度の影響

図5に、A3試料の引張試験後の破面観察結果を示す。温度上昇に伴い、樹脂/フィラー界面のカップリング効果が低下すると、樹脂材自身での凝集破壊から界面破壊に遷移することが明らかとなった。フィラー含有量29.8wt%のA2試料についても同様の破壊モードが見られた。

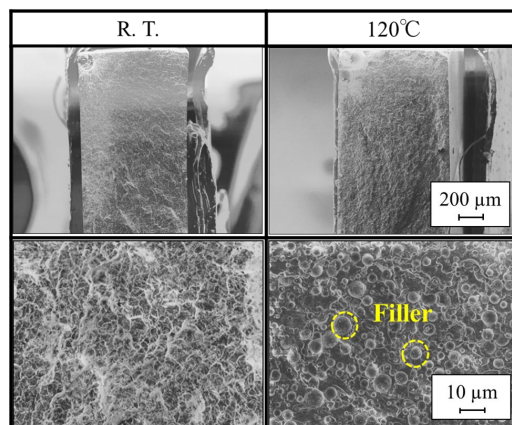


図5 A3試料の破面観察結果(二次電子像)

引張特性に及ぼすカップリング処理の影響

図6に弾性率に及ぼすフィラー添加およびカップリング処理の影響について示す。樹脂材(UF_m)と比べると、フィラー添加のみでも、複合効果により弾性率は増加する。また、カップリング処理により複合効果は更に向上する。カップリング処理方法の乾式および湿式の差はほとんど認められない。

図7に引張強度に及ぼすフィラー添加およびカップリング処理の影響について示す。室温を除き、弾性率と同様に、フィラー添加およびカップリング処理により引張強度は増加する。カップリング処理を施していない

UF_f材では、樹脂/フィラー間の強化が十分でないため、カップリング処理材に比べ強度が低下し、樹脂材(UF_m)よりも強度が低下する。以上の結果は、樹脂/フィラー間のカップリング界面の形成は引張強度の向上に有効であることを示している。

図8に破断ひずみに及ぼすフィラー添加及びカップリング処理の影響について示す。破断ひずみはフィラー添加により、延性を担う樹脂の体積率が減少すると低下する。

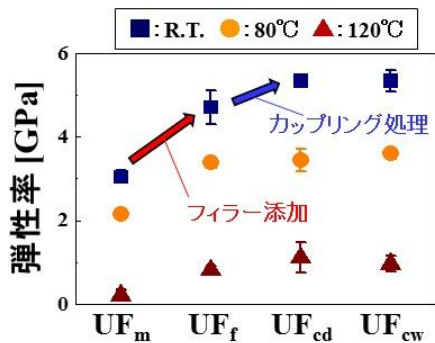


図6 弾性率に及ぼすフィラー添加とカップリング処理の影響

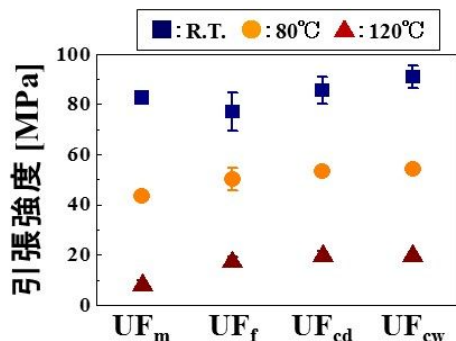


図7 引張強度に及ぼすフィラー添加とカップリング処理の影響

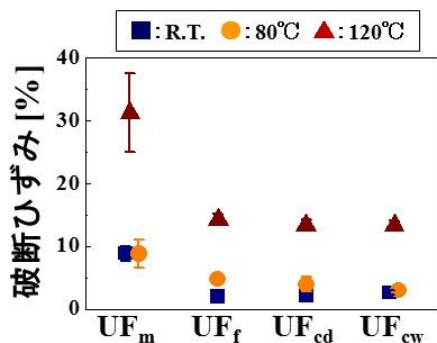


図8 破断ひずみに及ぼすフィラー添加とカップリング処理の影響

疲労特性に及ぼすフィラー添加およびカップリング処理の影響

図9に疲労試験の結果を示す。樹脂材(UF_m)と比べ、フィラー添加(UF_f)により疲労特性は向上し、カップリング処理(UF_{cw})によっても更なる向上が認められた。フィラー添加によ

るフィラーでのクラック進展抑制およびカップリング処理による樹脂/フィラー界面の剥離エネルギーの増加による界面強化効果が疲労特性向上の要因である。疲労試験後の破面観察より、疲労サイクル数の増加に伴い、樹脂内での凝集破壊から、樹脂/フィラー界面での破壊に変化することも確認された。更に、破壊起点の破面観察より、図10のようなフィラーの露出が確認された。このことより、疲労特性は樹脂/フィラー間の界面状態に依存することが示唆された。同様の結果が、引張試験においても確認された。

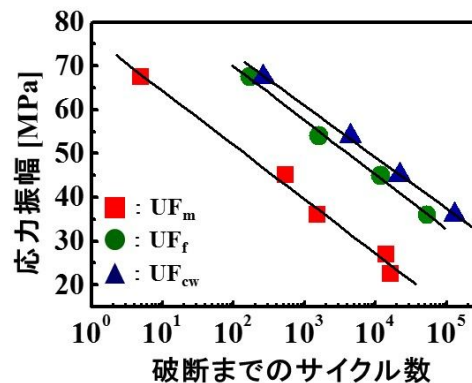


図9 疲労試験結果

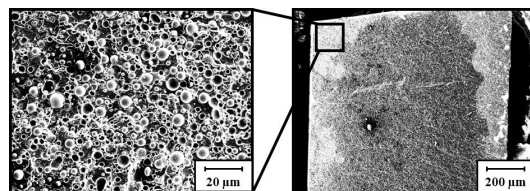


図10 疲労試験におけるクラック発生部 (UF_{cw}: 131683 サイクルで破断)

粘弾性に及ぼすフィラー添加およびカップリング処理の影響

DMA測定にて各試料の貯蔵弾性率 E' と損失弾性率 E'' を測定し、基準温度を T_g 温度付近(109)として、マスターカーブを作製した。図11に E' のマスターカーブを示す。フィラー添加による E' の向上効果が確認された。さらに、カップリング処理により緩和開始時間が

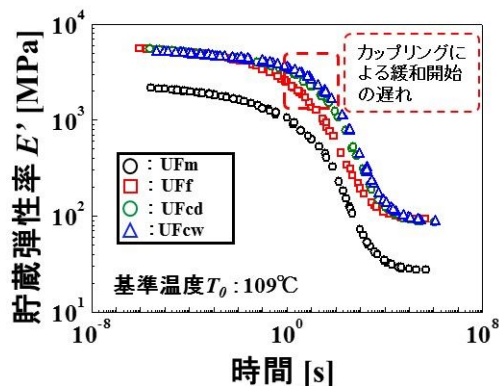


図11 貯蔵弾性率 E' のマスターカーブ

がより長時間側にシフトすることが明らかとなった。これは、樹脂/フィラー間のカップリング効果により、変形が界面で拘束されることで緩和が抑制されることによる。同様の傾向がE'においても認められた。

(2) 樹脂/銅界面の密着特性とその劣化挙動
密着強度に及ぼすカップリング処理および温度の影響

図12に樹脂/銅板接合部のせん断強度に及ぼすカップリング処理および温度の影響を示す。カップリング処理により、R.T.ではせん断強度が向上する。この効果は、樹脂材へのカップリング剤添加によっても可能となることが示唆された。カップリング効果は、温度の上昇に伴い低下し、120℃ではせん断強度は同等となり、その効果は低下する。すなわちカップリング力についての温度依存性が明らかとなった。樹脂材の開発には、この失効現象を抑制することが重要となる。

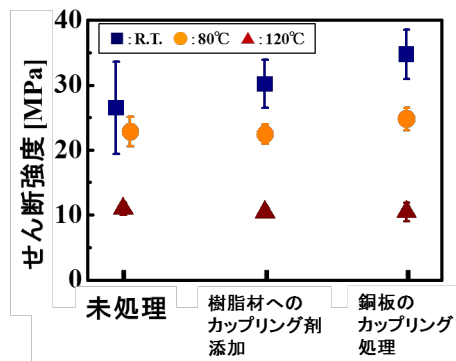


図12 樹脂/銅板の密着強度に及ぼす各種処理および温度の影響

密着強度に及ぼす高温・高温高湿時効の影響

図13に、120℃での時効に伴うせん断強度の劣化挙動を示す。時効に伴いカップリングの影響は低下する傾向が見られ、カップリング部の熱分解が進行する可能性が示唆された。この高温時効での強度劣化は、85℃においては、カップリング効果の低下が抑制さ

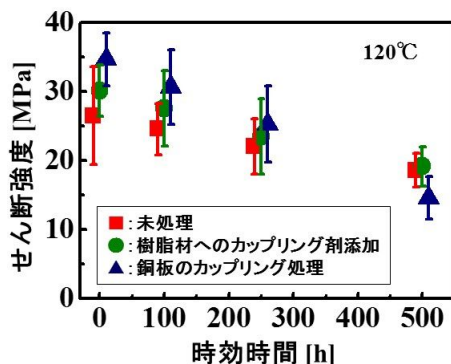


図13 120℃の時効に伴うせん断強度変化 (測定温度: R.T.)

れる傾向が確認された。さらに、85℃ 85%R.H.の高温高湿試験においては、カップリング処理を施した試料では、強度低下に及ぼす湿度の影響はほとんど認められなかった。一方、未処理の試料では、高温高湿試験による強度低下は、同じ温度における放置試験よりも劣化が進行した。以上より、カップリング効果を有さない樹脂/銅界面においては、湿度環境により界面強度の劣化が促進されるが、85℃程度の温度では、カップリング処理によりその劣化は抑制されることが明らかとなった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

Hironao Mitsugi, Shinya Kitagoh, Ikuo Shohji, Shinji Koyama, Effect of Filler Content and Coupling Agent on Mechanical Properties of Underfill Material, Transactions of the Japan Institute of Electronics Packaging, 査読有、7巻、2014、25-31

〔学会発表〕(計 13 件)

荳司郁夫、アンダーフィル用樹脂材料の機械的特性に及ぼす添加剤の影響、スマートプロセス学会樹脂実装研究会講演会、2015年10月15日、エレクトロニクス実装学会会議室(東京・杉並)

Hironao Mitsugi, Ikuo Shohji, Shinji Koyama, Effect of Coupling Treatment of Filler and Copper Substrate on Adhesion of Underfill, MS&T 14, 2014年10月12日、ピッツバーグ(米国)

三ツ木寛尚、北郷慎也、荳司郁夫、小山真司、フリップチップ接合用アンダーフィル材の機械的特性に及ぼすカップリング剤の影響、Mate2014シンポジウム、2014年2月4日、パシフィコ横浜(神奈川・横浜)

三ツ木寛尚、北郷慎也、荳司郁夫、小山真司、フリップチップ接合用アンダーフィル材の機械的特性に及ぼすフィラー添加量と時効処理の影響、日本金属学会第153回講演大会、2013年9月17日、金沢大学(石川・金沢)

Shinya Kitagoh, Hironao Mitsugi, Shinji Koyama, Ikuo Shohji, Effect of Filler Content on Tensile Properties of Underfill Material for Flip Chip, IEMT2012 Conference, 2012年11月6日、イポー(マレーシア)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

荳司 郁夫 (SHOHJI Ikuo)

群馬大学・大学院理工学府・教授

研究者番号: 00323329

(2) 研究分担者

小山 真司 (KOYAMA Shinji)

群馬大学・大学院理工学府・助教

研究者番号: 70414109