

(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6月24日(24.06.2021)



(10) 国際公開番号

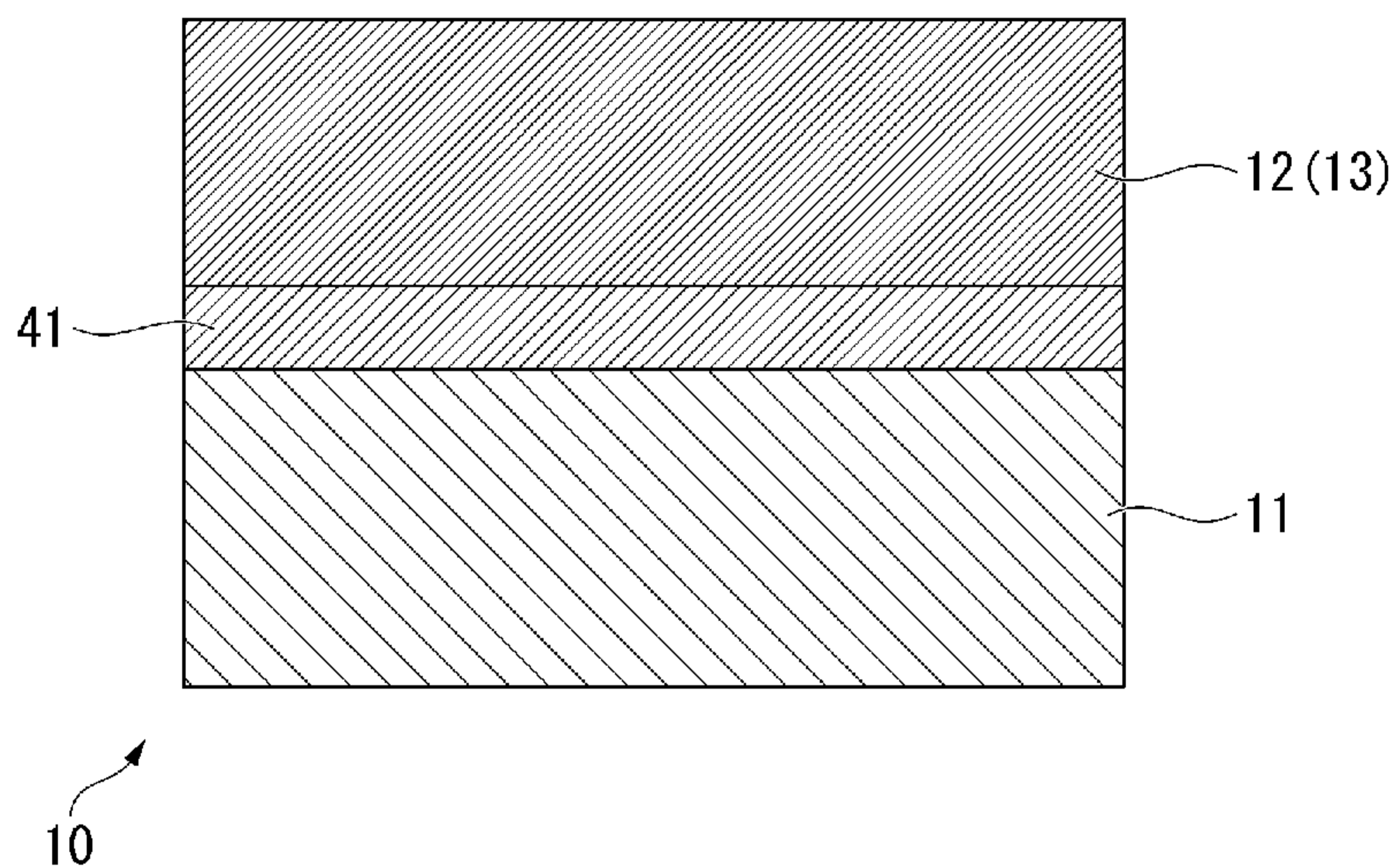
WO 2021/124923 A1

- (51) 国際特許分類:
C04B 37/02 (2006.01) H05K 3/38 (2006.01)
H01L 23/13 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2020/045199
- (22) 国際出願日: 2020年12月4日(04.12.2020)
- (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 2019-228780 2019年12月19日(19.12.2019) JP
特願 2020-196300 2020年11月26日(26.11.2020) JP
- (71) 出願人: 三菱マテリアル株式会社 (MITSUBISHI MATERIALS CORPORATION) [JP/JP]; 〒1008117 東京都千代田区丸の内三丁目2番3号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 寺▲崎▼ 伸幸 (TERASAKI Nobuyuki); 〒3308508 埼玉県さいたま市大宮区北袋町一丁目600番地 三菱マテリアル株式会社 中央研究所内 Saitama (JP).
- (74) 代理人: 松沼 泰史, 外 (MATSUNUMA Yasushi et al.); 〒1006620 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 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,

(54) Title: COPPER/CERAMIC JOINED BODY AND INSULATED CIRCUIT BOARD

(54) 発明の名称: 銅/セラミックス接合体、及び、絶縁回路基板

[図2]



(57) Abstract: The present invention is a copper/ceramic joined body obtained by joining a copper member formed from copper or a copper alloy and a ceramic member formed from a silicon-containing ceramic, wherein the maximum indentation hardness in a region that is 10-50 μm toward the copper-member side from the junction interface of the copper member and the ceramic member is within the range from 70 $\text{mgf}/\mu\text{m}^2$ to 150 $\text{mgf}/\mu\text{m}^2$ (inclusive).

(57) 要約: 本発明は、銅又は銅合金からなる銅部材と、ケイ素含有セラミックスからなるセラミックス部材とが接合されてなる銅/セラミックス接合体であって、前記銅部材と前記セラミックス部材との接合界面から前記銅部材側へ10 μm から50 μm までの領域における最大押し込み硬さが70 $\text{mgf}/\mu\text{m}^2$ 以上150 $\text{mgf}/\mu\text{m}^2$ 以下の範囲内とされている。



WO 2021/124923 A1

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,
ZW), ユーラシア (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 :

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

明 細 書

発明の名称：銅／セラミックス接合体、及び、絶縁回路基板

技術分野

[0001] この発明は、銅又は銅合金からなる銅部材と、ケイ素含有セラミックスからなるセラミックス部材とが接合されてなる銅／セラミックス接合体、ケイ素含有セラミックスからなるセラミックス基板の表面に、銅又は銅合金からなる銅板が接合されてなる絶縁回路基板に関するものである。

本願は、2019年12月19日に日本に出願された特願2019-228780号、および2020年11月26日に日本に出願された特願2020-196300号に基づき優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] パワーモジュール、LEDモジュール及び熱電モジュールにおいては、絶縁層の一方の面に導電材料からなる回路層を形成した絶縁回路基板に、パワー半導体素子、LED素子及び熱電素子が接合された構造とされている。

例えば、風力発電、電気自動車、ハイブリッド自動車等を制御するために用いられる大電力制御用のパワー半導体素子は、動作時の発熱量が多いことから、これを搭載する基板としては、セラミックス基板と、このセラミックス基板の一方の面に導電性の優れた金属板を接合して形成した回路層と、を備えた絶縁回路基板が、従来から広く用いられている。なお、絶縁回路基板としては、セラミックス基板の他方の面に金属板を接合して金属層を形成したのもも提供されている。

[0003] 例えば、特許文献1には、回路層及び金属層を構成する第一の金属板及び第二の金属板を銅板とし、この銅板をDBC法によってセラミックス基板に直接接合したパワーモジュール用基板が提案されている。このDBC法においては、銅と銅酸化物との共晶反応を利用して銅板とセラミックス基板との界面に液相を生じさせることによって、銅板とセラミックス基板とを接合している。

[0004] また、特許文献2には、セラミックス基板の一方の面及び他方の面に、銅板を接合することにより回路層及び金属層を形成した絶縁回路基板が提案されている。この特許文献1においては、セラミックス基板の一方の面及び他方の面に、Ag-Cu-Ti系ろう材を介在させて銅板を配置し、加熱処理を行うことにより銅板が接合されている（いわゆる活性金属ろう付け法）。この活性金属ろう付け法では、活性金属であるTiが含有されたろう材を用いているため、溶融したろう材とセラミックス基板との濡れ性が向上し、セラミックス基板と銅板とが良好に接合されることになる。

[0005] さらに、特許文献3には、銅又は銅合金からなる銅板と、窒化ケイ素からなるセラミックス基板とが、Ag及びTiを含む接合材を用いて接合されたパワーモジュール用基板であって、接合界面に窒化化合物層とAg-Cu共晶層とが形成され、窒化化合物層の厚さを0.15 μ m以上1.0 μ m以下の範囲内としたものが提案されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開平04-162756号公報

特許文献2：特許第3211856号公報

特許文献3：特開2018-008869号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] しかしながら、特許文献1に開示されているように、DBC法によってセラミックス基板と銅板とを接合する場合には、接合温度を1065 $^{\circ}$ C以上（銅と銅酸化物との共晶点温度以上）にする必要があることから、接合時にセラミックス基板が劣化してしまうおそれがあった。

また、特許文献2に開示されているように、活性金属ろう付け法によってセラミックス基板と銅板とを接合する場合には、接合温度が900 $^{\circ}$ Cと比較的高温とされていることから、やはり、セラミックス基板が劣化してしまう

といった問題があった。

[0008] ここで、特許文献3においては、銅又は銅合金からなる銅板と、窒化ケイ素からなるセラミックス基板とが、Ag及びTiを含む接合材を用いて接合されており、比較的低温条件でセラミックス部材と銅部材とを接合することができ、接合時におけるセラミックス部材の劣化を抑制することが可能となる。

[0009] ところで、最近では、絶縁回路基板の用途によっては、従来にも増してさらに厳しい冷熱サイクルが負荷されることがある。

このため、従来よりも厳しい冷熱サイクルが負荷される用途であっても、接合強度が高く、かつ、冷熱サイクル負荷時にもセラミックス基板にクラックが生じない絶縁回路基板が求められている。

[0010] この発明は、前述した事情に鑑みてなされたものであって、接合強度が高く、かつ、冷熱サイクル信頼性（セラミックス基板が割れにくい）に特に優れた銅／セラミックス接合体、及び、絶縁回路基板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] 前述の課題を解決するために、本発明の銅／セラミックス接合体は、銅又は銅合金からなる銅部材と、ケイ素含有セラミックスからなるセラミックス部材とが接合されてなる銅／セラミックス接合体であって、前記銅部材と前記セラミックス部材との接合界面から前記銅部材側へ10 μ mから50 μ mまでの領域における最大押し込み硬さが70mgf/ μ m²以上150mgf/ μ m²以下の範囲内とされていることを特徴としている。

[0012] 本発明の銅／セラミックス接合体によれば、前記銅部材と前記セラミックス部材との接合界面から前記銅部材側へ10 μ mから50 μ mまでの領域における最大押し込み硬さが70mgf/ μ m²以上とされているので、接合界面近傍の銅が十分に溶融して液相が生じており、セラミックス部材と銅部材とが強固に接合されている。

一方、前述の領域における最大押し込み硬さが150mgf/ μ m²以下に

抑えられているので、接合界面近傍が必要以上に硬くなく、冷熱サイクル負荷時におけるクラックの発生を抑制することができる。

よって、接合強度が高く、かつ、冷熱サイクル信頼性に特に優れた銅／セラミックス接合体を得ることができる。

[0013] ここで、本発明の銅／セラミックス接合体においては、前記セラミックス部材と前記銅部材との接合界面においては、前記セラミックス部材側に、Ti, Zr, Nb, Hfから選択される1種又は2種以上の活性金属の化合物を含む活性金属化合物層が形成されており、前記活性金属化合物層における前記活性金属化合物粒子の最大粒子径が180nm以下であることが好ましい。

この場合、前記活性金属化合物層において、相対的に硬度の低い粒界領域（金属相）が占める割合が増加し、前記活性金属化合物層の耐衝撃性が向上する。これにより、例えば、前記銅部材に端子材を超音波接合した時に、前記活性金属化合物層におけるクラックの発生を抑制し、銅部材とセラミックス部材の剥離や、セラミックス部材でのクラックの発生を抑制することができる。

[0014] また、本発明の銅／セラミックス接合体においては、前記活性金属化合物層内に、Si, Cu, Agが存在していることが好ましい。

この場合、前記活性金属化合物層内にSi, Cu, Agが存在しているので、前記活性金属化合物層におけるクラックの発生を抑制することができるとともに、前記銅部材と前記セラミックス部材との接合界面に未反応部が生じることが無く、さらに接合強度の高い銅／セラミックス接合体を得ることができる。

[0015] 本発明の絶縁回路基板は、ケイ素含有セラミックスからなるセラミックス基板の表面に、銅又は銅合金からなる銅板が接合されてなる絶縁回路基板であって、前記銅板と前記セラミックス基板との接合界面から前記銅板側へ10 μ mから50 μ mまでの領域における最大押し込み硬さが70mgf/ μ m²以上150mgf/ μ m²以下の範囲内とされていることを特徴としてい

る。

[0016] 本発明の絶縁回路基板によれば、前記銅板と前記セラミックス基板との接合界面から前記銅板側へ $10\mu\text{m}$ から $50\mu\text{m}$ までの領域における最大押し込み硬さが $70\text{mgf}/\mu\text{m}^2$ 以上とされているので、接合界面近傍の銅が十分に溶融して液相が生じており、セラミックス基板と銅板とが強固に接合されている。

一方、前述の領域における最大押し込み硬さが $150\text{mgf}/\mu\text{m}^2$ 以下に抑えられているので、接合界面近傍が必要以上に硬くなく、冷熱サイクル負荷時におけるクラックの発生を抑制することができる。

よって、接合強度が高く、かつ、冷熱サイクル信頼性に特に優れた絶縁回路基板を得ることができる。

[0017] ここで、本発明の絶縁回路基板においては、前記銅板と前記セラミックス基板との接合界面においては、前記セラミックス基板側に、Ti, Zr, Nb, Hfから選択される1種又は2種以上の活性金属の化合物を含む活性金属化合物層が形成されており、前記活性金属化合物層における前記活性金属化合物粒子の最大粒子径が 180nm 以下であることが好ましい。

この場合、前記活性金属化合物層において、相対的に硬度の低い粒界領域（金属相）が占める割合が増加し、前記活性金属化合物層の耐衝撃性が向上する。これにより、例えば、前記銅板に端子材を超音波接合した時に、前記活性金属化合物層におけるクラックの発生を抑制し、銅板とセラミックス基板の剥離や、セラミックス基板でのクラックの発生を抑制することができる。

[0018] また、本発明の絶縁回路基板においては、前記活性金属化合物層内に、Si, Cu, Agが存在していることが好ましい。

この場合、前記活性金属化合物層内にSi, Cu, Agが存在しているので、前記活性金属化合物層におけるクラックの発生を抑制することができるとともに、前記銅板と前記セラミックス基板との接合界面に未反応部が生じることが無く、さらに接合強度の高い絶縁回路基板を得ることができる。

発明の効果

[0019] 本発明によれば、接合強度が高く、かつ、冷熱サイクル信頼性に特に優れた銅／セラミックス接合体、及び、絶縁回路基板を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0020] [図1]本発明の実施形態に係る絶縁回路基板を用いたパワーモジュールの概略説明図である。

[図2]本発明の実施形態に係る絶縁回路基板の回路層（金属層）とセラミックス基板との接合界面の拡大説明図である。

[図3]本発明の実施形態に係る絶縁回路基板の回路層（金属層）とセラミックス基板との接合界面に形成された活性金属化合物層の観察写真である。

[図4]活性金属化合物層のEDSスペクトルの一例である。

[図5]本発明の実施形態に係る絶縁回路基板の製造方法のフロー図である。である。

[図6]本発明の実施形態に係る絶縁回路基板の製造方法の概略説明図である。

[図7]実施例における接合界面近傍の最大押し込み硬さの測定箇所を示す説明図である。

[図8]実施例における押し込み硬さ試験の測定原理を示す説明図である。

発明を実施するための形態

[0021] 以下に、本発明の実施形態について添付した図面を参照して説明する。

本実施形態に係る銅／セラミックス接合体は、セラミックスからなるセラミックス部材としてのセラミックス基板11と、銅又は銅合金からなる銅部材としての銅板22（回路層12）及び銅板23（金属層13）とが接合されてなる絶縁回路基板10である。図1に、本実施形態である絶縁回路基板10を備えたパワーモジュール1を示す。

[0022] このパワーモジュール1は、回路層12及び金属層13が配設された絶縁回路基板10と、回路層12の一方の面（図1において上面）に接合層2を介して接合された半導体素子3と、金属層13の他方側（図1において下側）に配置されたヒートシンク30と、を備えている。

[0023] 半導体素子 3 は、S i 等の半導体材料で構成されている。この半導体素子 3 と回路層 1 2 は、接合層 2 を介して接合されている。

接合層 2 は、例えば S n - A g 系、S n - I n 系、若しくは S n - A g - C u 系のはんだ材で構成されている。

[0024] ヒートシンク 3 0 は、前述の絶縁回路基板 1 0 からの熱を放散するためのものである。このヒートシンク 3 0 は、銅又は銅合金で構成されており、本実施形態ではりん脱酸銅で構成されている。このヒートシンク 3 0 には、冷却用の流体が流れるための流路 3 1 が設けられている。

なお、本実施形態においては、ヒートシンク 3 0 と金属層 1 3 とが、はんだ材からなるはんだ層 3 2 によって接合されている。このはんだ層 3 2 は、例えば S n - A g 系、S n - I n 系、若しくは S n - A g - C u 系のはんだ材で構成されている。

[0025] そして、本実施形態である絶縁回路基板 1 0 は、図 1 に示すように、セラミックス基板 1 1 と、このセラミックス基板 1 1 の一方の面（図 1 において上面）に配設された回路層 1 2 と、セラミックス基板 1 1 の他方の面（図 1 において下面）に配設された金属層 1 3 と、を備えている。

[0026] セラミックス基板 1 1 は、絶縁性および放熱性に優れたケイ素含有セラミックスで構成されており、本実施形態では、窒化ケイ素（S i ₃ N₄）で構成されている。このセラミックス基板 1 1 の厚さは、例えば、0. 2 m m 以上 1. 5 m m 以下の範囲内に設定されており、本実施形態では、0. 3 2 m m に設定されている。

[0027] 回路層 1 2 は、図 6 に示すように、セラミックス基板 1 1 の一方の面（図 6 において上面）に、銅又は銅合金からなる銅板 2 2 が接合されることにより形成されている。

本実施形態においては、回路層 1 2 は、無酸素銅の圧延板からなる銅板 2 2 がセラミックス基板 1 1 に接合されることで形成されている。

なお、回路層 1 2 となる銅板 2 2 の厚さは 0. 1 m m 以上 2. 0 m m 以下の範囲内に設定されており、本実施形態では、0. 6 m m に設定されている。

。

[0028] 金属層13は、図6に示すように、セラミックス基板11の他方の面（図6において下面）に、銅又は銅合金からなる銅板23が接合されることにより形成されている。

本実施形態においては、金属層13は、無酸素銅の圧延板からなる銅板23がセラミックス基板11に接合されることで形成されている。

なお、金属層13となる銅板23の厚さは0.1mm以上2.0mm以下の範囲内に設定されており、本実施形態では、0.6mmに設定されている。

。

[0029] そして、セラミックス基板11と回路層12（金属層13）との接合界面においては、図2に示すように、Ti, Zr, Nb, Hfから選択される1種又は2種以上の活性金属の化合物を含む活性金属化合物層41が形成されている。

この活性金属化合物層41は、接合材に含まれる活性金属とセラミックス基板11とが反応することによって形成されたものである。

本実施形態では、活性金属としてTiが用いられており、セラミックス基板11が窒化アルミニウムで構成されていることから、活性金属化合物層41は、窒化チタン（TiN）層となる。

[0030] ここで、本実施形態である絶縁回路基板10においては、回路層12（金属層13）とセラミックス基板11との接合界面から回路層12（金属層13）側へ10 μ mから50 μ mまでの領域における最大押し込み硬さが70mgf/ μ m²以上150mgf/ μ m²以下の範囲内とされている。

なお、上述の最大押し込み硬さの下限は75mgf/ μ m²以上であることが好ましく、85mgf/ μ m²以上であることがより好ましい。一方、上述の最大押し込み硬さの上限は135mgf/ μ m²以下であることが好ましく、125mgf/ μ m²以下であることがより好ましい。

[0031] また、本実施形態である絶縁回路基板10においては、図3に示すように、活性金属化合物層41における活性金属化合物粒子45の最大粒子径が1

80 nm以下とされていることが好ましい。これら活性金属化合物粒子45の間の粒界は金属相となる。活性金属化合物粒子45の最大粒子径が180 nm以下とされているので、相対的に硬度の低い金属相が占める割合が増加し、活性金属化合物層41の耐衝撃性が向上する。これにより、例えば、銅部材に端子材を超音波接合した時に、活性金属化合物層41におけるクラックの発生を抑制し、銅部材とセラミックス部材の剥離や、セラミックス部材でのクラックの発生を抑制することができる。

なお、活性金属化合物層41における活性金属化合物粒子45の最大粒子径は150 nm以下であることがさらに好ましく、120 nm以下であることがより好ましい。

[0032] さらに、本実施形態である絶縁回路基板10においては、活性金属化合物層41内に、Si, Cu, Agが存在していることが好ましい。

なお、この活性金属化合物層41に存在するSi, Cu, Agは、活性金属化合物層41における活性金属化合物粒子45の粒子間および粒界を、透過型電子顕微鏡を用いて観察し、EDSスペクトルを得ることによって確認することができる。活性金属化合物層41のEDSスペクトルの一例を図4に示す。Si, Cu, Agのピークが確認されており、活性金属化合物層41内に、Si, Cu, Agが存在していることが分かる。

[0033] 以下に、本実施形態に係る絶縁回路基板10の製造方法について、図5及び図6を参照して説明する。

[0034] (積層工程S01)

まず、窒化ケイ素(Si₃N₄)からなるセラミックス基板11を準備し、図6に示すように、回路層12となる銅板22とセラミックス基板11との間、及び、金属層13となる銅板23とセラミックス基板11との間に、Ag-Ti系ろう材(Ag-Cu-Ti系ろう材)24を配設する。

なお、Ag-Ti系ろう材(Ag-Cu-Ti系ろう材)24としては、例えば、Cuを0 mass%以上32 mass%以下の範囲内、活性金属であるTiを0.5 mass%以上20 mass%以下の範囲で含み、残部が

Ag及び不可避不純物とされた組成のものを用いることが好ましい。また、Ag-Cu-Ti系ろう材24の厚さは、 $2\mu\text{m}$ 以上 $10\mu\text{m}$ 以下の範囲内とすることが好ましい。

[0035] (加熱工程S02)

次に、銅板22とセラミックス基板11とを加圧した状態で、真空雰囲気中の加熱炉内で加熱し、Ag-Ti系ろう材(Ag-Cu-Ti系ろう材)24を溶融する。

ここで、加熱工程S02における加熱温度は、CuとSiの共晶点温度以上 850°C 以下の範囲内とされている。また、この加熱工程S02において、上述の加熱温度における温度積分値は、 $1^{\circ}\text{C}\cdot\text{h}$ 以上 $110^{\circ}\text{C}\cdot\text{h}$ 以下の範囲内とする。

また、この加熱工程S02における加圧荷重は、 0.029MPa 以上 2.94MPa 以下の範囲内とする。

[0036] (冷却工程S03)

そして、加熱工程S02の後、冷却を行うことにより、溶融したAg-Ti系ろう材(Ag-Cu-Ti系ろう材)24を凝固させる。

なお、この冷却工程S03における冷却速度は、 $2^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 以上 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 以下の範囲内とすることが好ましい。

[0037] ここで、上述の加熱工程S02では、活性金属化合物層41においてTiNの粒界に共晶液相が存在しており、この共晶液相を拡散のパスとして、セラミックス基板11側のSi及びAg-Cu-Ti系ろう材24のAg, Cu, Tiが互いに拡散し、セラミックス基板11の界面反応が促進されることになる。

これにより、セラミックス基板11との接合界面から回路層12(金属層13)側へ $10\mu\text{m}$ から $50\mu\text{m}$ までの領域における最大押し込み硬さが $70\text{mgf}/\mu\text{m}^2$ 以上 $150\text{mgf}/\mu\text{m}^2$ 以下の範囲内となる。

[0038] 以上のように、積層工程S01と、加熱工程S02と、冷却工程S03とによって、セラミックス基板11と銅板22, 23が接合され、本実施形態

である絶縁回路基板10が製造されることになる。

[0039] (ヒートシンク接合工程S04)

次に、絶縁回路基板10の金属層13の他方の面側にヒートシンク30を接合する。

絶縁回路基板10とヒートシンク30とを、はんだ材を介して積層して加熱炉に装入し、はんだ層32を介して絶縁回路基板10とヒートシンク30とをはんだ接合する。

[0040] (半導体素子接合工程S05)

次に、絶縁回路基板10の回路層12の一方の面に、半導体素子3をはんだ付けにより接合する。

上述の工程により、図1に示すパワーモジュール1が製出される。

[0041] 以上のような構成とされた本実施形態の絶縁回路基板10(銅/セラミックス接合体)によれば、回路層12(金属層13)とセラミックス基板11との接合界面から回路層12(金属層13)へ10 μm から50 μm までの領域における最大押し込み硬さが70 $\text{mgf}/\mu\text{m}^2$ 以上とされているので、接合界面近傍の銅が十分に溶融して液相が生じており、セラミックス基板11と回路層12(金属層13)とがさらに強固に接合されたものとなる。

一方、上述の最大押し込み硬さが150 $\text{mgf}/\mu\text{m}^2$ 以下に抑えられているので、接合界面近傍が必要以上に硬くなく、冷熱サイクル負荷時におけるクラックの発生を抑制することができる。

[0042] 本実施形態である絶縁回路基板10において、セラミックス基板11と回路層12(金属層13)との接合界面に形成された活性金属化合物層41における活性金属化合物粒子45の最大粒子径が180 nm 以下である場合には、活性金属化合物層41において相対的に硬さが低い金属相からなる粒界領域の占める割合が多くなり、活性金属化合物層41における耐衝撃性を確保することができる。これにより、例えば、回路層12(金属層13)に端子材を超音波接合した時に、活性金属化合物層41におけるクラックの発生を抑制し、回路層12(金属層13)とセラミックス基板11の剥離や、セ

ラミックス基板 11 でのクラックの発生を抑制することができる。

[0043] また、本実施形態である絶縁回路基板 10 において、活性金属化合物層 41 内に、Si, Cu, Ag が存在している場合には、活性金属化合物層 41 におけるクラックの発生を抑制できるとともに、セラミックス基板 11 と回路層 12 (金属層 13) との接合界面に未反応部が生じることが無く、さらに接合強度の高い絶縁回路基板 10 を得ることができる。

[0044] 以上、本発明の実施形態について説明したが、本発明はこれに限定されることはなく、その発明の技術的思想を逸脱しない範囲で適宜変更可能である。

例えば、本実施形態では、絶縁回路基板に半導体素子を搭載してパワーモジュールを構成するものとして説明したが、これに限定されることはない。例えば、絶縁回路基板の回路層に LED 素子を搭載して LED モジュールを構成してもよいし、絶縁回路基板の回路層に熱電素子を搭載して熱電モジュールを構成してもよい。

[0045] また、本実施形態の絶縁回路基板では、回路層と金属層がともに銅又は銅合金からなる銅板によって構成されたものとして説明したが、これに限定されることはない。

例えば、回路層とセラミックス基板とが本発明の銅/セラミックス接合体で構成されていれば、金属層の材質や接合方法に限定はなく、金属層がなくてもよいし、金属層がアルミニウム又はアルミニウム合金で構成されていてもよく、銅とアルミニウムの積層体で構成されていてもよい。

一方、金属層とセラミックス基板とが本発明の銅/セラミックス接合体で構成されていれば、回路層の材質や接合方法に限定はなく、回路層がアルミニウム又はアルミニウム合金で構成されていてもよく、銅とアルミニウムの積層体で構成されていてもよい。

[0046] さらに、本実施形態では、積層工程 S01 において、銅板 22, 23 とセラミックス基板 11 との間に、Ag-Ti 系ろう材 (Ag-Cu-Ti 系ろう材) 24 を配設するものとして説明したがこれに限定されることはなく、

他の活性金属を含有する接合材を用いてもよい。

また、本実施形態では、セラミックス基板が窒化ケイ素 (Si_3N_4) で構成されたものとして説明したが、これに限定されることはなく、その他のケイ素含有セラミックスで構成されたものであってもよい。

実施例

[0047] 以下に、本発明の効果を確認すべく行った確認実験の結果について説明する。

[0048] (実施例 1)

まず、窒化ケイ素 (Si_3N_4) からなるセラミックス基板 ($40\text{mm} \times 40\text{mm} \times 0.32\text{mm}$) を準備した。

このセラミックス基板の両面に、無酸素銅からなる銅板 ($37\text{mm} \times 37\text{mm} \times$ 厚さ 1.0mm) を、表 1 に示す活性金属を含む Ag-Cu 系ろう材を用いて、表 1 に示す条件で銅板とセラミックス基板とを接合し、絶縁回路基板 (銅/セラミックス接合体) を得た。なお、接合時の真空炉の真空度は $5 \times 10^{-3}\text{Pa}$ とした。

[0049] 得られた絶縁回路基板 (銅/セラミックス接合体) について、接合界面近傍の最大押し込み硬さ、冷熱サイクル信頼性を、以下のようにして評価した。

[0050] (接合界面近傍の最大押し込み硬さ)

銅板とセラミックス基板との接合界面から銅板側へ $10\mu\text{m}$ から $50\mu\text{m}$ までの領域において、押し込み硬さ試験機 (株式会社エリオニクス製 ENT-1100a) を用いて、最大押し込み硬さを測定した。測定条件は、バーコピッチ圧子を用いて $F_{\text{max}} = 5000\text{mgf}$ (分割数 = 500、ステップインターバル = 20ms) とした。なお、バフ研磨により対象断面を露出させて測定面とし、図 7 に示すように、 $10\mu\text{m}$ 間隔で 50 箇所の測定点において押し込み硬さを測定し、その中での押し込み硬さの最大値を確認した。

この押し込み硬さ試験においては、図 8 に示すように、圧子押し込み過程で負荷する荷重と押し込み深さを連続的に測定可能であり、荷重-変位曲線

から、 塑性／ 弾性／ クリープ等の情報を取得することができる。

[0051] (冷熱サイクル信頼性)

以下の雰囲気で保持させた後、SAT検査により、銅板とセラミックス基板の接合界面を検査し、セラミックス割れの有無を判定した。

$$-78^{\circ}\text{C} \times 2\text{min} \leftrightarrow 350^{\circ}\text{C} \times 2\text{min}$$

そして、割れ発生のサイクル数を評価した。6回未満で割れが確認されたものを「×」、6回以上でも割れが確認されなかったものを「○」と評価した。評価結果を表1に示す。

[0052] [表1]

	活性金属	加熱工程		接合界面※の最大押し込み硬さ(kgf/ μm^2)	冷熱サイクル信頼性
		荷重(MPa)	温度積分値($^{\circ}\text{C}\cdot\text{h}$)		
本発明例1	Ti	2.94	100	70	○
本発明例2	Ti	0.098	1	150	○
本発明例3	Ti	1.96	78	100	○
本発明例4	Hf	1.47	22	134	○
本発明例5	Zr	0.49	88	91	○
本発明例6	Zr	0.49	56	124	○
本発明例7	Nb	0.049	8	144	○
本発明例8	Zr	0.98	70	101	○
比較例1	Ti	0.098	0.5	173	×
比較例2	Zr	0.49	0.7	160	×

※ 銅板とセラミックス基板との接合界面から銅板側へ10 μm から50 μm までの領域における最大押し込み硬さ

[0053] 活性金属としてTiを用いて加熱工程における温度積分値を $0.5^{\circ}\text{C}\cdot\text{h}$ とした比較例1においては、接合界面の最大押し込み硬さが $174\text{mgf}/\mu\text{m}^2$ と本発明の範囲よりも大きくなり、冷熱サイクル信頼性が「×」となった。

活性金属としてZrを用いて加熱工程における温度積分値を $0.7^{\circ}\text{C}\cdot\text{h}$ とした比較例2においては、接合界面の最大押し込み硬さが $160\text{mgf}/\mu\text{m}^2$ と本発明の範囲よりも大きくなり、冷熱サイクル信頼性が「×」となった。

[0054] これに対して、接合界面の最大押し込み硬さが $70\text{mgf}/\mu\text{m}^2$ 以上 $150\text{mgf}/\mu\text{m}^2$ 以下の範囲内とされた本発明例1-8においては、活性金属の種類に関わらず、冷熱サイクル信頼性が「○」となった。

[0055] (実施例2)

窒化ケイ素(Si_3N_4)からなるセラミックス基板($40\text{mm}\times 40\text{mm}\times 0.32\text{mm}$)を準備した。

このセラミックス基板の両面に、無酸素銅からなる銅板($37\text{mm}\times 37\text{mm}\times$ 厚さ 0.2mm)を、表2に示す活性金属を含むAg-Cu系ろう材を用いて、表2に示す条件で銅板とセラミックス基板とを接合し、絶縁回路基板(銅/セラミックス接合体)を得た。なお、接合時の真空炉の真空度は $5\times 10^{-3}\text{Pa}$ とした。

[0056] 得られた絶縁回路基板(銅/セラミックス接合体)について、接合界面近傍の最大押し込み硬さを、実施例1と同様の方法で評価した。

また、活性金属化合物層における活性金属化合物粒子の最大粒子径、活性金属化合物層中のSi, Ag, Cuの有無、超音波接合について、以下に示す方法で評価した。

[0057] (活性金属化合物粒子の最大粒子径)

活性金属化合物層を透過型電子顕微鏡(FEI社製Titan ChemiSTEM)を用いて倍率50万倍で観察し、HAADF像を得た。

このHAADF像の画像解析により、活性金属化合物粒子の円相当径を算

出した。10視野における画像解析の結果から、観察された活性金属化合物粒子の最大の円相当径を、最大粒子径として表2に示した。

[0058] (活性金属化合物層中のSi, Ag, Cuの有無)

活性金属化合物層における粒界を透過型電子顕微鏡 (FEI社製 Titan ChemiSTEM) を用いて加速電圧 200kV、倍率50万倍から70万倍、1点あたり7 μ sで1100フレームを積算した。EDSスペクトルにおいて、Si, Ag, Cuが0.15cps/eVである場合に、Si, Ag, Cuが「有」と評価した。

[0059] (超音波接合の評価)

絶縁回路基板に対して、超音波金属接合機 (超音波工業株式会社製: 60C-904) を用いて、銅端子 (10mm \times 20mm \times 2.0mm厚) を、荷重850N, コプラス量0.7mm, 接合エリア5mm \times 5mmの条件で超音波接合した。なお、銅端子はそれぞれ50個ずつ接合した。

接合後に、超音波探傷装置 (株式会社日立ソリューションズ製 FineSAT200) を用いて、銅板とセラミックス基板の接合界面を検査した。50個中5個以上で銅板とセラミックス基板との剥離又はセラミックス割れが観察されたものを「D」、50個中3個以上4個以下で銅板とセラミックス基板との剥離又はセラミックス割れが観察されたものを「C」、50個中1個以上2個以下で銅板とセラミックス基板との剥離又はセラミックス割れが観察されたものを「B」、50個全てで銅板とセラミックス基板との剥離又はセラミックス割れが観察されなかったものを「A」と評価した。評価結果を表2に示す。

[0060]

[表2]

	活性金属	加熱工程			活性金属化合物層			接合界面※の最大押し込み硬さ(kgf/ μm^2)	超音波接合の評価
		荷重(MPa)	温度積分値($^{\circ}\text{C}\cdot\text{h}$)	加熱温度($^{\circ}\text{C}$)	材質	Si、Ag、Cu	最大粒子径(μm)		
本発明例11	Ti	0.098	1	825	TiN	有	89	150	A
本発明例12	Ti	0.098	10	825	TiN	有	102	136	A
本発明例13	Ti	0.098	26	835	TiN	有	131	123	B
本発明例14	Hf	1.47	22	825	HfN	有	118	134	A
本発明例15	Hf	1.47	37	835	HfN	有	150	121	B
本発明例16	Hf	1.47	60	815	HfN	有	115	116	A
本発明例17	Zr	0.49	56	835	ZrN	有	156	124	C
本発明例18	Zr	0.49	72	835	ZrN	有	179	110	C
本発明例19	Zr	0.49	110	850	ZrN	有	213	91	D

※ 銅板とセラミックス基板との接合界面から銅板側へ10 μm から50 μm までの領域における最大押し込み硬さ

[0061] 活性金属がTiである本発明例11-13、活性金属がHfである本発明例14-16、活性金属がZrである本発明例17-19をそれぞれ比較すると、活性金属化合物層における活性金属化合物粒子の最大粒子径が小さくなることで、超音波接合時における銅板とセラミックス基板の剥離や、セラ

ミックスマイクス基板でのクラックの発生を抑制可能であることが確認される。

[0062] 以上の結果、本発明例によれば、接合強度が高く、かつ、冷熱サイクル信頼性に特に優れた銅／セラミック接合体、及び、絶縁回路基板を提供可能であることが確認された。

符号の説明

- [0063] 1 0 絶縁回路基板（銅／セラミック接合体）
1 1 セラミック基板（セラミック部材）
1 2 回路層（銅部材）
1 3 金属層（銅部材）
4 1 活性金属化合物層
4 5 活性金属化合物粒子

請求の範囲

[請求項1] 銅又は銅合金からなる銅部材と、ケイ素含有セラミックスからなるセラミックス部材とが接合されてなる銅／セラミックス接合体であって、

前記銅部材と前記セラミックス部材との接合界面から前記銅部材側へ10 μ mから50 μ mまでの領域における最大押し込み硬さが70mgf/ μ m²以上150mgf/ μ m²以下の範囲内とされていることを特徴とする銅／セラミックス接合体。

[請求項2] 前記セラミックス部材と前記銅部材との接合界面においては、前記セラミックス部材側に、Ti, Zr, Nb, Hfから選択される1種又は2種以上の活性金属の化合物を含む活性金属化合物層が形成されており、

前記活性金属化合物層における前記活性金属化合物粒子の最大粒子径が180nm以下であることを特徴とする請求項1に記載の銅／セラミックス接合体。

[請求項3] 前記活性金属化合物層内に、Si, Cu, Agが存在していることを特徴とする請求項1又は請求項2に記載の銅／セラミックス接合体。

[請求項4] ケイ素含有セラミックスからなるセラミックス基板の表面に、銅又は銅合金からなる銅板が接合されてなる絶縁回路基板であって、

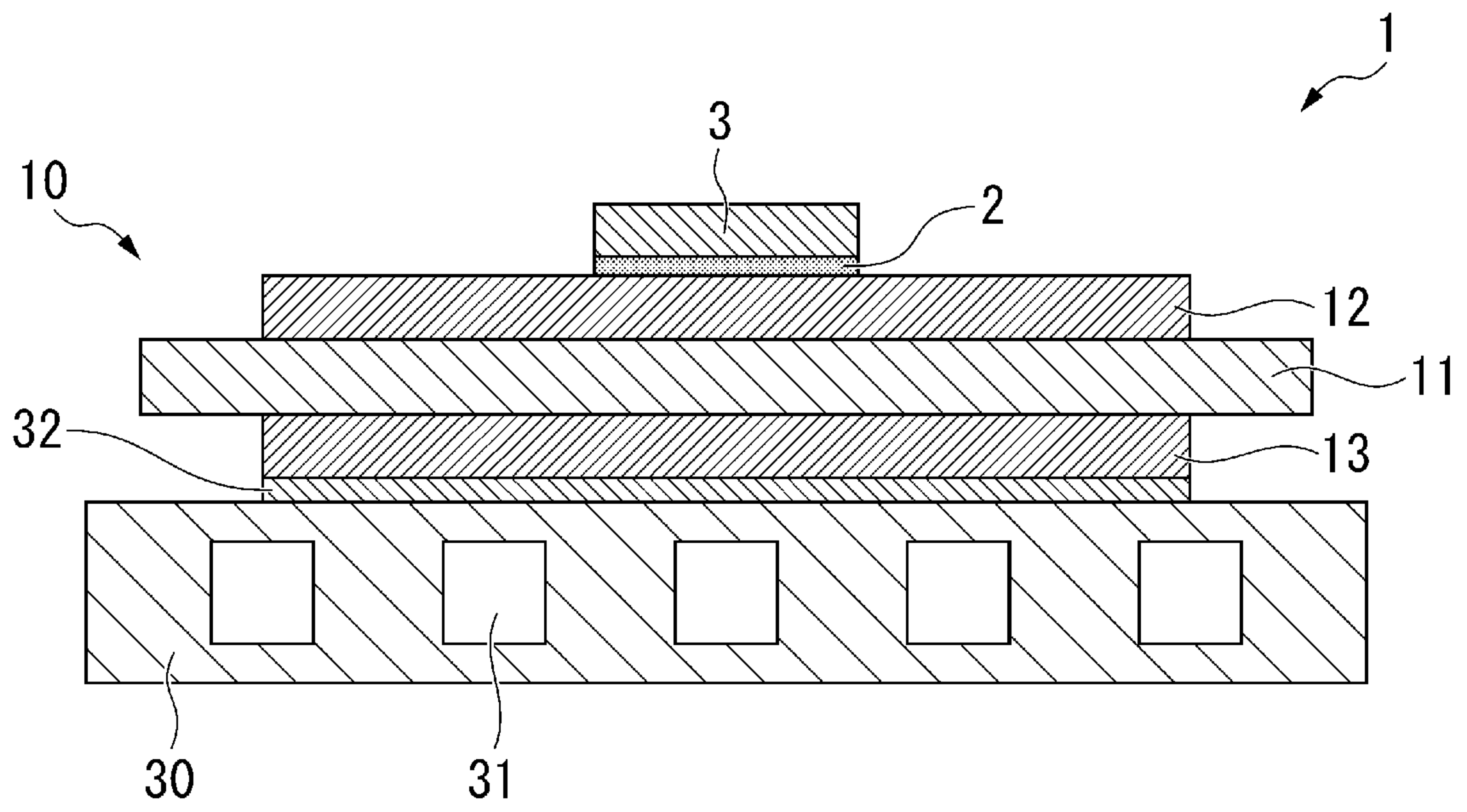
前記銅板と前記セラミックス基板との接合界面から前記銅板側へ10 μ mから50 μ mまでの領域における最大押し込み硬さが70mgf/ μ m²以上150mgf/ μ m²以下の範囲内とされていることを特徴とする絶縁回路基板。

[請求項5] 前記銅板と前記セラミックス基板との接合界面においては、前記セラミックス基板側に、Ti, Zr, Nb, Hfから選択される1種又は2種以上の活性金属の化合物を含む活性金属化合物層が形成されており、

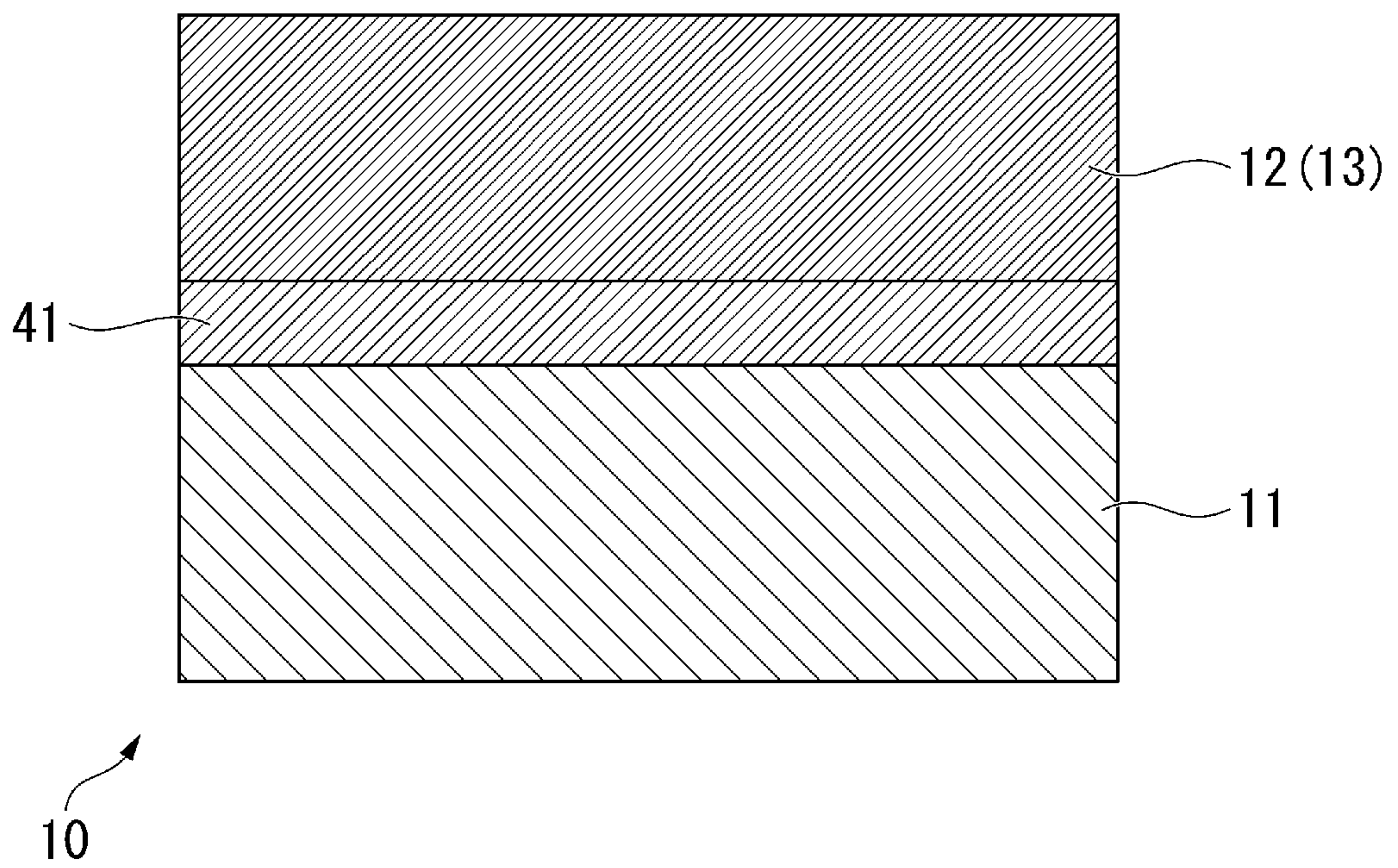
前記活性金属化合物層における前記活性金属化合物粒子の最大粒子径が180nm以下であることを特徴とする請求項4に記載の絶縁回路基板。

[請求項6] 前記活性金属化合物層内に、Si, Cu, Agが存在していることを特徴とする請求項4又は請求項5に記載の絶縁回路基板。

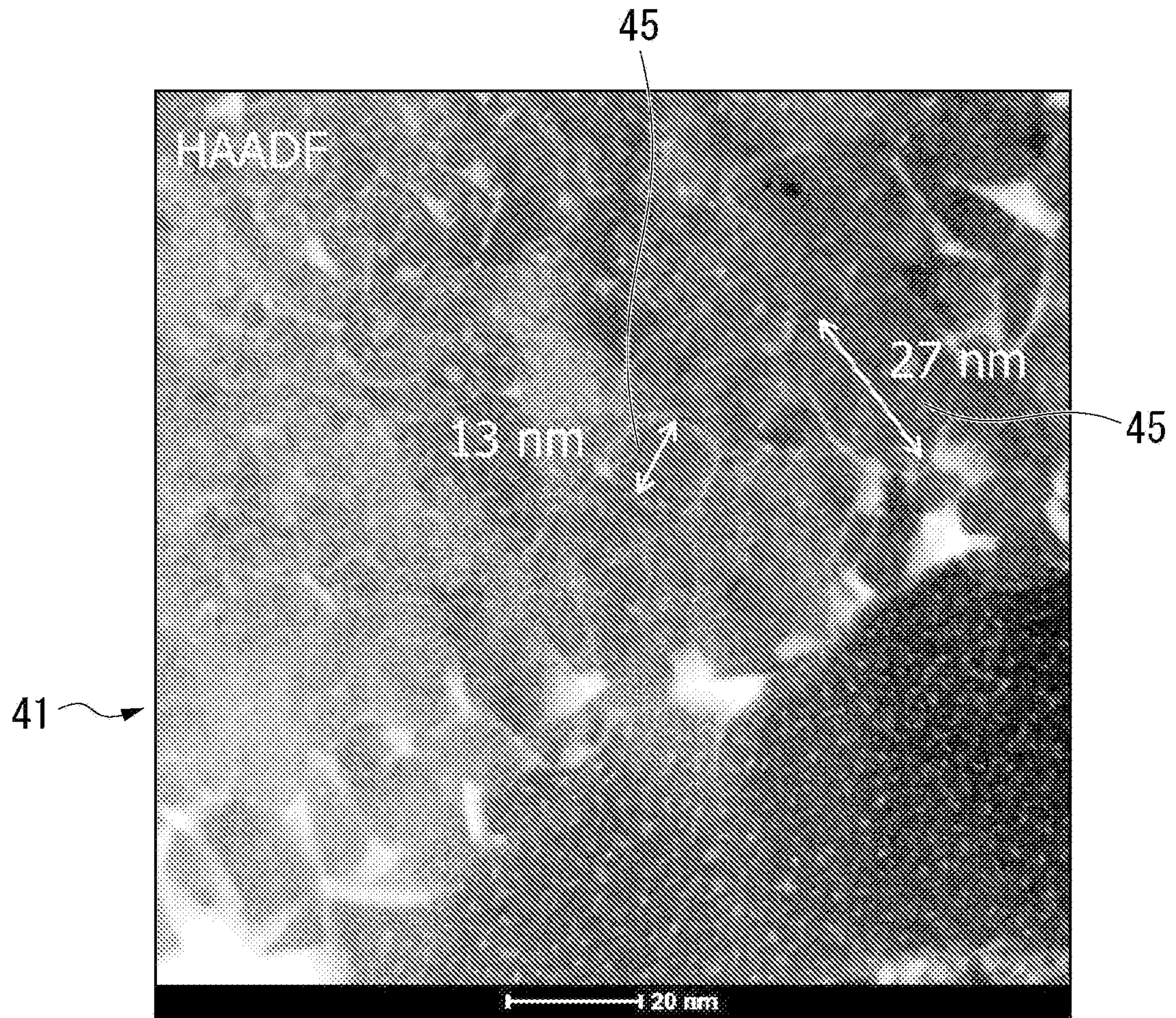
[図1]



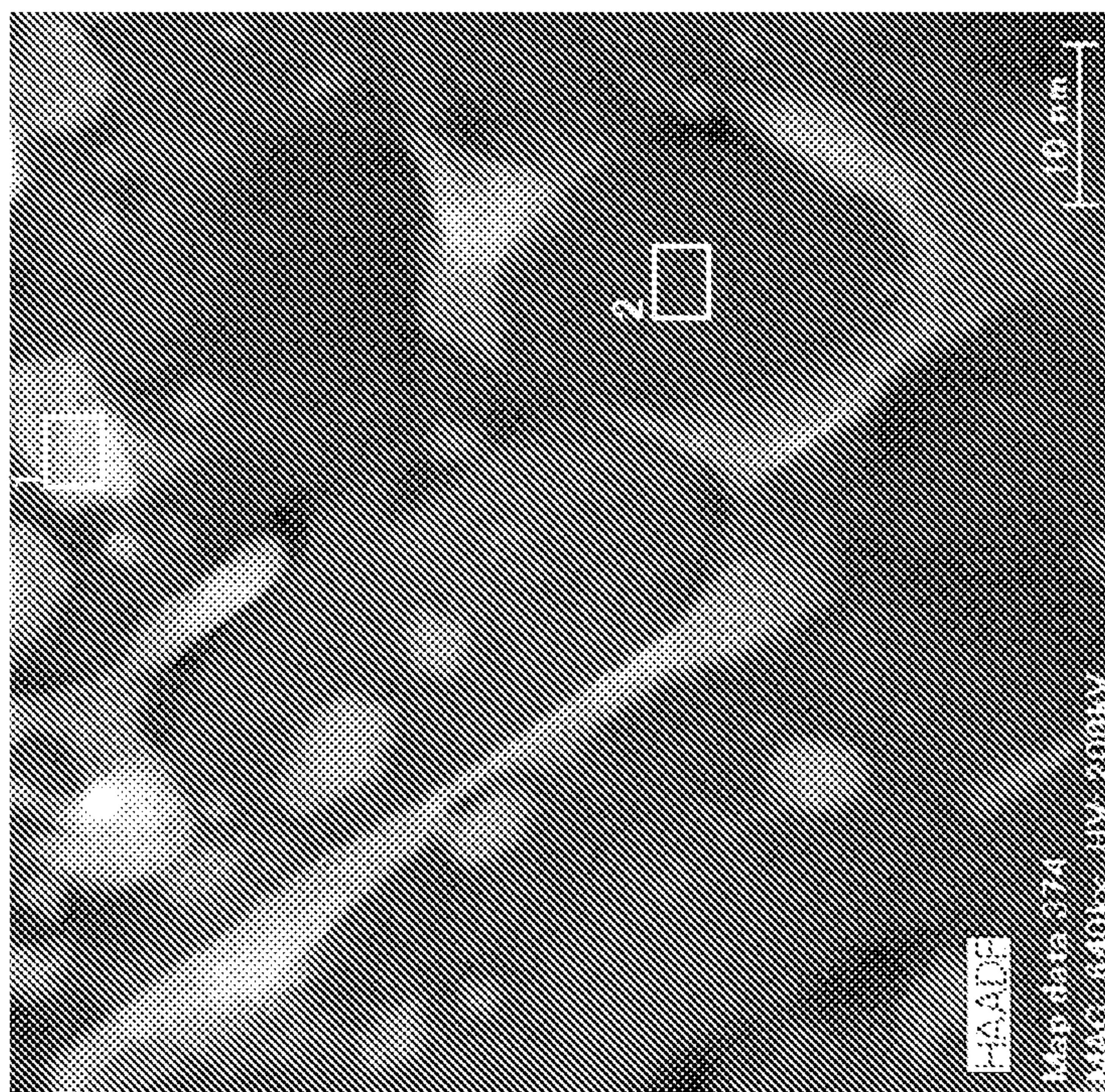
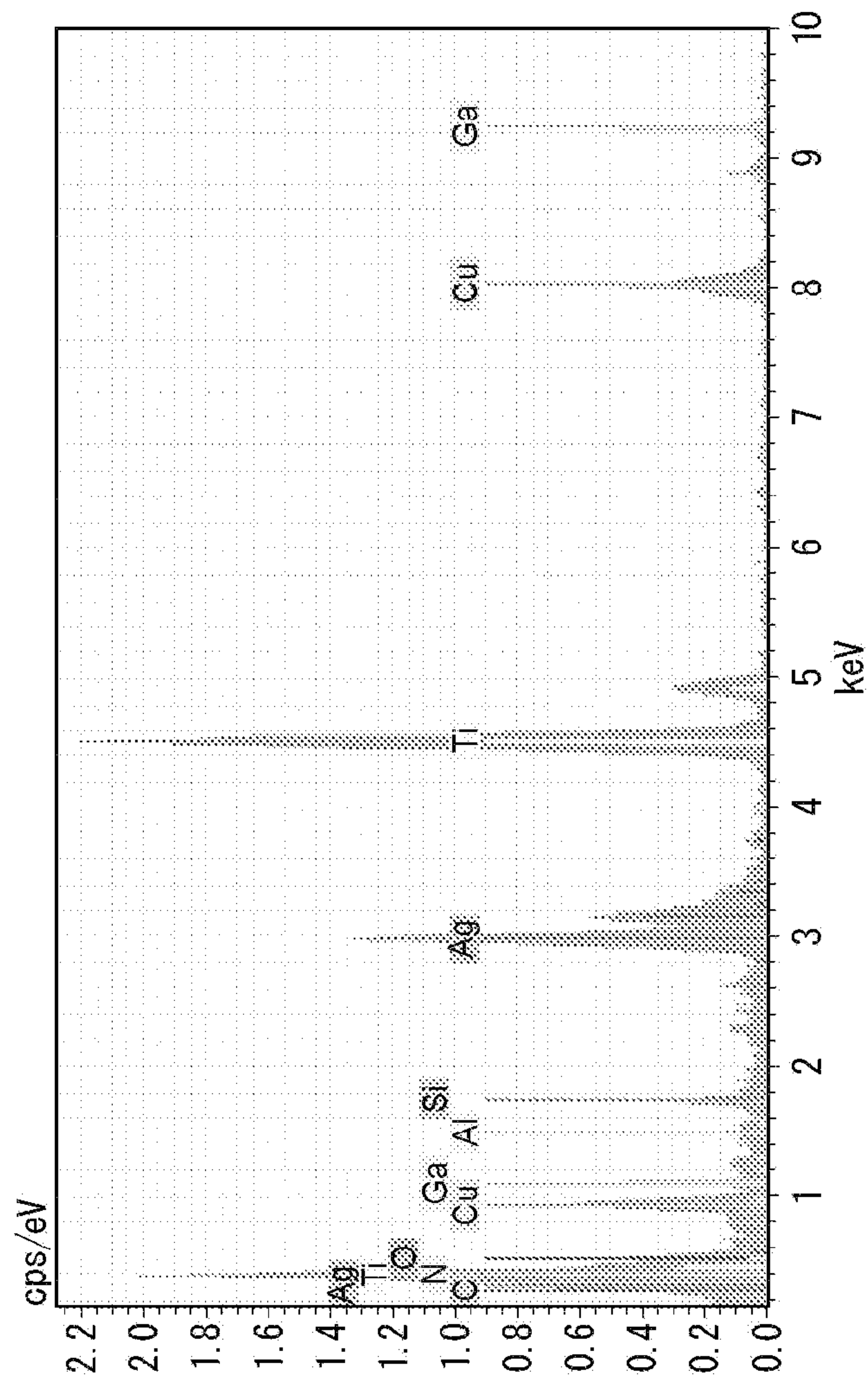
[図2]



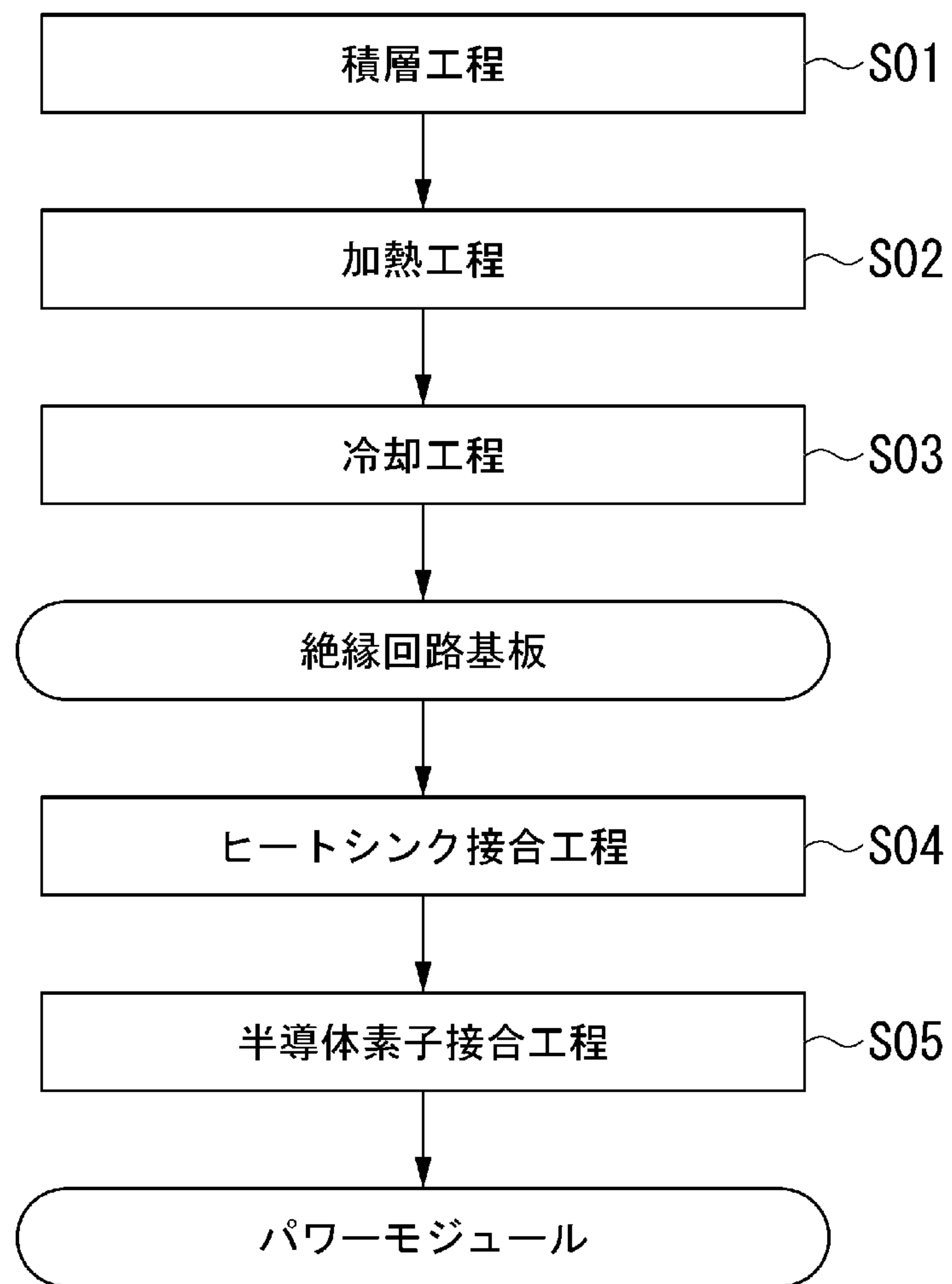
[図3]



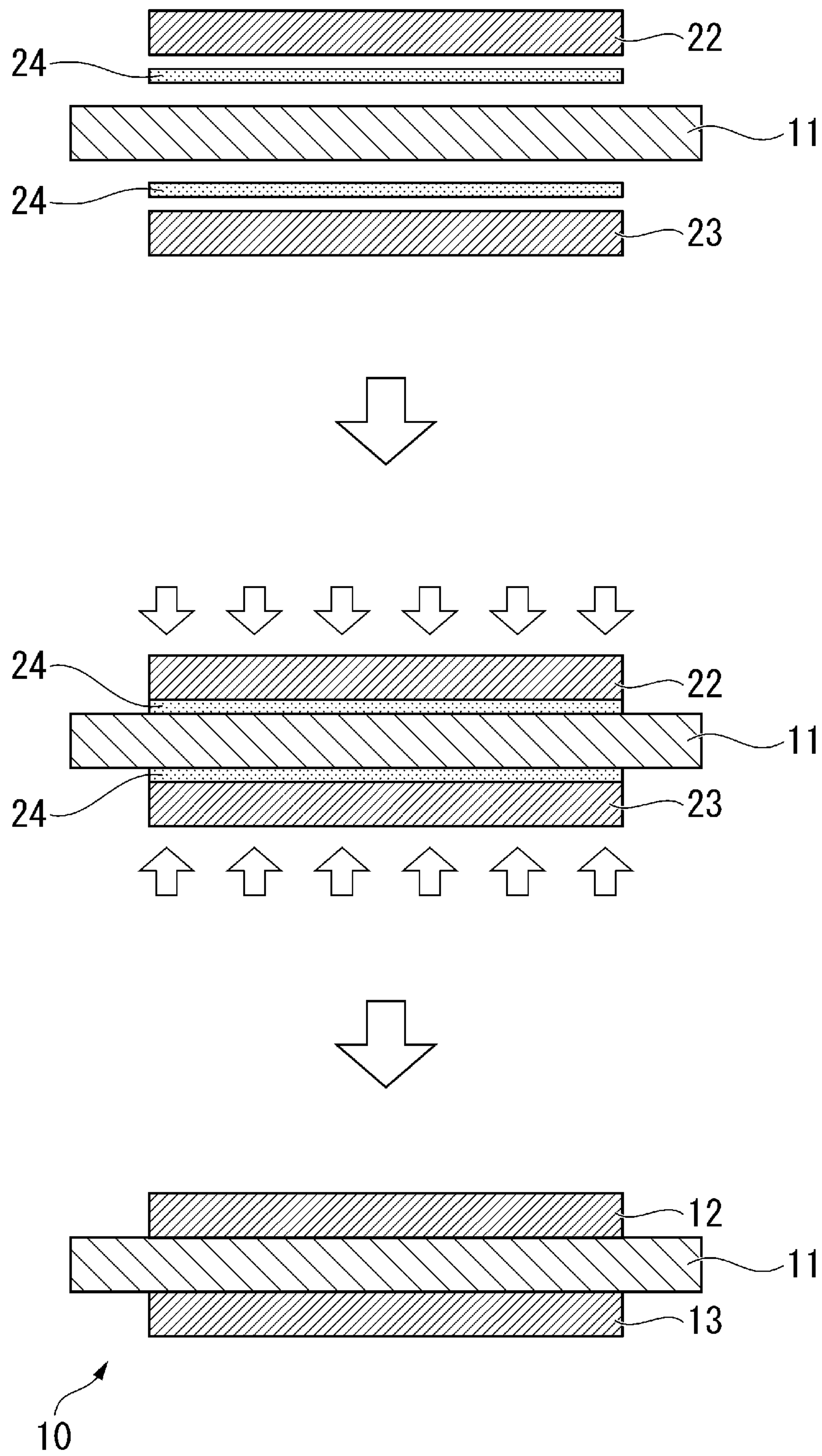
[図4]



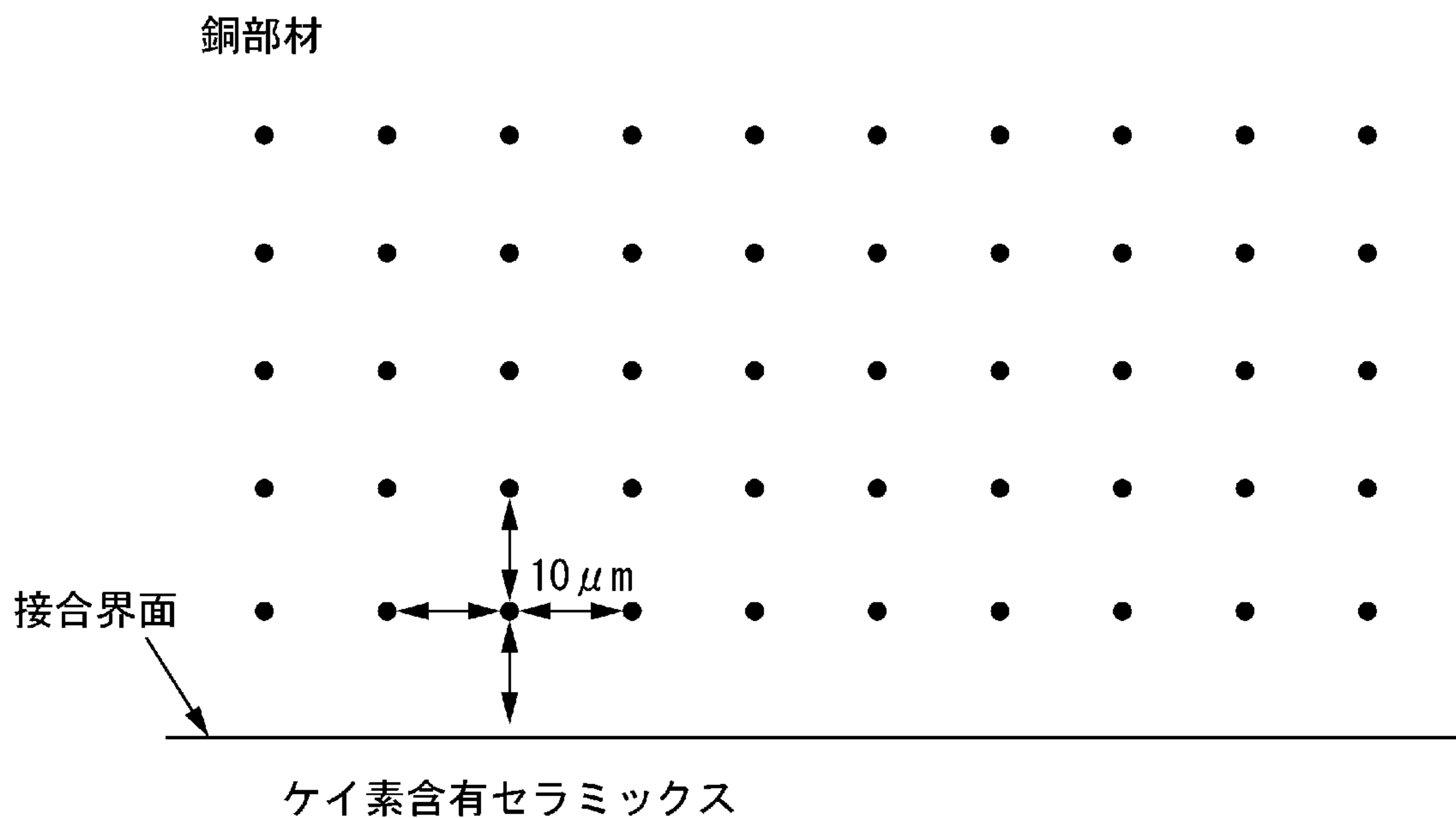
[図5]



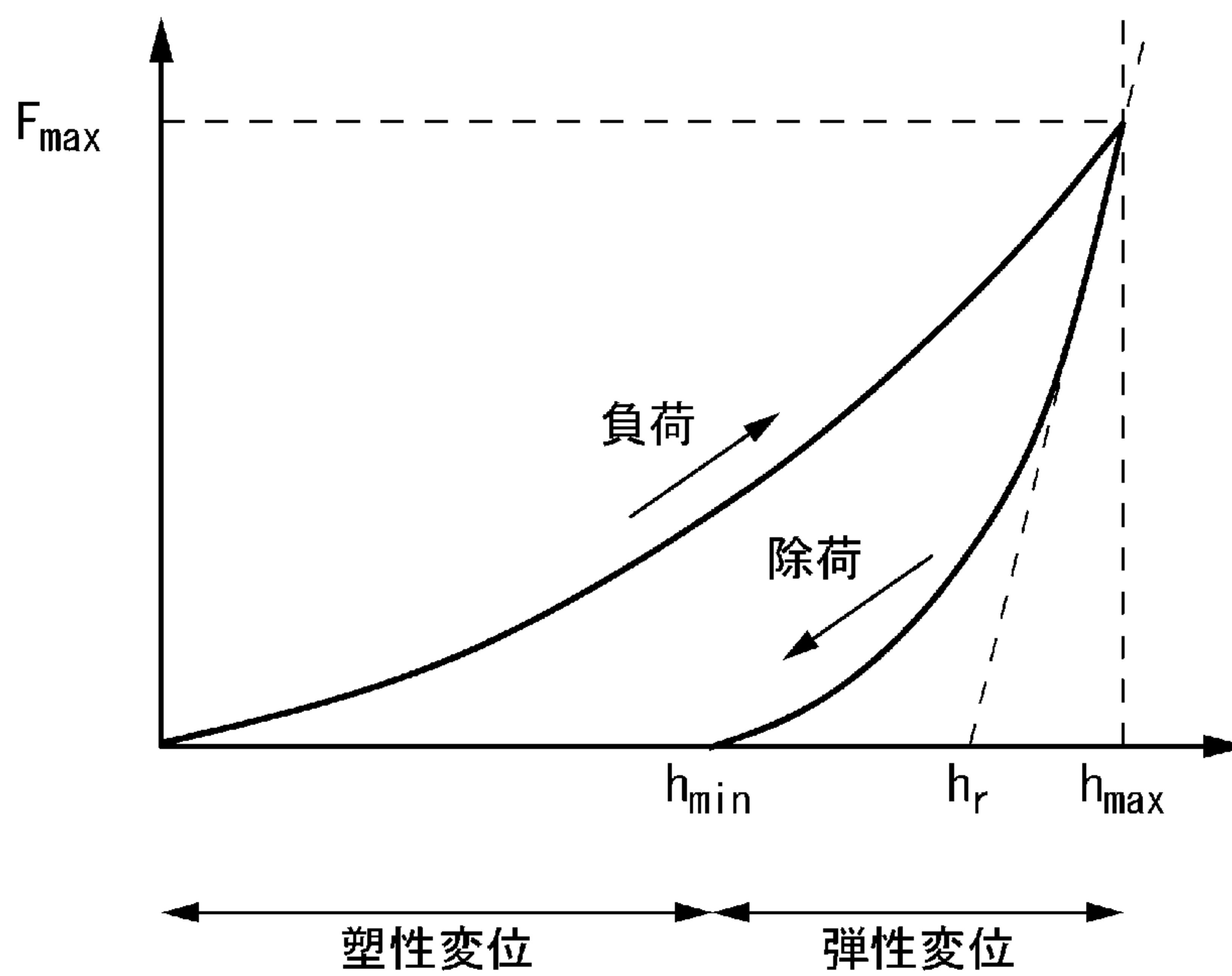
[図6]



[図7]



[図8]



$$\text{塑性硬さ } H_{IT} = \frac{F_{\max}}{A_p}$$

$$\text{接触投影面積 } A_p = 24.56h_c^2$$

$$\text{接触深さ } h_c = h_{\max} - 0.75(h_{\max} - h_r)$$

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/045199

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C04B 37/02 (2006.01) i; H01L 23/13 (2006.01) i; H05K 3/38 (2006.01) i
 FI: C04B37/02 B; H05K3/38 D; H01L23/12 C
 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)
 C04B37/02; H01L23/13; H05K3/38

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 2018/221493 A1 (DENKA COMPANY LIMITED) 06 December 2018 (2018-12-06) paragraphs [0025], [0034]-[0044]	1-6
A	WO 2018/021472 A1 (TOSHIBA CORP.) 01 February 2018 (2018-02-01) entire text, all drawings	1-6
A	WO 2017/213207 A1 (TANAKA KIKINZOKU KOGYO K.K.) 14 December 2017 (2017-12-14) entire text, all drawings	1-6
A	JP 2005-112677 A (HITACHI METALS, LTD.) 28 April 2005 (2005-04-28) entire text, all drawings	1-6
A	JP 2009-170930 A (HITACHI METALS, LTD.) 30 July 2009 (2009-07-30) entire text, all drawings	1-6

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
 26 January 2021 (26.01.2021)

Date of mailing of the international search report
 02 February 2021 (02.02.2021)

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/JP2020/045199

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2018-8869 A (MITSUBISHI MATERIALS CORP.) 18 January 2018 (2018-01-18) entire text, all drawings	1-6
A	JP 2018-140929 A (MITSUBISHI MATERIALS CORP.) 13 September 2018 (2018-09-13) entire text, all drawings	1-6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No. PCT/JP2020/045199
--

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
WO 2018/221493 A1	06 Dec. 2018	EP 3632879 A1 paragraphs [0027], [0038]-[0047] CN 110709369 A KR 10-2020-0013678 A	
WO 2018/021472 A1	01 Feb. 2018	EP 3492441 A1 whole document, whole drawing CN 109476556 A	
WO 2017/213207 A1	14 Dec. 2017	US 2019/0150298 A1 whole document, whole drawing EP 3471517 A1 KR 10-2018-0133474 A CN 109315061 A TW 201813462 A	
JP 2005-112677 A	28 Apr. 2005	(Family: none)	
JP 2009-170930 A	30 Jul. 2009	(Family: none)	
JP 2018-8869 A	18 Jan. 2018	US 2019/0135706 A1 whole document, whole drawing WO 2018/003845 A1 EP 3480844 A1 TW 201821390 A CN 109417056 A	
JP 2018-140929 A	13 Sep. 2018	US 2020/0006213 A1 whole document, whole drawing WO 2018/159590 A1 EP 3590909 A1 TW 201841871 A CN 110382445 A KR 10-2019-0123727 A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C04B 37/02(2006.01)i; H01L 23/13(2006.01)i; H05K 3/38(2006.01)i FI: C04B37/02 B; H05K3/38 D; H01L23/12 C		
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）） C04B37/02; H01L23/13; H05K3/38 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	WO 2018/221493 A1（デンカ株式会社）06.12.2018（2018-12-06） [0025], [0034]-[0044]	1-6
A	WO 2018/021472 A1（株式会社東芝）01.02.2018（2018-02-01） 全文, 全図	1-6
A	WO 2017/213207 A1（田中貴金属工業株式会社）14.12.2017（2017-12-14） 全文, 全図	1-6
A	JP 2005-112677 A（日立金属株式会社）28.04.2005（2005-04-28） 全文, 全図	1-6
A	JP 2009-170930 A（日立金属株式会社）30.07.2009（2009-07-30） 全文, 全図	1-6
A	JP 2018-8869 A（三菱マテリアル株式会社）18.01.2018（2018-01-18） 全文, 全図	1-6
A	JP 2018-140929 A（三菱マテリアル株式会社）13.09.2018（2018-09-13） 全文, 全図	1-6
<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	26.01.2021	国際調査報告の発送日 02.02.2021
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） 田中 永一 4T 9539 電話番号 03-3581-1101 内線 3465	

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/JP2020/045199

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2018/221493	A1	06.12.2018	EP	3632879	A1	[0027],[0038]-[0047]
				CN	110709369	A	
				KR	10-2020-0013678	A	
WO	2018/021472	A1	01.02.2018	EP	3492441	A1	whole document, whole drawing
				CN	109476556	A	
WO	2017/213207	A1	14.12.2017	US	2019/0150298	A1	whole document, whole drawing
				EP	3471517	A1	
				KR	10-2018-0133474	A	
				CN	109315061	A	
				TW	201813462	A	
JP	2005-112677	A	28.04.2005	(ファミリーなし)			
JP	2009-170930	A	30.07.2009	(ファミリーなし)			
JP	2018-8869	A	18.01.2018	US	2019/0135706	A1	whole document, whole drawing
				WO	2018/003845	A1	
				EP	3480844	A1	
				TW	201821390	A	
				CN	109417056	A	
JP	2018-140929	A	13.09.2018	US	2020/0006213	A1	whole document, whole drawing
				WO	2018/159590	A1	
				EP	3590909	A1	
				TW	201841871	A	
				CN	110382445	A	
				KR	10-2019-0123727	A	