

(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
2012年4月5日(05.04.2012)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2012/042907 A1

- (51) 国際特許分類:
B23K 20/16 (2006.01) H01L 21/60 (2006.01)
B23K 20/00 (2006.01) H01R 4/02 (2006.01)
B23K 20/24 (2006.01) H01R 43/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2011/005556
- (22) 国際出願日: 2011年9月30日(30.09.2011)
- (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 2010-222603 2010年9月30日(30.09.2010) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 三洋電機株式会社(SANYO ELECTRIC CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5708677 大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 齋藤 浩一(SAITO, Koichi) [JP/JP]; 〒5708677 大阪府守口市

京阪本通2丁目5番5号三洋電機株式会社内 Osaka (JP). 岡山 芳央(OKAYAMA, Yoshio) [JP/JP]; 〒5708677 大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号三洋電機株式会社内 Osaka (JP). 井上 恭典(INOUE, Yasunori) [JP/JP]; 〒5708677 大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号三洋電機株式会社内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 森下 賢樹(MORISHITA, Sakaki); 〒1500021 東京都渋谷区恵比寿西2-11-12 Tokyo (JP).

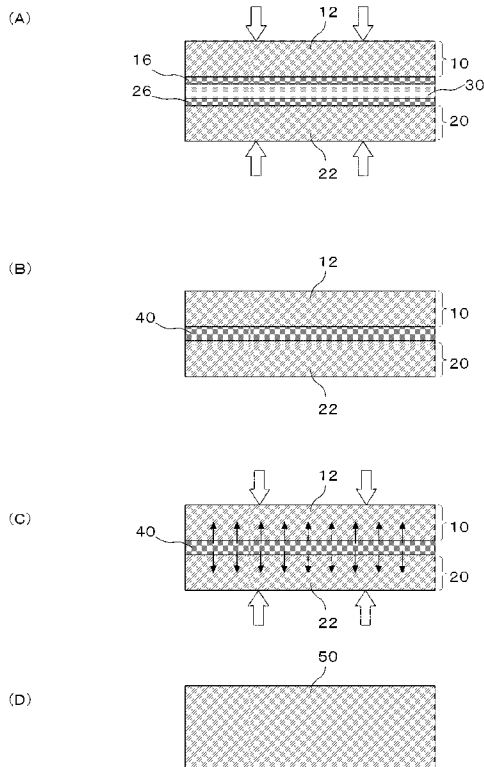
(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL,

[続葉有]

(54) Title: METHOD OF JOINING METALS

(54) 発明の名称: 金属の接合方法

[図3]



(57) Abstract: A first copper coating (16) and a second copper coating (26) are formed by sputtering copper after removing a first coating portion (14) formed on a joint surface of a first joint portion (10) and a second coating portion (24) formed on a joint surface of a second joint portion (20) by reverse sputtering. A solution into which a copper oxide will be eluted is filled in between an oxide film on a topmost surface of the first copper coating (16) and an oxide film on a topmost surface of the second copper coating (26) so that the copper oxide in the oxide film is eluted into the solution. After precipitating the copper oxide by removing the components other than copper in the solution by applying pressure and heating, and joining the first joint portion (10) and the second joint portion (20) by the precipitated copper, the copper is diffused in solid phase into the first joint portion (10) and the second joint portion (20).

(57) 要約: 第1の被接合部(10)の接合面に形成された第1の被膜部(14)と第2の被接合部(20)の接合面に形成された第2の被膜部(24)を逆スパッタリングにより除去した後、銅をスパッタリングすることにより、第1の銅被膜(16)および第2の銅被膜(26)を形成する。第1の銅被膜(16)の最表面の酸化膜と第2の銅被膜(26)の最表面の酸化膜との間に、酸化銅が溶出する溶液を充填し、酸化膜中の酸化銅を溶液中に溶出させる。加圧および加熱により溶液中の銅以外の成分を除去して酸化銅を析出させ、第1の被接合部(10)と第2の被接合部(20)とを析出した銅により接合した後、第1の被接合部(10)と第2の被接合部(20)に銅を固相拡散させる。



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, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, 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, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：金属の接合方法

技術分野

[0001] 本発明は、金属の接合方法に関する。特に、本発明は、表面に酸化被膜が形成されている金属同士を接合する方法に関する。

背景技術

[0002] 半導体チップを配線基板上に実装するための接合部をはじめとして電子部品における電氣的な接続のための接合部に従来からはんだが使われている。はんだを介した、たとえばCu同士の接合方法では、被接合部とはんだとの接合界面にCu-Sn合金が生じる。Cu-Sn合金は電気抵抗が比較的大きく、かつ延性が乏しいため、接合部分の電気特性や接続信頼性が低下するという課題がある。

[0003] このような課題を解決するべく、特許文献1には、対向する一对の電極同士を金属間化合物層を介して接合する技術が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2002-110726号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 特許文献1の接合技術では、固相拡散を利用して金属間化合物が形成される。一般に、金属の表面には自然酸化により酸化膜が形成されている。表面が酸化膜となった金属に固相拡散を利用した接合技術を適用すると、酸化膜が拡散の障害となるため、接合が困難になるという課題がある。また、酸化膜が残存することにより、電氣的な接続の信頼性が低下するという課題がある。特に、アルミニウムの表面に形成される酸化アルミニウムは強固な酸化膜であるため、固相拡散による接合がより困難であり、電氣的な接続の信頼性を十分に得ることができなかった。

[0006] 本発明はこうした課題に鑑みてなされたものであり、その目的は、表面に酸化膜が形成されている金属同士を簡便かつ高強度で接合することができる接合方法の提供にある。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明のある態様は、金属の接合方法である。当該金属の接合方法は、銅以外の金属または無機化合物を主成分とする第1の被接合部と、前記第1の被接合部と同種または異種の金属を主成分とする第2の被接合部とを用意する工程と、第1の被接合部の露出面、および第2の被接合部の露出面に、それぞれ銅を成膜する工程と、第1の被接合部に成膜された銅と、第2の被接合部に成膜された銅との間に、酸化銅が溶出する物質を充填する工程と、第1の被接合部と第2の被接合部との間の距離を縮めるように第1の被接合部と第2の被接合部とを加圧することにより、第1の被接合部と第2の被接合部とを銅で接合する工程と、を備えることを特徴とする。

[0008] 上記態様の金属の接合方法によれば、第1の被接合部や第2の被接合部の接合面に酸化膜が形成されている場合であっても、別途形成された第1の銅被膜と第2の銅被膜とを利用することで、第1の被接合部と第2の被接合部とを銅を介して簡便かつ高強度で接合することができる。

[0009] 上記態様の金属の接合方法において、第1の被接合部と第2の被接合部とを加圧する前、第1の被接合部と第2の被接合部とを加圧する間、または第1の被接合部と第2の被接合部とを加圧した後の少なくともいずれかの段階において第1の被接合部と第2の被接合部とを過熱する工程を、さらに備えてもよい。また、第1の被接合部の露出面、および第2の被接合部の露出面にそれぞれ銅を成膜する前に、第1の被接合部の最表面、および第2の被接合部の最表面からそれぞれ酸化膜を除去する工程をさらに備えてもよい。第1の被接合部と第2の被接合部とを接合する銅を、第1の被接合部および第2の被接合部に固相拡散させる工程をさらに備えてもよい。物質は銅に対して不活性であってもよい。物質が銅と錯体を形成する配位子を含んでもよい。錯体が加熱分解性であってもよい。また、物質がアンモニア水またはカル

ボン酸水溶液であってもよい。カルボン酸水溶液に含まれるカルボン酸が多座配位子であってもよい。

[0010] なお、上述した各要素を適宜組み合わせたものも、本件特許出願によって特許による保護を求める発明の範囲に含まれる。

発明の効果

[0011] 本発明によれば、表面に酸化膜が形成されている金属同士を簡便かつ高強度で接合することができる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]実施の形態に係る金属の接合方法を示す工程図である。

[図2]実施の形態に係る金属の接合方法を示す工程図である。

[図3]実施の形態に係る金属の接合方法を示す工程図である。

[図4]金属接合方法の適用例1で用いられる非水電解質二次電池の概略を示す図である。

[図5]金属接合方法の適用例2で用いられる円筒型二次電池の断面部分解体斜視図である。

[図6]金属接合方法の適用例2を説明するための概略工程図である。

[図7]ヒートシンクと放熱フィンとの接合に応用される金属の接合方法の概略工程を示す工程図である。

[図8]ヒートシンクと放熱フィンとの接合に応用される金属の接合方法の概略工程を示す工程図である。

発明を実施するための形態

[0013] 以下、本発明の実施の形態を図面を参照して説明する。なお、すべての図面において、同様な構成要素には同様の符号を付し、適宜説明を省略する。

[0014] 図1乃至図3は、実施の形態に係る金属の接合方法を示す工程図である。図1乃至図3を参照して実施の形態に係る金属の接合方法を説明する。

[0015] まず、図1(A)に示すように、第1の被接合部10および第2の被接合部20を用意する。第1の被接合部10は、A1を主成分とする金属からなる第1の基材部12と、第1の基材部12の接合面側の表面を被覆する第1

の被膜部 14 とを有する。また、第 2 の被接合部 20 は、Al を主成分とする金属からなる第 2 の基材部 22 と、第 2 の基材部 22 の接合面側の表面を被覆する第 2 の被膜部 24 とを有する。第 1 の被膜部 14 および第 2 の被膜部 24 はともに酸化アルミニウムを主成分とする酸化物で形成されている。ここで、「Al を主成分とする」および「酸化アルミニウムを主成分とする」という表現中、「主成分とする」は、それぞれアルミニウムまたは酸化アルミニウムの含有量が 50% よりも大きいことを意味する。

[0016] 第 1 の被膜部 14 および第 2 の被膜部 24 は、具体的には、 Al_2O_3 で形成された薄膜状の被膜であり、その厚さは、たとえば、5 nm である。第 1 の被膜部 14 および第 2 の被膜部 24 は、意図的に形成された被膜であっても、意図せず形成された被膜であってもよい。本実施の形態では、第 1 の被膜部 14 および第 2 の被膜部 24 は、Al が大気中で酸化することにより形成される自然酸化膜である。

[0017] 次に、図 1 (B) に示すように、第 1 の被膜部 14 および第 2 の被膜部 24 を除去する。第 1 の被膜部 14 および第 2 の被膜部 24 を除去する方法として、真空装置内で逆スパッタリングを行う方法が挙げられる。第 1 の被膜部 14 および第 2 の被膜部 24 を除去することにより、第 1 の基材部 12 および第 2 の基材部 22 の接合面が清浄な状態で露出する。

[0018] 次に、図 1 (C) に示すように、スパッタリング法などの成膜法を用いて、第 1 の基材部 12 および第 2 の基材部 22 の接合面に銅を成膜し、第 1 の銅被膜 16、第 2 の銅被膜 26 を形成する。第 1 の銅被膜 16 および第 2 の銅被膜 26 の膜厚は、たとえば、100 nm である。

[0019] 次に、図 2 (A) に示すように、第 1 の被接合部 10 および第 2 の被接合部 20 を大気に暴露すると、第 1 の銅被膜 16 および第 2 の銅被膜 26 の最表面が自然酸化され、 Cu_2O を主成分とする第 1 の酸化膜 18、第 2 の酸化膜 28 が形成される。

[0020] 次に、図 2 (B) に示すように、第 1 の酸化膜 18 と第 2 の酸化膜 28 との間に酸化銅が溶出または溶解する溶液 30 を充填する。本実施の形態では

、溶液 30 はアンモニア水である。第 1 の酸化膜 18 と第 2 の酸化膜 28 との間に溶液 30 を充填したときの、第 1 の酸化膜 18 の露出面と第 2 の酸化膜 28 の露出面との距離は、たとえば、1 ～ 100 μm である。

[0021] 第 1 の酸化膜 18 と第 2 の酸化膜 28 が溶液 30 に触れると、で 1 分程度放置すると、図 2 (C) に示すように、第 1 の酸化膜 18 を構成する酸化銅が溶液 30 中に溶出し、第 1 の酸化膜 18 が消失する。また、第 2 の酸化膜 28 を構成する酸化銅も溶液 30 中に溶出し、第 2 の酸化膜 28 が消失する。

[0022] 第 1 の酸化膜 18 および第 2 の酸化膜 28 を構成する酸化銅が溶液 30 に溶出することにより、第 1 の被接合部 10 の最表面（接合面側の露出面）および第 2 の被接合部 20 の最表面（接合面側の露出面）にそれぞれ第 1 の銅被膜 16、第 2 の銅被膜 26 が露出する。また、溶液 30 中では、銅錯体が形成される。本実施の形態では、銅錯体は、 $[\text{Cu}(\text{NH}_3)_4]^{2+}$ で表される加熱分解性のテトラアンミン銅錯イオンとして存在すると考えられる。なお、アンモニア水は銅に対して不活性であるため、第 1 の銅被膜 16 および第 2 の銅被膜 26 を構成する銅はアンモニア水と反応せずに残存している。

[0023] 次に、図 2 (D) に示すように、第 1 の被接合部 10 と第 2 の被接合部 20 との間の距離を縮めるように、プレス機を用いて第 1 の被接合部 10 と第 2 の被接合部 20 とを加圧する。加圧時の圧力は、たとえば、1 MPa である。

[0024] 次に、図 3 (A) に示すように、第 1 の被接合部 10 と第 2 の被接合部 20 とを加圧した状態で 200℃～300℃の比較的低温な条件下で加熱することにより第 1 の被接合部 10 の最表面（接合側の露出面）および第 2 の被接合部 20 の最表面（接合側の露出面）への銅の固相拡散を進行させる。本実施の形態では、加熱により水分が蒸発するとともに、テトラアンミン銅錯イオンが熱分解してアンモニア成分が蒸発する。これにより、溶液 30 において銅の割合が徐々に高まるとともに、プレス機による加圧により第 1 の銅被膜 16 の最表面と第 2 の銅被膜 26 の最表面との距離が徐々に近づく。

[0025] 次に、図3（B）に示すように、溶液30中の銅以外の成分の除去が完了すると、第1の銅被膜16の最表面と第2の銅被膜26の最表面とが銅の固相拡散により接合される。固相拡散により接合された領域40により接合される。この固相拡散により接合された領域40は、配向性および安定性が優れている。固相拡散により接合された領域40の厚さは、最終的に、図1（C）で形成された第1の銅被膜16の厚さと、第2の銅被膜26の厚さと、図2（A）で形成された第1の酸化膜18の厚さと、第2の酸化膜28の厚さとの和と同程度である。固相拡散により接合された領域40により接合が完了した後、加熱を停止して固相拡散により接合された領域40による接合部分を室温程度まで冷却する。なお、加熱開始から加熱停止までの時間は、たとえば、10分間である。冷却完了後、加圧を解除し、第1の被接合部10と第2の被接合部20との接合工程が完了する。

[0026] 次に、図3（C）に示すように、加熱および加圧により固相拡散により接合された領域40を固相拡散させ、第1の被接合部10と第2の被接合部20とを接合する。固相拡散が完了すると、最終的に、図3（D）に示すように、第1の被接合部10と第2の被接合部20とが一体化することで金属部材50となる。

[0027] 以上説明した金属の接続方法によれば、第1の被接合部10や第2の被接合部20の接合面に酸化膜が形成されている場合であっても、別途形成された第1の銅被膜16と第2の銅被膜26を利用することで、第1の被接合部10と第2の被接合部20とを第1の銅被膜16、第2の銅被膜26および固相拡散により接合された領域40により簡便かつ高強度で接合することができる。

[0028] 特に、第1の銅被膜16の最表面と第2の銅被膜26を形成する前に、第1の被接合部10の最表面に形成された第1の被膜部14と、第2の被接合部20の最表面に形成された第2の被膜部24を予め除去することにより、第1の被接合部10および第2の被接合部20の接合面が活性化される。この結果、固相拡散により接合された領域40を第1の被接合部10や第2の

被接合部 20 に固相拡散させることを容易にすることができ、第 1 の被接合部 10 と第 2 の被接合部 20 との間に構造変化をつけることなく、第 1 の被接合部と第 2 の被接合部とを一体的に形成することができる。ひいては、第 1 の被接合部と第 2 の被接合部との接続信頼性を高めることができる。なお、上述の実施の形態においては、図 1 (B) で示すように、自然酸化膜を除去する場合を示したが、酸化膜を除去しない場合でも適用が可能である。具体的には、無機化合物の一例であるガラス基板同士を接合する場合には、一連の接合工程において図 1 (A) の工程はなく、図 1 (B) 以下の工程を行えばよい。

[0029] また、第 1 の酸化膜 18 と第 2 の酸化膜 28 との間に充填する物質の例として溶液を例示したが、当該物質はフィルム状であってもよい。

[0030] (金属接合方法の適用例 1)

図 4 は、従来の非水電解質二次電池の側面方向から見た概略を示す図である。従来の非水電解質二次電池 1000 は、正極極板 (図示せず) と負極極板 (図示せず) とがセパレータ (図示せず) を介して巻回された巻き取り電極体 1011 を電池外装缶 1012 の内部に收容し、封口板 1013 によって電池外装缶 1012 を密閉した構造を有する。

[0031] 巻き取り電極体 1011 は、巻回軸方向の両端部にそれぞれ、正極活物質、負極活物質が塗布されていない正極芯体露出部 1014、負極芯体露出部 1015 を備える。正極芯体露出部 1014 は正極集電体 1016 を介して正極端子 1017 に電氣的に接続されている。また、負極芯体露出部 1015 は負極集電体 1018 を介して負極端子 1019 に電氣的に接続されている。正極芯体露出部 1014 と正極集電体 1016 とは、正極芯体露出部 1014 を正極集電体 1016 で挟んだ状態で溶接される。また、負極芯体露出部 1015 と負極集電体 1018 とは、負極芯体露出部 1015 を負極集電体 1018 で挟んだ状態で接合される。正極端子 1017、負極端子 1019 はそれぞれ絶縁部材 1020、1021 を介して封口板 1013 に固定されている。巻き取り電極体 1011 を電池外装缶 1012 内に挿入した後

、封口板 1013 を電池外装缶 1012 の開口部をレーザ溶接した後、電解液注入孔（図示せず）から非水電解液を注液して、当該電解液注液孔を密閉することにより、非水電解質二次電池 1000 が作製される。

[0032] 従来の非水電解質二次電池では、芯体露出部と集電体（引き出し電極）との接合部において、腐食や応力集中による破損や剥離が生じることがあった。

[0033] 本適用例は、芯体露出部と集電体との接合に応用される。芯体露出部と集電体との接合法の概略工程は以下のとおりである。

（１）正極芯体露出部および正極集電体の表面の酸化アルミニウムを逆スパッタリングにより除去する。

（２）逆スパッタリングにより露出した正極芯体露出部および正極集電体のアルミニウム上に銅をスパッタリングにより成膜する。

（３）アルミニウム箔からなる正極芯体の両面において、巻回軸と直交する一辺に所定幅の正極芯体露出部に、正極活物質を塗布する。また、銅箔からなる負極芯体の両面において、巻回軸と直交する一辺に所定幅の負極芯体露出部に、負極活物質を塗布する。

（４）巻き取り電極体を形成した状態で接触する内側の正極芯体露出部と外側の正極芯体露出部との間、正極芯体露出部の外周面と正極集電体との間、巻き取り電極体を形成した状態で接触する内側の負極芯体露出部と外側の負極芯体露出部との間、および負極芯体露出部の外周面と負極集電体との間にアンモニア水を充填する。

（５）正極芯体露出部の外周面と正極集電体とを加熱圧着するとともに、負極芯体露出部の外周面と負極集電体とを加熱圧着する。これにより、上記工程（４）に示した各部材間の間に銅からなる接合部が形成される。

（６）銅を固相拡散させることにより、巻き取り電極体を形成した状態で接触する内側の正極芯体露出部と外側の正極芯体露出部との間、および正極芯体露出部の外周面と正極集電体との間を銅が拡散したアルミニウムで一体化させる。

[0034] 以上説明した芯体露出部と集電体との接合法によれば、正極芯体露出部と正極集電体とがアルミニウムを主成分とする接合部により一体化され、負極芯体露出部と負極集電体とが銅を主成分とする接合部により一体化される。これにより、正極芯体露出部と正極集電体との接合部および負極芯体露出部と負極集電体との接合部に応力が集中することが抑制され、当該部分に破損や剥離が生じることが抑制される。

[0035] (金属接合方法の適用例2)

本適用例は、円筒型二次電池の集電体と集電タブとの接合法に関する。図5は、本適用例で用いられる円筒型二次電池の断面部分解体斜視図である。円筒型二次電池では、正極板3と負極板4とセパレータ5とを備える渦巻電極体2が、円筒形の電池缶1内に挿入されている。電池缶1の開口部は封口体6により封口されている。また、負極板4は負極集電タブ4aを介して電池缶1と電氣的に接続されており、正極板3は正極集電タブ3aを介して封口体6と電氣的に接続されている。すなわち、電池缶1が負極外部端子を兼ね、封口体6が正極外部端子を兼ねる構造である。また、電池缶1内には、非水電解質が注液されている。なお、円筒型二次電池の基本的な構成は、特開2011-138633号公報に開示された電池と同様であり、詳細な構成については省略する。

[0036] 図6は、金属接合方法の適用例2を説明するための概略工程図である。図6を参照して、本適用例の概略工程を説明する。

[0037] (1) アルミニウム箔からなる正極板(正極集電体)3の両面に、正極集電タブ3aと接続する部分以外に正極活物質3cを塗布したものを準備する(図6(A)参照)。

(2) アルミニウムからなる正極集電タブ3aおよび正極板3の所定の部分を逆スパッタリング処理することにより酸化アルミニウムを除去した後に、銅3dをスパッタリングにより成膜する(図6(A)参照)。

(3) 銅を固層拡散させることにより正極板3と正極集電タブ3aとを接合し、正極電極を作製する(図6(A)参照)。

(4) 銅箔からなる負極板(負極集電体)4の両面に、負極集電タブ4aと接続する部分以外に負極活物質4cを塗布したものを準備する(図6(B)参照)。

(5) ニッケルからなる負極集電タブ4aの所定の部分を逆スパッタリング処理することにより酸化ニッケルを除去した後に、銅4dをスパッタリングにより成膜する(図6(B)参照)。

(6) 銅を固層拡散させることにより負極板4と負極集電タブ4aとを接合し、負極電極を作製する(図6(B)参照)。

(7) 上記方法で作製した正極電極と負極電極とをセパレータ5を間に介して巻き取ることにより、渦巻電極体を作製する(図6(C)参照)。

[0038] 以上説明した集電体と集電タブとの接合法によれば、アルミニウムからなる正極集電体と正極集電タブとが銅の固相拡散により接合され、かつ、銅で形成された負極集電体とニッケルで形成された負極集電タブとが銅の固相拡散により接合される。これにより、正極集電体と正極集電タブとの接合部および負極集電体と負極集電タブとの接合部に応力が集中することが抑制され、当該部分に破損や剥離が生じることが抑制される。

[0039] (金属接合方法の適用例3)

従来の半導体パッケージの放熱構造として、ICチップなどの半導体素子にヒートシンクが熱的に接続され、このヒートシンクと放熱フィンとがSnAgCuはんだ等のろう材を用いて接合された構造が知られている。従来の放熱構造では、はんだ接続部分に応力が集中しやすいため、ヒートシンクと放熱フィンとの間の接続強度が十分でない場合があった。

[0040] 本適用例では、ヒートシンクと放熱フィンとの接合に上述した金属の接合方法が用いられる。図7および図8は、ヒートシンクと放熱フィンとの接合に応用される金属の接合方法の概略工程を示す工程図である。

[0041] 具体的には、まず、図7(A)に示すように、ヒートシンク200と放熱フィン210とを用意する。本適用例のヒートシンク200、放熱フィン210はともにAl製であり、ヒートシンク200、放熱フィン210の各接

合面は自然酸化による酸化アルミニウム（図示せず）で被覆されている。ヒートシンク２００、放熱フィン２１０の各接合面を被覆している酸化アルミニウムの層を逆スパッタ法を用いて除去する。

[0042] 次に、図７（Ｂ）に示すように、酸化アルミニウムが除去されＡ１が露出したヒートシンク２００、放熱フィン２１０の各接合面にスパッタ法によりＣｕを成膜して銅被膜２２０を形成する。

[0043] 次に、図７（Ｃ）に示すように、ヒートシンク２００の接合面に成膜された銅被膜２２０と放熱フィン２１０の接合面に成膜された銅被膜２２０との間にアンモニア水２４０を充填した状態で、放熱フィン２１０をヒートシンク２００の上方に載置する。なお、ヒートシンク２００および放熱フィン２１０を大気に暴露した段階で、Ｃｕの表面に酸化銅が形成される。

[0044] 次に、図７（Ｄ）に示すように、プレス機を用いてヒートシンク２００と放熱フィン２１０との間に１ＭＰａ程度の圧力を加えると同時に、３００℃に加熱する。これにより、ヒートシンク２００と放熱フィン２１０とがＣｕ－Ｃｕ接合により接合され、さらに固相拡散を行うことにより、図７（Ｅ）に示すように、ヒートシンク２００と放熱フィン２１０とが一体化された構造が得られる。

[0045] ヒートシンク２００と放熱フィン２１０との接合とは別に、図８（Ａ）に示すように、リードフレーム２５０に半導体素子２６０を搭載し、リードフレーム２５０に設けられた電極パッド２５２と半導体素子２６０の素子電極２６２とを金線２７０を用いてワイヤボンディング接続する。

[0046] 次に、図８（Ｂ）に示すように、半導体素子２６０の電極形成面とは反対側の面に接着テープなどの接着部材２８０を用いてヒートシンク２００を接着する。

[0047] 次に、図８（Ｃ）に示すように、半導体素子２６０を封止樹脂２９０を用いて封止する。

[0048] 以上の工程により、ヒートシンク２００と放熱フィン２１０とが一体的に形成された半導体パッケージの放熱構造を得ることができる。ヒートシンク

２００と放熱フィン２１０との間が同一の部材で形成されているため、両者の間に応力が集中することが抑制される。これにより、ヒートシンク２００と放熱フィン２１０との接続強度を向上させることができる。

[0049] (金属接合に用いる溶液)

上述した実施の形態に係る金属の接合方法では、金属接合に用いる溶液としてアンモニア水が用いられているが、銅と錯体を形成する配位子を含む溶液であれば、これに限られず、たとえば、カルボン酸水溶液であってもよい。

[0050] カルボン酸水溶液の調製に用いられるカルボン酸としては、酢酸などのモノカルボン酸、また、シュウ酸、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、フタル酸、マレイン酸などのジカルボン酸、さらに、酒石酸、クエン酸、乳酸、サリチル酸などのオキシカルボン酸が挙げられる。

[0051] このうち、カルボン酸水溶液は多座配位子となるカルボン酸を有することが好ましい。多座配位子となるカルボン酸を有するカルボン酸水溶液では、カルボン酸と銅がキレートを形成することにより銅錯体の安定性が非常に大きくなる。この結果、接合に必要な温度をより低温化させることができる。なお、酒石酸がキレートを形成することについては、「理化学辞典 第４版（岩波書店）」の第５９３頁に記載されている。また、酒石酸、シュウ酸などがキレートを形成することは「ヘスロップジョーンズ 無機化学（下） 齋藤喜彦 訳」の第６６６頁に記載されている。ここで、キレート化とは、多座配位子によって環が形成されることによって錯体の安定度が非常に大きくなることをいう。

[0052] 本発明は、上述の実施の形態に限定されるものではなく、当業者の知識に基づいて各種の設計変更等の変形を加えることも可能であり、そのような変形が加えられた実施の形態も本発明の範囲に含まれるものである。

[0053] たとえば、上述の実施の形態では、第１の被接合部１０と第２の被接合部２０がともにＡ１であり、同種の金属が接合されているが、第２の被接合部２０は第１の被接合部１０と異なる金属であってもよい。たとえば、第１の

被接合部 10 を A l とし、第 2 の被接合部 20 を A u とすることで、A l と A u のクラッド材を作製することができる。なお、第 2 の被接合部 20 の材料として、A u の代わりに T i 、T a などとも採用が可能である。

[0054] また、上述の実施の形態では、第 1 の被接合部 10 と第 2 の被接合部 20 とを加圧した状態で加熱を行っているが、第 1 の被接合部 10 と第 2 の被接合部 20 とを加圧する前または第 1 の被接合部 10 と第 2 の被接合部 20 とを加圧した後に加熱を行ってもよい。なお、第 1 の被接合部 10 と第 2 の被接合部 20 との接合において、加圧は必須であるが、加熱は任意である。たとえば、常温において、減圧環境下で加圧を行うことにより第 1 の被接合部 10 と第 2 の被接合部 20 との接合することが可能である。

符号の説明

[0055] 10 第 1 の被接合部、12 第 1 の基材部、14 第 1 の被膜部、16 第 1 の銅被膜、18 第 1 の酸化膜、20 第 2 の被接合部、22 第 2 の基材部、24 第 2 の被膜部、26 第 2 の銅被膜、28 第 2 の酸化膜、30 溶液、40 固相拡散により接合された領域、50 金属部材、200 ヒートシンク、210 放熱フィン、220 銅被膜、240 アンモニア水、250 リードフレーム、260 半導体素子、1000 非水電解質二次電池、1011 巻き取り電極体、1012 電池外装缶、1013 封口板、1014 正極芯体露出部、1015 負極芯体露出部、1016 正極集電体、1018 負極集電体

産業上の利用可能性

[0056] 本発明は、金属の接合方法に適用可能である。

請求の範囲

- [請求項1] 銅以外の金属または無機化合物を主成分とする第1の被接合部と、
前記第1の被接合部と同種または異種の金属を主成分とする第2の被接合部とを用意する工程と、
前記第1の被接合部の露出面、および前記第2の被接合部の露出面に、それぞれ銅を成膜する工程と、
前記第1の被接合部に成膜された銅と、前記第2の被接合部に成膜された銅との間に、酸化銅が溶出する物質を充填する工程と、
前記第1の被接合部と前記第2の被接合部との間の距離を縮めるように前記第1の被接合部と前記第2の被接合部とを加圧することにより、前記第1の被接合部と前記第2の被接合部とを銅で接合する工程と、
を備えることを特徴とする金属の接合方法。
- [請求項2] 前記第1の被接合部と前記第2の被接合部とを加圧する前、前記第1の被接合部と前記第2の被接合部とを加圧する間、または前記第1の被接合部と前記第2の被接合部とを加圧した後の少なくともいずれかの段階において前記第1の被接合部と前記第2の被接合部とを過熱する工程を、さらに備える請求項1に記載の金属の接合方法。
- [請求項3] 前記第1の被接合部の露出面、および前記第2の被接合部の露出面にそれぞれ銅を成膜する前に、前記第1の被接合部の最表面、および前記第2の被接合部の最表面からそれぞれ酸化膜を除去する工程をさらに備える請求項1または2に記載の金属の接合方法。
- [請求項4] 前記第1の被接合部と前記第2の被接合部とを接合する銅を、前記第1の被接合部および前記第2の被接合部に固相拡散させる工程をさらに備える請求項3に記載の金属の接合方法。
- [請求項5] 前記物質は銅に対して不活性である請求項1乃至4のいずれか1項に記載の金属の接合方法。
- [請求項6] 前記物質が銅と錯体を形成する配位子を含む請求項1乃至5のいずれ

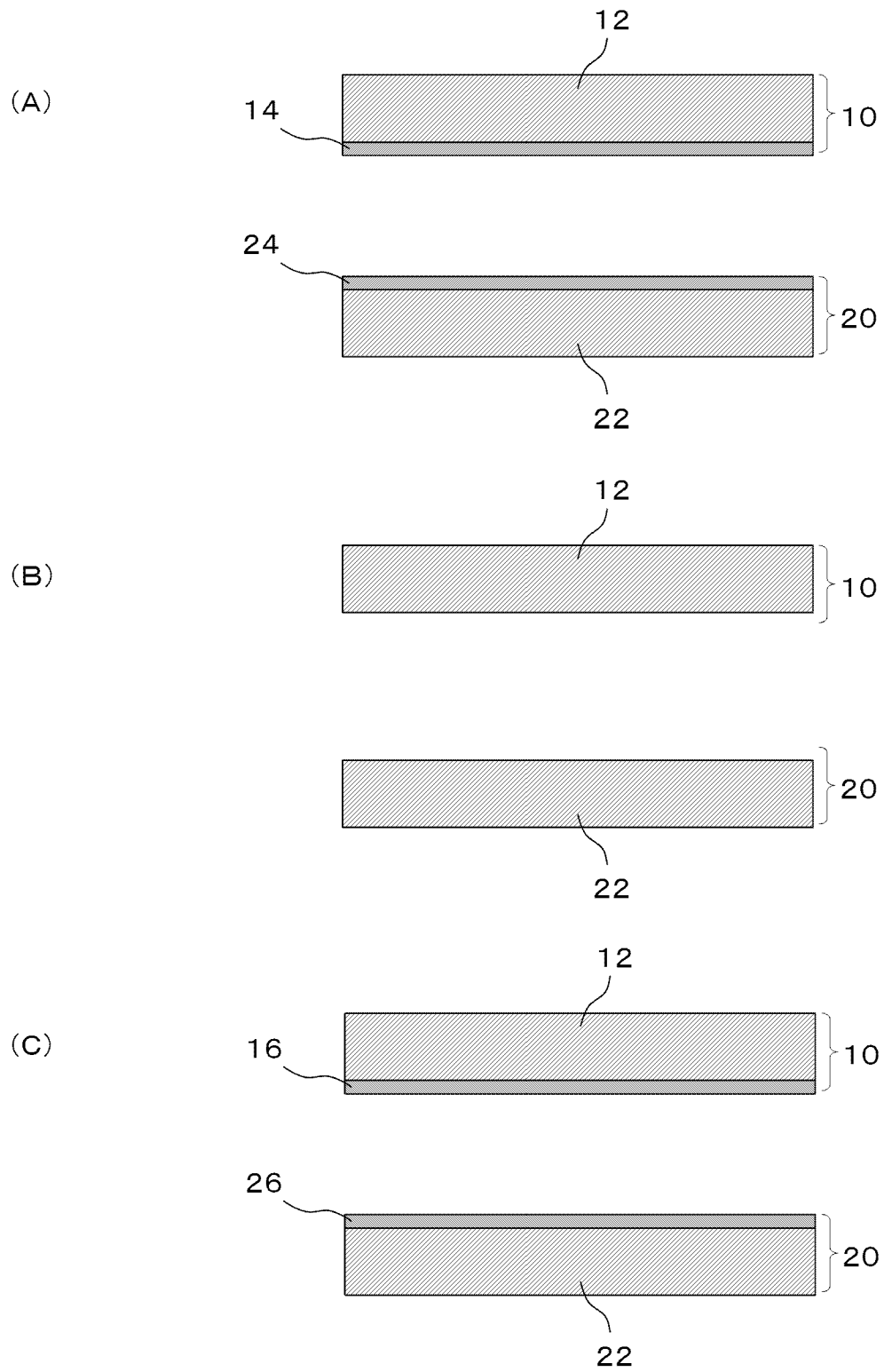
れか 1 項に記載の金属の接合方法。

[請求項7] 前記錯体が加熱分解性である請求項 6 に記載の金属の接合方法。

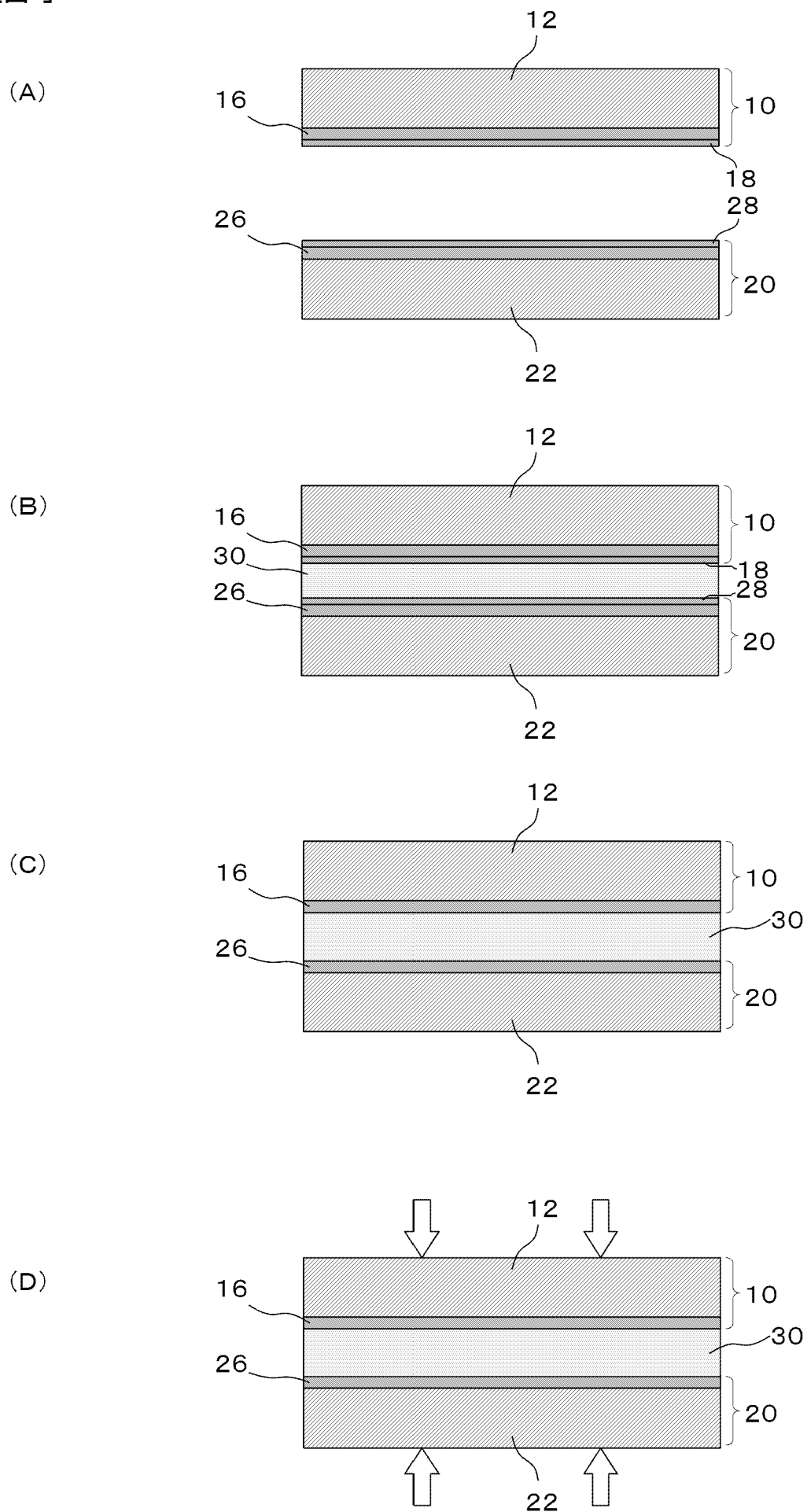
[請求項8] 前記物質がアンモニア水またはカルボン酸水溶液である請求項 1 乃至 7 のいずれか 1 項に記載の金属の接合方法。

[請求項9] 前記カルボン酸水溶液に含まれるカルボン酸が多座配位子である請求項 8 に記載の金属の接合方法。

[図1]

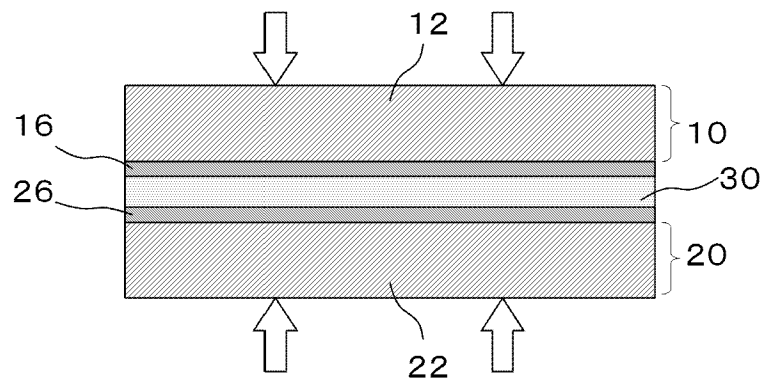


[図2]

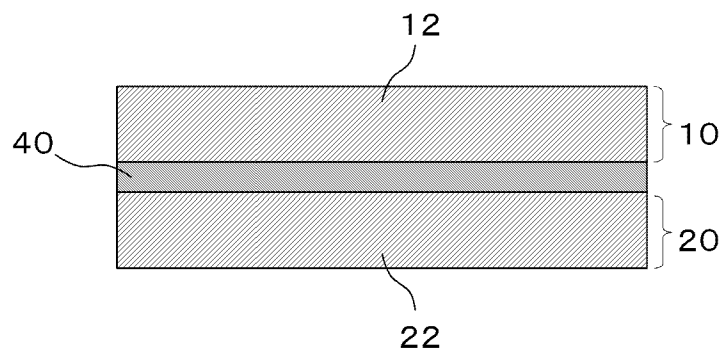


[図3]

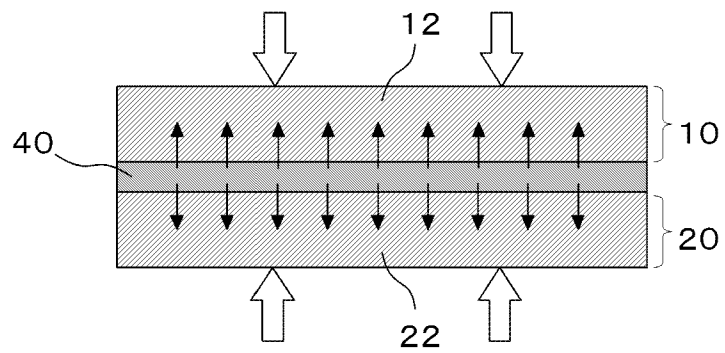
(A)



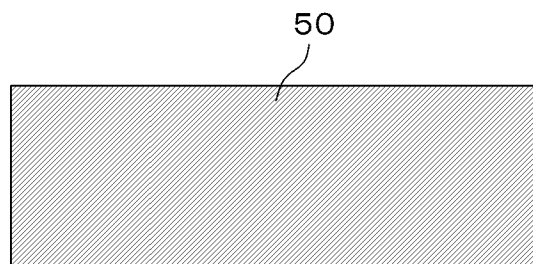
(B)



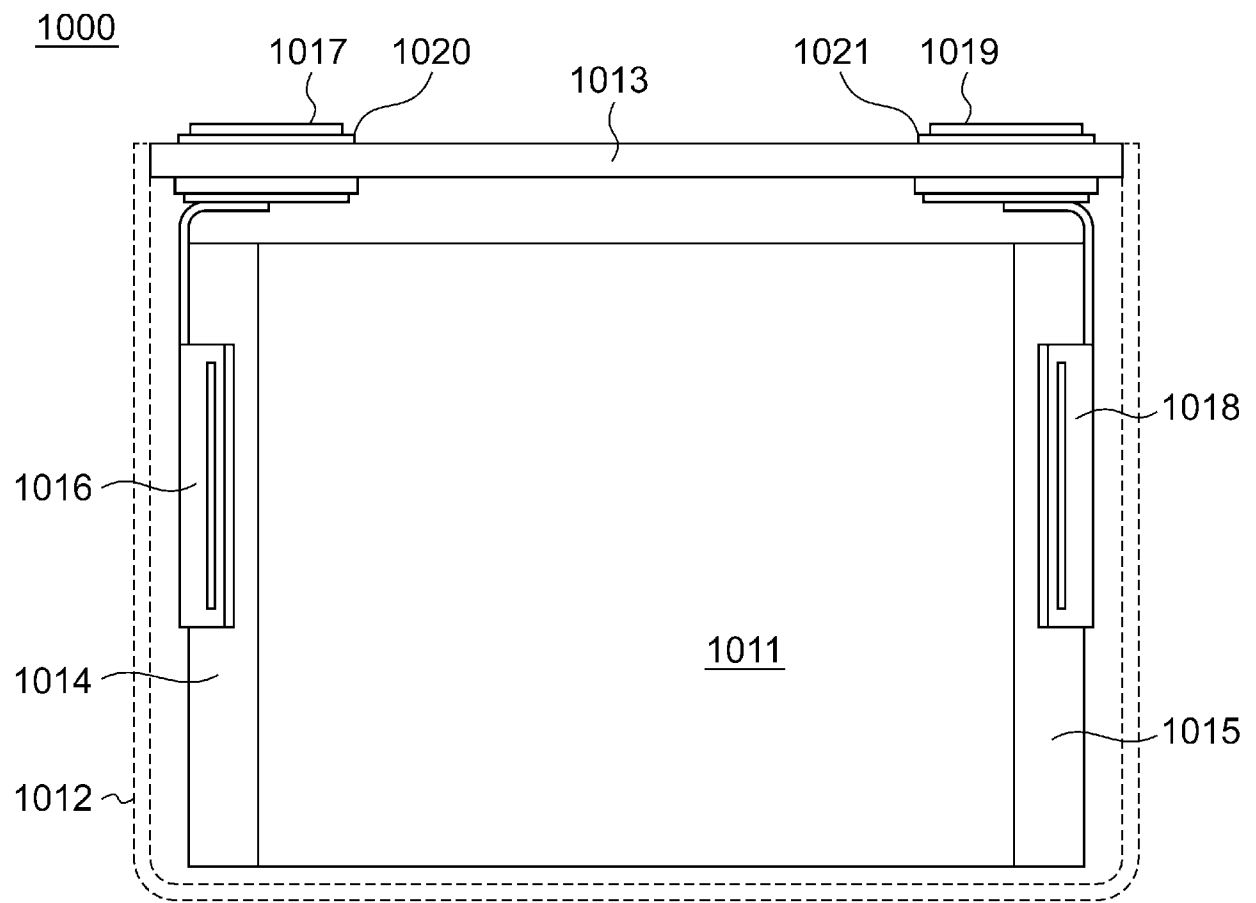
(C)



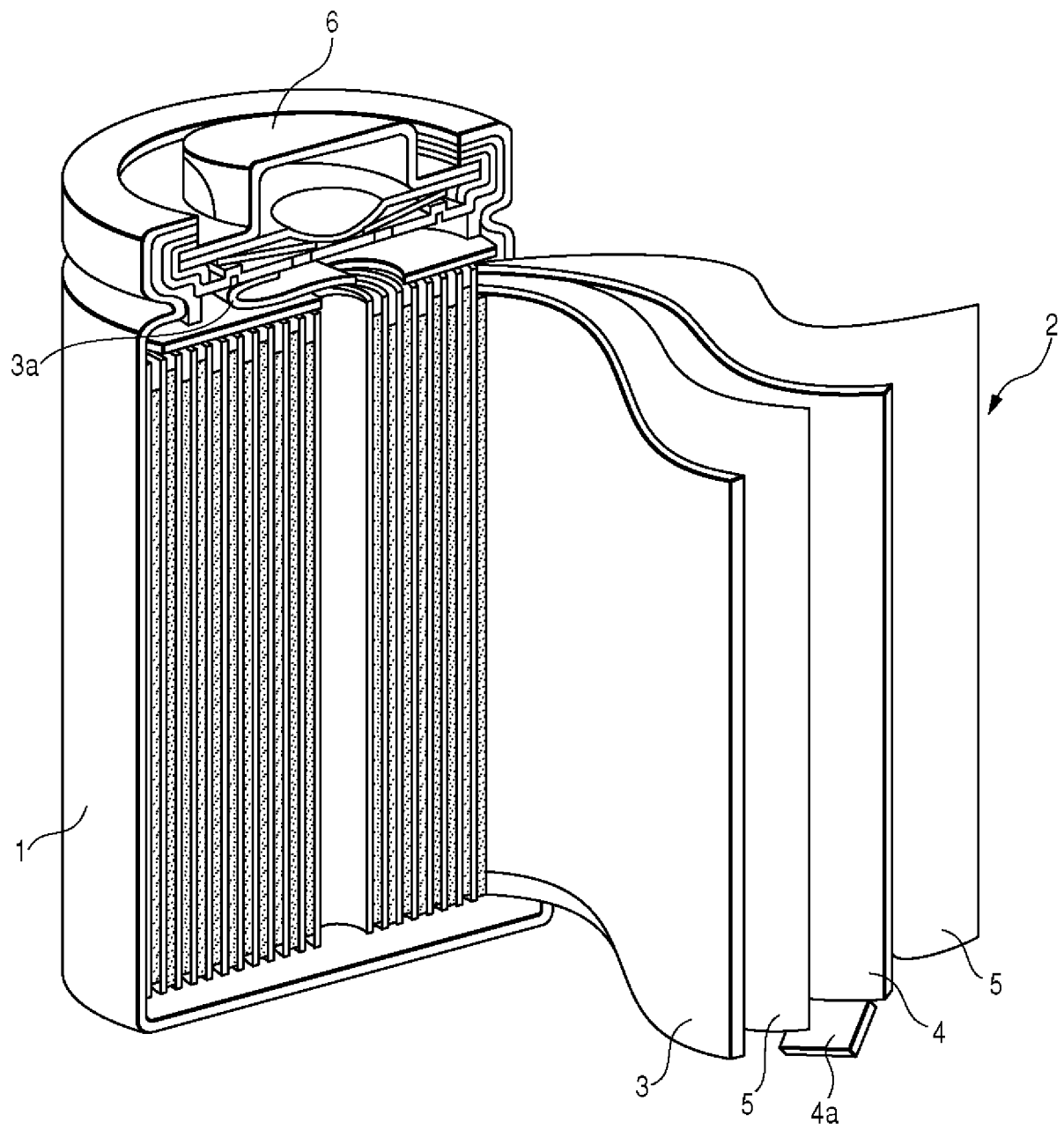
(D)



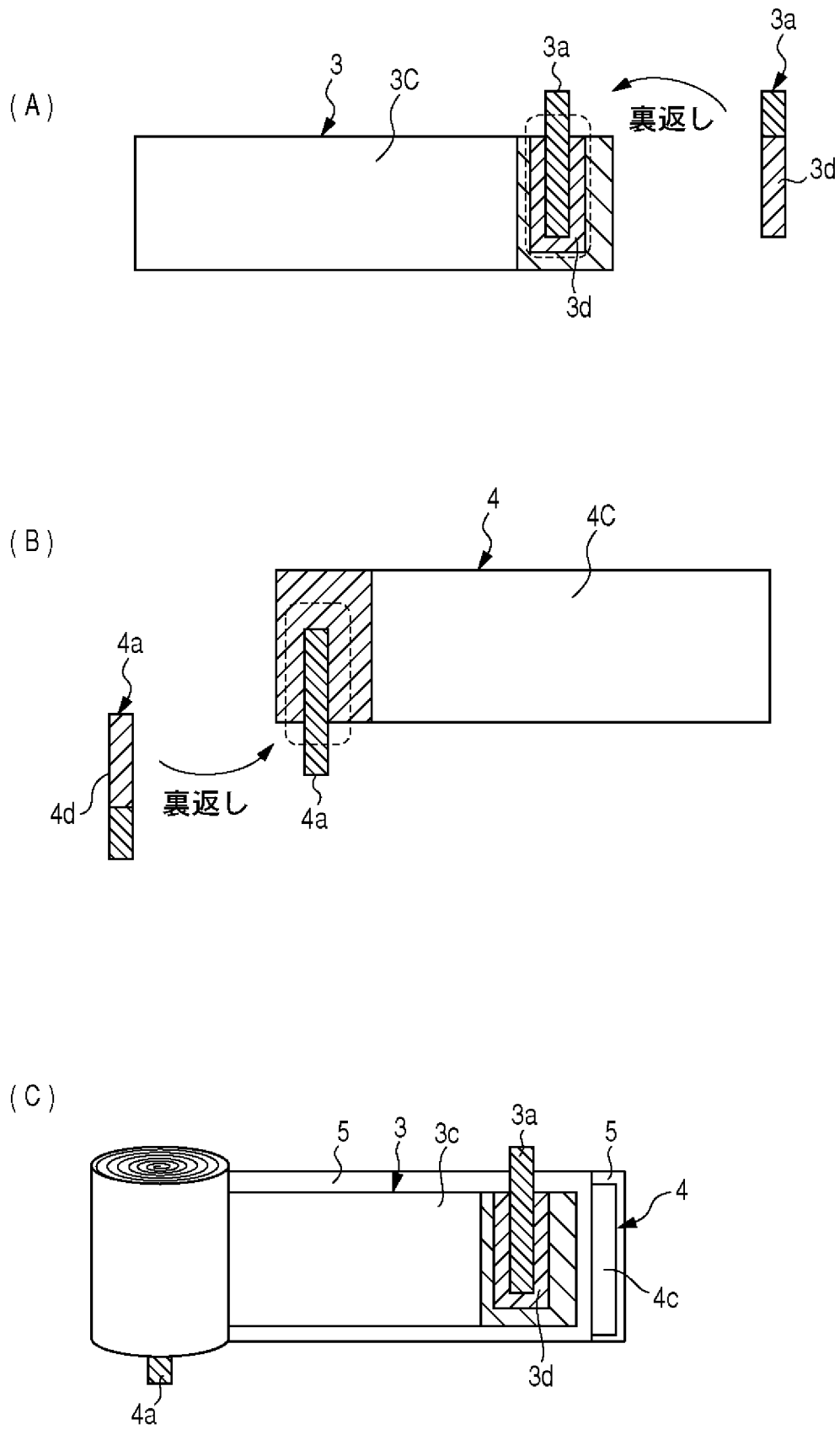
[図4]



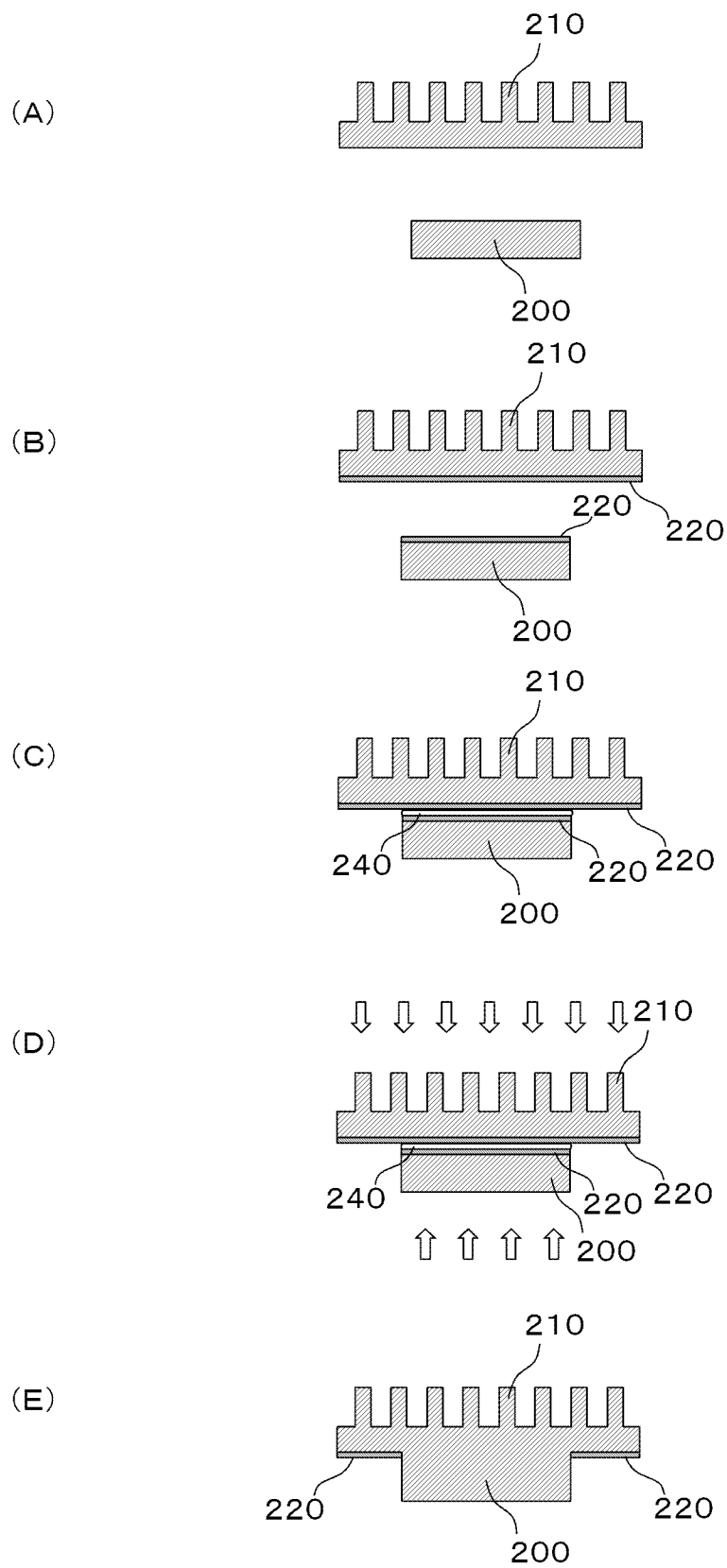
[図5]



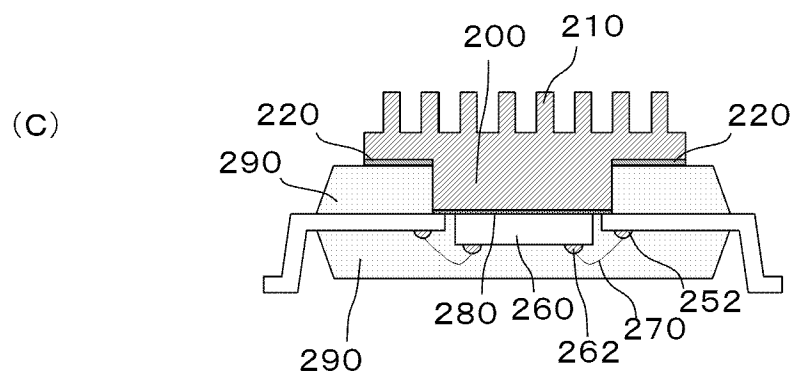
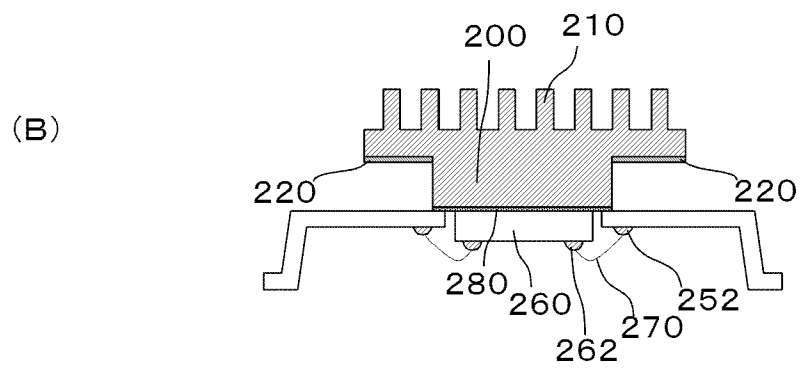
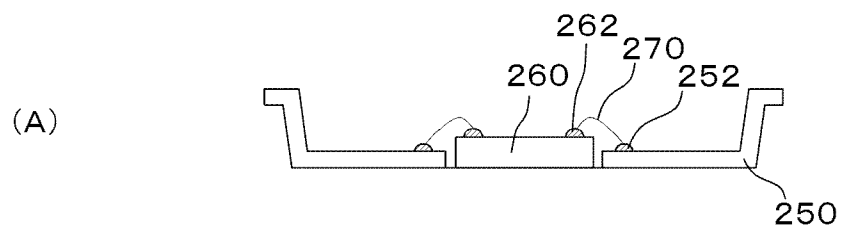
[図6]



[図7]



[図8]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/005556

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B23K20/16(2006.01)i, B23K20/00(2006.01)i, B23K20/24(2006.01)i, H01L21/60(2006.01)n, H01R4/02(2006.01)n, H01R43/02(2006.01)n

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)

B23K20/16, B23K20/00, B23K20/24, H01L21/60, H01R4/02, H01R43/02

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	1996-2011
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2011	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2011

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 2005-235530 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 02 September 2005 (02.09.2005), entire text; drawings (Family: none)	1-9
A	JP 2005-305545 A (Sumitomo Electric Industries, Ltd.), 04 November 2005 (04.11.2005), entire text; drawings & KR 10-2006-0045117 A & CN 1672919 A	1-9
A	JP 2008-177378 A (Hitachi, Ltd.), 31 July 2008 (31.07.2008), entire text; drawings (Family: none)	1-9

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"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)

"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

"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

"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

"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

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
19 December, 2011 (19.12.11)

Date of mailing of the international search report
27 December, 2011 (27.12.11)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/005556

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2009/60954 A1 (Aida Chemical Industries Co., Ltd.), 14 May 2009 (14.05.2009), entire text; drawings (Family: none)	1-9
A	JP 2010-34098 A (Seiko Epson Corp.), 12 February 2010 (12.02.2010), entire text; drawings (Family: none)	1-9
A	JP 2010-91687 A (Seiko Epson Corp.), 22 April 2010 (22.04.2010), entire text; drawings (Family: none)	1-9
P,A	JP 2010-277754 A (Mikuro Denshi Co., Ltd.), 09 December 2010 (09.12.2010), entire text; drawings (Family: none)	1-9

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. B23K20/16(2006.01)i, B23K20/00(2006.01)i, B23K20/24(2006.01)i, H01L21/60(2006.01)n, H01R4/02(2006.01)n, H01R43/02(2006.01)n

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 (I P C))

Int.Cl. B23K20/16, B23K20/00, B23K20/24, H01L21/60, H01R4/02, H01R43/02

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 1 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 1 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 1 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	JP 2005-235530 A (日立化成工業株式会社) 2005. 09. 02, 全文及び図面 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2005-305545 A (住友電気工業株式会社) 2005. 11. 04, 全文及び図面 & KR 10-2006-0045117 A & CN 1672919 A	1-9
A	JP 2008-177378 A (株式会社日立製作所) 2008. 07. 31, 全文及び図面 (ファミリーなし)	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

「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
「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
「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

1 9 . 1 2 . 2 0 1 1

国際調査報告の発送日

2 7 . 1 2 . 2 0 1 1

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
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)

松本 公一

3 P

3 5 0 6

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 3 6 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	WO 2009/60954 A1 (相田化学工業株式会社) 2009. 05. 14, 全文及び図面 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2010-34098 A (セイコーエプソン株式会社) 2010. 02. 12, 全文及び図面 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2010-91687 A (セイコーエプソン株式会社) 2010. 04. 22, 全文及び図面 (ファミリーなし)	1-9
P, A	JP 2010-277754 A (ミクロ電子株式会社) 2010. 12. 09, 全文及び図面 (ファミリーなし)	1-9