

(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
2018年5月17日(17.05.2018)



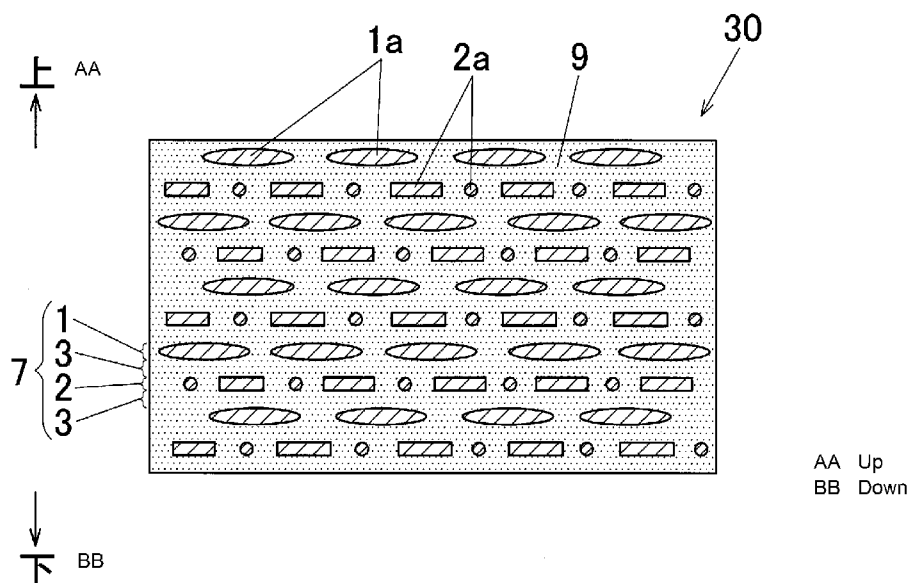
(10) 国際公開番号

WO 2018/088045 A1

- (51) 国際特許分類:
B32B 15/01 (2006.01) H01L 23/36 (2006.01)
B05D 7/14 (2006.01) H01L 23/373 (2006.01)
B05D 7/24 (2006.01) H05K 7/20 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/034644
- (22) 国際出願日: 2017年9月26日(26.09.2017)
- (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 2016-220386 2016年11月11日(11.11.2016) JP
- (71) 出願人: 昭和電工株式会社(SHOWA DENKO K.K.) [JP/JP]; 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目13番9号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 廣瀬 克昌 (HIROSE Katumasa); 〒3238678 栃木県小山市犬塚1丁目480番地 昭和電工株式会社小山事業所内 Tochigi (JP).
- (74) 代理人: 清水 義仁, 外 (SHIMIZU Yoshihito et al.); 〒5420081 大阪府大阪市中央区南船場3丁目4番26号 出光ナガホリビル Osaka (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, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,

(54) Title: METAL-CARBON PARTICLE COMPOSITE MATERIAL AND METHOD FOR MANUFACTURING SAME

(54) 発明の名称: 金属-炭素粒子複合材及びその製造方法



(57) Abstract: In a metal-carbon particle composite material (30), one or more flake-graphite-particle dispersion layers (1) in which flake graphite particles (1a) as carbon particles are dispersed in a metal matrix (9), one or more carbon fiber dispersion layers (2) in which carbon fibers (2a) as carbon particles are dispersed in the metal matrix (9), and one or more metal layers (3) formed in the metal matrix (9) are provided in layered fashion. The one or more flake-graphite-particle dispersion layers (1), the one or more carbon fiber dispersion layers (2), and the one or more metal layers (3) are joined and

HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, 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, SE, SG, SK, SL,
SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, 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:

- 国際調査報告 (条約第21条(3))
- 補正された請求の範囲 (条約第19条(1))

integrated. Either the flake-graphite-particle dispersion layer (1) or the carbon fiber dispersion layer (2) and the metal layer (3) are arranged in a state of being layered in alternating fashion throughout substantially the entire thickness direction of the composite material (30).

(57) 要約: 金属-炭素粒子複合材 (30) は、金属マトリックス (9) 中に炭素粒子としての鱗片状黒鉛粒子 (1a) が分散した一つ以上の鱗片状黒鉛粒子分散層 (1) と、金属マトリックス (9) 中に炭素粒子としての炭素繊維 (2a) が分散した一つ以上の炭素繊維分散層 (2) と、金属マトリックス (9) で形成された一つ以上の金属層 (3) と、を積層状に備える。一つ以上の鱗片状黒鉛粒子分散層 (1) と一つ以上の炭素繊維分散層 (2) と一つ以上の金属層 (3) は接合一体化されている。鱗片状黒鉛粒子分散層 (1) 及び炭素繊維分散層 (2) のうち一方と金属層 (3) とは複合材 (30) の厚さ方向の略全体に亘って交互に積層された状態に配列している。

明 細 書

発明の名称：金属－炭素粒子複合材及びその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、金属マトリックスと金属マトリックス中に分散した炭素粒子とを含む金属－炭素粒子複合材、その製造方法及びパワーモジュール用冷却器に関する。

[0002] なお、本明細書及び特許請求の範囲では、「アルミニウム」の語は、特に明示する場合を除き、純アルミニウム及びアルミニウム合金の双方を含む意味で用いられ、「銅」の語は、特に明示する場合を除き、純銅及び銅合金の双方を含む意味で用いられる。

[0003] また、本発明に係る金属－炭素粒子複合材の上下方向は限定されるものではないが、本明細書及び特許請求の範囲では、複合材の構成を理解し易くするため、複合材の厚さ方向及び積層体の厚さ方向をそれぞれ複合材の上下方向及び積層体の上下方向と定義する。

[0004] また、本発明に係るパワーモジュール用冷却器の上下方向は限定されるものではないが、本明細書及び特許請求の範囲では、冷却器の構成を理解し易くするため、発熱性素子（例：パワー半導体チップ）が搭載される冷却器の搭載面側を冷却器の上側、及び、その反対側を冷却器の下側とそれぞれ定義する。

背景技術

[0005] 金属－炭素粒子複合材を開示した文献として、例えば、特許第5 1 5 0 9 0 5号公報（特許文献1）、特許第4 4 4 1 7 6 8号公報（特許文献2）及び特開2 0 0 6－1 2 3 2（特許文献3）がある。

[0006] 特許第5 1 5 0 9 0 5号公報は、シート状又はフォイル状の金属支持体上に炭素粒子としての炭素繊維を含有する皮膜が形成されたプリフォームを形成し、これを複数積み重ねて積層体を形成し、積層体を加熱圧接することでプリフォーム同士を一体化させることにより、金属－炭素粒子複合材として

の金属基炭素繊維複合材の製造方法を開示している。この方法では、得られる複合材において熱伝導率が高くなるのは炭素繊維が配列した一方向のみである。

[0007] 特許第4441768号公報は、鱗状黒鉛粉末と所定の鱗状金属粉末との混合体を用いて焼結前駆体を形成し、焼結前駆体を加圧しながら焼結することにより、金属－炭素粒子複合材としての金属－黒鉛複合材の製造方法を開示している。この方法では、製造時において金属粉末の取り扱いが難しいし、製造コストが高いという問題がある。

[0008] 特開2006-1232号公報は、結晶性カーボン材層と金属層とが積層され複合化された複合体をホットプレス焼結することにより、金属－炭素粒子複合材としての高熱伝導・低熱膨張複合材の製造方法を開示している。この方法では、複合体の焼結が難しく、そのため、接合が不十分で接合界面のずれが生じ易いと考えられる。

[0009] 金属－炭素粒子複合材を開示したその他の文献として、特開2015-25158号公報（特許文献4）及び特開2015-217655号公報（特許文献5）がある。

先行技術文献

特許文献

[0010] 特許文献1：特許第5150905号公報

特許文献2：特許4441768号公報

特許文献3：特開2006-1232号公報

特許文献4：特開2015-25158号公報

特許文献5：特開2015-217655号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0011] 而して、SiC等を用いた次世代半導体チップは高温動作が可能である。そのようなチップを冷却する冷却器の材料は、チップの動作温度が高くなる

ことによる熱応力を低減するために低線膨張性を有していること、及び、冷却性能を高めるために高熱伝導性を有していることが望ましい。

[0012] 本発明は、上述した技術背景に鑑みてなされたもので、その目的は、高熱伝導性と低線膨張性を有する金属－炭素粒子複合材、その製造方法及びパワーモジュール用冷却器を提供することにある。

[0013] 本発明のその他の目的及び利点は、以下の好ましい実施形態から明らかにされるであろう。

課題を解決するための手段

[0014] 本発明は以下の手段を提供する。

[0015] [1] 金属マトリックス中に炭素粒子としての鱗片状黒鉛粒子が分散した一つ以上の鱗片状黒鉛粒子分散層と、前記金属マトリックス中に炭素粒子としての炭素繊維が分散した一つ以上の炭素繊維分散層と、前記金属マトリックスで形成された一つ以上の金属層と、を積層状に備えとともに、

前記一つ以上の鱗片状黒鉛粒子分散層と前記一つ以上の炭素繊維分散層と前記一つ以上の金属層とが接合一体化されており、

前記鱗片状黒鉛粒子分散層及び前記炭素繊維分散層のうち一方と前記金属層とは複合材の厚さ方向の略全体に亘って交互に積層された状態に配列している金属－炭素粒子複合材。

[0016] [2] さらに、前記鱗片状黒鉛粒子分散層と前記炭素繊維分散層と前記金属層は、複合材の厚さ方向の略全体に亘って規則的な積層順序で積層された状態に配列している前項1記載の金属－炭素粒子複合材。

[0017] [3] 積層状に接合一体化された複数の冷却器構成層を備え、
前記複数の構成層のうち少なくとも一つが前項1又は2記載の金属－炭素粒子複合材製であるパワーモジュール用冷却器。

[0018] [4] 炭素粒子としての鱗片状黒鉛粒子と第1バインダとを含有する第1塗工液を第1金属箔上に塗工し乾燥することにより、前記第1金属箔上に鱗片状黒鉛粒子層が形成された鱗片状黒鉛粒子塗工箔を得る工程と、

炭素粒子としての炭素繊維と第2バインダとを含有する第2塗工液を第2

金属箔上に塗工し乾燥することにより、前記第2金属箔上に炭素繊維層が形成された炭素繊維塗工箔を得る工程と、

一枚以上の前記鱗片状黒鉛粒子塗工箔と一枚以上の前記炭素繊維塗工箔とが積層された状態の積層体を形成する工程と、

前記積層体を加熱することにより前記一枚以上の前記鱗片状黒鉛粒子塗工箔と前記一枚以上の前記炭素繊維塗工箔を一括して接合一体化する工程と、
を含む金属－炭素粒子複合材の製造方法。

[0019] [5] 前記積層体を形成する工程では、前記積層体を、前記鱗片状黒鉛粒子塗工箔と前記炭素繊維塗工箔が前記積層体の厚さ方向の略全体に亘って規則的な積層順序で積層されるように形成する前項4記載の金属－炭素粒子複合材の製造方法。

発明の効果

[0020] 本発明は以下の効果を奏する。

[0021] 前項[1]では、金属マトリックス中に鱗片状黒鉛粒子が分散していることにより、材料の熱伝導性が金属単体よりも向上する。また、金属マトリックス中に炭素繊維が分散していることにより、材料の線膨張性が金属単体よりも低下する。したがって、前項[1]記載の金属－炭素粒子複合材は高熱伝導性（高い熱伝導率）と低線膨張性（低い線膨張率）を有している。

[0022] さらに、鱗片状黒鉛粒子分散層及び炭素繊維分散層のうち一方と金属層とが複合材の厚さ方向の略全体に亘って交互に積層された状態に配列しているので、複合材は高い接合強度を有している。

[0023] 前項[2]では、鱗片状黒鉛粒子分散層と炭素繊維分散層と金属層は複合材の厚さ方向の略全体に亘って規則的な積層順序で積層された状態に配列している。したがって、複合材を製造する前に金属マトリックス中に含有される鱗片状黒鉛粒子と炭素繊維との体積割合を予め設計し、鱗片状黒鉛粒子分散層と炭素繊維分散層と金属層を規則的な積層順序で積層した状態にして複合材を製造することにより、複合材の熱伝導率と線膨張率を設計値に近づけることができる。

[0024] 前項〔3〕では、複数の冷却器構成層のうち少なくとも一つが前項〔1〕又は〔2〕記載の金属－炭素粒子複合材製であるから、高い放熱性及び高い冷熱信頼性を有するパワーモジュール用冷却器を提供できる。

[0025] 前項〔4〕では、本発明に係る金属－炭素粒子複合材を容易に製造できる。さらに、金属マトリックスの金属材料として金属箔が使用されることにより、金属粉末を使用する場合よりも金属材料の取り扱いが容易であるし製造コストが易くなる。さらに、複合材の厚さの制御が容易であり、薄い複合材を製造し易い。

[0026] 前記〔5〕では、前項〔2〕の効果と同様の効果を奏する。

図面の簡単な説明

[0027] [図1]図1は、本発明の第1実施形態に係る金属－炭素粒子複合材の概略断面図である。

[図2a]図2aは、鱗片状黒鉛粒子塗工箔の概略斜視図（左）とその断面モデル図（右）である。

[図2b]図2bは、鱗片状黒鉛粒子塗工箔を得る工程において第1塗工液を第1金属箔上に塗工する方法を説明するための概略図である。

[図3]図3は、炭素繊維塗工箔の概略斜視図（左）とその断面モデル図（右）である。

[図4]図4は、同複合材形成用積層体の概略断面モデル図である。

[図5]図5は、同複合材の製造工程図である。

[図6]図6は、本発明の第2実施形態に係る金属－炭素粒子複合材の概略断面図である。

[図7]図7は、同複合材形成用積層体の概略断面モデル図である。

[図8]図8は、本発明の第3実施形態に係る金属－炭素粒子複合材の概略断面図である。

[図9]図9は、同複合材形成用積層体の概略断面モデル図である。

[図10]図10は、本発明の一実施形態に係るパワーモジュール用冷却器の概略正面図である。

発明を実施するための形態

[0028] 次に、本発明の幾つかの実施形態について図面を参照して以下に説明する。

[0029] 図1～5は、本発明の第1実施形態に係る金属－炭素粒子複合材及びその製造方法を説明するための図である。

[0030] 図1に示すように、本第1実施形態に係る金属－炭素粒子複合材30は、金属マトリックス（ドットハッチングで示す）9中に炭素粒子としての鱗片状黒鉛粒子1aが分散した一つ以上の鱗片状黒鉛粒子分散層1と、金属マトリックス9中に炭素粒子としての炭素繊維2aが分散した一つ以上の炭素繊維分散層2と、金属マトリックス9で形成された一つ以上の金属層3と、を積層状に備えている。

[0031] さらに、一つ以上の鱗片状黒鉛粒子分散層1と一つ以上の炭素繊維分散層2と一つ以上の金属層3とが積層状に接合一体化されており、これにより複合材30が形成されている。複合材30は金属基炭素粒子複合材の一種である。

[0032] 各鱗片状黒鉛粒子分散層1中には炭素繊維2aは実質的に存在していない。各炭素繊維分散層2中には鱗片状黒鉛粒子1aは実質的に存在していない。各金属層3中には鱗片状黒鉛粒子1aと炭素繊維2aは実質的に存在していない。

[0033] なお、図1～3では、複合材30の構成を理解し易くするため鱗片状黒鉛粒子1aと炭素繊維2aは大きく図示されている。

[0034] 本第1実施形態では、図1に示すように、鱗片状黒鉛粒子分散層1、炭素繊維分散層2及び金属層3の数はそれぞれ複数である。そして、鱗片状黒鉛粒子分散層1及び炭素繊維分散層2のうち一方と金属層3とが複合材30の厚さ方向（即ち複合材30の上下方向）の全体に亘って交互に積層された状態に配列している。

[0035] さらに、鱗片状黒鉛粒子分散層1と炭素繊維分散層2と金属層3は、複合材30の厚さ方向の全体に亘って規則的な積層順序で積層された状態に配列

している。詳述すると、鱗片状黒鉛粒子分散層 1 と炭素繊維分散層 2 と金属層 3 は、鱗片状黒鉛粒子分散層 1 と炭素繊維分散層 2 と金属層 3 についての積層順序の単位が複合材 30 の厚さ方向の全体に亘って繰り返されるという積層規則に従って積層された状態に配列している。

[0036] 本第 1 実施形態の複合材 30 では、鱗片状黒鉛粒子分散層 1 と炭素繊維分散層 2 と金属層 3 についての積層順序の単位 7 は、鱗片状黒鉛粒子分散層 1 / 金属層 3 / 炭素繊維分散層 2 / 金属層 3 という単位である。そして、鱗片状黒鉛粒子分散層 1 と炭素繊維分散層 2 と金属層 3 は、この積層順序単位 7 が複合材 30 の厚さ方向の全体に亘って繰り返されるという積層規則に従って積層された状態に配列している。

[0037] 複合材 30 において、積層順序単位 7 中に存在する鱗片状黒鉛粒子分散層 1 と炭素繊維分散層 2 との層数比は 1 : 1 である。そして、鱗片状黒鉛粒子分散層 1 と炭素繊維分散層 2 はこの層数比で複合材 30 の厚さ方向の全体に亘って配列している。

[0038] したがって、鱗片状黒鉛粒子分散層 1 と炭素繊維分散層 2 との層数比は、複合材 30 の厚さ方向の部位に依らず一定であり、詳述すると複合材 30 の厚さ方向の全体に亘って 1 : 1 である。

[0039] 本第 1 実施形態の複合材 30 は、図 10 に示したパワーモジュール用冷却器 40 を構成する複数の冷却器構成層 41 ~ 44 のうち少なくとも一つの構成層の材料として好適に使用可能である。

[0040] パワーモジュールは、例えば、ハイブリッドカー (HEV)、電気自動車 (EV)、電車などの車両に用いられったり、風力発電、太陽光発電などのエネルギー分野に用いられったりするものである。

[0041] 冷却器 40 は、複数の冷却器構成層 41 ~ 44 として、配線層 41、絶縁層 42、緩衝層 43 及び冷却層 44 を備えている。そして、上から下へ順に、配線層 41、絶縁層 42、緩衝層 43 及び冷却層 44 が積層された状態でろう付け等の所定の接合手段によりこれらの層 41 ~ 44 が接合一体化されている。

- [0042] 配線層 4 1 の上面からなる搭載面 4 1 a には、一般に、半導体素子（例：パワー半導体チップ）等の発熱性素子（二点鎖線で示す）4 7 がはんだ層（二点鎖線で示す）4 8 を介して接合される。
- [0043] 絶縁層 4 2 は電気絶縁性を有しており、通常、セラミックで形成されている。
- [0044] 緩衝層 4 3 は、冷却器 4 0 に発生した熱応力等の応力を緩和するための層である。
- [0045] 冷却層 4 4 は、発熱性素子 4 7 の熱を放散して発熱性素子 4 7 を冷却するための層であり、例えば、複数の放熱フィンを有するヒートシンクからなる。
- [0046] 図 1 0 に示した冷却器 4 0 では、詳述すると、上述した複数の構成層 4 1 ～4 4 のうち絶縁層 4 2 を除く構成層（即ち、配線層 4 1、緩衝層 4 3 及び冷却層 4 4）からなる群から選択される少なくとも一つが本第 1 実施形態の複合材 3 0 製である。一般に冷却器 4 0 には高い放熱性と冷熱サイクル負荷に対して高い冷熱信頼性とが要求される。
- [0047] 次に、本第 1 実施形態の複合材 3 0 の望ましい製造方法を以下に説明する。
- [0048] 図 5 に示すように、複合材 3 0 の製造方法は、第 1 金属箔 1 2 上に炭素粒子層としての鱗片状黒鉛粒子層 1 1 が形成された鱗片状黒鉛粒子塗工箔 1 3 を得る工程 S 1（図 2 a 及び 2 b 参照）と、第 2 金属箔 1 5 上に炭素粒子層としての炭素繊維層 1 4 が形成された炭素繊維塗工箔 1 6 を得る工程 S 2（図 3 参照）と、一枚以上の鱗片状黒鉛粒子塗工箔 1 3 と一枚以上の炭素繊維塗工箔 1 6 とが積層された状態の積層体 2 0 を形成する工程 S 3（図 4 参照）と、積層体 2 0 を加熱することにより一枚以上の鱗片状黒鉛粒子塗工箔 1 3 と一枚以上の炭素繊維塗工箔 1 6 を一括して接合一体化する工程 S 4 と、を含む。
- [0049] 図 2 a 及び 3 において、第 1 及び第 2 金属箔 1 2、1 5 の金属材料は複合材 3 0 の金属マトリックス 9 を形成するものである。第 1 金属箔 1 2 の金属

材料と第2金属箔15の金属材料は同一材料である。金属材料は限定されるものではないが、アルミニウム又は銅であることが望ましい。その理由は、これらの金属は高い熱伝導性を有しているからである。

[0050] 第1及び第2金属箔12、15の厚さは限定されるものではなく、それぞれ5～500 μm であることが望ましく、特にそれぞれ10～50 μm であることが望ましい。

[0051] 図2aに示すように、鱗片状黒鉛粒子1aとしては例えば鱗片状黒鉛粉末を使用できる。鱗片状黒鉛粒子1aの粒径及アスペクト比は限定されるものではなく、それぞれなるべく大きい方が望ましい。鱗片状黒鉛粒子1aの平均粒径は300 μm 以上であることが特に望ましく、また鱗片状黒鉛粒子1aの平均アスペクト比は30以上であることが特に望ましい。平均粒径の上限は限定されるものではなく例えば1000 μm であり、また平均アスペクト比の上限は限定されるものではなく例えば100である。

[0052] ここで、鱗片状黒鉛粒子1aの粒径とは、電子顕微鏡等の観察手段で観察される鱗片状黒鉛粒子1aの平面方向の円相当直径を意味する。鱗片状黒鉛粒子1aのアスペクト比は、鱗片状黒鉛粒子1aの「粒径／厚さ」により算出される。なお、上述した鱗片状黒鉛粒子1aの平面方向とは、鱗片状黒鉛粒子1aの厚さ方向に対し垂直な面方向を意味する。

[0053] 図3に示すように、炭素繊維2aとしては繊維状の炭素粒子を使用でき、具体的には例えば、ピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維、気相成長炭素繊維及びカーボンナノチューブからなる群より選択される一種の炭素繊維か又は複数種の混合炭素繊維を使用できる。炭素繊維2aはピッチ系炭素繊維であることが特に望ましい。その理由は、ピッチ系炭素繊維の熱伝導率がPAN系炭素繊維のそれよりも大きいからである。

[0054] 炭素繊維2aの長さは限定されるものではなく、特に炭素繊維2aの平均長さが1mm以下であることが望ましい。炭素繊維2aの平均長さの下限は限定されるものではなく例えば10 μm である。

[0055] また、鱗片状黒鉛粒子1a及び炭素繊維2aは、不活性雰囲気中にて20

00～3000℃の温度で加熱処理されたものであっても良い。

[0056] 鱗片状黒鉛粒子塗工箔13を得る工程S1では、鱗片状黒鉛粒子1aと第1バインダ（図示せず）と第1バインダ用第1溶剤（図示せず）とを混合状態に含有する第1塗工液（図示せず）を第1金属箔12上に塗工し乾燥することにより、図2aに示した鱗片状黒鉛粒子塗工箔13が得られる。なお、図2a中の左では第1バインダは図示省略されている。

[0057] 炭素繊維塗工箔16を得る工程S2では、炭素繊維2aと第2バインダ（図示せず）と第2バインダ用第2溶剤（図示せず）とを混合状態に含有する第2塗工液（図示せず）を第2金属箔15上に塗工し乾燥することにより、図3に示した炭素繊維塗工箔16が得られる。なお、図3中の左では第2バインダは図示省略されている。

[0058] 第1バインダは、鱗片状黒鉛粒子1aに第1金属箔12への付着力を付与して鱗片状黒鉛粒子1aが第1金属箔12上から脱落するのを抑制するためのものである。

[0059] 第2バインダは、炭素繊維2aに第2金属箔15への付着力を付与して炭素繊維2aが第2金属箔15上から脱落するのを抑制するためのものである。

[0060] 第1及び第2バインダは通常、樹脂からなる。具体的には、第1及び第2バインダとして、アクリル系樹脂、ポリエチレングリコール系樹脂、ブチレンゴム樹脂、フェノール樹脂、セルロース系樹脂などが使用できる。これらの樹脂バインダは一般に常温で固形である。

[0061] 第1溶剤は第1バインダを溶解するものである。第2溶剤は第2バインダを溶解するものである。具体的には、第1及び第2溶剤として、水、アルコール系溶剤、炭化水素系溶剤、エステル系溶剤、エーテル系溶剤などが使用できる。これらの溶剤は一般に常温でバインダを溶解可能である。

[0062] 第1塗工液は、鱗片状黒鉛粒子1aと第1バインダと第1溶剤とを混合して得られる。

[0063] 第1塗工液を第1金属箔12上に塗工する方法は限定されない。好ましく

は、第1塗工液の塗工は、特開2015-25158号公報、特開2015-217655号公報等の開示されているようなロールt o ロール方式により行われる。第1塗工液の塗工方法は、好ましくは、オフセットタイプの3本ロールコート法（即ち、オフセットタイプの3本ロールコーターによる塗工法）、グラビア印刷法、スプレー塗工法、カーテンコート法などから選択される。

[0064] 第1塗工液の塗工方法の一例について図2bを参照して以下に説明する。

[0065] 同図に示すように、第1塗工液の第1金属箔上への塗工装置50は、ロールt o ロール方式を採用したものであり、アプリーターロール51、バックアップロール52、ピックアップロール53、パン55などを具備している。パン55内には第1塗工液6が収容されている。第1塗工液6は鱗片状黒鉛粒子1aと第1バインダ4と第1溶剤とを混合状態に含有しており、第1バインダ4は第1溶剤で溶解されている。

[0066] 第1金属箔12は、アプリーターロール51とバックアップロール52との間を通過するように所定方向Fに送られる。パン55内の第1塗工液6は、ピックアップロール53によりアプリーターロール51に付着され、そしてアプリーターロール51によって第1金属箔12上に層状に塗工される。

[0067] 鱗片状黒鉛粒子塗工箔13を得る工程S1では、第1塗工液6は、詳述すると、第1金属箔12上として、第1金属箔12の厚さ方向の片側の表面12aにその略全体に亘って塗工される。次いで、第1塗工液6は所定の乾燥手段（例：乾燥炉59）によって乾燥されて第1塗工液6中の第1溶剤が蒸発除去される。その後、必要に応じて第1金属箔12は所定の形状（例：方形状）に切断される。これにより、図2aに示した鱗片状黒鉛粒子塗工箔13が得られる。なお、上述したように図2a中の左では第1バインダ4は図示省略されている。

[0068] 本第1実施形態では、第1塗工液6が塗工される第1金属箔12の表面12aは、第1金属箔12が水平状に配置された状態における第1金属箔12

の上表面である。したがって、鱗片状黒鉛粒子層 1 1 は詳述すると第 1 金属箔 1 2 の上表面 1 2 a 上にその略全体に亘って形成されている。

[0069] 第 2 塗工液は、炭素繊維 2 a と第 2 バインダと第 2 溶剤とを混合して得られる。

[0070] 第 2 塗工液を第 2 金属箔 1 5 上に塗工する方法は限定されない。好ましくは、第 2 塗工液の塗工は、特開 2 0 1 5 - 2 5 1 5 8 号公報、特開 2 0 1 5 - 2 1 7 6 5 5 号公報等の開示されているようなロール t o ロール方式により行われる。第 2 塗工液の塗工方法は、好ましくは、グラビア印刷法、バーコート法、ナイフコート法、ドクターブレード法などから選択される。

[0071] 第 2 塗工液の塗工は、例えば、図 2 b に示した第 1 塗工液 6 の上述の塗工方法と同じ方法により行われる。

[0072] 炭素繊維塗工箔 1 6 を得る工程 S 2 では、第 2 塗工液は、詳述すると、第 2 金属箔 1 5 上として、第 2 金属箔 1 5 の厚さ方向の片側の表面 1 5 a にその略全体に亘って塗工される。そして、第 2 塗工液は所定の乾燥手段（例：乾燥炉）によって乾燥されて第 2 塗工液中の第 2 溶剤が蒸発除去される。その後、必要に応じて第 2 金属箔は所定の形状（例：方形状）に切断される。これにより、図 3 に示した炭素繊維塗工箔 1 6 が得られる。なお、上述したように図 3 中の左では第 2 バインダは図示省略されている。

[0073] 本第 1 実施形態では、第 2 塗工液が塗工される第 2 金属箔 1 5 の表面 1 5 a は、第 2 金属箔 1 5 が水平状に配置された状態における第 2 金属箔 1 5 の上表面である。したがって、炭素繊維層 1 4 は詳述すると第 2 金属箔 1 5 の上表面 1 5 a 上にその略全体に亘って形成されている。

[0074] 積層体 2 0 を形成する工程 S 3 において、図 4 に示すように、積層体 2 0 は、上述したように、一枚以上の鱗片状黒鉛粒子塗工箔 1 3 と一枚以上の炭素繊維塗工箔 1 6 とが積層された状態のものである。詳述すると、積層体 2 0 は、複数の鱗片状黒鉛粒子塗工箔 1 3 と複数の炭素繊維塗工箔 1 6 とが、各炭素粒子層（鱗片状黒鉛粒子層 1 1、炭素繊維層 1 4）間に第 1 金属箔 1 2 又は第 2 金属箔 1 5 が必ず介在するように上下方向に積層された状態のも

のである。したがって、積層体 20 の全体において、複数の鱗片状黒鉛粒子塗工箔 13 と複数の炭素繊維塗工箔 16 は、炭素粒子層同士が重ね合わされないように積層されている。

[0075] 積層体 20 を形成する工程 S3 では、積層体 20 は、鱗片状黒鉛粒子塗工箔 13 と炭素繊維塗工箔 16 が積層体 20 の厚さ方向（即ち積層体 20 の上下方向）の全体に亘って規則的な積層順序で積層されるように形成される。詳述すると、鱗片状黒鉛粒子塗工箔 13 と炭素繊維塗工箔 16 は、鱗片状黒鉛粒子塗工箔 13 と炭素繊維塗工箔 16 についての積層順序の単位が積層体 20 の厚さ方向の全体に亘って繰り返されるという積層規則に従って積層され、これにより、積層体 20 が形成される。

[0076] 本第 1 実施形態の積層体 20 では、鱗片状黒鉛粒子塗工箔 13 と炭素繊維塗工箔 16 についての積層順序の単位 17 は、鱗片状黒鉛粒子塗工箔 13 / 炭素繊維塗工箔 16 という単位である。そして、鱗片状黒鉛粒子塗工箔 13 と炭素繊維塗工箔 16 は、この積層順序単位 17 が積層体 20 の厚さ方向の全体に亘って繰り返されるという積層規則に従って積層され、これにより、積層体 20 が形成される。

[0077] 積層順序単位 17 中に存在する鱗片状黒鉛粒子塗工箔 13 と炭素繊維塗工箔 16 との枚数比は 1 : 1 である。そして、鱗片状黒鉛粒子塗工箔 13 と炭素繊維塗工箔 16 はこの枚数比で積層体 20 の厚さ方向の全体に亘って配列している。

[0078] したがって、鱗片状黒鉛粒子塗工箔 13 と炭素繊維塗工箔 16 との枚数比は、積層体 20 の厚さ方向の部位に依らず一定であり、詳述すると積層体 20 の厚さ方向の全体に亘って 1 : 1 である。

[0079] 接合一体化する工程 S4 では、積層体 20 は所定の焼結雰囲気（例：非酸化雰囲気）中にて加熱されることにより焼結され、これにより、積層体 20 の全体に存在する複数の鱗片状黒鉛粒子塗工箔 13 と複数の炭素繊維塗工箔 16 が一括して接合一体化（詳述すると焼結一体化）される。これにより、上述した複合材 30 が得られる。

- [0080] 積層体 20 の焼結方法は、真空ホットプレス法、パルス通電焼結法（SPS 法）、熱間静水圧焼結法（HIP 法）、押出法、圧延法などから選択される。
- [0081] 積層体 20 を加熱する際においては、積層体 20 をその厚さ方向（即ち、鱗片状黒鉛粒子塗工箔 13 及び炭素繊維塗工箔 16 の積層方向）に加圧しながら加熱することが望ましい。その理由は積層体 20 を強固に焼結できるからである。
- [0082] 積層体 20 を焼結するための積層体 20 の加熱温度（即ち積層体 20 の焼結温度）は限定されるものではなく、通常、第 1 及び第 2 金属箔 12、15 の金属材料の融点以下であり、特に、金属材料の融点と当該融点よりも約 50℃ 低い温度との間の温度に設定されることが望ましい。その理由は積層体 20 を確実に焼結できるからである。具体的には、金属材料が例えばアルミニウムである場合、積層体 20 の加熱温度（焼結温度）は 550～620℃ の範囲に設定されることが望ましい。
- [0083] 積層体 20 中に存在する第 1 及び第 2 バインダは、接合一体化する工程 S4 において積層体 20 の温度が略室温から積層体 20 を焼結する温度まで上昇するように積層体 20 を加熱する途中で昇華又は分解等により消失して積層体 20 から除去される。
- [0084] 接合一体化する工程 S4 においては、積層体 20 が加熱されることによって、第 1 及び第 2 金属箔 12、15 の金属材料の一部が鱗片状黒鉛粒子層 11 及び炭素繊維層 14 中にそれぞれ浸入して各層 11、14 内に存在する微細な空隙（例：鱗片状黒鉛粒子層 11 中の鱗片状黒鉛粒子 1a 間の隙間、炭素繊維層 14 中の炭素繊維 2a 間の隙間）に充填されて、当該空隙が略消滅する。これにより、鱗片状黒鉛粒子塗工箔 13 と炭素繊維塗工箔 16 との接合強度（焼結強度）が向上するとともに複合材 30 の密度が上昇する。
- [0085] また、第 1 及び第 2 金属箔 12、15 の金属材料の一部が鱗片状黒鉛粒子層 11 中に浸入することによって、鱗片状黒鉛粒子層 11 中の鱗片状黒鉛粒子 1a は複合材 30 の金属マトリックス 9 中に分散した状態になり、すなわ

ち鱗片状黒鉛粒子層 11 は複合材 30 の鱗片状黒鉛粒子分散層 1 になる。

[0086] また、第 1 及び第 2 金属箔 12、15 の金属材料の一部が炭素繊維層 14 中に浸入することによって、炭素繊維層 14 中の炭素繊維 2a は複合材 30 の金属マトリックス 9 中に分散した状態になり、すなわち炭素繊維層 14 は複合材 30 の炭素繊維分散層 2 になる。

[0087] また、第 1 及び第 2 金属箔 12、15 は複合材 30 の金属層になる。

[0088] したがって、複合材 30 においては、図 1 に示すように、鱗片状黒鉛粒子分散層 1 及び炭素繊維分散層 2 のうち一方と金属層 3 とは交互に積層された状態に配列する。本第 1 実施形態では、詳述すると、鱗片状黒鉛粒子分散層 1 と炭素繊維分散層 2 との間に必ず金属層 3 が介在されている。

[0089] 本第 1 実施形態の複合材 30 は、図 1 に示すように、金属マトリックス 9 中に鱗片状黒鉛粒子 1a が分散しているので、高い熱伝導率を有しており、また金属マトリックス 9 中に炭素繊維 2a が分散しているので、低い線膨張率を有している。

[0090] さらに、鱗片状黒鉛粒子分散層 1 及び炭素繊維分散層 2 のうち一方と金属層 3 とが交互に積層された状態に配列しているので、鱗片状黒鉛粒子分散層 1 と炭素繊維分散層 2 とが両層 1、2 の間に金属層 3 を介在しないで積層された状態に配列している場合に比べて、複合材 30 は高い接合強度（高い焼結強度）を有している。

[0091] さらに、鱗片状黒鉛粒子分散層 1 と炭素繊維分散層 2 と金属層 3 は複合材 30 の厚さ方向の全体に亘って規則的な積層順序で積層された状態に配列している。したがって、複合材 30 を製造する前に金属マトリックス 9 中に含有される鱗片状黒鉛粒子 1a と炭素繊維 2a との体積割合を予め設計し、これらの層を規則的な積層順序で積層した状態にして複合材 30 を製造することにより、設計値に近い熱伝導率と線膨張率を有する複合材 30 を容易に得ることができる。

[0092] 本第 1 実施形態の複合材 30 の製造方法は、次のような利点がある。

[0093] すなわち、鱗片状黒鉛粒子 1a と炭素繊維 2a との混合層を金属箔上に形

成することは技術的に困難である。そこで本第1実施形態では、鱗片状黒鉛粒子層11を第1金属箔12上に形成し、炭素繊維層14を第1金属箔12とは別の金属箔である第2金属箔15上に形成している。こうすることにより、複合材30を容易に製造できる。

[0094] さらに、金属マトリックス9の金属材料として金属箔が使用されているので、金属粉末を使用する場合よりも取り扱いが容易であるし製造コストが易くなる。さらに、複合材30の厚さの制御が容易であり、薄い複合材を製造し易い。

[0095] また、パワーモジュール用冷却器40（図10参照）において、複数の冷却器構成層41～44のうち少なくとも一つが本第1実施形態の複合材30製であるから、冷却器40は高い放熱性及び高い冷熱信頼性を有している。

[0096] 図6及び7は、本発明の第2実施形態に係る金属－炭素粒子複合材130及びその製造方法を説明するための図である。これらの図において、上記第1実施形態の複合材30の要素と同じ作用を奏する要素には、上記第1実施形態の複合材30の要素に付された符号に100を加算した符号が付されている。以下、本第2実施形態について上記第1実施形態との相異点を中心に説明する。

[0097] 図6に示すように、本第2実施形態の複合材130では、鱗片状黒鉛粒子分散層101と炭素繊維分散層102と金属層103についての積層順序の単位107は、鱗片状黒鉛粒子分散層101／金属層103／鱗片状黒鉛粒子分散層101／金属層103／炭素繊維分散層102／金属層103という単位である。そして、鱗片状黒鉛粒子分散層101と炭素繊維分散層102と金属層103は、この積層順序単位107が複合材130の厚さ方向の全体に亘って繰り返されるという積層規則に従って積層された状態に配列している。

[0098] 複合材130において、積層順序単位107中に存在する鱗片状黒鉛粒子分散層101と炭素繊維分散層102との層数比は2：1である。そして、鱗片状黒鉛粒子分散層101と炭素繊維分散層102はこの層数比で複合材

130の厚さ方向の全体に亘って配列している。

[0099] したがって、鱗片状黒鉛粒子分散層101と炭素繊維分散層102との層数比は、複合材130の厚さ方向の部位に依らず一定であり、詳述すると複合材130の厚さ方向の全体に亘って2:1である。

[0100] 図7に示すように、本第2実施形態における積層体120を形成する工程S3(図5参照)では、積層体120は、鱗片状黒鉛粒子塗工箔113と炭素繊維塗工箔116が積層体120の厚さ方向の全体に亘って規則的な積層順序で積層されるように形成される。

[0101] 鱗片状黒鉛粒子塗工箔113と炭素繊維塗工箔116についての積層順序の単位117は、鱗片状黒鉛粒子塗工箔113／鱗片状黒鉛粒子塗工箔113／炭素繊維塗工箔116という単位である。そして、鱗片状黒鉛粒子塗工箔113と炭素繊維塗工箔116は、この積層順序単位117が積層体120の厚さ方向の全体に亘って繰り返されるという積層規則に従って積層され、これにより、積層体120が形成される。

[0102] 積層順序単位117中に存在する鱗片状黒鉛粒子塗工箔113と炭素繊維塗工箔116との枚数比は2:1である。そして、鱗片状黒鉛粒子塗工箔113と炭素繊維塗工箔116はこの枚数比で積層体120の厚さ方向の全体に亘って配列している。

[0103] したがって、鱗片状黒鉛粒子塗工箔113と炭素繊維塗工箔116との枚数比は、積層体120の厚さ方向の部位に依らず一定であり、詳述すると積層体120の厚さ方向の全体に亘って2:1である。

[0104] 本第2実施形態の複合材130は、上記第1実施形態の複合材30と同様に、図10に示したパワーモジュール用冷却器40を構成する複数の冷却器構成層41～44のうち少なくとも一つの構成層の材料として好適に使用可能である。

[0105] 図8及び9は、本発明の第3実施形態に係る金属－炭素粒子複合材230及びその製造方法を説明するための図である。これらの図において、上記第1実施形態の複合材30の要素と同じ作用を奏する要素には、上記第1実施

形態の複合材 30 の要素に付された符号に 200 を加算した符号が付されている。以下、本第 3 実施形態について上記第 1 実施形態との相異点を中心に説明する。

[0106] 図 8 に示すように、本第 3 実施形態の複合材 230 では、鱗片状黒鉛粒子分散層 201 と炭素繊維分散層 202 と金属層 203 についての積層順序の単位 207 は、炭素繊維分散層 202 / 金属層 203 / 炭素繊維分散層 202 / 金属層 203 / 鱗片状黒鉛粒子分散層 201 / 金属層 203 という単位である。そして、鱗片状黒鉛粒子分散層 201 と炭素繊維分散層 202 と金属層 203 は、この積層順序単位 207 が複合材 230 の厚さ方向の全体に亘って繰り返されるという積層規則に従って積層された状態に配列している。

[0107] 複合材 230 において、積層順序単位 207 中に存在する鱗片状黒鉛粒子分散層 201 と炭素繊維分散層 202 との層数比は 1 : 2 である。そして、鱗片状黒鉛粒子分散層 201 と炭素繊維分散層 202 はこの層数比で複合材 230 の厚さ方向の全体に亘って配列している。

[0108] したがって、鱗片状黒鉛粒子分散層 201 と炭素繊維分散層 202 との層数比は、複合材 230 の厚さ方向の部位に依らず一定であり、詳述すると複合材 230 の厚さ方向の全体に亘って 1 : 2 である。

[0109] 図 9 に示すように、本第 3 実施形態における積層体 220 を形成する工程 S3 (図 5 参照) では、積層体 220 は、鱗片状黒鉛粒子塗工箔 213 と炭素繊維塗工箔 216 が積層体 220 の厚さ方向の全体に亘って規則的な積層順序で積層されるように形成される。

[0110] 鱗片状黒鉛粒子塗工箔 213 と炭素繊維塗工箔 216 についての積層順序の単位 217 は、炭素繊維塗工箔 216 / 炭素繊維塗工箔 216 / 鱗片状黒鉛粒子塗工箔 213 という単位である。そして、鱗片状黒鉛粒子塗工箔 213 と炭素繊維塗工箔 216 は、この積層順序単位 217 が積層体 220 の厚さ方向の全体に亘って繰り返されるという積層規則に従って積層され、これにより、積層体 220 が形成される。

- [0111] 積層順序単位 2 1 7 中に存在する鱗片状黒鉛粒子塗工箔 2 1 3 と炭素繊維塗工箔 2 1 6 との枚数比は 1 : 2 である。そして、鱗片状黒鉛粒子塗工箔 2 1 3 と炭素繊維塗工箔 2 1 6 はこの枚数比で積層体 2 2 0 の厚さ方向の全体に亘って配列している。
- [0112] したがって、鱗片状黒鉛粒子塗工箔 2 1 3 と炭素繊維塗工箔 2 1 6 との枚数比は、積層体 2 2 0 の厚さ方向の部位に依らず一定であり、詳述すると積層体 2 2 0 の厚さ方向の全体に亘って 1 : 2 である。
- [0113] 本第 3 実施形態の複合材 2 3 0 は、上記第 1 実施形態の複合材 3 0 と同様に、図 1 0 に示したパワーモジュール用冷却器 4 0 を構成する複数の冷却器構成層 4 1 ~ 4 4 のうち少なくとも一つの構成層の材料として好適に使用可能である。
- [0114] 以上で本発明の幾つかの実施形態を説明したが、本発明は上述した実施形態に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲で様々に変更可能である。
- [0115] 本発明では、複合材における積層順序単位中に存在する鱗片状黒鉛粒子分散層と炭素繊維分散層との層数比は、1 : 1（第 1 実施形態）、2 : 1（第 2 実施形態）、1 : 2（第 3 実施形態）に限定されるものではなく、その他の層数比であっても良く、通常、1 ~ 10 : 1 ~ 10 の範囲に設定される。
- [0116] また本発明では、積層体を形成する工程において、積層体は、長尺な鱗片状黒鉛粒子塗工箔（例えば、鱗片状黒鉛粒子塗工箔の条材）と長尺な炭素繊維塗工箔（例えば、炭素繊維塗工箔の条材）が積層された状態でロール状に複数回巻かれることにより、形成されたものであっても良い。
- [0117] また本発明に係る金属-炭素粒子複合材は、上記第 1 実施形態（上記第 2 及び 3 実施形態を含む）で示した製造方法により製造されたものであることが、複合材の接合強度（焼結強度）を容易に確実に高めることができる点で望ましいが、次のような製造方法により製造されたものであっても良い。
- [0118] すなわち、鱗片状黒鉛粒子塗工箔を得る工程において、第 1 塗工液を第 1 金属箔の厚さ方向の両側の表面にそれぞれ塗工し乾燥することにより、第 1

金属箔の厚さ方向の両側の表面にそれぞれ鱗片状黒鉛粒子層が形成された鱗片状黒鉛粒子塗工箔（これを便宜上「鱗片状黒鉛粒子両面塗工箔」という）を得る。また、炭素繊維塗工箔を得る工程において、第2塗工液を第2金属箔の厚さ方向の両側の表面にそれぞれ塗工し乾燥することにより、第2金属箔の厚さ方向の両側の表面にそれぞれ炭素繊維層が形成された炭素繊維塗工箔（これを便宜上「炭素繊維両面塗工箔」という）を得る。

[0119] また、金属箔の厚さ方向の両側の表面のうち一方の表面に第1塗工液を他方の表面に第2塗工液をそれぞれ塗工し乾燥することにより、金属箔の厚さ方向の両側の表面のうち一方の表面に鱗片状黒鉛粒子層が他方の表面に炭素繊維層がそれぞれ形成された塗工箔（これを便宜上「鱗片状黒鉛粒子／炭素繊維両面塗工箔」という）を得ても良い。

[0120] 上述した両面塗工箔（即ち、「鱗片状黒鉛粒子両面塗工箔」、「炭素繊維両面塗工箔」、「鱗片状黒鉛粒子／炭素繊維両面塗工箔」）を用いて複合材を製造する場合、積層体を形成する工程において炭素粒子層（鱗片状黒鉛粒子層、炭素繊維層）同士が重ね合わされた状態で複数の両面塗工箔が積層されると、接合一体化する工程において炭素粒子層同士の重ね合わせ界面にて接合不良（焼結不良）が発生する虞がある。そこで、この接合不良を抑制するため、複数の両面塗工箔を積層する際に各両面塗工箔間に金属箔を介在させることが望ましい。こうすることにより、接合一体化する工程において金属箔の金属材料の一部がその厚さ方向の両側に配置された炭素粒子層にそれぞれ浸入し、そのため、得られる複合材の接合強度（焼結強度）を確実に高めることができる。

[0121] しかしながら、上記第1実施形態（上記第2及び第3実施形態を含む）で示したように、第1塗工液を第1金属箔12の厚さ方向の片側の表面12aに塗工し乾燥することにより、第1金属箔12の厚さ方向の片側の表面12aに鱗片状黒鉛粒子層11が形成された鱗片状黒鉛粒子塗工箔13（これを便宜上「鱗片状黒鉛粒子片面塗工箔13」という）を得るとともに、第2塗工液を第2金属箔15の厚さ方向の片側の表面15aに塗工し乾燥すること

により、第2金属箔15の厚さ方向の片側の表面15aに炭素繊維層14が形成された炭素繊維塗工箔16（これを便宜上「炭素繊維片面塗工箔16」という）を得ることが望ましい。その理由は次のとおりである。

[0122] すなわち、上記第1実施形態（上記第2及び第3実施形態を含む）で示したように、上述した片面塗工箔（即ち、「鱗片状黒鉛粒子片面塗工箔13」、「炭素繊維片面塗工箔16」）を用いて複合材30を製造する場合には、積層体20を形成する工程S3において炭素粒子層（鱗片状黒鉛粒子層11、炭素繊維層14）同士が重ね合わされないように複数の片面塗工箔13、16を積層できるので、複数の片面塗工箔13、16を積層する際に各片面塗工箔13、16間に金属箔を介在させる必要がない。そのため、得られる複合材30の接合強度（焼結強度）を容易に確実に高めることができる。

[0123] また、本発明に係る金属－炭素粒子複合材は、パワーモジュール用冷却器の材料だけではなくそれ以外の用途の材料としても使用可能である。

[0124] 本願は、2016年11月11日付で出願された日本国特許出願の特願2016-220386号の優先権主張を伴うものであり、その開示内容は、そのまま本願の一部を構成するものである。

[0125] ここに用いられた用語及び表現は、説明のために用いられたものであって限定的に解釈するために用いられたものではなく、ここに示され且つ述べられた特徴事項の如何なる均等物をも排除するものではなく、この発明のクレームされた範囲内における各種変形をも許容するものであると認識されなければならない。

[0126] 本発明の図示実施形態を幾つかここに記載したが、本発明は、ここに記載した各種の好ましい実施形態に限定されるものではなく、この開示に基づいていわゆる当業者によって認識され得る、均等な要素、修正、削除、組み合わせ（例えば、各種実施形態に跨る特徴の組み合わせ）、改良及び／又は変更を有するありとあらゆる実施形態をも包含するものである。クレームの限定事項はそのクレームで用いられた用語に基づいて広く解釈されるべきであり、本明細書あるいは本願のプロセキューション中に記載された実施例に限

定されるべきではなく、そのような実施例は非排他的であると解釈されるべきである。例えば、この開示において、「preferably」という用語は非排他的なものであって、「好ましいがこれに限定されるものではない」ということを意味するものである。この開示および本願のプロセキューション中において、ミーンズ・プラス・ファンクションあるいはステップ・プラス・ファンクションの限定事項は、特定クレームの限定事項に関し、a) 「means for」あるいは「step for」と明確に記載されており、かつb) それに対応する機能が明確に記載されており、かつc) その構成を裏付ける構成、材料あるいは行為が言及されていない、という条件の全てがその限定事項に存在する場合にのみ適用される。この開示および本願のプロセキューション中において、「present invention」または「invention」という用語は、この開示範囲内における1または複数の側面に言及するものとして使用されている場合がある。このpresent inventionまたはinventionという用語は、臨界を識別するものとして不適切に解釈されるべきではなく、全ての側面すなわち全ての実施形態に亘って適用するものとして不適切に解釈されるべきではなく（すなわち、本発明は多数の側面および実施形態を有していると理解されなければならない）、本願ないしはクレームの範囲を限定するように不適切に解釈されるべきではない。この開示および本願のプロセキューション中において、「embodiment」という用語は、任意の側面、特徴、プロセスあるいはステップ、それらの任意の組み合わせ、及び／又はそれらの任意の部分等を記載する場合にも用いられる。

産業上の利用可能性

[0127] 本発明は、金属マトリックスと金属マトリックス中に分散した炭素粒子（鱗片状黒鉛粒子及び炭素繊維）とを含む金属－炭素粒子複合材、その製造方法、及び、パワーモジュール用冷却器に利用可能である。

符号の説明

[0128] 1、101、201：鱗片状黒鉛粒子分散層

1a、101a、201a：鱗片状黒鉛粒子

- 2、102、202：炭素繊維分散層
- 2a、102a、202a：炭素繊維
- 3、103、203：金属層
- 9、109、209：金属マトリックス
- 11：鱗片状黒鉛粒子層
- 12：第1金属箔
- 13、113、213：鱗片状黒鉛粒子塗工箔
- 14：炭素繊維層
- 15：第2金属箔
- 16、116、216：炭素繊維塗工箔
- 20、120、220：積層体
- 30、130、230：金属－炭素粒子複合材
- 40：パワーモジュール用冷却器

請求の範囲

- [請求項1] 金属マトリックス中に炭素粒子としての鱗片状黒鉛粒子が分散した一つ以上の鱗片状黒鉛粒子分散層と、前記金属マトリックス中に炭素粒子としての炭素繊維が分散した一つ以上の炭素繊維分散層と、前記金属マトリックスで形成された一つ以上の金属層と、を積層状に備えとともに、
- 前記一つ以上の鱗片状黒鉛粒子分散層と前記一つ以上の炭素繊維分散層と前記一つ以上の金属層とが接合一体化されており、
- 前記鱗片状黒鉛粒子分散層及び前記炭素繊維分散層のうち一方と前記金属層とは複合材の厚さ方向の略全体に亘って交互に積層された状態に配列している金属－炭素粒子複合材。
- [請求項2] さらに、前記鱗片状黒鉛粒子分散層と前記炭素繊維分散層と前記金属層は、複合材の厚さ方向の略全体に亘って規則的な積層順序で積層された状態に配列している請求項1記載の金属－炭素粒子複合材。
- [請求項3] 積層状に接合一体化された複数の冷却器構成層を備え、
- 前記複数の構成層のうち少なくとも一つが請求項1又は2記載の金属－炭素粒子複合材製であるパワーモジュール用冷却器。
- [請求項4] 炭素粒子としての鱗片状黒鉛粒子と第1バインダとを含有する第1塗工液を第1金属箔上に塗工し乾燥することにより、前記第1金属箔上に鱗片状黒鉛粒子層が形成された鱗片状黒鉛粒子塗工箔を得る工程と、
- 炭素粒子としての炭素繊維と第2バインダとを含有する第2塗工液を第2金属箔上に塗工し乾燥することにより、前記第2金属箔上に炭素繊維層が形成された炭素繊維塗工箔を得る工程と、
- 一枚以上の前記鱗片状黒鉛粒子塗工箔と一枚以上の前記炭素繊維塗工箔とが積層された状態の積層体を形成する工程と、
- 前記積層体を加熱することにより前記一枚以上の前記鱗片状黒鉛粒子塗工箔と前記一枚以上の前記炭素繊維塗工箔を一括して接合一体化

する工程と、

を含む金属－炭素粒子複合材の製造方法。

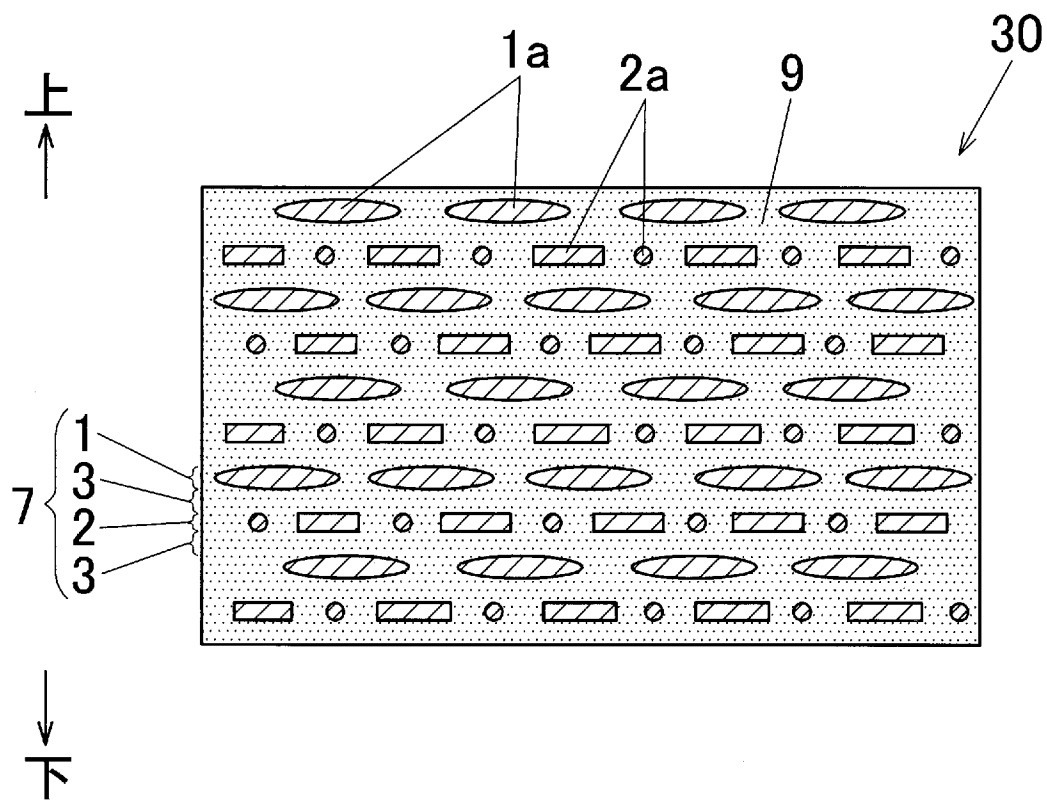
[請求項5] 前記積層体を形成する工程では、前記積層体を、前記鱗片状黒鉛粒子塗工箔と前記炭素繊維塗工箔が前記積層体の厚さ方向の略全体に亘って規則的な積層順序で積層されるように形成する請求項4記載の金属－炭素粒子複合材の製造方法。

補正された請求の範囲
[2018年2月6日(06.02.2018)国際事務局受理]

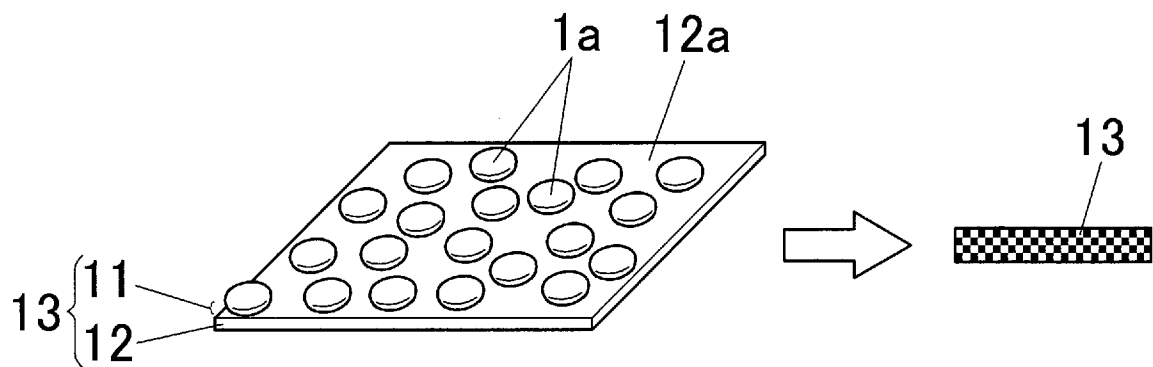
- [請求項1] (補正後) 金属マトリックス中に炭素粒子としての鱗片状黒鉛粒子が分散した一つ以上の鱗片状黒鉛粒子分散層と、前記金属マトリックス中に炭素粒子としての炭素繊維が分散した一つ以上の炭素繊維分散層と、前記金属マトリックスで形成された一つ以上の金属層と、が積層状に接合一体化されている金属-炭素粒子複合材。
- [請求項2] さらに、前記鱗片状黒鉛粒子分散層と前記炭素繊維分散層と前記金属層は、複合材の厚さ方向の略全体に亘って規則的な積層順序で積層された状態に配列している請求項1記載の金属-炭素粒子複合材。
- [請求項3] 積層状に接合一体化された複数の冷却器構成層を備え、
前記複数の構成層のうち少なくとも一つが請求項1又は2記載の金属-炭素粒子複合材製であるパワーモジュール用冷却器。
- [請求項4] 炭素粒子としての鱗片状黒鉛粒子と第1バインダとを含有する第1塗工液を第1金属箔上に塗工し乾燥することにより、前記第1金属箔上に鱗片状黒鉛粒子層が形成された鱗片状黒鉛粒子塗工箔を得る工程と、
炭素粒子としての炭素繊維と第2バインダとを含有する第2塗工液を第2金属箔上に塗工し乾燥することにより、前記第2金属箔上に炭素繊維層が形成された炭素繊維塗工箔を得る工程と、
一枚以上の前記鱗片状黒鉛粒子塗工箔と一枚以上の前記炭素繊維塗工箔とが積層された状態の積層体を形成する工程と、
前記積層体を加熱することにより前記一枚以上の前記鱗片状黒鉛粒子塗工箔と前記一枚以上の前記炭素繊維塗工箔を一括して接合一体化する工程と、
を含む金属-炭素粒子複合材の製造方法。
- [請求項5] 前記積層体を形成する工程では、前記積層体を、前記鱗片状黒鉛粒子塗工箔と前記炭素繊維塗工箔が前記積層体の厚さ方向の略全体に亘って規則的な積層順序で積層されるように形成する請求項4記載の金

属－炭素粒子複合材の製造方法。

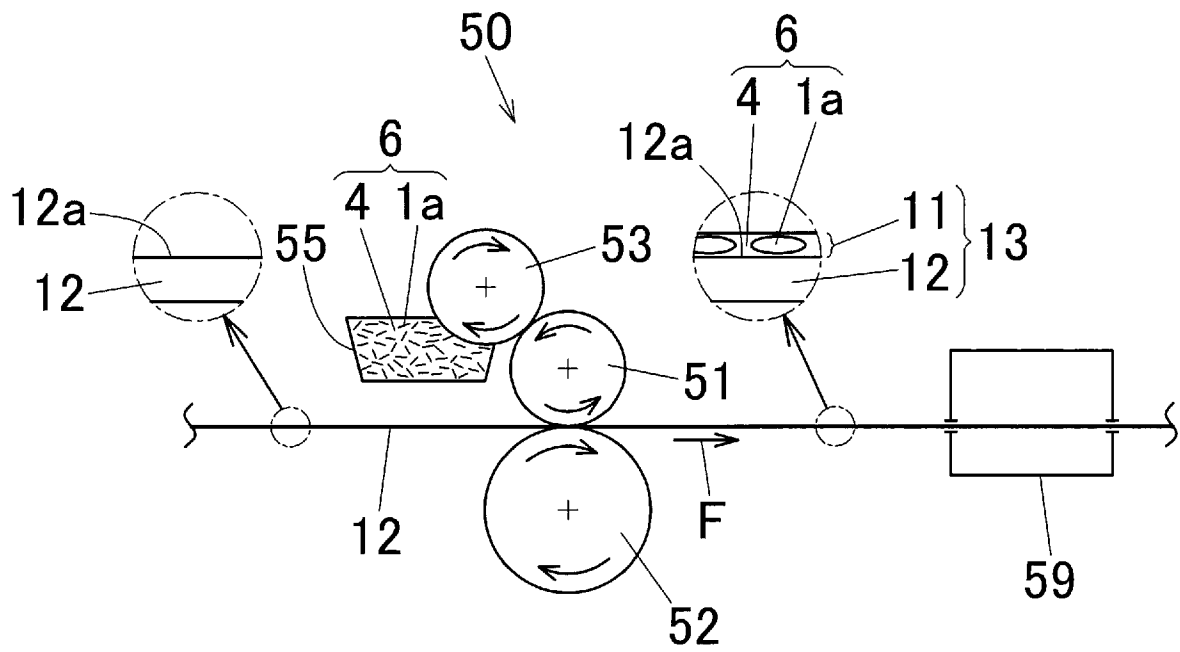
[図1]



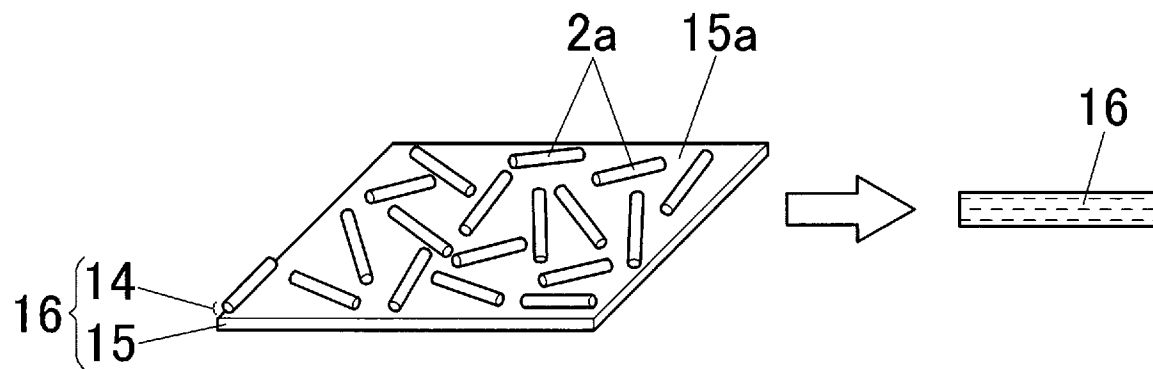
[図2a]



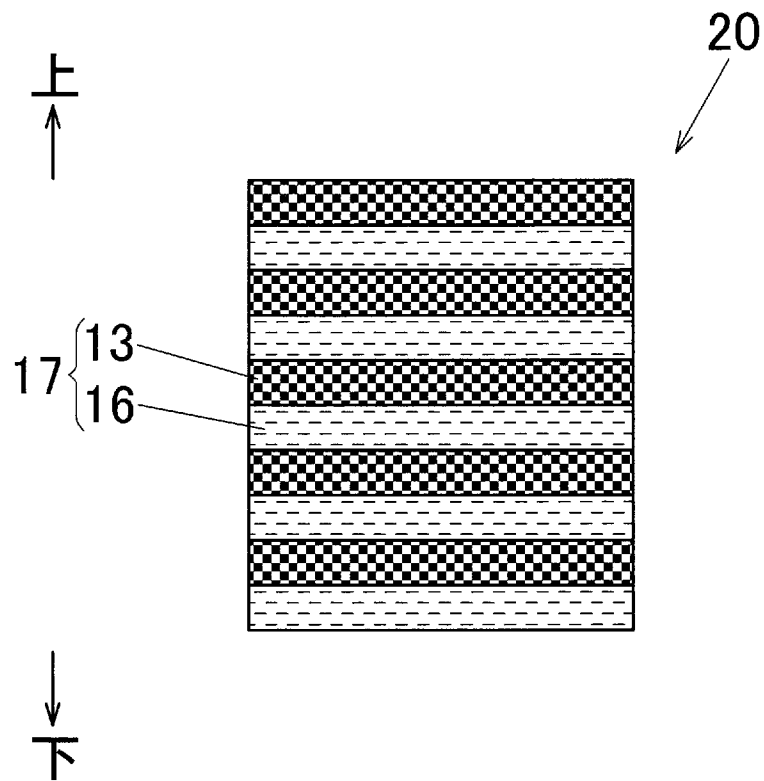
[図2b]



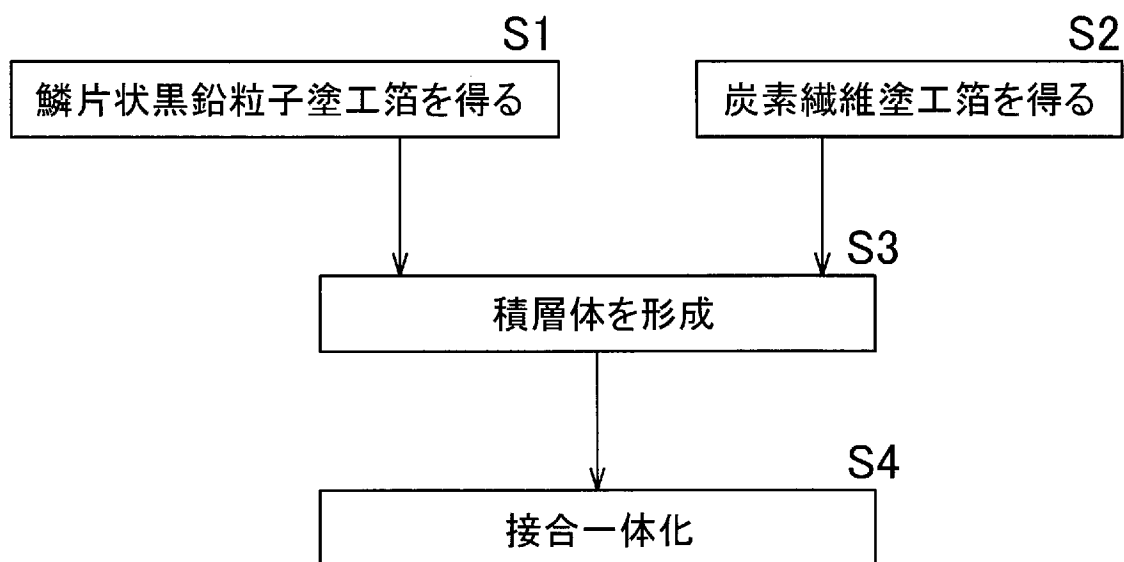
[図3]



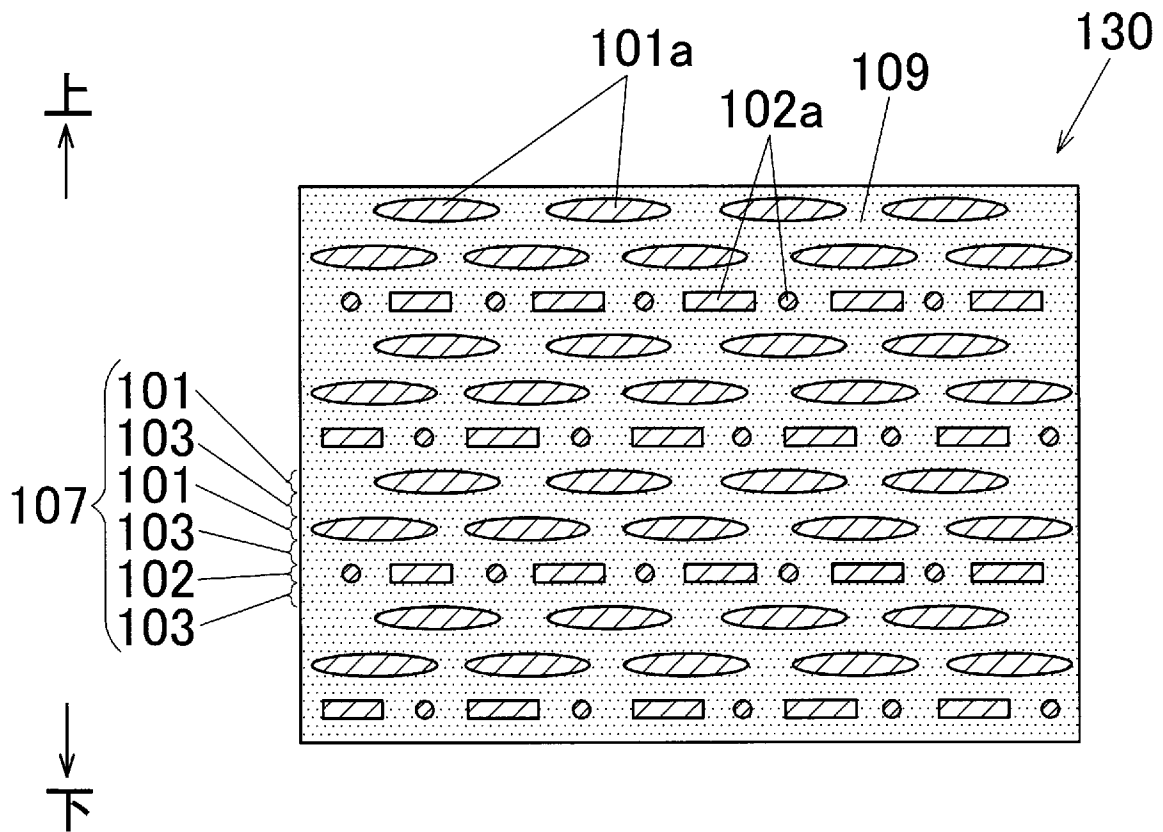
[図4]



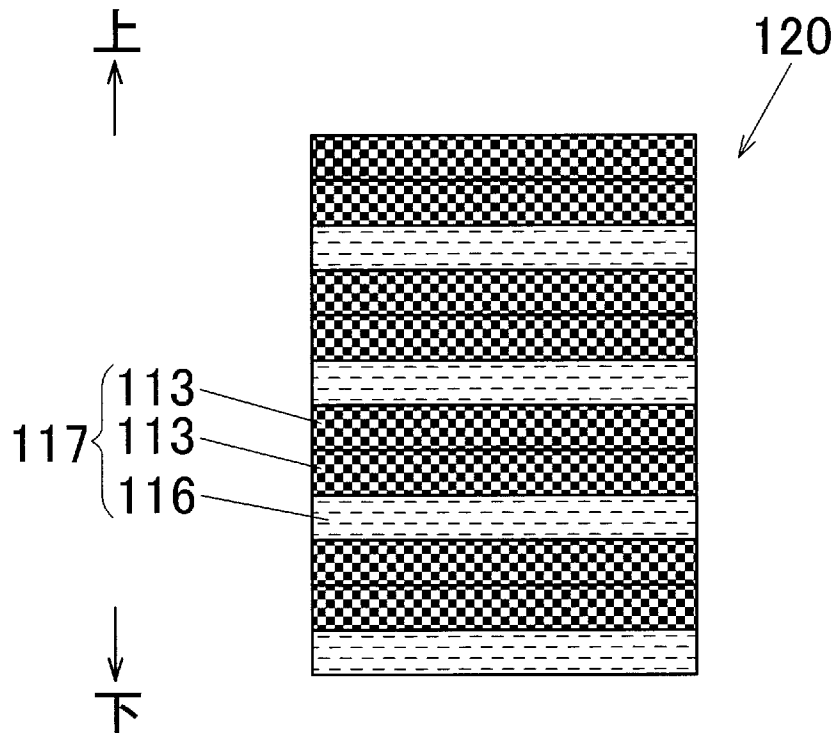
[図5]



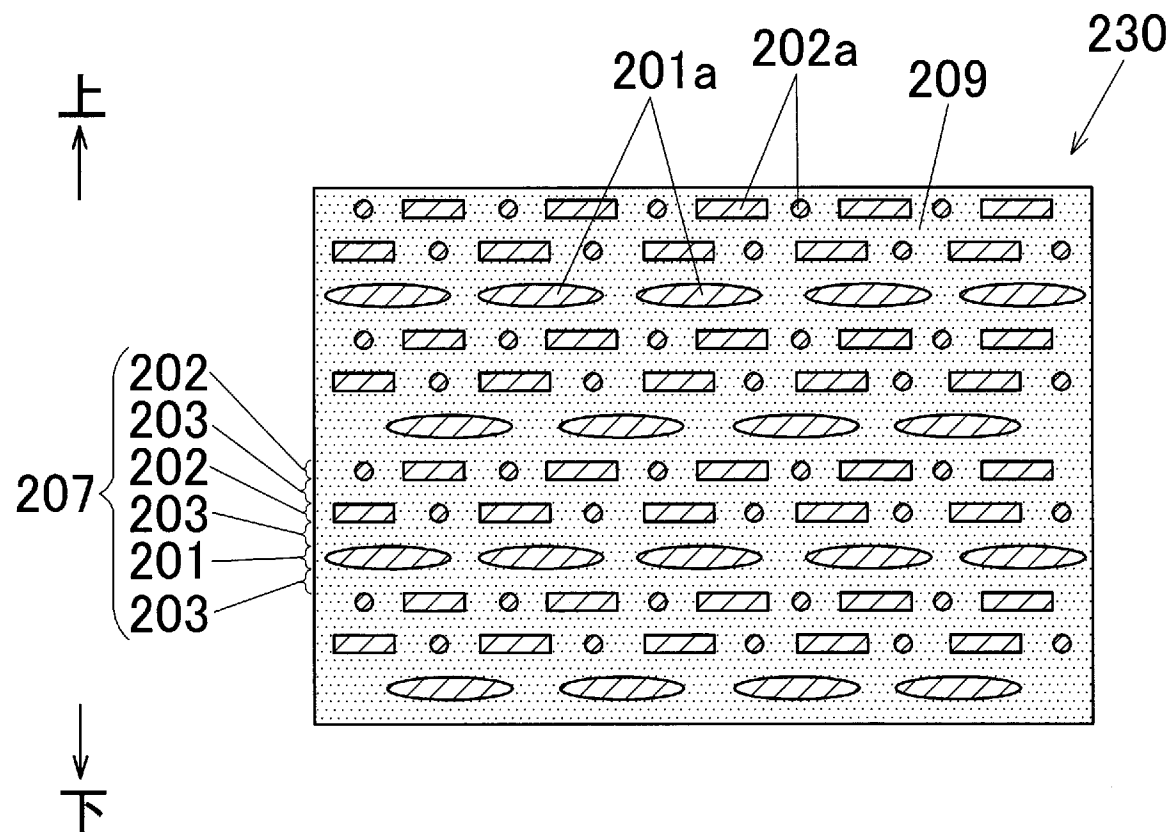
[図6]



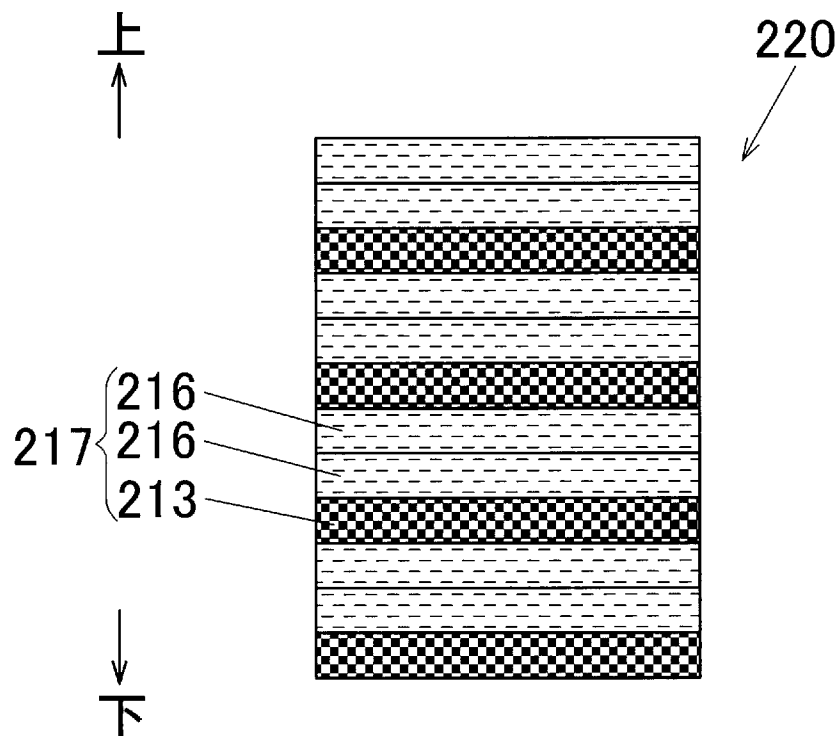
[図7]



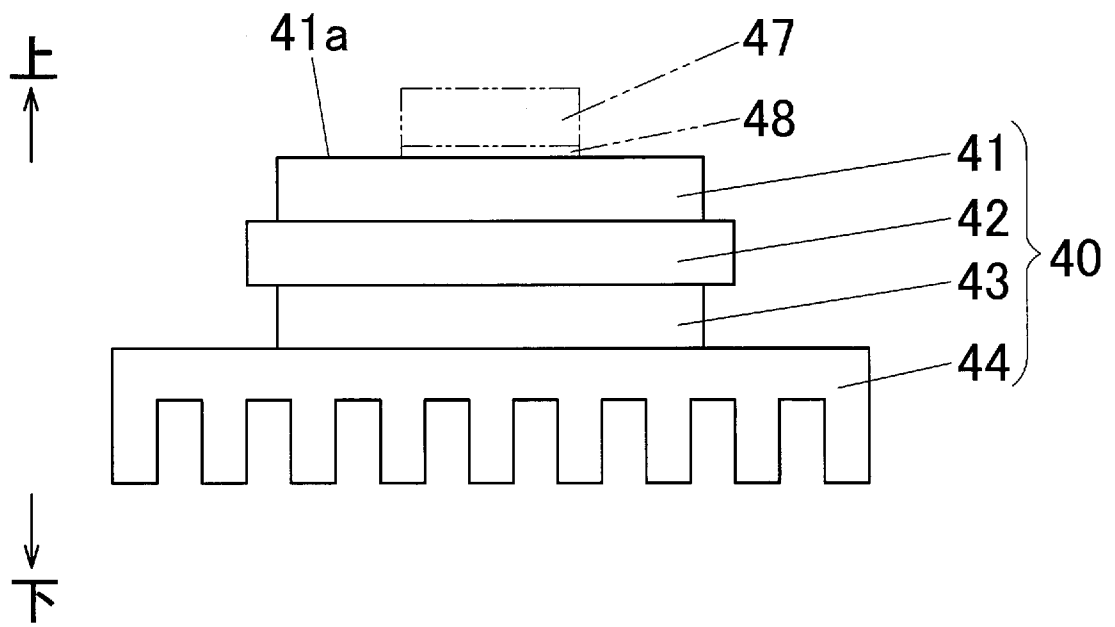
[図8]



[図9]



[図10]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/034644

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B32B15/01(2006.01)i, B05D7/14(2006.01)i, B05D7/24(2006.01)i, H01L23/36(2006.01)i, H01L23/373(2006.01)i, H05K7/20(2006.01)i

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)

B32B15/01, B05D7/14, B05D7/24, H01L23/36, H01L23/373, H05K7/20

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 63-140050 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 11 June 1988 (11.06.1988), claims; examples (Family: none)	1-5
A	JP 50-11925 A (Toray Industries, Inc.), 06 February 1975 (06.02.1975), claims; page 2, lower left column, lines 2 to 3 (Family: none)	1-5
A	JP 2005-133141 A (Shojiro OCHIAI), 26 May 2005 (26.05.2005), claims 1, 5; paragraph [0011] (Family: none)	1-5

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* 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
02 November 2017 (02.11.17)

Date of mailing of the international search report
14 November 2017 (14.11.17)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/034644

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2006/051782 A1 (Shimane-Ken), 18 May 2006 (18.05.2006), claims 1, 8 & US 2008/0248309 A1 & EP 1820870 A1 & KR 10-2007-0061591 A & CN 101057003 A	1-5
A	US 2015/0122483 A1 (BAKER HUGHES INC.), 07 May 2015 (07.05.2015), claims 1 to 4, 6 & EP 3066172 A1 & CN 105705606 A	1-5

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. B32B15/01(2006.01)i, B05D7/14(2006.01)i, B05D7/24(2006.01)i, H01L23/36(2006.01)i, H01L23/373(2006.01)i, H05K7/20(2006.01)i

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))

Int.Cl. B32B15/01, B05D7/14, B05D7/24, H01L23/36, H01L23/373, H05K7/20

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

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

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
A	JP 63-140050 A (日立化成工業株式会社) 1988.06.11, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1-5
A	JP 50-11925 A (東レ株式会社) 1975.02.06, 特許請求の範囲、第2頁左下欄2-3行 (ファミリーなし)	1-5
A	JP 2005-133141 A (落合 庄治郎) 2005.05.26, 請求項1、5、[0011] (ファミリーなし)	1-5

☑ 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、一般的技術水準を示すもの	「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矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「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	「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
「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)	「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
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」 同一パテントファミリー文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日

02.11.2017

国際調査報告の発送日

14.11.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

増田 亮子

電話番号 03-3581-1101 内線 3474

4S

6290

C (続き) . 関連すると認められる文献		
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
A	WO 2006/051782 A1 (島根県) 2006.05.18, 請求項 1、8 & US 2008/0248309 A1 & EP 1820870 A1 & KR 10-2007-0061591 A & CN 101057003 A	1-5
A	US 2015/0122483 A1 (BAKER HUGHES INCORPORATED) 2015.05.07, 請求項 1-4, 6 & EP 3066172 A1 & CN 105705606 A	1-5