



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2012-0032463
(43) 공개일자 2012년04월05일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
H01B 1/22 (2006.01) H01B 1/16 (2006.01)
H01B 1/02 (2006.01)
(21) 출원번호 10-2011-7024999
(22) 출원일자(국제) 2010년03월31일
심사청구일자 없음
(85) 번역문제출일자 2011년10월21일
(86) 국제출원번호 PCT/US2010/029330
(87) 국제공개번호 WO 2010/114874
국제공개일자 2010년10월07일
(30) 우선권주장
61/166,015 2009년04월02일 미국(US)

(71) 출원인
오르멧 서키츠 인코퍼레이티드
미국, 캘리포니아 92131, 샌디에이고, 10080 윌로우 크릭 로드
(72) 발명자
시어러, 캐서린
미국, 캘리포니아 92078, 산 마르코스, 410 워싱턴
토니아 디알
홀콤, 케니스 씨.
미국, 캘리포니아 92129, 샌디에이고, 14278 델하
우지 알디
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
정영수

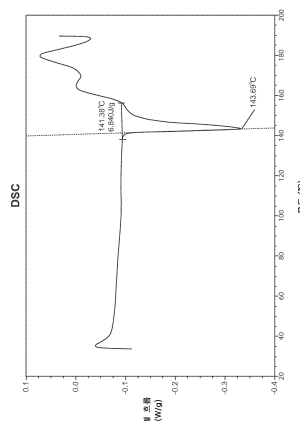
전체 청구항 수 : 총 38 항

(54) 발명의 명칭 혼합된 합금 충전재를 함유하는 전도성 조성물

(57) 요약

본 발명은 전자 소자들 사이의 상호연결을 형성하기 위한, 전기적으로 그리고 열적으로 전도성인 조성물을 제공한다. 본 발명 조성물은 3가지 이상의 금속 또는 금속 합금 입자 유형과 적용 특이적인 용융제를 포함하는 유기 비히클을 포함한다. 제 1 입자 유형은 다른 입자들 중의 반응성 저융점 금속(들)과 반응하여 금속간화합물 종들을 형성하는 반응성 고용점 금속을 포함한다. 본 발명의 반응성 저융점 금속(들)은 2가지 구별되는 입자 형태로 제공된다. 제 1 반응성 저융점 금속 입자는 반응성 고용점 금속과의 반응을 촉진하는 캐리어를 포함한다. 제 2 반응성 저융점 금속 입자는 주로 반응성 저융점 금속의 공급원으로서 작용한다. 3가지 입자 유형의 조합은 금속 반응의 유리한 촉진을 보존하고 일부 실시예에서는 강화하면서, 캐리어 금속의 바람직하지 않은 특성들의 감소를 포함하는 몇가지 장점들을 제공한다.

대표도 - 도1



(72) 발명자

프리젠, 지. 델버트

미국, 캘리포니아 92646, 헌팅턴 비치, 9181 윌렘
서클

매튜스, 마이클 씨.

미국, 캘리포니아 92024, 엔시니타스, 1603 퍼시픽
랜치 디알.

특허청구의 범위

청구항 1

- a) 적어도 하나의 고용점 금속을 포함하는, 약 30 질량% 내지 약 70 질량%의 제 1 금속 입자;
 - b) 캐리어 금속 및 반응성 저융점 금속의 합금을 포함하는, 약 10 질량% 내지 약 60 질량%의 제 2 금속 입자, 이때 반응성 저융점 금속은 고용점 금속과 반응하여 금속간 화합물을 형성할 수 있고;
 - c) 적어도 40 질량%의 반응성 저융점 금속을 포함하는, 약 25 질량% 내지 약 75 질량%의 제 3 금속 입자; 및
 - d) 유기 비히클;
- 을 포함하는 입자 혼합 조성물.

청구항 2

제 1항에 있어서, 상기 고용점 금속은 Cu, Ag, Al, Au, Pt, Pd, Be, Rh, Ni, Co, Fe, Mo 및 이들의 조합으로 구성되는 군으로부터 선택되는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 3

제 1항에 있어서, 상기 고용점 금속은 Cu, Ag, Al, Au, Ni, 및 이들의 조합으로 구성되는 군으로부터 선택되는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 4

제 1항에 있어서, 상기 고용점 금속은 Cu, Ag 및 이들의 조합으로 구성되는 군으로부터 선택되는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 5

제 1항에 있어서, 상기 고용점 금속은 Cu인 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 6

제 1항에 있어서, 상기 고용점 금속은 Ag인 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 7

제 1항에 있어서, 상기 제 1 금속 입자는 실질적으로 하나의 원소로 이루어지는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 8

제 1항에 있어서, 상기 반응성 저융점 금속은 Sn, Bi, Zn, Ga, In, Te, Hg, Tl, Sb, Se, Po 및 이들의 조합으로 구성되는 군으로부터 선택되는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 9

제 1항에 있어서, 상기 반응성 저융점 금속은 Sn, Bi, Ga, In 및 이들의 조합으로 구성되는 군으로부터 선택되는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 10

제 1항에 있어서, 상기 반응성 저융점 금속은 Sn인 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 11

제 10항에 있어서, 상기 반응성 저융점 금속은 Sn이고, 고용점 금속은 Cu인 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 12

제 10항에 있어서, 상기 반응성 저융점 금속은 Sn이고, 고용점 금속은 Ag인 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 13

제 1항에 있어서, 상기 캐리어 금속은 Bi, In, Pb, Ag, Cu, Sb, Au, Ni 및 이들의 조합으로 구성되는 군으로부터 선택되는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 14

제 2항에 있어서, 상기 반응성 저융점 금속은 Sn이고 캐리어 금속은 Bi인 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 15

제 2항에 있어서, 상기 제 2 금속 입자는 Bi/Sn, In/Sn, Pb/Sn, Sn/Pb/Bi, Sn/Ag, Sn/Cu, Sn/Ag/Cu, Sn/Ag/Cu/Sb, Bi/In/Sn, Sn/In/Ag, Sn/Sb, Au/Sn 및 이들의 조합으로 구성되는 군으로부터 선택된 합금 종족 중 적어도 한가지를 포함하는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 16

제 1항에 있어서, 상기 제 3 금속 입자는 반응성 저융점 금속의 합금을 포함하는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 17

제 1항에 있어서, 상기 제 3 금속 입자는 적어도 90 질량%의 반응성 저융점 금속을 포함하는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 18

제 1항에 있어서, 상기 제 3 금속 입자는 실질적으로 원소 형태의 반응성 저융점 금속으로 이루어지는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 19

제 1항에 있어서, 상기 반응성 저융점 금속은 약 35 질량% 내지 약 65 질량%의 제 2 금속 입자를 포함하는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 20

제 19항에 있어서, 상기 반응성 저융점 금속은 약 40 질량%의 제 2 금속 입자를 포함하는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 21

제 11항에 있어서, 상기 제 1 금속 입자의 모든 Cu를 Cu/Sn 금속간 화합물로 변환시키기에는 불충분하게 제 2 금속 입자에 Sn이 존재하는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 22

제 21항에 있어서, 상기 제 1 금속 입자의 모든 Cu를 실질적으로 Cu/Sn 금속간 화합물로 변환시키기에 충분한 Sn이, 제 2 금속 입자 뿐만 아니라 제 3 금속 입자에 존재하는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 23

제 1항에 있어서, 금속간화합물 종들이 T_1 보다 적어도 10°C 높은 최소 용융 온도를 가진다는 조건하에서, 상기 고용점 금속은 온도 T_1 에서 반응성 저융점 금속과 함께, 금속간화합물 종을 형성하고, 이때 T_1 는 약 80°C 내지 약 300°C 사이의 범위인 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 24

제 23항에 있어서, 상기 금속간화합물 종들은 야금학적으로 반응하여 상호연결된 망상조직을 형성하는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 25

제 1항에 있어서, 상기 제 2 금속 입자는 온도 T_1 에서 용해되고, 이때 T_1 는 약 80℃ 내지 약 220℃ 사이의 범위에 있는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 26

제 25항에 있어서, 상기 T_1 는 약 100℃ 내지 약 200℃ 사이의 범위에 있는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 27

제 1항에 있어서, 금속 입자들의 적어도 하나의 유형은 비-금속 코어 위에 금속 코팅을 포함하는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 28

제 27항에 있어서, 비-금속 코어는 유리, 세라믹 또는 폴리머로 구성되는 군으로부터 선택된 재료로 이루어지는 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 29

제 1항에 있어서, 적어도 하나의 입자가 체로 걸러져(sieved), 특정 크기를 넘는 입자들이 제거되는 것으로 하는 조성물.

청구항 30

제 29항에 있어서, 최대 입자 크기는 약 20 μm 인 것을 특징으로 하는 조성물.

청구항 31

청구항 1의 조성물을 약 80℃ 내지 300℃의 온도에서 가열 처리함으로써 형성된 금속간 화합물 제품.

청구항 32

선결된 비율의 제 1 금속 입자, 제 2 금속 입자, 제 3 금속 입자 및 유기 비히클을 결합함으로써, 성분들의 혼합물을 형성하는 것을 포함하는, 청구항 1항의 조성물을 제작하는 방법.

청구항 33

제 32항에 있어서, 상기 유기 비히클은 수지, 폴리머, 반응성 모노머, 휘발성 용제 및 충전제를 더 포함하는 것을 특징으로 하는 방법.

청구항 34

a)청구항 1항의 조성물의 상당량을 적어도 2개의 부품들의 조립에 적용하는 단계; 이때 적어도 2개의 부품들은 전기적으로 열적으로 함께 연결되며,

b)조성물을 온도 T_1 로 가열하여, 그로써 전기적으로 그리고 열적으로 전도성인 상호연결을 얻는 단계; 이때 T_1 는 약 80℃ 내지 약 300℃ 사이의 온도이며, 조성물에서 고용점과 저융점 금속들은 반응하여 금속간 화합물을 형성하고, 금속간 화합물은 전기적으로 그리고 열적으로 전도성이며,

를 포함하는 전기적으로 그리고 열적으로 전도성인 상호연결을 만드는 방법

청구항 35

제 34항에 있어서, 상기 T_1 는 약 100℃ 내지 약 230℃ 사이의 범위에 있는 것을 특징으로 하는 방법.

청구항 36

제 34항에 있어서, 상기 T_1 는 약 190℃ 내지 약 210℃ 사이의 범위에 있는 것을 특징으로 하는 방법.

청구항 37

제 34항에 있어서, 상기 금속간 화합물은 T_1 보다 적어도 10℃ 더 높은 용융 온도를 갖는 특징으로 하는 방법.

청구항 38

제 34항에 있어서, 상기 반응성 저융점 금속을 함유하는 입자들 중 적어도 하나의 유형은 T_1 보다 적어도 10℃ 더 높은 온도에서 용해되는 것을 특징으로 하는 방법.

명세서

기술분야

[0001] 관련 출원에 대한 상호 참조

[0002] 본원은 35 USC § 19 하에서 2009년 4월 2일 출원된 미국 가출원 일련번호 61/166,015 의 우선권 혜택을 주장하며, 이 출원의 전체 개시는 본원에 참조에 의해 포함된다.

[0003] 기술분야

[0004] 본 발명은 금속 조성물, 그것의 제조 방법 및 사용에 관한 것이다. 보다 구체적으로는, 본 발명은 혼합된 합금 충전재를 이용하는 전도성 금속 조성물에 관한 것이다.

배경기술

[0005] 지난 몇 십년에 걸쳐서, 전자 산업은 더 작은 형태 인자들로 더 높은 성능과 기능성을 향해 계속적으로 추진되어 왔다. 제조 수준에서, 이들 추진력은 더 작은 회로 특성, 보다 효율적인 회로 라우팅을 지지하는 디자인과 제조 방법, 여러겹의 포장의 제거, 그리고 복잡하고 정교한 공학적 재료로 해석되었다. 이러한 트렌드에 의해 악화된 문제점들에는 성질이 다른 재료의 근접한 병치에 의해 발생한 열적 관리 및 열-기계적 응력의 관리가 포함된다.

[0006] 인쇄 회로 기판과 반도체 패키징의 설계가 어떻게 밀도에서의 개선을 가능하게 하도록 변경되었는지의 한가지 예는 전기회로망의 층들이 어떻게 상호연결되는지이다. 속도와 성능을 위해 회로 라우팅을 최적화하기 위해서는, 관통 구멍 수직 상호연결 아키텍처에서 직접적인 층-대-층 상호연결로의 변화를 필요로한다. 이상적으로 전기회로망의 층들을 상호연결하는 전도성 바이어(via)들은 그들이 상호연결하는 회로 트레이스와 크기가 잘 맞으며, 견고하고 신뢰할 수 있는 전도를 제공하고, 매우 작은 연결 회로 특성을 요구하며, 회로 기판이나 패키지 디자인 안에 쌓여포개지거나 그렇지 않으면 어느곳에서나 자유롭게 위치할 수 있다.

[0007] 고체 금속 바이어(via)를 플레이팅(도금)하여 그러한 층-대-층 상호연결을 형성하는 비용은 엄청나게 비싸며, 도금 솔루션의 포착이 중요한 문제이다. 일반적으로 널리 퍼져있는 해결책은 바이어 홀의 지형을 적당한 두께로 플레이팅하는 것이다. 이러한 전략은 바이어(via)의 가장자리에서 기계적 응력 지점을 만들어내고 여기에서 플레이팅은 밀에있는 패드와 연결된다. 바이어의 중앙에 생성된 오목부는 또한 결함의 잠재적인 공급원이다. 한가지 해결책은 바이어 홀을 전도성 화합물로 채우는 것이지만, 선행기술의 바이어 충전 재료는 구리 패드와 함께 전기적으로 탄탄한 계면(접점)을 형성하지 않는다.

[0008] 전자 장치의 소형화 뿐 아니라, 장치 또는 이것의 소자들을 다른 물체 안에 직접 통합시키려는 추세가 최근에 생겨나고 있다. 이러한 유형의 장치들의 실현은 진정으로 3-D 아키텍처와 제조 방법을 필요로할 것이다. 스택트 반도체 다이의 I/Os를 상호연결하는 것, 무선 장치를 위해 정합한 또는 내장형 안테나를 생성하는 것 그리고 태양 전지판 위에 수집 그리드를 형성하는 것처럼 다양한 어플리케이션에 혁신적인 상호연결 전략이 요구될 것이다.

[0009] 전자 산업에서의 또다른 주요한 추세는 휘발성 유기 화합물과 납을 포함하여, 환경적 위험요소와 독소의 감소 및 제거이다. 특히 납의 제거는 이 원소가 과거에 광범위하게 사용되어 왔기 때문에, 전자 장치의 제조를 복잡하게 만들었다. 고품량 주석 합금은 주석-납에 대한 대체물로 부각되었다. 하지만 이러한 고품량 주석 합금은

이전의 주석-납 합금보다 대략 30℃ 더 높은 용융 온도를 가지므로, 부품 조립 공정 온도의 상응하는 증가를 초래한다. 더 높은 공정 온도는 점점 더 고급 기능화되는 전기 인터커넥트에서 열-기계적 응력을 증가시킨다.

- [0010] 반도체 패키징과 인쇄 회로 기판 제조 통합으로서, 새로운 아키텍처와 프로세싱 체제의 엄격함을 견딜 수 있는 재료를 만들어내는데 실질적인 공학적 노력을 쏟아왔다. 예를 들어, 미세 회로를 제조하는데 사용되는 동박(구리 호일)의 미세구조는 대대적으로 제어된다. 또다른 예는 회로 기판을 만드는데 사용되는 복합 라미네이트가 될 것인데, 이것은 유동 특성, 유리 전이 온도, 열팽창 계수, 및 고품질 홀 형성을 제어하기 위해 광범위한 제품 개발을 겪었다. 포면 제조 화학 및 프라이머 코팅도 또한 광범위하게 특성화되고 최적화되었다. 베리어 금속과 표면 마무리가 엄격한 저항력(tolerances)에 적용되고, 납땜(솔더:solder) 접합점의 기계적 특성을 개선하고 주석 위스커와 같이 바람직하지 않은 미세구조가 형성되는 것을 방지하기 위해 도판트를 솔더 재료에 첨가한다.
- [0011] 상호연결 문제에 대한 많은 산업 요구조건을 만족시킬 수 있는 전도유망한 신규 물질 유형은 액상 소결 (TLPS) 재료인데, 이것은 신뢰할 수 있고 다용도의 전도성 물질로서 도입되었고, 이는 다양한 배열형태를 지지하기 위해 적용될 수 있었다. 주로 납-계열 상업화 합금을 용융제 바인더에서 구리 입자들과 혼합시켜 이 조성물을 만들었다.
- [0012] 상기 조성물은 종래의 납-주석 솔더와 같이 가공처리되고 솔더 습윤가능한 표면에 탄탄한 야금 접합지점을 형성할 수 있지만, 납땜과는 달리, 이 조성물은 가공처리 중에 본질적으로 금속 "열경화성 물질"을 생성하였다. 상기 "열경화성" 특성은 그 페이스트 재료를 회로 기판 위 또는 그 안에서 또는 단계 솔더가 일반적으로 요구되는 작업에서 사용될 수 있으며, 가공처리된 조성물은 본래의 공정 온도에서 재용융되지 않기 때문에 유리하였다.
- [0013] 이들 초기의 TLPS 재료는 자가-불활성 용융제(flux)를 갖는 간단한 "열경화성 솔더"로서 설계되었다. 이들 초기 TLPS 재료에 대한 요구조건은 그들이 야금학적으로 반응하여 고도로 전기적으로 전도성인 상호연결을 형성하고, 차후의 가열 처리를 통해 고체로 남아있고, 자가 불활성이고(self-inert), 상당히 땀질가능한 표면을 나타내는 것이었다. 형성된 금속 망상의 미세구조와 주변을 둘러싼 유기 매트릭스는 단지 전기 전도성이나 접착력과 같은 특성이 개선되는 정도까지만 최적화되었다. 상호연결(interconnection)의 크기는 상대적으로 컸고 가공처리된 TLPS 재료는 220℃를 초과하는 차후의 썬열 익스커션(thermal excursion)을 겪는 일이 드물었다.
- [0014] 초기의 TLPS 재료는 구성 재료로서 납의 이용가능성으로부터 이익을 얻었다. 납 계열 솔더는 낮은 공정 온도, 뛰어난 구리 습윤(wetting), 상당히 양호한 전기 및 열 전도성, 및 경화된 조성물에서 구리-주석 금속간 피복 구리 입자들 사이에 연성의, 납이 대부분인 브릿지를 제공한다. 존립가능한 구성성분 금속으로서 납의 제거는 그 기술의 잠재력을 실현하는데 상당한 도전을 나타냈다.
- [0015] 위에서 설명한 방법과 진보에도 불구하고, 여전히 비싸지 않고, 탄탄하며, 낮은 공정 온도, 및 전자 장치 내에서 몇몇 매우 중요한 접합지점에서 신뢰할 수 있는 전기 및 열 상호연결 전략을 제공할 수 있는 조성물과 그것의 제조 방법에 대한 요구가 존재한다. 본 발명은 그러한 조성물과 장치를 제공한다.

발명의 내용

해결하려는 과제

- [0016] **발명의 개요**
- [0017] 본 발명은 그것의 금속간 생성물과 상호연결된 망상조직은 물론이고, 야금 성분 선택의 높은 특이성을 갖는, 300℃ 미만의 온도에서 가공될 수 있는 야금 조성물에 관한 것이다. 이 조성물은 열-기계적 응력에 대해 높은 내성을 가지며 열에 안정한 벌크(bulk)와 계면의 전기적 및 열적 저항성을 갖는다. 이 조성물은 선택적으로 납이 없으며, 부착물과 주변 재료에 적용-특이적인 유기 화합물을 추가적으로 포함할 수 있다.
- [0018] 본 발명의 조성물에서 금속 구성성분은 유기 화학 반응과 유사한 것으로 생각될 수 있는 반응을 겪는다. 금속 시약이 도입되는 방법, 금속 시약의 비율, 그리고 매우 작은 양일지라도 다른 금속 종의 존재는 반응의 생성물에 상당한 영향을 준다. 본 발명 조성물의 반응에 의해 형성된 금속 생성물은 합금(고용체)과 금속간 화합물(특정한 비율의 원소를 갖는 결정질 구조) 둘다를 포함한다. 유기 화학에서 시약이 종종 촉진 기(예를 들어 할로젠 또는 파라-톨루엔설폰네이트와 같은 이탈기)와 함께 도입되기는 하지만, 본 발명 조성물에서 금속 시약의 일부는 원하는 최종 생성물의 형성을 촉진하는 금속 구성성분과 함께 도입된다. 또한 유기 반응처럼, 일부 본

발명의 조성물은 금속 구성성분을 채용하여 금속 반응에 대해 촉매적 효과를 만들어낸다.

[0019] 명료함을 목적으로, 반응을 겪어 금속간화합물 종들을 형성하는 본 발명 조성물의 금속 원소는 용어 "반응성 HMP 금속" 및 "반응성 LMP 금속"로 명명된다. 본 발명의 실행에 있어서, 상대적으로 고용점 반응성 금속 원소들 ($\geq 400^{\circ}\text{C}$)은 상대적으로 저용점 반응성 금속 원소들 ($<400^{\circ}\text{C}$)과 반응한다. 이 반응은 캐리어로 불리는, 하나 이상의 촉진 금속 원소에 의해 촉진된다. 금속 원소의 각각은 조성물에 미립자 형태로 존재한다. 입자들은 실질적으로 하나의 금속 원소이거나 2개 이상의 금속 원소의 합금의 입자들이 될 수 있다.

과제의 해결 수단

[0020] 본 발명의 어떤 실시예에서, 1차 반응성 LMP 금속은 입자들의 쉽게 분화되는 2개의 세트로 조성물내에 존재한다.

[0021] 보다 구체적으로는, 일부 실시예에서, 본 발명은 입자들의 혼합물을 포함하는 조성물을 제공하며, 이것은 적어도 하나의 고용점 금속을 포함하는, 약 30 질량% 내지 약 70 질량%의 제 1 금속 입자; 캐리어 금속 및 반응성 저용점 금속의 합금을 포함하는, 약 10 질량% 내지 약 60 질량%의 제 2 금속 입자(이때 반응성 저용점 금속은 고용점 금속과 반응하여 금속간 화합물을 형성할 수 있고); 적어도 40 질량%의 반응성 저용점 금속을 포함하는, 약 25 질량% 내지 약 75 질량%의 제 3 금속 입자; 및 유기 비히클을 포함한다. 일부 양태에서, 반응성 저용점 금속은 약 35 질량% 내지 약 50 질량%의 제 2 금속 입자, 예컨대 약 40 질량%의 제 2 금속 입자를 포함한다. 일부 양태에서, 반응성 LMP 금속은 적어도 90 질량%의 제 3 금속 입자를 포함한다.

[0022] 고용점 금속은 Cu, Ag, Al, Au, Pt, Pd, Be, Rh, Ni, Co, Fe, Mo 및 이들의 조합으로 구성되는 군으로부터 선택될 수 있으며; 또는 보다 구체적으로는 Cu, Ag, Al, Au, Ni, 및 이들의 조합으로부터, 그리고 특히 Cu, Ag 및 이들의 혼합물로부터 예컨대 Cu 또는 Ag로부터 선택될 수 있다. 제 1 금속 입자는 원소들의 혼합물, 또는 합금이 될 수 있고, 또는 실질적으로 하나의 원소로 이루어질 수 있다.

[0023] 반응성 저용점 금속은 Sn, Bi, Zn, Ga, In, Te, Hg, Tl, Sb, Se, Po 및 이들의 조합으로 구성되는 군으로부터; 또는 보다 구체적으로는 Sn, Bi, Ga, In 및 이들의 조합으로부터(예컨대 Sn) 선택될 수 있다. 본 발명의 특정 실시예에서는, 반응성 금속이 Sn이고, 고용점 금속은 Cu 또는 Ag 이다.

[0024] 캐리어 금속은 Bi, In, Pb, Ag, Cu, Sb, Au, Ni 또는 이들의 조합이 될 수 있다. 특정 양태에서는, 반응성 금속은 Sn이고 캐리어 금속은 Bi이다.

[0025] 제 2 금속 입자는 Bi/Sn, In/Sn, Pb/Sn, Sn/Pb/Bi, Sn/Ag, Sn/Cu, Sn/Ag/Cu, Sn/Ag/Cu/Sb, Bi/In/Sn, Sn/In/Ag, Sn/Sb, Au/Sn 및 이들의 조합으로 구성되는 군으로부터 선택된 합금 종속 중 적어도 하나를 포함할 수 있다.

[0026] 제 3 금속 입자는 반응성 저용점 금속의 합금을 포함하거나 또는 본질적으로 원소 형태인 반응성 저용점 금속으로 이루어질 수 있다. 특정 양태에서는, 제 3 금속 입자는 적어도 90 질량%의 반응성 저용점 금속을 포함한다.

[0027] 본 발명의 특정 양태에서는, 저용점 (LMP) 금속은 Sn이고 고용점 (HMP) 금속은 Cu이며, 제 1 금속 입자의 모든 Cu를 Cu/Sn 금속간 화합물로 변환시키기에는 불충분하게 제 2 금속 입자에 Sn이 존재한다. 또다른 실시예에서, 실질적으로 제 1 금속 입자내의 모든 Cu를 Cu/Sn 금속간 화합물로 변환시킬 수 있는 충분한 Sn이 제 2 금속 입자 뿐만 아니라 제 3 금속 입자에 존재한다.

[0028] 또다른 실시예에서, 고용점 금속은 온도 T_1 에서 반응성 저용점 금속과 함께 금속간화합물 종을 형성하는데, 이때 T_1 는 약 80°C 내지 약 300°C 사이의 범위이며, 또한 금속간화합물 종들이 T_1 보다 적어도 10°C 이상 높은 최소 용융 온도를 가진다는 단서를 갖는다. 금속간화합물 종들은 더욱 결합되어 상호연결된 망상조직을 형성할 수 있다.

[0029] 본 발명의 일부 양태에서, 제 2 금속 입자는 온도 T_1 (즉, 약 80°C 내지 약 300°C 사이, 또는 약 100°C 내지 약 230°C 사이, 예컨대 190°C - 210°C)에서 용해하고 제 3 금속 입자는 그렇지 않다.

[0030] 입자들은 유리, 세라믹 또는 폴리머 코어와 같은 비-금속 코어 위에 금속 코팅을 갖는 것을 포함할 수 있다. 또다른 실시예에서, 하나 이상의 입자는 체로 걸러져(sieved) 특정 크기(약 $20\ \mu\text{m}$ 이 될 수 있음)를 넘는 입자들이 제거될 수 있다.

[0031] 또한 본 발명에 의해서 약 80°C 내지 300°C 의 온도에서 가열 처리함으로써 앞서 언급한 조성물로부터 형성된 금

속간 생성물이 제공된다.

[0032] 선결(先決, predetermined)된 비율의 제 1 금속 입자, 제 2 금속 입자, 제 3 금속 입자 및 유기 비히클을 결합하여, 성분들의 혼합물을 형성함으로써 본 발명의 조성물을 제조하는 방법이 또한 제공되며, 이때 유기 비히클은 혼합물에서 입자들을 함께 붙들며, 일반적으로 용융제(flux)를 포함한다. 유기 비히클은 또한 수지, 폴리머, 반응성 모노머, 휘발성 용제 및 다른 충전재를 함유할 수 있다.

발명의 효과

[0033] 본 발명은 본원에 기재된 입자 혼합 조성물의 상당량을 적어도 2개의 부품들의 조립에 적용하고, (여기에서 적어도 2개의 부품들은 전기적으로 열적으로 함께 연결되며) 조성물을 온도 T_1 로 가열함으로써, 전기적으로 그리고 열적으로 전도성인 상호연결을 만드는 방법을 제공하며, 이때 T_1 는 약 80℃ 내지 약 300℃ 사이의 온도이며(예를 들어 약 100℃ 내지 약 200℃), 여기에서 조성물내의 고융점과 저융점 금속들은 반응하여 금속간 화합물을 형성하고, 이때 금속간 화합물은 전기적으로 그리고 열적으로 전도성이다. 일부 양태에서는, 금속간화합물 종들은 가공처리 온도 T_1 보다 적어도 10℃ 더 높은 용융 온도를 갖는다.

도면의 간단한 설명

[0034] 도 1은 190℃에서 비-표준 합금 TLPS 조성물의 가공처리를 보여주는 시차 주사 열량측정법(DSC) 다이어그램이다.

도 2는 가공처리된, 비-표준 합금 TLPS 조성물의 DSC 분석을 나타낸다.

도 3은 도 1의 조성물의 혼합된-합금 원소 당량의 190℃ 가공처리를 보여주는 DSC 다이어그램이다.

도 4는 도 3에서 보여준 가공처리된 TLPS 조성물의 DSC 분석을 보여준다.

도 5는 190℃에서 구리와 함께 SnIn 과 SnBi 합금 모두를 포함하는 TLPS 조성물의 가공처리를 보여주는 DSC 다이어그램이다.

도 6은 도 5의 가공처리된 TLPS 조성물의 DSC 분석을 보여준다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0035] 상세한 설명

[0036] 전술한 개괄적인 설명과 하기의 상세한 설명 모두 단지 본보기를 보이고 설명을 하기 위한 것이며 청구된 본 발명을 제한하는 것이 아니다. 본원에서 사용된 것과 같이, 단수형의 사용은 다르게 특별히 언급되지 않는 한, 복수를 포함한다.

[0037] 본원에서 사용된 바와 같이, "또는"은 다르게 언급되지 않는 한, "및/또는"을 의미한다. 또한 "포함한다"와 "포함되는"과 같은 다른 형태는 물론이고, 용어 "포함하는(including)"의 사용은 "포함하는(comprising)"으로 이해되고 비제한적이다. 본원에서 사용된 섹션 제목은 단지 구조상의 목적이며 기재된 주제를 제한하는 것으로 해석되서는 안된다.

[0038] 본원에서 나올 때 마다, 예컨대 "1 내지 20"와 같이 정수 값의 숫자 범위는 주어진 범위 내의 각각의 숫자를 나타낸다; 예를 들어, "1 내지 20 퍼센트"는 백분율이 20 %를 포함하여 20 %까지 1%, 2%, 3%, 등이 될 수 있음을 의미한다. 예컨대 "1.2% 내지 10.5%"처럼, 본원에서 기재된 범위가 소수값을 포함하는 곳에서 그 범위는 주어진 범위내에서 지시된 가장 작은 증분의 각각의 소수 값을 나타내며; 예를 들어 "1.2% 내지 10.5%"는 1.2%, 1.3%, 1.4%, 1.5%, 등 그리고 10.5%를 포함하여 10.5%까지의 백분율이 될 수 있음을 의미하며; 한편 "1.20% 내지 10.50%"는 1.20%, 1.21%, 1.22%, 1.23%, 등, 10.50%포함하여 10.50%까지가 될 수 있음을 의미한다.

[0039] 용어, 정의 및 약어

[0040] 본원에서 사용된 바와 같은 용어 "약"은 "약"으로 언급된 수가 열거된 수 +(더하기) 혹은 -(빼기) 열거된 수의 1-10%를 포함한다는 의미이다. 예를 들어, "약" 100 도는 95-105 도 또는 상황에 따라서 99-101 도 만큼 작은 것을 의미할 수 있다.

[0041] 용어 "합금"은 2개 이상의 금속, 그리고 선택적으로 추가의 비-금속을 함유하는 혼합물을 뜻하며, 여기에서 합

금의 원소들은 함께 용합되거나 용융될 때는 서로에 용해된다.

- [0042] 본원에서 사용된 바와 같은 "**용융제(flux)**" 은 금속의 용합을 촉진하고 특히, 금속 산화물의 형성을 제거하고 방지하는 물질, 때로는 산 또는 염기를 나타낸다.
- [0043] 본원에서 사용된 바와 같은 용어 "**용융 온도**" 또는 "**용융점**" 은 온도 대기압에서 고체가 액체가 되는 온도(지점)을 말한다.
- [0044] 본원에서 사용된 바와 같은 용어 "**높은 용융 온도 금속**", "**고융점 금속**" 또는 "**HMP 금속**" 은 약 400℃와 동일하거나 이보다 더 높은 용융 온도를 갖는 금속을 말한다.
- [0045] 본원에서 사용된 바와 같은 용어 "**낮은 용융 온도 금속**", "**저융점 금속**" 또는 "**LMP 금속**"은 약 400℃보다 낮은 용융 온도를 갖는 금속을 말한다.
- [0046] 용어 "**공용**" 은 구성성분 부분들이 용융점이 가능한 가장 낮게되는 비율로 존재하며, 그 구성성분들이 동시에 용융하는 혼합물 또는 합금을 뜻한다. 따라서, 공용 합금 또는 혼합물은 단일 온도에서 응고된다.
- [0047] 용어 "**비-공용**(공용이 아님)" 은 공용 성질을 갖지 않는 혼합물 또는 합금을 나타낸다. 따라서, 비-공용 합금이 응고될 때는, 그것의 성분들은 다른 온도에서 응고되며, 용융 범위를 나타낸다.
- [0048] 용어 "**시차 주사 열량측정법**" ("DSC") 은 샘플과 기준물의 온도를 올리는데 필요한 열의 양의 차이가 온도의 함수로서 측정되는 열 분석 방법을 나타낸다.
- [0049] 용어 "**소결**" 은 금속 분말 입자들의 인접한 표면이 열에 의해 결합되는 과정을 뜻한다. "**액상 소결**" 은 고체 분말 입자가 액상과 동시에 공존하는 소결의 형태를 뜻한다. 혼합물의 치밀화 및 균질화는 금속들이 서로 확산되고 새로운 합금 및/또는 금속간화합물 종을 형성할 때 일어난다.
- [0050] 용어 "**과도적 액상 소결**" 또는 "**TLPS**" 은 분말과 관련하여, 금속의 균질화의 결과로서 액체가 단지 짧은 시간동안만 존재하여 고체 합금 및/또는 금속간화합물 종들의 혼합물을 형성하는 과정을 설명한다. 액상은 주변의 고상에서 높은 용해도를 가지며, 따라서 고체 안으로 신속하게 확산되고 결국은 응고된다. 확산 균질화는 그것의 평형 용융 온도 이상으로 혼합물을 가열할 필요 없이 최종 조성물을 생성한다.
- [0051] 용어 "**가공처리(processing) 온도**" 또는 "**T₁**" 은 반응성 금속과 HMP 금속 (이들 둘다 본원에서 아래에 상세하게 설명되고 논의된다)이 금속간화합물 종들을 형성하는 온도를 말한다.
- [0052] 용어 "**금속간 화합물**" 또는 "**금속간화합물 종**" 은 그것의 구성성분 금속들의 구조가 다른 뚜렷한 구조를 갖는, 특정 비율의 2개 이상의 금속 원자로 구성되는 고체 물질을 말한다.
- [0053] 용어 "**벌크 저항률**" 은 "벌크(in bulk)상태인," 즉, 형태나 크기에 상관없는, 재료의 고유 전기 저항을 말한다.
- [0054] 분말 야금을 포함하는 TLPS 조성물에서, 2개 이상의 상대적으로 저융점 (LMP) 합금과 상대적으로 고융점 (HMP) 금속이 미립자 형태로 혼합된다. 각각의 합금내의 적어도 하나의 원소는 HMP 금속과 반응한다. 일부 실시예에서, 반응성 LMP 금속 합금은 공통으로 하나의 반응성 LMP를 공유한다. 온도가 가공처리 온도 T₁로 상승되면, 합금 입자 유형들의 한가지 이상은 용융된다. 이러한 전이는 시차 주사 열량측정법 (DSC)에서 흡열 발생으로서 관찰될 수 있다. 상대적으로 LMP 합금 내의 반응성 원소(들)은 그후 수용성 HMP 금속과 반응하여 금속간 화합물을 형성한다. 잔류 LMP 합금 구성성분들은 새로운 합금 조성물을 형성한다. 금속간화합물 종들의 형성은 DSC에 의해 발열 발생으로서 관찰될 수 있다. 이와 같이, 전형적인 TLPS DSC "특징(signature)"는 흡열과 뒤이은 발열이다. LMP 합금 및 수용성 HMP 금속으로부터 반응성 원소(들)의 확산과 반응은 반응 물질이 완전히 고갈되어, 더이상 공정온도에서 용융된 상이 존재하지 않을 때까지 또는, 반응이 혼합물을 냉각시킴으로써 켄칭(quench)될 때까지 계속된다. 냉각 후에, 본래의 용융 온도를 훨씬 넘어서는, 차후의 온도 익스커션(excursion)은 혼합물의 본래 용융 특징(signature)을 재현하지 않는다. 이것은 전형적인 낮은 온도 가공처리 후 과도적 액상 소결된 금속 혼합물의 "특징"이다.
- [0055] 그러나, 위에서 시사한 바와 같이, TLPS 은 LMP 금속과 HMP 금속의 비율에 의해 제한되며, 그것 중 하나는 금속간화합물 종들의 가공처리 동안에 고갈될 수 있다. 선행기술 단일 LMP 합금 TLPS 조성물에서, LMP 금속이 과잉일 때는 덜 바람직한 성질을 갖는 잔류 운반 금속 (예를 들어 Bi)이 또한 가공처리된 혼합물에서 더 큰 비율로 존재한다. 반대로, HMP 금속이 과잉일 때는, 일단 합금내의 LMP 금속이 고갈되면, HMP 금속과 LMP 금속 사

이에서 추가의 금속간 화합물을 형성하는 능력이 소진되었다.

- [0056] 본 발명은 제 3 성분을 TLPS 혼합물에 추가하면, TLPS 중에 금속간 화합물로 전환되는 HMP 과 LMP 금속 모두의 양을 엄청나게 향상시킨다는 관찰에 근거한다. 이러한 제 3 성분은 원소 또는 고농축 형태의 LMP 금속을 포함한다. 따라서, 제 3 성분은 높은 비율의 LMP 금속을 갖는다. 특정 이론에 구속되지 않기를 바라면서, LMP 합금에서의 LMP 금속이 HMP 금속과 비가역적으로 반응 할 때, 원소 형태의 LMP 금속은 LMP 금속 합금에서 LMP 금속을 보충한다고 믿어진다. 예상외로, 이러한 보충은 심지어 선택된 공정 온도가 LMP 풍부 입자들의 용융 온도 아래일때도 일어난다. 이렇게 하여, 더 많은 금속간 화합물이 고정된 양의 HMP 금속 또는 LMP 금속 합금 중 어느 하나로부터 형성될 수 있는 반면, 동시에 잔류 LMP 합금과 그 합금화 캐리어 금속의 바람직하지 않은 특성을 줄인다.
- [0057] **본 발명의 조성물**
- [0058] 따라서 본 발명은 유기 비히클내에 3가지 유형의 금속 입자 [: 고용점 금속 입자, 저융점 금속 합금 입자, 그리고 예컨대, 원소 또는 농축된 형태의 저융점 금속과 같이, 높은 퍼센트 비율의 저융점 금속을 함유하는 입자]를 함유하는 조성물을 제공한다. 특정 실시예에서, 조성물은 하기의 성분들을 포함한다:
- [0059] (A) 적어도 하나의 HMP 금속을 포함하는, 약 30 질량% 내지 약 70 질량%의 제 1 금속 입자(즉, 고용점 금속 입자 또는 HMP 금속 입자);
- [0060] (B) 반응성 LMP 금속 합금을 포함하는 약 10 질량% 내지 약 60 질량%의 제 2 금속 입자(즉, 저융점 금속 합금 입자 또는 LMP 금속 합금 입자); 및
- [0061] (C) 적어도 40 질량%의 LMP 금속을 포함하는 약 25 질량% 내지 약 75 질량%의 제 3 금속 입자 성분(즉, 저융점 금속-풍부 입자 또는 LMP 금속-풍부 입자, 이것은 저융점 금속이 농축되거나 또는 실질적으로 순수한, 원소 형태의 저융점 금속을 포함할 수 있다).
- [0062] 본 발명의 조성물에는 또한 아래에서 더욱 상세하게 설명되는 바와 같이, 입자들을 함께 혼합물로서 그리고 용융제(flux)로서 붙잡는 역할을 하는 유기 비히클이 존재한다.
- [0063] 제 1 금속 입자 (성분 (A), 상기)는 적어도 하나의 HMP 금속을 포함하며, 이것은 일반적으로 약 400℃가 넘는 용융점을 가질 것이다. 일부 실시예에서, HMP 금속을 함유하는 금속 입자는 실질적으로 하나의 원소이다. 본원에서 사용된 바와 같이, "**실질적으로**" 는 실질적으로 함유하는으로 기재되는 종들 또는 원소가 적어도 약 95%, 일반적으로 적어도 약 98%, 종종 적어도 약 99% 그리고 가장 빈번하게는 적어도 약 99% 인 성분을 말한다. 따라서, 실질적으로 하나의 원소로 만들어지는 HMP 금속은 5% 까지 불순물을 함유할 수 있다.
- [0064] HMP 금속은 조성물의 전체 금속 구성성분의 약 30 질량% 내지 약 70 질량%를 구성한다. 사용될 수 있는 전형적인 HMP 금속(들)에는 Cu 그리고 예컨대 Ag, Pd, Au 또는 Pt와 같은 귀금속이 포함된다. Cu는 상대적으로 비싸지 않고, 풍부하며, 일반적으로 전자 회로 원소로 사용되는 야금과 용화성이 있으며, 1,000℃를 초과하는 용융 온도를 가지며, 연성이고, 다양한 분말 형태로 쉽게 이용가능하며, 뛰어난 전기 및 열 전도체이다.
- [0065] 또한 Ag 는 특히, 구리 입자가 차후의 제조 공정 (예를 들어 구리 에칭)에 취약한 어플리케이션이나, 귀금속의 사용이 실질적으로 최종 금속 부하(loading)를 증가시키고 그로인해 용융제(flux)의 필요성을 감소시키는 경우에, 본 발명 조성물에 사용하기 위한 HMP 금속으로서 특별히 고려된다.
- [0066] 어떤 용도에서는, Al, Pd, Be, Rh, Ni, Co, Fe, Mo 가 HMP 금속으로서 본 발명에 사용하기 위한 대안적인 선택으로서 선택될 수 있다. 이들 금속들의 각각은, 또는 그들중 한가지 이상은 Cu, Au, Pt, Ag, 또는 이들의 어떠한 조합 중 어떤 것을 대신하여 또는 그것에 더하여 사용될 수 있다(즉, 허용가능한 HMP 금속(들)로서 위에 열거한 금속(들)의 대체물이나 보충물로서).
- [0067] 성분 (B), 제 2 금속 입자는 적어도 하나의 캐리어 금속과 함께 합금화된 반응성 LMP 금속을 포함한다. LMP 금속 합금은 적어도 10 질량%의 낮은 용융 온도 금속 성분(즉, 성분 (B) 및 (C))을 나타낸다. 온도 T_1 (아래에서 논의됨)에서, LMP 금속 합금은 용융된다.
- [0068] 성분 (C), LMP 금속의 합금 또는 원소형태가 될 수 있는 LMP 금속-풍부 입자는 적어도 40 질량%의 반응성, LMP 금속을 함유한다. 특정 실시예에서, LMP 금속-풍부 입자의 적어도 약 60%, 70%, 80 %, 90%, 95% 또는 그 이상, 예컨대 96%, 97%, 98, 99 또는 100% 는 LMP 금속이다. LMP 금속이 주석인 경우에, LMP 금속-풍부 입자는 90-100% Sn을 함유할 수 있고, 잔부는 캐리어 금속, 예컨대 Bi, In, Pb, Au, Ni 또는 이들의 조합이다.

- [0069] 일반적으로, 성분 (B)와 (C)의 LMP 금속은 동일한 금속이다. 그러나, 약 400℃ 미만의 용융 온도를 갖는 금속의 조합(결합) 또한 본 발명에 사용하기 위해 고려된다. 게다가, 성분 (B)의 LMP 금속은 반드시 그럴 필요는 없지만, 성분 (C)의 LMP 금속과 동일한 금속이 될 수도 있고 종종 그러하다. LMP 금속이 성분 (B)와 (C)에서 다를 때는, LMP 금속은 각각 독립적으로 성분 (A)의 HMP 금속(들)과 함께 금속간 화합물을 형성해야 하고 성분 (B)의 LMP 합금에서 적절하게 교체가능해야 한다.
- [0070] 일부 실시예에서, 제 2 금속 입자 (성분 (B))는 공용이고, LMP 금속-풍부 입자 (성분 (C))는 비-공용이다. 조성물은 금속 첨가제(들)를 더 포함할 수 있는데, 이것은 과도적 액상 소결 반응의 생성물이 의도된 적용을 위한 속성(자질)들의 최적의 조합을 가지도록 당업자들에게 의해 선택될 수 있다. 일반적으로 고려될 수 있는 속성에는 열에 안정한 저항, 연성, 높은 전기 및 열 전도성, 주변 재료와 유사한 열 팽창 계수 등이 포함된다.
- [0071] Sn 은 성분 (B)의 합금에서 반응성 LMP 금속으로서 이용될 수 있는 금속의 한가지 예이고, 물론 Sn는 또한 본원에 개시된 바와 같이, LMP 금속-풍부 입자가 "주석-풍부" 합금이 되도록 성분 (C)의 금속 입자에도 존재할 수 있다.
- [0072] 본 발명의 입자에 사용될 수 있는 다른 반응성 LMP 금속(들)의 비제한 예는 Bi, Zn, Ga, In, Te, Hg, Tl, Sb, Se, Po 및 이들의 조합을 포함한다. 또다른 금속 또는 합금은 그것이 위에서 언급한 성분 (A)의 금속과, 즉, 적어도 하나의 HMP 금속과 반응하는 구성성분 원소라면, 또한 사용될 수 있다.
- [0073] 성분 (B)의 합금 입자, LMP 금속 합금에 사용될 수 있는 캐리어 금속(들)의 비제한적인 예는 Bi, In, Pb, Ag, Cu, Sb, Au 및 이들의 조합을 포함한다. 따라서, 제 2 금속 입자는 위에서 언급된 어떠한 반응성 금속(들)과 위에서 언급한 어떠한 캐리어 금속(들)로부터 형성될 수 있고, 반응성 금속(들)과 캐리어 금속(들) 둘다 하기의 본보기 합금 종족 중 하나 이상의 미립자로서 혼입될 수 있다: Sn/Bi, In/Sn, Pb/Sn, Sn/Pb/Bi, Sn/Ag, Sn/Cu, Sn/Ag/Cu, Sn/Ag/Cu/Sb, Bi/In/Sn, Sn/In/Ag, Sn/Sb, Au/Sn 및 이들의 조합. 일부 실시예에서, LMP 금속 합금은 Sn/Bi 합금이다.
- [0074] 제 2 금속 입자에서 반응성 및 캐리어 금속들 사이의 비는 변할 수 있다. 예를 들어, 성분 (B)의 제 2 금속 입자는 약 35 질량% 내지 약 65 질량%의 반응성 LMP 금속, 예컨대 약 40 질량% 또는 약 42 질량%의 반응성 금속을 포함하고, 나머지 잔부는 캐리어 금속일 수 있다. 위에서 언급한 본보기 실시예에서, LMP 금속 합금은 Sn/Bi 합금인 경우에, 그것은 약 42 질량%의 Sn, 또는, 그렇지 않으면, 약 40 질량%의 Sn와, 나머지 잔부는 Bi를 포함할 수 있다.
- [0075] 위에서 언급한 성분들의 원하는 조성물은 쉽게 이용가능한 합금과 원소 금속의 조합을 사용하여 달성될 수 있다. 성분 (B)를 포함하는 금속과 합금 분말 성분들의 결합은 적어도 하나의 분말을 포함하는데 이것은 용융하고 선택된 공정 온도 T_1 에서 다른 구성성분과 상호작용할 것이다. 본 발명의 TLPS 조성물에 결합될 때, 상업적으로 이용가능한 합금은 결합하여 원하는 합금 조성물을 현장(원위치에) 형성한다. 환언하면, 성분 (B)와 (C)를 함유하는 입자들의 혼합물은 공정 온도에서 그것의 일부가 용융되어, 조성물에서 어떠한 폴리머의 유리화(vitrification)에 앞서, 합금내에서 반응성 LMP 금속 종들의 완전한 보충을 제공하여, 위에서 언급한 성분 (A)에 있는 HMP 금속과의 반응에 이용가능하게 되도록 한다.
- [0076] 더 높은 용융 LMP 금속 및/또는 합금 조성물 (C)이 공정 온도 T_1 아래의 용융점을 가지고 따라서 공정 온도에서 용융되는 합금 조성물(들) (B)에 가용성이라면, 결합될 금속과 합금 중 모두가 계획된 공정 온도 아래에 용융점을 가질 필요는 없다. 성분 (B)의 LMP 금속이 성분 (A)의 HMP 금속과 반응함으로써 고갈되므로, 성분 (B)와 (C) 입자들 모두가 용융된 합금의 재생을 통해 이용가능하게 만들어지는것을 보장하기 위해서, 성분 (B)의 미립자 종들의 적어도 10% 는 용융되어야 한다.
- [0077] 위에서 언급한 유기 비히클은 단순히, 적용의 용이함을 위해 혼합물을 함께 유지시키고 다양한 입자들을 서로에 아주 근접하게 유지시키는 역할을 하는, 금속 입자를 위한 캐리어가 될 수 있다. 보다 일반적으로, 유기 비히클은 특히 HMP 금속이 비-귀금속일 때, 용융제(flux) 활성을 제공하며, 가공처리 동안에 용융제가 제거될 기회가 없는 어플리케이션에서 용융제를 자가-불활성화하기 위한 메커니즘을 제공할 수 있다. 유기 비히클은 TLPS 조성물이 가공처리 전에 원하대로 성형되도록 하는 열가소성 재료를 더 포함할 수 있으며, 가공처리 동안에 반응하여 금속 망상조직과 함께 상호침투하는 매트릭스를 형성하는 특정 폴리머 전구체 및/또는 다른 화합물과 용제를 함유할 수 있다.
- [0078] 유기 반응에서 용제가 그러하긴 하지만, 본 발명 조성물의 유기 비히클은 금속 시약을 반응에 이용가능하게 만

들고 환경으로부터 그들을 보호하는 역할을 한다. 몇가지 인자들은 유기 반응을 위한 적절한 용제의 선택을 결정한다(예를 들어 극성, 프로톤(protic) 또는 반양성자성, 물과의 혼화성 등). 마찬가지로, 본 발명의 조성물에서 유기 비히클은 적절한 속성을 위해 선택된다. 유기 비히클의 가장 중대한 속성은 그것이 금속 시약의 표면으로부터 금속 산화물을 제거하여 상기 시약을 반응에 이용가능하게 만들어야 한다는 것이다. 금속 산화물의 제거는 "플럭싱(fluxing)" 으로 불리며, 유기 산과 강염기를 포함하여, 당업자들에게 알려진 다양한 화학 종들에 의해 수행될 수 있다. 유기 비히클의 다른 속성들은 적용-특이적인 기준으로 선택된다. 예를 들어, 본 발명 금속 조성물이 솔더 페이스트 대체물로 채용되는 용도에서, 전체의 유기 비히클은 가공처리동안 휘발하도록 조제될 수 있다. 본 발명 금속 조성물이 비금속 표면 위의 부착 코팅에 채용되는 용도에서는, 유기 비히클은 접착성을 위해 선택될 수 있다. 따라서, 플럭싱 성분에 대한 필요성은 제외하고(별도로 하고), 유기 비히클은 당업계에 잘 알려져있는 다양한 유기 구성성분을 포함할 수 있다.

[0079] 유기 비히클의 구성성분은 특정한 부착(deposition), 가공처리, 접착력 또는 다른 성능 특성을 만족시키는 어플리케이션의 요구조건에 따라 통상의 당업자들에게 의해 선택될 수 있다. 일부 실시예에서, 유기 비히클은 용융제와 수지의 조합으로 구성될 수 있다. 당업자들은 이들 목적을 위해 통상적으로 사용되는 제품으로부터 용융제와 수지 둘다 선택할 수 있다. 비제한 예로서, 에폭시 재료가 수지로 사용될 수 있다.

[0080] 본 발명은 또한 납이 없는 혼합된 입자 조성물을 제공한다. 기존의 납-함유 조성물의 대체물로서, 위에서 기재된 성분 (B) 및 (C)를 위해, 납이 없으며 반응성인 적절한 금속과 이것의 합금의 선택은 특히 힘들다. 첫번째 제한하는 제약은 공정 온도이다. 납은 과거에 그것의 상대적으로 낮은 용융 온도 때문에 이 점과 관련하여 선택되었는데, 이것은 전자제품 어플리케이션과 용화성이 높지만, 이제는 독성으로 인해 배제된다. TLPS 조성물에 대한 공정 온도는 전자 물품의 제조에 사용되는 다른 재료가 손상되지 않도록 충분히 낮아야 한다. 일반적으로 300°C의 상한이 폴리머 성분을 포함하는 전자 어플리케이션을 위한 최대 공정 온도로서 설정된다. 230°C 이하의 공정 온도는 많은 어플리케이션에 바람직한 것으로 간주된다. 따라서, 반응성 금속과 그것의 합금에 대한 후보는 주석, 비스무트, 인듐, 갈륨, 및 아연을 포함한다. 적합하긴 하지만, 원소 또는 합금화 Ga 및 In는 엄청나게 고가이며 쉽게 이용할 수 없다. 원소 또는 합금화 Zn는 많은 통상의 회로 완성품과 용화할 수가 없다. 대부분이 Sn으로 구성되는 합금은 바람직한 프로세스 윈도우를 초과하는 용융 온도를 가지며, Sn 위스커의 형성을 위한 잠재가능성을 생성할 뿐 아니라, Cu 입자와 함께 사용되면, 배타적인 최종 산출물로서 취성의 Cu/Sn 금속간 화합물을 형성할 수 있다. 따라서, 다른 원소의 첨가가 희망될 수 있는 특정한 특성들을 얻는데 도움이 될 수는 있지만, Bi와 Sn의 합금이 속성(자질)들의 바람직한 조합을 나타낸다.

[0081] Bi와 Sn의 합금은 위에서 개략적으로 설명한 요구조건들의 많은 것을 만족시킨다; 하지만, 그들은 또한 몇가지 약점들을 나타낸다. Bi와 Sn의 합금은 미립자 형태로 적당한 가격으로 쉽게 이용가능하다. 가장 흔한 Bi-Sn 합금의 용융 온도는 약 135°C 내지 약 200°C의 범위 내에 있다.

[0082] Bi/Sn 합금 중의 Sn과, Sn 이 Cu와 반응할 때 형성된 금속간 화합물은 모두 매우 양호한 전기 및 열 전도체이다. 잔류 원소 Bi 와 TLPS 반응에 의해 형성된 Cu/Sn 금속간 화합물은 각각 전형적인 차후의 가열 처리와 테스트의 범위 밖에 있는 용융 온도를 갖는다. Sn 와 Bi 는 독성으로 간주되지 않고 모든 전형적인 금속 회로 완제품(finishes)과 용화가능하다. 불행하게도, Bi와 Cu/Sn 금속간 화합물 둘다 취성이고 따라서 기계적 응력에 노출될 때 손상되기 쉽다. 게다가, 원소 Bi 는 불량한 전기전도체이고 매우 불량한 열 전도체이다.

[0083] 위에서 언급한 성분 (A)의 HMP 금속으로서 Cu 또는 귀금속과 함께 사용된 Bi 과 Sn 합금은 바람직한 특성을 제공할 수 있고 본 발명은 약점을 최소화하는 방식으로 이 야금을 채용하는 수단을 제공한다. Bi 의 낮은 전기 및 열 전도성과 취성은 주요한 약점이다. 따라서, 조성물에서 Bi의 비율을 최소화하는 것이 바람직하다. 이는 공지된 공용 합금, 및 다른 쉽게 이용가능한, 상업화 Bi/Sn 합금에서보다 더 높은 비율의 주석을 갖는 합금 조성물을 생성함으로써 성취될 수 있다.

[0084] 게다가, 잔류하는 후(post)-TLPS 합금을 보다 연성 또는 전도성으로 만들어주는 다른 금속과 함께 Bi를 결합시키는 것이 바람직할 수 있다. 이론적으로는 원하는 원소들을 함께 원하는 비율로 용융(제련)시키고 LMP 금속 합금의 입자들을 제조함으로써 맞춤 합금 조성물을 생성하는 것이 가능하겠지만, 실제로는 특히 3가지 이상의 원소의 구성성분이 포함되어 있을때는, 특정 비율의 원소가 각각의 입자들에 존재하는 입자들을 제조하는 것이 어려울 수 있다. 일부 실시예에서, 상업적으로 쉽게 이용가능한 합금의 블렌드의 사용을 통해 Bi를 최소화하고 개질할 수 있다.

[0085] 앞에서 말한 논의에서는 Sn 와 Bi의 합금이 본 발명의 실시예로서 제시되지만, 가공처리 후에 특정한 야금 조성물과 그에 따른 미세구조를 달성하기 위해, 합금과 금속 입자들을 혼합하는 본 발명의 개념은 다른 금속 시스템

과 응용품에 폭넓게 적용가능한 것으로 이해된다. HMP 금속과 결합하여 추가의 반응성 LMP 금속(들)을 사용하는 것은 또한 최적의 특성을 갖는 TLPS 반응 산출물을 얻기 위해 고려된다. 이론에 구속되기를 바라지는 않지만, 첨가제 금속이 TLPS 조성물의 가공처리 중에 그레인(결정립) 구조, 상호확산의 정도, 및 성분 (A), (B) 및 (C)로부터 매트릭스의 형성속도를 바꾼다고 믿어진다. 또한 이들 구조적 변경이 특정한 적용을 위한 조성물에 다양한 이점들(예컨대 더 큰 유연성을 촉진하는 등)을 제공한다고 믿어진다. 선택적인 금속 첨가제가 분리된 입자들로서 또는 그 위의 코팅으로서 첨가될 수 있고 또는 HMP 금속 또는 위에서 언급한 입자들의 반응성 금속들 중 하나와 함께 미리-합금화될 수 있다. 미립자 첨가제의 크기는 대략 나노미터 정도에서 약 20 μm 내지 약 100 μm 의 범위가 될 수 있다. 이러한 첨가제의 비제한 예는 B, Al, Cr, Fe, Ni, Zn, Ga, Ag, Pd, Pt, Au, In, Sb, Bi, Te, Mn, P 및 Co, 및 이들의 조합을 포함한다.

[0086] 본 발명은 또한 위에서 설명한 조성물을 제조하기 위한 방법을 제공한다. 위에서 설명한 성분들과 금속 입자들의 각각은 상업적으로 이용가능한 재료중에서 선택될 수 있다. 성분 (A), (B) 및 (C)는 바람직한 크기의 입자, 예를 들어, 약 1 μm 내지 약 20 μm 사이의 직경을 갖는 입자의 형태로 제조될 수 있다. 그다음 각각의 성분의 적절한 양을 계량하고, 공지된 방법을 사용하여 3가지 성분들을 결합하고 함께 혼합시킬 수 있다. 최종 조성물은 하나 이상의 입자 크기 또는 입자 분포가 조합되어 혼합된, 한가지 이상의 유형의 입자들을 포함할 수 있다.

[0087] 일부 실시예에서, 조성물의 금속 입자의 적어도 하나의 유형은 비-금속 코어 위에 금속 코팅을 포함할 수 있다. 이러한 비-금속 코어는 유리, 세라믹 또는 폴리머 재료로 이루어질 수 있다. 일부 실시예에서, 그 입자들은 체로 걸러져 특정 크기를 넘는 입자들을 제거하거나 또는 특별히 원하는 입자 크기 분포에 도달시킬 수 있으며, 예를 들어, 약 20 μm 인 최대 입자 크기를 달성할 수 있다.

[0088] 제조 후에, 조성물은 그후 다양한 용도에 사용될 수 있다. 예를 들어, T_1 의 온도 또는 대략 T_1 의 온도에서 가공처리 한 후에, 금속간화합물 종들이 약 1 내지 약 60 분 사이 동안에, 위에서 설명한 성분 (B) 및 (C)의 LMP 금속 합금의 반응성 금속과 위에서 설명한 성분 (A)의 HMP 금속 사이에 형성될 수 있다.

[0089] 일부 실시예에서, 입자 (B)와 (C)에 있는 반응성 LMP 금속이 Sn이고, HMP 금속 (입자 A)이 Cu일 때, Cu 의 전체량을 Cu-Sn 금속간 화합물로 변환시키기에는 Sn이 불충분하게 존재한다. 다른 실시예에서, Cu의 전체량을 Cu-Sn 금속간 화합물로 변환시키기에는 Sn의 양이 충분하다. 또다른 실시예에서는, Sn의 양이, Cu를 6:5 몰비 Cu-Sn 금속간 화합물로 변환시키기에 충분한 양을 초과(과잉)한다. 만약 Sn의 양이 너무 과도하면, 과잉의 Sn은 조성물에 존재하는 한가지 이상의 다른 원소들과 합금화되어, 약 80 $^{\circ}\text{C}$ 내지 약 300 $^{\circ}\text{C}$, 일반적으로 약 100 $^{\circ}\text{C}$ 내지 약 250 $^{\circ}\text{C}$, 종종 약 150 $^{\circ}\text{C}$ 내지 약 230 $^{\circ}\text{C}$, 그리고 가장 빈번하게는 약 190 $^{\circ}\text{C}$ 내지 약 210 $^{\circ}\text{C}$ 사이의 범위에 있는 온도 T_1 에서 잔류하는 용융 상이 존재하게 된다.

[0090] 형성 후에, 금속간화합물 종들은 성장하여 야금학적으로 결합하고 차후의 썸얼 익스커션을 통해 전기적으로 그리고 기계적으로 안정한 상호연결 망상조직을 형성할 수 있다. 일반적으로, 가공처리 온도 T_1 은 실온 (즉, 약 20 $^{\circ}\text{C}$) 내지 약 300 $^{\circ}\text{C}$, 예컨대 약 80 $^{\circ}\text{C}$ 내지 약 250 $^{\circ}\text{C}$, 예를 들어, 약 100 $^{\circ}\text{C}$ 내지 약 230 $^{\circ}\text{C}$, 또는 190 $^{\circ}\text{C}$ 내지 약 220 $^{\circ}\text{C}$ 사이가 될 수 있다. 금속간화합물 종들은 T_1 보다 적어도 10 $^{\circ}\text{C}$ 더 높은 최소 용융 온도를 가질 것이다.

[0091] 즉각적인 발명의 조성물을 만드는 공정에 있어서, 일부 실시예에서, 3가지 성분들은 일반적으로 위에서 언급한 바와 같이, 가공처리 온도 T_1 에서 반응한다. 그 결과, 실질적으로 혼합물에 존재하는 반응성 HMP 금속 및/또는 반응성 LMP 금속의 전체량이 소진될 수 있다. 다른 실시예에서는, 혼합물에 존재하는 반응성 HMP 금속 및/또는 반응성 LMP 금속의 이러한 소진을 달성하기 위해, 성분들은 가공처리 온도 T_1 보다 더 높은 온도, 예를 들어, 적어도 10 $^{\circ}\text{C}$ 더 높은 온도에서 반응시킬 수 있다. 다른 실시예에서, 가공처리 온도 T_1 보다 적어도 10 $^{\circ}\text{C}$ 더 높은 용융 온도를 갖는 입자(C)는 저융점 성분(들)을 함유하고 가공처리 온도 T_1 에서 용융되는 입자 (B)에 가용성이다.

[0092] 이렇게 형성된 야금 망상은 전기 구조물 내에서 원소들을 전기적으로, 열적으로 및/또는 기계적으로 연결하는데 유용하다. 본 발명의 조성물이 유용한 응용의 예는 반도체 다이를 패키징 요소들에 연결하는 것, 패키징된 반도체 부품을 인쇄 회로 기판에 연결하는 것, 다른 별개의 성분들을 전자 기판에 연결하는 것, 스택된 다이 사이에 회로 트레이스로서 연결을 형성하는 것, 전자 기판에 홀을 채우는 것, 인쇄 회로 기판 및/또는 반도체 패키지에서 회로 층들을 상호 연결하는 것, 태양 전지판용 수집 그리드를 형성하는 것, 전기적으로 전도성인 기둥, 원기둥 또는 칼럼을 형성하는 것, 전기 서브시스템을 개재 구조를 통해 전기적으로 상호연결시키는 것 등이다.

[0093] 위에서 설명한 조성물은 이것으로 제한되지는 않지만, 니들 디스펜싱, 형판지 채식(stenciling), 스크린 프린팅, 잉크 젯팅, 압출, 주조, 분무 또는 당업자들에게 공지된 다른 방법들을 포함하는 다양한 기술을 사용하여 도포될 수 있다. 일단 도포되면, 설명된 조성물은 오븐에서, 핫 플레이트 위에서, 라미네이션 프레스에서, 또는 솔더 또는 채워진 유기 접착제의 가공처리를 위해 일반적으로 채용되는 다른 수단에 의해 열로 가공처리된다. 특정 열 가공처리 조건은 TLPS 시스템과 어떠한 유기 바인더 구성성분의 선택은 물론 용도에 의존한다.

[0094] 어떠한 경우에는, 일반적으로 철저한 체질(sieving)을 통해 얻어진 입자 크기 분포의 엄격한 제어는 상기 조성물을 디스펜싱(분배), 잉크 젯팅 등과 같은 부착 기술에 적합하게 만듦으로써 도포를 가능하게 할 수 있다.

[0095] 실시예

[0096] 본 발명은 이제 실례가 되는, 비제한 실시예를 참조하여 더 설명될 것이다.

[0097] 실시예 1

[0098] 위에서 설명한 본 발명의 특징들을 예시하기 위해, 2개 이상의 다르지만 용화성이 있는 합금들을 혼합에 의해 결합시켜 비-표준 또는 "혼합된" 합금을 원위치(인사이트: in situ) 형성하였다. 적어도 하나의 금속 합금 분말이 용융되고, 용융되지 않은 합금 구성성분이 용융된 구성성분에 용해성이 높다면, 합금 분말 구성성분들의 모두가 원하는 공정 온도에서 용융될 필요는 없다. 예를 들어, 전도성 조성물에서 Bi의 잠재적으로 유해한 특성을 경감시키는 한가지 방법은 Bi의 비율이 실질적으로 감소된 Sn 과 Bi의 합금을 채용하는 것이다. 이러한 합금은 일반적으로 흔히 사용할 수는 없다; 그러나, Sn을 주로 포함하는 합금은 물론이고 공용 Sn-Bi의 합금 분말은 쉽게 이용가능하다.

[0099] 3가지 조성물 A, B 및 C를 제조하였고 하기 표 1에 요약하였다.

표 1

조성물 A, B 와 C			
성분	조성물 A	조성물 B	조성물 C
58/42 (질량%) Bi/Sn 합금, g		38.12	9.91
40/60 (질량%) Bi/Sn 합금, g	49.47		
SAC 305*, g		16.07	19.41
52/48 (질량%) In/Sn 합금, g			
Cu, g	60.28	60.00	20.57
유기 비히클***	15.29	15.26	6.04

[0100]

[0101] * 여기와 아래에서, 약 95.5 질량%의 Sn, 약 3.7 질량%의 Ag 및 약 0.8 질량%의 Cu의 합금

[0102] ** 조성물 중에 약 82 질량%의 Sn을 포함한다.

[0103] *** 여기 및 아래에서, 유기 비히클은 메틸 테트라하이드로프탈 무수물 모노글리세린 에스테르 (1.35 g); 트리 에탄올아민 (1.00 g); 부틸 카르비톨과의 50% 중량 용액 중의 비스페놀 A (2.96 g); Araldite MY721 에폭시 수지 (0.74 g) 및 부틸 카르비톨 (0.2 g)을 함유하는 혼합물이다.

[0104] 위에서 기재한 조성물 A, B 및 C 는 표 2에 주어진 분량의 (조성물 중의 총 금속 함량의 백분율로서) Cu, Sn and Bi 를 함유하였다.

표 2

조성물 A, B 및 C 중의 금속의 양

성분	조성물 A	조성물 B	조성물 C
Sn, 전체 금속 함량의 %	27	27	47
Bi, 전체 금속 함량의 %	18	18	12
Cu, 전체 금속 함량의 %	55	54	41

[0105]

[0106]

공정 온도는 약 190℃로 선택되었고, 이 온도에서 공용 Sn/Bi 합금 분말 이 용해되고, Sn이 주로 대부분인 합금 분말 중 하나 예컨대 SAC 305와 균질화되고, 양 공급원 둘다로부터의 주석은 플럭싱 유기 바인더 (예를 들어, 유기 비히클)의 존재하에서 Cu 분말과 반응한다. Sn 주성분 분말이 용해되지는 않지만, 조성물 중의 모든 Sn이 몇 초 내에 Cu와 반응된다. 이 경우에, Sn 주성분 합금은 용융된 공용 Sn/Bi 합금에 가용성이며, 공용 조성물 내의 Sn이 Cu와 반응할 때, 용해된 Sn 은 더 많은 공용 합금을 효과적으로 제자리(in situ) 생성함으로써 그것을 다시 보충한다.

[0107]

위에서 설명한 바와 같이 제조된 조성물의 일부 성질은 도 1-4에서 도해한 바와 같이, 시차 주사 열량측정법(DSC)에 의해 실증된다. 도 1과 2는 표 1의 TLPS 조성물 A를 그리고 있다. 도 1은 조성물이 실온에서 약 190℃까지 가열되고, 약 10분 동안 그 온도에서 유지될 때 TLPS 반응을 묘사한다. 제 1 하향 피크(흡열)는 비-표준 합금의 용융을 반영하며 그 다음의 상향 피크는 구리-주석 금속간 화합물의 발열 형성이다. 도 2는 도 1에서 가공처리된 샘플의 썬열 익스커션을 묘사한다. 도 2에서의 특징(signature)는 실질적으로 도 1의 그것과는 다른데 왜냐하면 새로운 반응 산출물이 형성되었고 더 이상의 발열 반응이 차후의 익스커션 동안에 보이지 않기 때문이다.

[0108]

도 3과 4는 표 1의 조성물 B의 DSC 분석을 묘사하며, 이것은 조성물 A와 동일한 총체적인 원소의 조성을 가지며 ; 그러나, 조성물 B에서, Sn과 Bi의 등가 비율은 공용 Sn/Bi 분말을 Sn 주성분 분말 (즉, SAC 305)과 혼합시킴으로써 달성되었고, 이것은 약 217℃에서 용해한다. 초기 공정 스캔(도 3)은 동일한 공정 파라미터 하에서, 도 1의 그것과 매우 유사해보인다. 또한, 도 4에 묘사한 두번째 썬열 익스커션 동안에, 특징(signature)이 도 2의 그것과 유사해보일 뿐 아니라, 본래의 Sn 주성분 합금의 작은 증거가 존재한다- 비록 190℃의 공정 온도가 합금의 용융 온도보다 훨씬 아래였을지라도. 이러한 현상은 용융되지 않은 합금상 대 용융된 합금상의 비율이 3: 1 만큼 높은 TLPS 조성물에서 관찰되었고, 결과적으로 조성물에서 바람직하지 않은 Bi의 비율의 실질적인 감소를 초래하였다.

[0109]

실시예 2

[0110]

2개 이상의 다르지만, 용화성이 있는 합금을 결합시켰다. 조성물은 하기의 성분들을 혼합시킴으로써 제조하였다: 약 58 질량%의 Bi와 약 42 질량%의 Sn를 함유하는 약 4.0 g의 Bi/Sn 합금; 실시예 1에서 설명한 약 8.5 g의 SAC 305 ; 약 58 질량%의 In 과 약 42 질량%의 Sn을 함유하는 약 4.0 g의 공용 In/Sn 합금; 약 30.0 g의 Cu; 및 약 5.0 g의 유기 비히클.

[0111]

위에 기재된 조성물은 약 65 질량%의 Cu, 약 25 질량%의 Sn 및 약 5 질량%의 Bi (조성물 중에 전체 금속 함량의 백분율로서)를 함유하였다.

[0112]

공정 온도는 약 190℃였고, 이 온도에서 위에서 설명한 제 1 과 제 3 합금이 용융하였고, 제 2 합금과 균질화되었고 Cu와 반응하였고, 따라서 몇몇 금속간 및/또는 합금 종들이 동시에 생성되었다. 볼 수 있듯이, 인듐 합금 중 비용이 가장 적게 들고 가장 쉽게 이용가능한 공용 In/Sn 합금을 Bi/Sn 합금 분말과 혼합시켰다. 2가지 합금을 결합함으로써, In의 비용은 경감될 수 있고 Bi의 불량한 전기, 열 및 기계적 성능은 최소화될 수 있다.

[0113]

190℃에서, In/Sn 합금과 Bi/Sn 합금 둘다와 SAC 305로부터 이들 촉진 합금에 의해서 이용가능하게 만들어진 주석은 구리 입자와 반응하여 Cu/Sn 금속간 화합물을 형성할 수 있다. In 은 Cu 와 Bi 모두와 더 반응하여 추가의 금속간 화합물을 형성할 것이다. 이 반응은 도 5의 DSC 스캔에서 묘사되어 있다. 금속간화합물 종의 형성은 그것이 안정적이고, 규칙적인 결정질 구조를 제공하기 때문에 좋은 것이다. 이들 미세구조의 안정성은 도 6에서 그려진 가공처리된 조성물의 차후의 DSC 스캔에서 발열 및 흡열 특징들의 결핍에 의해 증거가 된다. 이와

같이, 두가지 합금을 결합시킴으로써 비용과 성능의 최적의 균형이 달성되었다.

[0114] 실시예 3-10

[0115] 하기 표 3에 나타난 양으로 지시된 화합물을 혼합함으로써 다양한 조성물을 제조하였다.

표 3

실시예 3-10의 조성물

성분	실시예 No.							
	3	4	5	6	7	8	9	10
1 mμ Cu (구체)	3.11	3.06	4.52	6.17	2.95	2.50	2.60	2.22
3 mμ Cu (구체)	16.14	15.89	16.05	14.40	15.48	13.14	13.51	11.66
5-15 mμ 60/40 (질량%) Sn/Bi (비-공용)			14.38	14.38	15.64	17.04		
625 이하 메시 42/58 (질량%) Sn/Bi (공용)	14.97	14.95					16.76	17.87
625 이하 메시 99.3/0.07 (질량%) Sn/Cu	15.72		14.95	14.95	15.83	17.22	17.04	18.15
625 이하 메시 SAC 305		16.06						
유기 비허클 (상기와 같음)	6.04	6.04	6.04	6.04	6.04	6.04	6.04	6.04
총계	55.98	55.99	55.94	55.94	55.94	55.94	55.94	55.94

[0117] 표 3에 나타난 조성물은 표 4에 나타난 특정 금속의 분량을 함유하였다.

표 4

실시예 3-10의 조성물 중의 금속의 양

성분	실시예 No.							
	3	4	5	6	7	8	9	10
전체 조성물, g	55.98	55.99	55.94	55.94	55.94	55.94	55.94	55.94
전체 Cu, g	19.25	18.94	20.57	20.57	19.80	16.80	17.30	14.90
전체 합금, g	30.69	31.00	29.33	29.33	33.80	36.80	36.30	38.70
Cu, 전체 금속의 질량%	39	38	41	41	37	31	32	28
Sn, 전체 금속의 질량%	44	43	47	47	50	55	48	51
Bi, 전체 금속의 질량%	17	17	12	12	13	14	19	21
Ag, 전체 금속의 질량%	0	1	0	0	0	0	0	0
Cu, 전체 금속의 원자%	57	57	59	59	55	48	51	45
Sn, 전체 금속의 원자%	35	35	36	36	40	45	40	45
Bi, 전체 금속의 원자%	8	8	5	5	6	6	9	10
Ag, 전체 금속의 원자%	0	1	0	0	0	0	0	0

[0119] 실시예 3-5, 8 및 9의 조성물을 벌크 저항률과 약 150℃에서 4주 후에 벌크 저항률의 변화에 대해 테스트하였다. 결과는 표 5에 나와있다.

표 5

실시예 3-5, 8 및 9 의 조성물의 벌크 저항률

벌크 저항률	실시예 No.				
	3	4	5	8	9
초기, 마이크로-옴(ohm)*cm	143.50	134.90	125.70	123.20	170.90
150℃에서 4주 후의 % 변화	27.60	17.25	19.04	12.50	69.00

[0120]

[0121] 실시예 11-18

[0122] 표 6에 나타낸 양으로 화합물을 혼합함으로써 추가의 조성물을 제조하였다.

표 6

실시예 11-18의 조성물

성분	실시예 No.							
	11	12	13	14	15	16	17	18
1 mμ Cu (구체)	3.55	4.16	4.83	3.05	4.10	3.32		3.92
3 mμ Cu (구체)	12.56	9.71	11.27	10.82	9.57	17.25	27.00	20.39
5-15 mμ 60/40 (질량%) Sn/Bi (비-공용)							22.15	
625 이하 메시 42/58 (질량%) Sn/Bi (공용)	16.76	17.87	16.76	17.87	17.62	9.91		12.34
625 이하 메시 99.3/0.07 (질량%) Sn/Cu	17.04	18.15	17.04	18.15		19.41		
625 이하 메시 SAC 305					18.62			13.25
수지							3.35	
용융제-경화제							1.52	
용융제							1.12	
수지2							0.84	
유기 비히클 (상기와 같음)	6.04	6.04	6.04	6.04	6.04	6.04		6.04
총계	55.94	55.94	55.94	55.94	55.94	55.93	55.98	55.94

[0123]

[0124] 표 6에 나타낸 조성물은 표 7에 나와있는 특정 금속들의 양을 함유하였다.

표 7

실시에 11-18의 조성물 중의 금속의 양

성분	실시예 No.							
	11	12	13	14	15	16	17	18
전체 조성물, g	55.94	55.94	55.94	55.94	55.94	55.93	55.98	55.94
전체 Cu, g	17.30	14.90	17.30	14.90	13.67	20.57	27.00	24.31
전체 함금, g	36.30	38.70	36.30	38.70	36.23	29.32	22.15	25.59
Cu, 전체 금속의 질량%	32	28	32	28	27	41	55	49
Sn, 전체 금속의 질량%	48	51	48	51	50	47	27	36
Bi, 전체 금속의 질량%	19	21	19	21	20	12	18	14
Ag, 전체 금속의 질량%	0	0	0	0	1	0	0	1
Cu, 전체 금속의 원자%	51	45	51	45	45	59	73	67
Sn, 전체 금속의 원자%	40	45	40	45	44	36	19	26
Bi, 전체 금속의 원자%	9	10	9	10	10	5	7	6
Ag, 전체 금속의 원자%	0	0	0	0	1	0	0	1

[0125]

[0126]

실시에 15 와 17의 조성물을 벌크 저항률과 약 150℃에서 4주 후에 벌크 저항률의 변화에 대해 테스트하였다. 결과는 표 8에 나와있다.

표 8

실시에 15 와 17의 조성물의 벌크 저항률

벌크 저항률	실시예 15의 조성물	실시예 17의 조성물
초기, 마이크로-옴(ohm)*cm	228.20	115.50
약 150℃에서 4주 후의 % 변화	14.94	40.69

[0127]

[0128]

실시에 19-26

[0129]

표 9에 나타난 양으로 화합물을 혼합함으로써 또 추가의 조성물을 제조하였다.

표 9

실시에 19-26의 조성물

성분	실시에 No.							
	19	20	21	22	23	24	25	26
1 μm Cu (구체)	15.64	3.32	3.32	4.12	4.26	4.42	4.59	
3 μm Cu (구체)		17.25	17.25	21.50	22.22	23.10	23.97	
3 μm Ag (구체)								20.57
5-15 μm 60/40 (질량 %) Sn/Bi (비-공용)		14.38						
625 메시 이하 42/58 (질량 %) SnBi (공용)	17.87		10.00	11.99	11.74	11.74	11.72	10.00
625 메시 이하 99.3/0.07 (질량 %) Sn/Cu	18.88							
625 메시 이하 SAC 305		15.56	20.20	12.39	11.81	10.77	9.77	20.20
유기 비히클 (상기와 같음)	6.04	6.04	6.04	6.04	6.04	6.04	6.04	6.04
총계	58.43	56.55	56.81	56.03	56.07	56.07	56.08	56.81

[0130]

[0131] 표 9에 나타난 조성물은 표 10에 나와있는 특정 금속의 양을 함유하였다.

표 10

실시에 19-26의 조성물 중의 금속의 양

성분	실시에 No.							
	19	20	21	22	23	24	25	26
전체 조성물, g	58.43	56.55	56.81	56.03	56.07	56.07	56.08	56.81
전체 Cu, g	15.64	20.57	20.57	25.62	26.47	27.52	28.56	
전체 합금, g	36.75	29.94	30.20	24.38	23.56	22.51	21.49	
Cu, 전체 금속의 질량%	30	41	41	51	53	55	57	0
Sn, 전체 금속의 질량%	50	47	46	34	32	30	28	46
Bi, 전체 금속의 질량%	20	11	11	14	14	14	14	11
Ag, 전체 금속의 질량%	0	1	1	1	1	1	1	43
Cu, 전체 금속의 원자%	48	58	58	69	71	73	74	0
Sn, 전체 금속의 원자%	43	36	36	24	23	21	20	46
Bi, 전체 금속의 원자%	10	5	5	6	6	5	5	6
Ag, 전체 금속의 원자%	0	1	1	1	1	1	1	48

[0132]

[0133] 실시예 20, 21 및 26의 조성물은 벌크 저항률과 약 150℃에서 4주 후에 벌크 저항률의 변화에 대해 테스트하였다. 결과는 표 11에 나와있다.

표 11

실시에 20, 21 및 26의 조성물의 벌크 저항률

벌크 저항률	실시에 20의 조성물	실시에 21의 조성물	실시에 26의 조성물
초기, 마이크로-옴(ohm)*cm	108.50	121.10	35.40
약 150℃에서 4주 후의 % 변화	20.56	23.42	< 10

[0134]

[0135]

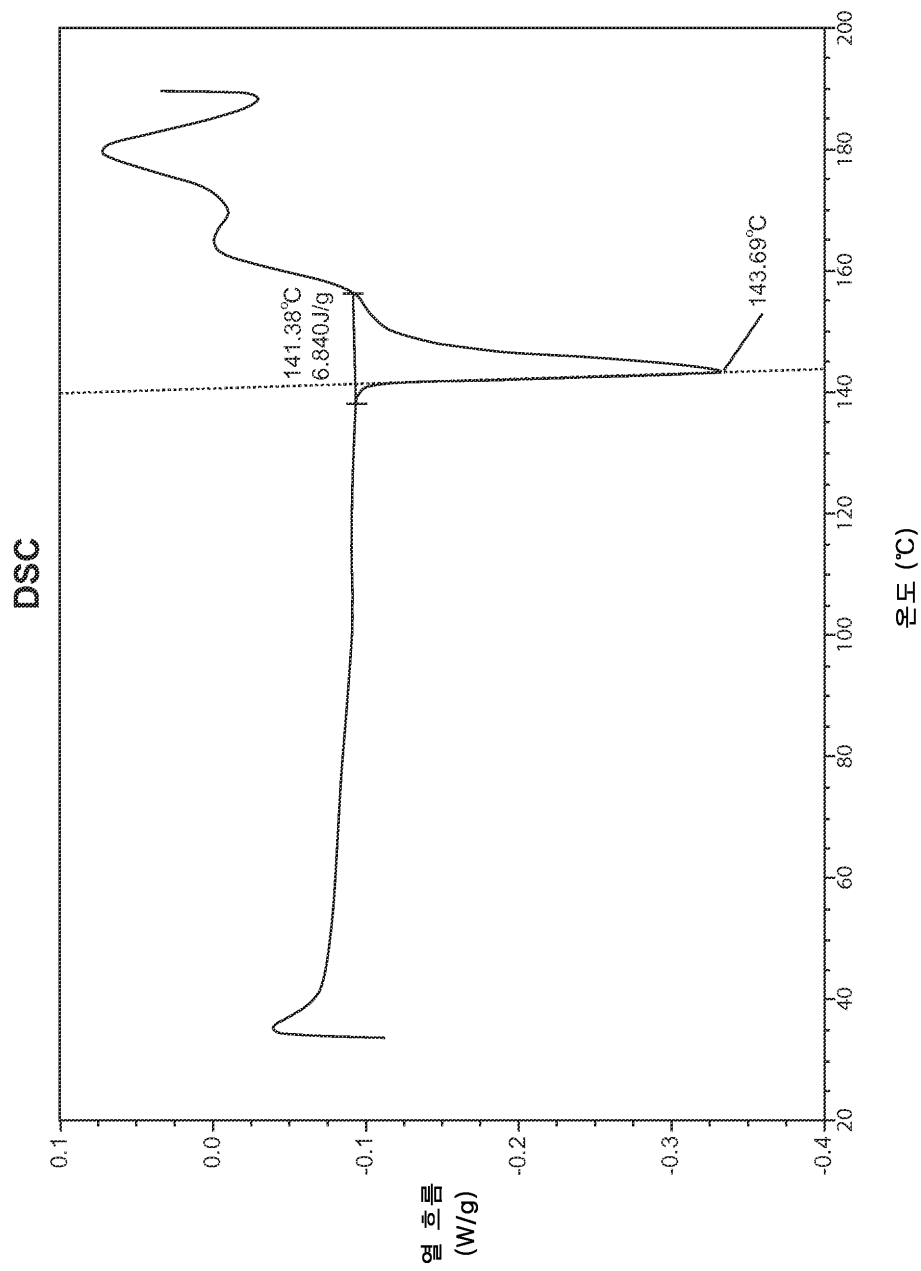
잘 소결하지 않는 조제물은 500 마이크로-옴(ohm)*cm을 크게 초과하는 벌크 저항율을 가지며 높은 온도에서 저장하면 저항의 큰 변화 (> 80%)를 갖는다는 것이 잘 알려져있다. 따라서, 표 5, 8 및 11에 나타난 저항율의 값은 본 발명의 조제물이 낮은-온도 합금과 주석 풍부 합금의 용융점 사이의 중간 온도에서 가공처리될 때 잘 소결되는지를 나타내는 지표이다.

[0136]

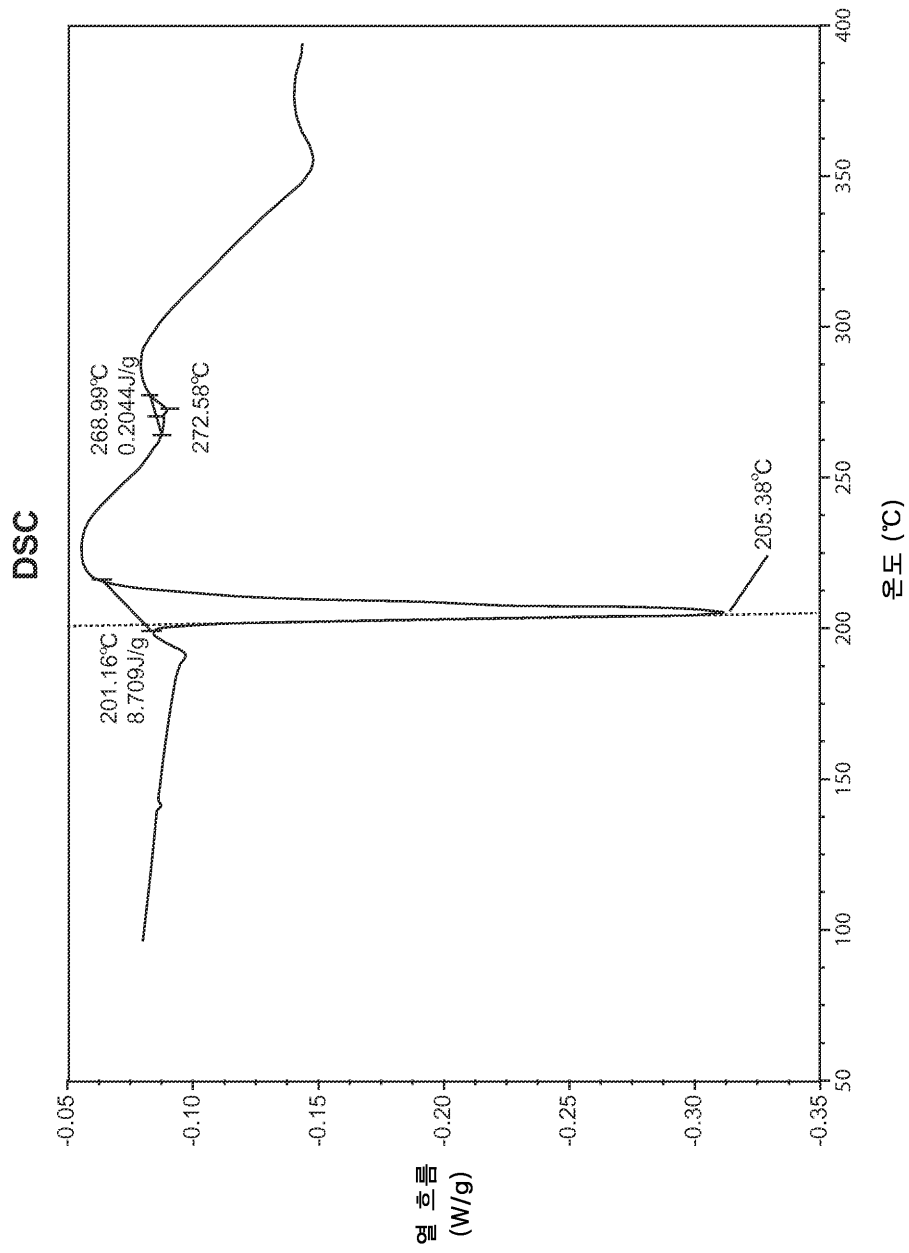
본 발명이 이들 특정 실시예에 대하여 설명되었지만, 본 발명의 정신을 벗어나지 않으면서 다른 수정과 변경이 가능할 것이라는 것은 분명해야 한다.

도면

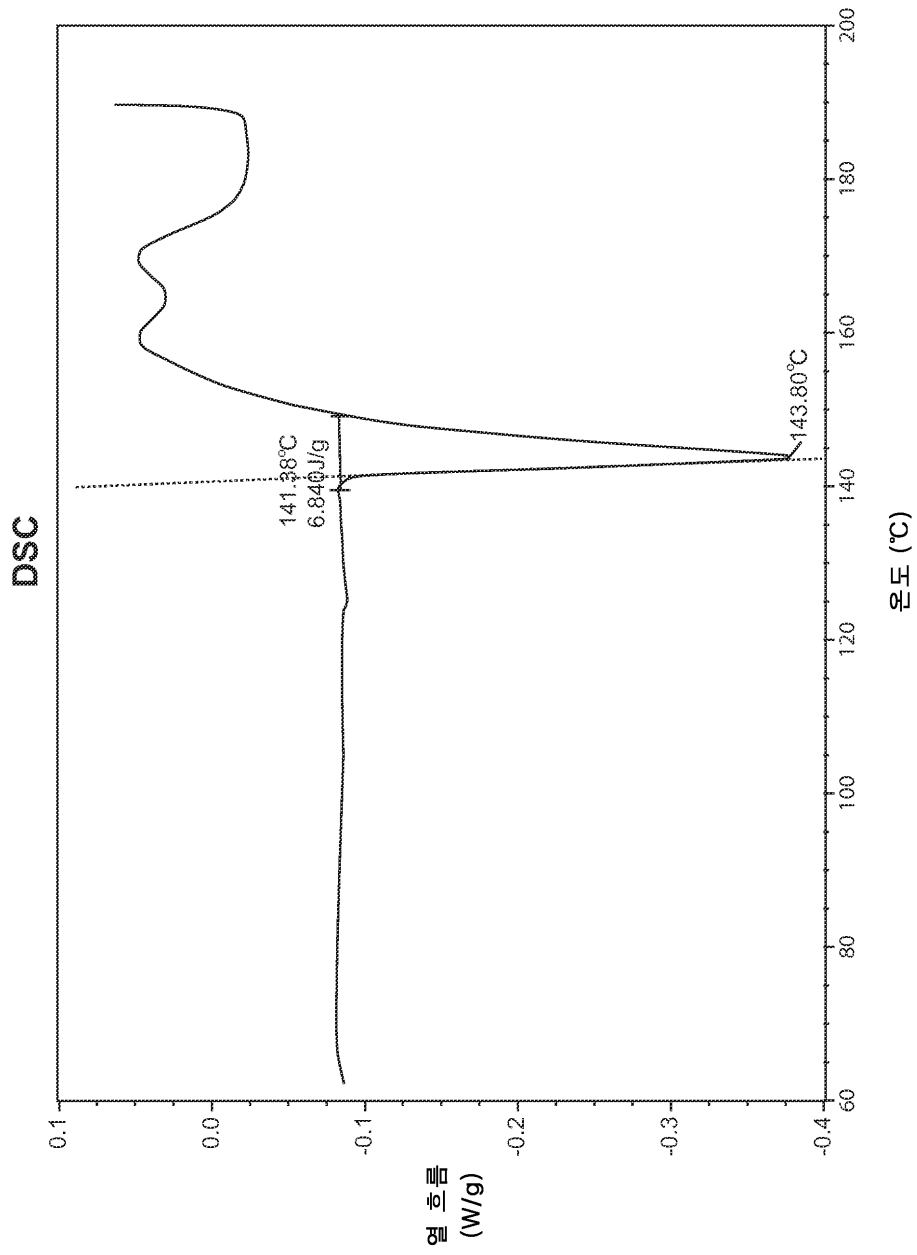
도면1



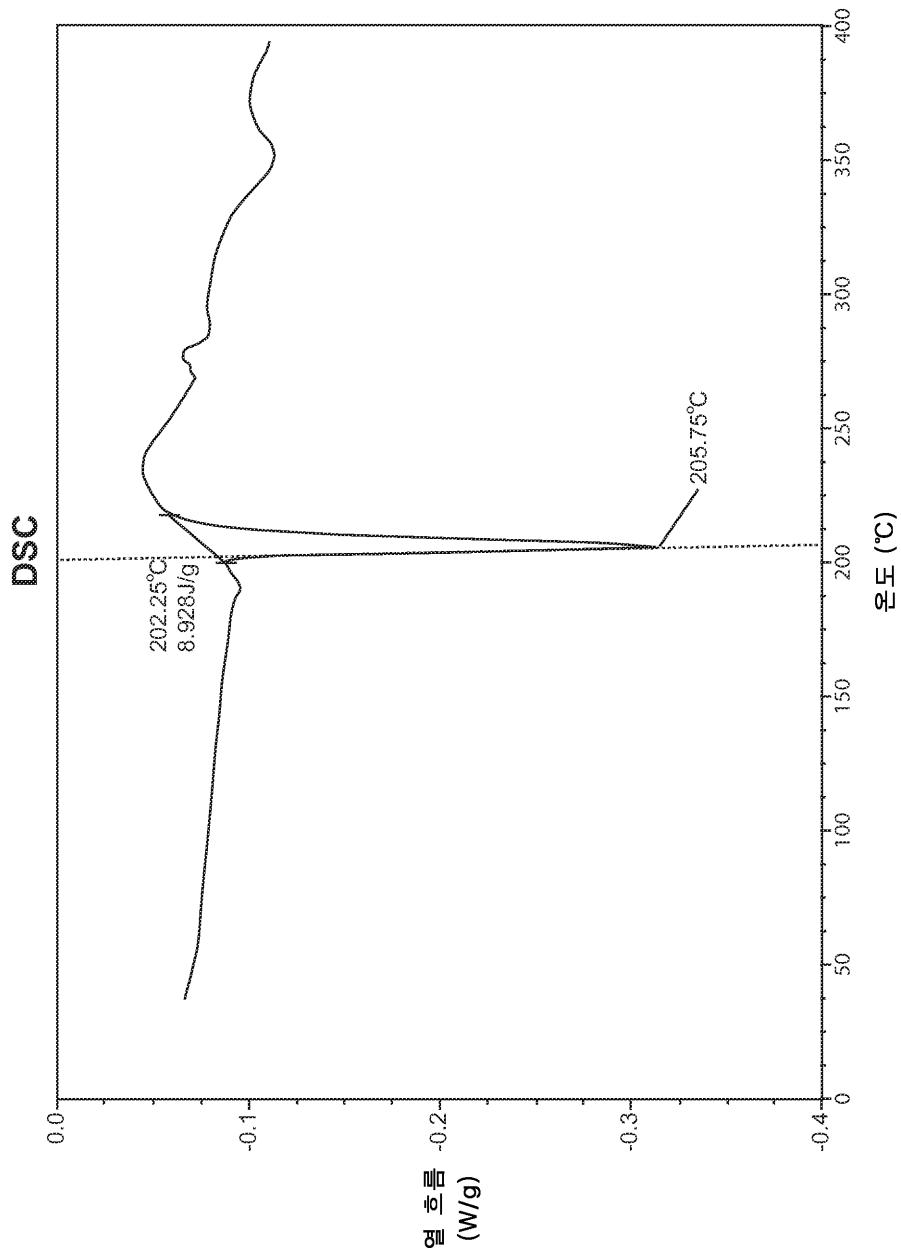
도면2



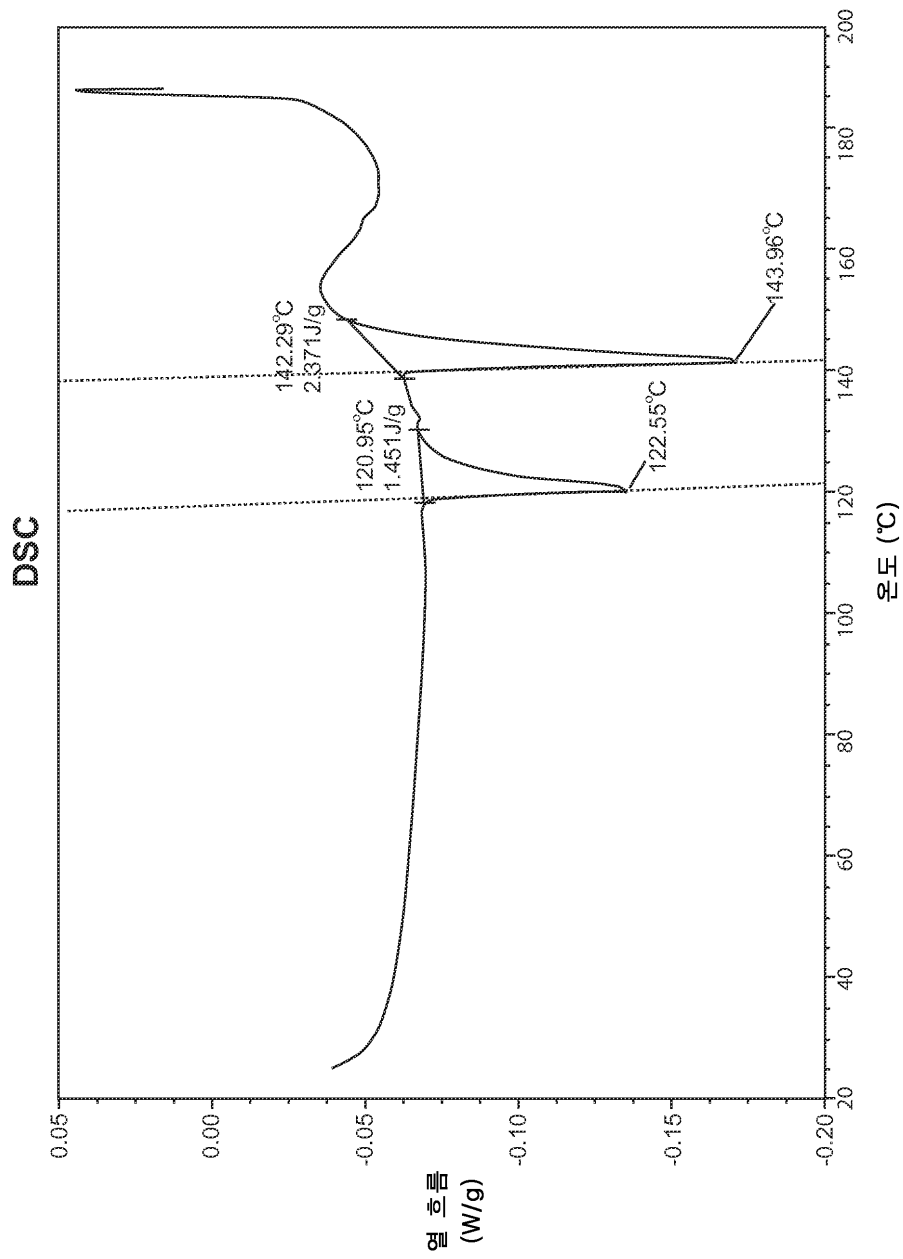
도면3



도면4



도면5



도면6

