

接合・導電材料に適した低温焼結用銅ナノ粒子とその高濃度ペーストの開発に成功

～パワー半導体パッケージング技術の向上に大きな期待～

ポイント

- ・量産可能な「コアシェル型銅ナノ粒子」の合成技術を新たに開発。
- ・この粒子を高濃度に含むペーストは、低温・短時間焼結により、実用レベルの高強度接合が可能。
- ・このペーストは印刷塗布後、十分な焼結により高導電性を示し、導電材料としても有望。

概要

北海道大学大学院工学研究院の米澤 徹教授と塚本宏樹博士研究員の研究グループは、パワー半導体^{*1} パッケージングなどに適した新型の銅系ナノ接合^{*2} 材料を開発しました。この材料は、低温での焼結^{*3} が可能で、短時間の加熱でも高い接合強度を発揮します。

まず、研究グループは、金属銅をコア、微酸化ナノ粒子をシェルとするコアシェル型の銅ナノ粒子を大量に合成することに成功しました。この構造により、粒子の酸化を防ぎ、安定性を向上させることができます。

次に、開発したコアシェル型銅ナノ粒子を高濃度に分散させたペーストを用いて、200℃で1分間の加圧焼結を行ったところ、できあがった接合は約40MPaのせん断強度を達成しました。さらに、15分間の焼結で得られた接合は約100MPaの高いせん断強度を示しました。パワー半導体の接合に必要な強度は20～50MPaであり、本研究で得られたコアシェル型銅ナノ粒子ペーストを用いた場合には従来の材料と比較して短時間で高強度の金属接合が可能であることを実証しました。

さらに、この銅ナノ粒子を高濃度に分散させたペーストを導電材料として使用したところ、200℃・60分の十分な焼結により、 $10.7\mu\Omega\text{cm}$ の体積抵抗率を示す導電膜が得られることが分かりました。鉛含有はんだの体積抵抗率は $20\mu\Omega\text{cm}$ 程度ですので、これは、半導体デバイスに用いる配線材料としても有望であることを示しています。

今回の研究成果は、パワー半導体パッケージング技術の向上に大きく貢献することが期待されます。また、低温での焼結が可能のため、製造コストの削減や環境負荷の低減にも繋がると考えられます。

本研究の詳細は、2024年12月11日～13日に東京で開催されるSEMICON Japanや、12月9日からシンガポールで開催される国際会議 The 12th Singapore International Chemistry Conference (SICC-12) にて発表される予定です。

【背景】

近年、脱炭素社会の実現に向けて、電気自動車や再生可能エネルギーの電力変換に用いられるパワー半導体デバイスの小型・軽量化、高効率化、低コスト化が求められています。そのキー技術の一つが接合技術であり、200°C以上の高温に耐える高耐熱で環境影響のない接合材料の開発が急務となっています。これまで、素子接合材料には、鉛を含んだ高融点はんだが使われていますが、環境負荷物質の使用を規制する欧州 RoHS 指令の除外適用の見直し対象となっています。そのため、鉛含有高融点はんだに代わる新しい接合材料が求められており、鉛を含まない銀粒子接合材料や銅粒子接合材料の開発が活発です。

また、銅を用いた低温焼成型の導電材料も、銀に比べて、イオンマイグレーション^{*4}による品質劣化が起こらず、低コストで扱えるメリットがあります。しかし、空气中で容易に酸化して導電性が低下し、特にナノ粒子は酸化によって発火する危険性もあります。また、酸化した場合には焼結時に酸化銅を金属銅まで還元できる水素ガスと窒素ガスを混合したような還元性ガス環境が必要とされてきました。また、銅ナノ粒子の大量合成や酸化防止、安全な取り扱いも課題となっていました。

これまで研究グループは、積層セラミックスコンデンサ用の銅ナノ粒子を開発し、その酸化防止に成功してきました。しかし、これらの材料は高温での焼結を想定しており、低温での焼結が求められる半導体用途には適していませんでした。また、部品の製造時の量産性や安全性の観点から、水素を使用しない窒素雰囲気中で焼結可能なことも求められていました。そこで、安定性を高めて酸化の問題を克服しつつ、低温焼結可能な銅ナノ粒子焼結型接合・導電材料の開発に取り組みました。

【研究手法】

本研究では、従来の手法とは異なり、銅の原料として表面が酸化した金属銅粒子や、亜酸化銅・酸化銅粒子の混合体を液相還元で処理しました。これにより、銅イオンの塩を原料とした場合に生じる不純物（コンタミネーション）のリスクを低減し、さらに安価な原料であるという利点があります。また、この方法では、均一な銅イオンの溶液から還元する場合と異なり、液中の銅イオン濃度を容易に安定的に保つことができるため、粒子の大きさを均一に制御することが可能です。

この技術を活用し、研究グループは様々な銅ナノ粒子の大量合成に成功しました。特に今回は、金属銅粒子と微酸化銅ナノ粒子が複合化したコアシェル型の粒子系を合成しました。この粒子を遠心分離で固液分離し、ペースト用の溶剤に再分散させることで、さらなる酸化を抑制しつつ 90wt%を超える高い銅含有率のペースト製造に成功しました。この高濃度銅ペーストを導電性や接合強度の高い焼結材料として使用できることを確認しています。

【研究成果】

今回の研究では、銅系ナノ粒子及びコアシェル型ナノ粒子を 1 バッチあたり 100~200g の規模で合成でき、さらに kg スケール以上の大量生産への拡大も可能であることが確認されました。合成したコアシェル型ナノ粒子は、固液分離後に電子顕微鏡（TEM）で観察され、コア部分には直径 100nm 程度の銅ナノ粒子、シェル部分には直径 2~5nm の酸化銅ナノ粒子が確認されました。さらに、加熱しながら X 線回折（XRD）で解析を行った結果、60~100°C の温度で微酸化銅が金属銅に変化し、結晶構造が相転移することが示されました。この相転移は銅原子の拡散を促し、低温でも材料同士が結びつく「ネッキング」という接合を助ける効果があります。

実験では、150°C でわずか 1 分の加熱でも、2~5nm だった酸化銅ナノ粒子が 20nm 程度に成長することが確認されました。これにより、コアシェル構造が低温でコアの大きな銅粒子を結びつけ、強固な

接合を形成できることが明らかになりました。また、大きな銅粒子を混ぜることでペーストの粘度を下げ、高濃度の導電ペーストを作成できるだけでなく、保護剤の使用量も大幅に減らすことができ、低温焼結性と高い導電性の両立が実現しました。

この研究で使用したコアシェル型銅ナノ粒子導電ペーストを用いて、200°Cで1分間加圧焼結を行ったところ、40MPaのせん断強度が得られました。また、焼結時間を15分に延ばすと、せん断強度は100MPaに達しました。この高い強度は、破断試験後の断面を観察した結果、粒子間で破断が起こったのではなく、銅焼結体が塑性変形して破断していることから確認されました(図1)。さらに、この高濃度導電ペーストは、200°Cで60分間の十分な焼結により、従来の鉛含有はんだに比べても非常に優れた導電性(体積抵抗率 $10.7 \mu\Omega\text{cm}$)の導電膜を形成することができました。

この技術は、半導体パッケージングや他の導電材料分野において、大きな応用可能性を持つと期待されています。

【今後への期待】

今回の研究成果は、銅系ナノ粒子やコアシェル型ナノ粒子を活用した低温焼結技術の実現において、大きな前進となりました。この技術により、パワー半導体や先端半導体デバイスのパッケージングにおける接合材料として、より効率的で低コスト、かつ環境に配慮した新素材が提供できる可能性が高まっています。

今後の期待としては以下の点が挙げられます。

■産業応用の加速：開発された銅ナノ粒子を用いた導電ペーストや接合材料は、特に半導体業界での実用化が期待されています。低温・短時間で高強度の接合が可能なことから、生産コストの削減や、電子機器のさらなる小型化や高効率化に寄与する可能性があります。

■環境負荷の低減：鉛フリーで、低温焼結が可能な銅ナノ材料を実現したことにより、従来の材料に比べて環境への負荷を減らすことが期待されます。製造プロセス全体でのエネルギー効率の向上や、有害物質の削減に繋がると考えられます。

■広範な応用分野への展開：今後、この技術はパワー半導体を含む先端半導体分野のみならず、自動車用途など、電子部品における接合が用いられる多様な分野での応用が期待されます。特に電気自動車や再生可能エネルギーシステムにおいて、電力移送用銅板などの短時間高効率接合などに寄与する技術として期待が高まっています。

これらの研究は、今後の半導体技術や接合材料技術における重要なステップとなる可能性があり、さらなる発展が期待されます。

なお、本研究成果のコアシェル型銅ナノ粒子は、国際特許出願されております。(国際公開番号：WO2024/048662、国際公開日：2024年3月7日等)電気自動車用のパワー半導体の実用目安である接合強度；40MPa、導電性； $10 \mu\Omega\text{cm}$ オーダーをクリアし、量産に向けて基礎技術を確立しておりますので、企業への技術移転を推進して参ります。

【謝辞】

本研究の一部は、JST A-STEP(育成型)(JPMJTR20T3)、JKA研究補助(2023-M354)、日本学術振興会科学研究費補助金(JP24K01174、JP23K17855)などの支援を受けて行われました。

お問い合わせ先

(研究内容に関すること)

北海道大学大学院工学研究院 教授 米澤 徹 (よねざわてつ)

メール tetsu@eng.hokudai.ac.jp

U R L <https://nanoparticle.hokkaido.university>

(技術移転に関すること)

北海道大学産学・地域協働推進機構 産学協働マネージャー 星 聡 (ほしさとし)

メール s-hoshi@mcip.hokudai.ac.jp

U R L <https://www.mcip.hokudai.ac.jp>

配信元

北海道大学社会共創部広報課 (〒060-0808 札幌市北区北 8 条西 5 丁目)

T E L 011-706-2610 F A X 011-706-2092 メール jp-press@general.hokudai.ac.jp

【参考図】

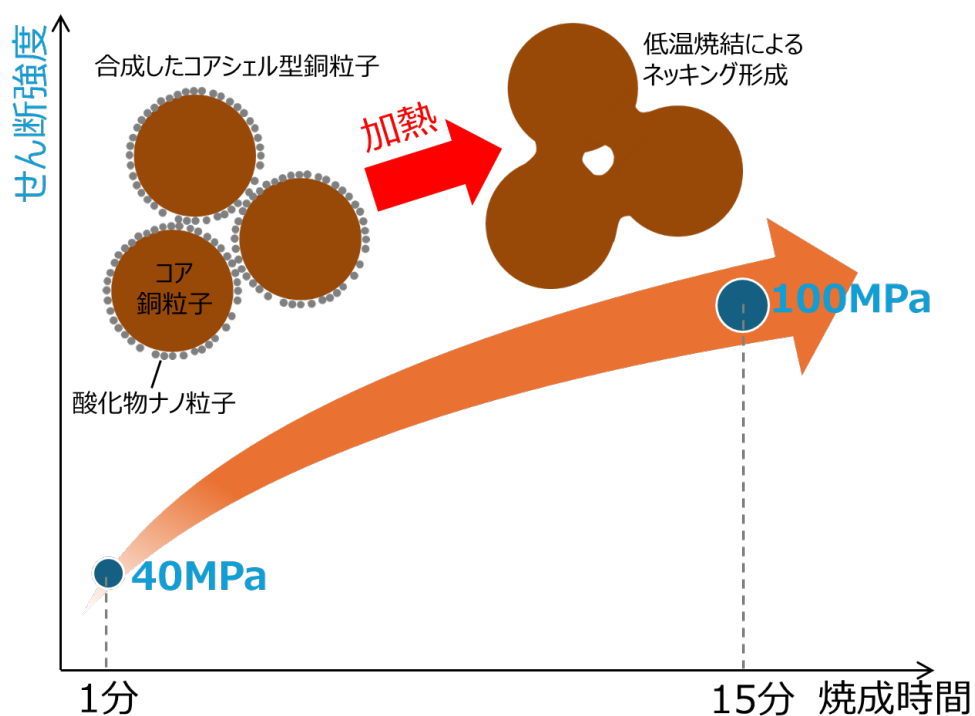


図 1. コアに金属銅、シェルに微酸化銅ナノ粒子を複合化したコアシェル型銅ナノ粒子を用いた高濃度接合ペーストを用い、被接合材料に銅板を用いた場合において、温度 200℃、接合圧力 15MPa で焼結接合した場合に得られる焼結時間とせん断強度との関係。

【用語解説】

- *1 パワー半導体 … 大電力を制御・変換するための半導体。電気自動車や再生可能エネルギー、産業機器で使われ、電力の効率的な供給を可能にする。
- *2 接合 … 材料や部品を熱、圧力、化学反応などで結びつけ、一体化するプロセスのこと。本研究では、銅ナノ粒子を粘性溶媒に分散させ、印刷・加熱して接合を行う。
- *3 焼結 … 粉末材料を高温で加熱し、溶融させずに粒子同士を結合させる方法。微粒子を使用することで、低温でも密な固体を形成することができる。
- *4 イオンマイグレーション … 電場の影響で金属イオンが移動したのちに金属として堆積し、ショートや劣化を引き起こす現象のこと。銀は特にこの現象が起こりやすく、他の金属への置換が検討されている。