

(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  
2015年8月13日(13.08.2015)



(10) 国際公開番号  
WO 2015/118982 A1

- (51) 国際特許分類:  
H01L 21/60 (2006.01) H05K 3/32 (2006.01)  
H01G 2/06 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/052018
- (22) 国際出願日: 2015年1月26日(26.01.2015)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願 2014-019212 2014年2月4日(04.02.2014) JP
- (71) 出願人: 株式会社村田製作所(MURATA MANUFACTURING CO., LTD.) [JP/JP]; 〒6178555 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 Kyoto (JP).
- (72) 発明者: 清野紳弥(KIYONO, Shinya); 〒6178555 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 株式会社村田製作所内 Kyoto (JP). 林俊孝(HAYASHI, Toshitaka); 〒6178555 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 株式会社村田製作所内 Kyoto (JP). 藤田頌(FUJITA, Sho); 〒6178555 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 株式会社村田製作所内 Kyoto (JP).
- (74) 代理人: 西澤均(NISHIZAWA, Hitoshi); 〒5500002 大阪府大阪市西区江戸堀1丁目2番11号 大同生命南館5階 Osaka (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, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, 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, ZW), ユーロパ (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

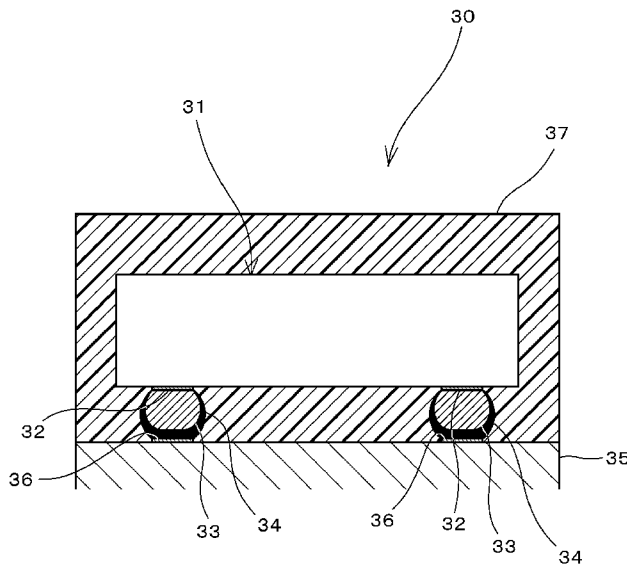
添付公開書類:

- 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: ELECTRONIC COMPONENT MODULE, AND MANUFACTURING METHOD OF ELECTRONIC COMPONENT MODULE

(54) 発明の名称: 電子部品モジュール、および電子部品モジュールの製造方法

図7



(57) Abstract: Provided is an electronic component module, and a manufacturing method thereof, which is formed using a copper particle paste that enables reliable sintering all the way to the interior of the bonding material. The electronic component module has excellent oxidation resistance of the copper particles and has bonding areas with high bonding reliability. External terminals are bonded to connection targets using a copper particle paste that contains copper particles and an organic compound which has a reducing effect at the sintering temperature when the copper particles are sintered, wherein the copper particles have a particle diameter peak in the particle size distribution in the range of 0.1-5.0μm, have an average crystallite diameter before sintering in the range of 30-100nm, and, on the particle surface, do not have a dispersant that suppresses aggregation. Further, this electronic component module (30) has a structure in which the external terminals (33) of an electronic component (31) are electrically and mechanically connected to the connection targets (36) via the bonding material (34), and the bonding material is a sintered copper body which is formed by baking the aforementioned copper particle paste and has an average crystallite diameter in the range of 60-150nm.

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2015/118982 A1



---

接合材料の内部まで確実に焼結させることができる銅粒子ペーストを用いて形成した、銅粒子の耐酸化性に優れ、かつ、接合信頼性の高い接合部を備えた電子部品モジュール、およびその製造方法を提供する。粒度分布の粒径ピークが $0.1 \sim 5.0 \mu\text{m}$ の範囲、焼結前の平均結晶子径が $30 \sim 100 \text{nm}$ の範囲にあり、凝集を抑制する分散剤を粒子表面に有していない銅粒子と、記銅粒子を焼結させる際の焼成温度で還元作用を奏する有機化合物とを含有する銅粒子ペーストを用いて、外部端子を接続対象に接合する。また、電子部品31が備える外部端子33が、接合材料34を介して、接続対象36に電気的および機械的に接続された構造を有する電子部品モジュール30において、上記接合材料を、上記の銅粒子ペーストを焼き付けることにより形成される、平均結晶子径が $60 \sim 150 \text{nm}$ の範囲にある銅焼結体とする。

## 明 細 書

発明の名称：

電子部品モジュール、および電子部品モジュールの製造方法

### 技術分野

[0001] 本発明は銅粒子ペーストを用いて製造される電子部品モジュール、および電子部品モジュールの製造方法に関する。

### 背景技術

[0002] 近年のエレクトロニクス技術の進展に伴い、例えば、表面実装型の電子部品を回路基板上に実装してなる電子部品モジュールが広く用いられるに至っている。

そして、表面実装型の電子部品（以下、単に電子部品という）を回路基板上に実装するにあたって、導電性の接合材料を用いて電子部品の外部端子を、回路基板に配設された実装用電極（接続対象）に機械的、電氣的に接続することが行われている。

[0003] このような接合材料として、特許文献1には、粒径1000nm以下の銅ナノ粒子を含む液またはペーストであって、銅ナノ粒子の個数基準の粒径分布の粒径ピークが、粒径が1～35nmの区間、および、粒径が35nmより大きく1000nm以下の区間にそれぞれ一つ以上あり、銅ナノ粒子が、一次粒子と、一次粒子の融合体である二次粒子とを含む焼結性接合材料が提案されている。

[0004] さらに、特許文献1には、上述の焼結性接合材料に、分散剤（分散安定剤）を含ませることが開示され、また、焼成工程における還元雰囲気として、水素、ギ酸またはエタノールの雰囲気が開示されている。

特許文献1はその他にも、上記焼結性接合材料を用いて電子部品を接合する場合に、電子部品を接合する方向に加圧しながら焼結熱処理を施すことを開示している。

### 先行技術文献

## 特許文献

[0005] 特許文献1：特開2013-91835号公報

## 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

[0006] しかしながら、粒径が1～35 nmの区間に粒径ピークがある場合、そのような粒径を有する粒子、すなわち、サイズの小さい粒子は、凝集を生じやすく、また、比表面積が大きく、酸化し易いため、材料の安定性が悪いという問題点がある。

[0007] また、分散剤を含ませるようにした場合、焼成時に体積収縮を引き起こし、空隙を形成しやすいため、接合強度を低下させるという問題点がある。

[0008] さらに、水素、ギ酸またはエタノールの雰囲気焼成雰囲気とした場合、例えば、電子部品と接続対象の接合領域が大きい場合、接合部の内部領域にまで還元雰囲気ガスが供給されず、内部領域を望ましい還元性雰囲気下で焼成することが困難になるという問題点がある。すなわち、還元性雰囲気に接する接合部の外周近傍では焼成が進みやすく、内部領域では焼成が進みにくいため、内部領域には未焼結領域が形成されることになり、接合強度が低下するという問題点がある。

[0009] 本発明は、上記課題を解決するものであり、導電成分である銅粒子の安定性（耐酸化性）に優れ、かつ、空隙を形成しにくく、接合信頼性の高い接合部を形成することが可能で、かつ、接合部を構成する接合材料の表面近傍のみならず、接合材料の内部まで確実に焼結させることが可能な銅粒子ペーストを用いて製造される電子部品モジュール、および電子部品モジュール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

[0010] 上記課題を解決するため、本発明の電子部品モジュールは、  
電子部品が備える外部端子が、接合材料を介して、接続対象に電気的および機械的に接続された構造を有する電子部品モジュールであって、

前記接合材料は、

粒径分布の粒径ピークが0.1～5.0 μmの範囲にあるとともに、焼結前の平均結晶子径が30～100 nmの範囲にあり、かつ、凝集を抑制する分散剤を粒子表面に有していない銅粒子と、

前記銅粒子を焼結させる際の焼成温度で還元作用を奏する有機化合物と、含有する銅粒子ペーストを焼結させることにより形成されたものであること

を特徴としている。

[0011] また、前記接合材料は、焼結後の銅粒子の平均結晶子径が60～150 nmの範囲にある銅焼結体であることが好ましい。

焼結後の平均結晶子径が60～150 nmとなるようにすることにより、安定した銅焼結体が形成される。

[0012] また、上記の銅粒子ペーストにおいては、前記有機化合物がヒドロキシ基を有する有機化合物であることが好ましい。

銅粒子を焼結させるための焼成温度で還元作用を奏する有機化合物として、ヒドロキシ基を有する有機化合物を用いることにより、焼成工程で銅粒子の表面に形成されている酸化物膜を除去すること、焼成工程で銅が酸化されることなく確実に焼結されるようにすることが可能になり、本発明をより実効あらしめることができる。

[0013] また、前記有機化合物がトリエタノールアミン、グリセリン、エチレングリコール、トリエチレングリコール、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコールからなる群より選ばれる少なくとも1種を含むことが好ましい。

上記群からなる少なくとも1種を用いることにより、本発明をより実効あらしめることができる。

[0014] また、前記接続対象が、回路基板に配設された実装用電極であることが好ましい。

本発明の方法で電子部品の外部端子を回路基板上の実装用電極に接続することにより、例えば、ICチップや積層セラミックコンデンサなどの表面実

装型の電子部品が回路基板上に搭載された構造を有する、信頼性の高い電子部品モジュールを確実に製造することが可能になる。

[0015] また、前記接続対象が、前記外部端子に取り付けられた金属端子であることが好ましい。

本発明の方法で電子部品の外部端子を金属端子に取り付けることにより、信頼性の高い端子付き電子部品モジュールを確実に製造することが可能になる。

[0016] また、本発明の電子部品モジュールの製造方法は、

電子部品が備える外部端子が、接合材料を介して接続対象に電気的および機械的に接続された構造を有する電子部品モジュールの製造方法であって、

前記電子部品の前記外部端子が、粒径分布の粒径ピークが0.1~5.0  $\mu\text{m}$ の範囲にあるとともに、焼結前の平均結晶子径が30~100 nmの範囲にあり、かつ、凝集を抑制する分散剤を粒子表面に有していない銅粒子と、前記銅粒子を焼結させる際の焼成温度で還元作用を奏する有機化合物と、を含有する銅粒子ペーストを介して前記接続対象と対向するように、前記電子部品と前記接合対象とを位置させる工程と、

熱処理を行って前記銅粒子ペーストに含まれる前記銅粒子を焼結させることにより、銅粒子の平均結晶子径が60~150 nmである銅焼結体を形成し、前記電子部品の前記外部端子と前記接続対象とを、前記銅焼結体を介して接合する工程と

を備えていることを特徴としている。

[0017] 本発明の電子部品モジュールの製造方法においては、前記電子部品の前記外部端子が、前記銅粒子ペーストを介して、前記接続対象と対向するように前記電子部品を前記接合対象上に載置した状態で、外部から力を加えることなく前記熱処理を行うようにすることが好ましい。

[0018] 上述したような銅粒子ペーストを用いることにより、外部から力を加えることなく熱処理を行うことが可能であり、加圧をしないことで、電子部品へのダメージを少なくすることが可能になるとともに、微小な接合部を形成す

ることができるようになる。

[0019] また、前記熱処理を、不活性雰囲気中で実施することが好ましい。

不活性雰囲気中で熱処理することにより、さらに確実に銅粒子ペーストを構成する銅粒子を焼結させることが可能になり、本発明をより実効あらしめることができる。

### 発明の効果

[0020] 上記の銅粒子ペーストを構成する銅粒子として用いられている、粒度分布の粒径ピークが0.1～5.0  $\mu\text{m}$ の範囲にある銅粒子は、過度に微細ではないため、酸化されにくく、安定性に優れている一方、焼結性の点では、平均結晶子径が30～100 nmと小さく、300℃以下の低温で焼結させることが可能で、焼結後は、平均結晶子径が60～150 nm程度の銅焼結体となり、安定した接合材料となるような銅粒子である。

[0021] また、銅粒子は、凝集を抑制する分散剤をその表面に有していないことから、焼結により得られる銅焼結体の密度が高く、空隙が占める割合が小さい焼結体を得ることができる。

[0022] すなわち、銅粒子の粒径が100 nm以下の所謂ナノ粒子では、分散剤が存在しないと凝集してしまうが、上記の銅粒子ペーストにおいては、銅粒子の粒度分布の粒径ピークが0.1～5.0  $\mu\text{m}$ の範囲にあることから、分散剤を用いなくても凝集を抑制することを可能になる。

[0023] なお、平均結晶子径が100 nm以下のナノ粒子の場合、その効果（ナノサイズ効果）により低温で焼結させることが可能であるが、本発明では、銅粒子の平均結晶子径を30～100 nmの範囲にすることで、300℃以下での低温焼結を可能にしている。

[0024] つまり、銅粒子の粒度分布の粒径ピークを0.1～5.0  $\mu\text{m}$ と大きくし、かつ、平均結晶子径を30～100 nmと小さくすることにより、分散剤を配合しなくても凝集させないようにすることが可能になるとともに、300℃以下での低温焼結を可能にすることができるようになる。

[0025] また、上記の銅粒子ペーストは、銅粒子を焼結させるための焼成温度で還

元作用を奏する有機化合物（例えば溶剤）を含ませるようにしているので、その有機化合物の還元作用により、焼結の阻害要因となる銅粒子表面の銅酸化物が還元されるため、特に還元性雰囲気中で焼成することを必要とせず、不活性雰囲気下での焼結が可能になる。なお、還元ガスを用いた還元雰囲気下で焼成を行うと、上記の銅粒子ペーストを接合材料として用いた場合には、接合部の表面や周辺部において焼結が進み、接合部の内部では焼結が不十分になりやすいという問題があるが、上述のように、還元作用を奏する有機化合物（例えば溶剤）を含有させることにより、還元雰囲気下で焼成を行う必要をなくして、この問題を解消することができる。

[0026] なお、上記の銅粒子ペーストにおいて、銅粒子が低温で焼結するのは、以下に説明するメカニズムによるものと考えられる。

図1A～図1Dは、銅粒子の焼結のプロセスを模式的に示す図である。

[0027] 図1Aに示すように、上記の銅粒子ペーストに用いられている銅粒子10は、結晶子11の平均サイズ（平均結晶子径）が30～100nmと小さく、大きな粒界エネルギーを有している。また、銅粒子10は、常温ではその表面が酸化膜（銅酸化物）12により覆われている。

[0028] この銅粒子ペースト（銅粒子）1が、リフロー温度（例えば230℃）に加熱されると、図1Bに示すように、銅粒子10の周囲に存在する、銅粒子を焼結させるための焼成温度で還元作用を奏する有機化合物（例えば溶剤）13が還元剤として作用し、銅粒子10の表面の酸化膜（銅酸化物）12が還元される。

[0029] こうして、銅粒子10の表面の酸化膜（銅酸化物）12が還元されると、平均結晶子径が小さく、大きな粒界エネルギーを有している銅粒子10は、リフロー温度程度の低い温度でもネック成長し、図1Cに示すように合一して、結晶子径が大きくなる。その結果、図1Dに示すように、銅粒子10自体も大きくなるとともに、平均結晶子径も60～150nmと大きくなり、安定した銅焼結体が形成されることになる。

上記の銅粒子ペーストを構成する銅粒子は、このようなメカニズムにより

、低温でも効率よく焼結させることができる。

[0030] また、本発明の電子部品モジュールは、電子部品が備える外部端子が、上記の銅粒子ペーストを焼き付けることにより形成された接合材料を介して、接続対象に電気的および機械的に接続された構造を有しており、電子部品の外部端子と接続対象とが密度が高く、空隙が占める割合が小さい銅焼結体からなる接合部を介して確実に接合されているので、高い信頼性を備えた電子部品モジュールを確実に提供することが可能になる。

[0031] また、本発明の電子部品モジュールの製造方法は、電子部品の外部端子が、上記の銅粒子ペーストを介して、接続対象と対向するように、電子部品と接合対象とを位置させた状態で熱処理を行い、銅粒子ペーストに含まれる銅粒子を焼結させ、電子部品の外部端子と接続対象とを、平均結晶子径が60～150nmの銅焼結体により接合するようにしているので、電子部品の外部端子と接続対象とを、密度が高く、空隙が占める割合が小さい銅焼結体からなる接合部を介して確実に接合することが可能になり、信頼性の高い電子部品モジュールを効率よく製造することができる。

### 図面の簡単な説明

[0032] [図1A]銅粒子ペーストにおいて用いられている銅粒子の焼結のプロセスの一工程を模式的に示す図である。

[図1B]上記の銅粒子ペーストにおいて用いられている銅粒子の焼結のプロセスの他の工程を模式的に示す図である。

[図1C]上記の銅粒子ペーストにおいて用いられている銅粒子の焼結のプロセスのさらに他の工程を模式的に示す図である。

[図1D]上記の銅粒子ペーストにおいて用いられている銅粒子の焼結のプロセスのさらに他の工程を模式的に示す図である。

[図2]上記の銅粒子ペーストを用いて接合した接合部を示す図である。

[図3]上記の銅粒子ペーストを用いて接合した接合部の接合強度の測定方法を説明する図である。

[図4A]平均結晶子径が56.7nmの銅粒子を用いた銅粒子ペーストの焼成

前の銅粒子の状態を示す顕微鏡写真（SEM像）である。

[図4B]平均結晶子径が56.7nmの銅粒子を用いた銅粒子ペーストの焼成後の銅粒子の状態を示す顕微鏡写真（SEM像）である。

[図5A]平均結晶子径が107.2nmの銅粒子を用いた銅粒子ペーストの焼成前の銅粒子の状態を示す顕微鏡写真（SEM像）である。

[図5B]平均結晶子径が107.2nmの銅粒子を用いた銅粒子ペーストの焼成後の銅粒子の状態を示す顕微鏡写真（SEM像）である。

[図6A]トリエタノールアミンの還元剤としての作用を確認するための図であり、トリエタノールアミンを塗布した亜酸化銅粉を230℃で10min加熱した場合のXRDチャートを示す図である。

[図6B]トリエタノールアミンの還元剤としての作用を確認するための図であり、トリエタノールアミンを塗布した亜酸化銅粉を200℃で10min加熱した場合のXRDチャートを示す図である。

[図7]本発明の実施形態1にかかる電子部品モジュールの構成を示す図である。

[図8]本発明の実施形態2にかかる電子部品モジュールの構成を示す図である。

[図9]本発明の実施形態2にかかる電子部品モジュールにおける、電子部品と回路基板の接合部近傍の顕微鏡写真（SEM像）である。

[図10]本発明の実施形態3にかかる電子部品モジュールの構成を示す図である。

### 発明を実施するための形態

[0033] 以下に本発明の実施形態を示して、本発明の特徴とするところをさらに詳しく説明する。

[0034] [実施形態1]

本発明の実施形態1にかかる電子部品モジュールは、電子部品が備える外部端子が、銅粒子ペーストを焼結することにより形成される接合材料を介して、接続対象に電気的および機械的に接続された構造を有する電子部品モジ

ユールである。

接合材料となる銅粒子ペーストを作製するにあたって、まず銅粒子として粒度分布の粒径ピークが0.1～5.0 μmの範囲にあり、かつ、焼結前の平均結晶子径が30～100 nmの範囲にある銅粒子を用意した。

[0035] また、銅粒子を焼結させる際の焼成温度で還元作用を奏する有機化合物として、常温で液体のトリエタノールアミンを用意した。

[0036] そして、銅粒子とトリエタノールアミンを、重量比で87：13となるような割合で配合し、混練することにより銅粒子ペーストを作製した。

[0037] なお、銅粒子の粒度分布の粒径ピークは以下の方法で求めた。まず、走査型電子顕微鏡を用いて銅粒子を観察し、視野中の粒子200個について水平方向フェレ径を測定した。そして、得られた測定値を球に換算し、体積平均粒径を算出し、その結果から粒径ピークを求めた。

[0038] また、焼結前の平均結晶子径は以下の方法で求めた。まず、銅粒子についてX線回折測定を行い、ピーク<111>、<200>、<311>の3つのピークを得た。それから、得られた3つのピークを用いて、リートベルト法により結晶子径を算出し、その平均値を平均結晶子径とした。

[0039] <銅粒子ペーストの評価>

(1) 接合強度

上述のようにして作製した銅粒子ペーストを用いて、以下に説明する方法で、無酸素銅試料片どうしを接合し、接合強度を調べた。

[0040] ここでは、図2に示すように、平面寸法が縦横5 mmで、厚みが1 mmの第1の無酸素銅試料片21と、平面寸法が縦横3 mmで、厚みが1 mmの第2の無酸素銅試料片22を、上述のようにして作製した銅粒子ペーストを焼成してなる銅焼結体23を介して接合した。

[0041] 銅粒子ペーストを用いて第1の無酸素銅試料片21と、第2の無酸素銅試料片22とを接合するにあたっては、銅粒子ペーストを通過させる貫通孔（ここでは、直径が2000 μmの平面形状が円形の貫通孔）を備えたメタルマスクを用い、第1の無酸素銅試料片21上に、銅粒子ペーストを塗布厚み

が40  $\mu\text{m}$ となるように印刷した。

[0042] そして、第1の無酸素銅試料片21に印刷された銅粒子ペースト上に、第2の無酸素銅試料片22を載置し、特に応力は加えず、焼成温度：230°C、焼成時間：60 min、焼成雰囲気：窒素の条件下で焼成することにより、図2に示すように、第1の無酸素銅試料片21と第2の無酸素銅試料片22を、接合材料（銅粒子ペーストを焼結させた銅焼結体）23を介して接合した。

[0043] それから、第1の無酸素銅試料片21と第2の無酸素銅試料片22の接合強度を測定した。接合強度の測定は、D a g e社製万能型ボンドテスターD a g e 4 0 0 0を用いて、シヤ強度を測定することにより行った。

[0044] なお、測定にあたっては、図3に示すように、下側の第1の無酸素銅試料片21を固定治具により固定し、ツール幅4 mmのシヤツール24を用い、シヤ速度50  $\mu\text{m}/\text{s}$ 、無酸素銅試料片21の表面からツール先端までの距離を50  $\mu\text{m}$ としてシヤした。そして、破面を撮影し、画像処理にて接合面積を測定した。

[0045] そして、上記シヤ強度値を、接合面積で除し、単位面積当たりのシヤ強度（MP a）を求めた。

その結果、シヤ強度として、36 MP aの高強度が得られることが確認された。

[0046] （2）焼成前および焼成後の平均結晶子径について

焼成前の平均結晶子径は、銅粒子ペーストをガラス板上にインクを塗布し、上述の方法、すなわち、X線回折測定を行って得たピーク<111>、<200>、<311>の3つのピークから、リートベルト法により結晶子径を算出しその平均値を求める方法で測定した。焼成後の平均結晶子径は、シヤした後の焼結体を、ピンセットを用いて抽出し、ガラス板に載せて、上述の方法、すなわち、X線回折測定を行って得たピーク<111>、<200>、<311>の3つのピークから、リートベルト法により結晶子径を算出しその平均値を求める方法で測定した。

[0047] すなわち、直径が $2000\ \mu\text{m}$  ( $2\ \text{mm}$ ) の平面形状が円形の貫通孔を備えたメタルマスクを用い、第1の無酸素銅試料片21上に、銅粒子ペーストを塗布厚みが $40\ \mu\text{m}$ となるように印刷し、温度： $230^\circ\text{C}$ 、焼成時間： $60\ \text{min}$ 、焼成雰囲気：窒素の条件下で焼成を行い、焼成前後の結晶子径を調べた。

[0048] その結果、焼成前の段階において、平均結晶子径が $62\ \text{nm}$ であったものが、焼成後においては $102\ \mu\text{m}$ にまで大きくなることが確認された。

[0049] このように、焼成前の段階における平均結晶子径を、本発明の要件において規定されている範囲を満たすように小さくした場合、分散剤を用いることなく銅粒子の凝集を防止することが可能になるとともに、先に図1A～図1Dを参照しつつ説明したメカニズムにより低温での焼結が可能になる。その結果、高い温度で焼成することを必要とせずに、密度が高く、空隙が占める割合が小さい銅焼結体からなる接合材料を形成することが可能になる。

[0050] 図4A、図4Bおよび図5A、図5Bに、本発明の要件において規定されている範囲内にある銅粒子および、範囲から外れた銅粒子を用いた銅粒子ペーストを焼成する前と後の銅粒子の顕微鏡写真（SEM像）を示す。

[0051] なお、図4Aは、本発明の要件において規定されている範囲内にある平均結晶子径が $56.7\ \text{nm}$ の銅粒子を用いた銅粒子ペーストの焼成前の銅粒子の状態を示す顕微鏡写真（SEM像）、図4Bは焼成後の銅粒子の状態を示す顕微鏡写真（SEM像）である。

[0052] また、図5Aは、本発明の要件において規定されている範囲から外れた平均結晶子径が $107.2\ \text{nm}$ の銅粒子を用いた銅粒子ペーストの焼成前の銅粒子の状態を示す顕微鏡写真（SEM像）、図5Bは焼成後の銅粒子の状態を示す顕微鏡写真（SEM像）である。

[0053] 図5A、図5Bからわかるように、平均結晶子径が $107.2\ \text{nm}$ の銅粒子10を用いた本発明の要件において規定されている範囲から外れた銅粒子ペーストの場合、銅粒子10のネック成長がほとんど認められなかった。

これに対して、図4A、図4Bからわかるように、平均結晶子径が $56.$

7 nmの銅粒子10を用いた本発明の要件において規定されている範囲内にある銅粒子ペーストの場合、銅粒子10がネック成長すること、すなわち十分に焼結することが確認された。

[0054] (3) トリエタノールアミンの還元性評価

上述の銅粒子ペーストにおいて、銅粒子を焼結させる際の焼成温度で還元作用を奏する有機化合物（溶剤）として用いたトリエタノールアミンの還元性を、以下の方法で調べた。

[0055] トリエタノールアミンの還元性を確認するにあたっては、市販の亜酸化銅（ $Cu_2O$ ）粉を用いて、以下に説明する実験を行った。まず、ガラス基板に亜酸化銅粉を載置し、常温で液体のトリエタノールアミンを塗布し、ホットプレートにて、所定の温度で10min加熱後、XRDにて組成分析を行った。

[0056] ここでは、200℃で10min加熱した場合と、電極材料として一般的に用いられるSnの融点近傍の温度条件である230℃で10min加熱した場合の結果を図6A、図6Bを参照しつつ説明する。

[0057] なお、図6Aは、トリエタノールアミンを塗布した亜酸化銅粉を、電極材料として一般的に用いられるSnの融点近傍の温度条件である230℃で10min加熱した場合のXRDチャート、図6Bはトリエタノールアミンを塗布した亜酸化銅粉を200℃で10min加熱した場合のXRDチャートを示す図である。

[0058] その結果、図6Bに示すように、加熱温度が200℃の場合、Cuのピークは認められず、亜酸化銅（ $Cu_2O$ ）のピークが大きいままで、還元作用が奏されていないことが確認された。

[0059] 一方、加熱温度が電極材料として一般的に用いられるSnの融点近傍の温度条件である230℃の場合、図6Aに示すように、Cuのピークがはっきりと認められる一方、亜酸化銅（ $Cu_2O$ ）のピークが小さくなっていること、すなわち、還元作用が奏されていることが確認された。

[0060] なお、この実施形態では、還元性を有する有機化合物としてトリエタノール

ルアミンを用いたが、トリエタノールアミン以外にも、グリセリン、エチレングリコール、トリエチレングリコール、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコールなどのヒドロキシ基を有する有機化合物が還元性を有していることが確認されており、これらの物質も還元性を有する有機化合物として用いることが可能である。

[0061] なお、還元作用を奏する有機化合物としては、さらに他の有機化合物を用いることも可能である。本発明においては、上述の還元作用を奏する有機化合物として、常温で液体である有機化合物を用いることが望ましいが、場合によっては、常温で固体の物質を用いることも可能であり、その際には、必要に応じて、他の溶剤に溶解させて用いることができる。

[0062] 図7は、上述のようにして作製した銅粒子ペーストを焼結することにより形成される接合材料を介して、接続対象に電気的および機械的に接続された構造を有する、本発明の実施形態（実施形態1）にかかる電子部品モジュールを示す図である。

この電子部品モジュール30は、図7に示すように、ICチップ（本発明における電子部品）31の表面電極32上に形成された金バンプ（外部端子）33が、銅焼結体（接合材料）34を介して、回路基板35に形成された、例えば銅からなる実装用電極（接続対象）36上に、電気的および機械的に接続されているとともに、ICチップ（電子部品）31が封止樹脂37により封止された構造を有する電子部品モジュールである。

[0063] なお、図7では、回路基板35上にICチップ31が搭載された構造を示しているが、例えば、チップコンデンサやチップ抵抗などの他の電子部品が搭載されていてもよい。

[0064] 上述の接合材料である銅焼結体34は、上述の銅粒子ペーストを焼き付けることにより形成されたものであって、焼結後の平均結晶子径が60～150nmの範囲にある銅焼結体である。

[0065] 次に、この電子部品モジュール30の製造方法について説明する。この電子部品モジュールを製造するにあたっては、まず、表面に実装用電極（ラン

ド電極) 36を備えた回路基板35を用意する。

また、表面電極32上に金バンプ(外部端子)33が形成されたICチップ(本発明における電子部品)31を用意する。

[0066] それから、回路基板35の実装用電極36上に、上述の銅粒子ペーストを付与し、ICチップ(電子部品)31の金バンプ(外部端子)33が、回路基板35の実装用電極36上に付与された銅粒子ペースト上に位置するような態様で、ICチップ(電子部品)31を回路基板35の実装用電極36上に搭載する。そして、特にICチップ(電子部品)31を回路基板35に向かって押し付けたりすることなく、窒素雰囲気(不活性雰囲気)中、230℃で焼成することにより、銅粒子ペーストに含まれる銅粒子を焼結させ、銅焼結体(接合材料)34を介して、金バンプ(外部端子)33を実装用電極(接続対象)36に接続する。

[0067] それから、回路基板35上に搭載されたICチップ(電子部品)31を封止樹脂37により封止する。これにより、図7に示すような構造を有する電子部品モジュール30が得られる。

[0068] この電子部品モジュール30は、ICチップ(電子部品)31の金バンプ(外部端子)33が、上記の銅粒子ペーストを焼き付けることにより形成され、焼結後の平均結晶子径が60~150nmの範囲にある銅焼結体(接合材料)34を介して、接続対象である回路基板35の実装用電極(接続対象)36に電気的および機械的に接続された構造を有している。

[0069] したがって、ICチップ(電子部品)31の金バンプ(外部端子)33と実装用電極(接続対象)36とが、密度が高く、空隙が占める割合が小さい銅焼結体からなる接合材料34を介して確実に接合された信頼性の高い電子部品モジュールを提供することができる。

[0070] また、上述の電子部品モジュールの製造方法によれば、ICチップ(電子部品)31の金バンプ(外部端子)33が、焼成後に銅焼結体34となる銅粒子ペーストを介して、接続対象36と対向するように、ICチップ(電子部品)31と実装用電極(接続対象)36とを位置させた状態で熱処理を行

うようにしているので、ICチップ（電子部品）31の金バンプ（外部端子）33と接続対象36とを、密度が高く、空隙が占める割合が小さい銅焼結体からなる接合材料（銅焼結体）34により確実に接合することが可能になる。

[0071] したがって、ICチップ（電子部品）31の金バンプ（外部端子）33と接続対象36とが確実に接合された、信頼性の高い電子部品モジュールを効率よく製造することができる。

[0072] また、外部から力を加えることなく熱処理を行うようにしているので、ICチップ（電子部品）31へのダメージを少なくすることが可能になるとともに、微小な接合部を形成することが可能になる。

[0073] なお、実施形態1では、ICチップ（電子部品）のバンプが金からなるものであり、実装用電極（ランド電極）が銅からなるものである場合を、例にとって説明したが、バンプの構成材料としては、Ag、Cu、Ni、Ag-Pdなどを用いることが可能であり、また、実装用電極（ランド電極）の構成材料としては、Au、Ag、Ni、Ag-Pdなどを用いることが可能である。

[0074] [実施形態2]

図8は、本発明の実施形態（実施形態2）にかかる電子部品モジュールを示す図である。

この電子部品モジュール40は、図8に示すように、積層セラミックコンデンサ41が備える銅からなる外部端子42が、銅焼結体（接合材料）44を介して、回路基板（アルミナ基板）45に形成された銅からなる実装用電極（本発明における接続対象）46に、電気的および機械的に接続された構造を有する電子部品モジュールである。

[0075] この電子部品モジュール40において、実装用電極（ランド電極）46と、外部端子42との接合強度は45MPaであることが確認されている。

[0076] この電子部品モジュール40は、回路基板45の表面に形成された実装用電極（ランド電極）46上に、焼成後に銅焼結体44となる銅粒子ペースト

を付与し、両端に外部端子42が形成された積層セラミックコンデンサ41を、実装用電極（ランド電極）46と上記外部端子42が銅粒子ペーストを介して対向するように載置し、特に外部から応力を加えたりすることなく、窒素雰囲気（不活性雰囲気）中、230℃で焼成することにより、銅粒子ペーストに含まれる銅粒子を焼結させることにより形成されたものである。

[0077] 図9は、積層セラミックコンデンサ41と回路基板45の接合部近傍の顕微鏡写真（SEM像）である。

図9より、回路基板45上の銅からなる実装用電極46に対して、積層セラミックコンデンサ41の銅からなる外部端子42が、銅焼結体44からなる接合材料を介して接合されていることがわかる。

[0078] この実施形態2から、積層セラミックコンデンサ41の外部端子42にSnめっき層やはんだめっき層などを形成せずに、上記の銅粒子ペーストを用いて、積層セラミックコンデンサ41の銅からなる外部端子42と、回路基板45上の銅からなる実装用電極46とを直接接合することで、金属間化合物を形成することなく、信頼性の高い接合を実現できることがわかる。

[0079] なお、積層セラミックコンデンサの外部端子の構成材料は、銅に限らず、金、銀、銀-パラジウム、ニッケルなどから形成されていてもよい。また、銅にガラスが含まれていてもよい。

[0080] [実施形態3]

図10は、本発明の他の実施形態（実施形態3）にかかる金属端子付きの電子部品（広義の電子部品モジュール）を示す図である。

[0081] 図10に示されている電子部品（例えば積層セラミックコンデンサ）50は、電子部品素子51の表面に形成された外部電極52に、上記の銅粒子ペーストを焼き付けることにより形成される銅焼結体（接合材料）54により、金属端子（この例では、L字状の金属端子）53を接合してなる金属端子付きの電子部品50である。

[0082] この実施形態3の金属端子付きの電子部品50は、例えば、電子部品素子51の表面に形成された外部電極52または金属端子53の少なくとも一方

に上記の銅粒子ペーストを塗布し、両者を接合させた状態で、所定の条件下で熱処理を施し、銅粒子ペースト中の銅粒子を焼結させることにより容易かつ確実に作製することができる。

[0083] なお、この金属端子付きの電子部品50は、電子部品素子51の外部電極52と接続対象である金属端子53とが、密度が高く、空隙が占める割合が小さい銅焼結体からなる接合材料（銅焼結体）54により確実に接合されており、高い信頼性を備えている。

なお、金属端子は上述のような構成のものに限られるものではなく、他の電子部品の一部を構成する金属端子であってもよい。その場合も同様の効果を得ることができる。金属端子53の構成材料に特別の制約はなく、金、銀、銅、銀-パラジウム、ニッケルなどからなるものを用いることが可能である。

[0084] また、上記の銅粒子ペーストは、実施形態1, 2で説明した電子部品モジュールや、実施形態3で説明した金属端子付き電子部品（広義の電子部品モジュール）などの用途に限られるものではなく、例えば、

- (a) 多層セラミック基板の内部に配設される内蔵部品の接続材料、
- (b) 層間接続のためのビアホール導体形成用材料、
- (c) 配線や電極を形成するための電極形成用材料、
- (d) 導電性封止材料、
- (e) ダイボンド用の接続材料

などの用途にも適用することが可能である。

[0085] 本発明はさらにその他の点においても上記実施形態に限定されるものではなく、発明の範囲内において種々の応用、変形を加えることが可能である。

## 符号の説明

- [0086]
- |    |                   |
|----|-------------------|
| 10 | 銅粒子               |
| 11 | 結晶子               |
| 12 | 酸化膜（銅酸化物）         |
| 13 | 還元作用を奏する有機化合物（溶剤） |

- 2 1 第1の無酸素銅試料片
- 2 2 第2の無酸素銅試料片
- 2 3 銅粒子ペーストを焼成してなる銅焼結体
- 2 4 シェアツール
- 3 0 電子部品モジュール
- 3 1 ICチップ（電子部品）
- 3 2 表面電極
- 3 3 金バンプ（外部端子）
- 3 4 銅焼結体（接合材料）
- 3 5 回路基板
- 3 6 実装用電極（接続対象）
- 3 7 封止樹脂
- 4 0 電子部品モジュール
- 4 1 積層セラミックコンデンサ
- 4 2 外部端子
- 4 4 銅焼結体（接合材料）
- 4 5 回路基板（アルミナ基板）
- 4 6 実装用電極（接続対象）
- 5 0 電子部品
- 5 1 電子部品素子
- 5 2 外部電極
- 5 3 金属端子
- 5 4 銅焼結体（接合材料）

## 請求の範囲

- [請求項1] 電子部品が備える外部端子が、接合材料を介して、接続対象に電気的および機械的に接続された構造を有する電子部品モジュールであつて、
- 前記接合材料は、
- 粒径分布の粒径ピークが0.1～5.0 $\mu\text{m}$ の範囲にあるとともに、焼結前の平均結晶子径が30～100nmの範囲にあり、かつ、凝集を抑制する分散剤を粒子表面に有していない銅粒子と、
- 前記銅粒子を焼結させる際の焼成温度で還元作用を奏する有機化合物と、
- を含有する銅粒子ペーストを焼結させることにより形成されたものであること
- を特徴とする電子部品モジュール。
- [請求項2] 前記接合材料は、焼結後の銅粒子の平均結晶子径が60～150nmの範囲にある銅焼結体であること
- を特徴とする請求項1記載の電子部品モジュール。
- [請求項3] 前記有機化合物がヒドロキシ基を有する有機化合物であることを特徴とする請求項1または2記載の電子部品モジュール。
- [請求項4] 前記有機化合物がトリエタノールアミン、グリセリン、エチレングリコール、トリエチレングリコール、ジエチレングリコール、ジプロピレングリコールからなる群より選ばれる少なくとも1種を含むことを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の電子部品モジュール。
- [請求項5] 前記接続対象が、回路基板に配設された実装用電極であることを特徴とする請求項1～4のいずれかに記載の電子部品モジュール。
- [請求項6] 前記接続対象が、前記外部端子に取り付けられた金属端子であることを特徴とする請求項1～4のいずれかに記載の電子部品モジュール。
- [請求項7] 電子部品が備える外部端子が、接合材料を介して接続対象に電気的

および機械的に接続された構造を有する電子部品モジュールの製造方法であって、

前記電子部品の前記外部端子が、粒径分布の粒径ピークが $0.1 \sim 5.0 \mu\text{m}$ の範囲にあるとともに、焼結前の平均結晶子径が $30 \sim 1000 \text{nm}$ の範囲にあり、かつ、凝集を抑制する分散剤を粒子表面に有していない銅粒子と、前記銅粒子を焼結させる際の焼成温度で還元作用を奏する有機化合物と、を含有する銅粒子ペーストを介して前記接続対象と対向するように、前記電子部品と前記接合対象とを位置させる工程と、

熱処理を行って前記銅粒子ペーストに含まれる前記銅粒子を焼結させることにより、銅粒子の平均結晶子径が $60 \sim 150 \text{nm}$ である銅焼結体を形成し、前記電子部品の前記外部端子と前記接続対象とを、前記銅焼結体を介して接合する工程と

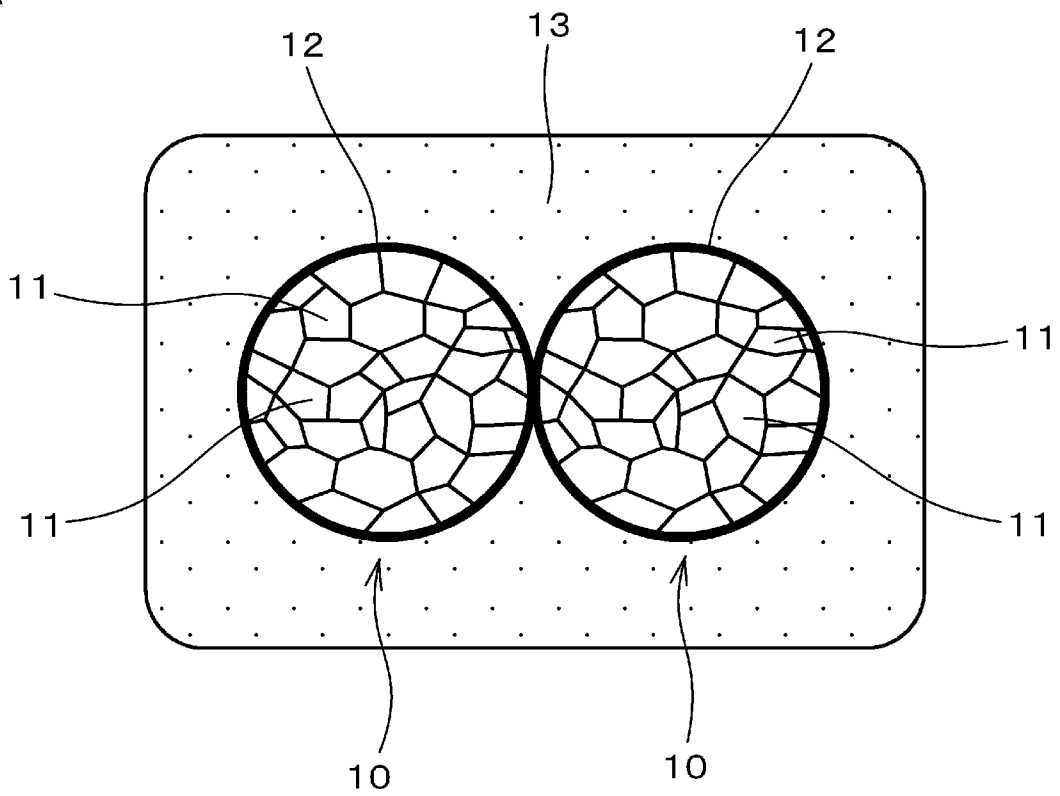
を備えていることを特徴とする電子部品モジュールの製造方法。

[請求項8] 前記電子部品の前記外部端子が、前記銅粒子ペーストを介して前記接続対象と対向するように前記電子部品を前記接合対象上に載置した状態で、外部から力を加えることなく前記熱処理を行うことを特徴とする請求項7記載の電子部品モジュールの製造方法。

[請求項9] 前記熱処理を、不活性雰囲気中で実施することを特徴とする請求項7または8記載の電子部品モジュールの製造方法。

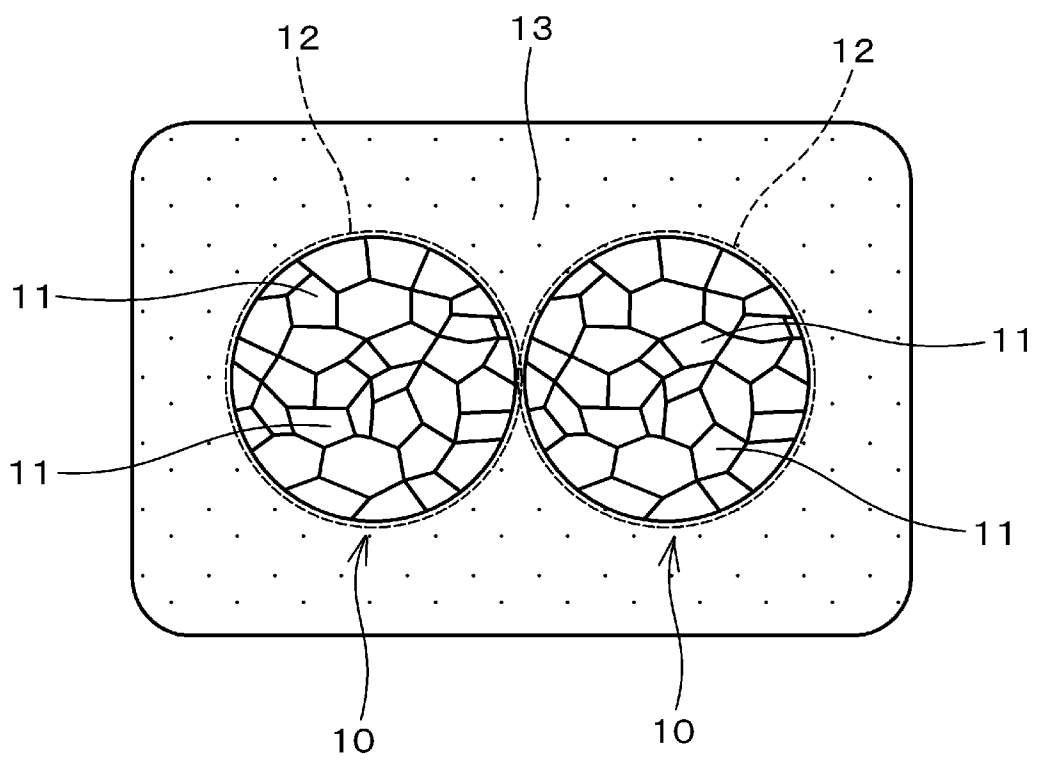
[図1A]

図1A



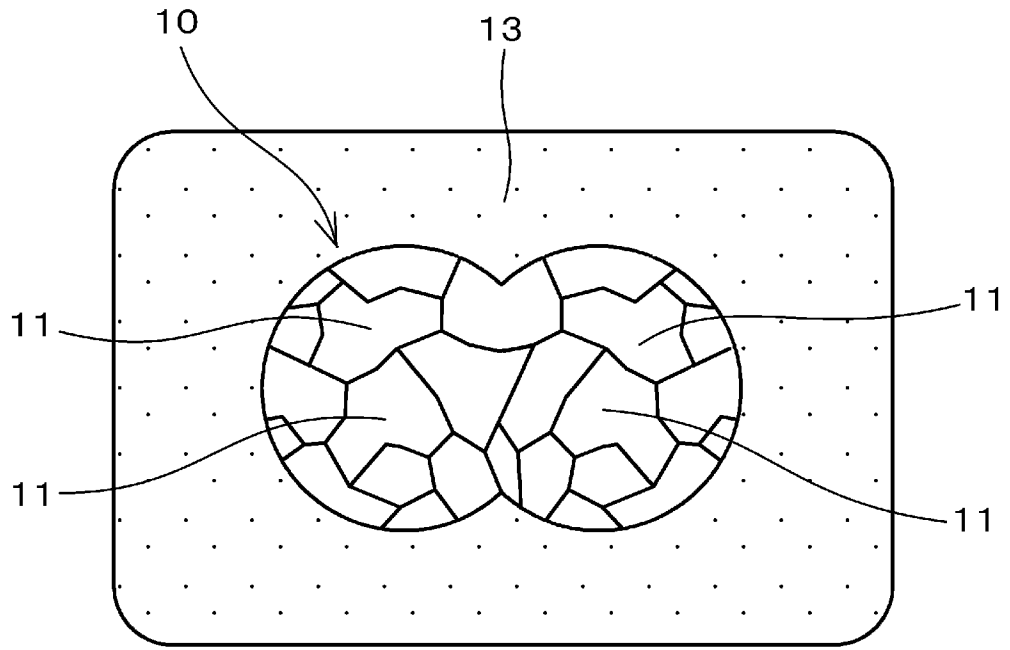
[図1B]

図1B



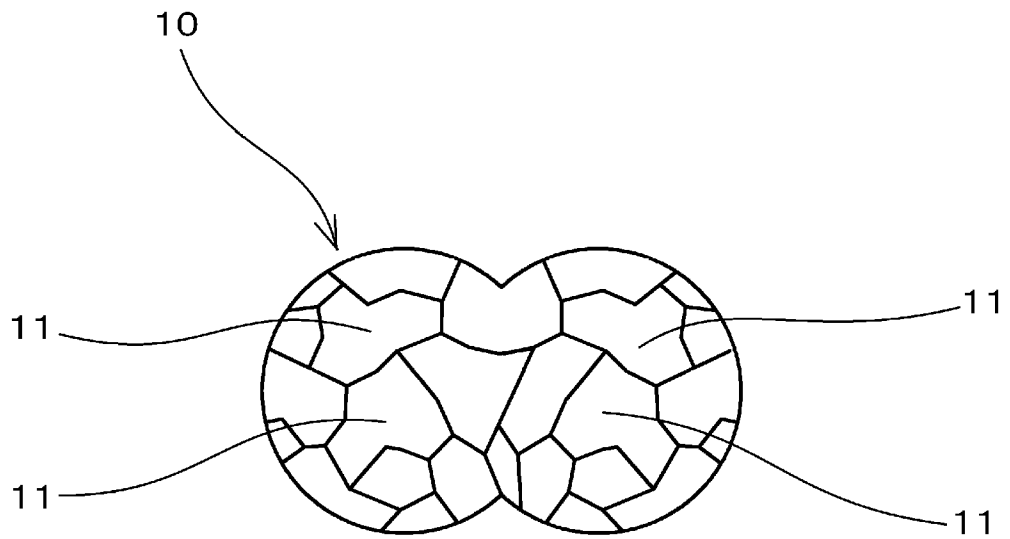
[図1C]

図1C



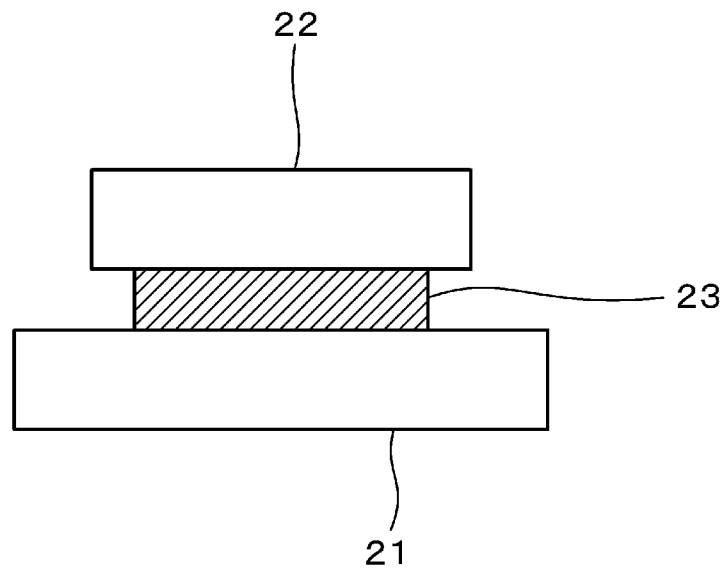
[図1D]

図1D



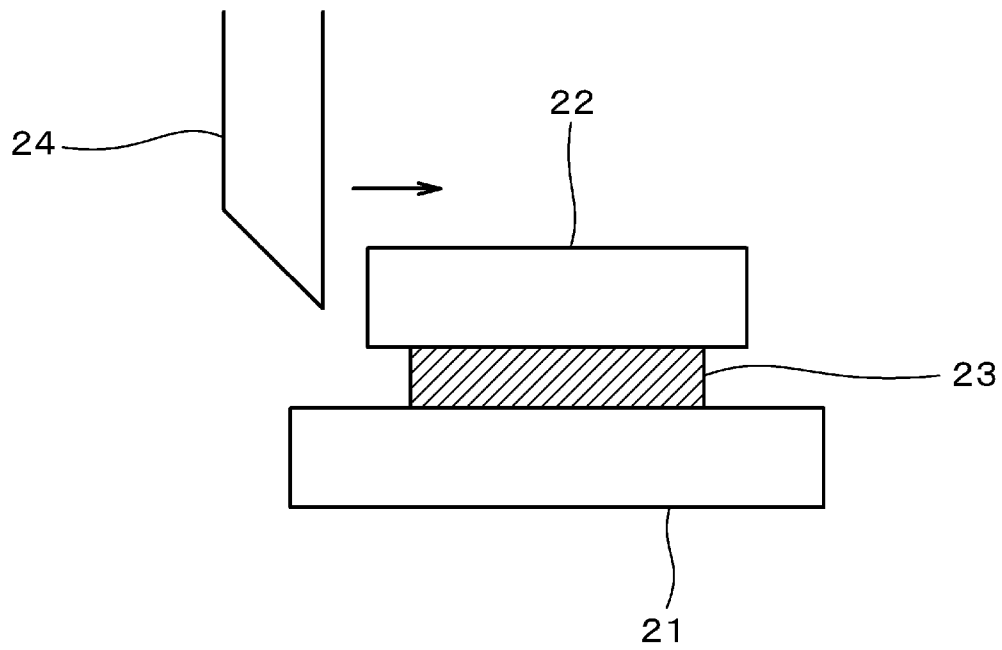
[図2]

図2



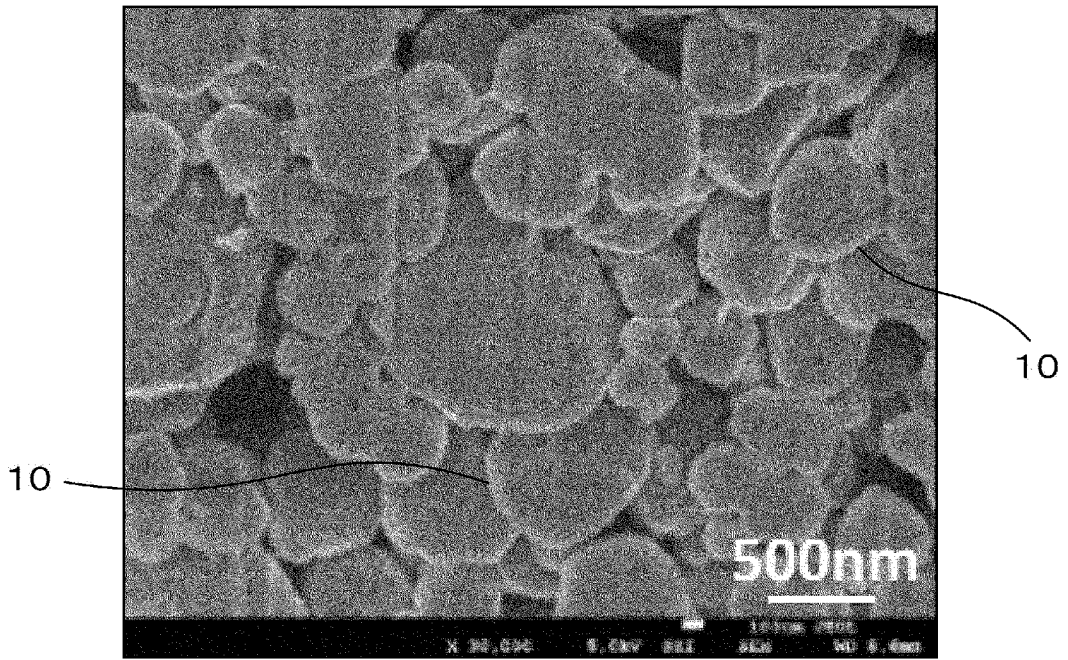
[図3]

図3



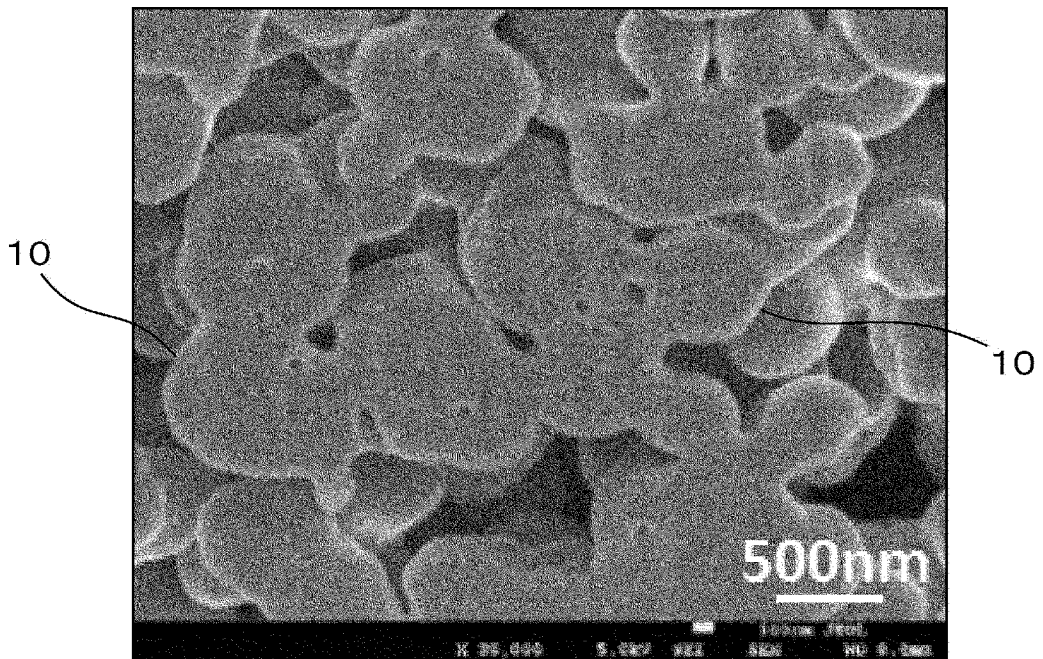
[図4A]

図4A




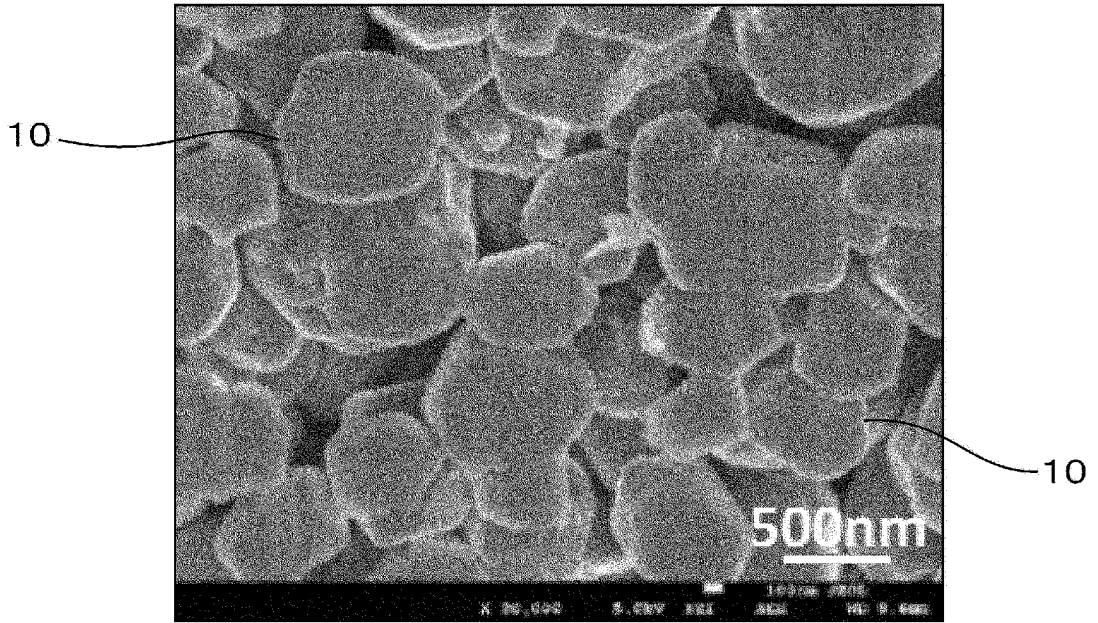
[図4B]

図4B




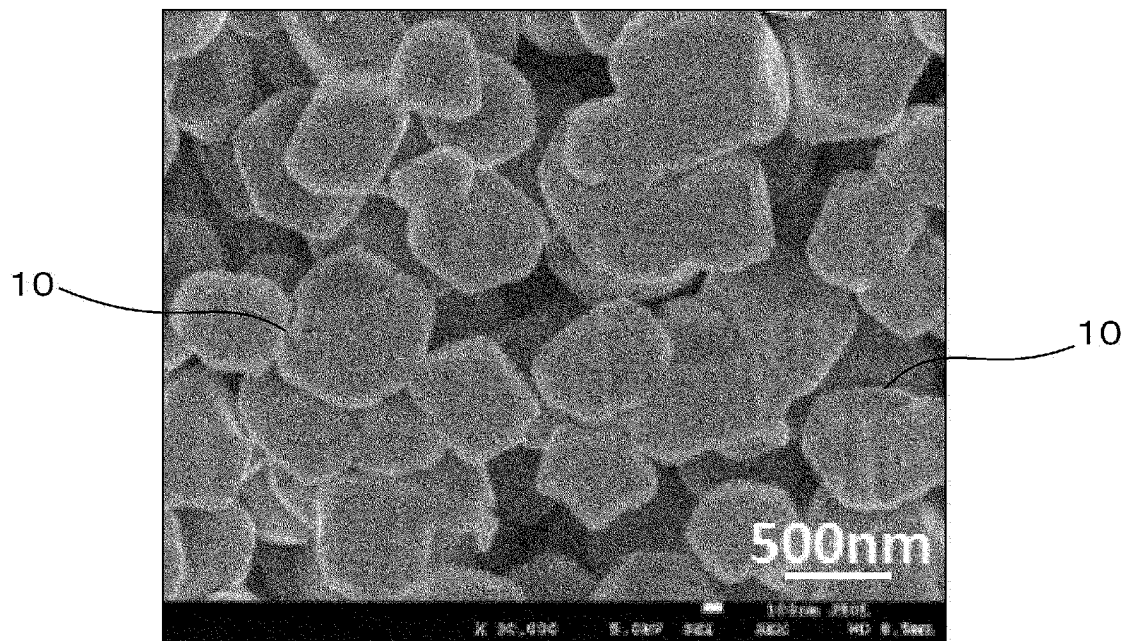
[5A]

5A




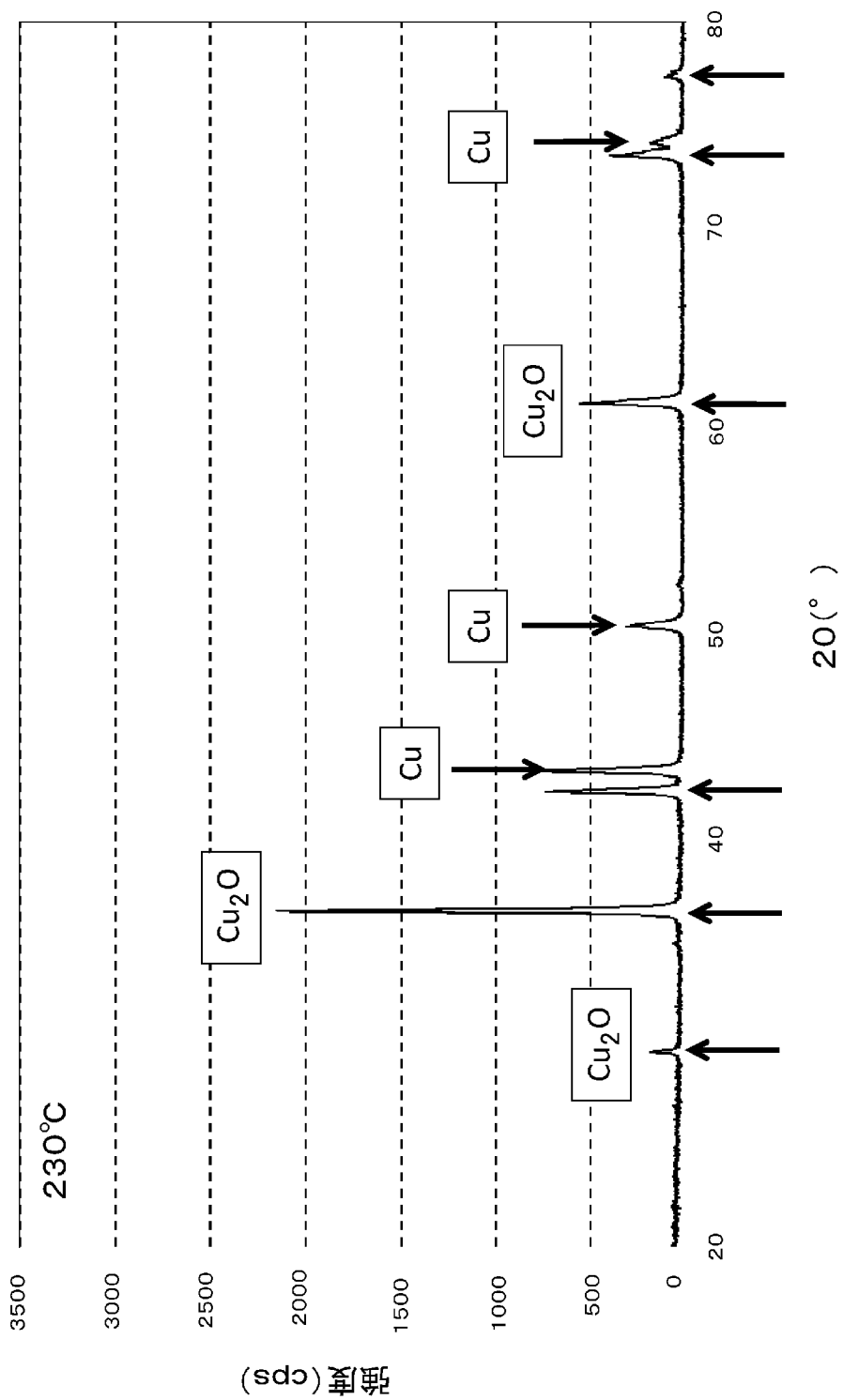
[5B]

5B



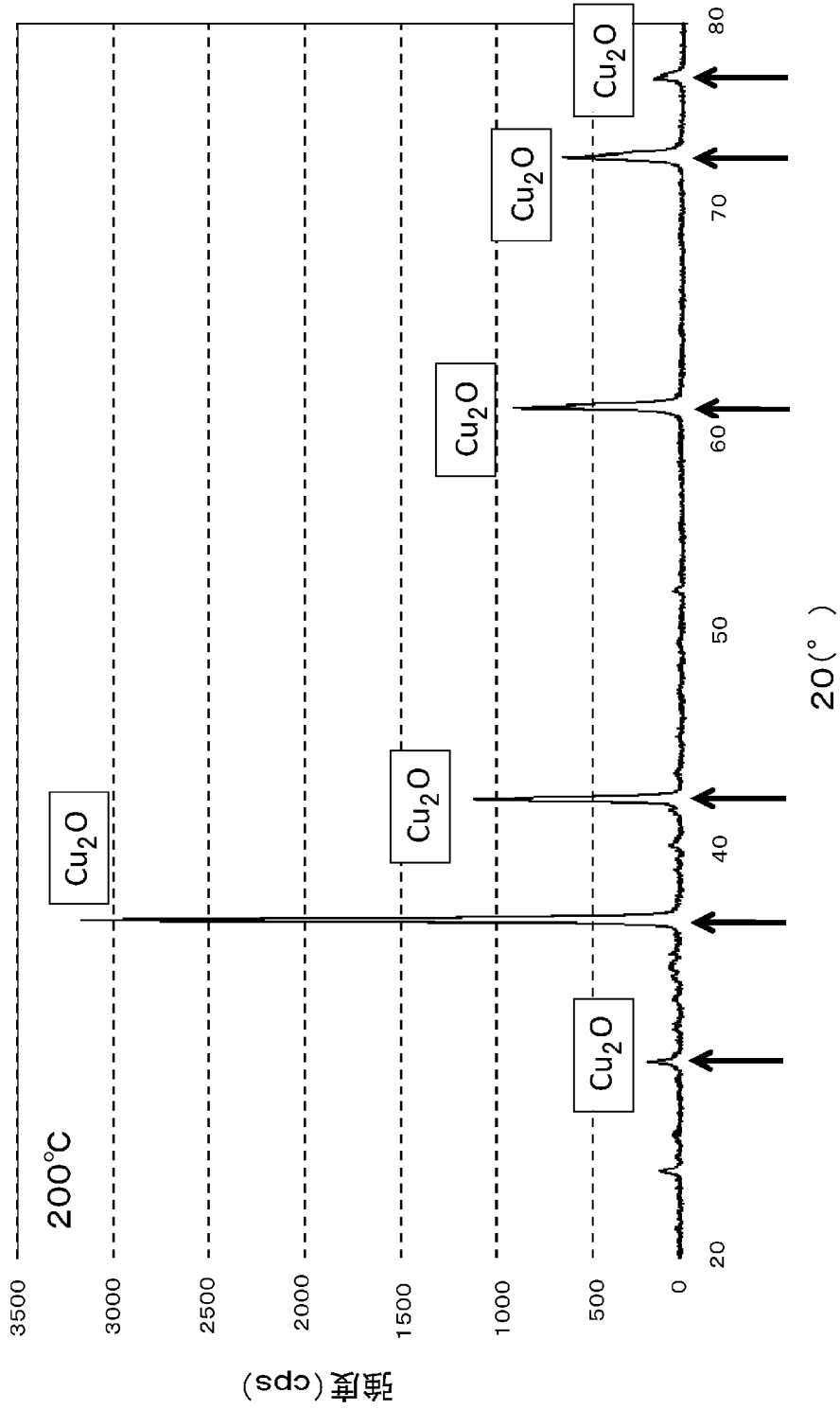
[6A]

 6A



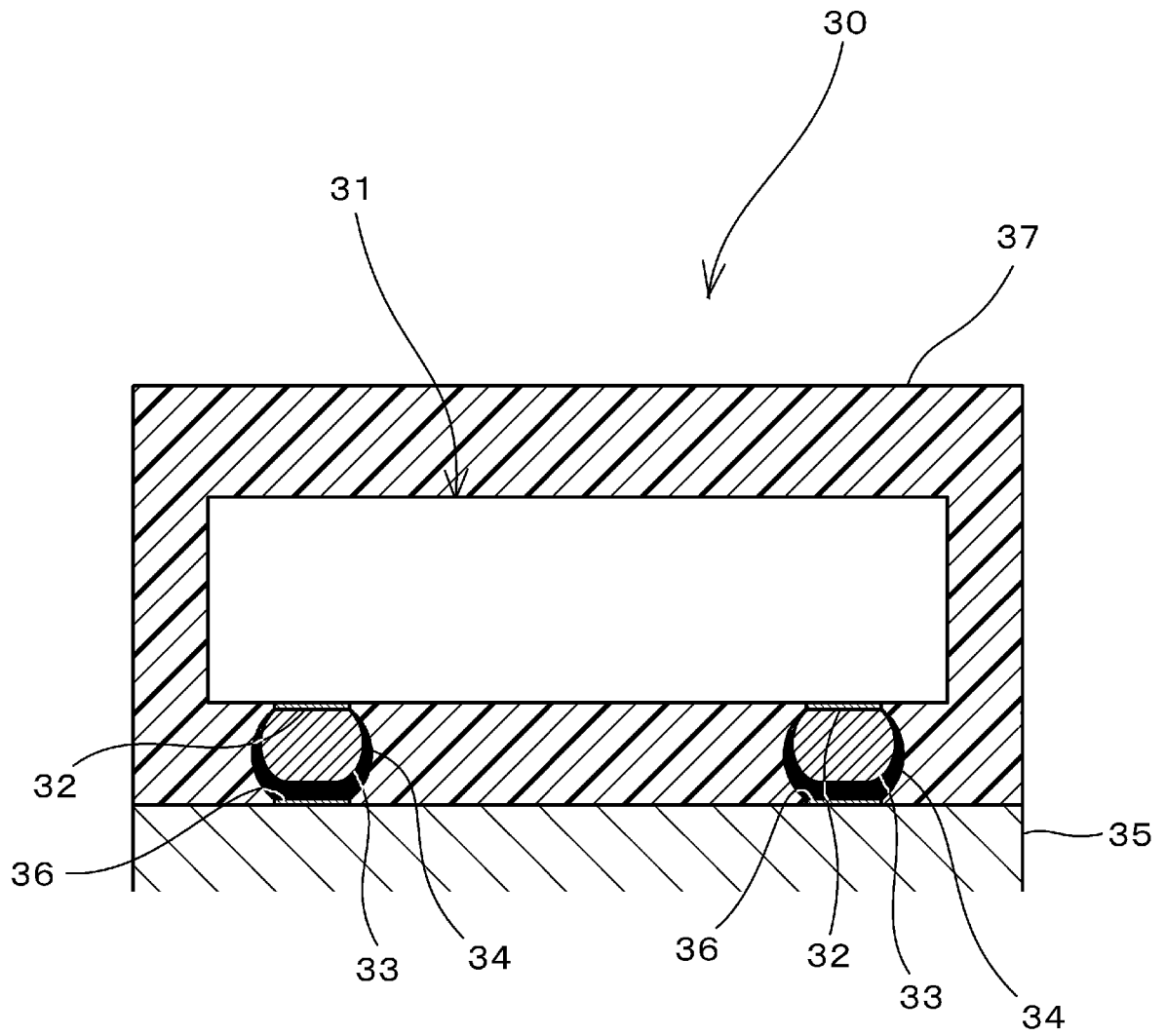
[圖6B]

圖 6B



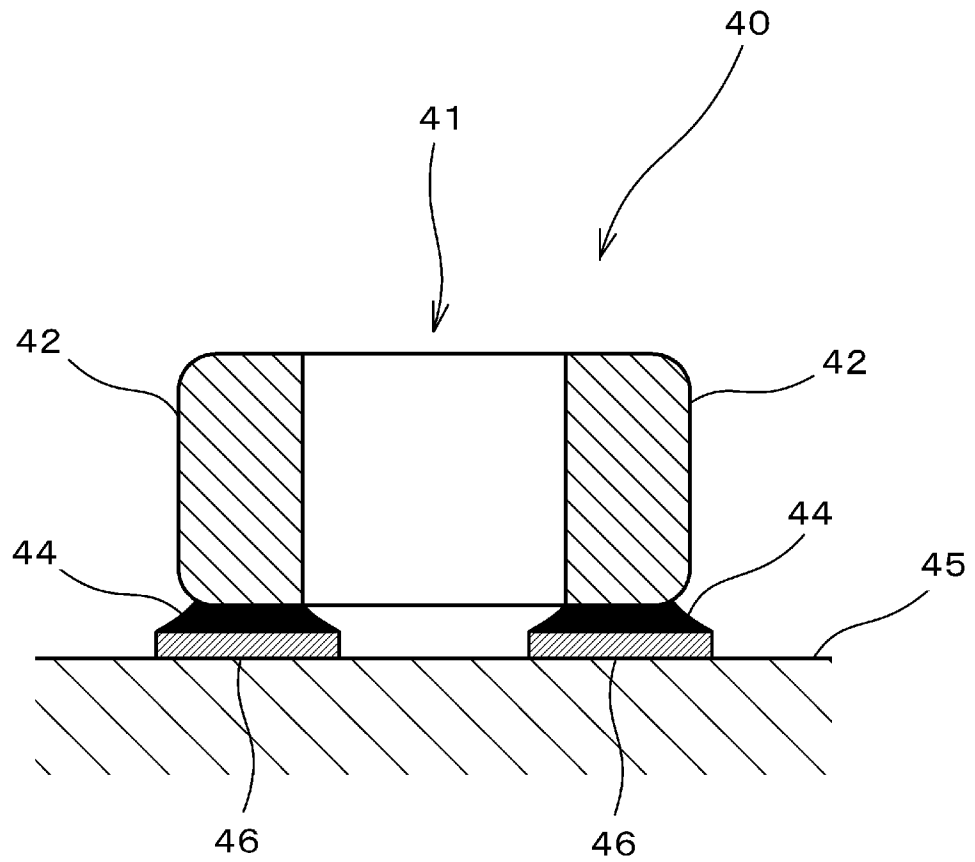
[図7]

図7



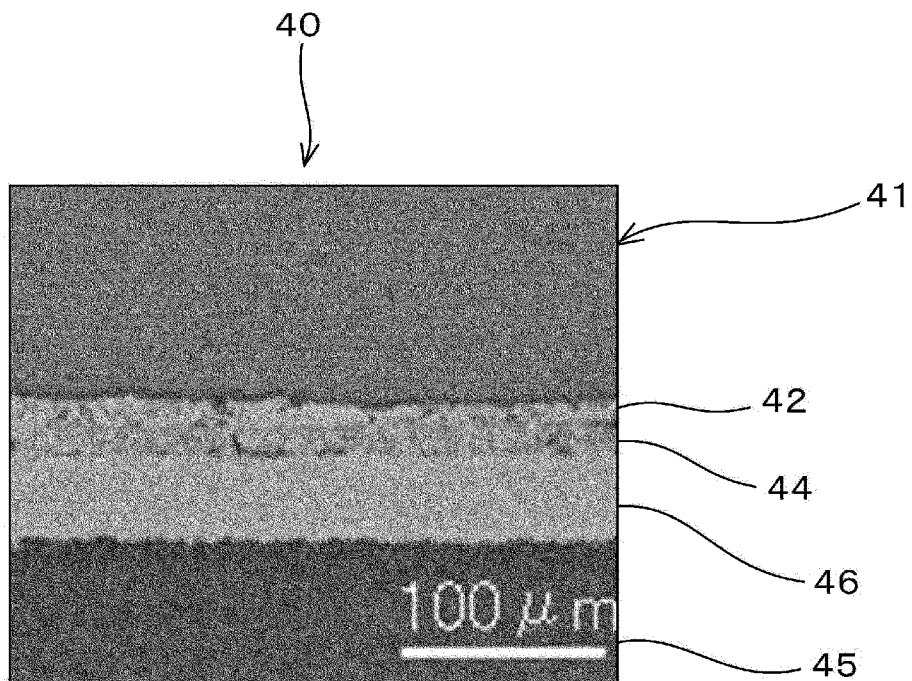
[図8]

図8



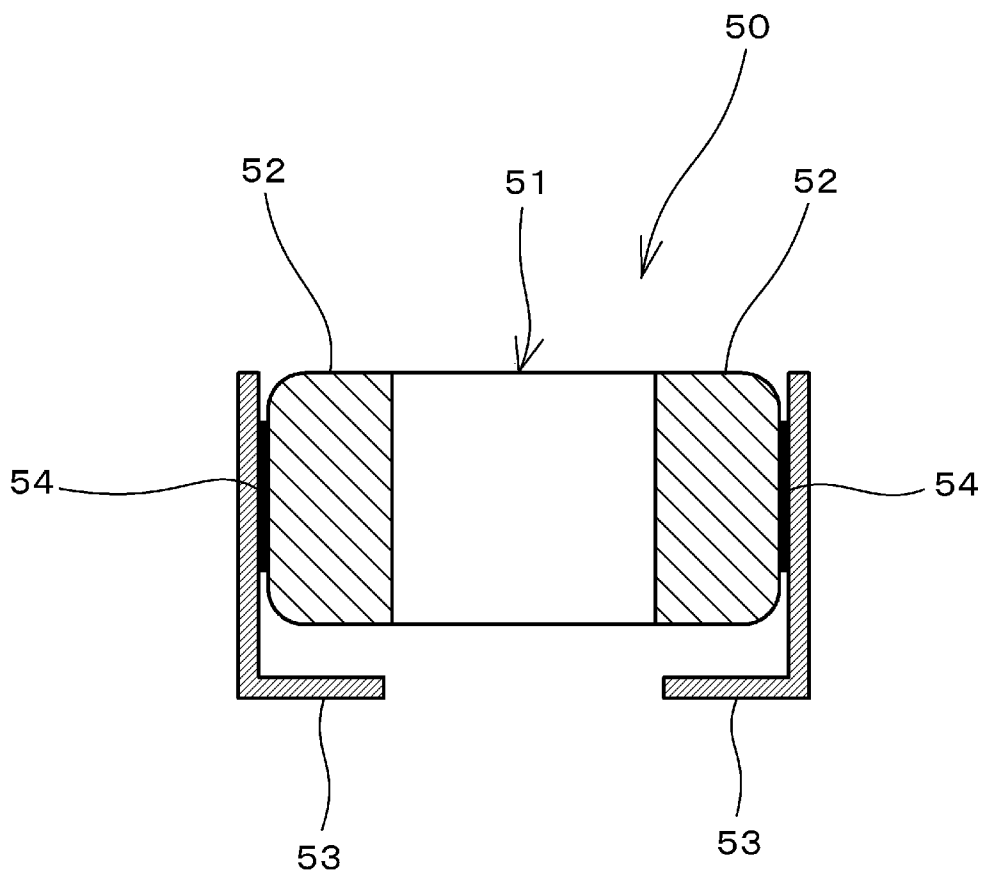
[図9]

図9



[図10]

図10



**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No. PCT/JP2015/052018
--

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
*H01L21/60(2006.01)i, H01G2/06(2006.01)i, H05K3/32(2006.01)i*

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)  
*H01L21/60, H01G2/06, H05K3/32*

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

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.
A	JP 2004-265607 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 24 September 2004 (24.09.2004), entire text; all drawings & EP 1589540 A1 & US 2005/0172483 A1 & CN 1698138 A & TW 200420204 A & WO 2004/066316 A1	1-9
A	JP 2013-91835 A (Hitachi, Ltd.), 16 May 2013 (16.05.2013), entire text; all drawings & EP 2587899 A1 & US 2013/0105980 A1	1-9

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 07 April 2015 (07.04.15)	Date of mailing of the international search report 21 April 2015 (21.04.15)
---	--

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

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））  
 Int.Cl. H01L21/60(2006.01)i, H01G2/06(2006.01)i, H05K3/32(2006.01)i

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））  
 Int.Cl. H01L21/60, H01G2/06, H05K3/32

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 1971-2015年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2015年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2015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
A	J P 2 0 0 4 - 2 6 5 6 0 7 A (松下電器産業株式会社) 2 0 0 4 . 0 9 . 2 4、全文全図 & E P 1 5 8 9 5 4 0 A 1 & U S 2 0 0 5 / 0 1 7 2 4 8 3 A 1 & C N 1 6 9 8 1 3 8 A & T W 2 0 0 4 2 0 2 0 4 A & W O 2 0 0 4 / 0 6 6 3 1 6 A 1	1 - 9

C欄の続きにも文献が列挙されている。  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	の日の後に公表された文献
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	「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矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「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	「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
「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）	「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
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日 07.04.2015	国際調査報告の発送日 21.04.2015
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/J P） 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 工藤 一光 電話番号 03-3581-1101 内線 3516

5 F	9 2 7 4
-----	---------

C (続き) . 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
A	JP 2013-91835 A (株式会社日立製作所) 2013.05.16、全文全図 & EP 2587899 A1 & US 2013/0105980 A1	1-9