

(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
2021年9月30日(30.09.2021)



(10) 国際公開番号

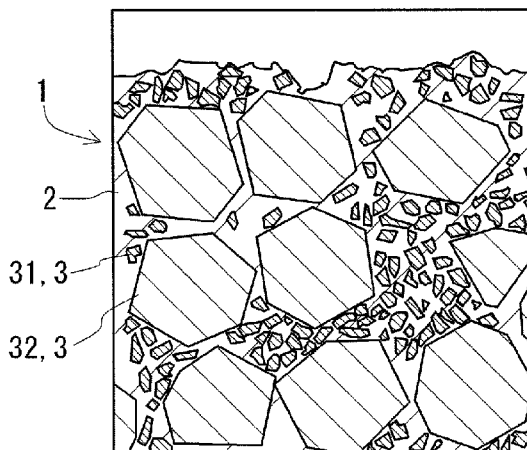
WO 2021/192916 A1

- (51) 国際特許分類:
C22C 9/00 (2006.01) C22C 26/00 (2006.01) [JP/JP]; 〒1050014 東京都港区芝一丁目1番11号 Tokyo (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2021/008634 (72) 発明者: 松儀 亮太 (MATSUGI, Ryota); 〒5410041 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号 住友電気工業株式会社内 Osaka (JP). 岩山 功(IWAYAMA, Isao); 〒5410041 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号 住友電気工業株式会社内 Osaka (JP). 西水 貴洋(NISHIMIZU, Takahiro); 〒9980114 山形県酒田市十里塚字村東山398番15 株式会社アライドマテリアル内 Yamagata (JP). 曾田 智恵子(SOTA, Chieko); 〒9318543 富山県富山市岩瀬古志町2番地 株式会社アライドマテリアル内 Toyama (JP).
- (22) 国際出願日: 2021年3月5日(05.03.2021)
- (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 2020-053219 2020年3月24日(24.03.2020) JP
- (71) 出願人: 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). 株式会社アライドマテリアル (A.L.M.T. CORP.) (74) 代理人: 特許業務法人深見特許事務所(FUKAMI PATENT OFFICE, P.C.); 〒5300005 大阪府大

(54) Title: COMPOSITE MATERIAL AND HEAT DISSIPATION MEMBER

(54) 発明の名称: 複合材料、及び放熱部材

FIG.1



(57) Abstract: A composite material comprising a metal phase and a plurality of particles dispersed in the metal phase. The plurality of particles are a carbon-based material, the metal phase includes a main element, a first element, and a second element, and a particle coating layer on each of the plurality of particles is a carbide of the second element. The main element is copper, the first element is a metal element having lower surface tension than copper, and the second element is at least one selected from the group consisting of beryllium, silicon, titanium, chromium, zirconium, niobium, hafnium, and tantalum. The content of the first element with respect to the total of the main element, the first element, and the second element is 0.25-10.0 at%, and the content of the second element with respect to the total of the main element, the first element, and the second element is 1.5-14.0 at%.



WO 2021/192916 A1

阪市北区中之島三丁目2番4号 中之島フェスティバルタワー・ウエスト 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, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 一 国際調査報告(条約第21条(3))

(57) 要約: 金属相と、前記金属相に分散する複数の粒子とを備える複合材料である。前記複数の粒子は、炭素系材料であり、前記金属相は、主元素と、第一元素と、第二元素とを含み、前記複数の粒子のそれぞれの粒子の被覆層は、前記第二元素の炭化物である。前記主元素は、銅であり、前記第一元素は、銅よりも低い表面張力を有する金属元素であり、前記第二元素は、ベリリウム、シリコン、チタン、クロム、ジルコニウム、ニオブ、ハフニウム、及びタンタルからなる群より選択される少なくとも1種である。前記主元素と前記第一元素と前記第二元素の合計に占める前記第一元素の含有量が0.25原子%以上10.0原子%以下、前記主元素と前記第一元素と前記第二元素の合計に占める前記第二元素の含有量が1.5原子%以上14.0原子%以下である。

明 細 書

発明の名称： 複合材料、及び放熱部材

技術分野

[0001] 本開示は、複合材料、及び放熱部材に関する。本出願は、2020年3月24日に出願した日本特許出願である特願2020-053219号に基づく優先権を主張する。当該日本特許出願に記載された全ての記載内容は、参照によって本明細書に援用される。

背景技術

[0002] 半導体素子の放熱部材として、ヒートスプレッドおよびヒートシンクなどが挙げられる。その放熱部材に適した材料として、ダイヤモンドなどの炭素系材料と、金属との複合材料が知られている。複合材料は、金属相と、その金属相に分散する複数の粒子とを備える。その複数の粒子のそれぞれの粒子（各々の粒子）は、熱伝導性に優れるダイヤモンドなどの炭素系材料からなる。各々の粒子の表面には炭化物からなる被覆層が備わる。被覆層は、粒子と金属相との濡れ性を改善し、複合材料にボイドが形成されることを抑制する。

[0003] 上記複合材料の金属相としては、例えば特許文献1から特許文献3に記載される金属相が挙げられる。特許文献1の複合材料における金属相は、銀（Ag）と銅（Cu）との共晶合金からなる。共晶合金は、約72質量%のAgを含むため、Agを主成分とする合金であるといえる。特許文献2の複合材料における金属相は、Agを主成分とする。特許文献3の複合材料における金属相はCuを主成分とする。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2004-197153号公報
特許文献2：国際公開第2016/035795号
特許文献3：国際公開第2019/163721号

発明の概要

- [0005] 本開示の複合材料は、
金属相と、
前記金属相に分散する複数の粒子とを備え、
前記複数の粒子のそれぞれの粒子（各々の粒子）は、前記それぞれの粒子（前記各々の粒子）の表面を覆う被覆層を有する複合材料であって、
前記複数の粒子は、炭素系材料であり、
前記金属相は、主元素と、第一元素と、第二元素とを含み、
前記被覆層は、前記第二元素の炭化物であり、
前記主元素は、銅であり、
前記第一元素は、銅よりも低い表面張力を有する金属元素であり、
前記第二元素は、ベリリウム、シリコン、チタン、クロム、ジルコニウム、ニオブ、ハフニウム、及びタンタルからなる群より選択される少なくとも1種であり、
前記主元素と前記第一元素と前記第二元素の合計に占める前記第一元素の含有量が0.25原子%以上10.0原子%以下、
前記主元素と前記第一元素と前記第二元素の合計に占める前記第二元素の含有量が1.5原子%以上14.0原子%以下である。

- [0006] 本開示の放熱部材は、
本開示の複合材料からなる基材と、
前記基材の表面の少なくとも一部を覆う銅層とを備える。

図面の簡単な説明

- [0007] [図1]図1は、ある実施形態に係る複合材料の断面の模式図である。
[図2]図2は、図1に示される複合材料に含まれる粒子の表面の模式図である。
。
[図3]図3は、別の実施形態に係る放熱部材の概略構成図である。

発明を実施するための形態

- [0008] [本開示が解決しようとする課題]

Cuの線膨張係数の方がAgの線膨張係数よりも低いため、複合材料の線膨張係数を下げるという観点からすれば、複合材料の金属相の主成分は、AgよりもCuであることが好ましい。また、Cuは、Agよりも軽量であるという利点、及びAgよりも安価であるという利点がある。従って、Cuを主成分とする金属相を備える複合材料が望まれている。

[0009] ここで、放熱部材に用いられる複合材料には、熱伝導性に優れることに加え、高温での耐熱性が求められる場合がある。例えば、複合材料からなる基板にセラミックス製の棒状部材などをろう付けする場合、Ag-Cu合金のろう材が用いられる。このろう材を溶融させる温度において、複合材料が変形しないことが求められる。この観点からすれば、Ag-Cu合金を主成分とする金属相を有する特許文献1の複合材料は耐熱性の点で改善の余地がある。金属相を構成するAg-Cu合金の融点がろう材の融点に近いからである。

[0010] 一方、Cuの融点は、Ag-Cu合金よりも高いため、Cuを主成分とする金属相を有する複合材料は耐熱性に優れる。しかし、粒子と金属相との濡れ性を改善する被覆層を有する炭素系材料の粒子であっても、炭素系材料の粒子とCuとの濡れ性が芳しくない。そのため、炭素系材料からなる複数の粒子とCuとが複合される際に、複合材料に複数のボイドが形成され易い。それらのボイドが複合材料の熱伝導性を低下させるおそれがある。

[0011] そこで、本開示は、熱伝導性及び耐熱性に優れる複合材料を提供することを目的の一つとする。また、本開示は、放熱性及び耐熱性に優れる放熱部材を提供することを別の目的の一つとする。

[本開示の効果]

[0012] 本開示の複合材料は、熱伝導性および耐熱性に優れる。本開示の放熱部材は、放熱性及び耐熱性に優れる。

[0013] [本開示の実施形態の説明]

複合材料は、炭素系材料の複数の粒子と、金属相の原料となる溶湯とを複合化させることで得られる。本発明者らは、Cuを主成分とする金属相を備

える複合材料において、炭素系材料の粒子と金属相との濡れ性を改善させる構成を鋭意検討した。その結果、本発明者らは、金属相の溶湯にCuよりも表面張力が小さい元素を含有させることで、炭素系材料の粒子と金属相との濡れ性を改善できることを見出した。Cuよりも表面張力が小さい第一元素を含む溶湯では、粒子に接する溶湯の表面に第一元素が濃化し易い。この第一元素が、炭素系材料の粒子と溶湯との濡れ性を改善すると考えられる。この知見に基づき、本発明者らは本実施形態に係る複合材料を完成させた。最初に本開示の実施態様を列記して説明する。ここで、本明細書では、炭素系材料の複数の粒子の集合体を『炭素系粉末』と呼ぶ。

- [0014] < 1 > 本実施形態に係る複合材料は、
- 金属相と、
 - 前記金属相に分散する複数の粒子とを備え、
 - 前記複数の粒子のそれぞれの粒子は、前記それぞれの粒子の表面を覆う被覆層を有する複合材料であって、
 - 前記複数の粒子は、炭素系材料であり、
 - 前記金属相は、主元素と、第一元素と、第二元素とを含み、
 - 前記被覆層は、前記第二元素の炭化物であり、
 - 前記主元素は、銅であり、
 - 前記第一元素は、銅よりも低い表面張力を有する金属元素であり、
 - 前記第二元素は、ベリリウム、シリコン、チタン、クロム、ジルコニウム、ニオブ、ハフニウム、及びタンタルからなる群より選択される少なくとも1種であり、
 - 前記主元素と前記第一元素と前記第二元素の合計に占める前記第一元素の含有量が0.25原子%以上10.0原子%以下、
 - 前記主元素と前記第一元素と前記第二元素の合計に占める前記第二元素の含有量が1.5原子%以上14.0原子%以下である。
- [0015] ここで、主元素とは、金属相の主成分である金属元素、つまり金属相の過半を占める金属元素のことである。

[0016] 上記< 1 >の複合材料は、以下の構成を含む。

『 金属相と、

前記金属相に分散する複数の粒子とを備え、

前記複数の粒子のそれぞれの粒子は、前記それぞれの粒子の表面を覆う被覆層を有する複合材料であって、

前記それぞれの粒子は、炭素系材料であり、

炭素を除く成分は、

第一元素を0.25原子%以上10.0原子%以下、

第二元素を1.5原子%以上14.0原子%以下含み、

残部は、銅及び不可避免的不純物であり、

前記第一元素は、銅よりも低い表面張力を有する金属元素であり、

前記第二元素は、ベリリウム、シリコン、チタン、クロム、ジルコニウム、ニオブ、ハフニウム、及びタンタルからなる群より選択される少なくとも1種である複合材料。』

[0017] 本実施形態に係る複合材料は熱伝導性に優れる。

ダイヤモンドに代表される炭素系材料の粒子は熱伝導性に優れる。また、金属相の主成分であるCuは熱伝導性に優れる。従って、本実施形態に係る複合材料は熱伝導性に優れる。

更に、本実施形態に係る複合材料における複数の粒子のそれぞれの粒子（各々の粒子）の表面には、第二元素の炭化物からなる被覆層が設けられている。この被覆層は、複合材料の作製時に、粒子と金属相の溶湯との濡れ性を改善する。また、複合材料における金属相には、Cuよりも表面張力が小さい第一元素が含まれている。この第一元素は、複合材料の作製時に、金属相の溶湯の表面に濃化し、金属相の溶湯と粒子との濡れ性を改善する。被覆層による濡れ性の改善と、第一元素による濡れ性の改善とによって、複合材料にボイドが形成され難い。従って、本実施形態に係る複合材料は熱伝導性に優れる。

[0018] 本実施形態に係る複合材料は耐熱性に優れる。

本実施形態に係る複合材料における金属相はCuを主成分とする。Cuは、Ag合金よりも高融点である。そのため、複合材料とセラミックスなどがロウ付けされる際、ロウ材の融点付近の温度において複合材料が変形し難い。

[0019] 本実施形態に係る複合材料は線膨張係数が小さい。

Cuの線膨張係数はAgの線膨張係数よりも小さい。そのため、Cuを主成分とする金属相を備える本実施形態の複合材料の線膨張係数は、Agを主成分とする金属相を備える複合材料の線膨張係数よりも低くなり易い。Cuを主成分とする金属相を備える複合材料の線膨張係数は、半導体素子などの発熱体の線膨張係数に近い。そのため、線膨張係数の相違に起因する複合材料と発熱体との剥離が抑制され易い。

[0020] 本実施形態に係る複合材料は安価で軽量である。

本実施形態に係る複合材料における金属相は、主元素としてCuを含む。Cuは、Agに比べて、軽量で安価である。そのため、本開示の複合材料は、Agを主成分とする複合材料よりも軽量で安価である。

[0021] <2>本実施形態に係る複合材料の一形態として、

前記炭素系材料はダイヤモンドである形態が挙げられる。

[0022] ダイヤモンドは、極めて熱伝導性に優れる。そのため、金属相に分散される粒子がダイヤモンドであれば、複合材料の熱伝導率が向上する。また、種々の粒径を有するダイヤモンド粉末が市販されており、ダイヤモンド粉末は容易に入手可能である。

[0023] <3>本実施形態に係る複合材料の一形態として、

前記第一元素は、銀、マグネシウム、アルミニウム、スズ、亜鉛、及びマンガンからなる群より選択される少なくとも1種である形態が挙げられる。

[0024] Ag、マグネシウム(Mg)、アルミニウム(Al)、スズ(Sn)、亜鉛(Zn)、及びマンガン(Mn)の溶湯の表面張力は、Cuの溶湯の表面張力よりも小さい。また、上記<3>に列挙される金属は容易に入手可能である。

- [0025] <4>上記<3>に記載の複合材料の一形態として、
前記第一元素は銀である形態が挙げられる。
- [0026] A g は、被覆層を有する粒子との濡れ性に優れる。従って、金属相に含まれる第一元素として A g が好適である。
- [0027] <5>本実施形態に係る複合材料の一形態として、
前記第二元素はチタンである形態が挙げられる。
- [0028] 第二元素は、ベリリウム (B e)、シリコン (S i)、チタン (T i)、クロム (C r)、ジルコニウム (Z r)、ニオブ (N b)、ハフニウム (H f)、及びタンタル (T a) からなる群から選択される少なくとも 1 種である。これら第二元素の候補のうち、T i は容易に入手可能である。また、炭化チタンは、炭素系材料からなる粒子に対する金属相の溶湯の濡れ性を向上させ易い。
- [0029] <6>本実施形態に係る複合材料の一形態として、
前記複数の粒子の含有量は、40 体積%以上 80 体積%以下である形態が挙げられる。
- [0030] 金属相よりも熱伝導性に優れる炭素系粉末の含有量が上記範囲にあれば、熱伝導性に優れる複合材料が得られる。また、複合材料の製造時において炭素系粉末が多過ぎないことで、金属相の溶湯が炭素系粉末の粒子間に溶浸し易い。そのため、ボイドが少なく、熱伝導性に優れた複合材料が得られる。
- [0031] <7>本実施形態に係る複合材料の一形態として、
前記複数の粒子は、複数の微粒と複数の粗粒を備え、
前記複数の微粒のそれぞれの粒径は 30 μ m 未満であり、
前記複数の粗粒のそれぞれの粒径は 30 μ m 以上であり、
前記複数の粒子の全ての粒子に占める前記複数の微粒の体積割合は、20 体積%以上 50 体積%以下である形態が挙げられる。
- [0032] 炭素系粉末が、複数の微粒と複数の粗粒との混合体であれば、複合材料における炭素系粉末の含有量が高くなり易い。特に、複数の粒子の全ての粒子に占める複数の微粒の体積割合が上記範囲であれば、複合材料における炭素

系粉末の含有量が高くなり易い。

[0033] <8>本実施形態に係る放熱部材は、

上記<1>から<7>のいずれかに記載の複合材料からなる基材と、
前記基材の表面の少なくとも一部を覆う銅層とを備える。

[0034] 本実施形態に係る放熱部材は、放熱性に優れる。

本実施形態に係る放熱部材に備わる基材は、上記実施形態に係る複合材料からなる。複合材料に含まれる炭素系材料の粒子と、金属相の主成分であるCuは熱伝導性に優れる。従って、上記実施形態に係る複合材料からなる基材を備える本実施形態に係る放熱部材は、半導体素子などの発熱体の熱を効果的に放熱させられる。

[0035] 本実施形態に係る放熱部材は、半導体素子の放熱部材として好適である。

本実施形態に係る放熱部材に備わる複合材料の基板は、炭素系物質とCuとの中間の線膨張係数を有する。この基板の線膨張係数は、半導体素子の線膨張係数、及び半導体素子の絶縁基板などの線膨張係数に近い。そのため、半導体素子を使用される際、線膨張係数の相違に起因する半導体素子と放熱部材との剥離が抑制される。

[0036] 本実施形態に係る放熱部材は、半導体素子などの発熱体に接合し易い。

本実施形態に係る放熱部材は、基材の表面の少なくとも一部に銅層を備える。銅層の主成分である銅原子は、基材の金属相の主成分である銅原子と結合し易いため、銅層は、複合材料の基材に接合し易い。また、銅層は、基材の表面を平滑にする。この銅層は、半導体素子などの発熱体にも接合し易い。そのため、放熱部材と発熱体とがはんだ接合される際、放熱部材と発熱体との間にボイドが形成され難い。従って、発熱体に対して銅層が配置されることで、発熱体を放熱部材に対して良好にはんだ接合することが出来る。

[0037] [本開示の実施形態の詳細]

以下、本開示の実施形態に係る複合材料、及び放熱部材を図1から図3に基づいて説明する。なお、本発明は、実施形態の例示に限定されるものではなく、請求の範囲によって示され、請求の範囲と均等の意味及び範囲内での

全ての変更が含まれることが意図される。

[0038] <実施形態 1 >

《複合材料》

本実施形態の複合材料 1 は、金属相 2 と、金属相 2 に分散する複数の粒子 3 とを備える。複数の粒子 3 のそれぞれの粒子 3（各々の粒子 3）の表面には、図 2 に示されるように、被覆層 4 が備わっている。以下、複合材料 1 の各構成を詳細に説明する。

[0039] （金属相）

金属相 2 は、主元素として Cu を含む。主元素とは、金属相 2 の主成分である金属元素、つまり金属相 2 の過半を占める金属元素のことである。Cu の熱伝導率は約 $400 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ である。従って、Cu を主成分とする金属相 2 は、複合材料 1 の熱伝導率の向上に寄与する。

[0040] 金属相 2 は、Cu の他に、第一元素と第二元素を含む。第一元素は、Cu よりも低い表面張力を有する金属元素である。つまり、第一元素の溶湯の表面張力が、Cu の溶湯の表面張力よりも低い。金属元素の表面張力は公知である。第一元素の具体例は、Ag、Mg、Al、Sn、Zn、及び Mn からなる群から選択される少なくとも 1 種が挙げられる。第一元素は、複合材料 1 の製造時において、金属相 2 の溶湯の表面に濃化する。溶湯の表面に濃化した第一元素は、粒子 3 に接する溶湯と粒子 3 との濡れ性を改善する。

[0041] 第二元素は、Be、Si、Ti、Cr、Zr、Nb、Hf、及び Ta からなる群より選択される少なくとも 1 種である。第二元素は、複合材料 1 の作製時に複合材料 1 の原料に所定量含まれている。原料中の第二元素は、そのほとんどが粒子 3 の被覆層 4 の形成に消費される。従って、金属相 2 に含まれる第二元素はごく微量である。

[0042] 複合材料 1 全体における第一元素と第二元素の含有量については後述する。

[0043] （粒子）

・材質

粒子3は炭素系材料である。炭素系材料としては、ダイヤモンド、グラファイト、カーボンナノチューブ、及び炭素繊維からなる群から選択される少なくとも1種であることが好ましい。ダイヤモンドは、熱伝導に関する異方性を実質的に有しておらず、代表的には1000W/m・K以上といった高い熱伝導率を有する。また、種々の粒径のダイヤモンド粉末が市販されており、ダイヤモンド粉末は入手し易い。これらの点で、ダイヤモンドを含む複合材料1は、放熱部材の素材に利用し易い上に、製造性にも優れる。

[0044] グラファイトは柔らかく、加工性に優れる。そのため、グラファイトを含む複合材料1は加工性に優れる。カーボンナノチューブにおける軸方向に沿った熱伝導率は、ダイヤモンドにおける軸方向に沿った熱伝導率よりも高い場合がある。そのため、カーボンナノチューブを含む複合材料1は、熱伝導性により優れると期待される。炭素繊維は機械的強度に優れる。そのため、炭素繊維を含む複合材料1は、機械的強度に優れる。

[0045] 種類の異なる複数の炭素系材料を含む複合材料1は、各炭素系材料がもたらす効果を併せ持つ。例えば、炭素系材料として、主としてダイヤモンドを含み、一部にグラファイトを含む複合材料1は、熱伝導性に優れる上に、切削等の加工も行い易いと期待される。

[0046] ・含有量

複合材料1における全ての粒子3の含有量、即ち炭素系粉末の含有量は、例えば40体積%以上85体積%以下であることが挙げられる。上記含有量が40体積%以上であれば、熱伝導性に優れる粒子3が複合材料1に多く含まれる。そのため、複合材料1の熱伝導率が向上する。また、複合材料1の線膨張係数がCuよりも小さくなり易い。上記含有量が85体積%以下であれば、複合材料1の作製時に粒子3間の隙間に金属相2が行き渡り易くなる。粒子3の含有量の下限値は、例えば45体積%、更に50体積%、55体積%、60体積%であってもよい。また、上記含有量の上限値は、例えば80体積%、更に75体積%以下でもよい。

[0047] 複合材料1における複数の粒子3の含有量は、例えば以下のようにして求

められる。まず、複合材料1の体積をアルキメデス法によって求める。次いで、複合材料1を希硝酸で溶解させ、炭素系粉末を分離する。炭素系粉末の質量を測定し、炭素系粉末を構成する炭素系材料の理論密度に基づいて、炭素系粉末の体積を計算により求める。そして、炭素系粉末の体積を複合材料1の体積で除することで、複合材料1における複数の粒子3の含有量が求められる。

[0048] ・ 大きさ

複合材料1における粒子3の平均粒径は、例えば10 μm 以上120 μm 以下であることが好ましい。粒子3の平均粒径は、15 μm 以上、更には20 μm 以上でもよい。また、上記平均粒径は100 μm 以下、更には90 μm 以下、80 μm 以下、70 μm 以下、60 μm 以下でもよい。

[0049] 粒子3の平均粒径は、複合材料1の断面を観察することによって得られる円相当径から求められる。具体的には、複合材料1の断面においてk個以上の粒子3について円相当径を求める。それらk個の円相当径の平均が粒子3の平均粒径である。kは10以上である。kは20以上であることが好ましく、50以上であることがより好ましい。ここで、円相当径を求めるには、まず複合材料1の断面のSEM (Scanning Electron Microscope) 画像を取得し、二値化処理によって粒子3の断面積を求める。その断面積と同じ断面積を有する円の直径が、円相当径である。二値化処理のしきい値は、各々の粒子3を明確に特定できるように調整される。

[0050] 炭素系粉末は、複数の微粒31と、複数の粗粒32との混合体であっても良い。微細な粒子と粗大な粒子とを含む炭素系粉末を用いて複合材料1が作製されることで、相対密度が高い複合材料1が得られ易い。

[0051] 本明細書における微粒31は、複合材料1の断面を観察することによって得られる円相当径が30 μm 未満の粒子3である。微粒31の平均粒径は10 μm 以上25 μm 以下であることが好ましい。平均粒径は、n個の微粒31の円相当径の平均である。nは10以上である。nは、20以上であるこ

とが好ましく、50以上であることがより好ましい。

[0052] 一方、本明細書における粗粒32は、複合材料1の断面を観察することによって得られる円相当径が30 μm 以上の粒子3である。粗粒32の平均粒径は80 μm 以上120 μm 以下であることが好ましい。平均粒径は、m個の粗粒32の円相当径の平均である。mは10以上である。mは、20以上であることが好ましく、50以上であることがより好ましい。

[0053] 複数の粒子3の全ての粒子3に占める複数の微粒31の体積割合は、20体積%以上50体積%以下であることが好ましい。微粒31と粗粒32の体積割合が上記範囲であれば、近接する粗粒32の間に十分な数の微粒31が配置され易い。その結果、複合材料1に占める粒子3の体積が大きくなり、複合材料1の熱伝導率が高くなり易い。全ての粒子3に占める微粒31の体積割合は、より好ましくは25体積%以上40体積%以下である。

[0054] (被覆層)

被覆層4は、複数の粒子3の各々の粒子3の表面の少なくとも一部、代表的には実質的に表面全体を覆う。この被覆層4は、第二元素の炭化物である。被覆層4は、複合材料1の作製時において、粒子3と金属相2の溶湯との濡れ性を改善する。特に炭化チタンからなる被覆層4は、粒子3と金属相2の溶湯との濡れ性の向上に寄与する。

[0055] 被覆層4の熱伝導性は、Cu及び炭素系材料よりも低い。従って、被覆層4は、上記濡れ性の改善効果を得られる範囲で薄いことが好ましい。被覆層4の厚さは、複合材料1の作製時における第二元素の添加量などによって調整される。上記添加量が少ないほど被覆層4の厚さが薄くなる傾向にある。

[0056] (複合材料における第一元素の含有量)

複合材料1における第一元素の含有量は、0.25原子%以上10.0原子%以下である。第一元素の含有量が0.25原子%以上であれば、第一元素による濡れ性の向上効果を十分に得られる。そのため、第一元素の含有量が0.25原子%以上である複合材料1は、熱伝導性に優れる。第一元素の含有量が10.0原子%以下であれば、複合材料1の耐熱性の低下が抑制さ

れる。本実施形態の複合材料1における第一元素の含有量は、より好ましくは、0.5原子%以上4.5原子%以下である。

[0057] 本明細書では、複合材料1における第一元素の含有量は、以下の式によって求めることとする。

$$\{ (\text{第一元素の原子数}) / (\text{主元素の原子数} + \text{第一元素の原子数} + \text{第二元素の原子数}) \} \times 100$$

[0058] 複合材料1における各元素の原子数は、以下のように測定される。まず、希硝酸によって複合材料1を溶解させ、溶液をろ過して、粒子3とそれ以外に分離する。希硝酸の濃度は約70%である。次いで、ICP発光分析(Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry)によって、粒子3以外の金属相2と被覆層4が含まれる溶解液を分析する。そして、分析によって得られた各元素の原子数を上記の式に代入し、複合材料1における第一元素の含有量(原子%)を求める。

[0059] (複合材料における第二元素の含有量)

複合材料1における第二元素の含有量は、1.5原子%以上14.0原子%以下である。第二元素の含有量が1.5原子%以上であれば、第二元素の炭化物である被覆層4が各々の粒子3の表面に十分に存在しているといえる。被覆層4は、金属相2と粒子3との濡れ性を改善するものであるため、第二元素の含有量が1.5原子%以上である複合材料1は熱伝導性に優れる。一方、第二元素の含有量が14.0原子%以下であれば、各々の粒子3の表面に存在する被覆層4が厚くなり過ぎていないといえる。従って、第二元素の含有量が14.0原子%以下である複合材料1は熱伝導性に優れる。より好ましい第二元素の含有量は、2.5原子%以上10.0原子%以下である。

[0060] 本明細書では、複合材料1における第二元素の含有量は、以下の式によって求めることとする。各元素の原子数の求め方は、第一元素の含有量を求める際の各元素の原子数の求め方と同じである。

{ (第二元素の原子数) / (主元素の原子数 + 第一元素の原子数 + 第二元素の原子数) } × 100

[0061] (その他)

複合材料1は、複合材料1の熱伝導性及び耐熱性が悪化しない範囲で第三元素を含有していても良い。第三元素は、硫黄(S)、リン(P)、ニッケル(Ni)、コバルト(Co)、及び鉄(Fe)などである。これらの元素は、複合材料1の作製時に混入する可能性のある元素である。本明細書では、複合材料1における第三元素の含有量は、原子比で以下の式によって求めることとする。

{ (第三元素の原子数) / (主元素の原子数 + 第一元素の原子数 + 第二元素の原子数 + 第三元素の原子数) } × 100

[0062] 第三元素の含有量は、0原子%以上2.0原子%以下である。この含有量の第三元素であれば、複合材料1の熱伝導率及び耐熱性は悪化しない。第三元素を含めた本実施形態の複合材料は、以下のように規定することもできる。

『 金属相と、

前記金属相に分散する複数の粒子とを備え、

前記複数の粒子のそれぞれの粒子は、前記それぞれの粒子の表面を覆う被覆層を有する複合材料であって、

前記複数の粒子は、炭素系材料であり、

前記金属相は、主元素と、第一元素と、第二元素と、第三元素とを含み、

前記被覆層は、前記第二元素の炭化物であり、

前記主元素は、銅であり、

前記第一元素は、銅よりも低い表面張力を有する金属元素であり、

前記第二元素は、ベリリウム、シリコン、チタン、クロム、ジルコニウム、ニオブ、ハフニウム、及びタンタルからなる群より選択される少なくとも1種であり、

前記第三元素は、硫黄、リン、ニッケル、コバルト、及び鉄からなる群か

ら選択される少なくとも1種であり、

前記主元素と前記第一元素と前記第二元素と前記第三元素の合計に占める前記第一元素の含有量が0.25原子%以上10.0原子%以下、

前記主元素と前記第一元素と前記第二元素と前記第三元素の合計に占める前記第二元素の含有量が1.5原子%以上14.0原子%以下、

前記主元素と前記第一元素と前記第二元素と前記第三元素の合計に占める前記第三元素の含有量が0原子%以上2.0原子%以下である複合材料。』

[0063] ここで、上記かっこ書きの複合材料は以下の構成を含む。

『 金属相と、

前記金属相に分散する複数の粒子とを備え、

前記複数の粒子のそれぞれの粒子は、前記それぞれの粒子の表面を覆う被覆層を有する複合材料であって、

前記それぞれの粒子は、炭素系材料であり、

炭素を除く成分は、

第一元素を0.25原子%以上10.0原子%以下、

第二元素を1.5原子%以上14.0原子%以下、

第三元素を0原子%以上2.0原子%以下含み、

残部は、銅及び不可避免的不純物であり、

前記第一元素は、銅よりも低い表面張力を有する金属元素であり、

前記第二元素は、ベリリウム、シリコン、チタン、クロム、ジルコニウム、ニオブ、ハフニウム、及びタンタルからなる群より選択される少なくとも1種であり、

前記第三元素は、硫黄、リン、ニッケル、コバルト、及び鉄からなる群から選択される少なくとも1種である複合材料。』

[0064] (複合材料の熱伝導率)

本実施形態の複合材料1の熱伝導率は、例えば600W/m・K以上である。複合材料1の熱伝導率が高いほど、半導体素子などの放熱部材の材料として好ましい。従って、より好ましい複合材料1の熱伝導率は650W/m

・ K以上、 $660\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上、あるいは $700\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上である。

[0065] (複合材料の線膨張係数)

本実施形態の複合材料1は、上述のように炭素系物質とCuとの中間の線膨張係数を有する。定量的には、複合材料1の線膨張係数が $4\times 10^{-6}/\text{K}$ 以上 $15\times 10^{-6}/\text{K}$ 以下であることが挙げられる。複合材料1における粒子3の含有量が多いほど、複合材料1の線膨張係数は小さくなる傾向にある。粒子3の含有量が調整されることで、複合材料1の線膨張係数は $4.5\times 10^{-6}/\text{K}$ 以上 $13\times 10^{-6}/\text{K}$ 以下、あるいは $4.5\times 10^{-6}/\text{K}$ 以上 $10\times 10^{-6}/\text{K}$ 以下となり得る。複合材料1の線膨張係数と、発熱体の線膨張係数との差が小さくなれば、発熱体にロウ材などで接合された複合材料1が発熱体から剥離し難くなる。

[0066] (複合材料の相対密度)

本例の複合材料1では、金属相2と粒子3との濡れ性が良好である。従って、本例の複合材料1には気孔が少なく、複合材料1の相対密度が高い。本例の複合材料1の相対密度は、例えば90%以上であることが挙げられる。複合材料1の相対密度が高いほど、気孔に起因する複合材料1の熱伝導率の低下が生じ難い。そのため、複合材料1の相対密度は、好ましくは95%以上、更に96%以上、97%以上、98%以上、99%以上である。

[0067] 相対密度は、複合材料1の実際の密度を、複合材料1の理論密度で除した値である。複合材料1の実際の密度は、複合材料1の質量を体積で除することで求められる。複合材料1の体積は、アルキメデス法などによって求められる。一方、本明細書では、複合材料1の理論密度は、以下のステップ1からステップ5に従って求められる。

・ステップ1…アルキメデス法によって複合材料1の体積を求める。

・ステップ2…複合材料1に含まれる各元素の重量を求める。まず、複合材料1を希硝酸で溶解させ、複合材料1から分離した粒子3の重量、即ち炭素系粉末の重量を測定する。また、希硝酸の溶液に含まれる各元素の重量を求める。溶液に含まれる各元素の重量は、溶液をICP発光分析することで得

られた各元素の原子数から求める。

・ステップ3…ステップ2で求めた各元素の重量を、各元素の理論密度で除し、複合材料1における各元素の体積を求める。更に、各元素の体積に基づいて、複合材料1における各元素の体積比率を算出する。

・ステップ4…ステップ1で求めた複合材料1の体積を、ステップ3で求めた体積比率で満たすような各元素の体積を算出する。

・ステップ5…ステップ4で求めた各元素の体積に各元素の理論密度を乗じ、複合材料1における各元素の重量を算出する。各元素の重量の合計を、ステップ1で求めた複合材料1の体積で除した値を、複合材料1の理論密度とする。

[0068] (用途)

熱伝導性に優れる本実施形態の複合材料1は、放熱部材の素材として好適である。特に、半導体素子やその周辺部品との線膨張係数の整合性に優れる複合材料1は、半導体素子の放熱部材の素材として好適である。本実施形態の複合材料1からなる放熱部材を備える半導体装置として、例えば、LDMOS (Laterally Diffused Metal Oxide Semiconductor) などの高周波パワーデバイスが挙げられる。その他の半導体装置として、半導体レーザ装置、発光ダイオード装置、各種のコンピュータの中央処理装置 (Central Processing Unit)、グラフィックス プロセッシング ユニット (Graphics Processing Unit)、高電子移動形トランジスタ (HEMT)、チップセット、メモリーチップなどが挙げられる。

[0069] (効果)

本実施形態の複合材料1は、軽量で安価である。

複合材料1における金属相2はCuを主成分とする。Cuは、Agに比べて、軽量で安価である。そのため、本実施形態の複合材料1は、Agを主成分とする複合材料よりも軽量で安価である。

[0070] 本実施形態の複合材料1は、熱伝導性及び耐熱性に優れる。この効果につ

いては、後述する試験例 1, 2 において詳しく述べる。

[0071] 《複合材料の製造方法》

本実施形態の複合材料は、例えば以下に示される溶浸法によって得られる。

まず、炭素系粉末を含む原料粉末を成形型に充填する。原料粉末は、例えば炭素系粉末のみでも良いし、炭素系粉末と、被覆層 4 の原料となる第二元素を含む粉末との混合粉末でも良い。

[0072] 次に、原料粉末の上に、金属相 2 となる銅素材を配置する。銅素材は、粉末でも良いし、小切片でも良い。銅素材は、Cu と第一元素と第二元素とを含む。ここで、原料粉末と銅素材とを混合して成形型に充填しても良い。

[0073] 原料粉末と銅素材とが配置された成形型を加熱して、銅素材を溶融させる。その結果、原料粉末に銅素材の溶湯が溶浸され、原料粉末と銅素材の溶湯とが複合される。

[0074] 溶浸温度、即ち原料粉末と銅素材の加熱温度は、銅素材が溶融可能な温度である Cu の融点以上である。例えば溶浸温度は、1100℃以上、更には 1150℃以上である。但し、溶浸温度が高過ぎると、昇温過程で銅素材に含まれる Cu などが酸化され易い。従って、溶浸温度は 1300℃以下であることが好ましい。

[0075] 溶浸温度の保持時間は、複合材料 1 の大きさによって変化する。例えば、溶浸温度の保持時間は例えば、10分以上120分以下程度である。

[0076] 溶浸時の雰囲気は、1 Pa 以下の真空雰囲気、還元雰囲気、又は不活性雰囲気である。上記真空雰囲気、還元雰囲気又は不活性雰囲気とすることで、Cu などの酸化が低減される。真空雰囲気の圧力は 0.1 Pa 以下、更に 0.01 Pa 以下である。不活性雰囲気は、アルゴン又は窒素などの不活性ガス雰囲気を含む。還元性雰囲気は、水素雰囲気、又は水素と不活性ガスとの混合雰囲気などを含む。いずれの雰囲気においても、酸素濃度が低いことが好ましい。

[0077] 溶浸時、溶湯が原料粉末に含まれる第二元素を取り込み、粒子 3 に接触す

ることで、粒子3の表面に被覆層4が形成される。被覆層4は、粒子3と溶湯との濡れ性を改善する。また、粒子3に接する溶湯の表面には第一元素が濃化し、その濃化した第一元素が粒子3と溶湯との濡れ性を改善する。その結果、粒子3と溶湯とが複合される。その際、粒子3の近傍にボイドができ難い。

[0078] 金属相2の溶浸後、成形型内の原料は冷却される。原料が冷却されることで、Cuを主成分とする金属相2に、被覆層4を有する複数の粒子3が分散してなる複合材料1が得られる。

[0079] <実施形態2>

《放熱部材》

図3に示す放熱部材5は、本実施形態に係る複合材料1を用いた放熱部材の一例である。図3の放熱部材5は、基材6と銅層7とを備える。基材6は、複合材料1からなる。銅層7は、基材6の少なくとも一部に設けられる。本例では、基材6の第一面と第二面のそれぞれに銅層7が設けられている。

[0080] 銅層7の主成分である銅原子は、基材6を構成する複合材料1における金属相2の主成分である銅原子と結合し易いため、銅層7は基材6から剥離し難い。また、銅層7は、放熱部材5の表面を平滑にするため、銅層7を備える放熱部材5が半導体素子などの発熱体にはんだ接合された際に、放熱部材5と発熱体との間にボイドが生じ難い。従って、発熱体から放熱部材5に熱が伝わり易く、発熱体の温度上昇が抑制される。

[0081] 銅層7は、Ag-Cu合金などのろう材によって銅箔を基材6の表面に接合することで形成される。その他、銅層7は、蒸着又はCuめっきなどによって形成されていても良い。銅層7の更に表面にめっき層が設けられていても良い。めっき層の材質は、例えばニッケル(Ni)などである。

[0082] <試験例1>

試験例1では、複合材料における第一元素と第二元素の含有量が、複合材料の熱伝導性及び耐熱性に及ぼす影響を調べた。

[0083] 《試料の作製》

試験例 1 では、粒子がダイヤモンド、第一元素が A g、第二元素が T i である試料 N o. 1 から試料 N o. 2 8 の複合材料を作製した。具体的な作製手順は以下の通りである。

[0084] まず、第二元素である T i を含むダイヤモンド粉末の原料粉末を用意した。また、第一元素である A g と第二元素である T i を含む銅素材を用意した。カーボン製の鋳型に原料粉末を充填し、その充填物の上に銅素材を充填した。次いで、原料粉末と銅素材とを成形型ごとアルゴン雰囲気中で熱処理し、ダイヤモンド粉末と溶湯とを複合させた。熱処理温度は、1 1 0 0℃から 1 2 0 0℃の間のいずれか、熱処理時間は 1 0 分から 1 2 0 分の間のいずれかとした。熱処理後に成形型を冷却し、複合材料を得た。

[0085] <<測定項目>>

上記作製手順によって得られた試料 N o. 1 ~ 2 8 の複合材料の構成及び特性を測定した。その結果を表 1 に示す。表 1 の試料ナンバーの後に『*』又は『**』がある試料の複合材料は、実施形態 1 に係る複合材料 1 の要件を満たすものである。試験例 1 における測定項目は以下の通りである。

[0086] (熱伝導率)

各試料の複合材料の熱伝導率 ($W/m \cdot K$) を測定した。熱伝導率は、市販の測定器 (NETZSCH LFA467) を用いたフラッシュ法によって、室温で測定した。測定条件は、ASTM E1461-13「Standard Test Method for Thermal Diffusivity by the Flash Method」に準拠した条件であった。ここで、試料 N o. 2 2, 2 3 では、ダイヤモンド粒子に溶湯が溶浸していなかったため、試料 N o. 2 2, 2 3 の熱伝導率は測定しなかった。

[0087] (耐熱性)

各試料の複合材料の耐熱性を調べた。具体的には、各試料の複合材料を 8 0 0℃で 3 0 分熱処理し、複合材料の表面に溶解痕が生じるか否かを目視で確認した。溶解痕を有する複合材料は、耐熱性が十分ではない複合材料であ

る。溶解痕を有さない複合材料は、耐熱性に優れる複合材料である。表1では、耐熱性が十分ではないことを『no good』、耐熱性に優れることを『good』で示す。ダイヤモンド粒子に溶湯が溶浸していなかった試料No. 22, 23の耐熱性は調べなかった。

[0088] (粒子の平均粒径)

各試料の複合材料の断面を観察し、複合材料に含まれるダイヤモンド粒子の平均粒径を調べた。具体的には、複合材料の断面のSEM写真を取得し、画像解析によって各ダイヤモンド粒子を特定すると共に、各ダイヤモンド粒子の円相当径を求めた。円相当径が $30\mu\text{m}$ 未満のダイヤモンド粒子は微粒、円相当径が $30\mu\text{m}$ 以上のダイヤモンド粒子は粗粒とした。微粒の平均粒径は、微粒と判断されたダイヤモンド粒子の円相当径の平均値である。また、粗粒の平均粒径は、粗粒と判断されたダイヤモンド粒子の円相当径の平均値である。ここで、SEM写真における断面積が $3\mu\text{m}^2$ 以下のダイヤモンド粒子は、微粒の平均値の計算には含めなかった。

[0089] (微粒と粗粒の体積率)

微粒と粗粒の体積率(体積%)は、SEM写真から求めた。具体的には、SEM写真における微粒の合計面積と粗粒の合計面積とを求め、微粒と粗粒の面積割合を、微粒と粗粒の体積割合とみなした。例えば、SEM写真から得られた微粒の合計面積が $3000\mu\text{m}^2$ 、粗粒の合計面積が $7000\mu\text{m}^2$ であれば、全ての粒子に占める微粒の体積率は30体積%、粗粒の体積率は70体積%である。

[0090] (複合材料における粒子の含有量)

複合材料における粒子の含有量(%)は、以下のようにして求めた。まず、各試料の複合材料の体積をアルキメデス法によって求めた。次いで、70%の希硝酸で複合材料を溶解させ、その溶解液をろ過して、ダイヤモンド粉末を分離した。分離したダイヤモンド粉末の質量を測定し、ダイヤモンドの理論密度に基づいて、ダイヤモンド粉末の体積を計算により求めた。そして、ダイヤモンド粉末の体積を、複合材料の体積で除することで、複合材料に

おける粒子の含有量を得た。

[0091] (複合材料における A g の含有量)

金属相及び被覆層における A g の含有量 (原子%) を測定した。第一元素である A g の含有量は、希硝酸で溶解させた複合材料の溶解液を ICP 発光分析することで求めた。A g の含有量は、溶解液における C u と A g と T i の総原子数に占める A g の原子数の割合である。

[0092] (複合材料における T i の含有量)

金属相及び被覆層における T i の含有量 (原子%) を測定した。第二元素である T i の含有量は、希硝酸で溶解させた複合材料の溶解液を ICP 発光分析することで求めた。T i の含有量は、溶解液における C u と A g と T i の総原子数に占める T i の原子数の割合である。

[0093] (複合材料の相対密度)

複合材料の相対密度 (%) は、上述の『複合材料の相対密度』の項目で述べた方法によって求めた。まず、各試料の複合材料の質量を測定すると共に、各試料の複合材料の体積をアルキメデス法によって求めた。測定した質量を体積で除することで、各試料の複合材料の実際の密度を求めた。次に、各試料の複合材料の理論密度を求め、複合材料 1 の実際の密度を、複合材料 1 の理論密度で除することで、複合材料の相対密度を得た。複合材料の理論密度は、『複合材料の相対密度』の項目に示されるステップ 1 からステップ 5 に従って求めた。

[0094]

[表1]

試料 No.	微粒			粗粒			粒子の含有量		金属相+被覆層		相対密度 [%]	熱伝導率 [W/m・K]	耐熱性
	平均粒径 [μm]	体積率 [vol%]	平均粒径 [μm]	体積率 [vol%]	Ti/(Cu+Ag+Ti) [at%]	Ag/(Cu+Ag+Ti) [at%]	粒子の含有量		金属相+被覆層				
							平均粒径 [μm]	体積率 [vol%]	Ti/(Cu+Ag+Ti) [at%]	Ag/(Cu+Ag+Ti) [at%]			
	平均粒径 [μm]	体積率 [vol%]	平均粒径 [μm]	体積率 [vol%]	粗粒の含有量 [vol%]	微粒の含有量 [vol%]	Ti/(Cu+Ag+Ti) [at%]	Ag/(Cu+Ag+Ti) [at%]	相対密度 [%]	熱伝導率 [W/m・K]			
1**	16	28	101	72	62.2	2.86	2.32	99.0	667.2	good			
2**	17	26	103	74	71.9	6.28	3.17	99.4	697.6	good			
3*	14	32	78	68	79.6	13.31	0.26	96.7	610.4	good			
4**	12	31	101	69	78.0	7.16	0.55	99.0	693.9	good			
5*	14	100	-	0	52.5	2.16	1.46	95.1	605.3	good			
6*	16	100	-	0	50.6	2.03	4.79	98.3	607.8	good			
7*	25	100	-	0	56.2	2.13	9.26	98.9	625.3	good			
8*	15	28	105	72	78.6	8.97	8.55	98.2	642.9	good			
9*	18	25	101	75	80.5	13.61	7.59	99.3	615.8	good			
10**	14	28	107	72	70.2	8.00	4.27	99.2	680.7	good			
11**	18	35	105	65	67.5	8.30	2.77	99.6	669.4	good			
12*	5	28	42	72	78.5	12.68	1.83	99.4	620.9	good			
13*	13	25	97	75	81.3	10.60	5.52	99.0	645.1	good			
14*	15	27	104	73	74.4	5.55	7.30	99.6	649.8	good			
15**	17	29	106	71	75.6	9.32	0.59	99.6	671.0	good			
16**	19	29	110	71	78.9	3.26	0.98	99.8	720.9	good			
17**	15	100	-	0	53.6	3.45	4.18	99.1	662.0	good			
18**	18	24	107	76	76.1	9.95	3.84	99.2	670.8	good			
19**	18	32	103	68	72.8	5.90	1.92	99.5	700.4	good			
20	17	26	100	74	78.4	8.64	10.76	98.3	585.6	no good			
21	17	100	-	0	50.7	0.76	11.01	78.3	344.2	no good			
22	16	100	-	0	52.5	0.73	7.67	-	-	-			
23	23	100	-	0	54.5	0.75	0.14	-	-	-			
24	15	28	102	72	74.5	12.61	0.08	85.4	382.7	good			
25	19	25	103	75	79.5	17.13	2.81	99.7	429.8	good			
26	16	26	104	74	77.5	16.49	5.42	99.3	452.3	good			
27	17	28	106	72	73.4	15.72	9.87	99.8	420.5	good			
28	18	27	96	73	75.2	7.02	55.77	99.4	553.8	no good			

[0095] 表1に示されるように、複合材料に含まれるAgの含有量が0.25原子

%以上10.0原子%以下で、かつTiの含有量が1.5原子%以上14.0原子%である試料No. 1～試料No. 19の複合材料は、600W/m・K以上の熱伝導率を有し、良好な耐熱性を備えていた。特に、Ag含有量が0.5原子%以上4.5原子%以下で、かつTiの含有量が2.5原子%以上10.0原子%以下である試料No. 1, 2, 4, 10, 11, 15～19の複合材料は、660W/m・K以上の熱伝導率を有し、良好な耐熱性を備えていた。

[0096] 複合材料におけるAgの含有量が10.0原子%超である試料No. 20, 21, 28の複合材料の耐熱性は低かった。これは、金属相に含まれるAgの含有量が多すぎるため、800℃の熱処理によって金属相の一部が融解したためと推察される。

[0097] 複合材料におけるTiの含有量が1.5原子%未満である試料No. 22, 23では、ダイヤモンド粒子に溶湯が十分に溶浸せず、複合材料とならなかった。一方、試料No. 21では、Tiの含有量が少ないものの、Agの含有量が多いため、ダイヤモンド粒子に溶湯が溶浸した。これは、溶湯におけるAgの存在が、ダイヤモンド粒子と溶湯との濡れ性の改善に大きな役割を果たすことを示している。

[0098] 試料No. 24では、Agの含有量が0.25原子%未満であるものの、ダイヤモンド粒子に溶湯が十分に溶浸していた。これは、試料No. 24におけるTiの含有量が比較的多く、ダイヤモンド粒子の表面に厚い被覆層が形成されていたからであると推察される。厚い被覆層は、ダイヤモンド粒子と溶湯との濡れ性を改善するものの、複合材料の熱伝導率を低下させる。実際、試料No. 24の熱伝導率は400W/m・K程度であった。

[0099] 複合材料におけるTiの含有量が14.0原子%超である試料No. 25～27の複合材料の熱伝導率は400W/m・K程度であった。Tiの含有量が多いということは、被覆層の厚さが厚いということである。従って、試料No. 25～27の複合材料の熱伝導率は、厚い被覆層の存在によって低下したものと推察される。

[0100] その他、表1における試料No. 5~7, 17と、試料No. 1~4, 8~16, 18, 19との比較結果から、ダイヤモンド粉末が微粒と粗粒の混合粉末であることで、複合材料における粒子の含有量が高まることが分かった。

[0101] <試験例2>

試験例2では、第一元素と第二元素を変化させた試料No. 30~39の複合材料を作製し、各試料の熱伝導率及び耐熱性を調べた。試験例2の測定項目及び測定方法は、試験例1と同じである。試料No. 30~39の測定結果を表2に示す。

[0102] 試験例2における第一元素は、Ag、Mg、Al、Sn、Zn、又はMnのいずれかであった。また、第二元素は、Ti、Zr、Cr、Si、Ta、又はNbのいずれかであった。表2では、第一元素を『 α 』、第二元素を『 β 』と表す。

[0103]

[表2]

試料 No.	α	β	粒子				粒子の 含有量 [vol%]	金属相+被覆層		相対密度 [%]	熱伝導率 [W/m·K]	耐熱性
			微粒		粗粒			$\beta / (\text{Cu} + \alpha + \beta)$ [at%]	$\alpha / (\text{Cu} + \alpha + \beta)$ [at%]			
			平均粒径 [μm]	体積率 [vol%]	平均粒径 [μm]	体積率 [vol%]						
30	Mg	Ti	16	28	101	72	71.0	7.59	3.84	98.5	630.5	good
31	Al	Ti	15	30	101	70	71.9	6.62	4.16	96.4	652.8	good
32	Sn	Ti	16	31	103	69	74.3	6.88	3.32	95.7	648.5	good
33	Zn	Ti	17	32	102	68	76.2	5.89	4.40	97.2	638.1	good
34	Mn	Ti	15	28	97	72	69.3	6.88	3.47	96.0	648.5	good
35	Ag	Zr	15	28	98	72	68.9	3.19	2.04	95.8	651.2	good
36	Ag	Cr	14	24	100	76	72.9	6.93	2.41	97.4	667.5	good
37	Ag	Si	18	22	99	78	74.0	9.56	2.28	98.6	645.5	good
38	Ag	Ta	14	28	106	72	71.9	2.88	1.74	99.3	656.4	good
39	Ag	Nb	16	29	105	71	71.5	3.50	2.28	97.2	652.7	good

[0104] 表2に示されるように、試料No. 30~39の複合材料は、優れた熱伝導性と耐熱性を備えていた。この結果から、Mg、Al、Sn、Zn、及びMnが、Agの代わりに第一元素として有効に機能することが明らかになった。また、Zr、Cr、Si、Ta、及びNbが、Tiの代わりに第二元素としての有効に機能することが明らかになった。

符号の説明

[0105] 1 複合材料、 2 金属相、 3 粒子、 31 微粒、 32 粗粒、
4 被覆層、 5 放熱部材、 6 基材、 7 銅層。

請求の範囲

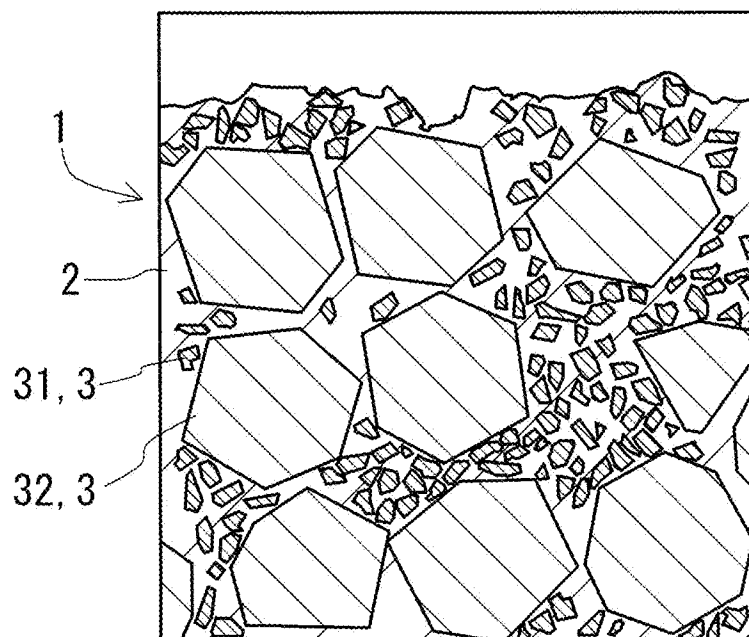
- [請求項1] 金属相と、
前記金属相に分散する複数の粒子とを備え、
前記複数の粒子のそれぞれの粒子は、前記それぞれの粒子の表面を覆う被覆層を有する複合材料であって、
前記複数の粒子は、炭素系材料であり、
前記金属相は、主元素と、第一元素と、第二元素とを含み、
前記被覆層は、前記第二元素の炭化物であり、
前記主元素は、銅であり、
前記第一元素は、銅よりも低い表面張力を有する金属元素であり、
前記第二元素は、ベリリウム、シリコン、チタン、クロム、ジルコニウム、ニオブ、ハフニウム、及びタンタルからなる群より選択される少なくとも1種であり、
前記主元素と前記第一元素と前記第二元素の合計に占める前記第一元素の含有量が0.25原子%以上10.0原子%以下、
前記主元素と前記第一元素と前記第二元素の合計に占める前記第二元素の含有量が1.5原子%以上14.0原子%以下である、
複合材料。
- [請求項2] 前記炭素系材料はダイヤモンドである請求項1に記載の複合材料。
- [請求項3] 前記第一元素は、銀、マグネシウム、アルミニウム、スズ、亜鉛、及びマンガンからなる群より選択される少なくとも1種である請求項1又は請求項2に記載の複合材料。
- [請求項4] 前記第一元素は銀である請求項3に記載の複合材料。
- [請求項5] 前記第二元素はチタンである請求項1から請求項4のいずれか1項に記載の複合材料。
- [請求項6] 前記複数の粒子の含有量は、40体積%以上85体積%以下である請求項1から請求項5のいずれか1項に記載の複合材料。
- [請求項7] 前記複数の粒子は、複数の微粒と複数の粗粒を備え、

前記複数の微粒のそれぞれの粒径は $30\ \mu\text{m}$ 未満であり、
前記複数の粗粒のそれぞれの粒径は $30\ \mu\text{m}$ 以上であり、
前記複数の粒子の全ての粒子に占める前記複数の微粒の体積割合は、
20体積%以上50体積%以下である請求項1から請求項6のいずれか1項に記載の複合材料。

[請求項8] 請求項1から請求項7のいずれか1項に記載の複合材料からなる基材と、
前記基材の表面の少なくとも一部を覆う銅層とを備える、
放熱部材。

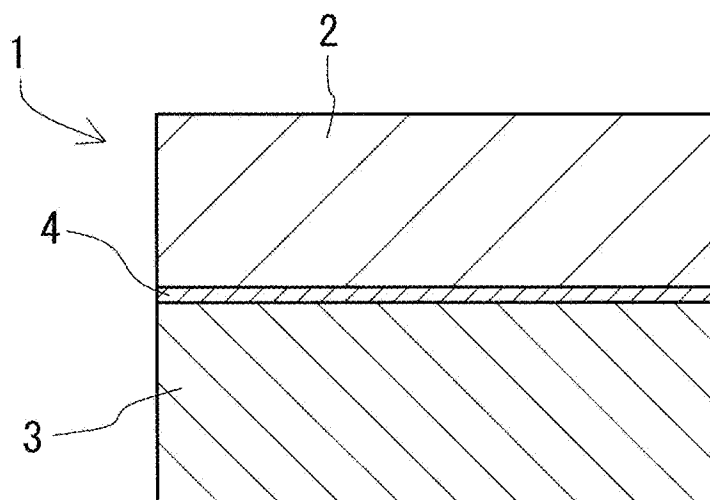
[図1]

FIG.1



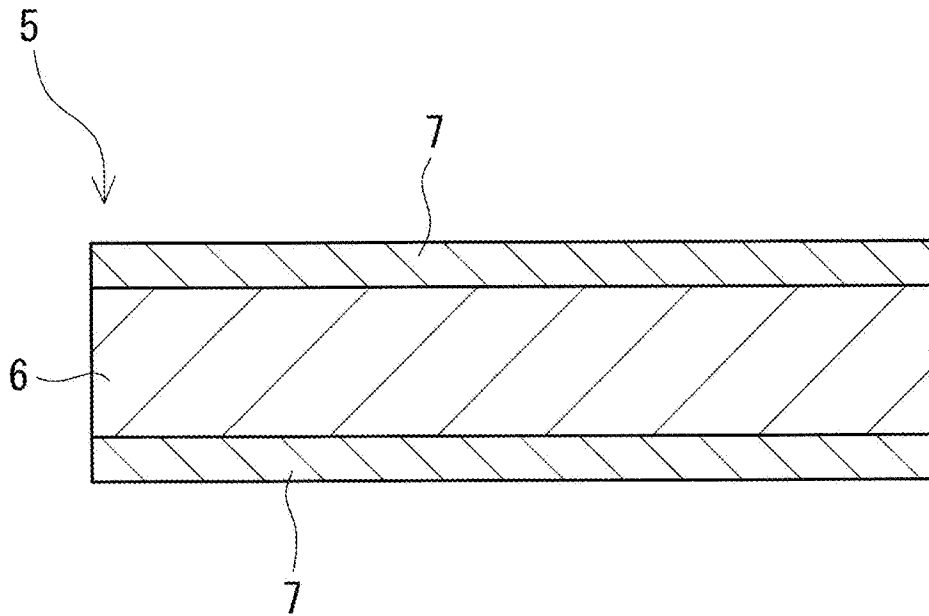
[図2]

FIG.2



[図3]

FIG.3



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2021/008634

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. C22C9/00 (2006.01) i, C22C26/00 (2006.01) i
 FI: C22C26/00 Z, C22C9/00

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)

Int. Cl. C22C9/00, C22C26/00

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

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2021
 Registered utility model specifications of Japan 1996-2021
 Published registered utility model applications of Japan 1994-2021

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 A	JP 11-67991 A (SUMITOMO ELECTRIC INDUSTRIES, LTD.) 09 March 1999, paragraphs [0068]-[0072], [0078]	1-6, 8 7
A	JP 2007-535151 A (PLANSEE SE) 29 November 2007, claim 12	7
A	WO 03/040420 A1 (SUMITOMO ELECTRIC INDUSTRIES, LTD.) 15 May 2003, claims	1-8
A	JP 2004-197153 A (ALLIED MATERIAL CORP.) 15 July 2004, paragraph [0013], claims	1-8

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
27.04.2021

Date of mailing of the international search report
11.05.2021

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
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2021/008634

Patent Documents referred to in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 11-67991 A	09.03.1999	US 6031285 A examples 8, 9, 12	
JP 2007-535151 A	29.11.2007	US 2007/0042895 A1 claim 12	
WO 03/040420 A1	15.05.2003	US 2005/0051891 A1 claims	
JP 2004-197153 A	15.07.2004	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C22C 9/00(2006.01)i; C22C 26/00(2006.01)i FI: C22C26/00 Z; C22C9/00		
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）） C22C9/00; C22C26/00 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2021年 日本国実用新案登録公報 1996-2021年 日本国登録実用新案公報 1994-2021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	JP 11-67991 A (住友電気工業株式会社) 09.03.1999 (1999-03-09)	1-6, 8
A	[0068]-[0072]	7
A	[0078]	7
A	JP 2007-535151 A (ブランゼー エスエー) 29.11.2007 (2007-11-29) 請求項 1 2	7
A	WO 03/040420 A1 (SUMITOMO ELECTRIC INDUSTRIES, LTD.) 15.05.2003 (2003-05-15) 請求の範囲	1-8
A	JP 2004-197153 A (株式会社アライドマテリアル) 15.07.2004 (2004-07-15) [0013], 特許請求の範囲	1-8
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> 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 27.04.2021	国際調査報告の発送日 11.05.2021	
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） 瀧口 博史 4E 3032 電話番号 03-3581-1101 内線 3425	

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/JP2021/008634

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 11-67991 A	09.03.1999	US 6031285 A 実施例 8, 9, 12	
JP 2007-535151 A	29.11.2007	US 2007/0042895 A1 請求項 1 2	
WO 03/040420 A1	15.05.2003	US 2005/0051891 A1 請求の範囲	
JP 2004-197153 A	15.07.2004	(ファミリーなし)	