

明 細 書

発明の名称：

加圧接合用銅ペースト、半導体装置、加圧接合用銅ペーストの製造方法及び半導体装置の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、加圧接合用銅ペースト、半導体装置、加圧接合用銅ペーストの製造方法及び半導体装置の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 近年、パワー半導体デバイスの高効率化及び省スペース化を実現するためにパワーモジュールと呼ばれる電子部品が用いられている。パワーモジュールは基板の一方の面に複数の半導体素子が搭載され、他方の面にはベースプレートやヒートシンク等の冷却部材が搭載されたものであり、かかる部材間を接合材料や熱伝導性グリース等で接続されたものである。このようなパワーモジュールは長期信頼性が必要であるが、長期信頼性を達成するための手法の一つとして、銀や銅などの金属を焼結させた焼結材料を接合材料とすることが注目されている。更に高い接合信頼性を得るために焼結材料を加圧プロセスで接合することも行われている。

[0003] 一方で、半導体素子は年々薄型化している。半導体素子が薄型化することで加圧プロセスによる半導体素子へのダメージや、接合材料上に半導体素子が均一に接合せずムラが生じることがある。また半導体チップが搭載された基板とベースプレートやヒートシンク等との接合面積は大面積であるため、既述の接合ムラが生じやすい。

[0004] このような不具合を解決すべく、本出願人は先に、金属粉と、固体還元剤とを含む加圧接合用組成物を提案した（特許文献1参照）。同文献においては、加圧接合用組成物を大気雰囲気下で乾燥して得られた塗膜の厚みAと、窒素雰囲気下で焼成処理して得られた焼結体の厚みBとの比率から算出される圧縮率（ $(A - B) / A \times 100$ ）を特定の範囲に設定している。これに

よって、接合対象となる導電体の厚みのばらつきの影響を受けにくい状態で、導電体どうしを十分に接合することができると、同文献には記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：E P 3 9 5 0 1 8 5 A 1

発明の概要

[0006] パワー半導体の分野においては、上述のような被接合体の薄型化や大面積化に伴い、これらの被接合体の接合を高い信頼性をもって行うことが、これまで以上に要求されている。かかる被接合体の接合においては、既存の接合用組成物では接合時の半導体素子へのダメージの発生や、接合ムラの発生が、これまで以上に顕著となる。そこで、上述した特許文献1に記載の接合用組成物よりも接合性能が一層向上した接合用組成物が望まれている。

[0007] したがって、本発明の課題は、被接合体が薄い場合や大面積の場合であっても、接合を高強度で且つ接合ムラが生じないように行い得る加圧接合用銅ペーストを提供することにある。

[0008] 本発明は、形状及び／又は粒径が異なる2種以上の銅粉と、溶媒とを少なくとも含む加圧接合用銅ペーストであって、

前記銅ペーストの25℃における粘度が10Pa・s以上200Pa・s以下であり、

前記銅ペーストの質量に対する、前記2種以上の銅粉の合計質量の比をAとし、

前記銅ペーストを被接合体に塗布してできる塗膜の膜厚をBとし、

前記塗膜を大気雰囲気下で110℃、20分間乾燥して形成した乾燥塗膜の膜厚をCとし、

嵩高さの指標Hを $H = C / (A \times B)$ としたときに、

Aが0.70以上0.82未満であり、Hが0.75以上1.00以下である加圧接合用銅ペーストを提供するものである。

- [0009] また本発明は、形状及び／又は粒径が異なる２種以上の銅粉と、溶媒とを混合する工程を有する加圧接合用銅ペーストの製造方法であって、
- 前記工程において、前記銅ペーストのせん断速度 10 s^{-1} のときの粘度値が $10 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以上 $200 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以下となるように調整し、且つ、
- 銅ペーストの質量に対する、前記形状及び／又は粒径が異なる２種以上の銅粉の合計質量の比を A とし、
- 前記銅ペーストを被接合体に塗布してできる塗膜の膜厚を B とし、
- 前記塗膜を大気雰囲気下で 110°C 、 20 分間乾燥して形成した乾燥塗膜の膜厚を C とし、
- 嵩高さの指標 H を $H = C / (A \times B)$ としたときに、
- A が 0.70 以上 0.82 未満となり、 H が 0.75 以上 1.00 以下となるように調整する、加圧接合用銅ペーストの製造方法を提供するものである。

発明を実施するための形態

- [0010] 以下、本発明をその好ましい実施形態に基づき説明する。本発明は、２つの被接合体を加圧状態で接合するために用いられる銅ペーストに関するものである。本明細書でいう「加圧」とは、被接合体に対して、 0.001 MPa 以上の圧力を部材の外部から意図的に加えることをいう。したがって、大気圧の変化や被接合体等の部材の自重に起因した圧力負荷のみからなる加圧は、本明細書でいう「加圧」に含まれない。
- [0011] 本発明の銅ペーストに含まれる銅粉は、純銅粉及び銅基合金粉の双方を包含する。銅ペーストに含まれる銅粉は、純銅粉のみでもよく、銅基合金粉のみでもよく、あるいは純銅粉と銅基合金粉との混合粉であってもよい。また銅ペーストには、本発明の効果を損なわない範囲において、銅粉以外の金属粉が少量含まれていてもよい。
- [0012] 本発明の銅ペーストには、形状及び／又は粒径が異なる２種以上の銅粉が含まれることが好ましい。２種以上の銅粉を構成する銅粒子は、その形状に特に制限はなく、球状及び非球状のいずれのものも用いられる。

なお、本発明において2種以上の銅粉が2種以上の球状銅粒子を含む場合には、該2種以上の球状銅粒子は後述する D_{SEM50} が異なるものであり、2種以上の銅粉が2種以上の非球状銅粒子を含む場合には、該2種以上の非球状銅粒子は後述する D_{50} が異なるものである。また、2種以上の銅粉が球状銅粒子と非球状銅粒子とを含む場合には、該球状銅粒子の D_{SEM50} と該非球状銅粒子の D_{50} とが後述する範囲にあることが好ましい。

[0013] 銅粒子が球状であるとは、以下の方法で測定した円形度係数が0.85以上であることをいう。円形度係数は、次の方法で算出される。すなわち、一次粒子の銅粒子の走査型電子顕微鏡像を撮影し、銅粒子の二次元投影像の面積を S とし、周囲長を L としたときに、銅粒子の円形度係数を $4\pi S/L^2$ の式から算出する。

[0014] 一方、銅粒子が非球状であるとは、上述の円形度係数が0.85未満であることをいう。

非球状の具体例としては、扁平状、六面体や八面体等の多面体状、紡錘状、異形状等の形状が挙げられる。本発明においては、2種以上の銅粉のいずれかが扁平状銅粒子であることが好ましく、後述するように扁平状銅粒子及び球状銅粒子を含むことがより好ましい。なお、本発明において扁平状とは、粒子の主面を形成している一対の板面と、これらの板面に直交する側面とを有する形状を指し、板面及び側面はそれぞれ独立して、平面、曲面又は凹凸面でありうるものとする。

2種以上の銅粉を構成する材料として扁平状銅粒子を含ませることによって、本発明の銅ペーストから形成される乾燥塗膜や焼結体に割れが発生することを効果的に抑制できる。また、本発明の銅ペーストを被接合体に塗布し乾燥させた場合に得られる乾燥塗膜の嵩高さを増大させることができる。乾燥塗膜の嵩高さが増大することの利点については後述する。

また、2種以上の銅粉を構成する材料として球状銅粒子を含ませることによって、本発明の銅ペーストの焼結性を高めることができる。

[0015] 銅粉が球状銅粒子からなる場合、該銅粉の粒径は以下の測定方法によって

求められる累積体積50容量%における体積累積粒径 D_{SEM50} と定義する。すなわち、10,000倍以上150,000倍以下の範囲の走査型電子顕微鏡による観察像を用いて輪郭のはっきりした一次粒子の銅粒子を50個以上選んだ各粒子のヘイウッド径を測定する。次いで、得られたヘイウッド径から、粒子が真球であると仮定したときの体積を算出し、該体積の累積体積50容量%における体積累積粒径 D_{SEM50} を求める。

- [0016] 球状銅粒子からなる銅粉の D_{SEM50} は60nm以上300nm以下であることが好ましい。 D_{SEM50} がかかる範囲にあることによって、銅ペーストの過度な焼結や焼結体の割れ等が抑制され、焼結体の強度及び保形性が向上する。この効果をより一層高める観点から、銅粉の D_{SEM50} は70nm以上270nm以下であることがより好ましく、80nm以上250nm以下であることが更に好ましい。

なお、2種以上の銅粉が2種の球状銅粒子を含む場合には、 D_{SEM50} が小さい方の球状銅粒子の D_{SEM50} は上述の範囲であることが好ましく、 D_{SEM50} が大きい方の球状銅粒子の D_{SEM50} は、1 μ m以上10 μ m以下であることが好ましい。

- [0017] 銅粉が非球状銅粒子からなる場合、該銅粉の粒径は、レーザー回折散乱式粒度分布測定法によって求められる累積体積50容量%における体積累積粒径 D_{50} と定義する。例えば以下の方法で行うことができる。すなわち、0.1gの測定試料と分散剤水溶液とを混合し、超音波ホモジナイザ（日本精機製作所製、US-300T）で1分間分散させる。その後、レーザー回折散乱式粒度分布測定装置として、例えばマイクロトラックベル製MT3300EXIIを用いて粒度分布を測定することで D_{50} が算出される。

- [0018] 非球状銅粒子からなる銅粉の D_{50} は0.1 μ m以上50 μ m以下であることが好ましく、0.5 μ m以上40 μ m以下であることがより好ましく、1 μ m以上20 μ m以下であることが更に好ましい。 D_{50} がかかる範囲にあることによって、銅ペーストを塗膜化して焼成した際に緻密に焼結した接合層を得やすくなり、被接合体どうしの高い接合強度と、導電信頼性の向上とを

実現することができる。

なお、前述のとおり2種以上の銅粉が2種以上の非球状銅粒子を含む場合には、各非球状銅粒子の D_{50} は上述の D_{50} の範囲内において異なるものであることが好ましい。

[0019] 前述した非球状銅粒子が扁平状銅粒子である場合には、以下の方法によりその形状を定量的に表すこともできる。

すなわち、扁平状銅粒子は、短軸 b の長さに対する長軸 a の長さの比（以下、これをアスペクト比（ a/b ）ともいう。）が2以上であることが好ましく、5以上であることが好ましい。また、アスペクト比は、80以下であることが好ましく、40以下であることがより好ましい。

また、扁平状銅粒子の長軸 a の長さは1 μm 以上50 μm 以下であることが好ましく、1.5 μm 以上40 μm 以下であることがより好ましく、2 μm 以上30 μm 以下であることが特に好ましい。扁平状銅粒子がかかる形状を有することによって、銅ペーストを塗膜化して焼成した際に緻密に焼結した接合層を得やすくなり、被接合体どうしの高い接合強度と、接合部の信頼性向上とを実現することができる。

[0020] 扁平状銅粒子の長軸 a 及び短軸 b の長さは、以下のようにして求める。すなわち、500倍以上50,000倍以下の範囲で走査型電子顕微鏡による観察像を用いて輪郭のはっきりした扁平状銅粒子の撮影像を取得し、該撮影像を画像解析する。具体的には、板面に水平な方向において360度回転させながら、各二次元投影像における仮想的な外接長方形を考えたときに、その中で外接長方形の一辺が最大となるものについて、その長辺を長軸 a とする。一方、測定対象の粒子を、板面に鉛直な方向において360度回転させながら、各二次元投影像における仮想的な外接長方形を考えたときに、その中で外接長方形の一辺が最大となるものを長辺とした際の、その短辺を短軸 b とする。同様にして、当該粒子を無作為に50個以上選んで長軸 a 及び短軸 b をそれぞれ測定し、これらの算術平均値を求める。画像解析には、例えば画像解析式粒度分布ソフトウェアのマウンテック社製Mac-viewを

用いる。

- [0021] 本発明の銅ペーストに含まれる銅粉は、球状銅粒子と非球状銅粒子とを含む場合、前述の D_{SEM50} が60nm以上300nm以下の銅粉（第1の銅粉）と、 D_{50} が0.1 μ m以上50 μ m以下の銅粉（第2の銅粉）からなることが好ましい。

D_{SEM50} が60nm以上300nm以下である第1の銅粉を含むことによって、銅ペーストの過度な焼結や焼結体の割れ等が抑制され、焼結体の強度及び保形性が向上する。また本発明の銅ペーストが、 D_{50} が0.1 μ m以上50 μ m以下である第2の銅粉を含むことによって、銅ペーストの焼結性を向上させ、また焼成によって得られる焼結体の強度を向上させることができる。

特に第1の銅粉が球状銅粒子からなり、第2の銅粉が扁平状銅粒子からなることが、銅ペーストの焼結性を更に向上させ、また焼成によって得られる焼結体と被接合体との接合強度を更に向上させることができるので好ましい。

- [0022] 本発明の銅ペーストに含まれる銅粉は、その結晶性が制御されたものであることが焼結性の向上の点から好ましい。銅粉の結晶性の程度は、結晶子サイズを尺度として評価できる。具体的には、銅粉を構成する銅粒子の結晶子サイズは、(111)面の結晶子サイズが100nm以下であることが好ましく、70nm以下であることが更に好ましく、50nm以下であることが一層好ましい。結晶子サイズをこの範囲に設定することで、該銅粉を含む銅ペーストを焼成したとき、焼結が低温で発現し、焼結体と被接合体との接合強度を容易に向上させることができる。

- [0023] 本発明の銅ペーストに含まれる2種以上の銅粉のうち少なくとも1種において、高温X線回折で測定される100℃での結晶子サイズをDとし、300℃での結晶子サイズをEとしたとき、 E/D が1.1以上であることが好ましく、1.2以上であることがより好ましい。

E/D が1.1以上であることによって、熱処理時の銅粒子の焼結性が高

く、焼結体と被接合体の強度を十分に確保することができる。

[0024] 上述の銅粒子の結晶子サイズは、高温XRD（粉末X線回折）法に基づきXRD測定によって得られるX線回折パターンを解析し、その後、Scherrerの式によって算出される。

高温XRD法とは、測定試料を加熱できる高温ユニットに試料を設置し、徐々に加熱しながらXRD測定を行う方法である。XRD測定はリガク社製全自動水平型多目的X線回折装置と、検出器として同社製の高速二次元X線検出器PILATUS100K/Rを用いて測定する。X線回折パターンの測定条件は以下のとおりである。

光学系 : 平行ビーム

X線源 : CuK α 線

測定モード : Stillモード $2\theta = 42^\circ$ 固定（上述の二次元検出器にて $2\theta = 38 \sim 48^\circ$ に相当するX線回折強度が得られる）

露光時間 : 60秒

コリメータ : $\Phi 0.2\text{ mm}$

測定雰囲気 : 窒素

測定温度 : 100、300 $^\circ\text{C}$

昇温速度 : 10 $^\circ\text{C}/\text{min}$

各測定温度でXRD測定（露光時間60秒）している間は昇温せずに、測定温度を保持する。

[0025] 次いで、上述のXRD測定によって得られる銅粒子の結晶面（111）のX線回折パターンの半値幅から、下記のScherrerの式により結晶子サイズを算出する。

Scherrerの式 : $D = K\lambda / \beta \cos \theta$

D : 結晶子サイズ

K : Scherrer定数（0.94）

λ : X線の波長

β : 半値幅[rad]

θ : ブラッグ角[rad]

[0026] 本発明の銅ペーストに含まれる2種以上の銅粉が、 D_{SEM50} が60nm以上300nm以下である球状銅粒子と、 D_{50} が0.1 μ m以上50 μ m以下である非球状銅粒子とを含む場合、少なくとも一方の銅粒子が前記のE/Dの値を満足することが好ましく、両銅粒子が前記のE/Dの値を満足することが更に好ましい。

[0027] 以上のとおりの結晶性を有する銅粉は、例えば三井金属鉱業株式会社製CH-O200、CH-O200L1などが挙げられる。

[0028] 銅ペーストに含まれる銅粉を構成する銅粒子は、その表面に有機表面処理剤が施されていてもよい。有機表面処理剤は、銅粒子の過度な凝集と酸化を防ぐための処理剤である。この目的で本発明において好適に用いられるものは、例えば各種の脂肪酸、脂肪族アミン、及び銅への親和性を有する錯化剤である。特に炭素数が6以上18以下、とりわけ炭素数が10以上18以下である飽和又は不飽和脂肪酸あるいは脂肪族アミンを用いることが、銅粒子の過度な凝集を防ぐ点から好ましい。

そのような脂肪酸あるいは脂肪族アミンの具体例としては、安息香酸、ペンタン酸、ヘキサン酸、オクタン酸、ノナン酸、デカン酸、ラウリン酸、パルミチン酸、オレイン酸、ステアリン酸、ペンチルアミン、ヘキシルアミン、オクチルアミン、デシルアミン、ラウリルアミン、オレイルアミン、ステアリルアミンなどが挙げられる。また、銅への親和性を有する錯化剤としては、例えばグリシンなどのアミノ酸、及びジメチルグリオキシムなどが挙げられる。これらの脂肪酸、脂肪族アミン、及び錯化剤は、それぞれ1種を単独で、又は2種以上を組み合わせ用いることができる。

[0029] 本発明の銅ペーストの質量に対する、2種以上の銅粉の合計質量の比Aは、0.60以上0.82未満であることが好ましく、0.65以上0.80以下であることがより好ましく、0.70以上0.78以下であることが更に好ましい。Aを0.60以上に設定することによって、銅ペーストを被接合体に塗布する際に必要な粘度を確保することができ、塗布後の塗膜形状を

好適に保持することができる。また、Aを0.82未満に設定することによって、後述する嵩高さの指標Hと相俟って、高強度且つ接合ムラが生じないような接合が可能になる。

[0030] 銅ペーストに含まれる銅粉は、当該技術分野において知られている様々な方法で製造することができる。例えば湿式還元法、アトマイズ法、電解法などによって銅粉を製造できる。どのような方法を採用するかは、銅粉の粒径や形状等に応じて適宜選択できる。

[0031] 次に、本発明の銅ペーストが含有する溶媒について説明する。溶媒としては、金属粉を含む導電性組成物の技術分野においてこれまで用いられてきたものと同様のものを特に制限なく用いることができる。そのような溶媒としては、例えば一価アルコール、多価アルコール、多価アルコールアルキルエーテル、多価アルコールアリールエーテル、ポリエーテル、エステル類、含窒素複素環化合物、アミド類、アミン類、テルペンアルコール、ケトン、及び飽和炭化水素などが挙げられる。これらの溶媒は、単独で又は2種以上を組み合わせ用いることができる。これらのうち、低反応性であり焼成の際に副反応を起こしにくい点や、後述するその他の成分を良く溶解する点から、ポリエチレングリコール及びポリプロピレングリコール等のポリエーテルや、エチレングリコール、プロピレングリコール、ヘキシレングリコール等の多価アルコールを用いることが好ましい。同様の観点から、溶媒としてポリエチレングリコールを用いる場合、その数平均分子量は、600以下であることが好ましい。

[0032] 溶媒は、その沸点が180℃以上300℃以下であることが好ましく、185℃以上290℃以下であることがより好ましく、190℃以上280℃以下であることが特に好ましい。沸点が180℃以上あることによって、本発明の銅ペーストを被接合体上に塗布したときに、溶媒が被接合体上に十分な時間残留するようになる。このことによって、後述する嵩高さの指標Hを適切な値に設定することが容易になる。一方、沸点が300℃以下であることによって、本発明の銅ペーストを被接合体上に塗布した後、加熱乾燥によ

って溶媒を容易に除去することができる。

[0033] 本発明の銅ペースト中には、上述した2種以上の銅粉及び溶媒以外の、その他の成分を配合することもできる。そのような成分としては、例えばバインダー成分、表面張力調整剤、消泡剤、粘弾性調整剤、還元剤等が挙げられる。他の成分の割合は、その総量が、銅粉100質量部に対して0.01質量部以上10質量部以下であることが好ましく、0.1質量部以上8質量部以下であることがより好ましい。

[0034] 還元剤としては、銅粒子の焼結を促進させるものがよく、例えば一価アルコール、多価アルコール、アミノアルコール、クエン酸、シュウ酸、ギ酸、アスコルビン酸、アルデヒド、ヒドラジン及びその誘導体、ヒドロキシルアミン及びその誘導体、ジチオスレイトール、ホスファイト、ヒドロホスファイト、亜リン酸及びその誘導体等が挙げられる。

[0035] 加圧接合用銅ペーストの粘度はThermo Scientific社製のレオメーターMARS IIIを用いて測定することができる。加圧接合用銅ペーストの塗布性又は印刷性を高める観点から、せん断速度 10 s^{-1} のときの粘度値が $10\text{ Pa}\cdot\text{s}$ 以上 $200\text{ Pa}\cdot\text{s}$ 以下であることが好ましく、 $15\text{ Pa}\cdot\text{s}$ 以上 $200\text{ Pa}\cdot\text{s}$ 以下であることがより好ましい。加圧接合用銅ペーストの粘度の測定条件は以下のとおりである。

測定モード : せん断速度依存性測定

センサー : パラレル型 ($\Phi 20\text{ mm}$)

測定温度 : 25°C

ギャップ : 0.300 mm

せん断速度 : $0.05\sim 120.0\text{ s}^{-1}$

測定時間 : 2分

加圧接合用銅ペーストのせん断速度を上述の範囲に設定するには、銅粉及び溶媒を混合する工程において各銅粉の粒径、銅粉の濃度、溶媒の種類などを調整すればよい。

[0036] 本発明の加圧接合用銅ペーストは、銅ペースト中に含まれる2種以上の銅

粉の含有量と、銅ペーストを被接合体に塗布してできる塗膜の膜厚と、該塗膜を乾燥してできる乾燥塗膜の膜厚と、が所定の関係を有していることを特徴の一つとしている。詳細には、銅ペーストの質量に対する、2種以上の銅粉の合計質量の比をAとし、2種以上の銅粉と溶媒とを少なくとも含む加圧接合用銅ペーストを被接合体に塗布してできる塗膜の膜厚をB (μm) とし、該塗膜を大気雰囲気下で110℃、20分間乾燥して形成した乾燥塗膜の膜厚をC (μm) とし、嵩高さの指標Hを $H = C / (A \times B)$ とする。このとき、Hは好ましくは0.75以上1.00以下である。

[0037] 本発明の加圧接合用銅ペーストが上述した物性を有していることによって、加圧接合用銅ペーストを基板等の被接合体に塗布した後に乾燥させて形成した乾燥塗膜は、嵩高な構造を有する緩衝材のような層となる。このような乾燥塗膜を介して被接合体どうしを加圧接合させることによって、接合対象となる被接合体の厚みのばらつきの影響を受けにくい状態で被接合体どうしを十分に接合することができる。その結果、例えば、被接合体が大面積の場合や、厚みの薄い半導体素子などの被接合体を加圧接合させる場合であっても、被接合体にダメージを与えることなく被接合体どうしを密着性が高く且つ安定的に接合できるとともに、接合強度が高いものとなる。

[0038] 本発明の加圧接合用銅ペーストの塗布方法は特に限定されないが、例えば、スクリーン印刷法、グラビア印刷法、ディスペンス印刷法、リバースコート法及びドクターブレード法を挙げることができる。

[0039] 上述した乾燥前後の塗膜の膜厚B及びCは、以下の方法で測定することができる。

膜厚B及びCは、例えば干渉顕微鏡等を用いることで、プローブ接触による膜厚変化の影響を受けずに、非接触状態で測定することができる。具体的には、加圧接合用銅ペーストを6mm四方の正方形の寸法となるように平坦な基板（厚み2mm）の中央に塗布して塗膜とする。形成する塗膜の膜厚Bに特に制限はないが一般に15 μm 以上800 μm 以下、更には15 μm 以上300 μm 以下とすることが好ましく、特には15 μm 以上150 μm 以

下とすることが好ましい。

塗膜が一方の面に形成された基板について、非接触式表面プロファイラを用い、基板表面から塗膜最大高さまで高さ方向にスキャンし、スキャン結果をラインプロファイル解析することにより、塗膜の膜厚B及びCを測定することができる。測定方法の詳細は実施例にて後述する。

[0040] 嵩高さの指標Hを調整する方法としては、例えば、銅粒子の種類を適切に選択することが挙げられる。詳細には、銅ペーストに扁平状銅粒子を含め、更にその扁平状銅粒子のアスペクト比を大きくすると、嵩高さの指標Hが増加する傾向にある。また、溶媒の種類を変更することによっても含まれている銅粒子を意図的に凝集させることで嵩高さの指標Hが増加させることができる。

[0041] 乾燥塗膜の膜厚Cは、乾燥前の塗膜の膜厚Bよりも小さいことを条件として、 $5\mu\text{m}$ 以上 $500\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $10\mu\text{m}$ 以上 $400\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましく、 $15\mu\text{m}$ 以上 $300\mu\text{m}$ 以下であることが更に好ましく、 $15\mu\text{m}$ 以上 $130\mu\text{m}$ 以下であることが特に好ましい。乾燥前後の塗膜の膜厚は、例えばこれらの膜を形成するために用いられる組成物に含まれる銅粉の形状やその含有量、溶媒の種類やその含有量、あるいはその他の成分の種類やその含有量などによって適宜調整することができる。

[0042] なお、嵩高さの指標Hを算出するにあたり、塗膜の乾燥条件として 110°C 、20分を採用した理由は、被接合体の酸化を抑制しつつ効果的に溶媒を揮発させるためである。

[0043] 本発明の加圧接合用銅ペーストは、被接合体と他の被接合体との接合に用いることができる。特に、本発明の加圧接合用銅ペーストを用いることで得られる高い接合強度から、大面積の被接合体や、薄型の被接合体の接合に好適に用いることができる。例えば、乾燥塗膜の膜厚Cに対して10倍以下の厚みを有する被接合体の接合に用いることができる。薄型の被接合体の接合に好適に用いることができるという本発明の加圧接合用銅ペーストの特徴を

より活かすためには、被接合体の厚みは乾燥塗膜の膜厚Cの10倍以下であることがより好ましく、8倍以下であることが特に好ましい。また、十分な接合強度を確保するためには、乾燥塗膜の膜厚Cの1倍以上の厚みを有する被接合体の接合に用いることが好ましい。

[0044] 被接合体の中でも半導体素子と基板とを本発明の加圧接合用銅ペーストで接合することによって、すなわちダイアタッチによって半導体装置とすることができ、半導体装置の製造方法においては、被接合体、本発明の加圧接合用銅ペースト、及び他の被接合体がこの順に形成されてなる積層体を用いし、加圧接合用銅ペーストを、0.1MPa以上の圧力を印加した状態で焼成する。この製造方法において、被接合体の少なくとも一方が半導体素子を含んでいる。例えば被接合体の一方が半導体素子であり、もう一方が基板である。

特に、上述のように本発明の加圧接合用銅ペーストは薄型の被接合体の接合に適するため、基板と接合する半導体素子の厚みは0.25mm以下であることが好ましく、0.23mm以下であることがより好ましく、0.20mm以下であることが特に好ましい。一方、十分な接合強度を確保するためには、基板と接合する半導体素子の厚みは0.03mm以上であることが好ましい。

[0045] 本発明の加圧接合用銅ペーストは大面積の被接合体の接合に好適に用いることができるため、例えばサブストレートアタッチに本発明のペーストを用いることができる。具体的には、25mm²超の面積を有する半導体素子が実装された第1の基板と、第2の基板と、を本発明の加圧接合用銅ペーストで接合して半導体装置とすることができる。本発明の加圧接合用銅ペーストの、大面積の被接合体の接合に好適に用いることができるという特徴を活かす観点からは、第1の基板に実装された半導体素子の面積は30mm²超であることがより好ましい。

[0046] 第1の基板及び第2の基板の種類に特に制限はない。一般的には、第1の基板及び第2の基板はいずれも、それらの接合対象面に金属を含むことが好

ましい。例えば第1の基板及び第2の基板の少なくとも一方として、金属からなる面を有する部材を用いることができる。なお、ここでいう「金属」とは、他の元素と化合物を形成していない金属そのもの、又は2種類以上の金属の合金のことである。このような金属としては、例えば銅、銀、金、アルミニウム、パラジウム、ニッケル又はそれらの2種以上の組み合わせからなる合金が挙げられる。

[0047] 第1の基板及び第2の基板のうちの少なくとも一方が、金属からなる面を有する部材である場合、該金属からなる面は1種の金属から構成されていてもよく、あるいは2種以上の金属から構成されていてもよい。2種以上の金属から構成されている場合には、当該面は合金であってもよい。金属からなる面は一般には平面であることが好ましいが、場合によっては曲面であってもよい。

[0048] 第1の基板や第2の基板としては、例えば、セラミックス又は窒化アルミニウム板の表面に銅等の金属層を有する絶縁基板等が挙げられる。第2の基板は、放熱板であってもよく、また放熱板であることが好ましい。

[0049] 本発明の銅ペーストを用いた2つの被接合体の接合条件は例えば以下のとおりである。

加熱温度は200℃以上350℃以下であることが好ましく、210℃以上330℃以下であることが更に好ましく、220℃以上300℃以下であることが一層好ましい。

圧力は0.1MPa以上30MPa以下であることが好ましく、1MPa以上25MPa以下であることが更に好ましく、3MPa以上20MPa以下であることが一層好ましい。

[0050] 雰囲気は、不活性雰囲気、還元性雰囲気又は酸化性雰囲気とすることができる。不活性雰囲気としては、例えば窒素ガス雰囲気、アルゴンやネオン等の希ガス雰囲気などが挙げられる。経済性の観点からは窒素ガス雰囲気を用いることが好ましい。還元性雰囲気としては、例えば水素ガス雰囲気や、不活性ガスで希釈した水素ガス雰囲気などが挙げられる。酸化性雰囲気として

は例えば大気雰囲気などが挙げられる。

前述の加熱時間は、前述の圧力の印加状態にもよるが0.5分以上20分以下であることが好ましく、1分以上15分以下であることがより好ましい。また、前述の加圧時間は、0.5分以上20分以下であることが好ましく、1分以上15分以下であることがより好ましい。

[0051] 本発明の銅ペーストを用いて得られた接合体、例えば上述した半導体装置などにおいては、2つの被接合体の接合強度が十分に高く、しかも接合ムラの発生が抑制される。

[0052] 上述した実施形態に関し、本発明は更に以下の加圧接合用銅ペースト、半導体装置、加圧接合用銅ペーストの製造方法及び半導体装置の製造方法を開示する。

〔1〕 形状及び／又は粒径が異なる2種以上の銅粉と、溶媒とを少なくとも含む加圧接合用銅ペーストであって、

前記銅ペーストの25℃における粘度が $10\text{ Pa}\cdot\text{s}$ 以上 $200\text{ Pa}\cdot\text{s}$ 以下であり、

前記銅ペーストの質量に対する、前記2種以上の銅粉の合計質量の比をAとし、

前記銅ペーストを被接合体に塗布してできる塗膜の膜厚をBとし、

前記塗膜を大気雰囲気下で110℃、20分間乾燥して形成した乾燥塗膜の膜厚をCとし、

嵩高さの指標Hを $H = C / (A \times B)$ としたときに、

Aが0.60以上0.82未満であり、Hが0.75以上1.00以下である加圧接合用銅ペースト。

〔2〕 前記形状及び／又は粒径が異なる2種以上の銅粉が球状銅粒子と非球状銅粒子を含むものであり、

前記球状銅粒子の走査型電子顕微鏡の画像解析により測定される累積体積50容量%における体積累積粒径 D_{SEM50} が60nm以上300nm以下であり、

前記非球状銅粒子のレーザー回折散乱式粒度分布測定法によって求められる累積体積50容量%における体積累積粒径 D_{50} が $0.1\mu\text{m}$ 以上 $50\mu\text{m}$ 以下である〔1〕に記載の加圧接合用銅ペースト。

〔3〕 前記非球状銅粒子が扁平状銅粒子であり、

走査型電子顕微鏡の画像解析により測定される、前記扁平状銅粒子の長軸 a の長さが $1\mu\text{m}$ 以上 $50\mu\text{m}$ 以下である〔2〕に記載の加圧接合用銅ペースト。

〔4〕 前記非球状銅粒子が扁平状銅粒子であり、

前記扁平状銅粒子のアスペクト比が2以上80以下である〔2〕又は〔3〕に記載の加圧接合用銅ペースト。

〔5〕 前記2種以上の銅粉のうち少なくとも1種において、高温X線回折で測定される 100°C での結晶子サイズを D とし、 300°C での結晶子サイズを E としたとき、 E/D が1.1以上である〔1〕ないし〔4〕のいずれかに記載の加圧接合用銅ペースト。

〔6〕 前記乾燥塗膜の膜厚 C の10倍以下の厚みを有する被接合体の接合に用いる〔1〕ないし〔5〕のいずれかに記載の加圧接合用銅ペースト。

〔7〕 前記溶媒の沸点が 180°C 以上である、〔1〕ないし〔6〕のいずれかに記載の加圧接合用銅ペースト。

〔8〕 厚みが 0.25mm 以下の半導体素子と基板とを〔1〕ないし〔7〕のいずれかに記載の加圧接合用銅ペーストで接合してなる半導体装置。

〔9〕 25mm^2 超の面積を有する半導体素子を実装された第1の基板と、第2の基板と、を〔1〕ないし〔7〕のいずれかに記載の加圧接合用銅ペーストで接合してなる半導体装置。

〔10〕 被接合体、〔1〕ないし〔7〕のいずれかに記載の加圧接合用銅ペースト、及び他の被接合体がこの順に形成されてなる積層体を用意し、前記加圧接合用銅ペーストを、 0.1MPa 以上の圧力を印加した状態で焼成する工程を有する半導体装置の製造方法であって、

前記被接合体の少なくとも一方が半導体素子を含む、半導体装置の製造方

法。

〔11〕 形状及び／又は粒径が異なる２種以上の銅粉と、溶媒とを混合する工程を有する加圧接合用銅ペーストの製造方法であって、

前記工程において、前記銅ペーストのせん断速度 10 s^{-1} のときの粘度値が $10 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以上 $200 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以下となるように調整し、且つ、

前記銅ペーストの質量に対する、前記形状及び／又は粒径が異なる２種以上の銅粉の合計質量の比を A とし、

前記銅ペーストを被接合体に塗布してできる塗膜の膜厚を B とし、

前記塗膜を大気雰囲気下で 110°C 、 20 分間乾燥して形成した乾燥塗膜の膜厚を C とし、

嵩高さの指標 H を $H = C / (A \times B)$ としたときに、

A が 0.70 以上 0.82 未満となり、 H が 0.75 以上 1.00 以下となるように調整する、加圧接合用銅ペーストの製造方法

実施例

[0053] 以下、実施例により本発明を更に詳細に説明する。しかしながら本発明の範囲は、かかる実施例に制限されない。

[0054] 〔実施例 1〕

(銅ペーストの調製)

銅粉 1 ($D_{\text{SEM}50}$ が $0.14 \mu\text{m}$ の球状銅粒子からなる銅粉) 及び銅粉 2 (D_{50} が $7.1 \mu\text{m}$ 、長軸 a の長さが $6.2 \mu\text{m}$ 、アスペクト比が 22 の扁平状銅粒子からなる銅粉) を銅粉 1 : 銅粉 2 = $70 : 30$ (質量比) の割合で混合した銅粉混合物、還元剤 (アミノアルコールとしてビス (2-ヒドロキシエチル) イミノトリス (ヒドロキシメチル) メタン (以下「BIS-TRIS」ともいう。))、並びに溶媒 (ポリエチレングリコール 300 及びヘキシレングリコール) を混合して銅ペーストを調製した。各成分の混合割合は表 1 に記載のとおりとした。銅粉 1 の E/D は 1.1 であった。銅粉 2 の E/D は 1.0 であった。

調製した銅ペーストにおいて、銅ペーストの質量に対する、銅粉混合物の

質量の比Aは0.76であった。また、せん断速度 10 s^{-1} における銅ペーストの粘度は 25°C において $33\text{ Pa}\cdot\text{s}$ であった。

[0055] (接合構造の製造)

パッケージ用銅基板(厚み 2 mm)の中央に、スクリーン印刷によって銅ペーストを塗布して 6 mm 四方の正方形の印刷塗膜を形成した(以下これを「印刷塗膜形成体」ともいう)。この塗膜を大気雰囲気下で 110°C 、 20 分で乾燥させて液媒体を除去し、乾燥塗膜を得た(以下これを「乾燥塗膜形成体」ともいう)。

[0056] 次いで、乾燥塗膜の上に、シリコンチップ($5\text{ mm}\times 5\text{ mm}$ 、厚み 0.2 mm 、銅ペーストとの被着面として銀めっき層を有する)を載置した。この状態下で 15 MPa の圧力を加え、窒素雰囲気下にて 300°C で 10 分間にわたり焼成を行い、接合構造を作製した。

[0057] [実施例2]

銅粉2として D_{50} が $4.9\text{ }\mu\text{m}$ 、長軸aの長さが $4.5\text{ }\mu\text{m}$ 、アスペクト比が1.3の扁平状銅粒子からなる銅粉を用いた。銅粉2の E/D は1.0であった。更に、溶媒にジエチレングリコールジブチルエーテルを加え、銅粉の混合物 100 質量部に対する各溶媒の含有割合を表1に示すとおりとした。それら以外は、実施例1と同様にして銅ペーストを作製した。せん断速度 10 s^{-1} における銅ペーストの粘度は 25°C において $19\text{ Pa}\cdot\text{s}$ であった。実施例1と同様の条件で乾燥塗膜を作製し、実施例1と同様の条件で接合構造を作製した。

[0058] [比較例1]

銅粉2を D_{50} が $4.9\text{ }\mu\text{m}$ 、長軸aの長さが $4.5\text{ }\mu\text{m}$ 、アスペクト比が1.3の扁平状銅粒子からなる銅粉に変更し、銅粉の混合物 100 質量部に対する各溶媒の含有割合を表1に示すとおりとした他は、実施例1と同様にして銅ペーストを作製した。銅ペーストの質量に対する、銅粉混合物の質量の比Aは0.82であり、せん断速度 10 s^{-1} における加圧接合用銅ペーストの粘度は 25°C において $28\text{ Pa}\cdot\text{s}$ であった。実施例1と同様の条件で乾

乾燥塗膜を作製し、実施例 1 と同様の条件で接合構造を作製した。

[0059] 〔比較例 2〕

銅粉 2 を D_{50} が $4.9 \mu\text{m}$ 、長軸 a の長さが $4.5 \mu\text{m}$ 、アスペクト比が 1.3 の扁平状銅粒子からなる銅粉に変更した他は、実施例 1 と同様にして銅ペーストを作製した。せん断速度 10 s^{-1} における加圧接合用銅ペーストの粘度は 25°C において $10 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ であった。実施例 1 と同様の条件で乾燥塗膜を作製し、実施例 1 と同様の条件で接合構造を作製した。

[0060] (嵩高さの評価)

各実施例及び各比較例について、印刷塗膜の膜厚 B 及び乾燥塗膜の膜厚 C を、非接触式表面プロファイラ (Zygo 社製 ZeGage Pro) を用いて測定した。対物レンズ 1.4 倍、ズームレンズ 1.0 倍を用い、測定視野 $13.9 \text{ mm} \times 10.4 \text{ mm}$ にて観察を行い、各塗膜表面と基板表面の高さの差から各塗膜の膜厚を測定した。

すなわち、測定モードにし対象測定物 (実施例及び比較例の印刷塗膜形成体及び乾燥塗膜形成体) をステージに置いた後、塗膜が略中央の位置になるよう縦横方向を調節し、次いで対物レンズを高さ方向に動かし基板表面にピントを合わせた。高さ方向のスキャン開始位置を Bottom、スキャン長を $500 \mu\text{m}$ に設定し、水平方向に縦横 $6.3 \mu\text{m}$ ピッチで測定した。

得られた測定結果について、ラインプロファイル解析を行った。ラインは塗膜の対角線上に引き、ライン両端はそれぞれ基板表面 (塗膜していない領域) を約 1 mm 含むようにした。ライン両端の高さを合わせる処理を行うことにより、基板表面の平行出しを行った。塗膜表面と基板表面の高さの差から、塗膜の膜厚を得た。基板表面の高さ測定位置は、塗膜の端から 0.5 mm の位置とした。塗膜表面の高さ測定位置は塗膜の中央点とし、中央点は正方形塗膜に引いた 2 本の対角線の交点とした。得られた印刷塗膜の膜厚 B、乾燥塗膜の膜厚 C、及び銅ペースト中に占める銅粉の合計質量の比 A から、嵩高さの指標 H を以下の式にて算出した。

$$H = C / (A \times B)$$

各実施例及び各比較例について、得られた膜厚B、C及び嵩高さの指標Hの値を表2に示す。

[0061] (チップに対する焼結銅の接合率の評価)

各実施例及び各比較例で製造した接合構造について、超音波映像装置(日立ハイテク製 FineSAT FS300 III)にて周波数75MHzのプロブを使用し、水平方向に縦横20 μ mピッチで反射法にてチップと焼結銅の接合界面を分析し、超音波探傷像(SAT像)を得た。接合層の剥離状態を観察する際、ゲインの値を25~35dBの値にした後、Sゲートのピーク位置が銅基板の表面となるようSゲートのディレイと幅を調節した。接合層の観察範囲を指定するためFゲートのディレイを調整し、幅を1.5波長分のピーク幅に設定した。観察ピークの振幅が最大となるようプロブのZ軸座標を調整し、観察を行った。観察像のコントラストはオート機能を用いて調節した。

得られたSAT像のうち、チップ接合領域部分について画像処理ソフトウェア(Image-J)を用いて二値化し、観察した面積中における黒色の面積割合(接合率；%)を算出した。すなわち、Image-Jを起動した後、Analyze-Set measurementを選択し、Area、Area fraction、Limit to Thresholdにチェックを入れた。その後、File-Openを選択し、接合率を算出する画像データを開いた後に、画像中のシリコンチップ搭載部の範囲(A)を指定した。次いで、Edit-Copy to systemを選択し、指定した範囲(A)をコピーした後、File-New-System clipboardを選択して指定した範囲(A)の画像を貼り付けた。その後、接合部を明確にするために、Image-Type-8bitを選択し、画像を変換した後、Image-Adjust-Thresholdを選択して画像の閾値を100に調整した。そして、調整後の画像におけるシリコンチップ搭載部の範囲(A)内に存在する黒色範囲(B)を指定した。前記黒色範囲(B)は閾値が100以下の範囲であり、シリコンチップ接合部と

みなすことができる。接合率（％）は（Ｂ）の面積／（Ａ）の面積×１００で算出される。各実施例及び各比較例について、得られた接合率（％）を表２に示す。

[0062]

[表1]

銅ペーストの組成									粘度 @10s ⁻¹ , 25°C (Pa・s)
銅粉混合物				還元剤		溶媒			
銅粉 1	銅粉 2	含有割合 (質量部)	種類	含有割合 (質量部)	種類	含有割合 (質量部)			
実施例 1	球状 (混合物中 70質量%)	扁平状 (混合物中 30質量%)	100	BIS-TRIS	0.1	ポリエチレングリコール300	1.9	33	
						ヘキシレングリコール	29.6		
実施例 2	球状 (混合物中 70質量%)	扁平状 (混合物中 30質量%)	100	BIS-TRIS	0.1	ポリエチレングリコール300	1.9	19	
						ヘキシレングリコール	20		
							ジエチレングリコールジブチルエーテル		9.6
比較例 1	球状 (混合物中 70質量%)	扁平状 (混合物中 30質量%)	100	BIS-TRIS	0.1	ポリエチレングリコール300	1.9	28	
						ヘキシレングリコール	20		
比較例 2	球状 (混合物中 70質量%)	扁平状 (混合物中 30質量%)	100	BIS-TRIS	0.1	ポリエチレングリコール300	1.9	10	
						ヘキシレングリコール	29.6		

[0063] [表2]

	銅ペースト中の 銅粉質量比 A	印刷塗膜の膜厚 B (μm)	乾燥塗膜の膜厚 C (μm)	嵩高さの指標 H	接合率 (%)
実施例 1	0.76	116	82	0.93	98.1
実施例 2	0.76	113	66	0.76	97.9
比較例 1	0.82	123	86	0.85	29.1
比較例 2	0.76	109	58	0.70	18.1

[0064] 表 2 に示す結果から明らかなとおり、各実施例で得られた銅ペーストを用いて製造された接合体は、被接合体が薄い場合や大面積の場合であっても、該被接合体が高強度で接合されることが分かる。

産業上の利用可能性

[0065] 本発明によれば、被接合体が薄い場合や大面積の場合であっても、高強度且つ接合ムラが生じない接合が可能な加圧接合用銅ペーストが提供される。

請求の範囲

- [請求項1] 形状及び／又は粒径が異なる２種以上の銅粉と、溶媒とを少なくとも含む加圧接合用銅ペーストであって、
- 前記銅ペーストの 25°C における粘度が $10\text{Pa}\cdot\text{s}$ 以上 $200\text{Pa}\cdot\text{s}$ 以下であり、
- 前記銅ペーストの質量に対する、前記２種以上の銅粉の合計質量の比を A とし、
- 前記銅ペーストを被接合体に塗布してできる塗膜の膜厚を B とし、
- 前記塗膜を大気雰囲気下で 110°C 、 20 分間乾燥して形成した乾燥塗膜の膜厚を C とし、
- 嵩高さの指標 H を $H=C/(A\times B)$ としたときに、
- A が 0.60 以上 0.82 未満であり、 H が 0.75 以上 1.00 以下である加圧接合用銅ペースト。
- [請求項2] 前記形状及び／又は粒径が異なる２種以上の銅粉が球状銅粒子と非球状銅粒子を含むものであり、
- 前記球状銅粒子の走査型電子顕微鏡の画像解析により測定される累積体積 50 容量%における体積累積粒径 $D_{\text{SEM}50}$ が 60nm 以上 300nm 以下であり、
- 前記非球状銅粒子のレーザー回折散乱式粒度分布測定法によって求められる累積体積 50 容量%における体積累積粒径 D_{50} が $0.1\mu\text{m}$ 以上 $50\mu\text{m}$ 以下である請求項１に記載の加圧接合用銅ペースト。
- [請求項3] 前記非球状銅粒子が扁平状銅粒子であり、
- 走査型電子顕微鏡の画像解析により測定される、前記扁平状銅粒子の長軸 a の長さが $1\mu\text{m}$ 以上 $50\mu\text{m}$ 以下である請求項２に記載の加圧接合用銅ペースト。
- [請求項4] 前記非球状銅粒子が扁平状銅粒子であり、
- 前記扁平状銅粒子のアスペクト比が 2 以上 80 以下である請求項２又は３に記載の加圧接合用銅ペースト。

- [請求項5] 前記2種以上の銅粉のうち少なくとも1種において、高温X線回折で測定される100℃での結晶子サイズをDとし、300℃での結晶子サイズをEとしたとき、 E/D が1.1以上である請求項1ないし3のいずれか一項に記載の加圧接合用銅ペースト。
- [請求項6] 前記乾燥塗膜の膜厚Cの10倍以下の厚みを有する被接合体の接合に用いる請求項1ないし3のいずれか一項に記載の加圧接合用銅ペースト。
- [請求項7] 前記溶媒の沸点が180℃以上である、請求項1ないし3のいずれか一項に記載の加圧接合用銅ペースト。
- [請求項8] 厚みが0.25mm以下の半導体素子と基板とを請求項1ないし3のいずれか一項に記載の加圧接合用銅ペーストで接合してなる半導体装置。
- [請求項9] 25mm²超の面積を有する半導体素子が実装された第1の基板と、第2の基板と、を請求項1ないし3のいずれか一項に記載の加圧接合用銅ペーストで接合してなる半導体装置。
- [請求項10] 被接合体、請求項1ないし3のいずれか一項に記載の加圧接合用銅ペースト、及び他の被接合体がこの順に形成されてなる積層体を用意し、前記加圧接合用銅ペーストを、0.1MPa以上の圧力を印加した状態で焼成する工程を有する半導体装置の製造方法であって、
前記被接合体の少なくとも一方が半導体素子を含む、半導体装置の製造方法。
- [請求項11] 形状及び／又は粒径が異なる2種以上の銅粉と、溶媒とを混合する工程を有する加圧接合用銅ペーストの製造方法であって、
前記工程において、前記銅ペーストのせん断速度10s⁻¹のときの粘度値が10Pa・s以上200Pa・s以下となるように調整し、且つ、
前記銅ペーストの質量に対する、前記形状及び／又は粒径が異なる2種以上の銅粉の合計質量の比をAとし、

前記銅ペーストを被接合体に塗布してできる塗膜の膜厚を B とし、
前記塗膜を大気雰囲気下で 110℃、20 分間乾燥して形成した乾燥塗膜の膜厚を C とし、
嵩高さの指標 H を $H = C / (A \times B)$ としたときに、
A が 0.60 以上 0.82 未満となり、H が 0.75 以上 1.00 以下となるように調整する、加圧接合用銅ペーストの製造方法。