

(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
2010年1月7日(07.01.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/001796 A1

- (51) 国際特許分類:
C01B 35/04 (2006.01) C04B 35/58 (2006.01)
C04B 35/50 (2006.01) H01J 61/06 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2009/061572
- (22) 国際出願日: 2009年6月25日(25.06.2009)
- (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 2008-173232 2008年7月2日(02.07.2008) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 国立大学法人東北大学(NATIONAL UNIVERSITY CORPORATION TOHOKU UNIVERSITY) [JP/JP]; 〒9808577 宮城県仙台市青葉区片平二丁目1番1号 Miyagi (JP). 住友大阪セメント株式会社(SUMITOMO OSAKA CEMENT CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1028465 東京都千代田区六番町6番地28 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 大見 忠弘(OHMI, Tadahiro) [JP/JP]; 〒9808577 宮城県仙台市青葉区片平二丁目1番1号 国立大学法人東北大学内 Miyagi (JP). 後藤 哲也(GOTO, Tetsuya) [JP/JP]; 〒9808577 宮城県仙台市青葉区片平二丁

目1番1号 国立大学法人東北大学内 Miyagi (JP). 小西 幹郎(KONISHI, Mikio) [JP/JP]; 〒1028465 東京都千代田区六番町6番地28 住友大阪セメント株式会社内 Tokyo (JP). 安藤和人(ANDO, Kazuto) [JP/JP]; 〒1028465 東京都千代田区六番町6番地28 住友大阪セメント株式会社内 Tokyo (JP).

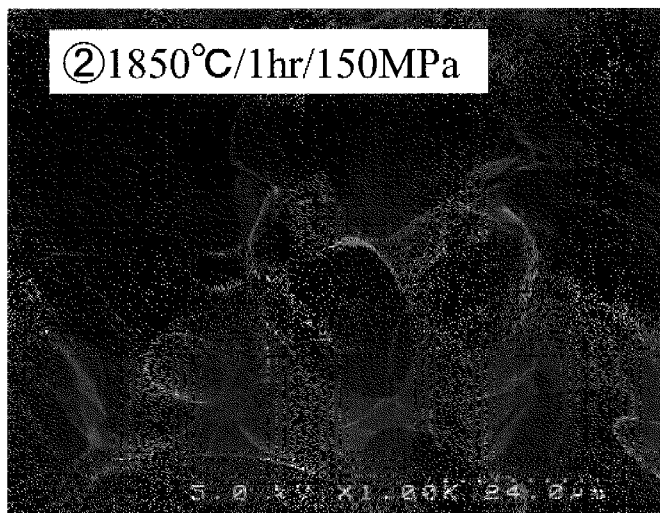
- (74) 代理人: 池田 憲保, 外(IKEDA, Noriyasu et al.); 〒1000011 東京都千代田区内幸町1丁目2番2号 日比谷ダイビル Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, 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, 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, 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: RARE-ERATH-ELEMENT BORIDE MEMBER AND PROCESS FOR PRODUCING THE SAME

(54) 発明の名称: 希土類元素ホウ化物部材およびその製造方法

[図14]



(57) Abstract: Sintered compacts of rare-earth-element borides, in particular, LaB₆, were proved unsuitable for use as a sputtering member or the like because a pollutant is present therein in a large amount. Based on a new view that the contamination by conventional sintered compacts of LaB₆ is attributed to the existence of a large amount of pores, an LaB₆ compact is pressed in a hot-press furnace and then subjected to HIP. Pores are thus diminished to attain a porosity of 7 vol.% or lower, preferably 1 vol.% or lower. Thus, a member reduced in pollutant content can be formed.

(57) 要約: 希土類ホウ化物、特に、LaB₆の焼結体は汚染物質が大量に内在し、スパッタ部材等に適さないことが判明した。従来のLaB₆焼結体の汚染は空孔が大量に存在するためであるとの新しい知見に基づき、LaB₆成形体をホットプレス炉でプレスした後、更に、HIP処理することにより、空孔

を減少させ、空隙率が7体積%以下、好ましくは1体積%以下にすることにより、汚染物質の少ない部材を形成できる。

WO 2010/001796 A1



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

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：希土類元素ホウ化物部材およびその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、希土類元素ホウ化物によって形成された部材およびその製造方法に関し、特に、 LaB_6 部材およびその製造方法に関する。

背景技術

[0002] 一般に、 LaB_6 、 YB_6 、 GdB_6 、 CeB_6 等の希土類元素ホウ化物によって形成された部材は、耐久性が高く且つ低電流動作で長期間に亘って高い発光効率を有しているため、特許文献1に示されているように、液晶バックライト光源を構成する冷陰極蛍光ランプのエミッタとして利用されている。また、特許文献1では、上記希土類ホウ化物からなるエミッタを円筒状カップに流し塗り、乾燥、焼結することによって形成している。即ち、希土類元素ホウ化物部材は、通常、焼結によって形成するのが普通である。

[0003] 一方、本発明者等は、先に、特許文献2において、希土類ホウ化物膜、特に、 LaB_6 膜を電極部材上にスパッタリングによって形成することにより、高輝度、高効率、及び長寿命の希土類ホウ化物部材として陰極体が得られることを提案した。このように、希土類ホウ化物部材をスパッタリングする場合、スパッタリング用ターゲット部材が必要である。

[0004] いずれにしても、仕事関数が低いという特徴のためにターゲット部材、陰極体部材、電極部材その他の部材に使われる希土類ホウ化物部材、特に、 LaB_6 部材は、一般に、高純度粉末を焼結して作られている。

[0005] しかしながら、本発明者等の実験によれば、純度99体積%の希土類ホウ化物粉末をターゲットとして使用して、スパッタリングを行った場合、良好なスパッタ膜が得られないことが判明した。即ち、スパッタされた膜に有機物、水分等の汚染物が大量に含まれていることが判った。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開平 10-144255号公報

特許文献2：特願 2007-239219号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 本発明者等の研究によれば、希土類ホウ化物、特に、 LaB_6 粉末の純度が99体積%であっても、焼結部材には多数の孔が開いていて、体積で密度は80%程度（即ち、空隙率が20%程度）であり、空気や水分起因の酸素や、孔に取り込まれた有機物起因の炭素が大量に含まれていることを見出した。

[0008] このような LaB_6 部材をスパッタのターゲットに使うと、スパッタされた膜に大量の汚染物（有機物や水分）が含まれることになる。スパッタ成膜の際に基板を高温にし、且つ、スパッタされた膜を高純度Arガス中で600～800℃の高温アニールすることにより、スパッタされた膜中の汚染物を除去することができ、これによって、抵抗および仕事関数が低い LaB_6 膜を得ることができた。

[0009] 換言すれば、 LaB_6 ターゲット部材は、使用前に800℃の熱処理を行って、水分や有機物を除去しなければ、スパッタ膜中の汚染物を低減できない。このように、熱処理されたターゲット部材を使用しても、X線光電子分光法で評価した結果、内部には酸素・カーボンが5%程度存在し、一度大気に触れると再汚染されてしまうと云う現象が見出された。

[0010] これは、ターゲット部材表面は酸化されているので、空孔の表面にも酸化物が形成されているためであると考えられる。具体的に説明すると、表面が酸化されたターゲット部材がスパッタされると、最初の空スパッタでターゲット部材表面の酸化物は除去できても、スパッタが進行して空孔表面の酸化物からの酸素や付着有機物がスパッタ膜にとりこまれて、結局は酸素や炭素で汚染されてしまうことになる。したがって、ターゲット部材を使用前に熱処理したとしても、基板を高温にしてスパッタし、且つ、スパッタ膜を高温でアニールしなければ、低い仕事関数は得られない。

[0011] このような余分な工程はコスト高を招くし、有機ELのように基板を高温にすることが出来ない場合もある。

[0012] このような従来の問題は、希土類ホウ化物部材、特に、 LaB_6 部材の内部に空孔が多いことが原因であることを見出し、本発明はこのような問題を解決することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0013] 本発明の第1の態様によれば、実質的に希土類元素のホウ化物からなり、空隙率が8体積%以下、好ましくは7体積%以下であることを特徴とする部材が得られる。

[0014] 本発明の第2の態様によれば、第1の態様に記載された部材において、前記希土類元素のホウ化物が LaB_6 を含むことを特徴とする部材が得られる。

[0015] 本発明の第3の態様によれば、第1又は2の態様に記載された部材において、空隙率が1体積%以下であることを特徴とする部材が得られる。

[0016] 本発明の第4の態様によれば、第1乃至第3のいずれか一の態様に記載された部材において、表面および内部に孔が実質的に無いことを特徴とする部材が得られる。

[0017] 本発明の第5の態様によれば、スパッタリング用ターゲット部材、陰極体用部材、及び電極用部材のいずれか一つの部材であることを特徴とする第1乃至4の態様のいずれかに記載の部材が得られる。

[0018] 本発明の第6の態様によれば、実質的に LaB_6 からなる粉末を成形する工程と、該工程で生じた成形体をホットプレスにて加熱しつつ圧縮する工程とを有し、 LaB_6 部材を得ることを特徴とする LaB_6 部材の製造方法が得られる。

[0019] 本発明の第7の態様によれば、前記加熱しつつ圧縮する工程は、温度が1800℃以上、圧力が30MPa以上で行われることを特徴とする第6の態様に記載の LaB_6 部材の製造方法が得られる。

[0020] 本発明の第8の態様によれば、前記加熱しつつ圧縮する工程の後に、加熱しつつ高圧気体にて等方性の圧縮を行う工程を有することを特徴とする第6

又は第7の態様に記載の LaB_6 部材の製造方法が得られる。

[0021] 本発明の第9の態様によれば、前記等方性の圧縮を行う工程は、温度が 1850°C 以上、圧力が 150MPa 以上で行われることを特徴とする第8の態様に記載の LaB_6 部材の製造方法が得られる。

[0022] 本発明の第10の態様によれば、前記 LaB_6 部材は、スパッタリング用ターゲット部材、陰極体用部材、及び電極用部材のいずれか一つの部材であることを特徴とする第6乃至9の態様のいずれか一つに記載の LaB_6 部材の製造方法が得られる。

発明の効果

[0023] 本発明では、ターゲットとして用いてスパッタリングを行った場合、有機物、酸素、及び炭素等の不純物の少ない部材を得ることができる。

図面の簡単な説明

[0024] [図1]従来の LaB_6 部材のSEM画像を示す図である。

[図2]従来の LaB_6 焼結体を熱処理した場合の昇温プロファイルを示すグラフである。

[図3]従来の LaB_6 焼結体を 400°C まで加熱処理した場合のマススペクトルを示す図である。

[図4]従来の LaB_6 焼結体を 800°C まで加熱処理した場合のマススペクトルを示す図である。

[図5]熱処理された従来の LaB_6 焼結体を再度大気に曝露して 400°C まで加熱した場合におけるマススペクトルを示す図である。

[図6]熱処理された従来の LaB_6 焼結体を再度大気に曝露して 800°C まで加熱した場合におけるマススペクトルを示す図である。

[図7]本発明の実施例において、 LaB_6 成形体をプレスするホットプレス炉の一例を示す図である。

[図8] (a) はホットプレス炉で LaB_6 成形体を 1800°C の温度、 40MPa の圧力で1時間プレスした場合のSEM画像を示す図、(b) はホットプレス炉で LaB_6 成形体を 1800°C の温度、 30MPa の圧力で1時間プ

レスした場合のSEM画像を示す図である。

[図9] 図7のホットプレス炉を使用した場合におけるホットプレス体の相対密度を示すグラフである。

[図10] 本発明の実施例による LaB_6 ホットプレス体を 400°C まで加熱した場合のマススペクトルを示す図である。

[図11] 本発明の実施例による LaB_6 ホットプレス体を 800°C まで加熱した場合のマススペクトルを示す図である。

[図12] 本発明の実施例による LaB_6 ホットプレス体のSEM画像を示す図である。

[図13] 本発明の実施例により、 LaB_6 ホットプレス体を更に 1800°C の温度、 150MPa の圧力で1時間、HIP処理した部材のSEM画像である。

[図14] 本発明の実施例により、 LaB_6 ホットプレス体を更に 1850°C の温度、 150MPa の圧力で1時間、HIP処理した部材のSEM画像である。

発明を実施するための形態

[0025] 以下、本発明の実施例について図面を参照して説明する。尚、ここでは、希土類ホウ化物として、 LaB_6 を用いた場合についてのみ説明するが、本発明は何等これに限定されるものではない。

[0026] 図1は、本発明に係る処理を行なう前における LaB_6 部材の状態を示すSEM写真である。この例では、純度99体積%の LaB_6 粉末を焼結した焼結体のSEM画像($\times 2000$)が示されている。図示されているように、焼結体の表面には、多数の空孔が形成されている。この焼結体を図2に示す昇温プロファイルにて昇温した。即ち、室温で10時間保持した後、 $5^\circ\text{C}/\text{min}$ の昇温速度で 800°C まで昇温し、 800°C の温度に30分間保持した。この昇温中、高純度Arガスを流してAPI-MS測定を行うと、 400°C では図3のマススペクトルで示すように大量の汚染物質が観測された。

[0027] 一方、図4に示すように、 800°C 、30分維持で汚染は減るが、このよ

うに、熱処理された焼結体を大気暴露して400℃まで加熱して再度測定すると、図5に示すように、また、汚染物質に伴うスペクトルが現われ、再度、汚染されていることが判る。この状態で、800℃の温度で再高温処理を行なうと、図6のように、再高温処理で汚染物質の量を減少させることができる。

[0028] 本発明は、従来のLaB₆焼結体に内在する大量の汚染物質が従来のLaB₆焼結体の空孔による（相対密度が低いことによる）との新規な知見に基づき、焼結体の空孔、即ち、空隙率を減少させることならびにその手法を提案する。尚、本発明の実施例では、LaB₆焼結体について説明するが、本発明は焼結されたLaB₆部材には限定されない。

[0029] 図7を参照すると、本発明の実施例で使用したホットプレス炉が示されている。図示されたホットプレス炉は、炉壁内に、断熱材12及びヒーター14を配置し、当該炉内にアルゴンガスを導入するガス導入系と、ポンプによって炉内を排気できる排気系を備えている。また、炉内には、カーボンによって形成された型（ダイス）16が設けられ、当該ダイス16はダイス受け台18によって支持され、ダイス16上部にはパンチ22が設けられている。ダイス16内に配置されたLaB₆の成形体20は、パンチ22とダイス受け台18とにより、油圧によりプレスされる。

[0030] このホットプレス炉により、1,800℃、1時間、30または40MPaの圧力でLaB₆の成形体をプレスし、ホットプレス体を得た。

[0031] 図8を参照すると、ホットプレス体のSEM画像が示されている。図8からも明らかな通り、LaB₆ホットプレス体の表面における空孔が大幅に減少している。

[0032] 図9を参照すると、ホットプレス後のLaB₆ホットプレス体の相対密度が示されている。図の横軸は、ホットプレス時の温度（℃）、圧力（MPa）、およびホットプレス時間（hour）を示し、縦軸は相対密度を示している。図からも明らかな通り、ホットプレスの温度1,800℃以上、圧力30MPa以上で、相対密度が92～95%（空隙率8～5%）になっている

のがわかる。なお、本発明において、空隙率は、好ましくは7体積%以下、より好ましくは1体積%以下である。

[0033] 図10および11を参照すると、ホットプレス後のLaB₆ホットプレス体を400℃及び800℃で熱処理した場合におけるマスペクトルが示されており、いずれの温度においても汚染物質が大幅に減少していることが判る。ホットプレス後のLaB₆ホットプレス体を使用することによって、従来用いられているターゲットに比較して汚染物質の少ないLaB₆部材を構成できる。

[0034] 本発明では、更に空孔を減少させるために、LaB₆のホットプレス体をHIP (Hot Isostatic Pressing) 処理した。HIP処理は温度と全方向からの（等方的）圧力の相乗効果を利用して空孔を減少させることができる。

[0035] 図12は、1, 800℃、40MPaでホットプレスしたLaB₆ホットプレス体（密度93.5%）の表面拡大を示し、この状態では、未だ空孔が若干存在している。これを150MPaで1時間、1800℃および1850℃で、HIP処理炉で処理した。加圧は高純度Arガスを用いて行った。その結果を図13および14にそれぞれ示す。1, 800℃処理したLaB₆部材は若干空孔が存在しているが、1850℃処理のLaB₆部材は空孔がほとんど無くなっている。この結果、図14に示されたLaB₆部材の密度は約100%（99%以上）であった。また、不純物成分としてはカーボンが0.1%以下、酸素は1.6%まで低減された。この酸素は、焼結材料であるLaB₆膜粉末に含まれている成分であり、材料粉末を高純度化することでさらに酸素を低減することが可能である。このターゲットを用いて低仕事関数（3eV以下）の薄膜を、室温で成膜して成膜後の熱処理無しで実現することができた。

産業上の利用可能性

[0036] 本発明によるLaB₆等の希土類元素ホウ化物部材は、スパッタリングに用いられるターゲット部材に適用できるだけでなく、冷陰極蛍光ランプの陰極

部材、その他の電極部材を形成するのにも適用できる。更に、本発明は、熱処理を行うことなく、低仕事関数を有する LaB_6 薄膜を実現できる。また、本発明は、 LaB_6 だけでなく、他の希土類ホウ化物元素（例えば、 LaB_4 , YB_6 , GdB_6 , CeB_6 ）等にも適用できる。

符号の説明

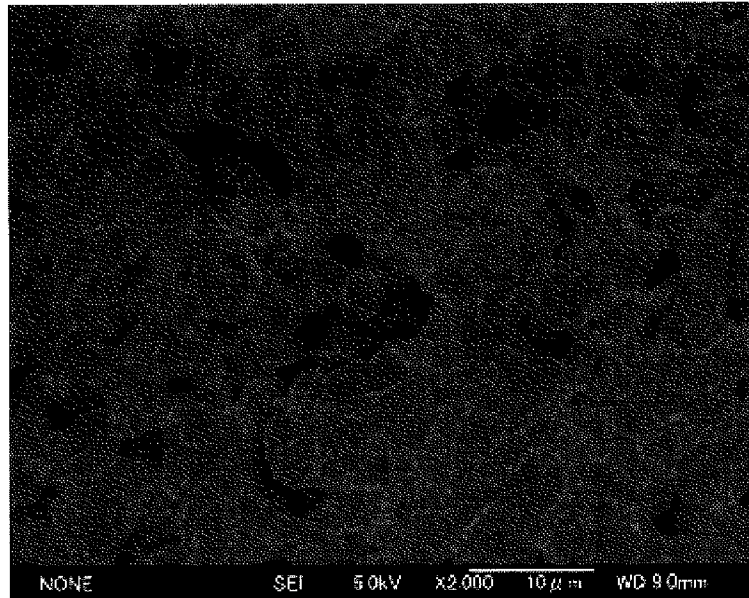
[0037]	1 2	断熱材
	1 4	ヒーター
	1 6	ダイス
	1 8	ダイス受け台
	2 0	LaB_6 焼結体
	2 2	パンチ

請求の範囲

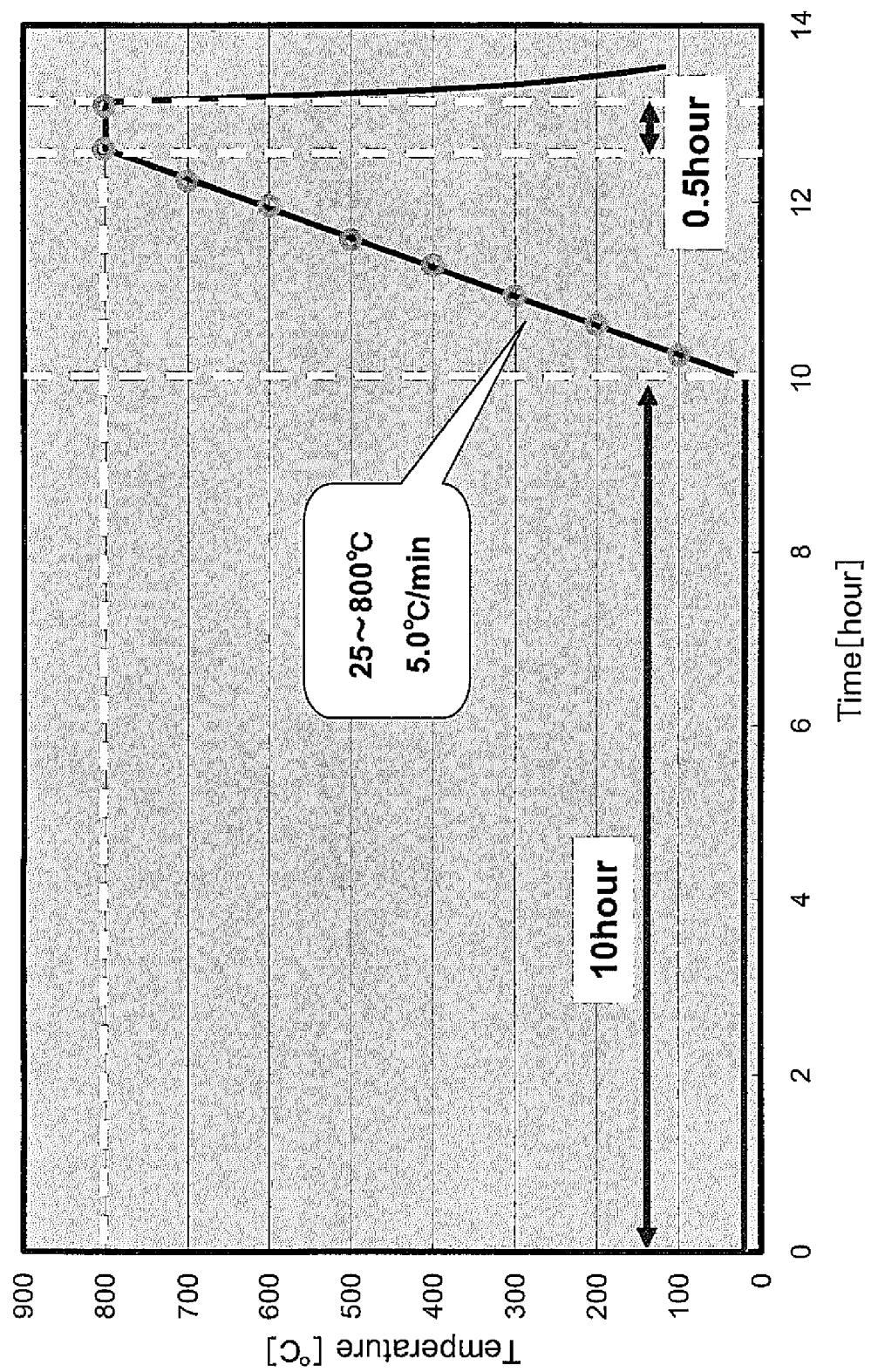
- [請求項1] 実質的に希土類元素のホウ化物からなり、空隙率が8体積%以下であることを特徴とする部材。
- [請求項2] 請求項1に記載された部材において、前記希土類元素のホウ化物は、 LaB_6 を含むことを特徴とする部材。
- [請求項3] 請求項1又は2に記載された部材において、前記空隙率が1体積%以下であることを特徴とする部材。
- [請求項4] 請求項1乃至3の内のいずれか一項に記載された部材において、表面および内部に孔が実質的に無いことを特徴とする部材。
- [請求項5] 前記部材は、スパッタリング用ターゲット部材、陰極体用部材、及び電極用部材のいずれか一つの部材であることを特徴とする部材。
- [請求項6] 実質的に LaB_6 からなる粉末を成形する工程と、該工程で生じた成形体をホットプレスにて加熱しつつ圧縮する工程とを有し、 LaB_6 部材を得ることを特徴とする LaB_6 部材の製造方法。
- [請求項7] 前記加熱しつつ圧縮する工程は、温度が 1800°C 以上、圧力が 30MPa 以上で行われることを特徴とする請求項6に記載の LaB_6 部材の製造方法。
- [請求項8] 前記加熱しつつ圧縮する工程の後に、加熱しつつ高圧気体にて等方性の圧縮を行う工程を有することを特徴とする請求項6又は7に記載の LaB_6 部材の製造方法。
- [請求項9] 前記等方性の圧縮を行う工程は、温度が 1850°C 以上、圧力が 150MPa 以上で行われることを特徴とする請求項8に記載の LaB_6 部材の製造方法。
- [請求項10] 前記 LaB_6 部材はスパッタリング用ターゲット部材、陰極体用部材、及び電極用部材のいずれか一つの部材に用いられることを特徴とする請求項6乃至9の内のいずれか1項に記載の LaB_6 部材の製造方法。

[図1]

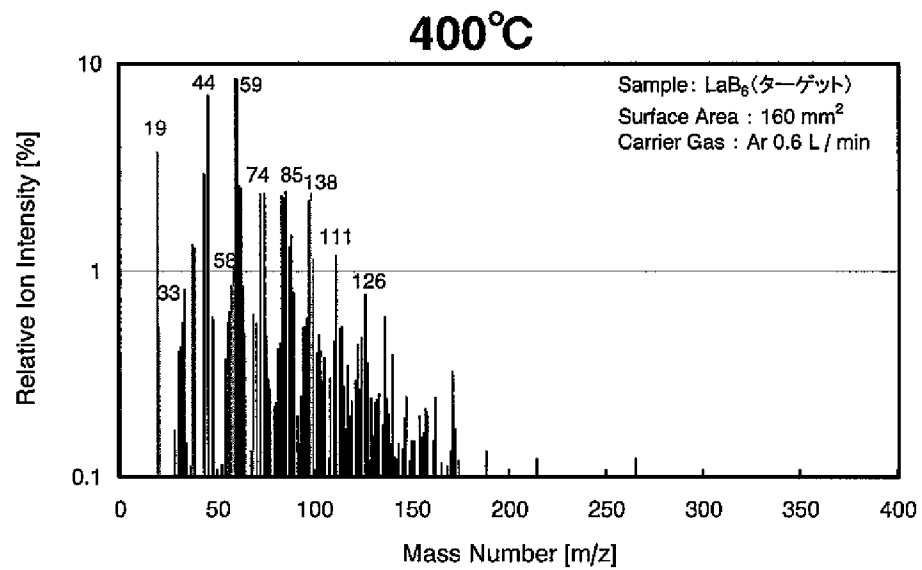
× 2000



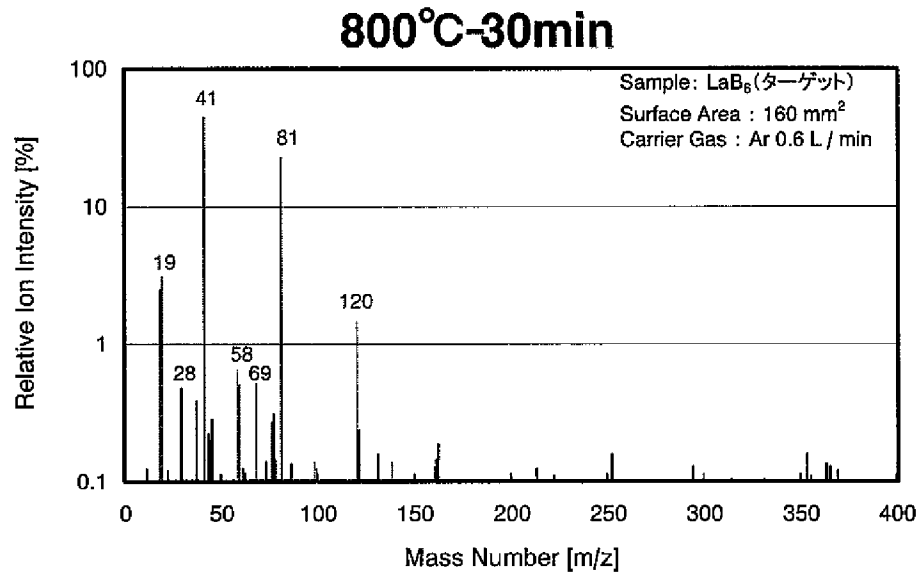
[図2]



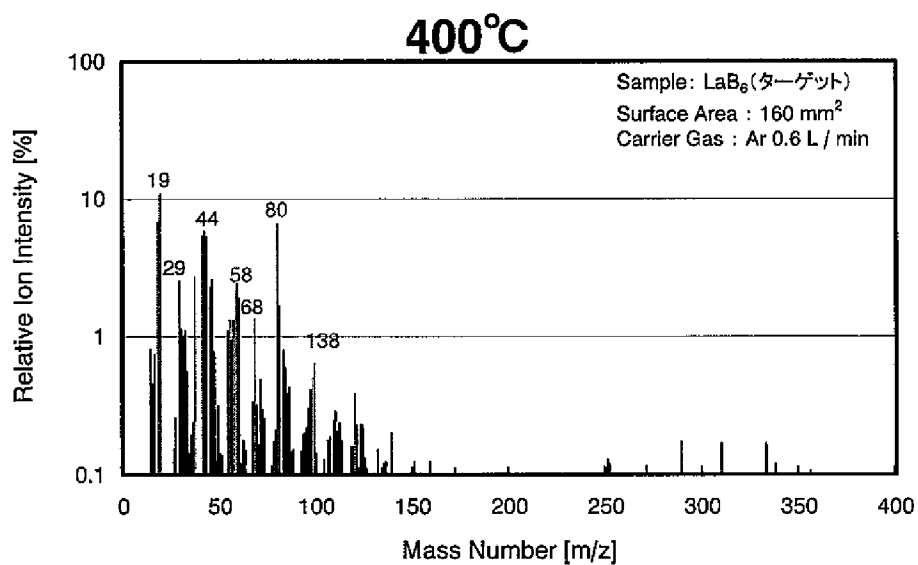
[図3]



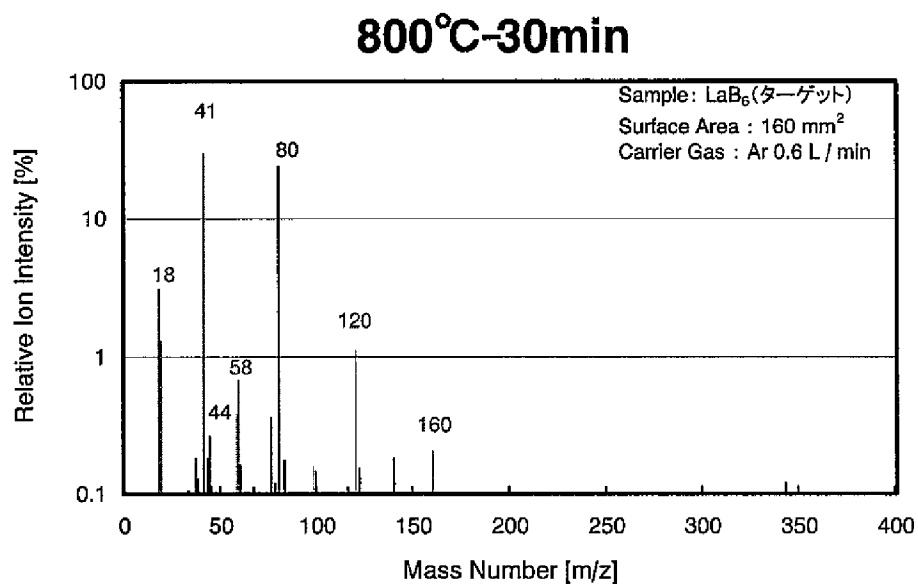
[図4]



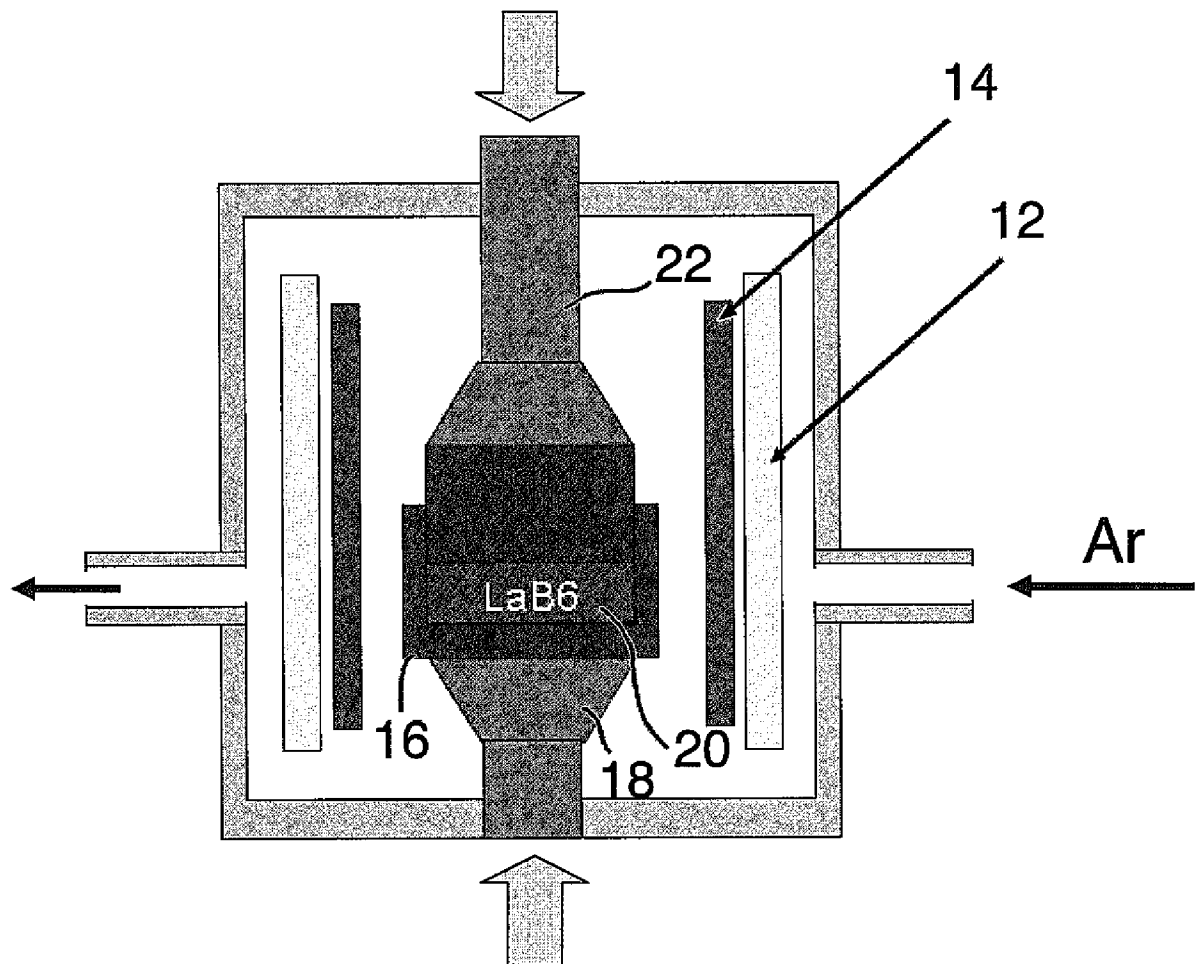
[図5]



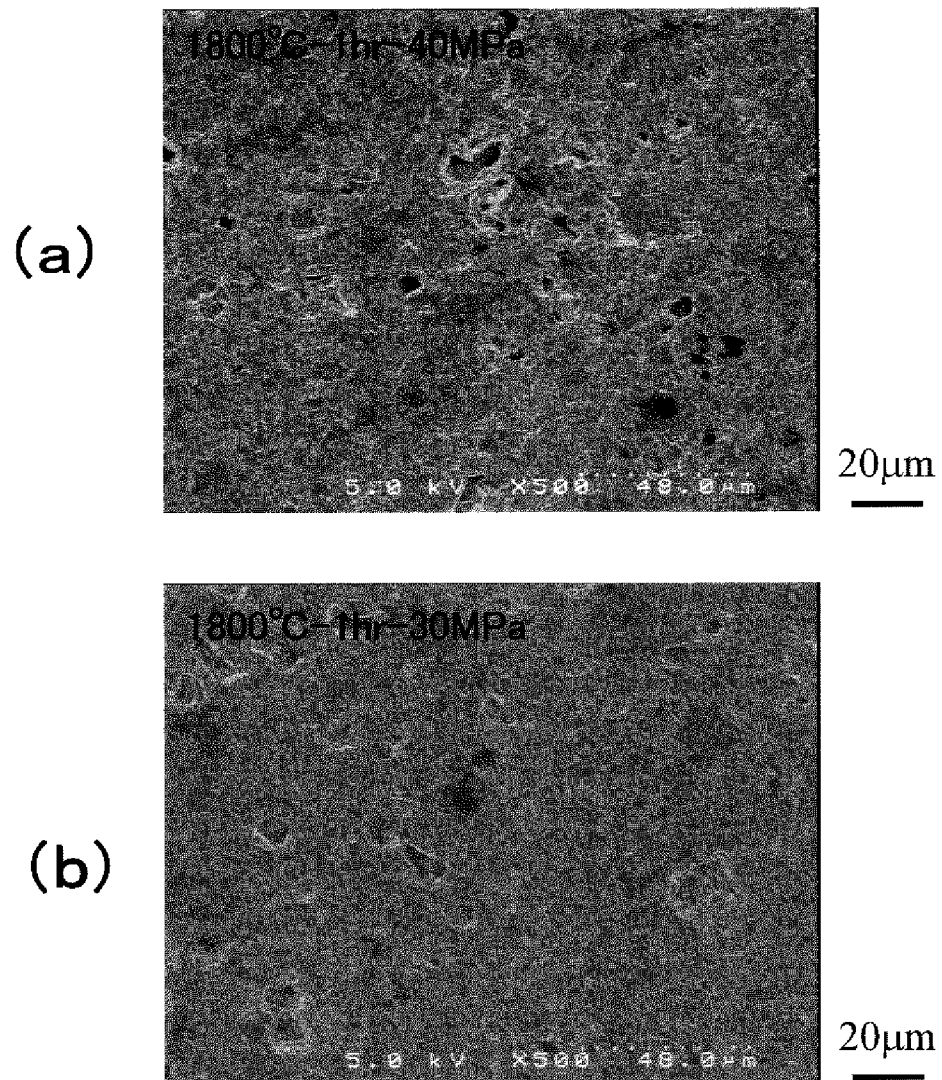
[図6]



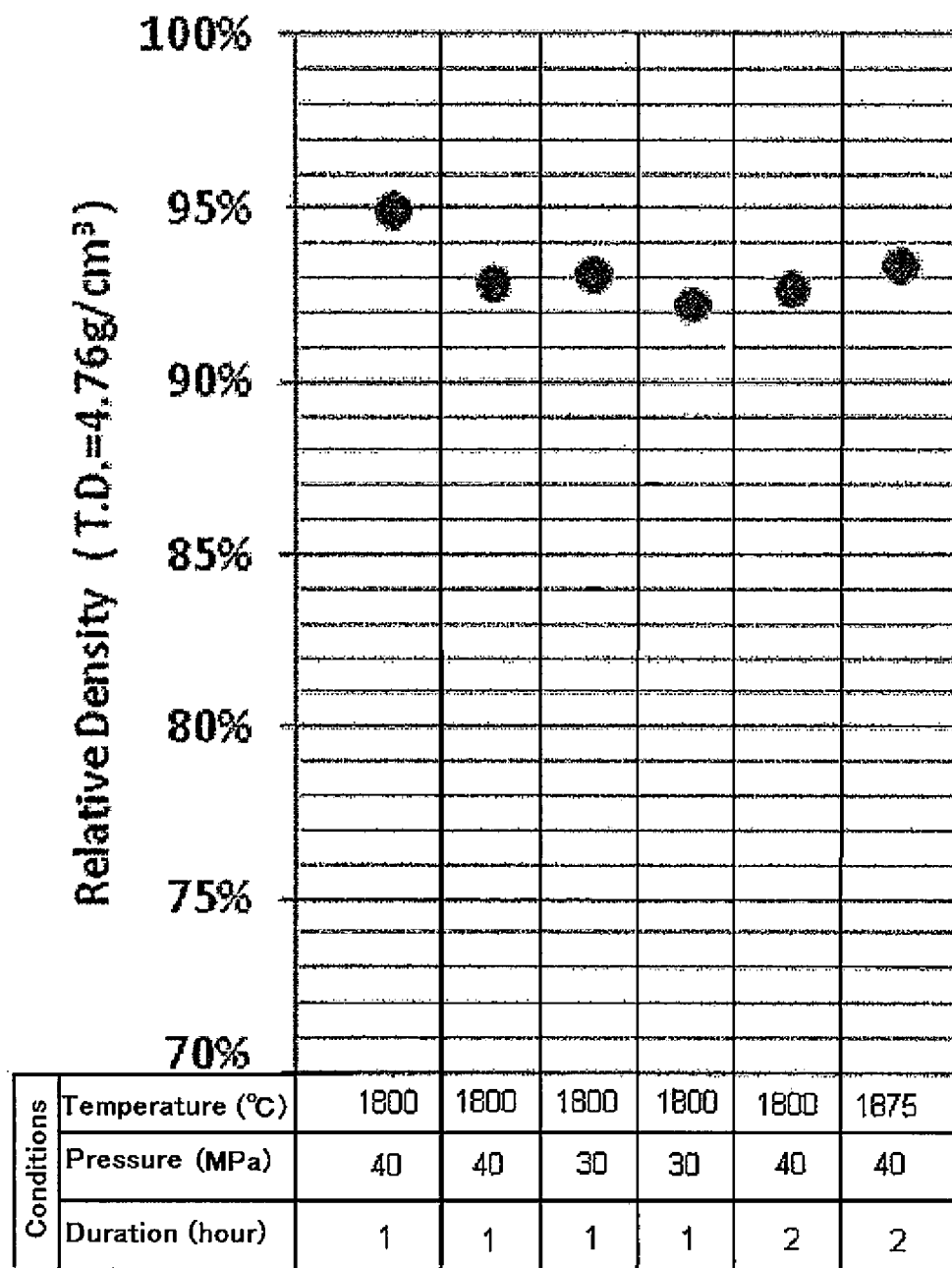
[図7]



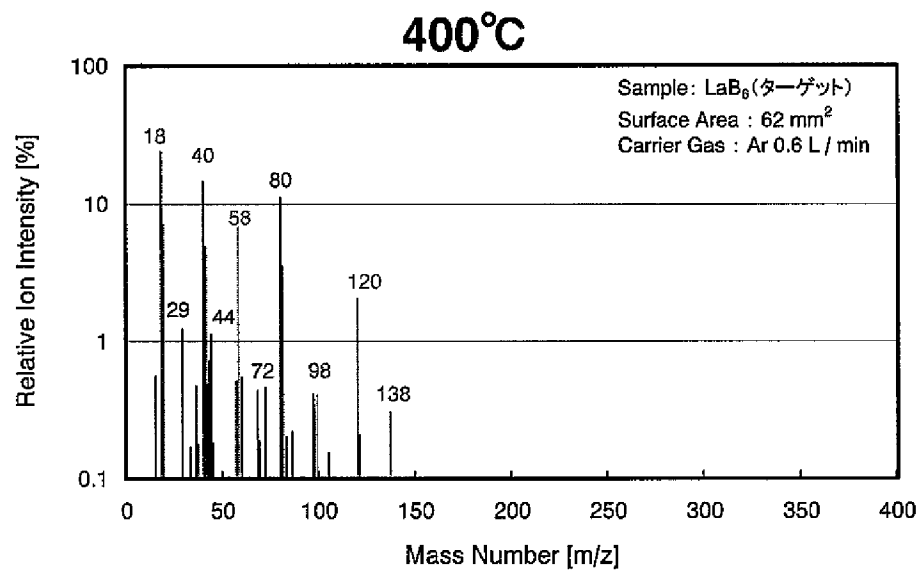
[図8]



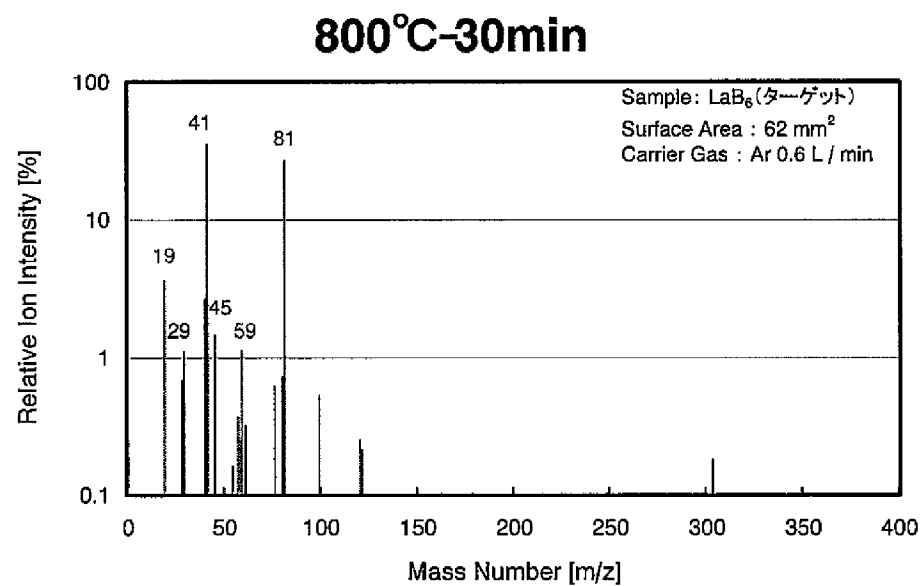
[図9]



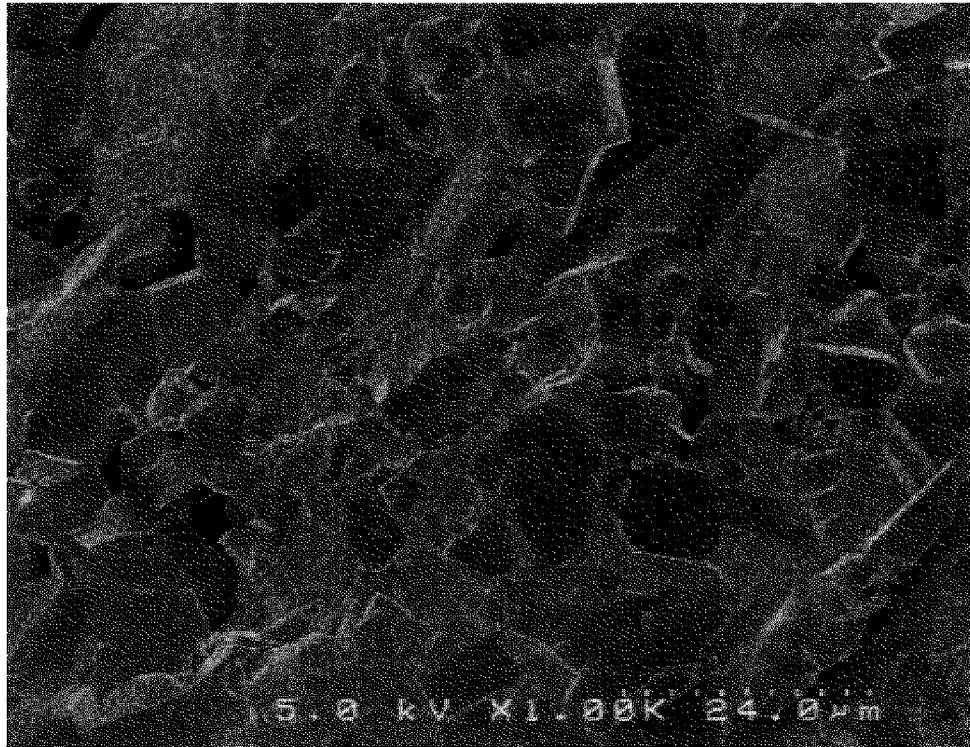
[図10]



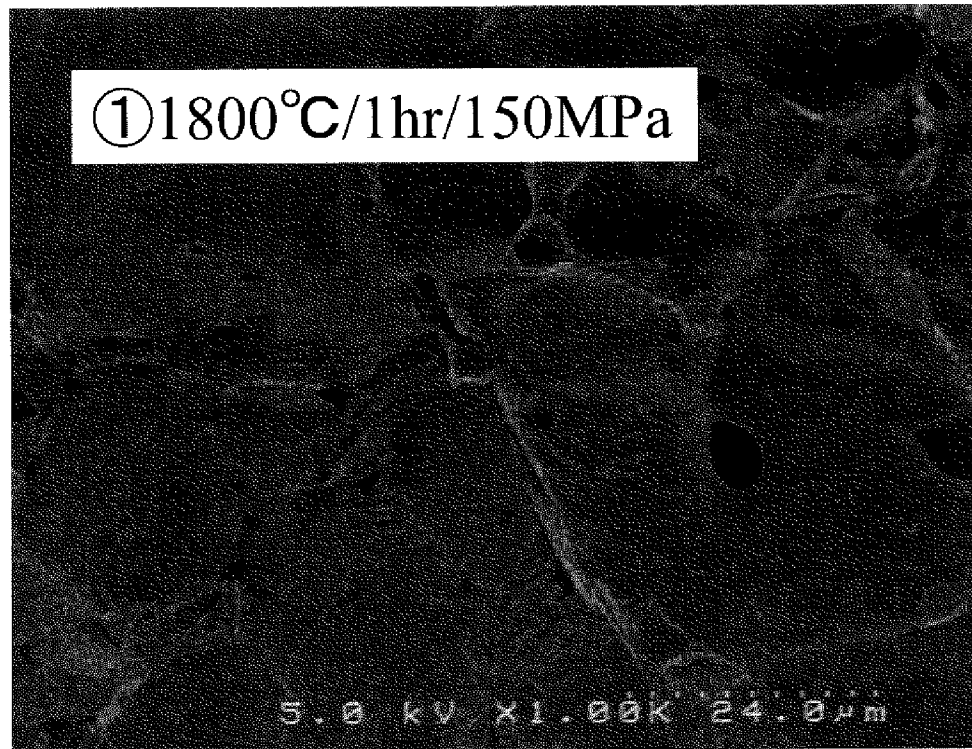
[図11]



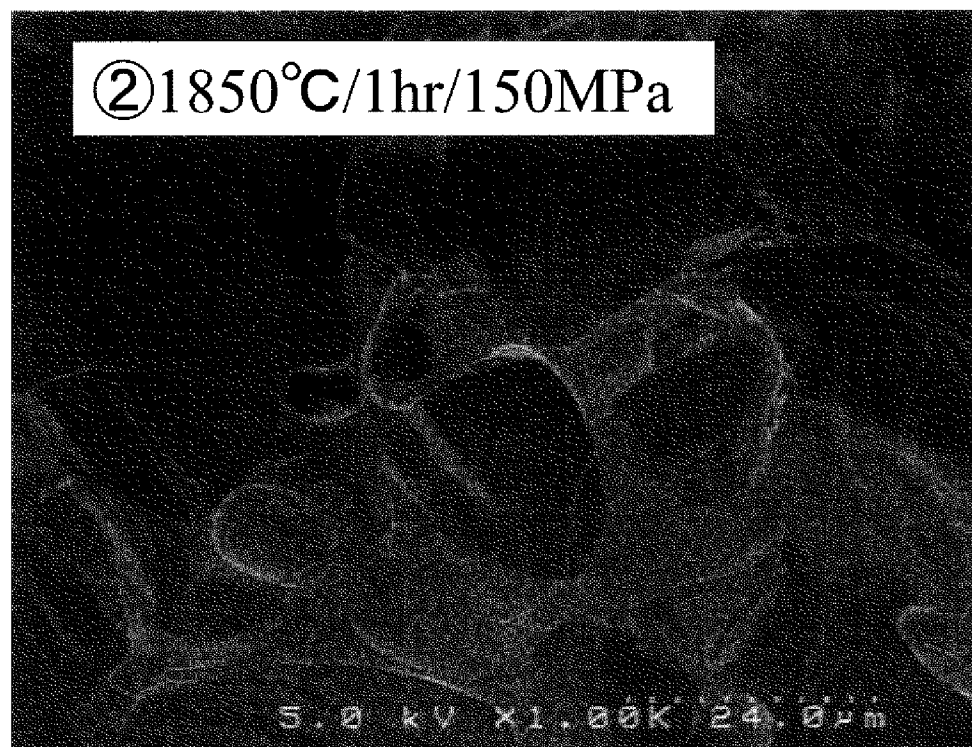
[図12]



[図13]



[図14]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/061572

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C01B35/04(2006.01)i, C04B35/50(2006.01)i, C04B35/58(2006.01)i, H01J61/06(2006.01)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)

C01B35/04, C04B35/50, C04B35/58, H01J61/06

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	1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2009	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2009

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580(JDreamII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 6-248446 A (Mitsubishi Materials Corp.), 06 September, 1994 (06.09.94), Claims; Par. Nos. [0001], [0009] to [0011]; example 4; table 4 (Family: none)	1, 2, 4-7, 10 3, 8, 9
Y	JP 2001-098364 A (Nikko Materials Co., Ltd.), 10 April, 2001 (10.04.01), Claims; Par. Nos. [0004], [0005] & US 6582535 B1 & WO 2001/023635 A1	3, 8, 9
X	JP 63-241834 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 07 October, 1988 (07.10.88), Example 1 (Family: none)	1, 2, 4

☒ 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
01 September, 2009 (01.09.09)

Date of mailing of the international search report
08 September, 2009 (08.09.09)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/061572

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2005-063857 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 10 March, 2005 (10.03.05), Par. No. [0002]; example 1 (Family: none)	1-5
A	JP 63-015403 A (Inoue Japax Research Inc.), 22 January, 1988 (22.01.88), Claims; page 2, lower right column, line 20 to page 3, upper right column, line 13 (Family: none)	1-10

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/061572

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:

A technical feature of claim 1 is known as apparent from the fact that it is described in the following documents (1), (3), and (4).

In view of this, claims 1-10 are classified into claims 1-4, which constitute the main invention, and the other claims. Claims 1-10 hence include two or more inventions.

Document 1: JP 6-248446 A (Mitsubishi Materials Corp.)
Document 3: JP 63-241834 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha)
Document 4: JP 2005-063857 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha)

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.:

Remark on Protest
the

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, 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.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C01B35/04(2006.01)i, C04B35/50(2006.01)i, C04B35/58(2006.01)i, H01J61/06(2006.01)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 (I P C))

Int.Cl. C01B35/04, C04B35/50, C04B35/58, H01J61/06

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 0 9 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 0 9 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 0 9 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)

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580(JDreamII)

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	JP 6-248446 A (三菱マテリアル株式会社) 1994.09.06, 【特許請求の範囲】, 【0001】, 【0009】 - 【0011】, 実施例4, 【表4】 (ファミリーなし)	1, 2, 4-7, 10 3, 8, 9
Y	JP 2001-098364 A (株式会社日鉱マテリアルズ) 2001.04.10, 【特許請求の範囲】, 【0004】, 【0005】 & US 6582535 B1 & WO 2001/023635 A1	3, 8, 9

☒ 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

0 1 . 0 9 . 2 0 0 9

国際調査報告の発送日

0 8 . 0 9 . 2 0 0 9

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

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)

佐藤 哲

4 G

3 9 4 7

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 1 6

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
X	JP 63-241834 A (電気化学工業株式会社) 1988. 10. 07, 実施例 1 (ファミリーなし)	1, 2, 4
X	JP 2005-063857 A (電気化学工業株式会社) 2005. 03. 10, 【0 0 0 2】, 【実施例 1】 (ファミリーなし)	1-5
A	JP 63-015403 A (株式会社井上ジャパツクス研究所) 1988. 01. 22, 特許請求の範囲, 第 2 頁右下欄第 2 0 行ー第 3 頁右上 欄第 1 3 行 (ファミリーなし)	1-10

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ころの国際調査機関は認めた。

請求項1に係る発明の技術的特徴は、次の文献1、3、4に記載されているように公知である。

そうすると、請求項1-10は、請求項1-4の主発明と、それ以外の請求項の発明とに区分されるから、請求項1-10は二以上の発明を含むものである。

文献1：JP 6-248446 A (三菱マテリアル株式会社)
文献3：JP 63-241834 A (電気化学工業株式会社)
文献4：JP 2005-063857 A (電気化学工業株式会社)

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。

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。