

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 23 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K14173

研究課題名(和文) 高熱伝導率及び低熱膨張係数を有する新型ヒートシンク材の開発

研究課題名(英文) Development of New Type of Heat Sink with High Electrical Conductivity and low coefficient of thermal expansion

研究代表者

石田 清仁 (Ishida, Kiyohito)

東北大学・工学研究科・名誉教授

研究者番号：20151368

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：パワー半導体などで発生する熱を放散させるために、導電性の高いCu合金と熱膨張係数が小さいFe-Co-Cr系ステンレスインバー合金とのハイブリッド組織を形成する新型のヒートシンク材の開発を目指した。その結果、(1)粉末組織には、外側がCuリッチ、中心部がFe-Co-Cr系合金の卵型粉末やCuリッチ相とFe-Co-Crリッチ相との分散組織が得られた。(2)熱伝導率は焼結前の試料より焼結後の試料が高くなる事、さらにスパークプラズマ焼結法によって最も高い特性が得られた。(3)W添加の影響について調査した結果、熱膨張係数10.86ppm/K、熱伝導率46.7 W/m・Kが得られた。

研究成果の概要(英文)：Recent progress of power semiconductors requires the development of high performance of low coefficient of thermal expansion and high thermal conductivity. In this work, new type of hybrid microstructure with egg-type powder which shows that inner part is Fe-Co-Cr rich phase and outer part is Cu-rich composition is designed. The following results were obtained. (1) Not only egg-type microstructure but also the dispersion structure of Cu-rich and Fe-Co-Cr rich phase were observed. (2) The higher value of thermal conductivity was obtained by sintering procedure. Furthermore, the good properties of thermal conductivity was obtained by spark plasma sintering at 980 °C under 50MPa. (3) The hybrid structure of Fe-Co-Cr-W Invar alloy and Cu shows that the coefficient of thermal expansion and the thermal conductivity are 10.86ppm/K and 46.7 W/m・K, respectively.

研究分野：組織制御

キーワード：ヒートシンク 熱膨張係数 熱伝導率 Cu合金 ステンレスインバー合金 2相分離 ハイブリッド組織 パワー半導体

1. 研究開始当初の背景

(1) ヒートシンク材の現況

コンピューターの大容量や高速化に伴い、現用の Si 半導体に代わり、SiC や GaN の化合物半導体を用いたいわゆる「次世代パワー半導体」の研究が活発に行われ、既に製品化もされている。この場合、大きな電力を取り扱うため、半導体から発生する熱を冷却するための構造が必要になる。この冷却の実現にはヒートシンク材が不可欠であるが、そのためには高い熱伝導率を有し、かつ素子と同等の低い熱膨張率係数が求められる。そのため現在使用されているヒートシンク材としては、金属系として純 Mo、純 W、Cu-W、Cu-Mo 合金、セラミックス系として AlN などがあるが、いずれもコスト高い事が欠点である。

(2) 研究の背景と特色

本研究は液相の 2 相分離を有する合金を粉末にすると卵型の二重構造を呈する事を見出した知見を基に(C. P. Wang, K. Ishida, et al., Science 297 (2002) 990.)、従来にない全く新しい組織設計によって高熱伝導率、低熱膨張率係数を有する新規ヒートシンク材の開発を目指すものである。すなわち、液相 2 相分離を有する合金系を粉末にするとたとえば Fe-Cu 系合金に見られるように外側に Cu リッチ相、内側に Fe リッチ相が分離した卵型二重構造を有する事が観察され、この組織形態はマランゴニ効果によるものである。従って、卵型構造を有する系で、中心部が低熱膨張係数を有し、表面部が Cu や Ag のような高熱伝導性の開発が十分期待できる。この様な従来にない全く新しい発想の下に組織設計を行う点が本研究の最大の特徴である。

2. 研究の目的

(1) 本研究の内容

本研究は、ヒートシンク材に適した低熱膨張でかつ熱伝導率の高い材料を開発する事を目的とするが、導電性の高い Cu 合金は熱膨張係数が高い(17ppm/K)のでそれを低下させるためにステンレスインバー合金(Fe-Co-Cr 系)とのハイブリッド組織形成に挑戦する。Cu は Fe、Co、Cr いずれの系とも液相で 2 相分離を生ずるので、Cu-Fe-Co-Cr 合金の粉末は外側が Cu、中心部が Fe-Co-Cr の卵型粉末形成が予想される。これを焼結する事によって低熱膨張はステンレスインバーが担い、高い導電性はステンレスを取り囲んだ Cu 外周相が担うというスケルトン型組成を形成させる事によって、高い熱伝導率と低熱膨張を両立させる製造技術の確立を目指す。

(2) ヒートシンク材の合金設計

液相 2 相分離境界内の組成によって、組織形成が異なる事もこれまでの研究で明らか

になっており、例えば 2 相分離の中央付近の組成では卵型構造が、その両端の境界線に近い組成では第 2 相が分離した組成を呈する(I. Ohnuma, K. Ishida et al., J. Electronic Mater., 38 (2009) 2.)。本研究では、以上の知見を踏まえ、低熱膨張を受け持つ合金としてステンレスインバー合金の Fe-Co-Cr 合金と Cu 合金との液相 2 相分離を利用した卵型構造粉末材を開発するものである。ステンレスインバー合金を構成する Cu-Fe、Cu-Cr、Cu-Co 各合金系とも液相 2 相分離を有し、またこれらの系の相平衡の熱力学データベースは本研究グループによって構築されているので(M. Jiang, K. Ishida et al., J. Phys. Chem. Solids, 66 (2005) 246.)、目的の組織形態を有する組成を計算、予測する事ができる。この様に計算状態図を利用して組織形態と特性まで制御しようとする試みは従来にない全く新しい設計手法である。

3. 研究の方法

(1) 計算状態図による合金設計

Cu とステンレスインバーの Fe-Co-Cr 合金との状態図・熱力学データベースは著者らが開発しているので、それを利用する事によって Cu-Fe-Co-Cr-W 基多元合金において液相 2 相分離が生ずる組成を求める。

(2) 合金粉末作製と組織観察

厦門大学が所有する 7 kg 程度のガスアトマイズ法による粉末作製装置を用いて、粉末を作製しマイクロ組織観察を行うとともに、X線マイクロアナライザーによって内部組織の組成分析を行う。

(3) 焼結・熱処理・特性調査

作製した合金粉末を種々の条件で焼結し、組織観察を行う。さらに焼結材の熱膨張係数、熱伝導率を測定し、最適焼結条件を決定してヒートシンク材としての材料評価を行う。

4. 研究成果

(1) Cu/Fe-Co-Cr 合金粉末の特性

Cu/Fe<sub>37</sub>Co<sub>54</sub>Cr<sub>9</sub> 擬 2 元系計算状態図を図 1 に示すが、予想通り、液相 2 相分離が広い組成範囲にわたって形成される。

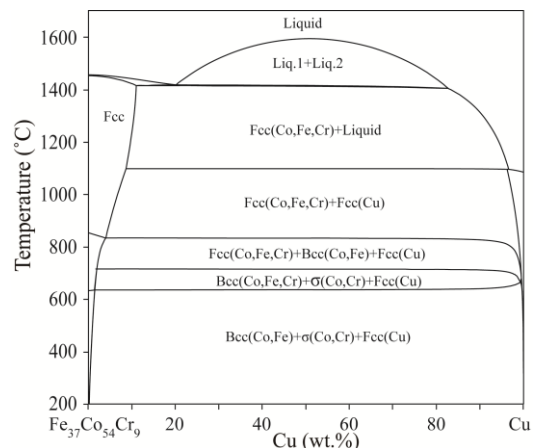


図 1 Cu/Fe<sub>37</sub>Co<sub>54</sub>Cr<sub>9</sub> 擬 2 元系計算状態図

この結果に基づき、 $\text{Fe}_{37}\text{Co}_{54}\text{Cr}_9$ 合金にCuを30、40、55、65各wt%添加した合金粉末を作製した。そのマイクロ組織を図2に示すが、(c)図に見られるように典型的な卵型組織や(d)図のような分散組織が観察される。

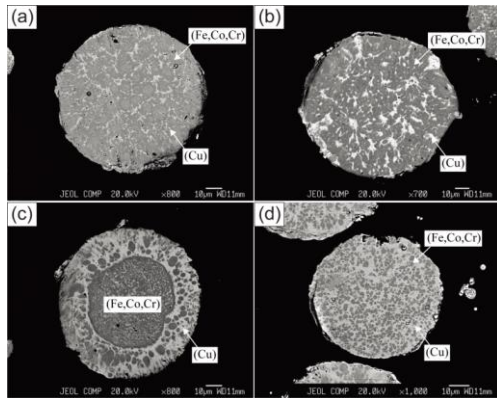


図2  $\text{Cu}_x(\text{Fe}_{37}\text{Co}_{54}\text{Cr}_9)_{100-x}$  合金粉末のマイクロ組織(a)  $x=30$ 、(b)  $x=40$ 、(c)  $x=55$ 、(d)  $x=65$

図3および図4はそれぞれ  $\text{Cu}_x(\text{Fe}_{37}\text{Co}_{54}\text{Cr}_9)_{100-x}$  合金の熱膨張係数のCu濃度依存性とその温度依存性を示している。図3中の点線と一点鎖線は計算値である。(1)(2)

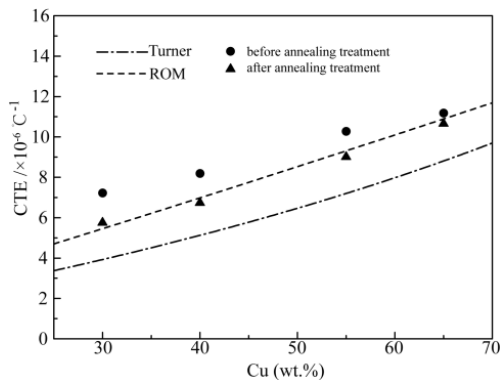


図3  $\text{Cu}_x(\text{Fe}_{37}\text{Co}_{54}\text{Cr}_9)_{100-x}$  合金の熱膨張係数一点鎖線と点線はいずれも計算値

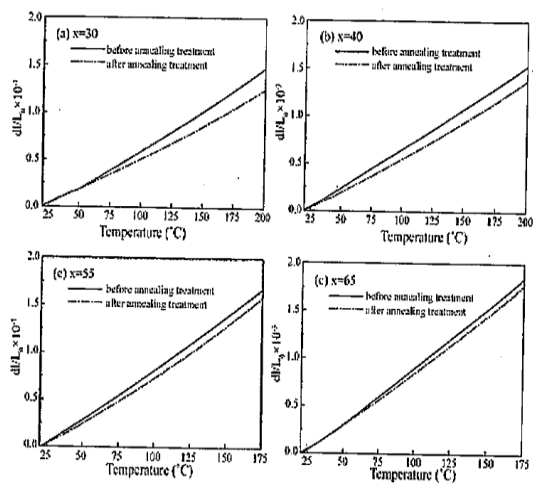


図4  $\text{Cu}_x(\text{Fe}_{37}\text{Co}_{54}\text{Cr}_9)_{100-x}$  合金の熱膨張係数の温度依存性

これより、Cu濃度の増加とともに熱膨張係数が増加する事、 $500^\circ\text{C}$ で8時間の焼鈍熱処理を行う事によって、熱膨張係数が低下する事がわかる。 $\text{Cu}_x(\text{Fe}_{37}\text{Co}_{54}\text{Cr}_9)_{100-x}$ 合金の熱伝導率とCu濃度との関係を示す。Cu濃度を増加すると熱伝導率も上昇する。

図5は  $\text{Cu}_x(\text{Fe}_{37}\text{Co}_{54}\text{Cr}_9)_{100-x}$ 合金の熱伝導率とCu濃度との関係を示す。Cu濃度を増加すると熱伝導率も上昇する。これらの結果より、Cu濃度の調整によって熱膨張率と熱伝導率のバランスのとれたヒートシンク材の製造が可能となった。

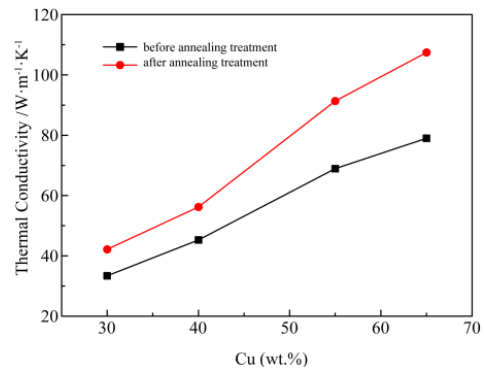


図5  $\text{Cu}_x(\text{Fe}_{37}\text{Co}_{54}\text{Cr}_9)_{100-x}$ 合金の熱伝導率

#### (2) $\text{Cu}_{40}(\text{Fe}_{37}\text{Co}_{54}\text{Cr}_9)_{60}+3\text{W}$ 合金粉末の特性

$\text{Cu}_{40}(\text{Fe}_{37}\text{Co}_{54}\text{Cr}_9)_{60}$ 合金に3wt%のWを添加した粉末を作製し、その特性を調査した。Wを選んだ理由は、熱伝導をそれほど低下させずに熱膨張係数の低下が期待できるからである。図6はこの合金粉末のマイクロ組織を示すが、極く表層にCuリッチ相が認められ、内部組織はインバーリッチ基地にCu相が分散している組織を呈している。この内部組織のインバーリッチ部はCuが12~18%程度固溶したインバー組成に近い。

一方、Cuリッチ部は、Cuが90~93%でFe、Co、Crも5%以下、Wは0.1~0.3%しか固溶していない。これらの合金粉末について、3種類の焼結を行った。即ち(i)  $980^\circ\text{C}$ 、40MPaでのホットプレス、(ii)  $980^\circ\text{C}$ 、50MPaでのホットプレス、(iii)  $980^\circ\text{C}$ で50MPaでのスパークプラズマ焼結である。この3種の焼結後の熱膨張係数と熱伝導率をそれぞれ図7および図8に示す。これよりスパークプラズマ焼結によって熱膨張率 10.36ppm/K、熱伝導率 46.7W/m・Kの最も良い特性が得られた。

表1.  $\text{Cu}_{40}(\text{Fe}_{37}\text{Co}_{54}\text{Cr}_9)_{60}+3\text{W}$  (wt%)合金粉末の各種焼結条件による各相の濃度。

Sintering process	Invar-rich phase (wt.%)					Rich-Cu phase (wt.%)				
	Cu	Fe	Co	Cr	W	Cu	Fe	Co	Cr	W
HP-40MPa	16.2	30.5	43.6	6.4	3.3	90.4	3.4	5.2	0.7	0.3
HP-50MPa	18.6	29.0	41.9	7.0	3.5	93.2	2.1	4.1	0.4	0.2
SPS-50MPa	12.1	31.3	46.1	6.9	3.6	90.9	2.9	5.7	0.5	0.1

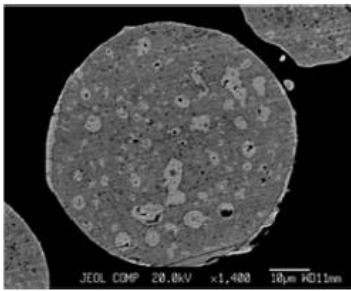


図 6  $\text{Cu}_{40}(\text{Fe}_{37}\text{Co}_{54}\text{Cr}_9)_{60}+3\text{W}$  合金粉末のマイクロ組織

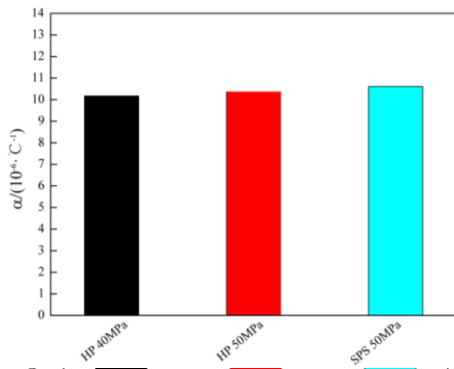


図 7  $\text{Cu}_{40}(\text{Fe}_{37}\text{Co}_{54}\text{Cr}_9)_{60}+3\text{W}$  合金の各種焼結後の熱膨張係数

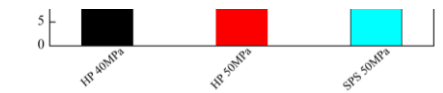


図 8  $\text{Cu}(\text{Fe}_{37}\text{Co}_{54}\text{Cr}_9)_{60}+3\text{W}$  合金の各種焼結後の熱伝導率

<引用文献>

1. A. A. Falemy and A. N. Ragai, J. Appl. Phys., 41 (1970) 5108.
2. P. S. Turner, J. Res. Nat. Bar. Std., 37 (1946) 239.

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

- ① I. Ohnuma and K. Ishida, Phase diagrams as tools for advanced materials design - Application to non-ferrous alloys -, Metar. Miner. Sao Paulo, 査読有  
Vol. 13, 2016, 46-63.  
DOI: 4322/2176-1523. 1085

[学会発表] (計 2 件)

- ① K. Ishida, From CALPHAD to Practical Application, Forum on

Materials Genome Initiative, 2016 年 9 月 27 日、南京、中国

- ② 石田清仁、状態図・組織制御と合金設計、日本金属学会、2016 年 8 月 8 日、東京工業大学

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

石田 清仁 (ISHIDA, KIYOHITO)  
東北大学・大学院工学研究科・名誉教授  
研究者番号：20151368

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者

(4) 研究協力者

劉 興軍 (XINGJUN, LIU)  
厦門大学・材料学院・教授