

(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
2025年7月3日(03.07.2025)



(10) 国際公開番号

WO 2025/142124 A1

(51) 国際特許分類:

H01L 23/36 (2006.01) H01L 23/373 (2006.01)
C01B 32/21 (2017.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2024/039240

(22) 国際出願日: 2024年11月5日(05.11.2024)

(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 2023-219656 2023年12月26日(26.12.2023) JP

(71) 出願人: 株式会社カネカ (KANEKA CORPORATION) [JP/JP]; 〒5308288 大阪府大阪市北区中之島二丁目3番18号 (JP).

(72) 発明者: 中垣 武 (NAKAGAKI, Takeshi);
〒1076028 東京都港区赤坂1-12-3

2 株式会社カネカ東京本社内 (JP). 小林 幹明 (KOBAYASHI, Motoaki); 〒5660072 大阪府摂津市鳥飼西5-1-1 株式会社カネカ大阪工場内 (JP).

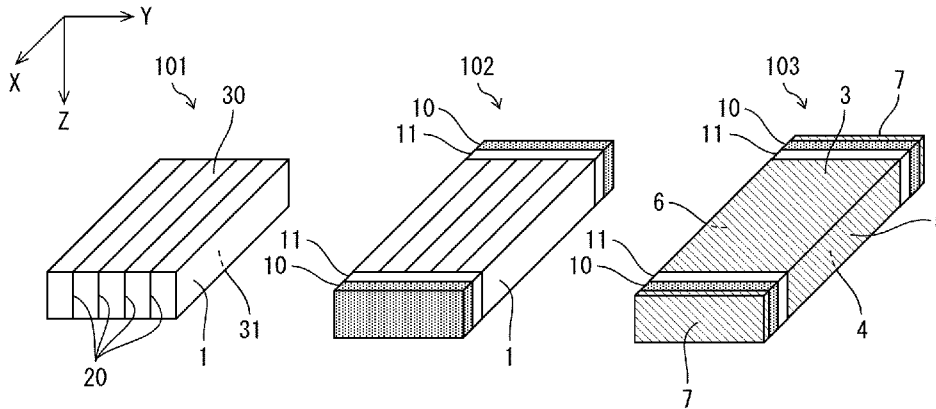
(74) 代理人: 弁理士法人 H A R A K E N Z O
W O R L D P A T E N T & T R A D E
E M A R K (H A R A K E N Z O W O R L D P A T E N T &
T R A D E M A R K); 〒5300041 大阪府大阪市北区
天神橋2丁目北2番6号大和南森町ビル (JP).

(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,

(54) Title: GRAPHITE COMPOSITE AND METHOD FOR PRODUCING GRAPHITE COMPOSITE

(54) 発明の名称: グラファイト複合体、およびグラファイト複合体の製造方法

図 1



(57) Abstract: In order to realize a graphite composite that has excellent thermal diffusion ability, is resistant to cracking of anisotropic graphite, has excellent heat resistance, and has a small degree of warpage, the present invention uses a graphite composite (103) provided with: anisotropic graphite (1) having a crystal orientation plane (20) of a graphite layer disposed parallel to the XZ plane in an XYZ space and having a first main surface (30) and a second main surface (31) that are parallel to the XY plane; a first metal layer (3) on the first main surface and a second metal layer (4) on the second main surface that have a specific thickness; and an adhesive layer (11) and a reinforcing layer (10) that are parallel to the YZ plane.

(57) 要約: 熱拡散能力に優れ、異方性グラファイトが割れ難く、耐熱性に優れ、かつ、反りの度合いが小さいグラファイト複合体を実現するために、XYZ空間にて、グラファイト層の結晶配向面(20)がXZ平面に平行に配置し、XY平面に平行な第1主面(30)と第2主面(31)とを有する異方性グラファイト(1)と、特定の厚さの第1主面上の第1金属層(3)および第2主面上の第2金属層(4)と、YZ平面に平行な接着層(11)と補強層(10)と、を備える、グラファイト複合体(103)を用いる。

LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, 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, 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, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, 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, ME, 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：

グラファイト複合体、およびグラファイト複合体の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、グラファイト複合体、およびグラファイト複合体の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 電子機器および電子デバイスから発生する熱を移動させて放熱する素子として、グラファイトが広く利用されている。

[0003] とりわけ、炭素原子の六員環同士が共有結合で繋がってなるグラファイト構造を備え、かつ、グラファイト構造同士がファンデルワールス力で結合してなる異方性グラファイトは、高い熱伝導率を有する。そのため、異方性グラファイトは、電子機器および電子デバイスから発生する熱を効果的に移動させて放熱する素子として、注目されている。

[0004] 例えば、特許文献1には、熱伝達素子として優れた熱伝達性能と長期信頼性とを備える異方性グラファイト、異方性グラファイト複合体、およびその製造方法が開示されている。特許文献1に記載の技術では、異方性グラファイトの主面の上に、チタン含有金属層、および無機材質層などが形成されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：WO 2019/188915 A1

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかしながら、上述のような従来技術は優れたものではある。しかしながら、当該従来技術には、熱拡散能力を向上させることと、異方性グラファイトを割れ難くすることと、耐熱性を向上させることと、および反りの度合い

を小さくすることと、を両立させるという面において、改善の余地があった。

[0007] 本発明の一態様は、熱拡散能力に優れ、異方性グラファイトが割れ難く、耐熱性に優れ、かつ、反りの度合いが小さいグラファイト複合体を実現することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体は、X軸、X軸に直交するY軸、X-Y平面に垂直なZ軸とした場合、グラファイト層の結晶配向面がX-Z平面に平行に配置してなり、X-Y平面に平行な第1主面と、当該第1主面に対向する第2主面と、を有する異方性グラファイトと、前記異方性グラファイトの第1主面に設けられた第1金属層と、前記異方性グラファイトの第2主面に設けられた第2金属層と、前記異方性グラファイトにおける、Y-Z平面に平行な面の少なくとも一方の面に設けられた、接着層と補強層と、を備え、前記第1金属層および前記第2金属層の厚さが $2\mu\text{m}\sim 50\mu\text{m}$ であり、前記接着層は、樹脂を含む、グラファイト複合体である。

[0009] 本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体の製造方法は、X軸、X軸に直交するY軸、X-Y平面に垂直なZ軸とした場合、グラファイト層の結晶配向面がX-Z平面に平行に配置してなり、X-Y平面に平行な第1主面と、当該第1主面に対向する第2主面と、を有する異方性グラファイトを備えるグラファイト複合体の製造方法であって、

前記異方性グラファイトのY-Z平面に平行な面の少なくとも一方の面に補強層を形成する補強工程であって、接着層を介して前記異方性グラファイトと前記補強層とを接着させる補強工程と、

前記補強層を形成した異方性グラファイトの第1主面および第2主面に、それぞれ第1金属層および第2金属層を形成する金属層形成工程と、を含み、

前記第1金属層および前記第2金属層の厚さが $2\mu\text{m}\sim 50\mu\text{m}$ であり、

前記接着層は、樹脂を含む、グラファイト複合体の製造方法である。

発明の効果

[0010] 本発明の一態様によれば、熱拡散能力に優れ、異方性グラファイトが割れ難く、耐熱性に優れ、かつ、反りの度合いが小さいグラファイト複合体を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0011] [図1]本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体の構成を示す図である。

[図2]本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体の製造方法の工程を示す図である。

[図3]本発明の実施例における、熱伝達性能の評価試験に用いた試験サンプルおよび試験装置の構成を示す図である。

発明を実施するための形態

[0012] 本発明の一実施形態について以下に説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。本発明は、以下に説明する各構成に限定されるものではなく、請求の範囲に示した範囲で種々の変更が可能である。また、異なる実施形態または実施例にそれぞれ開示された技術的手段を組み合わせ得られる実施形態または実施例についても、本発明の技術的範囲に含まれる。さらに、各実施形態にそれぞれ開示された技術的手段を組み合わせることにより、新しい技術的特徴を形成することができる。なお、本明細書中に記載された学術文献および特許文献の全てが、本明細書中において参考文献として援用される。また、本明細書において特記しない限り、数値範囲を表す「A～B」は、「A以上（Aを含みかつAより大きい）B以下（Bを含みかつBより小さい）」を意図する。

[0013] [1. 本発明の基本原則]

上述したように、特許文献1に記載の技術では、異方性グラファイトの主面の上に、チタン含有金属層、および無機材質層などが形成されている。異方性グラファイトの主面の上に配置された無機材質層は、異方性グラファイトの優れた熱拡散能力を阻害する傾向を示す。更に、異方性グラファイトは

、グラファイト層の結晶配向面に沿って割れやすいという性質を有する。

[0014] 本発明者は、以下の（i）～（iv）に示す事項を見出し、本発明を完成させるに至った。

[0015] （i）独自の配置を有する補強層によって、異方性グラファイトを割れ難くできること。

[0016] （ii）補強層を備えるが故に、異方性グラファイトの周囲を覆う層を薄くでき、かつ、異方性グラファイトの周囲を覆う層の構成を簡略化でき、これによって、グラファイト複合体の熱拡散能力を向上できること。

[0017] （iii）異方性グラファイトの周囲を覆う薄い層によって、異方性グラファイトをさらに割れ難くできること。

[0018] （iv）独自の配置および組成を有する接着層によって、異方性グラファイトの反りの度合いを小さくできること。

ここで、前記異方性グラファイトの周囲を覆う層は、例えば、第1金属層、および第2金属層などの金属層である。また、前記異方性グラファイトの周囲を覆う層の構成を簡略化することは、例えば、異方性グラファイトの主面に設ける構成を、第1金属層、および第2金属層のみとすることである。

[0019] 本発明の一態様によれば、熱拡散能力に優れ、異方性グラファイトが割れ難く、耐熱性に優れ、かつ、反りの度合いが小さいグラファイト複合体を提供することができる。本発明の一態様に係るこのような効果は、例えば、国際連合が提唱する持続可能な開発目標（SDGs）の目標12「持続可能な生産消費形態を確保する」等の達成にも貢献する可能性がある。

[0020] [2. グラファイト複合体]

図1を参照しながら、本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体について説明する。なお、図1は、本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体の構成を示す図である。

[0021] 本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体103は、X軸、X軸に直交するY軸、X-Y平面に垂直なZ軸とした場合、グラファイト層の結晶配向面20がX-Z平面に平行に配置してなり、X-Y平面に平行な第1主面

30と、第1主面30に対向する第2主面31と、を有する異方性グラファイト1と、異方性グラファイト1の第1主面30に設けられた第1金属層3と、異方性グラファイト1の第2主面31に設けられた第2金属層4と、異方性グラファイト1における、Y-Z平面に平行な面の少なくとも一方の面に設けられた、接着層11と補強層10と、を備え、第1金属層3および第2金属層4の厚さが $2\mu\text{m}$ ~ $50\mu\text{m}$ であり、接着層11は樹脂を含む、グラファイト複合体である。

[0022] 図1の101に示すように、本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体は、異方性グラファイト1を備えている。当該異方性グラファイト1は、図1の101に示すように、グラファイト層の結晶配向面20がX-Z平面に平行に配置してなり、X-Y平面に平行な第1主面30と、第1主面30に対向する第2主面31と、を有する。

[0023] 異方性グラファイト1は、六員環が共有結合で繋がったグラファイト構造を有する層（換言すれば、グラファイト層）が多数積層した、ブロック状の形状（例えば、立方体、直方体）を有し得る。なお、異方性グラファイト1は、グラファイト構造を有する層が互いに直接接するように積層されたものであってもよいし、グラファイト構造を有する層が接着部材（例えば、接着剤、両面テープ）を介して積層されたものであってもよい。ブロック状の異方性グラファイトは、グラファイト層の結晶配向面20と平行な方向（例えば、X軸方向およびZ軸方向）に高い熱伝導性を有する。異方性グラファイト1の「異方性」とは、グラファイト層が配向していることから、グラファイト層の結晶配向面20と平行な方向（例えば、X軸方向およびZ軸方向）および垂直な方向（例えば、Y軸方向）のそれぞれにおいて、異方性グラファイト1の熱伝導性が大きく異なることを意味する。かかる異方性グラファイト1は、例えば、上述した特許文献1に記載の方法等の公知の手法を用いて好適に作製し得る。

[0024] 異方性グラファイト1のX軸方向およびZ軸方向の熱伝導率は、例えば、 $1000\text{W}/\text{mK}$ 以上であり得る。異方性グラファイト1のX軸方向および

Z軸方向の熱伝導率の上限は、特に限定されないが、 2000 W/mK 以下であり得る。一方、異方性グラファイト1のY軸方向の熱伝導率は、例えば、 0.3 W/mK 以上、 20 W/mK 以下であり得る。

[0025] 第1主面30は、X-Y平面に平行な面であり、第2主面31は、X-Y平面に平行な第1主面30に対向する面（換言すれば、X-Y平面に平行な面）である。それ故に、異方性グラファイト1では、Z軸方向に沿って（例えば、第1主面30から第2主面31に向かって）、および／または、X軸方向に沿って、効率よく熱輸送することができる。

[0026] 異方性グラファイト1の厚さ（Z軸方向への厚さ）は、限定されないが、 $0.3\text{ mm}\sim 5.0\text{ mm}$ であることが好ましく、 $0.5\text{ mm}\sim 3.0\text{ mm}$ であることがより好ましく、 $0.7\text{ mm}\sim 2.0\text{ mm}$ であることが最も好ましい。当該構成であれば、薄く、かつ、効率よく熱輸送することができる熱伝達素子を実現することができる。

[0027] 異方性グラファイト1のX軸方向への厚さ、および、Y軸方向の厚さは、限定されず、利用目的に合わせて、適宜、設定することができる。異方性グラファイトのX軸方向への厚さ、および、Y軸方向の厚さは、例えば、 $10\text{ mm}\sim 80\text{ mm}$ 、または、 $10\text{ mm}\sim 50\text{ mm}$ であり得る。

[0028] 図1に示すように、本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体103は、異方性グラファイト1の第1主面30上に設けられた第1金属層3と、異方性グラファイト1の第2主面31上に設けられた第2金属層4と、を備えている。

[0029] 上述のとおり異方性グラファイト1では、Z軸方向に沿って、効率よく熱輸送されるため、第1金属層3および第2金属層4によって、異方性グラファイト1の熱を他の構成へ効率よく伝えることができる。

[0030] また、第1金属層3および第2金属層4によって異方性グラファイト1の表面の少なくとも一部を覆っているため、異方性グラファイト1からのグラファイト粉末の粉落ちを防ぐことができる。異方性グラファイト1からのグラファイト粉末の粉落ちを防ぐことができる場合、例えば、本発明の一実施

形態に係るグラファイト複合体を電子機器内に配置したときに、グラファイト粉末によって生じる電子回路の短絡を防ぐことができる。

[0031] また、第1金属層3および第2金属層4によって、異方性グラファイト1をさらに割れ難くすることができる。

[0032] 第1金属層3および第2金属層4は、異方性グラファイト1に直接接するように設けられていてもよいし、異方性グラファイト1に直接接しないように設けられていてもよい。第1金属層3および第2金属層4は、異方性グラファイト1に直接接するように設けられていることが好ましい。当該構成であれば、異方性グラファイト1と、第1金属層3および第2金属層4との間で、直接熱を受け渡しできるので、薄く、かつ、効率よく熱輸送することができる熱伝達素子を実現することができる。また、当該構成であれば、第1金属層3および第2金属層4によって、異方性グラファイト1の表面の少なくとも一部をより確実に覆うことができるとともに、異方性グラファイト1をより確実に割れ難くすることができる。

[0033] 第1金属層3および第2金属層4の構成は、特に限定されないが、金属蒸着層、スパッタ処理による金属層、溶射による金属層、メッキ層、または金属系ろう材を含む金属層であることが好ましく、メッキ層であることがより好ましい。なお、メッキ層は、金属層と無機材質層とが一体になったものであってもよい。当該構成であれば、第1金属層3および第2金属層4を薄く構成することができるので、薄く、かつ、効率よく熱輸送することができる熱伝達素子を実現することができる。また、当該構成であれば、異方性グラファイト1の上に、他の構成を介することなく、第1金属層3および第2金属層4を形成することができる。

[0034] 第1金属層3および第2金属層4の材料は、特に限定されないが、銅、ニッケル、および金からなる群より選択される少なくとも1種を含むことが好ましい。これらの材料の中では、銅がより好ましい。当該構成であれば、コストと、効率よい熱輸送とが両立した熱伝達素子を実現することができる。

[0035] 第1金属層3および第2金属層4の厚さ（Z軸方向への厚さ）は、 $2\mu\text{m}$

～50 μm であり得、3 μm ～30 μm であることが好ましく、5 μm ～10 μm であることがより好ましい。当該構成であれば、より効率よく熱輸送することができる熱伝達素子を実現することができる。

[0036] 図1に示すように、本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体103は、異方性グラファイト1における、X-Z平面に平行な面の最外層の両面に、それぞれ第3金属層5と第4金属層6とが設けられていることが好ましい。

[0037] 第3金属層5および第4金属層6によって異方性グラファイト1の表面の少なくとも一部が覆われているので、異方性グラファイト1からのグラファイト粉末の粉落ちを防ぐことができる。

[0038] また、第3金属層5および第4金属層6によって、異方性グラファイト1をさらに割れ難くすることができる。

[0039] 第3金属層5および第4金属層6は、異方性グラファイト1に直接接するように設けられていてもよいし、異方性グラファイト1に直接接しないように設けられていてもよい。第3金属層5および第4金属層6は、異方性グラファイト1に直接接するように設けられていることが好ましい。当該構成であれば、第3金属層5および第4金属層6によって、異方性グラファイト1の表面の少なくとも一部をより確実に覆うことができるとともに、異方性グラファイト1をより確実に割れ難くすることができる。

[0040] 第3金属層5および第4金属層6の構成は、第1金属層3および第2金属層4と同様であり得る。

[0041] 第3金属層5および第4金属層6の厚さ（Y軸方向への厚さ）は、特に限定されないが、2 μm ～50 μm であることが好ましく、3 μm ～30 μm であることがより好ましく、5 μm ～10 μm であることが最も好ましい。当該構成であれば、異方性グラファイト1からのグラファイト粉末の粉落ちを防ぐことができるのみならず、薄い熱伝達素子を実現することができる。

[0042] 図1に示すように、本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体103は、異方性グラファイト1における、Y-Z平面に平行な面の少なくとも一

方の面に設けられた補強層 10 を備えている。本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体 103 では、補強層 10 は、異方性グラファイト 1 における、Y-Z 平面に平行な面の両方の面に設けられていることが好ましい。図 1 の 102 は、第 1 金属層 3、第 2 金属層 4、第 3 金属層 5 および第 4 金属層 6 を設けていない構成を模式的に示す。

[0043] 異方性グラファイトは、X-Z 平面（結晶配向面 20）に沿って割れやすいという性質を有する。このため、Y-Z 平面に平行な面の少なくとも一方の面に補強層 10 を設けることにより、異方性グラファイト 1 を割れ難くすることができる。

[0044] なお、補強層は、X-Z 面にも形成されていてもよい。つまり、本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体は、異方性グラファイトにおける、X-Z 平面に平行な面の少なくとも一方の面（または、X-Z 平面に平行な面の両方の面）に設けられた補強層を備えていてもよい。

[0045] 異方性グラファイトの X-Z 平面よりも外側の構成は、異方性グラファイトの Y-Z 平面の外側の構成と同様の構成にすることができる。当該構成は、例えば、補強層 10 を含む構成、補強層 10 および接着層 11 を含む構成、または、補強層 10、接着層 11 および第 7 金属層を含む構成である。

[0046] 補強層 10 の厚さ（X 軸方向への厚さ）は、限定されないが、 $50\mu\text{m}\sim 500\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $100\mu\text{m}\sim 400\mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $150\mu\text{m}\sim 300\mu\text{m}$ であることが最も好ましい。当該構成であれば、異方性グラファイト 1 を割れ難くすることができるのみならず、薄い熱伝達素子を実現することができる。

[0047] 補強層 10 の Y 軸方向への厚さ、および、Z 軸方向の厚さは、限定されず、異方性グラファイト 1 のサイズに合わせて、適宜、設定することができる。

[0048] 補強層 10 の材料は、特に限定されないが、樹脂、金属およびセラミックからなる群より選択される少なくとも 1 種を含むことが好ましい。前記樹脂としては、例えば、アクリル樹脂、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリエ

チレンテレフタレート、ポリカーボネート、各種添加物を加えた改質樹脂およびエラストマーを挙げることができる。前記金属としては、例えば、金、銀、銅、ニッケル、アルミニウム、モリブデン、タングステン、これらを含む合金、および金属系ろう材を挙げることができる。前記セラミックとしては、例えば、アルミナ、ジルコニア、炭化珪素、窒化珪素、窒化ホウ素、および窒化アルミを挙げることができる。当該構成であれば、異方性グラファイト1を割れ難くすることができるとの利点を得ることができる。当該利点をより良く得るという観点から、前記樹脂の中では、ポリカーボネートおよびポリエチレンテレフタレートが更に好ましく、前記金属の中では、銅およびアルミニウムが更に好ましく、前記セラミックの中では、アルミナおよび炭化珪素が更に好ましい。

[0049] 図1に示すように、本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体は、異方性グラファイト1と補強層10との間に、接着層11を備えている。当該構成によれば、接着層11を介して、異方性グラファイト1と補強層10とを接着させることができる。

[0050] 接着層11は、樹脂を含むものである。当該樹脂は、限定されず、例えば、熱硬化性樹脂、および、熱可塑性樹脂からなる群から選択される少なくとも1つであり得る。より具体的に、当該樹脂は、アクリル樹脂、シリコン樹脂、エポキシ樹脂、エステル樹脂、フェノール樹脂、ポリイミド樹脂、および、ウレタン樹脂からなる群から選択される少なくとも1つであり得る。また、当該樹脂は、アクリル樹脂、シリコン樹脂、および、エポキシ樹脂からなる群から選択される少なくとも1つであってもよい。接着層11は、樹脂以外の成分を含むものであり得る。

[0051] 接着層11の厚さ（X軸方向への厚さ）は、限定されないが、 $5\mu\text{m}$ ～ $500\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $8\mu\text{m}$ ～ $100\mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $8\mu\text{m}$ ～ $50\mu\text{m}$ あることが最も好ましい。当該構成であれば、異方性グラファイト1と補強層10とを強固に接着させることができるのみならず、薄い熱伝達素子を実現することができる。

[0052] 接着層 11 の Y 軸方向への厚さ、および、Z 軸方向の厚さは、限定されず、異方性グラファイト 1 のサイズに合わせて、適宜、設定することができる。

[0053] 本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体 103 は、補強層 10 の外側（換言すれば、補強層 10 の、接着層 11 とは反対側）に、第 5 金属層 7 を備えていてもよい。

[0054] 第 5 金属層 7 によって補強層 10 の表面の少なくとも一部（換言すれば、異方性グラファイト 1 の表面の少なくとも一部）を覆っているので、異方性グラファイト 1 からのグラファイト粉末の粉落ちを、より良く防ぐことができる。

[0055] また、第 5 金属層 7 によって、異方性グラファイト 1 をさらに割れ難くすることができる。

[0056] 第 5 金属層 7 の構成は、特に限定されないが、第 1 金属層 3 および第 2 金属層 4 と同様であり得る。

[0057] 第 5 金属層 7 の厚さ（X 軸方向への厚さ）は、特に限定されないが、 $2\mu\text{m}$ ～ $50\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $3\mu\text{m}$ ～ $50\mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $5\mu\text{m}$ ～ $10\mu\text{m}$ であることが最も好ましい。当該構成であれば、異方性グラファイト 1 からのグラファイト粉末の粉落ちを防ぐことができるのみならず、薄い熱伝達素子を実現することができる。

[0058] 第 5 金属層 7 の Y 軸方向への厚さ、および、Z 軸方向の厚さは、限定されず、異方性グラファイト 1 のサイズに合わせて、適宜、設定することができる。

[0059] [2. グラファイト複合体の製造方法]

図 1 および図 2 を参照しながら、本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体 103 の製造方法について説明する。なお、上述した [1. グラファイト複合体] 欄で既に説明した内容については、ここでは、その説明を省略する。

[0060] 本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体 103 の製造方法は、X 軸

、X軸に直交するY軸、X-Y平面に垂直なZ軸とした場合、グラファイト層の結晶配向面20がX-Z平面に平行に配置してなり、X-Y平面に平行な第1主面30と、第1主面30に対向する第2主面31と、を有する異方性グラファイト1を備えるグラファイト複合体103の製造方法であって、異方性グラファイト1のY-Z平面に平行な面の少なくとも一方の面に補強層10を形成する補強工程であって、接着層11を介して異方性グラファイト1と補強層10とを接着させる補強工程と、補強層10を形成した異方性グラファイト1の第1主面30および第2主面31に、それぞれ第1金属層3および第2金属層4を形成する金属層形成工程と、を含み、第1金属層3および第2金属層4の厚さが $2\mu\text{m}$ ~ $50\mu\text{m}$ であり、接着層11は、樹脂を含む。

[0061] 補強工程は、異方性グラファイト1のY-Z平面に平行な面の少なくとも一方の面（または、異方性グラファイト1のY-Z平面に平行な面の両方の面）に補強層10を形成する工程である（図2の工程1を参照）。

[0062] 補強工程の具体的な構成は、特に限定されず、例えば、接着層11を介して、異方性グラファイト1と補強層10とを接着させてもよい。なお、接着層11を介して、異方性グラファイト1と補強層10とを接着させる方法としては、接着層11の原料に応じて、適宜、公知の方法を用いればよい。

[0063] 接着層11は、樹脂を含むものである。当該樹脂は、限定されず、例えば、熱硬化性樹脂、および、熱可塑性樹脂からなる群から選択される少なくとも1つであり得る。より具体的に、当該樹脂は、アクリル樹脂、シリコン樹脂、エポキシ樹脂、エステル樹脂、フェノール樹脂、ポリイミド樹脂、および、ウレタン樹脂からなる群から選択される少なくとも1つであり得る。また、当該樹脂は、アクリル樹脂、シリコン樹脂、および、エポキシ樹脂からなる群から選択される少なくとも1つであってもよい。接着層11は、樹脂以外の成分を含むものであり得る。

[0064] 本発明の一実施形態に係るグラファイト複合体103の製造方法は、前記補強工程の後に補強層10および異方性グラファイト1（換言すれば、補強

層 1 0 および異方性グラファイト 1 の複合体) を切断する切断工程を含むことが好ましい。

[0065] 切断工程では、例えば、補強層 1 0 および異方性グラファイト 1 の複合体を、X-Y 平面に平行な切断面 5 0 に沿って切断することができる(図 2 の工程 2 ~ 工程 3 を参照)。当該構成によれば、1 つの大きなブロックから、グラファイト複合体 1 0 3 の前駆体を、複数得ることができる。更に、当該前駆体から、効率よく複数のグラファイト複合体 1 0 3 を製造することができる。

[0066] 切断工程の具体的な工程は、特に限定されず、例えば、ワイヤーソーによる切断、金型による切断、およびレーザーによる切断を挙げることができる。生産性という利点が得られることから、これらの中では、ワイヤーソーによる切断が好ましい。

[0067] 金属層形成工程は、補強層 1 0 が形成された異方性グラファイト 1 の第 1 主面 3 0 および第 2 主面 3 1 に、それぞれ第 1 金属層 3 および第 2 金属層 4 を形成する工程である(図 2 の工程 4 を参照)。

[0068] 前記金属層形成工程では、第 1 金属層 3 と第 2 金属層 4 とを同時に形成することが好ましい。当該構成によれば、効率よくグラファイト複合体を製造することができる。

[0069] 前記金属層形成工程において、第 1 金属層 3 と第 2 金属層 4 と第 3 金属層 5 と第 4 金属層 6 とを同時に形成してもよい。また、前記金属層形成工程において、第 1 金属層 3 ~ 第 4 金属層 6 に加えて、さらに第 5 金属層 7 も同時に形成してもよい。さらに、前記金属層形成工程において、第 1 金属層と第 2 金属層と同時に、第 3 金属層および／または第 4 金属層を形成することなく、第 5 金属層を形成してもよい。当該構成によれば、異方性グラファイト 1 からのグラファイト粉末の粉落ちをより良く防ぐことができるグラファイト複合体を、効率よく製造することができる。

[0070] 第 1 金属層 3、第 2 金属層 4、第 3 金属層 5、第 4 金属層 6、および第 5 金属層 7 を形成する方法は、特に限定されず、これらの金属層の原料に合わ

せて、適宜、公知の方法を用いることができる。当該方法としては、例えば、メッキ処理、接着剤のついた金属フィルムの貼り付け、金属蒸着、およびスパッタ処理を挙げることができる。当該構成によれば、異方性グラファイト1などの構成の上に、第1金属層3および第2金属層4などの金属層を、直接、形成することができる。

[0071] 異方性グラファイト1に金属層をメッキ処理などによって形成した後で当該異方性グラファイト1に補強層10を設ける場合、異方性グラファイト1をメッキ処理する際に把持具により把持した状態でメッキ槽に入れる必要がある。ここで、当該金属層としては、例えば、第1金属層3、第2金属層4、第3金属層5、第4金属層6および第5金属層7を挙げることができる。その際、異方性グラファイト1の表面の把持具と接触している箇所に、金属層が形成されない箇所が生じやすい。この場合、異方性グラファイト1からのグラファイト粉末の粉落ちが生じやすくなるとの問題点が発生する。また、金属層を形成するときに生じる振動などによって、異方性グラファイト1が割れやすいとの問題点も発生する。

[0072] 補強工程の後で金属層形成工程を行うことによって、上述した問題点を解決することができる。

[0073] 本発明の一実施形態は、以下の〔1〕～〔50〕に記載の発明を包含する。

[0074] 〔1〕 X軸、X軸に直交するY軸、X-Y平面に垂直なZ軸とした場合、グラファイト層の結晶配向面がX-Z平面に平行に配置してなり、X-Y平面に平行な第1主面と、当該第1主面に対向する第2主面と、を有する異方性グラファイトと、

前記異方性グラファイトの第1主面に設けられた第1金属層と、

前記異方性グラファイトの第2主面に設けられた第2金属層と、

前記異方性グラファイトにおける、Y-Z平面に平行な面の少なくとも一方の面に設けられた、接着層と補強層と、を備え、

前記第1金属層および前記第2金属層の厚さが $2\mu\text{m}$ ～ $50\mu\text{m}$ であり、

前記接着層は、樹脂を含む、グラファイト複合体。

- [0075] 〔2〕前記異方性グラファイトのX軸方向への厚さおよびY軸方向の厚さは10mm～80mmである〔1〕に記載のグラファイト複合体。
- [0076] 〔3〕前記異方性グラファイトのZ軸方向への厚さは0.3mm～5.0mmである〔1〕または〔2〕に記載のグラファイト複合体。
- [0077] 〔4〕前記補強層の厚さが、50μm～500μmである、〔1〕～〔3〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体。
- [0078] 〔5〕前記接着層に含まれる前記樹脂が、熱硬化性樹脂、および、熱可塑性樹脂からなる群から選択される少なくとも1つである、〔1〕～〔4〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体。
- [0079] 〔6〕前記接着層に含まれる前記樹脂が、アクリル樹脂、シリコン樹脂、エポキシ樹脂、エステル樹脂、フェノール樹脂、ポリイミド樹脂、および、ウレタン樹脂からなる群から選択される少なくとも1つである、〔1〕～〔5〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体。
- [0080] 〔7〕前記接着層に含まれる前記樹脂が、アクリル樹脂、シリコン樹脂、および、エポキシ樹脂からなる群から選択される少なくとも1つである、〔1〕～〔6〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体。
- [0081] 〔8〕前記第1金属層および前記第2金属層が、前記異方性グラファイトに直接接している、〔1〕～〔7〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体。
- [0082] 〔9〕前記第1金属層および前記第2金属層が、金属蒸着層、スパッタ処理による金属層、溶射による金属層、メッキ層、または金属系ろう材を含む金属層である、〔1〕～〔8〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体。
- [0083] 〔10〕前記第1金属層および前記第2金属層が、銅、ニッケル、および金からなる群より選択される少なくとも1種を含む、〔1〕～〔9〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体。
- [0084] 〔11〕前記第1金属層および前記第2金属層のZ軸方向への厚さが、2μm～50μmである、〔1〕～〔10〕の何れか1つに記載のグラファイト

ト複合体。

- [0085] [12] 前記補強層は、樹脂、金属、およびセラミックからなる群より選択される少なくとも1種を含む、[1]～[11]の何れか1つに記載のグラファイト複合体。
- [0086] [13] 前記補強層は、前記異方性グラファイトにおける、Y-Z平面に平行な面の両方の面に設けられている、[1]～[12]の何れか1つに記載のグラファイト複合体。
- [0087] [14] 前記補強層のX軸方向への厚さは、 $50\mu\text{m}$ ～ $500\mu\text{m}$ である、[1]～[13]の何れか1つに記載のグラファイト複合体。
- [0088] [15] 前記異方性グラファイトにおける、X-Z平面に平行な面の最外層の両面に、それぞれ第3金属層と第4金属層とが設けられている、[1]～[14]の何れか1つに記載のグラファイト複合体。
- [0089] [16] 前記第3金属層および前記第4金属層が、前記異方性グラファイトに直接接している、[15]に記載のグラファイト複合体。
- [0090] [17] 前記第3金属層および前記第4金属層が、金属蒸着層、スパッタ処理による金属層、溶射による金属層、メッキ層、または金属系ろう材を含む金属層である、[15]または[16]に記載のグラファイト複合体。
- [0091] [18] 前記第3金属層および前記第4金属層が、銅、ニッケル、および金からなる群より選択される少なくとも1種を含む、[15]～[17]の何れか1つに記載のグラファイト複合体。
- [0092] [19] 前記第3金属層および前記第4金属層のY軸方向への厚さが、 $2\mu\text{m}$ ～ $50\mu\text{m}$ である、[15]～[18]の何れか1つに記載のグラファイト複合体。
- [0093] [20] さらに、前記補強層の外側に第5金属層を含む、[1]～[19]の何れか1つに記載のグラファイト複合体。
- [0094] [21] 前記第5金属層が、金属蒸着層、スパッタ処理による金属層、溶射による金属層、メッキ層、または金属系ろう材を含む金属層である、[20]に記載のグラファイト複合体。

- [0095] 〔22〕前記第5金属層が、銅、ニッケル、および金からなる群より選択される少なくとも1種を含む、〔20〕または〔21〕に記載のグラファイト複合体。
- [0096] 〔23〕前記第5金属層のX軸方向への厚さが、 $2\mu\text{m}$ ～ $50\mu\text{m}$ である、〔20〕～〔22〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体。
- [0097] 〔24〕X軸、X軸に直交するY軸、X-Y平面に垂直なZ軸とした場合、グラファイト層の結晶配向面がX-Z平面に平行に配置してなり、X-Y平面に平行な第1主面と、当該第1主面に対向する第2主面と、を有する異方性グラファイトを備えるグラファイト複合体の製造方法であって、
前記異方性グラファイトのY-Z平面に平行な面の少なくとも一方の面に補強層を形成する補強工程であって、接着層を介して前記異方性グラファイトと前記補強層とを接着させる補強工程と、
前記補強層を形成した異方性グラファイトの第1主面および第2主面に、それぞれ第1金属層および第2金属層を形成する金属層形成工程と、を含み、
前記第1金属層および前記第2金属層の厚さが $2\mu\text{m}$ ～ $50\mu\text{m}$ であり、
前記接着層は、樹脂を含む、グラファイト複合体の製造方法。
- [0098] 〔25〕前記異方性グラファイトのX軸方向への厚さおよびY軸方向の厚さは 10mm ～ 80mm である〔24〕に記載のグラファイト複合体の製造方法。
- [0099] 〔26〕前記異方性グラファイトのZ軸方向への厚さは 0.3mm ～ 5.0mm である〔24〕または〔25〕に記載のグラファイト複合体の製造方法。
- [0100] 〔27〕前記補強層の厚さが、 $50\mu\text{m}$ ～ $500\mu\text{m}$ である、〔24〕～〔26〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体の製造方法。
- [0101] 〔28〕前記補強工程の後に前記補強層および前記異方性グラファイトを切断する切断工程を含む、〔24〕～〔27〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体の製造方法。

- [0102] 〔 2 9 〕 前記切断工程は、前記補強層および前記異方性グラファイトを、
X－Y平面に平行な切断面に沿って切断する工程である、〔 2 8 〕の何れか
1つに記載のグラファイト複合体の製造方法。
- [0103] 〔 3 0 〕 前記切断工程は、ワイヤーソーによる切断、金型による切断およ
びレーザーによる切断からなる群から選択される方法によって、前記補強層
および前記異方性グラファイトを切断する工程である、〔 2 8 〕または〔 2
9 〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体の製造方法。
- [0104] 〔 3 1 〕 前記接着層に含まれる前記樹脂が、熱硬化性樹脂、および、熱可
塑性樹脂からなる群から選択される少なくとも1つである、〔 2 4 〕～〔 3
0 〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体の製造方法。
- [0105] 〔 3 2 〕 前記接着層に含まれる前記樹脂が、アクリル樹脂、シリコン樹脂
、エポキシ樹脂、エステル樹脂、フェノール樹脂、ポリイミド樹脂、および
、ウレタン樹脂からなる群から選択される少なくとも1つである、〔 2 4 〕
～〔 3 1 〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体の製造方法。
- [0106] 〔 3 3 〕 前記接着層に含まれる前記樹脂が、アクリル樹脂、シリコン樹脂
、および、エポキシ樹脂からなる群から選択される少なくとも1つである、
〔 2 4 〕～〔 3 2 〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体の製造方法。
- [0107] 〔 3 4 〕 前記金属層形成工程では、前記第1金属層と前記第2金属層とを
同時に形成する、〔 2 4 〕～〔 3 3 〕の何れか1つに記載のグラファイト複
合体の製造方法。
- [0108] 〔 3 5 〕 前記金属層形成工程では、前記第1金属層および前記第2金属層
を、前記異方性グラファイトに直接接するように形成する、〔 2 4 〕～〔 3
4 〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体の製造方法。
- [0109] 〔 3 6 〕 前記第1金属層および前記第2金属層が、金属蒸着層、スパッタ
処理による金属層、溶射による金属層、メッキ層、または金属系ろう材を含
む金属層である、〔 2 4 〕～〔 3 5 〕の何れか1つに記載のグラファイト複
合体の製造方法。
- [0110] 〔 3 7 〕 前記第1金属層および前記第2金属層が、銅、ニッケル、および

金からなる群より選択される少なくとも1種を含む、〔24〕～〔36〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体の製造方法。

[0111] 〔38〕前記第1金属層および前記第2金属層のZ軸方向への厚さが、 $2\mu\text{m}$ ～ $50\mu\text{m}$ である、〔24〕～〔37〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体の製造方法の製造方法。

[0112] 〔39〕前記補強層は、樹脂、金属、およびセラミックからなる群より選択される少なくとも1種を含む、〔24〕～〔38〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体の製造方法。

[0113] 〔40〕前記補強工程では、前記補強層を、前記異方性グラファイトにおける、Y-Z平面に平行な面の両方の面に設ける、〔24〕～〔39〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体の製造方法。

[0114] 〔41〕前記補強層のX軸方向への厚さは、 $50\mu\text{m}$ ～ $500\mu\text{m}$ である、〔24〕～〔40〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体の製造方法。

[0115] 〔42〕前記金属層形成工程において、さらに、前記異方性グラファイトにおけるX-Z平面に平行な面の最外層の両面に第3金属層および第4金属層を形成する、〔24〕～〔41〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体の製造方法。

[0116] 〔43〕前記金属層形成工程において、前記第3金属層および前記第4金属層を、前記異方性グラファイトに直接接するように形成する、〔42〕に記載のグラファイト複合体の製造方法。

[0117] 〔44〕前記第3金属層および前記第4金属層が、金属蒸着層、スパッタ処理による金属層、溶射による金属層、メッキ層、または金属系ろう材を含む金属層である、〔42〕または〔43〕に記載のグラファイト複合体の製造方法。

[0118] 〔45〕前記第3金属層および前記第4金属層が、銅、ニッケル、および金からなる群より選択される少なくとも1種を含む、〔42〕～〔44〕の何れか1つに記載のグラファイト複合体の製造方法。

- [0119] [46] 前記第3金属層および前記第4金属層のY軸方向への厚さが、 $2\mu\text{m}$ ～ $50\mu\text{m}$ である、[42]～[45]の何れか1つに記載のグラファイト複合体の製造方法。
- [0120] [47] 前記金属層形成工程において、さらに、前記補強層の外側に第5金属層を形成する、[42]～[46]の何れか1つに記載のグラファイト複合体の製造方法。
- [0121] [48] 前記第5金属層が、金属蒸着層、スパッタ処理による金属層、溶射による金属層、メッキ層、または金属系ろう材を含む金属層である、[47]に記載のグラファイト複合体の製造方法。
- [0122] [49] 前記第5金属層が、銅、ニッケル、および金からなる群より選択される少なくとも1種を含む、[47]または[48]に記載のグラファイト複合体の製造方法。
- [0123] [50] 前記第5金属層のX軸方向への厚さが、 $2\mu\text{m}$ ～ $50\mu\text{m}$ である、[47]～[49]の何れか1つに記載のグラファイト複合体の製造方法。

実施例

- [0124] 以下、実施例および比較例によって本発明の一実施形態をより詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。
- [0125] <異方性グラファイト、およびグラファイト複合体の製造>
- (グラファイト複合体(A)：実施例1)
- $100\text{mm}\times 100\text{mm}\times$ 厚さ $25\mu\text{m}$ のポリイミドフィルムを、4500枚積層した。その後、 $40\text{kg}/\text{cm}^2$ の圧力でプレス加圧しながら、アルゴン雰囲気下、 2900°C まで熱処理することにより、グラファイトブロック($90\text{mm}\times 90\text{mm}$ 、厚さ 45mm)を作製した。得られたグラファイトブロックの結晶配向面に平行な方向の熱伝導率は $1500\text{W}/\text{mK}$ であり、結晶配向面に垂直な方向の熱伝導率は $5\text{W}/\text{mK}$ であった。
- [0126] 得られたグラファイトブロック($90\text{mm}\times 90\text{mm}$ 、厚さ 45mm)を、ワイヤーソーにて切断して異方性グラファイト1を得た。異方性グラファ

イト1の寸法は、異方性グラファイト1の結晶配向面をX-Z平面に平行に配置したときに、X軸に平行な辺の長さが39.6mm、Y軸に平行な辺の長さが29.99mm、Z軸に平行な辺の長さが80mmであった。

[0127] 次に、異方性グラファイト1のY-Z平面に平行な面の両面に接着層11である29.99mm×80mm×50μmのアクリル両面テープを介して、補強層10である29.99mm×80mm×厚さ150μmの無酸素銅を接着させた。

[0128] 当該方法により、X軸に平行な辺の長さが40mm、Y軸に平行な辺の長さが29.99mm、Z軸に平行な辺の長さが80mmである複合体を得た。

[0129] その後、複合体をワイヤーソーによってX-Y平面に平行に切断することによって、任意の厚みの複合体を得た。得られた複合体をメッキ処理して、表面に5μmの厚さの銅を析出させることによって、金属で被膜されたグラファイト複合体(A)を得た。当該被膜は、第1金属層3、第2金属層4に相当する。

[0130] 図3の301の中央に、グラファイト複合体(A)の構成の概略を示すとともに、以下に、グラファイト複合体(A)の寸法を記載する：

- ・異方性グラファイト1のX-Y平面のサイズ：39.6mm×29.99mm、
- ・異方性グラファイト1のZ軸方向への厚さ：0.99mm、
- ・第1金属層3および第2金属層4のZ軸方向への厚さ：5μm、
- ・接着層11のX軸方向への厚さ：50μm、
- ・接着層11のZ軸方向への厚さ：0.99mm、
- ・接着層11の熱伝導率：0.2W/mK、
- ・補強層10のX軸方向への厚さ：150μm、
- ・補強層10のZ軸方向への厚さ：0.99mm。

[0131] (実施例2)

アクリル両面テープに代えて、シリコン両面テープを用いたこと以外は、

実施例 1 と同様にして、グラファイト複合体（B）を得た。

[0132] （実施例 3）

アクリル両面テープに代えて、エポキシ樹脂テープを用い、銅板を 180℃で接着したこと以外は、実施例 1 と同様にして、グラファイト複合体（C）を得た。

[0133] （実施例 4）

補強層に、無酸素銅板に代えて、アクリル板を用いたこと以外は、実施例 1 と同様にして、グラファイト複合体（D）を得た。

[0134] （実施例 5）

補強層に、無酸素銅板に代えて、アクリル板を用いたこと以外は、実施例 2 と同様にして、グラファイト複合体（E）を得た。

[0135] （実施例 6）

補強層に、無酸素銅板に代えて、アクリル板を用いたこと以外は、実施例 3 と同様にして、グラファイト複合体（F）を得た。

[0136] （実施例 7）

以下の（i）に示すこと以外は、実施例 1 と同様にして、グラファイト複合体（G）を得た。

[0137] （i）厚み 36 μm の株式会社カネカ製グラファイトシートと、厚み 5 μm のアクリル両面テープとを交互に積層し、グラファイトブロック（200 mm×200 mm、厚さ 40 mm）を作製したこと。

なお、得られたグラファイトブロックの結晶配向面に平行な方向の熱伝導率は 1500 W/mK であり、結晶配向面に垂直な方向の熱伝導率は 3 W/mK であった。

[0138] （実施例 8）

アクリル両面テープに代えて、シリコン両面テープを用いたこと以外は、実施例 7 と同様にして、グラファイト複合体（H）を得た。

[0139] （実施例 9）

アクリル両面テープに代えて、エポキシ樹脂テープを用い、銅板を 180

℃で接着したこと以外は、実施例7と同様にして、グラファイト複合体（I）を得た。

[0140] （実施例10）

以下の（ii）に示すこと以外は、実施例1と同様にして、グラファイト複合体（J）を得た。

[0141] （ii）厚み36 μ mの株式会社カネカ製グラファイトシートと、厚み5 μ mのポリエステル接着剤を交互に積層し、260℃－5MPa－5分熱プレスすることで、グラファイトブロック（200mm×200mm、厚さ40mm）を作製したこと。

なお、得られたグラファイトブロックの結晶配向面に平行な方向の熱伝導率は1500W/mKであり、結晶配向面に垂直な方向の熱伝導率は5W/mKであった。

[0142] （実施例11）

アクリル両面テープに代えて、シリコン両面テープを用いたこと以外は、実施例10と同様にして、グラファイト複合体（K）を得た。

[0143] （実施例12）

アクリル両面テープに代えて、エポキシ樹脂テープを用い、銅板を180℃で接着したこと以外は、実施例10と同様にして、グラファイト複合体（L）を得た。

[0144] （実施例13）

銅メッキ厚みを20 μ mにしたこと以外は、実施例1と同様にして、グラファイト複合体（M）を得た。

[0145] （比較例1）

以下の（iii）および（iv）に示すこと以外は、実施例1と同様にして、グラファイト複合体（N）を得た。

[0146] （iii）アクリル両面テープに代えて、厚み10 μ mのチタン系活性銀ろうを用いたこと。

[0147] （iv）両面の補強層10の側から100kg/m²の加重を加えた状態で

、異方性グラファイト 1 と接着層 1 1 と補強層 1 0 との複合体を、 $1 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ の真空環境下、 850°C にて 30 分間加熱して接着したこと。

[0148] (比較例 2)

補強板として銅板を接着せず、側面上に直接、銅メッキを析出させたこと以外は、実施例 1 と同様にして、グラファイト複合体 (O) を得た。

[0149] (比較例 3)

以下の (v) に示すこと以外は、比較例 1 と同様にして、グラファイト複合体 (P) を得た。

[0150] (v) 銅メッキに代えて、主面にも厚み $10 \mu\text{m}$ のチタン系活性銀ろうを用いて、無酸素銅板を 100 kg/m^2 の加重を加えた状態で、 $1 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ の真空環境下、 850°C にて 30 分間加熱して接着したこと。

[0151] (比較例 4)

銅メッキに代えて、主面にも厚み $50 \mu\text{m}$ のアクリル両面テープを用い、室温で無酸素銅板を接着したこと以外は、実施例 1 と同様にして、グラファイト複合体 (Q) を得た。

[0152] <強度の評価>

3 点曲げ装置 (IMADA 社製) を用いて、 50 mm/min にて 3 点曲げ試験を行い、試験サンプルが破断する時点の応力を測定した。応力が 20 N 以上のものを「優」、応力が 12 N 以上のものを「良」、応力が 8 N 以上のものを「可」、応力が 8 N 未満のものを「不可」と判定した。ここで、強度の評価結果は、「不可」が良好ではないことを意味し、「可」が「不可」よりも良好であることを意味し、「良」が「可」よりも良好であることを意味し、「優」が「良」よりも良好、すなわち最も良好であることを意味する。

[0153] <耐熱性の評価>

試験サンプルをオープンで 30 分加熱し、外形の変化がある温度を測定した。 500°C でも変化のないものを「優」、 300°C でも変化が無いものを「良」、 200°C でも変化が無いものを「可」と判定した。ここで、耐熱性

の評価結果は、「可」が良好であることを意味し、「良」が「可」よりも良好であることを意味し、「優」が「良」よりも良好、すなわち最も良好であることを意味する。

[0154] <熱拡散率の評価>

ネッチ社製キセノンフラッシュアナライザーLFA467を用いて、試験サンプルの厚み方向の熱拡散率を測定した。熱拡散率 $7 \text{ cm}^2/\text{s}$ 以上のものを「優」、熱拡散率 $4 \text{ cm}^2/\text{s}$ 以上のものを「良」、熱拡散率 $4 \text{ cm}^2/\text{s}$ 未満のものを「不良」と判定した。ここで、熱拡散率の評価結果は、「不良」が良好ではないことを意味し、「良」が「不良」よりも良好であることを意味し、「優」が「良」よりも良好、すなわち最も良好であることを意味する。

[0155] <反りの評価>

キーエンス社製VR-5000を用いて、試験サンプルの主面の最大高さ
と最小高さとの差（（最大高さ）－（最小高さ））を測定し、試験サンプルの反りとした。反りが 0.05 mm 未満のものを「優」、反りが 0.1 mm 未満のものを「良」、反りが 0.15 mm 未満のものを「可」、反りが 0.15 mm 以上のものを「不可」と判定した。ここで、反りの評価結果は、「不可」が良好ではないことを意味し、「可」が「不可」よりも良好であることを意味し、「良」が「可」よりも良好であることを意味し、「優」が「良」よりも良好、すなわち最も良好であることを意味する。

[0156] [試験結果]

以下の表1に試験結果を示す。表1から明らかなように、本発明のグラファイト複合体は、「強度」、「耐熱性」、「熱拡散率」および「反り」の全ての評価が良好であった。すなわち、本発明のグラファイト複合体は、熱拡散能力に優れ、異方性グラファイトが割れ難く、耐熱性に優れ、かつ、反りの度合いが小さいことが示された。

[表1]

表 1	グラファイト	主面	接着層	補強層	強度	耐熱性	熱拡散率	反り
実施例1	PI積層黒鉛化	Cuメッキ(5μm)	アクリル両面テープ	Cu板	良	可	優	良
実施例2	PI積層黒鉛化	Cuメッキ(5μm)	シリコン両面テープ	Cu板	良	可	優	良
実施例3	PI積層黒鉛化	Cuメッキ(5μm)	エポキシ樹脂テープ	Cu板	良	良	優	優
実施例4	PI積層黒鉛化	Cuメッキ(5μm)	アクリル両面テープ	アクリル板	可	可	優	良
実施例5	PI積層黒鉛化	Cuメッキ(5μm)	シリコン両面テープ	アクリル板	可	可	優	良
実施例6	PI積層黒鉛化	Cuメッキ(5μm)	エポキシ樹脂テープ	アクリル板	可	良	優	優
実施例7	GS/アクリル両面テープ	Cuメッキ(5μm)	アクリル両面テープ	Cu板	良	可	優	良
実施例8	GS/アクリル両面テープ	Cuメッキ(5μm)	シリコン両面テープ	Cu板	良	可	優	良
実施例9	GS/アクリル両面テープ	Cuメッキ(5μm)	エポキシ樹脂テープ	Cu板	良	可	優	優
実施例10	GS/ポリエステル接着剤	Cuメッキ(5μm)	アクリル両面テープ	Cu板	良	可	優	良
実施例11	GS/ポリエステル接着剤	Cuメッキ(5μm)	シリコン両面テープ	Cu板	良	可	優	良
実施例12	GS/ポリエステル接着剤	Cuメッキ(5μm)	エポキシ樹脂テープ	Cu板	良	可	優	優
実施例13	PI積層黒鉛化	Cuメッキ(20μm)	アクリル両面テープ	Cu板	良	良	良	可
比較例1	PI積層黒鉛化	Cuメッキ(5μm)	ろう材	Cu板	良	優	優	不可
比較例2	PI積層黒鉛化	Cuメッキ(5μm)	—	Cuめっき	不可	優	優	良
比較例3	PI積層黒鉛化	ろう材+Cu板	ろう材	Cu板	優	優	不良	不可
比較例4	PI積層黒鉛化	アクリル両面テープ+Cu板	アクリル両面テープ	Cu板	優	可	不良	可

産業上の利用可能性

[0157] 本発明は、熱伝達素子、より具体的に、電子機器および電子デバイスに用いる熱伝達素子に利用することができる。

符号の説明

[0158]	1	異方性グラファイト
	3	第1金属層
	4	第2金属層
	5	第3金属層
	6	第4金属層
	7	第5金属層
	10	補強層
	11	接着層
	15	銅板
	20	結晶配向面
	30	第1主面
	31	第2主面
	50	切断面
	100	熱源
	103	グラファイト複合体
	110	接着剤
	120	試験サンプル
	130	はんだ層
	140	銅板
	150	熱伝達係数

請求の範囲

- [請求項1] X軸、X軸に直交するY軸、X-Y平面に垂直なZ軸とした場合、グラファイト層の結晶配向面がX-Z平面に平行に配置してなり、X-Y平面に平行な第1主面と、当該第1主面に対向する第2主面と、を有する異方性グラファイトと、
前記異方性グラファイトの第1主面に設けられた第1金属層と、
前記異方性グラファイトの第2主面に設けられた第2金属層と、
前記異方性グラファイトにおける、Y-Z平面に平行な面の少なくとも一方の面に設けられた、接着層と補強層と、を備え、
前記第1金属層および前記第2金属層の厚さが $2\mu\text{m}$ ～ $50\mu\text{m}$ であり、
前記接着層は、樹脂を含む、グラファイト複合体。
- [請求項2] 前記異方性グラファイトのX軸方向への厚さおよびY軸方向の厚さは 10mm ～ 80mm であり、
Z軸方向への厚さは 0.3mm ～ 5.0mm である請求項1に記載のグラファイト複合体。
- [請求項3] 前記補強層の厚さが、 $50\mu\text{m}$ ～ $500\mu\text{m}$ である、請求項1に記載のグラファイト複合体。
- [請求項4] 前記接着層に含まれる前記樹脂が、アクリル樹脂、シリコン樹脂、および、エポキシ樹脂からなる群から選択される少なくとも1つである、請求項1に記載のグラファイト複合体。
- [請求項5] 前記第1金属層および前記第2金属層が、前記異方性グラファイトに直接接している、請求項1に記載のグラファイト複合体。
- [請求項6] 前記第1金属層および前記第2金属層が、銅、ニッケル、および金からなる群より選択される少なくとも1種を含む、請求項1に記載のグラファイト複合体。
- [請求項7] 前記補強層は、樹脂、金属、およびセラミックからなる群より選択される少なくとも1種を含む、請求項1に記載のグラファイト複合体

。

[請求項8] 前記補強層は、前記異方性グラファイトにおける、Y-Z平面に平行な面の両方の面に設けられている、請求項1に記載のグラファイト複合体。

[請求項9] 前記異方性グラファイトにおける、X-Z平面に平行な面の最外層の両面に、それぞれ第3金属層と第4金属層とが設けられている、請求項1に記載のグラファイト複合体。

[請求項10] 前記第3金属層および前記第4金属層が、前記異方性グラファイトに直接接している、請求項9に記載のグラファイト複合体。

[請求項11] さらに、前記補強層の外側に第5金属層を含む、請求項1に記載のグラファイト複合体。

[請求項12] X軸、X軸に直交するY軸、X-Y平面に垂直なZ軸とした場合、グラファイト層の結晶配向面がX-Z平面に平行に配置してなり、X-Y平面に平行な第1主面と、当該第1主面に対向する第2主面と、を有する異方性グラファイトを備えるグラファイト複合体の製造方法であって、

前記異方性グラファイトのY-Z平面に平行な面の少なくとも一方の面に補強層を形成する補強工程であって、接着層を介して前記異方性グラファイトと前記補強層とを接着させる補強工程と、

前記補強層を形成した異方性グラファイトの第1主面および第2主面に、それぞれ第1金属層および第2金属層を形成する金属層形成工程と、を含み、

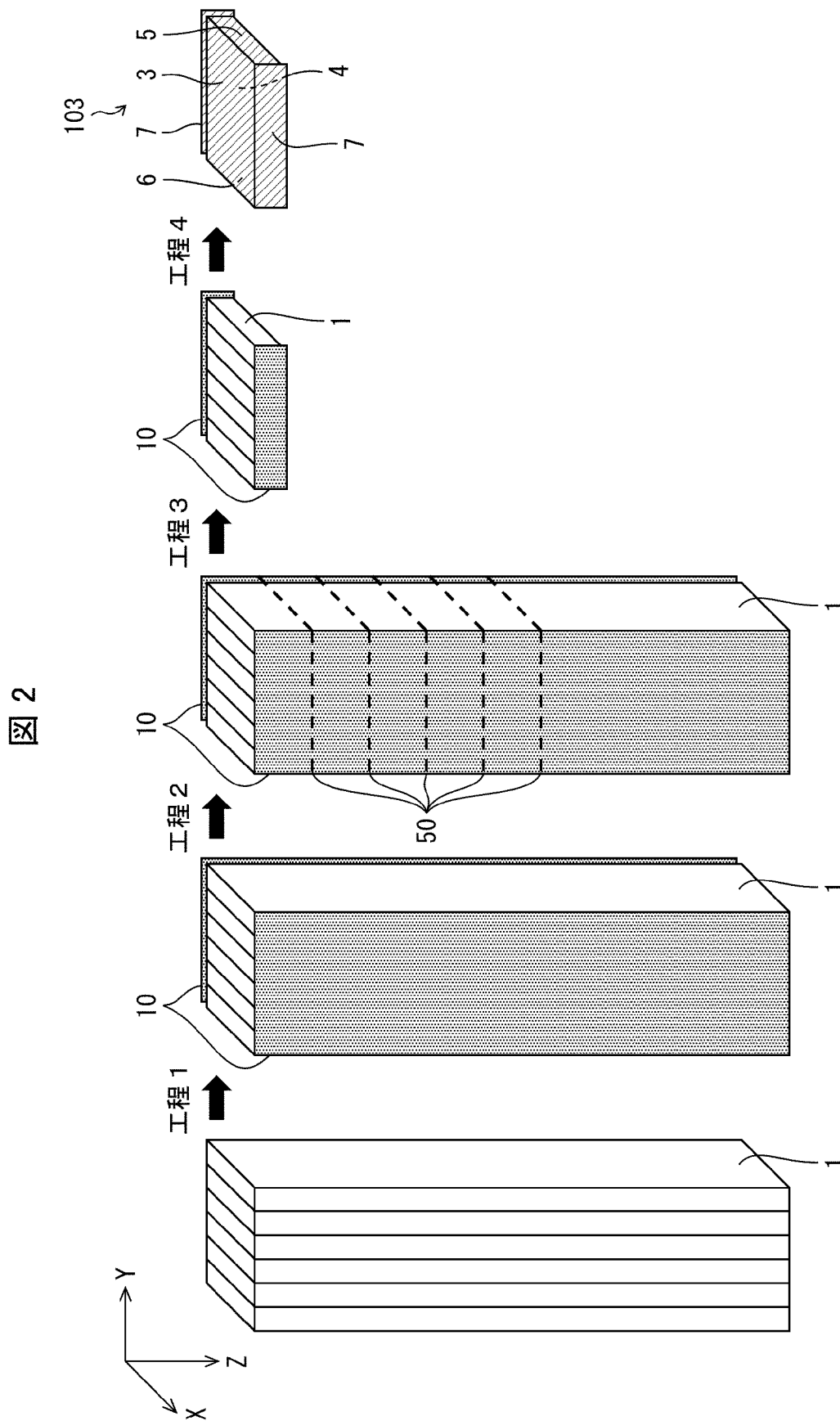
前記第1金属層および前記第2金属層の厚さが $2\mu\text{m}$ ～ $50\mu\text{m}$ であり、

前記接着層は、樹脂を含む、グラファイト複合体の製造方法。

[請求項13] 前記補強工程の後に前記補強層および前記異方性グラファイトを切断する切断工程を含む、請求項12に記載のグラファイト複合体の製造方法。

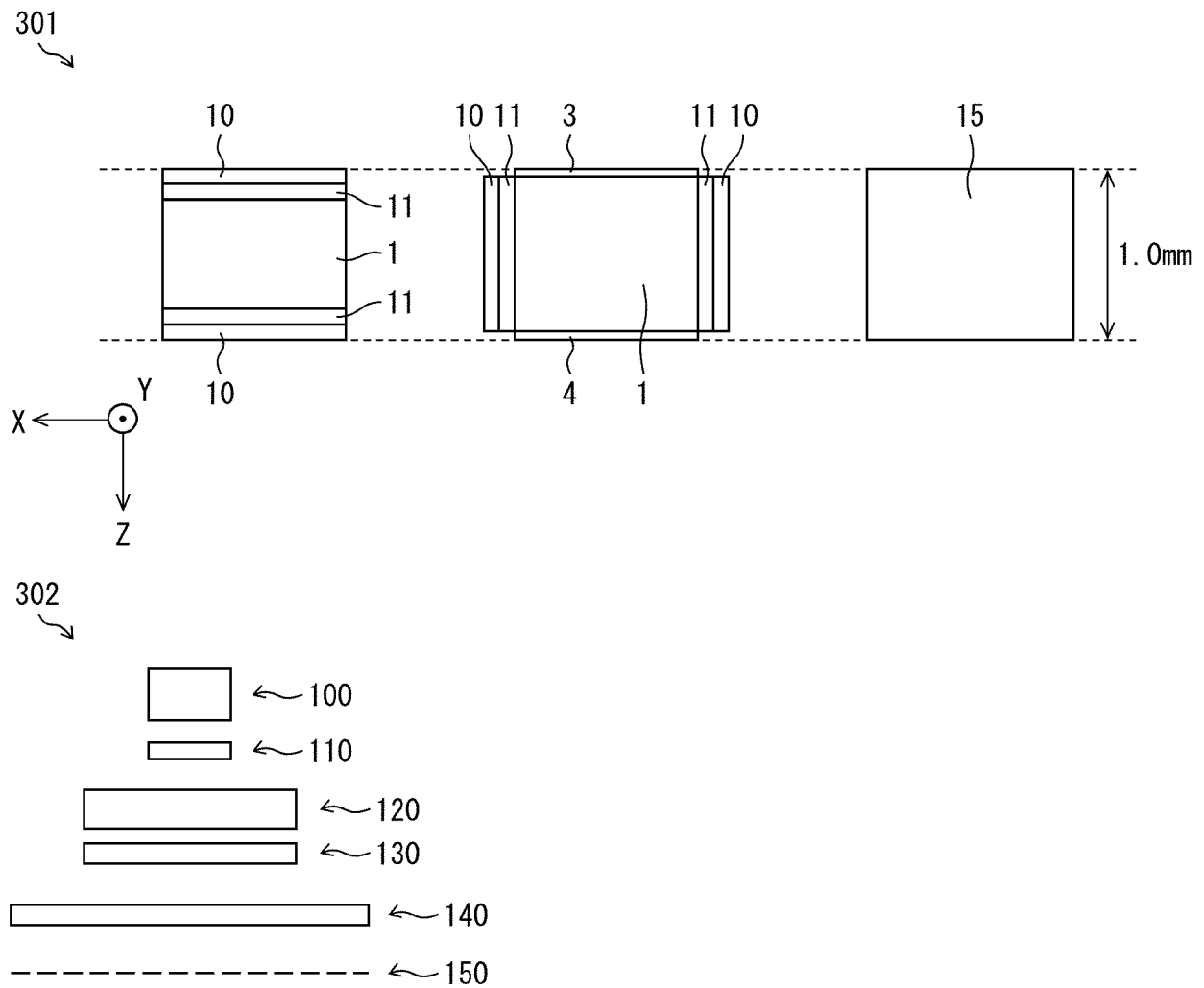
- [請求項14] 前記接着層に含まれる前記樹脂が、アクリル樹脂、シリコン樹脂、および、エポキシ樹脂からなる群から選択される少なくとも1つである、請求項12に記載のグラファイト複合体の製造方法。
- [請求項15] 前記金属層形成工程では、前記第1金属層と前記第2金属層とを同時に形成する、請求項12に記載のグラファイト複合体の製造方法。
- [請求項16] 前記金属層形成工程において、さらに、前記異方性グラファイトにおけるX-Z平面に平行な面の最外層の両面に第3金属層および第4金属層を形成する、請求項12に記載のグラファイト複合体の製造方法。
- [請求項17] 前記金属層形成工程において、さらに、前記補強層の外側に第5金属層を形成する、請求項16に記載のグラファイト複合体の製造方法。
- 。

[図2]



[図3]

図 3



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/039240

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER H01L 23/36 (2006.01)i; C01B 32/21 (2017.01)i; H01L 23/373 (2006.01)i FI: H01L23/36 D; H01L23/36 M; C01B32/21 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) H01L23/36; C01B32/21; H01L23/373 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 1971-2024 Registered utility model specifications of Japan 1996-2024 Published registered utility model applications of Japan 1994-2024 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.
Y A	JP 2011-23670 A (THERMO GRAPHITICS CO., LTD.) 03 February 2011 (2011-02-03) paragraphs [0025]-[0046], [0060], fig. 1-5	1-9, 11-17 10
Y A	US 2014/0284040 A1 (INTERNATIONAL BUSINESS MACHINES CORPORATION) 25 September 2014 (2014-09-25) paragraphs [0024]-[0029], fig. 2	1-9, 11-17 10
Y A	WO 2016/098890 A1 (KANEKA CORP.) 23 June 2016 (2016-06-23) paragraphs [0329]-[0338]	1-9, 11-17 10
Y A	JP 2021-100006 A (KANEKA CORP.) 01 July 2021 (2021-07-01) paragraph [0045], fig. 3	3 10
☒ 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 “D” document cited by the applicant in the international application “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 07 January 2025		Date of mailing of the international search report 21 January 2025
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

International application No.

PCT/JP2024/039240

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US 5255738 A (E-SYSTEMS, INC.) 26 October 1993 (1993-10-26) specification, column 3, line 64 to column 4, line 3, fig. 4H, 4I	9, 11, 15-17
A		10

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2024/039240

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	2011-23670	A	03 February 2011	(Family: none)	
US	2014/0284040	A1	25 September 2014	(Family: none)	
WO	2016/098890	A1	23 June 2016	US 2018/0023904	A1
				paragraphs [0471]-[0484]	
				CN 107148669	A
				KR 10-2017-0095316	A
JP	2021-100006	A	01 July 2021	WO 2019/188614	A1
US	5255738	A	26 October 1993	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

H01L 23/36(2006.01)i; C01B 32/21(2017.01)i; H01L 23/373(2006.01)i

FI: H01L23/36 D; H01L23/36 M; C01B32/21

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））

H01L23/36; C01B32/21; H01L23/373

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 - 2024年

日本国実用新案登録公報

1996 - 2024年

日本国登録実用新案公報

1994 - 2024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
Y	JP 2011-23670 A（株式会社サーモグラフィティクス）03.02.2011（2011 - 02 - 03） 段落0025-0046, 0060, 図1-5	1-9, 11-17
A		10
Y	US 2014/0284040 A1（INTERNATIONAL BUSINESS MACHINES CORPORATION）25.09.2014 （2014 - 09 - 25） 段落0024-0029, 図2	1-9, 11-17
A		10
Y	WO 2016/098890 A1（株式会社カネカ）23.06.2016（2016 - 06 - 23） 段落0329-0338	1-9, 11-17
A		10
Y	JP 2021-100006 A（株式会社カネカ）01.07.2021（2021 - 07 - 01） 段落0045, 図3	3
A		10

☒ 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

“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献

“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

07.01.2025

国際調査報告の発送日

21.01.2025

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）

木下 直哉 5D 3858

電話番号 03-3581-1101 内線 3549

様式 PCT/ISA/210（第2ページ）（2022年7月）

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/JP2024/039240

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2011-23670	A	03.02.2011	(ファミリーなし)	
US	2014/0284040	A1	25.09.2014	(ファミリーなし)	
WO	2016/098890	A1	23.06.2016	US 2018/0023904	A1
				段落0471-0484	
				CN 107148669	A
				KR 10-2017-0095316	A
JP	2021-100006	A	01.07.2021	WO 2019/188614	A1
US	5255738	A	26.10.1993	(ファミリーなし)	