

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2008-544937  
(P2008-544937A)

(43) 公表日 平成20年12月11日(2008.12.11)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>CO1B 33/02 (2006.01)</b>	CO1B 33/02	E 4G072
<b>CO4B 41/87 (2006.01)</b>	CO4B 41/87	R
<b>CO4B 41/89 (2006.01)</b>	CO4B 41/89	K

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 12 頁)

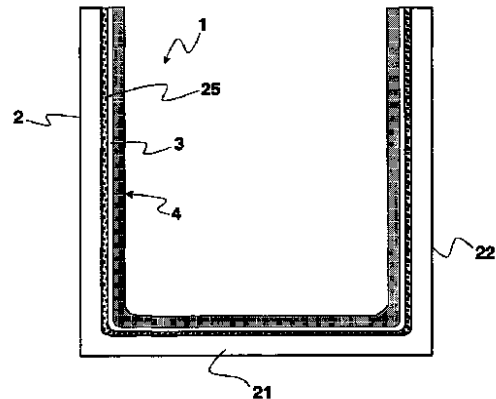
(21) 出願番号	特願2008-518733 (P2008-518733)	(71) 出願人	500573370 ベスピウス クルーシブル カンパニー アメリカ合衆国, デラウェア 19803 、 ウィルミントン, フォーク ロード 1 03, スイート 32
(86) (22) 出願日	平成18年6月30日 (2006.6.30)	(74) 代理人	100099759 弁理士 青木 篤
(85) 翻訳文提出日	平成20年2月8日 (2008.2.8)	(74) 代理人	100077517 弁理士 石田 敬
(86) 国際出願番号	PCT/EP2006/006347	(74) 代理人	100087413 弁理士 古賀 哲次
(87) 国際公開番号	W02007/003354	(74) 代理人	100111903 弁理士 永坂 友康
(87) 国際公開日	平成19年1月11日 (2007.1.11)	(74) 代理人	100102990 弁理士 小林 良博
(31) 優先権主張番号	05076520.5		
(32) 優先日	平成17年7月1日 (2005.7.1)		
(33) 優先権主張国	欧州特許庁 (EP)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 シリコンを結晶化するためのルツボ

(57) 【要約】

本発明は、シリコンを結晶化するためのルツボ、そしてルツボ内で凝固せしめられ、次いでインゴットとして取り出される融解材料を取り扱う際に使用されるルツボのための離型コーティングの調製及び使用に関し、さらに詳しく述べると、多結晶シリコンの凝固に使用されるルツボのための離型コーティングに関する。本発明者の目的は、最終使用者の設備において非常に厚いコーティングの作製を必要とせず、作製がより迅速かつ安価であり、改良された離型効果を奏し、そしてクラックを伴わずにインゴットを製造することを可能となすルツボを提供することであった。このたび判明したところによると、これらの課題は、a) 内部容積を規定する底面及び側壁を含む基体と、b) 内部容積に対面した側壁の表面にあって80~100重量%の窒化ケイ素を含む基材層と、c) 基材層の上にあつて50~100重量%のシリカを含む中間層と、d) 中間層の上にあつて、50~100重量%の窒化ケイ素、50重量%までの二酸化ケイ素及び20重量%までのシリコンを含む表面層とを含んでなるシリコンを結晶化するためのルツボをもって解決す



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

- a) 内部容積を規定する底面(21)及び側壁(22)を含む基体(2)、
- b) 前記内部容積に対面した側壁(22)の表面にあって80～100重量%の窒化ケイ素を含む基材層(25)、
- c) 前記基材層(25)の上において50～100重量%のシリカを含む中間層(3)、及び
- d) 前記中間層の上において、50～100重量%の窒化ケイ素、50重量%までの二酸化ケイ素及び20重量%までのシリコンを含む表面層(4)を含んでなる、シリコンを結晶化するためのルツボ(1)。

10

## 【請求項 2】

前記基材層が20～300 $\mu$ mの厚さを有していることを特徴とする請求項1に記載のルツボ。

## 【請求項 3】

前記中間層が50～500 $\mu$ mの厚さを有していることを特徴とする請求項1に記載のルツボ。

## 【請求項 4】

前記ルツボが、第1の中間層(3)の上に、50重量%までの窒化ケイ素を含み、残りが二酸化ケイ素である別の中間層(31)を含むことを特徴とする請求項1～3のいずれか1項に記載のルツボ。

20

## 【請求項 5】

前記別の中間層(31)が200 $\mu$ mまでの厚さを有していることを特徴とする請求項4に記載のルツボ。

## 【請求項 6】

前記表面層(4)が50～500 $\mu$ mの厚さを有していることを特徴とする請求項1に記載のルツボ。

## 【請求項 7】

前記表面層(4)が、50～100重量%の $Si_3N_4$ 、40重量%までの $SiO_2$ 及び10重量%までのシリコンを含むことを特徴とする請求項1～6のいずれか1項に記載のルツボ。

30

## 【請求項 8】

- a) 内部容積を規定する底面(21)及び側壁(22)を含む基体(2)を提供する工程、
- b) 前記内部容積に対面した側壁(22)の表面に、80～100重量%の窒化ケイ素を含む基材層(25)を適用する工程、
- c) 前記基材層(25)の上に、50～100重量%のシリカを含む中間層(3)を適用する工程、及び
- d) 前記中間層(3, 31)の上に、50～100重量%の窒化ケイ素、50重量%までの二酸化ケイ素及び20重量%までのシリコンを含む表面層(4)を適用する工程を含んでなる、シリコンを結晶化するためのルツボ(1)を製造する方法。

40

## 【請求項 9】

前記工程c)に先がけて、前記中間層(3)の上に、50重量%までの窒化ケイ素を含み、残りが二酸化ケイ素である別の中間層(31)を適用するさらなる工程c')を含むことを特徴とする請求項8に記載の方法。

## 【請求項 10】

前記工程b)、c)、c')又はd)のうちの少なくとも1つの工程を噴霧によって実施することを特徴とする請求項8に記載の方法。

## 【請求項 11】

コーティング中に存在する有機化合物を仮焼するのに適当な温度でかつそれに適当な間にわたって、コーティングを施したルツボを加熱する工程をさらに含むことを特徴とす

50

る請求項 8 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、シリコンを結晶化するためのルツボ、そしてルツボ内で凝固せしめられ、次いでインゴットとして取り出される溶融材料を取り扱う際に使用されるルツボのための離型コーティングの調製及び使用に関し、さらに詳しく述べると、多結晶シリコンの凝固に使用されるルツボのための離型コーティングに関する。

【背景技術】

【0002】

シリカ（溶融石英又は石英のいずれか）のルツボは、典型的には、多結晶シリコンを凝固するために使用されている。シリカは、高純度であり入手容易性があるために主として選ばれている。しかしながら、この方法によってシリコンを製造する場合にルツボとしてシリカを使用する場合に問題が存在している。

【0003】

溶融状態にあるシリコンは、そのシリコンと接触せしめられるシリカルツボと反応するであろう。溶融したシリコンがシリカと反応すると、一酸化ケイ素と酸素を形成する。酸素は、シリコンを汚染するであろう。一酸化ケイ素は、揮発性があり、炉の内側にあるグラファイト成分と反応するであろう。一酸化ケイ素がグラファイトと反応すると、炭化ケイ素と一酸化炭素を形成する。次いで、一酸化炭素が溶融シリコンと反応して追加量の揮発性一酸化ケイ素及び炭素を形成するであろう。炭素は、シリコンを汚染するであろう。また、シリコンは、シリカルツボ中に含まれる種々の不純物（鉄、ホウ素、アルミニウム、...）と反応可能である。

【0004】

シリカとシリコンの間で反応がおこると、ルツボに対するシリコンの付着力が高められる。この付着力は、2種類の材料の間の熱膨張係数の差と組み合わせさせたとき、シリコンのインゴットにおいて応力を発生し、冷却時にクラックを引き起こす。この技術分野では、インゴットと接触する領域においてルツボの内側に取り付けられた離型コーティング（リリースコート）が、インゴットの汚染及びクラックの形成を引き起こすシリコンとシリカの間の反応を防止し得るということが知られている。離型コーティングは、それが有効であるため、シリカルツボとの反応からシリコンを保護するに十分な厚さでなければならず、また、それ自身によってか、さもなければその内部の汚染物質によってシリコンに対して望ましくない汚染を及ぼすものであってはならない。

【0005】

文献では、溶融材料との接触によるルツボの反応及び付着の問題を解決する試みのためにいろいろな材料や技法が記載されている。例えば、米国特許第 5,431,869 号は、グラファイトルツボを使用してシリコン加工を行うため、窒化ケイ素及び塩化カルシウムからなる多成分離型剤を記載している。この文献は、シリコンの結晶化のためのルツボを教示しており、それによると、ルツボの内壁に窒化ケイ素の粉末を塗布して 150 ~ 300  $\mu\text{m}$  の厚さをもった第 1 の層を形成している。この文献は、その他の層を形成して本件出願の請求項 1 に記載したようなルツボを製造することについては教示していない。

【0006】

米国特許第 4,741,925 号は、1250 で化学的気相成長法によって適用された、ルツボのための窒化ケイ素コーティングを記載しており、また、国際出願 WO-A1-2004053207 は、プラズマ噴霧によって適用された窒化ケイ素コーティングを開示している。米国特許第 3,746,569 号は、石英チューブの壁に窒化ケイ素のコーティングを熱分解によって形成することを開示している。米国特許第 4,218,418 号は、溶融物の処理中にシリコンのクラックが発生するのを防止するため、シリカルツボの内側に迅速加熱によってガラス層を形成する技術を記載している。米国特許第 3,660,075 号は、核分裂材料を融解するためのグラファイトルツボに炭化ニオブ又は酸

10

20

30

40

50

化イットリウムをコーティングすることを開示している。炭化ニオブは、化学的気相成長法によって適用され、また、酸化イットリウムは、無機水溶液中のコロイド状懸濁液として適用されている。

【0007】

従来の文献は、シリコンの直接的な凝固においてルツボに適用するための粉体成形離型剤に特に言及したものを包含している。さらに、ルツボのコーティングに適用するため、化学的気相成長法、溶媒蒸着法、高温火炎処理法、そしてその他の不経済かつ複雑な手段を使用することが挙げられている。特定のバインダや溶媒が参照されている。粉体コーティングのスラリーを混合すること、噴霧すること、あるいはブラシ掛けすることが参照されている。

10

【0008】

この窒化ケイ素離型コーティングそのものは、いくつかの問題を引き起こすことが可能である。シリカルツボとの反応からシリコンを保護するために必要な窒化ケイ素コーティングの厚さ(約300 $\mu$ m)は、非常に重要であり、これをもって、コーティング作業が高価なものとなり、時間を費やすこととなる。さらに、この窒化ケイ素コーティングは、機械的に弱いものであり、使用中かもしくは使用前であっても、剥離やフレークの発生を引き起こすことが可能である。そのために、使用前の非常に遅いタイミングで、すなわち、最終ユーザーの設備でこのコーティングを施し、よって、最終ユーザーに対してこの厚いコーティングを適用する際に負担をかけないようにすることが推奨される。

20

【0009】

本件出願人は、係属中の国際出願WO-A1-2005106084において、シリコンを結晶化するためのルツボであって、内部容積を規定する底面及び側壁を含む基体と、その内部容積に面した側壁にある50~100重量%のシリカを含む中間層と、その中間層の上にある、50~100重量%の窒化ケイ素、50重量%までの二酸化ケイ素及び20重量%までのシリコンを含む表面層とを含むルツボを使用することを提案している。

【0010】

このルツボは、従来のルツボに比較して有意に進んだ点をすでに有しているけれども、いくつかの改良の余地を残している。特に、シリコンインゴットの結晶化を行う間で、もしも何らかの理由でシリコンインゴットが表面層に付着してしまうようなことがあると、その表面のところでクラックが発生してしまうであろうし、また、冷却を行う間に、それらのクラックがインゴット内で広がるであろう。

30

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0011】

係属中の国際出願WO-A1-2005106084は、上述の課題を解決するため、基体に対する中間層の付着を制限することを提案しており、また、この目的を達成するため、中間層の多孔性に依存することを提案している。本発明は、このような結果を達成するための別の解決法を提供することを目的としている。

【課題を解決するための手段】

【0012】

このたび、本発明者は、シリコンを結晶化するためのルツボであって、そのルツボが、a)内部容積を規定する底面及び側壁を含む基体と、b)その内部容積に対面した側壁の表面にあって80~100重量%の窒化ケイ素を含む基材層と、c)その基材層の上にあつて50~100重量%のシリカを含む中間層と、d)その中間層の上にあつて、50~100重量%の窒化ケイ素、50重量%までの二酸化ケイ素及び20重量%までのシリコンを含む表面層とを含んでなるルツボでもって上記した目的を達成することができるということを発見した。

40

【発明を実施するための最良の形態】

【0013】

実際に、80~100重量%の窒化ケイ素を含む基材層は、側壁の表面に適用するのが

50

容易であり、また、優れた離型効果を奏することができ、よって、シリコンインゴットが表面層に付着した場合であっても、冷却中にクラックが発生することはなく、インゴットやルツボの基体に損傷を与えることなく、非常に容易にインゴットを離型することができる。なお、同一レベルの離型効果を基体がすでに達成可能であるならば、このような基材層は不必要である。

**【0014】**

基材層の上にあつて50～100重量%のシリカを含む中間層は、耐久性が極めて良好であり、製造が容易である。驚くべきことに、この中間層では剥離やフレーク剥がれの問題が発生することがなく、その結果、最終ユーザーの設備に到着する以前に中間層を調製することができ、また、最終ユーザーに必要とされることは、より早くかつより安価にコーティングを行うことができる薄い表面層を提供することだけである。さらに、予想外のことはあるが、この中間層は表面層の付着力を顕著に増大させるということが発見された。また、さらに予想外のことは、基材層を存在せしめたことをもって、コーティング全体の凝集力及び強度の低下が引き起こされるようなことはない。

10

**【0015】**

本発明の有利な一態様によると、基材層に対する中間層の付着力は、任意に制限されるものであり、その結果、基材層に対する中間層の付着力は、シリコンインゴットに対する表面層の付着力よりも低いレベルである。当業者であるならば、最高の効果を得るために必要とされる $Si_3N_4$ の好適な割合(80～100重量%)を容易に特定することができるであろう。

20

**【0016】**

有利なことには、基材層は、20～300 $\mu m$ の厚さを有しており、さらに有利なことには、50～150 $\mu m$ の厚さを有している(この厚さは、基体とコーティングの間で有効な層間剥離(デラミ)を達成するのに好ましい厚さである)。

**【0017】**

基材層は、1～20重量%の量でバインダ(有機、非有機又は有機金属)を含むことができる。好ましくは、有機バインダ、例えば有機樹脂、例えばポリエチレングリコール、ポリビニルアルコール、ポリカーボネート、エポキシ、カルボキシメチルセルロースが1～5重量%の量で使用される。

**【0018】**

このコーティングのもう1つの利点は、かかるコーティングは種々のルツボ材料上に適用することができるということであり、その結果、シリカ含有中間層を備えたルツボを受け取った最終ユーザーの場合、いろいろな材料をコーティングするために特有のかつ異なる手法を開発することが不必要である。基材層は、石英、溶融石英、 $SiAlON$ 、炭化ケイ素、アルミナあるいはさらにグラファイトのルツボに対して適用することができる。

30

**【0019】**

有利なことには、基材層は、20～300 $\mu m$ の厚さを有している(この厚さは、基体とコーティングの間で有効なデラミを達成するのに好ましい厚さである)。

**【0020】**

有利なことには、中間層は、シリコンとルツボの反応やルツボ内の汚染物質に由来するシリコンの汚染を防止するのに必要な厚さの大部分を提供するため、50～500 $\mu m$ 、好ましくは、200～500 $\mu m$ の厚さを有している。

40

**【0021】**

中間層は、シリカの他に、焼成後において安定であり、かつシリコンとの反応を生じることがないような任意の材料を含むことができる。アルミナ又はシリコアルミネート材料がとりわけ適当である。また、特定の用途の場合、焼成中に熱分解を生じるような炭素質の材料もまた使用することができる。

**【0022】**

中間層は、非有機(例えば、コロイド状シリカ)及び/又は有機(例えば、有機樹脂、例えばポリエチレングリコール、ポリビニルアルコール、ポリカーボネート、エポキシ、

50

カルボキシメチルセルロース)のバインダを含むことができる。組成物中に配合される有機及び非有機のバインダの量は、用途の要件(未焼成コーティングの強度、その他)に依存している。典型的には、コーティングは、5~20重量%の非有機バインダと、5重量%までの有機バインダとを含んでいる。通常、中間層は、水中あるいは溶剤中で、噴霧もしくはブラシ掛けによって適用される。好ましくは、組成物全体の懸濁を可能ならしめるのに適当な量の水を含む水系のシステムにおいて噴霧を行うことによって中間層が適用される。

#### 【0023】

本発明の特定の一態様において、ルツボは、その中間層の上に別の層(第2の中間層)を含んでいる。この別の層は、50重量%までの窒化ケイ素を含み、その残りが本質的に二酸化ケイ素からなっている。この別の層は、表面層と第1の中間層の間の相溶性を改良し、また、その付着力を大きく改善する。この別の層が存在する場合、その別の層は、200 $\mu$ mまで、好ましくは50~100 $\mu$ mの厚さを有するであろう。

10

#### 【0024】

用途に依存するけれども、表面層は、50~500 $\mu$ m、好ましくは200~500 $\mu$ mの厚さを有するであろう。何らかの汚染が発生するのを回避するため、表面層は、非常に高い純度を有していて、炭素の含有量が極く低いことが本質的に必要である。典型的には、表面層は、50~100重量%の $Si_3N_4$ 、50重量%までの $SiO_2$ 、そして20重量%までのシリコンを含むであろう。通常、表面層は、噴霧、ブラシ掛けあるいは高純度薄膜堆積のために公知のその他の技法によって、好ましくは噴霧によって、適用することができるであろう。本発明方法の好ましい一態様において、コーティングを施す工程に引き続いて、コーティング中に存在する有機化合物を仮焼するのに適当な温度でかつそれに適当な期間にわたって加熱工程を実施する。ここで特記すべきこととして、本発明による中間層を使用する場合には、表面層の厚さは、コーティングの特性(付着性)を損うことなしに大きく低下させることができる。

20

#### 【0025】

次いで、本発明を添付の図面を参照してさらに説明することとする。なお、図面は、本発明を説明することのみを目的としたものであり、これらの図面によって本発明の範囲を制限することを意図したものではない。図1及び図2の両方が、本発明によるルツボの断面図を示している。

30

#### 【0026】

これらの図面において、ルツボは、参照番号1で示されている。ルツボは、シリコンの結晶化を行う内部容積を規定するところの、底面21及び側壁22を含む基体2を備えている。ルツボは、内部容積に面した側壁22の表面にあって、80~100重量%の窒化ケイ素を含んでいる基材層22を備えている。また、ルツボは、基材層25の上において、100重量%までのシリカからなる中間層3も備えている。

#### 【0027】

図2において、ルツボは、50重量%までの $Si_3N_4$ を含み、残りが本質的に $SiO_2$ からなっている別の中間層31を備えている。このような別の中間コーティングは、図1において存在していない。両方の図面において、ルツボ1は、 $Si_3N_4$ からなる表面層4をさらに備えている。

40

#### 【実施例】

#### 【0028】

次いで、本発明を本発明による例(実施例)及び比較例を参照して説明することとする。下記の表では、種々のコーティングの付着力を、POSITEST PULL-OFF ADHESION TESTER(DEFELSKO社製)を使用してASTM D4541に従って測定した。この試験装置で、引き剥がされる前に耐えることのできる最大引張脱離力を測定することによってコーティングの付着力を評価した。なお、最大引張脱離力とは、特定の供試直径をもったコーティングを、油圧を使用してその基材から引き剥がすのに必要とされる力である。この力を圧力(pKa)で表してある。

50

【 0 0 2 9 】

基材層の例

【 0 0 3 0 】

【 表 1 】

表 I - 基材層

	TA	TB	TC	TD
コロイド状シリカ**				5
シリカ粒子 (10~20 $\mu$ m) **			5	
脱イオン水**	+55			
脱イオン水+バインダ** (PVA5重量%)		+70	+65	
窒化ケイ素粉末**	100	100	80	85
Si**			15	10
膜厚 ( $\mu$ m)	100	200	200	300
粗さ ( $\mu$ m)	5	5	略5	5

\*\* (重量%)

10

20

【 0 0 3 1 】

好ましい組成物はTA及びTBであり、最も好ましい組成物はTBである。

【 0 0 3 2 】

中間層の例

【 0 0 3 3 】

【 表 2 】

表 II - 中間層

	A	B	C	D	E	F	G
コロイド状シリカ**				25	30	30	15
フュームドシリカ (略1 $\mu$ m) **		20	20	10		10	20
シリカ粒子 (10~20 $\mu$ m) **	100	40	40		6	10	65
シリカ粒子 (20~44 $\mu$ m) **			20	65	60	60	
シリカ粒子 (45~100 $\mu$ m) **		40	20		4		
脱イオン水**		+50		+50			
脱イオン水+バインダ** (PVA10重量%)	+70		+66		+50	+45	+60
膜厚 ( $\mu$ m)	300	500	500	150	500	250	200
粗さ ( $\mu$ m)	5	8	12	略5	略15	略10	5
付着力 (kPa)	1103	345	827	827	1241	1379	1103

\*\* (重量%)

30

40

【 0 0 3 4 】

好ましい例は、組成物C及びGの例であり、組成物Gが最も好ましい。

【 0 0 3 5 】

別の中間層の例

【 0 0 3 6 】

【表 3】

表 III-別の中間層

	IA	IB	IC
フュームドシリカ (略1 $\mu$ m) **			20
シリカ粒子 (10~20 $\mu$ m) **		60	40
シリカ粒子 (20~44 $\mu$ m) **	60		
脱イオン水**	+60		
脱イオン水+バイнда** (PVA10重量%)		+70	+80
窒化ケイ素粉末**	40	40	40
膜厚 ( $\mu$ m)	50	75	100
粗さ ( $\mu$ m)	10	8	5

\*\* (重量%)

10

【0037】

好ましい組成物は、例IBの組成物である。

【0038】

20

表面層の例

【0039】

【表 4】

表 IV-表面層

	SA	SB	SC	SD
コロイド状シリカ**				5
シリカ粒子 (10~20 $\mu$ m) **			5	
脱イオン水**	+55			
脱イオン水+バイнда** (PVA10重量%)		+70	+65	
窒化ケイ素粉末**	100	100	80	85
Si**			15	10
膜厚 ( $\mu$ m)	100	200	200	300
粗さ ( $\mu$ m)	5	5	略5	5
付着力*** (kPa)	241	827	965	827

\*\* (重量%)

\*\*\*: 中間層Gに対応する基材付き。

30

40

【0040】

好ましい組成物はSA及びSBであり、最も好ましい組成物はSBである。

【0041】

ルツボの例

【0042】

【表 5】

表Vールツボ

	1	2	3	4*	5*	6*
基材層	TA	TB	TC	-	-	-
中間層	A	B	C	D	-	-
別の中間層	IA	-	IC	-	-	-
表面層	SA	SB	SC	SD	SB	SD
表面層の付着力	良好	優秀	優秀	良好	貧弱	貧弱
アイゴットにおける クラックの存在	なし	なし	なし	若干	あり	あり

\*：比較例

10

【0043】

表面層SB及びSDの厚さは、例5及び例6において2倍であったということに留意されたい。

【図面の簡単な説明】

【0044】

20

【図1】本発明によるルツボの断面図である。

【図2】本発明によるルツボの断面図である。

【図1】

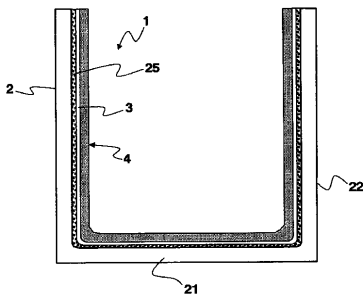


Fig. 1

【図2】

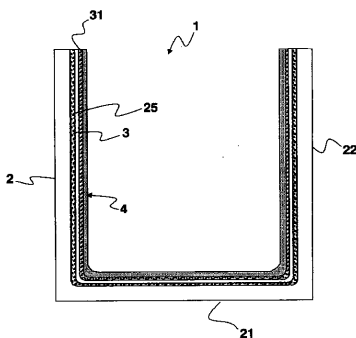


Fig. 2

## 【 国際調査報告 】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/EP2006/006347

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> INV. C30B11/00 C30B15/10 C30B35/00		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C30B C03C		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal, PAJ		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 5 431 869 A (KUMAR ET AL) 11 July 1995 (1995-07-11) cited in the application the whole document	1,6,8
A	WO 2004/053207 A (VESUVIUS FRANCE S.A; SHIMIZU, KOICHI; CAILLAUD, FREDERIC; TANI, KAZUMI) 24 June 2004 (2004-06-24) cited in the application the whole document	1,7,8,10
A	US 4 741 925 A (CHAUDHURI ET AL) 3 May 1988 (1988-05-03) cited in the application	
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C.		
<input checked="" type="checkbox"/> 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 document 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 12 September 2006		Date of mailing of the international search report 19/09/2006
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 851 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer Cook, Steven

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2006/006347

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 5431869	A	11-07-1995	NONE
WO 2004053207	A	24-06-2004	AU 2002358101 A1 30-06-2004 BR 0215961 A 13-09-2005 CA 2507389 A1 24-06-2004 CN 1742120 A 01-03-2006 EP 1570117 A1 07-09-2005 MX PA05006031 A 18-08-2005
US 4741925	A	03-05-1988	NONE

## フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(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), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), 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, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, 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, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW

(74)代理人 100093665

弁理士 蛸谷 厚志

(72)発明者 ランクル, ジルベール

フランス国, エフ - 5 9 7 0 0 マルク アン バルール, リュ ドゥ ピカルディ, 1 2

Fターム(参考) 4G072 AA01 BB01 BB12 GG04 HH01 MM38 NN02

## 【要約の続き】

ることができる。