

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2006 年 8 月 24 日 (24.08.2006)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2006/088065 A1

(51) 国際特許分類:
H01L 23/373 (2006.01) *C23C 18/31* (2006.01)
C22C 47/04 (2006.01) *C22F 1/08* (2006.01)
C22C 47/14 (2006.01) *B22F 3/14* (2006.01)
C22C 49/02 (2006.01)

(74) 代理人: 田邊 義博 (TANABE, Yoshihiro); 〒6900886
島根県松江市母衣町 1 8 0 - 2 5 米井ビル 田辺特許
商標事務所 Shimane (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2006/302668

(22) 国際出願日: 2006 年 2 月 15 日 (15.02.2006)

(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 2005-039171 2005 年 2 月 16 日 (16.02.2005) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日立
金属株式会社 (HITACHI METALS, LTD.) [JP/JP]; 〒
1058614 東京都港区芝浦一丁目 2 番 1 号 Tokyo (JP).
島根県 (SHIMANE PREFECTURAL GOVERNMENT)
[JP/JP]; 〒6908501 島根県松江市殿町 1 番地 Shimane
(JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 横山 紳一郎
(YOKOYAMA, Shin-ichiro) [JP/JP]; 〒6920014 島根県
安来市飯島町 1 5 1 4 - 5 日の出町 2 号アパート
2 5 号室 Shimane (JP). 佐藤 公紀 (SATO, Kiminori)
[JP/JP]; 〒6900816 島根県松江市北陵町 1 番地 島根県
産業技術センター内 Shimane (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, HR, HU,
ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LC, LK,
LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW,
MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO,
RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR,
TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

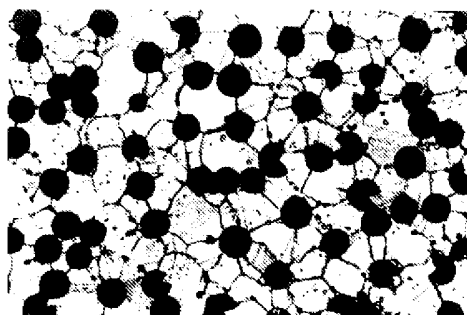
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可
能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD,
SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY,
KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ユーロッパ (AT, BE, BG,
CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE,
IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR),
OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML,
MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

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。

(54) Title: HEAT DISSIPATING MEMBER AND METHOD FOR MANUFACTURE THEREOF

(54) 発明の名称: 放熱部材及びその製造方法



50 μ m

(57) Abstract: A heat dissipating member composed of a composite material of carbon fibers being substantially aligned in one direction and copper, characterized in that the metal structure of the above copper in the heat dissipating member is a recrystallized structure. The above heat dissipating member is composed of a composite material of carbon fiber and copper, and exhibits high thermal conductivity.

(57) 要約: 本発明は、実質的に一方向に揃えられた炭素繊維と銅との複合材料により構成される放熱部材であって、該放熱部材中の前記銅の金属組織が再結晶組織であることを特徴とする放熱部材である。本発明により、炭素繊維と金属材料の複合材料により構成される高熱伝導率の放熱部材を提供することが可能となる。

明 細 書

放熱部材及びその製造方法

技術分野

- [0001] 本発明は、半導体装置や画像表示装置、光デバイス等の電子機器から発生する熱を周囲に拡散させる役割を担う放熱部材及びその製造方法に関する。

背景技術

- [0002] ノート型パソコンに代表される半導体装置の高速化・高集積化、液晶テレビやプラズマディスプレイに代表される画像表示装置の高輝度化、更には発光ダイオード(LED)に代表される光デバイスの大出力化に伴い、これらの電子機器の構成部品から発生する熱量が増大している。電子機器内における部品の発熱は、装置の誤動作や故障の原因となるので、従来、熱対策が重要な技術となっている。

これらの分野においては、金属材料の中でも熱伝導率の高い銅やアルミニウムを筐体や放熱板として用いることで、発生した熱を周囲に拡散させている。しかし、金属材料の中では熱伝導性の良好な銅であっても、その熱伝導率は $400\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 程度であり、しかも密度が $8.9(\text{Mg}/\text{m}^3)$ と大きく重いという欠点がある。

- [0003] そのため、近年このような金属材料に変えて、軽量で熱伝導率の高い炭素繊維を使用し、金属材料と複合化させた複合材料を放熱部材として用いる提案もある。

例えば、特開2003-46038号(特許文献1)では、炭素繊維と金属材料の複合材料を製造するために炭素繊維にニッケル、銅等の金属メッキを施し、ついで金属材料の溶湯を含浸して溶湯鍛造する方法、あるいは金属メッキ後の炭素繊維をホットプレスにより焼結して固化成形する方法が開示されている。このホットプレスによる方法では、炭素繊維の表面に施された金属メッキは、ホットプレス時の緩衝材となり、各炭素繊維間を埋める接合剤としての役割を果たす。

このように炭素繊維にメッキを施す方法は、炭素繊維と金属材料を複合化させる技術として有効な手段であると考えられる。

- [0004] 特許文献1:特開2003-46038号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0005] 上述した特許文献1に開示される方法は、炭素繊維と金属材料の複合材料により構成される放熱部材を製造する手法として有効である。

ところで、炭素繊維の熱伝導率は $500\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 以上、典型的には $800\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})\sim 1000\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 程度であるが、炭素繊維より熱伝導率の低い金属材料との複合材料になれば、熱伝導率は低下するので、複合材料とした場合でも熱伝導率の低下を抑制できる放熱部材が求められている。

本発明の目的は、上記の問題に鑑み、炭素繊維と金属材料の複合材料により構成される高熱伝導率の放熱部材とその製造方法を提供することである。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明者は、炭素繊維と複合化させる金属材料として、金属の中では熱伝導率が高く、かつ安価な銅に着目し、この炭素繊維と銅の複合材料により構成される放熱部材における銅の部分の組織形態と放熱部材の熱伝導率の間に密接な関係があることを見出し、本発明に到達した。

すなわち本発明は、実質的に一方向に揃えられた炭素繊維と銅との複合材料により構成される放熱部材であって、該放熱部材中の前記銅の金属組織が再結晶組織である放熱部材である。

本発明は、好ましくは、再結晶組織の平均結晶粒径を $0.1\mu\text{m}\sim 20\mu\text{m}$ とした放熱部材である。

また、本発明は、放熱部材中に占める炭素繊維の部分の体積率 V_{CF} が30%～90%である上記の放熱部材であり、望ましくは、 V_{CF} が30%～60%である放熱部材である。また、本発明は、炭素繊維方向と垂直な断面において、任意の $50\mu\text{m}$ 角の視野中に少なくとも1本以上の炭素繊維が存在する上記の放熱部材であり、更に望ましくは、炭素繊維方向と垂直な断面が1mm角以上の大きさである上記の放熱部材である。

本発明は、更には、放熱部材の密度 ρ (Mg/m^3)、炭素繊維の密度 ρ_{CF} (Mg/m^3)、炭素繊維の体積率 V_{CF} (%)、銅の密度 ρ_{CU} (Mg/m^3)、銅のみかけ体積率 V_{CU} (%) $= (100 - V_{\text{CF}})$ の間に、 $\rho / \{ \rho_{\text{CF}} \times (V_{\text{CF}} / 100) + \rho_{\text{CU}} \times (V_{\text{CU}} / 100) \} \geq 0$ 。

9の関係が成り立つ放熱部材である。

- [0007] また、本発明は、上記の放熱部材の製造方法であって、直径 d_{CF} の炭素繊維の表面に $(0.05 \sim 0.60) \times d_{CF}$ の厚さの銅メッキを施した後、該銅メッキ後の炭素繊維を実質的に一方向に揃えた状態で、最高到達温度 $600^{\circ}\text{C} \sim 1050^{\circ}\text{C}$ 、最高圧力 $5\text{MPa} \sim 100\text{MPa}$ 、最高到達温度 $\pm 5^{\circ}\text{C}$ における温度保持時間 $0.1\text{ks} \sim 1.8\text{ks}$ の条件で放電プラズマ焼結するとともに銅の金属組織を再結晶化させる放熱部材の製造方法である。

発明の効果

- [0008] 本発明によれば、放熱部材の熱伝導率を著しく高めることができるので、各種半導体装置や画像表示装置、光デバイス等、熱対策の必要な装置にとって欠くことのできない技術を提供できる。

発明を実施するための最良の形態

- [0009] 上述したように、本発明の重要な特徴は、実質的に一方向に揃えられた炭素繊維と銅との複合材料により構成される放熱部材において、高い熱伝導率を得るために、放熱部材中における銅の部分の金属組織を再結晶組織としたことにある。これは、銅の再結晶組織が放熱部材における銅の部分の熱伝導率、ひいては放熱部材の熱伝導率を高めるために必要な組織であるからである。

上述したように、銅の熱伝導率は約 $400(\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K}))$ と言われているが、銅の結晶中に塑性加工によって生じる転位や空孔等の格子欠陥が存在する場合には、これらの格子欠陥が熱の伝導を妨げるため、熱伝導率は $400(\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K}))$ より低下する。それ故、銅が本来有する約 $400(\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K}))$ の熱伝導率を発現させ、ひいては放熱部材の熱伝導率を高めるために、放熱部材における銅の部分は、格子欠陥の無い再結晶組織とする必要がある。

これにより、複合材料の母材(基地)となる銅の熱伝導率が大きく改善され、高い熱伝導率を有する放熱部材とすることができる。

- [0010] なお、本発明の再結晶組織とは、再結晶が完全に終了した組織に観察される金属組織を指し、再結晶が完全に終了せず、未再結晶部が残存する組織に観察される金属組織を含まない。その理由は、未再結晶部には上述した格子欠陥が残存し、熱

伝導率を低下させるからである。

また、本発明では、放熱部材を構成する銅の種類を特に規定しないが、高熱伝導率の放熱部材を得るためには、純度99質量%以上の純銅であることが望ましい。その理由は、銅に1質量%を超える合金元素が含まれると、熱伝導率が顕著に低下するからである。より望ましくは、銅の純度は3N(99.9質量%)以上であると良い。なお、ここに述べる銅の純度とは、放熱部材の断面を鏡面研磨した後、銅の部分を走査型電子顕微鏡に付設されたエネルギー分散型X線分析装置、またはエレクトロンプローブマイクロアナライザーに付設された波長分散型X線分析装置により分析した際の銅の濃度(質量%)を指す。

[0011] 望ましい範囲として、銅の部分の平均結晶粒径を規定した理由を述べる。

平均結晶粒径の下限を $0.1\mu\text{m}$ としたのは、再結晶組織とした母材(銅の部分)に存在する結晶粒界の量を減らして熱を伝え易くするためである。結晶粒界は熱伝導の妨げとなるので、再結晶組織内に多量の結晶粒界が存在する場合には放熱部材の熱伝導率は低下する場合がある。再結晶組織の平均結晶粒径を $0.1\mu\text{m}$ 以上とすることにより、放熱部材における母材(銅の部分)を銅本来の約 $400\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ の熱伝導率とすることがより確実にできるので、望ましい下限として規定した。

一方、放熱部材における炭素繊維の体積率を高めていくと、母材(銅の部分)の体積率は減少し、再結晶組織とした母材の結晶粒の成長は炭素繊維によって妨げられることになる。よって、再結晶組織の平均結晶粒径の上限は炭素繊維の体積率に大きく影響され、後述する炭素繊維の好ましい体積率を考慮すれば、再結晶粒径の好ましい上限は $20\mu\text{m}$ とすれば良い。より望ましい範囲は、 $0.5\mu\text{m}\sim 10\mu\text{m}$ である。

[0012] 次に本発明において放熱部材中に占める炭素繊維の部分の体積率 V_{CF} を30%～90%としたのは、30%未満では熱伝導率を高める効果が小さく、逆に90%を超える範囲では、炭素繊維間を埋める接合剤としての銅の量が、炭素繊維と比較して顕著に少ないために、炭素繊維と銅を均質に複合化した放熱部材を得ることが難しくなるからである。

また、炭素繊維を横切る方向(以下、垂直方向と記す。)にも高い熱伝導率が要求される場合や、高温環境や温度サイクルに対する放熱部材の信頼性が要求される場

合、更には放熱部材の機械的強度が要求される場合には、 V_{CF} の範囲は30%～60%であることが、より望ましい。

炭素繊維の比率が大きくなると、炭素繊維方向の熱伝導率を高くすることができる一方で、垂直方向の熱伝導率は低下する。更に、銅と炭素繊維の濡れ性は悪いので、隣り合う炭素繊維間に存在する銅の量が少ないと、放熱部材を使用中に高温環境で放置された際に、銅が塑性流動して炭素繊維の周囲に空隙が発生する場合があります、放熱特性を劣化することがある。また、隣り合う炭素繊維間に存在する銅の量が少ないことは、強度の弱い炭素繊維と銅の界面を多数存在させることになり、放熱部材としての強度を低下させることになる。それ故、放熱部材に温度サイクルがかかった場合の熱応力が大きいとクラック発生の可能性が生じてしまう。以上の理由から、炭素繊維のより望ましい範囲は30%～60%とした。

[0013] なお、本発明で言う炭素繊維の体積率とは、放熱部材の炭素繊維方向に垂直な断面を鏡面研磨後に光学顕微鏡で観察した際、視野中に占める炭素繊維の面積率に実質的に等しいので、断面から評価することができる。

より具体的には、放熱部材の断面を光学顕微鏡で観察すると、銅の部分は白く見える一方で、炭素繊維の部分は黒く見える。この光学顕微鏡の観察画像を白黒に2値化し、画像中に占める黒い部分の面積比率を求めることにより、視野中に占める炭素繊維の面積率を測定することができる。但し、炭素繊維と銅の界面に僅かに存在する空隙も、光学顕微鏡画像では黒く見えるので、この測定方法で得られる炭素繊維の面積率の値は、真の面積率より大きい。しかしながら、本発明の放熱部材においては、空隙部分の面積は、炭素繊維や銅の部分の面積と比較してごく僅かであるので、空隙部分を無視して炭素繊維の面積率を測定しても差し支えない。

[0014] また、本発明では放熱部材を構成する炭素繊維の種類(PAN系、ピッチ系)や形状、大きさ(直径、長さ)を特に規定しないが、高熱伝導率の放熱部材を得るためにはグラファイト構造を有した直径 $5\mu\text{m}$ ～ $20\mu\text{m}$ の範囲の炭素繊維が望ましい。更に、炭素繊維方向と垂直な断面において、均一な構造の断面を得る観点からは1種類の直径の炭素繊維を用いることが望ましいが、炭素繊維を密に充填して放熱部材中における炭素繊維の体積率を更に高めたい場合には、 $5\mu\text{m}$ ～ $20\mu\text{m}$ の範囲で2種

類以上の直径の炭素繊維を併用しても良い。また、後述する放熱部材の製造方法において、炭素繊維に銅メッキを施した後、実質的に一方向に揃えるためには、炭素繊維は、少なくとも100mm以上の長さを有した長繊維であることが望ましい。

[0015] 次に、望ましい範囲として、放熱部材中の炭素繊維方向と垂直な断面において、任意の $50\mu\text{m}$ 角の視野中に少なくとも1本以上の炭素繊維が存在することとした理由は、放熱部材中の炭素繊維は、できるだけ均一に分布していることが望ましいからである。炭素繊維の分布に偏りがあると、炭素繊維が密な部分の放熱は迅速に進む一方で、炭素繊維が疎な部分の放熱は遅く、結果として熱伝導率を低下させる懸念があるからである。任意の $50\mu\text{m}$ 角の視野中に少なくとも1本以上の炭素繊維が存在していれば、炭素繊維の分布は、ほぼ均一と考えて良い。より望ましくは、任意の $50\mu\text{m}$ 角の視野中に5本以上の炭素繊維が存在していると良い。

[0016] 更に、望ましい範囲として、放熱部材中の炭素繊維方向と垂直な断面が1mm角以上の大きさであることと規定した理由は、この大きさが、電子機器内に用いられる放熱部材として望ましい大きさであるからである。例えば、大出力の発光ダイオード(LED)のチップ(以下、LEDチップ)を樹脂で封止した発光パッケージの中に本発明の放熱部材を用いる場合、放熱部材における炭素繊維方向と垂直な断面をLEDチップの底面と接触させることによって、LEDチップで発生した熱を発光パッケージの内部から外部に向けて輸送することになる。効率的な熱の輸送を行うためには、放熱部材の接触面の面積は、LEDチップの底面より大きいことが望ましい。大出力のLEDチップにおける底面の大きさは1mm角程度であるので、望ましい範囲として、放熱部材中の炭素繊維方向と垂直な断面が1mm角以上であることとした。より望ましくは、1.5mm角以上であると良い。

[0017] また、望ましい範囲として放熱部材の密度 ρ (Mg/m^3)、炭素繊維の密度 ρ_{CF} (Mg/m^3)、炭素繊維の体積率 V_{CF} (%)、銅の密度 ρ_{CU} (Mg/m^3)、銅のみかけの体積率 V_{CU} (%) $= (100 - V_{\text{CF}})$ の間に、 $\rho / \{ \rho_{\text{CF}} \times (V_{\text{CF}} / 100) + \rho_{\text{CU}} \times (V_{\text{CU}} / 100) \} \geq 0.9$ の関係が成り立つこととした理由も、高い熱伝導率の放熱部材を得るためである。

ここに示す $\{ \rho_{\text{CF}} \times (V_{\text{CF}} / 100) + \rho_{\text{CU}} \times (V_{\text{CU}} / 100) \}$ の値は、放熱部材の理論

密度、すなわち理想的な密度に相当するので、 $\rho / \{ \rho_{CF} \times (V_{CF} / 100) + \rho_{CU} \times (V_{CU} / 100) \}$ の値は相対密度に相当し、この値が1に近いほど、空隙の少ない複合材料となる。放熱部材中に空隙が存在すると、その空隙が熱の伝導を妨げるので、放熱部材の熱伝導率が低下する。その弊害は、 $\rho / \{ \rho_{CF} \times (V_{CF} / 100) + \rho_{CU} \times (V_{CU} / 100) \}$ の値が0.9より小さい時に特に顕著であるので、 $\rho / \{ \rho_{CF} \times (V_{CF} / 100) + \rho_{CU} \times (V_{CU} / 100) \} \geq 0.9$ に規定した。より望ましくは $\rho / \{ \rho_{CF} \times (V_{CF} / 100) + \rho_{CU} \times (V_{CU} / 100) \} \geq 0.93$ であると良い。

- [0018] 本発明の製造方法では、炭素繊維と銅を複合化させる前処理手法として、炭素繊維に銅メッキを施す方法を適用する。そのもっとも重要な特徴は、炭素繊維と銅を均質に複合化することによって、即ちメッキ厚を調整することによって、接合される炭素繊維同士の間隔を均等に近いものとすることができるということにある。これにより、放熱部材の品質として重要な面内の放熱特性のばらつきを低減できる。また、この手法は、経済性、再現性の点からも工業的な大量生産に適している。

また、本発明では、先に述べた放熱部材を得るための望ましい製造方法として、銅メッキの厚さを規定し、また、銅メッキ後の炭素繊維を固化成形する条件を規定する。以下、本発明における製造方法の規定理由を述べる。

- [0019] 炭素繊維の直径 d_{CF} に対し、炭素繊維の表面に施す銅メッキの厚さを $(0.05 \sim 0.60) \times d_{CF}$ と規定したのは、高い熱伝導率と、緩衝材としての役割を両立させるのに必要であるためである。そして、この範囲内であれば、銅メッキ後の炭素繊維を固化成形して炭素繊維と銅の複合材料により構成される放熱部材を製造した際、該部材中に占める炭素繊維の部分の体積率を30%～90%の範囲に調整することもできるためである。

銅メッキの厚さが $0.05 \times d_{CF}$ より薄いと、緩衝材としての効果が不十分であり、逆に $0.60 \times d_{CF}$ より厚い場合には、放熱部材中に占める炭素繊維の部分の体積率が30%未満となり、所望の高い熱伝導率が得難くなるのでこの範囲に規定した。より望ましくは、 $(0.15 \sim 0.60) \times d_{CF}$ であると良く、この範囲にしておけば、放熱部材中の V_{CF} を、より望ましい範囲である30%～60%の範囲に調整することができる。

- [0020] 次に、上記の銅メッキ後の炭素繊維を実質的に一方向に揃える。これは、放熱部材

における炭素繊維方向の熱伝導率を高めるためである。

一方向への揃え方としては、例えば一定の長さに切り揃えて同じ方向に並べる方法を挙げることができ、この他、メッキ後の炭素繊維を折り曲げて一定の長さに揃える方法等により行うことにより、実質的に一方向に揃えることができる。

そして、実質的に一方向に揃えた状態で放電プラズマ焼結を適用し、銅メッキ後の炭素繊維を固化成形する。

この放電プラズマ焼結法はホットプレスとよく似ているが、焼結の初期段階に発生する放電プラズマと放電衝撃圧力によって拡散が促進されるので、ホットプレスと比較して短時間で焼結を完了させることができる。ここで重要なのは、放熱部材において高い熱伝導率を得るためには、高密度を得るだけでは十分でなく、銅の部分が再結晶組織となるように放電プラズマ焼結の条件を調整することである。

[0021] 本発明において放電プラズマ焼結時の最高到達温度を規定したのは、放熱部材中の銅の部分を再結晶組織にするとともに、 $\rho / (\rho_{CF} \times V_{CF} + \rho_{CU} \times V_{CU})$ の値を高めるためである。最高到達温度が600℃未満では銅の部分の再結晶と焼結が進まず、本発明で規定する組織や密度を有した放熱部材を得難い。逆に、最高到達温度が1050℃を超える範囲では、銅の融点(1080℃)直下であるため、僅かな温度変動によっても銅が溶融する懸念がある。以上より、最高到達温度を600℃～1050℃の範囲に規定した。放電プラズマ焼結時のより望ましい最高到達温度は700℃～1000℃である。

[0022] 放電プラズマ焼結時の最高圧力を5MPa～100MPaとしたのは、最高圧力が5MPa未満では銅の部分の再結晶を起こさせるのに十分な塑性変形を施すことができず、また、 $\rho / (\rho_{CF} \times V_{CF} + \rho_{CU} \times V_{CU})$ の値を高めるにも不十分なためである。逆に100MPaを超える範囲では、特に大型の部材を作製する場合に大きな圧縮荷重が必要となり工業的でないため、上述の範囲に規定した。より望ましい圧力の範囲は、10MPa～80MPaである。

また、本発明の製造方法では特に規定しないが、焼結の初期過程で放電プラズマを発生し易くするためには、加熱前に予め初期圧力をかけておくことが望ましい。この初期圧力の大きさは、2MPa～15MPaの範囲であることが望ましい。そして、初期

圧力から最高圧力まで圧力を高める時の温度は、500℃～800℃の範囲であることが望ましい。

- [0023] 放電プラズマ焼結時の最高到達温度 $\pm 5^{\circ}\text{C}$ における温度保持時間を0.1ks～1.8ksとしたのは、放熱部材における銅の部分の再結晶と結晶粒成長を促進させるのに必要な時間であるからである。例えば、0.1ksより短い0.06ks程度の保持時間であっても、高密度を得ることはできる。しかしながら、このような短時間の保持では、銅の部分の再結晶と結晶粒成長が不十分であるので、結果として高い熱伝導率を得られ難い。それ故、保持時間の下限を0.1ksに規定した。逆に、1.8ksを超える範囲では時間がかかり過ぎて工業的でないので、保持時間の上限を1.8ksに規定した。より望ましい保持時間の範囲は、0.2ks～1.2ksである。

なお、本発明の製造方法では特に規定しないが、放電プラズマ焼結過程において焼結の妨げとなる銅の酸化を防ぐため、放電プラズマ焼結の真空度は、100Paより高真空であることが望ましい。より望ましくは、50Paより高真空であると良い。

実施例 1

- [0024] 以下の実施例で、本発明を更に詳しく説明する。

本実施例では、高熱伝導性の炭素繊維として、ピッチ系の炭素繊維を用いた。なお、本実施例では1種類の直径の炭素繊維を用いた。炭素繊維の直径 d_{CF} は、図1の走査型電子顕微鏡写真から分かるように $10\mu\text{m}$ である。この炭素繊維は、長さが約270mの長繊維が約2000本束ねられ、かつボビン状に巻かれた状態で市販されている。

この炭素繊維の熱伝導率は公称 $800(\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K}))$ 、密度 ρ_{CF} は $2.2(\text{Mg}/\text{m}^3)$ である。また、炭素繊維の構造をX線回折により確認したところグラファイト構造となっていた。

この炭素繊維を500mmずつに切断した後、 $0.8\mu\text{m}(=0.08\times d_{\text{CF}})\sim 5.0\mu\text{m}(=0.50\times d_{\text{CF}})$ の範囲で、狙い厚さを変動させた6種類の厚さの無電解銅メッキを施した。これらのメッキ厚は、いずれも本発明の製造方法の規定範囲内である。

一例として、 $5\mu\text{m}$ 厚の銅メッキを施した後の表面の走査電子顕微鏡写真を図2に示す。メッキ後の表面形態は、メッキ前(図1)と明らかに異なっており、銅の微粒子が

炭素繊維の表面に堆積した形態となっている。また、銅メッキ後の炭素繊維を樹脂に埋め込み、光学顕微鏡を用いて観察した断面の写真を図3に示す。炭素繊維(1)の表面に、ほぼ均質な厚さの銅メッキ(2)が施されていることが分かる。

[0025] 狙い厚さを変動させた6種類の厚さの銅メッキ後の炭素繊維を20mm、または40mmずつに切断した後、実質的に一方向に揃えた状態で黒鉛型に詰め込み、放電プラズマ焼結機のチャンバー内で約10Paまで真空引きを行った。

そして、初期圧力として12.5MPaの圧縮方向の圧力をかけた後、昇温と昇圧を行い、表1に示す7種類の方法により、5mm×20mm×20mm、または5mm×40mm×40mmの大きさの放熱部材A～Gを製造した。この内、A～Fは、本発明の製造方法により作製した放熱部材である。ここで、保持時間とは最高到達温度±5℃の範囲の保持時間である。

放熱部材Aは、銅メッキの狙い厚さを0.8μmとし、放電プラズマ焼結時の最高到達温度900℃、最高圧力50MPa、保持0.90ksの条件により製造したものである。また、放熱部材B～Fは、それぞれ銅メッキの狙い厚さを1.0μm(B)、2.5μm(C)、3.0μm(D)、4.0μm(E)、5.0μm(F)とし、Aと同じ条件で放電プラズマ焼結を行ったものである。

一方、放熱部材Gは比較例の方法により製造したものである。5.0μm厚の銅メッキを施した後の放電プラズマ焼結時において、最高到達温度900℃と最高圧力50MPaはA～Fと同様であるが、放熱部材Gは、900℃での保持時間が0.06ksと短く、本発明の製造方法の規定範囲外である。

[0026] [表1]

表 1

放熱部材	炭素繊維の直径 $d_{CF}(\mu m)$	銅メッキの 狙い厚さ (μm)	放電プラズマ焼結条件			備考
			最高到達温度 ($^{\circ}C$)	最高圧力 (MPa)	保持時間 (ks)	
A	10	0.8	900	50	0.90	本発明
B	10	1.0	900	50	0.90	本発明
C	10	2.5	900	50	0.90	本発明
D	10	3.0	900	50	0.90	本発明
E	10	4.0	900	50	0.90	本発明
F	10	5.0	900	50	0.90	本発明
G	10	5.0	900	50	0.06	比較例

[0027] 各放熱部材から $5mm \times 5mm \times 5mm$ の試料を切り出し、炭素繊維に垂直な方向の断面を観察できるように樹脂に埋め込んだ後、鏡面研磨し、無腐食のままで光学顕微鏡により観察した。本発明の放熱部材の一例として、放熱部材Fの断面の光学顕微鏡写真を図4に示す。この図4の画像を白黒に2値化し、画像中に占める黒い部分の面積率を測定することにより、視野中に占める炭素繊維(1)の部分の面積率を測定した。面積率は、34.0%であった。この面積率は、放熱部材中に占める炭素繊維の部分の体積率 V_{CF} に等しく、他の放熱部材A～EおよびGも同じ方法により V_{CF} を測定した。また、各放熱部材における銅の部分を、エレクトロンプローブマイクロアナライザーに付設された波長分散型分析装置により分析したところ、銅以外の不純物は全く検出されず、いずれも銅の純度が100%であることを確認した。

[0028] 図4の写真を撮影した放熱部材Fの銅(3)の部分を、硝酸1:硫酸1:水184の比率で混合した溶液で腐食して組織を確認したところ、図5に示したように銅(3)部分は、再結晶組織で構成されており、本発明で規定する放熱部材となっていることが確認された。この図5を画像解析することにより、銅の部分の平均結晶粒径を測定したところ、 $9.1 \mu m$ であった。

なお、放熱部材A～Eにおいても同様に、銅の部分は再結晶組織で構成されており、本発明の放熱部材となっていた。一方、比較例の放熱部材Gにおける銅の部分の組織は、図6に示したように、再結晶が未完了であるため、再結晶組織が明瞭に観察されない。

[0029] 本発明の放熱部材A～Fと比較例の放熱部材Fにおける再結晶組織の有無、再結晶組織の平均結晶粒径(μm)、炭素繊維の体積率 V_{CF} (%)、任意の $50\mu\text{m}$ 角の視野中に存在する炭素繊維の本数を表2に示す。再結晶組織の平均結晶粒径は、 $1.1\mu\text{m}\sim 9.1\mu\text{m}$ 、 V_{CF} は $77.0\%\sim 34.0\%$ といずれも本発明の望ましい範囲内である。また、 V_{CF} 値が高くなるのに伴って、再結晶組織の平均結晶粒径は小さくなることが分かる。

[0030] また、炭素繊維方向と垂直な断面を 5mm 角の大きさとした放熱部材において、任意の $50\mu\text{m}$ 角の視野中に存在する炭素繊維の本数は、 V_{CF} 値とともに増加し、 V_{CF} 値が 34.0% の放熱部材Fでは6本、 V_{CF} 値が 77.0% の放熱部材Aでは13本存在していた。このように、本発明の放熱部材では、望ましい範囲とした 1mm 角以上の大きさの断面において、任意の $50\mu\text{m}$ 角の視野中に少なくとも1本以上、かつ望ましい範囲である5本以上の炭素繊維が存在していることから、放熱部材中の炭素繊維の分布は、ほぼ均一と考えて良い。

[0031] また、各放熱部材の残部の重量と寸法測定から、密度 ρ (Mg/m^3)を決定した。各放熱部材の密度 ρ (Mg/m^3)と相対密度 $\rho/\{\rho_{\text{CF}}\times(V_{\text{CF}}/100)+\rho_{\text{CU}}\times(V_{\text{CU}}/100)\}$ の値を表2に併せて示した。なお、 $\rho_{\text{CF}}=2.2$ 、 $\rho_{\text{CU}}=8.9$ として計算した。各放熱部材の密度は、 V_{CF} 値の増加に伴って小さくなり、 V_{CF} 値が 34.0% の放熱部材Fでは $6.63(\text{Mg}/\text{m}^3)$ 、 V_{CF} 値が 77.0% の放熱部材Aでは $3.50(\text{Mg}/\text{m}^3)$ であった。また、各放熱部材の相対密度は、いずれも望ましい範囲とした 0.90 以上の値であった。

[0032] 更に、各放熱部材より $5\text{mm}\times 10\text{mm}\times 5\text{mm}$ 程度の試料を各2個ずつ切り出し、その2個を接着剤で貼り合わせて $10\text{mm}\times 10\text{mm}\times 5\text{mm}$ とした。ここで、炭素繊維方向の長さが 5mm となるようにした。レーザーフラッシュ法により、各放熱部材の炭素繊維方向の熱伝導率($\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$)を測定した結果を表2に併せて示した。

[0033] [表2]

表2

放熱部材	銅の金属組織	平均結晶粒径 (μm)	炭素繊維の体積率 V_{CF} (%)	任意の $50\mu\text{m}$ 角の視野中に存在する炭素繊維の本数	断面の大きさ	密度 ρ (Mg/m^3)	相対密度	炭素繊維方向の熱伝導率 λ ($\text{W/(m}\cdot\text{K)}$)	備考
A	再結晶	1.1	77.0	13	5mm角	3.50	0.94	675	本発明
B	再結晶	1.5	73.2	13	5mm角	4.00	0.98	726	本発明
C	再結晶	3.6	49.2	8	5mm角	5.35	0.95	644	本発明
D	再結晶	4.2	45.2	7	5mm角	5.90	1.00	704	本発明
E	再結晶	8.5	37.6	6	5mm角	5.96	0.93	593	本発明
F	再結晶	9.1	34.0	6	5mm角	6.63	1.00	570	本発明
G	未再結晶	—	33.2	6	5mm角	6.65	1.00	508	比較例

[0034] 表2より、銅の部分を再結晶組織とし、更に再結晶組織の平均結晶粒径、 V_{CF} 値、任意の $50\mu\text{m}$ 角の視野中に存在する炭素繊維の本数、相対密度 $\rho / \{ \rho_{CF} \times (V_{CF} / 100) + \rho_{CU} \times (V_{CU} / 100) \}$ の値を本発明の望ましい範囲に調整した放熱部材 A~F の炭素繊維方向の熱伝導率は、 $570\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K}) \sim 726\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ と高い値を示している。

一方、比較例の放熱部材 G では、 V_{CF} 値、任意の $50\mu\text{m}$ 角の視野中に存在する炭素繊維の本数、相対密度の値は、いずれも本発明の放熱部材 F とほぼ同じであるが、銅の部分の再結晶が完了していないので、熱伝導率は $508\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ と放熱部材 F より低い。

[0035] 以上の実施例1から、炭素繊維と銅の複合材料により構成される放熱部材において、高熱伝導率を得るためには、炭素繊維の体積率や放熱部材の密度を調整するだけでは不十分であり、銅の部分を本発明で規定する再結晶組織とすることにより、更に高い熱伝導率を有する放熱部材が得られることが分かる。

このような放熱部材を得るためには、本発明で規定する方法により放熱部材を製造することが有効である。本発明の放熱部材は、銅の $400\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ を超える高い熱伝導率を有するので、半導体装置や画像表示装置、光デバイス等の電子機器の熱対策に用いられる放熱部材として好適である。

実施例 2

[0036] 実施例1で得た本発明の放熱部材について、レーザーフラッシュ法により、各放熱部材の垂直方向の熱伝導率 ($\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$) を測定した。実施例1で得られた炭素繊維

維方向の熱伝導率を含め、熱伝導率と炭素繊維の体積率 V_{CF} の関係を、図7に示す。図7には、比較のために純銅の熱伝導率を $V_{CF}=0$ として記載している。図7に示す通り、 V_{CF} の増加に伴い炭素繊維方向の熱伝導率は増加するが、炭素繊維を横切る垂直方向の熱伝導率の低下が著しい。 V_{CF} の範囲を、本発明でより望ましいとした30%～60%の範囲に調整しておけば、垂直方向においても $80\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})\sim 200\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ の熱伝導率が得られることが分かる。

[0037] また、放熱部材A, C, Dの信頼性評価として、真空中で高温放置後の炭素繊維方向の熱伝導率を測定した結果を図8に示す。図8に示したように、放置温度が高くなると、いずれの放熱部材においても熱伝導率が低下しているが、 V_{CF} が77.0%と炭素繊維の体積率が大きい放熱部材Aでは、 800°C で24h放置すると、熱伝導率の低下が特に大きいことが確認された。この高温放置後の放熱部材Aについて、組織観察を行った結果を図10に示す。試験前には観察されなかった空隙が組織中に確認され、高温での銅の塑性流動が起こったことが推測される。これは、炭素繊維と銅の濡れ性が悪いためであり、炭素繊維間に存在する銅の量が少ないために起きた現象と考えられる。一方、 V_{CF} が46.1%の放熱部材Dを 800°C で24h放置後の組織を同様に観察すると、図9に示したように顕著な組織変化は確認されなかった。このように、高温放置に対する信頼性の点からも、 V_{CF} の範囲は、30%～60%の範囲に調整しておくことが、より望ましい。

[0038] また、放熱部材AとDから、 $5\text{mm}\times 5\text{mm}\times 40\text{mm}$ の試験片を切り出し、スパン30mm、変位速度0.5mm/分の条件で3点曲げ試験を行って荷重－変位曲線を測定した結果を図11に示す。図中に繊維方向と記してあるのは、試験片の40mmの方向が炭素繊維方向となるように切り出した試験片であり、一方、垂直方向と記してあるのは、40mmの方向が炭素繊維に対して垂直方向となるように切り出した試験片である。いずれの放熱部材においても、垂直方向の強度は、繊維方向と比較して低いが、 V_{CF} が77.0%と炭素繊維の体積率が大きい放熱部材Aでは、抗折荷重の低下が特に大きいことが分かる。これは、放熱部材Aにおいては、強度の弱い炭素繊維と銅の界面が多数存在するためと思われる。図11に示す各荷重－変位曲線の最大荷重の値と試験片の寸法から、次式(1)を用いて各放熱部材の抗折力 σ (MPa)を決定し

た結果を表3に示す。

$$\sigma = (3 \times W \times L) / (2 \times b \times t^2) \quad \dots (1)$$

(1)式において、Wは最大荷重(N)、Lはスパン(=30mm)、bは試験片の幅(=5mm)、tは試験片の厚さ(=5mm)である。

[0039] [表3]

表 3

放熱部材	抗折力 (MPa)	
	炭素繊維方向	垂直方向
A	224.8	6.7
D	411.1	72.6

[0040] これらの放熱部材AとDに対して、(室温×10分)→(−40℃×10分)→(室温×10分)→(125℃×10分)を1サイクルとして200サイクルまで温度サイクル試験を行った。温度サイクル試験後の放熱部材AとDの組織を、それぞれ図12と図13に示す。 V_{CF} が77.0%と大きい放熱部材Aでは、試験後にクラックが発生しているのに対し(図12)、 V_{CF} が46.1%の放熱部材Dには、クラックは観察されない(図13)。このように、機械的強度や温度サイクル試験に対する信頼性の点からも、 V_{CF} の範囲は、30%～60%の範囲に調整しておくことが、より望ましい。

[0041] 以上の実施例2から、炭素繊維を横切る垂直方向にも高い熱伝導率が要求される場合や、高温環境や温度サイクルに対する放熱部材の信頼性が要求される場合、更に放熱部材の機械的強度が要求される場合には、 V_{CF} の範囲は30%～60%としておくことが、より望ましいことが分かる。

図面の簡単な説明

[0042] [図1]本発明で用いた炭素繊維の表面を示す走査型電子顕微鏡写真である。

[図2]本発明の製造方法における銅メッキ後の炭素繊維の表面を示す走査型電子顕微鏡写真である。

[図3]本発明の製造方法における銅メッキ後の炭素繊維の断面を示す光学顕微鏡写

真である。

[図4]本発明の放熱部材における炭素繊維に垂直な方向の断面を示す光学顕微鏡写真である。

[図5]本発明の放熱部材における銅の部分の組織を示す光学顕微鏡写真である。

[図6]比較例の放熱部材における銅の部分の組織を示す光学顕微鏡写真である。

[図7]本発明の放熱部材の熱伝導率に及ぼす炭素繊維の体積率の影響を示す図である。

[図8]本発明の放熱部材の熱伝導率に及ぼす放置温度の影響を示す図である。

[図9]本発明の放熱部材における高温放置試験後の組織を示す走査型電子顕微鏡写真の例である。

[図10]本発明の放熱部材における高温放置試験後の組織を示す走査型電子顕微鏡写真の別の例である。

[図11]本発明の放熱部材における抗折試験時の荷重－変位曲線である。

[図12]本発明の放熱部材における温度サイクル試験後の組織を示す光学顕微鏡写真の例である。

[図13]本発明の放熱部材における温度サイクル試験後の組織を示す走査型電子顕微鏡写真の例である。

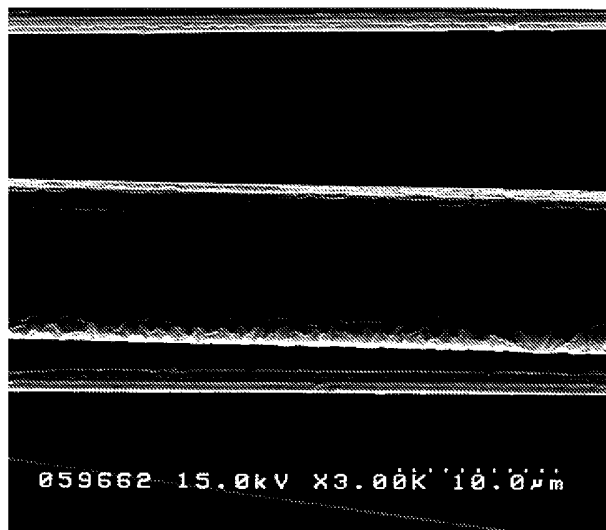
符号の説明

[0043] 1. 炭素繊維 2. 銅メッキ 3. 銅

請求の範囲

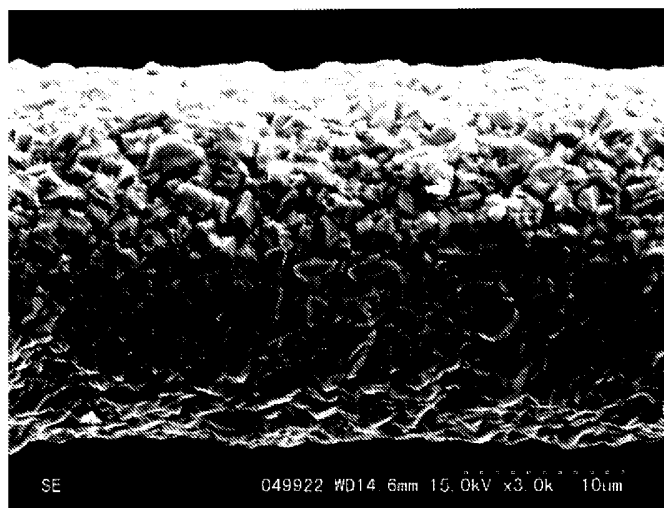
- [1] 実質的に一方向に揃えられた炭素繊維と銅との複合材料により構成される放熱部材であって、該放熱部材中の前記銅の金属組織が再結晶組織であることを特徴とする放熱部材。
- [2] 再結晶組織の平均結晶粒径が $0.1\ \mu\text{m} \sim 20\ \mu\text{m}$ であることを特徴とする請求項1に記載の放熱部材。
- [3] 放熱部材中に占める炭素繊維の部分の体積率 V_{CF} が30%～90%であることを特徴とする請求項1または2に記載の放熱部材。
- [4] 放熱部材中に占める炭素繊維の部分の体積率 V_{CF} が30%～60%であることを特徴とする請求項1乃至3の何れかに記載の放熱部材。
- [5] 炭素繊維方向と垂直な断面において、任意の $50\ \mu\text{m}$ 角の視野中に少なくとも1本以上の炭素繊維が存在することを特徴とする請求項1乃至4の何れかに記載の放熱部材。
- [6] 炭素繊維方向と垂直な断面が 1mm 角以上の大きさであることを特徴とする請求項1乃至5の何れかに記載の放熱部材。
- [7] 放熱部材の密度 ρ (Mg/m^3)、炭素繊維の密度 ρ_{CF} (Mg/m^3)、炭素繊維の体積率 V_{CF} (%)、銅の密度 ρ_{CU} (Mg/m^3)、銅のみかけ体積率 V_{CU} (%) $= (100 - V_{\text{CF}})$ の間に、 $\rho / \{ \rho_{\text{CF}} \times (V_{\text{CF}} / 100) + \rho_{\text{CU}} \times (V_{\text{CU}} / 100) \} \geq 0.9$ の関係が成り立つことを特徴とする請求項1乃至6の何れかに記載の放熱部材。
- [8] 請求項1乃至7の何れかに記載の放熱部材の製造方法であって、直径 d_{CF} の炭素繊維の表面に $(0.05 \sim 0.60) \times d_{\text{CF}}$ の厚さの銅メッキを施した後、該銅メッキ後の炭素繊維を実質的に一方向に揃えた状態で、最高到達温度 $600^\circ\text{C} \sim 1050^\circ\text{C}$ 、最高圧力 $5\text{MPa} \sim 100\text{MPa}$ 、最高到達温度 $\pm 5^\circ\text{C}$ における温度保持時間 $0.1\text{ks} \sim 1.8\text{ks}$ の条件で放電プラズマ焼結するとともに銅の金属組織を再結晶化させることを特徴とする放熱部材の製造方法。

[図1]



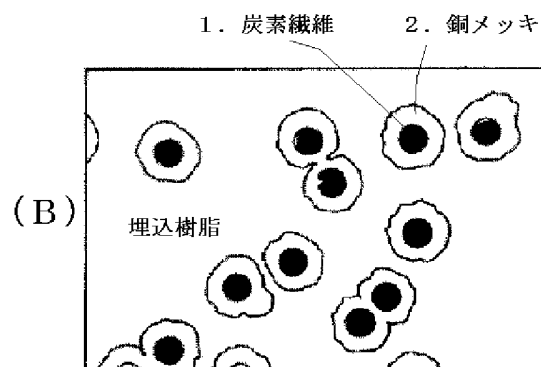
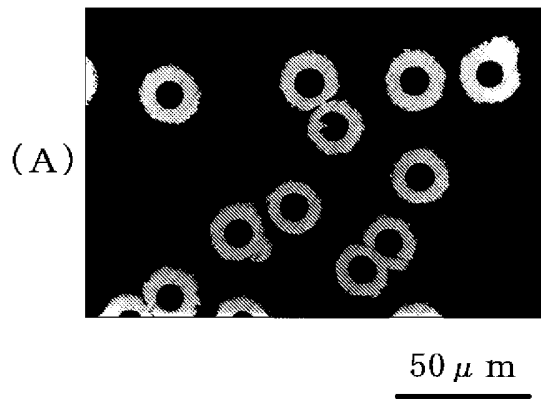
10 μm

[図2]

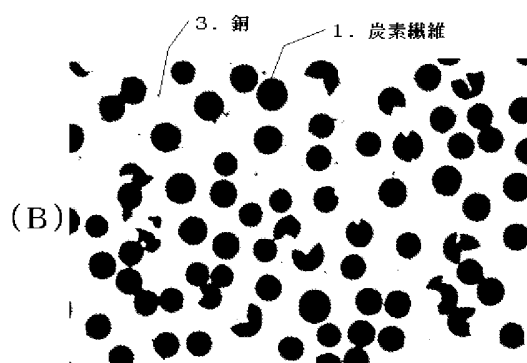
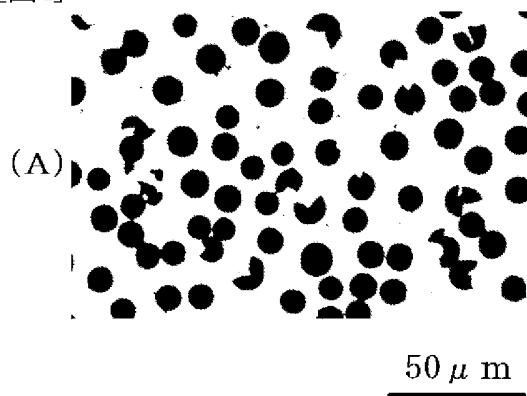


10 μm

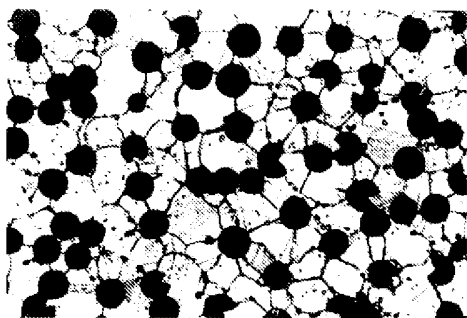
[図3]



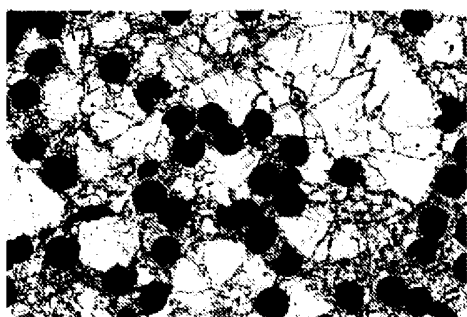
[図4]



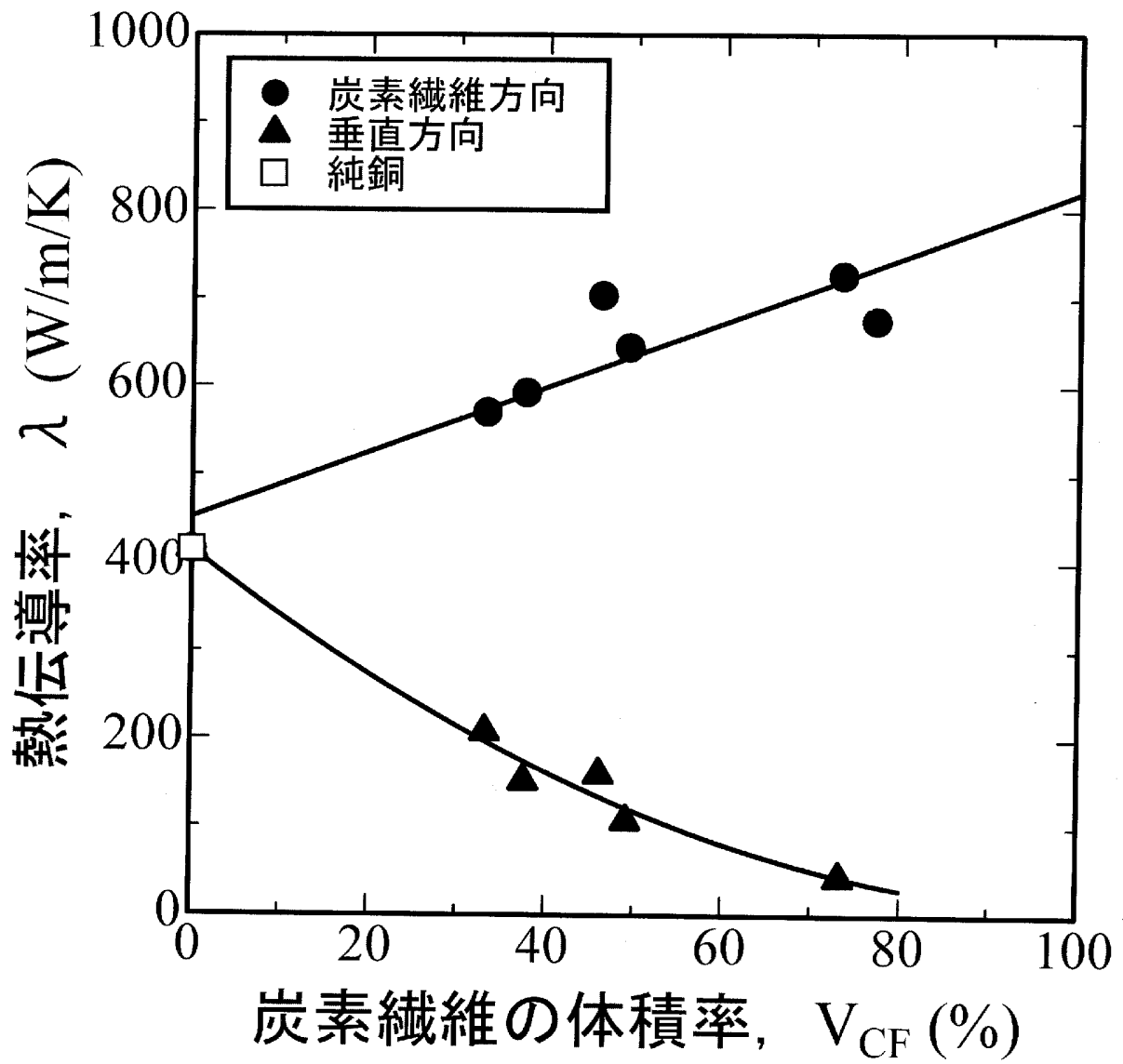
[図5]

50 μ m

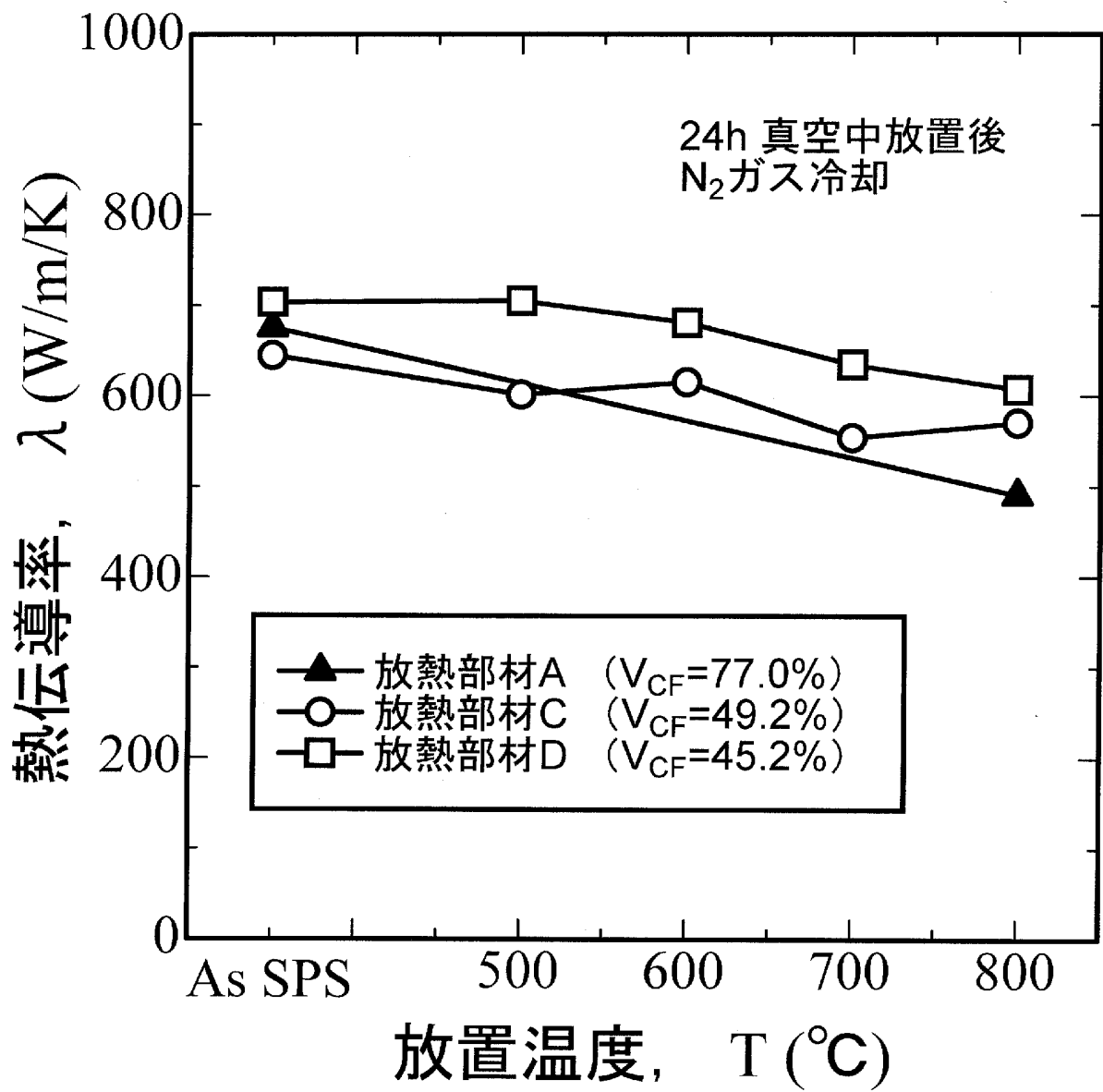
[図6]

50 μ m

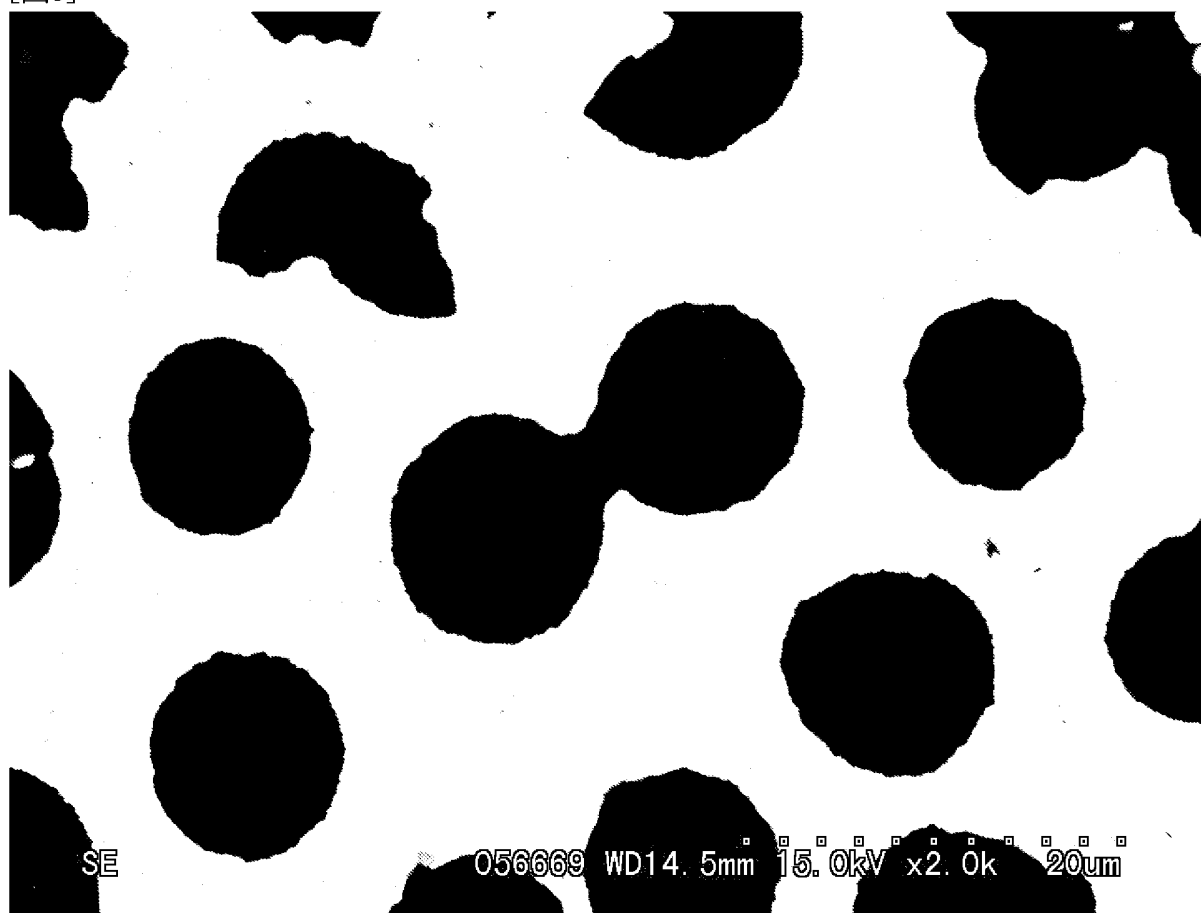
[図7]



[図8]

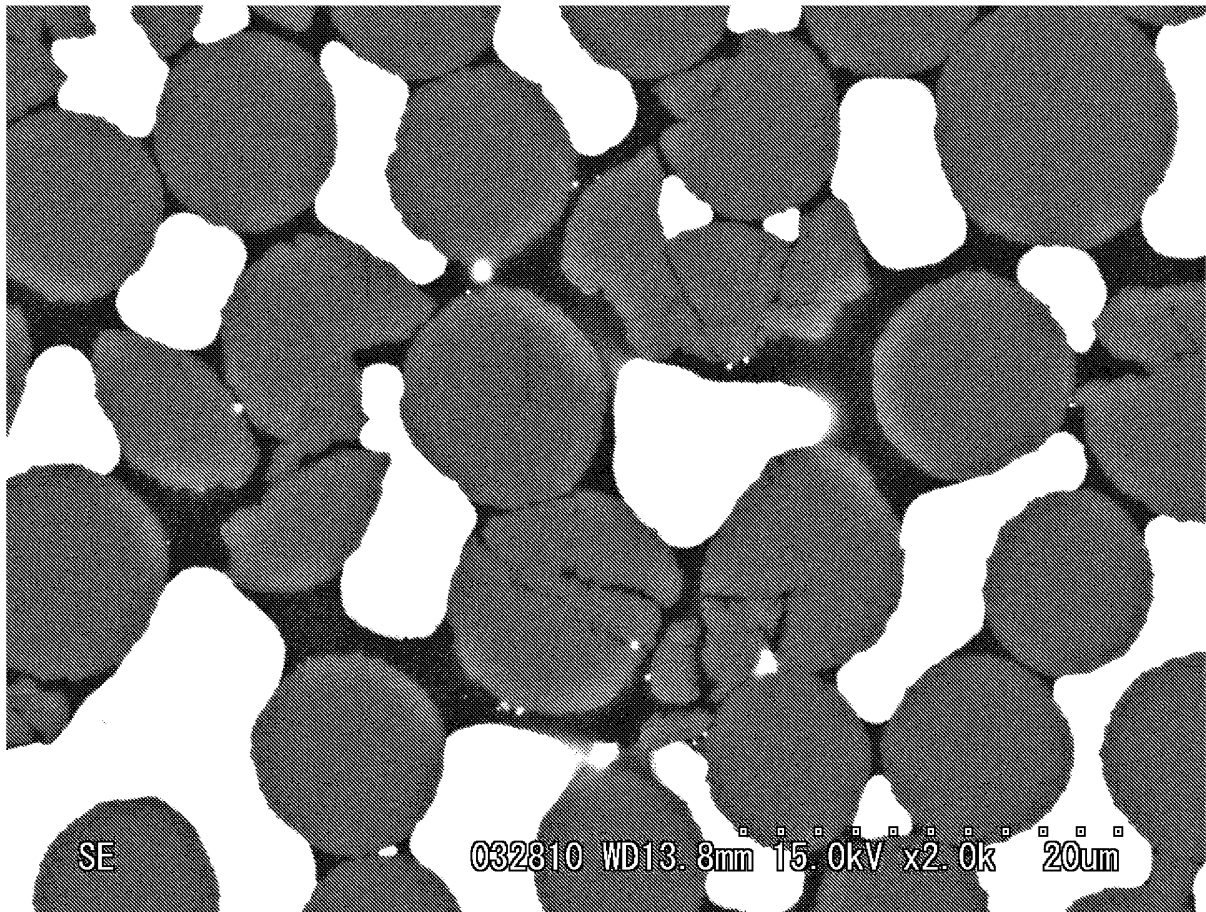


[図9]

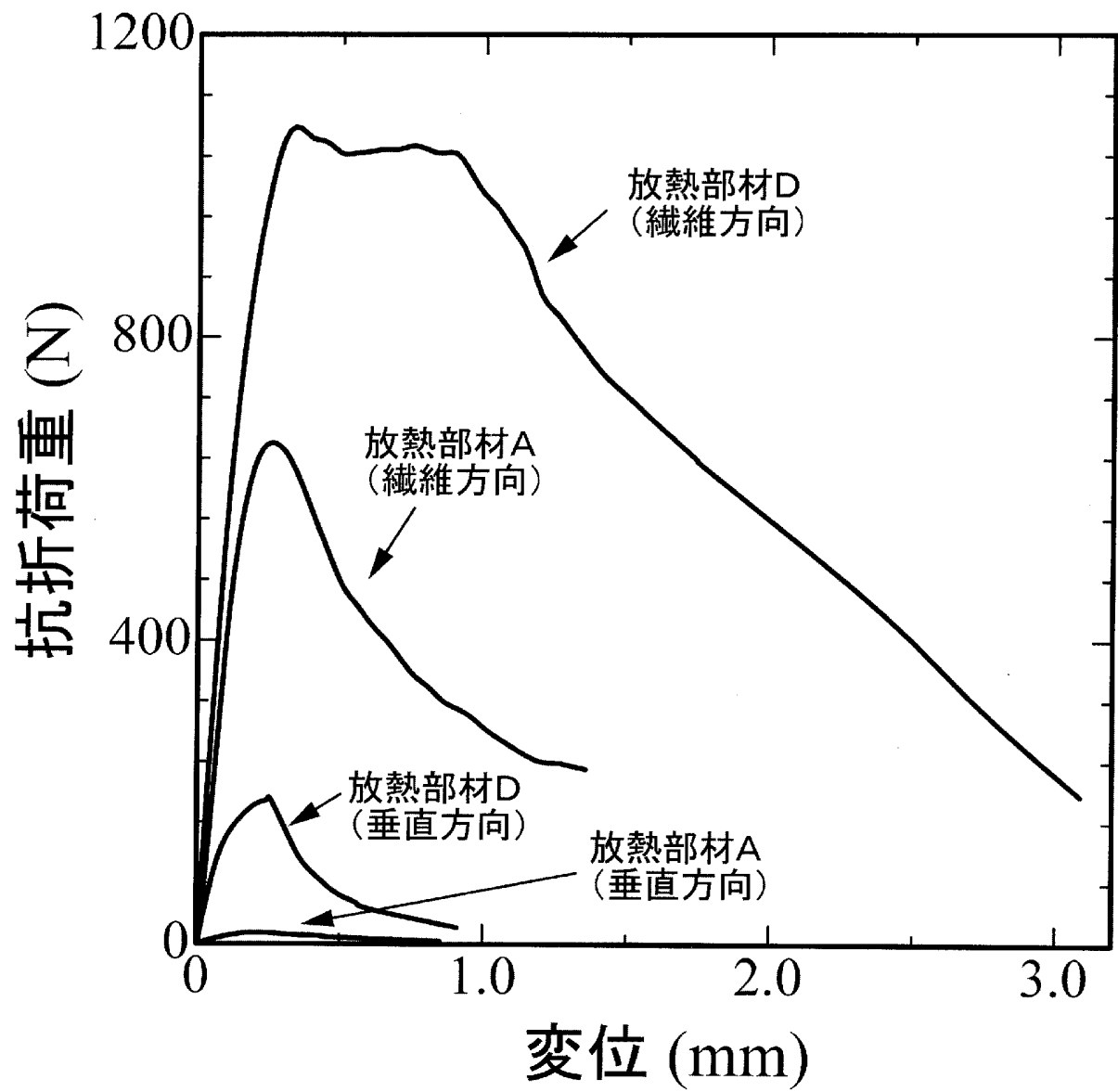


20 μ m

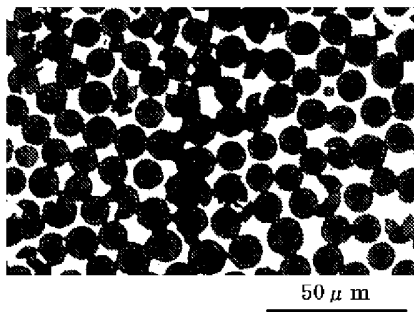
[図10]



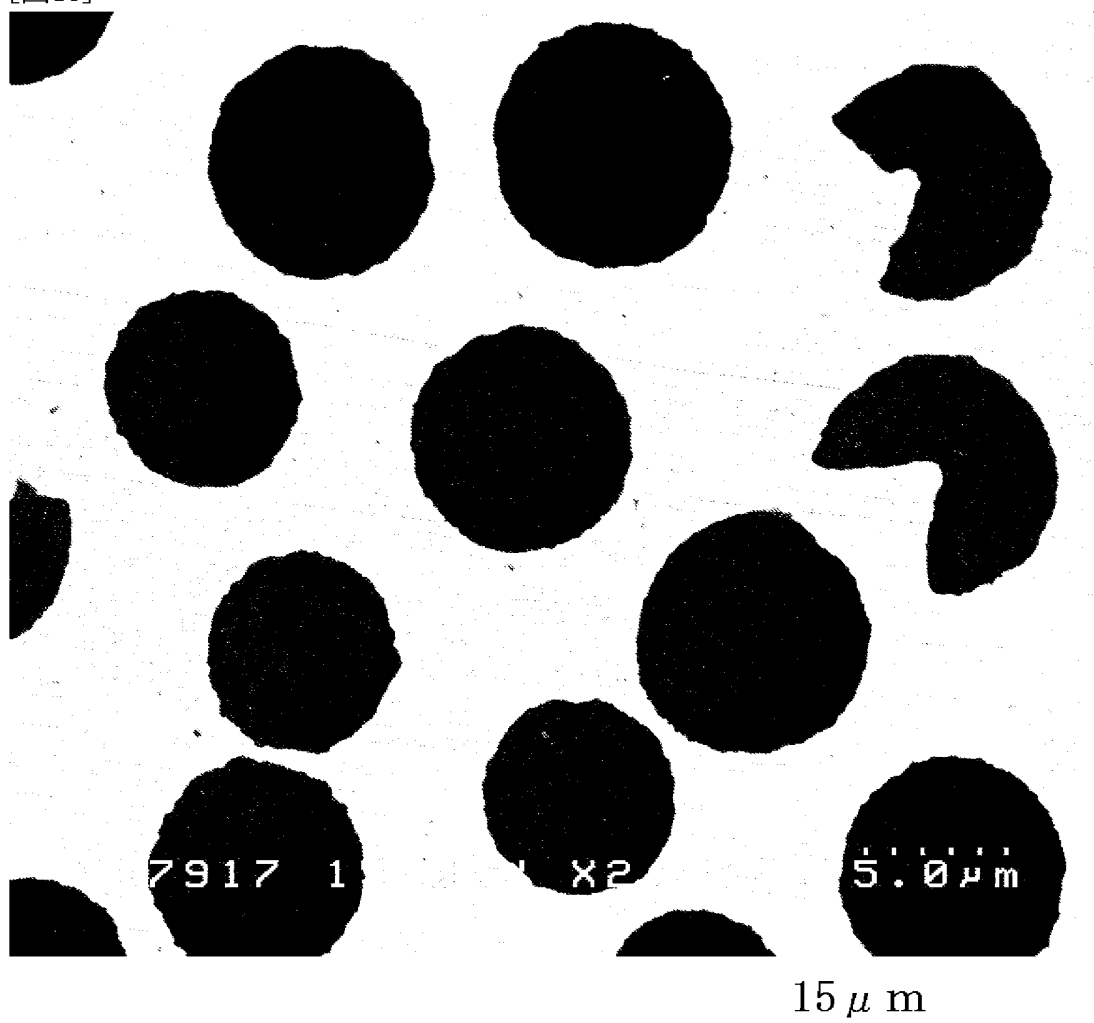
[図11]



[図12]



[図13]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/302668

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L23/373(2006.01), C22C47/04(2006.01), C22C47/14(2006.01), C22C49/02(2006.01), C23C18/31(2006.01), C22F1/08(2006.01), B22F3/14(2006.01)

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)

B22F3/14, C22C47/04, C22C47/14, C22C49/02, C22F1/08, C23C18/31, H01L23/373

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	1996-2006
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2006	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2006

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.
A	JP 2002-246497 A (Kyocera Corp.), 30 August, 2002 (30.08.02), (Family: none)	1-8
A	JP 2003-183792 A (Mitsubishi Electric Corp.), 03 July, 2003 (03.07.03), (Family: none)	1-8

☐ 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
02 May, 2006 (02.05.06)

Date of mailing of the international search report
16 May, 2006 (16.05.06)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H01L23/373 (2006.01), C22C47/04 (2006.01), C22C47/14 (2006.01), C22C49/02 (2006.01),
C23C18/31 (2006.01), C22F1/08 (2006.01), B22F3/14 (2006.01)

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. B22F 3/14, C22C 47/04, C22C 47/14, C22C 49/02, C22F 1/08, C23C 18/31, H01L 23/373

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	1971-2006年
日本国実用新案登録公報	1996-2006年
日本国登録実用新案公報	1994-2006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 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 請求の範囲の番号
A	JP 2002-246497 A (京セラ株式会社) 2002.08.30 (ファミリーなし)	1-8
A	JP 2003-183792 A (三菱電機株式会社) 2003.07.03 (ファミリーなし)	1-8

☐ 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

02.05.2006

国際調査報告の発送日

16.05.2006

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)

田中 永一

電話番号 03-3581-1101 内線 3469

4R

9539