

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6590322号
(P6590322)

(45) 発行日 令和1年10月16日 (2019. 10. 16)

(24) 登録日 令和1年9月27日 (2019. 9. 27)

| | |
|--------------------------|-----------------|
| (51) Int. Cl. | F I |
| H O 1 L 21/02 (2006. 01) | H O 1 L 21/02 B |
| C 3 O B 33/06 (2006. 01) | C 3 O B 33/06 |
| C 3 O B 29/06 (2006. 01) | C 3 O B 29/06 B |
| | H O 1 L 21/02 C |

請求項の数 5 (全 13 頁)

| | | | |
|--------------------|------------------------------|-----------|------------------------------|
| (21) 出願番号 | 特願2016-81747 (P2016-81747) | (73) 特許権者 | 314012076 |
| (22) 出願日 | 平成28年4月15日 (2016. 4. 15) | | パナソニック I P マネジメント株式会社 |
| (65) 公開番号 | 特開2017-28247 (P2017-28247A) | | 大阪府大阪市中央区域見2丁目1番61号 |
| (43) 公開日 | 平成29年2月2日 (2017. 2. 2) | (74) 代理人 | 100106518 |
| 審査請求日 | 平成30年12月6日 (2018. 12. 6) | | 弁理士 松谷 道子 |
| (31) 優先権主張番号 | 特願2015-141731 (P2015-141731) | (74) 代理人 | 100132241 |
| (32) 優先日 | 平成27年7月16日 (2015. 7. 16) | | 弁理士 岡部 博史 |
| (33) 優先権主張国・地域又は機関 | 日本国 (JP) | (74) 代理人 | 100113170 |
| | | | 弁理士 稲葉 和久 |
| | | (72) 発明者 | 西川 和宏 |
| | | | 大阪府門真市大字門真1006番地 パナソニック株式会社内 |
| | | (72) 発明者 | 西木 直巳 |
| | | | 大阪府門真市大字門真1006番地 パナソニック株式会社内 |

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 グラファイトとシリコンとの結合体及びその製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(0 0 2) 面の X 線回折ピークの半値幅が、 6° より小さいグラファイトと、
シリコンと、

前記グラファイトと前記シリコンとの間に位置する中間層と、を有し、

前記中間層は、酸素と炭素とシリコンとを含み、

前記酸素の濃度は、 0.5 at m \% ~ 5 at m \% である、グラファイトとシリコンとの結合体。

【請求項 2】

前記酸素の濃度は、 0.7 at m \% ~ 4 at m \% である請求項 1 に記載のグラファイトとシリコンとの結合体。

【請求項 3】

前記中間層は、シリコンと炭素と酸素以外、不可避の元素のみ含む請求項 1 または 2 に記載のグラファイトとシリコンとの結合体。

【請求項 4】

前記中間層は、その厚みが $2 \mu\text{m}$ ~ $30 \mu\text{m}$ である請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載のグラファイトとシリコンとの結合体。

【請求項 5】

グラファイトとシリコンを積層し、加熱加圧時に、
酸素濃度を 0.2 vol \% 雰囲気にし、

加圧力を 2 4 . 5 M P a 以上にし、
加熱温度を 1 2 6 0 以上とするグラファイトとシリコンとの結合体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、グラファイトとシリコンとの結合体およびその製造方法に関する。特に、放射線光学素子や熱対策材部材用グラファイトとシリコンとの結合体、その製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、炭素系基材とシリコン基材とを、その接合面に、アモルファスシリコンやシリコンカーバイド層を介して接合した結合体が報告されている（特許文献1）。

【0003】

この構成では、接合面が熔融することによりシリコンとカーボンとの化合物の層が形成される。この方法では、大型の複合基板を作製するのに有利である。

【0004】

基材に黒鉛を用いた場合には、黒鉛基材表面に予め SiC 層を形成し、且つ、シリコン基材表面にはアモルファスシリコン層を予め形成し、SiC 層とアモルファスシリコン層とを接合し、結合体を作製することが報告されている。

【0005】

さらに、炭素系基材とセラミクス基材の結合体として、グラファイト膜とシリコン基材とを接合した結合体が報告されている（特許文献2）。この特許文献2ではグラファイト膜の表面に水酸基を形成し、シリコン基材表面にシラノール基を形成した後、両基材を加圧しながら熱を加えることによりシリコンカーバイド結合を生じさせて結合した結合体を報告している。

【0006】

さらに、シリコン表面の熱酸化により酸化シリコン膜を形成した基材と、表面に水酸基を形成したグラファイト膜とを直接加圧しながら熱処理することにより、結合体を製造している報告がある。

【0007】

この方法では、容易にシリコンカーバイド結合を生じさせることで、両基材を結合できることも報告している。

【0008】

これらの方法で作製したグラファイト膜とシリコン基材の結合体はシリコンカーバイド結合により接合されていることを特徴としている。炭素材料とセラミクス材料や金属材料との接合界面に SiC を形成させた強固な結合体として、例えば、特許文献3のものがあり、一方で、セラミクス基材同士を酸素、窒素または炭素の拡散層と金属層を有して接合した結合体も報告されている（特許文献4）。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0009】

【特許文献1】特許第4182323号公報

【特許文献2】特開2008-294110号公報

【特許文献3】特公昭58-6712号公報

【特許文献4】特許第3505212号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

しかしながら、前述した炭素基材とシリコン基材との結合体の形成方法では、その製造工程において、真空系の装置を使用して、基板上に多結晶シリコン膜やシリコンカーバイ

10

20

30

40

50

ド膜あるいはアモルファスシリコン膜を事前に形成する必要がある。

【0011】

また、基材によってはドーピングをも必要としている。このため、工程数が多く非常に高価になるという欠点があった。

【0012】

また、結合体を、X線モノクロメータ等の放射線光学素子として使用する場合には、ボロンのようなドーパントがX線の回折バラツキを引き起こす。このために、回折X線の強度が低下や、ノイズが増大等の問題が発生する。

【0013】

さらに、シリコンとカーボンの化合物の層は、シリコンや炭素の基材と比較して弾性率が大きい。このため、接合された結合体自身は熱衝撃に対する十分な強度を確保することが困難である。さらに、結合体を電子機器のデバイスや部材とする場合には設計上の配慮が必要である。

【0014】

よって、本願発明の課題は、放射線光学素子としてのX線強度の低下や、ノイズ増大の問題が発生せず、且つ、熱衝撃に対する十分な強度を確保されたグラファイトとシリコンとの結合体を提供する。また、その製造方法を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0015】

上記課題を解決するために、グラファイトと、シリコンと、グラファイトとシリコンとの間に位置する中間層と、を有し、中間層は、酸素と炭素とシリコンとを含むグラファイトとシリコンとの結合体を用いる。

また、グラファイトとシリコンを積層し、加熱加圧時に、酸素濃度を0.2%雰囲気にし、加圧力を24.5MPa以上にし、加熱温度を1260℃以上とするグラファイトとシリコンとの結合体の製造方法を用いる。

【発明の効果】

【0016】

本実施の形態のグラファイトとシリコンとの結合体は、グラファイト基材の高い結晶性が維持されている。また、本実施の形態のグラファイトとシリコンとの結合体は、X線モノクロメータ等の放射線光学素子としてX線の回折性能に優れている。また、本実施の形態のグラファイトとシリコンとの結合体は、熱衝撃に対する十分な強度が確保される。また、本実施の形態のグラファイトとシリコンとの結合体では、グラファイト基材の高い熱伝導性も維持されているので、半導体装置等の発熱対策用部材としても利用可能である。

【図面の簡単な説明】

【0017】

【図1】本実施の形態の結合体の断面図

【図2】(a)本実施の形態の結合体の境界層におけるSi原子濃度分布を示す図、(b)本実施の形態の結合体の境界層におけるO原子濃度分布を示す図、(c)本実施の形態の結合体の境界層におけるC原子濃度分布を示す図

【図3】(a)～(c)本実施の形態の結合体の製造工程を示す図

【発明を実施するための形態】

【0018】

以下本発明の実施の形態について、図面を参照しながら説明する。実施の形態のものは、グラファイトとシリコンと中間層とが積層された結合体6である。その結合体6を図1の断面図に示す。

【0019】

この結合体6は、グラファイト2とシリコン1とその間の中間層3とからなる。この中間層3中の酸素の存在により、グラファイト2とシリコン1とが確実に接合されている。以下で、酸素の効果を説明する。

【0020】

< グラファイト 2 >

グラファイト 2 は、六方晶の異方性材料で、炭素の 6 員環が網目状に結合した面 (a b 面) が層状に重なった構造をとっている。本実施の形態に使用するグラファイト 2 は、 a b 面をシリコン 1 と対向させている。しかし、これに制約されることは無く a b 面と垂直な面 (c 軸面) を対向させても良い。結晶性の高いグラファイト 2 を使用する。

【 0 0 2 1 】

グラファイト 2 の結晶性は、 C u ターゲットを使った X 線回折評価による (0 0 2) 結晶面のピークの半値幅で表される。単結晶に近づく程、この半値幅の値は小さくなる。

【 0 0 2 2 】

実施の形態のグラファイト 2 は、放射線光学素子用に使用するもので、非常に結晶性が高く、且つ、表面や内部の欠陥が少ないものを使用する。特に、高分子フィルムの熱処理で作製された異方性グラファイトは、天然に産出されるグラファイト、及び、粉状のグラファイトを加工したもの、炭素原料から C V D 法による堆積で作製したものと比較して、非常に結晶性が高く、本実施の形態に使用するグラファイトに適している。

【 0 0 2 3 】

特に、グラファイト 2 の結晶性は、半値幅が $0.2^{\circ} \sim 5.0^{\circ}$ のものが好ましい。

【 0 0 2 4 】

< シリコン 1 >

シリコン 1 は、 C Z 法により作製されたシリコンインゴットをスライスしたものを研磨したものを使用する。シリコンは単結晶のものが好ましい。

【 0 0 2 5 】

< 中間層 3 >

中間層 3 は、シリコンと酸素と炭素からなる層である。シリコンと炭素とを酸素を用いて接合したものである。この中間層 3 により、シリコン 1 とグラファイト 2 とが確実に接合される。

【 0 0 2 6 】

シリコン 1 と中間層 3 とグラファイト 2 との界面の元素分析した結果を図 2 (a) ~ 図 2 (c) に示す。

【 0 0 2 7 】

中間層 3 を含む約 $18 \mu\text{m}$ を日本電子株式会社製 F E - E P M A J X A - 8 5 3 0 F を使用して、シリコン原子、酸素原子及び炭素原子の線分析を行った。図 2 (a) は、シリコン、図 2 (b) は酸素、図 2 (c) はグラファイトの元素を分析した結果である。

【 0 0 2 8 】

図 2 (a) ~ 図 2 (c) 中の距離 $4.3 \mu\text{m}$ までは、グラファイト 2 を示し、 $4.3 \mu\text{m} \sim 14.5 \mu\text{m}$ が界面の中間層 3 を示し、 $14.5 \mu\text{m}$ 以降はシリコン 1 の層を示している。中間層 3 は、その厚みが $2 \mu\text{m} \sim 30 \mu\text{m}$ 必要である。その厚みは、 $4 \mu\text{m} \sim 15 \mu\text{m}$ が好ましい。

【 0 0 2 9 】

その結果、図 2 (c) が示すとおり、距離 $4.3 \mu\text{m}$ までは C の原子が検知される。それに対して、図 2 (a) が示すとおり、距離 $14.5 \mu\text{m}$ 以降はシリコン 1 の原子数が多く検知される。

【 0 0 3 0 】

これらの結果より、中間層 3 においては、シリコン 1 の側とグラファイト 2 の側の両側から異なる速度で原子の拡散が生じ、そこに雰囲気中に存在する微量の酸素原子が混合して、混合層が形成されると考える。

【 0 0 3 1 】

酸素元素は全元素数中 $0.5 \text{ at m } \% \sim 5 \text{ at m } \%$ 必要である。

【 0 0 3 2 】

$0.5 \text{ at m } \%$ より少ないと、酸素により炭素とシリコンとの接合が十分でなく、接合強度を確保できない。

10

20

30

40

50

【 0 0 3 3 】

5 % a t mより多いと、炭素やシリコンと結合し、酸化物化する。
酸素元素以外では、上記効果はない。周期律表において、酸素、珪素に近い元素として、窒素、リン、酸素、イオウがあるが、活性があるのは酸素のみである。酸素以外では、炭素、シリコンとの結合能力がない。

【 0 0 3 4 】

周期律表で離れた他の活性な元素の場合、元素の大きさが異なり、酸素とシリコンのどちらかの1方とのみと結合する。結果、シリコンと炭素（グラファイト）との接合ができない。

【 0 0 3 5 】

< 製造方法 >

図 3 (a) ~ 図 3 (d) は、本実施の形態の結合体 6 の製造工程を示す断面図である。

【 0 0 3 6 】

第 1 工程

まず、図 3 (a) に示すように、グラファイト 2、シリコン 1 及びスペーサー 5 を準備する。グラファイト 2 の接合面 2 A と反対面 2 B とが、グラファイト結晶の a b 面と一致している。一方、シリコン 1 については C Z 法等から作製された S i インゴットスライスしたもの、スライスしたものを研磨したものを使用する。

【 0 0 3 7 】

グラファイト 2 には、パナソニック株式会社製グラファイト（品名パナソニックグラファイト 品番 P G C X - 0 7、X - 1 0）を準備した。シリコン 1 は、C Z 法により作製されたシリコンインゴットをスライスしたものを研磨して準備した。

【 0 0 3 8 】

P G C X - 7、X - 1 0 は、グラファイト基材の結晶方位（0 0 2）での X 線回折の半値幅が、それぞれ、0 . 6 9 ~ 0 . 7 2 と 1 . 3 3 ~ 1 . 3 5 の特性を持つものである。半値幅に応じて品番の数値が付けられている。

【 0 0 3 9 】

グラファイト 2 において、シリコン 1 と対向する接合面 2 A の粗度は、 $R_z = 3 (\mu m)$ である。

【 0 0 4 0 】

また、シリコン 1 のグラファイト 2 との対向する反対面 1 B の粗度は、 $R_z = 0 . 0 0 5 (\mu m)$ である。これらを、グラファイト 2 の a b 面とシリコン 1 の反対面 1 B 面とが対向するように配置する。本実施の形態に用いるグラファイト 2 及びシリコン 1 の寸法に制限は無い。

【 0 0 4 1 】

スペーサー 5 は、製造工程において使用する加熱プレス装置の治具との接着を防ぐ為のものである。アルミナやジルコニア及び本実施の形態で使用する高結晶性グラファイトなどを用いることができる。

【 0 0 4 2 】

図 3 (b) に示すように、シリコン 1 とグラファイト 2 との積層体 4 を加熱プレス装置で処理する。加熱プレス工程は、積層体 4 が設置された装置のチャンバー内を空気から所定の混合比のアルゴンと酸素の混合ガスに置換する工程と、所定のプレス圧力に制御しながら所定の温度まで昇温する工程と、所定の温度に到達後に圧力を制御しながら所定時間一定に温度を保つ工程と、プレス圧力を所定の圧力に制御しながら降温する工程からなる。

【 0 0 4 3 】

数時間保持の後、プレス圧力を開放し、5 ~ 1 5 / 分の冷却速度で降温する。積層体 4 が結合体 6 になる。

【 0 0 4 4 】

チャンバー内温度が室温近傍まで冷却後に、結合体 6 を取り出し、評価に供する。結合

10

20

30

40

50

体 6 には、中間層 3 (図 1) が、シリコン 1 とグラファイト 2 との界面にできている。

【 0 0 4 5 】

(実施例 1)

実施例 1 として、上記の工程で、以下の条件で結合体 6 を作製した。

グラファイト 2 は、パナソニック株式会社製グラファイト (品名パナソニックグラファイト 品番 P G C X - 0 7) を使用した。シリコン 1 は、C Z 法により作製されたシリコンインゴットをスライスしたものを研磨して準備した。

【 0 0 4 6 】

グラファイト 2 の接合面 2 A の粗度は、 $R_z = 3 (\mu m)$ である。シリコン 1 の接合面 1 A の粗度は、 $R_z = 0.005 (\mu m)$ である。スペーサー 5 は、アルミナを用いた。

10

【 0 0 4 7 】

チャンバー内の酸素濃度を 0.2 Vol % に調整しチャンバー全圧が 1 気圧となるようにする。その後、積層体 4 を接合面に対して垂直の方向から 24.5 MPa のプレス圧力で加圧しながら、10 / 分の昇温速度で所定の温度まで加熱する。積層体 4 の温度が 1260 に到達後 2 時間保持する。その間もプレス圧力は 24.5 MPa で一定を保った。

【 0 0 4 8 】

2 時間保持の後、プレス圧力を 0 MPa にし 10 / 分の冷却速度で降温する。チャンバー内温度が室温近傍まで冷却後に結合体 6 を取り出し、評価に供した。

その他、条件は表 1 のものである。

20

【 0 0 4 9 】

(実施例 2)

プレス圧力が表 1 記載の通り 44.1 MPa であること以外は、実施例 1 と同じ条件で製造して評価に供した。

【 0 0 5 0 】

(実施例 3)

プレス圧力が表 1 記載の通り 68.6 MPa であること以外は、実施例 1 と同じ条件で製造し評価に供した。

【 0 0 5 1 】

(実施例 4)

加熱温度が 1360 であること以外は、実施例 3 と同じ条件で製造し評価に供した。

30

【 0 0 5 2 】

(実施例 5)

グラファイトの種類が P G C X - 1 0 (半値幅 1.33 ~ 1.35) であること以外は、実施例 3 と同じ条件で製造し評価に供した。

【 0 0 5 3 】

(実施例 6)

酸素濃度が 1.6 Vol % であること以外は、実施例 3 と同じ条件で製造し評価に供した。

【 0 0 5 4 】

(実施例 7)

製造条件のプレス圧が 24.5 MPa であること以外は、実施例 6 と同じ条件で製造し評価に供した。実施例 6 と比較して圧力が低下していることで、グラファイトとシリコンの拡散速度が低下するために、中間層の酸素濃度が増加したと推測される。

40

【 0 0 5 5 】

(実施例 8)

製造所条件の加熱温度が 1400 であること以外は、実施例 3 と同じ条件で製造し評価に供した。シリコンの融点 (1414) 付近で加熱した場合、グラファイトとシリコンの拡散速度が速まり、中間層の酸素濃度が低下したと推測される。

【 0 0 5 6 】

50

グラファイトとシリコンの接合のような固相拡散では、温度と圧力によって拡散速度が変化し拡散層の厚みが変化する。また、固層への気体の拡散についても、雰囲気濃度、圧力、温度によって拡散速度が変化し濃度が変化する。

【 0 0 5 7 】

今回の実施例では酸素濃度をあげることで、中間層の酸素濃度が上昇し、また、プレス圧を低下させることで酸素の拡散速度は変化しないが、グラファイトとシリコンの拡散速度が低下したために、中間層の酸素の濃度が上昇したと考えられる。

【 0 0 5 8 】

さらに、加熱温度を 1 4 0 0 と融点付近まで加熱するとシリコン結晶の結合が不安定になり始め、グラファイトの結合が進み拡散速度が増加する。そのため、温度上昇による酸素の拡散速度より、グラファイトとシリコンの拡散速度の上昇幅が大きく酸素濃度が低下したと推測される。

【 0 0 5 9 】

(比較例 1)

加熱温度が 1 1 5 0 であること以外は、実施例 1 と同じ条件で製造し評価に供した。

【 0 0 6 0 】

(比較例 2)

加熱温度が 1 1 5 0 であること以外は、実施例 3 と同じ条件で製造し評価に供した。

【 0 0 6 1 】

(比較例 3)

加熱温度が 1 0 0 0 であること以外は、実施例 3 と同じ条件で製造し評価に供した。

【 0 0 6 2 】

(比較例 4)

加熱温度が 8 0 0 であること以外は、実施例 3 と同じ条件で製造し評価に供した。

【 0 0 6 3 】

(比較例 5)

グラファイトの種類が試作品 (半値幅 6 . 0 ~ 7 . 0) であること以外は、実施例 3 と同じ条件で製造し評価に供した。

【 0 0 6 4 】

(比較例 6)

グラファイトの種類が試作品 (半値幅 6 . 0 ~ 7 . 0) であること以外は、実施例 1 と同じ条件で製造し評価に供した。

【 0 0 6 5 】

上記条件、および、下記の評価結果を表 1 に示す。

【 0 0 6 6 】

10

20

30

【表 1】

| 製造条件 | | | | 評価 | | | | | | |
|--------------|--------------------|----------------|---------------|-------------------------|----------------------|--------------------------------------|--------------------------------------|-------------------------|-------------------------|-----|
| 加熱温度 (°C) | プレス圧 力 (MPa) | 酸素濃度 (Vol%) | 接合可否 (○／×) | 半幅FWHM M(°) 接合処理前 | 半幅FWHM (°) 接合後 | 熱伝導率 (W／m ² ・k) 接合前 | 熱伝導率 (W／m ² ・k) 接合後 | 総合合 否判 定 (○／×) | 中間層3の 酸素濃度 (atm%) | |
| 実施例1 | 1260 | 24.5 | 0.2 | 接合可(○) | 0.69～0.72 | 0.62～0.78(○) | 1450 | 1400(○) | ○ | 0.7 |
| 実施例2 | 1260 | 44.1 | 0.2 | 接合可(○) | 0.70～0.72 | 0.62～0.77(○) | 1450 | 1460(○) | ○ | 0.7 |
| 実施例3 | 1260 | 68.6 | 0.2 | 接合可(○) | 0.70～0.72 | 0.62～0.78(○) | 1450 | 1460(○) | ○ | 0.7 |
| 実施例4 | 1360 | 68.6 | 0.2 | 接合可(○) | 0.69～0.71 | 0.61～0.78(○) | 1440 | 1400(○) | ○ | 0.7 |
| 実施例5 | 1260 | 68.6 | 0.2 | 接合可(○) | 1.33～1.35 | 1.18～1.20(○) | 1200 | 1190(○) | ○ | 0.7 |
| 実施例6 | 1260 | 68.6 | 1.6 | 接合可(○) | 0.69～0.71 | 0.61～0.79(○) | 1430 | 1430(○) | ○ | 4 |
| 実施例7 | 1260 | 24.5 | 1.6 | 接合可(○) | 0.69～0.72 | 0.61～0.78(○) | 1430 | 1430(○) | ○ | 5 |
| 実施例8 | 1400 | 68.6 | 0.2 | 接合可(○) | 0.70～0.72 | 0.62～0.77(○) | 1450 | 1450(○) | ○ | 0.5 |
| 比較例1 | 1150 | 24.5 | 0.2 | 接合不可(×) | 0.68～0.72 | 0.62～0.78(○) | 1400 | 1390(○) | × | 0 |
| 比較例2 | 1150 | 68.6 | 0.2 | 接合不可(×) | 0.69～0.71 | 0.60～0.78(○) | 1460 | 1450(○) | × | 0 |
| 比較例3 | 1000 | 68.6 | 0.2 | 接合不可(×) | 0.67～0.72 | 0.62～0.79(○) | 1450 | 1450(○) | × | 0 |
| 比較例4 | 800 | 68.6 | 0.2 | 接合不可(×) | 0.69～0.72 | 0.62～0.78(○) | 1410 | 1420(○) | × | 0 |
| 比較例5 | 1260 | 68.6 | 0.2 | 接合可(○) | 6.0～7.0 | 7.0～9.1(×) | 900 | 880(○) | × | 0 |
| 比較例6 | 1260 | 24.5 | 0.2 | 接合可(○) | 6.0～7.0 | 7.0～9.0(×) | 890 | 890(○) | × | 0 |

【0067】

< 評価 >

(半値幅)

表1の半値幅は、グラファイト基材2(接合前)及び接合した結合体3(接合後)の反対面2B面内の5点を株式会社リガク製X線回折装置RINT-2200HL/PCを使用して測定した。

【0068】

スキャン角度11.5°~14.5°で、測定した時の(002)面の結晶ピークの半値幅の最小値~最大値表している。

【0069】

接合前後で、半値幅の変化が、10%以内なら合格とした。もともと5~10%のばら

10

20

30

40

50

つきがあるためである。変化がないものを合格とした。

【 0 0 7 0 】

(接合可否)

接合可否については製造完了後取り出し時の接合状態により判断した。取り出し時に乖離状態にあるものを不合格とし、それ以外の場合を合格とした。

【 0 0 7 1 】

(熱伝導率)

熱伝導率は、株式会社ベテル社製サーモウエーブアナライザーでグラファイト 2 の反対面 2 B 面を測定した。接合前と接合後とで測定した。

【 0 0 7 2 】

接合前後で、熱伝導率の変化が、5 % 以内なら合格とした。もともと 5 % のばらつきがあるためである。変化がないものを合格とした。

【 0 0 7 3 】

< 結果 >

(加熱温度)

表 1 の (実施例 1) ~ (実施例 5) の結果より、加熱温度が 1 2 6 0 以上の場合、プレス圧力が 2 4 . 5 M P a ~ 6 8 . 6 M P a の範囲で接合可能で、更に半値幅の大きな変化が無くグラファイト 2 の持つ高い結晶性が維持された。

【 0 0 7 4 】

一方、(比較例 1) ~ (比較例 4) の結果より、加熱温度が 1 1 5 0 ~ 8 0 0 の範囲ではプレス圧力が 6 8 . 6 M P a でも接合されなかった。

【 0 0 7 5 】

(酸素)

総合合否判定で合格した (実施例 1) ~ (実施例 8) については、界面の中間層 3 に酸素原子の存在が確認された。酸素濃度は、0 . 5 a t m % から 5 a t m % がよい。さらに、0 . 7 a t m % から 4 a t m % が好ましい。

【 0 0 7 6 】

(半値幅)

一方、(比較例 5) 及び (比較例 6) に示すとおり、半値幅が大きく結晶性の悪いグラファイト 2 を用いて、実施例 1 および実施例 3 と同じ製造条件で作製した場合、グラファイト 2 とシリコン 1 の接合は確認された。しかし、半値幅は大きく低下し、さらなる結晶性の悪化が見られた。

【 0 0 7 7 】

これは、グラファイト 2 の結晶性が悪く、元素の拡散が激しく、界面がみだれたためと考えられる。

【 0 0 7 8 】

グラファイト 2 の半値幅は、少なくとも 6 . 0 ° より小さい方がよい。更に好ましくは、1 . 3 5 ° (実施例 5) 以下である。

【 0 0 7 9 】

6 . 0 ° 以上であると、炭素の配列の規則性がみだれていて、グラファイト 2 とシリコン 1 との入り混じりがまったく生じない。

【 0 0 8 0 】

1 . 3 5 ° を超えると、炭素の配列の規則性が低く、グラファイト 2 とシリコン 1 との入り混じりが十分でない。

【 0 0 8 1 】

(熱伝導率)

実施例 1 ~ 実施例 6 、及び比較例 1 ~ 比較例 6 の測定結果が示すとおり、グラファイト 2 の持つ熱伝導率は、これらの例に示したいずれの製造工程の前後においても有意な変化は無い。

【 0 0 8 2 】

10

20

30

40

50

また、この製造工程前後の熱伝導率の変化幅は、実施例 1 ~ 実施例 6 におけるものと、比較例 1 ~ 比較例 6 におけるものを比較しても大きな有意差が無い。

【 0 0 8 3 】

(総合評価)

グラファイト 2 の X 線回折での (0 0 2) 面のピークの半値幅品質を維持し、且つ熱伝導率も維持するものは実施例 1 ~ 6 だけである。

【 0 0 8 4 】

< 変形例 >

(多数個積層)

実施例 1 から実施例 6 で製造されたグラファイト 2 とシリコン 1 が接合した結合体を複数積層した後に、本実施例 1 ~ 実施例 6 で説明した製造方法に従って処理することにより、複数の結合体を接合することが可能である。積層は、結合体 6 のシリコン 1 の接合面 1 A 同士、或いは、シリコン 1 の接合面 1 A とグラファイト 2 の接合面 2 A とを対向して積層することが望ましい。

【 0 0 8 5 】

(被覆層)

本実施の形態のグラファイトとシリコンが接合した結合体 6 は、グラファイト 2 の反対面 2 B とシリコン 1 の反対面 1 B に金属層、高分子樹脂層が形成されていてもよい。

【 0 0 8 6 】

例えば、実施例 3 で製造したグラファイト 2 とシリコン 1 が接合した結合体 6 を使用して、結合体 6 のグラファイト 2 側の反対面 2 B にポリパラキシリレンの高分子樹脂層を形成することも可能である。これによりグラファイト 2 の反対面 2 B の電気絶縁が可能になる。具体的には、ジパラキシリレンを原料として熱分解重合によりグラファイト 2 の反対面 2 B にポリパラキシリレンの高分子樹脂膜を成膜する。成膜されるポリパラキシリレンの膜厚は成膜の時間に依存するが、数 μm から数十 μm までの膜厚で電氣的な絶縁が可能になる。

【 0 0 8 7 】

また、例えば、実施例 3 で製造したグラファイト 2 とシリコン 1 が接合した結合体 6 のグラファイト 2 側の反対面 2 B には、チタン層を形成することも可能である。具体的には、チタンを原料として蒸着により成膜する方法やチタンターゲットを使用してスパッタにより成膜する方法があるが、いずれの方法でもグラファイト 2 の反対面 2 B に容易に成膜が可能である。これにより他の金属との密着が容易になり、特にニッケルや銅等の回路基板や半導体装置内で使用される金属と密着可能になり、回路基板の半導体装置の熱拡散層として導入が可能になる。

【 0 0 8 8 】

(全体として)

なお、シリコン 1 は、単結晶がよく、グラファイト 2 は、不純物の少ない純度の高いものがよい。結果、中間層 3 は、シリコン、炭素、酸素以外には、不可避の元素のみ含むのが好ましい。

【 産業上の利用可能性 】

【 0 0 8 9 】

本実施の形態の結合体は、放射線モノクロメータとして利用できる。また、半導体装置や回路基板の放熱用途にも適用できる。

【 符号の説明 】

【 0 0 9 0 】

1 シリコン

1 A 接合面

1 B 反対面

2 グラファイト

2 A 接合面

10

20

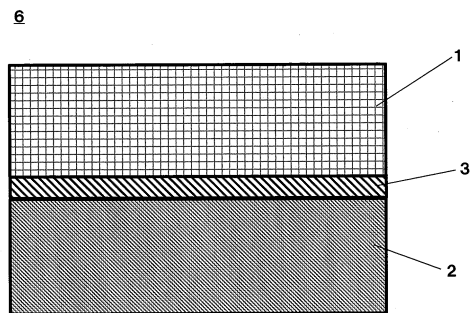
30

40

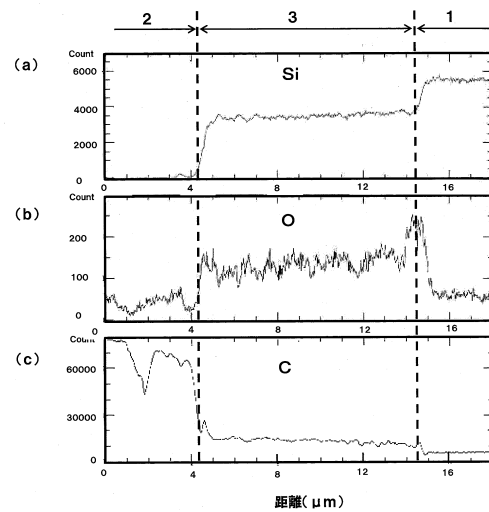
50

- 2 B 反対面
- 3 中間層
- 4 積層体
- 5 スペースー
- 6 結合体

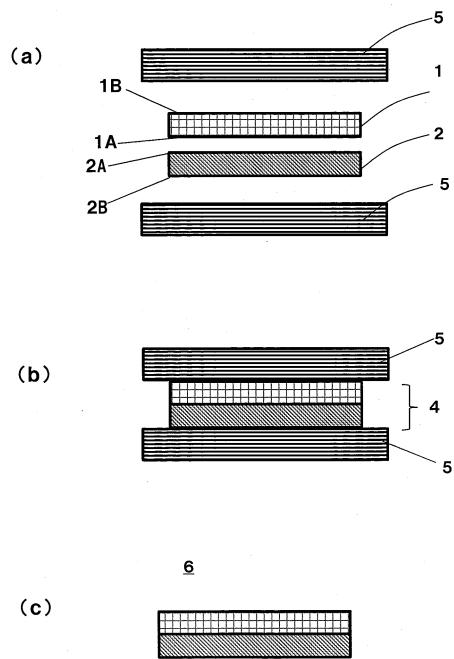
【図 1】



【図 2】



【図 3】



フロントページの続き

- (72)発明者 北浦 秀敏
大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 パナソニック株式会社内
- (72)発明者 田中 篤志
大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 パナソニック株式会社内
- (72)発明者 中谷 公明
大阪府門真市大字門真 1 0 0 6 番地 パナソニック株式会社内
- (72)発明者 ヘンリック・ローニー
スイス、ツェーハー - 1 0 1 5 ローザンヌ、ペアシュ・デ 2 ・ 4 5 5、スタシオン 3、スイス連邦
工科大学ローザンヌ校内

審査官 加藤 芳健

- (56)参考文献 特開 2 0 1 1 - 9 2 8 1 (J P , A)
特開 2 0 0 8 - 2 3 5 5 2 0 (J P , A)
特開昭 6 3 - 1 1 5 0 9 (J P , A)

- (58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)
- | | |
|---------|-----------|
| H 0 1 L | 2 1 / 0 2 |
| C 3 0 B | 2 9 / 0 6 |
| C 3 0 B | 3 3 / 0 6 |