

(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  
2017年7月13日(13.07.2017)



(10) 国際公開番号

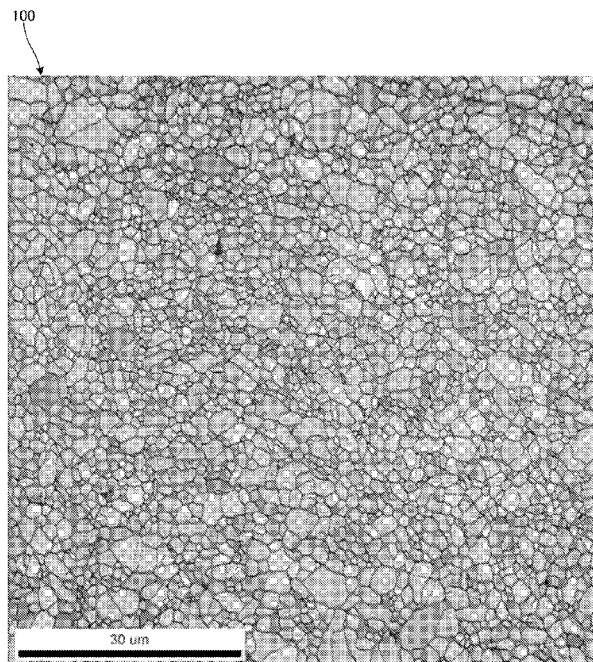
WO 2017/119205 A1

- (51) 国際特許分類:  
B23K 35/22 (2006.01) C22C 9/06 (2006.01)  
B23K 35/30 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/084699
- (22) 国際出願日: 2016年11月24日(24.11.2016)
- (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 2016-001486 2016年1月7日(07.01.2016) JP
- (71) 出願人: 株式会社村田製作所(MURATA MANUFACTURING CO., LTD.) [JP/JP]; 〒6178555 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 Kyoto (JP).
- (72) 発明者: 野口 真純(NOGUCHI Masumi); 〒6178555 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 株式会社村田製作所内 Kyoto (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人 楓国際特許事務所(KAEDE PATENT ATTORNEYS' OFFICE); 〒5400011 大阪府大阪市中央区農人橋1丁目4番34号 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, JP, KE, KG, 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, SM, ST, SV, SY, TH, 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, 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:  
— 国際調査報告(条約第21条(3))

(54) Title: METAL COMPOSITION, INTERMETALLIC COMPOUND MEMBER AND BONDED BODY

(54) 発明の名称: 金属組成物、金属間化合物部材、接合体

[図9]



(57) Abstract: A Cu-Ni-Co-Sn alloy which is an intermetallic compound obtained by a reaction between molten Sn and a Cu-Ni-Co alloy is produced. An intermetallic compound member (100) which is configured from the Cu-Ni-Co-Sn alloy is then produced. This intermetallic compound member (100) constitutes a bonded body (150) together with a first bonding object (101) and a second bonding object (102). The average crystal grain size of the intermetallic compound member (100) to which Co is added is smaller than the average crystal grain size of a conventional intermetallic compound member (800) to which Co is not added. Consequently, the intermetallic compound member (100) has a higher plastic deformability than the conventional intermetallic compound member (800) at high temperatures. This intermetallic compound member (100) is therefore not susceptible to brittle fracture.

(57) 要約: 溶融したSnとCuNiCo合金とが反応し、金属間化合物であるCuNiCoSn合金を生成する。そして、CuNiCoSn合金で構成される金属間化合物部材(100)が生成される。金属間化合物部材(100)は、第1接合対象物(101)および第2接合対象物(102)とともに接合体(150)を構成する。Coが添加された金属間化合物部材(100)の平均結晶粒径は、Coが添加されていない従来の金属間化合物部材(800)の平均結晶粒径より小さい。そのため、金属間化合物部材(100)は、従来の金属間化合物部材

(800)に比べて、高温において高い塑性変形能を有する。よって、金属間化合物部材(100)は、脆性破壊を起こし難い。

## 明 細 書

**発明の名称：** 金属組成物、金属間化合物部材、接合体

### 技術分野

[0001] 本発明は、金属成分を含む金属組成物、この金属組成物から生成される金属間化合物部材、及びこの金属間化合物部材を備える接合体に関するものである。

### 背景技術

[0002] 従来、例えば第1接合対象物と第2接合対象物とを接合するために、金属組成物が用いられている。このような金属組成物として例えば特許文献1は、導電性材料を開示している。

[0003] 導電性材料は、Sn粉末とCuNi合金粉末を含む金属成分とフラックスとを含んでいる。導電性材料は、一対の電極の間に設けられる。そして、導電性材料中のSn粉末とCuNi合金粉末とは、加熱されることによって反応し、金属間化合物であるCuNiSn合金を生成する。この結果、導電性材料は、金属間化合物で構成された金属間化合物部材となる。これにより、金属間化合物部材は、一対の電極を接合する。金属間化合物部材は、一対の電極とともに接合体を構成する。

[0004] ここで、加熱の温度は、Snの融点以上、CuNi合金の融点以下であり、例えば250～350℃である。CuNiSn合金は、高い融点（例えば400℃以上）を有する。そのため、金属間化合物部材は、耐熱性に優れる。

### 先行技術文献

#### 特許文献

[0005] 特許文献1：国際公開第2012／066795号パンフレット

### 発明の概要

#### 発明が解決しようとする課題

[0006] しかしながら、特許文献1の金属間化合物部材を含む従来の金属間化合物

部材は一般的に、面心立方格子構造を持つ一部の特殊なものを除いて結晶すべりを起こし難い。これにより、従来の金属間化合物部材は塑性変形し難いことが知られている。そのため、特許文献1の金属間化合物部材は、熱衝撃による機械的応力が大きい場合、前述の塑性変形能が低い性質から機械的応力を吸収することができず、脆性破壊を起こすことがある。

[0007] 本発明の目的は、高温において高い塑性変形能を有し、脆性破壊を起こし難い金属間化合物部材を生成できる金属組成物、金属間化合物部材、及び接合体を提供することにある。

### 課題を解決するための手段

[0008] 本発明の金属組成物は、第1金属と第2合金とを含む。第2合金は、第1金属より融点の高い第1合金に第1遷移金属元素が添加された合金であって、第1金属と金属間化合物を生成しうる合金である。

[0009] ここで、第1金属は例えば、Sn又はSn系合金である。第1合金は例えば、CuAl合金、CuCr合金、CuNi合金又はCuMn合金である。第1遷移金属元素は例えば、Co、Fe、及びCrのいずれか1つである。なお、第2合金がCu-xNi-yCo合金である場合、xは、1以上30以下の範囲内であり、yは、0.5以上20以下の範囲内であることが好ましい。

[0010] この構成では、第1金属と第2合金とが反応し、金属間化合物を生成する。これにより、この構成の金属組成物は、多結晶の金属間化合物で構成される金属間化合物部材を生成する。この構成で生成される金属間化合物部材の平均結晶粒径は、従来の金属間化合物部材の平均結晶粒径より小さい。この理由は、第2合金が、第1合金に第1遷移金属元素が添加された合金であるためと考えられる。

[0011] そのため、この構成の金属間化合物部材は、結晶粒径の大きい従来の金属間化合物部材に比べて、高温において高い塑性変形能を有する。よって、この構成の金属間化合物部材は、熱衝撃による機械的応力が大きい場合でも、機械的応力を吸収することができ、脆性破壊を起こし難い。

[0012] したがって、この構成の金属組成物は、高温において高い塑性変形能を有し、脆性破壊を起こし難い金属間化合物部材を生成できる。さらに、この金属間化合物部材は、常温において高い強度を有する。

[0013] また、本発明の金属組成物は、フラックスをさらに含むことが好ましい。フラックスは、第1金属の表面と第2合金の表面とにおける酸化被膜を除去する還元機能を果たす。そのため、この構成の金属組成物は、第1金属と第2合金との反応を促進できる。

[0014] また、本発明の金属間化合物部材は、第1金属と第2合金とからなる金属間化合物で構成される。第2合金は、第1金属より融点の高い第1合金に第1遷移金属元素が添加された合金であって、第1金属と反応して金属間化合物を生成する合金である。なお、金属間化合物の平均結晶粒径は、 $3\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。

[0015] 本発明の金属間化合物部材は、本発明の金属組成物から生成される。そのため、本発明の金属間化合物部材は、高温において高い塑性変形能を有し、脆性破壊を起こし難い。さらに、本発明の金属間化合物部材は、常温において高い強度を有する。

[0016] また、本発明の接合体は、第1接合対象物と、第2接合対象物と、第1接合対象物と第2接合対象物とを接合する本発明の金属間化合物部材と、を備える。

[0017] 本発明の接合体は、本発明の金属間化合物部材を備えるため、高温において高い塑性変形能を有し、脆性破壊を起こし難い。さらに、本発明の接合体は、常温において高い強度を有する。

[0018] なお、本発明の接合体では、金属間化合物は金属間化合物部材内において、第1接合対象物から第2接合対象物まで連続して存在していることが好ましい。

## 発明の効果

[0019] 本発明の金属組成物は、高温において高い塑性変形能を有し、脆性破壊を起こし難い金属間化合物部材を生成できる。また、本発明の金属間化合物部

材および接合体は、高温において高い塑性変形能を有し、脆性破壊を起こし難い。

### 図面の簡単な説明

[0020] [図1]本発明の実施形態に係る金属組成物10の正面図である。

[図2]図1に示すS-S線の断面図である。

[図3]図1に示す金属組成物10を用いた接合方法を示すフローチャートである。

[図4]図3に示す接合方法で行われる配置工程の様子を示す断面図である。

[図5]図3に示す接合方法で行われる加熱工程の様子を示す断面図である。

[図6]図3に示す接合方法で行われる加熱工程の温度プロファイルを示す図である。

[図7]図3に示す接合方法で行われる加熱工程によって生成される金属間化合物部材100及び接合体150の様子を示す断面図である。

[図8]図3に示す接合方法で行われる加熱工程によって生成される金属間化合物部材100及び接合体150の様子を示す拡大断面図である。

[図9]図8に示す金属間化合物部材100を構成する多結晶の金属間化合物を示す拡大断面図である。

[図10]図9に示す金属間化合物部材100の比較例に係る金属間化合物部材800を構成する多結晶の金属間化合物を示す拡大断面図である。

[図11]各金属間化合物の結晶粒径の分布を示すグラフである。

[図12]Ni及びCoの重量比と金属間化合物の結晶粒径との関係を示す図である。

[図13]図9に示す金属間化合物部材100と図10に示す金属間化合物部材800とに対して行った圧縮試験の測定方法を示す図である。

[図14]図13に示す2つの試験片191、193に対して常温、200℃、300℃で圧縮試験を行った結果を示す応力-ひずみ曲線を示す図である。

[図15]図13に示す圧縮試験を行った後の試験片195を構成する多結晶の様子を示す拡大断面図である。

[図16]図15に示す試験片195においてクラックC1～C3が生じた部分の拡大断面図である。

[図17]Erosion Speedと合金組成との関係を示す表である。

### 発明を実施するための形態

[0021] 以下、本発明の実施形態に係る金属組成物10、金属間化合物部材100及び接合体150について説明する。

[0022] 図1は、本発明の実施形態に係る金属組成物10の正面図である。図2は、図1に示すS-S線の断面図である。なお、図1中の点線は、金属箔11と金属箔12とが融着した融着部分Mを示している。

[0023] 金属組成物10は、第1金属で構成される金属箔11と、第2合金で構成される高融点合金ペースト15と、第1金属で構成される金属箔12とを備える。

[0024] ここで、第2合金は、第1合金に第1遷移金属元素が添加された合金であって、第1第1金属および第2第1金属と反応して金属間化合物を生成する合金である。金属間化合物は、金属箔11および金属箔12の少なくとも1つと第2合金とから成る。

[0025] なお、金属箔11の材料は、SnまたはSn系合金である。金属箔12の材料は、SnまたはSn系合金である。Sn系合金は例えば、SnAgCu合金、SnAg合金、SnCu合金、SnBi合金、SnSb合金、SnAu合金、SnPb合金、SnZn合金などである。

[0026] なお、金属箔11の材料と、金属箔12の材料は異なる材料であってもよいし、同じ材料であってもよい。

[0027] また、第1合金の材料は、例えば、CuNi合金、CuMn合金、CuAl合金又はCuCr合金である。また、第1合金の材料は、この他にも、CuTi合金、CuCo合金、CuPt合金、NiCr合金、NiV合金、NiPd合金、NiPt合金、NiAu合金などであってもよい。

[0028] また、第1遷移金属元素の材料は、原子番号21のスカンジウムScから原子番号29の銅Cuまでの金属元素である。第1遷移金属元素の材料は、

C o、F e、又はC rのいずれかの元素であることが好ましい。

[0029] また、第2合金の材料は、第1合金に第1遷移金属元素が添加された材料であり、例えば、CuNiCo合金、CuMnCo合金、CuNiFe合金、CuMnFe合金、CuNiCr合金、CuMnCr合金などである。第2合金が $Cu-xNi-yCo$ 合金である場合、前記xは、1以上30以下の範囲内であり、前記yは、0.5以上20以下の範囲内であることが好ましい。

[0030] また、金属間化合物の材料は、例えばCuNiCoSn合金又はCuMnCoSn合金である。具体的には金属間化合物の材料は、例えば $((Cu, Ni, Co)_6Sn_5)$ 、 $((Cu, Ni, Fe)_6Sn_5)$ 、 $((Cu, Ni, Cr)_6Sn_5)$ 等である。

[0031] そのため、第1合金の融点は、金属箔11及び金属箔12の融点より高い。第2合金の融点は、金属箔11及び金属箔12の融点より高い。金属間化合物の融点は、金属箔11及び金属箔12の融点より高い。

[0032] 金属箔11と金属箔12とは、図1に示すように、高融点合金ペースト15を挟んだ状態で、高融点合金ペースト15の全周で融着されている。これにより、金属箔11と金属箔12とは、図2に示すように、高融点合金ペースト15を収納している。すなわち、金属箔11と金属箔12とは、高融点合金ペースト15を封止している。なお、封止は、収納の一例に相当する。

[0033] これにより、高融点合金ペースト15が完全に密閉される。高融点合金ペースト15は図2に示すように、第2合金で構成される複数の高融点合金粒子5（金属成分）が有機成分8中に均一に分散したペーストである。そのため、金属箔11と金属箔12とは、複数の高融点合金粒子5が酸化することをより防ぐことができる。

[0034] なお、高融点合金粒子5の平均粒径（D50）は、 $0.1\mu m \sim 30\mu m$ の範囲内であることが好ましい。ここで、平均粒径（D50）は例えば、レーザ回折・散乱法によって求めた粒度分布における積算値50%での粒径を意味する。

- [0035] 高融点合金粒子5の平均粒径が $0.1\mu\text{m}$ 以上の場合、高融点合金粒子5の表面積を適度に減少できる。これにより、高融点合金粒子5の表面に、酸化物が形成されることを抑制でき、溶融したSnに対する高融点合金粒子5の濡れ性が向上し、金属間化合物の生成反応が促進する。
- [0036] 一方、高融点合金粒子5の平均粒径が $30\mu\text{m}$ 以下の場合、各高融点合金粒子5間の隙間のサイズが適度に減少する。これにより、高融点合金粒子5の中心部分まで金属間化合物の生成反応に利用することができ、金属間化合物の生成量が増加する。
- [0037] また、金属組成物10の高融点合金ペースト15において、金属成分と有機成分との配合比は、重量比で、金属成分：有機成分＝75：25～99.5：0.5の範囲内であることが好ましい。
- [0038] なお、金属成分と有機成分の配合比を上記範囲内とすることで、十分な粘性を得ることができ、有機成分から金属成分が剥落するおそれを抑制できる。一方、金属成分の配合量が上記よりも少ないと、高融点合金粒子5を十分に反応させることができず、後述する金属間化合物部材100中に未反応の高融点合金粒子5が多量に残存するおそれがある。
- [0039] 次に、有機成分8は図2に示すように、フラックス、溶剤、チキソ剤などを含む。
- [0040] フラックスは、ロジンと活性剤を含む。フラックスは、金属箔11、金属箔12、及び高融点合金粒子5のそれぞれの表面の酸化被膜を除去する還元機能を果たす。そのため、フラックスは後に詳述する、溶融した金属箔11と第2合金又は金属箔12と第2合金との反応を促進できる。
- [0041] ロジンは例えば、天然ロジン、水素化ロジン、不均化ロジン、重合ロジン、不飽和二塩基酸変性ロジン、アクリル酸変性ロジンなどのロジン誘導体等、またはこれらの混合材などである。ロジンは例えば、重合ロジンR-95を用いる。
- [0042] また、活性剤はフラックスの還元反応を促進する。活性剤は例えば、モノカルボン酸（例えば、ギ酸、酢酸、ラウリン酸、パルミチン酸、ステアリン

酸、安息香酸など）、ジカルボン酸（例えば、シュウ酸、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、フタル酸など）、ブromoアルコール類（例えば、1-ブromo-2-ブタノールなど）、有機アミンのハロゲン化水素酸塩類、ブromoアルカン類、ブromoアルケン類、ベンジルブromaid類、ポリアミン類、塩素系活性剤などである。活性剤は例えば、アジピン酸を用いる。

[0043] 溶剤は、金属組成物10の高融点合金ペースト15の粘度を調整する。溶剤は例えば、アルコール、ケトン、エステル、エーテル、芳香族系、炭化水素類などである。溶剤は例えば、ヘキシルジグリコール（H e D G）を用いる。

[0044] チキソ剤は、金属成分と有機成分を均一に混和させた後、金属成分と有機成分が分離しないように維持する。チキソ剤は例えば、硬化ヒマシ油、カルナバワックス、アミド類、ヒドロキシ脂肪酸類、ジベンジリデンソルビトール、ビス（p-メチルベンジリデン）ソルビトール類、蜜蝋、ステアリン酸アミド、ヒドロキシステアリン酸エチレンビスアミドなどである。

[0045] なお、高融点合金ペースト15には、添加物として、A g、A u、A l、B i、C、C o、C u、F e、G a、G e、I n、M n、M o、N i、P、P b、P d、P t、S i、S b、Z n等が含まれていても良い。また、高融点合金ペースト15には、これらの添加物だけでなく、添加剤として金属錯体、金属化合物等が含まれていても良い。

[0046] 以下、金属組成物10を用いて、第1接合対象物101と第2接合対象物102とを接合する具体的な接合方法について説明する。

[0047] 図3は、図1に示す金属組成物10を用いた接合方法を示すフローチャートである。図4は、図3に示す接合方法で行われる配置工程の様子を示す断面図である。図5は、図3に示す接合方法で行われる加熱工程の様子を示す断面図である。図6は、図3に示す接合方法で行われる加熱工程の温度プロファイルを示す図である。図7は、図3に示す接合方法で行われる加熱工程によって生成される金属間化合物部材100及び接合体150の様子を示す

断面図である。図8は、図3に示す接合方法で行われる加熱工程によって生成される金属間化合物部材100及び接合体150の様子を示す拡大断面図である。

[0048] まず、金属組成物10と第1接合対象物101と第2接合対象物102とを用意する。

[0049] なお、本接合方法では説明簡略化のため、金属箔11及び金属箔12の材料はSnを使用し、高融点合金粒子5の材料はCuNiCo合金を使用する。CuNiCo合金は、第1遷移金属元素CoがCuNi合金に添加された合金である。CuNiCo合金は、溶融したSnと反応し、金属間化合物であるCuNiCoSn合金を生成する材料である。

[0050] また、第1接合対象物101及び第2接合対象物102は例えば、積層セラミックコンデンサ等の電子部品の表面電極のような素体の表面に形成された電極部材、および、電子部品を実装するプリント配線基板の表面に設けられた電極部材である。第1接合対象物101及び第2接合対象物102の材料は例えば、Cuである。

[0051] 次に、図4に示すように、第1接合対象物101と第2接合対象物102との間に金属組成物10を配置する（S11：配置工程）。この状態では、高融点合金ペースト15は、金属箔11及び金属箔12に封止されている。そのため、高融点合金ペースト15は、金属箔11及び金属箔12の外部の空気に接触しない。

[0052] 次に、図5に示すように、第1接合対象物101と第2接合対象物102とによって金属組成物10を厚み方向から圧縮しながら第1接合対象物101、第2接合対象物102及び金属組成物10を加熱する（S12：加熱工程）。この加熱工程は、例えばリフロー装置によって図6に示す温度プロファイルに従って金属組成物10を加熱する。

[0053] 具体的には加熱工程は、Snの融点 $T_m$ 以上CuNiCo合金の融点以下の範囲内の温度まで、金属組成物10を加熱する。Snの融点 $T_m$ は、231.9℃である。CuNiCo合金の融点は、Niの含有量によって変化し、例

例えば1220℃以上である。加熱工程は例えば、150℃～230℃でプレヒートを行った後、加熱温度250℃～400℃で2分～10分の間、加熱する。ピーク温度は400℃に到達させる。

[0054] なお、有機成分8に含まれる溶剤は、加熱を開始してから、時間 $t_1$ が経過するまでの間に、揮発または蒸発する。

[0055] 加熱により金属組成物10の温度がSnの融点 $T_m$ 以上に達したとき、金属箔11及び金属箔12が溶融する。そして、溶融したSnと高融点合金粒子5のCuNiCo合金とが反応し、金属間化合物であるCuNiCoSn合金を生成する。そして、図7、図8に示すように、金属間化合物（CuNiCoSn合金）で構成される金属間化合物部材100が生成される。この反応は、例えば、液相拡散接合（「TLP接合：Transient Liquid Phase Diffusion Bonding」）に伴う反応である。

[0056] 次に、図6に示すように、時間 $t_2$ が経過した後、リフロー装置は加熱を停止する。これにより、金属間化合物部材100の温度がSnの融点 $T_m$ 未満になり、溶融したSnと高融点合金粒子5との反応は完了する。時間 $t_2$ が経過した後、金属間化合物部材100は常温まで自然冷却していく。

[0057] 以上より、金属組成物10は、図7、図8に示すように、金属間化合物で構成された金属間化合物部材100となる。金属間化合物部材100は、第1接合対象物101および第2接合対象物102を接合する。金属間化合物部材100は、第1接合対象物101および第2接合対象物102とともに接合体150を構成する。

[0058] 金属間化合物部材100は、図8に示すように、微細な空隙が殆ど存在しない緻密な構造を有する。

[0059] また、高融点合金ペースト15では比較的低温での熱処理によってSnと高融点合金粒子5との合金化反応が進行する。そして、金属間化合物（CuNiCoSn合金）は、高い融点（例えば400℃以上）を有する。そのため、金属間化合物部材100は、第1接合対象物101と第2接合対象物1

O<sub>2</sub>とを低温で接合できるとともに、高い耐熱性を有する。

[0060] 特に、金属間化合物（CuNiCoSn合金）が、第1金属よりも高い融点を有することで、金属間化合物部材100を内部に有する電子部品などをさらにリフローなどの加熱により他の装置、部品、基板などに実装する際にも、金属間化合物部材100の構造は損なわれない。即ち金属間化合物部材100は接合力を維持できる。

[0061] 次に、金属間化合物（CuNiCoSn合金）で構成される金属間化合物部材100と、金属間化合物（CuNiSn合金）で構成される従来の金属間化合物部材800とを比較する。従来の金属間化合物部材800は、第1遷移金属元素Coが添加されていない点で金属間化合物部材100と相違する。

[0062] 図9は、図8に示す金属間化合物部材100を構成する多結晶の金属間化合物を示す拡大断面図である。図10は、図9に示す金属間化合物部材100の比較例に係る金属間化合物部材800を構成する多結晶の金属間化合物を示す拡大断面図である。

[0063] なお、図9は、第1金属Snと第2合金であるCu-10Ni-3Co合金とが反応することによって生成された多結晶の金属間化合物の画像を示している。図10は、第1金属Snと第1合金であるCu-10Ni合金とが反応することによって生成された多結晶の金属間化合物の画像を示している。

[0064] また、図9、図10は、TSLソリューションズ社製のOIM（Orientation Imaging Microscopy）で解析した画像を示している。OIMは、EBSD（Electron Back Scatter Diffraction Patterns）測定装置で測定した画像を専用のソフトウェアで解析する装置である。

[0065] ここで、OIMは、隣り合う測定点同志の方位差が、予め設定された角度（本実施形態では5°）より大きければ異なる結晶粒に属すると解析し、予め設定された角度（本実施形態では5°）以下であれば同一の結晶粒に属す

ると解析する。

[0066] OIMの測定および解析により、金属間化合物部材100の平均結晶粒径は図9、図10に示すように、従来の金属間化合物部材800の平均結晶粒径より小さいことが明らかとなった。この理由は、第2合金が、第1合金に第1遷移金属元素Coが添加された合金であるためと考えられる。

[0067] 次に、Ni及びCoの重量比と金属間化合物の結晶粒径との関係について、図11、図12を用いて説明する。

[0068] 図11は、各金属間化合物の結晶粒径の分布を示すグラフである。図11の横軸は、結晶粒径であり、図11の縦軸は、解析断面において、当該結晶粒径を有する結晶粒の面積の総和が、解析断面の総面積に占める比率（断面積比率）である。図11に示すグラフは、前述のOIMによって解析した結果である。

[0069] なお、図11に示す実線は、第1金属Snと第1合金であるCu-3Ni合金とが反応することによって生成された金属間化合物の結晶粒径の分布を示している。図11に示す点線は、第1金属Snと第1合金であるCu-5Ni合金とが反応することによって生成された金属間化合物の結晶粒径の分布を示している。図11に示す一点鎖線は、第1金属Snと第2合金であるCu-10Ni-5Co合金とが反応することによって生成された金属間化合物の結晶粒径の分布を示している。図11に示す二点鎖線は、第1金属Snと第1合金であるCu-10Ni合金とが反応することによって生成された金属間化合物の結晶粒径の分布を示している。

[0070] 図12は、Ni及びCoの重量比と金属間化合物の平均結晶粒径との関係を示す図である。図12に示す平均結晶粒径は、前述のOIMにより解析したデータをもとにArea Fraction法で求めたものである。具体的には、OIM解析の解析断面において、各結晶粒ごとにその面積と断面積比率を乗じた各値を総和することで平均結晶面積を求め、さらに平均結晶面積の4倍を円周率で割った値の平方根を平均結晶粒径としている。

[0071] 以上の解析により、第1遷移金属元素Coが添加された金属間化合物の平

均結晶粒径は図11、図12に示すように、第1遷移金属元素Coが添加されていない金属間化合物の平均結晶粒径より小さいことが明らかとなった。特に、第1遷移金属元素Coが添加された金属間化合物の平均結晶粒径は図12に示すように、 $3\mu\text{m}$ 以下になることが明らかとなった。

[0072] 次に、金属間化合物(CuNiCoSn合金)で構成される金属間化合物部材100の応力-ひずみ曲線と、金属間化合物(CuNiSn合金)で構成される従来の金属間化合物部材800の応力-ひずみ曲線とについて説明する。まず、これらの応力-ひずみ曲線を得た圧縮試験の測定方法から説明する。

[0073] 図13は、図9に示す金属間化合物部材100と図10に示す金属間化合物部材800とに対して行った圧縮試験の測定方法を示す図である。図13の矢印は、圧縮方向を示す。圧縮試験は、インストロン製の材料試験機(Instron 5982)とインコネル製の圧縮治具501、502とを用いて測定した。圧縮試験は、平均結晶粒径 $2.2\mu\text{m}$ の金属間化合物部材100から放電加工機で切り出した試験片191と平均結晶粒径 $10.5\mu\text{m}$ の金属間化合物部材800から放電加工機で切り出した試験片193とを用いた。各試験片191、193の形状は、幅 $2\text{mm}$ ×長さ $2\text{mm}$ ×厚み $4\text{mm}$ の角柱である。圧縮試験は、 $2.1 \times 10^{-4} \text{S}^{-1}$ のひずみ速度で各試験片191、193を圧縮治具501、502によって圧縮し、応力を測定して応力-ひずみ曲線を得た。

[0074] 次に、2つの試験片191、193に対して常温、 $200^\circ\text{C}$ 、 $300^\circ\text{C}$ で圧縮試験を行った結果について説明する。

[0075] 図14は、図13に示す2つの試験片191、193に対して常温、 $200^\circ\text{C}$ 、 $300^\circ\text{C}$ で圧縮試験を行った結果を示す応力-ひずみ曲線を示す図である。図14の実線は、試験片191の結果を示している。図14の点線は、試験片193の結果を示している。なお、グラフの×印は試験片の破壊による試験終了を意味する。

[0076]  $300^\circ\text{C}$ で圧縮試験を行った結果、図14に示すように、平均結晶粒径1

0.5  $\mu\text{m}$ の試験片193ではグラフが顕著なピークを有し、平均結晶粒径2.2  $\mu\text{m}$ の試験片191ではグラフがピークを有さないことが明らかとなった。ここで、急激な応力の減少は試験片193内部のクラックの進展等によるものと考えられる。したがって、グラフのピークは、脆性破壊の起点となるクラックが圧縮試験によって生じたことを示すと考えられる。

[0077] すなわち、300℃で圧縮試験を行った結果、平均結晶粒径10.5  $\mu\text{m}$ の試験片193では脆性破壊が起きて、平均結晶粒径2.2  $\mu\text{m}$ の試験片191では脆性破壊が起きていないことが明らかとなった。

[0078] 次に、200℃で圧縮試験を行った結果、平均結晶粒径10.5  $\mu\text{m}$ の試験片193及び平均結晶粒径2.2  $\mu\text{m}$ の試験片191の両方でグラフが顕著なピークを有することが明らかとなった。しかし、200℃で圧縮試験を行った結果、平均結晶粒径10.5  $\mu\text{m}$ の試験片193に比べて、平均結晶粒径2.2  $\mu\text{m}$ の試験片191は、ひずみ量がより大きな位置でピーク、すなわち脆性破壊を生じており、ひずみに対して強いことが明らかとなった。

[0079] 次に、常温で圧縮試験を行った結果、平均結晶粒径10.5  $\mu\text{m}$ の試験片193に比べて、平均結晶粒径2.2  $\mu\text{m}$ の試験片191は、ひずみ量がより大きな位置で破壊を生じており、圧縮応力に対して強いことが明らかとなった。

[0080] 以上の結果より、金属間化合物部材100は、結晶粒径の大きい従来の金属間化合物部材800に比べて、高温において高い塑性変形能を有すると考えられる。よって、金属間化合物部材100は、熱衝撃による機械的応力が大きい場合でも、機械的応力を吸収することができ、脆性破壊を起こし難い。

[0081] したがって、金属間化合物部材100は、高温において高い塑性変形能を有し、脆性破壊を起こし難い。さらに、金属間化合物部材100は、結晶粒径の大きい従来の金属間化合物部材800に比べて、常温において高い圧縮強度を有する。

[0082] また、図8、図9に示すように、金属間化合物は金属間化合物部材100

内において、第1接合対象物101から第2接合対象物102まで連続して存在している。すなわち、高温において高い塑性変形能を有する金属間化合物が第1接合対象物101および第2接合対象物102を直接接続する。

[0083] そのため、接合体150は、金属間化合物の高い塑性変形能を十分に発揮できる。また、金属間化合物が連続して存在することは、金属間化合物部材100内に空隙が少ないことを意味し、金属間化合物部材100自体の強度が向上していることを意味する。

[0084] したがって、接合体150は、高温において高い塑性変形能を有し、脆性破壊を起こし難い。さらに、接合体150は、常温において高い強度を有する。

[0085] 図15は、図13に示す圧縮試験を行った後の試験片195を構成する多結晶の様子を示す拡大断面図である。図16は、図15に示す試験片195においてクラックC1～C3が生じた部分の拡大断面図である。この圧縮試験は、結晶粒径が大きい金属間化合物と結晶粒径が小さい金属間化合物とが混在した試験片195を用いた。

[0086] なお、図15の画像は、反射電子検出器により撮影した画像である。

[0087] 前述の圧縮試験を行った試験片195の断面を観察した結果、図15に示すように、試験片195では、脆性破壊の起点となるクラックC1～C3が生じていることが明らかとなった。

[0088] しかし、図16に示すように、試験片195においてクラックC1～C3が生じた部分の平均結晶粒径は、Area Fraction法に基づいて前述のOIMにより解析した結果、3.06 $\mu$ mであることが明らかとなった。すなわち、試験片195において平均結晶粒径が3.0 $\mu$ m以下である部分では、脆性破壊の起点となるクラックが生じていないことが明らかとなった。

[0089] したがって、金属間化合物の平均結晶粒径は3.0 $\mu$ m以下であることが好ましいと考えられる。

[0090] 次に、CuNiCoSn合金、CuNiFeSn合金、および、CuNi

S n合金の生成速度について説明する。図17は、Erosion Speedと合金組成との関係を示す表である。以下に示す各組成からなる合金と溶融S nとを、次に示す条件で反応させたときのErosion Speedを測定した。

[0091] 溶融温度＝290℃

溶融時間＝10分

図17において、試料No. 1は、S nとCuNi合金とを反応させた場合、試料No. 2～5は、S nとCuNiCo合金とを反応させた場合、試料No. 6は、S nとCuNiFe合金とを反応させた場合を示している。なお、図17におけるNiの量、Coの量、および、Feの量の列は、それぞれの試料に含まれるNi、Co、Feの重量%を示している。また、Erosion Speedとは、生成した金属間化合物を画像解析により定量化し、全てが(Cu, M)<sub>6</sub>S n<sub>5</sub>になったと仮定して、金属間化合物の生成のために単位時間当たりに消費されるCu合金板の厚みを逆算したものである。Erosion Speedが大きいほど金属間化合物の生成速度が速い。第1遷移元素を添加した試料No. 2～6の場合、第1遷移元素を添加しなかった試料No. 1の場合と比較して、Erosion Speedが最大8.5倍程度まで大きくなっていることが分かる。

[0092] 第1合金に第1遷移元素を添加した場合、第1遷移元素を添加しなかった場合と比較して、第1金属と第2合金との反応によって生成する金属間化合物の結晶粒径が小さくなる。その結果、金属間化合物における第1金属の粒界拡散経路が増大し、拡散速度が向上して、金属間化合物の生成速度が速くなったと考えられる。

[0093] 《他の実施形態》

なお、本実施形態の接合方法において金属箔11及び金属箔12の材料は、S n単体であるが、これに限るものではない。実施の際は、金属箔11及び金属箔12の材料は、S n系合金であってもよい。また、金属箔11の材料と金属箔12の材料とは、異なっても良い。S n系合金は例えば、S

n Ag Cu 合金、Sn Ag 合金、Sn Cu 合金、Sn Bi 合金、Sn Sb 合金、Sn Au 合金、Sn Pb 合金、Sn Zn 合金などである。

[0094] また、本実施形態の金属組成物10では、金属箔11と金属箔12とは、高融点合金ペースト15を挟んだ状態で、高融点合金ペースト15の全周で融着されていたが、これに限るものではない。例えば、金属箔11と金属箔12とは一部で融着されていてもよいし、融着されていなくてもよい。さらに、例えば、金属箔12を備えていなくてもよい。

[0095] また、本実施形態の金属組成物10では、金属箔11及び金属箔12が第1金属に相当し、高融点合金ペースト15が第2合金に相当したが、これに限るものではない。例えば、第1金属は箔状ではなく、粒子状やペースト状であってもよいし、第2合金は、ペースト状ではなく、粒子状や箔状であってもよいし、金属組成物はこれらを適宜組み合わせたものであってもよい。

[0096] また、本実施形態の接合方法において高融点合金粒子5の材料は、Cu Ni Co 合金であるが、これに限るものではない。実施の際は、高融点合金粒子5の材料は、例えばCu Mn Co 合金粒子であってもよい。

[0097] また、本明細書で記載した金属や合金は、厳密な組成を指すものではなく、第1金属と第2高融点金属との反応を阻害しない程度、例えば1重量%以下の割合で、明示していない元素を不純物として含んでいてもよい。

[0098] Cu Mn Co 合金粒子を用いる場合、溶融したSnとCu Mn Co 合金粒子との反応により、金属間化合物が生成される。この金属間化合物は例えば、 $(\text{Cu}, \text{Mn}, \text{Co})_6\text{Sn}_5$ である。

[0099] また、本実施形態において加熱工程は、金属組成物10を熱風加熱しているが、これに限るものではない。実施の際、加熱工程は、金属組成物10に対して例えば遠赤外線加熱や高周波誘導加熱、ホットプレート等を行ってもよい。

[0100] また、本実施形態において加熱工程は、大気中で金属組成物10を熱風加熱しているが、これに限るものではない。実施の際、加熱工程は、例えば $\text{N}_2$ 、 $\text{H}_2$ 、ギ酸、又は真空中で金属組成物10を熱風加熱しても良い。

- [0101] また、本実施形態において加熱工程は加熱中、金属組成物 10 を加圧しているが、これに限るものではない。実施の際、加熱工程は加熱中、金属組成物 10 を加圧していなくてもよい。
- [0102] また、本実施形態においては、金属組成物 10 を接合材料として用いたが、金属組成物 10 の用途はこれに限定されない。例えば、金属組成物 10 により生成した金属間化合物を超塑性素材として制振ダンパーに用いてもよい。
- [0103] また、金属間化合物一般が脆いのに対し、金属組成物 10 により生成した金属間化合物は、高い塑性変形能を有し、加工が可能である。そのため、金属組成物 10 により生成した金属間化合物は、例えば成形物などの加工物に用いることができる。また、当該金属間化合物は、加工可能であるとともに銀色の金属質感を有する物質であるため、例えば、芸術品や玩具などの造形、装飾用途に用いてもよい。
- [0104] 最後に、前記実施形態の説明は、すべての点で例示であって、制限的なものではない。本発明の範囲は、前記実施形態ではなく、特許請求の範囲および均等の範囲である。

## 符号の説明

- [0105] C 1、C 2、C 3…クラック  
M…融着部分  
5…高融点合金粒子  
8…有機成分  
10…金属組成物  
11…金属箔  
12…金属箔  
15…高融点合金ペースト  
100…金属間化合物部材  
101…第1接合対象物  
102…第2接合対象物

1 5 0 …接合体

1 9 1、1 9 3 …試験片

1 9 5 …試験片

5 0 1、5 0 2 …圧縮治具

8 0 0 …金属間化合物部材

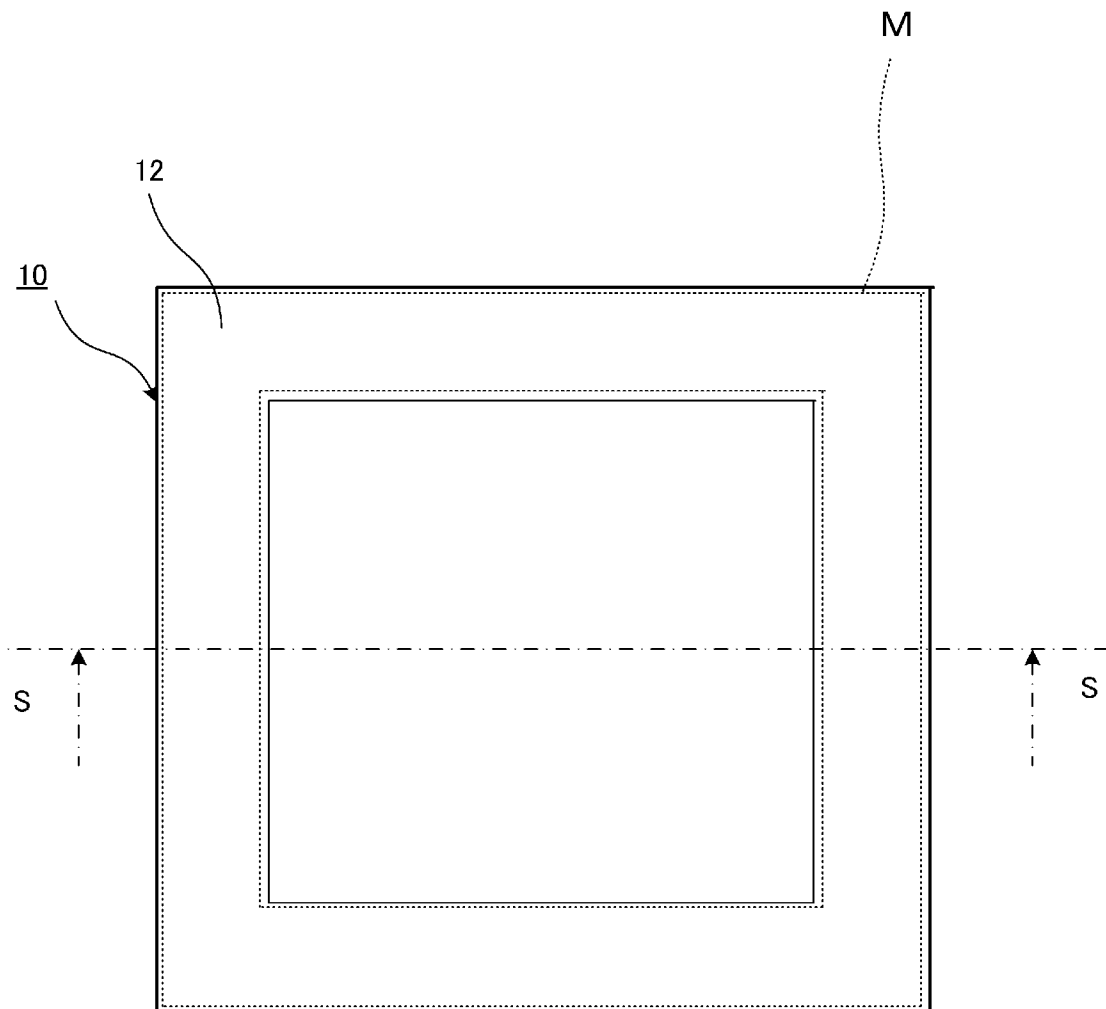
## 請求の範囲

- [請求項1] 第1金属と、  
前記第1金属より融点の高い第1合金に第1遷移金属元素が添加された第2合金と、を含み、  
前記第2合金は、前記第1金属と金属間化合物を生成しうる合金である、金属組成物。
- [請求項2] 前記第1金属は、Sn又はSn系合金であり、  
前記第1合金は、CuAl合金、CuCr合金、CuNi合金又はCuMn合金である、請求項1に記載の金属組成物。
- [請求項3] 前記第1遷移金属元素は、Co、Fe、及びCrのいずれか1つである、請求項1に記載の金属組成物。
- [請求項4] 前記第2合金は、 $Cu-xNi-yCo$ 合金であって、  
前記xは、1以上30以下の範囲内であり、  
前記yは、0.5以上20以下の範囲内である、請求項1に記載の金属組成物。
- [請求項5] フラックスをさらに含む、請求項1乃至請求項4のいずれか1項に記載の金属組成物。
- [請求項6] 第1金属と、前記第1金属より融点の高い第1合金に第1遷移金属元素が添加された第2合金と、からなる金属間化合物で構成され、  
前記第2合金は、前記第1金属と反応して前記金属間化合物を生成する合金である、金属間化合物部材。
- [請求項7] 前記金属間化合物の平均結晶粒径は、 $3\mu m$ 以下である、金属間化合物部材。
- [請求項8] 第1接合対象物と、  
第2接合対象物と、  
請求項6又は請求項7に記載の金属間化合物部材と、を備え、  
前記金属間化合物部材は、前記第1接合対象物と前記第2接合対象物とを接合する接合体。

[請求項9]           前記金属間化合物は前記金属間化合物部材内において、前記第1 接合対象物から前記第2 接合対象物まで連続して存在している、請求項8に記載の接合体。

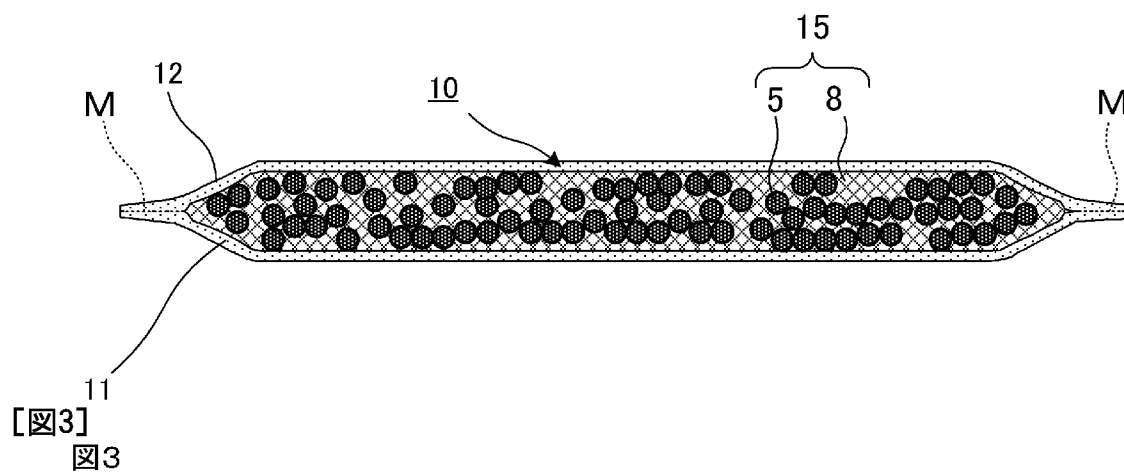
[図1]

図1



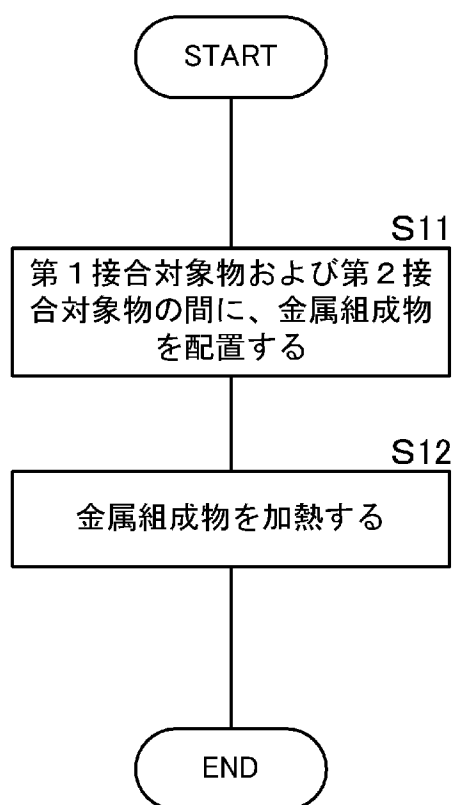
[図2]

図2



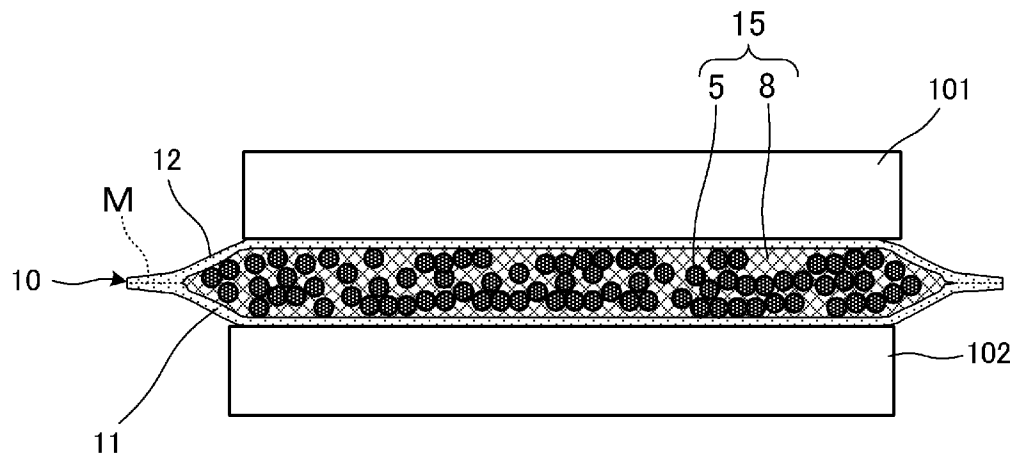
[図3]

図3



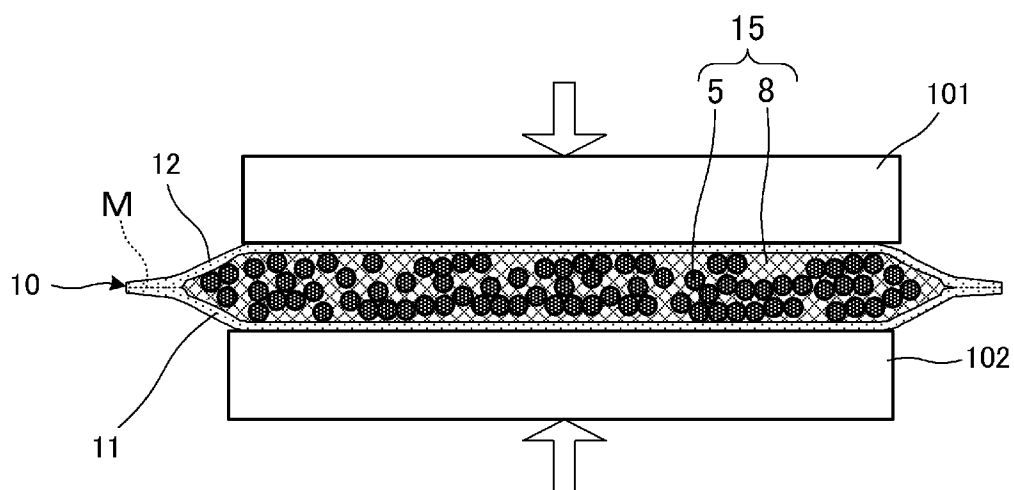
[図4]

図4

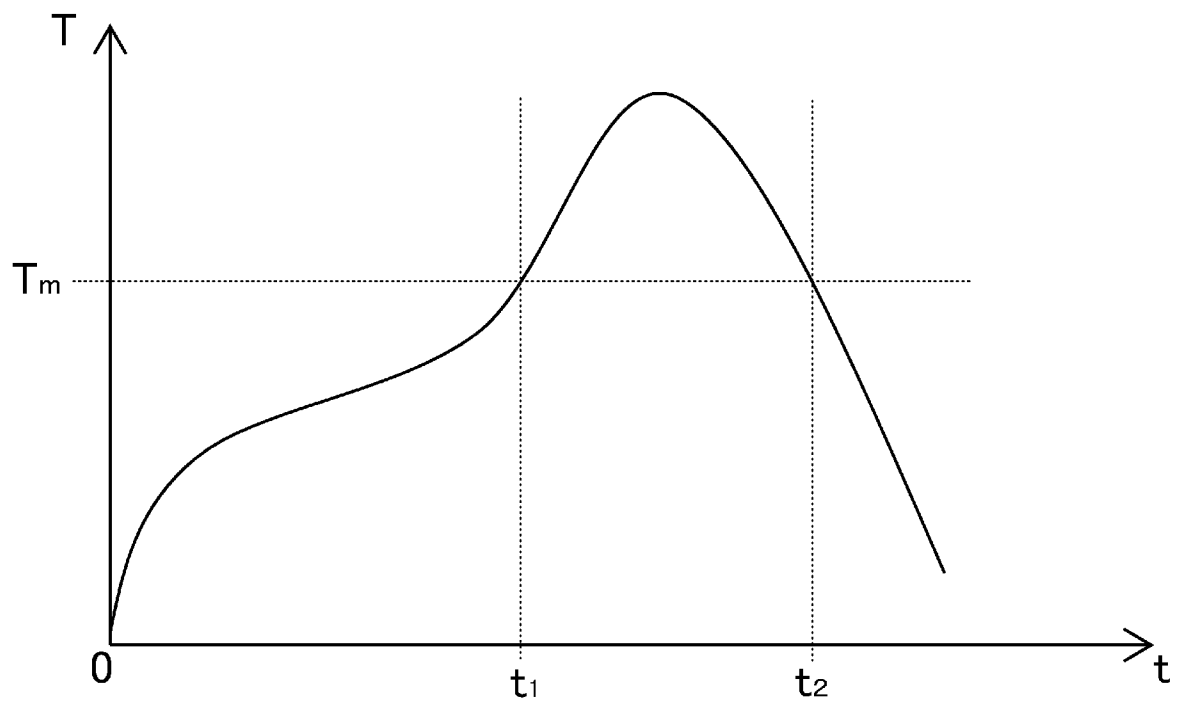


[図5]

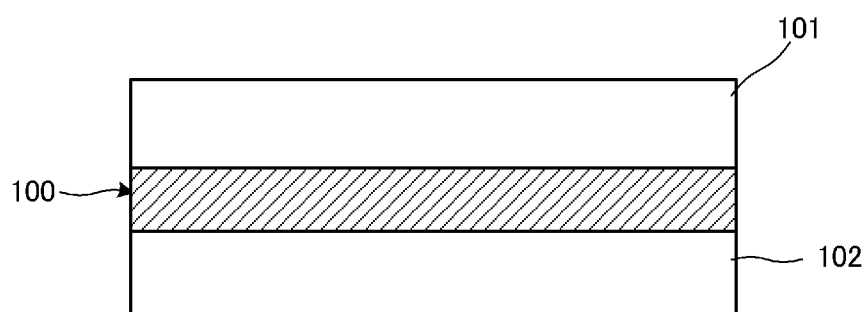
図5



[図6]  
図6



[図7]  
図7



150

[図8]

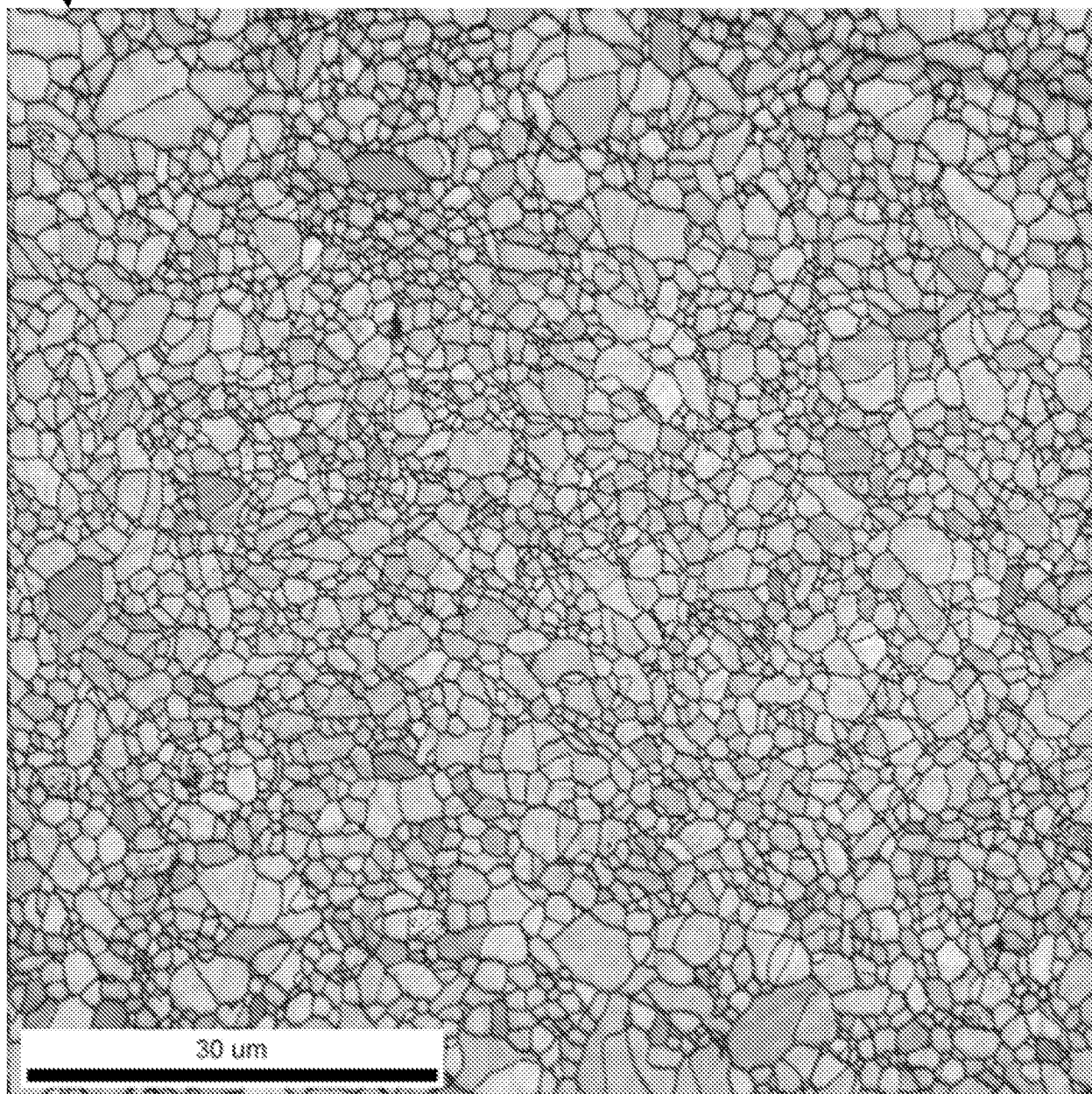
図8

150

[図9]

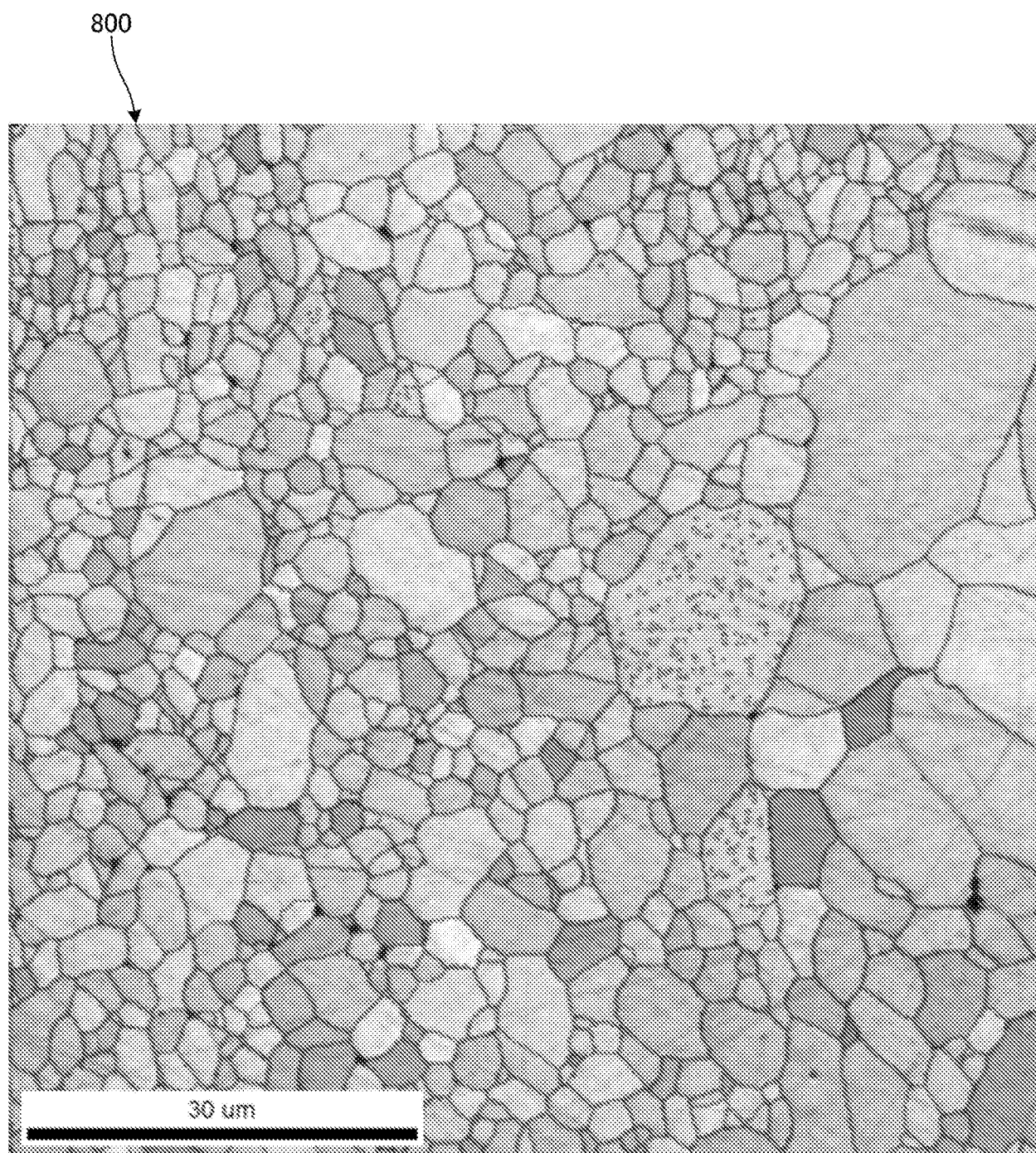
図9

100

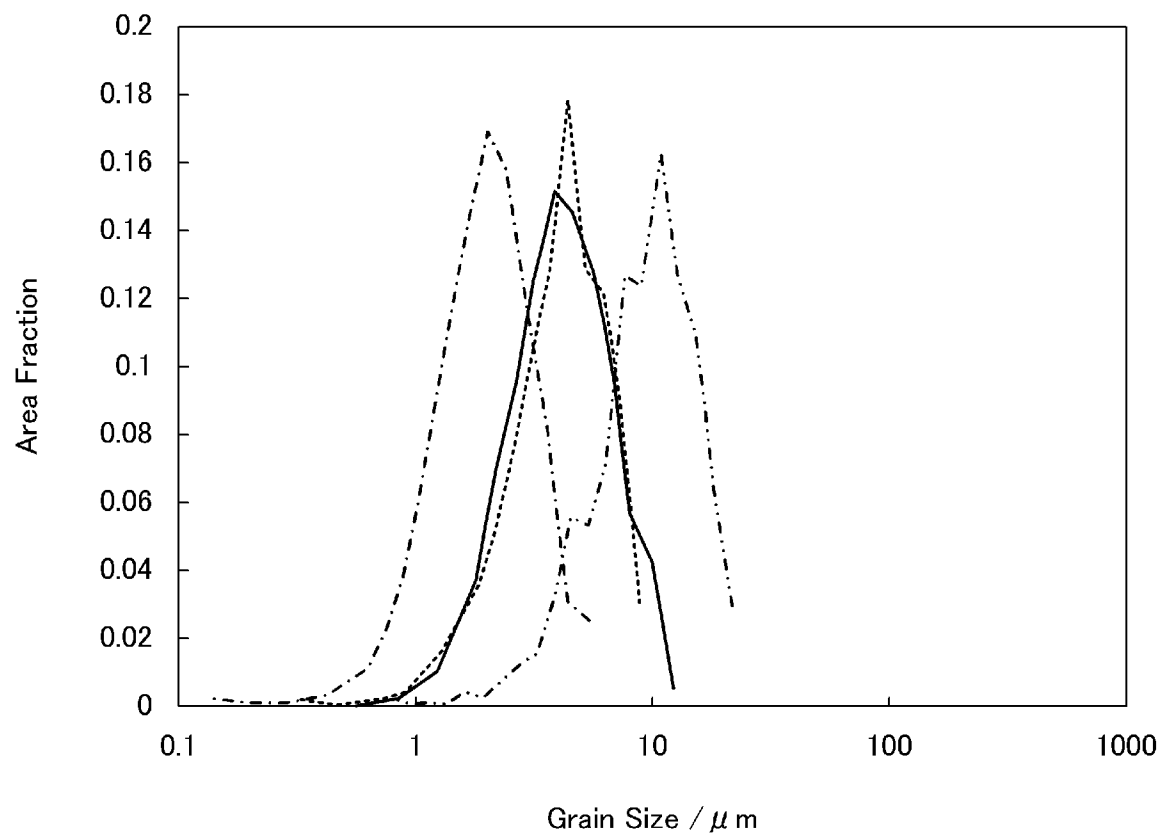


[図10]

図10



[11]  
11



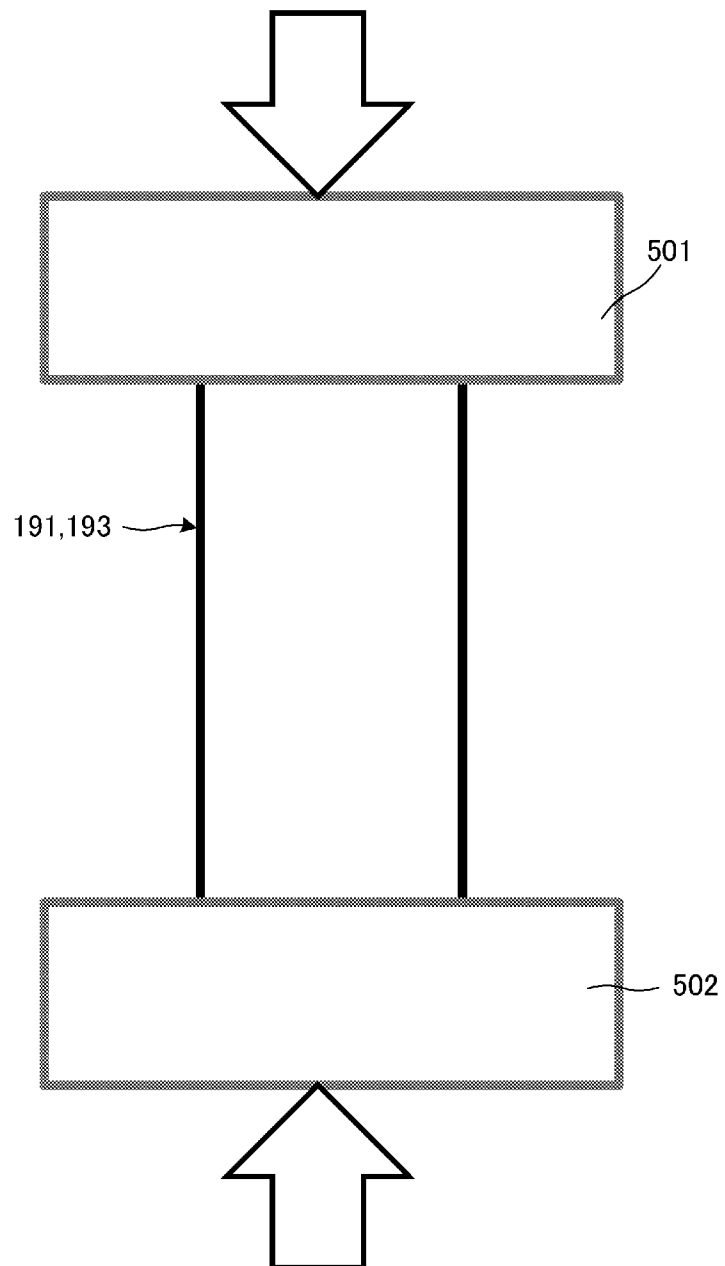
[図12]

図12

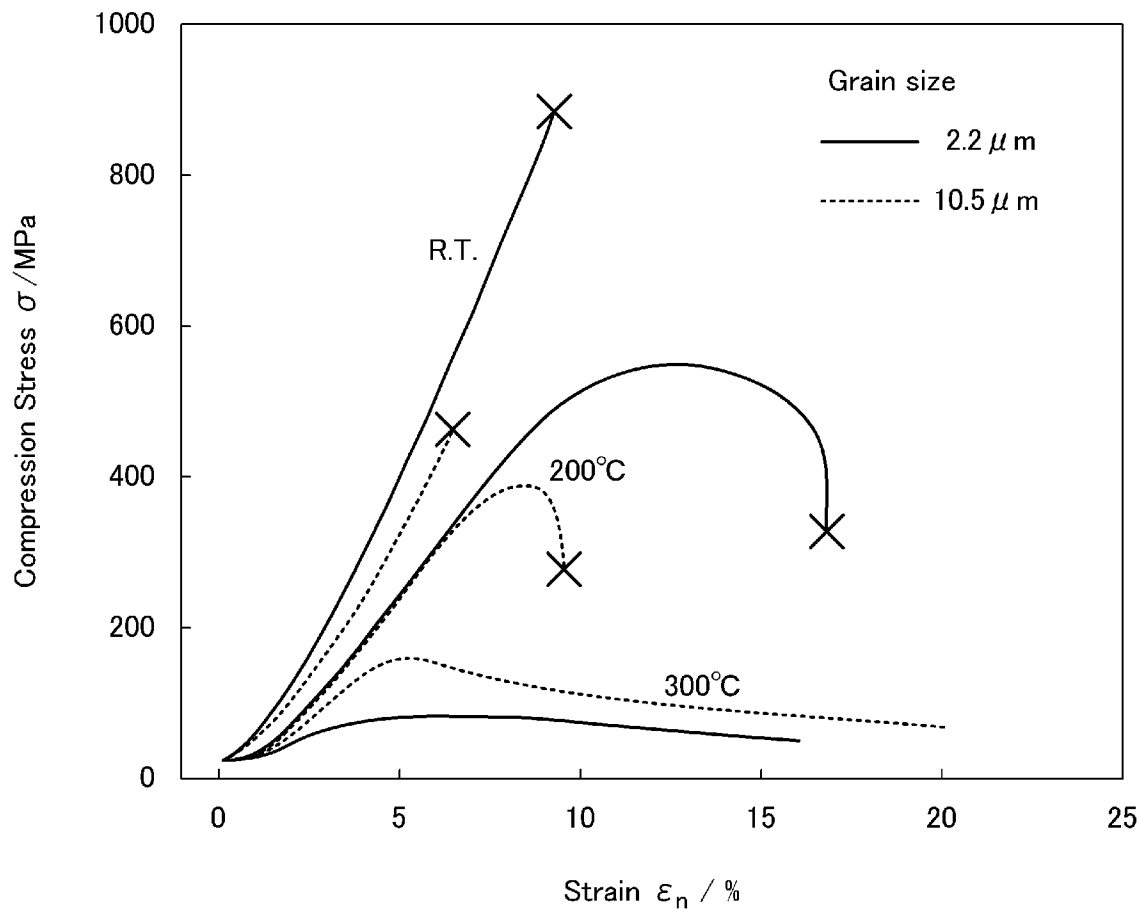
| X (Niの量) | Y (Coの量) | 金属間化合物の<br>平均粒径 ( $\mu\text{m}$ ) |
|----------|----------|-----------------------------------|
| 1        | 0        | 10.2                              |
| 3        | 0        | 9.6                               |
| 5        | 0        | 8.6                               |
| 10       | 0        | 10.5                              |
| 5        | 0.5      | 2.9                               |
| 5        | 1.5      | 2.4                               |
| 1        | 3        | 2.6                               |
| 3        | 3        | 1.7                               |
| 5        | 3        | 1.6                               |
| 10       | 5        | 2.2                               |
| 5        | 5        | 2.7                               |
| 5        | 10       | 2.9                               |

[図13]

図13

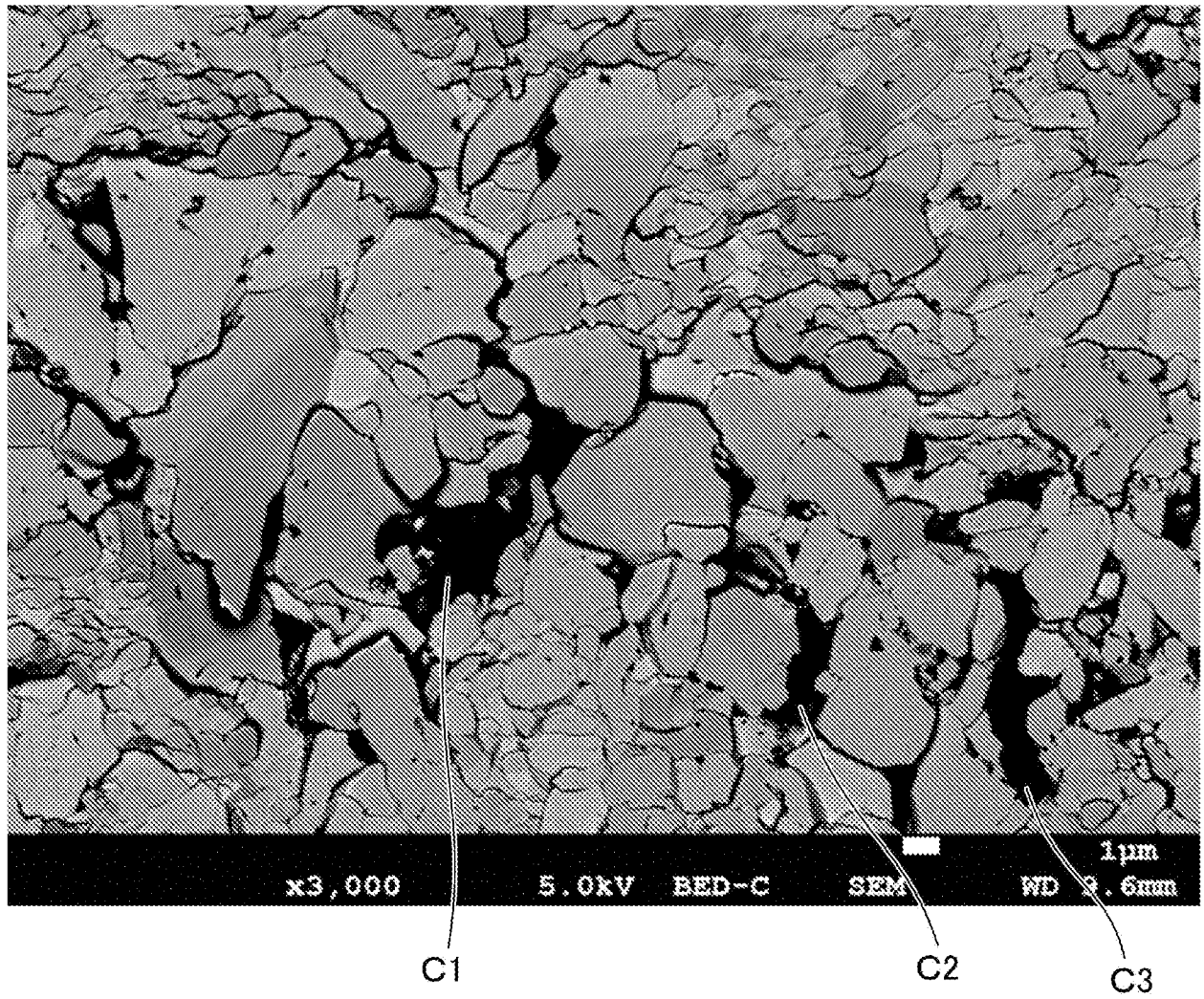


[図14]  
図14



[図15]

図15

195

[図16]

図16



[図17]

図17

| 試料No. | Niの量 | Coの量 | Feの量 | Erosion Speed |
|-------|------|------|------|---------------|
| 1     | 5    |      |      | 11.8          |
| 2     | 2    | 4    |      | 82.0          |
| 3     | 4    | 2    |      | 92.8          |
| 4     | 4    | 4    |      | 94.7          |
| 5     | 5    | 3    |      | 100.5         |
| 6     | 4    |      | 4    | 40.6          |

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/084699

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B23K35/22(2006.01)i, B23K35/30(2006.01)i, C22C9/06(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)

B23K35/22, B23K35/30, C22C9/06

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 | 1996-2017 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971-2017 | Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2017 |

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<br>A    | JP 2015-42421 A (Murata Mfg. Co., Ltd.),<br>05 March 2015 (05.03.2015),<br>paragraphs [0065] to [0097]<br>& US 2013/0270001 A1<br>paragraphs [0072] to [0102]<br>& WO 2012/108395 A1 & EP 2675015 A1<br>& TW 201247068 A1 & CN 103168392 A<br>& KR 10-2013-0050363 A | 1-2, 5-6, 8-9<br>3-4, 7 |
| A         | WO 2007/125861 A1 (Senju Metal Industry Co., Ltd.),<br>08 November 2007 (08.11.2007),<br>& US 2009/0220812 A1 & EP 2017031 A1<br>& CN 101479073 A & KR 10-2009-0007770 A                                                                                             | 1-9                     |

☒ 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  
08 February 2017 (08.02.17)

Date of mailing of the international search report  
21 February 2017 (21.02.17)

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**

International application No.

PCT/JP2016/084699

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                          | Relevant to claim No. |
|-----------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| A         | JP 2010-274326 A (Nihon Superior Co., Ltd.),<br>09 December 2010 (09.12.2010),<br>claim 3<br>(Family: none) | 1-9                   |

## A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. B23K35/22(2006.01)i, B23K35/30(2006.01)i, C22C9/06(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（IPC））

Int.Cl. B23K35/22, B23K35/30, C22C9/06

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   | 1922-1996年 |
| 日本国公開実用新案公報 | 1971-2017年 |
| 日本国実用新案登録公報 | 1996-2017年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1994-2017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<br>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<br>請求項の番号          |
|-----------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------|
| X<br>A          | JP 2015-42421 A（株式会社村田製作所）2015.03.05,<br>段落0065-0097<br>& US 2013/0270001 A1、段落0072-0102<br>& WO 2012/108395 A1 & EP 2675015 A1 & TW 201247068 A1<br>& CN 103168392 A & KR 10-2013-0050363 A | 1-2, 5-6, 8-9<br>3-4, 7 |
| A               | WO 2007/125861 A1（千住金属工業株式会社）2007.11.08,<br>& US 2009/0220812 A1 & EP 2017031 A1 & CN 101479073 A<br>& KR 10-2009-0007770 A                                                                  | 1-9                     |

☑ 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

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

08.02.2017

国際調査報告の発送日

21.02.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）

郵便番号100-8915

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）

川村 裕二

4 K

3349

電話番号 03-3581-1101 内線 3435

| C (続き) . 関連すると認められる文献 |                                                                 |                |
|-----------------------|-----------------------------------------------------------------|----------------|
| 引用文献の<br>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<br>請求項の番号 |
| A                     | JP 2010-274326 A (株式会社日本スペリア社) 2010. 12. 09,<br>請求項 3 (ファミリーなし) | 1-9            |