

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2021年10月7日(07.10.2021)



(10) 国際公開番号

WO 2021/200242 A1

- (51) 国際特許分類:
C22C 5/06 (2006.01) *B23K 35/30* (2006.01)
C04B 37/02 (2006.01) *B23K 35/40* (2006.01)
B23K 35/22 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2021/011235
- (22) 国際出願日: 2021年3月18日(18.03.2021)
- (25) 国際出願の言語: 日本語 添付公開書類:
- (26) 国際公開の言語: 日本語 一 国際調査報告(条約第21条(3))
- (30) 優先権データ:
特願 2020-061887 2020年3月31日(31.03.2020) JP
- (71) 出願人: D O W A メタルテック株式会社(DOWA METALTECH CO., LTD.) [JP/JP];
〒1010021 東京都千代田区外神田四丁目
1 4 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 尾崎 歩(OZAKI Ayumu); 〒1010021 東京都千代田区外神田四丁目 1 4 番 1 号 DOWA
Aメタルテック株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 阿仁屋 節雄, 外(ANIYA Setuo et al.);
〒1020072 東京都千代田区飯田橋四丁目 6 番
1 号 2 1 東和ビル3階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM,

(54) Title: BRAZING MATERIAL, METHOD FOR PRODUCING SAME, AND METHOD FOR PRODUCING METAL-CERAMICS BONDED SUBSTRATE

(54) 発明の名称: ろう材およびその製造方法並びに金属-セラミックス接合基板の製造方法

(57) Abstract: Provided is a brazing material in paste form and a technology related to the same, the brazing material containing a vehicle and a powder comprising 0.7 to 2.0 mass% of titanium powder having an average particle diameter (D50) of 20 μm or smaller, 3 to 15 mass% of copper powder, and silver powder as the balance.

(57) 要約: 平均粒径(D50)が20μm以下であるチタン粉を0.7~2.0質量%、銅粉を3~15質量%、残部として銀粉を含む粉体と、ビヒクルとを含むペースト状のろう材およびその関連技術を提供する。



WO 2021/200242 A1

明 細 書

発明の名称：

ろう材およびその製造方法並びに金属－セラミックス接合基板の製造方法 技術分野

[0001] 本発明は、ろう材およびその製造方法並びに金属－セラミックス接合基板の製造方法に関し、金属板をセラミックス基板に接合する際に用いられる活性金属を含有するろう材とその製造方法、またこのろう材を使用して金属板をセラミックス基板に接合する金属－セラミックス接合基板の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 電気自動車、電車、工作機械などに用いられる大電力を制御するためにパワーモジュールが使用されている。このようなパワーモジュール用の絶縁回路基板として、セラミックス基板の一方の面に接合されたチップ部品や端子の半田付けがなされる金属（回路）板と、セラミックス基板の他方の面に接合された放熱板を半田付けなどの方法で接合・形成するための（放熱板形成用）金属板からなる、金属－セラミックス接合基板が使用されている。

[0003] 金属－セラミックス接合基板では、金属回路板や放熱板形成用金属板の材料として電気伝導率、熱伝導性の高い銅やアルミニウムが用いられることが多く、また、セラミックス基板として絶縁性の高いアルミナ基板や窒化アルミニウム基板、窒化珪素基板などが用いられる。このような金属板をセラミックス基板に接合する際、活性金属を含有するろう材を介して真空中で加熱して接合する方法、いわゆる活性金属法による接合が広く用いられている。

[0004] パワーモジュールは電車などの車両に用いられ、またパワー半導体チップの特性向上等により、高密度化、スイッチング速度の高速化が進むとともに、さらに高電圧の領域に適用されるようになってきた。金属－セラミックス接合基板に高電圧が負荷されると、接合界面に存在するボイドなどの欠陥から部分放電（コロナ放電）が発生し、それが繰り返し発生すると金属－セラ

ミックスマイクス接合基板に絶縁破壊が生じ、パワーモジュールが壊れる恐れがある。また、前記ボイド等の（接合）欠陥は金属-セラミック接合基板の放熱性を劣化させる恐れもある。

[0005] 特許文献1には、セラミック基板と、その少なくとも一方の面に接合された金属板とからなり、上記接合層のボイドが直径0.65mm以下であることを特徴とする金属-セラミック接合基板が開示されており、コロナ放電を抑制し耐電圧が4kV以上となる金属-セラミック接合基板について記載されている。

[0006] 特許文献2には、セラミック基板の主面上に接合した金属板上の半導体搭載部分の接合界面におけるボイドを面積率で1.5%以下とするセラミック-金属複合回路基板が開示されている。また、セラミック基板のとしてアルミナ基板を用いる旨が開示されている。接合界面のボイドが少なくなること放熱性が改善されるとの記載がある。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特開2001-48671号公報

特許文献2：特開平9-283671号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] 近年、電車などの車両に用いられるパワーモジュールに使用される金属-セラミック接合基板においては、1つの金属-セラミック接合基板の金属回路板に搭載するチップの数が増え、比較的大面積で且つ接合欠陥の少ない金属-セラミック接合基板が求められている。

[0009] しかしながら本発明者らの調査によると、特許文献1、2の金属-セラミック接合基板およびその製造方法では、金属-セラミック接合基板の（接合部の）面積が例えば20cm²を超える大面積のものを接合した場合は、ボイドや未接合などの接合欠陥を十分に抑制することが困難であるという課

題があることがわかってきた。また、一般的に接合領域が大面積である金属とセラミックス（特にセラミックスが窒化物系である場合など）においては、小面積のものと比較すると接合欠陥を低減することは困難であることが知られている。

[0010] 本発明は、このような接合領域の面積が大きい大型の金属－セラミックス接合基板においても、接合欠陥を十分に低減することを可能とする、ろう材およびその製造方法並びに金属－セラミックス基板の製造方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0011] 本発明の第1の態様は、

平均粒径（D50）が20 μ m以下であるチタン粉を0.7～2.0質量%、銅粉を3～15質量%、残部として銀粉を含む粉体と、ビヒクルとを含むことを特徴とする、ペースト状のろう材である。

[0012] 本発明の第2の態様は、第1の態様に記載の態様であって、

前記チタン粉の平均粒径（D50）が5 μ m以上であることを特徴とする

。

[0013] 本発明の第3の態様は、第1または第2の態様に記載の態様であって、

前記粉体における前記チタン粉の量が0.9～1.8質量%であることを特徴とする。

[0014] 本発明の第4の態様は、第1～第3のいずれかの態様に記載の態様であって、

前記粉体における前記銅粉の量が5～13質量%であることを特徴とする

。

[0015] 本発明の第5の態様は、第1～第4のいずれかの態様に記載の態様であって、

前記粉体としてさらに1.0質量%以下の酸化チタン粉を含むことを特徴とする。

[0016] 本発明の第6の態様は、

平均粒径（D50）が20 μ m以下であるチタン粉を0.7～2.0質量%、銅粉を3～15質量%、残部として銀粉を含む粉体を準備し、前記粉体とビヒクルを混練してペースト状にすることを特徴とする、ペースト状のろう材の製造方法である。

[0017] 本発明の第7の態様は、第6の態様に記載の態様であって、前記チタン粉の平均粒径（D50）が5 μ m以上であることを特徴とする。

[0018] 本発明の第8の態様は、第6または第7の態様に記載の態様であって、前記粉体における前記チタン粉の量が0.9～1.8質量%であることを特徴とする。

[0019] 本発明の第9の態様は、第6～第8のいずれかの態様に記載の態様であって、前記粉体における前記銅粉の量が5～13質量%であることを特徴とする。

[0020] 本発明の第10の態様は、第6～第9のいずれかの態様に記載の態様であって、前記粉体としてさらに1.0質量%以下の酸化チタン粉を含むことを特徴とする。

[0021] 本発明の第11の態様は、第1～第5のいずれかの態様に記載のペースト状のろう材を使用して、金属板とセラミックス基板を接合することを特徴とする、金属-セラミックス接合基板の製造方法である。

[0022] 本発明の第12の態様は、第11の態様に記載の態様であって、前記セラミックス基板の一方の主面に前記ろう材を塗布し、塗布されたろう材に前記金属板を接触配置させ、真空雰囲気中で加熱して接合することを特徴とする。

[0023] 本発明の第13の態様は、第12の態様に記載の態様であって、さらに前記セラミックス基板の他方の主面に前記ろう材を塗布し、塗布さ

れたろう材に金属板を接触配置させ、真空雰囲気加熱して接合することを特徴とする。

[0024] 本発明の第14の態様は、第11～第13のいずれかの態様に記載の態様であって、

前記金属板が銅または銅合金であることを特徴とする。

[0025] 本発明の第15の態様は、第11～第14のいずれかの態様に記載の態様であって、

前記セラミックス基板がアルミナ、窒化アルミニウムまたは窒化珪素から選ばれる1つを主成分とすることを特徴とする。

発明の効果

[0026] 本発明は、金属-セラミックス接合基板の接合欠陥を十分に低減することを可能とする、ろう材およびその製造方法並びに金属-セラミックス基板の製造方法を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0027] [図1]本発明に実施の形態となる金属-セラミックス接合基板の上面図(a)および断面図(b)である。

発明を実施するための形態

[0028] 本発明のペースト状のろう材は、平均粒径(D50)が20 μ m以下であるチタン粉を0.7～2.0質量%、銅粉を3～15質量%、残部として銀粉を含む粉体と、ビヒクルとを含むことを特徴とする。また、本発明のペースト状のろう材の製造方法は、平均粒径(D50)が20 μ m以下であるチタン粉を0.7～2.0質量%、銅粉を3～15質量%、残部として銀粉を含む粉体を準備し、前記粉体とビヒクルを混練してペースト状にすることを特徴とする。

[0029] (チタン粉)

本発明のろう材は、平均粒径(D50)が20 μ m以下であるチタン粉を(粉体の総量に対して)0.7～2.0質量%とする。このような微細な粒径のチタン粉を用いることにより、ペースト状のろう材をセラミックス基板

に塗布したときに、平均粒径（D50）が20 μ mを超えるチタン粉と比べて粒径が小さいために、ろう材の塗布領域において面積当たりの（接合に寄与する）チタン粉の個数密度が高くなり、より均一にチタン粉を分布させることができ、金属板とセラミックス基板が接合される際にムラなく接合して金属-セラミックス接合基板の接合欠陥を低減することができると考えられ、また十分な接合強度を得ることができる。また、取り扱いにおける安全性の問題から、平均粒径（D50）の下限として5 μ m以上、さらには10 μ m以上とすることが好ましい。本発明においてチタン粉とは、チタン粉または水素化チタン粉を意味する。

[0030] また、チタン粉と銅粉と銀粉等を含む粉体の総量を100質量%としたときに、チタン粉の量を0.7~2.0質量%とする。チタン粉の量が少なすぎると、金属-セラミックス接合基板を作製したときに、必要な接合強度が得られず、量が多すぎると接合欠陥は低減する傾向であるが、耐熱衝撃性が低下するおそれがある。粉体に対するチタン粉の量は0.9~1.8質量%であることが好ましい。

[0031] なお、前記粉体中にチタン粉、銅粉、銀粉以外の、例えば1.0質量%以下のSn粉、In粉等の他の粉体或いは不純物成分を、本発明の効果を奏する範囲で含有してもよい。

[0032] （銅粉）

本発明のろう材は、銅粉の量が（粉体の総量に対して）3~15質量%であることを特徴とする。銅粉の量が少なすぎる或いは多すぎると接合欠陥が増加する恐れがある。銅粉の量は5~13質量%であることがより好ましい。

[0033] また、銅粉と銀粉によって、銅と銀の融体が形成される。この融体には、ろう材の溶融温度（接合温度）を下げる作用があり、金属-セラミックス接合基板の耐熱衝撃性を向上させる効果があると考えられる。

[0034] 本発明のろう材の製造方法に用いる銅粉の平均粒径（D50）は40 μ m以下であることが好ましく、20 μ m以下であることがより好ましい。銅粉

はチタン粉と異なり、金属板とセラミックス基板の接合界面に（チタンがセラミックス基板の成分と反応生成物を形成するように）反応生成物を形成しないと考えられるため、すなわち直接的には接合に寄与しないためチタン粉と比べて粒径の影響は小さいと考えられる。ただし、ろう材をスクリーン印刷などで塗布する際に、粒径が大きいと目詰まりする恐れがあるので上記粒径のものを使用するのが好ましい。銅粉の平均粒径（D50）は、さらに好ましくは0.1～10 μm である。

[0035] （銀粉）

本発明のろう材は、（粉体の総量に対して）チタン粉と銅粉を除いた残部として銀粉を含むことを特徴とする。前述の通り、銅粉と銀粉によって、銅と銀の融体が形成される。この融体には、ろう材の溶融温度（接合温度）を下げる作用があり、金属-セラミックス接合基板の耐熱衝撃性を向上させる効果があると考えられる。

[0036] 本発明のろう材の製造方法に用いる銀粉の平均粒径（D50）は40 μm 以下であることが好ましく、20 μm 以下であることがより好ましく、0.1～10 μm であることがさらに好ましい。銀粉はチタン粉と異なり、金属板とセラミックス基板の接合界面に（チタンがセラミックス基板の成分と反応生成物を形成するように）反応生成物を形成しないと考えられるため、すなわち直接的には接合に寄与しないためチタン粉と比べて粒径の影響は小さいと考えられる。

[0037] （ビヒクル）

本発明のろう材は前記粉体とビヒクルとからなり、ビヒクルと前記粉体を混練してペースト状のろう材を作製する。ビヒクルはバインダーと溶剤からなり、一般に用いられている有機系のバインダーとそれを溶解する溶剤を使用すればよい。

[0038] 例えば、主にアクリル系バインダーやセルロース系バインダー等の有機バインダーと、 α -テルピネオールやジブチルフタレート等の有機溶剤とを含むビヒクルが挙げられ、ろう材ペースト中の金属粉末を粘結してペースト状

となす作用をなす。

[0039] アクリル系バインダーとしては、例えばポリメチルメタアクリレートやポリイソブチルメタアクリレート・ポリノルマルブチルメタアクリレート等が、セルロース系バインダーとしては、エチルセルロースやメチルセルロース・ニトロセルロース等が例示できる。

[0040] このようなビヒクルの含有量等は、ペースト状のろう材に適当なチキソ性および粘度を付与するように適宜調整すればよい。例えば前記粉末の総量を100重量部としたときビヒクルを7～15重量部添加したものを、一般的な混練手法である乳鉢や3本ロールミル、プラネタリーミキサー等を用いて混練し、ペースト状のろう材を作製することができる。

[0041] なお、ビヒクル中のバインダーは40～60質量%、残部が溶剤であるのが好ましい。

[0042] (酸化チタン粉)

前記粉体を100質量%としたときに、前記粉体中に1.0質量%以下の酸化チタン粉を含んでもよい。酸化チタン粉を添加することにより、耐熱衝撃性の改善が見込まれるが、添加量が多いと接合欠陥が増大するので前記範囲内とするのが好ましい。酸化チタン粉の添加は粉体に対して0.1～0.6質量%としてもよい。

[0043] 酸化チタン粉の平均粒径(D50)は、ろう材をスクリーン印刷などで塗布する際に、粒径が大きいと目詰まりする恐れがあることを考慮し、平均粒径(D50)が50 μ m以下であることが好ましい。

[0044] (金属-セラミックス接合基板の製造方法)

本発明の金属-セラミックス接合基板の製造方法は、前述のペースト状のろう材を使用して、金属板とセラミックス基板を接合することを特徴とする。

[0045] 金属板は電子回路や放熱目的で使用されるため、導電率や熱伝導率に優れた銅または銅合金であることが好ましい。また、セラミックス基板は金属-セラミックス接合基板として回路用に用いることから絶縁性に優れたアルミ

ナ、窒化アルミニウム、窒化珪素から選ばれる1種を主成分とすることが好ましい。金属板、セラミックス基板ともに市販されているものを使用することができる。

[0046] 以下、図1を参照し金属-セラミックス接合基板の製造方法を説明する。

[0047] セラミックス基板10の一方の主面および他方の主面のほぼ全面或いは金属板20を接合する部分に対応するセラミックス基板10の表面に、前述のペースト状のろう材30をスクリーン印刷法等の方法で塗布する。

[0048] ろう材の組成にもよるが、ろう材の単位面積当たりの塗布重量は概ね0.08~0.50 mg/cm²の範囲とすることが好ましく、また塗布するろう材の厚さは概ね5~35 μmとすることが好ましい。これよりも単位面積当たりのろう材の塗布重量が軽い、あるいはろう材が薄いと金属板とセラミックス基板の接合強度が小さくなり、単位面積当たりのろう材の塗布重量が重い、あるいはろう材が厚いとヒートサイクル特性などの耐熱衝撃性が悪くなる恐れがある。さらに好ましいろう材の単位面積当たりの塗布重量は0.12~0.40 mg/cm²、ろう材の厚さは10~30 μmである。

[0049] セラミックス基板10に塗布したろう材30を、例えば50~150℃で乾燥させた後、金属板20をセラミックス基板の両面に形成されたろう材30の表面に配置する。このように配置することにより、セラミックス基板10にろう材30を介して金属板20が接触しているサンドイッチ状の積層体を得られ、この状態で真空炉に挿入する。

[0050] 真空炉に挿入した前記積層体の上に必要に応じて重りを載せ、真空雰囲気中で加熱してろう材30を介して金属板20とセラミックス基板10を接合する。加熱（接合）温度は770~900℃に設定することが好ましく、790~860℃に設定してもよい。接合温度での保持時間は10~120分程度であり、工業的には15~60分とすることが生産性と接合の安定性（接合欠陥小、接合強度大）を考慮すると好ましい。また、接合温度まで昇温する途中に例えば500~700℃で30~60分保持して、ろう材30中の有機物を除去する脱バインダーを行ってもよい。

- [0051] このようにして接合した後、真空炉から積層体を取り出し、金属板20とセラミックス基板10がろう材30を介して接合された、金属-セラミックス接合基板を得ることができる。
- [0052] なお、本発明の効果を有効に利用するためには、接合面積を大きくなるとボイドや未接合などの接合欠陥が発生しやすくなるので、接合面積が25 cm²以上であるのが好ましく、さらには36 cm²以上であるものに適用するのが好ましい。
- [0053] その後、回路が形成された金属-セラミックス接合基板を得るために、従来の方法により回路を形成してもよく、必要に応じて金属板の表面にNiめっきや防錆処理等の表面処理をしてもよい。
- [0054] 例えば、前述のようにセラミックス基板10の全面にろう材30を塗布した上に金属板20を接合したときに、金属板20の上に所定の回路形状などのエッチングレジストパターンを形成し、塩化銅と過酸化水素水を含む薬液等によるエッチング処理を行うことで、銅板などの金属板20を除去し、さらにフッ化水素やキレート剤などを含むろう材30除去用の薬液を用いてろう材30を除去して、金属板20を回路形状等としてもよい。
- [0055] また、例えば表面処理において、無電解Ni-Pめっき或いは電気Niめっきなどで金属板20の表面にNiめっきを形成してもよいし、防錆処理剤を用いて金属板20を防錆処理してもよい。

実施例

- [0056] 以下、本発明によるろう材およびろう材の製造方法並びに金属-セラミックス接合基板の製造方法の実施例について詳細に説明する。
- [0057] [実施例1]
- セラミックス基板として縦68 mm、横68 mm、厚さ0.6 mmの大きさの窒化アルミニウム基板（株式会社トクヤマ製）を準備した。
- [0058] また、1.7質量%の市販のチタン粉（純度99.9質量%以上）と、10質量%の市販の銅粉（電解銅粉）と、0.5質量%の市販の酸化チタン粉（酸化チタン（IV）ルチル型）と、87.8質量%（残部）の市販の銀粉が

らなる粉末100gに、アクリル系のバインダーと溶剤からなるビヒクルを13.8g添加して、乳鉢および三本ロールミルを用いて混練し、ペースト状の（活性金属含有）ろう材を作製した。

[0059] なお、チタン粉は平均粒径（メジアン径D50）が26.902 μm である市販のチタン粉末を粉砕して粒径を細かくしたのち篩い分け（分級）したものを、その平均粒径D50は12.130 μm であった。

[0060] 銅粉の平均粒径（D50）は7.3 μm 、酸化チタン粉の平均粒径（D50）は45 μm のものをを用いた。

[0061] 銀粉は、平均粒径（D50）が0.5 μm のものをを用いた。

[0062] なお、上記平均粒径（D50）は、レーザー回折・散乱式粒度分布測定器（株式会社セイシン企業製、レーザーマイクロサイザーLMS-3000）を用いて、分散媒は純水として、体積基準により測定したものである。

[0063] このペースト状の活性金属含有ろう材を、乳剤厚10 μm のスクリーン印刷版を使用して、前記窒化アルミニウム基板の表と裏の面のそれぞれ全面に、スクリーン印刷機によりスクリーン印刷することにより塗布した。なお、ろう材中の活性金属であるチタンの単位面積あたりの塗布量は0.271 mg/cm^2 であった。

[0064] 次に、窒化アルミニウム基板の表裏のそれぞれの面に塗布されたろう材を乾燥させた後、縦70mm、横70mm、厚さ0.25mmの銅板をそれぞれ窒化アルミニウム基板の表裏の主面の全部が覆われるように接触配置させた積層体を作製して真空炉に挿入し、この積層体に200gの重りを載せて真空中（真空度 1.0×10^{-4} torr以下）において835 $^{\circ}\text{C}$ で40分加熱・保持することで接合し、窒化アルミニウム基板の両面にろう材を介して銅板が接合された金属-セラミックス接合基板を58個作製した。

[0065] （接合欠陥率）

このようにして得られた金属-セラミックス接合基板58個について、超音波探傷機（株式会社日立パワーソリューションズ製 超音波映像装置FS100II）により、プローブ周波数を50MHzとして接合領域（活性金属

ろう材を塗布した領域) に対する接合欠陥領域 (ポイド部、未接合部) を面積率 (接合欠陥率という) としてそれぞれ算出した。その結果、接合欠陥率の平均は0.321面積%で接合欠陥が非常に少なく良好であった。

[0066] 金属-セラミックス接合基板の、一方の銅板の表面に回路形状のエッチングレジストインクを塗布し、他方の銅板の表面に長方形の放熱板接合用金属板を形成するためにセラミックス基板の外周端部から1mmの部分を除いた領域にエッチングレジストインクをスクリーン印刷により塗布した。その後、紫外線を照射して塗布したエッチングレジストインクを硬化し、薬液によりエッチングレジストが形成されていない領域の不要な銅板とろう材を除去し、エッチングレジストを除去して、金属-セラミックス接合回路基板を得た。

[0067] (耐熱衝撃性)

N_2 ガス : H_2 ガス = 4 : 1 (体積比) の還元雰囲気中のバッチ炉に前記金属-セラミックス接合回路基板を投入し、金属-セラミックス接合回路基板の投入から最高温度に到達するまでの時間を6分、最高温度380℃、最高温度での保持時間10分、最高温度から炉内温度が50℃になるまでの降温時間を5分とするヒートサイクルを1回とする通炉を行い、10回通炉した後にセラミックス基板の表面のクラックの発生の有無を実体顕微鏡で観察した。その結果、クラックの発生はなく耐熱衝撃性は良好であった。この耐熱衝撃性のことを通炉耐量ともいう。

[0068] (接合強度)

また、金属-セラミックス接合回路基板の銅板を窒化アルミニウム基板から引き剥がしたときの接合強度を90°ピール試験により測定した結果、160N/cmであり良好であった。

[0069] [実施例2]

ろう材の前記粉末の総量に対するチタン粉が1.0質量%、銅粉が6.0質量%、酸化チタン粉が0.5質量%、銀粉が92.5質量%であり、チタン粉は篩い分け (分級) により細かい粒子を選択してD50粒径が17.6

44 μm のものを用い、チタンの単位面積あたりの塗布量が0.163 mg/cm^2 である以外は実施例1と同様の方法で金属-セラミックス接合基板を作製した。

[0070] 得られた金属-セラミックス接合基板および金属-セラミックス接合回路基板を実施例1と同様の方法で評価したところ、接合欠陥率は0.339面積%で非常に小さく、10回通炉後のセラミックス基板へのクラックの発生はなく耐熱衝撃性は良好で、接合強度は196 N/cm で良好であった。

[0071] [実施例3]

ろう材の前記粉末の総量に対するチタン粉が1.7質量%、銅粉が6.0質量%、酸化チタン粉が0.5質量%、銀粉が91.8質量%であり、チタンの単位面積あたりの塗布量が0.277 mg/cm^2 である以外は、実施例2と同様の方法で金属-セラミックス接合基板および金属-セラミックス接合回路基板を作製した。

[0072] 得られた金属-セラミックス接合基板および金属-セラミックス接合回路基板を実施例1と同様の方法で評価したところ、接合欠陥率は0.337面積%で非常に小さく、10回通炉後のセラミックス基板へのクラックの発生はなく耐熱衝撃性は良好で、接合強度は247 N/cm で良好であった。

[0073] [比較例1]

チタン粉として粒径（メジアン径D50）が26.902 μm である市販のチタン粉末を（粉砕することなく）用い、チタンの単位面積あたりの塗布量が0.270 mg/cm^2 である以外は実施例1と同様の方法で金属-セラミックス接合基板を作製した。

[0074] 得られた金属-セラミックス接合基板を実施例1と同様の方法で評価したところ、接合欠陥率は1.659面積%であり欠陥面積が大きく良好でなかった。

[0075] [比較例2]

チタン粉として粒径（メジアン径D50）が26.902 μm である市販のチタン粉末を（粉砕することなく）用いた以外は、実施例2と同様の方法

で金属-セラミックス接合基板を作製した。

[0076] 得られた金属-セラミックス接合基板を実施例1と同様の方法で評価したところ、接合欠陥率は63面積%であり欠陥面積が非常に大きく（接合していない領域が大きく）金属-セラミックス接合基板の製品としては使用できないレベルであった。

[0077] [比較例3]

チタン粉として粒径（メジアン径D50）が26.902 μ mである市販のチタン粉末を（粉砕することなく）用い、チタンの単位面積あたりの塗布量が0.282mg/cm²である以外は、実施例3と同様の方法で金属-セラミックス接合基板を作製した。

[0078] 得られた金属-セラミックス接合基板を実施例1と同様の方法で評価したところ、接合欠陥率は0.855面積%であり欠陥面積が大きく良好ではなかった。

[0079] [比較例4]

ろう材の前記粉末の総量に対するチタン粉が1.7質量%、銅粉が16.0質量%、酸化チタン粉が0.5質量%、銀粉が81.8質量%である以外は、実施例3と同様の方法で金属-セラミックス接合基板を作製した。

[0080] 得られた金属-セラミックス接合基板を実施例1と同様の方法で評価したところ、接合欠陥率は0.869面積%であり欠陥面積が大きく良好ではなかった。

[0081] 以上のろう材および金属-セラミックス接合基板の評価結果を表1に示す。

[0082]

[表1]

	粉体					接合欠陥率	耐熱衝撃性
	Ti粉		Cu粉	TiO ₂ 粉	Ag粉		
	組成 質量%	平均粒径 (D50) μm	組成 質量%	組成 質量%	組成 質量%	面積%	10回後
実施例1	1.7	12.130	10.0	0.5	残部 (87.8)	0.321	割れ無し
実施例2	1.0	17.644	6.0	0.5	残部 (92.5)	0.339	割れ無し
実施例3	1.7	17.644	6.0	0.5	残部 (91.8)	0.337	割れ無し
比較例1	1.7	26.902	10.0	0.5	残部 (87.8)	1.659	割れ無し
比較例2	1.0	26.902	6.0	0.5	残部 (92.5)	63	割れ無し
比較例3	1.7	26.902	6.0	0.5	残部 (91.8)	0.855	割れ無し
比較例4	1.7	17.644	16.0	0.5	残部 (81.8)	0.869	—

符号の説明

[0083] 10 セラミックス基板

20 金属板

30 ろう材

請求の範囲

- [請求項1] 平均粒径（D50）が $20\mu\text{m}$ 以下であるチタン粉を0.7～2.0質量%、銅粉を3～15質量%、残部として銀粉を含む粉体と、ビヒクルとを含むことを特徴とする、ペースト状のろう材。
- [請求項2] 前記チタン粉の平均粒径（D50）が $5\mu\text{m}$ 以上であることを特徴とする、請求項1に記載のろう材。
- [請求項3] 前記粉体における前記チタン粉の量が0.9～1.8質量%であることを特徴とする、請求項1または2に記載のろう材。
- [請求項4] 前記粉体における前記銅粉の量が5～13質量%であることを特徴とする、請求項1～3のいずれかに記載のろう材。
- [請求項5] 前記粉体としてさらに1.0質量%以下の酸化チタン粉を含むことを特徴とする、請求項1～4のいずれかに記載のろう材。
- [請求項6] 平均粒径（D50）が $20\mu\text{m}$ 以下であるチタン粉を0.7～2.0質量%、銅粉を3～15質量%、残部として銀粉を含む粉体を準備し、前記粉体とビヒクルを混練してペースト状にすることを特徴とする、ペースト状のろう材の製造方法。
- [請求項7] 前記チタン粉の平均粒径（D50）が $5\mu\text{m}$ 以上であることを特徴とする、請求項6に記載のろう材の製造方法。
- [請求項8] 前記粉体における前記チタン粉の量が0.9～1.8質量%であることを特徴とする、請求項6または7に記載のろう材の製造方法。
- [請求項9] 前記粉体における前記銅粉の量が5～13質量%であることを特徴とする、請求項6～8のいずれかに記載のろう材の製造方法。
- [請求項10] 前記粉体としてさらに1.0質量%以下の酸化チタン粉を含むことを特徴とする、請求項6～9のいずれかに記載のろう材の製造方法。
- [請求項11] 請求項1～5のいずれかに記載のペースト状のろう材を使用して、金属板とセラミックス基板を接合することを特徴とする、金属-セラミックス接合基板の製造方法。
- [請求項12] 前記セラミックス基板の一方の主面に前記ろう材を塗布し、塗布さ

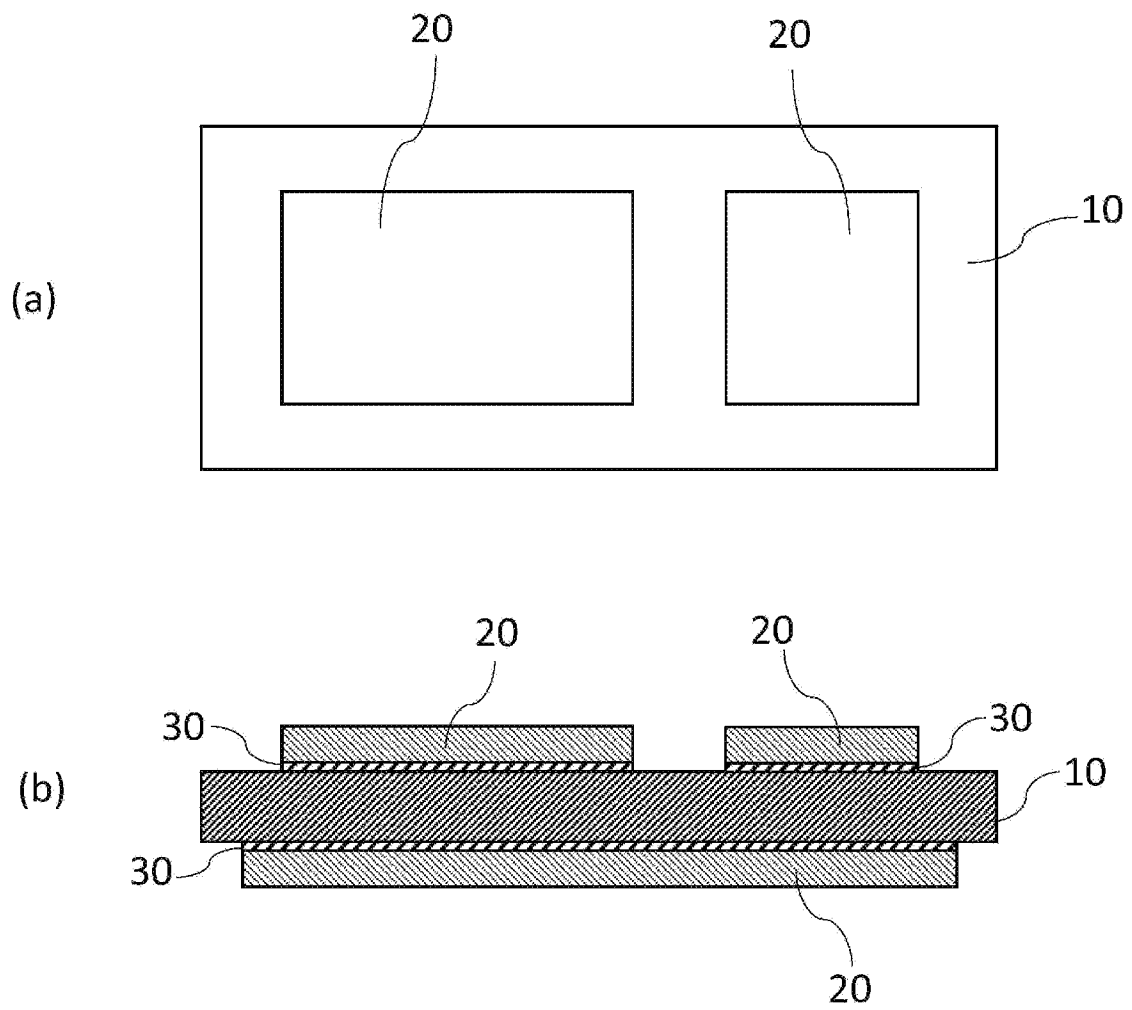
れたろう材に前記金属板を接触配置させ、真空雰囲気中で加熱して接合することを特徴とする、請求項 1 1 に記載の金属-セラミックス接合基板の製造方法。

[請求項13] さらに前記セラミックス基板の他方の主面に前記ろう材を塗布し、塗布されたろう材に金属板を接触配置させ、真空雰囲気中で加熱して接合することを特徴とする、請求項 1 2 に記載の金属-セラミックス接合基板の製造方法。

[請求項14] 前記金属板が銅または銅合金であることを特徴とする、請求項 1 1 ~ 1 3 のいずれかに記載の金属-セラミックス接合基板の製造方法。

[請求項15] 前記セラミックス基板がアルミナ、窒化アルミニウムまたは窒化珪素から選ばれる 1 つを主成分とすることを特徴とする、請求項 1 1 ~ 1 4 のいずれかに記載の金属-セラミックス接合基板の製造方法。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/011235

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C22C5/06(2006.01)i, C04B37/02(2006.01)i, B23K35/22(2006.01)i, B23K35/30(2006.01)i, B23K35/40(2006.01)i
 FI: B23K35/22310A, B23K35/30310B, C22C5/06Z, B23K35/40340F, C04B37/02B
 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
 Int.Cl. C22C5/06, C04B37/02, B23K35/22, B23K35/30, B23K35/40

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2021
Registered utility model specifications of Japan	1996-2021
Published registered utility model applications of Japan	1994-2021

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2016/013651 A1 (DENKA CO., LTD.) 28 January 2016 (2016-01-28), paragraphs [0013]-[0025],	1, 3-4, 6, 8-9, 11-15
Y	[0031], [0036], table 1	2, 5, 7, 10
X	JP 2018-145047 A (DOWA METALTECH KK) 20 September 2018 (2018-09-20), paragraph [0030]	1, 3-4, 6, 8-9, 11-15
Y		2, 5, 7, 10
Y	JP 2000-246482 A (KYOCERA CORPORATION) 12 September 2000 (2000-09-12), paragraphs [0015], [0016], [0018], [0019], [0041], [0042]	2, 7

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 21 May 2021	Date of mailing of the international search report 01 June 2021
--	--

Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.
--	---

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/011235

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 9-188582 A (DOWA MINING CO., LTD.) 22 July 1997 (1997-07-22), paragraphs [0011], [0012]	5, 10
A	JP 11-29371 A (TOKUYAMA CORPORATION) 02 February 1999 (1999-02-02)	1-15
P, A	WO 2020/105734 A1 (DENKA CO., LTD.) 28 May 2020 (2020-05-28)	1-15

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2021/011235

WO 2016/013651 A1	28 January 2016	DE 112015003408 T5 CN 106536125 A
JP 2018-145047 A	20 September 2018	US 2018/0255645 A1 paragraph [0039] EP 3370488 A1 CN 108541149 A KR 10-2018-0101202 A
JP 2000-246482 A	12 September 2000	(Family: none)
JP 9-188582 A	22 July 1997	US 5955686 A column 3, lines 1-21 EP 839598 A2 DE 69710021 T5
JP 11-29371 A	02 February 1999	(Family: none)
WO 2020/105734 A1	28 May 2020	(Family: none)

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C22C 5/06(2006.01)i; C04B 37/02(2006.01)i; B23K 35/22(2006.01)i; B23K 35/30(2006.01)i; B23K 35/40(2006.01)i FI: B23K35/22 310A; B23K35/30 310B; C22C5/06 Z; B23K35/40 340F; C04B37/02 B		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C22C5/06; C04B37/02; B23K35/22; B23K35/30; B23K35/40 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922 - 1996年 日本国公開実用新案公報 1971 - 2021年 日本国実用新案登録公報 1996 - 2021年 日本国登録実用新案公報 1994 - 2021年 国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X Y	WO 2016/013651 A1（デンカ株式会社）28.01.2016（2016 - 01 - 28） 段落0013-0025, 0031, 0036, 表1	1, 3-4, 6, 8-9, 11-15 2, 5, 7, 10
X Y	JP 2018-145047 A（DOWAメタルテック株式会社）20.09.2018（2018 - 09 - 20） 段落0030	1, 3-4, 6, 8-9, 11-15 2, 5, 7, 10
Y	JP 2000-246482 A（京セラ株式会社）12.09.2000（2000 - 09 - 12） 段落0015-0016, 0018-0019, 0041-0042	2, 7
Y	JP 9-188582 A（同和鋳業株式会社）22.07.1997（1997 - 07 - 22） 段落0011-0012	5, 10
A	JP 11-29371 A（株式会社トクヤマ）02.02.1999（1999 - 02 - 02）	1-15
P, A	WO 2020/105734 A1（デンカ株式会社）28.05.2020（2020 - 05 - 28）	1-15
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 21.05.2021		国際調査報告の発送日 01.06.2021
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 川口 由紀子 4K 5798 電話番号 03-3581-1101 内線 3435

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
 PCT/JP2021/011235

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2016/013651	A1	28.01.2016	DE	112015003408	T5	
				CN	106536125	A	
JP	2018-145047	A	20.09.2018	US	2018/0255645	A1	
				段落0039			
				EP	3370488	A1	
				CN	108541149	A	
				KR	10-2018-0101202	A	
JP	2000-246482	A	12.09.2000	(ファミリーなし)			
JP	9-188582	A	22.07.1997	US	5955686	A	
				第3欄第1-21行			
				EP	839598	A2	
				DE	69710021	T5	
JP	11-29371	A	02.02.1999	(ファミリーなし)			
WO	2020/105734	A1	28.05.2020	(ファミリーなし)			