

(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6月29日(29.06.2017)



(10) 国際公開番号

WO 2017/110140 A1

- (51) 国際特許分類:
C22C 47/20 (2006.01) C22C 47/06 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/074733
- (22) 国際出願日: 2016年8月25日(25.08.2016)
- (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 2015-251416 2015年12月24日(24.12.2015) 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).
- (72) 発明者: 溝 達寛(MIZO Tatsuhito); 〒3238678 栃木県小山市犬塚1丁目480番地 昭和電工株式会社小山事業所内 Tochigi (JP).
- (74) 代理人: 清水 義仁, 外(SHIMIZU Yoshihito et al.);
〒5420081 大阪府大阪市中央区南船場3丁目4番26号 出光ナガホリビル 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, 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, 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.

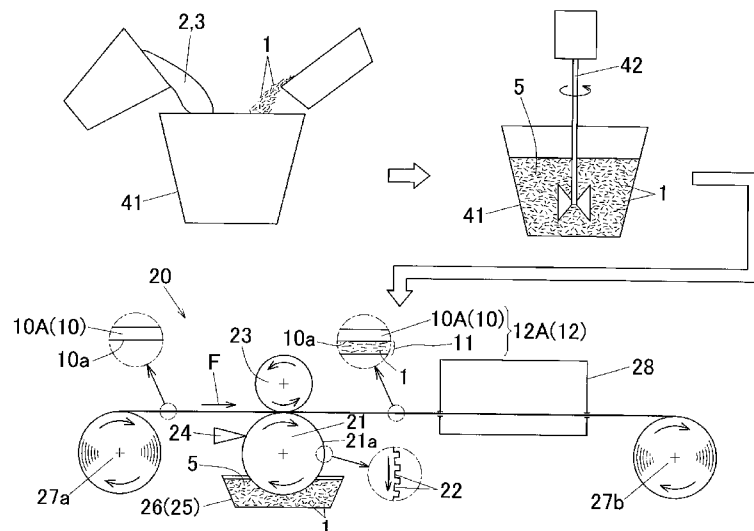
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, 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: METHOD FOR PRODUCING METAL-CARBON FIBER COMPOSITE MATERIAL

(54) 発明の名称: 金属と炭素繊維との複合材の製造方法



(57) Abstract: This method for producing a metal-carbon fiber composite material comprises the steps of: coating a surface (10a) of a metal foil (10) with a coating liquid (5) containing carbon fibers (1) using a gravure coating device (20) to obtain a coated foil (12) in which a carbon fiber layer (11) is formed on the surface (10a) of the metal foil (10); forming a laminate in which a plurality of coated foils (12) are laminated; and heating the laminate while applying pressure in a direction in which the coated foils (12) are laminated in order to bond and integrate the coated foils (12). The gravure coating device (20) has a gravure roll (21) with cup-shaped cells (22) on the circumferential surface (21a) thereof. The diameter of a circle inscribed in the opening shape of the cells (22) is set 1.2 times greater than the average fiber length of the carbon fibers (1).

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2017/110140 A1



金属と炭素繊維との複合材の製造方法は、炭素繊維（１）等を含有する塗工液（５）をグラビア塗工装置（２０）により金属箔（１０）の表面（１０ａ）に塗工することで、金属箔（１０）の表面（１０ａ）上に炭素繊維層（１１）が形成された塗工箔（１２）を得る工程と、塗工箔（１２）が複数積層された状態の積層体を形成する工程と、積層体を塗工箔（１２）の積層方向に加圧しながら加熱することにより塗工箔（１２）を接合一体化する工程と、を具備する。グラビア塗工装置（２０）のグラビアロール（２１）の周面（２１ａ）のセル（２２）の形状はカップ状であり、且つ、セル（２２）の口形状に内接する円の直径は炭素繊維（１）の平均繊維長に対して１．２倍以上に設定されている。

明 細 書

発明の名称： 金属と炭素繊維との複合材の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、金属と炭素繊維との複合材の製造方法、及び、絶縁基板の製造方法に関する。

[0002] なお本明細書及び特許請求の範囲では、「アルミニウム」の語は、特に明示する場合を除き純アルミニウム及びアルミニウム合金の双方を含む意味で用いられ、また同じく「銅」の語は、特に明示する場合を除き純銅及び銅合金の双方を含む意味で用いられる。

[0003] また、本発明に係る絶縁基板の上下方向は限定されるものではないが、本明細書及び特許請求の範囲では、絶縁基板の構成を理解し易くするため、発熱性素子が搭載される絶縁基板の搭載面側を絶縁基板の上側及びその反対側を絶縁基板の下側とそれぞれ定義する。

背景技術

[0004] 金属として例えばアルミニウムの放熱性を向上させるとともに線膨張率をコントロールした材料として、アルミニウムと炭素材との複合材が検討されている。

[0005] この複合材の製造方法として、溶融したアルミニウムに炭素材としての炭素繊維を入れて攪拌混合する方法（溶湯攪拌法）、空隙を有する炭素成形体内に溶融したアルミニウムを押し込む方法（溶湯鍛造法）、アルミニウム粉末と炭素粉末を混合して加圧加熱焼成する方法（粉末冶金法）、アルミニウム粉末と炭素粉末を混合して押出加工する方法（粉末押出法）などが知られている。

[0006] しかしながら、これらの方法では、溶融したアルミニウム又はアルミニウム粉末を用いるので、製造作業が煩雑であるし、製造設備が大型化していた。

[0007] また、特開昭59-76840号公報（特許文献1）は、無機ウイスキー

を有機結合剤により金属薄板の金属面に結合又は接着させることで前駆成型物（プリプレグ）を製作し、次いで前駆成型物を複数積層して加熱加圧することで強化金属材を製造する方法を開示している。

[0008] また、特許第5150905号公報（特許文献2）は、炭素繊維を有機バインダー及び溶剤と混合して塗布混合物を準備し、次いで塗布混合物をシート状又はフォイル状の金属支持体上に付着させることでプリフォーム箔（塗工箔）を形成し、その後、プリフォーム箔を複数積み重ねて積層体を形成し、そして積層体を加熱圧接してプリフォーム箔同士を一体化させることにより、金属と炭素繊維との複合材としての金属基炭素繊維複合材を製造する方法を開示している。

[0009] また、金属と炭素繊維との複合材の製造方法を開示したその他の文献としては、特許第5145591号公報（特許文献3）及び特開2015-25158号公報（特許文献4）がある。

[0010] 上記の特許文献2～4に開示された製造方法では、金属層と炭素繊維層が交互に複数積層された状態で接合一体化されてなる金属と炭素繊維との複合材が得られる。

先行技術文献

特許文献

[0011] 特許文献1：特開昭59-76840号公報

特許文献2：特許第5150905号公報

特許文献3：特許第5145591号公報

特許文献4：特開2015-25158号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0012] 而して、上記の特許文献1に開示された複合材の製造方法では、金属薄板の金属面に結合又は接着した無機ウイスキー層が厚すぎると、無機ウイスキー層内に金属薄板の金属が十分に浸透することができず、無機ウイスキー層

内に空隙ができてしまうこと、及び、無機ウイスキー層を挟んだ両側に配置された金属薄板同士があまり接合されないことが原因で、複合材の強度は低かった。

[0013] 上記の特許文献2～4に開示された複合材には次のような欠点があった。

[0014] ここで本明細書では、複合材において、金属層と炭素繊維層との積層方向に対して垂直な面を「複合材の平面」といい、金属層と炭素繊維層との積層方向に対して垂直な面方向を「複合材の平面方向」という。

[0015] 複合材において、炭素繊維層中の炭素繊維の繊維方向が複合材の平面内で一方向に揃っている場合、即ち炭素繊維が一方向に配向している場合には、線膨張係数、熱伝導率等の複合材の物性が複合材の平面内における炭素繊維の繊維方向（即ち炭素繊維の配向方向）とその直角方向とで大きく相異なる。そのため、複合材が加熱されたときに複合材が歪み易いという欠点があった。

[0016] そこで、プリフォーム箔を炭素繊維の繊維方向が交互に直角になるように複数積層して積層体を形成することが考えられる。

[0017] しかしこの方法では、炭素繊維の繊維方向を考慮しながらプリフォーム箔を積層しなければならないので、プリフォーム箔の積層作業が面倒である。しかも、複合材の平面内における炭素繊維の繊維方向に対して斜め方向（例：45°の方向）の物性（例：線膨張係数）を炭素繊維の繊維方向及びその直角方向の物性と同じにすることが困難であった。

[0018] 本発明は、上述した技術背景に鑑みてなされたもので、その目的は、複合材の平面方向の物性の均一化を図ることができる金属と炭素繊維との複合材の製造方法、及び、絶縁基板の製造方法を提供することにある。

[0019] 本発明のその他の目的及び利点は、以下の好ましい実施形態から明らかにされるであろう。

課題を解決するための手段

[0020] 本発明は以下の手段を提供する。

[0021] [1] 炭素繊維とバインダーと前記バインダー用溶剤とを混合状態に含

有する塗工液を、周面に多数のセルが設けられたグラビアロールを備えたグラビア塗工装置により金属箔の表面に塗工することにより、前記金属箔の表面上に炭素繊維層が形成された塗工箔を得る工程と、

前記塗工箔が複数積層された状態の積層体を形成する工程と、

前記積層体を加熱することにより前記積層体から前記バインダーを除去し、そして前記前記積層体を前記塗工箔の積層方向に加圧しながら加熱することにより前記塗工箔を接合一体化する工程と、を具備し、

前記グラビアロールの前記セルの形状がカップ状であり、且つ、前記セルの口形状に内接する円の直径が前記炭素繊維の平均繊維長に対して1.2倍以上に設定されている、金属と炭素繊維との複合材の製造方法。

[0022] [2] 前記塗工箔を得る工程は、前記金属箔の表面上に形成された前記炭素繊維層から前記溶剤を除去する工程を含んでいる前項1記載の金属と炭素繊維との複合材の製造方法。

[0023] [3] 前記塗工箔を得る工程は、前記金属箔の表面上に形成された前記炭素繊維層の表面に摺り均し処理を施さないで前記炭素繊維層から前記溶剤を除去する工程を含んでいる前項1記載の金属と炭素繊維との複合材の製造方法。

[0024] [4] 前記塗工箔を接合一体化する工程では、前記積層体の温度が前記塗工箔を接合一体化する温度まで上昇するように前記積層体を加熱する途中で前記積層体から前記バインダーを除去する前項1～3のいずれかに記載の金属と炭素繊維との複合材の製造方法。

[0025] [5] 前記セルの形状は、格子型、ピラミッド型、亀甲型及び円型からなる群より選択される少なくとも一つである前項1～4のいずれかに記載の金属と炭素繊維との複合材の製造方法。

[0026] [6] 前記金属箔はアルミニウム箔及び銅箔のうち少なくとも一方である前項1～5のいずれかに記載の金属と炭素繊維との複合材の製造方法。

[0027] [7] 積層状に一体化される複数の絶縁基板構成層を備えた絶縁基板の製造方法であって、

複数の構成層のうち少なくとも一つの構成層は金属と炭素繊維との複合材で形成されており、

前記複合材を前項 1 ～ 6 のいずれかに記載の金属と炭素繊維との複合材の製造方法により製造する、絶縁基板の製造方法。

発明の効果

[0028] 本発明は以下の効果を奏する。

[0029] 前項 [1] では、金属箔の表面に塗工液を塗工すること、塗工箔が複数積層された状態の積層体を形成すること、及び、積層体を加圧加熱することで塗工箔を接合一体化することを採用することにより、金属と炭素繊維との複合材を安価に且つ大量に製造することができる。

[0030] さらに、積層体からバインダーを除去することにより、得られる複合材の熱伝導率を確実に高めることができる。

[0031] さらに、塗工液を金属箔の表面に塗工するための塗工装置がグラビア塗工装置であり、グラビア塗工装置のグラビアロールのセルの形状がカップ状であり、更に、セルの口形状に内接する円の直径が炭素繊維の平均繊維長に対して 1. 2 倍以上に設定されているにより、金属箔の表面内における炭素繊維の繊維方向がランダムになるように炭素繊維層を金属箔の表面上に形成することができる。そのため、複合材の平面方向の物性の均一化を図ることができる。しかも、積層体を形成する際に炭素繊維の繊維方向を考慮する必要がなく、これにより複合材の平面方向の物性の均一化を容易に図ることができる。

[0032] 前項 [2] では、炭素繊維層から溶剤を除去することにより、塗工箔を接合一体化する工程において塗工箔を良好に接合一体化することができる。

[0033] 前項 [3] では、炭素繊維層の表面に摺り均し（すりならし）処理を施さないことにより、炭素繊維層中の炭素繊維の繊維方向をランダムな状態に確実に維持することができる。これにより、複合材の平面方向の物性の均一化を確実に図ることができる。

[0034] 前項 [4] では、積層体の温度が塗工箔を接合一体化する温度まで上昇す

るように積層体を加熱する途中で積層体からバインダーを除去することにより、複合材の製造を容易に行うことができる。

[0035] 前項〔5〕では、セルの形状が、格子型、ピラミッド型、亀甲型及び円型からなる群より選択される少なくとも一つであることにより、金属箔の表面内における炭素繊維の繊維方向が確実にランダムになるように炭素繊維層を金属箔の表面上に形成することができる。これにより、複合材の平面方向の物性の均一化を確実に図ることができる。

[0036] 前項〔6〕では、金属箔がアルミニウム箔及び銅箔のうち少なくとも一方であることにより、高い熱伝導率を有する複合材を確実に得ることができる。

[0037] 前項〔7〕では、冷熱サイクル等の温度変化に対して高い信頼性を有する絶縁基板を製造できる。

図面の簡単な説明

[0038] [図1]図1は、本発明の一実施形態に係る金属と炭素繊維との複合材の製造方法を示す流れ図である。

[図2]図2は、塗工箔を得る工程を説明する概略図である。

[図3A]図3Aは、グラビアロールの周面における格子型セルの配列状態を示す平面図である。

[図3B]図3Bは、図3Aの格子型セルの形状を示す斜視図である。

[図4A]図4Aは、グラビアロールの周面におけるピラミッド型セルの配列状態を示す平面図である。

[図4B]図4Bは、図4Aのピラミッド型セルの形状を示す斜視図である。

[図5A]図5Aは、グラビアロールの周面における亀甲型セルの配列状態を示す平面図である。

[図5B]図5Bは、図5Aの亀甲型セルの形状を示す斜視図である。

[図6A]図6Aは、グラビアロールの周面における円型セルの配列状態を示す平面図である。

[図6B]図6Bは、図6Aの円型セルの形状を示す斜視図である。

[図7A]図 7 A は、セルの底面が平坦状である場合のセルの側面図である。

[図7B]図 7 B は、セルの底面が凹曲面状である場合のセルの側面図である。

[図7C]図 7 C は、セルの底面が凹錐面状である場合のセルの側面図である。

[図8]図 8 は、セルの内周側面に連絡口が設けられている場合のセルの斜視図である。

[図9]図 9 は、塗工箔の条材を切断するときの概略図である。

[図10]図 1 0 は、塗工箔が複数積層されて形成された積層体の概略側面図である。

[図11]図 1 1 は、塗工箔を焼結一体化する工程を説明する概略図である。

[図12]図 1 2 は、塗工箔を焼結一体化する工程において積層体を加熱するときの温度曲線の一例を示す図（グラフ）である。

[図13]図 1 3 は、塗工箔が焼結一体化されて得られた本実施形態の複合材の概略側面図である。

[図14]図 1 4 は、本実施形態の複合材で定義された様々な方向を示す複合材の斜視図である。

[図15]図 1 5 は、絶縁基板の側面図である。

発明を実施するための形態

[0039] 次に、本発明の一実施形態について図面を参照して以下に説明する。

[0040] 本発明の一実施形態に係る金属と炭素繊維との複合材（複合体）の製造方法は、図 1 に示すように、塗工箔を得る工程 S 1 と、積層体を形成する工程 S 2 と、塗工箔を焼結一体化する工程 S 3 とを含んでおり、この記載の順にこれらの工程が行われる。

[0041] 塗工箔を得る工程 S 1 は、図 2 に示すように詳述すると塗工箔 1 2 の帯状条材 1 2 A（即ち帯状の長尺な塗工箔 1 2）を得る工程である。すなわちこの工程 S 1 は、塗工液 5 を金属箔 1 0 の帯状条材 1 0 A の表面 1 0 a に塗工することにより、金属箔 1 0 の条材 1 0 A の表面 1 0 a 上に塗工液 5 からなる炭素繊維層 1 1 が形成されてなる塗工箔 1 2 の条材 1 2 A を得る工程である。塗工液 5 は、炭素繊維 1 とバインダー 2 とバインダー 2 用溶剤 3 とを混

合状態に含有したものである。

- [0042] さらに、塗工箔 12 を得る工程 S 1 は、金属箔 10 の条材 10 A の表面 10 a 上に形成された炭素繊維層 11 から溶剤 3 を除去する工程 S 1 a を含んでいる（図 1 参照）。
- [0043] 積層体 15 を形成する工程 S 2 は、図 10 に示すように、塗工箔 12 が複数積層された状態の積層体 15 を形成する工程である。
- [0044] 塗工箔 12 を焼結一体化する工程 S 3 は、図 11 に示すように、積層体 15 を塗工箔 12 の積層方向（即ち積層体 15 の厚さ方向）に加圧しながら加熱することにより塗工箔 12 を焼結一体化する工程である。この工程 S 3 は、積層体 15 を加熱することにより積層体 15 からバインダー 2 を除去する工程 S 3 a を含んでいる（図 1 参照）。
- [0045] なお、塗工箔 12 を焼結一体化する工程 S 3 は、特許請求の範囲に記載された、塗工箔 12 を接合一体化する工程についての望ましい一例に相当している。
- [0046] 本実施形態に係る金属と炭素繊維との複合材 17 とは、マトリックスとして金属が用いられており且つ当該金属（マトリックス）と複合化される材料として炭素繊維 1 を含有しているものを意味する。すなわちこの複合材 17 は、炭素繊維 1 を含有する金属基複合材として捉えることができる。
- [0047] 本実施形態で得られる複合材 17 は、図 13 に示すように、金属箔 10 で形成された金属層と多数の炭素繊維 1 を主体とする炭素繊維層 11 とが交互に複数積層された状態で焼結一体化されたものである。炭素繊維層 11 内には金属箔 10 の金属の一部が浸透している。そしてこの複合材 17 では、金属がマトリックスに相当し、炭素繊維 1 が金属（マトリックス）と複合化される材料に相当している。
- [0048] この複合材 17 は、図 15 に示した絶縁基板 50 を構成する複数の絶縁基板構成層 51 ～55 のうち少なくとも一つの構成層の材料として好適に使用可能である。
- [0049] 絶縁基板 50 は、例えば、パワーモジュール用基板等の電子モジュール用

基板として用いられる。そして、絶縁基板 50 は、複数の構成層として、配線層 51 と、第 1 応力緩衝層 52 と、セラミック層（絶縁層） 53 と、第 2 応力緩衝層 54 と、金属冷却層 55 とを備えるとともに、上から下へ順に、配線層 51、第 1 応力緩衝層 52、セラミック層 53、第 2 応力緩衝層 54 及び冷却層 55 が積層された状態でろう付け等の所定の接合手段によりこれらの構成層 51 ～ 55 が接合一体化されている。

[0050] 絶縁基板 50 の搭載面 50a には電子素子等の発熱性素子 56（二点鎖線で示す）がはんだ付け等により接合されて搭載される。搭載面 50a は配線層 51 の上面からなる。

[0051] 冷却層 55 は、発熱性素子 56 を冷却するための層であり、例えば冷却部材（放熱部材を含む）であり複数の放熱フィン 55a を有している。一般に冷却層 55 はアルミニウム又は銅製である。

[0052] 本実施形態の複合材 17 は、その平面方向の線膨張係数を金属の線膨張係数とセラミックの線膨張係数との中間値に設定することができる。そのため、絶縁基板 50 において、これらの構成層 51 ～ 55 のうち特に第 1 及び第 2 応力緩衝層 52、54 の少なくとも一方が本実施形態の複合材 17 で形成されることが望ましい。

[0053] また、本実施形態の複合材 17 は、炭素繊維 1 で強化された金属基複合材料として捉えることができ、高いヤング率を有している。したがって、高い機械的強度を要求される部材の材料としても好適に使用可能である。

[0054] 次に、各工程について以下に詳細に説明する。

[0055] <塗工箔 12 を得る工程 S1>

本工程 S1 で使用される塗工液 5 は例えば次のようにして得られる。図 2 に示すように、多数の炭素繊維 1 とバインダー 2 とバインダー 2 用溶剤 3 とを混合容器 41 内に入れてこれらを攪拌混合装置 42 により攪拌混合する。これにより、炭素繊維 1 とバインダー 2 と溶剤 3 とを混合状態に含有した塗工液 5 が得られる。このとき、分散剤、消泡剤、表面調整剤、粘度調整剤なども必要に応じて混合容器 41 内に入れて攪拌混合しても良い。

- [0056] 攪拌混合装置 4 2 は限定されるものではなく、攪拌羽根付き攪拌器、プラネタリーミキサー、ホモディスパー、ビーズミルなどを使用可能である。
- [0057] 炭素繊維 1、バインダー 2 及び溶剤 3 についての具体的な説明は後述する。
- [0058] 塗工液 5 を塗工するための塗工装置としてはグラビア塗工装置（例：グラビアコーター） 2 0 が用いられている。
- [0059] グラビア塗工装置 2 0 は、詳述するとダイレクトグラビア塗工装置（例：ダイレクトグラビアコーター）であり、グラビアロール 2 1、バックアップロール 2 3、グラビアロール 2 1 の周面 2 1 a に塗工液 5 を付着させる塗工液付着手段 2 5 などを備えている。グラビアロール 2 1 の周面 2 1 a にはその全体に亘って多数のセル（凹部） 2 2 が整然と配列して設けられている（図 3 A、4 A、5 A 及び 6 A 参照）。隣り合うセル 2 2 間には隔壁部 2 1 b が形成されており、この隔壁部 2 1 b によって各セル 2 2 が仕切られている。バックアップロール 2 3 は、グラビアロール 2 1 に対向して配置されている。
- [0060] 塗工液付着手段 2 5 は、本実施形態では塗工液 5 を収容した塗工液パン 2 6 を備えたものであり、グラビアロール 2 1 の周面 2 1 a の周方向の一部がパン 2 6 内の塗工液 5 に漬けられた状態でグラビアロール 2 1 がその中心軸を中心に回転することにより、グラビアロール 2 1 の周面 2 1 a に塗工液 5 が付着されるように構成されている。パン 2 6 内の塗工液 5 中の炭素繊維 1 はその繊維方向がランダムになるように塗工液 5 中に分散している。
- [0061] 図 2 に示したグラビア塗工装置 2 0 では、巻出しロール 2 7 a から巻き出された金属箔 1 0 の条材 1 0 A は、グラビアロール 2 1 とバックアップロール 2 3 との間と、乾燥装置としての乾燥炉 2 8 内とを所定の送り速度で略水平方向に順次通過したのち巻取りロール 2 7 b に巻き取られる。
- [0062] 金属箔 1 0 の条材 1 0 A の送り方向 F は金属箔 1 0 の条材 1 0 A の長手方向に設定されており、この送り方向 F に平行な方向がグラビア塗工装置 2 0（詳述するとグラビア塗工装置 2 0 のグラビアロール 2 1）による金属箔 1

0の条材10Aの表面10aへの塗工液5の塗工方向となる。

[0063] 本実施形態では、グラビアロール21は金属箔10の条材10Aの下側に金属箔10の条材10Aをその幅方向の全体に亘って横断する態様にして配置されており、バックアップロール23は金属箔10の条材10Aの上側に金属箔10の条材10Aをその幅方向の全体に亘って横断する態様にして配置されている。したがって、塗工液5が塗工される金属箔10の条材10Aの表面10aとは、詳述すると金属箔10の条材10Aの下表面である。

[0064] なお本発明では、塗工液5が塗工される金属箔10の条材10Aの表面10aは、金属箔10の条材10Aの下表面であることに限定されるものではなく、その他に例えば金属箔10の条材10Aの上表面であっても良く、また金属箔10の条材10Aの上下両表面であっても良い。

[0065] 塗工液5の塗工は、金属箔10の条材10Aがグラビアロール21とバックアップロール23との間を通過する際に行われる。すなわち、グラビアロール21が回転することにより、グラビアロール21の周面21aにパン26内の塗工液5が付着して各セル22内に塗工液5が入る。そして、グラビアロール21の周面21aに付着した余分な塗工液5がドクターブレード（スクレーパ）24により掻き取られ、その後、グラビアロール21の周面21aが金属箔10の条材10Aの表面10aに当接することにより、セル22内の塗工液5が金属箔10の条材10Aの表面10aに転移される。その結果、金属箔10の条材10Aの表面10a上にその全体に亘って、転移した塗工液5からなる炭素繊維層11が形成される。これにより、金属箔10の条材10Aの表面10a上に炭素繊維層11が形成されてなる塗工箔12の条材12Aが得られる。

[0066] グラビアロール21の回転方向は、通常、金属箔10の条材10Aの送り方向Fと同じ方向に設定される。グラビアロール21の周速度は、通常、金属箔10の条材10Aの送り速度と等しく設定される。

[0067] 乾燥炉28は、金属箔10の条材10Aの表面10a上に形成された炭素繊維層11（即ち塗工箔12の条材12Aの炭素繊維層11）を加熱乾燥す

ることにより炭素繊維層 11 に含まれている溶剤 3 を炭素繊維層 11 から蒸発させて除去するためのものである。

[0068] グラビア塗工装置 20 のグラビアロール 21 において、セル 22 の形状はカップ状であり、特に、セル 22 の周囲が全周に亘って略閉鎖された形状であることが望ましい。

[0069] 具体的にはセル 22 の形状は、格子型 22A（図 3A 及び 3B を見よ）、ピラミッド型 22B（図 4A 及び 4B を見よ）、亀甲型 22C（図 5A 及び 5B を見よ）及び円型 22D（図 6A 及び 6B を見よ）からなる群より選択される少なくとも一つであることが望ましい。

[0070] 格子型セル 22A は、図 3A 及び 3B に示すように四角錐台状に凹んで形成されている。

[0071] ピラミッド型セル 22B は、図 4A 及び 4B に示すように四角錐状に凹んで形成されている。

[0072] 亀甲型セル 22C、は図 5A 及び 5B に示すように六角錐台状に凹んで形成されている。

[0073] 円型セル 22D は、図 6A 及び 6B に示すように円錐台状に凹んで形成されている。

[0074] さらに、セル 22（例：格子型、ピラミッド型、亀甲型、円型）の底面 22b の形状は限定されるものではなく、例えば、図 7A に示すように平坦状であっても良いし、図 7B に示すように凹曲面状（例：凹球面状）であっても良いし、図 7C に示すように凹錐面状（例：凹角錐面状、凹円錐面状）であっても良いし、更に、これらの形状のうち少なくとも二つが組み合わされた形状であっても良い。

[0075] さらに本実施形態では、セル 22 は、セル 22 の周囲が全周に亘って完全に閉鎖された形状であることが望ましいが、これに限定されるものではなく、図 8 に示すように、セル 22 の内周側面 22a の一部に、セル 22 内の塗工液 5 の一部が隣りのセル 22 内へ流れうるようにするための小さな連絡口 22c が形成された形状であっても良い。

[0076] セル 2 2 の大きさは、セル 2 2 内に平均繊維長の炭素繊維 1 がセル 2 2 の開口面と略平行な状態で入るのに十分な大きさであり、且つ、セル 2 2 内に入った平均繊維長の炭素繊維 1 がセル 2 2 内でセル 2 2 の内周方向に 360° 回転可能な大きさであることが望ましい。具体的には、セル 2 2 の口形状に内接する円 N（詳述するとセル 2 2 の開口周縁 2 2 d に内接する円 N）の直径 W が炭素繊維 1 の平均繊維長に対して 1.2 倍以上に設定されていることが望ましい。

[0077] なお、図 3 A、4 A 及び 5 A ではセル 2 2 の口形状に内接する円 N は二点鎖線で示されており、図 6 A ではセル 2 2 の口形状に内接する円 N はセル 2 2 の開口周縁 2 2 d と一致する。

[0078] このように、セル 2 2 の形状がカップ状であり、且つ、セル 2 2 の口形状に内接する円 N の直径 W が炭素繊維 1 の平均繊維長に対して 1.2 倍以上に設定されることにより、グラビアロール 2 1 の周面 2 1 a にパン 2 6 内の塗工液 5 が付着した時（即ちグラビアロール 2 1 の周面 2 1 a がパン 2 6 内の塗工液 5 に浸けられた時）、塗工液 5 中の炭素繊維 1 の繊維方向がセル 2 2 の内周方向にランダムになるように塗工液 5 がセル 2 2 内に入る。セル 2 2 内に入った塗工液 5 中の炭素繊維 1 はセル 2 2 の内周方向に回転可能である。そして、この状態でセル 2 2 内の塗工液 5 がグラビアロール 2 1 の回転に伴い金属箔 1 0 の条材 1 0 A の表面 1 0 a に転移される。その結果、金属箔 1 0 の条材 1 0 A の表面 1 0 a 内における炭素繊維 1 の繊維方向がランダムになるように炭素繊維層 1 1 が金属箔 1 0 の条材 1 0 A の表面 1 0 a 上に形成される。

[0079] 一方、もしセル 2 2 の形状がカップ状ではなくセル 2 2 の形状としてよく知られている斜線型（図示せず）である場合では、グラビアロール 2 1 の周面 2 1 a にパン 2 6 内の塗工液 5 が付着した時、塗工液 5 中の炭素繊維 1 の繊維方向がセル 2 2 の斜線方向に沿って一方向に揃うように塗工液 5 がセル 2 2 内に入り易い。そして、この状態でセル 2 2 内の塗工液 5 がグラビアロール 2 1 の回転に伴い金属箔 1 0 の条材 1 0 A の表面 1 0 a に転移される。

その結果、金属箔 10 の条材 10 A の表面 10 a 内における炭素繊維 1 の繊維方向がランダムにならず一方向に揃い易い。よって、セル 22 の形状は斜線型ではなくカップ状でなければならない。

[0080] セル 22 の口形状に内接する円 N の直径 W の上限については限定されるものではなく、例えば $2500\mu\text{m}$ である。

[0081] セル 22 の開口周縁 22 d の形状が正形状（例：格子型 22 A、ピラミッド型 22 B）である場合は、セル 22 の口形状に内接する円 N の直径 W は、セル 22 の形状が亀甲型 22 C や円型 22 D である場合よりも大きい方が望ましく、特に炭素繊維 1 の平均繊維長に対して 1.5 倍以上であることが非常に望ましい。

[0082] グラビアロール 21 により金属箔 10 の条材 10 A の表面 10 a 上に炭素繊維層 11 を形成した後であって且つ金属箔 10 の条材 10 A（塗工箔 12 の条材 12 A）が乾燥炉 28 内に入る前（即ち炭素繊維層 11 から溶剤 3 を除去する工程 S1 a の前）においては、炭素繊維層 11 の表面に当該表面を平坦にするための摺り均し（すりならし）処理を施さないようにすることが望ましい。

[0083] 摺り均し処理とは、炭素繊維層 11 の表面に摺り均し部材（例：摺り均し板）の端縁辺部を金属箔 10 の条材 10 A の送り方向 F に対して交差する方向（例：直角方向）に当てた状態にして金属箔 10 の条材 10 A を摺り均し部材に対して相対的に送り方向 F に送ることにより、炭素繊維層 11 の表面を摺り均し部材の端縁辺部で摺って炭素繊維層 11 の表面を平坦に均す処理である。

[0084] この摺り均し処理を炭素繊維層 11 の表面に施した場合、炭素繊維層 11 中の炭素繊維 1 の繊維方向が摺り均し部材の端縁辺部に沿う方向に揃う傾向がある。したがって、炭素繊維層 11 の表面に摺り均し処理をなるべく施さないことが望ましい。炭素繊維層 11 の表面に摺り均し処理を施さない場合は、金属箔 10 の条材 10 A の表面 10 a 内における炭素繊維層 11 中の炭素繊維 1 の繊維方向をランダムな状態に確実に維持することができる。これ

により、複合材 17 の平面方向の物性の均一化を確実に図ることができる。

[0085] 炭素繊維 1 は繊維状の炭素粒子であれば使用可能であり、具体的には例えば、PAN系炭素繊維、ピッチ系炭素繊維及びカーボンナノファイバー（例：気相成長カーボンファイバー、カーボンナノチューブ）からなる群より選択される 1 種の炭素繊維か又は 2 種以上の混合炭素繊維が用いられる。

[0086] PAN系炭素繊維及びピッチ系炭素繊維のうち特にピッチ系炭素繊維を用いることが望ましい。その理由は、ピッチ系炭素繊維の繊維方向の熱伝導率がPAN系炭素繊維のそれよりも大きく、そのためより高い熱伝導率を有する複合材 17 を得られるからである。

[0087] 炭素繊維 1 の長さは限定されるものではなく、特に炭素繊維 1 の平均繊維長が 1 mm 以下であることが望ましい。その理由は、金属箔 10 の条材 10A の表面 10a 内における炭素繊維 1 の繊維方向が確実にランダムになるように炭素繊維層 11 を金属箔 10 の条材 10A の表面 10a 上に形成できるからである。これにより、複合材 17 の平面方向の物性の均一化を更に確実に図ることができる。

[0088] 炭素繊維 1 の長さの下限は限定されるものではなく、通常、炭素繊維 1 の平均繊維長の下限は 10 μ m である。

[0089] 炭素繊維 1 の繊維直径は限定されるものではなく、炭素繊維 1 の平均繊維直径は例えば 0.1 nm $\sim$ 20 μ m である。炭素繊維 1 がPAN系炭素繊維やピッチ系炭素繊維である場合は、炭素繊維 1 は例えばチョップドファイバーやミルドファイバーであってその平均繊維直径は例えば 5 μ m $\sim$ 15 μ m である。炭素繊維 1 が気相成長カーボンナノファイバーである場合は、炭素繊維 1 の平均繊維直径は例えば 0.1 nm $\sim$ 20 μ m である。

[0090] バインダー 2 は、炭素繊維 1 に金属箔 10 の条材 10A の表面 10a への付着力を付与し、これにより炭素繊維層 11 中の炭素繊維 1 が金属箔 10 の条材 10A の表面 10a から脱落するのを抑制するためのものであり、通常、樹脂からなる。

[0091] さらに、バインダー 2 は、加熱すると有機物の焼結残渣又はアモルファス

炭化物になり易く、これらはバインダー 2 の残渣として複合材 17 の熱伝導率を低下させる要因になる。したがって、バインダー 2 は、非酸化雰囲気中にて 200℃～450℃の温度で炭化せずに昇華又は分解などにより消失するものを用いることが望ましい。そのようなバインダー 2 として、アクリル系樹脂、ポリエチレングリコール系樹脂、ブチレンゴム樹脂、フェノール樹脂、セルロース系樹脂などが好適に使用される。これらのバインダー 2 は一般に常温で固形である。

[0092] 溶剤 3 は、バインダー 2 を常温で溶解するものであることが望ましく、水、アルコール系溶剤、炭化水素系溶剤、エステル系溶剤、エーテル系溶剤などが好適に使用される。

[0093] 塗工液 5 は、炭素繊維 1 とバインダー 2 を質量比で 75 : 25～99.5 : 0.5 の割合で含有していることが望ましい。この場合には、塗工箔 12 を得る工程 S1 において炭素繊維 1 を金属箔 10 の条材 10A の表面 10a に確実に付着させることができるし、バインダー 2 を除去する工程 S3a においてバインダー 2 を確実に消失除去することができる。特に望ましくは、塗工液 5 は炭素繊維 1 とバインダー 2 を質量比で 80 : 20～99 : 1 の割合で含有していることが良い。

[0094] 塗工箔 12 を得る工程 S1 では、炭素繊維層 11 に含まれる炭素繊維 1 の塗工量が 40 g/m² 以下になるように塗工液 5 を金属箔 10 の条材 10A の表面 10a に塗工することが望ましい。その理由は次のとおりである。

[0095] すなわち、炭素繊維層 11 に含まれる炭素繊維 1 の塗工量が 40 g/m² 以下になるように塗工液 5 を金属箔 10 の条材 10A の表面 10a に塗工する場合には、塗工箔 12 を焼結一体化する工程 S3 において金属箔 10 の金属が炭素繊維層 11 内の空隙の略全部に十分に浸透するとともに炭素繊維層 11 を挟んだ両側に配置された両金属箔 10、10 同士が十分に焼結される。これにより、複合材 17 の強度（機械的強度等）を確実に高めることができる。さらに、複合材 17 の製造時間を短縮化するため、炭素繊維層 11 に含まれる炭素繊維 1 の塗工量は 30 g/m² 以下であることが特に望ましい。

- [0096] また、得られる複合材 17 において炭素繊維 1 の体積が複合材 17 全体の体積に対して 50%未満になるように、塗工液 5 を金属箔 10 の条材 10A の表面 10a に塗工することが望ましく、これにより、塗工箔 12 を焼結一体化する工程 S3 において金属箔 10 の金属を炭素繊維層 11 内に確実に浸透させることができ、塗工箔 12 を確実に強固に焼結一体化することができる。
- [0097] ここで、複合材 17 が図 15 に示した絶縁基板 50 の第 1 応力緩衝層 52 の材料として用いられる場合には、複合材 17 の平面方向の線膨張係数が絶縁基板 50 のセラミック層 53 の線膨張係数と配線層 51 の線膨張係数との中間値になるように金属箔 10 の体積と炭素繊維 1 の体積との比率を設定することが望ましい。
- [0098] また、複合材 17 が絶縁基板 50 の第 2 応力緩衝層 54 の材料として用いられる場合には、複合材 17 の平面方向の線膨張係数が絶縁基板 50 のセラミック層 53 の線膨張係数と冷却層 55 の線膨張係数との中間値になるように金属箔 10 の体積と炭素繊維 1 の体積との比率を設定することが望ましい。
- [0099] 金属箔 10 が例えばアルミニウム箔である場合には、特に、複合材 17 の平面方向の線膨張係数を、セラミック層 53 の材料としてよく使用されるセラミック（窒化アルミ、アルミナ、炭化ケイ素等）の線膨張係数（例：約 $3 \times 10^{-6} / \text{K} \sim 5 \times 10^{-6} / \text{K}$ ）と冷却層 55 の材料としてよく使用されるアルミニウムの線膨張係数（約 $23 \times 10^{-6} / \text{K}$ ）との中間値（約 $10 \times 10^{-6} / \text{K} \sim 16 \times 10^{-6} / \text{K}$ ）にするためには、炭素繊維 1 の体積を複合材 17 全体の体積に対して 10%以上 50%未満に設定することが望ましい。
- [0100] 金属箔 10（金属箔 10 の条材 10A）は、塗工に耐えうるものであればその材料に限定されるものではない。特に、金属箔 10 はアルミニウム箔及び銅箔のうち少なくとも一方であることが望ましい。その理由は、高い熱伝導率を有する複合材 17 を確実に得られるからである。

- [0101] 金属箔10がアルミニウム箔である場合において、アルミニウム箔の材料は限定されるものではなく、A1000系、A3000系、A6000系等が用いられる。一般に、アルミニウム箔の材料は、得られる複合材17の物性（熱伝導率、線膨張係数など）が所望する設定値になるように複数種のアルミニウム材料の中から適宜選択される。
- [0102] 金属箔10が銅箔である場合において、銅箔の種類及び材料は限定されるものではなく、電解銅箔、圧延銅箔などが用いられる。一般に、銅箔の材料は、得られる複合材17の物性が所望する設定値になるように複数種の銅材料の中から適宜選択される。
- [0103] 金属箔10の厚さは限定されるものではなく、得られる複合材17の物性が所望する設定値になるように金属箔10の厚さを選択可能である。
- [0104] ここで、市販されている金属箔（アルミニウム箔、銅箔）10の最薄の厚さは6 μm であることから、金属箔10の厚さの下限は6 μm であることが金属箔10を容易に入手可能である点で特に望ましい。金属箔10の厚さの上限は通常100 μm であり、特に概ね50 μm であることが望ましい。
- [0105] 金属箔10の幅は限定されるものではなく、複合材17の用途などに応じて設定され、例えば10 mm～1200 mmに設定される。
- [0106] 溶剤3を除去する工程S1aは、図2に示すように、塗工箔12の条材12Aが乾燥炉28を通過することにより行われる。すなわち、塗工箔12の条材12Aが乾燥炉28を通過した時に炭素繊維層11が乾燥炉28により加熱されて乾燥され、これにより炭素繊維層11に含まれている溶剤3が炭素繊維層11から蒸発除去される。その後、塗工箔12の条材12Aは巻取りロール27bに巻き取られる。
- [0107] 乾燥炉28による溶剤3の除去条件は、炭素繊維層11に含まれている溶剤3を炭素繊維層11から蒸発除去可能な条件であれば限定されるものではなく、通常、乾燥温度60℃～250℃及び乾燥時間1 min～120 minの乾燥条件を溶剤3の除去条件として適用可能である。
- [0108] さらに、溶剤3を除去した後では炭素繊維層11内に大きな空隙が生じて

いることもあるので、押圧ロール（図示せず）で炭素繊維層 11 をその厚さ方向に押圧して炭素繊維層 11 のかさ密度を高めることも可能である。

[0109] <積層体 15 を形成する工程 S2>

積層体 15 を形成する工程では、図 9 に示すように、巻取りロール 27b から巻き解かれた塗工箔 12 の条材 12A を切断機 29 により所定形状に切断する。これにより、塗工箔 12 の条材 12A から所定形状（例：略四角形状）の塗工箔 12 を複数切り出す。そして、図 10 に示すように、塗工箔 12 を複数積層することにより、塗工箔 12 が複数積層された状態の積層体 15 を形成する。あるいは、図示していないが巻取りロール 27b から巻き解かれた塗工箔 12 の条材 12A をロール状に巻くことにより、塗工箔 12 が複数積層された状態の積層体 15 を形成しても良い。

[0110] こうして形成された積層体 15 はプリフォーム（焼結素材）として用いられる。

[0111] 塗工箔 12 の積層枚数は限定されるものではなく、所望する複合材 17 の厚さなどに応じて設定され、例えば 5 ～ 1000 枚に設定される。

[0112] <塗工箔 12 を焼結一体化する工程 S3>

塗工箔 12 を焼結一体化する工程 S3 では、図 11 に示すように、加圧加熱焼結装置などの焼結装置（接合装置）30 の焼結室 31 内に積層体 15 を配置し、そして焼結装置 30 によって所定の焼結雰囲気中にて積層体 15 を塗工箔 12 の積層方向（即ち積層体 15 の厚さ方向）に加圧しながら所定の焼結温度で加熱することにより積層体 15 を焼結し即ち塗工箔 12 を焼結一体化する。これにより、図 13 に示すように本実施形態の複合材 17 が得られる。

[0113] この工程 S3 では、積層体 15 が加圧加熱されることにより、炭素繊維層 11 がその厚さ方向に圧縮されて金属箔 10 の金属の一部が炭素繊維層 11 内に浸透して炭素繊維層 11 内に存在する微細な空隙（例：炭素繊維層 11 中の炭素繊維 1 間の隙間）に充填されて、当該空隙が略消滅する。これにより、得られる複合材 17 の密度を複合材 17 の理論密度の 95% 以上にする

ことができる。

- [0114] なお、複合材 17 の理論密度とは、複合材 17 が金属箔 10 の金属と炭素繊維 1 とだけで形成されており且つ複合材 17 の内部に空隙が全く存在しない場合における複合材 17 の密度を意味する。
- [0115] 焼結装置 30 としては、ホットプレス装置（例：真空ホットプレス装置）、放電プラズマ焼結装置などが好適に用いられる。
- [0116] 積層体 15 への加圧は、例えば、焼結装置 30 に備えられた一对のパンチ 32、32 で積層体 15 を挟んで加圧することにより行われる。
- [0117] 焼結雰囲気は非酸化雰囲気であることが望ましい。非酸化雰囲気は、不活性ガス雰囲気（例：窒素ガス雰囲気、アルゴンガス雰囲気）、真空雰囲気などを含む。
- [0118] 焼結温度とは、塗工箔 12 を焼結一体化（接合一体化）する温度を意味する。具体的には焼結温度は、金属箔 10 の金属の融点以下の温度に設定され、特に、金属箔 10 の金属の融点と当該融点よりも 50℃程度低い温度との間の温度に設定されることが塗工箔 12 を確実に良好に焼結一体化できる点で望ましい。金属箔 10 が例えばアルミニウム箔である場合、焼結温度は 550℃～620℃の範囲に設定されることが望ましい。
- [0119] 積層体 15 への加圧力は限定されるものではなく、積層体 15 を軽く押圧する程度の加圧力でも良い。さらに、積層体 15 への加熱時に積層体 15 を加圧すると金属箔 10 の金属の流動性が向上することがあるので、積層体 15 への加圧により金属箔 10 の金属が積層体 15 から流れ出ない程度の加圧力で加圧するか、あるいは金属箔 10 の金属が積層体 15 から流れ出ないように金型（図示せず）内で積層体 15 を加圧することが特に望ましい。
- [0120] もし塗工箔 12 間に空隙が残った状態で塗工箔 12 が焼結一体化されると、当該空隙の部分が複合材 17 の内部欠陥になる。そこで、この欠陥の発生を抑制するため、積層体 15 を焼結雰囲気として真空雰囲気中にて加圧すること又は／及び積層体 15 を金型内にて加圧することが望ましい。
- [0121] 本実施形態では、バインダー 2 を除去する工程 S3a は、焼結装置 30 に

より塗工箔 1 2 を焼結一体化する工程 S 3 における積層体 1 5 を初期温度としての約室温から焼結温度まで加熱する途中で焼結装置 3 0 により行われる。この場合におけるバインダー 2 の除去工程 S 3 a を以下に説明する。

[0122] 図 1 2 は、塗工箔 1 2 を焼結一体化する工程 S 3 において積層体 1 5 を加熱する時の温度曲線の一例を示す図（グラフ）である。

[0123] 同図中の $T_1 \sim T_2$ （但し、 $T_1 < T_2$ ）の温度範囲は、積層体 1 5 の塗工箔 1 2 の炭素繊維層 1 1 に含まれているバインダー 2 が昇華又は分解などにより消失する範囲であり、通常 $200^{\circ}\text{C} \sim 450^{\circ}\text{C}$ である。 T_3 は焼結温度であり、 T_2 よりも高い温度である（即ち $T_3 > T_2$ ）。

[0124] 塗工箔 1 2 を焼結一体化する工程 S 3 では、積層体 1 5 の温度が約室温から焼結温度 T_3 まで上昇するように焼結装置 3 0 により積層体 1 5 を加熱する途中における積層体 1 5 の温度が $T_1 \sim T_2$ の範囲内である時に、バインダー 2 が昇華又は分解などにより消失して積層体 1 5（詳述すると積層体 1 5 の塗工箔 1 2 の炭素繊維層 1 1）から除去される。

[0125] 積層体 1 5 の温度が $T_1 \sim T_2$ の温度範囲内である時間 Δt は、バインダー 2 を積層体 1 5 から除去しうる時間であれば限定されるものではなく、焼結装置 3 0 による積層体 1 5 の昇温速度、積層体 1 5 に含まれているバインダー 2 の全量、積層体 1 5 の厚さ（例：塗工箔 1 2 の積層枚数）、焼結雰囲気などに応じて設定されるものであり、通常 10 min 以上に設定される。

[0126] また、積層体 1 5 の温度が $T_1 \sim T_2$ の温度範囲内である時に昇温を一旦停止したり昇温速度を緩やかにしたりすることにより上記時間 Δt を長くし、これによりバインダー 2 の除去を確実に行うようにすることも可能である。

[0127] このように、バインダー 2 を除去する工程 S 3 a を、塗工箔 1 2 を焼結一体化する工程 S 3 における積層体 1 5 を焼結温度 T_3 まで加熱する途中で行うことにより、複合材 1 7 の製造工程数を削減することができて複合材 1 7 の製造を容易に行える。

[0128] なお本発明は、バインダー 2 を除去する工程 S 3 a が、焼結装置 3 0 によ

り塗工箔 12 を焼結一体化（接合一体化）する工程 S3 から独立して行われることを排除するものではない。

[0129] この場合、バインダー 2 を除去する工程 S3a は、積層体 15 を形成する工程 S2 の後であって且つ塗工箔 12 を焼結一体化（接合一体化）する工程 S3 の前に行われることが望ましい。その理由は、積層体 15 の形成時に炭素繊維層 11 中の炭素繊維 1 が金属箔 10 の表面 10a から脱落するのを確実に抑制できるからである。さらにこの場合、バインダー 2 を除去する工程 S3a を行った後であって且つ塗工箔 12 を焼結一体化する工程 S3 を行う前においては、積層体 15 を非酸化雰囲気中に配置しておくこと又は／及び積層体 15 の温度を 300℃以下に設定しておくことが望ましい。その理由は、炭素繊維 1 の酸化消耗を確実に抑制できるし、金属箔 10 がアルミニウム箔である場合においてアルミニウム箔の酸化を確実に抑制できるからである。

[0130] 本実施形態では、上述したように塗工液 5 を金属箔 10 の条材 10A の表面 10a に塗工するための塗工装置がグラビア塗工装置 20 であり、グラビア塗工装置 20 のグラビアロール 21 のセル 22 の形状がカップ状であり、更に、セル 22 の口形状に内接する円 N の直径 W が炭素繊維 1 の平均繊維長に対して 1.2 倍以上に設定されている。これにより、金属箔 10 の条材 10A の表面 10a 内における炭素繊維 1 の繊維方向がランダムになるように炭素繊維層 11 を金属箔 10 の条材 10A の表面 10a 上に形成することができる。そのため、複合材 17 の平面方向の物性（熱伝導率、線膨張係数など）の均一化を図ることができる。

[0131] しかも、積層体 15 を形成する際に炭素繊維 1 の繊維方向を考慮する必要がなく、そのため、複合材 17 の平面方向の物性の均一化を容易に図ることができる。

[0132] ここで、図 14 中の矢印「P」は、グラビア塗工装置 20 による金属箔 10 の条材 10A の表面 10a への塗工液 5 の塗工方向を示している。本実施形態では、複合材 17 の長さ方向 A とは塗工方向 P と平行な方向を意味する

。複合材 17 の幅方向 B とは、複合材 17 の平面内における複合材 17 の長さ方向 A に対して直角方向を意味する。複合材 17 の斜め方向 D とは、複合材 17 の平面内において複合材 17 の長さ方向 A に対して 45° 斜めの方向を意味する。「C」は複合材 17 の厚さ方向であり、この厚さ方向 D は塗工箔 12 の積層方向と一致している。

[0133] 本実施形態の複合材 17 は、図 14 に示すように、複合材 17 の長さ方向 A の物性と、複合材 17 の幅方向 B の物性と、複合材 17 の斜め方向 D の物性とは互いに略等しくなる。よって、図 15 に示した絶縁基板 50 において、絶縁基板 50 を構成する複数の構成層 51 ~ 55 のうち少なくとも一つの構成層を複合材 17 で形成することにより、冷熱サイクル等の温度変化に対して高い信頼性を有する絶縁基板を得ることができ、したがって熱歪みによる絶縁基板 50 の割れや剥離を確実に抑制することができる。

[0134] 一方、もし塗工装置がグラビア塗工装置 20 ではなく、ロールコート装置（例：ロールコーター）、ダイコート装置（例：ダイコーター）又はナイフコート装置（例：ナイフコーター）である場合は、金属箔 10 の条材 10A の表面 10a 内における炭素繊維 1 の繊維方向が一方向に揃い易い。そのため、複合材 17 の平面方向の物性の均一化を図ることが非常に困難である。

[0135] 以上で本発明の一実施形態を説明したが、本発明は上記実施形態に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲内で様々に変更可能である。

[0136] 本発明では、塗工箔を得る工程において塗工液が塗工される金属箔は、上記実施形態で示したような金属箔の条材であることに限定されるものではなく、その他に例えば条材状ではない金属箔（例：予め設定された長さ寸法及び幅寸法を有する略方形状の金属箔）であっても良い。

[0137] さらに本発明では、グラビア塗工装置は、上記実施形態で示したようにダイレクトグラビア塗工装置であることが特に望ましいが、その他に例えばオフセットグラビア塗工装置（例：オフセットグラビアコーター）であっても良い。

実施例

[0138] 次に、本発明の具体的な実施例及び比較例を以下に示す。ただし、本発明は以下に示した実施例に限定されるものではない。

[0139] <実施例 1>

実施例 1 では、アルミニウムと炭素繊維との複合材を次の手順で製造した。

[0140] 平均繊維長 $150\ \mu\text{m}$ 及び平均繊維直径 $10\ \mu\text{m}$ の炭素繊維（日本グラフィトファイバー（株）製：XN-100）と、バインダーとして平均分子量 70 万のポリエチレンオキサイド（明成化学工業（株）製：アルコックス（登録商標）E-45）の 3 質量％水溶液と、溶剤としてイソプロピルアルコールと、水と、分散剤と、表面調整剤とを攪拌混合し、これにより塗工液を得た。塗工液に含まれるバインダーの質量は炭素繊維の質量に対して固形分で 10％であった。また、塗工液の粘度は 25°C で $1000\ \text{mPa}\cdot\text{s}$ であった。

[0141] 厚さ $20\ \mu\text{m}$ 及び幅 $500\ \text{mm}$ のアルミニウム箔（その材質：A1N30）の帯状条材の下表面にその全体に亘って塗工液をグラビアコーター（詳述するとダイレクトグラビアコーター）により塗工速度 $20\ \text{m}/\text{min}$ で塗工し、これにより、アルミニウム箔の条材の下表面上に炭素繊維層が形成されてなる塗工箔の条材を得た。そして、塗工箔の条材を乾燥炉内に通過させることにより炭素繊維層から溶剤を蒸発除去した。炭素繊維層から溶剤を除去した後の炭素繊維層に含まれる炭素繊維の塗工量は $30\ \text{g}/\text{m}^2$ であった。

[0142] グラビアコーターの構成は次のとおりであった。

[0143] グラビアコーターに備えられたグラビアロールの周面のメッシュは #25、セルの形状は格子型、セルの口形状に内接する円の直径は $1000\ \mu\text{m}$ であった。

[0144] 乾燥炉による溶剤の除去条件は、乾燥温度が 180°C 、乾燥時間が $2\ \text{min}$ であった。

[0145] 次いで、塗工箔の条材を正形状（その寸法：縦 $50\ \text{mm}$ × 横 $50\ \text{mm}$ ）

に切断し、これにより塗工箔の条材から正形状の塗工箔を複数切り出した。そして、塗工箔を200枚積層することで積層体を形成した。

[0146] 次いで、加圧加熱焼結装置としての放電プラズマ焼結装置により真空雰囲気中にて積層体を塗工箔の積層方向に加圧しながら所定の焼結温度で加熱することにより積層体を焼結し即ち塗工箔を焼結一体化し、これによりアルミニウムと炭素繊維との複合材を得た。複合材の厚さは4 mmであった。

[0147] この焼結に適用した焼結条件は次のとおりであった。

[0148] 焼結温度は550℃、焼結温度の保持時間（焼結時間）は3 h、室温からの昇温速度は50℃/min、積層体への加圧力は15 MPa、真空度は5 Paであった。

[0149] また、このように塗工箔を焼結一体化した工程において積層体を室温から焼結温度550℃まで加熱する途中で昇温を一旦停止し、積層体からのバインダーの除去を行った。この際に適用したバインダーの除去条件は次のとおりであった。

[0150] バインダーを除去するための積層体の加熱温度は380℃、加熱時間は30 minであった。

[0151] 得られた複合材は、アルミニウム箔から形成されたアルミニウム層と炭素繊維層とが交互に複数積層された状態になっており、更に、炭素繊維層内にアルミニウムが十分に浸透して炭素繊維層内に空隙が殆ど存在しておらず、複合材の密度は複合材の理論密度の99%であった。

[0152] <実施例2>

実施例2では、アルミニウムと炭素繊維との複合材を次の手順で製造した。

[0153] 平均繊維長200 μm及び平均繊維直径10 μmの炭素繊維（三菱樹脂（株）製：K223HM）と、バインダーとしてアクリル系樹脂と、溶剤としてプロピレングリコールエチルエーテルアセレートと、分散剤と、表面調整剤とを攪拌混合し、これにより塗工液を得た。塗工液に含まれるバインダーの質量は炭素繊維の質量に対して固形分で20%であった。また、塗工液の

粘度は 25°C で $700\text{ mPa}\cdot\text{s}$ であった。

[0154] 厚さ $20\text{ }\mu\text{m}$ 及び幅 280 mm のアルミニウム箔（その材質：A1N30）の帯状条材の下表面にその全体に亘って塗工液をグラビアコーターにより塗工速度 $30\text{ m}/\text{min}$ で塗工し、これにより、アルミニウム箔の条材の下表面上に炭素繊維層が形成されてなる塗工箔の条材を得た。そして、塗工箔の条材を乾燥炉内に通過させることにより炭素繊維層から溶剤を蒸発除去した。炭素繊維層から溶剤を除去した後の炭素繊維層に含まれる炭素繊維の塗工量は $20\text{ g}/\text{m}^2$ であった。

[0155] グラビアコーターの構成は次のとおりであった。

[0156] グラビアロールに備えられたグラビアロールの周面のメッシュは#30、セルの形状はピラミッド型、セルの口形状に内接する円の直径は $830\text{ }\mu\text{m}$ であった。

[0157] 乾燥炉による溶剤の除去条件は、乾燥温度が 170°C 、乾燥時間が 1 min であった。

[0158] 次いで、塗工箔の条材を正形状（その寸法：縦 50 mm ×横 50 mm ）に切断し、これにより塗工箔の条材から正形状の塗工箔を複数切り出した。そして、塗工箔を200枚積層することで積層体を形成した。

[0159] 次いで、加圧加熱焼結装置としての真空ホットプレス装置により真空雰囲気中にて積層体を塗工箔の積層方向に加圧しながら所定の焼結温度で加熱することにより積層体を焼結し即ち塗工箔を焼結一体化し、これによりアルミニウムと炭素繊維との複合材を得た。複合材の厚さは 4 mm であった。

[0160] この焼結に適用した焼結条件は次のとおりであった。

[0161] 焼結温度は 600°C 、焼結温度の保持時間（焼結時間）は 6 h 、室温からの昇温速度は $20^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 、積層体への加圧力は 15 MPa 、真空度は $5\times 10^{-1}\text{ Pa}$ であった。

[0162] また、このように塗工箔を焼結一体化した工程において、室温からの昇温速度（ $20^{\circ}\text{C}/\text{min}$ ）が実施例1のそれ（ $50^{\circ}\text{C}/\text{min}$ ）よりも遅く、積層体を室温から焼結温度 600°C まで加熱する途中で昇温を一旦停止しな

くてもバインダーが積層体から除去された。

[0163] 得られた複合材は、アルミニウム箔から形成されたアルミニウム層と炭素繊維層とが交互に複数積層された状態になっており、更に、炭素繊維層内にアルミニウムが十分に浸透して炭素繊維層内に空隙が殆ど存在しておらず、複合材の密度は複合材の理論密度の99%であった。

[0164] <比較例1>

比較例1では、アルミニウムと炭素繊維との複合材を次の手順で製造した。

[0165] 上記実施例1で用いた塗工液と同じ塗工液を準備した。そして、厚さ20 μ m及び幅150mmのアルミニウム箔（その材質：A1N30）の条材の下表面にその全体に亘って塗工液を試験用アプリケーションにより塗工し、これにより、アルミニウム箔の条材の下表面上に炭素繊維層が形成されてなる塗工箔の条材を得た。そして、塗工箔の条材を乾燥炉内に通過させることにより炭素繊維層から溶剤を蒸発除去した。炭素繊維層から溶剤を除去した後の炭素繊維層に含まれる炭素繊維の塗工量は30g/m²であった。

[0166] 乾燥炉による溶剤の除去条件は、乾燥温度が100℃、乾燥時間が30minであった。

[0167] 次いで、塗工箔の条材を正形状（その寸法：縦50mm×横50mm）に切断し、これにより塗工箔の条材から正形状の塗工箔を複数切り出した。そして、塗工箔を塗工方向に向きを全て揃えて200枚積層することで積層体を形成した。

[0168] 次いで、加圧加熱焼結装置としての放電プラズマ焼結装置により真空雰囲気中にて積層体を塗工箔の積層方向に加圧しながら所定の焼結温度で加熱することにより積層体を焼結し即ち塗工箔を焼結一体化し、これによりアルミニウムと炭素繊維との複合材を得た。複合材の厚さは4mmであった。

[0169] この焼結に適用した焼結条件及びバインダーの除去条件は上記実施例1と同じであった。

[0170] 得られた複合材は、アルミニウム箔から形成されたアルミニウム層と炭素

繊維層とが交互に複数積層された状態になっており、更に、炭素繊維層内にアルミニウムが十分に浸透して炭素繊維層内に空隙が殆ど存在しておらず、複合材の密度は複合材の理論密度の99%であった。

[0171] <比較例2>

比較例2では、塗工箔を塗工方向が交互に直角になるように200枚積層することで積層体を形成したこと以外は、上記比較例1と同じ製造工程及び製造条件でアルミニウムと炭素繊維との複合材を得た。

[0172] 得られた複合材は、アルミニウム箔から形成されたアルミニウム層と炭素繊維層とが交互に複数積層された状態になっており、更に、炭素繊維層内にアルミニウムが十分に浸透して炭素繊維層内に空隙が殆ど存在しておらず、複合材の密度は複合材の理論密度の99%であった。

[0173] <物性測定>

上記実施例1、2、比較例1及び2の複合材についてそれぞれ熱伝導率と線膨張係数を測定した。その結果を表1に示した。

[0174] [表1]

	熱伝導率 (W/(m・K))				線膨張係数 ($\times 10^{-6}/K$)				剥がれの有無
	A方向	B方向	C方向	D方向	A方向	B方向	C方向	D方向	
実施例1	280	275	100	279	6	6	22	6	無し
実施例2	248	252	98	250	8	7	23	8	無し
比較例1	324	146	95	138	4	13	22	18	有り
比較例2	276	279	98	215	6	6	22	10	有り

[0175] 表1中の「熱伝導率」及び「線膨張係数」欄において、「A方向」、「B方向」、「C方向」及び「D方向」は、それぞれ、前述の図14に示すように、複合材の長さ方向A、幅方向B、厚さ方向C及び斜め方向Dを意味して

いる。

[0176] 表 1 に示すように、実施例 1 及び 2 の複合材では、A 方向と B 方向と D 方向の熱伝導率は互いに概ね等しく、また A 方向と B 方向と D 方向の線膨張係数も互いに概ね等しかった。したがって、実施例 1 及び 2 の複合材の平面方向の物性（熱伝導率、線膨張係数）は略均一であることを確認し得た。

[0177] 一方、比較例 1 の複合材では、A 方向と B 方向と D 方向の熱伝導率は互いに相異しており、また A 方向と B 方向と D 方向の線膨張係数も互いに相異していた。比較例 2 の複合材では、A 方向と B 方向の熱伝導率は互いに概ね等しいが D 方向の熱伝導率が A 方向及び B 方向の熱伝導率と相異しており、また A 方向と B 方向の線膨張係数は互いに等しいが D 方向の線膨張係数が A 方向及び B 方向の線膨張係数と相異していた。したがって、比較例 1 及び 2 の複合材の平面方向の物性（熱伝導率、線膨張係数）は均一性に乏しいことを確認し得た。

[0178] <冷熱サイクル試験>

上記実施例 1、2、比較例 1 及び 2 の複合材に対してそれぞれ以下の冷熱サイクル試験を行った。

[0179] 上記実施例 1、2、比較例 1 及び 2 の複合材をそれぞれ正形状（その寸法：縦 30 mm × 横 30 mm）に切断し、それぞれの表面に正形状（その寸法：縦 20 mm × 横 20 mm × 厚さ 1.6 mm）の炭化ケイ素板（SiC 板）をはんだ付けにより積層状に接合し、これにより実施例 1、2、比較例 1 及び 2 の接合体を得た。そして、各接合体に対して -40℃～80℃の冷熱サイクル試験を 3000 サイクル繰り返して行った。

[0180] この冷熱サイクル試験の結果では、実施例 1 及び 2 の接合体はその接合界面に剥がれは発生しなかった。したがって、実施例 1 及び 2 の複合材は絶縁基板の構成層の材料として好適に用いることができることを確認し得た。一方、比較例 1 及び 2 の接合体はその接合界面に部分的に剥がれが発生しており更に変形していた。これらの結果を表 1 中の「剥がれの有無」欄に示した。

[0181] 本願は、2015年12月24日付で出願された日本国特許出願の特願2015-251416号の優先権主張を伴うものであり、その開示内容は、そのまま本願の一部を構成するものである。

[0182] ここに用いられた用語及び表現は、説明のために用いられたものであって限定的に解釈するために用いられたものではなく、ここに示され且つ述べられた特徴事項の如何なる均等物をも排除するものではなく、この発明のクレームされた範囲内における各種変形をも許容するものであると認識されなければならない。

[0183] 本発明は、多くの異なった形態で具現化され得るものであるが、この開示は本発明の原理の実施例を提供するものと見なされるべきであって、それら実施例は、本発明をここに記載しかつ／または図示した好ましい実施形態に限定することを意図するものではないという了解のもとで、多くの図示実施形態がここに記載されている。

[0184] 本発明の図示実施形態を幾つかここに記載したが、本発明は、ここに記載した各種の好ましい実施形態に限定されるものではなく、この開示に基づいていわゆる当業者によって認識され得る、均等な要素、修正、削除、組み合わせ（例えば、各種実施形態に跨る特徴の組み合わせ）、改良及び／又は変更を有するありとあらゆる実施形態をも包含するものである。クレームの限定事項はそのクレームで用いられた用語に基づいて広く解釈されるべきであり、本明細書あるいは本願のプロセキューション中に記載された実施例に限定されるべきではなく、そのような実施例は非排他的であると解釈されるべきである。例えば、この開示において、「preferably」という用語は非排他的なものであって、「好ましいがこれに限定されるものではない」ということを意味するものである。この開示および本願のプロセキューション中において、ミーンズ・プラス・ファンクションあるいはステップ・プラス・ファンクションの限定事項は、特定クレームの限定事項に関し、a) 「means for」あるいは「step for」と明確に記載されており、かつb) それに対応する機能が明確に記載されており、かつc) その構成を裏付ける構成、材料ある

いは行為が言及されていない、という条件の全てがその限定事項に存在する場合にのみ適用される。この開示および本願のプロセキューション中において、「present invention」または「invention」という用語は、この開示範囲内における 1 または複数の側面に言及するものとして使用されている場合がある。このpresent inventionまたはinventionという用語は、臨界を識別するものとして不適切に解釈されるべきではなく、全ての側面すなわち全ての実施形態に亘って適用するものとして不適切に解釈されるべきではなく（すなわち、本発明は多数の側面および実施形態を有していると理解されなければならない）、本願ないしはクレームの範囲を限定するように不適切に解釈されるべきではない。この開示および本願のプロセキューション中において、「embodiment」という用語は、任意の側面、特徴、プロセスあるいはステップ、それらの任意の組み合わせ、及び／又はそれらの任意の部分等を記載する場合にも用いられる。幾つかの実施例においては、各種実施形態は重複する特徴を含む場合がある。この開示および本願のプロセキューション中において、「e.g.,」、「NB」という略字を用いることがあり、それぞれ「たとえば」、「注意せよ」を意味するものである。

産業上の利用可能性

[0185] 本発明は、金属と炭素繊維との複合材の製造方法、及び、絶縁基板の製造方法に利用可能である。

符号の説明

[0186] 1 : 炭素繊維
2 : バインダー
3 : 溶剤
5 : 塗工液
10 : 金属箔
10A : 金属箔の条材
11 : 炭素繊維層
12 : 塗工箔

- 1 2 A : 塗工箔の条材
- 1 5 : 積層体
- 1 7 : 金属と炭素繊維との複合材
- 2 0 : グラビア塗工装置
- 2 1 : グラビアロール
- 2 2 : セル
- 2 8 : 乾燥炉
- 3 0 : 焼結装置

請求の範囲

- [請求項1] 炭素繊維とバインダーと前記バインダー用溶剤とを混合状態に含有する塗工液を、周面に多数のセルが設けられたグラビアロールを備えたグラビア塗工装置により金属箔の表面に塗工することにより、前記金属箔の表面上に炭素繊維層が形成された塗工箔を得る工程と、
前記塗工箔が複数積層された状態の積層体を形成する工程と、
前記積層体を加熱することにより前記積層体から前記バインダーを除去し、そして前記前記積層体を前記塗工箔の積層方向に加圧しながら加熱することにより前記塗工箔を接合一体化する工程と、を具備し、
前記グラビアロールの前記セルの形状がカップ状であり、且つ、前記セルの口形状に内接する円の直径が前記炭素繊維の平均繊維長に対して1.2倍以上に設定されている、金属と炭素繊維との複合材の製造方法。
- [請求項2] 前記塗工箔を得る工程は、前記金属箔の表面上に形成された前記炭素繊維層から前記溶剤を除去する工程を含んでいる請求項1記載の金属と炭素繊維との複合材の製造方法。
- [請求項3] 前記塗工箔を得る工程は、前記金属箔の表面上に形成された前記炭素繊維層の表面に摺り均し処理を施さないで前記炭素繊維層から前記溶剤を除去する工程を含んでいる請求項1記載の金属と炭素繊維との複合材の製造方法。
- [請求項4] 前記塗工箔を接合一体化する工程では、前記積層体の温度が前記塗工箔を接合一体化する温度まで上昇するように前記積層体を加熱する途中で前記積層体から前記バインダーを除去する請求項1～3のいずれかに記載の金属と炭素繊維との複合材の製造方法。
- [請求項5] 前記セルの形状は、格子型、ピラミッド型、亀甲型及び円型からなる群より選択される少なくとも一つである請求項1～4のいずれかに記載の金属と炭素繊維との複合材の製造方法。

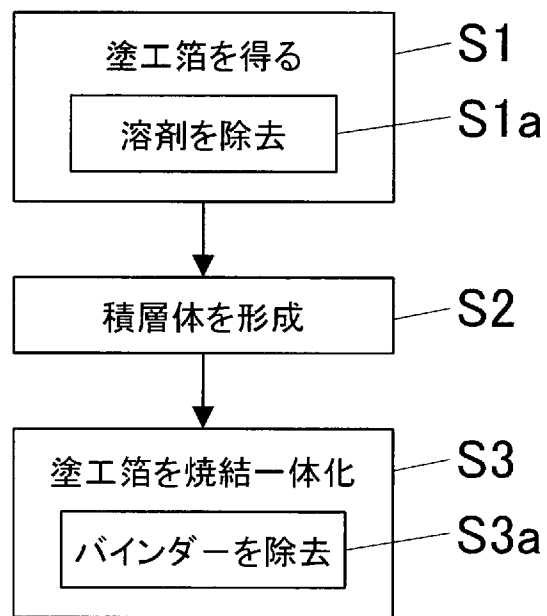
[請求項6] 前記金属箔はアルミニウム箔及び銅箔のうち少なくとも一方である請求項1～5のいずれかに記載の金属と炭素繊維との複合材の製造方法。

[請求項7] 積層状に一体化される複数の絶縁基板構成層を備えた絶縁基板の製造方法であって、

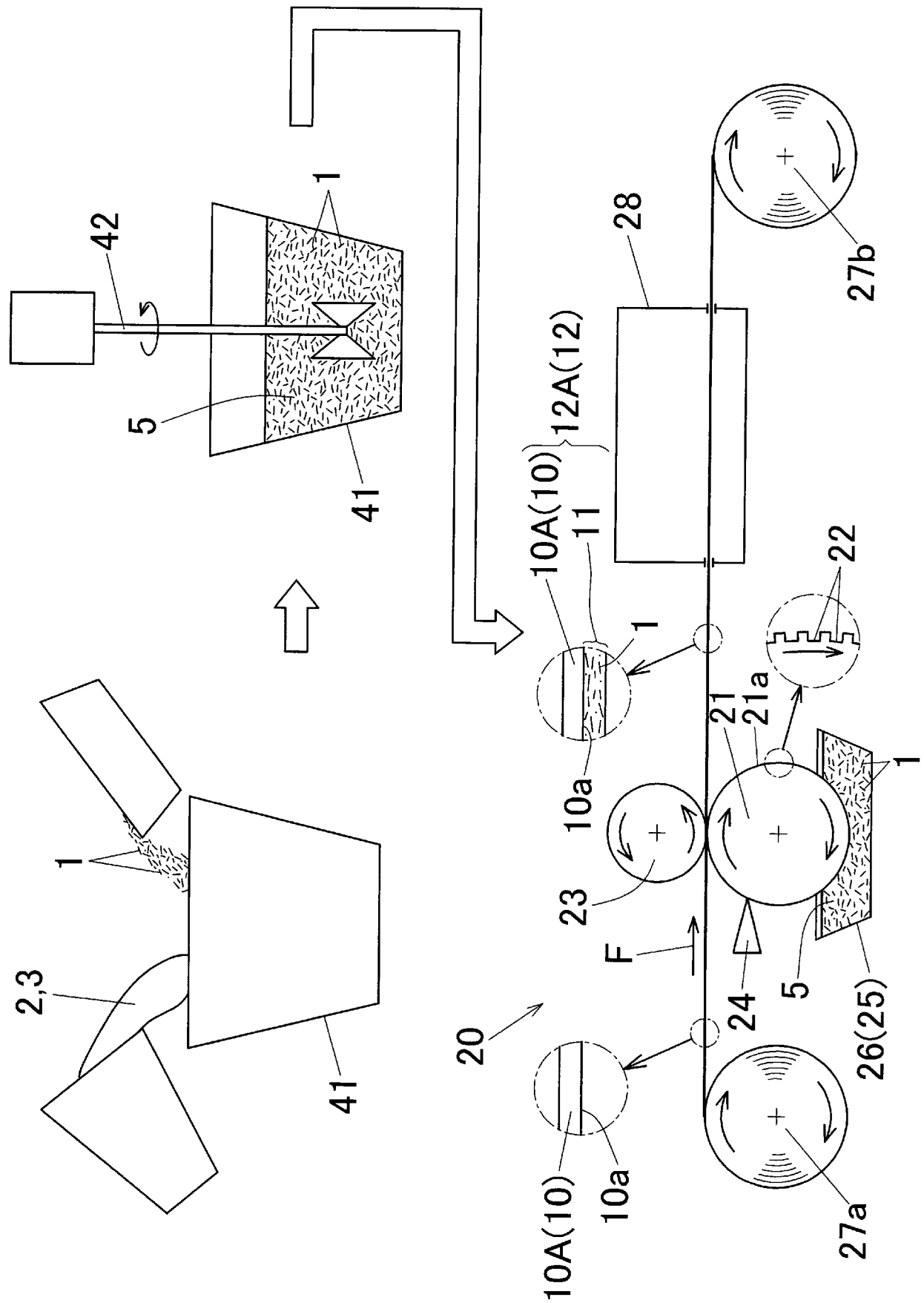
複数の構成層のうち少なくとも一つの構成層は金属と炭素繊維との複合材で形成されており、

前記複合材を請求項1～6のいずれかに記載の金属と炭素繊維との複合材の製造方法により製造する、絶縁基板の製造方法。

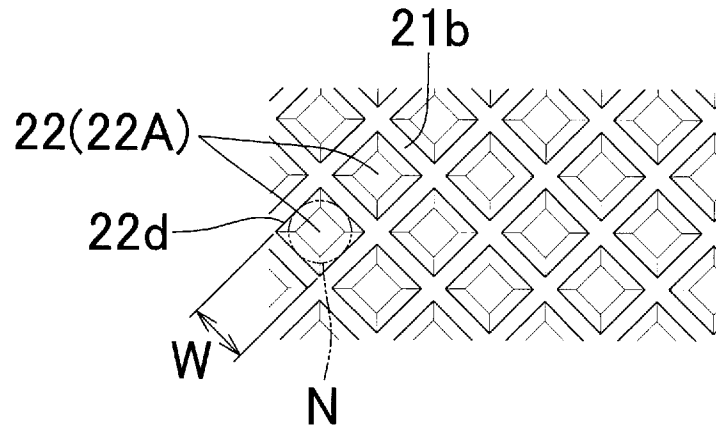
[図1]



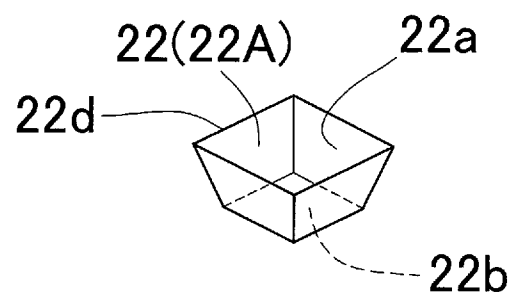
[図2]



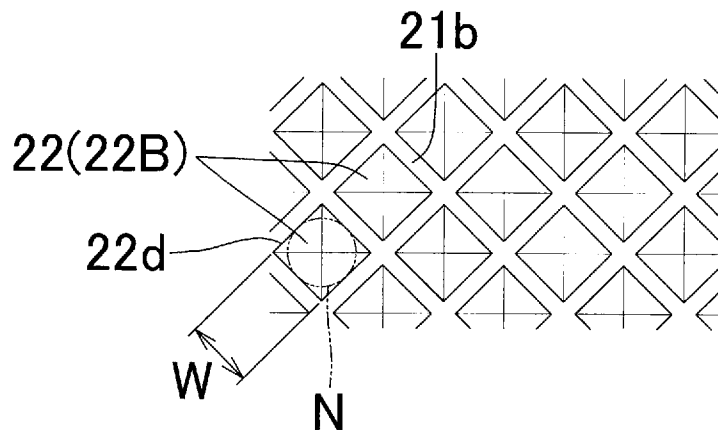
[図3A]



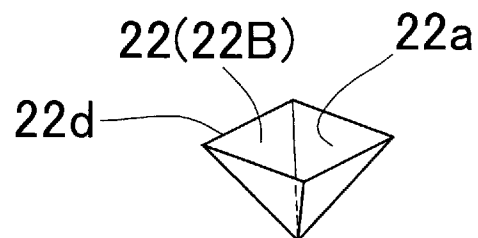
[図3B]



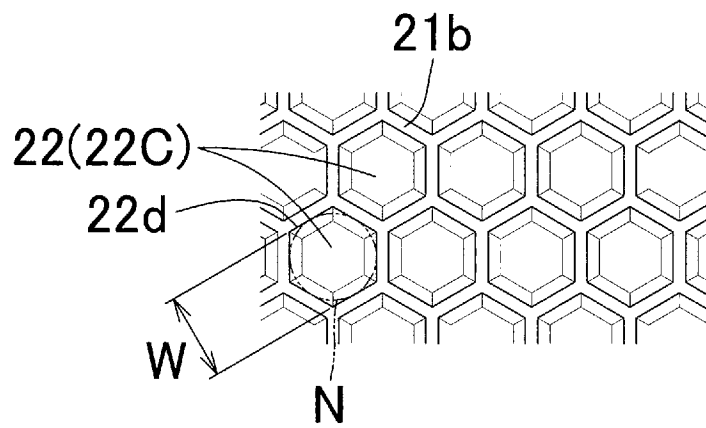
[図4A]



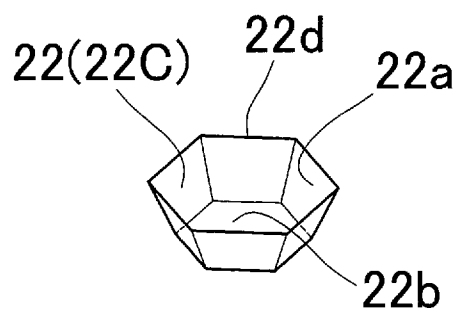
[図4B]



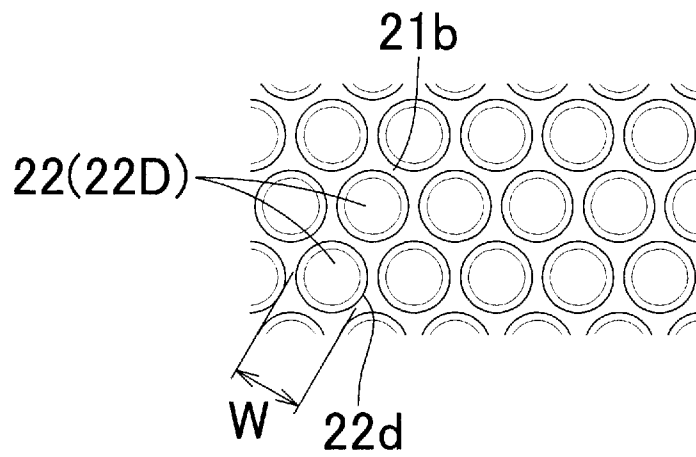
[図5A]



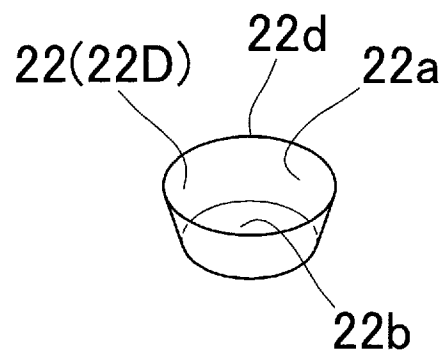
[図5B]



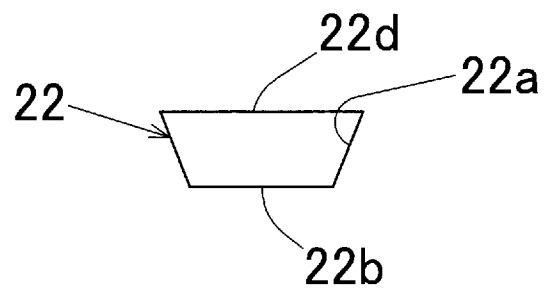
[図6A]



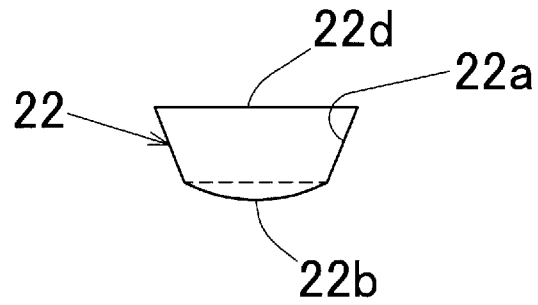
[図6B]



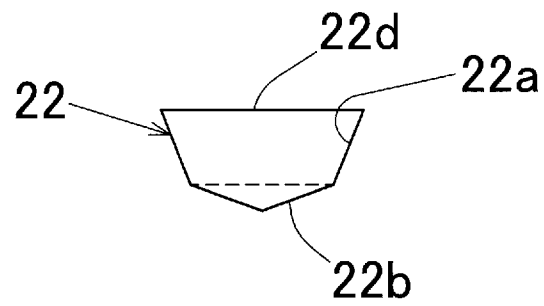
[図7A]



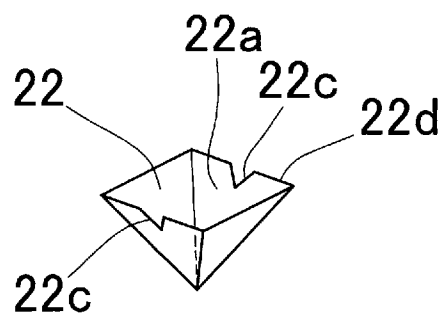
[図7B]



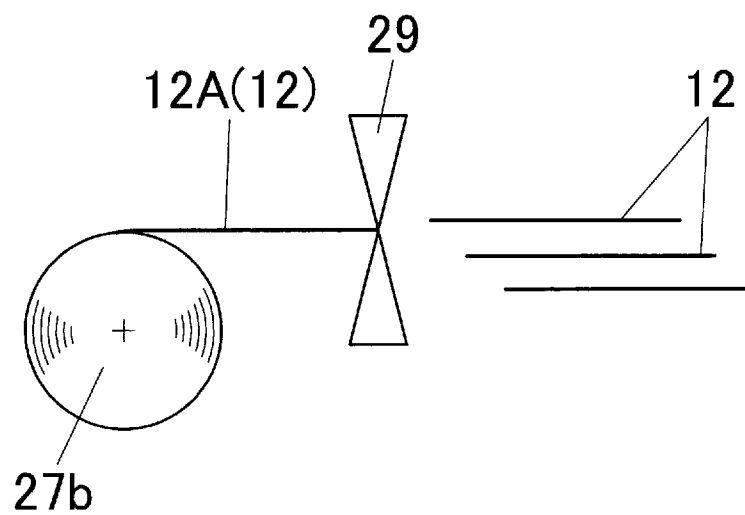
[図7C]



[図8]



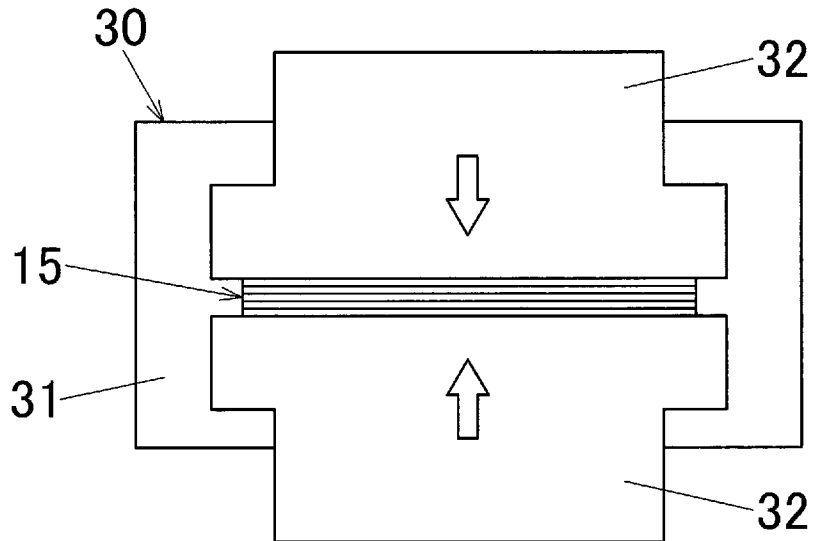
[図9]



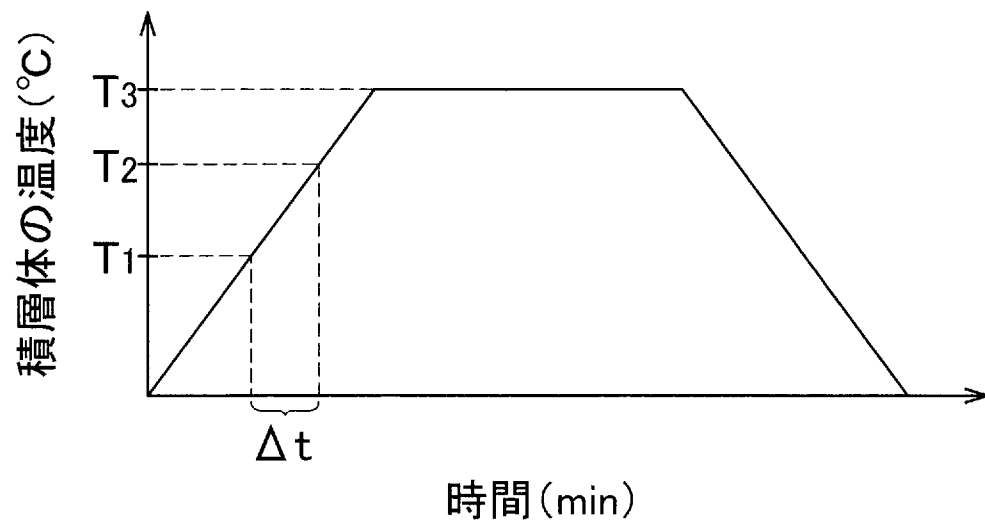
[図10]



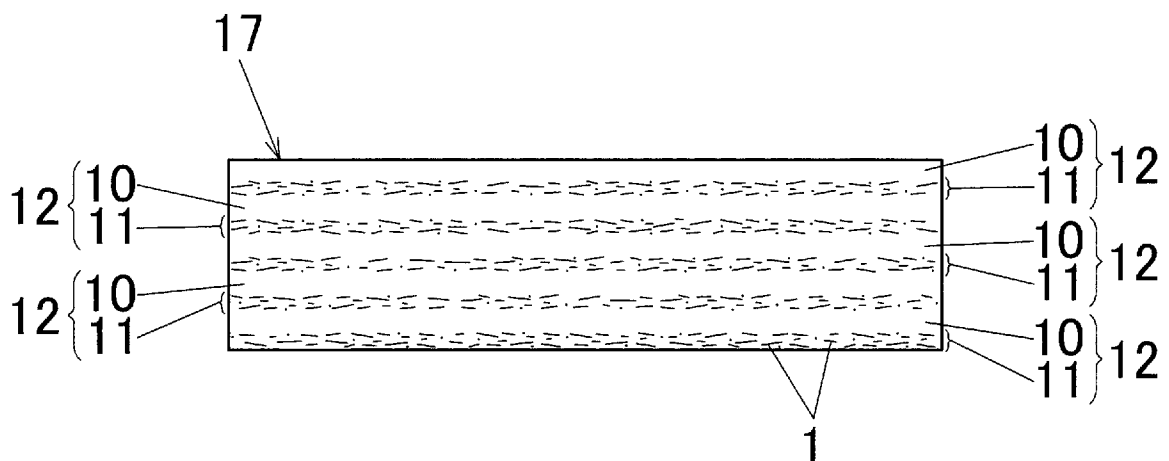
[図11]



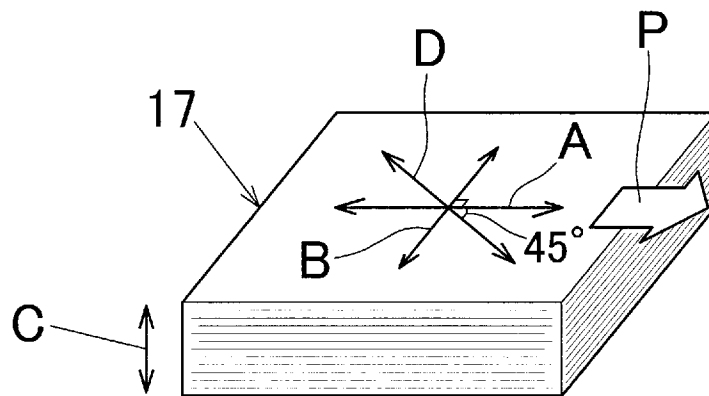
[図12]



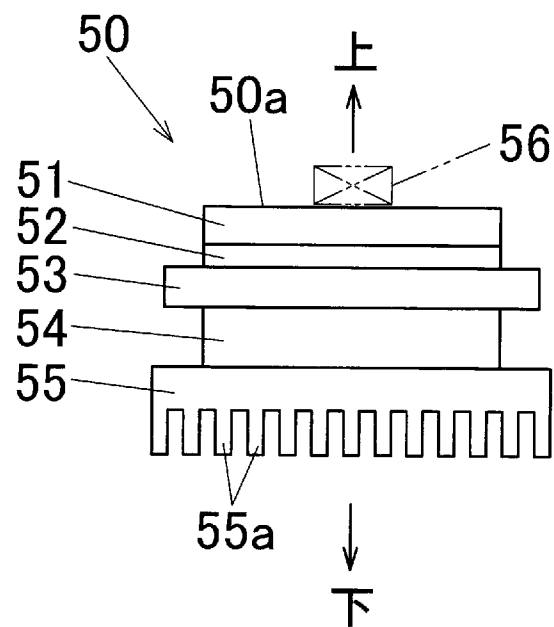
[図13]



[図14]



[図15]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/074733

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C22C47/20(2006.01) i, C22C47/06(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)

C22C47/20, C22C47/06

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	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

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	document 1: JP 2015-025158 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 05 February 2015 (05.02.2015), claims; paragraph [0055] & WO 2015/011961 A1 claims; paragraph [0055]	1-7
Y	document 2: JP 2008-144045 A (Teijin Fibers Ltd.), 26 June 2008 (26.06.2008), claims; paragraphs [0013], [0035], [0043], [0044] (Family: none)	1-7

☐ 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
11 November 2016 (11.11.16)

Date of mailing of the international search report
22 November 2016 (22.11.16)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C22C47/20(2006.01)i, C22C47/06(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. C22C47/20, C22C47/06

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	1971-2016年
日本国実用新案登録公報	1996-2016年
日本国登録実用新案公報	1994-2016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 請求項の番号
Y	文献1：JP 2015-025158 A（昭和電工株式会社）2015.02.05, 特許請求の範囲、第0055段落 & WO 2015/011961 A1, 特許請求の範囲、第0055段落	1-7
Y	文献2：JP 2008-144045 A（帝人ファイバー株式会社）2008.06.26, 特許請求の範囲、第0013段落、第0035段落、第0043段落、第0044段落（ファミリーなし）	1-7

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

11.11.2016

国際調査報告の発送日

22.11.2016

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）

米田 健志

4 X

8924

電話番号 03-3581-1101 内線 3477