

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2007 年 10 月 18 日 (18.10.2007)

PCT

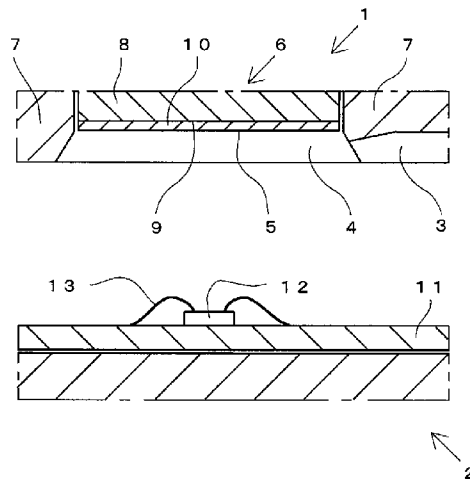
(10) 国際公開番号  
WO 2007/116571 A1

- (51) 国際特許分類:  
B32B 9/00 (2006.01) B32B 18/00 (2006.01)  
B29C 33/38 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2006/326026
- (22) 国際出願日: 2006 年 12 月 27 日 (27.12.2006)
- (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2006-108869 2006 年 4 月 11 日 (11.04.2006) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について):  
TOWA 株式会社 (TOWA CORPORATION) [JP/JP];  
〒6018105 京都府京都市南区上鳥羽上調子町 5 番
- 地 Kyoto (JP). 財団法人ファインセラミックスセンター (JAPAN FINE CERAMICS CENTER) [JP/JP]; 〒4568587 愛知県名古屋市熱田区六野二丁目 4 番 1 号 Aichi (JP).
- (72) 発明者; および  
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 久野 孝希 (KUNO, Takaki) [JP/JP]; 〒6018105 京都府京都市南区上鳥羽上調子町 5 番地 TOWA 株式会社内 Kyoto (JP). 野口 欣紀 (NOGUCHI, Yoshinori) [JP/JP]; 〒6018105 京都府京都市南区上鳥羽上調子町 5 番地 TOWA 株式会社内 Kyoto (JP). 前田 啓司 (MAEDA, Keiji) [JP/JP]; 〒6018105 京都府京都市南区上鳥羽上調子町 5 番地 TOWA 株式会社内 Kyoto (JP). 北岡 諭 (KITAOKA, Satoshi) [JP/JP]; 〒4568587 愛知県名古屋市熱田区六野二丁目 4 番 1 号 財団法人ファインセラミックスセンター内 Aichi (JP). 川島 直樹 (KAWASHIMA, Naoki)

[ 続葉有 ]

(54) Title: LOW-ADHESION MATERIAL, MOLD FOR SHAPING RESIN AND STAINPROOF MATERIAL

(54) 発明の名称: 低密着性材料、樹脂成形型および防汚性材料



(57) Abstract: An upper side half (1) of a resin-shaping mold which bears both a cavity member (6) constituting the inner bottom face (5) of a cavity (4) and a surround member (7). The cavity member (6) is a low-adhesion material according to the present invention which is composed of a body (8) and a face (10) formed on the underside (9) of the body (8) that is to come into contact with a fluid resin. The body (8) is made of a material consisting of the first material 3YSZ and the second material ZrN at a prescribed ratio. The face (10) is made of Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> exhibiting low adhesion to cured resins and has a lower thermal expansion coefficient than that of the body (8). The cavity member (6) is produced by joining the body (8) and the face (10) at high temperature and then cooling the obtained composite, whereby a compressive residual stress is generated in the face (10) owing to the difference in thermal expansion coefficient and remains in the face (10).

(57) 要約: 上型 (1) は、キャビティ (4) の内底面 (5) を構成するキャビティ部材 (6) と、周辺部材 (7) とを有する。キャビティ部材 (6) は、本発明に係る低密着性材料であって、本体部 (8) と本体部 (8) の面のうち流動性樹脂が接触する下面 (9) に形成された表面層 (10) とによって構成される。本体部 (8) は、3YSZ からなる第 1 の材料と ZrN

[ 続葉有 ]



WO 2007/116571 A1



[JP/JP]; 〒4568587 愛知県名古屋市熱田区六野二丁目  
4番1号 財団法人ファインセラミックスセンター  
内 Aichi (JP).

(74) 代理人: 深見 久郎, 外(FUKAMI, Hisao et al.); 〒  
5300005 大阪府大阪市北区中之島二丁目2番7号 中  
之島セントラルタワー22階 深見特許事務所 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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG,  
BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK,  
DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,  
HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR,  
KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG,  
MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM,  
PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL,

SM, 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 (AT, BE, BG,  
CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE,  
IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, 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:

- 国際調査報告書
- 補正書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される  
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語  
のガイダンスノート」を参照。

からなる第2の材料とから所定の比率で構成される。表面層(10)は、硬化樹脂に対する低密着性を有する  
 $Y_2O_3$ から構成され、その熱膨張係数は本体部(8)よりも小さい。本体部(8)と表面層(10)とが高温下で  
接合された後に冷却されることによって、熱膨張係数の差に起因して表面層(10)において圧縮残留応力が発生  
し、その圧縮残留応力が表面層(10)に存在している。

## 明 細 書

### 低密着性材料、樹脂成形型および防汚性材料

#### 技術分野

- [0001] 本発明は、塩基性を有する物質に対して低い密着性を有する材料、すなわち低密着性材料と、その低密着性材料によって少なくとも型面の一部が構成された樹脂成形型と、有機物からなる汚れの付着を防止する機能を有する防汚性材料とに関するものである。

#### 背景技術

- [0002] 従来の樹脂封止成形においては、トランスファ成形法又は射出成形法が用いられている。トランスファ成形法又は射出成形法においては、樹脂成形用の金型にそれぞれ設けられた樹脂流路とキャビティとが使用される。また、樹脂流路を経由してキャビティに流動性樹脂が充填される。充填された流動性樹脂は硬化して、硬化樹脂が形成される。それにより、硬化樹脂を有する成形体が完成する。また、例えば、流動性樹脂としてエポキシ樹脂等の熱硬化性樹脂が使用されているとともに、金型材料として工具鋼等の鋼系材料や超硬合金(WC-Co系合金)等が使用されている。この場合には、容易に成形体を取り出すことができるように、硬化樹脂と金型の表面(型面)との間の密着性を低下させる、言い換えれば、硬化樹脂と型面との間の離型性を向上させることが好ましい。
- [0003] ところで、本出願の発明者らは、空気中において安定な焼結体である $Y_2O_3$  (イットリア)がエポキシ樹脂に対する低密着性を有することを見出した。ここでいう低密着性とは、「従来の金型材料である鋼系材料や超硬合金等とエポキシ樹脂に代表される塩基性を有する物質との間の密着性との比較において、密着性が低いこと」を意味する。そして、本出願の発明者らにより、 $Y_2O_3$ 等の酸化物(塩基性酸化物)を使用して型面又は樹脂成形型を構成することが提案されている(特開2005-274478号公報の第8～9頁および図2参照)。
- [0004] また、本出願の出願人らによる別の特許出願においては、樹脂成形型を構成する低密着性材料として、 $Y_2O_3$ 固溶体、イットリア複合酸化物( $LaYO_3$ )、及び、 $Y_2O_3$ 固

溶体とイットリア複合酸化物との混合物が示されている(特願2006-017335号)。これらの技術によれば、硬化樹脂に対する低密着性材料である $Y_2O_3$ 等の塩基性酸化物、 $Y_2O_3$ 固溶体等が、型面を構成する樹脂成形型用材料に含まれる。したがって、優れた離型性を有する樹脂成形型が実現される。なお、特願2006-017335号に開示されている発明は未だ公開されていないものである。

[0005] しかしながら、上述した従来の技術、すなわち $Y_2O_3$ 等の塩基性酸化物、 $Y_2O_3$ 固溶体等(以下「塩基性酸化物等」という。)を含む樹脂成形型用材料を使用して型面又は樹脂成形型を構成する技術によれば、次の2つの問題がある。

[0006] 第1の問題は、樹脂成形型の耐摩耗性が不十分であるということである。特に大きな問題があると考えられる場合は、リードフレームやプリント基板等(以下「基板」という。)に装着されたLSI(Large Scale Integration)チップ等のチップ状の電子部品(以下「チップ」という。)を樹脂封止する場合である。この場合には、流動性樹脂として、セラミックスからなるフィラーを含有する熱硬化性樹脂(例えば、エポキシ樹脂)が使用される。このフィラーによって、樹脂成形型の型面を構成する塩基性酸化物等が摩耗する。

[0007] 第2の問題は、塩基性酸化物等は、外部から衝撃を受けるとチッピングが発生しやすいこと、言い換えれば耐衝撃性が低いということである。したがって、単に低密着性材料である塩基性酸化物等によって型面又は樹脂成形型を構成する技術によれば、優れた離型性を有する樹脂成形型は得られるが、優れた耐摩耗性と耐衝撃性とを共に備えた樹脂成形型を得ることは困難であった。

特許文献1:特開2005-274478号公報(第8-9頁, 図2)

## 発明の開示

### 発明が解決しようとする課題

[0008] 本発明が解決しようとする課題は、優れた耐摩耗性と耐衝撃性とを共に備えた低密着性材料または防汚性材料を得ること、及び、優れた離型性に加えて優れた耐摩耗性と耐衝撃性とを共に備えた樹脂成形型を得ることが困難であるという点である。

### 課題を解決するための手段

[0009] 課題を解決するための手段を説明する前に、摩耗について説明する。ここでいう摩

耗はエロージョン摩耗である。そして、文献(S.Srinivasan and R.O.Scattergood, R curve effects in solid particle erosion of ceramics, Wear, 142(1991) 115.)によれば、このエロージョン摩耗は、材料硬さ(H)、破壊靱性値(KIC)の増加に伴い低下するとされている(同文献のP.117, TABLE 1に記載された式を参照)。したがって、一般に、脆性材料において、硬質粒子に対する耐摩耗性を向上させるためには、破壊靱性値を増大させることが有効であるといえる。また、脆性材料において耐衝撃性を向上させるためにも、破壊靱性値を増大させることが有効である。これらのことに鑑み、本発明の発明者らは、次のような発明をなした。

- [0010] 上述の課題を解決することを目的として、本発明に係る低密着性材料は、塩基性を有する物質に対する低密着性を有する低密着性材料であって、本体部と、本体部における表面の少なくとも一部に形成された表面層とを備える。表面層は塩基性を有する物質に対する低密着性と本体部よりも小さな熱膨張係数とを有する材料からなる。高温下において本体部に表面層が形成されている。本体部と表面層とが冷却されることによって表面層において圧縮残留応力が発生し、その結果、その圧縮残留応力が表面層に存在している。
- [0011] また、本発明に係る低密着性材料においては、表面層が $Y_2O_3$ 、 $Y_2O_3$ 固溶体、およびイットリア複合酸化物の少なくともいずれかを含むことが望ましい。
- [0012] また、本発明に係る低密着性材料においては、本体部が、 $ZrO_2$ を主成分として $Y_2O_3$ や $CeO_2$ 等を含む $ZrO_2$ 系材料からなる第1の材料と、該第1の材料よりも小さな熱膨張係数を有する第2の材料とを含むことが望ましい。
- [0013] また、本発明に係る低密着性材料においては、本体部が導電性を有することが望ましい。
- [0014] また、本発明に係る樹脂成形型は、キャビティに充填された流動性樹脂を硬化させることによって塩基性を有する物質からなる硬化樹脂を形成し該硬化樹脂を含む成形体を成形する際に使用される。また、樹脂成形型は、流動性樹脂が接触する型面の少なくとも一部に重なるように設けられた本体部と、流動性樹脂が接触する型面の少なくとも一部を構成するように本体部の表面に形成された表面層とを備えている。表面層は硬化樹脂に対する低密着性と本体部よりも小さな熱膨張係数とを有する材

料からなる。高温下において本体部に表面層が形成される。本体部と表面層とが冷却されることによって表面層において圧縮残留応力が発生し、その結果、その圧縮残留応力が存在している。

[0015] また、本発明に係る樹脂成形型においては、表面層が $Y_2O_3$ 、 $Y_2O_3$  固溶体、およびイットリア複合酸化物の少なくともいずれかを含むことが望ましい。

[0016] また、本発明に係る樹脂成形型においては、本体部が、 $ZrO_2$  を主成分として $Y_2O_3$  や $CeO_2$  等を含む $ZrO_2$  系材料からなる第1の材料と、該第1の材料よりも小さな熱膨張係数を有する第2の材料とを含むことが望ましい。

[0017] また、本発明に係る樹脂成形型においては、本体部が導電性を有することが望ましい。

また、本発明の低密着性材料は、有機物からなる汚れの付着を防止する機能を有する防汚性材料としても用いられ得るものである。

### 発明の効果

[0018] 本発明に係る低密着性材料は、本体部と、本体部における表面の少なくとも一部に形成された表面層とを備える。また、その表面層は、塩基性を有する物質に対する低密着性と本体部よりも小さな熱膨張係数とを有する材料によって構成される。また、高温下において本体部に表面層が形成され、本体部と表面層とが冷却されることによって本体部と表面層との熱膨張係数の差に起因して表面層において圧縮残留応力が発生し、その圧縮残留応力が表面層に存在している。そして、表面層における圧縮残留応力の存在によって表面層における破壊靱性値が増大すると考えられる。したがって、表面層における破壊靱性値が増大することにより、優れた耐摩耗性と耐衝撃性とを有する低密着性材料が得られる。加えて、この低密着性材料によって少なくとも型面の一部が構成されることにより、優れた離型性と耐摩耗性と耐衝撃性とを有する樹脂成形型が得られる。

[0019] また、本発明によれば、塩基性を有する物質に対する低密着性を各々有する $Y_2O_3$ 、 $Y_2O_3$  固溶体、および、イットリア複合酸化物の少なくともいずれかが、上述した低密着性材料の表面層に含まれていてもよい。この場合には、 $Y_2O_3$  等を含み、塩基性を有する物質に対する優れた低密着性と耐摩耗性と耐衝撃性とを有する低密着性材

料が得られる。加えて、この低密着性材料によって少なくとも型面の一部が構成されることにより、優れた離型性と耐摩耗性と耐衝撃性とを有する樹脂成形型が得られる。

[0020] また、本発明によれば、本体部に、 $\text{ZrO}_2$  系材料からなる第1の材料と、該第1の材料よりも小さな熱膨張係数を有する第2の材料とが含まれる。そして、第1の材料と第2の材料との比率を変えることにより、本体部と表面層との熱膨張係数の差を変えることができる。したがって、本体部と表面層との界面剥離が発生せず、かつ、表面層における破壊靱性値が増大するように、本体部と表面層との熱膨張係数の差が最適に定められた低密着性材料が得られる。加えて、この低密着性材料によって少なくとも型面の一部が構成されることにより、優れた離型性と耐摩耗性と耐衝撃性とを有する樹脂成形型が得られる。

[0021] また、本発明によれば、本体部は導電性を有している場合には、本体部自体が発熱することによって、樹脂成形型におけるキャビティの内底面及び型面を効率よく加熱することができる。これにより、樹脂成形型を加熱するためのエネルギーの低減を実現することができる。ここで、本体部自体を発熱させるには、本体部に電流を供給し、又は、電磁誘導による誘導電流を発生させて、本体部を自己発熱させればよい。加えて、本体部の導電性を利用して、本体部に対して放電加工による精密加工を行うことができる。

[0022] この発明の上記および他の目的、特徴、局面および利点は、添付の図面と関連して理解されるこの発明に関する次の詳細な説明から明らかとなるであろう。

#### 図面の簡単な説明

[0023] [図1]本発明の実施例1に係る樹脂成形型を示す断面図である。

[図2]本発明の実施例1に係る低密着性材料を製造する工程を示す流れ図である。

[図3]本発明の実施例1に係る低密着性材料における表面層の厚みとその低密着性材料の破壊靱性値との関係を示す説明図である。

[図4]本発明の実施例2に係る樹脂成形型を示す断面図である。

#### 符号の説明

[0024] 1 上型(樹脂成形型)、2 下型、3 樹脂流路、4 キャビティ、5 内底面、6 キャ

ビティ部材(低密着性材料)、7 周辺部材、8、15 本体部、9、16 下面、10、17 表面層、11 基板、12 チップ、13 ワイヤ、14 上型(低密着性材料、樹脂成型型)、18 型面。

### 発明を実施するための最良の形態

- [0025] 上型1は、型面のうちキャビティ4の内底面5を構成する直方体状のキャビティ部材6と、キャビティ部材6以外の部分を構成する周辺部材7とを有する。このキャビティ部材6は、本実施例に係る低密着性材料によって構成されており、具体的には、本体部8と、その本体部8の表面のうち流動性樹脂が接触する側の面である下面9に形成された表面層10とによって構成されている。本体部8は、3YSZ(3mol% $\text{Y}_2\text{O}_3$ , 97mol% $\text{ZrO}_2$ )からなる第1の材料と、導電性を有するZrNからなる第2の材料とから所定の比率で構成され、熱膨張係数は $10.5 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$ である。表面層10は、硬化樹脂に対する低密着性を有する $\text{Y}_2\text{O}_3$ から構成され、その熱膨張係数は本体部8よりも小さい $8.4 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$ である。そして、本体部8と表面層10とが高温下で接合された後に冷却されることによって、本体部8と表面層10との熱膨張係数の差に起因して表面層10において圧縮残留応力が発生し、その圧縮残留応力が表面層10に存在している。

### 実施例 1

- [0026] 本発明の実施例1に係る樹脂成型型と低密着性材料とが、図1～図3を参照して説明される。この低密着性材料は、直方体状の本体部とその本体部における1つの表面に形成された表面層とからなる積層構造体である。
- [0027] 図1は、本実施例に係る樹脂成型型を示す断面図である。図2は、本実施例に係る低密着性材料を製造する工程を示す流れ図である。図3は、本実施例に係る低密着性材料における表面層の厚みとその低密着性材料の破壊靱性値との関係を示す説明図である。
- [0028] 以下に示されるいずれの図についても、わかりやすくするために誇張して描かれている。
- [0029] また、以下の説明においては、樹脂成形の例としてトランスファ成形によって、基板に装着されたチップを樹脂封止する場合を説明する。この樹脂封止では、まず、ワイ



ヤによって配線されたチップがキャビティに收容される。次に、組樹脂封止型が閉じられた状態でキャビティに流動性樹脂が充填される。その後、流動性樹脂を硬化させて硬化樹脂が形成される。それにより、基板と硬化樹脂とを有する成形体（パッケージ）が完成する。

[0030] 図1に示されている上型1と下型2とは、併せて樹脂封止型を構成する。また、上型1が、本実施例に係る樹脂成形型に相当する。上型1には、流動性樹脂（図示なし）が流動する樹脂流路3と、樹脂流路3に連通され流動性樹脂が充填されるキャビティ4とが、それぞれ凹部状に設けられている。また、上型1は、型面のうちキャビティ4の内底面5を構成する直方体状のキャビティ部材6と、キャビティ部材6以外の部分を構成する周辺部材7とを有する。

[0031] このキャビティ部材6は、本実施例に係る低密着性材料によって構成されており、具体的には、本体部8と、その本体部8の表面のうち流動性樹脂が接触する下面9に形成された表面層10とによって構成されている。したがって、樹脂成形型における流動性樹脂が接触する型面のうちキャビティ4の内底面5においては、表面層10が露出していることになる。なお、本体部8と表面層10とを構成する材料は後述される。

[0032] 下型2は、通常の樹脂成形型用材料、例えば、工具鋼等の鋼系材料や超硬合金等によって構成されている。下型2の型面の上には基板11が載置されている。基板11の上にはチップ12が装着され、基板11とチップ12との電極（いずれも図示なし）同士がワイヤ13によって電氣的に接続されている。なお、下型2が、一定の機械的特性を有するセラミックス系材料によって構成されてもよい。

[0033] さて、本実施例に係る低密着性材料からなるキャビティ部材6の本体部8と表面層10とをそれぞれ構成する材料が説明される。まず、本体部8は、第1の材料とその第1の材料よりも小さな熱膨張係数を有する第2の材料とを含んでいる。本実施例では、本体部8は、YSZ( $Y_2O_3$ 含有安定化 $ZrO_2$ )系材料である3YSZ(3mol% $Y_2O_3$ , 97mol% $ZrO_2$ )からなる第1の材料と、導電性を有するZrNからなる第2の材料とから構成される。第1の材料と第2の材料との比率は、75vol%:25vol%である。

[0034] ここで、3YSZの熱膨張係数は $11.4 \times 10^{-6} / ^\circ C$ であり、ZrNの熱膨張係数は、 $7.8 \times 10^{-6} / ^\circ C$ である。そして、上述した比率で3YSZとZrNとから構成される材料（

本体部8を構成する材料)の熱膨張係数は $10.5 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ である。なお、第1の材料は、 $\text{ZrO}_2$ を主成分として $\text{Y}_2\text{O}_3$ や $\text{CeO}_2$ 等を含む $\text{ZrO}_2$ 系材料であればよい。また、第2の材料としては、第1の材料よりも小さい適当な熱膨張係数を有する材料を使用すればよく、例えば、導電性を有する $\text{ZrB}_2$ 等や非導電性材料を使用することができる。

[0035] キャビティ部材6において、本体部8が前述のように構成されている理由は、次の3つである。第1に、キャビティ部材6は、樹脂成形型として必要な一定の機械的特性を有している必要があるからである。ここでいう機械的特性とは、例えば、破壊強度、破壊靱性、または耐衝撃性等を意味する。第2に、本体部8と表面層10とを構成する材料同士の熱膨張係数の差を小さくするとともに、本体部8の熱膨張係数を表面層10の熱膨張係数よりも大きくすることが必要であるからである。第3に、本体部8は所定の導電性を有していることが望ましいからである。

[0036] また、キャビティ部材6においては、表面層10は、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ 固溶体、およびイットリア複合酸化物のうちの少なくともいずれかを含んでいる。このことにより、表面層10は、硬化樹脂に対する低密着性を有する。本実施例では、表面層10は $\text{Y}_2\text{O}_3$ から構成される。高温プロセス、すなわち高温下で処理されるプロセスによって、表面層10は、本体部8の表面(図では下面9)に接合するようにして形成されている。

[0037] ここで、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ の熱膨張係数は、 $8.4 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ であって、本体部8の熱膨張係数( $10.5 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ )よりも小さい。また、高温プロセスにおける処理温度は、上述した本体部8と表面層10とが接合後に冷却されることにより、それらの熱膨張係数の差に基づいて表面層10にある程度の大きさの圧縮残留応力が発生する程度の温度である。

[0038] 上述したキャビティ部材6を有する上型1は、次の4つの特徴を有している。第1の特徴は、導電性と一定の機械的強度とを有する本体部8の表面に高温下で接合された表面層10が設けられ、その表面層10の熱膨張係数( $8.4 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ )は本体部8の熱膨張係数( $10.5 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ )よりも小さいことである。

[0039] そして、本体部8と表面層10とが高温下で接合された後に冷却されることによって、本体部8と表面層10との熱膨張係数の差に起因して表面層10において圧縮残留応

力が発生し、その圧縮残留応力が表面層10に存在している。この圧縮残留応力が表面層10に存在することによって表面層10の破壊靱性値が増大すると考えられる。したがって、優れた耐摩耗性と耐衝撃性とを有する低密着性材料によって構成された樹脂成形型が得られる。

[0040] 第2の特徴は、表面層10が硬化樹脂に対する低密着性を有する材料である $Y_2O_3$ から構成されていることである。これにより、優れた離型性を有する低密着性材料によって構成された樹脂成形型が得られる。

[0041] 第3の特徴は、本体部8が、それぞれ熱膨張係数が $11.4 \times 10^{-6}/^{\circ}C$ である3YSZ(第1の材料)と、 $7.8 \times 10^{-6}/^{\circ}C$ であるZrN(第2の材料)とから構成されており、これらの材料が一定の比率になっていることである。

[0042] これにより、本体部8の熱膨張係数( $10.5 \times 10^{-6}/^{\circ}C$ )は、表面層10の熱膨張係数( $8.4 \times 10^{-6}/^{\circ}C$ )よりも大きくかつ表面層10の熱膨張係数( $8.4 \times 10^{-6}/^{\circ}C$ )に近い適当な値になっている。本体部8と表面層10との熱膨張係数のこのような組合せによって、本体部8と表面層10とを高温下で接合する際に界面剥離が発生することが防止される。したがって、本体部8と表面層10との間において界面剥離が発生しない低密着性材料と、その低密着性材料から構成された樹脂成形型とが得られる。

[0043] 第4の特徴は、本体部8が、導電性を有することである。これにより、本体部8に電流を供給し、又は、電磁誘導による誘導電流を発生させて、本体部8を自己発熱させることができる。したがって、本体部8自体が発熱することによって、樹脂成形型1におけるキャビティ4の内底面5を効率よく加熱することができる。

[0044] これにより、樹脂成形型1を加熱する際の省エネルギー化が可能になる。また、本体部8の導電性を利用して、必要に応じて本体部8に対して放電加工による精密加工を行うことができる。

[0045] 図1に示された樹脂成形型の動作が説明される。まず、下型2の上に位置決めされ基板11が配置され、吸着等の方法によって基板11が下型2に固定される。次に、上型1を下降させて上型と下型2とが閉じられる。次に、プランジャ(図示なし)を使用して熱硬化性樹脂からなり一定の粘性を有する流動性樹脂(図示なし)を押圧することにより、樹脂流路3を経由してキャビティ4に流動性樹脂が充填される。

- [0046] 次に、上型1と下型2とに設けられたヒータ(図示なし)を使用して、流動性樹脂を加熱しこれを硬化させることによって、硬化樹脂が形成される。この工程では、導電性を有する本体部8に電流を供給し、又は、電磁誘導による誘導電流を発生させて、本体部8を自己発熱させてもよい。次に、上型1を上昇させて上型1と下型2とを開き、硬化樹脂によって基板11とチップ12とワイヤ13とが一体的に封止された成形体が上型1から離される。この工程で、硬化樹脂に対する低密着性を有する材料である $Y_2O_3$ から構成されている表面層10から硬化樹脂が容易に離される。
- [0047] 以上説明したように、本実施例によれば、優れた低密着性と耐摩耗性と耐衝撃性とを有する低密着性材料が得られる。また、その低密着性材料によって構成され優れた離型性を有する樹脂成形型が得られる。
- [0048] 本実施例に係る低密着性材料と樹脂成形型とは、次のような方法によって製造される。まず、図2に示すように、工程S1において、本体部8の材料である3YSZとZrNとの粉末が所定の比率で調合される。次に、工程S2において、調合された粉末に対してボールミル混合が行われる。次に、工程S3において、ボールミル混合された材料が乾燥させてふるいにかけてられる。次に、工程S4において、仮成形を行うことによって直方体状の部材(図1の本体部8に相当)が完成する。
- [0049] また、上述した直方体状の部材の製作とは別に、まず、図2に示すように、工程S5において、表面層10の材料である $Y_2O_3$ の粉末が、必要な量だけ準備される。次に、工程S6において、 $Y_2O_3$ の粉末を仮成形して、薄板状の部材が製作される。
- [0050] 次に、それぞれ仮成形された直方体状の部材と $Y_2O_3$ からなる薄板状の部材とをホットプレスによって積層化され、積層構造体が形成される。この場合における処理条件は、例えば、 $N_2$ 雰囲気中において処理温度が1350℃、処理時間が1時間、プレス圧力が48kNである。その後、形成された積層構造体が処理温度から室温まで冷却される。この冷却は、積層構造体を室温又は室温以下の雰囲気に放置することにより行われてもよく、送風等の手段を使用して強制的に行われてもよい。
- [0051] ここまでの工程により、本体部と表面層とからなる積層構造体、すなわち本実施例に係る低密着性材料(図1における本体部8と表面層10とからなるキャビティ部材6に相当)が完成する。なお、完成した低密着性材料においては、1350℃という高温下

で処理されるプロセスにより、本体部8に含まれる3YSZに対して表面層10に含まれる $Y_2O_3$ が固相拡散している。これにより、本体部8に表面層10が接合される。

[0052] 次に、図1に示すように、製作された低密着性材料からなるキャビティ部材6が、通常の樹脂成形型用材料、例えば、工具鋼等の鋼系材料や超硬合金等からなる周辺部材7に取り付けられる。これにより、本実施例に係る樹脂成形型である上型1が完成する。

[0053] 以下、本実施例に係る低密着性材料において、 $Y_2O_3$ から構成される表面層10の厚みと、その低密着性材料の破壊靱性値との関係が、図3を参照して説明される。この関係进行评估するために、表面層の厚みが異なる3つの試料( $n=5$ )を製作し、JIS IF法(JIS R 1607)によって各試料の破壊靱性値が測定された(押込加重=1kgf $\div 9.8$ N)。その結果、表面層の厚みが1.4mm、0.9mm、及び0.25mmである試料の破壊靱性は、それぞれ、 $0.9\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ 、 $1.7\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ 、 $2.3\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ であるという測定結果が得られた。得られた結果が図3に示されている。

[0054] なお、支持層8—表面層10の界面における表面層側の残留圧縮応力の値は、算出式によって682MPa程度であると算出された。ここで、残留圧縮応力 $\sigma$ の算出式は、式 $\sigma = E \Delta \alpha \cdot \Delta T / (1 - \nu)$ で表される。式中の記号 $E$ は表面層の縦弾性係数、 $\nu$ はポアソン比、 $\Delta \alpha$ は支持層と表面層との線膨張係数の差、 $\Delta T$ は処理温度と使用温度との差である。また、このときの各パラメータの値は、 $E=171\text{GPa}$ 、 $\Delta T=1350-20=1330^\circ\text{C}$ 、 $\nu=0.3$ である。なお、図3においてハッチングを付した破壊靱性値の範囲は、 $Y_2O_3$ 単体で樹脂成形型を構成した場合の破壊靱性値を示す。

[0055] 図3から、図1に示された本体部8と表面層10との間の界面と表面層10の表面との間の距離を近づけるほど、言い換えれば圧縮残留応力が存在する表面層10の厚さを小さくするほど、破壊靱性値が増加しているという関係が見出される。この関係と $Y_2O_3$ 単体で樹脂成形型を構成した場合の破壊靱性値とを考慮すれば、低密着性材料として適当な表面層10の厚みは1.2mm以下でなければならない、かつより小さいことが好ましい。そして、表面層10の好ましい厚みは1.0mm以下であり、より好ましい厚みは0.25mm以下であると考えられる。また、表面層10の厚みの下限は、表面層10を構成する物質が単位格子を形成する程度(例えば、数nm程度)であればよい。

[0056] なお、本実施の形態においては、上型1を構成する部材のうちキャビティ4の内底面5を構成する直方体状のキャビティ部材6は、本実施例に係る低密着性材料によって構成されている。これに代えて、樹脂流路3の内底面を構成する部材が、本実施例に係る低密着性材料によって構成されてもよい。更に、樹脂成形型において、型面のうち流動性樹脂が接触する面のすべてを含む部分が（又はその面の大部分が）、本実施例に係る低密着性材料によって構成されてもよい。

[0057] 例えば、図1におけるキャビティ4の内底面5と樹脂流路3の内底面とを含む部分が、本実施例に係る低密着性材料によって構成されてもよい。要は、キャビティ部材6の本体部8が、流動性樹脂が接触する型面の少なくとも一部に平面視において重なるように設けられ、表面層10が、流動性樹脂が接触する型面の少なくとも一部を構成するように本体部8の表面に形成されていればよい。

## 実施例 2

[0058] 本発明の実施例2に係る樹脂成形型と低密着性材料とが、図4を参照して説明される。本実施例に係る低密着性材料は、直方体状の母材に対して表面（1つの面；図では下面）に凹部が設けられた本体部と、その表面に形成された表面層とからなる積層構造体である。図4は、本実施例に係る樹脂成形型を示す断面図である。

[0059] 図4に示されている上型14が、本実施例に係る低密着性材料及び樹脂成形型に相当する。また、上型14は、本実施例に係る低密着性材料によって構成されている。具体的には、上型14は、本体部15と、その本体部15の表面のうち流動性樹脂が接触する下面16の全面に形成された表面層17とによって構成されている。したがって、上型14における流動性樹脂が接触する型面のすべては表面層17によって構成されていることになる。

[0060] 本体部15は、実施例1における本体部8と同じ材料によって、すなわち3YSZからなる第1の材料と導電性を有するZrNからなる第2の材料とによって構成されている。また、表面層17は、実施例1における表面層10と同じ材料によって、すなわち $Y_2O_3$ 、 $Y_2O_3$  固溶体、およびイットリア複合酸化物の少なくともいずれかを含む材料によって構成されている。

[0061] 本実施例においても、表面層17は $Y_2O_3$  によって構成されていることとした。本実施

例によれば、流動性樹脂が接触する型面18においてこの表面層10が存在することによって、図1に示された樹脂成形型及び低密着性材料によって得られる効果と同様の効果が得られる。

[0062] 図2に示された樹脂成形型は、次のようにして得られる。まず、切削加工等によって直方体状の原材料が適当に加工され、樹脂流路3とキャビティ4とに相当する凹部が形成される。次に、凹部が形成された面である下面16に、周知の方法のうち適切な方法を使用して、層状(膜状)の表面層17が形成される。

[0063] ここでいう周知の方法とは、例えば、CVD (Chemical Vapor Deposition)、ゾルゲル法、溶射法等の各種コーティング、及び、シート状材料のホットプレス積層化等の方法である。また、これらの周知の方法によっても、実施例1において説明された方法と同様に、一定の高温下で表面層17が形成され、冷却後の表面層17においてある程度の大きさの圧縮残留応力が発生している。

[0064] なお、上述した各実施例においては、基板11に装着されたチップ12を樹脂封止する際に使用される樹脂成形型を例に挙げて説明がなされた。これに限らず、一般的なトランスファ成形、射出成形、圧縮成形等のように、キャビティに流動性樹脂が充填された状態でその流動性樹脂を硬化させて成形体を成形する際に使用される樹脂成形型に対して、本発明を適用することができる。

[0065] また、本体部8, 15は、通常の樹脂成形型用材料、例えば、工具鋼等の鋼系材料や超硬合金等によって構成されてもよい。そして、上述した各実施例と同様に、本体部8, 15と表面層10, 17の熱膨張係数を適切に定めることによって、表面層10, 17において圧縮残留応力を存在させることができる。

[0066] また、各実施例においては、それぞれ本発明に係る低密着性材料とこれを使用した樹脂成形型との説明がなされた。これに限らず、低密着性材料は、樹脂成形型以外の用途に使用され得る。その用途とは、塩基性を有する物質に対する濡れ性が低いことが要求されるとともに、耐摩耗性と耐衝撃性が要求される他の用途である。具体的には、本発明に係る低密着性材料は、部材等における流動性樹脂が接触する部分のコーティング等に使用され得る。

[0067] 更に、本発明に係る低密着性材料は、樹脂以外の物質であって塩基性を有する物

質に対する低密着性に加えて、耐摩耗性と耐衝撃性が要求される用途に使用されることが可能である。例えば、このような低密着性材料は、有機物からなる汚れの付着を防止する機能を有する材料として使用され得る。具体的に言えば、建物の外壁等を使用される建材、浴槽、衛生陶器やこれに類する機器等の材料として使用することが考えられる。また、これらの用途に使用される部材の表面をコーティングする材料として、本発明に係る低密着性材料が使用されてもよい。

[0068] なお、前述の低密着性材料3は、有機物からなる汚れの付着を防止する機能を有する防汚性材料としても用いられ得るものである。

[0069] この発明を詳細に説明し示してきたが、これは例示のためのみであって、限定とはならず、発明の範囲は添付の請求の範囲によってのみ限定されることが明らかに理解されるであろう。



## 請求の範囲

- [1] 塩基性を有する物質に対する低密着性を有する低密着性材料(6, 14)であって、  
本体部(8, 15)と、  
前記本体部(8, 15)における表面の少なくとも一部に形成された表面層(10, 17)  
とを備えるとともに、  
前記表面層(10, 17)は前記塩基性を有する物質に対する低密着性と前記本体部  
(8, 15)よりも小さな熱膨張係数とを有する材料からなり、  
高温下において前記本体部(8, 15)に前記表面層(10, 17)が形成され、前記本  
体部(8, 15)と前記表面層(10, 17)とが冷却されることによって前記表面層(10, 1  
7)において圧縮残留応力が発生し、該圧縮残留応力が前記表面層(10, 17)に存  
在している。
- [2] 請求項1に従属する低密着性材料(6, 14)であって、  
前記表面層(10, 17)は、 $Y_2O_3$ 、 $Y_2O_3$  固溶体、およびイットリア複合酸化物の少な  
くともいずれかを含む。
- [3] 請求項2に従属する密着性材料(6, 14)であって、  
前記本体部(8, 15)は、 $ZrO_2$ を主成分とする第1の材料と、該第1の材料よりも小さ  
な熱膨張係数を有する第2の材料とを含む。
- [4] 請求項1に従属する低密着性材料(6, 14)であって、  
前記本体部(8, 15)は導電性を有する。
- [5] キャビティ(4)に充填された流動性樹脂を硬化させることによって塩基性を有する  
物質からなる硬化樹脂を形成し該硬化樹脂を含む成形体を成形する際に使用され  
る樹脂成形型(1, 14)であって、  
前記樹脂成形型(1, 14)において前記流動性樹脂が接触する型面の少なくとも一  
部に重なるように設けられた本体部(8, 15)と、  
前記流動性樹脂が接触する型面の少なくとも一部を構成するように前記本体部(8  
, 15)の表面に形成された表面層(10, 17)とを備えるとともに、  
前記表面層(10, 17)は前記硬化樹脂に対する低密着性と前記本体部(8, 15)よ  
りも小さな熱膨張係数とを有する材料からなり、

高温下において前記本体部(8, 15)に前記表面層(10, 17)が形成され、前記本体部(8, 15)と前記表面層(10, 17)とが冷却されることによって前記表面層(10, 17)において圧縮残留応力が発生し、該圧縮残留応力が前記表面層(10, 17)に存在している。

- [6] 請求項5に従属する樹脂成型型(1, 14)であって、  
前記表面層(10, 17)は $Y_2O_3$ 、 $Y_2O_3$ 固溶体、およびイットリア複合酸化物の少なくともいずれかを含む。
- [7] 請求項6に従属する樹脂成型型(1, 14)であって、  
前記本体部(8, 15)は、 $ZrO_2$ を主成分とする第1の材料と、該第1の材料よりも小さな熱膨張係数を有する第2の材料とを含む。
- [8] 請求項5に従属する樹脂成型型(1, 14)であって、  
前記本体部(8, 15)は導電性を有する。
- [9] 有機物からなる汚れの付着を防止する機能を有する防汚性材料(6, 14)であって、  
、  
本体部(8, 15)と、  
前記本体部(8, 15)における表面の少なくとも一部に形成された表面層(10, 17)とを備えるとともに、  
前記表面層(10, 17)は前記塩基性を有する物質に対する低密着性と前記本体部(8, 15)よりも小さな熱膨張係数とを有する材料からなり、  
高温下において前記本体部(8, 15)に前記表面層(10, 17)が形成され、前記本体部(8, 15)と前記表面層(10, 17)とが冷却されることによって前記表面層(10, 17)において圧縮残留応力が発生し、該圧縮残留応力が前記表面層(10, 17)に存在している。
- [10] 請求項9に従属する防汚性材料(6, 14)であって、  
前記表面層は $Y_2O_3$ 、 $Y_2O_3$ 固溶体、およびイットリア複合酸化物の少なくともいずれかを含む。
- [11] 請求項10に従属する防汚性材料(6, 14)であって、  
前記本体部(8, 15)は、 $ZrO_2$ を主成分とする第1の材料と、該第1の材料よりも小さな

な熱膨張係数を有する第2の材料とを含む。

- [12] 請求項9に従属する防汚性材料(6, 14)であって、  
前記本体部(8, 15)は導電性を有する。

## 補正書の請求の範囲

[2007年5月17日 (17.05.2007) 国際事務局受理]

- [1] (補正後) 塩基性を有する物質に対する低密着性を有する低密着性材料(6, 14)であって、
- 本体部(8, 15)と、
- 前記本体部(8, 15)における表面の少なくとも一部に形成された表面層(10, 17)とを備えるとともに、
- 前記表面層(10, 17)は前記塩基性を有する物質に対する低密着性と前記本体部(8, 15)よりも小さな熱膨張係数とを有する材料からなり、
- 高温下において前記本体部(8, 15)に前記表面層(10, 17)が形成され、前記本体部(8, 15)と前記表面層(10, 17)とが冷却されることによって前記表面層(10, 17)において圧縮残留応力が発生し、該圧縮残留応力が前記表面層(10, 17)に存在しており、
- 前記表面層は $Y_2O_3$ を含み、
- 前記本体部は第1の材料と該第1の材料よりも小さな熱膨張係数を有する第2の材料とを含む混合材料からなり、
- 前記第1の材料は $ZrO_2$ を主成分とする。
- [2] (補正後) 塩基性を有する物質に対する低密着性を有する低密着性材料(6, 14)であって、
- 本体部(8, 15)と、
- 前記本体部(8, 15)における表面の少なくとも一部に形成された表面層(10, 17)とを備えるとともに、
- 前記表面層(10, 17)は前記塩基性を有する物質に対する低密着性と前記本体部(8, 15)よりも小さな熱膨張係数とを有する材料からなり、
- 高温下において前記本体部(8, 15)に前記表面層(10, 17)が形成され、前記本体部(8, 15)と前記表面層(10, 17)とが冷却されることによって前記表面層(10, 17)において圧縮残留応力が発生し、該圧縮残留応力が前記表面層(10, 17)に存在しており、
- 前記表面層(10, 17)は、 $Y_2O_3$ 固溶体およびイットリア複合酸化物の少なくともい

ずれかを含み、

前記本体部は、第1の材料と該第1の材料よりも小さな熱膨張係数を有する第2の材料とを含む混合材料、鋼系材料、又は超硬合金からなる。

- [3] (補正後) 請求項2に従属する低密着性材料(6, 14)であって、

前記第1の材料は、 $\text{ZrO}_2$ を主成分とする。

- [4] (補正後) 請求項1または2に従属する低密着性材料(6, 14)であって、

前記混合材料は導電性を有する。

- [5] (補正後) キャビティ(4)に充填された流動性樹脂を硬化させることによって塩基性を有する物質からなる硬化樹脂を形成し該硬化樹脂を含む成形体を成形する際に使用される樹脂成形型(1, 14)であって、

前記樹脂成形型(1, 14)において前記流動性樹脂が接触する型面の少なくとも一部に重なるように設けられた本体部(8, 15)と、

前記流動性樹脂が接触する型面の少なくとも一部を構成するように前記本体部(8, 15)の表面に形成された表面層(10, 17)とを備えるとともに、

前記表面層(10, 17)は前記硬化樹脂に対する低密着性と前記本体部(8, 15)よりも小さな熱膨張係数とを有する材料からなり、

高温下において前記本体部(8, 15)に前記表面層(10, 17)が形成され、前記本体部(8, 15)と前記表面層(10, 17)とが冷却されることによって前記表面層(10, 17)において圧縮残留応力が発生し、該圧縮残留応力が前記表面層(10, 17)に存在しており、

前記表面層は $\text{Y}_2\text{O}_3$ を含み、

前記本体部は第1の材料と該第1の材料よりも小さな熱膨張係数を有する第2の材料とを含む混合材料からなり、

前記第1の材料は $\text{ZrO}_2$ を主成分とする。

- [6] (補正後) キャビティ(4)に充填された流動性樹脂を硬化させることによって塩基性を有する物質からなる硬化樹脂を形成し該硬化樹脂を含む成形体を成形する際に使用される樹脂成形型(1, 14)であって、

前記樹脂成形型(1, 14)において前記流動性樹脂が接触する型面の少なくとも一

部に重なるように設けられた本体部(8, 15)と、

前記流動性樹脂が接触する型面の少なくとも一部を構成するように前記本体部(8, 15)の表面に形成された表面層(10, 17)とを備えるとともに、

前記表面層(10, 17)は前記硬化樹脂に対する低密着性と前記本体部(8, 15)よりも小さな熱膨張係数とを有する材料からなり、

高温下において前記本体部(8, 15)に前記表面層(10, 17)が形成され、前記本体部(8, 15)と前記表面層(10, 17)とが冷却されることによって前記表面層(10, 17)において圧縮残留応力が発生し、該圧縮残留応力が前記表面層(10, 17)に存在しており、

前記表面層(10, 17)は、 $Y_2O_3$  固溶体およびイットリア複合酸化物の少なくともいずれかを含み、

前記表面層は $Y_2O_3$  固溶体又はイットリア複合酸化物の少なくともいずれかを含み、  
前記本体部は、第1の材料と該第1の材料よりも小さな熱膨張係数を有する第2の材料とを含む混合材料、鋼系材料、又は超硬合金からなる。

[7] (補正後) 請求項6に従属する樹脂成形型(1, 14)であって、

前記第1の材料は、 $ZrO_2$  を主成分とする。

[8] (補正後) 請求項5または6に従属する樹脂成形型(1, 14)であって、

前記第1の材料は導電性を有する。

[9] (補正後) 有機物からなる汚れの付着を防止する機能を有する防汚性材料(6, 14)であって、

本体部(8, 15)と、

前記本体部(8, 15)における表面の少なくとも一部に形成された表面層(10, 17)とを備えるとともに、

前記表面層(10, 17)は塩基性を有する物質に対する低密着性と前記本体部(8, 15)よりも小さな熱膨張係数とを有する材料からなり、

高温下において前記本体部(8, 15)に前記表面層(10, 17)が形成され、前記本体部(8, 15)と前記表面層(10, 17)とが冷却されることによって前記表面層(10, 17)において圧縮残留応力が発生し、該圧縮残留応力が前記表面層(10, 17)に存

在しており、

前記表面層は $Y_2O_3$ を含み、

前記本体部は第1の材料と該第1の材料よりも小さな熱膨張係数を有する第2の材料とを含む混合材料からなり、

前記第1の材料は $ZrO_2$ を主成分とする。

[10] (補正後) 有機物からなる汚れの付着を防止する機能を有する防汚性材料(6, 14)であって、

本体部(8, 15)と、

前記本体部(8, 15)における表面の少なくとも一部に形成された表面層(10, 17)とを備えるとともに、

前記表面層(10, 17)は塩基性を有する物質に対する低密着性と前記本体部(8, 15)よりも小さな熱膨張係数とを有する材料からなり、

高温下において前記本体部(8, 15)に前記表面層(10, 17)が形成され、前記本体部(8, 15)と前記表面層(10, 17)とが冷却されることによって前記表面層(10, 17)において圧縮残留応力が発生し、該圧縮残留応力が前記表面層(10, 17)に存在しており、

前記表面層は、 $Y_2O_3$  固溶体およびイットリア複合酸化物の少なくともいずれかを含み、

前記本体部は、第1の材料と該第1の材料よりも小さな熱膨張係数を有する第2の材料とを含む混合材料、鋼系材料、又は超硬合金からなる。

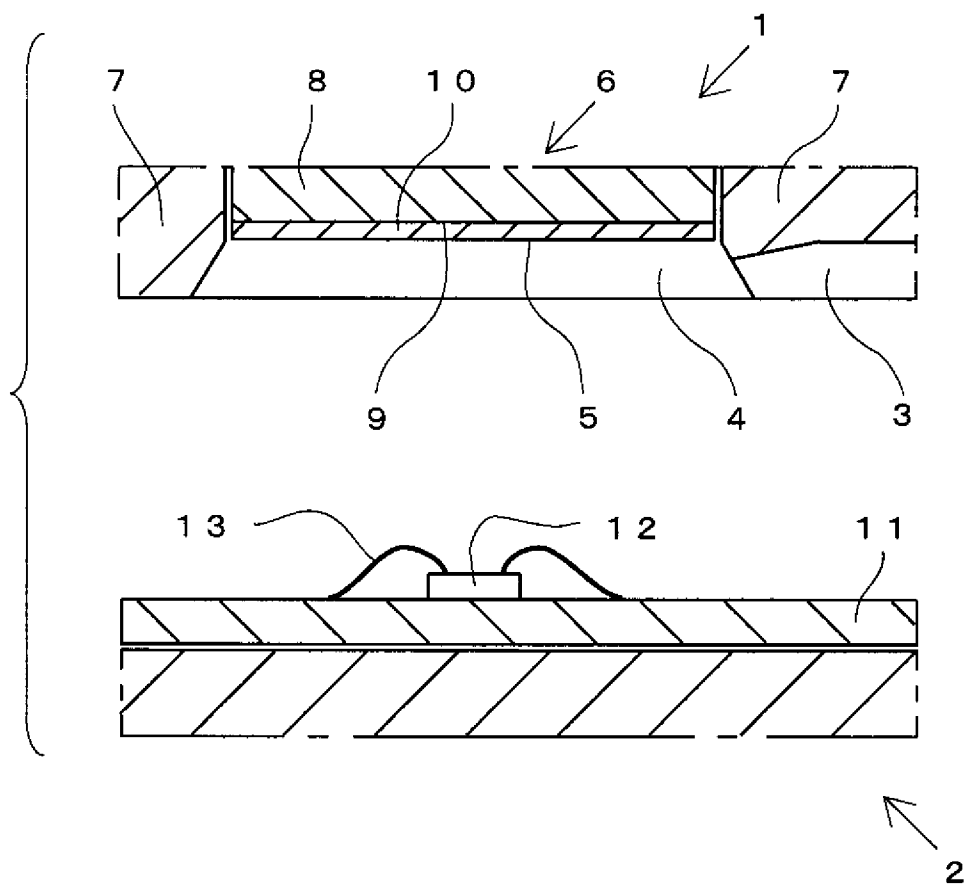
[11] (補正後) 請求項10に従属する防汚性材料(6, 14)であって、

前記第1の材料は、 $ZrO_2$ を主成分とする。

[12] (補正後) 請求項9または10に従属する防汚性材料(6, 14)であって、

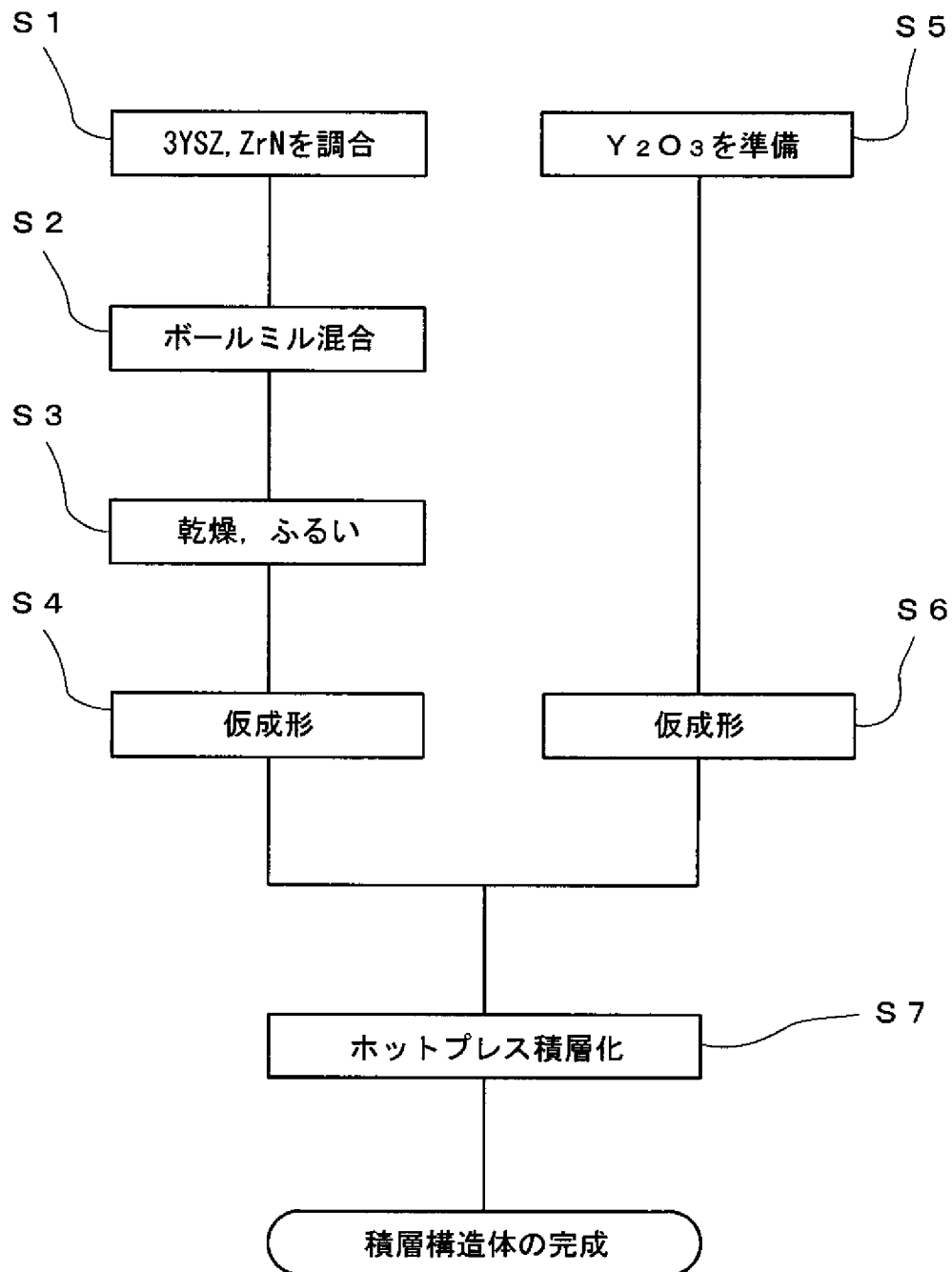
前記混合材料は導電性を有する。

[図1]

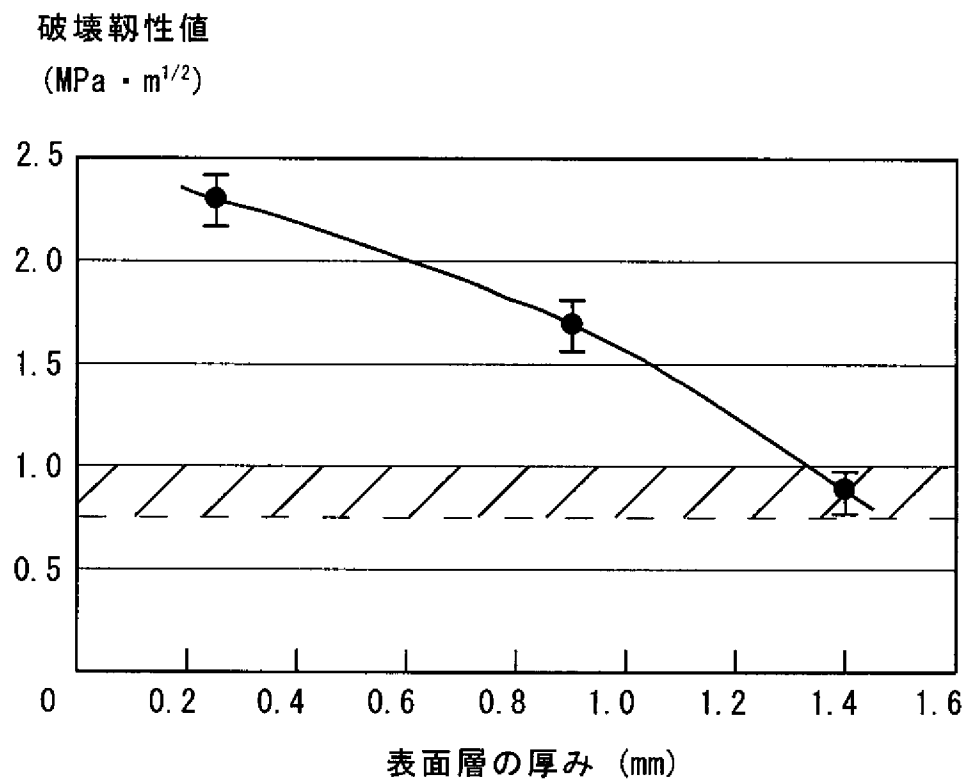




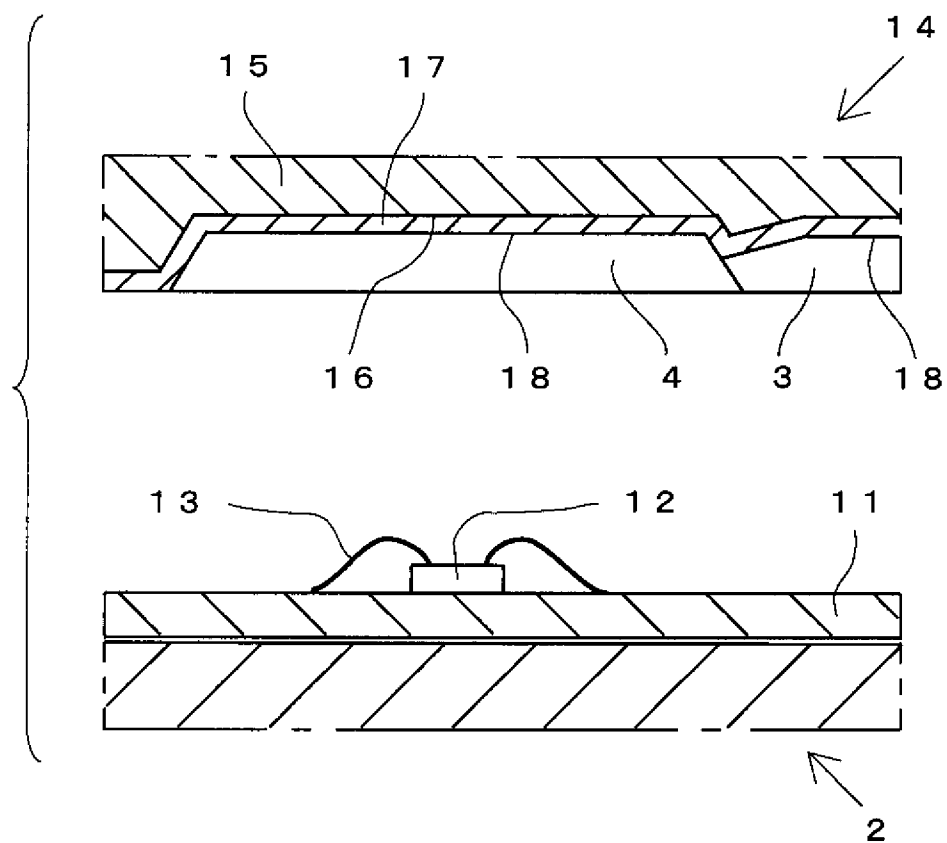
[図2]



[図3]



[図4]



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/326026

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B32B9/00(2006.01) i, B29C33/38(2006.01) i, B32B18/00(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)

B32B1/00-43/00, B29C33/00-33/76, 39/26-39/36, 41/38-41/44, 43/36-43/42, 43/50, 45/26-45/44, 45/64-45/68, 45/73, 49/48-49/56, 49/70, 51/30-51/40, 51/44, C04B35/50, 41/50, 41/65, 41/87

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 | 1996-2007 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971-2007 | Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2007 |

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.          |
|-----------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------|
| Y         | JP 2005-274478 A (TOWA Corp.),<br>06 October, 2005 (06.10.05),<br>Claims 1, 2, 6, 7, 11; Par. Nos. [0005],<br>[0007] to [0008], [0023], [0033], [0042],<br>[0045] to [0046]; Figs. 2, 3<br>& WO 2005/092587 A1 | 1, 2, 4, 5, 6, 8,<br>9, 10, 12 |
| Y         | JP 4-149074 A (Toshiba Tungaloy Co., Ltd.),<br>22 May, 1992 (22.05.92),<br>Claims 1, 3; page 2, lower right column,<br>lines 13 to 17; page 3, upper right column,<br>lines 11 to 19<br>(Family: none)         | 1, 2, 4, 5, 6, 8,<br>9, 10, 12 |

☒ 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  
13 March, 2007 (13.03.07)

Date of mailing of the international search report  
20 March, 2007 (20.03.07)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2006/326026

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                     | Relevant to claim No.          |
|-----------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------|
| Y         | JP 4-364945 A (Inax Corp.),<br>17 December, 1992 (17.12.92),<br>Claim 1; Par. Nos. [0010] to [0011]<br>(Family: none)                  | 1, 2, 4, 5, 6, 8,<br>9, 10, 12 |
| Y         | JP 7-52120 A (Toray Industries, Inc.),<br>28 February, 1995 (28.02.95),<br>Claim 1; Par. Nos. [0019], [0025], [0057]<br>(Family: none) | 1, 2, 4, 5, 6, 8,<br>9, 10, 12 |

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））  
 Int.Cl. B32B9/00(2006.01)i, B29C33/38(2006.01)i, B32B18/00(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. B32B1/00-43/00,  
 B29C33/00-33/76, 39/26-39/36, 41/38-41/44, 43/36-43/42, 43/50, 45/26-45/44, 45/64-45/68, 45/73, 49/48-49/  
 56, 49/70, 51/30-51/40, 51/44, C04B35/50, 41/50, 41/65, 41/87

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 7 年 |
| 日本国実用新案登録公報 | 1 9 9 6 - 2 0 0 7 年 |
| 日本国登録実用新案公報 | 1 9 9 4 - 2 0 0 7 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>請求の範囲の番号            |
|-----------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------|
| Y               | JP 2005-274478 A(T O W A株式会社)2005.10.06, 請求項 1, 2, 6, 7, 11, 【0005】, 【0007】 - 【0008】, 【0023】, 【0033】, 【0042】, 【0045】 - 【0046】, 【図 2】, 【図 3】<br>& WO 2005/092587 A1 | 1, 2, 4, 5, 6, 8, 9, 10, 12 |
| Y               | JP 4-149074 A(東芝タンガロイ株式会社)1992.05.22, 請求項 1, 3, 第 2 頁右下欄第 13-17 行, 第 3 頁右上欄第 11-19 行<br>(ファミリーなし)                                                                  | 1, 2, 4, 5, 6, 8, 9, 10, 12 |

☒ 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                                                 | の日の後に公表された文献                                                         |
| 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの                                | 「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       |
| 「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                        | 「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                       |
| 「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） | 「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 |
| 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献                                     | 「&」同一パテントファミリー文献                                                     |
| 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願                                  |                                                                      |

|                                                                                        |                                                                     |
|----------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------|
| 国際調査を完了した日<br>1 3 . 0 3 . 2 0 0 7                                                      | 国際調査報告の発送日<br>2 0 . 0 3 . 2 0 0 7                                   |
| 国際調査機関の名称及びあて先<br>日本国特許庁（I S A / J P）<br>郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5<br>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）<br>深草 祐一<br>電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 7 4 |

| 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>請求の範囲の番号               |
| Y                     | JP 4-364945 A(株式会社イナックス)1992.12.17, 請求項 1, 【0010】<br>－ 【0011】 (ファミリーなし)    | 1, 2, 4, 5, 6, 8,<br>9, 10, 12 |
| Y                     | JP 7-52120 A(東レ株式会社)1995.02.28, 請求項 1, 【0019】, 【0025】,<br>【0057】 (ファミリーなし) | 1, 2, 4, 5, 6, 8,<br>9, 10, 12 |