

(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
2011年1月6日(06.01.2011)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2011/001795 A1

- (51) 国際特許分類:
B32B 15/01 (2006.01) C25D 7/06 (2006.01)
C25D 3/66 (2006.01) H01L 23/36 (2006.01)
C25D 5/10 (2006.01) H01L 33/62 (2010.01)
C25D 7/00 (2006.01) H01L 33/64 (2010.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2010/059695
- (22) 国際出願日: 2010年6月8日(08.06.2010)
- (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 2009-155159 2009年6月30日(30.06.2009) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 住友電気工業株式会社(SUMITOMO ELECTRIC INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒5410041 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号 Osaka (JP). 株式会社アライドテック内 Yamagata (JP). 山形 伸一(YAMAGATA, Shinichi) [JP/JP]; 〒9980114 山形県酒田市十里塚字村東山398番地16 株式会社アライドテック内 Yamagata (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 新田 耕司(NITTA, Koji) [JP/JP]; 〒5540024 大阪府大阪市此花区島屋一丁目1番3号 住友電気工業株式会社 大阪製作所内 Osaka (JP). 真嶋 正利(MAJIMA, Masatoshi) [JP/JP]; 〒5540024 大阪府大阪市此花区島屋一丁目1番3号 住友電気工業株式会社 大阪製作所内 Osaka (JP). 稲沢 信二(INAZAWA, Shinji) [JP/JP]; 〒5540024 大阪府大阪市此花区島屋一丁目1番3号 住友電気工業株式会社 大阪製作所内 Osaka (JP). 安部 誘

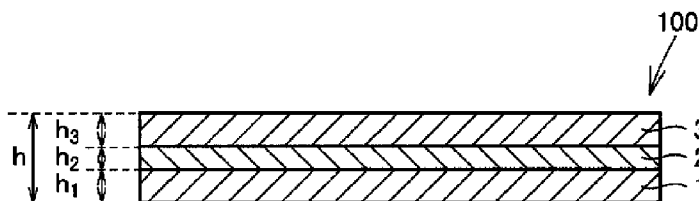
- 岳(ABE, Yugaku) [JP/JP]; 〒9980114 山形県酒田市十里塚字村東山398番地16 株式会社アライドテック内 Yamagata (JP). 横山 博(YOKOYAMA, Hiroshi) [JP/JP]; 〒9980114 山形県酒田市十里塚字村東山398番地16 株式会社アライドテック内 Yamagata (JP). 諏訪多治(SUWATA, Osamu) [JP/JP]; 〒9980114 山形県酒田市十里塚字村東山398番地16 株式会社アライドテック内 Yamagata (JP). 山形 伸一(YAMAGATA, Shinichi) [JP/JP]; 〒9980114 山形県酒田市十里塚字村東山398番地16 株式会社アライドテック内 Yamagata (JP).
- (74) 代理人: 深見 久郎, 外(FUKAMI, Hisao et al.); 〒5300005 大阪府大阪市北区中之島二丁目2番7号 中之島セントラルタワー 特許業務法人 深見特許事務所 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, 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, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ

[続葉有]

(54) Title: METAL LAMINATE STRUCTURE AND PROCESS FOR PRODUCTION OF METAL LAMINATE STRUCTURE

(54) 発明の名称: 金属積層構造体および金属積層構造体の製造方法

[図1]



(57) Abstract: A metal laminate structure (100) comprising a first metal layer (1), a second metal layer (2) and a third metal layer (3), wherein the first metal layer (1) is provided on one surface of the second metal layer (2), the third metal layer (3) is provided on the other surface of the second metal layer (2), the first metal layer (1) contains at least one of tungsten and molybdenum, the second metal layer (2) contains copper, and the third metal layer (3) contains at least one of tungsten and molybdenum; and a process for producing the metal laminate structure (100).

(57) 要約: 第1の金属層(1)と、第2の金属層(2)と、第3の金属層(3)と、を備え、第1の金属層(1)は第2の金属層(2)の一方の表面上に設置され、第3の金属層(3)は第2の金属層(2)の他方の表面上に設置されており、第1の金属層(1)はタングステンおよびモリブデンの少なくとも一方を含み、第2の金属層(2)は銅を含み、第3の金属層(3)はタングステンおよびモリブデンの少なくとも一方を含む金属積層構造体(100)とその製造方法である。

WO 2011/001795 A1

(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, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 國際調查報告 (條約第 21 條(3))

明 細 書

発明の名称： 金属積層構造体および金属積層構造体の製造方法 技術分野

[0001] 本発明は、金属積層構造体および金属積層構造体の製造方法に関する。

背景技術

[0002] たとえばLED (Light Emitting Diode) 素子などの半導体装置においては、半導体素子の駆動時に発生する熱を外部に放熱するための放熱基板（ヒートシンク）を設置することが一般的に行なわれている。

[0003] たとえば特許文献1（特開平6-268115号公報）には、圧延法を用いて作製された直径200mmで厚み0.465mmのCu板と、Cu板と同じ直径で厚み0.090mmのMo板とをCu板/Mo板/Cu板の順に重ね合わせた状態でホットプレスを行なうことにより厚さ1.02mmのCu/Mo/Cuクラッド材を作製し、これを半導体装置の放熱基板として用いることが記載されている（特許文献1の段落[0034]～[0049]等）。

[0004] また、特許文献1には、Moの代わりにWを用いた場合にも同様の製造方法によって信頼性の高いクラッド材が得られることも記載されている（特許文献1の段落[0033]）。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開平6-268115号公報

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、上記の特許文献1の放熱基板の厚さは1.02mmと非常に厚いため、放熱基板に薄さが要求された場合に対応することができないという問題があった。

[0007] また、Mo板やW板については、圧延できる厚みに制約があるため、放熱

基板の全体の厚さを薄くすることが困難であるという問題もあった。

[0008] さらに、上記のホットプレスのように、クラッド材の作製ごとにCu板およびMo板をそれぞれホットプレス装置内に設置し、ホットプレス後にホットプレス装置内からクラッド材を取り出すという製造方法では、効率的に放熱基板を作製することができないという問題もあった。

[0009] 上記の事情に鑑みて、本発明の目的は、厚みを薄くすることができるとともに効率的に製造することが可能な金属積層構造体および金属積層構造体の製造方法を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明は、第1の金属層と、第2の金属層と、第3の金属層と、を備え、第1の金属層は第2の金属層の一方の表面上に設置され、第3の金属層は第2の金属層の他方の表面上に設置されており、第1の金属層は、タングステンおよびモリブデンの少なくとも一方を含み、第2の金属層は、銅を含み、第3の金属層は、タングステンおよびモリブデンの少なくとも一方を含む金属積層構造体である。

[0011] ここで、本発明の金属積層構造体においては、第1の金属層は第2の金属層の一方の表面上にめっきにより形成され、第3の金属層は第2の金属層の他方の表面上にめっきにより形成されてなることが好ましい。

[0012] また、本発明の金属積層構造体においては、第1の金属層の厚さと第2の金属層の厚さと第3の金属層の厚さとの和に対する第1の金属層の厚さと第3の金属層の厚さとの和の比が0.2以上0.8以下であることが好ましい。

[0013] また、本発明の金属積層構造体は、第1の金属層の第2の金属層の設置側とは反対側に設置された第4の金属層と、第3の金属層の第2の金属層の設置側とは反対側に設置された第5の金属層とを備え、第4の金属層および第5の金属層はそれぞれ銅を含むことが好ましい。

[0014] また、本発明の金属積層構造体においては、第1の金属層の厚さと第2の金属層の厚さと第3の金属層の厚さと第4の金属層の厚さと第5の金属層の

厚さとの和に対する第1の金属層の厚さと第3の金属層の厚さとの和の比が0.2以上0.8以下であることが好ましい。

[0015] また、本発明の金属積層構造体においては、第1の金属層と第4の金属層との間、および第3の金属層と第5の金属層との間の少なくとも一方の間にコバルト含有層を含むことが好ましい。

[0016] また、本発明の金属積層構造体においては、コバルト含有層の厚さが0.05 μm 以上3 μm 以下であることが好ましい。

[0017] また、本発明の金属積層構造体においては、金属積層構造体の全体の厚さが20 μm 以上400 μm 以下であることが好ましい。

[0018] また、本発明の金属積層構造体は、ヒートシンクに用いられることが好ましい。

さらに、本発明は、上記のいずれかの金属積層構造体を製造する方法であって、第2の金属層の一方の表面上に第1の金属層をめっきにより形成する工程と、第2の金属層の他方の表面上に第3の金属層をめっきにより形成する工程とを含む金属積層構造体の製造方法である。

[0019] ここで、本発明の金属積層構造体の製造方法において、めっきは熔融塩浴めっきであることが好ましい。

発明の効果

[0020] 本発明によれば、厚みを薄くすることができるとともに効率的に製造することが可能な金属積層構造体および金属積層構造体の製造方法を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0021] [図1]本発明の金属積層構造体の一例の模式的な断面図である。

[図2]本発明の金属積層構造体の製造方法の一例を図解する模式的な構成図である。

[図3]本発明の金属積層構造体の製造方法の一例を図解する模式的な構成図である。

[図4]本発明の金属積層構造体を用いた半導体装置の一例であるLED素子の

一例の模式的な断面図である。

[図5]本発明の金属積層構造体の他の一例の模式的な断面図である。

[図6]本発明の金属積層構造体の製造方法の一例を図解する模式的な構成図である。

[図7]本発明の金属積層構造体の製造方法の一例を図解する模式的な構成図である。

[図8]本発明の金属積層構造体のさらに他の一例の模式的な断面図である。

[図9]実施例 1～4 で用いられた装置の模式的な構成図である。

発明を実施するための形態

[0022] 以下、本発明の実施の形態について説明する。なお、本発明の図面において、同一の参照符号は、同一部分または相当部分を表わすものとする。

[0023] <金属積層構造体>

図 1 に、本発明の金属積層構造体の一例の模式的な断面図を示す。ここで、金属積層構造体 100 は、第 1 の金属層 1 と、第 1 の金属層 1 上に設置された第 2 の金属層 2 と、第 2 の金属層 2 上に設置された第 3 の金属層 3 との積層構造体から構成されている。すなわち、金属積層構造体 100 において、第 1 の金属層 1 は第 2 の金属層 2 の一方の表面上に設置され、第 3 の金属層 3 は第 2 の金属層 2 の他方の表面上に設置されている。

[0024] ここで、第 1 の金属層 1 は、タングステンおよびモリブデンの少なくとも一方を含む金属からなる金属層であり、なかでも、金属積層構造体 100 の厚みを薄くして金属積層構造体 100 を効率的に製造する観点からは、第 1 の金属層 1 は、めっきにより形成されたタングステン層またはモリブデン層であることが好ましい。

[0025] また、第 2 の金属層 2 は、銅を含む金属からなる金属層であり、なかでも、金属積層構造体 100 の厚みを薄くして金属積層構造体 100 を効率的に製造する観点からは、第 2 の金属層 2 はたとえば銅箔などの銅の薄板であることが好ましい。

[0026] また、第 3 の金属層 3 は、タングステンおよびモリブデンの少なくとも一

方を含む金属からなる金属層であり、なかでも、金属積層構造体100の厚みを薄くして金属積層構造体100を効率的に製造する観点からは、第3の金属層3は、めっきにより形成されたタングステン層またはモリブデン層であることが好ましい。

[0027] また、金属積層構造体100の全体の厚さ h は、 $20\mu\text{m}$ 以上 $400\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。金属積層構造体100の厚さ h が $20\mu\text{m}$ 以上 $400\mu\text{m}$ 以下である場合には、金属積層構造体100の厚みを薄くして金属積層構造体100を効率的に製造することができる傾向が大きくなる。

[0028] また、金属積層構造体100において、第1の金属層1の厚さ h_1 と第2の金属層2の厚さ h_2 と第3の金属層3の厚さ h_3 との和 $(h_1+h_2+h_3)$ に対する第1の金属層1の厚さ h_1 と第3の金属層3の厚さ h_3 との和 (h_1+h_3) の比 $[(h_1+h_3)/(h_1+h_2+h_3)]$ が0.2以上0.8以下であることが好ましい。上記の比が0.2以上0.8以下である場合には、金属積層構造体100の線膨張が大きくなりすぎず、かつ熱伝導率も小さくなりすぎないため、たとえばヒートシンクとして金属積層構造体100を半導体装置の半導体基板に貼り付けた場合に、金属積層構造体100と当該半導体基板との熱膨張の差異があまり大きくなることなく、金属積層構造体100の放熱機能を十分に発揮することができる傾向にある。

[0029] また、金属積層構造体100の反りを抑制するためには、金属積層構造体100の厚み方向の中央部（この例では、金属積層構造体100の全体の厚さ h の $1/2$ の部分）から上方の部分と積層構造体の厚み方向の中央部から下方の部分とが積層構造体の厚み方向の中央部に関して対称となっていることが好ましい。なお、本発明において、「対称」は、金属積層構造体100の厚み方向の中央部から上端面までを鉛直方向の上方に進む場合に現れる層の材質と厚さとが、金属積層構造体100の厚み方向の中央部から下端面までを鉛直方向の下方に進む場合と完全に同一である場合だけでなく同等程度である場合も含む概念である。

[0030] <金属積層構造体の製造方法>

以下、図 1 に示す金属積層構造体 100 の製造方法の一例について説明するが、本発明の金属積層構造体の製造方法はこれに限定されるものでないことは言うまでもない。

- [0031] まず、図 2 の模式的構成図に示すように、タングステンおよびモリブデンの少なくとも一方を含む熔融塩浴 8 を容器 7 に收容する。熔融塩浴 8 は、熔融塩浴 8 の電解によりタングステンおよびモリブデンの少なくとも一方を析出することができるものであれば特に限定はされない。なお、熔融塩浴 8 の好ましい構成については後述する。
- [0032] 次に、容器 7 に收容された熔融塩浴 8 中に、たとえば第 2 の金属層 2 としての銅箔および対向電極 6 をそれぞれ浸漬させる。ここで、対向電極 6 としては、導電性の電極であれば特に限定なく用いることができ、たとえば、金属からなる電極などを用いることができる。
- [0033] 次に、第 2 の金属層 2 としての銅箔を陰極にするとともに、対向電極 6 を陽極として、第 2 の金属層 2 としての銅箔と対向電極 6 との間に電圧を印加して熔融塩浴 8 を電解することによって、熔融塩浴 8 中のタングステンおよび/またはモリブデンを第 2 の金属層 2 としての銅箔の両面にそれぞれ析出させて熔融塩浴めっきにより第 1 の金属層 1 および第 3 の金属層 3 を形成する。
- [0034] その後、第 1 の金属層 1 および第 3 の金属層 3 の形成後の第 2 の金属層 2 としての銅箔を熔融塩浴 8 から取り出し、たとえばイオン交換水などによって第 1 の金属層 1 および第 3 の金属層 3 にそれぞれ付着している熔融塩浴 8 を洗って除去する。そして、たとえば所定の酸で洗うことによって、第 1 の金属層 1 および第 3 の金属層 3 のそれぞれの表面に形成された酸化膜を除去する。以上により、図 1 に示す金属積層構造体 100 を製造することができる。
- [0035] また、図 1 に示す金属積層構造体 100 は、たとえば以下のように製造することもできる。
- [0036] まず、図 3 の模式的構成図に示すように、第 2 の金属層 2 としての銅箔が

容器 7 に收容された熔融塩浴 8 中を通過するように第 2 の金属層 2 としての銅箔を第 1 のロール 3 1 a と第 2 のロール 3 1 b との間に掛け渡す。

[0037] 次に、第 1 のロール 3 1 a から第 2 の金属層 2 としての銅箔を繰り出し、容器 7 に收容された熔融塩浴 8 中に銅箔を連続的に浸漬させながら熔融塩浴 8 を電解することによって銅箔の両面にそれぞれタングステンおよび／またはモリブデンを析出させて熔融塩浴めっきにより金属積層構造体 1 0 0 を形成する。

[0038] その後、銅箔の両面にそれぞれタングステンおよび／またはモリブデンを析出させることによって形成された金属積層構造体 1 0 0 は第 2 のロール 3 1 b に巻き取られて回収される。

[0039] 上記のように、第 2 の金属層 2 の表面上にタングステンおよび／またはモリブデンを連続的に析出させて、金属積層構造体 1 0 0 を連続的に形成した場合には金属積層構造体 1 0 0 をさらに効率的に製造することができる。

[0040] <半導体装置>

図 4 に、本発明の金属積層構造体を用いた半導体装置の一例である LED 素子の一例の模式的な断面図を示す。ここで、図 4 に示す LED 素子は、図 1 に示す金属積層構造体 1 0 0 と、金属積層構造体 1 0 0 上に設置された LED 構造体 1 0 とを備えており、金属積層構造体 1 0 0 と LED 構造体 1 0 とは接合層 2 1 によって接合されている。

[0041] ここで、LED 構造体 1 0 は、半導体基板 1 4 と、半導体基板 1 4 上に設置された n 型半導体層 1 3 と、n 型半導体層 1 3 上に設置された活性層 1 2 と、活性層 1 2 上に設置された p 型半導体層 1 1 と、p 型半導体層 1 1 上に設置された半透明電極 1 7 と、半透明電極 1 7 上に設置された p 電極 1 5 と、n 型半導体層 1 3 上に設置された n 電極 1 6 とを備えている。

[0042] なお、LED 構造体 1 0 としては、p 型半導体層 1 1 と n 型半導体層 1 3 と活性層 1 2 とを含み、p 型半導体層 1 1 と n 型半導体層 1 3 との間に活性層 1 2 が設置されており、電流の注入により活性層 1 2 から発光する構造であれば特に限定なく用いることができ、たとえば、従来から公知の LED 構

造体を用いることができる。

- [0043] LED構造体10としては、なかでも、p型半導体層11、活性層12およびn型半導体層13にそれぞれIII族元素（Al、InおよびGaからなる群から選択された少なくとも1種）とV族元素（窒素）との化合物であるIII-V族窒化物半導体を用いることが好ましい。この場合には、活性層12から青色の光を発光させることが可能となる。
- [0044] 活性層12から青色の光を発光させることが可能なLED構造体10の一例としては、たとえば、図4に示す半導体基板14としてGaN基板またはサファイア基板を用い、p型半導体層11としてp型GaN層を用い、活性層12としてアンドープInGaN層を用い、n型半導体層13としてn型GaN層を用いたLED構造体などを挙げることができる。
- [0045] また、本発明の金属積層構造体は、LED素子に限られず、たとえば半導体レーザ素子または電界効果トランジスタなどのLED素子以外の半導体装置にも適用することができる。ここで、活性層12から青色の光を発光させることが可能なLED構造体10以外の半導体装置に用いられる半導体基板14としては、たとえば、シリコン基板、炭化ケイ素基板またはガリウム砒素基板などを用いることができる。
- [0046] なお、p型半導体層11はp型不純物がドーピングされているp型の導電性を有する半導体層のことであり、n型半導体層13はn型不純物がドーピングされているn型の導電性を有する半導体層のことであることは言うまでもない。また、活性層12は、p型またはn型のいずれか一方の導電性を有していてもよく、p型不純物およびn型不純物のいずれの不純物もドーピングされていないアンドープの半導体層であってもよい。
- [0047] さらに、半導体基板14とn型半導体層13との間、n型半導体層13と活性層12との間、活性層12とp型半導体層11との間、p型半導体層11と半透明電極17との間、半透明電極17とp電極15との間、およびn型半導体層13とn電極16との間の少なくとも1つの間に他の層が含まれていてもよい。

- [0048] また、接合層 21 としては、たとえば、共晶半田よりも熱伝導率が高い導電性の物質からなる層を用いることができる。接合層 21 としては、特に、電気抵抗が低く、熱伝導率が高く、かつ酸化しにくい金属を用いることが好ましく、なかでも、金、銀、銅およびニッケルからなる群から選択された少なくとも 1 種を含む層を用いることがより好ましい。
- [0049] 以上のような構成を有する LED 素子の n 電極 16 を陰極とし、p 電極 15 を陽極として、これらの電極間に電圧を印加することによって、LED 構造体 10 の内部に p 電極 15 から n 電極 16 に向かって電流を流す。これにより、LED 構造体 10 の p 型半導体層 11 と n 型半導体層 13 との間の活性層 12 で光を発生させることができる。
- [0050] なお、図 4 に示す構成の LED 素子は、たとえば以下のようにして製造することができる。
- [0051] まず、半導体基板 14 をたとえば MOCVD (Metal Organic Chemical Vapor Deposition) 装置内にセットした後に、たとえば図 4 の模式的断面図に示すように、半導体基板 14 の表面上に、n 型半導体層 13、活性層 12 および p 型半導体層 11 をこの順序でたとえば MOCVD 法などによりエピタキシャル成長させて形成する。
- [0052] 次に、n 型半導体層 13、活性層 12 および p 型半導体層 11 の一部をたとえばフォトリソグラフィなどにより除去した後に、たとえばリフトオフ法などを利用して、p 型半導体層 11 上に半透明電極 17 および p 電極 15 を形成するとともに、n 型半導体層 13 上に n 電極 16 を形成する。
- [0053] 次に、上記の p 電極 15 および n 電極 16 の形成後の半導体基板 14 の裏面に金属積層構造体 100 を接合層 21 によって接合する。
- [0054] そして、たとえば円形回転刃などによって、上記の接合層 21 の形成後の半導体基板 14 を切断することによって、図 4 に示す模式的な断面を有する個々の LED 素子に分割する。以上により、図 4 に示す構成の LED 素子を得ることができる。
- [0055] また、本発明においては、従来よりも大幅に厚さを薄くした金属積層構造

体100を半導体装置のヒートシンクとして用いることができることから、金属積層構造体100の材料コストを低減することができるとともに、素子への分割の際の金属積層構造体100の切断が容易となるため、加工性が向上する。さらには、金属積層構造体100の厚さを薄くすることができることから、半導体装置自体の厚みも低減することができる。

[0056] <その他の形態>

図5に、本発明の金属積層構造体の他の一例の模式的な断面図を示す。ここで、金属積層構造体200は、第1の金属層1の第2の金属層2の設置側とは反対側に設置された第4の金属層4と、第3の金属層3の第2の金属層2の設置側とは反対側に設置された第5の金属層5と、を備えていることに特徴がある。

[0057] ここで、第4の金属層4および第5の金属層5としてはそれぞれ、たとえば銅を含む金属からなる金属層を用いることができる。

[0058] ここでも、金属積層構造体200の全体の厚さ h は、 $20\mu\text{m}$ 以上 $400\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。金属積層構造体200の厚さ h が $20\mu\text{m}$ 以上 $400\mu\text{m}$ 以下である場合には、金属積層構造体200の厚みを薄くして金属積層構造体200を効率的に製造することができる傾向が大きくなる。

[0059] また、金属積層構造体200において、第1の金属層1の厚さ h_1 と第2の金属層2の厚さ h_2 と第3の金属層3の厚さ h_3 と第4の金属層4の厚さ h_4 と第5の金属層5の厚さ h_5 との和 $(h_1+h_2+h_3+h_4+h_5)$ に対する第1の金属層1の厚さ h_1 と第3の金属層3の厚さ h_3 との和 (h_1+h_3) の比 $[(h_1+h_3)/(h_1+h_2+h_3+h_4+h_5)]$ が0.2以上0.8以下であることが好ましい。上記の比が0.2以上0.8以下である場合には、金属積層構造体200の線膨張が大きくなりすぎず、かつ熱伝導率も小さくなりすぎないため、たとえばヒートシンクとして金属積層構造体200を半導体装置の半導体基板に貼り付けた場合に、金属積層構造体200と当該半導体基板との熱膨張の差異があまり大きくなることなく、金属積層構造体200の放熱機能を

十分に発揮することができる傾向にある。

- [0060] また、金属積層構造体 200 の反りを抑制するためには、金属積層構造体 200 の厚み方向の中央部（この例では、金属積層構造体 200 の全体の厚さ h の $1/2$ の部分）から上方の部分と積層構造体の厚み方向の中央部から下方の部分とが積層構造体の厚み方向の中央部に関して対称となっていることが好ましい。
- [0061] 図 5 に示す金属積層構造体 200 は、たとえば以下のようにして製造することができる。
- [0062] まず、上述した図 2 に示す方法により、熔融塩浴 8 中のタングステンおよび/またはモリブデンをたとえば銅箔などの第 2 の金属層 2 の両面にそれぞれ析出させて熔融塩浴めっきにより第 1 の金属層 1 および第 3 の金属層 3 を形成する。
- [0063] 次に、第 1 の金属層 1 および第 3 の金属層 3 の形成後の第 2 の金属層 2 を熔融塩浴 8 から取り出し、たとえばイオン交換水などによって第 1 の金属層 1 および第 3 の金属層 3 にそれぞれ付着している熔融塩浴 8 を洗って除去する。そして、たとえば所定の酸で洗うことによって、第 1 の金属層 1 および第 3 の金属層 3 のそれぞれの表面に形成された酸化膜を除去する。
- [0064] その後、図 6 の模式的構成図に示すように、容器 7 に收容された電気めっき液 9 中に、第 1 の金属層 1 および第 3 の金属層 3 の形成後の第 2 の金属層 2 ならびに対向電極 6 をそれぞれ浸漬させる。
- [0065] ここで、電気めっき液 9 としては、第 4 の金属層 4 および第 5 の金属層 5 を構成する金属原子を含んでおり、第 4 の金属層 4 および第 5 の金属層 5 を構成する金属を電気めっき液 9 の電解により析出させることができるものであれば特に限定はされないが、たとえば第 4 の金属層 4 および第 5 の金属層 5 がそれぞれ銅からなる場合には、電気めっき液 9 としてたとえば市販の硫酸銅めっき液などを用いることができる。
- [0066] 次に、第 2 の金属層 2 を陰極にするとともに、対向電極 6 を陽極として、第 2 の金属層 2 と対向電極 6 との間に電圧を印加して電気めっき液 9 を電解

する。これにより、電気めっき液 9 中の銅を第 1 の金属層 1 の表面および第 3 の金属層 3 の表面にそれぞれ析出させて第 4 の金属層 4 および第 5 の金属層 5 を形成して金属積層構造体 200 を作製する。

[0067] そして、第 4 の金属層 4 および第 5 の金属層 5 の形成後の金属積層構造体 200 は電気めっき液 9 から取り出され、たとえばイオン交換水などによって第 4 の金属層 4 および第 5 の金属層 5 に付着している電気めっき液 9 を洗って除去し、その後、たとえば所定の酸で洗うことによって、第 4 の金属層 4 および第 5 の金属層 5 のそれぞれの表面に形成された酸化膜を除去することができる。以上により、図 5 に示す金属積層構造体 200 を製造することができる。

[0068] また、図 5 に示す金属積層構造体 200 は、たとえば以下のように製造することもできる。

[0069] まず、図 7 の模式的構成図に示すように、第 2 の金属層 2 としての銅箔が容器 7 に收容された熔融塩浴 8 および容器 7 に收容された電気めっき液 9 中をそれぞれ通過するように銅箔を第 1 のロール 31a と第 2 のロール 31b との間に掛け渡す。

[0070] 次に、第 1 のロール 31a から銅箔を繰り出し、容器 7 に收容された熔融塩浴 8 中に銅箔を連続的に浸漬させながら熔融塩浴 8 を電解することによって銅箔の両面にそれぞれタングステンおよび／またはモリブデンを析出させて熔融塩浴めっきにより銅箔の両面にそれぞれ第 1 の金属層 1 および第 3 の金属層 3 をそれぞれ形成する。

[0071] 続いて、容器 7 に收容された電気めっき液 9 中に第 1 の金属層 1 および第 3 の金属層 3 の形成後の銅箔を容器 7 に收容された電気めっき液 9 中に銅箔を連続的に浸漬させながら電気めっき液 9 を電解する。これにより、第 1 の金属層 1 および第 3 の金属層 3 の表面にそれぞれ銅を析出させて電気めっきにより第 1 の金属層 1 および第 3 の金属層 3 のそれぞれの表面に第 4 の金属層 4 および第 5 の金属層 5 をそれぞれ形成して金属積層構造体 200 とする。

- [0072] その後、金属積層構造体 200 は第 2 のロール 31b に巻き取られて回収される。
- また、上記においては、電気めっき液 9 を用いて第 4 の金属層 4 および第 5 の金属層 5 をそれぞれ形成したが、第 4 の金属層 4 および第 5 の金属層 5 の形成方法はこれらに限定されないことは言うまでもない。
- [0073] たとえばスパッタ法などの従来から公知の気相法により第 4 の金属層 4 および第 5 の金属層 5 をそれぞれ形成することによっても金属積層構造体 200 を形成することができる。
- [0074] また、第 4 の金属層 4 および第 5 の金属層 5 は、たとえば、上記の電気めっき液の電解による形成とスパッタ法などの気相法による形成とを組み合わせ形成されてもよい。
- [0075] また、金属積層構造体は、上記の 3 層や 5 層の構造に限定されるものではなく、第 1 の金属層 1 と、第 2 の金属層 2 と、第 3 の金属層 3 とがこの順序で含まれるものであればよい。
- [0076] また、たとえば図 8 の模式的断面図に示すように、金属積層構造体 200 の第 4 の金属層 4 の第 1 の金属層 1 の設置側と反対側の表面にたとえばニッケルなどからなる金属層 41 を設けてもよい。
- [0077] また、金属積層構造体 200 の第 1 の金属層 1 と第 4 の金属層 4 との間および／または第 3 の金属層 3 と第 5 の金属層 5 との間に、コバルトを含むコバルト含有層が設置されていてもよい。
- [0078] 上記のコバルト含有層を含む金属積層構造体 200 は、たとえば以下のようにして製造することができる。
- [0079] まず、第 2 の金属層 2 の表面の両面にそれぞれ形成された第 1 の金属層 1 および第 3 の金属層 3 をアルカリ溶液に浸漬させることによって、第 1 の金属層 1 の表面および第 3 の金属層 3 の表面の脱脂工程を行なう。
- [0080] 次に、第 1 の金属層 1 および第 3 の金属層 3 を陽極としてアルカリ水溶液中に浸漬させて電解を行なうことによって、第 1 の金属層 1 の表面および第 3 の金属層 3 の表面からそれぞれ酸化膜を除去する。

[0081] 次に、上記の酸化膜除去後の第1の金属層1および第3の金属層3を陰極として硫酸コバルト水溶液などからなるコバルトめっき液中に浸漬させて電解を行なうことによって、第1の金属層1の表面および第3の金属層3の表面にそれぞれコバルトを析出させてコバルト含有層を形成する。

[0082] その後、上記で形成したコバルト層を陰極として硫酸銅めっき液中に浸漬させて電解を行なうことによって、コバルト層の表面上に銅を析出させて、銅からなる第4の金属層4および第5の金属層5をそれぞれ形成する。

[0083] 以上により、金属積層構造体200の第1の金属層1と第4の金属層4との間および第3の金属層3と第5の金属層5との間にそれぞれコバルト含有層を形成することができる。

[0084] <溶融塩浴の好ましい構成>

本発明に用いられる溶融塩浴8としては、たとえば、フッ化カリウム(KF)と酸化ホウ素(B_2O_3)と酸化タングステン(WO_3)とをたとえば67:26:7のモル比で混合した混合物を溶融して作製した溶融塩浴などを用いることができる。

[0085] また、第1の金属層1および第3の金属層3がそれぞれモリブデンからなる場合には、溶融塩浴8としては、たとえば、KFと K_2MoO_4 と B_2O_3 とをたとえば81:9:10のモル比で混合した混合物をたとえば850°C程度の温度で溶融して作製した溶融塩浴などを用いることもできる。

[0086] また、第1の金属層1および第3の金属層3がそれぞれタングステンおよびモリブデンからなる場合には、溶融塩浴8としては、たとえば、KFと WO_3 と K_2MoO_4 と B_2O_3 とをたとえば80:4:5:10のモル比で混合した混合物をたとえば850°C程度の温度で溶融して作製した溶融塩浴などを用いることもできる。

実施例

[0087] <実施例1のヒートシンクの作製>

KF粉末319gおよび WO_3 粉末133gをそれぞれ耐圧容器に封入した後、耐圧容器を500°Cに保持し、耐圧容器の内部を2日間以上真空引き

することによってKF粉末およびWO₃粉末をそれぞれ乾燥させた。

[0088] また、B₂O₃粉末148gについては上記とは別の耐圧容器に封入した後に耐圧容器を380℃に保持し、耐圧容器の内部を2日間以上真空引きすることによってB₂O₃粉末を乾燥させた。

[0089] そして、図9に模式的構成図を示す装置を用いて、上記の乾燥後のKF粉末、B₂O₃粉末およびWO₃粉末から熔融塩浴を作製した。

[0090] 具体的には、まず、500℃で2日間以上乾燥させたSiC製の坩堝111に上記の乾燥後のKF粉末、B₂O₃粉末およびWO₃粉末をそれぞれ投入し、これらの粉末が投入された坩堝111を石英製の耐真空容器110に封入した。

[0091] 次に、耐真空容器110の上部の開口部にSUS316L製の蓋118をした状態で坩堝111を500℃に保持し、耐真空容器110の内部を1日間以上真空引きした。

[0092] そして、ガス導入口117から耐真空容器110の内部に高純度アルゴンガスを導入して耐真空容器110の内部に高純度アルゴンガスを充填し、坩堝111を850℃に保持して上記の粉末を熔融させて熔融塩浴前駆体112を作製した。

[0093] 次に、蓋118に設けられた開口部から陽極としてのタングステン板113（表面：20cm²）を含む棒状電極と陰極としてのニッケル板114（表面：20cm²）を含む棒状電極とをそれぞれ挿入してタングステン板113およびニッケル板114をそれぞれ坩堝111中の熔融塩浴前駆体112中に浸漬させた。

[0094] ここで、上記の棒状電極においては、タングステン板113およびニッケル板114にそれぞれリード線115が接続されており、耐真空容器110の内部のリード線115にはタングステン線を用い、耐真空容器110の外部のリード線115には銅線を用いた。また、リード線115の少なくとも一部をアルミナ製の被覆材116により被覆した。

[0095] また、上記の棒状電極の挿入時には、ガス導入口117から耐真空容器1

10の内部に高純度アルゴンガスを導入して耐真空容器110の内部に大気が混入しないように設定した。

[0096] また、タングステン板113およびニッケル板114の酸化の進行による熔融塩浴前駆体112中への不純物の混入を防止するため、図9に示すようにタングステン板113およびニッケル板114についてはそれぞれ表面全域を熔融塩浴前駆体112中に浸漬させた。

[0097] そして、熔融塩浴前駆体112を電解することによって不純物をニッケル板114に析出させることによって熔融塩浴前駆体112から不純物を除去して熔融塩浴を作製した。

[0098] 次に、上記の不純物が析出したニッケル板114を厚さ40 μm の銅箔に取り替えた後、上記のタングステン板113と銅箔との間に3A/dm²の電流密度の電流を17分間流して、熔融塩浴の定電流電解を行ない、銅箔の両面にそれぞれタングステンを析出させることによって厚さ5 μm のタングステン層を形成した。そして、図9に示す装置から上記のタングステン層形成後の銅箔を取り出してタングステン層の表面をイオン交換水によってタングステン層に付着している熔融塩浴を洗って除去した後に、酸で洗うことによってタングステン層の表面に形成された酸化膜を除去することによって実施例1のヒートシンクを作製した。

[0099] そして、実施例1のヒートシンクについて、水平方向への線膨張係数（ppm/°C）を測定した。その結果を表1に示す。なお、線膨張係数（ppm/°C）の測定は、熱機械分析装置（TMA）にて行ない、室温～150°Cまで測定し、その平均値を算出することにより行なった。

[0100] <実施例2のヒートシンクの作製>

厚さ20 μm の銅箔を用いて、当該銅箔と図9に示す装置のタングステン板113との間に3A/dm²の電流密度の電流を136分間流して熔融塩浴の定電流電解を行なうことによって、銅箔の両面にそれぞれタングステンを析出させて厚さ40 μm のタングステン層を形成したこと以外は実施例1と同様にして、実施例2のヒートシンクを作製した。

- [0101] そして、実施例2のヒートシンクについても、実施例1と同様にして、水平方向への線膨張係数（ $\mu\text{m}/\text{m}/\text{C}$ ）を測定した。その結果を表1に示す。
- [0102] <実施例3のヒートシンクの作製>
- 厚さ $10\mu\text{m}$ の銅箔を用いたこと以外は実施例1と同様にして、実施例3のヒートシンクを作製した。そして、実施例3のヒートシンクについても、実施例1と同様にして、水平方向への線膨張係数（ $\mu\text{m}/\text{m}/\text{C}$ ）を測定した。その結果を表1に示す。
- [0103] <実施例4のヒートシンクの作製>
- まず、厚さ $100\mu\text{m}$ の銅箔と図9に示す装置のタングステン板113との間に $3\text{A}/\text{dm}^2$ の電流密度の電流を340分間流して熔融塩浴の定電流電解を行なったこと以外は実施例1と同様にして、銅箔の両面にそれぞれタングステンを析出させて厚さ $100\mu\text{m}$ のタングステン層を形成した。
- [0104] 次に、図9に示す装置から上記のタングステン層形成後の銅箔を取り出してタングステン層の表面をイオン交換水によってタングステン層に付着している熔融塩浴を洗って除去した後に、酸で洗うことによってタングステン層の表面に形成された酸化膜を除去した。
- [0105] 次に、上記の酸化膜除去後のタングステン層の表面を 50C のアルカリ脱脂液（奥野製薬工業（株）製のエースクリーンA220）中に20分間浸漬させることによって洗浄した。
- [0106] 次に、上記の洗浄後のタングステン層を陽極としてアルカリ水溶液中に浸漬させて電解（アルカリ陽極電解）を行なうことによって、タングステン層の表面からそれぞれ酸化膜を除去した。
- [0107] 次に、硫酸コバルト水溶液からなるコバルトめっき液中に1枚のコバルト板からなる陽極と、当該陽極と対向するようにして上記のアルカリ陽極電解後の銅箔を陰極として浸漬させた。ここで、コバルトめっき液としては、コバルトめっき液1リットル当たり 200g の硫酸コバルトと 100g の硫酸とが水に溶解している硫酸コバルト水溶液を用いた。
- [0108] そして、コバルトめっき液の温度を 80C に保持した状態で、上記の陽極

と陰極との間に電流密度 15 A/dm^2 の電流を3分間流した。

[0109] このような条件でコバルトめっき液の電解を行なうことにより、陰極であるタングステン層形成後の銅箔の当該タングステン層のそれぞれの表面上にコバルトを析出させて当該銅箔の両面のタングステン層のそれぞれの表面上に厚さ $0.5 \mu\text{m}$ のコバルト層を形成した。

[0110] その後、コバルト層の形成後の銅箔をコバルトめっき液から取り出し、イオン交換水によってタングステン層に付着しているコバルトめっき液を洗って除去するとともに、その後、酸で洗うことによってタングステン層の表面に形成された酸化膜を除去した。

[0111] 次に、パイレックス（登録商標）ビーカーに収容された硫酸銅めっき液（上村工業（株）製のレブコEX）中に1枚の含リン銅からなる対向電極とともに、上記のコバルト層形成後の銅箔を対向電極と対向するようにして浸漬させた。

[0112] そして、硫酸銅めっき液の温度を 30°C に保持した状態で、陽極としての対向電極および陰極としてのコバルト層形成後の銅箔の表面 1 cm^2 当たり 20 mA （ミリアンペア）の電流（電流密度 20 mA/cm^2 ）が流れるように上記の陽極と陰極との間に電流を1470分間流した。

[0113] このような条件で硫酸銅めっき液の電解を行なうことにより、陰極であるコバルト層形成後の銅箔の両面の当該コバルト層のそれぞれの表面上に銅を析出させて厚さ $49 \mu\text{m}$ の銅層を形成した。

[0114] 次に、上記の銅層形成後の銅箔の銅層の表面をイオン交換水によって銅層に付着している硫酸銅めっき液を洗って除去した後に、酸で洗うことによって銅層の表面に形成された酸化膜を除去して、実施例4のヒートシンクを製作した。

[0115] そして、実施例4のヒートシンクについても、実施例1と同様にして、水平方向への線膨張係数（ $\text{ppm}/^\circ\text{C}$ ）を測定した。その結果を表1に示す。

[0116]

[表1]

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	
製造 条件	銅箔の厚さ (μm)	40	20	10	100	
	タングステン層	厚さ (μm)	5	40	5	100
		電解時間(分)	17	136	17	340
	コバルト層	厚さ (μm)	0	0	0	0.5
		電解時間(分)	0	0	0	3
	銅層	厚さ (μm)	0	0	0	49
電解時間(分)		0	0	0	1470	
製品	全体厚さ (μm)	50	100	20	399	
	W/ (Cu+W)	0.2	0.8	0.5	0.501	
物性	水平方向の線膨張係数 (ppm/ $^{\circ}\text{C}$)	13	5.4	7.7	7.8	

[0117] 以上のようにして作製された実施例1～4のヒートシンクは全体の厚さを100 μm 以下と薄く作製することができるとともに、さらにはめっき液を用いた電気めっきによって効率的に作製できることが確認された。

[0118] また、表1に示すように、実施例1～4のヒートシンクにおいては、銅層の厚さ（銅箔の厚さを含む）の総和とタングステン層の厚さの総和との和に対するタングステン層の厚さの総和の比が0.2以上0.8以下であったため、線膨張が大きくなりすぎず、かつ熱伝導率も小さくなりすぎない優れたヒートシンクであることが確認された。

[0119] <実施例5のヒートシンクの作製>

まず、フッ化カリウム（KF）粉末と酸化ホウ素（ B_2O_3 ）粉末と酸化タングステン（ WO_3 ）粉末とを67：26：7のモル比で混合した混合物を作製し、その混合物をSiC製の坩堝（アズワン（株）製）に投入した。

[0120] ここで、フッ化カリウム（KF）粉末、酸化ホウ素（ B_2O_3 ）粉末および酸化タングステン（ WO_3 ）粉末はそれぞれAr（アルゴン）雰囲気グローブボックス内で秤量され、同じグローブボックス内にあるSiC製の坩堝に投入された。

[0121] 次に、上記の混合物が投入されたSiC製の坩堝をマントルヒーターを用いて850 $^{\circ}\text{C}$ に加熱することによって上記の混合物を熔融して熔融塩浴を作製した。

- [0122] 次に、上記のグローブボックス内で、上記の熔融塩浴に、タングステン板からなる対向電極（陽極）とともに、厚さ $40\ \mu\text{m}$ の銅箔（陰極）を対向電極と対向するように浸漬させた。
- [0123] ここで、上記の陽極および陰極にはそれぞれニッケル線を溶接し、ニッケル線から陽極と陰極との間に電流を供給できる構造とした。
- [0124] そして、熔融塩浴の温度を 850°C に保持した状態で、陽極および陰極を揺動させながら陽極の表面 $1\ \text{cm}^2$ 当たり $30\ \text{mA}$ （ミリアンペア）の電流（電流密度 $30\ \text{mA}/\text{cm}^2$ ）が流れるように上記の陽極と陰極との間に電流を 150 分間流した。
- [0125] このような条件で熔融塩浴の電解を行なうことにより、陰極である銅箔の表面上にタングステンを析出させてタングステン析出物からなるタングステン層を $30\ \mu\text{m}$ の厚さに形成した。
- [0126] 次に、上記のグローブボックスの外で、上記のタングステン層の形成後の銅箔を熔融塩浴から取り出し、イオン交換水によってタングステン層に付着している熔融塩浴を洗って除去した後に、酸で洗うことによってタングステン層の表面に形成された酸化膜を除去した。以上により、実施例 5 のヒートシンクを作製した。
- [0127] 以上のようにして作製された実施例 5 のヒートシンクは全体の厚さを $100\ \mu\text{m}$ と薄く作製することができるとともに、さらには熔融塩浴めっきによって効率的に作製できることが確認された。
- [0128] また、実施例 5 のヒートシンクにおいては、銅層の厚さ（銅箔の厚さを含む）の総和とタングステン層の厚さの総和との和に対するタングステン層の厚さの総和の比が 0.6 であり、 0.2 以上 0.8 以下の範囲内のものであったため、線膨張が大きくなりすぎず、かつ熱伝導率も小さくなりすぎない優れたヒートシンクであることが確認された。
- [0129] <実施例 1～5 の LED 素子の作製>
- 次に、サファイア基板の一方の表面上に LED 構造体が形成されたウエハを 5 枚作製した。

- [0130] ここで、5枚のウエハはそれぞれ以下のようにして製造した。まず、直径が100mmの円形状の表面を有し、かつ厚さが100 μ mのサファイア基板の表面上に、n型Ga_{0.9}N層、アンドープInGa_{0.1}N活性層およびp型Ga_{0.9}N層をこの順序でMOCVD法によりエピタキシャル成長させた。
- [0131] 次に、フォトリソグラフィによりn型Ga_{0.9}N層の表面の一部が露出するまでn型Ga_{0.9}N層、アンドープInGa_{0.1}N活性層およびp型Ga_{0.9}N層のそれぞれの一部を除去した。
- [0132] その後、リフトオフによりn型Ga_{0.9}N層上のn電極、p型Ga_{0.9}N層上の半透明電極および半透明電極上のp電極を形成することにより上記のウエハをそれぞれ作製した。
- [0133] そして、上記で作製した実施例1～5のヒートシンクをそれぞれ、上記で作製したウエハのLED構造体の形成側とは反対側の裏面に共晶半田により接合し、円形回転刃で10mm×10mmの正方形の表面を有する大きさのLED素子に分割することによって、実施例1～5のLED素子をそれぞれ得た。
- [0134] <実施例1～5のLED素子の評価>
銅板およびタンゲステン板を圧接により接合して銅(20 μ m)/タンゲステン(60 μ m)/銅(20 μ m)の積層構造体からなる全体の厚さが1mmのヒートシンクとLED構造体とを上記の共晶半田により接合してLED素子を形成したこと以外は上記と同様にして比較例のLED素子を作製した。
- [0135] そして、上記で作製した実施例1～5のLED素子と、上記の比較例のLED素子との発光特性を比較したところ発光特性は同等であった。
- [0136] しかしながら、実施例1～5のLED素子のヒートシンクの厚さは100 μ m以下であり、比較例のLED素子のヒートシンクの厚さは1mmであったため、実施例1～5のLED素子は比較例のLED素子と比べてヒートシンクのコストを低減することができ、さらには円形回転刃によるウエハの切断が容易であったため加工性も向上することが確認された。

[0137] 今回開示された実施の形態および実施例はすべての点で例示であって制限的なものではないと考えられるべきである。本発明の範囲は上記した説明ではなくて請求の範囲によって示され、請求の範囲と均等の意味および範囲内でのすべての変更が含まれることが意図される。

産業上の利用可能性

[0138] 本発明の金属積層構造体および金属積層構造体の製造方法は、たとえば半導体装置のヒートシンクなどに利用できる可能性がある。

符号の説明

[0139] 1 第1の金属層、2 第2の金属層、3 第3の金属層、4 第4の金属層、5 第5の金属層、6 対向電極、7 容器、8 熔融塩、9 電気めっき液、10 LED構造体、11 p型半導体層、12 活性層、13 n型半導体層、14 半導体基板、15 p電極、16 n電極、17 半透明電極、31a 第1のロール、31b 第2のロール、41 接合層、100、200 金属積層構造体、110 耐真空容器、111 坩堝、112 熔融塩浴前駆体、113 タングステン板、114 ニッケル板、115 リード線、116 被覆材、117 ガス導入口、118 蓋。

請求の範囲

- [請求項1] 第1の金属層(1)と、第2の金属層(2)と、第3の金属層(3)と、を備え、
前記第1の金属層(1)は前記第2の金属層(2)の一方の表面上に設置され、
前記第3の金属層(3)は前記第2の金属層(2)の他方の表面上に設置されており、
前記第1の金属層(1)は、タングステンおよびモリブデンの少なくとも一方を含み、
前記第2の金属層(2)は、銅を含み、
前記第3の金属層(3)は、タングステンおよびモリブデンの少なくとも一方を含む、金属積層構造体(100, 200)。
- [請求項2] 前記第1の金属層(1)は前記第2の金属層(2)の一方の表面上にめっきにより形成され、
前記第3の金属層(3)は前記第2の金属層(2)の他方の表面上にめっきにより形成されてなる、請求の範囲第1項に記載の金属積層構造体(100, 200)。
- [請求項3] 前記第1の金属層(1)の厚さと前記第2の金属層(2)の厚さと前記第3の金属層(3)の厚さとの和に対する前記第1の金属層(1)の厚さと前記第3の金属層(3)の厚さとの和の比が0.2以上0.8以下である、請求の範囲第1項に記載の金属積層構造体(100, 200)。
- [請求項4] 前記第1の金属層(1)の前記第2の金属層(2)の設置側とは反対側に設置された第4の金属層(4)と、
前記第3の金属層(3)の前記第2の金属層(2)の設置側とは反対側に設置された第5の金属層(5)と、を備え、
前記第4の金属層(4)および前記第5の金属層(5)はそれぞれ銅を含む、請求の範囲第1項に記載の金属積層構造体(100, 200)。

0)。

[請求項5] 前記第1の金属層(1)の厚さと前記第2の金属層(2)の厚さと前記第3の金属層(3)の厚さと前記第4の金属層(4)の厚さと前記第5の金属層(5)の厚さとの和に対する前記第1の金属層(1)の厚さと前記第3の金属層(3)の厚さとの和の比が0.2以上0.8以下である、請求の範囲第4項に記載の金属積層構造体(100, 200)。

[請求項6] 前記第1の金属層(1)と前記第4の金属層(4)との間、および前記第3の金属層(3)と前記第5の金属層(5)との間の少なくとも一方の間にコバルト含有層を含む、請求の範囲第4項に記載の金属積層構造体(100, 200)。

[請求項7] 前記コバルト含有層の厚さが0.05 μm 以上3 μm 以下である、請求の範囲第6項に記載の金属積層構造体(100, 200)。

[請求項8] 前記金属積層構造体(100, 200)の全体の厚さが20 μm 以上400 μm 以下である、請求の範囲第1項に記載の金属積層構造体(100, 200)。

[請求項9] ヒートシンクに用いられる、請求の範囲第1項に記載の金属積層構造体(100, 200)。

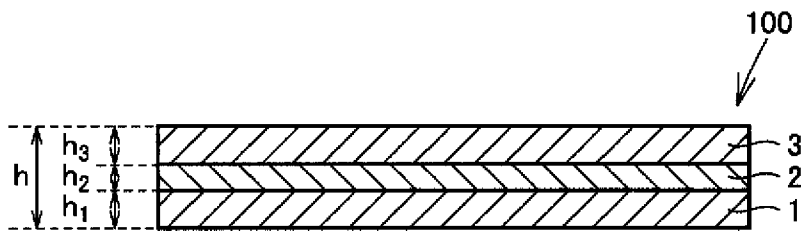
[請求項10] 請求の範囲第1項に記載の金属積層構造体(100, 200)を製造する方法であって、

前記第2の金属層(2)の一方の表面上に前記第1の金属層(1)をめっきにより形成する工程と、

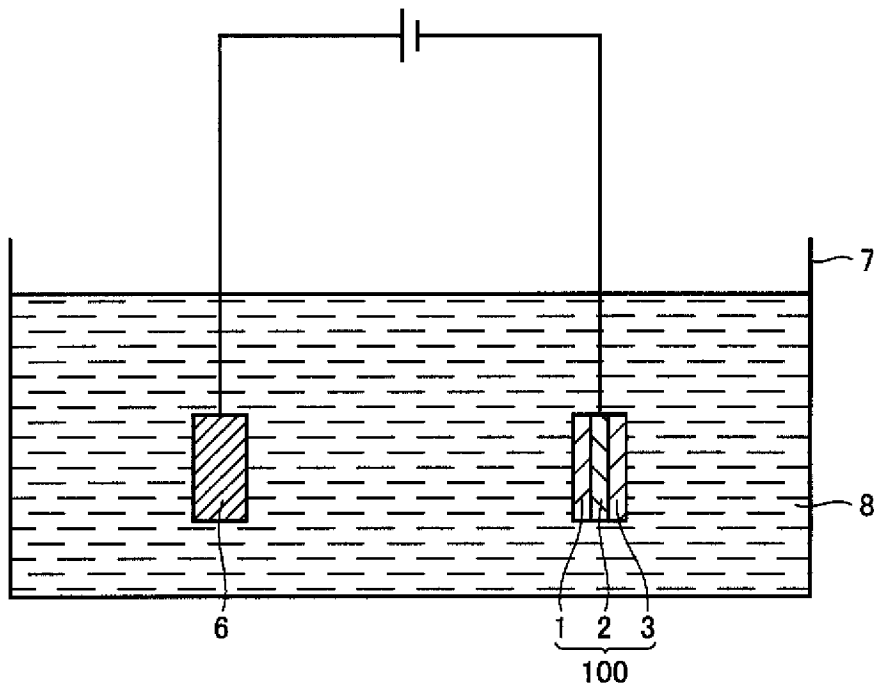
前記第2の金属層(2)の他方の表面上に前記第3の金属層(3)をめっきにより形成する工程と、を含む、金属積層構造体(100, 200)の製造方法。

[請求項11] 前記めっきは熔融塩浴めっきである、請求の範囲第10項に記載の記載の金属積層構造体(100, 200)の製造方法。

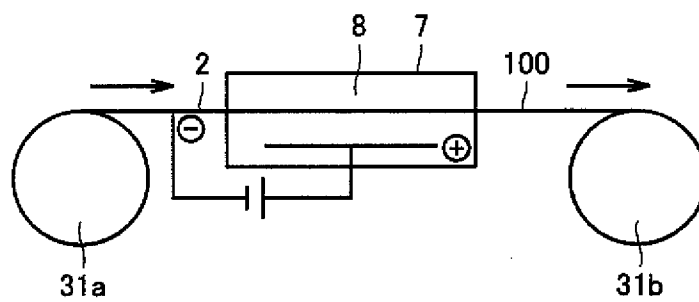
[図1]



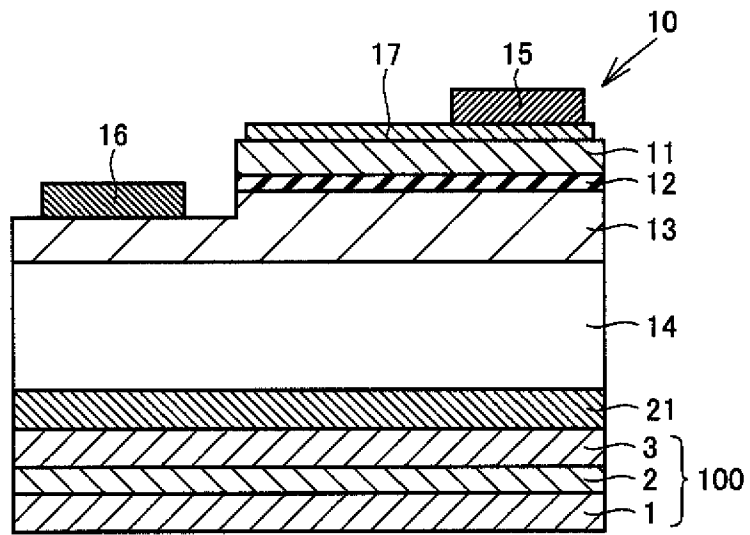
[図2]



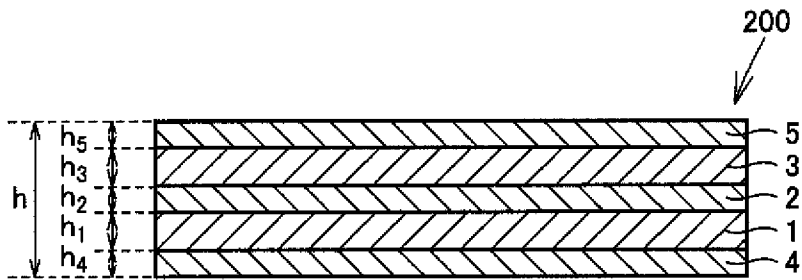
[図3]



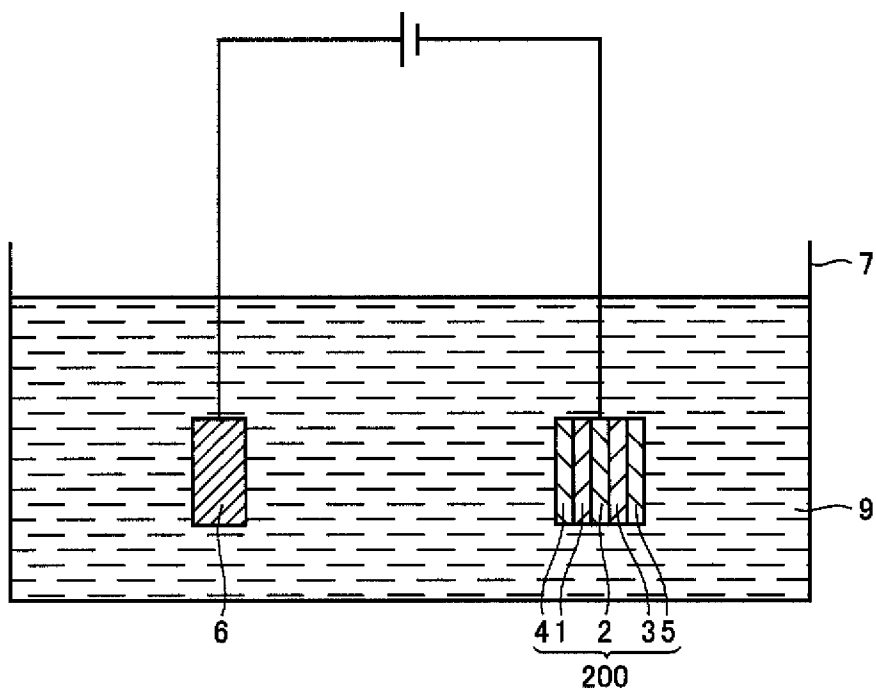
[図4]



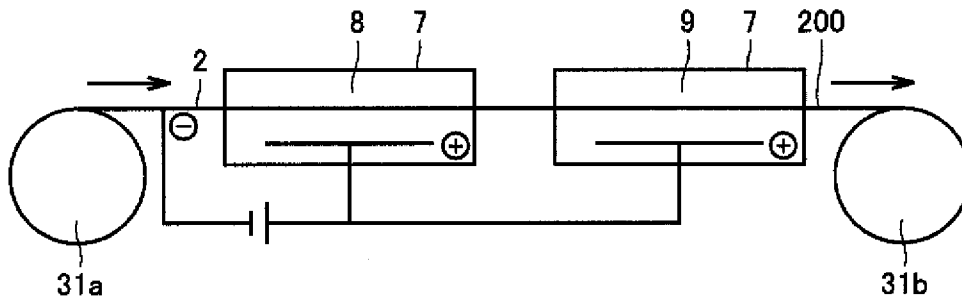
[図5]



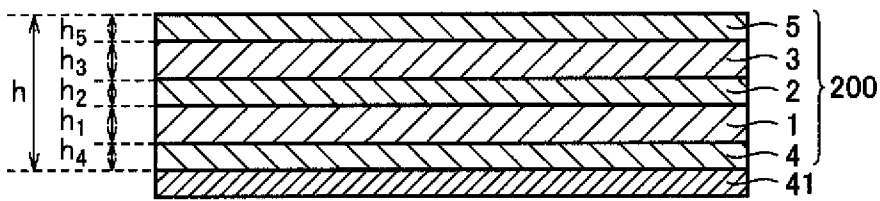
[図6]



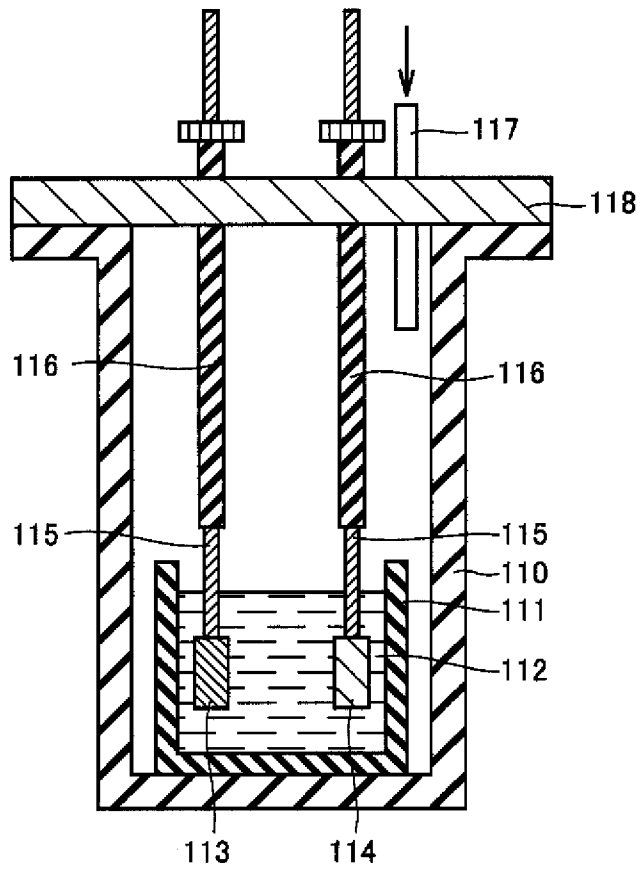
[図7]



[図8]



[図9]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/059695

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B32B15/01(2006.01)i, C25D3/66(2006.01)i, C25D5/10(2006.01)i, C25D7/00(2006.01)i, C25D7/06(2006.01)i, H01L23/36(2006.01)i, H01L33/62(2010.01)i, H01L33/64(2010.01)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, C25D3/66, C25D5/10, C25D7/00, C25D7/06, H01L23/36, H01L33/00-33/64

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	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

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.
X Y	WO 2008/013279 A1 (Kyocera Corp.), 31 January 2008 (31.01.2008), paragraph [0067]; fig. 1a & US 2010/0059271 A & EP 2056344 A1 & CN 101496165 A	1, 4, 8, 9 2, 10, 11
X Y	WO 2007/046164 A1 (Eiki TSUSHIMA), 26 April 2007 (26.04.2007), paragraph [0043]; fig. 1 & JP 2007-115731 A & US 2009/0258248 A & EP 1944116 A1 & KR 10-2008-0063327 A & CN 101291769 A	1, 4, 8, 9 2, 10, 11

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
07 September, 2010 (07.09.10)

Date of mailing of the international search report
21 September, 2010 (21.09.10)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/059695

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2007-227458 A (Toyota Motor Corp.), 06 September 2007 (06.09.2007), paragraph [0023]; fig. 2 (Family: none)	2, 10, 11
A	JP 11-284111 A (Sumitomo Special Metals Co., Ltd.), 15 October 1999 (15.10.1999), entire text; all drawings (Family: none)	1, 2, 4, 8-11
A	JP 2007-327081 A (Toyota Central Research and Development Laboratories, Inc.), 20 December 2007 (20.12.2007), entire text; all drawings (Family: none)	1, 2, 4, 8-11
A	JP 2004-249589 A (Toshiba Corp.), 09 September 2004 (09.09.2004), entire text; all drawings (Family: none)	1, 2, 4, 8-11
A	JP 2006-100640 A (Hitachi Metals, Ltd.), 13 April 2006 (13.04.2006), entire text; all drawings (Family: none)	1, 2, 4, 8-11
A	JP 2000-124370 A (Sumitomo Metal (SMI) Electronics Devices Inc.), 28 April 2000 (28.04.2000), entire text; all drawings (Family: none)	1, 2, 4, 8-11
A	JP 4-230063 A (Aichi Steel Works Ltd.), 19 August 1992 (19.08.1992), entire text; all drawings (Family: none)	1, 2, 4, 8-11
A	JP 6-268115 A (Tokyo Tungsten Co., Ltd.), 22 September 1994 (22.09.1994), entire text; all drawings (Family: none)	1, 2, 4, 8-11

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/059695

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:
See extra sheet.

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:
1, 2, 4 and 8-11

Remark on Protest

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/059695

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet (2)

As a result of the search, it is found that a common matter among the inventions in claims 1-11 is disclosed in documents WO 2008/013279 A1 (Kyocera Corp.) 31 January 2008 (31.01.2008), paragraph [0067] and fig. 1a and WO 2007/046164 A1 (Eiki TSUSHIMA) 26 April 2007 (26.04.2007), paragraph [0043] and fig. 1, and is therefore not novel.

Consequently, the common matter does not go beyond the scope of the prior art, and is not a special technical feature in the meaning within PCT Rule 13.2, second sentence. Therefore, there is no common matter among all of the inventions in claims 1-11.

Further, there is no other common matter that can be regarded as a special technical feature in the meaning within PCT Rule 13.2, second sentence. Therefore, no technical relationship in the meaning within PCT Rule 13 is found among these distinct inventions.

Consequently, it is obvious that the inventions in claims 1-11 do not comply with the requirement of unity of invention. Thus, the present application includes the following three inventions.

Claims 1, 2, 4 and 8-11

A metal laminate structure in which the first and second metal layers are formed by plating.

Claims 3 and 5

A metal laminate structure in which the sum total of the entire thickness and the thickness of a W or Mo layer is 0.2 to 0.8 inclusive.

Claims 6 and 7

A metal laminate structure which contains a Co-containing layer.

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, C25D3/66(2006.01)i, C25D5/10(2006.01)i, C25D7/00(2006.01)i, C25D7/06(2006.01)i, H01L23/36(2006.01)i, H01L33/62(2010.01)i, H01L33/64(2010.01)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, C25D3/66, C25D5/10, C25D7/00, C25D7/06, H01L23/36, H01L33/00-33/64

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	1971-2010年
日本国実用新案登録公報	1996-2010年
日本国登録実用新案公報	1994-2010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
X Y	WO 2008/013279 A1 (京セラ株式会社) 2008.01.31, 段落番号[0067]、図1a & US 2010/0059271 A & EP 2056344 A1 & CN 101496165 A	1, 4, 8, 9 2, 10, 11
X Y	WO 2007/046164 A1 (津島栄樹) 2007.04.26, 段落番号[0043]、図1 & JP 2007-115731 A & US 2009/0258248 A & EP 1944116 A1 & KR 10-2008-0063327 A & CN 101291769 A	1, 4, 8, 9 2, 10, 11

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、一般的な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
 「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

07.09.2010

国際調査報告の発送日

21.09.2010

国際調査機関の名称及びあて先
 日本国特許庁 (ISA/JP)
 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)	2K	3498
松崎 義邦		
電話番号 03-3581-1101 内線 3255		

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
Y	JP 2007-227458 A (トヨタ自動車株式会社) 2007.09.06, 段落番号【0023】、図2 (ファミリーなし)	2, 10, 11
A	JP 11-284111 A (住友特殊金属株式会社) 1999.10.15, 全文、全図 (ファミリーなし)	1, 2, 4, 8-11
A	JP 2007-327081 A (株式会社豊田中央研究所) 2007.12.20, 全文、全図 (ファミリーなし)	1, 2, 4, 8-11
A	JP 2004-249589 A (株式会社東芝) 2004.09.09, 全文、全図 (ファミリーなし)	1, 2, 4, 8-11
A	JP 2006-100640 A (日立金属株式会社) 2006.04.13, 全文、全図 (ファミリーなし)	1, 2, 4, 8-11
A	JP 2000-124370 A (株式会社住友金属エレクトロデバイス) 2000.04.28, 全文、全図 (ファミリーなし)	1, 2, 4, 8-11
A	JP 4-230063 A (愛知製鋼株式会社) 1992.08.19, 全文、全図 (ファミリーなし)	1, 2, 4, 8-11
A	JP 6-268115 A (東京タングステン株式会社) 1994.09.22, 全文、全図 (ファミリーなし)	1, 2, 4, 8-11

第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. 請求項 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、

2. 請求項 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、

3. 請求項 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるときの国際調査機関は認めた。

別紙参照

1. 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。
2. 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。
4. 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

1, 2, 4, 8-11

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。

請求の範囲 1-11 に係る発明の共通の事項は、調査の結果、この共通の事項は、文献 WO 2008/013279 A1 (京セラ株式会社) 2008.01.31, 段落番号[0067]、図 1 a、WO 2007/046164 A1 (津島栄樹) 2007.04.26, 段落番号[0043]、図 1 に開示されているから、新規でないことが明らかとなった。

結果として、共通の事項は、先行技術の域を出ないから、PCT 規則 13.2 の第 2 文の意味において、この共通事項は特別な技術的特徴ではない。それ故、請求の範囲 1-11 に係る発明全てに共通の事項はない。

PCT 規則 13.2 の第 2 文の意味において特別な技術的特徴と考えられる他の共通の事項は存在しないので、それらの相違する発明の間に PCT 規則 13 の意味における技術的な関連を見いだすことはできない。

よって、請求の範囲 1-11 に係る発明は、発明の単一性の要件を満たしていないことが明らかである。従って、本願は下記の 3 発明を含む。

請求の範囲 1, 2, 4, 8-11

第 1 および第 2 の金属層をめっきで形成した金属積層体構造。

請求の範囲 3, 5

全体の厚さと W または M の層厚の和の比が 0.2 以上 0.8 以下である金属積層体構造。

請求の範囲 6, 7

C 含有層を含む金属積層体構造。