

(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
2018年5月17日(17.05.2018)



(10) 国際公開番号

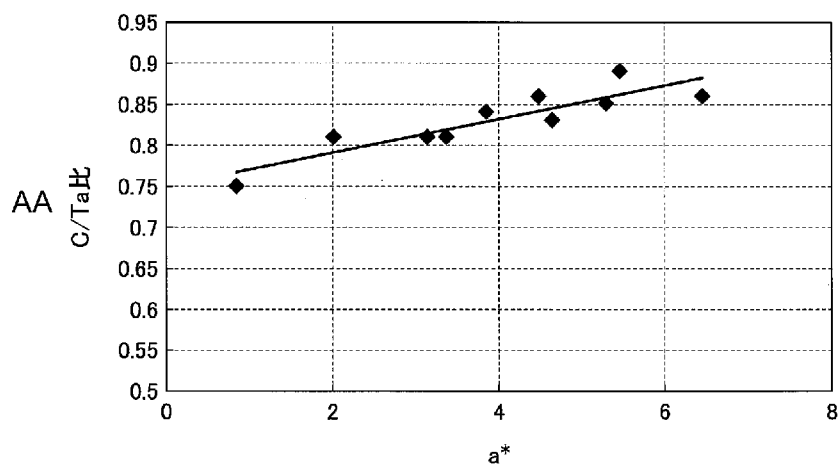
WO 2018/088397 A1

- (51) 国際特許分類:
G01N 21/27 (2006.01) *C30B 29/36* (2006.01)
C30B 23/06 (2006.01) *G01J 3/50* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/040121
- (22) 国際出願日: 2017年11月7日(07.11.2017)
- (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 2016-218082 2016年11月8日(08.11.2016) JP
- (71) 出願人: 昭和電工株式会社 (SHOWA DENKO K.K.) [JP/JP]; 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目13番9号 Tokyo (JP). 株式会社デンソー (DENSO CORPORATION) [JP/JP]; 〒4488661 愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地 Aichi (JP).
- (72) 発明者: 野口 駿介 (NOGUCHI Shunsuke); 〒5291195 滋賀県彦根市清崎町60番地 昭和電工株式会社内 Shiga (JP). 大矢 信之 (OYA Nobuyuki); 〒4488661 愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地 株式会社デンソー内 Aichi (JP).
- (74) 代理人: 及川 周, 外 (OIKAWA Shu et al.); 〒1006620 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 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, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO,

(54) Title: TANTALUM CARBIDE EVALUATING METHOD

(54) 発明の名称: 炭化タングスタムの評価方法

【図6】



AA C/Ta ratio

(57) Abstract: In one example of a tantalum carbide evaluating method for evaluating the degree of carbonization of tantalum carbide by means of chromaticity, colorimetry of the tantalum carbide is performed using a spectrophotometer or a camera, and the degree of carbonization of the tantalum carbide is evaluated on the basis of the chromaticity of the tantalum carbide, quantified using the L*a*b* color system.

(57) 要約: 色度により炭化タングスタムの炭化度を評価する炭化タングスタムの評価方法であって、一例として、分光光度計またはカメラを用いて炭化タングスタムを測色し、L*a*b*表色系で数値化した該炭化タングスタムの色度に基づいて、該炭化タングスタムの炭化度を評価する、炭化タングスタムの評価方法。

[続葉有]



WO 2018/088397 A1

DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,
HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, KE, KG, KH,
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))

明 細 書

発明の名称：炭化タンタルの評価方法

技術分野

[0001] 本発明は、炭化タンタルの評価方法に関する。

本願は、2016年11月8日に、日本に出願された特願2016-218082号に基づき優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] 炭化タンタルは、硬度が高く、耐熱性に優れる。炭化タンタルの融点は、3880℃と極めて高い。そのため、炭化タンタルは、高温で用いられる様々な部材の材料として用いられる。例えば、炭化タンタルは、切削工具の部品、カーボンヒータのコーティング、集光型太陽電池やSiC単結晶に代表される半導体製造装置の部材等に用いられている（特許文献1及び特許文献2参照）。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：国際公開第2011/081210号

特許文献2：特開2015-36189号公報

特許文献3：特開2013-103848号公報

特許文献4：特開2012-171812号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 炭化タンタルは、組成式がTaCで表されるタンタルの炭化物である。化学量論組成比では、タンタルと炭素は1対1で存在する。しかしながら、実際の炭化タンタルは、タンタルと炭素の比率は完全に1対1にはなっていない場合がある。例えば、炭化タンタルの準安定状態としてTaC_{0.89}が知られている。

[0005] 炭化タンタルを構成するタンタルと炭素の比率が化学量論組成比から離れ

ると、炭化タンタルの安定性は低下する。そのため、例えば炭化タンタルをコーティング等に用いた場合に、ひび割れや剥離の原因となりうる。ひび割れや剥離は、炭化タンタルを用いた部材の耐熱性、耐エッチング性等に影響を及ぼす（特許文献 1 参照）。

[0006] またタンタルと炭素の比率が化学量論組成比から離れた炭化タンタルは、炭化タンタルを半導体製造装置の部材として用いた場合に、半導体製造装置内での半導体結晶の成長環境に影響を及ぼす場合がある。

[0007] 例えば、炭化タンタルの部材を用いた半導体製造装置で SiC 単結晶を結晶成長する場合、炭素比率の少ない炭化タンタルは、カーボンを吸収し、成長環境における C / Si 比の変動の原因となることが考えられる。SiC 単結晶の結晶成長時における C / Si 比の変動は、Si ドロップレット等の欠陥や異種多形の発生原因となる（特許文献 3 及び特許文献 4 参照）。

[0008] このような問題を解決するために、炭化タンタルの実際の組成比を測定することが求められている。実際の炭化タンタルにおけるタンタルと炭素の比率（以下、「炭化度」と言うことがある。）は、種々の分析装置により分析が可能である。

[0009] しかしながら、炭化タンタルの炭化度の分析には時間もコストもかかる。また炭化タンタルを装置等の部材として用いている場合には、分析のために部材を破壊する必要がある。一度破壊した部材は使用できなくなるため、使用するごとに部材を破壊することは現実的ではない。

[0010] 本発明は上記問題に鑑みてなされたものであり、炭化タンタルの炭化度の簡便な評価方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0011] 本発明者らは、鋭意検討の結果、炭化タンタルからなる部材の表面の色度を測定することで、炭化タンタルの炭化度を分析できることを見出した。

すなわち、本発明は、上記課題を解決するために、以下の手段を提供する。

[0012] (1) 本発明の一態様にかかる炭化タンタルの評価方法は、色度により炭化

度を評価する。

[0013] (2) 上記態様にかかる炭化タンタルの評価方法において、前記色度を $L^*a^*b^*$ 表色系により測定してもよい。

[0014] (3) 上記態様にかかる炭化タンタルの評価方法において、前記色度を分光光度計またはカメラで撮影した撮影画像から求めてもよい。

[0015] (4) 上記態様にかかる炭化タンタルの評価方法において、前記炭化タンタルが、炭化タンタルからなる部材及び炭化タンタルで表面コーティングされた部材より選択される部材であってもよい。

[0016] (5) 上記態様にかかる炭化タンタルの評価方法において、前記部材が、SiC単結晶成長用装置に用いられる部材であってもよい。

発明の効果

[0017] 本発明の一態様に係る炭化タンタルの評価方法によれば、炭化タンタルの炭化度を簡便に評価できる。

図面の簡単な説明

[0018] [図1]カメラを用いた場合の炭化タンタルの試験片の測色方法について説明するための図である。

[図2]炭化タンタルの試験片を分光光度計で測定した L^* 値とXRDで求めた結晶の格子定数 ($\text{\AA}$) の関係を示した図である。

[図3]炭化タンタルの試験片を分光光度計で測定した a^* 値とXRDで求めた結晶の格子定数 ($\text{\AA}$) の関係を示した図である。

[図4]炭化タンタルの試験片を分光光度計で測定した b^* 値とXRDで求めた結晶の格子定数 ($\text{\AA}$) の関係を示した図である。

[図5]炭化タンタルの試験片を分光光度計で測定した L^* 値と炭化度 (C/T a 比) の関係を示した図である。

[図6]炭化タンタルの試験片を分光光度計で測定した a^* 値と炭化度 (C/T a 比) の関係を示した図である。

[図7]炭化タンタルの試験片を分光光度計で測定した b^* 値と炭化度 (C/T a 比) の関係を示した図である。

[図8]炭化タンタルの試験片を分光光度計で測定した L^* 値と撮影した画像から求めた L^* の関係を示した図である。

[図9]炭化タンタルの試験片を分光光度計で測定した a^* 値と撮影した画像から求めた a^* の関係を示した図である。

[図10]炭化タンタルの試験片を分光光度計で測定した b^* 値と撮影した画像から求めた b^* の関係を示した図である。

[図11]炭化タンタルの試験片を分光光度計で測定した b^* 値及び撮影した画像から求めた b^* 値と、XRDで求めた結晶の格子定数(Å)の関係を示した図である。

発明を実施するための形態

[0019] 以下、本発明について、図を適宜参照しながら詳細に説明する。以下の説明で用いる図面は、便宜上特徴となる部分を拡大して示している場合があり、各構成要素の寸法比率などは実際とは異なっていることがある。以下の説明において例示される材質、寸法等は一例であって、本発明はそれらに限定されるものではなく、その要旨を変更しない範囲で適宜変更して実施することが可能である。

[0020] 本発明の一態様にかかる炭化タンタルの評価方法は、色度により炭化度を評価する。ここで、「色度」とは、「色相」と「彩度」によって表される色の特性を表す尺度である。

一般に、色彩は、色相、彩度及び明度の色の三属性によって表される。色彩から明度を除いたものが「色度」である。

[0021] 炭化タンタルは、炭化度が大きくなるに従い、色味が変わる。炭化タンタルは、炭化度が大きくなるに従い、全体的に赤みがかってくる。ここで、「炭化度が大きくなる」とは、炭化タンタルの炭素の比率が大きくなっていくことを意味し、炭化タンタルの組成が化学量論組成比に近づいていくことを意味する。

[0022] 本実施形態では、炭化タンタルの炭化度を色度によって評価する。本発明者らは、炭化タンタルの炭化度が変化するに従い、色彩の中でも色度が系統

的に変化することを見出した。

[0023] 色度の評価方法は、種々の方法を用いることができる。例えば、色見本（色票）を用いた目視評価、機械等を利用し表色系による評価等を用いることができる。機械を用いた測色は、個人差による影響を排除でき、僅かな色彩の違いを判断できる。

[0024] 機械を用いて測色する場合は、分光光度計（測色計）を用いることができる。分光光度計としては、例えば、コニカミノルタ社製 SPECTROPHOTOMETER CM-2600d を用いることができる。測定方式としては、正反射光を含む SCI 方式でも、正反射光を除く SCE 方式でもよい。

[0025] 分光光度計（測色計）は、表色系により色彩を数値化できる。用いる表色系は、特に問わない。分光光度計（測色計）では、 $L^*a^*b^*$ 表色系、 L^*C^*h 表色系、XYZ 表色系等が広く採用されている。

[0026] $L^*a^*b^*$ 表色系は、国際照明委員会（CIE）で制定された表色系である。 $L^*a^*b^*$ 表色系は JIS Z 8729 において採用されており、最もポピュラーに使用されている表色系である。また $L^*a^*b^*$ 表色系は、明度を示す L^* と、色度を表す a^* 及び b^* とで、明度と色度を分離して表すことができる。したがって、 $L^*a^*b^*$ 表色系は、色度で評価するのに適した表色系と言える。

[0027] 例えば、 $L^*a^*b^*$ 表色系において炭化タングスタンの炭化度を評価すると、 a^* または b^* の値が大きくなると炭化度が大きくなる傾向が確認された。この傾向は、結晶の格子定数と a^* または b^* の値の関係から確認できる。炭化タングスタンの炭化度が大きくなると結晶の格子定数は大きくなる。そのため、結晶の格子定数と a^* または b^* の値の関係から炭化タングスタンの炭化度を導くことができる。

炭化タングスタンの結晶の格子定数は、X線回折装置（XRD）で測定することができる。

[0028] 分光光度計を準備できない場合は、カメラで炭化タングスタンの部材を

撮影し、撮影画像から $L^*a^*b^*$ を求めてもよい。

[0029] 図1は、カメラを用いた場合の炭化タングスタムの測色方法について説明するための図である。以下、カメラを用いた場合の炭化タングスタムの測色方法について具体的に説明する。

[0030] まず、測定対象である炭化タングスタムの試験片1と、開口部2Aを備える箱2と、カメラ3と、光源4と、データ処理装置5と、を準備する。

[0031] 開口部2Aが上面にくるように箱2を設置し、その内部に炭化タングスタムの試験片1を載置する。

炭化タングスタムの試験片1を水平に載置できない場合は、炭化タングスタムの試験片1の測定面が載置面に対して傾斜していてもよい。箱2は、光源4以外の不要な光が炭化タングスタムの試験片1の測定面に当たることを防ぐ。

[0032] 次に、カメラ3及び光源4を設置する。カメラ3は、炭化タングスタムの試験片1の測定面に対して対向する位置に設置する。カメラ3のレンズから下した垂線と炭化タングスタムの試験片1の測定面とが直交することが好ましい。すなわち、カメラ3のレンズの中心から測定方向に向かう線が炭化タングスタムの試験片1の測定面と直交するようにカメラ3を設置することが好ましい。

[0033] 光源4は、光源4からの入射光と炭化タングスタムの試験片1の測定面とが、所定の傾斜角 θ となる位置に配置する。傾斜角 θ は、測定毎の条件が統一されていれば特に問わない。

[0034] 光源4は、複数あってもよい。光源4が複数あると、箱2内部に影ができ、影が炭化タングスタムの試験片1の測定面にかかることが避けられる。光源4が複数ある場合も、測定毎の条件は統一する。

[0035] 光源4には、白色光源を用いる。白色光源の平均演色評価数(R_a)は50以上であることが好ましく、90以上であることがより好ましい。具体的には、光源4として蛍光灯、LED等を用いることができる。

白色光源の平均演色評価数(R_a)はJIS Z 8726の規格を基準とする値である。

[0036] 炭化タングスタムの試験片1、カメラ3及び光源4を所定の位置に設置したら

、カメラ3で炭化タantalの試験片1を撮影する。撮影は1回に限られず、例えば光源4と測定面のなす傾斜角 θ を変えながら複数回撮影してもよい。

[0037] そしてカメラ3で撮影した画像をデータ処理装置5に読み出す。データ処理装置5は市販のコンピュータを用いることができる。データ処理装置5は、炭化タantalの試験片1の色彩をRGB値で読み出す。

[0038] 次いで、得られたRGB値をXYZ色空間に変換した後、Lab色空間にさらに変換する。この際、RGB値に対して明るさ補正を行ってもよい。コンピュータのスクリーン上で表記される画像は、スクリーン上で自然な明るさに見えるように明るさ補正がされている場合がある。なお、あくまで評価するのは色度であり、明度は測定結果に影響を及ぼさない。そのため、明るさ補正を行っても結果に影響は与えない。

[0039] RGB値からXYZ色空間に補正する方法は公知の方法を用いることができる。RGB値に所定の変換行列Mをかけることで、XYZ色空間に変換できる。RGB値は、sRGBを用いているか、Adobe RGBを用いているかで変換行列Mの値を変える。

[0040] 次いで、XYZ空間からLab色空間に変換する。Lab色空間では、色を $L^*a^*b^*$ の3つの数値で表すため、この変換により分光光度計（測色計）による測定結果と同様の指標を用いられる。

[0041] RGB値から変換したXYZ空間は、標準光源としてD65を用いている。Lab色空間では、標準光源としてD50を用いることが通常であるため、基準点の補正が必要になる。このような値の変換は、Bradford変換と呼ばれる。

[0042] そして、標準光源をD50に変換したXYZ空間の値からLab色空間に変換する。この変換は、公知の関数 $f(t)$ を用いて行ことができる。具体的には、以下の式(1)～(4)を用いて行う。

[0043]

[数1]

$$f(t) = \begin{cases} t^{1.3} & t > (6/29)^3 = 0.008856... \text{ のとき} \\ [(29/3)^3 t + 16] / 116 & \text{上記以外} \end{cases} \quad \dots (1)$$

[0044] [数2]

$$L^* = 116f(Y/Y_n) - 16 \quad \dots (2)$$

[0045] [数3]

$$a^* = 500[f(X/X_n) - f(Y/Y_n)] \quad \dots (3)$$

[0046] [数4]

$$b^* = 200[f(Y/Y_n) - f(Z/Z_n)] \quad \dots (4)$$

[0047] 式(1)～(4)において、 X_n 、 Y_n 、 Z_n は白色点座標であり、 X 、 Y 、 Z は実際の XYZ の値である。

[0048] このような手順で、撮影した画像から $L^*a^*b^*$ を求めることができる。人が撮影した画像は、条件を一定にしても多少のバラツキが発生する場合がある。しかしながら、本実施形態にかかる評価方法により実際に測定した結果では、撮影した画像から変換した $L^*a^*b^*$ の値を用いても、炭化度と色度の相関を十分確認することができた。換言すると、多少のばらつきを有していても、炭化度を充分色度で確認できると言える。この方法であれば、測色のための専用の装置を準備する必要がなく、より簡便である。

[0049] 上述のように、本実施形態にかかる評価方法によれば、炭化タングスタルの炭化度を色彩によって評価することができる。必要な炭化度は、用途によって異なるため、任意に閾値を設けることができる。例えば、半導体製造装置内のカーボンヒータのコーティング材として炭化タングスタルを用いる場合には、炭化タングスタルの安定性を高めるために炭化度は1.0に近いことが望ましく、0.85以上とすることが好ましい。

[0050] なお、測定する炭化タンタルは、炭化タンタルのみからなる部材でもよいし、炭化タンタルでコーティングした部材でもよい。炭化タンタルのコーティングの厚みは、 $0.1\ \mu\text{m}$ 以上 $1000\ \mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。また測定するのは炭化タンタルの粉末でもよい。

実施例

[0051] (実施例1)

金属のタンタルに黒鉛を接触させて加熱し、加熱時間を変化させて炭化度の異なる炭化タンタルの試験片を複数作製した。得られた炭化タンタルの試験片は、それぞれ色彩に違いがあった。得られた炭化タンタルの試験片をX線回折装置(XRD)で分析し、結晶の格子定数を測定した。色彩は、コニカミノルタ社製SPECTROPHOTOMETER CM-2600dを用いて、SCI方式で測定した。

[0052] 図2は、複数の炭化タンタルの試験片を分光光度計で測定した L^* 値とXRDで求めた結晶の格子定数($\text{\AA}$)の関係を示した図である。また図3は、複数の炭化タンタルの試験片を分光光度計で測定した a^* 値とXRDで求めた結晶の格子定数($\text{\AA}$)の関係を示した図である。また図4は、複数の炭化タンタルの試験片を分光光度計で測定した b^* 値とXRDで求めた結晶の格子定数($\text{\AA}$)の関係を示した図である。

[0053] 図2に示すように、 L^* 値の値に対して結晶の格子定数はばらついている。すなわち、明度(L^* 値)と格子定数には相関は確認できない。これに対し、図3に示すように、 a^* 値及び b^* 値は、大きくなると格子定数が大きくなっていることが分かる。

[0054] 炭化タンタルの試験片の炭化度が増加すると、結晶構造中に炭素原子が取り込まれる。炭化度が増加すると格子定数は大きくなるため、格子定数と炭化度には一定の相関がある。そのため、色度(a^* 値及び b^* 値)から炭化タンタルの試験片の炭化度を求めることができる。

[0055] 図5～図7は、図2～図4の格子定数を炭化度(C/Ta比)に置き換えたグラフである。すなわち、図5は、複数の炭化タンタルの試験片を分光光

度計で測定した L^* 値と炭化度（ $C/T a$ 比）の関係を示した図である。また図6は、複数の炭化タンタルの試験片を分光光度計で測定した a^* 値と炭化度（ $C/T a$ 比）の関係を示した図である。また図7は、複数の炭化タンタルの試験片を分光光度計で測定した b^* 値と炭化度（ $C/T a$ 比）の関係を示した図である。

炭化タンタルの結晶の格子定数は、X線回折装置（XRD）で測定した。複数の炭化タンタルの試験片各々の炭化度（ $C/T a$ 比）は、格子定数を用いて計算した。

[0056] 図5～図7に示すように、炭化タンタルの試験片の炭化度は、明度（ L^* 値）とは相関を有さないが、色度（ a^* 値及び b^* 値）とは相関を有することが確認できる。 a^* 値または b^* 値が大きくなるほど、炭化度が大きくなっていることが確認できる。

[0057] （実施例2）

実施例2は、色彩の評価を写真撮影によって行った点が実施例1と異なる。写真撮影の条件は、光源を1個とし、光源と測定面のなす傾斜角はおおよそ $5^\circ \sim 80^\circ$ の範囲内で4点測定し、その平均値を採用した。

[0058] 図8は、分光光度計で測定した L^* 値と撮影した画像から求めた L^* の関係を示した図である。また図9は、分光光度計で測定した a^* 値と撮影した画像から求めた a^* の関係を示した図である。また図10は、分光光度計で測定した b^* 値と撮影した画像から求めた b^* の関係を示した図である。

[0059] 図8及び図9に示すように、分光光度計で測定した L^* ・ a^* ・ b^* 値と、撮影した画像から求めた L^* ・ a^* ・ b^* 値は、測定条件等の精密さ等が異なる為、必ずしも一致しない。

しかしながら、図10では、撮影した画像から求めた b^* 値については、分光光度計で測定した b^* 値と相関が確認された。すなわち、撮影した画像から求めた b^* 値であれば、指標として用いることができることを示している。

[0060] 図11は、分光光度計で測定した b^* 値及び撮影した画像から求めた b^* 値と、XRDで求めた結晶の格子定数（Å）の関係を示した図である。いずれ

の場合でも、 b^* 値が大きくなると、格子定数が大きくなるという相関が確認された。すなわち、 b^* 値が大きくなると、炭化度は大きくなる。

[0061] なお、分光光度計で測定した b^* 値と、撮影した画像から求めた b^* 値とは、絶対値が異なる為、 b^* 値から炭化度を見積もる際にそれぞれのデータ毎に較正曲線を求めておくことが好ましい。

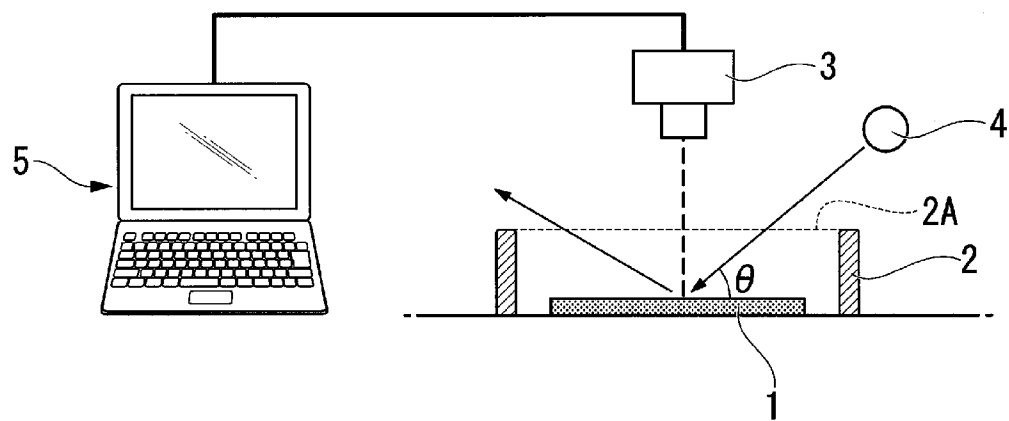
符号の説明

[0062] 1…炭化タantalの試験片、2…箱、2 A…開口部、3…カメラ、4…光源、5…データ処理装置

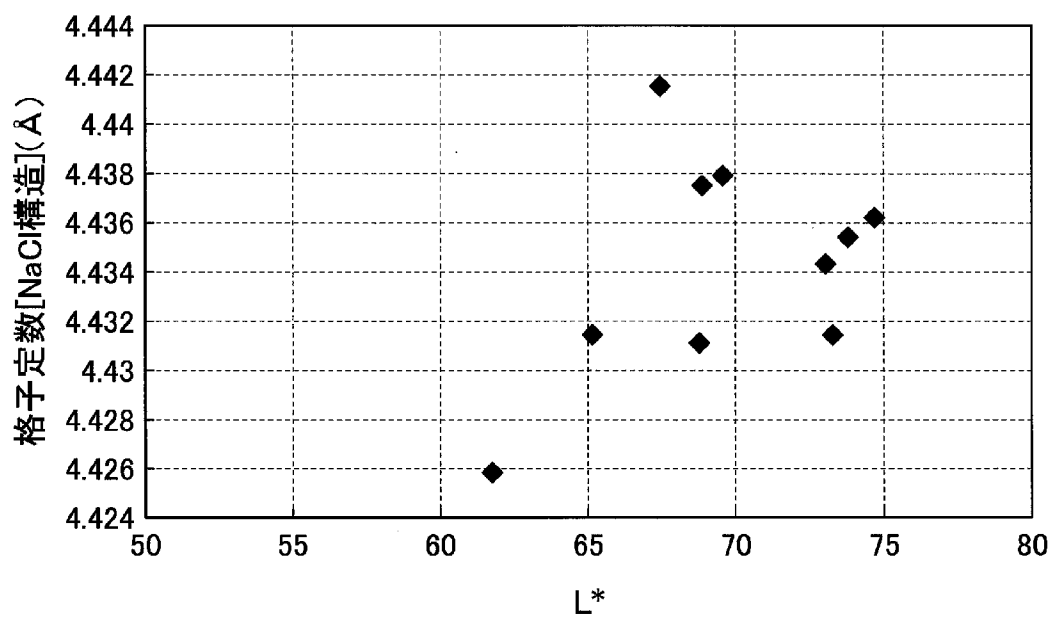
請求の範囲

- [請求項1] 色度により炭化度を評価する炭化タングスタムの評価方法。
- [請求項2] 前記色度を $L^*a^*b^*$ 表色系により測定する請求項1に記載の炭化タングスタムの評価方法。
- [請求項3] 前記色度を分光光度計またはカメラで撮影した撮影画像から求める請求項1に記載の炭化タングスタムの評価方法。
- [請求項4] 前記炭化タングスタムが、炭化タングスタムからなる部材及び炭化タングスタムが表面コーティングされた部材より選択される部材である請求項1～3のいずれか一項に記載の炭化タングスタムの評価方法。
- [請求項5] 前記部材が、SiC単結晶成長用装置に用いられる部材である請求項4に記載の炭化タングスタムの評価方法。

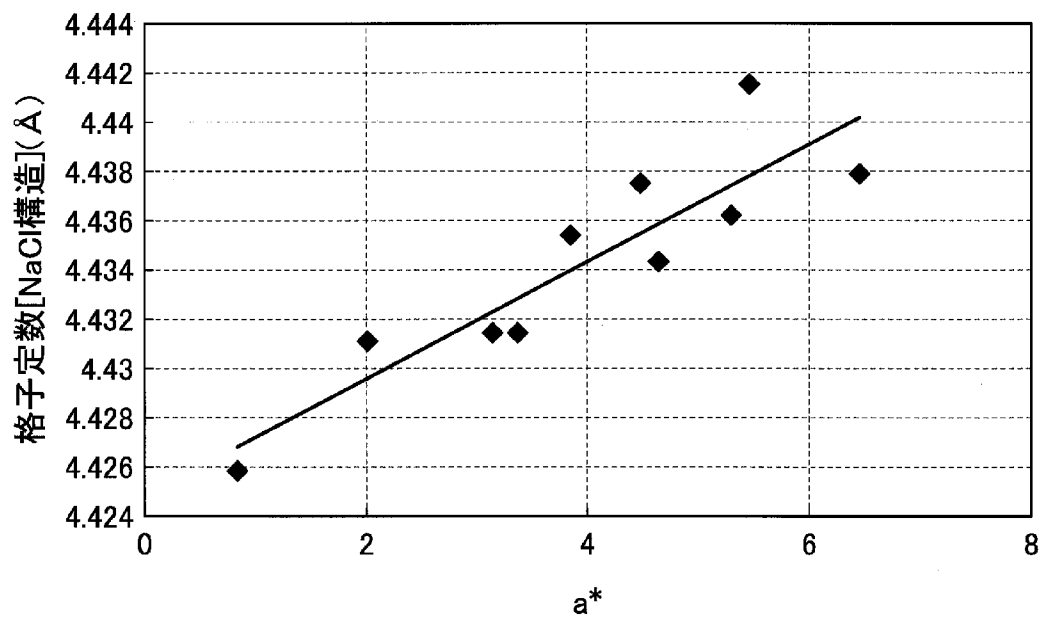
[図1]



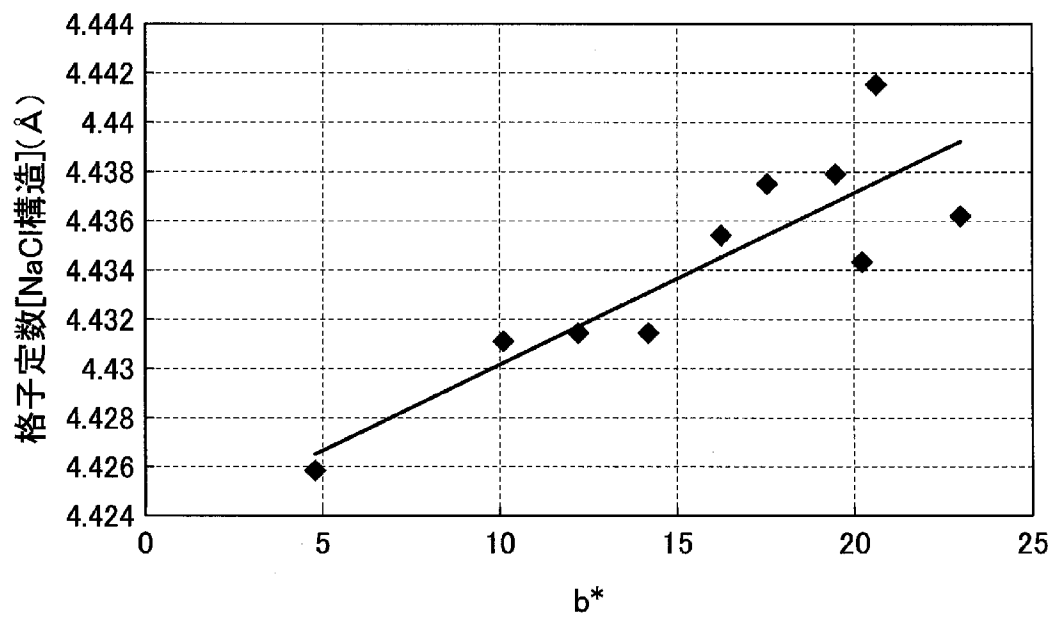
[図2]



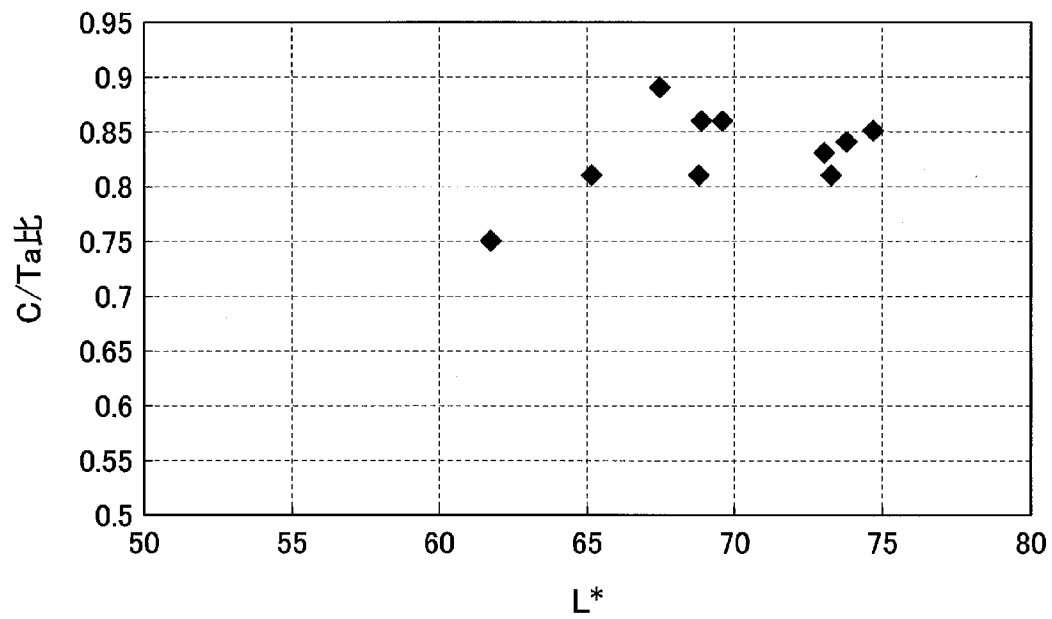
[図3]



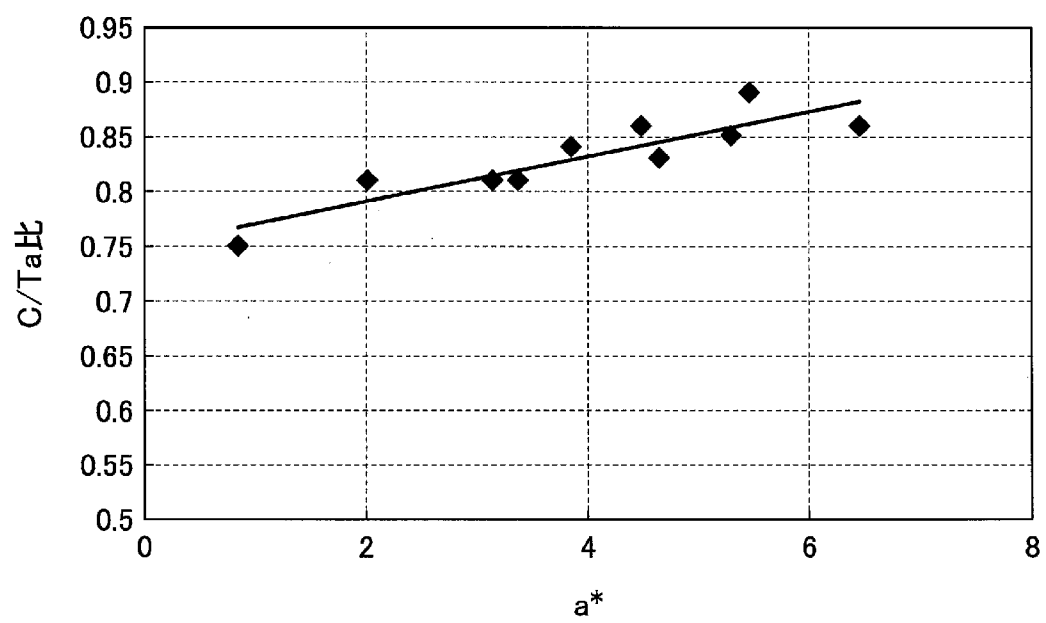
[図4]



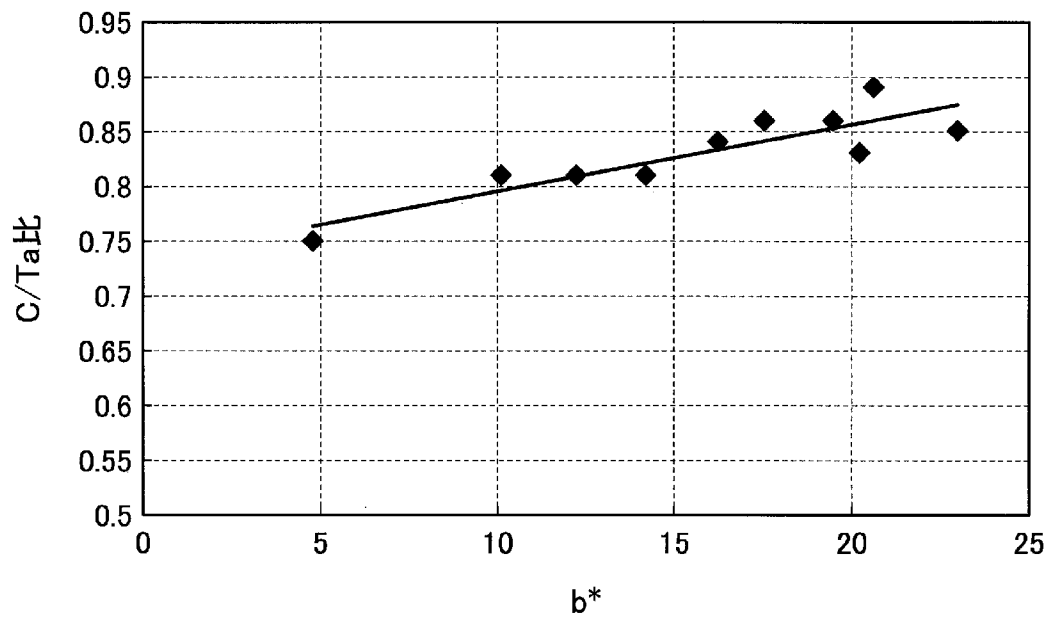
[図5]



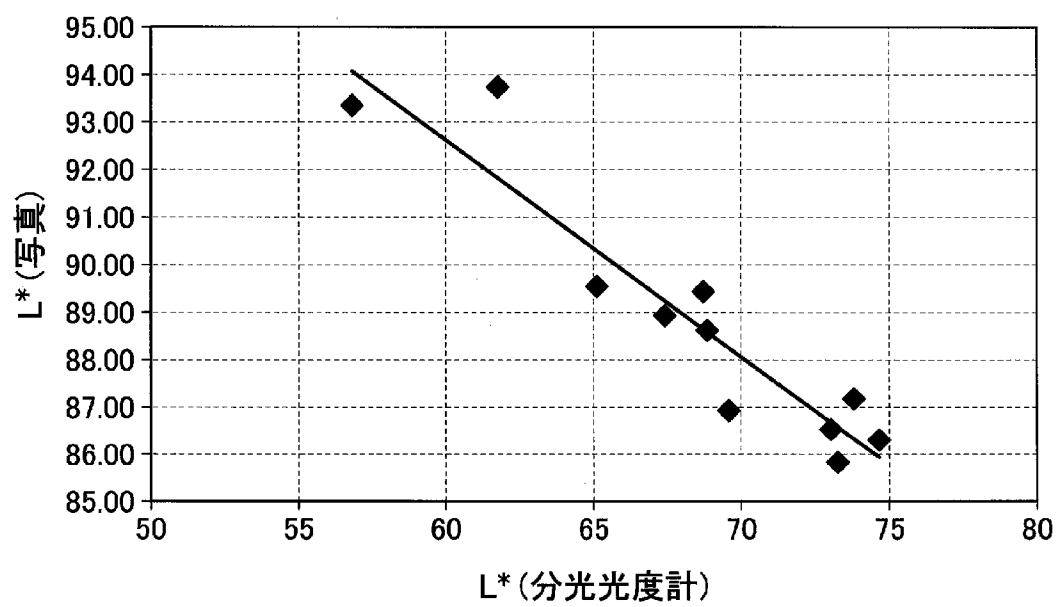
[図6]



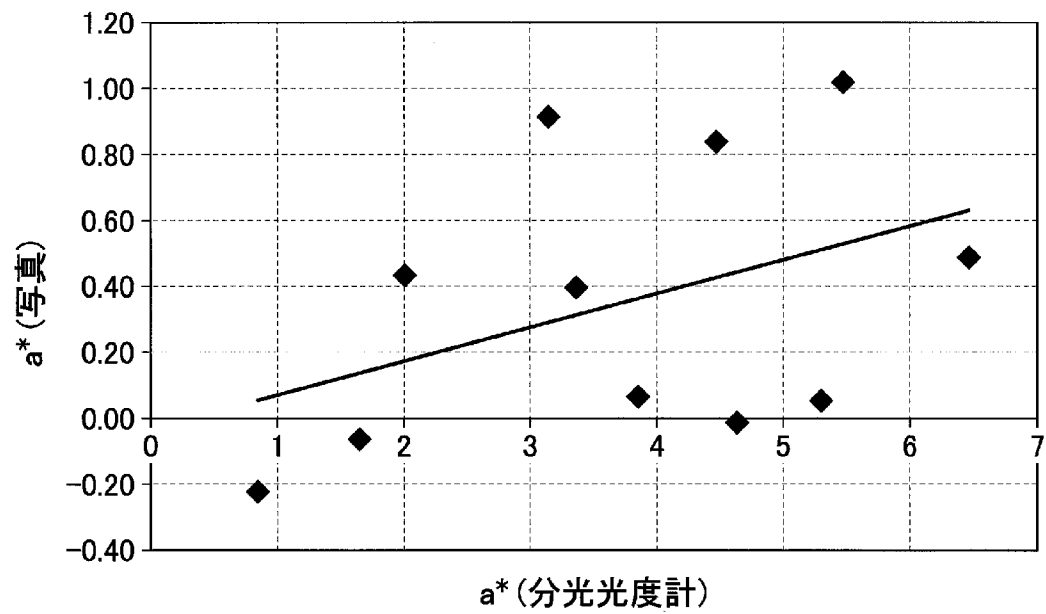
[図7]



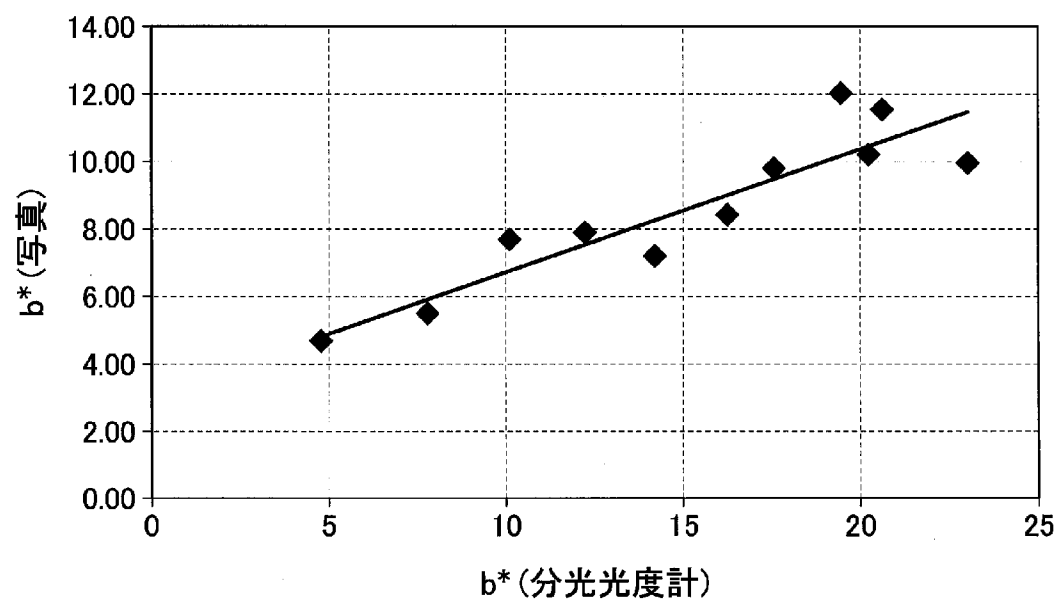
[図8]



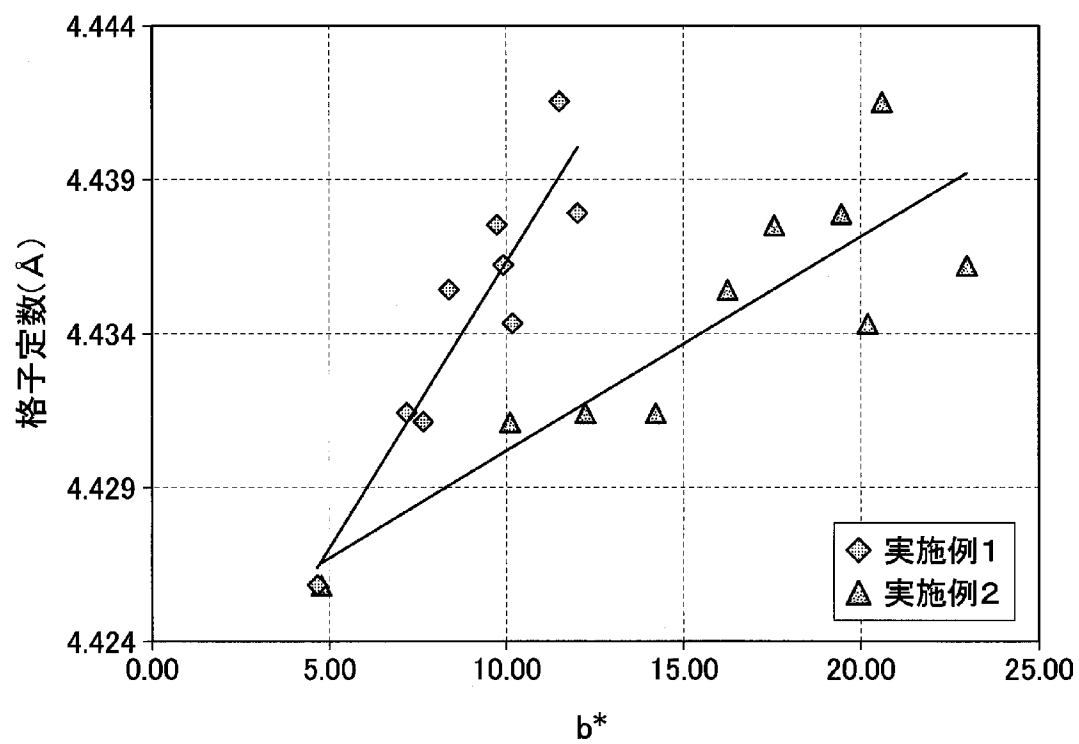
[図9]



[図10]



[図11]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/040121

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. G01N21/27(2006.01) i, C30B23/06(2006.01) i, C30B29/36(2006.01) i,
G01J3/50(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)

Int.Cl. G01N21/00-21/01, G01N21/17-21/61, G01J3/00-3/52, C30B23/06, C30B29/36

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2018
Registered utility model specifications of Japan	1996-2018
Published registered utility model applications of Japan	1994-201

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

JSTPlus (JDreamIII), JST7580 (JDreamIII), Scopus, Science Direct

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	鈴木寿, TaC 基超硬合金の二, 三の性質, 粉体および粉末冶金, vol. 28, no. 5, July 1981, pp. 179-182, (Japan Society of Powder and Powder Metallurgy), non-official translation (SUZUKI, Hisashi, "Second, third properties of TaC-based hard metal alloy")	1-5
Y	JP 53-92377 A (KABUSHIKI KAISHA SUWA SEIKOSHA) 14 August 1978, page 3, lower right column, line 10 to page 4, upper left column, line 8 (Family: none)	1-5



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
09 January 2018 (09.01.2018)

Date of mailing of the international search report
23 January 2018 (23.01.2018)

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/JP2017/040121

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2012/169592 A1 (PROSPER CREATIVE CO., LTD.) 13 December 2012, paragraphs [0002]-[0003], [0038], [0053]-[0055], [0145]-[0147], fig. 1, 30 & US 2014/0185927 A1, paragraphs [0002]-[0003], [0071], [0086]-[0088], [0180]-[0182], fig. 1, 30	2-5
Y	WO 2011/081210 A1 (TOYO TANSO CO., LTD.) 07 July 2011, paragraph [0002] & EP 2520691 A1, paragraph [0002]	5

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. G01N21/27(2006.01)i, C30B23/06(2006.01)i, C30B29/36(2006.01)i, G01J3/50(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. G01N21/00-21/01, G01N21/17-21/61, G01J3/00-3/52, C30B23/06, C30B29/36

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	1971-2018年
日本国実用新案登録公報	1996-2018年
日本国登録実用新案公報	1994-2018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(JDreamIII), JST7580(JDreamIII), Scopus, Science Direct

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
Y	鈴木寿, TaC 基超硬合金の二, 三の性質, 粉体および粉末冶金, 第28巻第5号, 1981.07, 第179頁-第182頁	1-5
Y	JP 53-92377 A (株式会社諏訪精工舎) 1978.08.14, 第3頁右下欄第10行-第4頁左上欄第8行 (ファミリーなし)	1-5

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

09.01.2018

国際調査報告の発送日

23.01.2018

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)

小野寺 麻美子

2W

1128

電話番号 03-3581-1101 内線 3258

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
Y	WO 2012/169592 A1 (株式会社プロスパークリエイティブ) 2012.12.13, 段落 [0002] - [0003]、[0038]、[0053] - [0055]、[0145] - [0147]、図1、図30 & US 2014/0185927 A1、段落 [0002] - [0003]、[0071]、[0086] - [0088]、[0180] - [0182]、図1、図30	2-5
Y	WO 2011/081210 A1 (東洋炭素株式会社) 2011.07.07, 段落 [0002] & EP 2520691 A1、段落 [0002]	5