

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6515838号  
(P6515838)

(45) 発行日 令和1年5月22日 (2019.5.22)

(24) 登録日 平成31年4月26日 (2019.4.26)

(51) Int.Cl.

F I

C O 1 B 32/152 (2017.01)

C O 1 B 32/152

C O 1 B 32/158 (2017.01)

C O 1 B 32/158

B O 1 J 23/745 (2006.01)

B O 1 J 23/745

Z N M M

B 8 2 Y 30/00 (2011.01)

B 8 2 Y 30/00

B 8 2 Y 40/00 (2011.01)

B 8 2 Y 40/00

請求項の数 20 (全 21 頁)

(21) 出願番号 特願2016-35991 (P2016-35991)  
 (22) 出願日 平成28年2月26日 (2016.2.26)  
 (65) 公開番号 特開2017-149627 (P2017-149627A)  
 (43) 公開日 平成29年8月31日 (2017.8.31)  
 審査請求日 平成30年2月27日 (2018.2.27)

(73) 特許権者 000004260  
 株式会社デンソー  
 愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地  
 (73) 特許権者 899000068  
 学校法人早稲田大学  
 東京都新宿区戸塚町1丁目104番地  
 (74) 代理人 100106149  
 弁理士 矢作 和行  
 (74) 代理人 100121991  
 弁理士 野々部 泰平  
 (74) 代理人 100145595  
 弁理士 久保 貴則  
 (72) 発明者 太田 アウン  
 愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地 株式会  
 社デンソー内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 カーボンナノチューブ付部材、その製造方法、およびその製造装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

アルミニウムを主成分とする基材(11)と、

長さ200 μm以上の複数のカーボンナノチューブが所定の配向方向に沿って配向されて  
おり、前記基材の表面に配置されたCNT配向膜(31、931)とを備え、

前記CNT配向膜は、前記基材の表面に部分的に形成されており、

前記基材の表面のうち、前記CNT配向膜が形成されていない領域(43)には、前記  
CNT配向膜の合成および/または配向された成長を阻害する阻害要素(414、415  
、415、516)が設けられているカーボンナノチューブ付部材。

【請求項2】

前記阻害要素は、前記CNT配向膜が形成される領域(41)の表面よりも凹凸状の粗  
面(414、415、415)を有する請求項1に記載のカーボンナノチューブ付部材。

【請求項3】

前記粗面は、溝(414)によって形成されている請求項2に記載のカーボンナノチュ  
ーブ付部材。

【請求項4】

前記溝は、U字型又はV字型に配置された斜面(415、415)によって区画されて  
いる請求項3に記載のカーボンナノチューブ付部材。

【請求項5】

前記阻害要素は、炭素を含む炭素含有材料層を有する請求項1に記載のカーボンナノチ

10

20

ューブ付部材。

【請求項 6】

さらに、前記基材の表面に設けられ、前記カーボンナノチューブを合成するための触媒が配置された触媒層（221）を備え、

前記炭素含有材料層は前記触媒層の構成元素と炭素とを含む請求項 5に記載のカーボンナノチューブ付部材。

【請求項 7】

前記基材の表面には、

前記 CNT 配向膜が形成されている凸部（32）と、

前記カーボンナノチューブが合成されていないか、または前記カーボンナノチューブが前記 CNT 配向膜より乱れて伸びている又は低密度に伸びている凹部（33）とがある請求項 1 から請求項 6のいずれかに記載のカーボンナノチューブ付部材。

【請求項 8】

前記基材の表面には、

前記 CNT 配向膜が形成されている配向領域（41）と、

前記 CNT 配向膜が形成されていない非形成領域（42）とがある請求項 1 から請求項 7のいずれかに記載のカーボンナノチューブ付部材。

【請求項 9】

前記基材の表面には、

前記 CNT 配向膜が形成されている配向領域（41）と、

前記カーボンナノチューブがランダムに配置された非配向領域（43）とがある請求項 1 から請求項 7のいずれかに記載のカーボンナノチューブ付部材。

【請求項 10】

前記 CNT 配向膜（931）は、前記基材に近い基部と、前記基材から離れた端部とを有しており、前記基部は、前記端部より太い請求項 1 から請求項 9のいずれかに記載のカーボンナノチューブ付部材。

【請求項 11】

アルミニウムを主成分とする基材の表面にカーボンナノチューブを合成するための触媒（21、221）を配置する工程（183、283）と、

前記触媒の活性を維持するための二酸化炭素を供給するとともに、前記カーボンナノチューブの原料としてのアセチレンと二酸化炭素との体積比が 1：10 以上である雰囲気中において前記基材の表面にカーボンナノチューブを合成する工程（189、989）とを備えるカーボンナノチューブ付部材製造方法。

【請求項 12】

前記触媒を配置する工程は、前記基材の表面のうち、前記カーボンナノチューブが形成されない領域（42）に前記触媒を設けることなく、前記カーボンナノチューブが形成される領域（41）に前記触媒を設ける工程（283）であり、

さらに、前記触媒を設ける工程の前または後に、前記基材を所定の形状に加工する工程（185）を備える請求項 11に記載のカーボンナノチューブ付部材製造方法。

【請求項 13】

アルミニウムを主成分とする基材（11）を所定の形状に加工する工程（185）と、

さらに、前記基材の表面のうち、配向された前記カーボンナノチューブが形成されない領域（43）に、前記カーボンナノチューブの合成および／または配向された成長を阻害する阻害要素（414、415、415、516）を設ける工程（481、581、981）と、

前記阻害要素を設ける工程の後に、前記基材を所定の形状に加工する工程を備える請求項 11に記載のカーボンナノチューブ付部材製造方法。

【請求項 14】

前記阻害要素を設ける工程は、前記カーボンナノチューブが形成される領域（41）の表面よりも凹凸状の粗面（414、415、415）を前記カーボンナノチューブが形成

10

20

30

40

50

されない領域（４３）に設ける工程（４８１）である請求項１３に記載のカーボンナノチューブ付部材製造方法。

【請求項１５】

前記障害要素を設ける工程は、前記カーボンナノチューブが形成されない領域（４３）に、炭素を含む炭素含有材料層（５１６）を設ける工程（５８１）である請求項１３に記載のカーボンナノチューブ付部材製造方法。

【請求項１６】

少なくとも一部にろう材（３１３）を有しており、アルミニウムを主成分とする基材（１１）を収容し、前記基材を加熱することにより前記ろう材を溶融させ、前記基材をろう付けする加熱室（６１）、および

10

前記ろう付けと、複数のカーボンナノチューブが所定の配向方向に沿って配向されたＣＮＴ配向膜（３１、９３１）の前記基材の表面における合成とを、前記加熱室において行うように、前記加熱室に前記カーボンナノチューブの原料を供給する原料供給器（６６）を備えるカーボンナノチューブ付部材製造装置。

【請求項１７】

さらに、前記カーボンナノチューブを合成するための触媒を前記基材の表面に設けるように、前記加熱室に前記触媒を供給する触媒供給器（６５）を備える請求項１６に記載のカーボンナノチューブ付部材製造装置。

【請求項１８】

さらに、前記ＣＮＴ配向膜（３１、９３１）を整形するための整形液を供給する整形液供給器（６７）を備える請求項１６または請求項１７に記載のカーボンナノチューブ付部材製造装置。

20

【請求項１９】

さらに、前記整形液を回収する整形液回収器（６８）を備える請求項１８に記載のカーボンナノチューブ付部材製造装置。

【請求項２０】

さらに、前記加熱室においてろう付けされ、前記ＣＮＴ配向膜が形成されたカーボンナノチューブ付部材を冷却する冷却室（６２）を備え、前記整形液供給器は前記冷却室に前記整形液を供給し、前記整形液回収器は前記冷却室から前記整形液を回収するよう構成されている請求項１９に記載のカーボンナノチューブ付部材製造装置。

30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【０００１】

この明細書における開示は、カーボンナノチューブ付部材、その製造方法およびその製造装置に関する。

【背景技術】

【０００２】

カーボンナノチューブ（以下ＣＮＴという）の合成方法、すなわち製造方法として、基板上に触媒となる金属を形成し、加熱された炉内に配した後、原料となるアセチレンやエタノールなど炭素を含むガスを炉内に供給する方法が知られている。ガスの分解と触媒活性の維持のために、炉内の温度は通常７００～８００程度に維持される。しかし、この技術では、多様な基板材料への適用と、複数のＣＮＴが一方向に配向され束状に配置されたＣＮＴ配向膜を求められる範囲に形成するパターン化と、ＣＮＴの長尺化とが困難であった。

40

【０００３】

特許文献１は、ＣＮＴ配向膜を、基板上の所定の範囲に形成する技術を開示する。特許文献１は、ＣＮＴ合成に必要な触媒を、求められる範囲に形成することにより、すなわちパターン化することにより、パターン化されたＣＮＴ配向膜の形成を可能としている。

【０００４】

特許文献２は、比較的低温でＣＮＴを合成する方法を提案する。特許文献２は、６００

50

以上 660 未満において CNT を合成するために、通常の熱分解に加え、先端放電型プラズマ CVD を用いる。これにより、H<sub>2</sub> ガスと CH<sub>4</sub> とを活性化し、CNT 配向膜を合成している。

【0005】

特許文献 3 は、アルミニウムやマグネシウムの上に CNT を合成する方法を提案する。

【0006】

従来技術として列挙された先行技術文献の記載内容は、この明細書における技術的要素の説明として、参照により援用される。

【先行技術文献】

【特許文献】

10

【0007】

【特許文献 1】特表 2002 - 530805 号公報

【特許文献 2】特開 2009 - 78956 号公報

【特許文献 3】特開 2011 - 132068 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

特許文献 1 の手法は、パターン化された触媒を、求められる場所に形成する手段が必要である。たとえば、ステンシルマスクやフォトリソグラフィなどを必要とするから、製造工程が複雑になる。また、特許文献 1 の手法は、平坦な基板への適用に限られる。この結果、例えば、立体的な構造体の表面へ、パターン化された CNT 配向膜を形成することができない。

20

【0009】

特許文献 2 の手法では、触媒の活性が、長時間に渡って維持されない。このため、長尺の CNT を得ることができない。

【0010】

特許文献 3 の手法では、CNT はランダムに配置されるから、配向膜が形成されない。

【0011】

上述の観点において、または言及されていない他の観点において、カーボンナノチューブ付部材、その製造方法、およびその製造装置にはさらなる改良が求められている。

30

【0012】

開示されるひとつの目的は、長い CNT が配向されたカーボンナノチューブ付部材、その製造方法、およびその製造装置を提供することである。

【0013】

開示される他のひとつの目的は、CNT 配向膜が部分的に形成されたカーボンナノチューブ付部材、その製造方法、およびその製造装置を提供することである。

【0014】

開示されるさらに他のひとつの目的は、アルミニウムを主成分とする基材の表面上に長い CNT により形成された CNT 配向膜が形成されたカーボンナノチューブ付部材、その製造方法、およびその製造装置を提供することである。

40

【0015】

開示されるさらに他のひとつの目的は、簡単な装置によってアルミニウムを主成分とする基材のろう付けと、CNT の合成とが可能な CNT 配向膜が形成されたカーボンナノチューブ付部材、その製造方法、およびその製造装置を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0016】

ここに開示されたカーボンナノチューブ付部材は、アルミニウムを主成分とする基材 (11) と、長さ 200 μm 以上の複数のカーボンナノチューブが所定の配向方向に沿って配向されており、基材の表面に配置された CNT 配向膜 (31、931) とを備え、CNT 配向膜は、基材の表面に部分的に形成されており、基材の表面のうち、CNT 配向膜が

50

形成されていない領域(43)には、CNT配向膜の合成および/または配向された成長を阻害する阻害要素(414、415、415、516)が設けられている。

【0017】

開示されるカーボンナノチューブ付部材によると、アルミニウムを主成分とする基材に、長さ200μm以上の複数のカーボンナノチューブが配向されたCNT配向膜を設けることができる。

【0018】

ここに開示されたカーボンナノチューブ付部材の製造方法は、アルミニウムを主成分とする基材の表面にカーボンナノチューブを合成するための触媒(21、221)を配置する工程(183、283)と、触媒の活性を維持するための二酸化炭素を供給するとともに、カーボンナノチューブの原料としてのアセチレンと二酸化炭素との体積比が1:10以上である雰囲気中において基材の表面にカーボンナノチューブを合成する工程(189、989)とを備える。

【0019】

開示される製造方法によると、二酸化炭素によって低温においても触媒の活性が維持される。よって、低温においてカーボンナノチューブの合成が可能となる。この結果、アルミニウムを主成分とする基材の表面にCNT配向膜を形成することができる。

【0020】

ここに開示されたカーボンナノチューブ付部材の製造装置は、少なくとも一部にろう材(313)を有しており、アルミニウムを主成分とする基材(11)を収容し、基材を加熱することによりろう材を溶融させ、基材をろう付けする加熱室(61)、および、ろう付けと、複数のカーボンナノチューブが所定の配向方向に沿って配向されたCNT配向膜(31、931)の基材の表面における合成とを、加熱室において行うように、加熱室にカーボンナノチューブの原料を供給する原料供給器(66)を備える。

【0021】

開示される製造装置によると、ろう付けと、カーボンナノチューブの合成とを、共通の加熱室において実行することができる。

【0022】

この明細書における開示された複数の態様は、それぞれの目的を達成するために、互いに異なる技術的手段を採用する。請求の範囲およびこの項に記載した括弧内の符号は、後述する実施形態の部分との対応関係を例示的に示すものであって、技術的範囲を限定することを意図するものではない。この明細書に開示される目的、特徴、および効果は、後続の詳細な説明、および添付の図面を参照することによってより明確になる。

【図面の簡単な説明】

【0023】

【図1】第1実施形態に係るカーボンナノチューブ付部材(CNT付部材)の基材を示す断面図である。

【図2】第1実施形態の中間段階における断面図である。

【図3】第1実施形態に係るCNT付部材を示す断面図である。

【図4】第1実施形態の製造方法を示すフローチャートである。

【図5】第1実施形態のCNT高さを示すグラフである。

【図6】第2実施形態の中間段階における断面図である。

【図7】第2実施形態に係るCNT付部材を示す断面図である。

【図8】第2実施形態の製造方法を示すフローチャートである。

【図9】第3実施形態の中間段階における断面図である。

【図10】第3実施形態の中間段階における断面図である。

【図11】第3実施形態に係るCNT付部材を示す断面図である。

【図12】第3実施形態のCNT高さを示すグラフである。

【図13】第3実施形態のCNT高さを示すグラフである。

【図14】第3実施形態のろう材層の成分を示す表である。

10

20

30

40

50

- 【図 1 5】第 4 実施形態の中間段階における断面図である。  
【図 1 6】第 4 実施形態の製造方法を示すフローチャートである。  
【図 1 7】第 4 実施形態の C N T 付部材を示す S E M 画像である。  
【図 1 8】図 1 7 に図示される S E M 画像を説明するための線図である。  
【図 1 9】第 4 実施形態の変形例を示す断面図である。  
【図 2 0】第 5 実施形態の中間段階における断面図である。  
【図 2 1】第 5 実施形態の中間段階における断面図である。  
【図 2 2】第 5 実施形態に係る C N T 付部材を示す断面図である。  
【図 2 3】第 5 実施形態の製造方法を示すフローチャートである。  
【図 2 4】第 6 実施形態に係る C N T 付部材を示す斜視図である。  
【図 2 5】第 7 実施形態に係る C N T 付部材を示す斜視図である。  
【図 2 6】第 8 実施形態に係る C N T 付部材を示す斜視図である。  
【図 2 7】第 9 実施形態に係る C N T 付部材を示す斜視図である。  
【図 2 8】第 9 実施形態に係る C N T 付部材を示す断面図である。  
【図 2 9】第 9 実施形態に係る C N T 付部材を示す断面図である。  
【図 3 0】第 9 実施形態の製造装置を示すブロック図である。  
【図 3 1】第 9 実施形態の製造方法を示すフローチャートである。  
【図 3 2】第 9 実施形態の変形例を示す断面図である。  
【発明を実施するための形態】

【 0 0 2 4 】

図面を参照しながら、複数の実施形態を説明する。複数の実施形態において、機能的におよび / または構造的に対応する部分および / または関連付けられる部分には同一の参照符号、または百以上の位が異なる参照符号が付される場合がある。対応する部分および / または関連付けられる部分については、他の実施形態の説明を参照することができる。

【 0 0 2 5 】

第 1 実施形態

この実施形態では、カーボンナノチューブ付部材 ( C N T 付部材 ) とその製造方法とが開示される。カーボンナノチューブ配向膜 ( C N T 配向膜 ) は、多数のカーボンナノチューブ ( C N T ) が配向された膜である。C N T 配向膜は、金属製の基材の表面上に配置されている。一例において、C N T は、基材の表面が提供する平面に対して垂直に延びるように配向されている。C N T 付部材は、C N T で被覆された部材、C N T 複合材料、または C N T 構造体とも呼ばれる。図 1、図 2、図 3 は、C N T 付部材の製造工程の各段階における材料の形状を示す。

【 0 0 2 6 】

図 1 は、C N T が形成される基材 1 1 の断面を示す。基材 1 1 は、アルミニウム製の金属板である。基材 1 1 は、純度 9 9 % を上回るアルミニウム製またはアルミニウム合金製である。アルミニウム合金には、添加金属として、S i、Z n、T i、M n、C u、F e、M g、および C r のなかから選択される少なくともひとつまたは複数を含むことができる。基材 1 1 は、厚さ T h A L を有する。基材 1 1 は、任意の厚さを有することができる。例えば、基材 1 1 は、箔と呼びうる厚さをもつ場合がある。基材 1 1 は、二次元に広がる平面を提供する。基材 1 1 は、表面形状を自ら維持可能な構造物である。また、基材 1 1 は、放熱器または熱交換器などの熱伝達製品を形成しうる構造部材としての厚さをもつ場合がある。

【 0 0 2 7 】

図 2 は、基材 1 1 の表面に形成された触媒層 2 1 を示す。触媒層 2 1 は、C N T を合成するための金属材料によって形成されている。触媒層 2 1 は、例えば鉄、ニッケル、コバルトなどによって形成されている。この実施形態では、基材 1 1 の表面の全体を覆うように触媒層 2 1 が形成されている。触媒層 2 1 は、厚さ T h F e を有する。

【 0 0 2 8 】

図 3 は、C N T 付部材 1 の断面を示す。基材 1 1 の表面に触媒層 2 1 が配置されている

。触媒層 2 1 の上には、C N T 配向膜 3 1 が形成されている。C N T 配向膜 3 1 は、多数の C N T を有する。これら多数の C N T は、配向方向 O R D に向けて配向されている。図示の例では、多数の C N T は、C N T の長手方向が、基材 1 1 の表面に対して垂直方向に沿って延びるように配向されている。配向方向 O R D は、基材 1 1 の表面に対して傾斜していてもよい。なお、C N T は、やや蛇行しながら配向方向 O R D に沿って延びている。C N T 配向膜 3 1 は、配向方向 O R D に沿って高さ H t C N T を有する。

#### 【 0 0 2 9 】

C N T 配向膜 3 1 は、基材 1 1 の表面の全体にわたって広がっている。C N T 配向膜 3 1 は、基材 1 1 の上に凸部 3 2 を形成するように突出している。高さ H t C N T は、ひとつの C N T の長さに概略相当する。ひとつの C N T は屈曲しながら配向方向 O R D へ延びてい 10  
る。よって、ひとつの C N T の長さは、高さ H t C N T より長い。高さ H t C N T は、C N T がもつ高い熱伝導性を、放熱器または熱交換器などの熱伝達製品として有効に利用しうる高さである。例えば、C N T が空気と接触する場合、C N T 配向膜 3 1 は空気に対して広い表面積を提供する。さらに、C N T は、基材 1 1 から C N T の長さ方向に沿って高い熱伝導率を提供する。この結果、C N T 配向膜 3 1 は、空気と基材 1 1 との間の熱交換を促進する。

#### 【 0 0 3 0 】

図 4 において、C N T 付部材 1 の製造方法 1 8 0 は、基材 1 1 の表面上に C N T 配向膜 3 1 を形成するための複数の段階を有している。製造方法 1 8 0 は、C N T を合成するための加熱炉の中に基材 1 1 を配置した後に実行される。図示される順序は一例であり、付 20  
加的な要請に応じて変更される場合がある。

#### 【 0 0 3 1 】

製造方法 1 8 0 は、複数の処理、すなわち工程を有する。製造方法 1 8 0 は、触媒付与処理 1 8 3 を有する。触媒付与処理 1 8 3 は、基材 1 1 の表面上に触媒層 2 1 を形成する。触媒層 2 1 は、液コート、蒸着、スパッタリング、気相中添加など多様な手法のいずれかによって形成することができる。製造方法 1 8 0 は、形状加工処理 1 8 5 を有することができる。形状加工処理 1 8 5 は、オプションとして用意されている。形状加工処理 1 8 5 では、基材 1 1 が所定の形状、例えば三次元的な形状に加工される。ここでは、切断、曲げなどの機械的な加工が加えられる。製造方法 1 8 0 は、予熱処理 1 8 7 を有する。予 30  
熱処理 1 8 7 は、基材 1 1 と触媒層 2 1 とを C N T の合成に適した温度に予熱する。

#### 【 0 0 3 2 】

製造方法 1 8 0 は、C N T 合成処理 1 8 9 を有する。C N T 合成処理 1 8 9 では、加熱炉の中に C N T の原料が供給される。原料は、加熱炉の中で加熱され、分解される。触媒層 2 1 を形成する触媒の上に、C N T が合成される。C N T は、配向方向 O R D に沿って成長する。この結果、C N T 配向膜 3 1 が形成される。製造方法 1 8 0 は、冷却処理 1 9 1 を有する。冷却処理 1 9 1 は、C N T 付部材 1 を、例えば常温まで冷却する。

#### 【 0 0 3 3 】

図 5 は、製造方法 1 8 0 における複数のパラメータと C N T 高さ H t C N T (  $\mu\text{m}$  : マイクロメートル ) との関係を示すグラフである。パラメータは、C N T 原料の体積比 C O 2 / C 2 H 2 (  $v/v$  )、および触媒層 2 1 の厚さ T h F e (  $\text{nm}$  : ナノメートル ) である。このグラフは、下記の条件における C N T 高さ H t C N T を示している。 40

#### 【 0 0 3 4 】

触媒付与処理 1 8 3 において、基材 1 1 の上にスパッタ法により触媒層 2 1 が形成される。触媒層 2 1 は、鉄を 0  $\text{nm}$  から 8  $\text{nm}$  の範囲で堆積させることによって形成されている。基材 1 1 は、純度 9 9 % を上回るアルミニウム製であって、厚さ 0 . 2  $\text{mm}$  の箔である。この例では、形状加工処理 1 8 5 は実行されない。

#### 【 0 0 3 5 】

予熱処理 1 8 7 において、基材 1 1 と触媒層 2 1 とは、アルゴンと水素との混合ガスの中で 6 0 0 まで昇温され、6 0 0 の雰囲気中で 5 分間保持される。

#### 【 0 0 3 6 】

CNT合成処理189において、触媒層21の上に、CNTの原料ガスが供給される。原料ガスは、アセチレン( $C_2H_2$ )と二酸化炭素( $CO_2$ )とを、体積比1:0~1:266で混合したものである。この結果、CNT合成処理における雰囲気、すなわち原料ガスは、アセチレン、水素、二酸化炭素、およびアルゴンの混合ガスである。二酸化炭素は、触媒の活性を維持するためのガスとして添加されている。CNT合成処理189は、CNTの原料としてのアセチレンと二酸化炭素との体積比が1:10以上1:300以下である雰囲気中において基材11の表面にCNTを合成する。CNT合成は、熱CVD処理とも呼ぶことができる。CNT合成処理189は、120分間実行される。なお、製造装置は、アセチレンの量と、二酸化炭素の量とを調節する制御装置を備える。

【0037】

10

図示されるように、体積比1:3.3~1:266の範囲、または体積比1:10~1:266の範囲においてCNT配向膜31の成長が促進されている。すべての体積比において、触媒層21の厚さThFeが約2nm~3nmであるときにCNT配向膜31の高さHtCNTが最高値となっている。すべての体積比において、400μmを上回る高さのCNT配向膜31が得られている。

【0038】

図示されるように、体積比1:3.3において、400μmを上回る高さのCNT配向膜31が得られている。体積比1:10では、3nmを上回る厚さの触媒層21において400μmを上回る高さのCNT配向膜31が得られている。体積比1:100において最も高いCNT配向膜31が得られている。さらに、体積比1:266においても、500μm、または600μmを上回る高さのCNT配向膜31が得られている。

20

【0039】

発明者らの知見によると、体積比1:10未満では、CNTの合成が不安定であると考えられた。その一方で、体積比1:300でも、高いCNT配向膜31が合成されることが考えられた。よって、体積比1:10以上、1:300以下の範囲内においては、200μm、300μm、または400μm、さらに望ましくは500μmを上回る高さのCNT配向膜31が得られると考えられる。

【0040】

CNT原料中のアセチレンと二酸化炭素の体積比は、1:10以上、1:300以下に設定することができる。CNT原料の体積比は、1:30以上、1:100以下に設定されてもよい。触媒層21の厚さThFeは、触媒が鉄である場合、3nm付近に設定することができる。例えば、触媒層21の厚さThFeは、2nm以上に設定することができる。触媒層21の厚さThFeは、3nm以上に設定されてもよい。これらの設定は、高いCNT配向膜31を安定的に合成することを可能とする。触媒層21の厚さThFeは、6nm以下に設定することができる。触媒層21の厚さThFeは、5nm以下に設定されてもよい。これらの下限と上限とは、所定の高さ以上のCNT配向膜31を得るように選択することができる。高さHtCNTの傾斜は、触媒層21の厚さThFeが3nmを上回る領域において緩い。そこで、触媒層21の厚さThFeは、比較的厚い領域、例えば3nm以上、5nm以下に設定されてもよい。

30

【0041】

40

この実施形態によると、アルミニウム製の基材11の上に、高いCNT配向膜31が形成される。具体的には、200μm以上、または200μmを上回る高さをもつCNT配向膜31が得られる。さらに、300μm以上の高さをもつCNT配向膜31が得られる。さらに望ましい態様では、400μm以上の高さをもつCNT配向膜31が得られる。

【0042】

## 第2実施形態

この実施形態は、先行する実施形態を基礎的形態とする変形例である。上記実施形態では、CNT配向膜31は、基材11の表面の全体に形成されている。これに代えて、この実施形態では、CNT配向膜31は、基材11の表面の一部分に形成される。

【0043】

50



図 6 において、基材 1 1 の表面上には、基材 1 1 の表面の一部分だけを覆うように部分的な触媒層 2 2 1 が形成されている。触媒層 2 2 1 は、C N T 配向膜 3 1 の形成が意図される配向領域 4 1 に形成されている。触媒層 2 2 1 は、C N T 配向膜 3 1 の形成が意図されない非形成領域 4 2 には形成されていない。この結果、基材 1 1 の表面上には、配向領域 4 1 と、非形成領域 4 2 とが形成される。非形成領域 4 2 では C N T 配向膜 3 1 が合成されないか、または長く成長しない。

#### 【 0 0 4 4 】

図 7 において、C N T 付部材 1 は、凸部 3 2 と、凹部 3 3 とを有する。凸部 3 2 は、基材 1 1 から突出するように形成された長い C N T の束である。凸部 3 2 は、島状の C N T 配向膜 3 1 と呼ぶことができる。基材 1 1 の表面上には、任意の断面において互いに離れた複数の凸部 3 2 が形成されている。凹部 3 3 は、2 つの凸部 3 2 の間に位置している。凹部 3 3 においては、C N T が合成されていないか、または C N T が C N T 配向膜 3 1 より乱れて伸びている。

#### 【 0 0 4 5 】

図 8 において、この実施形態の製造方法では、触媒付与処理 2 8 3 が採用されている。触媒付与処理 2 8 3 は、触媒を配置する工程である。触媒付与処理 2 8 3 は、部分的な触媒層 2 2 1 を形成する。触媒層 2 2 1 は、ステンスルマスクまたはフォトリソグラフィなどを利用して形成することができる。触媒付与処理 2 8 3 は、C N T 配向膜 3 1 を所定のパターン形状に形成するためのパターン形成処理とも呼ばれる。触媒付与処理 2 8 3 は、基材 1 1 の表面のうち、C N T が形成されない非形成領域 4 2 に触媒を設けることなく、C N T が形成される配向領域 4 1 に触媒を設ける工程である。この実施形態では、製造工程におけるパラメータは、先行する実施形態と同じである。後続の処理 1 8 5 - 1 9 1 は、先行する実施形態と同じである。触媒を設ける工程の後に、基材 1 1 を所定の形状に加工する形状加工処理 1 8 5 が実行される。

#### 【 0 0 4 6 】

この実施形態でも、先行する実施形態と同様に、長い C N T 配向膜 3 1 が形成される。さらに、C N T 配向膜 3 1 を、基材 1 1 上に部分的に形成することができる。

#### 【 0 0 4 7 】

##### 第 3 実施形態

この実施形態は、先行する実施形態を基礎的形態とする変形例である。上記実施形態では、基材 1 1 は、アルミニウムを主成分とする単一材料製である。これに代えて、この実施形態では、基材 1 1 は、主層 3 1 2 とろう材層 3 1 3 とを有する。

#### 【 0 0 4 8 】

図 9 において、基材 1 1 は、アルミニウム製の主層 3 1 2 と、ろう材層 3 1 3 とを有する。ろう材層 3 1 3 は、アルミニウムを主成分とする合金層である。ろう材層 3 1 3 は、主層 3 1 2 より低い融点をもつ。ろう材層 3 1 3 は、厚さ  $T h B r z$  を有する。この実施形態では、ろう材層 3 1 3 の上に、C N T 配向膜 3 1 が形成される。

#### 【 0 0 4 9 】

図 1 0 に図示されるように、ろう材層 3 1 3 の上に、触媒層 2 2 1 が形成される。触媒層 2 2 1 は、配向領域 4 1 と非形成領域 4 2 とを形成するように部分的に配置される。

#### 【 0 0 5 0 】

図 1 1 において、C N T 付部材 1 は、ろう材層 3 1 3 の上に形成された C N T 配向膜 3 1 を有する。この実施形態でも、C N T 配向膜 3 1 は、凸部 3 2 と凹部 3 3 とを形成する。

#### 【 0 0 5 1 】

図 1 2、図 1 3 は、ろう材の成分と C N T 高さ  $H t C N T$  との関係を示すグラフである。図 1 4 は、試料とされたろう材層の成分を示す。Type A 1 と名付けられたろう材は、アルミニウムを主成分とし、Z n を 2 ~ 3 . 2 % 含有する点が特徴的である。Type B と名付けられたろう材は、アルミニウムを主成分とし、S i を 0 . 6 ~ 0 . 9 %、C u を 0 . 2 ~ 0 . 4 %、M n を 1 % ~ 2 %、T i を 0 . 1 ~ 0 . 2 % 含有する点が特徴的で

10

20

30

40

50

ある。Type A 2 と名付けられたろう材は、Type A 1 より Zn が少ない点特徴的である。Type C と名付けられたろう材は、アルミニウムを主成分とし、Si を 9 ~ 11 % 含有させたものである。このグラフは、下記の条件における CNT 高さ  $H_t \text{ CNT}$  を示している。触媒付与処理 183 において、基材 11 の上にスパッタ法により触媒層 21 が形成される。触媒層 21 は、鉄を 0 nm から 7 nm の範囲で堆積させることによって形成されている。基材 11 は、厚さ 0.2 mm の箔である。ろう材層 313 の厚さ  $ThB_{rz}$  は、厚さ  $ThAL$  の約 10 % 以上である。予熱処理 187 は先行する実施形態と同じである。

#### 【0052】

CNT 合成処理 189 において、触媒層 21 の上に、CNT の原料ガスが供給される。原料ガスは、アセチレン ( $C_2H_2$ ) と二酸化炭素 ( $CO_2$ ) とを、体積比 1 : 30 で混合したものである。二酸化炭素は 1.8 体積百分率 (vol %) を占める。アセチレンは 0.06 体積百分率 (vol %) を占める。体積 CNT 合成処理は、120 分間実行される。

#### 【0053】

図中には、ろう材層 313 をもたない基準品 (Reference) が図示されている。図示されるように、ろう材層 313 があっても、基準品と同様の高さをもつ CNT 配向膜 31 が形成される。この実施形態によると、ろう付け工程に利用可能な CNT 付部材 1 が提供される。この場合、CNT 付部材 1 は、ろう付け工程に供給される。CNT 付部材 1 は、ろう付け工程において所定の形状の物品をなすように他の部材と接合される。

#### 【0054】

##### 第 4 実施形態

この実施形態は、先行する実施形態を基礎的形態とする変形例である。上記実施形態では、部分的な触媒層 221 によって、CNT 配向膜 31 の形状が制御される。これに代えて、CNT の合成および / または配向された成長を積極的に阻害する要素を基材 11 の表面上に設けてもよい。この実施形態は、阻害要素として、基材 11 の表面に設けられた粗面を利用する。

#### 【0055】

図 15 において、基材 11 の表面上には、複数の溝 414 によって粗面が形成されている。この実施形態では、溝 414 が阻害要素である。また、粗面も阻害要素である。粗面は、ひとつの溝 414 に対応する。ひとつの溝 414 は、U 字型の凹面によって区画形成されている。溝 414 は、基材 11 の本来の表面 (平面) より凹んだ部分である。U 字型の凹面は、基材 11 の本来の表面に対して交差する面を提供している。U 字型の凹面は、基材 11 の本来の表面 (平面) とは異なる方向を指向する面によって区画形成されている。2 つの溝 414 の間には、基材 11 の本来の表面が残されている。基材 11 の本来の表面は、配向領域 41 を提供する。溝 414 は、非配向領域 43 を提供する。より具体的には、溝 414 は、CNT の配向された成長を阻害する。非配向領域 43 では、CNT は配向方向 ORD に沿って配向されることなく、ランダムに配置されている。

#### 【0056】

図 16 において、この実施形態の製造方法では、粗面加工処理 481 が採用されている。粗面加工処理 481 は、基材 11 に対する機械的または化学的な表面加工によって、基材 11 の表面に部分的な粗面を形成する。粗面は、基材 11 の表面上の他の部位よりも粗い表面を形成する。粗面は、基材 11 の表面を規定する平面に対して傾斜する多様な面によって形成される。粗面は、基材 11 の表面にキズを付けることによって形成することができる。また、粗面は、基材 11 の研磨加工前の表面を残すことによって形成されてもよい。粗面加工処理 481 は、CNT 配向膜 31 を所定のパターン形状に形成するためのパターン形成処理とも呼ばれる。粗面加工処理 481 は、阻害要素を設けるための工程である。粗面加工処理 481 は、CNT が形成される配向領域 41 の表面よりも凹凸状の粗面を CNT が形成されない非配向領域 43 に設ける工程である。この実施形態では、粗面は、基材 11 の表面に溝 414 を形成することによって形成される。

## 【 0 0 5 7 】

ひとつの例において、基材 1 1 は、純度 9 9 % を上回るアルミニウム製の板である。なお、基材 1 1 はアルミニウム合金製でもよい。粗面加工処理 4 8 1 において、溝 4 1 4 は、半導体製造工程において使用されるスクライブ装置によって形成される。溝 4 1 4 は、深さ 2 0  $\mu\text{m}$ 、幅 1 0  $\mu\text{m}$  の U 字型の断面をもつ溝である。残る処理工程 1 8 3 - 1 9 1 は先行する実施形態と同じである。粗面加工処理 4 8 1 によって提供される阻害要素を設ける工程の後に、基材 1 1 を所定の形状に加工する形状加工処理 1 8 5 が実行される。

## 【 0 0 5 8 】

図 1 7 は、この実施形態の一例による CNT 付部材 1 の SEM 画像である。図 1 8 は、SEM 画像における各部を説明するための線図である。図 1 7 および図 1 8 は、CNT 付部材 1 から CNT 配向膜 3 1 の一部を剥ぎ取った後の破断面を斜め上から見た斜視図に相当する。図の上部には、CNT 配向膜 3 1 の上端面 TP が表れている。上端面 TP は、多数の CNT の上端によって形成されている。上端面 TP には、CNT 配向膜 3 1 の一部を剥ぎ取る際に発生したひび割れ CV が見られる。図の中部には、CNT 配向膜 3 1 の破断面 SD が表れている。破断面 SD は、多数の CNT の側面によって形成されている。破断面 SD には、CNT を示す縦方向の多数の条線が見られる。また、破断面 SD には、CNT 配向膜 3 1 の一部を剥ぎ取る際に発生したランダムな CNT の塊 FZ が見られる。図の下部には、基材 1 1 の表面が表れている。基材 1 1 の表面には溝 4 1 4 が見られる。

## 【 0 0 5 9 】

図示されるように、平面状の配向領域 4 1 の上には、配向された多数の CNT が見られる。このため、配向領域 4 1 の上には、CNT 配向膜 3 1 によって形成された凸部 3 2 が位置している。

## 【 0 0 6 0 】

一方、溝 4 1 4 の上には、配向がランダムに乱れた領域が見られる。溝 4 1 4 を形成する傾斜した面に起因して、CNT は斜面垂直方向に成長するため、対向する斜面から成長する CNT 同士が成長を阻害し、CNT の基板垂直方向への成長が妨げられる。成長の阻害は、上端面 TP において顕著に表れている。溝 4 1 4 に対応する位置には、細い凹部 3 3 が形成されている。この凹部 3 3 は、密度の低下した CNT (換言すると空隙) によって形成されている。溝 4 1 4 によって形成された粗面によって溝 4 1 4 の上には CNT 配向膜 3 1 が形成されない。この結果、溝 4 1 4 の上には、凹部 3 3 が形成されている。なお、凸部 3 2 と凹部 3 3 との境界となる角部では、CNT の上端部がやや傾き、膨らんだように見える。

## 【 0 0 6 1 】

この実施形態では、基材 1 1 の上に、CNT が配向された CNT 配向膜 3 1 の領域と、CNT が低密度ないしランダムに延びる領域とが形成されている。言い換えると、CNT の密度ないし配向状態の差、端的には配向の有無によって CNT 配向膜 3 1 の形状が規定されている。なお、この実施形態では、複数の溝 4 1 4 は、互いに平行に延びるように形成されている。これに代えて、複数の溝 4 1 4 は、互いに交差しながら、複数の方向に延びるように形成されていてもよい。複数の溝 4 1 4 は、非配向領域 4 3 においてランダムな方向に延びるように形成されていてもよい。

## 【 0 0 6 2 】

図 1 9 は、溝 4 1 4 の他の例を示している。溝 4 1 4 は、V 字型の断面を有する。ひとつの溝 4 1 4 は、V 字型に配置された一对の斜面 4 1 5 によって区画形成されている。CNT は、面に対して垂直に成長してゆくから、斜面 4 1 5 は、溝 4 1 4 の中において、CNT が配向方向 ORD へ成長することを妨げる。なお、溝 4 1 4 の形状は、U 字型、V 字型に限定されない。溝 4 1 4 は、例えば、半円形断面、または長方形断面など多様な形状をもつことができる。この実施形態でも、先行する実施形態と同様に、長い CNT 配向膜 3 1 が形成される。さらに、CNT 配向膜 3 1 を、基材 1 1 上に部分的に形成することができる。また、細長い範囲を占める CNT 配向膜 3 1 が形成される。複数の溝 4 1 4 に沿って複数の細長い島状の CNT 配向膜 3 1 が形成される。別の観点では、複数の線状の

凹部 33 が CNT 配向膜 31 の間に形成される。複数の島状の CNT 配向膜 31 は、基材 11 の表面において空気などの熱媒体との熱交換面積を増加させる。細長い島状の CNT 配向膜 31 は、板状でもある。複数の板状の CNT 配向膜 31 は、それらの間に、熱媒体を導入可能な隙間を有している。複数の板状 CNT 配向膜 31 は、それらの間のすきまに熱媒体が流れこむことで、フィンのような機能を発揮する。

#### 【0063】

##### 第 5 実施形態

この実施形態は、先行する実施形態を基礎的形態とする変形例である。上記実施形態では、溝 414 および / または粗面によって阻害要素が提供されている。これに代えて、CNT の成長および / または配向を積極的に阻害する材料層を基材 11 の表面上に設けてもよい。この実施形態は、阻害要素として、炭素 (C) を含む有機材料層が利用される。

10

#### 【0064】

図 20 において、基材 11 の表面上には、炭素を含む有機材料層 516 が部分的に形成されている。有機材料層 516 は、容易に入手可能な塗料、サインペンなどによって形成することができる。一例では、基材 11 の表面の一部を油性サインペンによって塗り潰すことによって有機材料層 516 が形成されている。この実施形態では、有機材料層 516 が阻害要素である。有機材料層 516 は、非配向領域 43 に配置されている。言い換えると、有機材料層 516 によって配向領域 41 と非配向領域 43 とが形成されている。

#### 【0065】

図 21 に図示されるように、触媒層 21 は、有機材料層 516 の上にも形成される。有機材料層 516 は、触媒層 21 に隣接して配置されている。有機材料層 516 は、有機材料層 516 と接する触媒の活性を低下させる。有機材料層 516 は、触媒の活性を失わせる場合もある。この結果、有機材料層 516 の上には CNT が成長しないか、または配向されない。この実施形態では、有機材料層 516 の上に触媒層 21 が形成される。これに代えて、触媒層 21 の上に有機材料層 516 が設けられてもよい。有機材料層 516 は、触媒層 21 に隣接して設けられることが望ましい。なお、有機材料層 516 は、炭素含有材料層とも呼ばれる。

20

#### 【0066】

図 22 において、CNT 付部材 1 は、凸部 32 と、凹部 33 とを有する。凹部 33 の下に有機材料層 516 の痕跡が残されている。この痕跡は、CNT 合成処理における高温によって有機材料層 516 が変質することによって形成される残留層である。CNT 合成処理における高温に起因して、有機材料層 516 は、触媒層と混じりあい、残留層を形成する。よって、残留層は触媒層 21 を構成する元素と炭素とを含む。残留層は、炭素含有材料層とも、炭素含有残留層とも呼ばれる。

30

#### 【0067】

図 23 において、この実施形態の製造方法では、有機層形成処理 581 が採用されている。有機層形成処理 581 は、阻害要素を設ける工程である。有機層形成処理 581 は、CNT が形成されない非配向領域 43 に、炭素を含む有機材料層 516 が設けられる。有機層形成処理 581 は、CNT 配向膜 31 を所定のパターン形状に形成するためのパターン形成処理とも呼ばれる。残る処理工程 183 - 191 は先行する実施形態と同じである。有機層形成処理 581 によって提供される阻害要素を設ける工程の後に、基材 11 を所定の形状に加工する形状加工処理 185 が実行される。有機層形成処理 581 は触媒付与処理 183 の後に行っても良いし、触媒付与処理 183 は形状加工処理 185 の後ないし予熱処理 187 の後に行っても良い。

40

#### 【0068】

この実施形態でも、先行する実施形態と同様に、長い CNT 配向膜 31 が形成される。さらに、CNT 配向膜 31 を、基材 11 上に部分的に形成することができる。

#### 【0069】

##### 第 6 実施形態

この実施形態は、先行する実施形態を基礎的形態とする変形例である。CNT 配向膜 3

50

1 は、多様な形状の基材に形成することができる。また、C N T 配向膜 3 1 は、多様な形状に形成することができる。

【 0 0 7 0 】

図 2 4 に図示される C N T 付部材 1 は、板または箔と呼べる形状を有する。C N T 付部材 1 の厚さなどは、自らの形状を維持できるように設定されている。C N T 付部材 1 は、二次元に広がる平面を提供する。C N T 付部材 1 は、表面形状を自ら維持可能な構造物である。C N T 付部材 1 は、自立可能な二次元構造物と呼ぶことができる。C N T 配向膜 3 1 は、縞模様を形成している。すなわち、C N T 配向膜 3 1 は、ストライプ状に並べられた凸部 3 2 と凹部 3 3 とを提供するように形成されている。

【 0 0 7 1 】

#### 第 7 実施形態

この実施形態は、先行する実施形態を基礎的形態とする変形例である。図 2 5 に図示される C N T 付部材 1 は、パイプと呼べる形状を有する。C N T 付部材 1 の厚さなどは、自らの形状を維持できるように設定されている。C N T 付部材 1 は、三次元に広がる曲面を提供する。C N T 付部材 1 は、表面形状を自ら維持可能な構造物である。C N T 付部材 1 は、自立可能な三次元構造物と呼ぶことができる。C N T 配向膜 3 1 は、三次元に連続的に滑らかに広がる面上に形成されている。C N T 配向膜 3 1 は、三次元の面の一部を占める凸部 3 2 と、それに隣接する凹部 3 3 とを提供するように形成されている。C N T 付部材 1 は、ブロック、メッシュなど、多様な立体形状を採用することができる。

【 0 0 7 2 】

#### 第 8 実施形態

この実施形態は、先行する実施形態を基礎的形態とする変形例である。図 2 6 に図示される C N T 付部材 1 は、立体的な形状を有する。C N T 付部材 1 の厚さなどは、自らの形状を維持できるように設定されている。C N T 付部材 1 は、互いに交差するように広がる複数の平面を有する。C N T 付部材 1 は、複数の平面と、それらの間をつなぐ微小な曲面が提供されている。C N T 付部材 1 は、自立可能な三次元構造物と呼ぶことができる。

【 0 0 7 3 】

この実施形態では、純度 9 9 % を上回るアルミニウム製の板をブラケット状に曲げることによって基材が形成されている。この実施形態の製造方法では、基材は、電気炉内へ設置され、アルゴン気流の下で、6 0 0 まで加熱される。次に、8 0 に加熱されたフェロセンからの蒸気をアルゴンに含ませる。基材は、この雰囲気内に 3 分間にわたって暴露される。続いて、先行する実施形態と同様の処理によって C N T 配向膜が合成される。

【 0 0 7 4 】

なお、基材の表面に阻害要素が設けられてもよい。また、平板に阻害要素を設けた後に、平板を立体形状に加工し、その後、C N T 配向膜を合成しても良い。この実施形態によると、ブラケット状の基材の表面全体に C N T 配向膜が形成される。

【 0 0 7 5 】

#### 第 9 実施形態

この実施形態は、先行する実施形態を基礎的形態とする変形例である。図 2 7 に図示されるように、C N T 付部材 1 は、2 つの媒体 M 1、M 2 の間の熱交換を提供する熱交換器の形状を有している。C N T 付部材 1 は、複雑で多様な面を提供している。この実施形態でも、C N T 付部材 1 は、基材 1 1 と、基材 1 1 の表面上に形成された C N T 配向膜 3 1、9 3 1 とを有する。

【 0 0 7 6 】

この実施形態では、熱交換器を形成するための形状に加工された複数の基材 1 1 が組み合わせられて熱交換器の形状を提供している。基材 1 1 は、アルミニウムおよびアルミニウム合金である。基材 1 1 の表面には、ろう材およびろう付けに適したアルミニウムまたはアルミニウム合金が露出している。基材 1 1 は、一対のヘッダ 5 1、および一対のヘッダ 5 1 の間を連結する複数のチューブ 5 2 を有する。さらに、基材 1 1 は、一次媒体 M 1 に対する表面積を増加させるための複数のフィン 5 3 を有する。一次媒体 M 1 は、C N T

10

20

30

40

50

付部材 1 の外表面上を流れる。二次媒体 M 2 は、一对のヘッダ 5 1 と複数のチューブ 5 2 との中を流れる。

【 0 0 7 7 】

図 2 8 に図示されるように、C N T 付部材 1 の表面には、C N T 配向膜 3 1 によって凸部 3 2 と凹部 3 3 とが形成されている。一次媒体 M 1 は、C N T 配向膜 3 1 に接して流れる。ただし、図 2 8 に図示される形状では、一次媒体 M 1 と C N T 配向膜 3 1 との熱交換が十分に得られない場合がある。

【 0 0 7 8 】

図 2 9 は、この実施形態における整形された C N T 配向膜 9 3 1 を示す。整形された C N T 配向膜 9 3 1 は、台形である。整形された C N T 配向膜 9 3 1 は、基材 1 1 に近い基部と、基材 1 1 から離れた端部とを有している。基部は、端部より太い。整形された C N T 配向膜 9 3 1 は、基材 1 1 側において太く、基材 1 1 から離れるにつれて細くなるように整形されている。整形された C N T 配向膜 9 3 1 においては、島状の C N T の束の中において、やや傾斜して延びる C N T が含まれる。ただし、島状の C N T の束に含まれる多数の C N T は、依然として、基材 1 1 の表面の平面に対して垂直に配向されているといえる。整形された C N T 配向膜 9 3 1 においても、複数の C N T は、概ね基材 1 1 の表面の平面に対して垂直に配向されているといえる。整形された C N T 配向膜 9 3 1 は、凹部 3 3 の中に、一次媒体 M 1 を導入しやすい。この結果、熱交換器として高い熱交換性能を発揮できる C N T 付部材 1 が製造される。

【 0 0 7 9 】

図 3 0 に図示される製造装置は、既存の熱交換器のための製造装置を改造して構成することができる。C N T 付部材 1 の製造装置は、加熱室 ( H E A T C ) 6 1 と、冷却処理を実行するための冷却室 ( C O O L C ) 6 2 とを有する。

【 0 0 8 0 】

加熱室 6 1 は、少なくとも一部にろう材を有しており、アルミニウムを主成分とする複数の基材 1 1 を収容する。加熱室は、複数の基材 1 1 を加熱することによりろう材を溶融させ、複数の基材 1 1 をろう付けする。加熱室 6 1 は、熱交換器としての複数の部材をろう付けするためのろう付け炉である。同時に、加熱室 6 1 は、C N T を合成するための反応炉でもある。C N T は、ろう付けと同時に、またはろう付けの前またはろう付けの後に合成される。

【 0 0 8 1 】

冷却室 6 2 は、加熱室 6 1 においてろう付けされ、C N T 配向膜 3 1 が形成された C N T 付部材 1 を冷却するための室である。冷却室 6 2 は、C N T 配向膜 3 1 を整形するための整形室でもある。なお、加熱室 6 1 の前に、予熱処理を実行するための予熱室を設けてもよい。製造装置は、搬送装置 6 3、および各室 6 1、6 2 内の雰囲気を維持するためのゲート装置 6 4 a、6 4 b、6 4 c を有する。ゲート装置 6 4 a、6 4 b、6 4 c はエアカーテンまたはゲートバルブによって提供することができる。

【 0 0 8 2 】

製造装置は、加熱室 6 1 に触媒の原料を供給する触媒供給器 ( C A T - S U P ) 6 5 を有する。触媒供給器 6 5 は、C N T を合成するための触媒を基材 1 1 の表面に設けるように触媒の原料を供給する。よって、加熱室 6 1 は、基材 1 1 の表面に触媒を付与するための炉、言い換えると触媒層を形成するための反応炉でもある。触媒は、ろう付けと同時に、または、ろう付けの前に、またはろう付けの後に基材 1 1 に付与される。触媒は、C N T 合成の前に、または C N T 合成と同時に基材 1 1 に付与される。

【 0 0 8 3 】

製造装置は、加熱室 6 1 に C N T の原料を供給する C N T 原料供給器 ( C N T - S U P ) 6 6 を有する。C N T 原料供給器 6 6 によってアセチレンなどの原料が加熱室 6 1 内に供給され、C N T が合成される。C N T 原料供給器 6 6 は、ろう付けと、C N T 配向膜 3 1 の合成とを、加熱室 6 1 において行うように、加熱室 6 1 に C N T の原料を供給する。C N T 原料供給器 6 6 は、アセチレンを供給する装置と、二酸化炭素を供給する装置と、

それらを制御する制御装置とを含むことができる。制御装置は、基材の表面にCNTが合成されるときに、求められるCNTが合成されるように適した量のアセチレンを供給する。同時に、制御装置は、アセチレンと二酸化炭素との体積比が1:10以上1:300以下となるようにアセチレンと二酸化炭素との供給量を調節する。

#### 【0084】

製造装置は、整形液を供給する整形液供給器(LQD-SUP)67を有する。整形液供給器67は、冷却室62に整形液を供給するように構成されている。整形液は、例えばエタノールである。整形液は蒸気として供給され、冷却室内で液化しても良い。製造装置は、整形液を回収し再利用するための整形液回収器(LQD-REC)68を有する。整形液回収器68は、冷却室62から整形液を回収するよう構成されている。

10

#### 【0085】

図31において、この実施形態の製造方法では、上述の処理183-187、および191に加えて、パターン形成処理981と、整形処理993とが実行される。パターン形成処理981は、先行する実施形態で開示された処理のいずれかを採用することができる。この実施形態では、阻害要素としての粗面および/または有機材料層が採用される。これらの手法は、触媒に依存することなくCNT配向膜31を部分的に形成できる。よって、形状加工処理185の前に実行することができる。この製造方法では、触媒付与処理183の前に、形状加工処理185が実行される。形状加工処理185は、熱交換器を形成する複数の部材を、ろう材層を含む基材によって組み立てる工程でもある。この実施形態では、形状加工処理185の後に、予熱処理187が実行される。さらに、予熱処理187の後に、触媒付与処理183が実行される。触媒付与処理183では、例えば、予熱された加熱室61の中に、フェロセン蒸気などの触媒含有ガスを供給することにより、予熱された基材11に触媒が付与される。この実施形態では、複数の面を有する熱交換器の形状をもつ基材の表面に、触媒が付与される。

20

#### 【0086】

この製造方法では、先行する実施形態におけるCNT合成処理189に代えて、処理989が実行される。処理989は、触媒付与処理183の後に実行される。処理989は、ろう付けとCNT合成とを共通の加熱室61において実行する処理である。

#### 【0087】

整形処理993は、CNT配向膜31を熱交換器に適した形状に整形する。整形処理993は、複数のCNTを集め、または束ねることによって、島状のCNTの束の先端部において細く収縮させる凝集処理でもある。複数のCNTを集め、それらの間隔を減少させるために、液体を利用することができる。液体は、整形液とも呼ぶことができる。整形液の一例は、揮発性の液体である。冷却室62に整形液が供給されることにより、整形液はCNT配向膜31を濡らす。また整形液は蒸気として冷却室62に供給され、冷却室内にて液化してCNT配向膜31を濡らすこともできる。雰囲気ガス中の整形液蒸気濃度を低下させる、ないし雰囲気温度を上昇させる、ないし時間の経過により整形液が蒸発する。このCNT配向膜31が濡れて乾燥する過程で、複数のCNTは凝集して束ねられる。この結果、台形状の整形されたCNT配向膜931が得られる。このときの整形液の作用は、髪を整える整髪料の作用に似ている。整形液としては、有機溶剤を利用することができる。

30

40

#### 【0088】

この実施形態によると、長いCNTを熱交換器の表面に形成することができる。しかも、所定の形状をもったCNT配向膜31を熱交換器の表面に形成することができる。さらに、CNT配向膜31の形状を熱交換器に適した形状に整形することができる。

#### 【0089】

図32は、整形されたCNT配向膜931の他の例を示している。CNT配向膜931の形状は、製造方法における各種の条件を変更することによって調節することができる。例えば、島状の一群のCNT配向膜931におけるCNTの密度、および整形液の種類、整形液の蒸発速度などによってCNT配向膜931の形状、言い換えると細さを調節する

50

ことが可能である。CNT配向膜931が細いほど、隣接する2つのCNT配向膜931の間に空気などの熱媒体が導入されやすくなる。

#### 【0090】

CNT配向膜931が細いほど、基材11のより近くにまで熱媒体が導入されやすくなる。また、整形されたCNT配向膜931は、基材11と熱媒体との直接的な接触面積を増加させる。複数のCNT配向膜931が縞状に配置されている場合には、整形されたCNT配向膜931はマイクロフィンとも呼びうるフィン形状を提供する。それら複数のCNT配向膜931の間には、熱媒体が流れ込むことができるマイクロチャネルとも呼びうる通路形状が提供される。この結果、優れた熱交換性能を発揮するカーボンナノチューブ付部材が提供される。

10

#### 【0091】

##### 他の実施形態

この明細書における開示は、例示された実施形態に制限されない。開示は、例示された実施形態と、それらに基づく当業者による変形態様を包含する。例えば、開示は、実施形態において示された部品および/または要素の組み合わせに限定されない。開示は、多様な組み合わせによって実施可能である。開示は、実施形態に追加可能な追加的な部分をもつことができる。開示は、実施形態の部品および/または要素が省略されたものを包含する。開示は、ひとつの実施形態と他の実施形態との間における部品および/または要素の置き換え、または組み合わせを包含する。開示される技術的範囲は、実施形態の記載に限定されない。開示されるいくつかの技術的範囲は、特許請求の範囲の記載によって示され、さらに特許請求の範囲の記載と均等の意味及び範囲内での全ての変更を含むものと解されるべきである。

20

#### 【0092】

上記実施形態では、CNT付部材の用途として、熱伝達製品を例示した。これに代えて、CNT付部材を多様な用途に利用してもよい。例えば、電池など電気機器の部材、および構造物をつくる部材などに利用することができる。部分的なCNT配向膜31、すなわち所定のパターン形状に形成されたCNT配向膜31は、多様な用途のそれぞれにおいて求められる効果を発揮する。また、整形されたCNT配向膜も、多様な用途のそれぞれにおいて求められる効果を発揮する。

#### 【0093】

上記実施形態では、基材11は、アルミニウム製またはアルミニウム合金製である。これに代えて、基材は、表層にアルミニウム層またはアルミニウム合金層をもつ多層材料でもよい。

30

#### 【0094】

上記実施形態では、スクライプ装置を用いて基材11の表面上に溝414が形成されている。これに代えて、切削、圧延、研磨、化学的腐食など多様な金属加工方法を用いて粗面、ないし溝を形成してもよい。

#### 【符号の説明】

#### 【0095】

- 1 カーボンナノチューブ付部材(CNT付部材)、
- 11 基材、312 主層、313 ろう材層、414 溝、415 斜面、
- 21 触媒層、221 触媒層、
- 31 CNT配向膜、32 凸部、33 凹部、931 整形されたCNT配向膜、
- 41 配向領域、42 非形成領域、43 非配向領域、
- 51 ヘッド、52 チューブ、53 フィン。

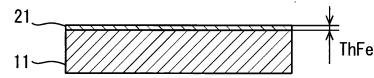
40



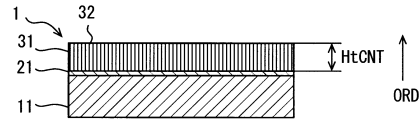
【図 1】



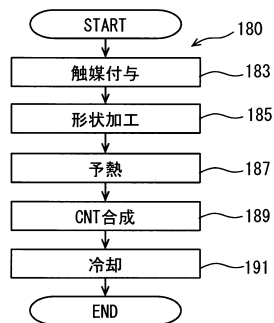
【図 2】



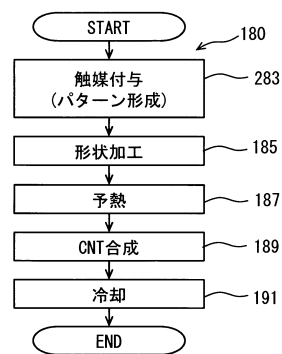
【図 3】



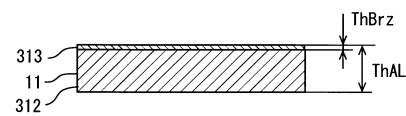
【図 4】



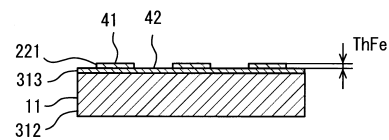
【図 8】



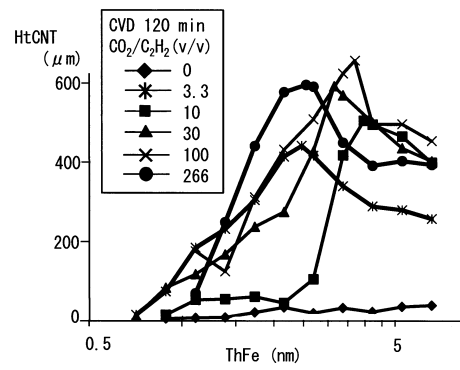
【図 9】



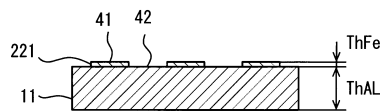
【図 10】



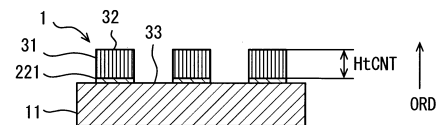
【図 5】



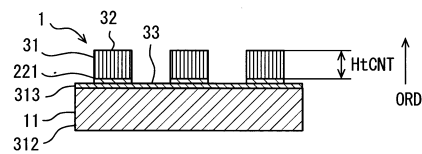
【図 6】



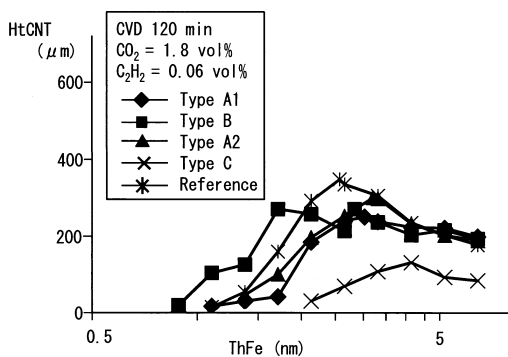
【図 7】



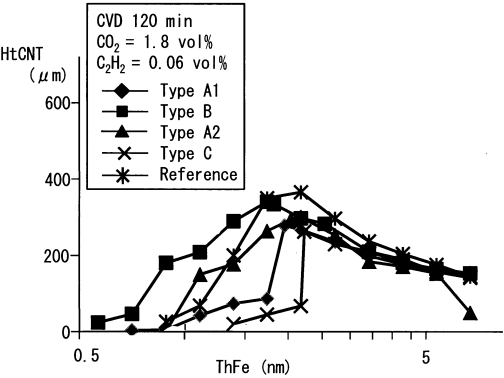
【図 11】



【図 12】



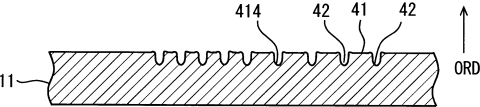
【 図 1 3 】



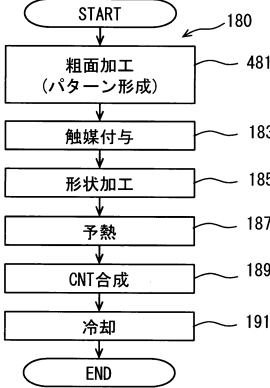
【 図 1 4 】

	TypeA1	TypeB	TypeA2	TypeC
厚さ Thickness (μm)	40	160	40	34
成分重量比 wt%				
Si	≦0.3	0.65~0.85	≦0.3	9.0~11.0
Fe	≦0.7	≦0.3	≦0.2	≦0.8
Cu	≦0.1	0.25~0.35	≦0.1	≦0.3
Mn	≦0.1	1.5~1.8	≦0.1	≦0.05
Mg	≦0.05	≦0.05	≦0.1	≦0.05
Cr	-	-	≦0.05	-
Zn	2.6~3.2	≦0.1	2.0~2.4	≦0.1
Ti	-	0.1~0.18	≦0.05	≦0.2
Other	≦0.15	≦0.15	≦0.15	≦0.15
Individual	≦0.05	≦0.05	≦0.05	≦0.05
Al	Rest 残部	Rest 残部	Rest 残部	Rest 残部

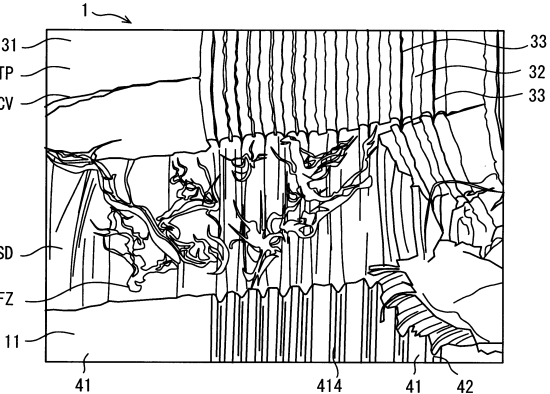
【 図 1 5 】



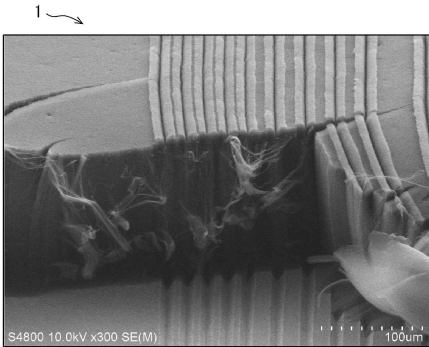
【 図 1 6 】



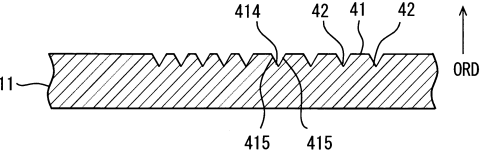
【 図 1 8 】



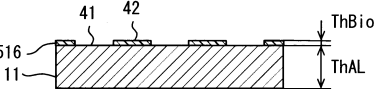
【 図 1 7 】



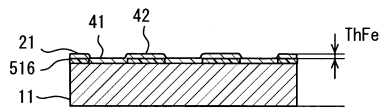
【 図 1 9 】



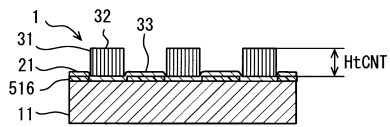
【 図 2 0 】



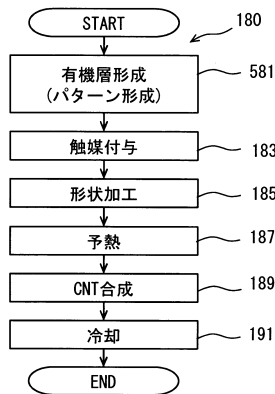
【図 2 1】



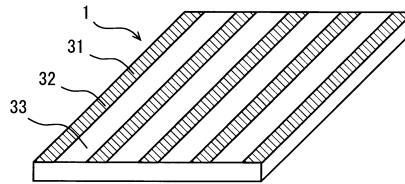
【図 2 2】



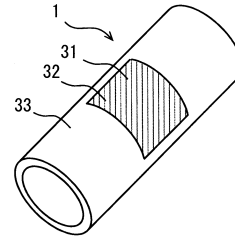
【図 2 3】



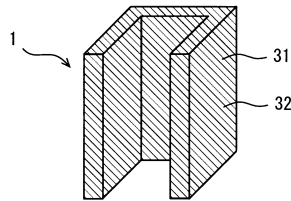
【図 2 4】



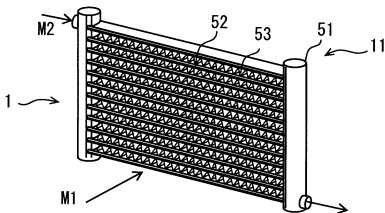
【図 2 5】



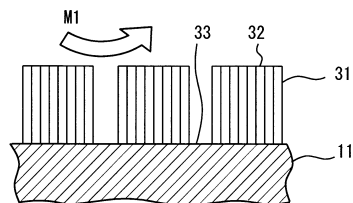
【図 2 6】



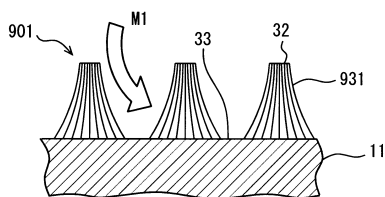
【図 2 7】



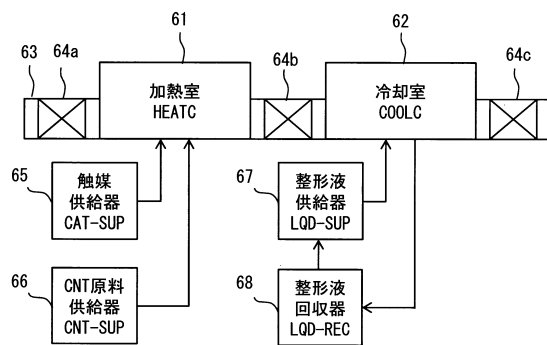
【図 2 8】



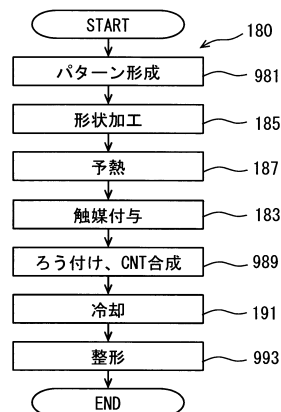
【図 2 9】



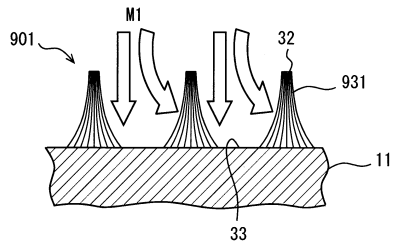
【図 3 0】



【図 3 1】



【図 32】



---

フロントページの続き

- (72)発明者 大島 久純  
愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地 株式会社デンソー内
- (72)発明者 野田 優  
東京都新宿区戸塚町1丁目104番地 学校法人早稲田大学内
- (72)発明者 吉原 悠  
東京都新宿区戸塚町1丁目104番地 学校法人早稲田大学内

審査官 森坂 英昭

- (56)参考文献 特開2006-306704(JP,A)  
特開2005-075711(JP,A)  
特開2010-031193(JP,A)  
特開2011-057466(JP,A)  
特開2015-078120(JP,A)  
特開2008-303117(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C 01 B	3 2 / 0 0	-	3 2 / 9 9 1
B 01 J	2 1 / 0 0	-	3 8 / 7 4
B 8 2 Y	3 0 / 0 0		
B 8 2 Y	4 0 / 0 0		