

熱電素子のための銅-窒化アルミ接合の研究

笹岡 秀紀 (理工学・三木 俊克)

研究の目的

近年、化石燃料の枯渇や二酸化炭素排出抑制の点から500~600℃の温度の排気熱から電気エネルギーをとりだすことのできる熱電モジュールの開発が急がれている。一般に、熱電モジュールは電極により直列に接続したいくつものPNの半導体ペアを絶縁基板で挟み込んだ構造をもっている。(図1)その絶縁基板には電気絶縁性、耐熱性、熱伝導性に優れた窒化アルミ(AIN)が適用しているが、その優れた熱伝導性を活かすためには、AINと電極(銅)との接合にも同様に耐熱性と熱伝導性が要求される。そのような要求を満たす接合技術として活性金属フィラーによる直接接合が考えられる。最もポピュラーな活性金属接合法は、Ag-Cu-Ti系フィラーを使用したものであり、一般に800℃~900℃の温度で接合し、その接合部の耐熱性は500℃程度といわれている。しかし、一般に、接合温度が高いほど熱膨張率の違いによる熱応力が界面にかかるため、熱電モジュールで使用される薄いAIN基盤では、室温での接合強度に問題が生じる可能性がある。それ故、耐熱性は保ちながら、より低い温度で接合可能するフィラーが必要であるが、近年、提案されているIn-Ti系フィラーは接合温度が750℃で十分な強度が得られると言う報告があり、熱電モジュール作製への応用が期待される。我々は、系統的な研究がなされていないIn-Ti系フィラーについて、接合条件、接合強度、耐熱性を調べ、その熱電モジュール作製技術としての適性を評価した。

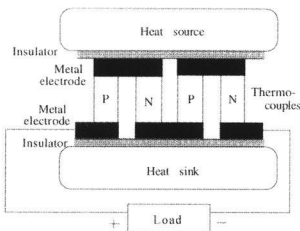


図1 熱電素子概略図

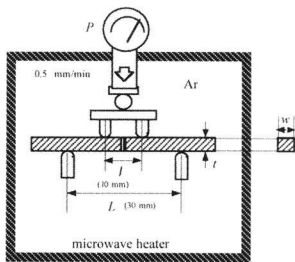


図2 4点曲げ試験

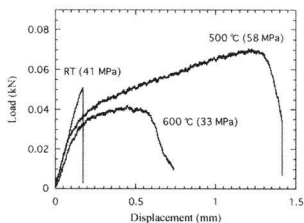


図3 4点曲げ法による変位-荷重曲線

研究成果

我々は以前からの実験によりIn-1wt%Ti、In-7.7wt%Ti、In-15wt%Ti、In-23.8wt%Tiの4種の組成による接合実験と顕微鏡観察、EPM A観察を行っており、それらの結果からつぎの結果を得ている。

- 1) In-7.7wt%Ti、In-15wt%Ti、In-23.8wt%Tiによる接合体ではCu側に接合に関与しないTi-rich層が拡がり、AIN側界面にクラックの発生がみられた。
- 2) In-1wt%Tiによる接合体ではAINにクラックはみられず、その界面にはTiNとおもわれる数μmの反応層が確認できた。

以上の結果より、Cu-AIN接合には上記の組成比のフィラーではIn-1wt%Tiが最も適していると判断し、これについて接合温度、4点曲げ強度、耐熱性についての評価をおこなった。サンプルの作製はすべて真空度 4×10^{-3} Pa以下で行い、各温度で30分保持した後、炉のなかで自然冷却させた。また、接合時に常に10 MPaの垂直応力を接合面に印可した。図3中に記された強度(MPa単位)はJIS-R604に従って破断時の荷重Pから

$$\sigma = \frac{3P(L-l)}{2wt^2} \quad (1)$$

によって計算されたものである。室温では変位と荷重は線形の関係にあり、破断は41MPaでAINがほぼ中央で割れることによって起こった。また500℃では室温よりも高い強度(58 MPa)を示したが、600℃では大きくその強度が減少している(33 MPa)。また500℃、600℃での破断は接合界面の剥離によるものであった。このことよりIn-1wt%Tiによる接合の耐久温度は500℃程度であることが確認できた。また500℃、600℃の変位-荷重曲線が0.2 mm以上の変位で急激に傾きが緩やかになっているのは、InがCu側に拡散したために高温で接合部付近の金属部の柔らかさが増し、塑性変形がおきているためである。次に、接合温度と室温と500℃における4点曲げ強度の関係を図4に示す。500℃での強度と接合温度はほぼ線形の関係にあった。これは接合温度が高いほど接合界面に生成する反応層の厚さが厚くなり、高い接合強度が得られていると考えられる。しかし、Huh(1997)によれば電気的な素子の接合強度としては20 MPa程度あれば充分であるので、625℃の接合で充分の強度が得られている。また室温での強度が接合温度を高くしても40 MPa以上に伸びないのは、室温で熱応力をうけているAINが界面が剥離する前に割れてしまうためである。しかし、本来接合温度が大きくなるほど室温での熱応力はおおきくなるため、室温強度は接合温度とともに下がっていくのが一般的ではあるが、この接合法では室温強度は大きく減少していない。これもInの拡散による金属部の塑性変形性が、冷却時にかかる熱応力を緩和しているためではないかと考えられる。以上の実験によりIn-Ti系フィラーではIn-1wt%Tiの組成比のフィラーを使用すれば、500℃以下で作動する熱電モジュールの電極(Cu)-絶縁

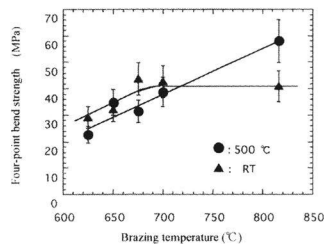


図4 接合温度 vs 4点曲げ強度

基板(AIN)接合技術として使用できると判断した。

産業技術への貢献

窒化アルミは優れた特性をもっているにもかかわらず、金属との接合法がアルミナほど確立されてはいないためにまだ応用例がすくないのが現状である。本研究によって、技術的な真空地帯であった密着性と高温耐久性のある金属との接合にひとつの回答を与えることができたと思える。

研究発表

- 1) 笹岡秀紀 三木俊克：車載熱電素子用セラミック-金属接合技術；熱電ブルーパ会議，1999.4.20.

グループメンバー

氏名	所属	職 (学年)
三木 俊克	工・応用工学	教授
笹岡 秀紀	VBL	研究員

連絡先

電話 0836-85-9441 (ダイヤルイン)
 FAX 0836-85-9401 (学科事務室)
 E-mail:sasaoka@ab1610.eee.yamaguchi-u.ac.jp