

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5281747号

(P5281747)

(45) 発行日 平成25年9月4日 (2013.9.4)

(24) 登録日 平成25年5月31日 (2013.5.31)

(51) Int. Cl.

F I

C 2 2 C 1/10 (2006.01)**B 2 2 D** 19/14 (2006.01)**B 2 2 F** 3/14 (2006.01)**B 2 2 F** 3/15 (2006.01)**B 2 2 F** 7/00 (2006.01)

C 2 2 C 1/10 E

C 2 2 C 1/10 G

B 2 2 D 19/14 A

B 2 2 F 3/14 D

B 2 2 F 3/15 M

請求項の数 14 (全 20 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2006-533975 (P2006-533975)
 (86) (22) 出願日 平成16年9月23日 (2004.9.23)
 (65) 公表番号 特表2007-518875 (P2007-518875A)
 (43) 公表日 平成19年7月12日 (2007.7.12)
 (86) 国際出願番号 PCT/US2004/031285
 (87) 国際公開番号 W02005/035808
 (87) 国際公開日 平成17年4月21日 (2005.4.21)
 審査請求日 平成19年8月3日 (2007.8.3)
 審判番号 不服2012-2202 (P2012-2202/J1)
 審判請求日 平成24年2月5日 (2012.2.5)
 (31) 優先権主張番号 10/677,454
 (32) 優先日 平成15年10月2日 (2003.10.2)
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

(73) 特許権者 511013430
 ナノ マテリアルズ インターナショナル
 コーポレーション
 アメリカ合衆国 アリゾナ州 85756
 ツーソン サウス コルブ ロード 7
 960
 (74) 代理人 100101281
 弁理士 辻永 和徳
 (72) 発明者 ピッカード シオン エム
 アメリカ合衆国 アリゾナ州 85749
 ツーソン ディアクリーク プレイス
 2318 エヌ

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 高熱伝導率金属マトリックス複合材料

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

その内部に分散されたダイヤモンド粒子を含む金属マトリックスから構成される複合材料であって、該ダイヤモンド粒子が、その表面に化学的に結合したベータ S i C の層の存在により特徴づけられる複合材料であって、300 W/m. K. よりも大きな熱伝導率を有し、該金属マトリックスがアルミニウム、マグネシウム、または銅、または該金属の1つ以上のアロイであり、該ダイヤモンド粒子のサイズが50-150ミクロンの範囲であり、該ベータ S i C の炭素はダイヤモンド由来である、複合材料。

【請求項 2】

S i C 層がガス状 S i 源とそれぞれのダイヤモンド粒子との化学的気相反応により形成されるか、または S i 粉末、ダイヤモンド粉末、およびバインダーとのプリフォームを加熱し、ここで該バインダーの目的は S i をダイヤモンド表面に接触して保持することであり、該プリフォームが表面転化反応が起こるのに十分な温度に加熱されることにより形成される、表面転化コーティングまたは層で構成される、請求項 1 記載の複合材料。

【請求項 3】

請求項 1 または 2 記載の複合材料で形成された基体に結合された L D M O S チップを含む電子パッケージ。

【請求項 4】

ダイヤモンド粉末を薄い S i C 表面コーティングでコーティングすることを含む請求項 1 または 2 記載の複合材料の製造方法であって、ダイヤモンド粉末を含むダイヤモンド粒子

10

20

とガス状 Si 含有種とを、ガス状 Si 含有種とダイヤモンド粉末を含む固体粒子との間に化学的気相反応が生ずる条件下で接触させることを含む方法。

【請求項 5】

Si のガス状種が、ガス状 SiO を形成する SiO₂ の還元により生成される、請求項 4 記載の方法。

【請求項 6】

ダイヤモンド粉末を含む粒子を薄いその場 (in-situ) SiC コーティングでコーティングすることを含む請求項 1 または 2 記載の複合材料の製造方法であって、該コーティングは Si 含有プレセラミックポリマー層をダイヤモンド粒子上に堆積させ、ダイヤモンド表面の SiC への転化を開始させるのに適当な高い温度に、ダイヤモンド構造がグラファイトに転化するよりも短い時間で加熱することにより SiC に転化させることにより得られる方法。

10

【請求項 7】

ダイヤモンド粉末を含む粒子を薄い SiC 表面転化コーティングでコーティングすることを含む請求項 1 または 2 記載の複合材料の製造方法であって、反応性ガス状混合物をダイヤモンド粒子の上を通過させ、反応性ガスがシリコン含有種を生成し、シリコン含有種とダイヤモンドの間に反応を起こす温度に、ダイヤモンド構造がグラファイトに転化するよりも短い時間で加熱することによりコーティングを得る方法。

【請求項 8】

薄膜 SiC 表面コーティングでダイヤモンド粉末粒子をコーティングすることを含む請求項 1 または 2 記載の複合材料の製造方法であって、フェノール樹脂、Si 粉末、およびダイヤモンド粉末のプリフォームを表面転化反応が起こるのに十分な温度に加熱することを含む方法。

20

【請求項 9】

以下の工程を含む請求項 1 または 2 記載の複合材料の製造方法：

(a) ダイヤモンド粒子をガスの Si がダイヤモンド粒子の表面の炭素と反応するのに十分な温度に加熱し、それによりダイヤモンド粒子の表面層を SiC の薄層に転化する、ダイヤモンド粒子とガス状の Si 含有種を接触させることにより薄い SiC の層を有するダイヤモンド粉末を含むそれぞれのダイヤモンド粒子を提供する工程、

(b) SiC 層を有するダイヤモンド粒子を、スクイーズキャスト装置のダイキャビティ中に配置する工程、および

30

(c) 加圧スクイーズキャストにより、マトリックスを形成するために選択された金属の溶融物を、コーティングされたダイヤモンド粉末を有するダイキャビティの内部に、ダイヤモンド粉末が溶融金属により加圧インフィルトレーションされるに適当な熱および温度条件で導入し、ダイを冷却する工程。

【請求項 10】

以下の工程を含む請求項 1 または 2 記載の複合材料の製造方法：

(a) ダイヤモンド粒子の炭素表面と、ガス状の Si 含有種とを、SiC を形成するのに十分な温度で反応させることにより、SiC の薄い表面層を有するダイヤモンド粉末を含むそれぞれの粒子を提供する工程、

40

(b) 上記の SiC 層を有するダイヤモンド粒子とマトリックスを形成するために選択された金属粉末との均質混合物を形成する工程、および

(c) 上記の SiC 表面層を有するダイヤモンド粒子と金属粉末との混合物を、複合材料を高密度にするのに十分な温度、圧力、およびサイクル時間でホットプレスする工程。

【請求項 11】

以下の工程を含む請求項 1 または 2 記載の複合材料の製造方法：

ダイヤモンド粒子の表面と SiC 源とを、ダイヤモンド粒子の表面に SiC が堆積されるような条件下で接触させる工程；

堆積された SiC が、それが堆積しているダイヤモンド粒子の内部に拡散するのに適当な温度および時間に供し拡散を生じさせ、それによりダイヤモンド粒子に結合したベータ

50

S i Cの表面層を形成する工程；

複数の該粒子を熔融状態の金属で覆い包むことにより複合材料構造物を形成する工程；
冷却により熔融状態の金属が堅くなり固体化した際にベータS i Cの表面層を有する粒子が該金属マトリックス内に分散するようにされる工程。

【請求項12】

S i C源がS i C有機金属ガスである、請求項1記載の方法。

【請求項13】

ダイヤモンド粒子が非酸化性雰囲気中に囲まれ、その後S i C有機金属ガスと接触され、ダイヤモンド粒子が1600℃に1時間加熱され、S i C拡散を起こす、請求項1記載の方法。

【請求項14】

以下の工程を含む請求項1または2記載の複合材料の製造方法：

d. フェノール樹脂、S i粉末、およびダイヤモンド粉末の混合物を調製し、該混合物をプレスしてプリフォームを形成し、該プリフォームをS i粉末とそれぞれのダイヤモンド粒子の炭素表面との間に化学反応が起こるに十分な温度に加熱し、それぞれのダイヤモンド粒子の上に薄いS i C表面転化層を形成することにより、薄いS i Cの層を有するダイヤモンド粉末を含むダイヤモンド粒子を提供する工程、

e. S i C層を有するダイヤモンド粒子を、スクイーズキャスティング装置のダイキャビティー中に配置する工程、

f. マトリックスを形成するために選択された金属の熔融物を、コーティングされたダイヤモンド粉末を含むダイキャビティー内に、ダイヤモンド粉末を熔融金属により加圧インフィルトレーションするのに有効な熱および圧力の下で導入し、ダイを冷却する工程。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、一般に、非常に高い熱伝導率の金属マトリックス複合材料構造物に関し；また、特に、化学的気相反応プロセス（chemical vapor reaction process）によってその表面に形成された、ベータ-S i Cの薄い転化表面層（conversion surface layer）を有するダイヤモンドの粒子を含むそのような複合材料に関する。これらの粒子上のS i Cコーティングは反応領域、あるいはグレーデッド層として存在し、拡散転化インターフェースがなくビルドアップされたS i C／コーティングに対立するものであり、それはダイヤモンドの表面上へのS i Cの化学蒸着法のようなコーティングプロセスによって得られていた。

【0002】

本発明の背景技術

例えば高パワーエレクトロニックパッケージングおよび他の熱管理用途で使用するために、非常に高い熱伝導率を備えた複合材料を生産する試みについて多くの文献が発表されている。この文献の多くは、金属マトリックスへ粒子フィラーを添加して、金属マトリックス複合材料（MMC）を形成することに関する。金属マトリックス複合材料を形成するために金属に高い熱伝導率を備えた粒子フィラーを加えることによる効果は公知である。MMCの特性は、粒子フィラーおよび金属マトリックスの特性を適切に選択することにより、特定用途の必要条件に適合するよう、しばしば最適化することができる。その例としては、アルミニウムマトリックスへのS i C粒子の添加が挙げられる。フィラー粒子と接触する場合、熔融したアルミニウムおよびアルミニウム合金は容易にS i Cを濡らす。A i／S i C複合物は、40体積%よりも多いフィラー添加量で、400MPaの強度を達成することが報告された。これは、S i C粒子とA lの間で良好な結合が形成されたことを示す。粒子のS i Cおよびアルミニウムマトリックスで構成されたMMCは、熱膨張率（CTE）、剛性および耐摩耗性の点において純粋なA l構造によりも優れている。

【0003】

しかしながら、一般にMMCの熱伝導率は所望の期待を満たさない。純粋なアルミニウ

10

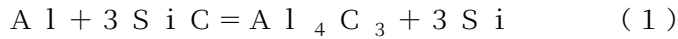
20

30

40

50

ムの熱伝導率は約 $200 \text{ W/m} \cdot \text{k}$ であり、純粋な結晶の SiC 粒子の熱伝導率は約 $320 \text{ W/m} \cdot \text{k}$ である。Al/SiC MMC に対する熱伝導率の値は、一般に $200 \text{ W/m} \cdot \text{k}$ 未満であり、典型的には $180 \text{ W/m} \cdot \text{k}$ 未満である（1-5 参照）。これらの Al/SiC MMC は、攪拌キャスティング、粉末冶金あるいは低圧および常圧のメルトインフィルトレーションのようなプロセスによって固形化された。これらの方法は比較的遅く、アルミニウムが溶融状態にある時に、相当な滞留時間があり、SiC が溶融した Al と反応し、アルミニウムカーバイドを形成することを許容する。反応の例は次のとおりである：



【0004】

その理由としては、これらのプロセスは一般に Al-Si アロイの使用を必要とし、これが Si の活性を減少させて、溶融したアルミニウムとの長い接触時間中の、逆カーバイド反応の速度を減少させることがあげられる。これらの Al-Si アロイは一般に純粋なアルミニウムより小さい熱伝導率を持っており、したがって SiC/Al MMC の熱伝導率を低減させる。あるいは、粒子で強化されたアルミニウムを固形化する高速高圧金属インフィルトレーション（スクイズキャスティング（squeeze casting）とも呼ばれる）の使用は、複合材料のより速い固形化に帰着する。溶融したアルミニウムへの粒子の暴露時間は一般に数秒であり、上述された非加圧プロセスでの数時間に対立する。スクイズキャスティングによる迅速な固形化の結果、純粋なアルミニウムを使用することができ、複合材料中、SiC 充填量が約 55 体積%で、最大約 225 W/m の熱伝導率が期待される。

【0005】

ダイヤモンドのある特性は、高熱伝導率 MMC のための可能なフィラーとして、それを特に魅力的にする。ダイヤモンドの熱伝導率は結晶の完全性に依りて、約 $700-2000 \text{ W/m} \cdot \text{k}$ である。さらに、それは低い CTE（約 $1 \text{ p.p.m.}/^\circ\text{C}$ ）を有する。しかしながら、溶融アルミニウムとダイヤモンドの接触のための長時間の曝露時間を有する、ダイヤモンド/アルミニウム MMC のための固形化法を使用する研究者は、高レベルの熱伝導率を得ることができない。50 体積%の工業用ダイヤモンド粒子を含んでいるアルミニウムマトリックスを含む複合材料は、 $200 \text{ W/m} \cdot \text{k}$ 未満の熱伝導率を有すると報告されている（Johnson および Sonuparlac、参考文献 3）。複合材料中のダイヤモンドの微細構造の検査は、ダイヤモンドの粒子上のアルミニウムカーバイド（ Al_4C_3 ）の厚い表面層の存在を明らかにした。この表層は式（2）で示される反応によって形成される。



アルミニウムカーバイドは一般に低い熱伝導率を持つと認識され、ハイドロスコピックである。表面上に形成されたアルミニウムカーバイドの厚い層を有するダイヤモンドの粒子は、効果としては、ダイヤモンドの粒子としてよりは、アルミニウムカーバイド粒子としてより機能し、複合物質の不良な熱伝導率をもたらす。

【0006】

アルミニウム複合材料を形成する溶融アルミニウムとダイヤモンドの粒子との接触前に、保護層でダイヤモンドの粒子をコーティングすると、 Al_4C_3 を形成する反応を防止することができる。明確な SiC コーティングのダイヤモンドの粒子への適用、および引き続き Al との複合材料の形成は、文献に記載されている（参考文献 6）。40-50 ミクロンの粒径の工業用ダイヤモンド粉末（ベータダイヤモンド生成物）のルースなベッドは、ダイヤモンド粒子アレイの化学蒸着法プロセスを使用して、SiC でコーティングされた。それは著者によって化学気相インフィルトレーションまたは CVI と名付けられた。この CVI プロセスでは、ダイヤモンドの粒子の表面に明確な SiC コーティングが適用されるか、または堆積される。CVI プロセスによる SiC の堆積が約 1000°C で生じることは、公知である。Johnson と Sonuparlac は、プロセス条件に依存して、0.41-1.6 ミクロンの間で変化する SiC コーティングの厚さを評価した

10

20

30

40

50

。彼らは、さらにコーティングされたダイヤモンド粒子のSiC含有量の合計を体積で3%から11%と評価した。プリフォームされた粒子アレイは、CVI SiCコーティングによって堅くなったことが観察された。SiCコーティングされた、プリフォームされたダイヤモンドは、Al-15Si-5Mg重量%アロイを使用して、無圧金属インフィルトレーションプロセスにより、インフィルトレーションされた。プロセス条件はプリフォームの完全なインフィルトレーションを保証するために最適化された。MMCの関連する特性は表1に示される。

【0007】

【表1】

表1 参照文献6に記載された約50体積%のダイヤモンド/Al MMC 複合材料の物理特性					
コーティング 厚さ (ミクロン)	Al ₄ C ₃ 含有量 (重量%)	密度 (gm/cc)	熱伝導率 (W/m·K)	CTE (ppm/K)	ヤング率 (Mpa)
0.41	0.078	3.168	239	6.8	368
0.53	0.071	3.161	242	6.5	385
0.97	0.053	3.13	259	5.2	407
1.21	0.047	3.125	131	5.9	408
1.23	0.073	3.22	240	4.6	398
1.42	0.12	3.213	225	5.0	413
1.6	0.093	3.16	234	4.5	427

【0008】

すべてのレベルのSiC膜厚で、ダイヤモンド粒子上のAl₄C₃の形成が、非常に低レベルに低減されているが、0よりも大きい数値を維持している。報告された密度は、アルミニウム合金と、SiCコーティングされたダイヤモンドのプリフォームとの完全なインフィルトレーションの、著者のクレームと一致している。複合材料の熱伝導率値は、131-259 W/m·kで変動する。しかしながら、複合材料中のダイヤモンドの粒子の非常に高い充填量(40-50体積%)、およびダイヤモンドの熱伝導率を考慮すれば、非常に低いものである。ダイヤモンド粒子上のSiC膜厚と、複合材料の熱伝導率の間に明白な関係はない。この研究の著者は、ダイヤモンドの粒子上の増加したSiC膜厚において観察された、増加した堅さ(ヤング率)は、ダイヤモンドの粒子間のSiCブリッジの形成によると彼らが信じていることを示した。これらの結果は、SiC膜厚が過度であり、それによって、ダイヤモンドの粒子間の橋かけを引き起こす場合があることを示しているように見える。しかしながら、CVIプロセスで、ダイヤモンドの粒子上の薄い均一なSiCコーティング、すなわちダイヤモンドの表面の100%を覆うコーティングを得ることは困難である。

【0009】

上述の先行技術とは異なり、本発明者は、コーティングされていないダイヤモンドとアルミニウムの複合材料を調製するために、高速高圧溶融インフィルトレーション(スクイズキャスト)を使用する。上述のように、このプロセスはダイヤモンドの溶融アルミニウムへの暴露時間を非常に短い時間に減少させる(たとえば、2秒未満)。ダイヤモンドの粒子の表面に最小限のアルミニウムカーバイドが存在すると予測されるが、複合材料の熱伝導率は依然として200 W/m·k未満である。

【0010】

発明の概略および目的

簡潔に言えば、本発明は、その内部に分散されたダイヤモンドの粒子を有する金属マトリックスで構成された複合材料構造物であって、ダイヤモンドの粒子が、その表面へ化学的に結合したベーター SiC の層が存在すること、および SiC の炭素が、それが結合するそれぞれの粒子のダイヤモンドに由来することによって特徴づけられる複合材料構造物に関する。

【0011】

有利には、複合材料構造物のマトリックスは、アルミニウム、銅、マグネシウムおよび前述の金属の1つ以上のアロイの中から選択された金属で本質的に構成される。

10

【0012】

発明の好ましい実施態様では、マトリックスはアルミニウムで構成される。
別の実施態様では、マトリックス金属は銅で構成される。

【0013】

本発明は、上記の新規な金属マトリックス複合材料の本質的な要素である、化学的にダイヤモンドに結合した SiC を有するダイヤモンドの粒子の調製に関する。

【0014】

本発明は、さらに、複合材料の非常に高い熱伝導率に帰着する、異なるプロセスによって適用された SiC でコーティングされた前記ダイヤモンドの粒子を含んでいる金属マトリックス複合材料の形成について記述する。

20

【0015】

したがって、本発明の第一の目的は本質的に改善された熱伝導率を有する金属マトリックス複合材料を提供することである。

【0016】

そのような高い熱伝導率の形成において使用することを可能とするのに必要な特性を有する、SiC コーティングされたダイヤモンド粒子を提供することは、本発明の別の価値ある目的である。

【0017】

前述の SiC コーティングされたダイヤモンド粒子を生産するための新規なプロセスを提供することは、本発明の別の価値ある目的である。

30

【0018】

前述の SiC コーティングされたダイヤモンド粒子を金属マトリックス中に組み込み、上記の非常に高い熱伝導率の金属マトリックス複合材料を得るためのプロセスを提供することは、本発明の別の価値ある目的である。

【0019】

有利には、前述の高い熱伝導率の金属マトリックス複合材料は、化学的に結合された SiC の層が、ダイヤモンドアレイのダイヤモンド粒子上にその場で生成され、ついで、好ましくはスクィーズキャストイングとして知られている高速高圧金属インフィルトレーション技術によって、金属マトリックス中に埋め込まれることにより製造される。

【0020】

好ましくは、SiC の化学的に結合された層は、SiO ガスとダイヤモンドの粒子とを接触させることにより、化学気相反応プロセス (CVR) によってそれぞれのダイヤモンドの粒子上に生成される。

40

【0021】

図面の簡単な説明

図1は、本発明の、SiC でダイヤモンドの粒子をコーティングする CVR プロセスを行なうのに適当な装置の模式図である。

図2は、本発明の、ダイヤモンド金属マトリックス複合材料を形成するスクィーズキャストイングアセンブリーを行なうのに適当な装置の模式図である。

【0022】

50

好ましい実施態様の詳細な説明

図1を参照する。本発明にかかる、その内部に分散されたダイヤモンドの粒子を有する金属マトリックスを有する複合材料構造物の要素として使用するためのダイヤモンドの粒子であって、その表面にベーターSiCの転化表面層を有するダイヤモンドの粒子を製造するための適当な装置の模式図を示す。

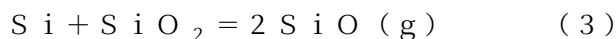
【0023】

図1には、るつば101の側断面図が示される。るつばはSiCで作られ、るつばはSiの下部リング104と、SiCの上部リング105により下部室102と上部室103に分割され、2つのリングの間に配置される100%SiCのファブリックのウェブ106を有する。100%SiCのファブリックは、ガス状SiOとグラファイトファブリックを反応させ、グラファイトを本質的にSiCに100%転化させることにより形成された。

10

【0024】

下部室102はSiOジェネレータを収容する。SiOジェネレータは、等モルでシリコン(Si)およびシリカ(SiO₂)を混合することにより調製された。るつば101が摂氏1200度以上に熱されると、SiOガスは式3で示されるように、ジェネレータ中の反応から形成される：



下部室102内で生成されたSiOガスは、SiCファブリック106を通過して上部室103へ移動し、SiCファブリック106の上に配置されたダイヤモンドの粒子107のアレイと反応する。十分な量のSiOが発生され、それぞれの粒子の表面全体にわたり、ダイヤモンドの粒子の表面がSiCに変換されることを保証する。

20

【0025】

図2は、本発明に従って作られる、金属マトリックス複合材料の高圧スクイズキャストリングに適当なダイアセンブリを示す。この装置は工具鋼から作り上げられ、ダイ110、ダイプラグ111、およびショットチューブ（あるいはゲート）112から成る。キャビティー113は、スクイズキャストパート113aのために必要とされるジオメトリに対応して、ダイの中で機械加工される。それが溶融したアルミニウムで充填された時に、空気がキャストリングから排気されることを可能にするために、ダイプラグ111はダイキャビティー113に対して0.005インチのクリアランスを有している。ショットチューブ112の内径(ID)は十分に大きく、それが完全にダイキャビティー113をカバーするようにされる。アルミニウムおよび粒子の粉末をキャストリングして複合材料を製造するために、粉末はダイキャビティー113内に置かれ、最大の密度で均等にローディングするために、振られる。ダイ110に充填された粉末をカバーするために、セラミック・ペーパー114がショットチューブ112内に置かれる。その後、ダイキャビティー113とショットチューブ112の一部を満たすのに十分な量の溶融アルミニウムが、ショットチューブ112内に注がれる。その後、最大15,000psiの圧力がプランジャー115を介して加えられ、ダイキャビティー113の迅速な充填を達成し、金属マトリックス複合材料中のほぼ100%の密度を達成する。冷却の後、固化された部分113aおよびビスケット116を有する部分的に満たされたショットチューブ112は、ダイアセンブリから取り除かれる。ビスケット116は、所望の複合品またはキャスト部材103aを生産するために、フライス研削またはのこぎりによるような金属削除技術によって取り除かれる。

30

40

【0026】

ある種類の固体デバイスについては、エレクトロニックパッケージングにおけるトレンドは、より高いパワーレベルでより小さいデバイスを管理する方向に向いている。多くの電子チップ中の非常に高いパワー密度の管理が、主な挑戦になった。適切な熱管理の不足は、作動中においてチップの温度を、それらがパフォーマンスおよび信頼度の両方を低下させる、過熱状態のポイントまで上昇させる。この熱ビルドアップを防ぐ好ましいルートは、チップを高熱伝導率基体にマウントすることである。該基体は、チップから大きなヒ

50

ートシンクに熱を伝えて放出し、それにより作動中のチップの最大温度を受容可能な値に制限する。チップは、一般に高熱伝導率はんだ、あるいはポリマー接着剤により基体に取り付けられる。はんだは一般に有機の接着剤より高い熱伝導率を持つので、はんだは接着剤よりも一般に好まれる。

【0027】

チップが破損される場合のあるさらなるメカニズムが存在し、それはチップと基体の相対的な熱膨張率に関係する。チップがはんだで基体に取り付けられる場合、コンポーネントは、はんだを溶融するのに十分に高い温度（摂氏180℃－425℃）に熱せられなければならない。パッケージが続いて冷却される時、はんだは固化し、チップと基体の間に結合を提供する。パッケージが室温にさらに冷却される際、チップと基体の熱膨張率の相違は、チップ中に本質的な機械的ストレスのビルドアップを導く場合がある。この冷却と、引き続くパッケージの熱サイクルは、基体、チップまたはインターフェースに疲労を引き起こす場合があり、これは性能および寿命に影響を与える場合がある。これらのストレスがチップの引張強さ限界を越える場合、それらはクラッキング（剥離）を生じさせる場合がある。電子チップに一般に使用される材料はCTEが約3 p. p. m. /℃のSi、またはCTEが約6 p. p. m. /℃のGaAsである。チップのそれに精密に一致するCTEを有する基体を使用することは非常に望ましいであろう。非常に高い熱伝導率とともに、そのような熱膨張特性を有する基体はさらに望ましいであろう。

【0028】

上述された電子パッケージの中で使用される1つのタイプの基体は、セラミック基板である。比較的低いチップパワーレベルについては、酸化アルミニウム基板が一般に使用される。それは約20－40 W/m. kの熱伝導率と、約7 p. p. m. /℃のCTEを有する。より高パワーのチップについては、約150－200 W/m. kの熱伝導率と、約4 p. p. m. /℃のCTEを有する、窒化アルミニウムセラミック基板が、より良好な選択肢となる。窒化アルミニウムセラミック基板は、有毒なBeO以外のセラミック基板で、一般に最も高い熱伝導率を示す。これらの酸化アルミニウムと窒化アルミニウムのセラミック基板は優れた電氣的絶縁特性を持っている。それはバイポーラチップに基づいたものをはじめとする、多くの電子パッケージについて望ましい。しかしながら、デバイスの底側がソースコンタクトとなるLDMOSチップに基づいた電子パッケージについては、前面と背面との間の良好な導電性能を有する基体が必要とされる。これはセラミック基板中に、両面を電氣的に接続する、電氣的に導電性のバイアスを作り上げることであり達成されることができる。基体ボディ自身が電氣的に導電性であり、さらに高い熱伝導率およびチップとのCTEの良好な一致を有すれば、一般により簡単に達成できる。これらのLDMOSデバイスについては、MMC基体はしばしばCTEと導電率の必要条件を満たすことができるが、それらが達成することができる熱伝導率については制限されている。上述された、Al/SiC粒子で強化されたMMCは、約180－225 W/m. kの熱伝導率、約7 p. p. m. /℃のCTE、および良好な電気伝導度を有している。非常に高いパワー密度で作動する傾向のLDMOSチップについては、より高い熱伝導率を与えることが望ましいだろう。

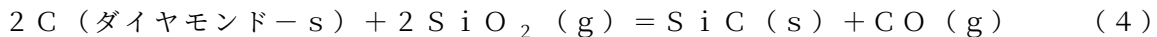
【0029】

アルミニウムマトリックスと、本発明に従って製造された粒子ダイヤモンドを含む、本発明の金属マトリックス複合材料は、LDMOS電子パッケージの要求をすべて満たすことができる。Alは約200 W/m. kの熱伝導率を有している。ダイヤモンドは約700－2000 W/m. kの熱伝導率を有している。さらに比較的低いダイヤモンドのCTE（約1 p. p. m. /℃）は、未充填の金属よりも、SiまたはGaAsにより一致した複合材料のCTEをもたらす。しかしながら、本発明を除いては、文献に記載された粒子ダイヤモンドにより強化されたMMCは、容易に利用可能なAl/SiC MMCの熱伝導率における若干の改良だけを示している。本発明に記述されたMMCは、予想外の高い熱伝導率を有し、最大約650 W/m. kを示し、潜在的には、たとえば800 W/m. kおよびそれ以上という高いレベルの熱伝導率を有する。

【0030】

図1の実施態様

ダイヤモンド粒子のフィラーを含むAlの金属マトリックス複合材料を作り、MMCについて非常に高い熱伝導率が得られるようにするために、SiCの薄い、均一な、表面が転化された、付着したコーティングが、複合材料の形成前に、ダイヤモンド上に存在しなければならない。このコーティングの目的は、ダイヤモンドとアルミニウムの2表面間のカップリング層を提供することである。それはアルミニウムによって容易に濡らされることができ、向上されたフォノントランスファのために、2表面の間で勾配を有するアコースティカルインピーダンス (acoustical impedance) 特性を提供する。更に、本発明によれば、このSiCコーティングは、ダイヤモンドとコーティングの間の別個の個別のインターフェース転化層が、伝熱に対するどのような熱的バリアをも防止するような方法で、ダイヤモンドに一体として結合されなければならない。そのようなコーティング、およびかかるコーティングを提供するプロセスは本発明に記述される。本発明の好ましい態様においては、式4に記述されるような、ダイヤモンドの粒子と、SiOのようなガス状のシリコン種の間の反応によって形成される薄いSiC転化コーティングである：



【0031】

ダイヤモンドの表面のCVR転化は、SiCの薄いインターフェーススキンに最初に帰着すると信じられている（発明者は、SiCとグラファイトフレイクとの反応において、SiCの薄いインターフェース表面スキンの形成を観察した）。反応時間および／または温度が増大するにつれて、コーティングの生成は、ダイヤモンド粒子の外面から中心に進み、反応帯または勾配を有する層に帰着する。一方、CVIまたはCVDのプロセスによって得られたコーティングは、SiCコーティングと基体の間にはっきりとしたインターフェースを持つと予想される。SiCのCVI/CVD堆積温度は、ダイヤモンド表面のSiCへの転化を達成するのに必要な温度より低く、何らの界面反応をも起こさず、ダイヤモンドおよびCVI/CVD SiCコーティングの間のはっきりとしたインターフェースを有するコーティングのビルドアップに帰着する。このCVIインターフェースは、参考文献6のJohnsonとSonuparlacによって記述された先の複合材料の貧弱な熱伝導率に寄付するものと考えられる。

【0032】

更に、この化学的気相反応(CVR)プロセスは、SiCの均一な表面層が、転化被覆厚さが非常に小さいレベルで得られることを確実にする。上述のように、SiCコーティングの膜厚が増加するにつれて、SiCの熱伝導率(約320W/m.k)が、非常に高い熱伝導率のダイヤモンド粒子と金属マトリックスの間の熱的なバリアの役割をし、MMCの達成することができる最大の熱伝導率を制限する。

【0033】

さらに本発明の薄いSiC CVR転化コーティングの有効性を理解するために、複合材料の熱伝導率の予測を混合物の計算ルールを使用して行うことができる。熱伝導率が輸送特性であり、混合物の計算ルールが正確でないが、参考文献6のJohnsonとSonuparlacによって記述されたダイヤモンド上のCVIコーティングと、本発明のCVR転化コーティングの比較についての洞察を提供することができる。簡単な混合物のための典型的な関係は次のとおりだろう：

【0034】

10

20

30

40

【化 1】

$$(1-f)^3 = \frac{K_m}{K_c} \left[\frac{K_c - K_p}{K_m - K_p} \right]^3 \quad (5)$$

10

【0035】

ここで f は粒子の体積分率であり、 K_m 、 K_p 、および K_c は、それぞれマトリックス、粒子および複合材料の熱伝導率である（参考文献 7）。上記の式は粒子マトリックスインターフェースを横切る完全な伝熱を要求する。これは相違するコンポーネントの間のインターフェースでのフォノンの散乱によって制限される。計算は熱インターフェースの有効性を判断するために、 K_p を評価するために行なわれた。CVR プロセスでコーティングされたダイヤモンド粒子を 50 体積% 含むアルミニウム複合材料について、 K_m として $200 \text{ W/m} \cdot \text{k}$ が使用され、 K_c については $650 \text{ W/m} \cdot \text{k}$ が使用された（それは本発明の CVR コーティング技術を使用して生産された複合材料について得られた）。 K_p について計算された結果は約 $1938 \text{ W/m} \cdot \text{k}$ であり、これはダイヤモンドの熱伝導率について報告された最大値に近い。この結果は、本発明によって教示される CVR コーティングが、ほとんど完全な熱インターフェースを提供することを示す。次に、参考文献 6 の Johnson と Sonuparlac によって記述された複合材料について計算が行われた。それは、ダイヤモンドの粒子の上に厚い CVI コーティングを有していた。ダイヤモンド充填量として 45 体積%、 K_m として $200 \text{ W/m} \cdot \text{k}$ 、 K_c として 250 を使用すると、 K_p についての計算結果は約 $322 \text{ W/m} \cdot \text{k}$ であった。したがって、薄く勾配を有する CVR コーティングは、CVI コーティングよりはるかに優れた熱インターフェースを提供する。

20

【0036】

アコースティックカップリングにおける SiC の役割は、次の議論によって一層よく理解される。波動説にしたがってフォノンを扱い、正常な入射での横方向の音波を仮定すると、2 つの異なる材料間の境界での（強度）反射率は、次のように与えられる：

30

【0037】

【化 2】

$$R = \left[\frac{Z_1 - Z_2}{Z_1 + Z_2} \right]^2 \quad (6)$$

40

【0038】

式中、 Z は音響インピーダンス（質量密度と弾性率の積の平方根と等しい）である。明白に、最小の反射、したがって最大の伝播は、 $Z_1 = Z_2$ の時に起こる。反射、したがってフォノンの散乱は、 ΔZ が増加するにつれて増加する。熱伝導率の場合には、コーティング物質の最適の音響インピーダンスは次のとおりだろう：

【0039】

【化 3】

$$Z_{coat} = \sqrt{Z_1 Z_2} \quad (7)$$

【0040】

表 I I は、関係する材料の音響インピーダンスを与える。S i C の音響インピーダンスは、アルミ-ダイヤモンドインターフェースについて式 7 で計算された最適のマッチングインピーダンス（計算値 $276 \times 10^5 \text{ kg/m} \cdot \text{s}$ 、S i C $310 \times 10^5 \text{ kg/m} \cdot \text{s}$ ）と近いことに留意すべきである。これは、アルミニウムマトリックス中の S i C 転化コーティングされたダイヤモンドの優れた特性を予言する。

10

【0041】

表 I I 様々な材料の音響インピーダンス

	A l	ダイヤモンド	S i C
Z ($10^5 \text{ kg/m} \cdot \text{s}$) :	136	561	310

【0042】

粒子のダイヤモンド粉末をコーティングするための好ましいプロセスは、図 1 に示される。ダイヤモンドの粒子は支持する S i C ファブリック上に置かれる。その後、それはるつぼ内に置かれ、反応温度に熱される。るつぼは炉の中に置かれ、その中で、S i O₂ と、S i または C のような還元剤の間の反応によって、S i O 分圧が生成される。所定温度で S i O-ダイヤモンドの転化反応が完了すべき所定時間の後、炉は冷却され、コーティングしたダイヤモンドを支持するファブリックを、るつぼから取り出した。S i C 転化コーティングダイヤモンド粒子は、コーティングされたダイヤモンドからファブリックを剥がすことによりファブリックから回収される。その後、すべての凝集塊が機械的攪拌によって解砕される。

20

【0043】

S i C でコーティングされたダイヤモンドを形成する、ダイヤモンドと S i O の間の反応は、一般にプロセス温度が上昇するにつれてより迅速に進む。しかしながら、ある温度閾値では、ダイヤモンドはグラファイトに変換する場合がある。図 1 の装置中の制限条件を確立するために、以下の実験が行われた。ダイヤモンド粒子（O s h m e n s 社製の合成ダイヤモンド）をるつぼの中に置き、最大 4 時間、1550℃および 1600℃で加熱した。熱処理された粉末の X 線回折（X R D）はダイヤモンドのパターンを示し、グラファイトを示す証拠はなかった。別の実験では、S i O と反応されたダイヤモンドの粉末（表 I I I、実施例 4）を、3 時間、1660℃で加熱した。X R D パターンは、ダイヤモンドがグラファイトに転化したことを、何ら示していなかった。しかしながら、同じ粉末が 8 時間、1800℃で加熱された時、このサンプルの X R D パターンは大きなグラファイトピーク、ブロードになったダイヤモンドピークおよび S i C 転化反応からの S i C ピークを示した。1800℃で 8 時間加熱した後の、グラファイトへのダイヤモンドの顕著な転化は、ダイヤモンド-S i O の反応を、より短い時間および／または低い温度に制限するという決定を導いた。

30

40

【0044】

その後、一連の炉の実験が行われ、ダイヤモンドの粒子と S i O を反応させた。ダイヤモンド粒子の転化のための S i O（g）ジェネレータが、等モルのシリコン（S i）とシリカ（S i O₂）を加えることにより作られた。使用されたシリカは、150-300 ミクロンの粒径を有していた。混合はアルミナミリングメディアを使用して、1 時間行われた。S i と S i O₂ の反応は、S i O₂ の粒径が小さくなるとともに、より速く進む。この効果を最小限にするために、同じ粒径（150-300 ミクロン）のシリカを使用し、ミリングの時間を 1 時間に固定した。

【0045】

50

0.5ミクロンから120ミクロンまでの、異なる粒径のダイヤモンド粉末は、1450℃から1600℃で、1－8時間反応させられた。その後、コーティングを施したダイヤモンド粒子は、XRDによって検査された。実験は表IIIに要約される。ダイヤモンドのXRDスペクトルは、低濃度のSiCの存在に起因する変化を示した。

【0046】

【表2】

表3 SiO ₂ との反応を介してSiCでコーティングされたダイヤモンドを調製するための実験				
実験番号	ダイヤモンド粒径 (ミクロン)	最大温度 (℃)	最大温度での時間 (時)	SiC／ダイヤモンドの XRD ピーク高さの比
1	15-30	1450	1	0.026
2	15-30	1550	3	0.073
3	120-150	1550	3	0.017
4	100-120	1550	3	0.014
5	30-40	1550	3	0.064
6	40-50	1550	3	0.014
7	100-120	1550	3	0.023
8	100-120	1550	3	0.015
9	100-120	1600	4	0.035
10	100-120	1600	4	0.034
11	100-120	1450	8	0.032
12	100-120	1550	3	0.041
13	100-120	1550	3	0.033
14	0.5-2.0	1550	3	0.595
15	0.5-2.0	1450	3	0.138
16	0.5-2.0	1450	1	0.111
17	0.5-2.0	1450	3	0.103

【0047】

表IIIの最後のカラムは、2シータ＝35.7のベータ-SiCのピーク高さと、2シータ＝44.0のダイヤモンドのピーク高さとの比率を示す。XRDからのピーク高さの比率は、組成の分析のための定量的手続きではないが、それは反応された粉末中のSiCとダイヤモンドとの含有量の相対的（絶対値ではない）な、概略的な評価を可能にする。表III中のデータは、SiC形成へもっとも大きな影響を与える変数が、ダイヤモンドの粒径であることを示す。ダイヤモンドに対するSiCのピーク高さ比率は、一般に、100－120ミクロンのダイヤモンドの粒子については0.01－0.04、15－30ミクロンのダイヤモンドについては0.03－0.07、0.5－2ミクロンのダイヤモンドについては0.1－0.6である。したがって、最も大きいダイヤモンドの粒子が、最も低いSiC量を有するよう見える。所定の粒径のダイヤモンドについては、反応温度および時間を増加させることは、一般に、ダイヤモンドのピーク高さへのSiCピーク高さのより高い比率に帰着する。この情報および本発明の予測により、複合材料用の最も高い熱伝導率が、ダイヤモンドのXRDピーク高さに対してSiC XRDピーク高さの最低の比率を持っているダイヤモンドを使用して得られるであろうことが期待されるだ

ろう。そのような1つのダイヤモンドの粉末は、表 I I I の実験4から得られ、100-120ミクロンの粒径を有し、SiOと1550℃で3時間反応された。反対に、0.5-2.0ミクロンの粒径を有するダイヤモンドの粉末が、最も低い熱伝導率を備えた複合材料を生産すると予想することができる。

【0048】

図2の実施態様

図2は、ダイヤモンド金属マトリックス複合材料を形成する、スクイーゾキャストイングアセンブリーの模式図である。ダイヤモンドの粉末は、工具鋼ダイのダイキャビティーに直接入れられ、フルタップ密度を達成するために振られる。ダイヤモンド粉体の床は1枚の1/32インチのアルミナセラミック・ペーパーで覆われる。これはインフィルトレーション中に溶融物から酸化物粒子を取り除くためにフィルタの役割をする。ダイキャストイング中にガスがエントラップされることを回避するために、0.005インチのギャップがダイ中で、ボトムプラグのまわりで維持され、トラップされた空気がインフィルトレーション中に逃げることを可能にする。アルミニウムは酸化を回避するためにアルゴンカバーガスの下で、熔融温度(660℃)以上に加熱される。ダイは、別途、Alの融点よりわずかに下の温度に加熱される。加熱されたダイは加熱炉から取り出され、キャストイングマシンへ移され、Al溶融物がダイの加熱されたショットチューブ内へ注がれる。インフィルトレーションは加圧下、数秒以内で完了する。ダイはキャストイングマシン内で放冷され、その後、キャスト部分および付着したビスケットから成るキャストイングを取り出す。

【0049】

他の実施態様

本発明はその詳細な説明と共に記載されてきたが、先の記述は本発明を例証するものであり、本発明の範囲を制限しないことが理解されるべきである。本発明の範囲は、特許請求の範囲の記載により画定される。他の態様、利点および改良は特許請求の範囲内のものである。

【0050】

実施例

実施例1(比較例)

その内部にダイヤモンドの粒子が分散されたアルミニウム金属マトリックス複合材料が、下記方法によって形成された。15-30ミクロンのサイズのコーティングされていないルースなダイヤモンドの粉末(Oshmens社製の合成ダイヤモンド)を、(図2に示すように)工具鋼ダイのダイキャビティー内に直接置き、50-55%のフルタップ密度を達成するために振った。ダイキャビティーの寸法は2インチ×2インチ×0.25インチであった。ダイヤモンド粉体の床は1枚の1/32インチ厚の高アルミナセラミック・ペーパーで覆われた。これはインフィルトレーション中に溶融物から酸化物粒子を取り除くためにフィルタの役割をする。ダイキャストイング中にガスがエントラップされることを回避するために、0.005インチのギャップがダイ中で、ボトムプラグのまわりで維持され、トラップされた空気がインフィルトレーション中に逃げることを可能にする。純度99.8%のアルミニウム金属が、酸化を避けるためにArカバーガスの下、850℃に加熱された。ダイは、別途、Alの融点(660℃)よりわずかに下の温度である、650℃に加熱された。加熱されたダイは加熱炉から取り出され、2秒以内にキャストイングマシンへ移され、Al溶融物が200℃に維持されたダイの加熱されたショットチューブ内へ注がれた。インフィルトレーションは、1.5ksiの最大圧の加圧下、0.1インチ/秒のラム速度で、2秒で完了した。ダイはキャストイングマシン内で300℃まで放冷され、その後、キャストイングを取り出した。多くのキャストイング操作により製造された多くのサンプルの熱伝導率を、レーザフラッシュ測定した結果、55-60W/m.K.の範囲内の熱伝導率を示した。4ポイント屈曲破壊を使用した複合材料の強度の測定は、22ksi(6つの測定の平均)の平均の破壊強度を示した。

【0051】

実施例 2（比較例）

実施例 1 に記載された、コーティングされていないダイヤモンド粉末を有するアルミニウム金属マトリックス複合材料を形成するための手続きが、粒径が 100－120 ミクロンのコーティングされていないダイヤモンド粉末を使用して繰り返された。多くのキャスティング操作により製造された多くのサンプルの熱伝導率を、レーザフラッシュ測定した結果、150－200 W/m・K の範囲内の熱伝導率を示した。4 ポイント屈曲破壊を使用した複合材料の強度の測定は、17 ksi（6 つの測定の平均）の平均の破壊強度を示した。

【0052】

実施例 3（比較例）

実施例 1 に記載された、コーティングされていないダイヤモンド粉末を有するアルミニウム金属マトリックス複合材料を形成するための手続きが、粒径が 0.5－2 ミクロンのコーティングされていないダイヤモンド粉末を使用して繰り返された。多くのキャスティング操作により製造された多くのサンプルの熱伝導率を、レーザフラッシュ測定した結果、105 W/m・K の平均熱伝導率を示した。4 ポイント屈曲破壊を使用した複合材料の強度の測定は、22 ksi の平均の破壊強度を示した。

【0053】

実施例 4（比較例）

それぞれの粒子の上に SiC の転化コーティングを有するダイヤモンド粒子のアレイを生産するプロセスが以下に行なわれた。15－30 ミクロンの粒子サイズのダイヤモンド粒子（Oshtens社製、合成ダイヤモンド）が、以下の化学的気相反応プロセスにより SiO と反応された。図 1 に示されたるつぼが使用された。るつぼに 30 グラムのダイヤモンドの粒子が投入され、るつぼは高温炉内に置かれ、炉内で SiO はダイヤモンドの粒子のアレイを通して流動され、それぞれの粒子の表面と接触し、そして粒子は炉内で加熱された。炉は流動するアルゴン雰囲気を使用して、非酸化性雰囲気中で摂氏 1550 度まで熱され、3 時間、その温度で保持された。炉が室温に冷却された後、SiC の転化コーティングを有するダイヤモンドの粒子は SiC ファブリックから回収された。

【0054】

実施例 5（比較例）

実施例 4 で得られた転化コーティングされたダイヤモンド粒子のアレイを含むコーティングされたダイヤモンド粉末（粒子サイズ 15－30 ミクロン）を、（図 2 に示すように）工具鋼ダイのダイキャビティー内に直接置き、50－55 % のフルタップ密度を達成するために振った。ダイキャビティーの寸法は 2 インチ×2 インチ×0.25 インチであった。SiC 転化コーティングされた粒子のダイヤモンド粉体の床は 1 枚の 1/32 インチ厚の高アルミナセラミック・ペーパーで覆われた。これはインフィルトレーション中に溶融物から酸化物粒子を取り除くためにフィルタの役割をする。ダイキャスティング中にガスがエントラップされることを回避するために、0.005 インチのギャップがダイ中で、ボトムプラグのまわりで維持され、トラップされた空気がインフィルトレーション中に逃げることを可能にする。純度 99.8 % のアルミニウム金属が、酸化を避けるために Ar カバーガスの非酸化性雰囲気の下、850 °C に加熱された。ダイは、別途、Al の融点（660 °C）よりわずかに下の温度である、650 °C に加熱された。加熱されたダイは加熱炉から取り出され、2 秒以内にキャスティングマシンへ移され、Al 溶融物が 200 °C に維持されたダイの加熱されたショットチューブ内へ注がれた。インフィルトレーションは、1.5 ksi の最大圧の加圧下、0.1 インチ/秒のラム速度で、2 秒で完了した。ダイはキャスティングマシン内で 300 °C まで放冷され、その後、キャスティングを取り出した。多くのキャスティング操作により製造された多くのサンプルの熱伝導率を、レーザフラッシュ測定した結果、243－250 W/m・K の範囲内の熱伝導率を示した。4 ポイント屈曲破壊を使用した複合材料の強度の測定は、54 ksi（6 つの測定の平均）の平均の破壊強度を示した。

10

20

30

40

50

【0055】

実施例6

粒子サイズ100-120ミクロンのダイヤモンド粒子は、実施例4に記載された化学的気相反応プロセスを繰り返すことにより、SiOと反応され、実施例4のものより大きな粒径の、SiC転化コーティングされたダイヤモンド粒子のアレイを生成した。

【0056】

実施例7

実施例1に記載されたアルミニウム金属マトリックス複合材料を形成するためのダイキャスト手順が、実施例6に記載された100-120ミクロンのサイズの化学的気相反応で処理されたダイヤモンドの粉末アレイを使用して繰り返された。多くのキャスト
10
ィング操作により製造された多くのアルミニウム金属マトリックス中のSiC転化コーティングされたダイヤモンド粒子の複合材料のサンプルの熱伝導率を、レーザフラッシュ測定した結果、575-620W/m.kの範囲内の熱伝導率を示した。4ポイント屈曲破壊を使用した複合材料の強度の測定は、51ksi（6つの測定の平均）の平均の破壊強度を示した。複合材料の熱膨張係数は 7.1×10^{-6} インチ/インチ/摂氏度と測定された。

【0057】

実施例8（比較例）

粒子サイズ0.5-2ミクロンのダイヤモンド粒子は、実施例4に記載された化学的気相反応プロセスによりSiOと反応され、異なるサイズの転化コーティングされたダイヤ
20
モンド粒子のアレイを生成した。

【0058】

実施例9（比較例）

実施例1に記載されたアルミニウム金属マトリックス複合材料を形成するためのダイキャスト手順が、実施例8に記載された0.5-2ミクロンのサイズの化学的気相反応で処理されたダイヤモンド粒子アレイを使用して繰り返された。多くのキャスト
30
ィング操作により製造された多くのアルミニウム金属マトリックス中のSiC転化コーティングされたダイヤモンド粒子の複合材料のサンプルの熱伝導率を、レーザフラッシュ測定した結果、150W/m.kの平均熱伝導率を示した。4ポイント屈曲破壊を使用した複合材料の強度の測定は、51ksiの平均の破壊強度を示した。

【0059】

実施例10

1グラムのフェノール樹脂を1.2gのSi粉末と混合し、一晚ボールミルにかけた。100-120ミクロンの粒径の4グラムのダイヤモンドの粉末を、混合物に加え、完全に混合された。混合物は、0.5インチの直径のダイ中で5ksiの圧力でプレスされ、160℃に加熱され、グリーン強度が与えられた。得られた小さなペレットを、1時間1600℃で熱分解し、15ksiよりも大きな強度を有する堅いプリフォームを生成した。ペレットは鋼ダイ内に置かれ、実施例1に記載されたものと同じ条件を使用して、Alで
40
インフィルトレーションした。多くのキャストィング操作により製造された多くのアルミニウム金属マトリックス中のSiC転化コーティングされたダイヤモンド粒子の複合材料のサンプルの熱伝導率を、レーザフラッシュ測定した結果、300-320W/m.kの範囲内の熱伝導率を示した。

【0060】

実施例11

実施例10のプロセスを、フェノール樹脂0.5g、Si粉末0.6gという、低減されたフェノール樹脂とSiの量で行った。ダイヤモンド粉末の量は実施例10と同じく4gであった。多くのキャストィング操作により製造された多くのアルミニウム金属マトリックス中のSiC転化コーティングされたダイヤモンド粒子の複合材料のサンプルの熱伝導率を、レーザフラッシュ測定した結果、475W/m.kの平均の熱伝導率を示した。

【0061】

10

20

30

40

50

実施例 1 2 (比較例)

マグネシウム金属マトリックス中に分散したダイヤモンド粒子を含む複合材料構造物が、実施例 1 に記載したものとおおむね同じ方法により形成された。100-120 ミクロンのサイズのコーティングされていないルースなダイヤモンドの粉末を、2 インチ×2 インチ×0.25 インチの工具鋼ダイのダイキャビティー内に直接置き、50-55%のフルタップ密度を達成するために振った。ダイヤモンド粉体の床は1枚の1/32 インチ厚の高アルミナセラミック・ペーパーで覆われた。これはインフィルトレーション中に熔融物から酸化物粒子を取り除くためにフィルタの役割をする。ダイキャストイング中にガスがエントラップされることを回避するために、0.005 インチのギャップがダイ中で、ボトムプラグのまわりで維持され、トラップされた空気がインフィルトレーション中に逃げることを可能にする。純度 99.8% のマグネシウム熔融物が、酸化を避けるために Ar-2.5% SF₆ カバーガスの下、830℃に加熱された。ダイは、別途、Mg の融点 (647℃) よりわずかに下の温度である、620℃に加熱された。ダイヤモンド粉末を含む加熱されたダイは加熱炉から取り出され、2 秒以内にキャストイングマシンへ移され、純粋 Mg 熔融物が 200℃に維持されたダイの加熱されたショットチューブ内へ注がれた。インフィルトレーションは、1.5 k s i の最大圧の加圧下、0.1 インチ/秒のラム速度で、2 秒で完了した。ダイはキャストイングマシン内で 300℃まで放冷され、その後、キャストイングを取り出した。多くのキャストイング操作により製造された多くのサンプルの熱伝導率を、レーザフラッシュ測定した結果、120-250 W/m. K. の範囲内の熱伝導率を示した。

【0062】

実施例 1 3

実施例 1 2 に記載されているようなマグネシウム金属マトリックス複合材料を形成するための手順が、実施例 6 に記載されているような SiC のインテグラルな転化コーティングを有する、100-120 ミクロンの化学的気相反応により処理されたダイヤモンド粉末を使用して繰り返された。多くのキャストイング操作により製造された多くのマグネシウム金属マトリックス中の SiC 転化コーティングされたダイヤモンド粒子の複合材料のサンプルの熱伝導率を、レーザフラッシュ測定した結果、520-550 W/m. k の範囲内の熱伝導率を示した。4 ポイント屈曲破壊を使用した複合材料の強度の測定は、28 k s i (6 つの測定の平均) の平均の破壊強度を示した。

【0063】

実施例 1 4

100-200 ミクロンのサイズのダイヤモンド粒子の所定量を、ダイヤモンド粒子を揺さぶり移動させるために律動的にアルゴンガスをパージするカラム内に置いた。ダイヤモンド粒子のカラムは、摂氏 1200 度に加熱され、SiC 有機金属ガス (多くは SiC を堆積させるのにふさわしく、たとえば、メチルトリクロロシラン、ジメチルジクロロシラン、トリエチルシランなどである) が、ダイヤモンド粉末粒子の間を通過し、ダイヤモンドの粒子上に薄い SiC コーティングを堆積させる。堆積を停止した後、所定量の SiC でコーティングされたダイヤモンド粒子は、1600℃で1時間加熱され、SiC のダイヤモンドの表面内への拡散を引き起こし、ダイヤモンドの粒子上に SiC の転化コーティングを生成する。これはついで実施例 1 3 でのような、マグネシウム金属マトリックス中に分散されるダイヤモンド粒子として含まれるためにふさわしかった。

【0064】

実施例 1 5

1100℃でダイヤモンド粒子 (粒径 100-120 ミクロン) 表面にシリコンを堆積させるために、四塩化ケイ素と水素を使用したことを除き、マグネシウム金属マトリックスを使用して実施例 1 4 に類似した実験が行なわれた。シリコンの薄膜が形成された後、Si でコーティングされたダイヤモンドは1時間1600℃で加熱された。ここで Si はダイヤモンドの表面と反応し、ダイヤモンド粒子表面に SiC の転化層を形成した。

【0065】

実施例 16

実施例 14 および 15 に記載された SiC 転化コーティングを有するダイヤモンド粒子は、実施例 1 に記載されたようにして、アルミニウムとスクィーズキャストされ、アルミニウム金属マトリックス中に SiC コーティングされたダイヤモンドの粒子を有する複合材料を形成した。熱伝導率のレーザフラッシュ測定は、 $550-620 \text{ W/m}\cdot\text{k}$ の範囲内の値を与えた。

【0066】

実施例 17

正味の形状部分を作るために、キャストリングダイ用のグラファイトツーリングが、要求された正味の形状部分の形状および厚さに対応する形で作られたキャビティーであらかじめ機械加工されたグラファイトストックから調製され、グラファイト蓋で覆われた。ツーリングの公差はプレートおよび丸部分で、 $+/-0.005$ インチに維持された。その後、完成したグラファイトツーリングおよび蓋は、キャストリングの間にダイヤモンドのフィラーから空気が逃げることを可能にするために、16 分の 1 インチの一連の貫通孔が空けられた。グラファイトツーリングは、たとえば、ヒートシンク設計のフィンに対応する一連の溝、またはヒートスプレッダーのダイヤモンド/A1 部分のスルーホールに対応する位置でのスタッドでパターン付けられ、取り付け点を考慮に入れることができる。ダイをダイヤモンドの粉末で満たすために、グラファイトツーリングは、ドリルで開けられたスルーホールのすべてをカバーするために、フープ巻線構成の連続的なグラファイト繊維によって所定位置に固定されたセラミックペーパー内に包まれた。ダイヤモンドの粉末は型へつがれ、型の容積の 45-55 % に対応するフルタップ密度にタップされた。グラファイトツーリングは鋼製の永久圧力キャストリングダイ内におかれ、 $3-10 \text{ ksi}$ の圧力で溶融したアルミニウム金属でインフィルトレーションされた。キャストリングの後にグラファイトツーリングを取り除くために、上にかぶさった A1 金属を機械加工により取り除いた。また、完全にインフィルトレーションされた複合材料部分を取り囲むグラファイトツーリングは、325 メッシュのガラスビーズによるグリットブラストによって取り除かれた。A1 フローを容易にするために、オリジナルのツーリングにドリルで開けられたスルーホールに対応する、 $1/16$ インチの金属フィーダーまたはゲートの残っている部分は、手工具を使用して除去され、ダイヤモンド-アルミニウムキャストリングの正味の形状の複合材料を得た。実施例 6 に記載されているようなダイヤモンドの粉末を使用して、グラファイトツーリング中のキャストリングされた正味の形状部分のダイヤモンド-アルミニウム構造物の熱伝導率測定（そこではダイヤモンドの粒径は $100-120 \text{ }\mu\text{m}$ で、粉末は CVR SiC 転化コーティングを有していた）は、 $520-600 \text{ W/m}\cdot\text{k}$ の範囲中の値を与えた。キャストリングの 4 ポイントの屈曲強度は $46-51 \text{ ksi}$ だった。1 つの熱スプレッダー用途では、ゲートタブは残された。このジオメトリーは大きな表面積を提供し、タブの上を空気が通過するときに特に大きな熱移動を提供するからである。

【0067】

実施例 18

2 インチ $\times$ 2 インチ $\times$ 0.1 インチの寸法のダイヤモンド/A1 複合材料板が、実施例 17 に記載されたグラファイトツーリングの方法によって作られ、 550°C でホットロールされ、最終の 0.05 インチの最終厚にされた。ここで 1 回のパスごとに 0.010 インチずつ薄くし、1 回ごとにロール方向を直角に変え、部材の平滑性を保持した。いくつかの小さな端クラッキングが、0.1 インチの部材に伸ばすロール処理の後に観察された。これらの端は切り取るにより削除された。ロール処理の前後に部材の熱伝導率が測定され、 $520 \text{ W/m}\cdot\text{k}$ で変わらなかった。部材の強度は 4 ポイントの曲げ変形で測定され、 51 ksi だった。

【0068】

実施例 19

0.05 インチの厚さの複合材料板が、実施例 18 に記載された、ロール処理によって

生産された。この複合材料板は、500℃で密閉された型内でホットスタンプされ、0.125インチ×0.25インチ×0.03インチ厚の、周囲に0.05インチの高さのリムを有する部材を形成した。部材の熱伝導率はスタンピングの後も520 W/m・kで維持された。

【0069】

実施例20

1インチ×1インチ×0.2インチのサイズのダイヤモンド/A1複合材料板が、実施例7に記載されているようなスキーズキャストリングによって生産された。この複合材料板は、ついで500℃、15 k s iの圧力、0.0001/秒の歪速度で鍛造された。鍛造の後、複合材料板の厚さは0.25インチから0.05インチまで減らされた。これは150%の鍛造ひずみに相当する。鍛造の後の複合材料板の熱伝導率の測定は、鍛造の前の585 W/m・kの初期値から物質の熱伝導率が変わらなかったことを示した。

10

【0070】

実施例21

実施例6に記載された100-120のメッシュサイズ(100ミクロン)のコーティングしたダイヤモンド粉末を、セラミックのボールミル中でタンブリングすることにより、45ミクロンのサイズの純度99.8%のA1粉末と完全に混合した。2つの粉末の重量比は、ダイヤモンド/A1の複合材料の40体積%に相当するように選択された。粉末混合物は直径1インチのキャストリンググラフィットダイへ移され、6 k s iの圧力で、A1の融点に近い640℃で1時間ホットプレスされた。得られたダイヤモンドおよびアルミニウム複合材料ピレットは、強度および熱伝導率測定のために区分された。熱伝導率測定は、400-430 W/m・kの範囲にあった。4ポイント強度測定は46-52 k s iだった。

20

【0071】

実施例22

S i C転化コーティングを有するダイヤモンド粒子がその内部に分散された銅から作られた金属マトリックスで構成された複合材料構造物が、以下の方法によって形成された。実施例6のようにして作られた100-120ミクロンのサイズの、ルースなS i C転化コーティングを有するダイヤモンド粉末が、純度99.9%の銅粉末とよく混合され、V f = 35-40%のダイヤモンド充填量とされた。粉末は2時間タンブリングされて完全に混合され、真空にされたMoチューブ内に詰められ(canned)、15 k s iの圧力で、2時間、1025℃でヒップされた(hipped)。固められたピレットは、取り出され、75%の厚さ低下まで鍛造された。複合材料は熱伝導率測定のために区分され、550 W/m・kの値を示した。

30

【0072】

実施例23

例22に記載された、ダイヤモンド粒子がその内部に分散された銅金属マトリックスから構成された同様の複合材料構造物が、以下の方法によって形成された。100-120ミクロンのサイズの、ルースなS i C転化コーティングを有するダイヤモンドの粉末が、化学還元および電解の既知の技術を使用して銅で金属化された。膜厚は、完全な粉末固形成のために十分な、V f = 35-40%のダイヤモンド粒子充填量を提供するのに十分だった。コーティングを施した粉末は、プラズマアクティブ焼結法(PAS)として知られた公知のフィールドアクティブイテッド焼結法(FAST)を使用して固形成された。これはエネルギーのパルス放電中に、粉末(S i C表面転化コーティングを有する銅でコーティングされたダイヤモンド)に圧力を加えることからなる。熱伝導率は566 W/m・kであるとわかった。

40

【0073】

参考文献

- 1) "Packaged for the Road" Mechanical Engineering, July 2001
- 2) Lanxide Corporation published data sheets of composites fabricated by TM, PRI

50

MEX TM and PRIMEX CAST TM, USA, 1997.

3) Duralcan Corp. published data sheets of composites fabricated by stir casting , USA, 1994.

4) A.L.Geiger, D.P.H. Hasselman, and P.Welch, Acta Mater.,Vol 45, No.9, pp 3911-3914, (1997).

5) "A new substrate for Electronic packaging: AlSiC Composites", M. Occhinero, R .Adams, and K. Fennessey, Proceedings of the 4th Annual Portable by Design Conference, Electronics Design, March 24-27, pp 398-403.

6) "Diamond/Al metal matrix composites formed by the pressureless metal infiltration process", W. Johnson and B Sonuparalak, J. Materials Research, V8, No. 5, p p. 1169- 1173,1993.

7) "The effect of particle size on the thermal conductivity of AnS/diamond composites", A.Every, Y.Tzou, D.Hasseleman, R.Raj, Acta Mater., V40, No.1, pp.123-129 , 1992.

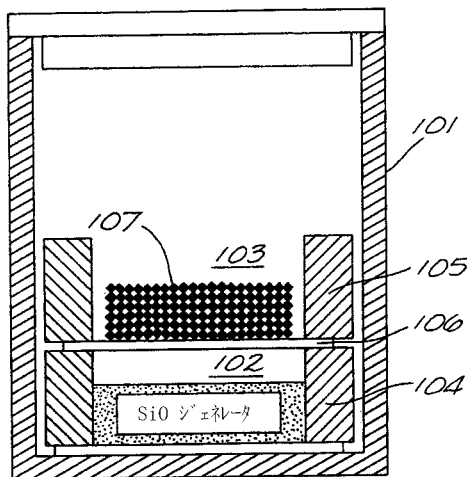
【図面の簡単な説明】

【0074】

【図1】図1は、本発明の、SiCでダイヤモンドの粒子をコーティングするCVRプロセスを行なうのに適当な装置の模式図である。

【図2】図2は、本発明の、ダイヤモンド金属マトリックス複合材料を形成するスクイーゾキャストイングアセンブリーを行なうのに適当な装置の模式図である。

【図1】



【図2】

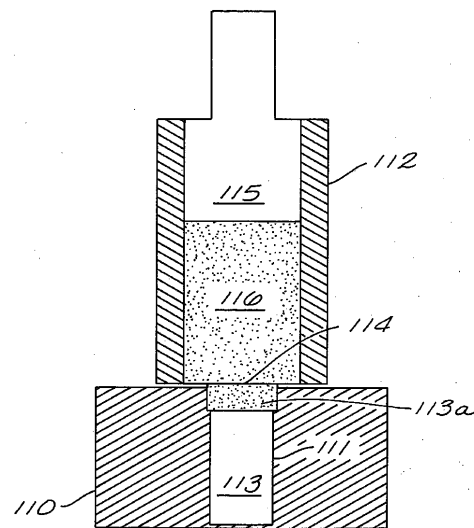


FIG. 2

フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I	
<i>C 2 2 C</i>	<i>1/05</i>	<i>(2006.01)</i>	<i>B 2 2 F</i> 7/00 K
<i>C 2 2 C</i>	<i>26/00</i>	<i>(2006.01)</i>	<i>C 2 2 C</i> 1/05 P
<i>H 0 1 L</i>	<i>21/205</i>	<i>(2006.01)</i>	<i>C 2 2 C</i> 26/00 A
			<i>H 0 1 L</i> 21/205

(72)発明者 ウィザース ジェイムス シー
アメリカ合衆国 アリゾナ州 8 5 7 5 0 ツーソン セルジアン プレイス 6 5 9 4 イー

(72)発明者 ローティフィ ラウフ オー
アメリカ合衆国 アリゾナ州 8 5 7 5 0 ツーソン バンタナ カンヨン ドライブ 6 5 0 7
エヌ

合議体

審判長 山田 靖

審判官 佐藤 陽一

審判官 小川 進

(56)参考文献 国際公開第 0 1 / 2 1 8 6 2 (WO, A 1)

特開平 1 0 - 2 2 3 8 1 2 (J P, A)

特開 2 0 0 3 - 9 5 7 4 3 (J P, A)

特開平 9 - 1 8 4 0 3 6 (J P, A)

特開平 1 1 - 6 7 9 9 1 (J P, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C22C 1/08- 1/10

C22C47/00-49/14