

(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
2023年2月9日(09.02.2023)



(10) 国際公開番号

WO 2023/013501 A1

(51) 国際特許分類:

H01L 23/373 (2006.01) *C22C 9/02* (2006.01)
B22F 3/24 (2006.01) *C22C 9/04* (2006.01)
C22C 1/05 (2006.01) *C22C 9/06* (2006.01)
C22C 9/00 (2006.01) *C22C 26/00* (2006.01)
C22C 9/01 (2006.01)

1 番 1 号 デンカ株式会社内 Tokyo (JP). 野口 孝眞(NOGUCHI Hyojin); 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目 1 番 1 号 デンカ株式会社内 Tokyo (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2022/028969

(22) 国際出願日: 2022年7月27日(27.07.2022)

(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 2021-129884 2021年8月6日(06.08.2021) JP

(71) 出願人: デンカ株式会社(DENKA COMPANY LIMITED) [JP/JP]; 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).

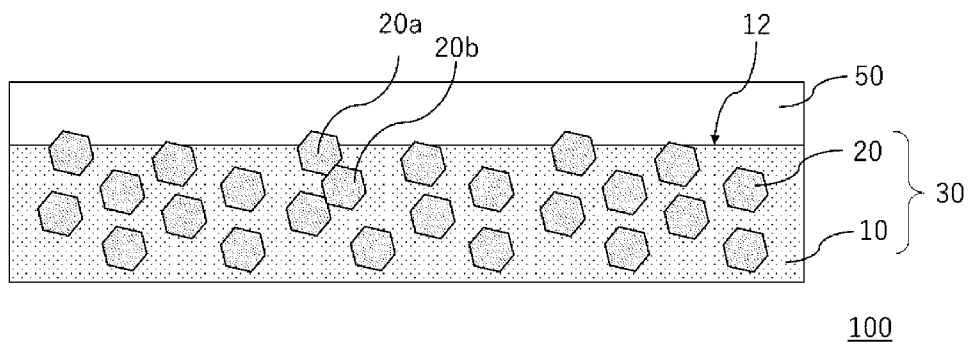
(72) 発明者: 永 沢 基 (NAGASAWA Motoi); 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目

(74) 代理人: 速水 進治(HAYAMI Shinji); 〒1410031 東京都品川区西五反田 7 丁目 9 番 2 号 KDX 五反田ビル 9 階 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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, 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, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD,

(54) Title: HEAT DISSIPATION MEMBER AND ELECTRONIC DEVICE

(54) 発明の名称: 放熱部材および電子装置



(57) Abstract: This heat dissipation member includes a copper-diamond composite in which a plurality of diamond particles are dispersed in a copper-containing metal matrix, and a metal film bonded to at least one face of the copper-diamond composite, wherein: in at least one of the cross sections in the layering direction of the heat dissipation member, at least one or more of the plurality of diamond particles are in contact with both the metal film and the metal matrix; and in the surface of the copper-diamond composite, the proportion of the exposed area of the diamond particles is 1-50% (inclusive).

(57) 要約: 本発明の放熱部材は、銅を含有する金属マトリックス中に複数のダイヤモンド粒子が分散した、銅-ダイヤモンド複合体と、銅-ダイヤモンド複合体の少なくとも一方の面に接合した金属膜と、を含む放熱部材であって、放熱部材の積層方向における断面の少なくとも一つにおいて、複数のダイヤモンド粒子の少なくとも一個以上が、金属膜および金属マトリックスの両方に接するように構成されており、銅-ダイヤモンド複合体の表面において、ダイヤモンド粒子の露出面積の割合が、1%以上50%以下となるものである。

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：放熱部材および電子装置

技術分野

[0001] 本発明は、放熱部材および電子装置に関する。

背景技術

[0002] これまで銅－ダイヤモンド複合体を用いた放熱部材について様々な開発がなされてきた。この種の技術として、例えば、特許文献１に記載の技術が知られている。特許文献１には、金属マトリクス－熱伝導体粒子の複合材料に関して、このような複合材料にはダイヤモンド粒子やＳｉＣ粒子等のセラミックス粒子を含有しているため、複合材料の表面を研磨して平坦に加工することは困難であると記載されている（段落００１２）。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献１：国際公開第２０１６／０３５７９６号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] しかしながら、本発明者が検討した結果、上記特許文献１に記載の放熱部材において、熱伝導率について改善の余地があることが判明した。

課題を解決するための手段

[0005] 本発明者がさらに検討したところ、金属膜および金属マトリックスの両方に接するダイヤモンド粒子を少なくとも一個以上含むように構成した上で、ダイヤモンド粒子の露出面積を所定値以下とすることにより、放熱部材の熱伝導率を向上できることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0006] 本発明の一態様によれば、以下の放熱部材および電子装置が提供される。

[0007] １．銅を含有する金属マトリックス中に複数のダイヤモンド粒子が分散した、銅－ダイヤモンド複合体と、

前記銅－ダイヤモンド複合体の少なくとも一方の面に接合した金属膜と、

を含む放熱部材であって、

当該放熱部材の積層方向における断面の少なくとも一つにおいて、前記複数のダイヤモンド粒子の少なくとも一個以上が、前記金属膜および前記金属マトリックスの両方に接するように構成されており、

前記銅－ダイヤモンド複合体の表面において、（前記ダイヤモンド粒子の露出面積／前記金属マトリックスの面積）×１００％から求められる前記ダイヤモンド粒子の露出面積の割合が、１％以上５０％以下である、放熱部材。

２． １．に記載の放熱部材であって、

前記複数のダイヤモンド粒子が、前記金属膜および前記金属マトリックスの両方に接する第一ダイヤモンド粒子の他に、前記金属マトリックス中に全面が埋設された第二ダイヤモンド粒子を含み、

前記第一ダイヤモンド粒子の少なくとも一個と前記第二ダイヤモンド粒子の少なくとも一個とが接するように構成される、放熱部材。

３． １．または２のいずれか一つに記載の放熱部材であって、

前記銅－ダイヤモンド複合体の熱伝導率が $600\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上である、放熱部材。

４． １．～３．のいずれか一つに記載の放熱部材であって、

画像式粒度分布測定装置を用いて前記ダイヤモンド粒子の粒度分布を測定したとき、前記ダイヤモンド粒子の球形度の体積粒度分布において、累積値が５０％となる球形度の S_{50} が０．７５以上である、放熱部材。

５． １．～４．のいずれか一つに記載の放熱部材であって、

画像式粒度分布測定装置を用いて前記ダイヤモンド粒子の粒度分布を測定したとき、前記ダイヤモンド粒子の粒子径の体積粒度分布において、累積値が５０％となる粒子径の D_{50} が $300\text{ }\mu\text{m}$ 以下である、放熱部材。

６． １．～５．のいずれか一つに記載の放熱部材と、

前記放熱部材上に設けられた電子部品と、を備える、電子装置。

発明の効果

[0008] 本発明によれば、熱伝導率に優れた放熱部材、およびそれを用いた電子装置が提供される。

図面の簡単な説明

[0009] [図1]本実施形態に係る放熱部材の構成の一例を示す断面模式図である。

[図2]実施例1の放熱部材における積層方向の断面図である。

発明を実施するための形態

[0010] 以下、本発明の実施の形態について、図面を用いて説明する。なお、すべての図面において、同様な構成要素には同様の符号を付し、適宜説明を省略する。また、図は概略図であり、実際の寸法比率とは一致していない。

[0011] 本実施形態の放熱部材の概要について、図1を用いて説明する。

図1は、本実施形態に係る放熱部材の構成の一例を示す断面模式図である。

[0012] 本実施形態の放熱部材100は、銅を含有する金属マトリックス10中に複数のダイヤモンド粒子20が分散した、銅－ダイヤモンド複合体30と、銅－ダイヤモンド複合体30の少なくとも一方の面に接合した金属膜50と、を含む。

[0013] この放熱部材100は、放熱部材100の積層方向における断面の少なくとも一つにおいて、好ましくは当該積層方向における断面のうち少なくとも2つ断面のそれぞれにおいて、複数のダイヤモンド粒子20が、金属膜50および金属マトリックス10の両方に接する第一ダイヤモンド粒子（ダイヤモンド粒子20a）を少なくとも一個以上含むように構成される。

[0014] 本実施形態の放熱部材100において、銅－ダイヤモンド複合体30（以下、単に「複合体」と呼称することもある。）の金属相である金属マトリックス10と金属膜50との両方に接する第一ダイヤモンド粒子（ダイヤモンド粒子20a）が少なくとも一個以上存在する。このような両層に跨がるダイヤモンド粒子20aにより、ダイヤモンド固有の熱伝導特性を複合体から金属膜50に亘ってよく発現させることが可能となる。これにより、放熱部材100の熱伝導率を向上できる。

[0015] また、銅－ダイヤモンド複合体 30 の表面（接合界面 12）において、（ダイヤモンド粒子 20 a の露出面積／金属マトリックス 10 の面積）× 100 % から求められる、ダイヤモンド粒子 20 a の露出面積の割合の上限は、例えば、50 % 以下、好ましくは 40 % 以下、より好ましくは 30 % 以下である。

一方、ダイヤモンド粒子 20 a の露出面積の割合の下限は、1 % 以上、好ましくは 5 % 以上、好ましくは 10 % 以上である。

このような範囲内とすることにより、放熱部材 100 における熱伝導率を向上できる。

[0016] また、放熱部材 100 において、複数のダイヤモンド粒子 20 が、金属マトリックス 10 と金属膜 50 との両方に接する第一ダイヤモンド粒子（ダイヤモンド粒子 20 a）の他に、金属マトリックス 10 中に全面が埋設された第二ダイヤモンド粒子（ダイヤモンド粒子 20 b）を含み、第一ダイヤモンド粒子の少なくとも一個（ダイヤモンド粒子 20 a）と第二ダイヤモンド粒子の少なくとも一個（ダイヤモンド粒子 20 b）とが接するように構成されてもよい。このような接続構造は、ダイヤモンド粒子が少なくとも 2 個以上、好ましくは 3 個以上、より好ましくは 4 個以上で構成されてもよい。

これにより、放熱部材 100 の熱伝導率を向上できる。

なお、連結構造は、放熱部材 100 の厚み方向の断面の少なくとも一つで確認される。

[0017] また、本発明者のさらなる知見によれば、ダイヤモンド粒子の粒径や球形状度、研削・研磨に用いる砥石の粒度（番手）などを適切に調整して、緩やかな条件の研削手段を用いることにより、銅－ダイヤモンド複合体の表面における平滑度合やダイヤモンド粒子 20 a の露出度合を適切に制御できることを見出した。

また、詳細なメカニズムは定かではないが、穏やかな条件の研削手段により、ダイヤモンド粒子の割れや脱落を抑制しつつ、銅－ダイヤモンド複合体の表面を適度に平滑化することで、かかる複合体の表面に形成する金属膜の

膜厚を薄膜化することができ、その結果、銅ーダイヤモンド複合体および金属膜で構成される放熱部材全体の熱伝導率を向上できると考えられる。すなわち、銅ーダイヤモンド複合体の表面に平滑化処理がなされていない場合、表面に存在する大きな凹凸を埋めるために金属膜を厚く形成する必要があるが、複合体の表面における金属膜を厚膜化すると、全体の熱伝導率が低下する恐れがある。

[0018] 放熱部材100の熱伝導率の下限は、好ましくは $600\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、より好ましくは $630\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、さらに好ましくは $650\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上である。これにより、放熱部材の放熱特性を高められる。

一方、放熱部材100の熱伝導率の上限は、特に限定されないが、好ましくは $950\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以下、より好ましくは $900\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以下、さらに好ましくは $870\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以下である。

[0019] 本実施形態の放熱部材の構成について詳細を説明する。

[0020] 放熱部材100は、銅ーダイヤモンド複合体30および金属膜50を備える。

[0021] (銅ーダイヤモンド複合体)

銅ーダイヤモンド複合体30は、銅を含有する金属マトリックス10と、金属マトリックス10中に存在する複数のダイヤモンド粒子20を含む。

[0022] 銅ーダイヤモンド複合体30の熱伝導率の下限は、好ましくは $600\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、より好ましくは $630\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、さらに好ましくは $650\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上である。これにより、放熱部材の放熱特性を高められる。

一方、銅ーダイヤモンド複合体30の熱伝導率の上限は、特に限定されないが、好ましくは $950\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以下、より好ましくは $900\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以下、さらに好ましくは $870\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以下である。

[0023] 銅ーダイヤモンド複合体30の形状、サイズは、用途に応じて適宜設定され得る。

銅ーダイヤモンド複合体30の形状の一例は、例えば、平板状、ブロック状、棒状等が挙げられる。

[0024] 金属マトリックス10は、銅を含有するものであればよく、銅以外の他の高熱伝導性金属を含有してもよい。すなわち、金属マトリックス10は、銅相および／または銅合金相で構成される。

[0025] 金属マトリックス10中の主成分は、熱伝導性やコストの観点から、銅が好ましい。

主成分の銅の含有量の下限は、金属マトリックス10の100質量%中、好ましくは50質量%以上、より好ましくは60質量%以上、さらに好ましくは70質量%以上、特に好ましくは80質量%以上、最も好ましくは90質量%以上である。これにより、銅および銅合金の良好な熱伝導率を利用できる。また、ロウ付け性や表面平滑性の確保のためマトリックスと同じ銅を表面層として活用でき、他の表面被膜層形成を省ける。

主成分の銅の含有量の上限は、金属マトリックス10の100質量%中、とくに限定されないが、100質量%以下でもよく、99質量%以下でもよい。

[0026] 他の高熱伝導性金属として、例えば、銀、金、アルミニウム等が挙げられる。これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。銅とともに他の高熱伝導性金属を組み合わせる場合、銅と他の高熱伝導性金属とで形成した合金や、複合材料を用いることができる。

なお、金属マトリックス10は、本発明の効果を損なわない範囲であれば、高熱伝導性金属以外の金属等を許容する。

[0027] また、金属マトリックス10として、銅合金を用いる場合、銅合金は、CuAg、CuAl、CuSn、CuZr、CrCu等が挙げられる。

[0028] 金属マトリックス10は、例えば、銅（および必要に応じて他の高熱伝導性金属）を含む金属粉末の焼結体である。本実施形態において、金属マトリックス10は、複数のダイヤモンド粒子20の少なくとも一部が内部に埋設された焼結体で構成される。

[0029] ダイヤモンド粒子20は、複数の粒子の全体が金属マトリックス10中に埋設された状態であるが、1個の粒子または複数の粒子における少なくとも

一部が銅－ダイヤモンド複合体 30 の接合界面 12 において露出するように構成されてもよい。

[0030] ダイヤモンド粒子 20 は、表面に金属含有被覆層を有しないノンコートダイヤモンド粒子、および表面に金属含有被覆層を有するコートダイヤモンド粒子の少なくとも一方を含む。ダイヤモンドと金属粒子間の密着性向上や分散性の観点から、コートダイヤモンド粒子がより好ましい。

[0031] 銅－ダイヤモンド複合体 30 中のダイヤモンド粒子 20 の体積比率の下限は、好ましくは 10 体積%以上、より好ましくは 20 体積%以上、さらに好ましくは 30 体積%以上である。これにより、銅－ダイヤモンド複合体 30 の熱伝導性を高められる。

一方、銅－ダイヤモンド複合体 30 中のダイヤモンド粒子 20 の体積比率の上限は、例えば、好ましくは 80 体積%以下、より好ましくは 70 体積%以下、さらに好ましくは 60 体積%以下である。これにより、銅－ダイヤモンド複合体 30 中において、ダイヤモンド粒子 20 の周囲に銅粉の付着が低下する等により大きな気孔が残留することを抑制でき、製造安定性に優れた構造を実現できる。

[0032] ダイヤモンド粒子 20 として、コートダイヤモンド粒子を用いる場合、コートダイヤモンド粒子中の金属含有被覆層は、モリブデン、タングステン、クロム、ジルコニウム、ハフニウム、バナジウム、ニオブ、タンタルおよびこれらの合金等を含んでもよい。これらを単独で用いても 2 種以上を組み合わせ用いてもよい。また、金属含有被覆層は、粒子表面の少なくとも一部または全面を覆うように構成される。

[0033] ダイヤモンド粒子 20 の球形度や粒子径は、以下の手順に従って測定する。

ダイヤモンド粒子 20 の粒度分布を、画像式粒度分布測定装置（例えば、Malvern 社製、Morphologi 4）を用いて測定する。粒度分布は、形状分布や粒子径分布を含む。

得られた粒度分布から、球形度の体積粒度分布や粒子径の体積粒度分布を

作成する。

そして、ダイヤモンド粒子 20 の球形度の体積粒度分布において、所定の累積値の球形度や、所定の累積値の粒子径を求める。

ここで、球形度および粒子径を以下のように定義する。

球形度：投影された物体と同じ面積を持つ円周と物体との円周長の比率

粒子径：粒子画像の輪郭上の 2 点における最大長さ

[0034] 上記の手順に従って測定される、ダイヤモンド粒子 20 における累積値が 50% となる球形度 S_{50} の下限は、例えば、0.75 以上、好ましくは 0.80 以上、より好ましくは 0.85 以上、さらに好ましくは 0.9 以上である。これにより、ダイヤモンド粒子 20 の充填度合を高め、複合体の熱伝導率を高められる。

一方、上記球形度 S_{50} の上限は、とくに限定されないが、例えば、1.0 以下、0.99 以下でもよい。

[0035] 上記の手順に従って測定される、ダイヤモンド粒子 20 における累積値が 50% となる粒子径 D_{50} の上限は、例えば、300 μm 以下、好ましくは 270 μm 以下、より好ましくは 250 μm 以下、さらに好ましくは 220 μm 以下、特に好ましくは 200 μm 以下、最も好ましくは 180 μm 以下である。これにより、ダイヤモンド粒子 20 の充填度合を高め、複合体の熱伝導率を高められる。

上記粒子径 D_{50} の下限は、とくに限定されないが、例えば、5 μm 以上でもよい。

[0036] 銅-ダイヤモンド複合体 30 の、JIS B 0621:1984 に準拠して算出される平坦度の上限は、例えば、40 μm 以下、好ましくは 39 μm 以下、より好ましくは 38 μm 以下である。これにより、複合体と金属膜との密着性を向上できる。

一方、上記の平坦度の下限は、とくに限定されないが、1 μm 以上としてもよい。

[0037] 銅-ダイヤモンド複合体 30 の表面（接合界面 12）において露出してい

るダイヤモンド粒子表面の、JIS B 0601:2013に準拠して算出される十点平均高さの上限は、例えば、 $5\text{ }\mu\text{m}$ 以下、好ましくは $4\text{ }\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $3\text{ }\mu\text{m}$ 以下である。これにより、複合体と金属膜との密着性を向上できる。

一方、上記のダイヤモンド粒子表面の十点平均高さの下限は、とくに限定されないが、 $0.1\text{ }\mu\text{m}$ 以上としてもよい。

[0038] (金属膜)

金属膜50は、銅-ダイヤモンド複合体30の少なくとも一面上に形成されていればよく、例えば、平板状の銅-ダイヤモンド複合体30の両面にそれぞれ形成されてもよい。

[0039] 金属膜50は、銅、銀、金、アルミニウム、ニッケル、亜鉛、錫、およびマグネシウムからなる群から選ばれる一または二以上を含んでもよい。好ましくは、金属膜50が、金属マトリックス10中の主成分の金属と同種の金属を含むことが好ましく、少なくとも銅または銅合金を含むことが好ましい。

[0040] 主成分の銅の含有量は、金属膜50の100質量%中、好ましくは50質量%以上、より好ましくは60質量%以上、さらに好ましくは70質量%以上、特に好ましくは80質量%以上、最も好ましくは90質量%以上である。

主成分の銅の含有量の上限は、金属膜50の100質量%中、とくに限定されないが、100質量%以下でもよく、99質量%以下でもよい。

[0041] 金属膜50の膜厚の上限は、好ましくは $150\text{ }\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $120\text{ }\mu\text{m}$ 以下、さらに好ましくは $100\text{ }\mu\text{m}$ 以下である。これにより、放熱部材の熱伝導率を高められる。

一方、金属膜50の膜厚の下限は、好ましくは $10\text{ }\mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $15\text{ }\mu\text{m}$ 以上、さらに好ましくは $20\text{ }\mu\text{m}$ 以上である。これにより、複合体との密着強度や自身の耐久性を高められる。

[0042] 金属膜50は、例えば、スパッタ法、メッキ法により得られる。

金属膜50中の金属の結晶粒径の平均値は、好ましくは5nm以上50nm以下、より好ましくは10nm以上40nm以下、さらに好ましくは20nm以上30nm以下である。結晶粒径の平均値は、透過型電子顕微鏡（TEM）により測定する。

[0043] 本実施形態の電子装置は、上記の放熱部材と、放熱部材上に設けられた電子部品とを備える。

[0044] 電子部品としては、例えば、半導体素子等が挙げられる。半導体素子の具体例として、例えば、パワー半導体、画像表示素子、マイクロプロセッサユニット、レーザダイオード等が挙げられる。

[0045] 放熱部材は、ヒートシンクやヒートスプレッド等に用いられる。ヒートシンクは、半導体素子の動作時に発生する熱を外部空間に放熱し、ヒートスプレッドは、半導体素子の発熱を他の部材に伝熱する。

[0046] 電子部品は、放熱部材に直接またはセラミック基板等を介して間接的に設置されてもよい。

[0047] 本実施形態の放熱部材の製造方法の一例を説明する。

[0048] 放熱部材の製造方法の一例は、原料混合工程、焼結工程、平滑化工程、および成膜工程を含む。

[0049] 原料混合工程では、銅粉末等の銅を含む金属粉末、およびダイヤモンド粒子を混合し、混合物を得る。

原料粉末の混合は、乾式、湿式の種々の方法を適用できるが、乾式混合方法を用いてもよい。

[0050] 焼成工程では、金属粉末とダイヤモンド粒子との混合物を焼成し、銅とダイヤモンド粒子との複合焼結体を得る。

焼成温度は、金属粉末に含まれる金属種に応じて適宜選択できるが、銅粉末の場合、好ましくは800℃以上1100℃以下、より好ましくは850℃以上1000℃以下である。焼成温度を800℃以上とすることにより、銅-ダイヤモンド複合体が緻密化し、所望の熱伝導率が得られる。焼成温度を1100℃以下とすることにより、ダイヤモンド粒子の界面のグラファイ

ト化による劣化を抑制し、ダイヤモンド本来の熱伝導率の低下を防止できる。

焼成時間は、特に限定されないが、好ましくは5分以上3時間以下、より好ましくは10分以上2時間以下である。焼成時間を5分以上とすることにより、銅ーダイヤモンド複合体が緻密化し、所望の熱伝導率を得られる。焼成時間を3時間以下とすることにより、コートダイヤモンド粒子中のダイヤモンドと表面を被覆する金属との間で炭化物の形成や厚膜化が生じて、フォノン散乱による熱伝導率低下や線膨張率差によるクラックが引き起こされることを抑制できる。また複合体の生産性を高められる。

[0051] 焼成工程では、常圧焼結方法でも加圧焼結方法でも構わないが、緻密な複合体を得るために加圧焼結方法が好ましい。

[0052] 加圧焼結方法としては、ホットプレス焼結や放電プラズマ焼結（SPS）、熱間等方加圧焼結（HIP）等が挙げられる。ホットプレス焼結やSPS焼結の場合、圧力は、好ましくは10MPa以上、より好ましくは30MPa以上である。一方、ホットプレス焼結やSPS焼結の場合、圧力は、100MPa以下が好ましい。圧力を10MPa以上とすることにより、銅ーダイヤモンド複合体が緻密化し、所望の熱伝導率を得られる。圧力を100MPa以下とすることにより、ダイヤモンドの割れが生じ、ダイヤ界面の増加やダイヤ破砕面と金属間との密着性が低下して、ダイヤモンド本来の熱伝導率が低下してしまうことを防止できる。

[0053] 平滑化工程では、複合焼結体の表面の少なくとも一部を研削・研磨し、銅ーダイヤモンド複合体を得る。

[0054] 成膜工程では、平滑化した銅ーダイヤモンド複合体の表面の少なくとも一部に金属膜を形成する。

[0055] 金属膜を形成する方法は、スパッタ法、めっき法、銅箔を用いた加圧共焼成法などの一般的な方法を採用してもよいが、薄膜化するためにスパッタ法を用いてもよい。

また、金属膜の表面の少なくとも一部を平面研削・研磨をしてもよい。こ

れにより、成膜工程後における金属膜の表面平滑性を向上できる。

[0056] また、焼成工程と平滑化工程との間に、アニール工程を追加して行ってもよい。

また、成膜工程の前に、銅－ダイヤモンド複合体において、形状加工や穴あき加工等の加工を施す工程を行ってもよい。

[0057] 以上、本発明の実施形態について述べたが、これらは本発明の例示であり、上記以外の様々な構成を採用することができる。また、本発明は上述の実施形態に限定されるものではなく、本発明の目的を達成できる範囲での変形、改良等は本発明に含まれる。

実施例

[0058] 以下、本発明について実施例を参照して詳細に説明するが、本発明は、これらの実施例の記載に何ら限定されるものではない。

[0059] <複合体、放熱部材の作製>

(実施例1)

銅粉末とダイヤモンド粒子(Moコート)とを50体積%：50体積%になるように秤量し、秤量した粉末をV型混合機で均一に混合し、混合物を得た(原料混合工程)。

続いて、SPS焼成装置を用いて、得られた混合物を型内に充填し、30MPaの加圧条件下で、900℃で1時間加熱焼結し、銅マトリックス中に複数のダイヤモンド粒子が分散してなる、円板状の複合焼結体を得た(焼結工程)。

[0060] 原料のダイヤモンド粒子について、画像式粒度分布測定装置(Malvern社製、Morphologi4)を用いてダイヤモンド粒子の粒度分布(形状分布／粒子径分布)を測定した。

ダイヤモンド粒子の球形度の体積粒度分布において、累積値が50%となる球形度 S_{50} 、ダイヤモンド粒子の粒子径の体積粒度分布において、累積値が50%となる粒子径 D_{50} を求めた。これらの値は、2回測定した値の平均値とした。

球形度および粒子径を以下のように定義した。

球形度：投影された物体と同じ面積を持つ円周と物体との円周長の比率

粒子径：粒子画像の輪郭上の2点における最大長さ

その結果、使用したダイヤモンド粒子における球形度 S_{50} が0.9、粒子径 D_{50} が $200\mu\text{m}$ であった。

[0061] 得られた複合焼結体の両面を、#400の砥石を用いて平面研削・研磨して平滑化し、外径 $30\text{mm}\phi$ 、厚み 3mm の銅－ダイヤモンド複合体（研削した複合焼結体）を得た（平滑化工程）。

[0062] 銅－ダイヤモンド複合体中のダイヤモンド粒子の含有量が、50.8体積％であった。

銅－ダイヤモンド複合体の、平滑化した表面のうちの一方の面（銅マトリックスからダイヤモンド粒子に跨がる面領域）における平坦度を、デジタルマイクロスコープ（VHX-8000、Keyence製）により観察・測定した。JIS B 0621：1984に準拠して算出される平坦度が $30.1\mu\text{m}$ であった。

また、JIS B 0601：2013に準拠して算出される、銅－ダイヤモンド複合体の表面において露出しているダイヤモンド粒子表面の十点平均高さ（ダイヤ面の十点平均高さ R_z ）が $1.5\mu\text{m}$ であった。

また銅－ダイヤモンド複合体の表面において、銅マトリックスの面積とダイヤモンド粒子が露出している面積とを測定した。そして、ダイヤモンド粒子の露出面積の割合（％）を、式：ダイヤモンド粒子の露出面積／銅マトリックス（金属マトリックス）の面積 $\times 100$ から求めた。

また銅－ダイヤモンド複合体の熱伝導率をレーザーフラッシュ法により測定した結果、 $753\text{W}/\text{m}\cdot\text{K}$ であった。なお、レーザーフラッシュ法の測定は、サンプル表面にカーボンコーティングを施し、室温下で測定とした。

[0063] その後、銅－ダイヤモンド複合体の両面上のそれぞれに、スパッタ法により、厚み $30\mu\text{m}$ のCu膜を成膜し、Cu膜／銅－ダイヤモンド複合体／Cu膜で構成される放熱部材を得た（成膜工程）。

放熱部材の熱伝導率をレーザーフラッシュ法により測定した結果、 $748 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ であった。

放熱部材中のCu膜の結晶粒径の平均値が 26 nm であった。なお、結晶粒径の測定方法は、透過型電子顕微鏡により得られた組織から $1 \mu\text{m}^2$ 内の結晶粒数から算出した。

[0064] 実施例1の放熱部材の厚み方向（複合体とCu膜との積層方向）における断面SEM画像を図2に示す。

図2において、銅-ダイヤモンド複合体中の銅相（金属マトリックス）とCu膜（金属膜）との両方に接する第一ダイヤモンド粒子の存在が複数個確認された。また、複合体中の銅相中に全周囲が埋設された第二ダイヤモンド粒子と、複合体から一部が露出した第一ダイヤモンドとが接する連結構造が確認された。

[0065] （実施例2～6、比較例1，2）

表1のダイヤモンド粒子の粒径、球形度を変更し、研削・研磨条件を備考に記載の条件に変更した以外は、実施例1と同様にして、複合体および放熱部材を得た。

得られた複合体および放熱部材に対して、実施例1と同様の評価を行った。

なお、実施例2～6の放熱部材において、2つの断面SEM画像のそれぞれにて、上記の第一ダイヤモンド粒子の存在が複数個、上記第二ダイヤモンド粒子および上記の連結構造の存在が確認された。

[0066]

[表1]

表1	ダイヤモンド粒子		銅-ダイヤモンド複合体			Cu膜・銅-ダイヤモンド複合体/Cu膜		備考
	粒子径D ₅₀ (μm)	球形度S ₉₀	平坦度 (μm)	ダイヤモンド粒子の 露出面積の割合(%)	熱伝導率 (W/m・K)	Cu膜厚 (μm)	熱伝導率 (W/m・K)	
実施例1	200	0.9	30.1	18.7	753	30	748	#400研削・研磨
実施例2	200	0.8	36.5	25.9	693	30	685	#400研削・研磨、ダイヤ球形状
実施例3	200	0.9	32.9	19.3	758	100	637	#400研削・研磨、Cu厚み
実施例4	200	0.9	30.5	22.8	751	20	749	
実施例5	100	0.9	27.3	15.5	755	30	753	#400研削・研磨、ダイヤ粒径
実施例6	50	0.9	25.4	14.2	707	30	701	
比較例1	200	0.9	24.7	51.0	749	30	582	研削無し
比較例2	200	0.7	41.5	56.9	628	30	593	#400研削・研磨、ダイヤ球形状

[0067] 表1に示したとおり、実施例1～6の放熱部材は、比較例1，2比べて、優れた熱伝導率を実現できる結果を示した。

[0068] この出願は、2021年8月6日に出願された日本出願特願2021-129884号を基礎とする優先権を主張し、その開示の全てをここに取り込む。

符号の説明

[0069] 10 金属マトリックス

- 1 2 接合界面
- 2 0、2 0 a、2 0 b ダイヤモンド粒子
- 3 0 銅－ダイヤモンド複合体
- 5 0 金属膜
- 1 0 0 放熱部材

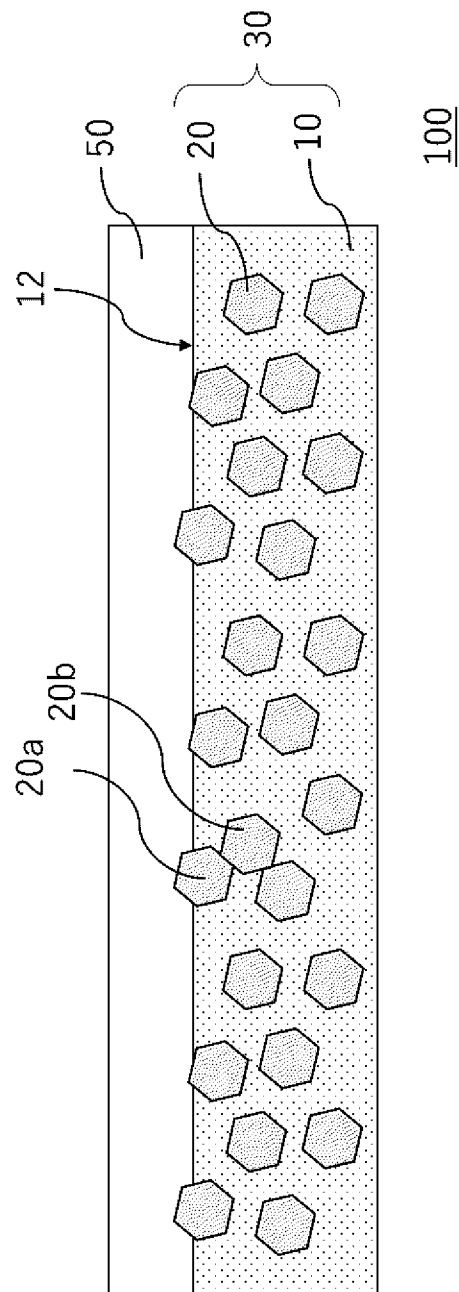
請求の範囲

- [請求項1] 銅を含有する金属マトリックス中に複数のダイヤモンド粒子が分散した、銅ーダイヤモンド複合体と、
- 前記銅ーダイヤモンド複合体の少なくとも一方の面に接合した金属膜と、
- を含む放熱部材であって、
- 当該放熱部材の積層方向における断面の少なくとも一つにおいて、前記複数のダイヤモンド粒子の少なくとも一個以上が、前記金属膜および前記金属マトリックスの両方に接するように構成されており、
- 前記銅ーダイヤモンド複合体の表面において、（前記ダイヤモンド粒子の露出面積／前記金属マトリックスの面積）×100％から求められる前記ダイヤモンド粒子の露出面積の割合が、1％以上50％以下である、放熱部材。
- [請求項2] 請求項1に記載の放熱部材であって、
- 前記複数のダイヤモンド粒子が、前記金属膜および前記金属マトリックスの両方に接する第一ダイヤモンド粒子の他に、前記金属マトリックス中に全面が埋設された第二ダイヤモンド粒子を含み、
- 前記第一ダイヤモンド粒子の少なくとも一個と前記第二ダイヤモンド粒子の少なくとも一個とが接するように構成される、放熱部材。
- [請求項3] 請求項1または2のいずれか一項に記載の放熱部材であって、
- 前記銅ーダイヤモンド複合体の熱伝導率が600W／m・K以上である、放熱部材。
- [請求項4] 請求項1～3のいずれか一項に記載の放熱部材であって、
- 画像式粒度分布測定装置を用いて前記ダイヤモンド粒子の粒度分布を測定したとき、前記ダイヤモンド粒子の球形度の体積粒度分布において、累積値が50％となる球形度の S_{50} が0.75以上である、放熱部材。
- [請求項5] 請求項1～4のいずれか一項に記載の放熱部材であって、

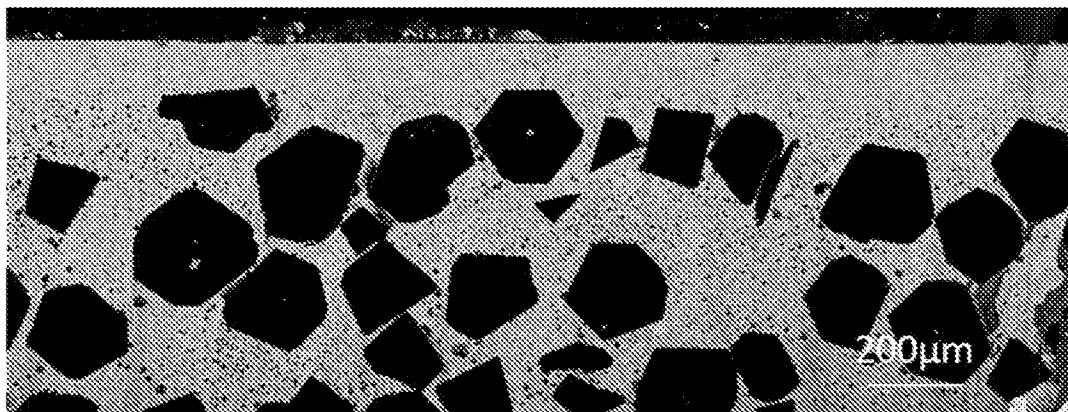
画像式粒度分布測定装置を用いて前記ダイヤモンド粒子の粒度分布を測定したとき、前記ダイヤモンド粒子の粒子径の体積粒度分布において、累積値が50%となる粒子径の D_{50} が300 μm 以下である、放熱部材。

[請求項6] 請求項1～5のいずれか一項に記載の放熱部材と、
前記放熱部材上に設けられた電子部品と、を備える、電子装置。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/028969

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER <i>H01L 23/373</i> (2006.01)i; <i>B22F 3/24</i> (2006.01)i; <i>C22C 1/05</i> (2006.01)i; <i>C22C 9/00</i> (2006.01)i; <i>C22C 9/01</i> (2006.01)i; <i>C22C 9/02</i> (2006.01)i; <i>C22C 9/04</i> (2006.01)i; <i>C22C 9/06</i> (2006.01)i; <i>C22C 26/00</i> (2006.01)i FI: H01L23/36 M; B22F3/24 102Z; C22C1/05 P; C22C9/00; C22C9/01; C22C9/02; C22C9/04; C22C9/06; C22C26/00 Z 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) H01L23/373; B22F3/24; C22C1/05; C22C9/00; C22C9/01; C22C9/02; C22C9/04; C22C9/06; C22C26/00 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 1971-2022 Registered utility model specifications of Japan 1996-2022 Published registered utility model applications of Japan 1994-2022 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)																				
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT <table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse; margin-top: 5px;"> <thead> <tr> <th style="width: 10%;">Category*</th> <th style="width: 70%;">Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</th> <th style="width: 20%;">Relevant to claim No.</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>JP 2013-098491 A (SUMITOMO ELECTRIC IND., LTD.) 20 May 2013 (2013-05-20) paragraphs [0001]-[0182], fig. 1, 4</td> <td>1, 6</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>paragraphs [0001]-[0182], fig. 1, 4</td> <td>2-5</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>JP 2015-160996 A (SHINSHU UNIV.) 07 September 2015 (2015-09-07) paragraphs [0049], [0059], [0062]-[0068], fig. 2, 3, 6</td> <td>2-5</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>entire text, all drawings</td> <td>1, 6</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2008-085096 A (KYOCERA CORP.) 10 April 2008 (2008-04-10) entire text, all drawings</td> <td>1-6</td> </tr> </tbody> </table>			Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	X	JP 2013-098491 A (SUMITOMO ELECTRIC IND., LTD.) 20 May 2013 (2013-05-20) paragraphs [0001]-[0182], fig. 1, 4	1, 6	Y	paragraphs [0001]-[0182], fig. 1, 4	2-5	Y	JP 2015-160996 A (SHINSHU UNIV.) 07 September 2015 (2015-09-07) paragraphs [0049], [0059], [0062]-[0068], fig. 2, 3, 6	2-5	A	entire text, all drawings	1, 6	A	JP 2008-085096 A (KYOCERA CORP.) 10 April 2008 (2008-04-10) entire text, all drawings	1-6
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.																		
X	JP 2013-098491 A (SUMITOMO ELECTRIC IND., LTD.) 20 May 2013 (2013-05-20) paragraphs [0001]-[0182], fig. 1, 4	1, 6																		
Y	paragraphs [0001]-[0182], fig. 1, 4	2-5																		
Y	JP 2015-160996 A (SHINSHU UNIV.) 07 September 2015 (2015-09-07) paragraphs [0049], [0059], [0062]-[0068], fig. 2, 3, 6	2-5																		
A	entire text, all drawings	1, 6																		
A	JP 2008-085096 A (KYOCERA CORP.) 10 April 2008 (2008-04-10) entire text, all drawings	1-6																		
☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☒ See patent family annex.																				
<table style="width: 100%;"> <tr> <td style="width: 50%; vertical-align: top;"> * Special categories of cited documents: “A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance “E” earlier application or patent but published on or after the international filing date “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) “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 </td> <td style="width: 50%; vertical-align: top;"> “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 “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 “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 “&” document member of the same patent family </td> </tr> </table>			* Special categories of cited documents: “A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance “E” earlier application or patent but published on or after the international filing date “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) “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	“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 “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 “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 “&” document member of the same patent family																
* Special categories of cited documents: “A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance “E” earlier application or patent but published on or after the international filing date “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) “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	“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 “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 “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 “&” document member of the same patent family																			
Date of the actual completion of the international search 29 August 2022		Date of mailing of the international search report 13 September 2022																		
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.																		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2022/028969

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	2013-098491	A	20 May 2013	(Family: none)	
JP	2015-160996	A	07 September 2015	(Family: none)	
JP	2008-085096	A	10 April 2008	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） H01L 23/373(2006.01)i; B22F 3/24(2006.01)i; C22C 1/05(2006.01)i; C22C 9/00(2006.01)i; C22C 9/01(2006.01)i; C22C 9/02(2006.01)i; C22C 9/04(2006.01)i; C22C 9/06(2006.01)i; C22C 26/00(2006.01)i FI: H01L23/36 M; B22F3/24 102Z; C22C1/05 P; C22C9/00; C22C9/01; C22C9/02; C22C9/04; C22C9/06; C22C26/00 Z																				
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）） H01L23/373; B22F3/24; C22C1/05; C22C9/00; C22C9/01; C22C9/02; C22C9/04; C22C9/06; C22C26/00 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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2022年</td> </tr> </table> 国際調査で利用した電子データベース（データベースの名称、調査に利用した用語）			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2022年	日本国実用新案登録公報	1996-2022年	日本国登録実用新案公報	1994-2022年										
日本国実用新案公報	1922-1996年																			
日本国公開実用新案公報	1971-2022年																			
日本国実用新案登録公報	1996-2022年																			
日本国登録実用新案公報	1994-2022年																			
C. 関連すると認められる文献 <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>JP 2013-098491 A（住友電気工業株式会社）20.05.2013（2013-05-20） [0001]-[0182], 図1, 4</td> <td>1, 6</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>[0001]-[0182], 図1, 4</td> <td>2-5</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>JP 2015-160996 A（国立大学法人信州大学）07.09.2015（2015-09-07） [0049], [0059], [0062]-[0068], 図2, 3, 6</td> <td>2-5</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>全文, 全図</td> <td>1, 6</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2008-085096 A（京セラ株式会社）10.04.2008（2008-04-10） 全文, 全図</td> <td>1-6</td> </tr> </tbody> </table>			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	JP 2013-098491 A（住友電気工業株式会社）20.05.2013（2013-05-20） [0001]-[0182], 図1, 4	1, 6	Y	[0001]-[0182], 図1, 4	2-5	Y	JP 2015-160996 A（国立大学法人信州大学）07.09.2015（2015-09-07） [0049], [0059], [0062]-[0068], 図2, 3, 6	2-5	A	全文, 全図	1, 6	A	JP 2008-085096 A（京セラ株式会社）10.04.2008（2008-04-10） 全文, 全図	1-6
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	JP 2013-098491 A（住友電気工業株式会社）20.05.2013（2013-05-20） [0001]-[0182], 図1, 4	1, 6																		
Y	[0001]-[0182], 図1, 4	2-5																		
Y	JP 2015-160996 A（国立大学法人信州大学）07.09.2015（2015-09-07） [0049], [0059], [0062]-[0068], 図2, 3, 6	2-5																		
A	全文, 全図	1, 6																		
A	JP 2008-085096 A（京セラ株式会社）10.04.2008（2008-04-10） 全文, 全図	1-6																		
☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ 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、一般の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 29.08.2022		国際調査報告の発送日 13.09.2022																		
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） 庄司 一隆 5F 1215 電話番号 03-3581-1101 内線 3516																		

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/JP2022/028969

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2013-098491	A	20.05.2013	(ファミリーなし)	
JP	2015-160996	A	07.09.2015	(ファミリーなし)	
JP	2008-085096	A	10.04.2008	(ファミリーなし)	