

(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
2012年8月2日(02.08.2012)



(10) 国際公開番号
WO 2012/102378 A1

- (51) 国際特許分類:
C04B 37/00 (2006.01) F28F 21/04 (2006.01)
C04B 35/565 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/051807
- (22) 国際出願日: 2012年1月27日(27.01.2012)
- (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 2011-016749 2011年1月28日(28.01.2011) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 京セラ株式会社(KYOCERA CORPORATION) [JP/JP]; 〒6128501 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地 Kyoto (JP). 立山 泰治(TATEYAMA, Yasuuharu) [JP/JP]; 〒8994396 鹿児島県霧島市国分山下町1番1号 京セラ株式会社鹿児島国分工場内 Kagoshima (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 織田 武廣(ODA, Takehiro) [JP/JP]; 〒8994396 鹿児島県霧島市

国分山下町1番1号 京セラ株式会社鹿児島国分工場内 Kagoshima (JP).

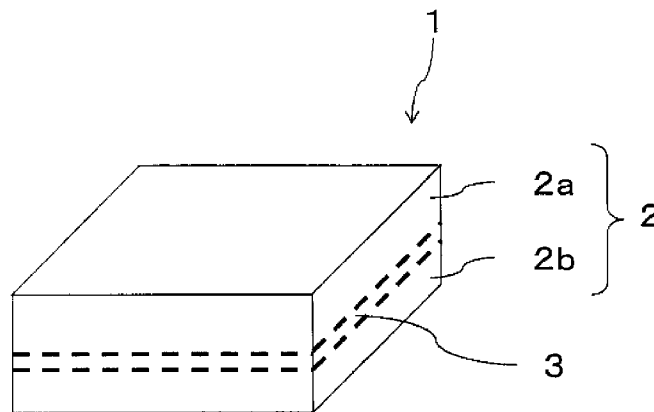
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) Title: SILICON CARBIDE ASSEMBLY, HEAT TRANSFER TUBE COMPRISING SAME, AND HEAT EXCHANGER PROVIDED WITH SAID HEAT TRANSFER TUBE

(54) 発明の名称: 炭化珪素質接合体およびこれからなる伝熱管ならびにこの伝熱管を備える熱交換器

[図1]



(57) Abstract: [Problem] To provide a silicon carbide member having high bond strength in a high-temperature environment, a heat transfer tube in which the silicon carbide member is used, and a heat exchanger provided with the heat transfer tube. [Solution] A silicon carbide assembly is obtained by bonding together silicon carbide members, which are formed from sintered compacts having silicon carbide as a main component, with a bonding member, which is formed from a sintered compact having silicon carbide as a main component, interposed therebetween. Therein, the maximum void diameter in the bonding member is less than the maximum void diameter in the silicon carbide members. The silicon carbide bonded body has high bond strength in a high-temperature environment.

(57) 要約: 【課題】 高温環境下における接合強度の高い炭化珪素質部材およびこれを用いた伝熱管ならびにこの伝熱管を備えた熱交換器を提供する。【解決手段】 炭化珪素質を主成分とする焼結体で形成された炭化珪素質部材同士を、炭化珪素質を主成分とする焼結体で形成された接合部材を介して接合してなり、接合部材の最大ボイド径が炭化珪素質部材の最大ボイド径よりも小さい炭化珪素質接合体である。高温環境下において高い接合強度を有するものとなる。

WO 2012/102378 A1

添付公開書類:

- 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：

炭化珪素質接合体およびこれからなる伝熱管ならびにこの伝熱管を備える熱交換器

技術分野

[0001] 本発明は、炭化珪素質部材同士を接合してなる炭化珪素質接合体およびこれからなる伝熱管ならびにこの伝熱管を備える熱交換器に関する。

背景技術

[0002] 炭化珪素は、機械的強度が高く、耐熱性や耐食性など優れた特性を有していることから、幅広い分野で用いられている。そして、近年では、このような特性を求められる部材を備える装置や設備の大型化に伴って、部材の大型化や長尺化、さらには、部材形状の複雑化が求められている。しかしながら、この要求に応えるには、大型の設備や煩雑な加工等が必要であり、大型、長尺、複雑な形状等の成形体を一体的に形成することは困難であった。さらに、成形体を得ることができたとしても、セラミックス自体焼成が困難な材料であることから、不具合なく焼結体を得ることは困難であった。そのため、複数の焼結体同士を接合して接合体とすることによって、部材の大型化、長尺化、形状の複雑化への対応が図られている。

[0003] このような接合体として、例えば、特許文献1には、第一の炭化珪素焼結体と第二の炭化珪素焼結体とが金属珪素からなる接合層を介して接合された炭化珪素接合体であって、第一の炭化珪素質焼結体は、金属珪素層が形成される接合面を有し、第二の炭化珪素焼結体は、金属珪素層と当接する接合面を有し、第一及び第二の炭化珪素焼結体の各接合面は、いずれも表面粗さ $Ra 0.6 \mu m$ 以下であって、金属珪素層が熱処理されてなる接合層を介して接合された炭化珪素接合体が提案されている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2010-24122号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 特許文献1に記載された炭化珪素接合体は、セラミックス同士の接合体の曲げ強さ試験方法について記載されたJIS R 1624に準拠した4点曲げ強度が250MPa以上、最大で284MPaであることが記載されているものの、特に、接合箇所を増やすことなく長尺の接合体を得るには、さらに接合強度を高める必要があった。また、熱交換器に備えられた媒体の流路となる伝熱管として接合体を用いるときには、1500℃を超えるような高温環境下においても強固に接合されていなければならない。しかしながら、特許文献1に記載された炭化珪素接合体をこのような環境下で用いたときには、接合層における金属珪素が溶融し、強固な接合が保てないという問題があった。そのため、特に熱交換器に備えられた媒体の流路となる伝熱管として用いる場合には、機械的強度が高く、耐熱性および耐食性に優れる炭化珪素質焼結体を接合して、部材の大型化、長尺化、形状の複雑化を図るには、室温のみならず高温環境下における接合強度を高めなければならないという課題があった。

[0006] 本発明は、上記課題を解決すべく案出されたものであり、高温環境下における接合強度の高い炭化珪素質接合体およびこれを用いた伝熱管ならびにこの伝熱管を備えた熱交換器を提供することを目的とするものである。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明の炭化珪素質接合体は、炭化珪素を主成分とする焼結体で形成された炭化珪素質部材同士を、炭化珪素を主成分とする焼結体で形成された接合部材を介して接合してなり、該接合部材の最大ボイド径が前記炭化珪素質部材の最大ボイド径よりも小さいことを特徴とするものである。

[0008] また、本発明の伝熱管は、上記構成の本発明の炭化珪素質接合体からなることを特徴とするものである。

[0009] また、本発明の熱交換器は、上記構成の本発明の伝熱管を備えていること

を特徴とするものである。

発明の効果

[0010] 本発明の炭化珪素質接合体によれば、接合部材の最大ボイド径が炭化珪素質部材の最大ボイド径よりも小さいことにより、接合部材は、亀裂や割れの起点となるクラックの発生が少ないので、接合部材自体が高い機械的強度を有しており、炭化珪素質部材同士の間介在する接合部材に荷重が掛かったときの曲げ応力にも耐えることができ、接合強度の高い炭化珪素質接合体とすることができる。

[0011] また、本発明の伝熱管によれば、本発明の炭化珪素質接合体からなることにより、高温環境下においても強固に接合を保つことができ、熱伝導性に優れていることから、高温環境下において外部からの熱を伝えて内部を流通する媒体を温める、または内部に高温の媒体を流通させる伝熱管に好適に用いることができる。

[0012] また、本発明の熱交換器によれば、機械的強度が高く、耐熱性や耐食性に優れている炭化珪素質部材同士が接合され、接合強度の高い炭化珪素質接合体からなる本発明の伝熱管を備えていることから、長期間にわたって安定して用いることのできる信頼性の高い熱交換器とすることができる。

図面の簡単な説明

[0013] [図1]本実施形態の炭化珪素質接合体の一例を示す概略図である。

[図2]本実施形態の炭化珪素質接合体の他の例を示す概略図である。

[図3]本実施形態の熱交換器の用途の一例を示す集光型太陽光発電装置の概略図である。

発明を実施するための形態

[0014] 以下、本実施形態の炭化珪素質接合体の一例について説明する。

[0015] 本実施形態の炭化珪素質接合体は、炭化珪素を主成分とする焼結体で形成された炭化珪素質部材同士を、炭化珪素を主成分とする焼結体で形成された接合部材を介して接合してなり、接合部材の最大ボイド径が炭化珪素質部材の最大ボイド径よりも小さいことを特徴とする。

- [0016] なお、炭化珪素を主成分とする焼結体を以下の記載において、単に炭化珪素質焼結体という。また、ここでいう主成分とは、炭化珪素質部材および接合部材をそれぞれ構成する全成分100質量%に対して80質量%以上を占める成分であり、90質量%以上であることが好適であり、95質量%以上であることがより好適である。
- [0017] また、本実施形態の炭化珪素質接合体は、いずれも炭化珪素質焼結体で形成された炭化珪素質部材と接合部材とで構成されているが、本実施形態の炭化珪素質部材と接合部材との判別は、以下の方法により行なえばよい。具体例としては、走査型電子顕微鏡（SEM）を用い、150倍以上1000倍以下の倍率の範囲において、接合界面が判別できる倍率を適宜選択して炭化珪素質接合体の表面を観察し、接合界面を見付け、接合界面を境界とした一方と他方の最大ボイド径を算出する。なお、一般的な接合体において、接合部分の厚みは薄いものであることから、接合界面の間隔によっても判別できるといっても過言ではなく、接合界面同士の間隔の短い部分にあたる部分が接合部材である。
- [0018] 次に、最大ボイド径の算出については、例えば、平均粒径が $0.05\sim 0.15\mu\text{m}$ のダイヤモンド砥粒および錫製のラップ盤を用いて、接合界面を境界とした一方と他方とを含む炭化珪素質接合体を算術平均粗さ R_a が $0.2\mu\text{m}$ 以下になるまで研磨し、観察面を得る。そして、光学顕微鏡を用いて400倍の倍率にて接合界面を境界とした一方と他方の観察面からそれぞれ5箇所（1視野の測定面積は、 $300\mu\text{m}\times 200\mu\text{m}$ ）撮影し、得られた画像を画像解析ソフト「A像くん」（登録商標、旭化成エンジニアリング（株）製）を用いてボイド径を測定する。
- [0019] なお、視野の選定においては、他の視野において観察されない異常に大きなボイドを含むようなところを除いて選定する。そして、それぞれについて、得られたボイド径を用いて累積分布曲線を作成し、累積分布曲線の面積を100%としたときの90%にあたるボイド径を最大ボイド径とし、この値を比較することによって本実施形態における炭化珪素質部材と接合部材とを判別す

る。

[0020] そして、本実施形態の炭化珪素質接合体において、接合部材の最大ボイド径が炭化珪素質部材の最大ボイド径よりも小さいことから、接合部材は、亀裂や割れの起点となるクラックの発生が少なく、接合部材自体が高い機械的強度を有する。そのため、炭化珪素質部材同士の間介在する接合部材に荷重が掛かったときの曲げ応力にも耐えることができるので、接合強度の高い炭化珪素質接合体とすることができる。これは、炭化珪素質接合体の接合部材の曲げ強度を高めようとしたとき、接合部材の両端の接合界面において強固に接合されていることはもちろんのこと、掛かる荷重によって荷重側には圧縮応力が、反対側には引っ張り応力が作用するため、接合部材の表面の最大ボイド径が影響することに知見したことに基づく。

[0021] なお、この接合強度については、J I S R 1624-2010に準拠して測定した4点曲げ強度の値を用いて表す。なお、試験片については、試験片の中央部に接合部材が位置するように作製する。本実施形態において示す4点曲げ強度の値は、断面が4 mm×3 mmであり、長さが38 mm（長さがいずれも16 mmである炭化珪素質部材の間に、長さが6 mmの接合部材を介在）であり、りょうを面取りした炭化珪素質接合体を試験片として測定したものである。

[0022] そして、本実施形態の炭化珪素質接合体は、炭化珪素質部材と接合部材とがいずれも炭化珪素質焼結体で形成されていることから、炭化珪素質部材と接合部材との熱膨張差が小さいため、高温環境下で用いたとしても熱膨張差に起因する応力は小さく、優れた接合強度を保つことができる。また、炭化珪素質部材と接合部材とがいずれも炭化珪素質焼結体で形成されていることから、熱の伝達が妨げられることは少ないので、優れた熱伝達特性を有している。

[0023] また、本実施形態の炭化珪素質接合体において、炭化珪素質部材の最大ボイド径が30 μ m以下であることが好ましい。炭化珪素質部材の最大ボイド径が30 μ m以下であるときには、亀裂や割れの起点となるクラックの発生が少

ないため、炭化珪素質部材自体が高い機械的強度を有する。また、最大ボイド径が $30\mu\text{m}$ 以下であるときには、接合部材との接合面における接触面積を大きくすることができるため、接合強度を高めることができる。なお、設備を含め作製に掛かるコストや困難性の観点から、最大ボイド径の下限值は $3\mu\text{m}$ 程度である。

[0024] このように、炭化珪素質部材の最大ボイド径が $30\mu\text{m}$ 以下である炭化珪素質接合体であれば、高い機械的強度を有し、耐熱性や耐食性に優れた炭化珪素質焼結体で炭化珪素質部材が構成され、これらが強固に接合されてなるものであることから、高い機械的強度や優れた耐熱性および耐食性の求められる部材の大型化、長尺化、形状の複雑化を好適に図ることができる。

[0025] また、上述した理由と同様の理由から、本実施形態の炭化珪素質接合体において、接合部材の最大ボイド径が $20\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。

[0026] また、本実施形態の炭化珪素質接合体において、炭化珪素質部材の平均ボイド径が $11\mu\text{m}$ 以下（ $0\mu\text{m}$ を除く）であることが好ましい。このように、炭化珪素質部材の平均ボイド径が $11\mu\text{m}$ 以下であれば、炭化珪素質部材は、より緻密となるため炭化珪素質部材自体が高い機械的強度を有するものとなる。また、平均ボイド径が $11\mu\text{m}$ 以下であることにより、炭化珪素質部材と接合部材との接合面における接触面積を大きくすることができることから、さらに接合強度を高めることができる。

[0027] また、上述した理由と同様の理由から、本実施形態の炭化珪素質接合体において、接合部材の平均ボイド径が $6\mu\text{m}$ 以下（ $0\mu\text{m}$ を除く）であることが好ましい。

[0028] なお、平均ボイド径については、最大ボイド径の算出で使用した画像を画像解析ソフト「A像くん」（登録商標、旭化成エンジニアリング（株）製）を用いて求めることができる。具体的には、炭化珪素質部材および接合部材の各5箇所視野におけるボイド径の平均値を求め、これらの平均値のさらに平均をとった値をそれぞれの平均ボイド径とすればよい。

[0029] また、本実施形態の炭化珪素質接合体によれば、接合部材のボイド数が炭

化珪素質部材のボイド数よりも少ないことが好適である。このような構成であると、ボイドの輪郭からクラックが生じても連通するおそれが低減し、高い荷重が接合部材に掛かっても破損しにくくなる。このボイド数についても、最大ボイド径の算出で使用した画像を画像解析ソフト「A像くん」（登録商標、旭化成エンジニアリング（株）製）を用いて求めることができる。

[0030] また、本実施形態の炭化珪素質接合体によれば、炭化珪素質部材に含まれるボイドは、接合面に垂直な方向に沿って配向しているものを含むことが好適である。このような構成であると、炭化珪素質接合体が、例えば、筒状であって、高温の媒体を筒状の内部に流通させる場合に、炭化珪素質部材に含まれるボイドが接合面に垂直な方向に沿って配向していないときよりも乱流が生じにくいので、圧力損失が低下しにくくなる。

[0031] 炭化珪素質部材に含まれるボイドが、炭化珪素質部材の接合面に垂直な方向に沿って配向しているものを含むか否かについては、最大ボイド径の算出で使用した画像を観察し、接合面に対する長軸の角度が $90^{\circ} \pm 10^{\circ}$ 以内にあるボイドを接合面に垂直な方向に沿って配向しているボイドとして認定すればよい。なお、観察されるボイドのうち50%以上が接合面に垂直な方向に沿って配向していることが好ましい。

[0032] また、本実施形態の炭化珪素質接合体によれば、接合部材における炭化珪素の平均結晶粒径が炭化珪素質部材における炭化珪素の平均結晶粒径よりも小さいときには、炭化珪素質部材よりも接合部材の機械的特性が高くなることから、より大きな曲げ応力にも耐え得る炭化珪素質接合体とすることができる。

[0033] また、本実施形態の炭化珪素質接合体によれば、接合部材における炭化珪素の平均結晶粒径が炭化珪素質部材における炭化珪素の平均結晶粒径よりも大きいときには、炭化珪素質部材よりも接合部材における炭化珪素の結晶粒子間の粒界相が少なく、接合部材を介することによる熱伝導性の低下を抑制することができる。

[0034] このような観点から、本実施形態の炭化珪素質接合体は、高い機械的特性

が求められる場合には、接合部材における炭化珪素の平均結晶粒径は、炭化珪素質部材における炭化珪素の平均結晶粒径よりも小さいことが好適であり、高い熱伝導性が求められる場合には、接合部材における炭化珪素の平均結晶粒径は、炭化珪素質部材における炭化珪素の平均結晶粒径よりも大きいことが好適である。

[0035] なお、接合部材および炭化珪素質部材のそれぞれにおける炭化珪素の平均結晶粒径については、最大ポイド径の算出に用いた観察面をエッチングした後に行なう。具体的には、まず、水酸化ナトリウムおよび硝酸カリウムの各粉末の質量比を1：1とし、これらをつぼに入れて加熱して溶解し、この溶解した液に上記観察面を浸漬し、処理時間を1分以下としてエッチングする。そして、走査型電子顕微鏡を用いて、例えば、400倍以上600倍以下の倍率で、エッチングされた面からそれぞれ5箇所（1視野の測定面積は、 $300\mu\text{m} \times 200\mu\text{m}$ ）撮影し、インターセプト法を用いて平均結晶粒径を算出すればよい。

[0036] 具体的には、1本当たりの長さが $40\mu\text{m}$ 以上 $100\mu\text{m}$ 以下である直線をランダムに1視野で8本引き、直線上に存在する結晶の個数をこれら直線の合計長さで除すことで求められる。直線の1本当たりの長さは、結晶粒径の長さに応じて、適宜選定すればよい。

[0037] また、本実施形態の炭化珪素質接合体を構成する炭化珪素質部材および接合部材が、炭化珪素を95質量%以上（100質量%を除く）含有することが好ましい。炭化珪素質部材および接合部材が、炭化珪素を95質量%以上含有するときには、機械的強度が高く、耐熱性や耐食性に優れた炭化珪素質接合体とすることができる。

[0038] ここで、炭化珪素質部材および接合部材における炭化珪素の含有量については、ICP（Inductively Coupled Plasma）発光分光分析法または蛍光X線分析法によりSiの含有量を求め、炭化物（SiC）に換算することにより求めることができる。

[0039] また、本実施形態の炭化珪素質接合体を構成する炭化珪素質部材および接

合部材は、相対密度がそれぞれ95体積%以上97体積%以下、98体積%以上（100体積%を除く）であることが好適である。

[0040] ここで、炭化珪素質部材および接合部材のそれぞれの相対密度は、J I S R 1634-1998に準拠して炭化珪素質焼結体の見掛密度を求め、この見掛密度を炭化珪素質焼結体の理論密度で除すことにより求めればよい。

[0041] 次に、模式図を用いて本実施形態の炭化珪素質接合体の例を示す。

[0042] 図1および図2は、本実施形態の炭化珪素質接合体を示す模式図である。図1は、直方体の炭化珪素質部材2 a, 2 b同士を接合部材3を介して接合してなる炭化珪素質接合体1であり、図2は、円筒体の炭化珪素質部材2 a, 2 b同士を接合部材3を介して接合してなる炭化珪素質接合体1'である。

[0043] 図1に示すように、炭化珪素質焼結体で形成された直方体である炭化珪素質部材2 a, 2 b同士を炭化珪素質焼結体で形成された直方体である接合部材3を介して接合してなる本実施形態の炭化珪素質接合体1は、機械的強度が高く、耐熱性や耐食性に優れているとともに、接合強度が高いため室温のみならず高温環境下における高い接合強度が求められる部材の大型化を好適に図ることができる。

[0044] 図2に示すように、炭化珪素質焼結体で形成された円筒体である炭化珪素質部材2 a, 2 b同士を炭化珪素質焼結体で形成された円筒体である接合部材3を介して接合してなる本実施形態の炭化珪素質接合体1'は、高温環境下においても強固に接合を保つことができ、熱伝導性に優れていることから、高温環境下において外部からの熱を伝えて内部を流通する媒体を温める、または内部に高温の媒体を流通させる伝熱管に好適に用いることができる。この伝熱管を接合体で構成するには、高温（1500℃）での4点曲げ強度が200 MP a以上であることが必要である。

[0045] 図3は、本実施形態の熱交換器の用途の一例を示す集光型太陽光発電装置の概略図である。

[0046] 図3に示す集光型太陽光発電装置10は、集光した太陽光の熱で媒体を加熱

し、加熱された媒体の熱を利用して発電するものである。発電までの流れとしては、低温貯蔵タンク11から媒体を熱交換器12へ圧送し、集光した太陽光によって媒体を加熱して、加熱された媒体を高温貯蔵タンク13に貯蔵し、高温貯蔵タンク13から圧送される加熱された媒体の熱エネルギーを使ってエネルギー変換システム14にて、例えば、水を蒸発させて蒸気タービンを回して発電するなどして熱エネルギーを電気エネルギーに変換するものである。なお、熱を奪われた媒体は低温貯蔵タンク11へと送られ、このサイクルを繰り返すことによって、燃料資源を使用せず、温室効果ガスを排出することなく、電気を得ることができるため経済面および環境面において有用なものである。

[0047] そして、本実施形態の熱交換器12は、媒体の流路となる伝熱管を備えているものであり、このような集光型太陽光発電装置10に用いられる熱交換器12を構成する伝熱管は、数メートルに及ぶ長尺部材であり、集光された太陽光によって受ける熱（1500℃程度）に耐えるものでなければならない。本実施形態の炭化珪素質接合体1'は、このような環境および用途として用いられる伝熱管として、好適に用いることができ、本実施形態の炭化珪素質接合体1'からなる伝熱管を備えていることにより、長期間にわたって安定して発電することができる信頼性の高い熱交換器10とすることができる。

[0048] 次に、本実施形態の炭化珪素質接合体の製造方法の一例について以下に詳細を示す。まず、主成分である炭化珪素粉末と、水および炭化珪素粉末を分散させる分散剤とをボールミルまたはビーズミルに入れて、粉碎混合してスラリーとする。その後、このスラリーに、焼結助剤として炭化硼素粉末およびグラファイト粉末と、バインダを所定量秤量して添加して混合し、噴霧乾燥することによって顆粒を得る。

[0049] そして、顆粒を所定の成形型に充填し、10MPa以上150MPa以下の範囲における適宜選択される圧力で厚み方向から加圧成形することにより、焼成後に炭化珪素質部材となる成形体および接合部材となる成形体を得る。

[0050] ここで、接合部材が炭化珪素質部材よりもポイド数が少ない炭化珪素質接

合体を得るには、炭化珪素質部材の作製に用いる炭化珪素粉末の平均粒径 D_{50} よりも接合部材の作製に用いる炭化珪素粉末の平均粒径 D_{50} を小さくすればよい。

[0051] また、炭化珪素質部材に含まれるボイドが接合面に垂直な方向に沿って配向しているものを含む炭化珪素質接合体を得るには、上述した加圧成形法ではなく、押出成形法を用いて成形体を得ればよい。具体的には、上記スラリーに、焼結助剤として炭化硼素粉末およびグラファイト粉末と、バインダ、可塑剤、増粘剤、滑り剤および水等を加えて、万能攪拌機、回転ミルまたはV型攪拌機等を使って混練物を作製する。そして、この混練物を三本ロールミルや混練機等を用いて混練し、可塑化した坯土を得る。

[0052] 次に、押出成形機を用いて成形する。押出成形機に坯土を投入し、圧力を加えて成形型から押出された成形体を所定長さに切断することにより、柱状または筒状の成形体を得ることができる。なお、押出成形法に代え、射出成形法を用いてもよい。

[0053] ここで、接合部材における炭化珪素の平均結晶粒径を炭化珪素質部材における炭化珪素の平均結晶粒径よりも小さくするには、用いる炭化珪素粉末の粒径を異ならせても良いが、押出成形法または射出成形法によって得られた成形体を接合部材となる成形体とし、加圧成形法によって得られた成形体を炭化珪素質部材となる成形体として接合してもよい。

[0054] また、接合部材における炭化珪素の平均結晶粒径を炭化珪素質部材における炭化珪素の平均結晶粒径よりも大きくするには、用いる炭化珪素粉末の粒径を異ならせても良いが、加圧成形法によって得られた成形体を接合部材となる成形体とし、押出成形法または射出成形法によって得られた成形体を炭化珪素質部材となる成形体として接合してもよい。

[0055] 次に、得られた炭化珪素質部材となる成形体および接合体となる成形体を窒素雰囲気中で450~700℃の温度で2~10時間保持して脱脂することにより、脱脂体を得る。このとき、脱脂体の相対密度が50%以上60%以下とすることが好ましい。次に、炭化珪素質部材となる脱脂体をアルゴンガス雰囲気中

で1800~2200℃の温度で2~6時間保持して焼成して、炭化珪素質部材である焼結体を得る。

[0056] そして、得られた炭化珪素質部材である焼結体同士の間には接合部材となる脱脂体を配置し、厚み方向に1MPa以上25MPa以下の範囲で加圧した状態のまま、アルゴンガス雰囲気中で1800~2200℃の温度で0.5~10時間保持して熱処理することにより、本実施形態の炭化珪素質接合体を得ることができ、このようにして作製された炭化珪素質接合体は、接合部材の最大ボイド径が炭化珪素質部材の最大ボイド径よりも小さくなる。

[0057] ここで、接合部材となる脱脂体の厚みは、炭化珪素質部材の大きさに合わせて適宜設定できるが、例えば1mm以上100mm以下とすることができ、焼結体同士の間には配置する脱脂体は、熱処理時の加圧によって潰れることのない強度を有しており、ハンドリングがよいので、作業効率よく良好に接合することができる。また、焼結体同士の間には脱脂体を配置すると、焼結体同士の間には成形体を配置した場合よりも位置ずれが生じにくいので、接合後の追加加工が少なくなり、作製時間を短縮することができる。また、接合に用いる熱処理炉としては、加圧と同時に全体加熱を行なうホットプレス炉、局部加熱が可能な抵抗加熱炉、誘導加熱炉、マイクロ波焼成炉などが挙げられる。

[0058] なお、炭化珪素質部材や接合部材の形状としては、特に限定されるものではなく、柱状、筒状、板状、錐状など、求められる形状に合わせた成型型や成型方法を用いればよい。また、炭化珪素質部材となる成形体および接合部材となる成形体の作製において、同じ出発原料からなる顆粒を用いた例を示したが、本実施形態の炭化珪素質接合体は、接合部材の最大ボイド径が炭化珪素質部材の最大ボイド径よりも小さくなるものであればよいので、同じ出発原料からなる顆粒を用いた場合に限定されるものではない。

[0059] さらに、接合体となる脱脂体と接触する炭化珪素質部材である焼結体の接合面は、研削加工や研磨加工を施し、算術平均粗さ(Ra)を2μm以下とし、平面度を5μm以下とすることが好ましい。算術平均粗さ(Ra)およ

び平面度をこの範囲にすることで、接合面間で空隙が生じにくくなり、高い接合強度を得ることができる。算術平均粗さ (Ra) を $0.5\mu\text{m}$ 以下とし、平面度を $3\mu\text{m}$ 以下とすることがより好ましい。

[0060] なお、算術平均粗さ (Ra) は J I S B 0601-2001 (I S O 4287-1 997) に準拠して測定すればよい。具体的には、測定長さおよびカットオフ値をそれぞれ 5mm および 0.8mm とし、触針式の表面粗さ計を用いて測定する場合であれば、炭化珪素質部材である焼結体の接合面に、触針先端半径が $2\mu\text{m}$ の触針を当て、触針の走査速度は $0.5\text{mm}/\text{秒}$ に設定し、この測定で得られた5箇所の平均値を算術平均粗さ (Ra) の値とする。また、平面度は、真円度測定器を用い、J I S B 0021-1998 (I S O / D I S 1101-1996) に準拠して測定すればよい。

[0061] そして、このような方法にて作製された炭化珪素質接合体は、機械的強度が高く、耐熱性や耐食性に優れているとともに、接合強度が高いため室温のみならず高温環境下における高い接合強度が求められる部材の大型化、長尺化、形状の複雑化を好適に図ることができる。

[0062] また、本実施形態の炭化珪素質接合体は、高温環境下においても強固に接合を保つことができ、熱伝導性に優れていることから、高温環境下において外部からの熱を伝えて内部を流通する媒体を温める、または内部に高温の媒体を流通させる伝熱管に好適に用いることができる。また、本実施形態の熱交換器は、機械的強度が高く、耐熱性や耐食性に優れている炭化珪素質部材同士が接合され、接合強度の高い炭化珪素質接合体からなる本発明の伝熱管を備えていることから、長期間にわたって安定して用いることのできる信頼性の高い熱交換器とすることができる。

[0063] 以下、本発明の実施例を具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例により限定されるものではない。

実施例 1

[0064] まず、炭化珪素質部材用および接合部材用として、平均粒径の異なる炭化珪素質粉末を用意した。そして、主成分である炭化珪素質粉末と、水および炭化

珪素粉末を分散させる分散剤とをボールミルに入れて、48時間粉碎混合してスラリーとし、炭化珪素質部材および接合部材にそれぞれ用いられる炭化珪素の粉碎粒径を J I S R 1629-1997 に準拠して求め、炭化珪素質部材用の炭化珪素の粉碎粒径を表 1 の粉碎粒径 A の欄に、接合部材用の炭化珪素の粉碎粒径を表 1 の粉碎粒径 B の欄に示した。

[0065] 次に、焼結助剤として炭化硼素粉末およびグラファイト粉末を、表 1 に記載した含有量となるように秤量し、バインダとともにスラリーにそれぞれ添加して混合した後、噴霧乾燥することによって顆粒を得た。

[0066] 次に、炭化珪素質部材用の顆粒、接合部材用の顆粒を用いて、それぞれ成形型に充填して加圧成形することにより、焼成後の寸法が縦80mm×横80mm×厚み16mmの炭化珪素質部材となる成形体および焼成後の寸法が縦80mm×横80mm×厚み6mmの接合部材となる成形体を得た。

[0067] そして、炭化珪素質部材となる成形体については、窒素雰囲気中で600℃の温度で6時間保持して脱脂した後、アルゴンガス雰囲気中で表 1 に記載した焼成温度および保持時間で焼成することにより炭化珪素質部材を得た。また、接合部材となる成形体については、窒素雰囲気中で表 1 に記載した脱脂温度および保持時間で脱脂し、接合部材となる脱脂体を得た。

[0068] 次に、炭化珪素質部材の接合面を算術平均粗さ (R a) が $0.5\mu\text{m}$ 以下となるように研磨加工を行ない、表 1 に示した組み合わせとなるように、炭化珪素質部材同士の間接合部材となる脱脂体を配置し、ホットプレス炉にて接合面に垂直な方向から20MPaで加圧した状態で、表 1 に記載した温度および保持時間で熱処理することにより接合し、試料No. 1~24の炭化珪素質接合体を得た。なお、これらの炭化珪素質接合体の寸法は、縦80mm×横80mm×厚み38mmである。

[0069]

[表1]

試料 No.	炭化珪素 (質量%)	炭化珪素 (質量%)	グラファイト (質量%)	粉砕粒径 A (μm)	粉砕粒径 B (μm)	炭化珪素質部材の 焼成条件		接合部材となる 脱脂体の脱脂条件		接合体の接合条件	
						焼成温度 ($^{\circ}\text{C}$)	保持時間 (時間)	脱脂温度 ($^{\circ}\text{C}$)	保持時間 (時間)	熱処理温度 ($^{\circ}\text{C}$)	保持時間 (時間)
1	94.0	1.5	4.5	3.5	0.4	2150	4	400	5	2030	0.3
2	94.0	1.5	4.5	3.5	3.5	2120	4	450	5	2100	5
3	94.0	1.5	4.5	3.5	3.5	2120	4	470	5	2100	5
4	94.0	1.5	4.5	3.5	3.5	2120	4	490	5	2100	5
5	94.0	1.5	4.5	3.5	3.5	2120	4	510	5	2100	5
6	94.0	1.5	4.5	3.5	3.5	2120	4	530	5	2100	5
7	94.0	1.5	4.5	3.2	3.5	2120	4	550	5	2100	5
8	94.0	1.5	4.5	3.2	3.5	2120	4	570	5	2100	5
9	94.0	1.5	4.5	3.2	3.5	2120	4	600	5	2100	5
10	94.0	1.5	4.5	3.2	3.5	2120	4	650	5	2100	5
11	94.0	1.5	4.5	1.5	3.5	2050	2	650	8	2120	5
12	94.0	1.5	4.5	2.0	3.2	2100	3	650	8	2120	5
13	94.0	1.5	4.5	2.5	3.0	2120	4	650	8	2120	5
14	94.0	1.5	4.5	3.0	2.5	2150	6	650	8	2120	5
15	94.0	1.5	4.5	1.0	2.0	2120	5	650	8	2120	5
16	94.0	1.5	4.5	1.0	1.5	2120	5	650	8	2120	4
17	94.0	1.5	4.5	1.0	1.0	2120	5	650	8	2120	3.5
18	94.0	1.5	4.5	1.0	0.6	2120	5	650	8	2120	3
19	94.0	1.5	4.5	1.0	0.4	2120	5	650	8	2120	2
20	94.5	0.7	4.8	0.6	0.6	2120	3	650	8	2150	4
21	95.0	0.7	4.3	0.6	0.6	2120	3	650	8	2150	4
22	97.5	0.4	2.1	0.6	0.6	2120	3	650	8	2150	4
23	98.5	0.4	1.1	0.6	0.6	2120	3	650	8	2150	4
24	99.5	0.2	0.3	0.6	0.6	2120	3	650	8	2150	4

[0070] 以上のようにして作製した試料No. 1~24の炭化珪素質接合体を用いて以下の評価を行なった。まず、最大ボイド径については、炭化珪素質部材および接合部材から適当な大きさの試験片を切り出して断面を研磨した後、光学顕微鏡を用いて400倍の倍率にて観察面からそれぞれ5箇所（1視野の測定面積は、 $300\mu\text{m} \times 200\mu\text{m}$ ）撮影し、得られた画像を画像解析ソフト「A像くん」（登録商標、旭化成エンジニアリング（株）製）を用いてボイド径を測定した。

[0071] そして、得られたボイド径を用いて累積分布曲線を作成し、累積分布曲線の面積を100%としたときの90%にあたるボイド径を最大ボイド径とした。ま

た、同じ画像を上記画像解析ソフトで解析して、平均ボイド径を求めた。

[0072] さらに、平均結晶粒径については、炭化珪素質部材および接合部材から適当な大きさの試験片を切り出して断面を研磨した後、水酸化ナトリウムおよび硝酸カリウムを1：1の質量比で溶解した液を用いてエッチングを行なった。そして、エッチングされた面からそれぞれ5箇所（1視野の測定面積は、 $300\mu\text{m}\times 200\mu\text{m}$ ）撮影し、インターセプト法を用いて平均結晶粒径を求めた。

[0073] また、機械的特性を示す4点曲げ強度については、各試料から断面が4mm \times 3mmであり、長さが38mm（長さがいずれも16mmである炭化珪素質部材の間に長さが6mmの接合部材を介在）の試験片を切り出し、りょうを面取りして、JIS R 1624-2010に準拠して室温および高温（1500℃）での4点曲げ強度を測定した。結果を表2に示す。

[0074] [表2]

試料 No.	炭化珪素質部材の最大ボイド径 (μm)	接合部材の最大ボイド径 (μm)	炭化珪素質部材の平均ボイド径 (μm)	接合部材の平均ボイド径 (μm)	炭化珪素質部材の平均結晶粒径 (μm)	接合部材の平均結晶粒径 (μm)	室温での4点曲げ強度 (MPa)	高温での4点曲げ強度 (MPa)
1	25.0	26.0	15.0	15.6	18.3	2.0	272	180
2	30.0	25.0	22.5	18.8	18.7	17.8	293	204
3	30.0	24.0	22.5	18.0	18.7	17.5	315	219
4	30.0	22.0	22.5	16.5	18.7	17.4	344	233
5	30.0	20.0	22.5	15.0	18.7	17.3	341	239
6	30.0	19.0	22.5	14.3	18.7	17.3	312	215
7	25.0	18.5	18.8	13.9	18.6	17.0	341	238
8	25.0	13.5	18.8	10.1	18.4	16.9	351	240
9	25.0	10.0	18.8	7.5	18.3	16.9	365	251
10	25.0	8.0	18.8	6.0	18.4	16.9	373	258
11	12.5	10.7	9.4	8.0	15.6	14.0	380	263
12	13.1	10.0	9.8	7.5	16.0	12.0	387	268
13	14.0	9.0	10.5	6.8	18.0	11.0	408	283
14	14.6	8.0	11.0	6.0	22.0	10.5	416	288
15	12.1	7.5	9.1	5.6	15.8	10.5	423	291
16	12.4	7.2	9.3	5.4	15.2	10.0	444	308
17	12.8	6.8	9.6	5.1	14.1	8.0	459	317
18	13.2	6.3	9.9	4.7	13.5	6.0	466	322
19	13.5	6.0	10.1	4.5	13.1	4.0	473	327
20	13.0	5.5	9.8	4.1	12.0	6.8	467	323
21	12.7	5.2	9.5	3.9	13.0	7.0	494	342
22	12.4	5.1	9.3	3.8	13.5	7.5	501	347
23	12.1	5.0	9.1	3.8	14.0	8.0	490	339
24	11.8	4.5	8.9	3.4	14.5	8.5	487	335

- [0075] 表2に示すとおり、接合部材の最大ボイド径が炭化珪素質部材の最大ボイド径よりも小さい試料No. 2~24は、接合部材の最大ボイド径が炭化珪素質部材の最大ボイド径よりも大きい試料No. 1よりも室温、高温（1500℃）とも4点曲げ強度の値が大きく、接合強度が高いことがわかった。
- [0076] また、試料No. 2~24は、高温（1500℃）における4点曲げ強度が200MPa以上であり、高温環境下において外部からの熱を伝えて内部を流通する媒体を温める、または内部に高温の媒体を流通させる伝熱管に好適であることがわかった。
- [0077] また、試料No. 11~24は、4点曲げ強度の値が室温において380MPa以上、高温（1500℃）において263MPa以上であり、最大ボイド径や平均ボイド径の値が小さいことにより、接合強度を高められることがわかった。さらに、試料No. 21~24は、4点曲げ強度の値が室温において487MPa以上、高温（1500℃）において335MPa以上であり、炭化珪素質部材および接合部材が、炭化珪素を95質量%以上含有していることにより、接合強度をさらに高められることがわかった。

実施例 2

- [0078] まず、実施例1の試料No. 23を構成する炭化珪素質部材を作製するのに用いたスラリーに、焼結助剤として炭化硼素粉末およびグラファイト粉末と、バインダ、可塑剤、増粘剤、滑り剤および水を加えて、万能攪拌機を使って混練物を作製した。このスラリーに含まれる炭化珪素の粉碎粒径は $0.6\mu\text{m}$ である。そして、得られた混練物を三本ロールミルを用いて混練し、可塑化した坯土を得た。
- [0079] 次に、押出成形機に坯土を投入し、圧力を加えて成形型から押出された成形体を切断して、焼成後の直径が14mm、厚みが16mmの円柱状の炭化珪素質部材となる成形体と、焼成後の直径が14mm、厚みが6mmの円板状の接合部材となる成形体とを得た。そして、炭化珪素質部材となる成形体を窒素雰囲気中で600℃の温度で6時間保持して脱脂した後、アルゴンガス雰囲気中で2120℃の温度で3時間保持して焼成することにより、炭化珪素質部材を得

た。また、接合部材となる成形体については、窒素雰囲気中で650°Cの温度で8時間保持して脱脂し、接合部材となる脱脂体を得た。

[0080] 次に、実施例1と同じ方法を用いて、炭化珪素質部材の接合面の算術平均粗さ (Ra) が0.5μm以下となるように研磨加工を行ない、炭化珪素質部材同士の間接合部材となる脱脂体を配置し、ホットプレス炉にて接合面に垂直な方向から表3に示す圧力で加圧した状態で、2150°Cの温度で4時間保持して熱処理することにより接合し、試料No. 25~27の炭化珪素質接合体を得た。なお、これらの炭化珪素質接合体の寸法は、直径が14mmであり、長さが38mmである。

[0081] そして、実施例1と同じ方法により、試料No. 25~27の炭化珪素質接合体を用いて、炭化珪素質部材および接合部材のそれぞれの最大ボイド径、平均ボイド径および平均結晶粒径を求めた。また、実施例1と同じ方法を用いて、試料No. 25~27の炭化珪素質接合体の室温および高温(1500°C)での4点曲げ強度を測定した。結果を表3に示す。

[0082] [表3]

試料 No.	圧力 (MPa)	炭化珪素質部材の最大ボイド径 (μm)	接合部材の最大ボイド径 (μm)	炭化珪素質部材の平均ボイド径 (μm)	接合部材の平均ボイド径 (μm)	炭化珪素質部材の平均結晶粒径 (μm)	接合部材の平均結晶粒径 (μm)	室温での4点曲げ強度 (MPa)	高温での4点曲げ強度 (MPa)
25	20	17.3	13.2	12.1	9.4	2.8	1.7	460	280
26	10	17.5	13.4	12.4	9.5	2.9	2.0	455	276
27	*1	17.7	13.6	12.6	9.9	3.2	3.2	435	256

*1: 接合部材となる脱脂体の上側に配置された炭化珪素質部材の自重のみである。

[0083] 表3に示すとおり、試料No. 25, 26は、接合部材および炭化珪素質部材の炭化珪素質の平均結晶粒径が同じである試料No. 27よりも室温、高温(1500°C)とも4点曲げ強度が大きく、接合部材における炭化珪素質の平均結晶粒径が炭化珪素質部材における炭化珪素質の平均結晶粒径よりも小さいことによって接合強度を向上できることがわかった。

実施例 3

[0084] まず、実施例2で用いた坯土を用いて、押出成形機において圧力を加えて成形型から押出された成形体を切断して、焼成後の直径が10mm、厚みが1.5

mmの円板状の炭化珪素質部材となる成形体を得た。そして、炭化珪素質部材となる成形体を窒素雰囲気中で600℃の温度で6時間保持して脱脂した後、アルゴンガス雰囲気中で2120℃の温度で3時間保持して焼成することにより、炭化珪素質部材を得た。

[0085] また、実施例1において、試料No. 23を構成する炭化珪素質部材を作製するのに用いた顆粒を用いて、成形型に充填して加圧成形することにより、焼成後の直径が10mm、厚みが1.5mmの円板状の接合部材となる成形体を得た。そして、窒素雰囲気中で650℃の温度で8時間保持して脱脂し、接合部材となる脱脂体を得た。

[0086] 次に、得られた炭化珪素質部材の接合面を算術平均粗さ(Ra)が $0.5\mu\text{m}$ 以下となるように研磨加工した。そして、これらの炭化珪素質部材同士の間、接合部材となる脱脂体を配置し、ホットプレス炉にて接合面に垂直な方向から20MPaで加圧した状態で、2150℃の温度で4時間保持して熱処理することにより接合し、試料No. 28の炭化珪素質接合体を得た。なお、この炭化珪素質接合体の寸法は、直径が10mmであり、厚みが4mm（炭化珪素質部材が1.5mm×2、接合部材が1mm）である。

[0087] そして、実施例1と同じ方法により、試料No. 28の炭化珪素質接合体を用いて、炭化珪素質部材および接合部材のそれぞれの最大ボイド径、平均ボイド径および平均結晶粒径を求めた。また、JIS R 1611-1997に準拠して試料No. 28の炭化珪素質接合体の熱伝導率を測定した。

[0088] また、比較用として、上述した寸法としたこと以外は、実施例2の試料No. 25と同じ製造方法により炭化珪素質接合体を作製し、最大ボイド径、平均ボイド径および平均結晶粒径の算出と、熱伝導率の測定とを行なった。なお、この試料は、表4において、試料No. 25と表示する。また、本実施例において異なるのは、接合部材の成形に係る方法のみである。結果を表4に示す。

[0089]

[表4]

試料 No.	炭化珪素質部材の最大ポイド径 (μm)	接合部材の最大ポイド径 (μm)	炭化珪素質部材の平均ポイド径 (μm)	接合部材の平均ポイド径 (μm)	炭化珪素質部材の平均結晶粒径 (μm)	接合部材の平均結晶粒径 (μm)	熱伝導率 ($\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$)
25	17.3	13.2	12.1	9.4	2.8	1.7	186
28	17.4	5.4	12.2	4.1	2.9	7.8	204

[0090] ★



表4に示すとおり、試料No. 28は、接合部材における炭化珪素の平均結晶粒径が炭化珪素質部材における炭化珪素の平均結晶粒径よりも小さい試料No. 25よりも熱伝導率が高く、接合部材における炭化珪素の平均結晶粒径が炭化珪素質部材よりも大きいことによって優れた熱伝導性が有するものとなることがわかった。

[0091] これらの結果から、本実施形態の炭化珪素質部材は、機械的強度が高く、耐熱性や耐食性に優れているとともに、接合強度が高いので、室温のみならず高温環境下における高い接合強度が求められる部材の大型化、長尺化、形状の複雑化を好適に図れることがわかった。

[0092] また、本実施形態の炭化珪素質接合体は、高温環境下においても強固に接合を保つことができることから、高温環境下において外部からの熱を伝えて内部を流通する媒体を温める、または内部に高温の媒体を流通させる伝熱管として好適であることがわかった。さらに、本実施形態の熱交換器は、機械的強度が高く、耐熱性や耐食性に優れている炭化珪素質部材同士が接合され、接合強度の高い炭化珪素質接合体からなる本発明の伝熱管を備えているときには、長期間にわたって安定して用いることのできる信頼性の高い熱交換器とできることがわかった。

符号の説明

[0093] 1, 1' : 炭化珪素質接合体

2 : 炭化珪素質部材

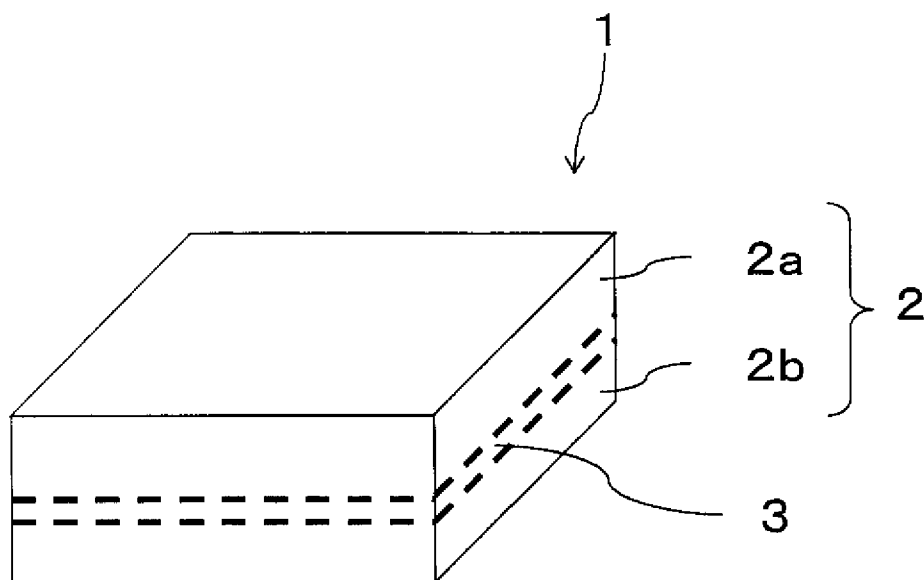
3 : 接合部材

12 : 熱交換器

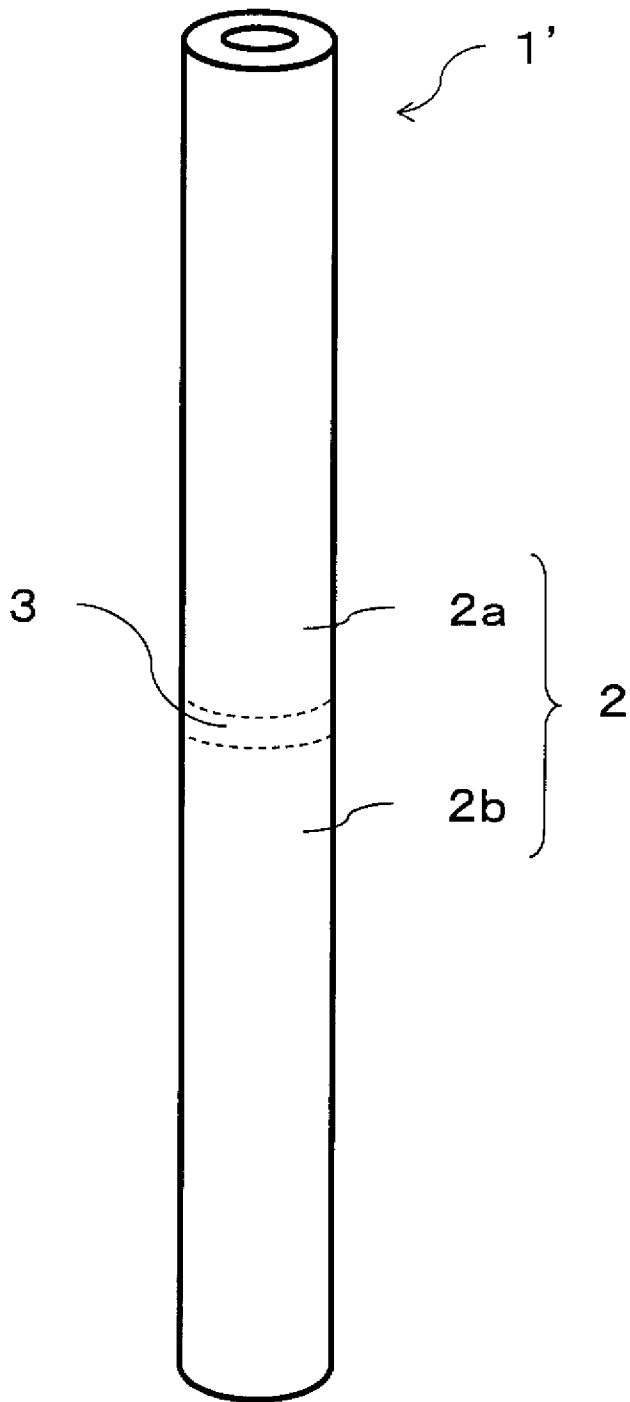
請求の範囲

- [請求項1] 炭化珪素を主成分とする焼結体で形成された炭化珪素質部材同士を、炭化珪素を主成分とする焼結体で形成された接合部材を介して接合してなり、該接合部材の最大ボイド径が前記炭化珪素質部材の最大ボイド径よりも小さいことを特徴とする炭化珪素質接合体。
- [請求項2] 前記炭化珪素質部材の最大ボイド径が $30\ \mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする請求項1に記載の炭化珪素質接合体。
- [請求項3] 前記炭化珪素質部材の平均ボイド径が $11\ \mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする請求項1または請求項2に記載の炭化珪素質接合体。
- [請求項4] 前記接合部材のボイド数が前記炭化珪素質部材のボイド数よりも少ないことを特徴とする請求項1乃至請求項3のいずれかに記載の炭化珪素質接合体。
- [請求項5] 前記炭化珪素質部材に含まれるボイドは、接合面に垂直な方向に沿って配向しているものを含むことを特徴とする請求項1乃至請求項4のいずれかに記載の炭化珪素質接合体。
- [請求項6] 前記接合部材における炭化珪素の平均結晶粒径が前記炭化珪素質部材における炭化珪素の平均結晶粒径よりも小さいことを特徴とする請求項1乃至請求項5のいずれかに記載の炭化珪素質接合体。
- [請求項7] 前記接合部材における炭化珪素の平均結晶粒径が前記炭化珪素質部材における炭化珪素の平均結晶粒径よりも大きいことを特徴とする請求項1乃至請求項5のいずれかに記載の炭化珪素質接合体。
- [請求項8] 前記炭化珪素質部材および前記接合部材が、炭化珪素を95質量%以上含有することを特徴とする請求項1乃至請求項7のいずれかに記載の炭化珪素質接合体。
- [請求項9] 請求項1乃至請求項8のいずれかに記載の炭化珪素質接合体からなることを特徴とする伝熱管。
- [請求項10] 請求項9に記載の伝熱管を備えていることを特徴とする熱交換器。

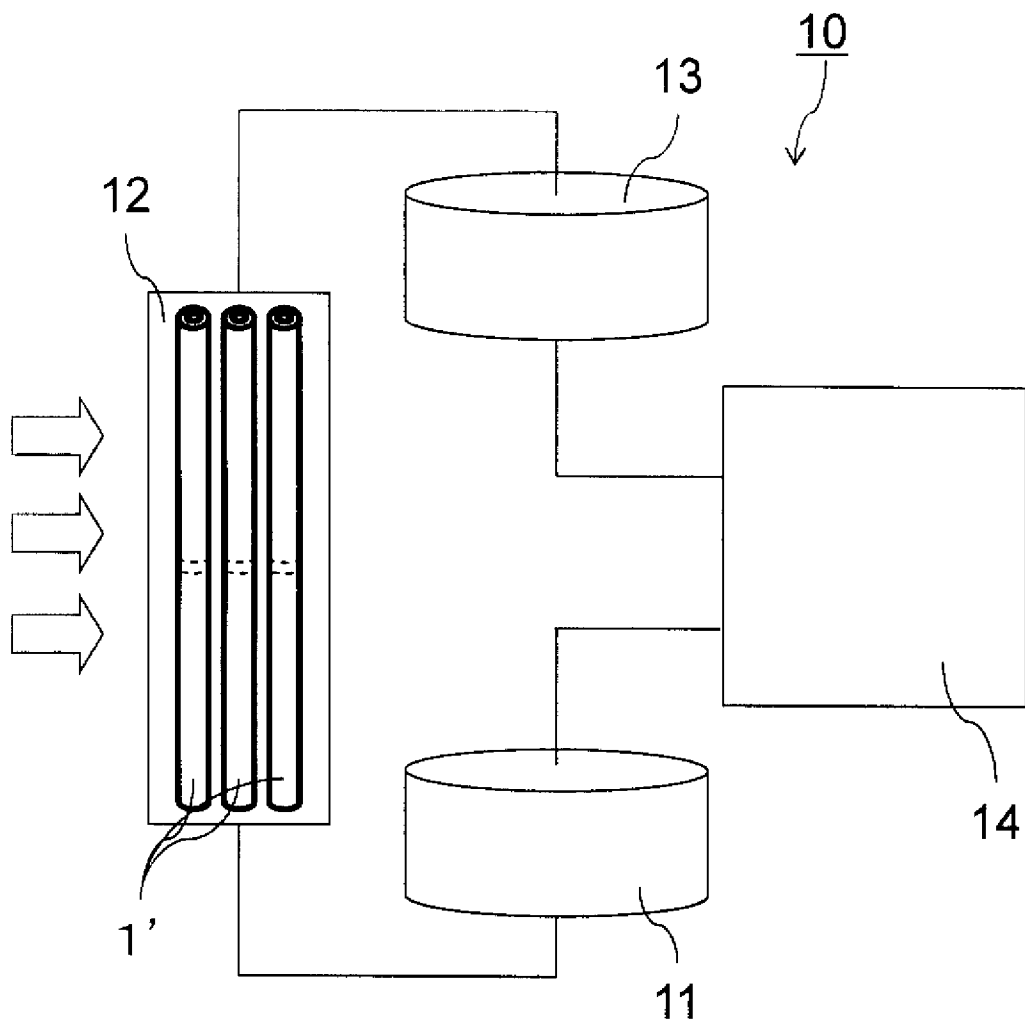
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/051807

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C04B37/00(2006.01)i, C04B35/565(2006.01)i, F28F21/04(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)

C04B37/00, C04B35/565, F28F21/04

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	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 8-325070 A (Kyocera Corp.), 10 December 1996 (10.12.1996), claims; paragraphs [0001], [0010], [0017], [0018], [0025]; table 1 (Family: none)	1-10
Y	JP 3-112871 A (Eagle Kogyo Co., Ltd.), 14 May 1991 (14.05.1991), claims; page 2, upper left column, line 20 to upper right column, line 6 (Family: none)	1-10
Y	JP 2001-158674 A (Ibiden Co., Ltd.), 12 June 2001 (12.06.2001), claims; paragraphs [0016], [0017], [0035] & EP 1174400 A1 & WO 2001/040138 A1	6,7

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
05 April, 2012 (05.04.12)Date of mailing of the international search report
17 April, 2012 (17.04.12)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/051807

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 9-263458 A (NGK Insulators, Ltd.), 07 October 1997 (07.10.1997), claims; paragraphs [0003], [0019] (Family: none)	9, 10

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. C04B37/00(2006.01)i, C04B35/565(2006.01)i, F28F21/04(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. C04B37/00, C04B35/565, F28F21/04

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 1971-2012年
 日本国実用新案登録公報 1996-2012年
 日本国登録実用新案公報 1994-2012年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 8-325070 A (京セラ株式会社) 1996. 12. 10, 特許請求の範囲, 【0001】, 【0010】, 【0017】, 【0018】, 【0025】, 表1 (ファミリーなし)	1-10
Y	JP 3-112871 A (イーグル工業株式会社) 1991. 05. 14, 特許請求の範囲, 2頁左上欄20行~右上欄6行 (ファミリーなし)	1-10
Y	JP 2001-158674 A (イビデン株式会社) 2001. 06. 12, 特許請求の範囲, 【0016】, 【0017】, 【0035】 & EP 1174400 A1 & WO 2001/040138 A1	6, 7

C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー
 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願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 05. 04. 2012	国際調査報告の発送日 17. 04. 2012
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) 小川 武 電話番号 03-3581-1101 内線 3465

4T 9270

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 9-263458 A (日本碍子株式会社) 1997. 10. 07, 特許請求の範囲, 【0003】, 【0019】 (ファミリーなし)	9, 10