

(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2004-529268

(P2004-529268A)

(43) 公表日 平成16年9月24日(2004.9.24)

(51) Int. Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
B 2 2 F 9/08	B 2 2 F 9/08	4 K O 1 7
B 2 2 D 25/02	B 2 2 D 25/02	F
B 2 3 K 35/40	B 2 3 K 35/40	3 4 O F

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 39 頁)

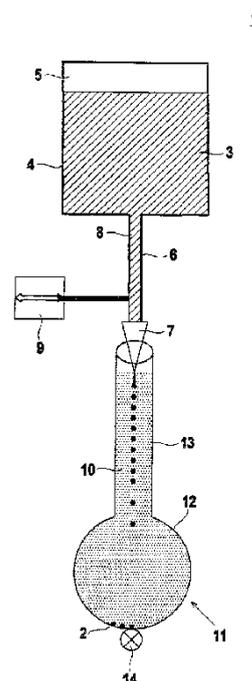
(21) 出願番号	特願2002-585141 (P2002-585141)	(71) 出願人	503386012 ウミコア アクチエンゲゼルシャフト ウ ント コンパニー コマンディートゲゼル シャフト ドイツ連邦共和国 ハーナウ ローデンバ ッハー ショセー 4 Rodenbacher Chausse e 4、D-63457 Hanau、 Germany
(86) (22) 出願日	平成14年4月26日 (2002. 4. 26)	(74) 代理人	100061815 弁理士 矢野 敏雄
(85) 翻訳文提出日	平成15年10月21日 (2003. 10. 21)	(74) 代理人	100094798 弁理士 山崎 利臣
(86) 国際出願番号	PCT/EP2002/004652	(74) 代理人	100099483 弁理士 久野 琢也
(87) 国際公開番号	W02002/087810		
(87) 国際公開日	平成14年11月7日 (2002. 11. 7)		
(31) 優先権主張番号	101 20 612.7		
(32) 優先日	平成13年4月26日 (2001. 4. 26)		
(33) 優先権主張国	ドイツ (DE)		
(81) 指定国	EP (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR) , JP, US		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ボール状の金属粒子を製造するための方法および装置

(57) 【要約】

本発明は、溶融体 (3) からボール状の金属粒子 (2) を製造するための方法および装置 (1) に関する。液滴を形成するために溶融体噴流 (8) が振動にさらされて、少なくとも1つのノズル (7) を介して案内される。ボール状の金属粒子 (2) を形成するためにノズルの出口 (7) で液滴が冷却媒体 (10) に供給されて凝固される。ノズル (7) が冷却媒体 (10) 中に浸漬され、冷却媒体 (10) の温度が溶融体 (3) の熔融温度よりも下に設定される。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

溶融体からボール状の金属粒子を製造するための方法であって、液滴を形成するために溶融体噴流を振動にさらして、少なくとも1つのノズルを介して案内し、ボール状の金属粒子を形成するためにノズルの出口で液滴を冷却媒体に供給して凝固させる形式の方法において、ノズル(7)を冷却媒体(10)中に浸漬させ、冷却媒体(10)の温度を溶融体(3)の熔融温度よりも下に設定することを特徴とする、ボール状の金属粒子を製造するための方法。

【請求項 2】

ノズル(7)を、静止した液状の冷却媒体(10)中に浸漬させる、請求項1記載の方法 10

【請求項 3】

ノズル(7)の流出開口に対する距離が増大するにつれて、冷却媒体(10)の温度を連続的に減少させる、請求項1または2記載の方法。

【請求項 4】

ノズル(7)の流出開口の範囲における冷却媒体(10)の温度を、溶融体(3)の熔融温度より最小でも10 低く設定する、請求項2または3記載の方法。

【請求項 5】

ノズル(7)の流出開口の範囲における冷却媒体(10)の温度を、溶融体(3)の熔融温度より最大でも100 低く設定する、請求項2または3記載の方法。 20

【請求項 6】

ノズル(7)の流出開口の範囲における冷却媒体(10)の温度を、溶融体(3)の熔融温度よりも20~70 低い温度範囲に設定する、請求項4または5記載の方法。

【請求項 7】

ノズル(7)および該ノズル(7)への供給管路の範囲における溶融体噴流(8)の温度を、溶融体(3)の熔融温度より最小でも10 高く設定する、請求項1から6までのいずれか1項記載の方法。

【請求項 8】

金属粒子(2)の融点が500 よりも下にある、請求項1から7までのいずれか1項記載の方法。 30

【請求項 9】

金属粒子(2)をはんだボールとして形成する、請求項8記載の方法。

【請求項 10】

少なくとも300 の熔融温度の場合に、冷却媒体(10)としてシリコン油を使用する、請求項8または9記載の方法。

【請求項 11】

300 のすぐ下の熔融温度の場合に、冷却媒体(10)として鉱油、合成冷却媒体、ポリエチレングリコールまたはパラフィン油を使用する、請求項8から10までのいずれか1項記載の方法。

【請求項 12】

300 よりも著しく低い熔融温度の場合に、冷却媒体(10)として生分解性油を使用する、請求項8から11までのいずれか1項記載の方法。 40

【請求項 13】

溶融体噴流(8)に作用する振動が、一定の周波数と一定の振幅とを有している、請求項1から12までのいずれか1項記載の方法。

【請求項 14】

請求項1から13までのいずれか1項記載の方法を実施するための装置であって、溶融体から液滴を形成するための手段が設けられており、該手段が、溶融体噴流内に振動を発生させるための手段と、少なくとも1つのノズルとを有しており、該ノズルを介して溶融体噴流が案内されており、ボール状の金属粒子を形成するためにノズルの出口で液滴 50

が冷却媒体に供給されるようになっている形式のものにおいて、ノズル(7)が冷却媒体(10)中に浸漬されており、冷却媒体(10)の温度が溶融体(3)の溶融温度よりも下に設定されていることを特徴とする、ボール状の金属粒子を製造するための装置。

【請求項15】

溶融体(3)が容器(4)内に配置されており、該容器(4)内に、振動を発生させるための手段として振動プレートが導入されている、請求項14記載の装置。

【請求項16】

容器(4)の下側から管状の溶融体流出部(6)が導出されており、該溶融体導出部(6)を介して溶融体噴流(8)がノズル(7)に供給されている、請求項15記載の装置。

10

【請求項17】

ノズル(7)および/または溶融体流出部(6)に振動エレメント(9)が結合されており、該振動エレメント(9)によってノズル(7)に振動が加えられている、請求項14から16までのいずれか1項記載の装置。

【請求項18】

振動エレメント(9)が、圧電素子または電磁式の振動エレメント(9)により形成されている、請求項17記載の装置。

【請求項19】

ノズル(7)の流出開口の直径が、形成したい金属粒子(2)のサイズに適合されている、請求項14から18までのいずれか1項記載の装置。

20

【請求項20】

振動の周波数が、溶融体噴流(8)の流速に関連して、形成したい金属粒子(2)のサイズに適合されている、請求項14から19までのいずれか1項記載の装置。

【請求項21】

ノズル(7)と溶融体流出部(6)とが、加熱エレメントによって加熱可能である、請求項14から20までのいずれか1項記載の装置。

【請求項22】

当該装置が、ノズル(7)の多重配列を有している、請求項14から21までのいずれか1項記載の装置。

【請求項23】

当該装置が圧力装置を有しており、該圧力装置によって溶融体噴流(8)が、前記ノズル(7)の方向に押圧されている、請求項14から22までのいずれか1項記載の装置。

30

【請求項24】

当該装置が、溶融体(3)を連続的に供給するための手段を有している、請求項14から23までのいずれか1項記載の装置。

【請求項25】

冷却媒体(10)が、中空円筒状のコラム(13)を備えた捕集容器(11)内に配置されており、ノズル(7)が、前記コラム(13)の開いた上側を介して前記捕集容器(11)内に案内されている、請求項14から24までのいずれか1項記載の装置。

【請求項26】

コラム(13)内の冷却媒体(10)の温度が、該コラム(13)の上側から下端部に向かって連続的に減少している、請求項24または25記載の装置。

40

【請求項27】

前記捕集容器(11)の底部の範囲に、該捕集容器(11)から金属粒子(2)を取り出すための排出装置(14)が設けられている、請求項25または26記載の装置。

【請求項28】

当該装置が真空密にカプセル封入されている、請求項14から27までのいずれか1項記載の装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

50

【0001】

本発明は、ボール状の金属粒子を製造するための方法および装置に関する。

【0002】

このようなボール状の金属粒子は、特に電子構成素子を電氣的にコンタクティングするために使用されるはんだボールとして形成されている。典型的な使用範囲は、プリント配線板における集積回路のコンタクティングである。このためには、特に軟ろう合金ボールが使用される。この軟ろう合金ボールの直径は典型的には0.1～1.5mmの範囲にある。再現可能でかつ欠陥なしのコンタクティングのために重要となるのは、はんだボールができるだけ理想的なボール形状を有していることである。さらに、使用されるはんだボールのサイズ変動はできるだけ小さくしなければならない。

10

【0003】

欧州特許第0467221号明細書に基づき、液相からボール状の粒子を製造するための方法および装置が公知である。製造され得る粒子は特に金属またはガラスから成っている。

【0004】

液相からは液滴が形成される。このためには、液相が、振動するノズルに供給される。

【0005】

ノズル自体ならびに流出開口に続いた規定された区間は、液相の熔融温度よりも1～10高い一定の温度に保持される。

【0006】

流出開口から流出した液滴は、まだボール形状を有していない。液滴のこのようなボール形状は前記区間に沿って液滴が通過した後でしか形成されない。前記区間は、鉛直に配置されているので、重力に基づき液滴は前記区間に沿って落下運動を実施し、この落下運動中に液滴のボール形状が形成される。

20

【0007】

前記区間を通過した後に、ボール状の液滴はガス状または液状の冷却媒体中に導入される。この冷却媒体の作業温度は熔融温度よりも少なくとも100低い。冷却媒体の供給は有利には液滴の落下方向と並流で行われる。冷却媒体との接触により、液滴は衝撃的に急冷され、これにより液滴は凝固して各粒子を形成する。

【0008】

この方法の重大な欠点は、液滴が冷却媒体の表面に衝突した際に、液滴の変形が生じ、この変形により、粒子の形状が、目標とされるボール形状から偏倚してしまうことである。

30

【0009】

さらに、ノズルの流出開口と冷却媒体の表面との間の区間が周辺雰囲気に対して遮蔽不可能であるか、または不完全にしか遮蔽可能でないことも不都合である。その場合、酸化可能な金属溶融体を使用して金属粒子を製造する場合には、ノズルの流出開口の、コントロールされない部分的な閉塞が生じてしまう。このことは金属粒子のサイズ分布の望ましくない変動を招いてしまう。

【0010】

ドイツ連邦共和国特許第4012197号明細書には、溶融体からボール状の金属粒子を製造するための方法が記載されている。この溶融体は溶融るつぼから液滴状に液体流に導入される。この液体流は液滴を冷却するための冷却媒体を形成している。冷却媒体としては、有利には油が使用される。液体流はこの場合、液滴の落下方向とは反対の方向に案内される。液体流の内部では温度勾配が形成されるので、流出開口の範囲では、液体の温度が少なくとも金属の熔融温度と同じ高さとなる。これによって、液体流入部の範囲では、液体流の形で落下する液滴の少なくとも表面が凝固する程に液体の温度が低くなる。

40

【0011】

この場合に不都合となるのは、液体が、金属の熔融温度に相当する温度にまで加熱されなければならない、このことが冷却媒体の著しい負荷を招くことである。このことは、このような設備の有用性を、望ましくない形で損なってしまう。なぜならば、冷却媒体が短い時

50

間インターバル内で新しいものと交換されなければならないからである。さらに、ノズルの流出開口の範囲にクラック生成物が形成される危険が生じる。これにより、ノズルを通る液体の通流に影響が与えられ、これにより金属ボールのサイズの、望ましくない程高い変動が生ぜしめられる。

【0012】

本発明の課題は、冒頭で述べた形式の方法および装置を改良して、できるだけ完全なボール形状と一定のサイズとを有する金属粒子の製造を可能にするような方法および装置を提供することである。

【0013】

この課題は、請求項1の特徴部に記載の特徴および請求項14の特徴部に記載の特徴により解決される。本発明の有利な実施態様および有利な改良形は、請求項2～請求項13もしくは請求項15以下に記載されている。

10

【0014】

本発明による方法は、溶融体からボール状の金属粒子を製造することに関する。液滴を形成するために溶融体噴流が振動にさらされて、少なくとも1つのノズルを介して案内される。対応する本発明による方法はこのために適当な、振動を発生させるための手段を有している。ボール状の金属粒子を形成するために、ノズルの出口で液滴は凝固のために冷却媒体に供給される。このノズルは冷却媒体中に浸漬されており、この場合、冷却媒体の温度は溶融体の溶融温度よりも下に設定される。

【0015】

本発明の重要な利点は次の点にある。すなわち、ノズルが、有利には液状である冷却媒体中に浸漬されているので、液滴は流出開口で直接に冷却媒体中に導入される。これによって、ノズルの流出開口では、酸化効果によるノズルの流出開口の横断面減小が生じなくなる。したがって、ノズル通過時に形成された液滴は一定でかつ再現可能なサイズを有している。液滴はノズルからの流出直後に冷却媒体に導入されるので、液滴が冷却媒体表面に衝突する際に生じる液滴の変形は生じない。

20

【0016】

さらに、冷却媒体の温度が、特にノズルの流出開口の範囲においても溶融体の溶融液よりも著しく下に設定されていると有利である。

【0017】

したがって、冷却媒体の熱負荷は相応して少なくなる。典型的には、冷却媒体の温度はノズルの流出開口の範囲で溶融体の溶融温度より最小でも10℃低く、ただし最大でも100℃低く設定されている。冷却媒体温度が溶融体の溶融温度よりも20～70℃低い温度範囲に設定されていると特に有利である。

30

【0018】

本発明のさらに別の有利な実施態様では、ノズルの流出開口に対する距離が増大するにつれて、冷却媒体の温度が連続的に減少する。液滴が冷却媒体を通過する際に、液滴は連続的に減少してゆく温度で連続的に固化される。このときに重要となるのは、液滴の凝固がノズルからの流出時に急激には行われないことである。この効果は、液滴の過冷効果と、液滴の凝固時に自由となる凝固エンタルピとに基づいて、金属粒子への液滴の固化がある程度遅延後でしか行われないことにより助成される。

40

【0019】

これにより、液滴は冷却媒体を通過する際にまず完全なボールの形に形成され、その後に液滴は凝固してボール状の金属粒子となる。

【0020】

この場合特に、有利には液状である冷却媒体を運動させなくて済むことが有利である。

【0021】

本発明による方法を用いると、形状が完全にボール状に形成され、かつサイズが極めて小さな変動しか受けられないようなボール状の金属粒子、特にほとんどボールが製造可能となる。さらに、このほとんどボールは金属光沢を有する平滑な表面を有している。

50

【0022】

本発明による装置を用いると、典型的に0.1mm~1.5mmの直径のサイズのボール状の金属粒子、特にはんだボールが製造可能となる。こうして製造されたはんだボールは、集積回路の電気的なコンタクティングのための「ボールグリッドアレイ」として使用可能となる。

【0023】

以下に、本発明の実施例を図面につき詳しく説明する。

【0024】

図1には、溶融体3からボール状の金属粒子2を製造するための本発明による装置1の1実施例が示されている。

10

【0025】

金属の溶融体3は容器4内に存在している。この容器4の内室には、制御可能な圧力を有する保護ガス雰囲気5が支配している。容器4内の溶融体3を形成している金属は、加熱装置(図示しない)によって金属の溶融温度よりも上の温度にまで加熱されている。容器4の壁はガス密に形成されている。

【0026】

容器4の下側からは、管状の溶融体流出部6が導出されており、この溶融体流出部6はノズル7にまで案内されている。この溶融体流出部6を介して、容器4からノズル7に溶融体噴流8が供給される。

【0027】

この実施例では、溶融体流出部6が容器4の底部から鉛直方向に延びるように導出されているので、重力によって溶融体噴流8がノズル7に供給される。

20

【0028】

択一的には、溶融体流出部6が上方へ向かってノズル7にまで案内されていてよい。その場合には、溶融体噴流8は圧力作用によってのみノズル7にまで引き上げられる。このためには、圧力装置、特にガス圧力装置が設けられていてよい。このような配置形式の利点は、溶融体3が、形成された圧力により制御されてノズル7に供給され得ることにある。その場合特に、圧力が加えられていない場合には溶融体3がノズル7を介して流出しなくなることが保証されている。

【0029】

原理的には、図1に示した装置1の場合でも、圧力を用いて溶融体3をノズル7へ案内するために圧力装置を設けることができる。

30

【0030】

本実施例では、単独のノズル7が設けられている。しかし原理的には、ノズル7の多重配置を設定することもできる。

【0031】

ノズル7および溶融体流出部6は、やはり加熱されている。このためには、専用の加熱エレメント(やはり図示しない)が設けられていると有利である。

【0032】

ノズル7の流出開口から溶融体3が、規定された一定のサイズの液滴の形で流出し得るようになるために、溶融体3に振動を発生させるための手段が設けられている。原理的には、この手段は振動するプレートによって形成されていてよい。その場合、このプレートは容器4の内部で溶融体3内に導入される。

40

【0033】

図示の実施例では、前記手段が振動エレメント9によって形成されている。この振動エレメント9は、ノズル7に振動を加えるために、直接にまたは溶融体流出部6を介してノズル7に結合されている。振動エレメント9は圧電素子または電磁式の振動エレメント9によって形成されていてよい。

【0034】

ノズル7の流出開口は液状の冷却媒体10中に浸漬されている。この冷却媒体10は捕集

50

容器 1 1 内に静止して貯蔵されている。捕集容器 1 1 は容器本体 1 2 を有しており、この容器本体 1 2 の上側からは、中空円筒状のコラム 1 3 が導出されている。鉛直方向に延びるコラム 1 3 の上側は開いており、これによりノズル 7 はコラム 1 3 の開いた上側を介してコラム 1 3 の内部に突入している。

【 0 0 3 5 】

捕集容器 1 1 には、別の加熱装置が対応している。捕集容器 1 1 は、コラム 1 3 内の冷却媒体 1 0 の温度がコラム 1 3 の上側から下端部へ向かって連続的に減少するように加熱されると有利である。原理的には、捕集容器 1 1 内での冷却媒体 1 0 の空間的に可変の温度分布または一定の温度分布を選択することもできる。いずれの場合でも、捕集容器 1 1 のいかなる個所でも冷却媒体 1 0 の温度が溶融体 3 の溶融温度には到達しないことが保証されている。

10

【 0 0 3 6 】

ノズル 7 を介して流出した液滴は冷却媒体 1 0 内を通過する際に凝固し、そして捕集容器 1 1 の底部ではボール状の金属粒子 2 として沈積される。捕集容器 1 1 の底部の範囲には、排出装置 1 4 が設けられている。この排出装置 1 4 を介して、捕集容器 1 1 からボール状の金属粒子 2 を取り出すことができる。

【 0 0 3 7 】

連続的に行われる製造プロセスを得るためには、溶融体 3 を容器 4 内へ連続的に供給するための手段が設けられていると有利である。たとえば、このような手段は補充容器またはこれに類するものを有してよい。

20

【 0 0 3 8 】

装置 1 全体が真空密にカプセル封入されていると有利である。これにより装置 1 の内室には、規定された保護ガス雰囲気 5 が得られる。

【 0 0 3 9 】

容器 4 内の溶融体 3 は、はんだボールを製造するための金属もしくは金属合金から成っており、この場合、この溶融体 3 の溶融温度は 5 0 0 よりも下であると有利である。

【 0 0 4 0 】

溶融体流出部 6 の範囲およびノズル 7 の範囲における溶融体噴流 8 の温度は、溶融体 3 の溶融温度よりも上の一定の温度に保持される。この場合、この温度は溶融温度よりも少なくとも 1 0 だけ高く設定される。

30

【 0 0 4 1 】

それに対して、ノズル 7 の範囲における冷却媒体 1 0 の温度は、溶融体 3 の溶融温度よりも少なくとも 1 0 低く、ただし最大でも 1 0 0 低く設定される。冷却媒体 1 0 の温度は溶融温度よりも 2 0 ~ 7 0 下の範囲にあると特に有利である。

【 0 0 4 2 】

使用される冷却媒体 1 0 の種類は、溶融体 3 の種類、特に溶融体 3 の溶融温度に関連している。

【 0 0 4 3 】

高融点の金属合金、たとえば約 3 0 0 の範囲の溶融温度を有する P b 主体のはんだのためには、冷却媒体 1 0 としてシリコン油、たとえばシリコン油 A P 1 5 0 が使用されると有利である。

40

【 0 0 4 4 】

3 0 0 のすぐ下にある溶融温度を有する金属合金、たとえば P b 主体のはんだ、S n 主体のはんだまたは P b - S n はんだのためには、たとえば鉱油が使用される。さらに、合成冷却媒体、特にたとえばベンジルトルオールを主体としたマルロテルム (M a r l o t h e r m) (F a . H u e l s 社)、クベンチャント (Q u e n c h a n t) (F a . H o u d e n 社) またはメディアテルム (F a . H o e c h s t 社) のような熱媒液も使用可能である。また、液状のポリエチレングリコールまたはパラフィン油も冷却媒体として使用可能である。

【 0 0 4 5 】

50

300 よりもはるかに低い溶融温度を有する金属合金、たとえばインジウムおよびビスマスのような添加物を有する共晶 Sn - Pb はんだのためには、あとから生え替わる原料から製出される生分解性油が使用可能である。その例としては、大豆油、パーム油、ひまし油、ヤシ油、ひまわり油、菜種油、オリーブ油、亜麻仁油ならびに堅果油、たとえば落花生油またはカボチャ種油が挙げられる。

【0046】

容器4内に貯蔵された溶融体3からボール状の金属粒子2を形成するためには、溶融体流出部6および特にノズル7の範囲で溶融体噴流8に振動が加えられる。

【0047】

ロード・ローリ (Lord Raleigh) により説明された原理 [Proc. Lond. Math. Soc. 10, 4 (1878年)] によれば、振動により溶融体噴流8には複数のくびれが生ぜしめられる。このくびれにより、最初は均質であった溶融体噴流8が、規定された円筒区分に分割される。これらの円筒区分が適当に寸法設定されていると、ノズル7からの流出時にこれらの円筒区分から、冷却媒体10内への導入・案内時にボール状の形状を有する液滴が形成される。

【0048】

溶融体噴流8に所望のくびれを形成するためには、誘導された振動の波長が、溶融体噴流8の直径よりも大きく形成されていなければならない。最適な振動波長は溶融体噴流8の直径の約4.5倍の値であることが判った。

【0049】

直径dを有する金属ボールを形成するために最適となる溶融体噴流8の直径Dは、溶融体噴流8に振動により生ぜしめられたくびれによって分断された各円筒セグメントの体積が金属ボールの体積に相当するという条件から算出される。

【0050】

この場合、この円筒セグメントの直径Dは溶融体噴流8の直径に相当する。円筒セグメントの長さLは、振動により生ぜしめられた崩壊長さ (Zerfallslänge) L に相当しており、この崩壊長さLは直径Dの4.5倍の値に相当する。

【0051】

したがって、溶融体噴流8の直径Dのための最適の値である直径dを有する金属ボールを形成するためには、 $D = d / 1.89$ が成立する。

【0052】

このように溶融体噴流8を、一定の崩壊長さLを有する区分に均等に分割するためには、一定の周波数と一定の振幅とを有する振動が使用されることが有利である。この場合、振動は溶融体噴流8の流れ方向に関して横方向 (transversal) および/または縦方向 (longitudinal) に形成されていてよい。

【0053】

崩壊長さLは主として溶融体噴流8における振動節点の相互間隔により規定されている。これらの間隔は主として次の関係により規定されている；

$$L = v \cdot T / 2$$

式中、vは溶融体噴流8の流速であり、Tは振動の周期時間である。

【0054】

振動により生ぜしめられたくびれにより、規定されたサイズの液滴がノズル7の流出開口で得られる。液滴の直径はノズル7の直径、ノズル7における噴流流出速度ならびに振動パラメータ、特に振動周波数に関連している。これらのパラメータはプロセス窓を規定しており、このプロセス窓内で規定の一定のサイズの液滴が再現可能に形成可能となる。

【0055】

液滴の導出時に、この液滴は直接に冷却媒体10内に浸漬される。この場合、この冷却媒体10の温度は溶融温度よりも下にある。急激に作用する冷却にもかかわらず、液滴はノズル7の流出開口で直ちに凝固するのではなく、冷却媒体10内においてまだ液体の状態を運動し、これにより液滴の完全なボール形状が形成され得る。

10

20

30

40

50

【0056】

液滴の凝固プロセスの速度は冷却媒体10の温度、特にコラム13の長手方向における温度勾配により設定可能である。いずれの場合でも、捕集容器11および特にコラム13の高さならびに冷却媒体10の温度は、液滴が捕集容器11の底部に到達する前に凝固するように設定されている。これにより、ボール状の金属粒子2の望ましくない変形は回避される。

【0057】

以下の例につき、本発明を詳しく説明する：

例1：

共晶合金SnPb37から成る0.76mmの直径を有するボール状の金属粒子2を製造するために、0.4mmの直径を有するセラミックノズルの形のノズル7を介して、金属の溶融体3を、冷却媒体10を形成する植物性油（ひまし油）内に導入する。ノズル出口は冷却媒体10の表面よりも1mm下に位置しており、植物性油の最大温度は表面で130であり、そして下方へ向かって減少する。ノズル7は500Hzの振動周波数で負荷されている。得られたボール状の金属粒子2は完全にボール形状に形成されていて、金属光沢を有する表面を有している。

【0058】

例2：

305～315の溶融範囲を有する高融点のPb主体の合金Pb95Sn5から成る、0.5mmの直径を有するボール状の金属粒子2を製造するために、360にまで加熱された溶融体3を、280の温度を有するシリコン油により形成された冷却媒体10内に導入する。捕集容器11のコラム13内部の油柱の最初の30cm内で、温度は200よりも下にまで低下する。ノズル7はステンレスの特殊鋼から成っている。流出開口は0.29mmの直径を有していて、800Hzの周波数で振動する。こうして形成されたボール状の金属粒子2は狭い粒度分布もしくはサイズ分布を有している。ボールの85%は、500μmの目標直径から±15μmよりも大きな偏差を有していない。

【図面の簡単な説明】

【0059】

【図1】本発明による装置の1実施例を示す概略図である。

【符号の説明】

【0060】

- 1 装置
- 2 金属粒子
- 3 溶融体
- 4 容器
- 5 保護ガス雰囲気
- 6 溶融体流出部
- 7 ノズル
- 8 溶融体噴流
- 9 振動エレメント
- 10 冷却媒体
- 11 捕集容器
- 12 容器本体
- 13 コラム
- 14 排出装置

10

20

30

40

【国際公開パンフレット】

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
7. November 2002 (07.11.2002)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 02/087810 A2

- (51) Internationale Patentklassifikation: **B22F 9/08** [DE/DE]; Inheldener Strasse 22, 60385 Frankfurt am Main (DE). **FUCHS, Roland** [DE/DE]; Horbacher Strasse 26b, 63826 Geiselbach (DE). **DIVICENZO, Calogero** [IT/DE]; Lubecker Weg 8, 63454 Hanau-Mittelbach (DE).
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP02/04652
- (22) Internationales Anmeldedatum: 26. April 2002 (26.04.2002)
- (25) Einreichungssprache: Deutsch
- (26) Veröffentlichungssprache: Deutsch
- (30) Angaben zur Priorität: 101 20 612.7 26. April 2001 (26.04.2001) DE
- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **OMG AG & CO. KG** [DE/DE]; Postfach 1351, 63403 Hanau (DE).
- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **KEMPF, Bernd** [DE/DE]; Riemenschneiderstrasse 38, 63839 Kleinwallstadt (DE). **PFASCHEK, Georg** [DE/DE]; Berghof 93, 61191 Rosbach (DE). **RINGELSTEIN, Hans-Martin**
- (74) Anwalt: **VOSSIUS & PARTNER**; Sieberstrasse 4, 81675 München (DE).
- (81) Bestimmungsstaaten (national): JP, US.
- (84) Bestimmungsstaaten (regional): europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).
- Veröffentlicht:
— ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts
- Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: METHOD AND DEVICE FOR PRODUCING SPHERICAL METAL PARTICLES

(54) Bezeichnung: VERFAHREN UND VORRICHTUNG ZUR HERSTELLUNG VON KUGELFÖRMIGEN METALLTEILCHEN

(57) Abstract: The invention relates to a method and device (1) for the production of spherical metal particles (2) from a melt (3). In order to produce drops, a jet of melt (8) is exposed to vibrations and guided via at least one nozzle (7). In order to produce the spherical metal particles (2), the drops at the outlet of said nozzle (7) are conducted to a cooling medium (10) for solidification. The nozzle (7) dips into the cooling medium (10), the temperature of the cooling medium (10) being below that of the melting temperature of the melt (3).

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft eine Verfahren und eine Vorrichtung (1) zur Herstellung von kugelförmigen Metallteilchen (2) aus einer Schmelze (3). Zur Erzeugung von Tropfen wird ein Schmelzstrahl (8) Vibrationen ausgesetzt und über wenigstens eine Düse (7) geführt. Zur Erzeugung der kugelförmigen Metallteilchen (2) werden die Tropfen am Ausgang der Düse (7) zur Verfestigung einem Kühlmedium (10) zugeführt. Die Düse (7) taucht in das Kühlmedium (10) ein, wobei die Temperatur des Kühlmediums (10) unterhalb der Schmelztemperatur der Schmelze (3) liegt.

WO 02/087810 A2

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

1

Verfahren und Vorrichtung zur Herstellung von kugelförmigen Metallteilchen

Die Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Vorrichtung zur Herstellung von kugelförmigen Metallteilchen.

5 Derartige kugelförmige Metallteilchen sind insbesondere als Lotkugeln ausgebildet, welche zur elektrischen Kontaktierung von elektronischen Bauelementen eingesetzt werden. Ein typischer Einsatzbereich ist dabei die Kontaktierung von integrierten Schaltkreisen auf Leiterplatten. Hierzu werden
10 insbesondere Weichlotlegierungskugeln eingesetzt, deren Durchmesser typischerweise im Bereich zwischen 0,1 bis 1,5 mm liegen. Entscheidend für eine reproduzierbare und fehlerfreie Kontaktierung ist, dass die Lotkugeln eine möglichst ideale Kugelform aufweisen. Zudem muss die Größenschwankung der verwendeten Lotkugeln möglichst gering sein.
15

Aus der EP 0 467 221 B1 ist ein Verfahren und eine Vorrichtung zur Herstellung von kugelförmigen Teilchen aus einer flüssigen Phase bekannt. Die herzustellenden Teilchen bestehen insbesondere aus Metall oder Glas.

20 Aus der flüssigen Phase werden Tropfen erzeugt. Hierzu wird die flüssige Phase einer vibrierenden Düse zugeführt.

Die Düse selbst sowie eine definierte, an die Austrittsöffnung anschließende Strecke wird auf einer konstanten Temperatur gehalten, die 1°C bis 10°C oberhalb der Schmelztemperatur der flüssigen Phase liegt.
25

Die an der Austrittsöffnung austretenden Tropfen weisen noch keine Kugelform auf. Diese Kugelform der Tropfen bildet sich erst bei Durchlauf entlang der Strecke. Die Strecke ist dabei vertikal angeordnet, so dass aufgrund der
30 Schwerkraft die Tropfen entlang der Strecke eine Fallbewegung ausführen, während derer sich die Kugelformen der Tropfen bilden.

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

2

Nach Durchlaufen dieser Strecke werden die kugelförmigen Tropfen in ein gasförmiges oder flüssiges Kühlmedium geleitet, dessen Arbeitstemperatur mindestens 100°C unterhalb der Schmelztemperatur liegt. Die Zufuhr des Kühlmediums erfolgt dabei vorzugsweise im Gleichstrom mit der Fallrichtung der Tropfen. Durch den Kontakt mit dem Kühlmedium werden die Tropfen schlagartig abgeschreckt, wodurch eine Verfestigung der Tropfen zu den jeweiligen Teilchen erfolgt.

Ein wesentlicher Nachteil dieses Verfahrens besteht darin, dass bei Auftreffen der Tropfen auf die Oberfläche des Kühlmediums Verformungen der Tropfen auftreten, die zu Abweichungen der Teilchen von der angestrebten Kugelform führen.

Weiterhin ist nachteilig, dass die Strecke zwischen Austrittsöffnung der Düse und Oberfläche des Kühlmediums nicht oder nur unvollständig gegen die Umgebungsatmosphäre abschirmbar ist. Bei der Herstellung von Metallteilchen unter Verwendung oxidierbarer Metallschmelzen kommt es dann zu einem teilweisen, nicht kontrollierten Verschluss der Austrittsöffnung der Düse. Dies wiederum führt zu unerwünschten Schwankungen der Größenverteilungen der Metallteilchen.

Die DE 40 12 197 C2 beschreibt ein Verfahren zur Herstellung von kugelförmigen Metallteilchen aus einer Schmelze. Die Schmelze wird aus einem Schmelztiegel tropfenweise in einen Flüssigkeitsstrom eingeleitet, welcher ein Kühlmedium zur Abkühlung der Tropfen bildet. Als Kühlmedium wird vorzugsweise ein Öl verwendet. Der Flüssigkeitsstrom wird dabei entgegen der Fallrichtung der Tropfen geleitet. Innerhalb des Flüssigkeitsstromes wird ein Temperaturgradient erzeugt, so dass im Bereich der Austrittsöffnung die Temperatur der Flüssigkeit mindestens so hoch wie die Schmelztemperatur des Metalls ist. Damit ist im Bereich des Flüssigkeitszulaufes die Temperatur der Flüssigkeit so gering, dass die im Flüssigkeitsstrom fallenden Tropfen wenigstens an ihren Oberflächen erstarren.

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

3

Nachteilig hierbei ist, dass die Flüssigkeit auf Temperaturen, welche der Schmelztemperatur des Metalls entsprechen, erhitzt werden müssen, was zu einer starken Belastung des Kühlmediums führt. Dies führt zu einer unerwünscht starken

5 Beeinträchtigung der Verfügbarkeit gerartiger Anlagen, da das Kühlmittel innerhalb kurzer Zeitintervalle erneuert werden muss. Weiterhin besteht die Gefahr einer Bildung von Crackprodukten im Bereich der Austrittsöffnung der Düse. Dadurch wird der Durchfluss der Flüssigkeit durch die Düse

10 beeinflusst, wodurch unerwünscht hohe Schwankungen der Größen der Metallkugeln erhalten werden.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde ein Verfahren und eine Vorrichtung der eingangs genannten Art zu schaffen, welche eine Herstellung von Metallteilchen mit möglichst

15 perfekter Kugelform und konstanter Größe ermöglicht.

Zur Lösung dieser Aufgabe sind die Merkmale der Ansprüche 1 und 14 vorgesehen. Vorteilhafte Ausführungsformen und zweckmäßige Weiterbildungen sind in den Unteransprüchen beschrieben.

20 Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren handelt es sich um die Herstellung von kugelförmigen Metallteilchen aus einer Schmelze. Zur Erzeugung von Tropfen wird ein Schmelzstrahl Vibrationen ausgesetzt und über wenigstens eine Düse geführt. Die entsprechende erfindungsgemäße Vorrichtung weist

25 hierzu geeignete Mittel zur Erzeugung der Vibrationen auf. Zur Erzeugung der kugelförmigen Metallteilchen werden die Tropfen am Ausgang der Düse zur Verfestigung einem Kühlmedium zugeführt. Die Düse taucht dabei in das Kühlmedium ein, wobei die Temperatur des Kühlmediums unterhalb der

30 Schmelztemperatur der Schmelze liegt.

Ein wesentlicher Vorteil der Erfindung besteht darin, dass die Düse in das vorzugsweise flüssige Kühlmedium eintaucht, so dass die Tropfen an der Austrittsöffnung unmittelbar in das Kühlmedium eingeleitet werden. Damit können in der Aus-

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

4

trittsöffnung der Düse keine Querschnittsverkleinerungen der Austrittsöffnung der Düse durch Oxidationseffekte auftreten. Die bei Durchtritt durch die Düse gebildeten Tropfen weisen somit eine konstante und reproduzierbare Größe

5 auf. Da die Tropfen unmittelbar nach Austritt aus der Düse in das Kühlmedium eingeleitet werden, treten keine Verformungen der Tropfen auf, welche bei einem Aufprall von Tropfen auf eine Kühlmitteloberfläche entstehen würden.

Weiterhin ist vorteilhaft, dass die Temperatur des Kühlmediums insbesondere auch im Bereich der Austrittsöffnung der Düse signifikant unterhalb der Schmelztemperatur der Schmelze liegt.

10

Die thermische Beanspruchung des Kühlmediums ist demzufolge entsprechend gering. Typischerweise liegt die Temperatur des Kühlmediums im Bereich der Austrittsöffnung der Düse mindestens 10°C, höchstens jedoch 100°C unterhalb der Schmelztemperatur. Besonders bevorzugt liegt die Kühlmitteltemperatur in einem Bereich von 20°C bis 70°C unterhalb der Schmelztemperatur.

15

In einer vorteilhaften Ausführungsform der Erfindung nimmt die Temperatur des Kühlmediums mit zunehmender Distanz zur Austrittsöffnung kontinuierlich ab. Bei Durchlauf eines Tropfens durch das Kühlmedium wird dieser bei fortlaufend geringeren Temperaturen kontinuierlich verfestigt. Dabei

20 ist wesentlich, dass die Erstarrung eines Tropfens nicht schlagartig bei Austritt aus der Düse erfolgt. Dieser Effekt wird dadurch unterstützt, dass aufgrund eines Unterkühlungseffekts der Tropfen und der bei deren Erstarrung freiwerdenden Erstarrungsenthalpie die Verfestigung der

25 Tropfen zu den Metallkugeln erst nach einer gewissen Verzögerungszeit erfolgt.

30

Dadurch werden die Tropfen bei Durchgang durch das Kühlmedium zuerst zu perfekten Kugeln ausgebildet, bevor sie zu den kugelförmigen Metallteilchen erstarren.

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

5

Vorteilhaft hierbei ist insbesondere, dass das vorzugsweise flüssige Kühlmedium nicht bewegt werden muss.

Mit dem erfindungsgemäßen Verfahren sind kugelförmige Metallteilchen, insbesondere Lotkugeln herstellbar, deren
5 Formen perfekt kugelförmig ausgebildet sind und deren Größen nur äußerst geringen Schwankungen unterworfen sind. Zudem weisen die Lotkugeln metallisch glänzende, glatte Oberflächen auf.

Mit der erfindungsgemäßen Vorrichtung sind kugelförmige Metallteilchen, insbesondere Lotkugeln in Größen von typischerweise 0,1 mm bis 1,5 mm Durchmesser herstellbar. Die
10 so hergestellten Lotkugeln sind vorteilhaft als sogenannte ball grid arrays zur elektrischen Kontaktierung von integrierten Schaltkreisen verwendbar.

15 Die Erfindung wird im nachstehenden anhand der Zeichnung erläutert. Es zeigt:

Figur 1: Schematische Darstellung eines Ausführungsbeispiels der erfindungsgemäßen Vorrichtung.

Figur 1 zeigt ein Ausführungsbeispiel der erfindungsgemäßen
20 Vorrichtung 1 zur Herstellung von kugelförmigen Metallteilchen 2 aus einer Schmelze 3.

Die metallische Schmelze 3 befindet sich in einem Behälter 4, in dessen Innenraum eine Schutzgasatmosphäre 5 mit regelbarem Druck herrscht. Das die Schmelze 3 bildende Metall
25 im Behälter 4 ist mittels einer nicht dargestellten Heizvorrichtung auf eine Temperatur oberhalb der Schmelztemperatur des Metalls erhitzt. Die Wände des Behälters 4 sind gasdicht ausgebildet.

An der Unterseite des Behälters 4 mündet ein rohrförmiger Schmelzenauslauf 6 aus, der zu einer Düse 7 geführt ist.
30 Über den Schmelzenauslauf 6 wird ein Schmelzstrahl 8 aus dem Behälter 4 der Düse 7 zugeführt.

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

6

Im vorliegenden Ausführungsbeispiel mündet der Schmelzenauslauf 6 am Boden des Behälters 4 in vertikaler Richtung verlaufend aus, so dass durch die Schwerkraft der Schmelzstrahl 8 der Düse 7 zugeführt ist.

- 5 Alternativ kann der Schmelzenauslauf 6 auch nach oben zur Düse 7 geführt sein, so dass der Schmelzstrahl 8 nur durch Druckeinwirkung auf die Düse 7 geführt ist. Hierzu kann eine Druckvorrichtung, insbesondere eine Gasdruckvorrichtung vorgesehen sein. Der Vorteil dieser Anordnung besteht darin, dass die Schmelze 3 der Düse 7 über den erzeugten Druck geregelt zugeführt werden kann. Insbesondere ist dann gewährleistet, dass bei fehlendem Druck keine Schmelze 3 über die Düse 7 austritt.

- 10 Prinzipiell kann eine Druckvorrichtung auch bei der Vorrichtung 1 gemäß Figur 1 vorgesehen sein, um dort die Schmelze 3 mit Druck auf die Düse 7 zu führen.

Im vorliegenden Ausführungsbeispiel ist eine einzelne Düse 7 vorgesehen. Prinzipiell können auch Mehrfachanordnungen von Düsen 7 vorgesehen sein.

- 20 Die Düse 7 und der Schmelzenauslauf 6 sind ebenfalls beheizt, wobei hierzu vorzugsweise ein separates, ebenfalls nicht dargestelltes Heizelement vorgesehen ist.

- 25 Damit die Schmelze 3 an der Austrittsöffnung der Düse 7 in Form von Tropfen definierter und konstanter Größe austreten kann, sind Mittel zur Erzeugung von Vibrationen in der Schmelze 3 vorgesehen. Prinzipiell können diese Mittel von einer schwingenden Platte gebildet sein, welche in die Schmelze 3 im Innern des Behälters 4 eingebracht wird.

- 30 Im vorliegenden Fall sind diese Mittel von einem Schwingungselement 9 gebildet, welches direkt oder über den Schmelzenauslauf 6 an die Düse 7 angekoppelt ist, um diese in Schwingungen zu versetzen. Das Schwingungselement 9 kann

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

7

von einem piezoelektrischen Element oder einem elektromagnetischen Schwingungselement 9 gebildet sein.

Die Austrittsöffnung der Düse 7 taucht in ein flüssiges Kühlmedium 10 ein, welches in einem Sammelbehälter 11 ruhend gelagert ist. Der Sammelbehälter 11 weist einen Grundkörper 12 auf, an dessen Oberseite eine hohlzylindrische Säule 13 ausmündet. Die in vertikaler Richtung verlaufende Säule 13 ist an ihrer Oberseite offen, wobei die Düse 7 über die offene Oberseite in das Innere der Säule 13 ragt.

Dem Sammelbehälter 11 ist eine weitere Heizvorrichtung zugeordnet. Zweckmäßigerweise wird der Sammelbehälter 11 derart beheizt, dass die Temperatur des Kühlmediums 10 in der Säule 13 von deren Oberseite zu ihrem unteren Ende hin kontinuierlich abnimmt. Prinzipiell kann auch ein räumlich veränderliches oder ein konstantes Temperaturprofil des Kühlmediums 10 im Sammelbehälter 11 gewählt werden. In jedem Fall ist gewährleistet, dass die Temperatur des Kühlmediums 10 an keiner Stelle des Sammelbehälters 11 die Schmelztemperatur der Schmelze 3 erreicht.

Die über die Düse 7 austretenden Tropfen erstarren bei Passieren des Kühlmediums 10 und werden am Boden des Sammelbehälters 11 als kugelförmige Metallteilchen 2 abgelagert. Im Bereich des Bodens des Sammelbehälters 11 befindet sich eine Ablassvorrichtung 14 über welche die kugelförmigen Metallteilchen 2 aus dem Sammelbehälter 11 entnommen werden können.

Um einen kontinuierlich ablaufenden Herstellungsprozess zu erhalten, sind vorzugsweise Mittel zur kontinuierlichen Zufuhr der Schmelze 3 in den Behälter 4 vorgesehen. Beispielsweise können diese Mittel einen Nachfüllbehälter oder dergleichen umfassen.

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

8

Zweckmäßigerweise ist die gesamte Vorrichtung 1 vakuumdicht gekapselt um in deren Innenraum eine definierte Schutzgasatmosphäre 5 zu erhalten.

5 Die Schmelze 3 in dem Behälter 4 besteht aus Metall bzw. metallischen Legierungen zur Herstellung von Lotkugeln, wobei deren Schmelztemperatur vorzugsweise unterhalb von 500°C liegt.

10 Die Temperatur des Schmelzstrahls 8 im Bereich des Schmelzenauslaufs 6 und im Bereich der Düse 7 wird auf einer konstanten Temperatur oberhalb der Schmelztemperatur der Schmelze 3 gehalten, wobei die Temperatur wenigstens 10°C oberhalb der Schmelztemperatur liegt.

15 Die Temperatur des Kühlmediums 10 im Bereich der Düse 7 liegt dagegen wenigstens 10°C, höchstens jedoch 100°C unterhalb der Schmelztemperatur der Schmelze 3. Besonders bevorzugt liegt die Temperatur des Kühlmediums 10 in einem Bereich von 20°C bis 70°C unterhalb der Schmelztemperatur.

20 Die Art des verwendeten Kühlmediums 10 hängt von der Art der Schmelze 3 und insbesondere von deren Schmelztemperatur ab.

Für hochschmelzende Metalllegierungen wie zum Beispiel Pb-Basis-Lote mit Schmelztemperaturen im Bereich von etwa 300°C werden als Kühlmedium 10 bevorzugt Silikonöle wie zum Beispiel Silikonöl AP 150 eingesetzt.

25 Für Metalllegierungen, deren Schmelztemperaturen dicht unterhalb von 300°C liegen, wie zum Beispiel Pb-Basis-Lote, Sn-Basis-Lote oder Pb-Sn-Lote werden beispielsweise Mineralöle eingesetzt. Weiterhin sind synthetische Kühlmedien einsetzbar, insbesondere Wärmeträgerflüssigkeiten wie zum Beispiel Marlotherm auf der Basis von Benzyltoluol (Fa. Huls), Quenchant (Fa. Houden) oder Mediatherm (Fa. Hoechst). Auch flüssige Polyethylenglykole oder Paraffinöle sind als Kühlmedien einsetzbar.

30

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

9

Für Metall-Legierungen, deren Schmelztemperaturen weit unterhalb von 300°C liegen, wie zum Beispiel eutektische Sn-Pb-Lote mit Zusätzen wie Indium und Wismut, sind insbesondere biologisch abbaubare Öle einsetzbar, welche aus nachwachsenden Rohstoffen gewonnen werden, Beispiele hierfür sind Sojaöl, Palmöl, Rizinusöl, Kokosöl, Sonnenblumenöl, Rapsöl, Olivenöl, Leinöl sowie Nussöle wie zum Beispiel Erdnussöl oder Kürbiskernöl.

Zur Erzeugung von kugelförmigen Metallteilchen 2 aus der im Behälter 4 gelagerten Schmelze 3 wird der Schmelzstrahl 8 im Schmelzenauslauf 6 und insbesondere im Bereich der Düse 7 in Schwingung versetzt.

Gemäß dem von Lord Raleigh beschriebenen Prinzip (Proc. Lond. Math. Soc. 10, 4 (1878)) werden durch die Schwingungen im Schmelzstrahl 8 Einschnürungen erzeugt. Durch diese Einschnürungen wird der ursprünglich homogene Schmelzstrahl 8 in definierte Zylinderabschnitte unterteilt. Bei geeigneter Dimensionierung der Zylinderabschnitte bilden sich aus diesen bei Austritt aus der Düse 7 Tropfen, die bei Einleitung und Führung im Kühlmedium 10 eine kugelförmige Gestalt aufweisen.

Um die gewünschten Einschnürungen im Schmelzstrahl 8 zu erzeugen muss die Wellenlänge der induzierten Schwingungen größer als der Durchmesser des Schmelzstrahls 8 sein. Es hat sich gezeigt, dass die optimale Wellenlänge der Schwingungen etwa beim 4,5-fachen Wert des Durchmessers des Schmelzstrahls 8 liegt.

Der zur Erzeugung von metallischen Kugeln mit einem Durchmesser d optimale Durchmesser D des Schmelzstrahls 8 berechnet sich aus der Bedingung, dass das Volumen eines durch die schwingungsinduzierten Einschnürungen in dem Schmelzstrahl 8 abgetrennten Zylindersegmente dem Volumen dieser Kugel entspricht.

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

10

Dabei entspricht der Durchmesser D dieses Zylindersegments dem Durchmesser des Schmelzstrahls 8. Die Länge L des Zylindersegments entspricht der schwingungsinduzierten Zerfallslänge L, welche dem 4,5-fachen Wert des Durchmessers D entspricht.

Somit ergibt sich für die Erzeugung von metallischen Kugeln mit einem Durchmesser d als optimaler Wert für den Durchmesser D des Schmelzstrahls 8

$$D = d/1,89.$$

Um eine derartige gleichförmige Unterteilung des Schmelzstrahls 8 in Abschnitte mit einer konstanten Zerfallslänge L zu erzeugen, werden vorzugsweise Schwingungen mit konstanter Frequenz und Amplitude verwendet. Dabei können die Schwingungen transversal und/oder longitudinal bezüglich der Strömungsrichtung des Schmelzstrahls 8 ausgebildet sein.

Die Zerfallslängen L sind im Wesentlichen durch die Abstände der Schwingungsknoten im Schmelzstrahl 8 vorgegeben. Diese Abstände sind im Wesentlichen durch die Beziehung

$$L = v \cdot T/2$$

vorgegeben, wobei v die Strömungsgeschwindigkeit des Schmelzstrahls 8 und T die Periodendauer der Schwingung ist.

Durch die schwingungsinduzierte Einschnürung werden Tropfen vorgegebener Größe an der Austrittsöffnung der Düse 7 erhalten. Der Durchmesser der Tropfen hängt dabei vom Durchmesser der Düse 7, der Strahlaustrittsgeschwindigkeit an der Düse 7 sowie von den Schwingungsparametern, insbesondere der Schwingungsfrequenz ab. Diese Parameter definieren ein Prozessfenster, innerhalb dessen Tropfen vorgegebener und konstanter Größe reproduzierbar herstellbar sind.

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

11

Bei Ausleitung der Tropfen tauchen diese unmittelbar in das Kühlmedium 10 ein, dessen Temperatur unterhalb der Schmelztemperatur liegt. Trotz der plötzlich einwirkenden Abkühlung erstarren die Tropfen nicht sofort an der Austrittsöffnung der Düse 7 sondern bewegen sich noch in flüssigem Zustand innerhalb des Kühlmediums 10, wodurch sich eine perfekte Kugelform der Tropfen ausbilden kann.

Die Geschwindigkeit des Erstarrungsprozesses der Tropfen ist durch die Temperatur des Kühlmediums 10, insbesondere der Temperaturgradienten in Längsrichtung der Säule 13 vorgebar. In jedem Fall sind der Sammelbehälter 11 und insbesondere die Höhe der Säule 13 sowie die Temperatur des Kühlmediums 10 derart dimensioniert, dass die Tropfen erstarrt sind, bevor sie den Boden des Sammelbehälters 11 erreichen. Dadurch werden unerwünschte Verformungen der kugelförmigen Metallteilchen 2 vermieden.

Anhand der folgenden Beispiele wird die Erfindung näher erläutert:

Beispiel 1:

Zur Herstellung von kugelförmigen Metallteilchen 2 mit 0,76 mm Durchmesser aus der eutektischen Legierung SnPb37 wird die metallische Schmelze 3 über eine Düse 7 in Form einer Keramikdüse mit einem Durchmesser von 0,4 mm in ein pflanzliches Öl (Rizinus) eingeleitet, welches das Kühlmedium 10 bildet. Der Düsenaustritt sitzt 1 mm unterhalb der Oberfläche des Kühlmediums 10. Die maximale Temperatur des Öls liegt dabei an der Oberfläche bei 130°C und nimmt nach unten ab. Die Düse 7 ist mit einer Schwingungsfrequenz von 500 Hz beaufschlagt. Die resultierenden kugelförmigen Metallteilchen 2 sind perfekt in der Kugelgestalt und besitzen eine metallisch glänzende Oberfläche.

Beispiel 2:

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

12

Zur Herstellung von kugelförmigen Metallteilchen 2 mit Durchmessern von 0,5 mm aus der hochschmelzenden Pb-Basislegierung Pb95Sn5 mit einem Schmelzbereich von 305 - 315°C wird die auf 360°C aufgeheizte Schmelze 3 in ein von Silikonöl gebildetes Kühlmedium 10 mit einer Temperatur von 280°C geleitet. Innerhalb der ersten 30 cm der Ölsäule innerhalb der Säule 13 des Sammelbehälters 11 fällt die Temperatur auf unter 200°C ab. Die Düse 7 besteht aus einem nichtrostenden Edelstahl. Die Austrittsöffnung weist einen Durchmesser von 0,29 mm auf und schwingt mit einer Frequenz von 800 Hz. Die derart erzeugten kugelförmigen Metallteilchen 2 besitzen eine enge Größenverteilung. 85 % der Kugeln weichen nicht mehr als $\pm 15 \mu\text{m}$ von dem Soll Durchmesser von 500 μm ab.

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

13

**Verfahren und Vorrichtung zur Herstellung
von kugelförmigen Metallteilchen**

Bezugszeichenliste

1. Vorrichtung
- 5 2. Metallteilchen
3. Schmelze
4. Behälter
5. Schutzgasatmosphäre
6. Schmelzenauslauf
- 10 7. Düse
8. Schmelzstrahl
9. Schwingungselement
10. Kühlmedium
11. Sammelbehälter
- 15 12. Grundkörper
13. Säule
14. Ablassvorrichtung

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

14

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von kugelförmigen Metallteilchen aus einer Schmelze, wobei zur Erzeugung von Tropfen ein Schmelzstrahl Vibrationen ausgesetzt und über
5 wenigstens eine Düse geführt wird, und wobei zur Erzeugung der kugelförmigen Metallteilchen die Tropfen am Ausgang der Düse zur Verfestigung einem Kühlmedium zugeführt werden,
dadurch gekennzeichnet,
10 dass die Düse (7) in das Kühlmedium (10) eintaucht, und dass die Temperatur des Kühlmediums (10) unterhalb der Schmelztemperatur der Schmelze (3) liegt.
2. Verfahren nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,
15 dass die Düse (7) in ein ruhendes, flüssiges Kühlmedium (10) eingetaucht wird.
3. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 oder 2,
dadurch gekennzeichnet,
20 dass die Temperatur des Kühlmediums (10) mit zunehmender Distanz zur Austrittsöffnung der Düse (7) kontinuierlich abnimmt.
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 oder 3,
dadurch gekennzeichnet,
25 dass die Temperatur des Kühlmediums (10) im Bereich der Austrittsöffnung der Düse (7) mindestens 10°C unterhalb der Schmelztemperatur der Schmelze (3) liegt.
5. Verfahren nach Anspruch 4,
dadurch gekennzeichnet,
30 dass die Temperatur des Kühlmediums (10) im Bereich der Austrittsöffnung der Düse (7) höchstens 100°C unterhalb der Schmelztemperatur der Schmelze (3) liegt.

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

15

6. Verfahren nach einem der Ansprüche 4 oder 5,
dadurch gekennzeichnet,
dass die Temperatur des Kühlmediums (10) im Bereich der
Austrittsöffnung der Düse (7) in einem Bereich von 20°C
5 bis 70°C unterhalb der Schmelztemperatur der Schmelze
(3) liegt.
7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 - 6,
dadurch gekennzeichnet,
dass die Temperatur des Schmelzstrahls (8) im Bereich
10 der Düse (7) und der Zuleitung zur Düse (7) wenigstens
10°C oberhalb der Schmelztemperatur liegt.
8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 - 7,
dadurch gekennzeichnet,
dass der Schmelzpunkt der Metallteilchen (2) unterhalb
15 von 500°C liegt.
9. Verfahren nach Anspruch 8,
dadurch gekennzeichnet,
dass die Metallteilchen (2) als Lot-Kugeln ausgebildet
sind.
- 20 10. Verfahren nach einem der Ansprüche 8 oder 9,
dadurch gekennzeichnet,
dass bei Schmelztemperaturen von wenigstens 300°C als
Kühlmedium (10) Silikonöle verwendet werden.
- 25 11. Verfahren nach einem der Ansprüche 8 - 10,
dadurch gekennzeichnet,
dass bei Schmelztemperaturen dicht unterhalb von 300°C
als Kühlmedium (10) Mineralöle, synthetische Kühlmedi-
en, Polyethylenglykole oder Paraffinöle verwendet wer-
den.
- 30 12. Verfahren nach einem der Ansprüche 8 - 11,
dadurch gekennzeichnet,
dass bei Schmelztemperaturen weit unterhalb von 300°C

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

16

als Kühlmedium (10) biologisch abbaubare Öle verwendet werden.

13. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 - 12,
da durch gekennzeichnet,
5 dass die auf den Schmelzstrahl (8) wirkenden Vibrationen eine konstante Frequenz und eine konstante Amplitude aufweisen.
14. Vorrichtung zur Durchführung des Verfahrens nach einem
der Ansprüche 1 - 13,
10 mit Mitteln zur Erzeugung von Tröpfchen aus einer Schmelze, welche Mittel zur Erzeugung von Vibrationen innerhalb eines Schmelzstrahls und wenigstens eine Düse, über welche der Schmelzstrahl geführt ist, aufweisen, wobei zur Erzeugung kugelförmiger Metallteilchen
15 die Tröpfchen am Ausgang der Düse einem Kühlmedium zugeführt sind,
da durch gekennzeichnet,
dass die Düse (7) in das Kühlmedium (10) eingetaucht
ist, und dass die Temperatur des Kühlmediums (10) unterhalb der Schmelztemperatur der Schmelze (3) liegt.
20
15. Vorrichtung nach Anspruch 14,
da durch gekennzeichnet,
dass die Schmelze (3) in einem Behälter (4) angeordnet
ist, in welchen als Mittel zur Erzeugung von Vibrationen eine schwingende Platte eingebracht ist.
25
16. Vorrichtung nach Anspruch 15,
da durch gekennzeichnet,
dass an der Unterseite des Behälters (4) ein rohrförmiger Schmelzenauslauf (6) ausmündet, über welchen der
30 Schmelzenstrahl der Düse (7) zugeführt ist.
17. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 14 - 16,
da durch gekennzeichnet,
dass an die Düse (7) und/oder den Schmelzenauslauf (6)

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

17

ein Schwingungselement (9) gekoppelt ist, mittels dessen die Düse (7) in Schwingungen versetzt ist.

18. Vorrichtung nach Anspruch 17,
dadurch gekennzeichnet,
5 dass das Schwingungselement (9) von einem piezoelektrischen Element oder von einem elektromagnetischen Schwingungselement (9) gebildet ist.
19. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 14 - 18,
10 dadurch gekennzeichnet,
dass der Durchmesser der Austrittsöffnung an die Größe der zu erzeugenden Metallteilchen (2) angepasst ist.
20. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 14 - 19,
15 dadurch gekennzeichnet,
dass die Frequenz der Vibrationen in Abhängigkeit der Strömungsgeschwindigkeit des Schmelzstrahls (8) an die Größe der zu erzeugenden Metallteilchen (2) angepasst ist.
21. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 14 - 20,
20 dadurch gekennzeichnet,
dass die Düse (7) und der Schmelzenauslauf (6) mittels eines Heizelements beheizbar sind.
22. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 14 - 21,
25 dadurch gekennzeichnet,
dass diese eine Mehrfachanordnung von Düsen (7) aufweist.
23. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 14 - 22,
dadurch gekennzeichnet,
dass diese eine Druckvorrichtung aufweist, mittels derer der Schmelzstrahl (8) in Richtung der oder jeder
30 Düse (7) gepresst ist.
24. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 14 - 23,
dadurch gekennzeichnet,

WO 02/087810

PCT/EP02/04652

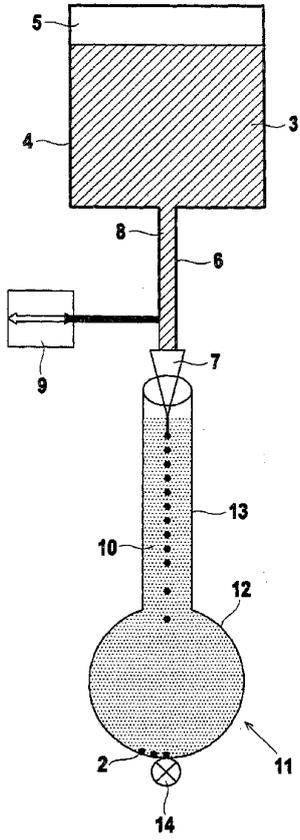
18

dass diese Mittel zur kontinuierlichen Zufuhr der Schmelze (3) aufweist.

25. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 14 - 24,
dadurch gekennzeichnet,
5 dass das Kühlmedium (10) in einem Sammelbehälter (11) mit einer hohlzylindrischen Säule (13) angeordnet ist, wobei die Düse (7) über die offene Oberseite der Säule (13) in den Sammelbehälter (11) geführt ist.
26. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 24 oder 25,
10 dadurch gekennzeichnet,
dass die Temperatur des Kühlmediums (10) in der Säule (13) von der Oberseite zum unteren Ende der Säule (13) hin kontinuierlich abnimmt.
27. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 25 oder 26,
15 dadurch gekennzeichnet,
dass im Bereich des Bodens des Sammelbehälters (11) eine Ablassvorrichtung (14) zur Entnahme von Metallteilchen (2) aus dem Sammelbehälter (11) vorgesehen ist.
28. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 14 - 27,
20 dadurch gekennzeichnet,
dass diese vakuumdicht gekapselt ist.

Fig. 1

1



【 国際公開パンフレット (コレクション) 】

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
7. November 2002 (07.11.2002)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 02/087810 A3

- (51) Internationale Patentklassifikation: B22F 9/08
- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): OMG AG & CO. KG [DE/DE]; Postfach 1351, 63403 Hanau (DE).
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP02/04652
- (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): KEMPF, Bernd [DE/DE]; Riemenschneiderstrasse 38, 63839 Kleinwallstadt (DE); FTASCHKE, Georg [DE/DE]; Berghef 93, 61191 Roshach (DE); RINGELSTEIN, Hans-Martin [DE/DE]; Inheldener Strasse 22, 60385 Frankfurt am Main (DE); FUCHS, Roland [DE/DE]; Horbacher Strasse 26b, 63826 Geiselbach (DE); DIVICENZO, Calogero [IT/DE]; Lübecker Weg 8, 63454 Hanau-Mittelbuchen (DE).
- (22) Internationales Anmeldedatum: 26. April 2002 (26.04.2002)
- (25) Einreichungssprache: Deutsch
- (26) Veröffentlichungssprache: Deutsch
- (30) Angaben zur Priorität: 101 20 612.7 26. April 2001 (26.04.2001) DE

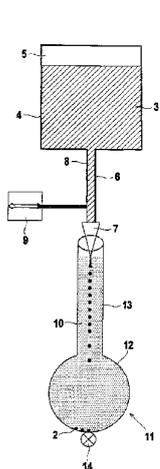
[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: METHOD AND DEVICE FOR PRODUCING SPHERICAL METAL PARTICLES

(54) Bezeichnung: VERFAHREN UND VORRICHTUNG ZUR HERSTELLUNG VON KUGELFÖRMIGEN METALLTEILCHEN

(57) Abstract: The invention relates to a method and device (1) for the production of spherical metal particles (2) from a melt (3). In order to produce drops, a jet of melt (8) is exposed to vibrations and guided via at least one nozzle (7). In order to produce the spherical metal particles (2), the drops at the outlet of said nozzle (7) are conducted to a cooling medium (10) for solidification. The nozzle (7) dips into the cooling medium (10), the temperature of the cooling medium (10) being below that of the melting temperature of the melt (3).

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft eine Verfahren und eine Vorrichtung (1) zur Herstellung von kugelförmigen Metallteilchen (2) aus einer Schmelze (3). Zur Erzeugung von Tropfen wird ein Schmelzstrahl (8) Vibrationen ausgesetzt und über wenigstens eine Düse (7) geführt. Zur Erzeugung der kugelförmigen Metallteilchen (2) werden die Tropfen am Ausgang der Düse (7) zur Verfestigung einem Kühlmedium (10) zugeführt. Die Düse (7) taucht in das Kühlmedium (10) ein, wobei die Temperatur des Kühlmediums (10) unterhalb der Schmelztemperatur der Schmelze (3) liegt.



WO 02/087810 A3

WO 02/087810 A3 

(74) Anwalt: VOSSIUS & PARTNER; Siebertstrasse 4,
81675 München (DE).

Veröffentlicht:
— mit internationalem Recherchenbericht

(81) Bestimmungsstaaten (national): JP, US.

**(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen
Recherchenberichts:** 5. Juni 2003

(84) Bestimmungsstaaten (regional): europäisches Patent (AT,
BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC,
NL, PT, SI, TR).

*Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe
der PCT-Gazette verwiesen.*

【手続補正書】

【提出日】平成15年5月21日(2003.5.21)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

熔融体からボール状の金属粒子を製造するための方法であって、液滴を形成するために熔融体噴流を振動にさらして、少なくとも1つのノズルを介して案内し、ボール状の金属粒子を形成するためにノズルの出口で液滴を冷却媒体に供給して凝固させる形式の方法において、ノズル(7)を冷却媒体(10)中に浸漬させ、冷却媒体(10)の温度を熔融体(3)の熔融温度よりも下に設定することを特徴とする、ボール状の金属粒子を製造するための方法。

【請求項2】

ノズル(7)を、静止した、有利には液状の冷却媒体(10)中に浸漬させる、請求項1記載の方法。

【請求項3】

ノズル(7)の流出開口に対する距離が増大するにつれて、冷却媒体(10)の温度を連続的に減少させる、請求項1または2記載の方法。

【請求項4】

ノズル(7)の流出開口の範囲における冷却媒体(10)の温度を、熔融体(3)の熔融温度より最小でも10 低く設定する、請求項2または3記載の方法。

【請求項5】

ノズル(7)の流出開口の範囲における冷却媒体(10)の温度を、熔融体(3)の熔融温度より最大でも100 低く設定する、請求項2または3記載の方法。

【請求項6】

ノズル(7)の流出開口の範囲における冷却媒体(10)の温度を、熔融体(3)の熔融温度よりも20~70 低い温度範囲に設定する、請求項4または5記載の方法。

【請求項7】

ノズル(7)および該ノズル(7)への供給管路の範囲における熔融体噴流(8)の温度を、熔融体(3)の熔融温度より最小でも10 高く設定する、請求項1から6までのいずれか1項記載の方法。

【請求項8】

金属粒子(2)の融点が500 よりも下にある、請求項1から7までのいずれか1項記載の方法。

【請求項9】

金属粒子(2)をはんだボールとして形成する、請求項8記載の方法。

【請求項10】

少なくとも300 の熔融温度の場合に、冷却媒体(10)としてシリコン油を使用する、請求項8または9記載の方法。

【請求項11】

300 のすぐ下の熔融温度の場合に、冷却媒体(10)として鉱油、合成冷却媒体、ポリエチレングリコールまたはパラフィン油を使用する、請求項8から10までのいずれか1項記載の方法。

【請求項12】

300 よりも著しく低い熔融温度の場合に、冷却媒体(10)として生分解性油を使用する、請求項8から11までのいずれか1項記載の方法。

【請求項13】

溶融体噴流（８）に作用する振動が、一定の周波数と一定の振幅とを有している、請求項１から１２までのいずれか１項記載の方法。

【請求項１４】

請求項１から１３までのいずれか１項記載の方法を実施するための装置であって、溶融体から液滴を形成するための手段が設けられており、該手段が、溶融体噴流内に振動を発生させるための手段と、少なくとも１つのノズルとを有しており、該ノズルを介して溶融体噴流が案内されており、ボール状の金属粒子を形成するためにノズルの出口で液滴が冷却媒体に供給されるようになっていている形式のものにおいて、冷却媒体（１０）が、中空円筒状のコラム（１３）を備えた捕集容器（１１）内に配置されており、ノズル（７）が、前記コラム（１３）の開いた上側を介して前記捕集容器（１１）内に案内されており、ノズル（７）が冷却媒体（１０）中に浸漬されており、冷却媒体（１０）の温度が溶融体（３）の溶融温度よりも下に設定されていることを特徴とする、ボール状の金属粒子を製造するための装置。

【請求項１５】

溶融体（３）が容器（４）内に配置されており、該容器（４）内に、振動を発生させるための手段として振動プレートが導入されている、請求項１４記載の装置。

【請求項１６】

容器（４）の下側から管状の溶融体流出部（６）が導出されており、該溶融体導出部（６）を介して溶融体噴流（８）がノズル（７）に供給されている、請求項１５記載の装置。

【請求項１７】

ノズル（７）および/または溶融体流出部（６）に振動エレメント（９）が結合されており、該振動エレメント（９）によってノズル（７）に振動が加えられている、請求項１４から１６までのいずれか１項記載の装置。

【請求項１８】

振動エレメント（９）が、圧電素子または電磁式の振動エレメント（９）により形成されている、請求項１７記載の装置。

【請求項１９】

ノズル（７）の流出開口の直径が、形成したい金属粒子（２）のサイズに適合されている、請求項１４から１８までのいずれか１項記載の装置。

【請求項２０】

振動の周波数が、溶融体噴流（８）の流速に関連して、形成したい金属粒子（２）のサイズに適合されている、請求項１４から１９までのいずれか１項記載の装置。

【請求項２１】

ノズル（７）と溶融体流出部（６）とが、加熱エレメントによって加熱可能である、請求項１４から２０までのいずれか１項記載の装置。

【請求項２２】

当該装置が、ノズル（７）の多重配列を有している、請求項１４から２１までのいずれか１項記載の装置。

【請求項２３】

当該装置が圧力装置を有しており、該圧力装置によって溶融体噴流（８）が、前記ノズル（７）の方向に押圧されている、請求項１４から２２までのいずれか１項記載の装置。

【請求項２４】

当該装置が、溶融体（３）を連続的に供給するための手段を有している、請求項１４から２３までのいずれか１項記載の装置。

【請求項２５】

コラム（１３）内の冷却媒体（１０）の温度が、該コラム（１３）の上側から下端部に向かって連続的に減少している、請求項１４から２４までのいずれか１項記載の装置。

【請求項２６】

前記捕集容器（１１）の底部の範囲に、該捕集容器（１１）から金属粒子（２）を取り出

すための排出装置（ 1 4 ）が設けられている、請求項 1 4 から 2 5 までのいずれか 1 項記載の装置。

【請求項 2 7】

当該装置が真空密にカプセル封入されている、請求項 1 4 から 2 6 までのいずれか 1 項記載の装置。

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International Application No. PCT/EP 02/04652
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 322F9/08		
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) IPC 7 B22F		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data bases consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)		
EPO-Internal		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 00 51746 A (CHANDRA SANJEEV ;JIVRAJ RAHIM (CA)) 8 September 2000 (2000-09-08) page 9, line 14 - line 26; claims 1,5,9-15,19-22	1-28
A	US 3 729 278 A (LYSHER W) 24 April 1973 (1973-04-24) claim 1	1, 13, 14, 16-20, 25
A	DE 40 12 197 A (HERAEUS GMBH W C) 17 October 1991 (1991-10-17) cited in the application claims 1,6,8,11,15,18,20	26
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document disclosing 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 claims) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document relating 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 "Z" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report
9 January 2003		22/01/2003
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentstrasse 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 940-2340, Tx. 31 651 epo nl, Fax (+31-70) 940-5016		Authorized officer Schruers, H

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family membersInternational Application No.
PCT/EP 02/04652

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 0051746	A	08-09-2000	AU 2790300 A WO 0051746 A1 US 6446878 B1	21-09-2000 08-09-2000 10-09-2002
US 3729278	A	24-04-1973	US 3933955 A	20-01-1976
DE 4012197	A	17-10-1991	DE 4012197 A1 WO 9116160 A1	17-10-1991 31-10-1991

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 02/04652

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 7 B22F9/08 Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK		
B. RECHERCHIERTE GEBIETE Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikations-symbole) IPK 7 B22F Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen		
Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) EPO-Internal		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 00 51746 A (CHANDRA SANJEEV ;JIVRAJ RAHIM (CA)) 8. September 2000 (2000-09-08) Seite 9, Zeile 14 - Zeile 26; Ansprüche 1,5,9-15,19-22	1-28
A	US 3 729 278 A (LYSHER W) 24. April 1973 (1973-04-24) Anspruch 1	1,13,14,16-20,25
A	DE 40 12 197 A (HERAEUS GMBH W C) 17. Oktober 1991 (1991-10-17) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche 1,6,8,11,15,18,20	26
<input type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen		
<input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als Referenzdokument anzusehen ist. "E" Älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist. "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zurechtzufahren, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbereich genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (siehe Anmerkung). "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht. "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem angegebenen Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist. "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist. "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfindertätiger Tätigkeit beruhend betrachtet werden. "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfindertätiger Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nachvollziehbar ist. "Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist.		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche		Absenddatum des internationalen Recherchenberichts
9. Januar 2003		22/01/2003
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.O. 5618 Patentamt 2 NL - 2590 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 051 epo nl, Fax. (+31-70) 340-2016		Bevollmächtigter Sediensatler Schruers, H

Formblatt PCT/ISA/210 (Eilat 2) Juli 1995

INTERNATIONAL RESEARCH REPORT		Internationales Patenzzentrum	
Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören		PCT/EP 02/04652	
Im Recherchenbericht angeführtes Patentsdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 0051746 A	08-09-2000	AU 2790300 A	21-09-2000
		WO 0051746 A1	08-09-2000
		US 6446878 B1	10-09-2002
US 3729278 A	24-04-1973	US 3933955 A	20-01-1976
DE 4012197 A	17-10-1991	DE 4012197 A1	17-10-1991
		WO 9116160 A1	31-10-1991

フロントページの続き

- (74)代理人 100114890
弁理士 アインゼル・フェリックス＝ラインハルト
- (74)代理人 230100044
弁護士 ラインハルト・アインゼル
- (72)発明者 ベルント ケンプフ
ドイツ連邦共和国 クラインヴァルシュタット リーメンシュナイダーシュトラッセ 3 8
- (72)発明者 ゲオルク ブタシェク
ドイツ連邦共和国 ロスバッハ ベルクホーフ 9 3
- (72)発明者 ハンス・マルティン リンゲルシュタイン
ドイツ連邦共和国 フランクフルト アム マイン インハイデナー シュトラッセ 2 2
- (72)発明者 ローラント フックス
ドイツ連邦共和国 ガイゼルバッハ ホルバッハー シュトラッセ 2 6 ベー
- (72)発明者 カロジェーロ ディヴィチエンツォ
ドイツ連邦共和国 ハーナウ - ミッテルブーヘン リューベッカー ヴェーク 8
- Fターム(参考) 4K017 AA04 CA01 DA01 DA09 EA02 EB07 EB08 EB21 EC04 FA22