

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2007年2月8日 (08.02.2007)

PCT

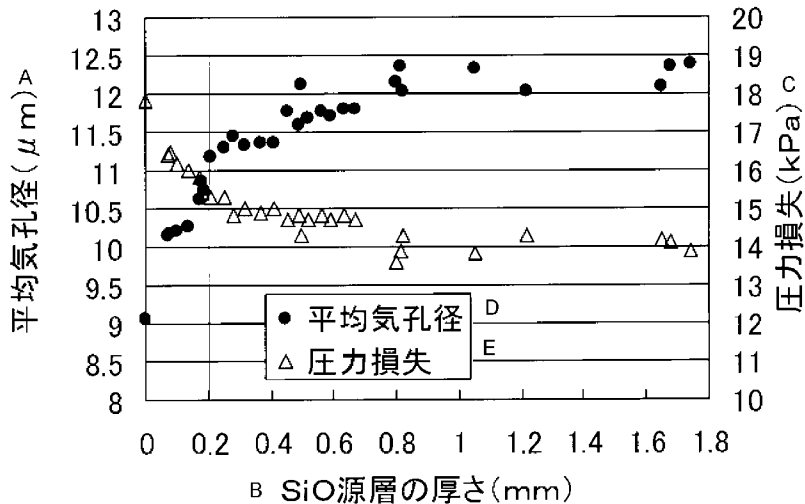
(10) 国際公開番号
WO 2007/015550 A1

- (51) 国際特許分類:
C04B 35/565 (2006.01) C04B 35/573 (2006.01)
C04B 35/571 (2006.01) C04B 35/64 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2006/315421
- (22) 国際出願日: 2006年8月3日 (03.08.2006)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2005-225341 2005年8月3日 (03.08.2005) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): イビデン株式会社 (IBIDEN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5038604 岐阜県大垣市神田町2丁目1番地 Gifu (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 田島晃成 (TAJIMA, Kosei) [JP/JP]; 〒5010695 岐阜県揖斐郡揖斐川町北方1-1 イビデン株式会社大垣北事業場内 Gifu (JP).
- (74) 代理人: 安富康男, 外 (YASUTOMI, Yasuo et al.); 〒5320003 大阪府大阪市淀川区宮原3丁目5番36号 新大阪MT-2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, 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.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD,

[続葉有]

(54) Title: JIG FOR SILICON CARBIDE FIRING AND METHOD FOR PRODUCING POROUS SILICON CARBIDE BODY

(54) 発明の名称: 炭化珪素質焼成用治具及び多孔質炭化珪素体の製造方法



- A AVERAGE PORE DIAMETER (μm)
- B THICKNESS OF SiO SOURCE LAYER (mm)
- C PRESSURE LOSS (kPa)
- D AVERAGE PORE DIAMETER
- E PRESSURE LOSS

(57) Abstract: Disclosed is a jig used for firing a silicon carbide formed body which enables to surely fire a silicon carbide formed body by surely supplying SiO into the firing system. Specifically disclosed is a jig for silicon carbide firing on which a silicon carbide formed body is placed during firing of the silicon carbide formed body. This jig for silicon carbide firing is characterized in that an SiO source layer is formed in at least a part of the surface of the jig for silicon carbide firing.

(57) 要約: 本発明は、炭化珪素質成形体を焼成する際に使用する治具であって、焼成系内に確実にSiOを供給することができるため、炭化珪素質成形体の焼結を確実に進行させることができる炭化珪

[続葉有]



WO 2007/015550 A1



SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 国際調査報告書
- 請求の範囲の補正の期限前の公開であり、補正書受領の際には再公開される。

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

炭化珪素質焼成用治具及び多孔質炭化珪素体の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、炭化珪素質成形体を焼成する際に用いる炭化珪素質焼成用治具、及び、多孔質炭化珪素体の製造方法に関する。

背景技術

[0002] バス、トラック等の車両や建設機械等の内燃機関から排出される排気ガス中に含有されるパーティキュレートが環境や人体に害を及ぼすことが最近問題となっている。

この排気ガスを多孔質セラミックを通過させることにより、排気ガス中のパーティキュレートを捕集して排気ガスを浄化するセラミックフィルタが種々提案されている。

[0003] セラミックフィルタ40は、通常、図2に示すように多孔質セラミック体である多孔質炭化珪素体50がシール材層41を介して複数個結束され、その周囲にシール材層42が形成されている。また、この多孔質炭化珪素体50は、図3に示すように、長手方向に多数のセル51が並設され、セル51同士を隔てるセル壁53がフィルタとして機能するようになっている。

[0004] すなわち、多孔質炭化珪素体50に形成されたセル51は、図3(b)に示すように、排気ガスの入り口側又は出口側の端部のいずれかが封止材52により目封じされ、一のセル51に流入した排気ガスは、必ずセル51を隔てるセル壁53を通過した後、他のセル51から流出するようになっており、排気ガスがこのセル壁53を通過する際、パーティキュレートがセル壁53部分で捕捉され、排気ガスが浄化される。

このような多孔質炭化珪素体50は、極めて耐熱性に優れ、再生処理等も容易であるため、種々の大型車両やディーゼルエンジン搭載車両等に使用されている。

[0005] 従来、このような多孔質炭化珪素体を製造する際には、まず、炭化珪素粉末とバインダと分散媒液とを混合して成形体製造用の混合組成物を調製した後、この混合組成物の押出成形等を行うことにより、炭化珪素質成形体を作製する。

[0006] 次に、得られた炭化珪素質成形体をヒータ等を用いて乾燥させ、一定の強度を有し、容易に取り扱うことができる炭化珪素質成形体の乾燥体を製造する。

[0007] この乾燥工程の後、炭化珪素質成形体を酸素含有雰囲気下において、300～650℃に加熱し、有機バインダ成分中の溶剤を揮発させるとともに、樹脂成分を分解消失させる脱脂工程を行い、さらに、炭化珪素質粉末を不活性ガス雰囲気下、2000～2200℃に加熱することにより焼結させる焼成工程を経て、多孔質炭化珪素質体が製造される。

[0008] 図4(a)は、炭化珪素質成形体の焼成工程に用いる治具を模式的に示した平面図であり、(b)は、上記治具を多段に積み重ねて焼成する様子を示した正面図である。従来の炭化珪素質成形体の焼成工程では、まず、脱脂工程を経た炭化珪素質成形体32を、図4に示すような上面が開放された箱型の治具60内に複数個載置し、この炭化珪素質成形体32が載置された治具60を複数個積み重ねて積層体を形成する。そして、この積層体を支持台61上に載置した後、ベルトコンベア等の移動台上に搬送し、ヒータで炭化珪素質成形体32を加熱、焼成することにより、多孔質炭化珪素質体を製造していた。

[0009] このような炭化珪素質成形体の焼成工程では、下記反応式(1)に示す反応が右側に進行して、炭化珪素質の焼結が進行することとなる。

[0010] [数1]



[0011] そして、この反応式(1)に示した反応を進行させるために、焼成用治具に炭素粒を敷き詰めて焼成を行う方法や、焼成炉内に発生する一酸化炭素を除去する手段を備えた焼成炉が提案されている(例えば、特許文献1、2参照)。

[0012] 特許文献1:特開2002-226271号公報

特許文献2:特開2002-249385号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0013] 一方、上記反応式(1)におけるSiOは、炭化珪素質材料中に不純物として含まれるSiO₂が、焼成工程で炭素と反応してSiOとなることをその供給源としている。そのため、原料中に多くのSiO₂が含まれる場合には、上述したような焼成用治具に炭素粒を敷き詰めて焼成を行う方法等と併用することにより、上記反応式(1)に示した炭化珪素質

の焼結が確実に進行することになる。

しかしながら、炭化珪素材料中に、不純物として含まれる SiO_2 の量が少ない場合には、 SiO の供給量が少ないため、上述したような焼成用治具に炭素粒を敷き詰めて焼成を行う方法等を使用したとしても、上記反応式(1)に示した焼結が進行しにくく、そのため、得られた炭化珪素質焼結体は、圧力損失が高い、曲げ強度が低い等、品質の点で改善の余地があるものであった。

[0014] 本発明は、このような課題を解決するためになされたものであり、炭化珪素質成形体を焼成する際に、確実に焼成系内に SiO を供給することができる炭化珪素質焼成用治具を提供することを目的とする。

また、本発明は、焼結を確実に進行させた多孔質炭化珪素体を製造する方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0015] 本発明の炭化珪素質焼成用治具は、炭化珪素質成形体を焼成する際に、炭化珪素質成形体を載置する炭化珪素質焼成用治具であって、上記炭化珪素質焼成用治具の表面の少なくとも一部に、 SiO 源層が形成されていることを特徴とする。

[0016] 本発明の炭化珪素質焼成用治具において、上記 SiO 源層の厚さは、0.2mm以上であることが望ましい。

また、上記 SiO 源層は、ハイドライドポリカルボシランを用いて形成されていることが望ましい。

また、上記 SiO 源層は、 SiC 粒子と SiO_2 粒子とを含む混合物を用いて形成されていることも望ましい。

また、上記 SiO 源層は、再結晶 SiC からなる層であることも望ましい。

[0017] また、本発明の多孔質炭化珪素体の製造方法は、炭化珪素粉末とバインダとを含む柱状の炭化珪素質成形体を脱脂した後、 SiO 源を有する系内で、上記炭化珪素質成形体の焼成工程を行うことを特徴とする。

[0018] 上記多孔質炭化珪素体の製造方法において、上記焼成工程は、本発明の炭化珪素質焼成用治具に上記炭化珪素質成形体を載置して行うことが望ましい。

発明の効果

[0019] 本発明の炭化珪素質焼成用治具では、炭化珪素質焼成用治具の表面の少なくとも一部に、SiO源層が形成されているため、炭化珪素質成形体を焼成する際に、焼成系内に確実にSiOを供給することができる。そして、この炭化珪素質焼成用治具を用いることにより、炭化珪素質成形体の焼結を確実に進行させることができる。

また、上記多孔質炭化珪素体は、セラミックフィルタに好適に用いることができる。

[0020] また、本発明の多孔質炭化珪素体の製造方法によれば、SiO源を有する系内で焼成を行うため、炭化珪素質成形体の焼結を確実に進行させることができる。

発明を実施するための最良の形態

[0021] まず、本発明の炭化珪素質焼成用治具について説明する。

本発明の炭化珪素質焼成用治具は、炭化珪素質成形体を焼成する際に、炭化珪素質成形体を載置する炭化珪素質焼成用治具であって、

上記炭化珪素質焼成用治具の表面の少なくとも一部に、SiO源層が形成されていることを特徴とする。

[0022] 本発明の炭化珪素質焼成用治具では、炭化珪素質焼成用治具の表面の一部又は全部に、SiO源層が形成されている。

上記SiO源層の厚さの望ましい下限は、0.2mmある。0.2mm未満では、多孔質炭化珪素体を製造する際に、SiOの供給が不十分となり、炭化珪素の焼結が確実に進行しないからである。そして、このような多孔質炭化珪素体を用いたセラミックフィルタでは、圧力損失が高くなったり、曲げ強度が低くなったりすることがある。

上記SiO源層の厚さのより望ましい下限は、0.8mmである。上記SiO源層の厚さが0.8mm以上であると、所望の平均気孔径を有し、圧力損失が低く、かつ、ばらつきの少ない炭化珪素質焼成体を確実に製造することができるからである。

[0023] 一方、上記SiO源層の厚さの望ましい上限は、1.6mmである。上記SiO源層の厚さが1.6mmを超えても、炭化珪素質成形体の焼結を確実に進行させるとの効果は殆ど向上せず、1.6mmを超える厚さのSiO源層は、その形成に手間がかかるとともに、コストも増加することとなるからである。

さらに、1.6mmを超える厚さのSiO源層を形成しようとする、形成時に炭化珪素質

焼成用治具に反りが発生するおそれがあり、炭化珪素質焼成用治具に反りが発生すると、製造する多孔質炭化珪素体の品質の低下を招くおそれがあるからである。

[0024] 上記SiO源層は、炭化珪素質成形体を焼成する際にSiOを供給することができるものであれば特に限定されず、例えば、アリルヒドライドポリカルボシラン等のヒドライドポリカルボシラン等を用いて形成された層や、SiC粒子とSiO₂粒子とを含む混合物を用いて形成された層、再結晶SiCからなる層、反応焼結SiCからなる層等が挙げられる。

[0025] 上記SiO源層の形成方法としては、上記SiO源層が上記ヒドライドポリカルボシラン等を用いて成形された層である場合には、例えば、上記ヒドライドポリカルボシラン等を主成分とするポリマーを炭化珪素質焼成用治具のSiO源層を形成する領域に塗布し、その後、乾燥処理及び焼成処理を行う方法等が挙げられる。

上記ポリマーを塗布する方法としては、例えば、スプレーコーティング、ウォッシュコーティング、刷毛塗り、滴下、印刷等が挙げられる。

[0026] また、上記SiO源層の形成方法としては、上記SiO源層が上記SiC粒子とSiO₂粒子とを含む混合物を用いて形成された層である場合には、例えば、SiC粒子とSiO₂粒子とを含む混合物を、炭化珪素質焼成用治具のSiO源層を形成する領域に塗布又は載置し、その後乾燥処理及び焼成処理を行う方法や、上記混合物を化学蒸着、物理蒸着、熔融塩法、窒素拡散法、溶射等の被覆方法を用いて、炭化珪素質焼成用治具のSiO源層を形成する領域に被覆する方法等が挙げられる。

なお、上記混合物を塗布する方法としては、ヒドライドポリカルボシラン等を主成分とするポリマーを塗布する方法と同様の方法を用いることができる。

[0027] 上記SiC粒子とSiO₂粒子とを含む混合物において、上記SiC粒子の平均粒子径は、0.1~50 μmが望ましく、0.1~1.0 μmがより望ましい。また、上記SiC粒子は、α型SiCであってもよいし、β型SiCであってもよいし、両者が含まれていてもよい。また、上記SiC粒子とSiO₂粒子とを含む混合物において、上記SiO₂粒子は、望ましい平均粒子径の下限が0.1 μmで、上限が200 μmであり、より望ましい平均粒子径の下限が10 μmで、上限が150 μmである。また、上記SiO₂粒子の形状は特に限定されず、球状であってもよいし、破碎形状であってもよい。

[0028] また、上記SiC粒子とSiO₂粒子とを含む混合物を塗布又は載置する場合、上記混合物には、必要に応じて、有機溶媒が含まれていてもよい。上記混合物の塗布又は載置を容易に行うことができるからである。

上記有機溶媒としては、例えば、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ポリエチレングリコール、ベンゼン、メタノール等のアルコール等が挙げられる。

[0029] また、上記SiO源層の形成方法としては、上記SiO源層が再結晶SiCからなる層である場合には、焼成炉内をSiOガス、COガス雰囲気とし、SiC粒子とSiO₂粒子とを含む再結晶用原料を炭化珪素質焼成用治具上に載置した状態で、焼成処理を行うことにより、炭化珪素質焼成用治具の表面に再結晶SiCからなる層を形成する方法が挙げられる。

上記SiC粒子とSiO₂粒子とを含む再結晶用原料は、粉状であってもよいし、湿潤混合物の塊であってもよいし、任意の形状の成形体(多数のセルがセル壁を隔てて長手方向に並設された柱状の成形体(ハニカム成形体)を含む)であってもよい。

ここで、SiC粒子とSiO₂粒子とを含む再結晶用原料は、有機バインダが含まれていることが望ましく、この場合、その含有量は、上記SiC粒子及びSiO₂粒子の合計量の1~10重量%であることが望ましい。また、上記SiC粒子とSiO₂粒子とを含む再結晶用原料には、適宜、水を加えてもよい。

[0030] 上記SiC粒子とSiO₂粒子とを含む再結晶用原料において、上記SiC粒子の平均粒子径は、0.1~50 μmが望ましく、0.1~1.0 μmがより望ましい。また、上記SiC粒子は、α型SiCであってもよいし、β型SiCであってもよいし、両者が含まれていてもよい。

また、上記SiC粒子とSiO₂粒子とを含む再結晶用原料において、上記SiO₂粒子は、望ましい平均粒子径の下限が0.1 μmで、上限が200 μmであり、より望ましい平均粒子径の下限が10 μmで、上限が150 μmである。また、上記SiO₂粒子の形状は特に限定されず、球状であってもよいし、破碎形状であってもよい。

[0031] また、上記SiO源層として、上記再結晶SiCからなる層を形成する場合には、SiC粒子とSiO₂粒子とを含む再結晶用原料に代えて、表面にSiO₂膜が形成されたSiC粒

子を含む再結晶用原料を使用し、これ以外は、上述した方法と同様の方法を用いて炭化珪素質焼成用治具の表面に再結晶SiCからなる層を形成してもよい。

ここで、上記表面にSiO₂膜が形成されたSiC粒子を含む再結晶用原料は、粉状であってもよいし、湿潤混合物の塊であってもよいし、任意の形状の成形体（ハニカム成形体を含む）であってもよい。

上記表面にSiO₂膜が形成されたSiC粒子を含む再結晶用原料もまた、有機バインダが含まれていることが望ましく、その含有量は、上記表面にSiO₂膜が形成されたSiC粒子の1～10重量%であることが望ましい。また、適宜水を加えてもよい。

[0032] 上記表面にSiO₂膜が形成されたSiC粒子を含む再結晶用原料において、上記SiC粒子の平均粒子径は、0.1～50 μmが望ましく、0.1～1.0 μmがより望ましい。また、上記SiC粒子は、α型SiCであってもよいし、β型SiCであってもよいし、両者が含まれていてもよいが、α型SiCであることが望ましい。

[0033] また、上記再結晶用原料を用いて、焼成処理を行うことにより、再結晶SiCからなる層を形成する場合、上記焼成処理は、1400～2300℃で行えばよい。また、上記焼成処理前に、上記再結晶用原料に、乾燥処理や脱脂処理（200～500℃）を行ってもよい。

[0034] なお、上記再結晶用原料を炭化珪素質焼成用治具上に載置する場合、再結晶用原料の量や、再結晶用原料を載置する位置は特に限定されない。

また、上記再結晶用原料として、後述する多孔質炭化珪素体の製造方法における柱状の炭化珪素質成形体と同形状の再結晶用原料を使用すると、後述する多孔質炭化珪素体の製造方法で使用する製造ラインに変更を加えることなく、出発材料を変更するだけで、この製造ラインを炭化珪素質焼成用治具の作製に使用することができる点で有利である。

また、上記炭化珪素質成形体を作製するための押出成形機と、上記炭化珪素質成形体と同形状の再結晶用原料を作製するための押出成形機とを併設しておき、これ以外の製造ラインを共有することによっても、効率的に炭化珪素質焼成用治具の作製を行うことができる。

[0035] また、上記SiO源層の形成方法としては、上記SiO源層が反応焼結SiCからなる層

である場合には、Si(シリコン)とC(カーボン)とを含む混合物を炭化珪素質焼成用治具のSiO₂源層を形成する領域に塗布又は載置し、その後、例えば、約1800℃で焼成処理を行うことにより、反応焼結SiCからなる層を形成する方法等が挙げられる。

また、上記SiとCを含む混合物を塗布又は載置する場合、上記混合物には、必要に応じて、有機溶媒が含まれていてもよい。上記混合物の塗布又は載置を容易にすることができるからである。なお、上記有機溶媒の具体例としては、上記SiC粒子とSiO₂粒子とを含む混合物に含まれる有機溶媒と同様のものが挙げられる。

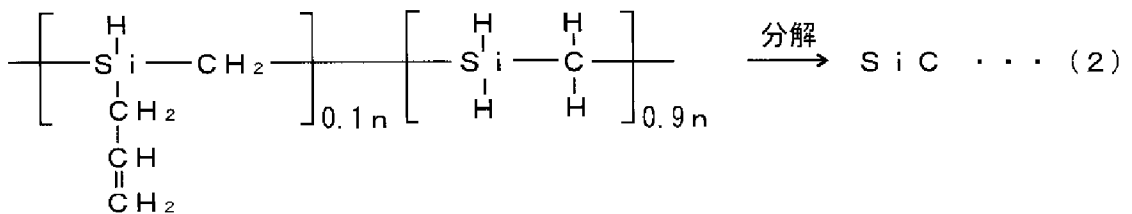
[0036] ここまで説明したようなSiO₂源層の形成方法では、上述したような方法を所定回数繰り返すことにより、上記SiO₂源層の厚さを調整することができる。

また、上述したような各形成方法において、焼成処理を行う場合には、焼成処理のみを所定回数繰り返したり、焼成処理時間を調製したりすることによっても、上記SiO₂源層の厚さを調整することができる。

[0037] このような方法を用いることにより、炭化珪素質焼成用治具にSiO₂源層を形成することができる。

具体的には、上記ハイドライドポリカルボシランを用いた場合には、下記反応式(2)に示す反応が進行して、炭化珪素質焼成用治具にSiO₂源層として働くSiCからなる層が形成されることとなると考えられる。なお、この方法では、形成したSiO₂源層の分だけ炭化珪素質焼成用治具の厚さが増加することとなる。

[0038] [数2]



[0039] また、上記SiC粒子とSiO₂粒子とを含む混合物を用いた場合には、下記反応式(3)、(4)に示す反応が右側に進行して、炭化珪素質焼成用治具にSiO₂源層として働くSiCからなる層が形成されることとなると考えられる。なお、この方法では、炭化珪素質焼成用治具を構成するカーボンとの反応によりSiO₂源層が形成されるため、炭化珪素質焼成用治具の厚さは、殆ど変化しない。

[0040] [数3]



[0041] [数4]



[0042] また、上記再結晶用原料を用いた場合には、上記再結晶用原料由来のSiCが、上記焼成処理において、炭化珪素質焼成用治具の表面に再結晶SiCとして付着し、再結晶SiCからなるSiO源層が形成されることとなる。

[0043] また、上記SiとCを含む混合物を用いた場合には、炭化珪素質焼成用治具の表面に反応焼結によりSiC層が形成され、反応焼結SiCからなるSiO源層が形成されることとなる。

[0044] そして、このようなSiCからなる層がSiO源層として働くのは、炭化珪素質成形体を焼成する際に、下記反応式(5)に示す反応が右側に進行して、焼成炉内に、SiOを供給することができるからである。

[0045] [数5]



[0046] また、上記炭化珪素質焼成用治具の材質としては、例えば、炭素材料等が挙げられる。上記反応式(1)に示した反応における炭素源となり、炭化珪素質成形体の焼結が確実に進行することとなるとともに、上記反応式(3)、(4)に示した反応によるSiO源層の形成に適しているからである。

上記炭素材料は、例えば、気孔を有するポーラスカーボン等であってもよい。

[0047] 上記炭化珪素質焼成用治具の形状は、通常、上面が開放された箱状であり(図1参照)、その底面(炭化珪素質成形体を載置する面)の一部又は全部にSiO源層が形成されている。また、その側面にもSiO源層が形成されていてもよい。

また、上記炭化珪素質焼成用治具は、その一部に切欠き部や貫通孔が形成されていてもよい。

このような貫通孔や切欠き部が形成されていると、上記炭化珪素質焼成用治具を多段に積み重ねて炭化珪素質成形体の焼成を行う際に、炭化珪素質焼成用治具内部を雰囲気ガスが流通し、炭化珪素質焼成用治具内に載置された炭化珪素質成形体

周囲の雰囲気温度を、治具の位置や治具内の設置した位置に関係なくほぼ均一にすることができるとともに、炭化珪素質成形体周囲の雰囲気中のSiC、SiO、Si等の成分濃度も均一化することができ、その結果、各炭化珪素質成形体を均一な条件下に焼成することができる。

[0048] 上記炭化珪素質焼成用治具には、カーボン粉末が保持されていてもよい。

上記炭化珪素質焼成用治具にカーボン粉末が保持されている場合、以下のような効果を楽しむことができる。

炭化珪素質成形体の焼成工程では、上記反応式(1)で示す反応により、炭化珪素質の焼結が進行することとなる。

ここで、SiOは、上述したように、炭化珪素質成形体中の不純物や、炭化珪素質焼成用治具に形成したSiO源層をその供給源としている。

一方、上記反応式(1)におけるC源は、上記炭化珪素質成形体中に存在する炭素や、炭化珪素質焼成用治具を構成する炭素をその供給源としている。

[0049] しかしながら、脱脂工程を経た炭化珪素質成形体中に存在する炭素量は微量なものであり、上記反応式(1)に示した反応によりすぐに消費され尽くしてしまう。また、炭化珪素質焼成用治具等を構成する炭素は、上記反応式(1)に示した反応における良好な炭素の供給源となり得るが、上記治具の表面部分にSiO源層を形成すると炭素を供給しにくくなる場合がある。

その結果、焼成工程の進行に伴って、上記反応式(1)に示した反応に供給される炭素量が減少し、対照的にSiOガスの濃度が高くなることとなり、高濃度のSiOガスと炭化珪素質成形体の大部分を構成するSiCとの間に下記反応式(6)

[0050] [数6]



[0051] に示す反応が右側に進行する。

そして、焼成中の炭化珪素質成形体中にSiが存在することとなり、このような炭化珪素質成形体では、焼結が進行しにくくなり、炭化珪素質粒子自体は粒成長をするものの、この粒成長した炭化珪素質粒子同士の結び付き、所謂、ネッキングが余り形成されず、製造する多孔質炭化珪素質体の強度にバラツキが発生し、強度が低下してしまうこ

ととなる。

これに対し、上述したように上記炭化珪素質焼成用治具にカーボン粉末が保持されている場合には、上記反応式(1)に示した反応において、確実に炭素が供給されることとなり、そのため、炭化珪素質成形体の焼結がより確実に進行することとなるのである。

[0052] 次に、本発明の多孔質炭化珪素体の製造方法について説明する。

本発明の多孔質炭化珪素体の製造方法は、炭化珪素粉末とバインダを含む柱状の炭化珪素質成形体を脱脂した後、SiO源を有する系内で、上記炭化珪素質成形体の焼成工程を行うことを特徴とする。

[0053] 図1(a)は、炭化珪素質焼成用治具が多段に積み重ねられた状態で焼成炉に運び込まれた状態を示す正面図であり、(b)は、炭化珪素質成形体が下駄材を介して積み重ねられた状態を示す部分拡大正面図である。

[0054] 本発明の多孔質炭化珪素体の製造方法では、まず、炭化珪素粉末とバインダを含む柱状の炭化珪素質成形体を作製する。本発明において、炭化珪素質成形体とは、脱脂処理及び焼成処理を経て炭化珪素質焼結体を得た際に、この炭化珪素質焼結体が炭化珪素を60重量%以上含有するものをいい、上記炭化珪素質焼結体は、炭化珪素を96重量%以上含有するものであることが望ましい。

上記炭化珪素質成形体の構造としては特に限定されず、例えば、上記背景技術で説明したような、多数のセルがセル壁を隔てて長手方向に並設された柱状のものや、その内部に多数の連通した気孔を有する柱状のもの等を挙げることができる。また、その形状は特に限定されず、例えば、円柱状、楕円柱状、角柱状等のものを挙げることができる。

なお、以下の説明においては、炭化珪素質成形体として、多数のセルがセル壁を隔てて長手方向に並設された柱状のものを用いることとする。

[0055] 上記炭化珪素粉末の粒径は特に限定されないが、後の焼成過程で収縮が少ないものが好ましく、例えば、0.3~50 μ m程度の平均粒子径を有する粉末100重量部と0.1~1.0 μ m程度の平均粒子径を有する粉末5~65重量部とを組み合わせるのが好ましい。

[0056] 上記バインダとしては特に限定されないが、例えば、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ポリエチレングリコール等を挙げることができる。

上記バインダの配合量は、通常、炭化珪素粉末100重量部に対して、1～10重量部程度が好ましい。

[0057] 上記分散媒液としては特に限定されないが、例えば、メタノール等のアルコール、ベンゼン等の有機溶媒、水等を挙げることができる。

上記分散媒液は、混合組成物の粘度が一定範囲内となるように、適量配合される。

[0058] これら炭化珪素粉末とバインダと分散媒液等とを、アトライター等で混合した後、ニーダー等で十分に混練し、押出成形、乾燥を行うことにより、炭化珪素粉末とバインダとを含む柱状の炭化珪素質成形体を作製する。

なお、本発明の多孔質炭化珪素体の製造方法では、炭化珪素質成形体中に不純物として含まれる SiO_2 の量は特に限定されないが、特に、 SiO_2 の量が0.03重量%以下と少ない炭化珪素質脱脂体であっても、後の焼成工程において、確実に焼結させることができる。

[0059] この後、上記工程により作製された炭化珪素質成形体の脱脂を行う。

上記炭化珪素質成形体の脱脂工程では、通常、上記炭化珪素質成形体を炭化珪素質焼成用治具内に載置した後、脱脂炉に搬入し、酸素含有雰囲気下、300～650℃に加熱する。

これにより、バインダ等が揮散するとともに、分解、消失し、ほぼ炭化珪素粉末のみが残留する。

[0060] 上記炭化珪素質成形体を炭化珪素質焼成用治具内に載置する際、底面と間隔を空けて炭化珪素質成形体を支持するために、図1(b)に示すように、下駄材35を炭化珪素質焼成用治具10の底面に載置してもよい。

また、上記下駄材は、本発明の炭化珪素質焼成用治具に一体形成されたものであってもよい。下駄材を載置することにより、炭化珪素質焼成用治具の底面に炭化珪素質成形体の脱脂体や焼結体がくっついて欠け等が生じるのを防止することができる。

[0061] 焼成工程では、図1(a)に示すように、脱脂した炭化珪素質成形体32を、炭化珪素

質焼成用治具10内に載置し、この炭化珪素質成形体32が載置された炭化珪素質焼成用治具10を複数段積み重ねて積層体を形成し、最上部に蓋33を載置する。そして、この積層体をヒータ31で加熱することにより炭化珪素質成形体32を焼成する。具体的には、例えば、上記積層体を支持台37上に載置し、マッフル34中を移動しながらマッフル34の上下に設けたヒータ31により上記積層体を加熱し、連続的に焼成する方法等を用いる。

- [0062] また、この焼成工程は、例えば、窒素、アルゴン等の不活性ガス雰囲気下、脱脂した炭化珪素質成形体32を1400～2200℃で加熱することにより行うことができる。なお、支持台37には多段に積み重ねられた炭化珪素質焼成用治具が1組載置されていてもよいし、図1に示したように2組載置されていてもよいし、3組以上載置されていてもよい。
- [0063] また、この焼成工程で使用する焼成炉は、バッチ式焼成炉であってもよいが、連続焼成炉であることが望ましい。炉内のSiOガスの濃度及びCOガス濃度を所望の濃度で安定させやすいため、SiO源層から確実にSiOを供給するのに適しているからである。
- [0064] 本発明の製造方法では、この焼成工程をSiO源を有する系内で行う。具体的には、本発明の炭化珪素質焼成用治具を用いて、焼成を行うことが望ましい。炭化珪素質成形体の焼結を確実に進行させることができるからである。
- [0065] また、脱脂後の炭化珪素質成形体は、機械的強度が低く、壊れ易いため、炭化珪素質焼成用治具10を脱脂用治具を兼ねたものとし、脱脂工程の後、脱脂用治具を兼ねた炭化珪素質焼成用治具10を複数段積み重ねて焼成することが望ましい。
- [0066] 炭化珪素質焼成用治具10に載置する下駄材35は、焼成時の高温に耐え得る耐熱性が必要であることから、そのような耐熱性を有する材料であることが好ましい。上記材料としては、比較的熱伝導率の高いものが好ましく、例えば、カーボン、炭化珪素、窒化アルミニウム、窒化ケイ素等が挙げられる。また、多孔質炭化珪素体を傷付けないようにとの点から、カーボクロスを使用することが望ましい。
- [0067] なお、脱脂工程から焼成工程に至る一連の工程では、上述したように、炭化珪素質焼成用治具上に下駄材を介して炭化珪素質成形体を載せ、そのまま、脱脂工程及

び焼成工程を行うことが好ましい。脱脂工程及び焼成工程を効率的に行うことができ、また、載せ代え等において、炭化珪素質成形体が傷つくのを防止することができるからである。

[0068] このように本発明の多孔質炭化珪素体の製造方法を用いることにより、炭化珪素質成形体を確実に焼結させることができ、略均一な曲げ強度を有する多孔質炭化珪素体を得ることができる。

[0069] 得られた多孔質炭化珪素体の用途は特に限定されるものではなく、種々の用途に使用されるが、例えば、触媒担持体を構成する部材や、図2に示すようなセラミックフィルタを構成する部材等として用いることができる。

なお、得られた多孔質炭化珪素体の気孔径は、望ましい下限が $1\ \mu\text{m}$ 、より望ましい下限が $5\ \mu\text{m}$ 、望ましい上限が $100\ \mu\text{m}$ 、より望ましい上限が $50\ \mu\text{m}$ である。また、気孔率は、望ましい下限が20%、望ましい上限が80%である。

実施例

[0070] 以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

[0071] (実施例1～19)

下記の方法により、ハイドライドポリカルボシランを用いたSiO源層が形成された炭化珪素質焼成用治具を作製した。

カーボン(株式会社エスイーシー製 DSG-332)製で上部が開放された箱状の治具を用意し、この治具の底面にアシルヒドリドポリカルボシランを主成分とするSiO源層形成用ポリマー(Starfire-Systems社製、SP-MATRIX Polymer)を塗布し、 100°C で、12時間乾燥後、 2200°C で、2.5時間焼成する工程を表1に示した回数繰り返すことにより、その底面に厚さ $0.10\sim 1.65\text{mm}$ のSiO源層が形成された炭化珪素質焼成用治具を製造した。

SiO源層の厚さは、電気伝導式膜厚測定計により測定した。

[0072] (実施例20～24)

下記の方法により、SiC粒子とSiO₂粒子とを含む混合物を用いたSiO源層が形成された炭化珪素質焼成用治具を作製した。

まず、平均粒子径 $0.5\ \mu\text{m}$ の α 型SiC粒子(屋久島電工社製)と、平均粒子径 $140\ \mu\text{m}$ の SiO_2 粉末(山川産業社製、CS-8)とを重量比1:2で混合し、混合物を予め調製しておいた。

次に、カーボン(株式会社エスイーシー製 DSG-332)製で上部が開放された箱状の治具を用意し、この治具の底面に予め調製しておいた混合物200gを塗布し、 2200°C で、1.5時間焼成する工程を表1に示した回数繰り返すことにより、その底面に厚さ $0.07\sim 1.68\text{mm}$ の SiO_2 源層が形成された炭化珪素質焼成用治具を製造した。

SiO_2 源層の厚さは、電気伝導式膜厚測定計により測定した。

[0073] (実施例25~29)

(1)表面に SiO_2 膜が形成された平均粒径 $10\ \mu\text{m}$ の α 型SiC粒子(SiO_2 含有量:1重量%)60重量%と、表面に SiO_2 膜が形成された平均粒径 $0.5\ \mu\text{m}$ の α 型SiC粒子(SiO_2 含有量:4重量%)40重量%とを湿式混合し、得られた混合物100重量部に対して、有機バインダ(メチルセルロース)を5重量部、水を10重量部加えて混練して混練物を得た。次に、上記混練物に可塑剤と潤滑剤とを少量加えてさらに混練した後、押出成形を行い、炭化珪素質成形体を作製した。なお、本実施例では、この炭化珪素質成形体が、表面に SiO_2 膜が形成されたSiC粒子を含む再結晶用原料となる。

[0074] (2)次に、上記炭化珪素質成形体を、まずマイクロ波乾燥機を用いて 100°C で3分の乾燥を行った後、熱風乾燥機を用いて 110°C で20分の乾燥を行った。

[0075] (3)続いて、炭化珪素質焼成用治具のなかに、乾燥した炭化珪素質成形体をカーボン製の下駄材を介して10本載置した。そして、この炭化珪素質焼成用治具を5段に積層し、最上部に板状の蓋を載置した。そして、このような2列の積層体を支持台上に載置した。

[0076] (4)次に、炭化珪素質成形体が載置された上記治具を連続脱脂炉内に搬入し、8%の酸素濃度を有する空気と窒素との混合ガス雰囲気下、 300°C で加熱することにより脱脂工程を行い、炭化珪素質脱脂体を製造した。

[0077] そして、上記炭化珪素質脱脂体を上記治具に載置したまま、焼成装置に搬入し、常圧のアルゴン雰囲気下において 2200°C で約3時間で行う焼成処理を表1に示した回

数繰り返すことにより、炭化珪素質焼成用治具の底面に厚さ0.08～1.74mmのSiO₂源層を形成した。

SiO₂源層の厚さは、電気伝導式膜厚測定計により測定した。

[0078] (比較例1)

SiO₂源層を形成しない炭化珪素質焼成用治具を用意した。

[0079] (炭化珪素質焼成用治具の評価)

実施例及び比較例で作製した炭化珪素質焼成用治具を用いて、下記の方法で多孔質炭化珪素体を製造し、この多孔質炭化珪素体の特性を評価した。

[0080] (1) 平均粒径10 μmのα型炭化珪素粉末60重量%と、平均粒径0.5 μmのα型炭化珪素粉末40重量%とを湿式混合し、得られた混合物100重量部に対して、有機バインダ(メチルセルロース)を5重量部、水を10重量部加えて混練して混練物を得た。次に、上記混練物に可塑剤と潤滑剤とを少量加えてさらに混練した後、押出成形を行い、炭化珪素質成形体を作製した。

なお、この炭化珪素質脱脂体に不純物として含まれるSiO₂の量は、0.03重量%である。

[0081] (2) 次に、上記炭化珪素質成形体を、まずマイクロ波乾燥機を用いて100℃で3分の乾燥を行った後、熱風乾燥機を用いて110℃で20分の乾燥を行った。さらに、乾燥された炭化珪素質成形体を切断した後、セルの端部を炭化珪素からなる封止用ペーストによって封止した。

[0082] (3) 続いて、実施例1～29又は比較例1に炭化珪素質焼成用治具を用い、そのなかに乾燥した炭化珪素質成形体をカーボン製の下駄材を介して10本載置した。そして、この炭化珪素質焼成用治具を5段に積層し、最上部に板状の蓋を載置した。そして、このような2列の積層体を支持台上に載置した。

[0083] (4) 次に、炭化珪素質成形体が載置された上記治具を連続脱脂炉内に搬入し、8%の酸素濃度を有する空気と窒素との混合ガス雰囲気下、300℃で加熱することにより脱脂工程を行い、炭化珪素質脱脂体を製造した。

[0084] そして、上記炭化珪素質脱脂体を上記治具に載置したまま、焼成装置に搬入し、常圧のアルゴン雰囲気下において2200℃で約3時間の焼成を行い、四角柱状の多孔質

炭化珪素体を製造した。

[0085] (5)次に、平均繊維長 $20\mu\text{m}$ のアルミナファイバ30重量%、平均粒径 $0.6\mu\text{m}$ の炭化珪素粒子21重量%、シリカゾル15重量%、カルボキシメチルセルロース5.6重量%、及び、水28.4重量%を含む耐熱性のシール材ペーストを用いて、四角柱状の多孔質炭化珪素体を、上述した方法により16個(4個×4個)結束させ、続いて、ダイヤモンドカッターを用いて切断することにより、直径 144mm ×長さ 150mm の円柱形状のセラミックブロックを作製した。

[0086] 上記工程の後、無機繊維としてアルミナシリケートからなるセラミックファイバ(ショット含有率:3%、平均繊維長: $100\mu\text{m}$)23.3重量%、無機粒子として平均粒径 $0.3\mu\text{m}$ の炭化珪素粉末30.2重量%、無機バインダとしてシリカゾル(ゾル中の SiO_2 の含有率:30重量%)7重量%、有機バインダとしてカルボキシメチルセルロース0.5重量%、及び、水39重量%を混合、混練してシール材ペーストを調製した。

[0087] 次に、上記シール材ペーストを用いて、上記セラミックブロックの外周部に厚さ 1.0mm のシール材ペースト層を形成した。そして、このシール材ペースト層を 120°C で乾燥して、円柱形状のセラミックフィルタを製造した。

[0088] 上述した工程を経て作製したセラミックフィルタを下記の評価試験により評価した。
(評価試験)

(1)平均気孔径

JIS R 1655に準じ、水銀圧入法による細孔分布測定装置(島津製作所社製、オートポアIII 9405)を用い、多孔質炭化珪素体10個について、それぞれの中央部分を 1cm の幅の立方体となるように切断してサンプルとし、水銀圧入法により、細孔直径 $0.2\sim 500\mu\text{m}$ の範囲で細孔分布を測定し、そのときの各サンプルの平均細孔直径を $(4V/A)$ として計算した。そして、この10個のサンプルの平均細孔直径の平均値を平均気孔径とした。その結果を下記の表1に示した。

[0089] (2)圧力損失の測定

セラミックフィルタ1個に関し、 $1000\text{N}\cdot\text{m}^3/\text{h}$ の流量で初期圧力損失を測定した。その結果を表1に示した。なお、「N」は、標準状態(25°C 、1気圧)で測定したことを示す。

[0090] [表1]

	繰返し回数 (回)	SiO源層の厚さ (mm)	平均気孔径 (μm)	圧力損失 (kPa)
実施例1	2	0.10	10.20	16.2
実施例2	3	0.14	10.26	16.0
実施例3	4	0.17	10.63	15.8
実施例4	5	0.21	11.17	15.3
実施例5	6	0.25	11.29	15.3
実施例6	7	0.28	11.43	14.8
実施例7	8	0.32	11.33	15.0
実施例8	9	0.37	11.34	14.9
実施例9	10	0.41	11.35	15.0
実施例10	11	0.45	11.77	14.7
実施例11	12	0.49	11.58	14.8
実施例12	13	0.52	11.69	14.7
実施例13	14	0.56	11.77	14.8
実施例14	15	0.59	11.72	14.7
実施例15	16	0.63	11.80	14.8
実施例16	17	0.67	11.78	14.7
実施例17	20	0.82	12.03	14.3
実施例18	30	1.22	12.04	14.3
実施例19	40	1.65	12.08	14.2
実施例20	1	0.07	10.16	16.4
実施例21	3	0.19	10.75	15.6
実施例22	6	0.50	12.13	14.3
実施例23	10	0.81	12.36	13.9
実施例24	20	1.68	12.34	14.1
実施例25	2	0.08	10.17	16.5
実施例26	5	0.18	10.84	15.4
実施例27	20	0.80	12.16	13.6
実施例28	24	1.05	12.33	13.8
実施例29	30	1.74	12.37	13.9
比較例1	-	0	9.06	17.8

[0091] 表1及び図5に示したように、SiO源層が形成された炭化珪素質焼成用治具を使用して作製した多孔質炭化珪素体を用いることにより、圧力損失の低いセラミックフィルタを製造することができた。

また、SiO源層の厚さが0.2mm以上の炭化珪素質焼成用治具を用いることにより、

圧力損失の十分に低いセラミックフィルタを製造することができた。そして、この理由は、焼成工程において、炭化珪素質成形体の焼結が確実に進行したためであると考えられる。一方、SiO源層の厚さが0.2mm未満の炭化珪素質焼成用治具(実施例1~3、20、21、25、26)を用いた場合は、セラミックフィルタの圧力損失が若干大きくなる傾向にあった。これについて、SiO源層の厚さが0.2mm未満の炭化珪素質焼成用治具を観察したところ、SiO源層がまばらに形成される傾向が観察されたため、これが原因ではないかと考えられる。

また、SiO源層の厚さが1.6mmを超える炭化珪素質焼成用治具(実施例19、23、27)では、わずかでながら反りが観察された。

図5は、実施例及び比較例における炭化珪素質焼成用治具のSiO源層の厚さと製造した多孔質炭化珪素体の平均気孔径及び圧力損失との関係を示すグラフである。

図面の簡単な説明

[0092] [図1](a)は、炭化珪素質焼成用治具が多段に積み重ねられた状態で焼成炉に運び込まれた状態を示す正面図であり、(b)は、炭化珪素質成形体が下駄材を介して積み重ねられた状態を示す部分拡大正面図である。

[図2]多孔質炭化珪素体を用いて製造したセラミックフィルタを模式的に示す斜視図である。

[図3](a)は、多孔質炭化珪素体を模式的に示す斜視図であり、(b)は、そのA-A線断面図である。

[図4](a)は、炭化珪素質成形体の焼成工程に用いる治具を模式的に示した平面図であり、(b)は、上記治具を多段に積み重ねて焼成する様子を示した正面図である。

[図5]実施例及び比較例における炭化珪素質焼成用治具のSiO源層の厚さと製造した多孔質炭化珪素体の平均気孔径及び圧力損失との関係を示すグラフである。

符号の説明

[0093] 10 炭化珪素質焼成用治具

31 ヒータ

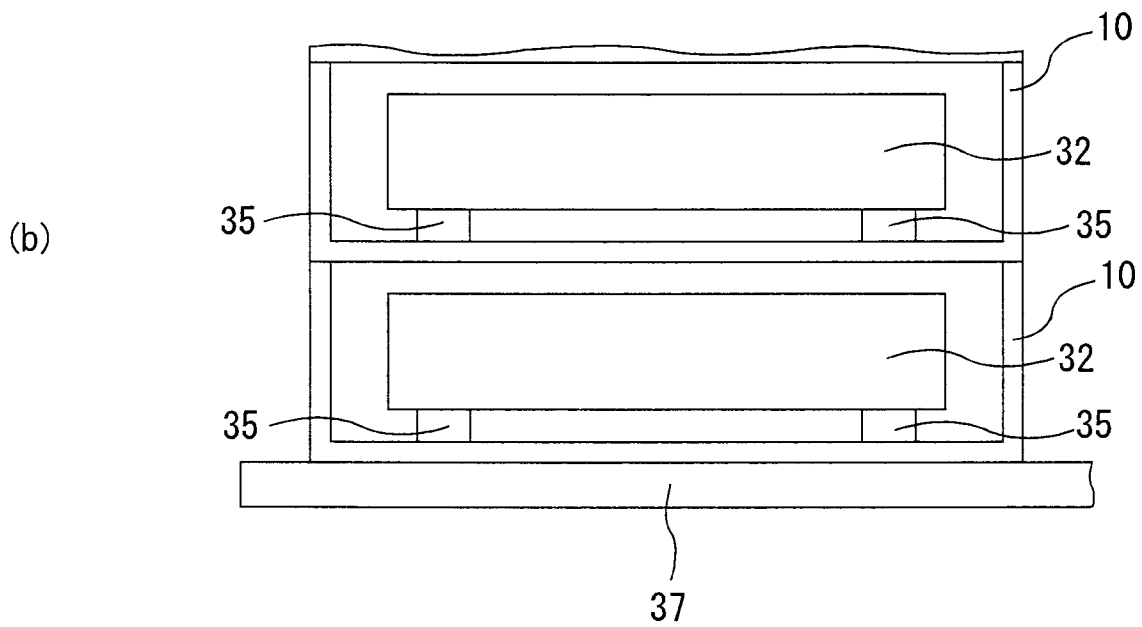
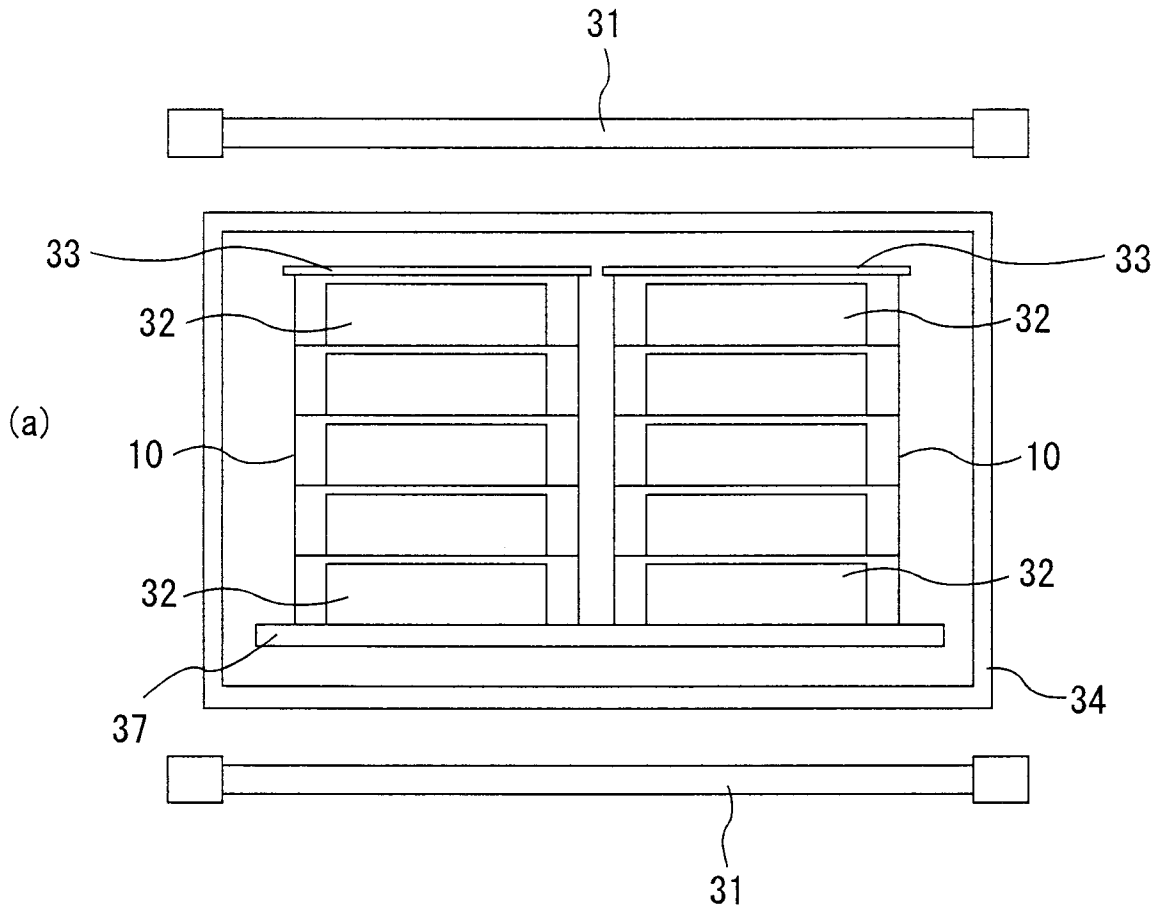
32 炭化珪素質成形体

35 下駄材

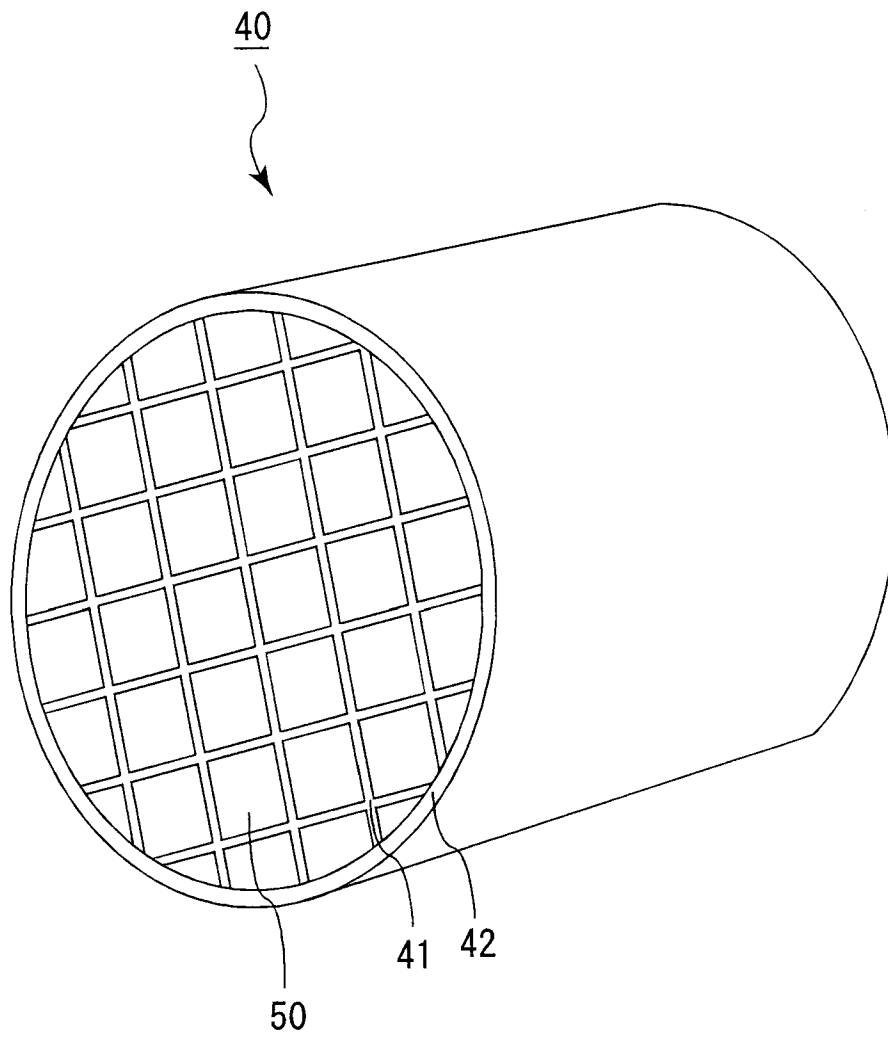
請求の範囲

- [1] 炭化珪素質成形体を焼成する際に、炭化珪素質成形体を載置する炭化珪素質焼成用治具であって、
前記炭化珪素質焼成用治具の表面の少なくとも一部に、SiO₂源層が形成されていることを特徴とする炭化珪素質焼成用治具。
- [2] 前記SiO₂源層の厚さは、0.2mm以上である請求項1に記載の炭化珪素質焼成用治具。
- [3] 前記SiO₂源層は、ハイドライドポリカルボシランを用いて形成されている請求項1又は2に記載の炭化珪素質焼成用治具。
- [4] 前記SiO₂源層は、SiC粒子とSiO₂粒子とを含む混合物を用いて形成されている請求項1又は2に記載の炭化珪素質焼成用治具。
- [5] 前記SiO₂源層は、再結晶SiCからなる層である請求項1又は2に記載の炭化珪素質焼成用治具。
- [6] 炭化珪素質粉末とバインダとを含む柱状の炭化珪素質成形体を脱脂した後、SiO₂源を有する系内で、前記炭化珪素質成形体の焼成工程を行うことを特徴とする多孔質炭化珪素質体の製造方法。
- [7] 前記焼成工程は、請求項1～5のいずれかに記載の炭化珪素質焼成用治具に前記炭化珪素質成形体を載置して行う請求項5に記載の多孔質炭化珪素質体の製造方法。
- 。

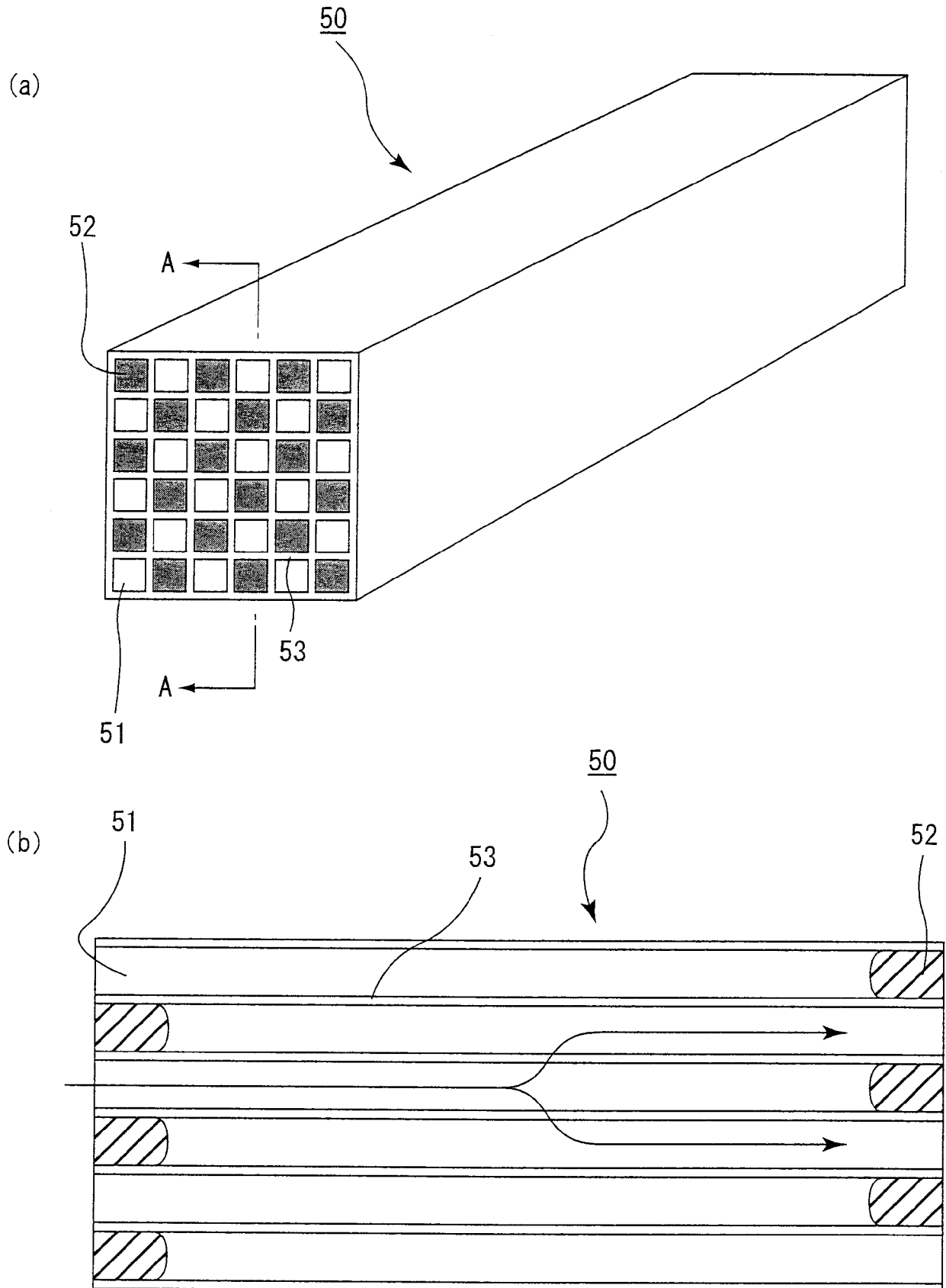
[図1]



[図2]

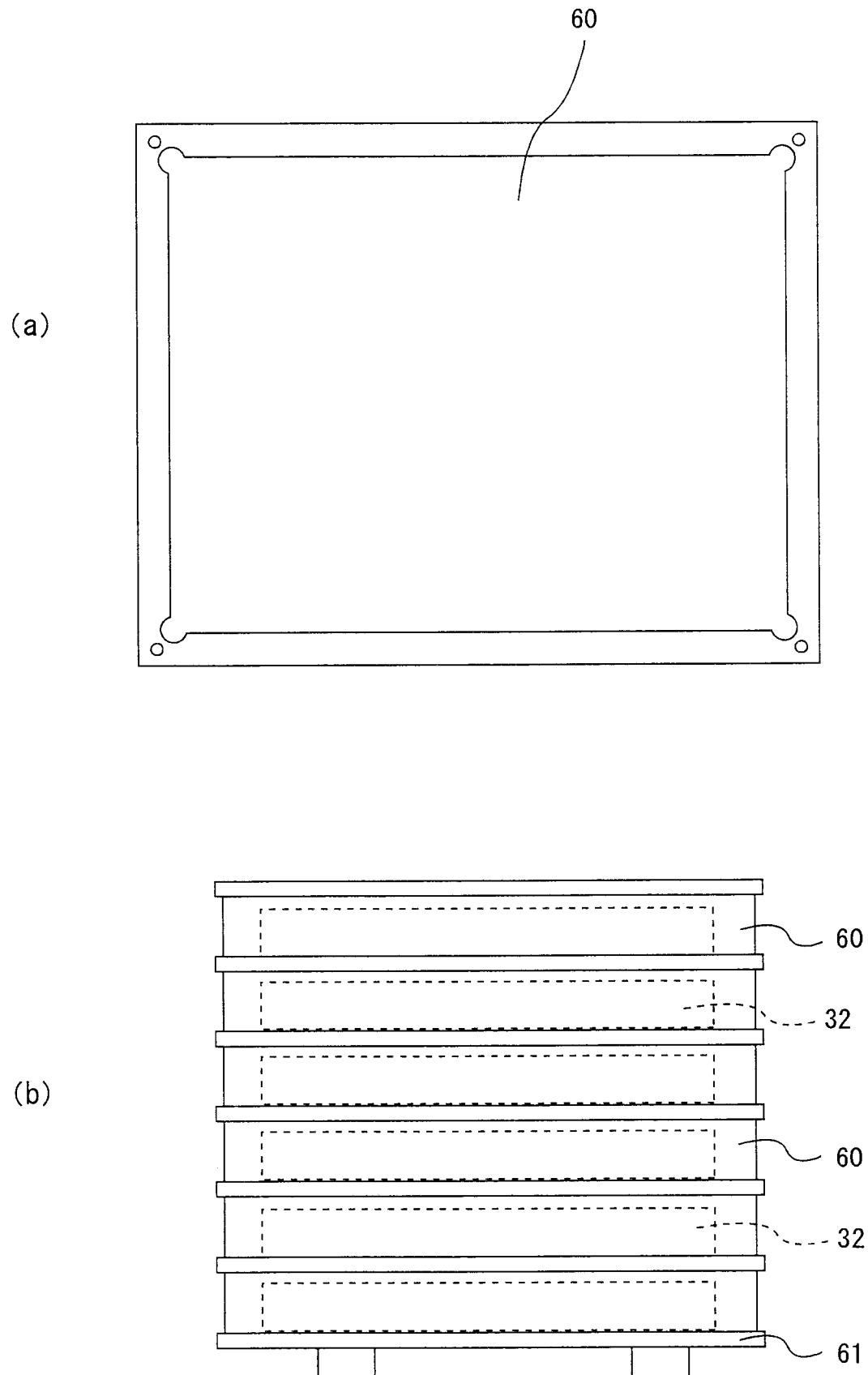


[図3]

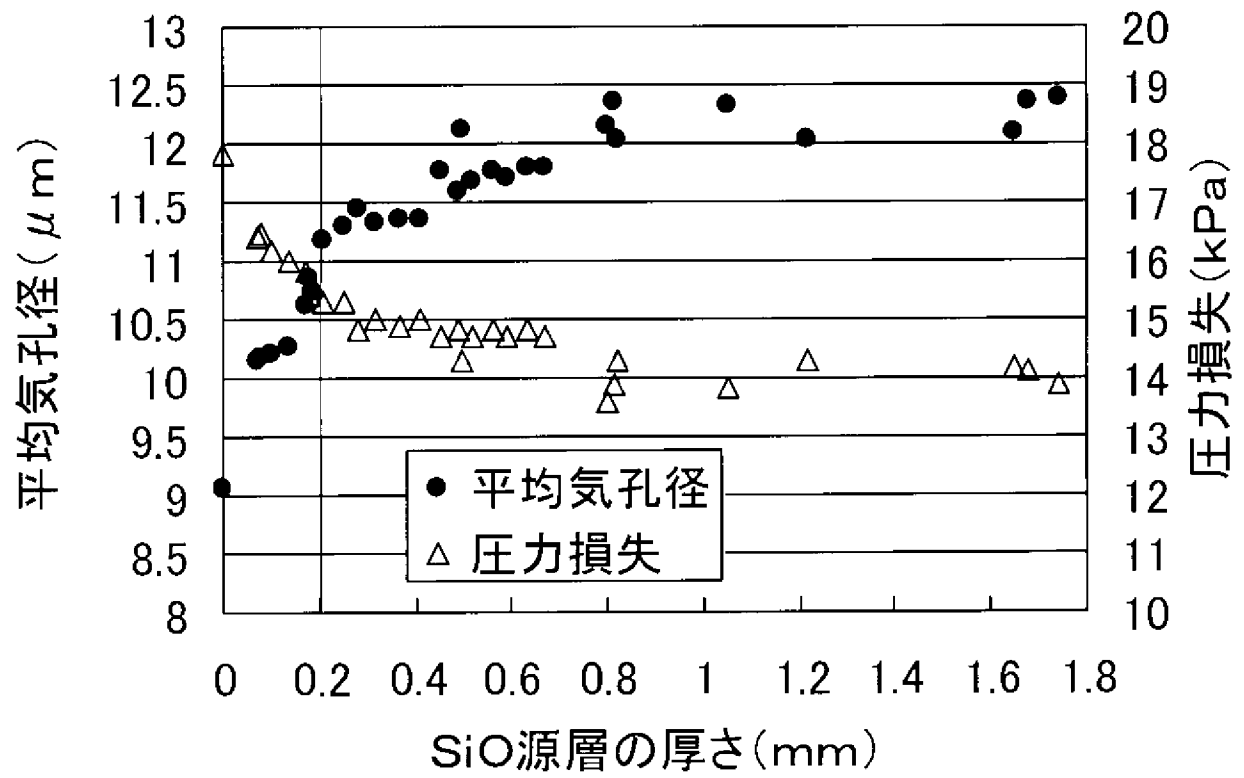


A-A線断面図

[図4]



[図5]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/315421

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C04B35/565(2006.01) i, C04B35/571(2006.01) i, C04B35/573(2006.01) i,
C04B35/64(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)

C04B35/565, C04B35/571, C04B35/573, C04B35/64

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2006
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2006	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2006

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 57-22170 A (Asahi Glass Co., Ltd.), 05 February, 1982 (05.02.82), Claims 1, 4; page 2, lower right column, line 7 to page 3, upper right column, line 4; page 4, lines 6 to 9 (Family: none)	1, 2, 4, 5 3, 6, 7
X Y	JP 2002-226271 A (Ibiden Co., Ltd.), 14 August, 2002 (14.08.02), Claim 1; Par. Nos. [0015] to [0020] (Family: none)	1, 5, 6, 7 6, 7
Y	JP 63-186865 A (Ibiden Co., Ltd.), 02 August, 1988 (02.08.88), Claim 1 (Family: none)	3

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
20 November, 2006 (20.11.06)

Date of mailing of the international search report
28 November, 2006 (28.11.06)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. C04B35/565(2006.01)i, C04B35/571(2006.01)i, C04B35/573(2006.01)i, C04B35/64(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. C04B35/565, C04B35/571, C04B35/573, C04B35/64		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2006年 日本国実用新案登録公報 1996-2006年 日本国登録実用新案公報 1994-2006年		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP 57-22170 A (旭硝子株式会社) 1982.02.05, 請求項1、4、第2頁右下欄第7行~第3頁右上欄第4行、第4頁第6~9行 (ファミリーなし)	1, 2, 4, 5 3, 6, 7
X Y	JP 2002-226271 A (イビデン株式会社) 2002.08.14, 請求項1、【0015】~【0020】 (ファミリーなし)	1, 5, 6, 7 6, 7
Y	JP 63-186865 A (イビデン株式会社) 1988.08.02, 請求項1 (ファミリーなし)	3
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> 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 20. 11. 2006		国際調査報告の発送日 28. 11. 2006
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 塩見 篤史 電話番号 03-3581-1101 内線 3416
		4G 3767