(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2024年10月3日(03.10.2024)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2024/204446 A1

(51) 国際特許分類:
C04B 41/83 (2006.01) *C04B 38/00* (2006.01)
C04B 35/583 (2006.01) *C04B 41/89* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2024/012466

(22) 国際出願日： 2024年3月27日(27.03.2024)

(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 2023-053134 2023年3月29日(29.03.2023) JP

(71) 出願人: デンカ株式会社(**DENKA COMPANY LIMITED**) [JP/JP]; 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目１番１号 Tokyo (JP).

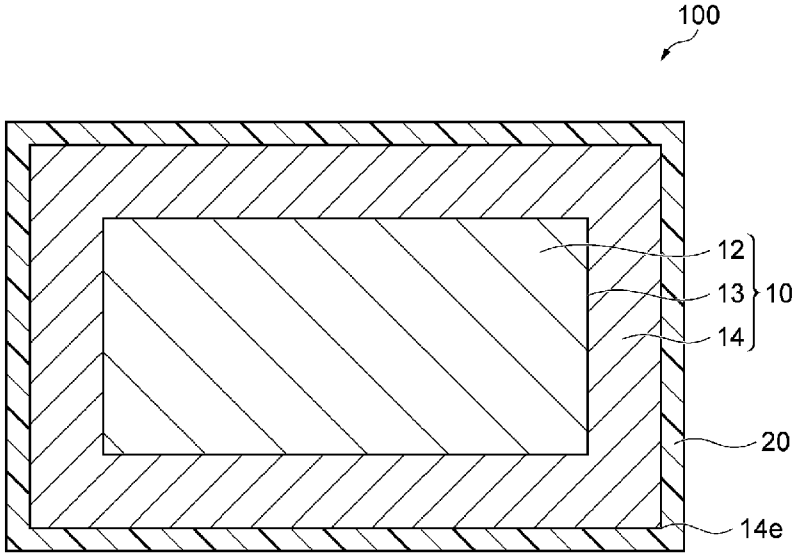
(72) 発明者: 野中 脩平(**NONAKA Shuhei**); 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目１番１号 デンカ株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 長谷川 芳樹，外(**HASEGAWA Yoshiki** et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目１番１号丸の内 ＭＹ ＰＬＡＺＡ（明治安田生命ビル） ９階 創英国際特許法律事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG,

(54) **Title:** COMPOSITE AND PRODUCTION METHOD THEREFOR

(54) 発明の名称： 複合体及びその製造方法



(57) **Abstract:** This composite comprises: a porous sintered boron nitride product; and a resin with which some of the pores of the sintered boron nitride product are filled. The sintered boron nitride product has: a filled portion where the pores are filled with the resin; and an unfilled portion which is surrounded by the filled portion and in which the pores are unfilled with a resin. This method for producing a composite comprises: an impregnation step in which pores in a surface portion of a porous sintered boron nitride product are impregnated with a resin composition to obtain a resin-impregnated

WO 2024/204446 A1

［続葉有］

KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一　国際調査報告(条約第21条(3))

object; and a curing step in which the resin-impregnated object is heated to cure the resin composition, thereby forming a filled portion where the pores are filled with the resin and an unfilled portion which is surrounded by the filled portion and in which the pores are unfilled with a resin.

(57) 要約:複合体は、多孔質の窒化ホウ素焼結体と、窒化ホウ素焼結体の気孔の一部に充填された樹脂と、を備える。窒化ホウ素焼結体は、気孔に樹脂が充填されている充填部と、充填部に取り囲まれ、気孔に樹脂が充填されていない非充填部と、を有する。複合体の製造方法は、多孔質の窒化ホウ素焼結体の表面部における気孔に樹脂組成物を含浸して樹脂含浸体を得る含浸工程と、樹脂含浸体を加熱して樹脂組成物を硬化させ、気孔に樹脂が充填されている充填部と、充填部に取り囲まれ、気孔に樹脂が充填されていない非充填部とを形成する硬化工程と、を有する。

明　細　書

発明の名称 ： 複合体及びその製造方法

技術分野

[0001]　本開示は、複合体及びその製造方法に関する。

背景技術

[0002]　窒化ホウ素は、耐熱性、熱伝導性、耐食性、及び加工性に優れる。このため、種々の用途で利用されている。近年は、樹脂と窒化ホウ素焼結体とを複合化して、窒化ホウ素が本来有する特性をさらに向上させるとともに、接着性等の新たな特性を付与することも試みられている。例えば、特許文献１では、複合体の表面部と内部における樹脂の硬化率が異なるようにすることで、優先される特性に柔軟に対応することが可能な複合体が提案されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：国際公開第２０２２／２０９９７１号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004]　窒化ホウ素は、セラミックスの中でも難焼結性の物質であるため、粉末冶金のプロセスによって焼結体を形成すると内部に多くの気孔が存在する。このため、外力が加わると、角部が欠けたり、割れたりする場合がある。このような破損を抑制するためには、特許文献１のように窒化ホウ素焼結体に樹脂を充填することは有効であると考えられる。しかしながら、窒化ホウ素焼結体の内部にまで樹脂を充填すると重量が増加して取り扱い性が損なわれる。そこで、本開示は、取り扱い性に優れる複合体及びその製造方法を提供する。

課題を解決するための手段

[0005]　本開示の一側面は、以下の複合体を提供する。

[0006]［１］多孔質の窒化ホウ素焼結体と、前記窒化ホウ素焼結体の気孔の一部に

充填された樹脂と、を備える複合体であって、

前記窒化ホウ素焼結体は、前記気孔に前記樹脂が充填されている充填部と、前記充填部に取り囲まれ、前記気孔に前記樹脂が充填されていない非充填部と、を有する、複合体。

[0007] 上記［１］の複合体における窒化ホウ素焼結体は、樹脂が気孔に充填されていない非充填部を有するため、複合体の重量を小さくすることができる。上記［１］の複合体における窒化ホウ素焼結体は、樹脂が気孔に充填されている充填部を有する。したがって、上記複合体を例えばロボット又は治具等を用いて把持したり、上記複合体が落下したりしても、上記複合体の破損を十分に抑制することができる。よって、上記複合体は取り扱い性に優れる。

[0008] 上記［１］の複合体は、以下の［２］～［８］のいずれか一つであってもよい。

［２］前記充填部の少なくとも一部を覆う樹脂層を備える、［１］に記載の複合体。

［３］前記窒化ホウ素焼結体の空隙率が５６体積％以下である、［１］又は［２］に記載の複合体。

［４］前記窒化ホウ素焼結体における前記気孔の平均細孔径が１．５μｍ以下である、［１］～［３］のいずれか一つに記載の複合体。

［５］前記窒化ホウ素焼結体における前記充填部は、外方に突出するエッジを有する、［１］～［４］のいずれか一つに記載の複合体。

［６］前記窒化ホウ素焼結体は板状であり、厚みが３０ｍｍ以上である、［１］～［５］のいずれか一つに記載の複合体。

［７］前記窒化ホウ素焼結体の断面積Ｗに対する前記非充填部の断面積Ｎの比が、０．２以上である、［１］～［６］のいずれか一つに記載の複合体。

［８］前記充填部の体積よりも前記非充填部の体積の方が大きい、［１］～［７］のいずれか一つに記載の複合体。

[0009] 本開示の一側面は、以下の複合体の製造方法を提供する。

［９］多孔質の窒化ホウ素焼結体の表面部における気孔に樹脂組成物を含浸

して樹脂含浸体を得る含浸工程と、

前記樹脂含浸体を加熱して前記樹脂組成物を硬化させ、前記気孔に樹脂が充填されている充填部と、前記充填部に取り囲まれ、前記気孔に前記樹脂が充填されていない非充填部とを形成する硬化工程と、を有する、複合体の製造方法。

[0010] 上記［９］の製造方法で得られる複合体は、気孔に樹脂が充填されていない非充填部を有する窒化ホウ素焼結体を備えるため、複合体の重量を小さくすることができる。上記［９］の製造方法で得られる複合体における窒化ホウ素焼結体は、樹脂が気孔に充填されている充填部を有する。したがって、例えば複合体をロボット又は治具等を用いて把持したり、複合体が落下したりしても、複合体の破損を十分に抑制することができる。よって、上記製造方法で得られる複合体は取り扱い性に優れる。

[0011] 上記［９］の複合体の製造方法は、以下の［１０］であってもよい。

［１０］前記窒化ホウ素焼結体の空隙率は５６体積％以下であり、前記気孔の平均細孔径が１．５μｍ以下である、［９］に記載の複合体の製造方法。

発明の効果

[0012] 本開示によれば、取り扱い性に優れる複合体及びその製造方法を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0013] [図1]複合体の一例を示す断面図である。

[図2]複合体の別の例の断面写真である。

[図3]実施例で用いた窒化ホウ素焼結体の斜視図である。

[図4]（Ａ）は実施例３の複合体の断面を示す写真であり、（Ｂ）は比較例１の複合体の断面を示す写真である。

発明を実施するための形態

[0014] 以下、場合により図面を参照して、本開示の幾つかの実施形態を説明する。ただし、以下の実施形態は、本開示を説明するための例示であり、本開示を以下の内容に限定する趣旨ではない。「～」の記号で示される各数値範囲

は、下限値及び上限値を含む。すなわち、「Ａ～Ｂ」で示される数値範囲は、Ａ以上且つＢ以下を意味する。各数値範囲の上限又は下限をいずれかの実施例の数値で置き換えたものも、本開示に含まれる。複数の材料が例示されている場合、そのうちの一種を単独で用いてもよいし、複数を組み合わせて用いてもよい。

[0015] 一実施形態に係る複合体は、多孔質の窒化ホウ素焼結体と、窒化ホウ素焼結体の気孔の一部に充填された樹脂と、を備える。窒化ホウ素焼結体は、気孔に樹脂が充填されている充填部と、充填部に取り囲まれ、前記気孔に樹脂が充填されていない非充填部と、を有する。非充填部における気孔は空隙である。

[0016] 窒化ホウ素焼結体は、加圧して成形された成形体を焼成して得られるもの、又は、加圧して成形しながら焼成して得られるもの（例えば、ホットプレス）である。窒化ホウ素粉末を成形することなく焼成して得られる凝集物、及び塊状物は、窒化ホウ素焼結体には該当しない。窒化ホウ素焼結体は、窒化ホウ素の一次粒子同士が焼結して構成される窒化ホウ素粒子と気孔とを含有する。気孔は、開気孔及び閉気孔を含んでよく、開気孔のみを含んでもよい。樹脂は開気孔の一部に充填されている。窒化ホウ素焼結体の気孔の平均細孔径は１．５μｍ以下、１．０μｍ以下、又は０．６μｍ以下であってよい。このような窒化ホウ素焼結体は、気孔のサイズが小さいことから、窒化ホウ素焼結体における割れ及び欠けの発生をより一層抑制することができる。また、樹脂組成物が内部に含浸するのを十分に抑制することができる。また、窒化ホウ素粒子同士の接触面積が大きくなり、熱伝導率を高くすることができる。窒化ホウ素焼結体の気孔の平均細孔径は０．１μｍ以上、０．２μｍ以上、又は０．３μｍ以上であってよい。このような窒化ホウ素焼結体は、その表面部に充填部を円滑に形成することができる。平均細孔径の範囲の一例は、０．１～１．５μｍであってよい。

[0017] 窒化ホウ素焼結体の気孔の平均細孔径は、以下の手順で測定することができる。まず、複合体を加熱して充填部から樹脂を除去して窒化ホウ素焼結体

を得る。樹脂が充填される前の窒化ホウ素焼結体が入手できるのであれば、その窒化ホウ素焼結体を用いてもよい。水銀ポロシメーターを用い、０．００４２ＭＰａから２０６．８ＭＰａまで圧力を増やしながら窒化ホウ素焼結体を加圧したときの細孔径分布を求める。横軸を細孔径、縦軸を累積細孔容積としたときに、累積細孔容積が全細孔容積の５０％に達するときの細孔径が平均細孔径である。水銀ポロシメーターとしては、株式会社島津製作所製のものを用いることができる。本明細書における平均細孔径は、樹脂が充填されていない気孔のみならず、樹脂が充填されている気孔も対象として確定される値である。

[0018] 窒化ホウ素焼結体の空隙率、すなわち、窒化ホウ素焼結体における気孔の体積の比率は、５６体積％以下、５０体積％以下、４５体積％以下、４０体積％以下、３５体積％以下、又は３０体積％以下であってよい。これによって、窒化ホウ素焼結体に樹脂組成物を含浸する際に、樹脂組成物が窒化ホウ素焼結体の内部にまで含浸することを抑制することができる。窒化ホウ素焼結体の空隙率は、１０体積％以上、又は１５体積％以上であってよい。これによって、窒化ホウ素焼結体の表面部に充填部を円滑に形成することができる。窒化ホウ素焼結体の空隙率の範囲の一例は、１０～５６体積％である。本明細書における空隙率は窒化ホウ素焼結体の体積に対する、樹脂が充填されている気孔と樹脂が充填されていない気孔の合計の体積割合である。

[0019] 空隙率は、窒化ホウ素焼結体の体積及び重量から、かさ密度［Ｂ（ｇ／ｃｍ^3）］を算出し、このかさ密度と窒化ホウ素の理論密度［Ａ（ｇ／ｃｍ^3）］とから、下記式（１）によって求めることができる。窒化ホウ素焼結体の理論密度Ａは２．２６ｇ／ｃｍ^{3}である。

空隙率（体積％）＝［１－（Ｂ／Ａ）］×１００　　（１）

[0020] 窒化ホウ素焼結体のかさ密度Ｂは、１．０ｇ／ｃｍ^{3}以上、１．１ｇ／ｃｍ^{3}以上、１．２ｇ／ｃｍ^{3}以上、又は１．５ｇ／ｃｍ^{3}以上であってよい。かさ密度Ｂが大きい窒化ホウ素焼結体は、割れ及び欠けの発生を抑制することができる。窒化ホウ素焼結体のかさ密度Ｂは、２．１ｇ／ｃｍ^{3}以下、又は、２

．０ｇ／ｃｍ^{3}以下であってよい。これによって、窒化ホウ素焼結体の表面部に充填部を円滑に形成することができる。窒化ホウ素焼結体のかさ密度Ｂの範囲の一例は、１．０～２．１ｇ／ｃｍ^{3}である。

[0021] 複合体に含まれる樹脂は、主剤及び硬化剤を含む樹脂組成物の硬化物であってよい。本明細書における硬化物は、完全硬化（Ｃステージ）、及び、半硬化（Ｂステージ）したもののどちらであってもよい。本明細書における樹脂も、完全硬化したものであってよく、半硬化したものであってもよい。完全硬化とは、樹脂組成物の硬化反応が完全に進行していることを意味する。半硬化物とは、樹脂組成物の硬化反応が一部進行したものを意味する。樹脂は、樹脂組成物中の主剤及び硬化剤が反応して生成する熱硬化性樹脂等を含んでよく、主剤及び硬化剤等のモノマーを含んでもよい。

[0022] 樹脂は、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂、シアネート樹脂、シリコーンゴム、アクリル樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、ユリア樹脂、ビスマレイミド樹脂、不飽和ポリエステル、フッ素樹脂、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンテレフタレート、ポリフェニレンエーテル、ポリフェニレンサルファイド、全芳香族ポリエステル、ポリスルホン、液晶ポリマー、ポリエーテルスルホン、ポリカーボネート、マレイミド樹脂、マレイミド変性樹脂、ＡＢＳ（アクリロニトリル－ブタジエン－スチレン）樹脂、ＡＡＳ（アクリロニトリル－アクリルゴム・スチレン）樹脂、ＡＥＳ（アクリロニトリル・エチレン・プロピレン・ジエンゴム－スチレン）樹脂、ポリグリコール酸樹脂、ポリフタルアミド、及びポリアセタールからなる群より選ばれる少なくとも一種を含んでいてよい。これらのうちの１種を単独で含んでもよいし、２種以上を組み合わせて含んでもよい。

[0023] 複合体における樹脂の重量比率は、複合体の全体の重量を基準として、４５重量％未満、３５重量％以下、２５重量％以下、又は１５重量％以下であってよい。これによって、複合体の重量を十分に軽くして取り扱い性を一層向上することができる。また、複合体から樹脂を円滑に除去することができ

る。したがって、使用時には樹脂を除去して、樹脂を含有しない窒化ホウ素焼結体として円滑に使用することができる。この重量比率は、含浸させる樹脂の密度を変えること、又は窒化ホウ素焼結体の気孔における充填率を変えることに調整することができる。

[0024] 複合体における樹脂の重量比率は、複合体の全体の重量を基準として、３重量％以上、１０重量%以上であってよい。これによって、窒化ホウ素焼結体の割れ及び欠け等の破損を十分に抑制することができる。複合体における樹脂の重量比率の範囲は、３重量％以上４５重量％未満であってよい。複合体の形状は特に限定されず、例えばブロック状及び板状であってよい。複合体の厚みは２０ｍｍ以上、又は３０ｍｍ以上であってよい。厚みを大きくすることによって、非充填部の体積を十分に大きくすることができる。

[0025] 複合体の厚みは、主面に直交する方向に沿って測定される。複合体の厚みが一定ではない場合、任意の１０箇所を選択して厚みの測定を行い、その平均値が上述の範囲であればよい。複合体の主面のサイズは特に限定はない。複合体の主面は、例えば、５０ｍｍ^{2}以上であってよく、２００ｍｍ^{2}以上であってよく、１０００ｍｍ^{2}以上であってもよい。

[0026] 上記実施形態に係る複合体の断面の一例を図１に示す。図１の複合体１００は、ブロック状又は板状であってよい。複合体１００は、窒化ホウ素焼結体１０と窒化ホウ素焼結体１０の表面全体を覆う樹脂層２０とを備える。窒化ホウ素焼結体１０は、その内部（中央部）に樹脂が気孔に充填されていない非充填部１２と、非充填部１２の周囲にある表面部に、気孔に樹脂が充填されている充填部１４とを有する。充填部１４は非充填部１２を取り囲むように設けられている。非充填部１２における気孔は全て空隙である。

[0027] 充填部１４では、気孔の全てに樹脂が充填されていなくてもよい。例えば、充填部１４における閉気孔に樹脂は充填されていなくてよい。充填部１４と非充填部１２との境界１３は、樹脂が充填されている気孔のうち、窒化ホウ素焼結体の中心に近い部分にあり且つ隣接する気孔同士を線で結ぶことによって描かれる。図１のような断面図において、充填部１４の輪郭と、窒化

ホウ素焼結体１０の輪郭は、相似であってもよいし、相似でなくてもよい。

[0028] 充填部１４は、外方に突出するエッジ１４ｅを有する。樹脂が充填されていない窒化ホウ素焼結体のエッジは他の部分に比べて割れ及び欠け等の破損が生じやすい。しかしながら、充填部１４は気孔に樹脂が充填されていることから、エッジ１４ｅにおいても割れ及び欠け等の破損を十分に抑制することができる。例えば、ロボット等の把持部がエッジ１４ｅに衝突したり、エッジ１４ｅの部分を強く把持したりしても、破損を十分に抑制することができる。本明細書におけるエッジとしては、角及び稜線が挙げられる。

[0029] 図１に示すような断面において、窒化ホウ素焼結体１０の断面積Wに対する非充填部１２の断面積Ｎの比（Ｎ／Ｗ）は、０．２以上、０．３以上、０．４以上又は０．５以上であってよい。比（Ｎ／Ｗ）を大きくすることによって、複合体１００の重量を一層小さくすることができる。また、複合体１００から樹脂を除去して樹脂を含有しない窒化ホウ素焼結体１０を十分円滑に得ることができる。上記比（Ｎ／Ｗ）は、０．７以下であってよい。これによって、窒化ホウ素焼結体１０の割れ及び欠け等の破損を十分に抑制することができる。上記比（Ｎ／Ｗ）は、窒化ホウ素焼結体１０の断面のうち、上記比（Ｎ／Ｗ）が最も大きくなる断面において測定される値である。比（Ｎ／Ｗ）は、例えば０．２～０．７であってよい。

[0030] 窒化ホウ素焼結体１０全体に対する非充填部１２の体積比は、０．２以上、０．３以上、又は０．４以上であってよい。これによって、複合体１００の重量を小さくすることができる。また、複合体１００から樹脂を除去して樹脂を含有しない窒化ホウ素焼結体１０を円滑に得ることができる。同様の観点から、非充填部１２の体積は、充填部１４の体積よりも大きくてよい。窒化ホウ素焼結体１０全体に対する非充填部１２の体積比は、０．８以下であってよい。これによって、窒化ホウ素焼結体１０の割れ及び欠け等の破損を十分に抑制することができる。

[0031] 樹脂層２０の成分は、充填部１４に充填される樹脂と同様であってよい。樹脂層２０を備えることによって、窒化ホウ素焼結体１０の割れ及び欠け等

の破損を一層抑制することができる。樹脂層２０の厚みは、０．１ｍｍ以上、０．５ｍｍ以上、又は１．０ｍｍ以上であってよい。これによって、窒化ホウ素焼結体１０の割れ及び欠け等の破損を十分に抑制することができる。樹脂層２０の厚みは、５ｍｍ以下、又は３ｍｍ以下であってよい。これによって、複合体１００から樹脂層２０の除去を円滑にすることができる。また、複合体１００の重量を小さくすることができる。樹脂層２０は、図１に示すように、窒化ホウ素焼結体１０の表面の全てを覆うことは必須ではなく、窒化ホウ素焼結体１０の表面の一部のみを覆っていてもよい。例えば、外方に突出するエッジ１４ｅとその近傍のみを覆うように樹脂層を設けてもよい。これよって、破損し易い部分を効率よく保護することができる。

[0032] 図２は、別の例の複合体の断面を示す写真である。複合体１００Ａは、図２に示すように四角形の断面を有する窒化ホウ素焼結体１０Ａを備える。図２の複合体１００Ａは、その厚さ方向に直交する方向に沿って且つ複合体１００Ａの中心を通るように切断されている。窒化ホウ素焼結体１０Ａは、樹脂が気孔に充填されていない非充填部１２と、樹脂が気孔に充填され、非充填部１２を取り囲むように形成される充填部１４とを有する。複合体１００Ａは、充填部１４を覆うように樹脂層２０を有する。なお、樹脂層２０を有することは必須ではなく、充填部１４が表面に露出していてもよい。

[0033] 複合体１００，１００Ａは、非充填部１２を有することから、非充填部１２を有しないものよりも重量を小さくすることができる。窒化ホウ素焼結体１０，１０Ａは、非充填部１２の全体を取り囲むように充填部１４を備えることから、窒化ホウ素焼結体１０，１０Ａの破損を十分に抑制することができる。このため、ロボット又は治具で円滑に把持することができる。したがって、複合体１００，１００Ａは、取り扱い性に優れる。複合体１００，１００Ａは、充填部１４を備えるため、長期間湿度が高いところに保管しても、非充填部１２の気孔に水分が浸入することを抑制することができる。このため、長期間保管後、そのまま高温に曝されるような環境下で使用されたときに、気孔内で凝縮していた水分が突沸して複合体が破損することを抑制で

きる。このような用途としては、溶鉱炉等、プラント内の温度を測定する温度計の保護部材が考えられる。

[0034] 一実施形態に係る複合体の製造方法は、多孔質の窒化ホウ素焼結体の表面部における気孔に樹脂組成物を含浸して樹脂含浸体を得る含浸工程と、樹脂含浸体を加熱して樹脂組成物を硬化させ、表面部に樹脂が気孔に充填されている充填部と、窒化ホウ素焼結体の内部における気孔に樹脂が充填されていない非充填部と、を形成する硬化工程と、を有する。図１の複合体１００を製造する場合を例にして以下に説明する。

[0035] 多孔質の窒化ホウ素焼結体は、次のような焼結工程で得ることができる。まず、窒化ホウ素を含む原料粉末を準備する。原料粉末は、窒化ホウ素に加えて、例えば、窒化アルミニウム及び窒化ケイ素からなる群から選択される少なくとも一種の窒化物を含有してよい。窒化ホウ素は、アモルファス状の窒化ホウ素であってよく、六方晶状の窒化ホウ素であってもよい。窒化ホウ素焼結体として窒化ホウ素焼結体を調製する場合、原料粉末として、例えば、平均粒径が０．５～１０μｍであるアモルファス窒化ホウ素粉末、又は、平均粒径が３．０～４０μｍである六方晶窒化ホウ素粉末を用いることができる。

[0036] 焼結工程では、窒化ホウ素粉末を含む配合物を成形して焼結し窒化ホウ素焼結体を得てもよい。成形は、一軸加圧で行ってよく、冷間等方加圧（ＣＩＰ）法で行ってもよい。成形の前に、焼結助剤を配合して配合物を得てもよい。焼結助剤としては、例えば、酸化イットリア、酸化アルミニウム及び酸化マグネシウム等の金属酸化物、炭酸リチウム及び炭酸ナトリウム等のアルカリ金属の炭酸塩、並びにホウ酸等が挙げられる。焼結助剤を配合する場合は、焼結助剤の配合量は、例えば、窒化ホウ素粉末及び焼結助剤の合計１００重量部に対して、例えば、０．０１重量部以上、又は０．１重量部以上であってよい。焼結助剤の配合量は、窒化ホウ素及び焼結助剤の合計１００重量部に対して、例えば、２０重量部以下、１５重量部以下又は１０重量部以下であってよい。

[0037] 配合物を、例えば、鋳込み成形法によってブロック状又は板状の成形体としてよい。成形方法は特に限定されず、金型を用いたプレス成形法、冷間等方加圧法（ＣＩＰ）等が挙げられる。成形圧力は、例えば２０～５００ＭＰａであってよい。成形圧力を高くすることによって窒化ホウ素焼結体における平均細孔径及び空隙率を小さくするとともに、かさ密度を大きくすることができる。非充填部の体積比及び断面積の比（Ｎ／Ｗ）を十分に大きくするため、成形体の厚みは３０ｍｍ以上、４０ｍｍ以上、又は５０ｍｍ以上であってよい。成形体の厚みは、主面に直交する方向に沿って測定される。成形体の厚みが一定ではない場合、任意の１０箇所を選択して厚みの測定を行い、その平均値が上述の範囲であればよい。

[0038] 焼結工程の焼結温度は、例えば、１６００℃以上であってよく、１７００℃以上であってもよい。焼結温度は、例えば、２２００℃以下であってよく、２０００℃以下であってもよい。焼結時間は、例えば、１０時間以下、又は５時間以下であってよい。焼結時間を短くすることで、窒化ホウ素焼結体における平均細孔径及び空隙率を小さくするとともに、かさ密度を大きくすることができる。なお、上記焼結温度よりも低い温度で第一焼成を行った後、上記焼結温度で第二焼成を行ってもよい。焼結時の雰囲気は、例えば、窒素、ヘリウム、及びアルゴン等の不活性ガス雰囲気であってよい。焼結助剤の添加量を上記範囲内とすることで、窒化ホウ素焼結体の平均細孔径を上述の範囲に調整し易くなる。

[0039] 焼結には、例えば、バッチ式炉及び連続式炉等を用いることができる。バッチ式炉としては、例えば、マッフル炉、管状炉、及び雰囲気炉等を挙げることができる。連続式炉としては、例えば、ロータリーキルン、スクリューコンベア炉、トンネル炉、ベルト炉、プッシャー炉、及び大型連続炉等を挙げることができる。このようにして、窒化ホウ素焼結体を得ることができる。窒化ホウ素焼結体はブロック状又は板状であってよい。窒化ホウ素焼結体の厚みは３０ｍｍ以上、４０ｍｍ以上、又は５０ｍｍ以上であってよい。窒化ホウ素焼結体の厚みは、主面に直交する方向に沿って測定される。窒化ホ

ウ素焼結体の厚みが一定ではない場合、任意の１０箇所を選択して厚みの測定を行い、その平均値が上述の範囲であればよい。

[0040] 含浸工程では、窒化ホウ素焼結体の表面部における気孔に樹脂組成物を含浸して樹脂含浸体を得る。このとき、樹脂組成物が含浸するのは窒化ホウ素焼結体の表面部のみとし、窒化ホウ素焼結体の内部における気孔には樹脂組成物が含浸しないようにする。このため、樹脂組成物は、取り扱いが可能な範囲で、粘度を高くすることが好ましい。窒化ホウ素焼結体に含侵させる際の樹脂組成物の粘度は、例えば、１０００ｍＰａ・ｓより大きくてよい。樹脂組成物を加熱することなく窒化ホウ素焼結体の表面部における気孔に含浸させてもよい。

[0041] 窒化ホウ素焼結体への樹脂組成物の含浸は、加圧せずに常圧下又は減圧下で行ってよい。これによって、樹脂組成物が窒化ホウ素焼結体の内部にまで含浸することを抑制できる。含浸する時間を調整して、樹脂組成物の含浸量を調製してよい。含浸装置を用いて含浸を加圧下で行う場合には、含浸を行う時間を短くして、窒化ホウ素焼結体の内部にまで樹脂組成物が含浸することを抑制してもよい。窒化ホウ素焼結体の内部にまで樹脂組成物が含浸することを抑制するため、含浸を加圧下で行う場合、圧力は１ＭＰａ未満であってよい。含浸は、窒化ホウ素焼結体を樹脂組成物中に浸漬して行ってもよい。ただし、窒化ホウ素焼結体の全体を樹脂組成物中に浸漬するのではなく、例えば下部のみを浸漬して、窒化ホウ素焼結体の内部にまで樹脂組成物が含浸することを抑制してもよい。

[0042] 樹脂組成物は、例えば硬化反応によって上述の複合体の説明で挙げた樹脂となるものを用いることができる。樹脂組成物は溶剤を含んでいてもよい。溶剤の配合量を変えることで樹脂組成物の粘度を調整してもよいし、硬化反応を一部進行させて樹脂組成物の粘度を調整してもよい。溶剤としては、例えば、エタノール、イソプロパノール等の脂肪族アルコール、２－メトキシエタノール、１－メトキシエタノール、２－エトキシエタノール、１－エトキシ－２－プロパノール、２－ブトキシエタノール、２－（２－メトキシエ

トキシ）エタノール、２－（２－エトキシエトキシ）エタノール、２－（２－ブトキシエトキシ）エタノール等のエーテルアルコール、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル等のグリコールエーテル、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、ジイソブチルケトン等のケトン、トルエン、キシレン等の炭化水素が挙げられる。これらのうちの１種を単独で含んでもよいし、２種以上を組み合わせて含んでもよい。

[0043] 樹脂組成物は、熱硬化性であり、例えば、シアネート基を有する化合物、ビスマレイミド基を有する化合物及びエポキシ基を有する化合物からなる群より選択される少なくとも１種と、硬化剤と、を含有してよい。

[0044] シアネート基を有する化合物としては、例えば、ジメチルメチレンビス（１，４－フェニレン）ビスシアナート、及びビス（４－シアネートフェニル）メタン等が挙げられる。ジメチルメチレンビス（１，４－フェニレン）ビスシアナートは、例えば、ＴＡＣＮ（三菱ガス化学株式会社製、商品名）として商業的に入手可能である。

[0045] ビスマレイミド基を有する化合物としては、例えば、Ｎ，Ｎ’－［（１－メチルエチリデン）ビス［（ｐ－フェニレン）オキシ（ｐ－フェニレン）］］ビスマレイミド、及び４，４’－ジフェニルメタンビスマレイミド等が挙げられる。Ｎ，Ｎ’－［（１－メチルエチリデン）ビス［（ｐ－フェニレン）オキシ（ｐ－フェニレン）］］ビスマレイミドは、例えば、ＢＭＩ－８０（ケイ・アイ化成株式会社製、商品名）として商業的に入手可能である。

[0046] エポキシ基を有する化合物としては、ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、及び多官能エポキシ樹脂等が挙げられる。例えば、ＨＰ－４０３２Ｄ（ＤＩＣ株式会社製、商品名）として商業的に入手可能である１，６－ビス（２，３－エポキシプロパン－１－イルオキシ）ナフタレン等であってもよい。

[0047] 硬化剤は、ホスフィン系硬化剤及びイミダゾール系硬化剤を含有してもよい。ホスフィン系硬化剤はシアネート基を有する化合物又はシアネート樹脂

の三量化によるトリアジン生成反応を促進し得る。ホスフィン系硬化剤としては、例えば、テトラフェニルホスホニウムテトラ－ｐ－トリルボレート、及びテトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート等が挙げられる。テトラフェニルホスホニウムテトラ－ｐ－トリルボレートは、例えば、ＴＰＰ－ＭＫ（北興化学工業株式会社製、商品名）として商業的に入手可能である。

[0048] イミダゾール系硬化剤はオキサゾリンを生成し、エポキシ基を有する化合物又はエポキシ樹脂の硬化反応を促進する。イミダゾール系硬化剤としては、例えば、１－（１－シアノメチル）－２－エチル－４－メチル－１Ｈ－イミダゾール、及び２－エチル－４－メチルイミダゾール等が挙げられる。１－（１－シアノメチル）－２－エチル－４－メチル－１Ｈ－イミダゾールは、例えば、２Ｅ４ＭＺ－ＣＮ（四国化成工業株式会社製、商品名）として商業的に入手可能である。

[0049] 樹脂組成物は、主剤及び硬化剤とは別の成分を含んでよい。その他の成分としては、例えば、フェノール樹脂、メラミン樹脂、尿素樹脂、及びアルキド樹脂等のその他の樹脂、シランカップリング剤、レベリング剤、消泡剤、表面調整剤、並びに湿潤分散剤等を更に含んでもよい。

[0050] 硬化工程は、含浸工程の後に行ってもよいし、含浸工程と同時に行ってもよい。硬化工程では、樹脂含浸体に含まれる樹脂組成物を硬化して、窒化ホウ素焼結体に充填部と非充填部とを形成する。硬化工程では、樹脂組成物（又は必要に応じて添加される硬化剤）の種類に応じて、加熱、及び／又は光照射により、樹脂組成物を硬化させる。樹脂組成物が窒化ホウ素焼結体に含浸し始めてから直ぐに硬化工程を行えば、窒化ホウ素焼結体の内部への樹脂組成物の含浸を停止することができる。

[0051] 硬化工程において、加熱によって樹脂組成物を硬化させる場合の加熱温度は、例えば８０～１３０℃であってよい。樹脂組成物の硬化によって得られる樹脂は、樹脂成分として、シアネート樹脂、ビスマレイミド樹脂及びエポキシ樹脂からなる群より選択される少なくとも１種の熱硬化性樹脂、並びに

硬化剤を含有してよい。樹脂は、これらの成分の他に、例えば、フェノール樹脂、メラミン樹脂、尿素樹脂、及びアルキド樹脂等のその他の樹脂、並びに、シランカップリング剤、レベリング剤、消泡剤、表面調整剤、及び湿潤分散剤等に由来する成分を含有してもよい。

[0052] このようにして、気孔に樹脂が充填されている充填部と、気孔に樹脂が充填されておらず、充填部に取り囲まれる非充填部と、を有する窒化ホウ素焼結体を備える複合体を得ることができる。窒化ホウ素焼結体に充填部と非充填部が形成されていることは、複合体の断面を目視又は顕微鏡で観察して確認することができる。

[0053] 硬化工程の後に被覆工程を行って、充填部の表面を覆う樹脂層を設けてもよい。被覆工程では、硬化工程で形成された充填部の少なくとも一部の表面に樹脂組成物を付着させ、加熱して充填部の少なくとも一部の表面を樹脂で被覆する。充填部に含まれる樹脂は硬化しているため、充填部によって、その表面から内部に樹脂組成物が含浸することが抑制される。被覆する方法は特に限定されず、樹脂組成物中に硬化工程で得られた複合体（樹脂充填体）を浸漬してもよいし、複合体の表面の一部又は全部に樹脂組成物を塗布することで行ってもよい。樹脂組成物（又は必要に応じて添加される硬化剤）の種類に応じて、加熱、及び／又は光照射により、樹脂組成物を硬化させる。充填部における樹脂が熱硬化性樹脂であれば、加熱しても充填部における樹脂が溶解することを抑制できる。このようにして、充填部の表面を覆う樹脂層を形成することができる。

[0054] 被覆工程で用いる樹脂組成物（第２樹脂組成物）は、含浸工程で用いる樹脂組成物（第１樹脂組成物）と同じであってもよいし、異なっていてもよい。被覆工程で充填部の表面に設けられる樹脂層の成分及び硬化率は、充填部の気孔に充填されている樹脂と同じであってもよいし、異なっていてもよい。以上の工程によって、例えば図１に示されるような複合体１００を製造することができる。ただし、複合体１００の製造方法は上記製造方法に限定されない。

[0055] 上記製造方法の変形例では、充填部の表面にシート状の樹脂硬化物を接着して複合体１００を得てもよい。この変形例では、シート状の樹脂硬化物を用いることから、寸法精度に優れる複合体を円滑に製造することができる。また、加熱回数を少なくできることから、効率よく複合体を製造することができる。別の変形例では、被覆工程を行わず、硬化工程によって表面に樹脂で構成される樹脂層を有しない複合体を得てもよい。さらに別の変形例では、硬化工程の前（例えば、含浸工程の際）に、樹脂含浸体の表面に樹脂組成物を余分に付着させておき、硬化工程によって、表面が樹脂層で覆われた複合体１００を得てもよい。

[0056] 以上、幾つかの実施形態を説明したが、本開示は上記実施形態に何ら限定されるものではない。例えば、焼結工程では、成形と焼結を同時に行うホットプレスによって窒化ホウ素焼結体を得てもよい。また、樹脂層は層状ではなく島状に形成されていてもよい。複合体の形状はブロック状に限定されず、円柱状又は球状であってもよい。

実施例

[0057] 実施例及び比較例を参照して本開示の内容をより詳細に説明するが、本開示は下記の実施例に限定されるものではない。

[0058]（実施例１）

［窒化ホウ素焼結体の作製］

アモルファス窒化ホウ素粉末（デンカ株式会社製、全酸素量：１．５質量％、窒化ホウ素純度：９７．０質量％）と、六方晶窒化ホウ素粉末（デンカ株式会社製、全酸素量：０．３質量％、窒化ホウ素純度：９９．０質量％、平均粒子径：１５μｍ）とを、４０：６０の重量比で容器に収容した。当該容器に有機バインダー、及び水を加えて混合後、乾燥造粒を行って、混合粉末を得た。

[0059] 得られた上記混合粉末を、冷間等方加圧装置（ＣＩＰ、株式会社神戸製鋼所製、商品名：ＡＤＷ８００）に充填し、上記混合粉末に１０ＭＰａの圧力をかけて圧縮し成形体を作製した（ＣＩＰ成形圧力：１０ＭＰａ）。

[0060] 有機バインダーを分解除去するために、作製した成形体を、６００℃の加熱温度で５時間加熱処理し、成形体から有機バインダー成分を分解除去して脱脂体を得た。

[0061] 脱脂体をバッチ式高周波炉（富士電波工業株式会社製）に導入し、１４００℃で２時間保持する第一焼成と、２０５０℃で１０時間保持する第二焼成とを順次行って、四角柱形状を有する窒化ホウ素焼結体を得た。焼成中は、炉内に窒素ガスを標準状態で流量が１０Ｌ／分となるように流通させた。このようにして、窒素雰囲気下、０．１ＭＰａ（常圧）の圧力下で焼成を行った。

[0062] ［窒化ホウ素焼結体の評価］

＜厚み、かさ密度、空隙率の測定＞

得られた窒化ホウ素焼結体のサイズ及び重量を測定し、体積及び重量からかさ密度（ｇ／ｃｍ^3）を算出した。窒化ホウ素焼結体のサイズは、縦×横×厚み＝４５ｍｍ×５０ｍｍ×３５ｍｍ）であった。窒化ホウ素焼結体のかさ密度は、ＪＩＳ　Ｚ　８８０７：２０１２の「幾何学的測定による密度及び比重の測定方法」に準拠し、窒化ホウ素焼結体の各辺の長さ（ノギスにより測定）から計算した体積と、電子天秤により測定した窒化ホウ素焼結体の重量に基づいて求めた（ＪＩＳ　Ｚ　８８０７：２０１２の９項参照）。かさ密度と窒化ホウ素の理論密度（２．２６ｇ／ｃｍ^3）とから、以下の計算式（１）によって空隙率を求めた。計算式（１）中、Ｂはかさ密度（ｇ／ｃｍ^3）を示す。厚さ、かさ密度及び空隙率は表１に示すとおりであった。

空隙率（体積%）＝［１－（Ｂ／２．２６）］×１００　　（１）

[0063] ＜平均細孔径の測定＞

株式会社島津製作所製の水銀ポロシメーター（装置名：オートポアⅣ９５００）を用いて窒化ホウ素焼結体の細孔容積分布を測定した。測定は、０．００４２ＭＰａから２０６．８ＭＰａまで圧力を増加しながら行った。積算細孔容積が全細孔容積の５０％に達する細孔径を「平均細孔径」とした。結果を表１に示す。

[0064] ［樹脂含浸体の作製］

図３に示すように、窒化ホウ素焼結体１１の表面に黒色の油性塗料で帯状の黒線３０を描いた。これによって、最終的に得られる複合体において、樹脂が含浸した部分と含浸していない部分との境界を分かりやすくすることができる。市販のエポキシ樹脂（三菱ケミカル株式会社製、商品名：エピコート８０７）１００重量部に対し、市販の硬化剤（日本合成化学工業株式会社製、商品名：アクメックスＨ－８）を１０重量部配合して、樹脂組成物を調製した。調製した樹脂組成物を１２０℃で１５分間加熱した。

[0065] この樹脂組成物を、圧力１００Ｐａの真空中で１０分間脱気した後、真空下で窒化ホウ素焼結体が収容された容器に注ぎ込み、２０分間含浸した。樹脂組成物を含浸させた。

[0066] ［複合体の作製］

樹脂含浸体を、大気圧下、１６０℃で６０分間加熱して樹脂組成物を硬化させ、窒化ホウ素焼結体とその気孔に充填された樹脂とを含む複合体を得た。

[0067] ［複合体の評価］

複合体の形状及びサイズは、窒化ホウ素焼結体とほぼ同じであった。複合体の重量を測定し、複合体の重量と窒化ホウ素焼結体の重量の差を樹脂の重量とした。複合体の全体の重量に対する樹脂の重量の比率を求めた。結果を表１の「樹脂の重量比率」の欄に示す。

[0068] 複合体を厚み方向に対向する一対の面に対して平行方向に、且つ複合体の中心を通るように切断した。このようにして、得られた断面を目視で観察した。この断面は、図３のＩＶ－ＩＶ線断面に相当し、帯状の黒線３０が描かれている部分に沿って切断することによって得た。断面観察の結果、中心を含む中央部には樹脂が含まれておらず、表面部にのみ樹脂が含まれていることが確認された。すなわち、窒化ホウ素焼結体の内部に非充填部が形成され、その周囲に充填部が形成されていた。このように、非充填部が形成されているものを、非充填部「有り」と評価した。窒化ホウ素焼結体の当該断面全

体の断面積Ｗと当該断面における非充填部の断面積Ｎを測定した。断面全体の断面積Ｗに対する非充填部の断面積Ｎの比（Ｎ／Ｗ）は、表１に示すとおりであった。

[0069]（実施例２）

成形体を作製する際のＣＩＰ成形圧力を２０ＭＰａにしたこと以外は、実施例１と同じ手順で窒化ホウ素焼結体及び複合体を作製し、評価を行った。評価結果は表１に示すとおりであった。

[0070]（実施例３）

成形体を作製する際のＣＩＰ成形圧力を４０ＭＰａにしたこと以外は、実施例１と同じ手順で窒化ホウ素焼結体及び複合体を作製し、評価を行った。評価結果は表１に示すとおりであった。

[0071]（実施例４）

成形体を作製する際のＣＩＰ成形圧力を１００ＭＰａにしたこと以外は、実施例１と同じ手順で窒化ホウ素焼結体及び複合体を作製し、評価を行った。評価結果は表１に示すとおりであった。

[0072]（実施例５）

成形体を作製する際のＣＩＰ成形圧力を５００ＭＰａにしたこと以外は、実施例１と同じ手順で窒化ホウ素焼結体及び複合体を作製し、評価を行った。評価結果は表１に示すとおりであった。

[0073]（実施例６）

原料粉末の量を増やして厚みが１００ｍｍの窒化ホウ素焼結体を得たこと以外は、実施例１と同じ手順で窒化ホウ素焼結体及び複合体を作製し、評価を行った。評価結果は表１に示すとおりであった。

[0074]（比較例１）

成形体を作製する際のＣＩＰ成形圧力を５ＭＰａにしたこと以外は、実施例１と同じ手順で窒化ホウ素焼結体及び複合体を作製し、評価を行った。評価結果は表１に示すとおりであった。

[0075]

[表1]

	窒化ホウ素焼結体				複合体		
	厚み	かさ密度	空隙率	平均細孔径	樹脂の重量比率	非充填部の有無	面積比
	[mm]	[g/cm^3]	[体積%]	[μm]	[重量%]		[N/W]
実施例１	35	1.15	49%	1.06	27%	有り	0.28
実施例２	35	1.28	43%	0.89	22%	有り	0.32
実施例３	35	1.41	38%	0.70	17%	有り	0.37
実施例４	35	1.54	32%	0.56	11%	有り	0.48
実施例５	35	1.80	20%	0.43	3%	有り	0.67
実施例６	100	1.54	32%	0.56	4%	有り	0.48
比較例１	35	1.02	55%	1.24	37%	無し	0

[0076] 図４（Ａ）は、実施例３の複合体の断面写真である。図４（Ａ）に示すように、各実施例の複合体は、樹脂が充填された充填部１４に取り囲まれるように、樹脂が充填されていない非充填部１２を有していた。また、複合体は、充填部１４を覆うように樹脂で構成される樹脂層２０を有していた。充填部１４と非充填部１２の境界１３は、複合体の外縁と類似の形状を有していた。比較例１の複合体は、図４（Ｂ）に示すように、樹脂が窒化ホウ素焼結体の全体に充填されており、非充填部１２がなかった。黒色の塗料を塗布した位置の関係から、内部には４つの白色部分が格子状に存在していたが、これらの部分にも樹脂が充填されていた。

符号の説明

[0077] １０，１０Ａ，１１…窒化ホウ素焼結体、１２…非充填部、１３…境界、１４…充填部、１４ｅ…エッジ、２０…樹脂層、３０…帯状の黒線、１００，１００Ａ…複合体。

請求の範囲

[請求項1] 多孔質の窒化ホウ素焼結体と、前記窒化ホウ素焼結体の気孔の一部に充填された樹脂と、を備える複合体であって、

前記窒化ホウ素焼結体は、前記気孔に前記樹脂が充填されている充填部と、前記充填部に取り囲まれ、前記気孔に前記樹脂が充填されていない非充填部と、を有する、複合体。

[請求項2] 前記充填部の少なくとも一部を覆う樹脂層を備える、請求項１に記載の複合体。

[請求項3] 前記窒化ホウ素焼結体の空隙率が５６体積％以下である、請求項１又は２に記載の複合体。

[請求項4] 前記窒化ホウ素焼結体における前記気孔の平均細孔径が１．５μｍ以下である、請求項１又は２に記載の複合体。

[請求項5] 前記窒化ホウ素焼結体における前記充填部は、外方に突出するエッジを有する、請求項１又は２に記載の複合体。

[請求項6] 前記窒化ホウ素焼結体の厚みが３０ｍｍ以上である、請求項１又は２に記載の複合体。

[請求項7] 前記窒化ホウ素焼結体の断面積Ｗに対する前記非充填部の断面積Ｎの比が、０．２以上である、請求項１又は２に記載の複合体。

[請求項8] 前記充填部の体積よりも前記非充填部の体積の方が大きい、請求項１又は２に記載の複合体。

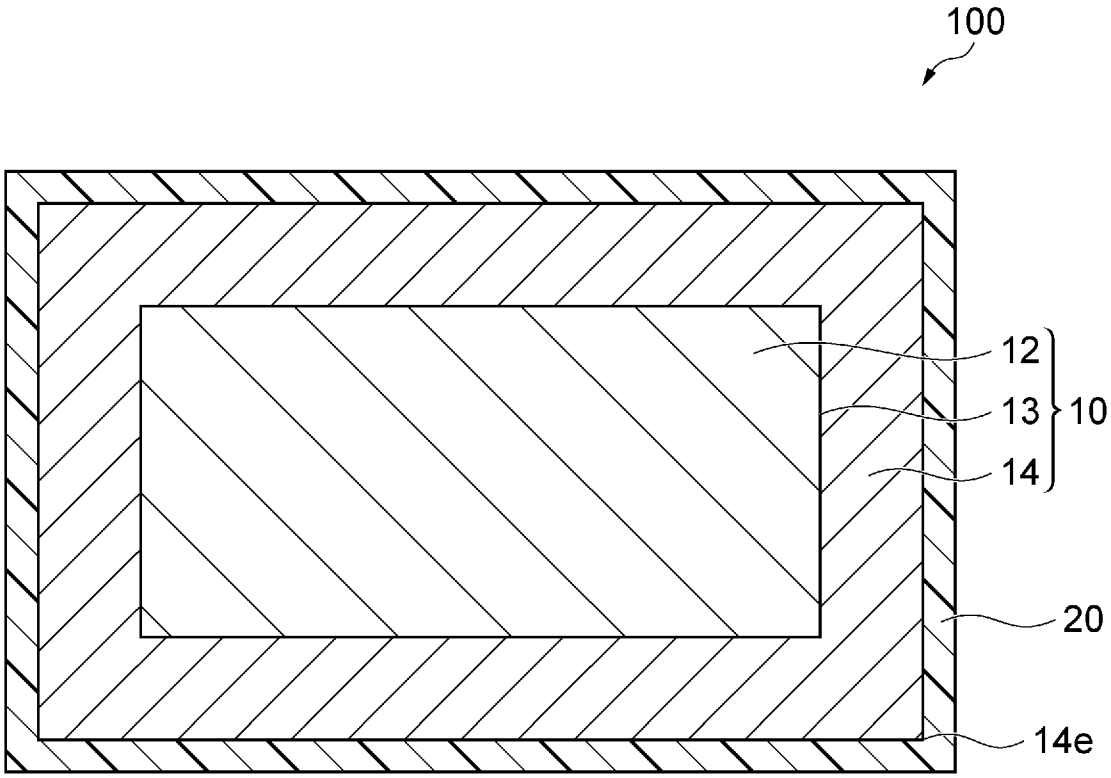
[請求項9] 多孔質の窒化ホウ素焼結体の表面部における気孔に樹脂組成物を含浸して樹脂含浸体を得る含浸工程と、

前記樹脂含浸体を加熱して前記樹脂組成物を硬化させ、前記気孔に樹脂が充填されている充填部と、前記充填部に取り囲まれ、前記気孔に前記樹脂が充填されていない非充填部とを形成する硬化工程と、を有する、複合体の製造方法。

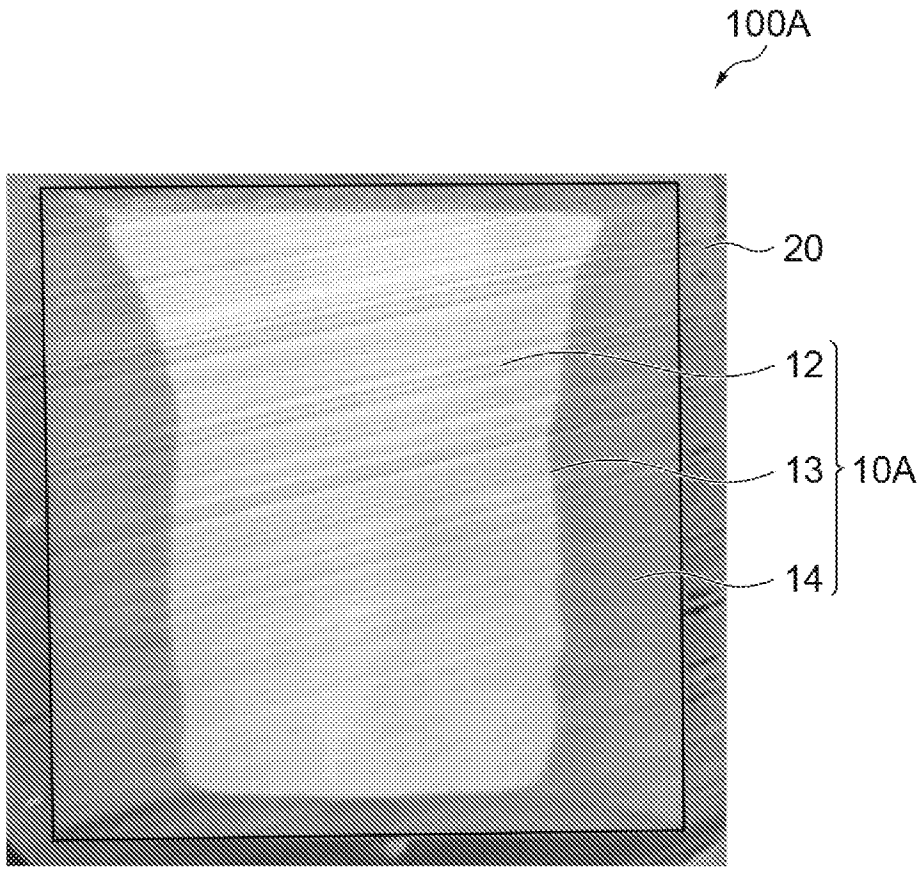
[請求項10] 前記窒化ホウ素焼結体の空隙率は５６体積％以下であり、前記気孔の平均細孔径が１．５μｍ以下である、請求項９に記載の複合体の製

造方法。

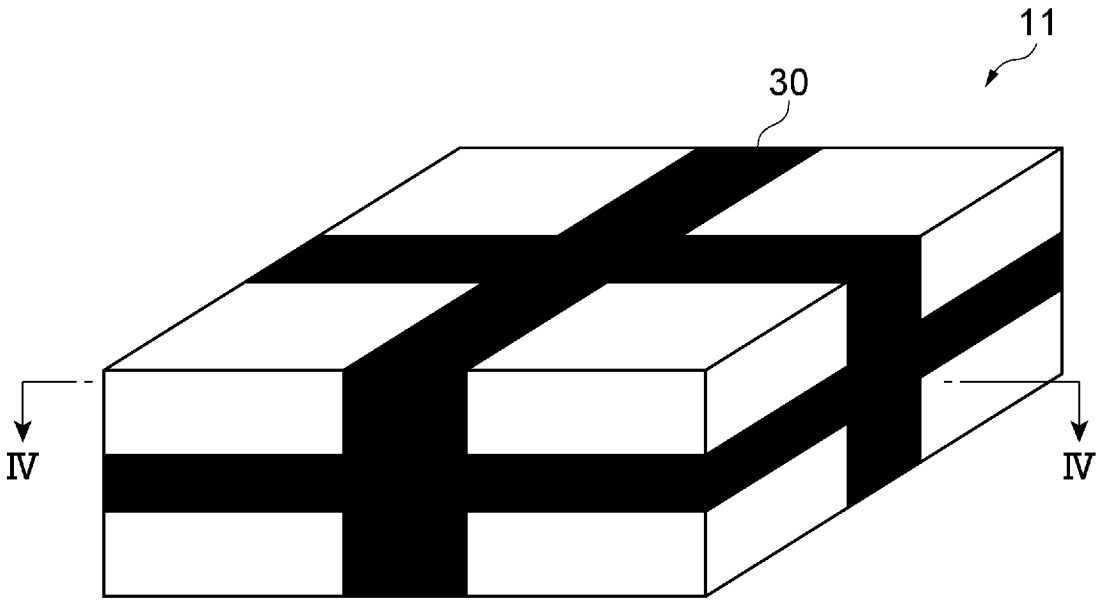
[図1]



[図2]

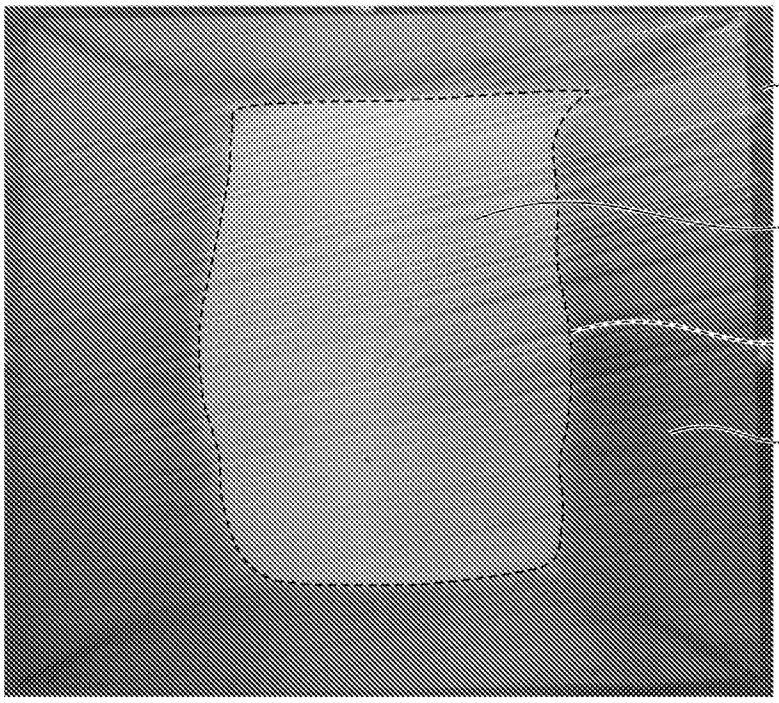


[図3]

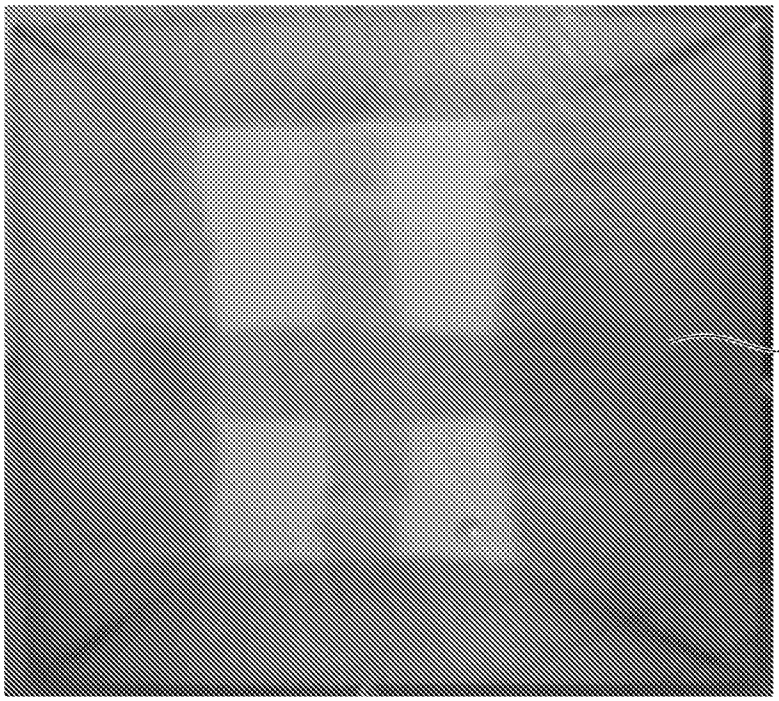


[図4]

(A)



(B)



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2024/012466

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C04B 41/83(2006.01)i; ***C04B 35/583***(2006.01)i; ***C04B 38/00***(2006.01)i; ***C04B 41/89***(2006.01)i
FI: C04B41/83 G; C04B41/89 B; C04B38/00 303Z; C04B35/583

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)

C04B41/83; C04B35/583; C04B38/00; C04B41/89

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

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2024
Registered utility model specifications of Japan 1996-2024
Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

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

JSTPlus/JST7580/JSTChina (JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2020/203688 A1 (DENKA CO., LTD.) 08 October 2020 (2020-10-08) paragraphs [0012]-[0013], [0034]-[0037], [0048]	1, 3-10
X	WO 2022/209971 A1 (DENKA CO., LTD.) 06 October 2022 (2022-10-06) paragraphs [0023]-[0026], [0033], [0039]-[0042], [0047]-[0048], [0083]-[0085], fig. 1	1-5, 9, 10
A	WO 2014/196496 A1 (DENKA CO., LTD.) 11 December 2014 (2014-12-11) claim 1	1-10
A	JP 2015-096456 A (DENKI KAGAKU KOGYO KK) 21 May 2015 (2015-05-21) claim 1	1-10

☐ 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
"D" document cited by the applicant in the international application
"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	Date of mailing of the international search report
12 June 2024	**25 June 2024**

Name and mailing address of the ISA/JP	Authorized officer
Japan Patent Office (ISA/JP) **3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915** **Japan**	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/012466

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO 2020/203688 A1	08 October 2020	US 2022/0250994 A1 paragraphs [0012]-[0013], [0034]-[0037], [0059] CN 113614051 A	
WO 2022/209971 A1	06 October 2022	(Family: none)	
WO 2014/196496 A1	11 December 2014	US 2016/0130187 A1 claim 1 CN 105263886 A	
JP 2015-096456 A	21 May 2015	(Family: none)	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2024/012466

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C04B 41/83(2006.01)i; C04B 35/583(2006.01)i; C04B 38/00(2006.01)i; C04B 41/89(2006.01)i
FI: C04B41/83 G; C04B41/89 B; C04B38/00 303Z; C04B35/583

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））

C04B41/83; C04B35/583; C04B38/00; C04B41/89

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	１９７１－２０２４年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２４年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２４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）

JSTPlus/JST7580/JSTChina (JDreamIII)

C. 関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	WO 2020/203688 A1 (デンカ株式会社) 08.10.2020 (2020-10-08) 段落００１２－００１３、００３４－００３７、００４８	1, 3-10
X	WO 2022/209971 A1 (デンカ株式会社) 06.10.2022 (2022-10-06) 段落００２３－００２６、００３３、００３９－００４２、００４７－００４８、００８３－００８５、図１	1-5, 9, 10
A	WO 2014/196496 A1 (デンカ株式会社) 11.12.2014 (2014-12-11) 請求項１	1-10
A	JP 2015-096456 A (電気化学工業株式会社) 21.05.2015 (2015-05-21) 請求項１	1-10

☐ Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー
"A" 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
"D" 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献
"E" 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
"L" 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
"O" 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
"P" 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
"T" 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、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	国際調査報告の発送日
12.06.2024	25.06.2024

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）
神▲崎▼　賢一　4T 6109

電話番号 03-3581-1101 内線 3416

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2024/012466

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO 2020/203688 A1	08.10.2020	US 2022/0250994 A1 段落００１２－００１３、００３４－００３７、００５９ CN 113614051 A	
WO 2022/209971 A1	06.10.2022	（ファミリーなし）	
WO 2014/196496 A1	11.12.2014	US 2016/0130187 A1 請求項１ CN 105263886 A	
JP 2015-096456 A	21.05.2015	（ファミリーなし）	