(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
2008 年10 月2 日 (02.10.2008)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2008/117611 A1

(51) 国際特許分類:
C04B 37/00 (2006.01) *C09J 11/04* (2006.01)
B01D 39/20 (2006.01) *C09J 11/08* (2006.01)
B01D 46/00 (2006.01) *C09J 101/02* (2006.01)
C09J 1/00 (2006.01) *F01N 3/02* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2008/053245

(22) 国際出願日: 2008 年2 月26 日 (26.02.2008)

(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2007-078405 2007 年3 月26 日 (26.03.2007) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日本碍子株式会社 (NGK INSULATORS, LTD.) [JP/JP]; 〒4678530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町２番５６号 Aichi (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 児玉 優 (KODAMA, Suguru) [JP/JP]; 〒4678530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町２番５６号 日本碍子株式会社内 Aichi (JP). 冨田 崇弘 (TOMITA, Takahiro) [JP/JP]; 〒4678530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町２番５６号 日本碍子株式会社内 Aichi (JP).

(74) 代理人: 渡邉 一平 (WATANABE, Kazuhira); 〒1110053 東京都台東区浅草橋３丁目２０番１８号第８菊星タワービル３階 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, 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, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

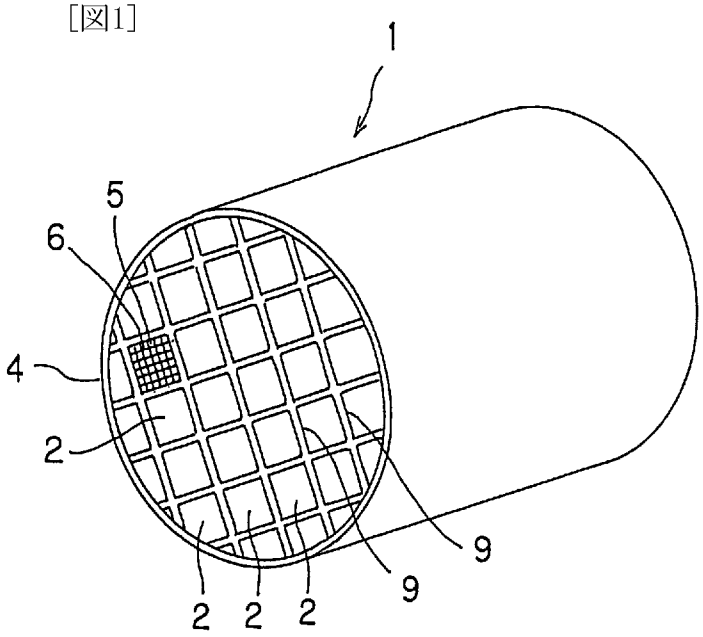
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG,

[続葉有]

(54) **Title:** BONDING MATERIAL COMPOSITION, PROCESS FOR PRODUCING THE SAME, AND BONDED MATERIAL AND PROCESS FOR PRODUCING THE SAME

(54) 発明の名称: 接合材組成物及びその製造方法並びに接合体及びその製造方法

[図1]



(57) **Abstract:** A bonding material composition for obtaining a bonded material comprising two or more adherends united together through a bonding material layer. The bonding material composition comprises flaky particles, non-flaky particles, and an inorganic adhesive as major ingredients. The flaky particles account for 30-50 mass% of all the major ingredients. The non-flaky particles have an average particle diameter smaller than 10 μm.

(57) 要約: 二つ以上の被接合物が接合材層を介して一体化されてなる接合体を得るための接合材組成物である。当該接合材組成物は、板状粒子、非板状粒子及び無機接着剤を主成分とし、前記板状粒子の割合が前記主成分全体の３０～５０質量%であり、前記非板状粒子の平均粒径が１０μｍ未満である。

WO 2008/117611 A1

CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, NO, 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**

明 細 書

接合材組成物及びその製造方法並びに接合体及びその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、ハニカム構造体を構成するハニカムセグメントのような複数の被接合物を接合し一体化するために使用される接合材組成物、当該接合材組成物により一体された接合体、当該接合材組成物の製造方法、及び当該接合材組成物を用いた接合体の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 排ガス用の捕集フィルター、例えば、ディーゼルエンジン等からの排ガスに含まれている粒子状物質(パティキュレート)を捕捉して除去するためのディーゼルパティキュレートフィルター(DPF)として、ハニカム構造体が広く使用されている。

[0003] このようなハニカム構造体は、例えば、炭化珪素(SiC)等からなる多孔質の隔壁によって区画、形成された流体の流路となる複数のセルが中心軸方向に互いに並行するように配設された構造を有している。また、隣接したセルの端部は、交互に(市松模様状に)目封じされている。すなわち、一のセルは、一方の端部が開口し、他方の端部が目封じされており、これと隣接する他のセルは、一方の端部が目封じされ、他方の端部が開口している。

[0004] このような構造とすることにより、一方の端部から所定のセル(流入セル)に流入させた排ガスを、多孔質の隔壁を通過させることによって流入セルに隣接したセル(流出セル)を経由して流出させ、隔壁を通過させる際に排ガス中の粒子状物質(パティキュレート)を隔壁に捕捉させることによって、排ガスの浄化をすることができる。

[0005] このようなハニカム構造体(フィルター)を長期間継続して使用するためには、定期的にフィルターに再生処理を施す必要がある。すなわち、フィルター内部に経時的に堆積したパティキュレートにより増大した圧力損失を低減させてフィルター性能を初期状態に戻すため、フィルター内部に堆積したパティキュレートを燃焼させて除去する必要がある。このフィルター再生時には大きな熱応力が発生し、この熱応力がハニカム構造体にクラックや破壊等の欠陥を発生させるという問題があった。この熱応力

に対する耐熱衝撃性の向上の要請に対応すべく、複数のハニカムセグメントを接合材層にて一体的に接合することにより熱応力を分散、緩和する機能を持たせた分割構造のハニカム構造体が提案され、その耐熱衝撃性をある程度改善することができるようになった。

[0006] しかし、近年、フィルターは更に大型化の要請が高まり、これに伴って再生時に発生する熱応力も増大することになり、上述の問題を解消するために、構造体としての耐熱衝撃性の更なる向上が強く望まれるようになった。この耐熱衝撃性の向上を実現するため、複数のハニカムセグメントを一体的に接合するための接合材層には、優れた応力緩和機能と接合強度とが求められている。

[0007] 従来、こうした接合材層の改善による耐熱衝撃性の向上を目的として、ハニカムセグメント間の接合層材質のヤング率を、ハニカムセグメント材質の20%以下としたハニカム構造体が開示されている(特許文献1参照)。

[0008] こうした接合材層の低ヤング率化は、熱応力の緩和に有効なものであるが、現状行われている接合材層の低ヤング率化は未だ不十分なものであり、更なる低ヤング率化が求められている。接合材層の低ヤング率化には、高気孔率化が有効な手段として知られており、高気孔率化のためには接合材層を形成するためのペースト状の接合材組成物において、水分の含有比率を高めることが有効である。

[0009] しかしながら、接合材組成物のフィラーとして、従来一般的に用いられている塊状あるいは球状の粒子を使用する場合には、接合材組成物の作製時に少ない量の水分の添加で必要な流動性が得られ、過剰に水分を加えると流動性が高くなりすぎて、取り扱いが困難になってしまうため、十分な高気孔率化ができないという問題があった。また、フィラーに塊状あるいは球状の粒子を使用して高気孔率化した場合には、接合材層として必要な強度を保てず、健全な接合体を得ることができないという問題もあった。

特許文献1:特開2001－190916号公報

発明の開示

[0010] 本発明は、上述した従来技術の問題点に鑑みてなされたものであり、接合材層を十分に高気孔率化でき、かつ、接合材層として必要な強度を得られるような接合材組

成物を提供することを、その主要な目的とするものである。

[0011] 上記目的を達成するため、本発明によれば、以下の接合材組成物、接合体、接合材組成物の製造方法及び接合体の製造方法が提供される。

[0012] [1] 二つ以上の被接合物が接合材層を介して一体化されてなる接合体を得るための接合材組成物であって、板状粒子、非板状粒子及び無機接着剤を主成分とし、前記板状粒子の割合が前記主成分全体の30～50質量％であり、前記非板状粒子の平均粒径が10μm未満である接合材組成物。

[0013] [2] 前記板状粒子のアスペクト比が、3以上である[1]に記載の接合材組成物。

[0014] [3] 前記板状粒子が、平均粒径50μm未満の板状粒子Aと平均粒径50μm以上の板状粒子Bとからなる[1]又は[2]に記載の接合材組成物。

[0015] [4] 前記板状粒子が、マイカ、タルク、窒化ホウ素及びガラスフレークよりなる群から選ばれた1種以上の材料からなる板状粒子である[1]～[3]の何れかに記載の接合材組成物。

[0016] [5] 前記マイカが800℃以上で仮焼したマイカであり、前記タルクが900℃以上で仮焼したタルクである[4]に記載の接合材組成物。

[0017] [6] 前記非板状粒子が、アルミナ、シリカ、ムライト、ジルコニア、炭化珪素、窒化珪素、窒化アルミニウム及びガラスよりなる群から選ばれた1種以上の材料からなる非板状粒子である[1]～[5]の何れかに記載の接合材組成物。

[0018] [7] 前記無機接着剤が、コロイダルシリカである[1]～[6]の何れかに記載の接合材組成物。

[0019] [8] 前記接合材組成物の副成分として、有機バインダー、分散剤、発泡樹脂及び水を含む[1]～[7]の何れかに記載の接合材組成物。

[0020] [9] 前記有機バインダーとして、メチルセルロースを含む[8]に記載の接合材組成物。

[0021] [10] 前記接合材組成物に含まれる前記発泡樹脂の割合が、前記主成分全体に対し、外配で0．1～5．0質量％である[8]又は[9]に記載の接合材組成物。

[0022] [11] 前記被接合物が、ハニカムセグメントである[1]～[10]の何れかに記載の接合材組成物。

[0023] [12] 前記ハニカムセグメントが、ディーゼル排ガス浄化用フィルターに使用するハニカム構造体を得るためのハニカムセグメントである[11]に記載の接合材組成物。

[0024] [13] 二つ以上の被接合物が、[1]～[12]の何れかに記載の接合材組成物によって形成される接合材層を介して一体化されてなる接合体であって、前記接合材層の気孔率が60～80%である接合体。

[0025] [14] 前記接合材層の厚さ方向の圧縮ヤング率が、前記被接合物のヤング率の5%以下である[13]に記載の接合体。

[0026] [15] 二つの被接合物とそれらを接合している接合材層とを試験片として切り出し、接合曲げ試験に供した場合における曲げ強度が、0．2MPa以上である[13]又は[14]に記載の接合体。

[0027] [16] 前記被接合物が、ハニカムセグメントである[13]～[15]の何れかに記載の接合体。

[0028] [17] ディーゼル排ガス浄化用フィルターに使用される[13]～[16]の何れか一項に記載の接合体。

[0029] [18] 主成分として板状粒子、平均粒径10μm未満の非板状粒子及び無機接着剤が含まれ、前記板状粒子の割合が、前記主成分全体の30～50質量%である原料を、混合、混練してペースト状にする接合材組成物の製造方法。

[0030] [19] 前記原料に、更に副成分として有機バインダー、分散剤、発泡樹脂及び水が含まれる[18]に記載の接合材組成物の製造方法。

[0031] [20] 二つ以上の被接合物を、[1]～[12]の何れかに記載の接合材組成物を用いて一体的に接合する接合体の製造方法。

[0032] [21] 前記被接合物がハニカムセグメントである、[20]に記載の接合体の製造方法。

[0033] 本発明の接合材組成物は、フィラーとして板状粒子を所定の割合で使用したことにより、ペースト状の接合材組成物を作製する際に、適度な流動性を得るために要する水分の含有比率が高まって、接合材層の十分な高気孔率化が可能となり、その結果、接合材層が低ヤング率化して接合体に生じる熱応力を緩和することができる。また、フィラーとして板状粒子を使用したことにより、接合材層にクラックが生じても、そのク

ラックが迂回して進展するため、接合材層を高気孔率化しつつ、必要な強度を保つことができる。本発明の接合体は、前記のような優れた効果を有する接合材組成物によって複数の被接合物を接合して得られたものであり、また、熱応力緩和の観点から、接合材層の気孔率を所定範囲に制御しているため、優れた耐熱衝撃性を有し、例えばDPF用のハニカム構造体として好適に使用できる。本発明の接合材組成物の製造方法によれば、前記のような優れた効果を有する接合材組成物を製造することができる。本発明の接合体の製造方法によれば、優れた耐熱衝撃性を有する接合体を製造することができる。

図面の簡単な説明

[0034] [図1]本発明に係る接合体(ハニカム構造体)の実施形態の一例を示す斜視概略図である。

[図2]本発明に係る接合体(ハニカム構造体)の実施形態の一例を示す要部拡大図である。

[図3]本発明に係る接合体(ハニカム構造体)を構成する被接合物(ハニカムセグメント)の斜視概略図である。

[図4]図3におけるA－A線断面図である。

[図5]接合体から切り出された試験片の一例を示す斜視図である。

[図6]4点曲げ試験の方法を示す斜視図である。

符号の説明

[0035] 1:ハニカム構造体、2:ハニカムセグメント、4:コーティング材、5:セル、6:隔壁、7:充填材、9:接合材層、11:被接合物、13:試験片、15:支点、17:荷重点。

発明を実施するための最良の形態

[0036] 以下、本発明を具体的な実施形態に基づき説明するが、本発明は、これに限定されて解釈されるものではなく、本発明の範囲を逸脱しない限りにおいて、当業者の知識に基づいて、種々の変更、修正、改良を加え得るものである。

[0037] 本発明に係る接合材組成物は、二つ以上の被接合物が接合材層を介して一体化されてなる接合体を得るための接合材組成物であって、板状粒子、非板状粒子及び無機接着剤を主成分とするものである。なお、ここで「板状粒子、非板状粒子及び無

機接着剤を主成分とする」とは、板状粒子と非板状粒子と無機接着剤とを合わせた量が、接合材組成物全体の50質量%以上であることを意味するものとする。また、「板状粒子」とは、比較的平らな面が2つ以上あり、その平らな面の2つがほぼ平行であり、そのほぼ平行な面の間の距離が、その面の長径と比較して小さいことを特徴とする粒子を意味するものとする。また、「非板状粒子」とは、前述の板状粒子の特徴を有さないだけでなく、繊維状、針状とみなされるような特徴を有さない、塊状あるいは球状の粒子を意味するものとする。

[0038] 本発明の最も重要な特徴は、接合材組成物のフィラーとして板状粒子を所定の割合で使用したことにある。ペースト状の接合材組成物を作製する際に、フィラーとして板状粒子を使用すると、塊状あるいは球状の粒子だけを使用した場合に比して、適度な流動性を得るために要する水分の含有比率が高くなる。これは、板状粒子が塊状あるいは球状の粒子に比べて高い比表面積を有するためであるが、こうして水分の含有比率が高まると、接合材組成物の乾燥硬化により得られる接合材層の気孔率が高まり、接合材層が低ヤング率化する。前述のとおり、接合体の熱応力緩和には接合材層の低ヤング率化が有効であるため、本発明の接合材組成物を用いることにより、耐熱衝撃性に優れた接合体が得られる。また、接合材組成物のフィラーとして板状粒子を用いると、接合材層にクラックが発生しても、そのクラックが迂回して進展するため、前記のように接合材層を高気孔率化しつつも、接合材層として必要な強度は保つことができる。

[0039] なお、接合材組成物のフィラーとして無機繊維(ファイバー)を使用した場合にも、同質の効果を得られるが、板状粒子の方がファイバーよりもフィラー間の間隙ができやすいため、より高気孔率化することができる。また、人体に対する安全性で見た場合において、ファイバーは呼吸等により体内に取り込まれた際に、必ずしも無害とは言えない面があるが、板状粒子であれば、健康面での問題が生じる恐れは低い。

[0040] 本発明の接合材組成物に含まれる板状粒子の割合は、接合材層の高気孔率化の観点から、主成分(板状粒子、非板状粒子及び無機接着剤)全体の30～50質量%とすることが好ましく、32～48質量%とすることがより好ましく、34～46質量%とすることが更に好ましい。板状粒子の割合が、主成分全体の30質量%未満であると、水

分の含有比率が十分に高くならず、接合材層の気孔率が高くならないため、ヤング率が十分に低くならない場合があり、また、50質量%を超えると、接合材層の気孔率が高くなりすぎ十分な接合強度が得られない場合がある。

[0041] また、この板状粒子には、1種類の板状粒子を単独で用いても良いが、粒径の異なる2種類の板状粒子を混合して用いても良い。この場合、一方の板状粒子(板状粒子A)の平均粒径は、十分な気孔率と十分な接合強度とを両立する観点から、50μm未満とすることが好ましく、2～40μmとすることがより好ましく、5～30μmとすることが更に好ましい。また、もう一方の板状粒子(板状粒子B)の平均粒径は、50μm以上とすることが好ましく、60～200μmとすることがより好ましく、70～180μmとすることが更に好ましい。これらの平均粒径が前記範囲外である場合、十分な気孔率と十分な接合強度の両立が困難となるため、好ましくない。このように平均粒径の異なる板状粒子A、Bを混合して使用すると、水分の含有比率が高くなり、接合材層の気孔率が高くなっても、十分な接合強度を確保できるという利点がある。なお、板状粒子Aと板状粒子Bとは、同材質からなるものであっても、異なる材質からなるものであっても良い。また、板状粒子Aと板状粒子Bとの比率(板状粒子A:板状粒子B)は、高気孔率と十分な接合強度の両立の観点から、質量比で95:5～50:50とすることが好ましい。

[0042] 板状粒子のアスペクト比は、接合材層の高気孔率化の観点から、3以上であることが好ましく、5以上であることがより好ましく、10以上であると更に好ましい。板状粒子のアスペクト比が3未満であると、水分の含有比率が十分に高くならず、接合材層の気孔率が高くならないため、ヤング率が十分に低くならない場合がある。

[0043] 板状粒子の平均粒径は、接合材層の高気孔率化の観点から、2～200μmであることが好ましく、5～180μmであることがより好ましく、10～150μmであると更に好ましい。板状粒子の平均粒径が2μm未満であると、接合材層のヤング率が高くなりすぎることがあり、また、200μmを超えると、十分な接合強度が得られないことがある。

[0044] 板状粒子の具体的な材質としては、例えば、マイカ、タルク、窒化ホウ素、ガラスフレーク等が挙げられ、特にマイカが好適に使用できる。また、マイカとタルクに関して

は、構造内の水酸基を予め除いておくほうが、得られる接合材層の熱的安定性が向上するので、仮焼したマイカ、仮焼したタルクを用いることが好ましい。なお、仮焼温度は、マイカについては800℃以上、タルクについては900℃以上が好ましい。

[0045] 本発明の接合材組成物には、前記板状粒子以外のフィラーとして、平均粒径が10μm未満、好ましくは8μm未満、更に好ましくは6μm未満の非板状粒子が含まれる。フィラーとして、板状粒子と共に、このような平均粒径を持った非板状粒子を使用すると、非板状粒子が板状粒子の間隙を充填し結合する役割を担うため、高気孔率化しても十分な接合強度が得られる。

[0046] 本発明の接合材組成物に含まれる非板状粒子の割合は、接合材層の高気孔率化と十分な接合強度の確保の観点から、主成分全体の15～38質量%とすることが好ましく、18～35質量%とすることがより好ましく、20～33質量%とすることが更に好ましい。非板状粒子の割合が、主成分全体の15質量%未満であると、十分な接合強度が得られないことがあり、また、38質量%を超えると、接合材層の気孔率が十分に高くならず、ヤング率が高くなりすぎることがある。

[0047] 非板状粒子の具体的な材質としては、例えば、アルミナ、シリカ、ムライト、ジルコニア、炭化珪素、窒化珪素、窒化アルミニウム、ガラスが好適なものとして挙げられる。

[0048] 本発明の接合材組成物にマトリックスとして含まれる無機接着剤の割合は、十分な接合強度の確保の観点から、主成分全体の20～45質量%とすることが好ましく、25～40質量%とすることがより好ましく、30～35質量%とすることが更に好ましい。無機接着剤の割合が、主成分全体の20質量%未満であると、接着成分の不足により十分な接合強度が得られないことがあり、また、45質量%を超えると、フィラー成分の不足により接合強度が得られないことがある。

[0049] 無機接着剤の具体的な材質としては、例えば、コロイダルシリカ(シリカゾル)、コロイダルアルミナ(アルミナゾル)、その他各種金属酸化物ゾル、エチルシリケート、水ガラス、シリカポリマー、リン酸アルミニウム等が挙げられるが、接着力、フィラーとのなじみやすさ、化学的安定性、耐熱性等に優れていることから、特に、コロイダルシリカを用いることが好ましい。

[0050] 本発明の接合材組成物には、前記主成分に加え、必要に応じて、有機バインダー

、分散剤、発泡樹脂、水といった副成分が含まれていてもよい。

[0051] これら副成分の具体的な材質や種類は特に限定されるものではないが、ペーストのチキソ性の確保の観点から、有機バインダーとしては、メチルセルロース(MC)が含まれることが好ましい。

[0052] また、副成分として発泡樹脂(例えばアクリロニトリル系プラスチックバルーン)を含ませる場合には、接合材層の高気孔率化と十分な接合強度の確保の観点から、その発泡樹脂の割合を、主成分全体に対し、外配で0．1～5．0質量%とすることが好ましく、0．2～3．5質量%とすることがより好ましく、0．3～2．0質量%とすることが更に好ましい。この割合が、0．1質量%未満であると、接合材層の気孔率が十分に高くならず、ヤング率が高くなりすぎることがあり、また、5．0質量%を超えると、気孔率が高くなりすぎて、十分な接合強度が得られないことがある。

[0053] 本発明の接合材組成物の製造方法は、主成分として板状粒子、平均粒径10μm未満の非板状粒子及び無機接着剤が含まれ、前記板状粒子の割合が、前記主成分全体の30～50質量%である原料に、必要に応じて、有機バインダー(例えば、メチルセルロース(MC)、カルボキシメチルセルロース(CMC)等)、発泡樹脂、分散剤、水等を加え、それをミキサー等の混練機を使用して混合、混練してペースト状にするものである。

[0054] 本発明に係る接合材組成物の接合対象となる被接合物は、特に限定されるものではないが、例えば、セラミックス構造体を得るためのセラミックス部材の接合に好適であり、特にハニカム構造体を得るためのハニカムセグメントの接合に好適であり、フィルターの再生処理時において過酷な熱環境に晒される、ディーゼル排ガス浄化用フィルターに使用するハニカム構造体を得るためのハニカムセグメントの接合に最も好適である。

[0055] 本発明に係る接合体は、二つ以上の被接合物が、前記本発明の接合材組成物によって形成される接合材層を介して一体化されてなる接合体であって、前記接合材層の気孔率が60～80%、好ましくは64～76%、更に好ましくは68～72%であるものである。

[0056] 接合体の熱応力を緩和するためには、接合材層の厚さ方向のヤング率の低減が重

要であるが、これは接合材層の微構造、特に接合材層の気孔率に依存し、前記のように接合材層の気孔率が60～80％である場合に、接合材層の厚さ方向のヤング率が低くなり、熱応力が効果的に緩和される。なお、接合材層の気孔率が60％未満では、接合材層の厚さ方向のヤング率が高くなり、また、80％を超えると、十分な接合強度が得られない場合がある。

[0057] 本発明の接合体においては、接合材層の厚さ方向の圧縮ヤング率が、被接合物のヤング率の5％以下であることが好ましく、3％以下であることがより好ましく、1％以下であることが更に好ましい。当該ヤング率が5％を超えると、実使用時の熱応力を緩和できなくなることで、製品にクラックが発生しやすくなるため、好ましくない。

[0058] なお、ここで言う「接合材層の厚さ方向の圧縮ヤング率」は、接合体から接合材層の部分を所定の形状に切り出し（例えば、10×10×1mm）、切り出した試験片に対して所定の圧縮荷重を負荷したときの変位を計測し、その応力－歪線図から算出した値である。また、「被接合物のヤング率」は、JIS R1601に準じた3点曲げ試験における荷重－変位曲線から算出した値である。

[0059] また、本発明の接合体は、二つの被接合物とそれらを接合している接合材層とを試験片として切り出し、接合曲げ試験に供した場合における曲げ強度が、0．2MPa以上であることが好ましく、0．3MPa以上であることがより好ましく、0．4MPa以上であることが更に好ましい。この曲げ強度が0．2MPa未満では、実使用時の熱応力により接合層にクラックが発生することがある。

[0060] なお、ここで言う「接合曲げ試験」は、JIS R1624に準じて、図5のように、二つの被接合物11とそれらを接合している接合材層9とからなる接合体の試験片（例えば、10×15×34．5mmと10×15×34．5mmの2つの被接合物で10×15×1mmの接合材層をサンドイッチして、10×15×70mmとしたような構造の試験片）13を切り出し、図6に示すように、2つの支点15間の距離L_1が60mm、2つの荷重点17間の距離L_2が20mmとなるようにして行う4点曲げ試験である。

[0061] 本発明の接合体を構成する被接合物は、特に限定されるものではないが、例えば、セラミックス構造体を得るためのセラミックス部材が好適な被接合物として挙げられ、特にハニカム構造体を得るためのハニカムセグメントが好適な被接合物として挙げら

れる。このようなハニカムセグメントを接合して得られたハニカム構造体は、例えば、フィルターの再生処理時において過酷な熱環境に晒される、ディーゼル排ガス浄化用フィルターなどの用途に好適に使用することができる。

[0062] 本発明の接合体の製造方法は、二つ以上の被接合物を、前記本発明の接合材組成物を用いて一体的に接合するものである。なお、本発明の接合材組成物を用いて被接合物同士を接合させる際には、接合温度が1000℃以下（より好ましくは50～900℃、更に好ましくは100～800℃）であることが、十分な強度や接合状態を発現できるという観点から望ましい。1000℃を超過した場合であっても問題なく接合させることができるが、所望の特性（ヤング率や熱膨張係数など）が得られ難くなるため、好ましくない。

[0063] 次に、本発明の接合体が複数のハニカムセグメント（被接合物）を接合してなるハニカム構造体である場合について、具体的な構成例を挙げて説明する。

[0064] 図1及び図2に示すように、ハニカム構造体1は、多孔質の隔壁6によって区画、形成された流体の流路となる複数のセル5が中心軸方向に互いに並行するように配設された構造を有し、それぞれが全体構造の一部を構成するとともに、ハニカム構造体1の中心軸に対して垂直な方向に組み付けられることによって全体構造を構成することになるハニカムセグメント2が、本発明の接合材組成物から形成された接合材層9によって一体的に接合されたハニカムセグメント接合体として構成されてなるものである。

[0065] 接合材層9によって一体的に接合されたハニカムセグメント2は、接合後、その全体の断面形状が円形、楕円形、三角形、正方形、その他の所望の形状となるように研削加工され、外周面がコーティング材4によって被覆される。なお、このハニカム構造体1を、DPFとして用いる場合には、図3及びそのA－A断面図である図4に示すように、ハニカムセグメント2の各セル5を、それぞれ一方の端部において、充填材7により交互に目封じしておく。

[0066] 所定のセル5（流入セル）においては、図3、4における左端部側が開口している一方、右端部側が充填材7によって目封じされており、これと隣接する他のセル5（流出セル）においては、左端部側が充填材7によって目封じされるが、右端部側が開口し

ている。このような目封じにより、図2に示すように、ハニカムセグメント2の端面が市松模様状を呈するようになる。

[0067] 図4においては、ハニカムセグメント2の左側が排ガスの入口となる場合を示し、排ガスは、目封じされることなく開口しているセル5(流入セル)からハニカムセグメント2内に流入する。セル5(流入セル)に流入した排ガスは、多孔質の隔壁6を通過して他のセル5(流出セル)から流出する。そして、隔壁6を通過する際に排ガス中のスートを含む粒子状物質(パティキュレート)が隔壁6に捕捉される。このようにして、排ガスの浄化を行うことができる。このような捕捉によって、ハニカムセグメント2の内部にはスートを含む粒子状物質(パティキュレート)が経時的に堆積して圧力損失が大きくなるため、スート等を燃焼させる再生処理が定期的に行われる。なお、図2～4には、全体の断面形状が正方形のハニカムセグメント2を示すが、三角形、六角形等の形状であってもよい。また、セル5の断面形状も、三角形、六角形、円形、楕円形、その他の形状であってもよい。

[0068] 図2に示すように、接合材層9は、本発明の接合材組成物から形成されており、ハニカムセグメント2の外周面に塗布されて、ハニカムセグメント2同士を接合するように機能する。接合材層9を形成する接合材組成物の塗布は、隣接しているそれぞれのハニカムセグメント2の外周面に行ってもよいが、隣接したハニカムセグメント2の相互間においては、対応した外周面の一方に対してだけ行ってもよい。このような対応面の片側だけへの塗布は、接合材層9を形成する接合材組成物の使用量を節約できる点で好ましい。接合材層9を形成する接合材組成物の塗布する方向は、ハニカムセグメント外周面内の長手方向、ハニカムセグメント外周面内の長手に垂直な方向、ハニカムセグメント外周面に垂直な方向など、特に限定されるものではないが、ハニカムセグメント外周面内の長手方向に向かって塗布するのが好ましい。接合材層9の厚さは、ハニカムセグメント2の相互間の接合力を勘案して決定され、例えば、0．5～3．0mmの範囲で適宜選択される。

[0069] 本実施形態に用いられるハニカムセグメント2の材料としては、強度、耐熱性の観点から、炭化珪素(SiC)、炭化珪素(SiC)を骨材としてかつ珪素(Si)を結合材として形成された珪素－炭化珪素系複合材料、窒化珪素、コージェライト、ムライト、アルミナ

、スピネル、炭化珪素－コージェライト系複合材、リチウムアルミニウムシリケート、チタン酸アルミニウム、Fe－Cr－Al系金属からなる群から選択される少なくとも一種から構成された物を挙げることができる。中でも、炭化珪素（SiC）又は珪素－炭化珪素系複合材料から構成されてなるものが好ましい。

[0070] ハニカムセグメント2の作製は、例えば、上述の材料から適宜選択したものに、メチルセルロース、ヒドロキシプロポキシルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ポリビニルアルコール等のバインダー、界面活性剤、溶媒としての水等を添加して、可塑性の坏土とし、この坏土を上述の形状となるように押出成形し、次いで、マイクロ波、熱風等によって乾燥した後、焼結することにより行うことができる。

[0071] セル5の目封じに用いる充填材7としては、ハニカムセグメント2と同様の材料を用いることができる。充填材7による目封止は、例えば、目封止をしないセル5をマスキングした状態で、ハニカムセグメント2の端面をスラリー状にした充填材7に浸漬し、開口している（マスキングされていない）セル5に充填することにより行うことができる。充填材7の充填は、ハニカムセグメント2の成形後における焼成前に行っても、焼成後に行ってもよいが、焼成前に行う方が、焼成工程が1回で終了するため好ましい。

[0072] 以上のようなハニカムセグメント2の作製の後、ハニカムセグメント2の外周面にペースト状の接合材組成物を塗布し、接合材層9を形成して、所定の立体形状（ハニカム構造体1の全体構造）となるように複数のハニカムセグメント2を組み付け、この組み付けた状態で圧着した後、加熱乾燥する。このようにして、複数のハニカムセグメント2が一体的に接合された接合体が作製される。その後、この接合体を上述の形状に研削加工し、外周面をコーティング材4によって被覆し、加熱乾燥する。このようにして、図1に示すハニカム構造体1が作製される。コーティング材4の材質としては、接合材層9と同様のものを用いることができる。コーティング材4の厚さは、例えば、0．1～1．5mmの範囲で適宜選択される。

実施例

[0073] 以下、本発明を実施例に基づいて更に詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0074] (実施例1)

(ハニカムセグメント(被接合物)の作製)

ハニカムセグメント原料として、SiC粉末及び金属Si粉末を80:20の質量割合で混合し、これに造孔材、有機バインダー、界面活性剤及び水を添加して、可塑性の坏土を作製した。この坏土を押出成形し、乾燥して隔壁の厚さが310μm、セル密度が約46.5セル/cm^2(300セル/平方インチ)、断面が一辺35mmの正四角形、長さが152mmのハニカムセグメント成形体を得た。次いで、このハニカムセグメント成形体の端面が市松模様状を呈するように、各セルの一方の端部を目封止した。すなわち、隣接するセルが、互いに反対側の端部で封じられるように目封止を行った。目封止用の充填材には、ハニカムセグメント原料と同様の材料を用いた。こうしてセルを目封止し、乾燥させた後、大気雰囲気中約400℃で脱脂し、その後、Ar不活性雰囲気にて約1450℃で焼成して、SiC結晶粒子をSiで結合させた、多孔質構造を有するハニカムセグメントを得た。

[0075] (接合材組成物の調製)

表1に示す条件で、板状粒子A(平均粒径50μm未満)、板状粒子B(平均粒径50μm以上)、非板状粒子、有機バインダー、発泡樹脂を混合したものに、無機接着剤、分散剤、水を更に混合し、ミキサーにて30分間混練を行い、組成の異なるペースト状の接合材組成物(接合材組成物No.1～26)をそれぞれ得た。このとき、ペースト状の接合材組成物の粘度が20～60Pa・sとなるように水の添加量を調整した。なお、接合材組成物No.7で板状粒子として用いた仮焼タルクは900℃で仮焼したものであり、接合材組成物No.8で板状粒子として用いた仮焼マイカは800℃で仮焼したものである。主成分である、板状粒子A、板状粒子B、非板状粒子、無機接着剤の割合は、これらの合計を100としたときの、それぞれの質量%で表示した。また、副成分である、有機バインダー、発泡樹脂、分散剤の割合は、主成分を100としたときの外配の質量%で表示した。板状粒子Aと板状粒子Bのアスペクト比は、当該粒子の「長径/厚さ」として算出され、前記「長径」及び「厚さ」の測定は、電子顕微鏡観察により行った。すなわち、板状粒子の厚さ方向に垂直な任意の方向から観察し、その電子顕微鏡写真を画像処理することにより、厚さを計測した。また、同じ画像において、

厚さ方向に垂直な方向の粒子の長さを長径とし、画像処理により長径を計測した。なお、この計測は、観察視野中から無作為に選択した10ヶ以上の粒子について実施し、それらのアスペクト比の平均値を板状粒子のアスペクト比とした。

[0076] (ハニカム構造体(接合体)の作製)

ハニカムセグメントの外壁面に、厚さ約1mmとなるように接合材組成物No. 1を塗布方向をハニカムセグメントの長手方向としてコーティングして接合材層を形成し、その上に別のハニカムセグメントを載置する工程を繰り返し、縦4個×横4個に組み合わせた合計16個のハニカムセグメントからなるハニカムセグメント積層体を作製し、適宜、外部より圧力を加えるなどして、全体を接合させた後、140℃で2時間乾燥してハニカムセグメント接合体を得た。得られたハニカムセグメント接合体の外周を円筒状に研削加工後、その外周面をコーティング材で被覆し、700℃で2時間乾燥硬化させて、ハニカム構造体を得た。

[0077] (接合体の接合材層の評価)

得られたハニカム構造体の接合材層について、気孔率、被接合物のヤング率に対する接合材層の厚さ方向の圧縮ヤング率の割合、接合体の接合曲げ試験における曲げ強度を、下記の方法により求めた。その結果を表2に示す。

[0078] 気孔率:

ハニカム構造体から接合材層の部分を任意形状に切り出し(例えば、10×10×1mmの板状)、アルキメデス法により算出した。

[0079] 圧縮ヤング率:

ハニカム構造体から接合材層の部分を所定の形状に切り出し(例えば、10×10×1mmの板状)、切り出した試験片に対して所定の圧縮荷重を負荷したときの変位を計測し、その応力－歪線図から算出した(被接合物のヤング率は、JIS R1601に準じた3点曲げ試験における荷重－変位曲線から算出した。)。

[0080] 接合曲げ試験における曲げ強度:

JIS R1624に準じて、二つの被接合物と接合材層とからなる接合体の試験片(例えば、10×15×70mm)を切り出し、曲げ試験での強度を測定した。

[0081] (ハニカム構造体の評価)

得られたハニカム構造体の接合後の状態を確認するとともに、下記の方法により、急速加熱試験(バーナースポーリング試験)を試験温度900℃、1000℃にて行った。試験後のハニカム構造体のクラックの発生状況を観察した。その結果を表3に示す。

[0082] バーナースポーリング試験(急速加熱試験):

ハニカム構造体にバーナーで加熱した空気を流すことにより中心部分と外側部分との温度差をつくり、ハニカム構造体のクラックの発生しない温度により耐熱衝撃性を評価する試験(温度が高いほど耐熱衝撃性が高い)である。なお、表3の表示では、×の場合、試験温度900℃でクラック発生あり、○の場合、試験温度900℃でクラック発生なし、◎の場合、試験温度1000℃でクラック発生なしを意味する。

[0083] (実施例2～22、比較例1～4)

実施例2～22は、実施例1において、接合材組成物No. 1を、表1に示す接合材組成物No. 2～22に変えたこと以外、実施例1と同様に、ハニカム構造体を作製した。また、比較例1～4は、接合材組成物No. 23～26に変えたこと以外は実施例1と同様に、ハニカム構造体を作製した。それぞれ得られたハニカム構造体(実施例2～22、比較例1～4)について、実施例1と同様の評価及び試験を行った。その結果を表2及び表3に示す。

[0084] [表1]

[0085] [表2]

接合材組成物No.	板状粒子A			板状粒子B			非板状粒子		無機接着剤(材質/質量%)	有機ﾊﾞｲﾝﾀﾞｰ(材質/質量%)*1	発泡樹脂(質量%)*2	分散剤(質量%)*3
	材質と含有量(材質/質量%)	ｱｽﾍﾟｸﾄ比	平均粒径(μm)	材質と含有量(材質/質量%)	ｱｽﾍﾟｸﾄ比	平均粒径(μm)	材質と含有量(材質/質量%)	平均粒径(μm)				
1	ﾀﾙｸ/32.3	6	25	-	-	-	炭化珪素/34.9	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
2	ﾀﾙｸ/40.3	6	25	-	-	-	炭化珪素/26.9	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
3	ﾀﾙｸ/48.3	6	25	-	-	-	炭化珪素/18.9	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
4	ﾏｲｶ/40.3	20	20	-	-	-	炭化珪素/26.9	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
5	ﾏｲｶ/40.3	20	40	-	-	-	炭化珪素/26.9	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
6	ｶﾞﾗｽﾌﾚｰｸ/40.3	22	40	-	-	-	炭化珪素/26.9	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
7	仮焼ﾀﾙｸ/40.3	6	25	-	-	-	炭化珪素/26.9	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
8	仮焼ﾏｲｶ/40.3	20	40	-	-	-	炭化珪素/26.9	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
9	ﾏｲｶ/40.3	13	40	-	-	-	炭化珪素/26.9	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
10	ﾏｲｶ/40.3	25	40	-	-	-	炭化珪素/26.9	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
11	ﾀﾙｸ/31.3	6	25	ﾏｲｶ/9.0	20	60	炭化珪素/26.9	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
12	ﾀﾙｸ/31.3	6	25	ｶﾞﾗｽﾌﾚｰｸ/9.0	22	160	炭化珪素/26.9	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
13	ﾀﾙｸ/40.3	6	25	-	-	-	ｱﾙﾐﾅ/26.9	1.6	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
14	ﾀﾙｸ/40.3	6	25	-	-	-	ｼﾘｶ/26.9	1.4	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
15	ﾀﾙｸ/40.3	6	25	-	-	-	ﾑﾗｲﾄ/26.9	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
16	ﾀﾙｸ/40.3	6	25	-	-	-	ｼﾞﾙｺﾆｱ/26.9	1.3	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
17	ﾀﾙｸ/40.3	6	25	-	-	-	窒化珪素/26.9	0.8	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
18	ﾀﾙｸ/40.3	6	25	-	-	-	窒化ｱﾙﾐﾆｳﾑ/26.9	0.8	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
19	ﾀﾙｸ/40.3	6	25	-	-	-	炭化珪素/26.9	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	0.5	0.07
20	ﾀﾙｸ/40.3	6	25	-	-	-	炭化珪素/26.9	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	2.5	0.07
21	ﾀﾙｸ/40.3	6	25	-	-	-	炭化珪素/26.9	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15	1.5	0.07
22	ﾏｲｶ/40.3	20	40	-	-	-	炭化珪素/26.9	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15	1.5	0.07
23	-	-	-	-	-	-	ﾌｧｲﾊﾞｰ/40.3 炭化珪素/26.9	300 1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
24	-	-	-	-	-	-	炭化珪素/40.3 炭化珪素/26.9	80 1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
25	ﾀﾙｸ/25.0	6	25	-	-	-	炭化珪素/42.2	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07
26	ﾀﾙｸ/55.0	6	25	-	-	-	炭化珪素/12.2	1.5	ｺﾛｲﾀﾞﾙｼﾘｶ/32.8	CMC/0.15,MC/0.30	1.5	0.07

*1, *2, *3:これらの「質量%」は、主成分全体(板状粒子A、板状粒子B、非板状粒子及び無機接着剤)の合計質量を100(%)としたときの外配での割合である。

	接合材組成物No.	気孔率(%)	被接合物のヤング率に対する接合材層の厚さ方向の圧縮ヤング率の割合(%)	接合体の接合曲げ試験における強度(MPa)
実施例1	1	67	0.8	0.4
実施例2	2	70	0.6	0.3
実施例3	3	73	0.5	0.2
実施例4	4	71	0.7	0.4
実施例5	5	71	0.6	0.4
実施例6	6	73	0.5	0.3
実施例7	7	69	0.6	0.3
実施例8	8	70	0.6	0.4
実施例9	9	69	0.7	0.4
実施例10	10	72	0.5	0.3
実施例11	11	70	0.6	0.4
実施例12	12	74	0.6	0.2
実施例13	13	70	0.7	0.2
実施例14	14	69	0.6	0.2
実施例15	15	68	0.7	0.2
実施例16	16	65	0.9	0.3
実施例17	17	67	0.8	0.3
実施例18	18	70	0.7	0.2
実施例19	19	67	0.8	0.3
実施例20	20	72	0.5	0.2
実施例21	21	61	1.2	0.6
実施例22	22	68	0.8	0.4
比較例1	23	56	1.2	1.1
比較例2	24	49	3.2	0.8
比較例3	25	55	2.7	0.1
比較例4	26	75	0.4	0.1

[0086] [表3]

実施例	接合材組成物No.	接合後の状態	端部のｸﾗｯｸ	外周部のｸﾗｯｸ	接合材層のｸﾗｯｸ
実施例1	1	良好	◎	○	◎
実施例2	2	良好	◎	◎	◎
実施例3	3	良好	◎	◎	○
実施例4	4	良好	○	○	◎
実施例5	5	良好	◎	◎	◎
実施例6	6	良好	◎	◎	◎
実施例7	7	良好	◎	◎	◎
実施例8	8	良好	◎	◎	◎
実施例9	9	良好	◎	○	○
実施例10	10	良好	◎	◎	◎
実施例11	11	良好	◎	◎	◎
実施例12	12	良好	◎	◎	○
実施例13	13	良好	◎	○	○
実施例14	14	良好	◎	◎	○
実施例15	15	良好	○	○	○
実施例16	16	良好	○	○	◎
実施例17	17	良好	◎	○	◎
実施例18	18	良好	◎	◎	○
実施例19	19	良好	○	○	◎
実施例20	20	良好	◎	◎	○
実施例21	21	良好	○	○	◎
実施例22	22	良好	◎	○	◎
比較例1	23	良好	×	◎	◎
比較例2	24	良好	○	×	×
比較例3	25	良好	○	×	×
比較例4	26	良好	○	×	×

[0087] （考察）

表2及び表3の結果から、本発明の実施例に係る実施例1～22は、硬化後の接合材組成物（接合材層）の評価が良好であり、ハニカムセグメント間の接合状態も良好であり、かつ、試験温度900℃での急速加熱試験後であっても、ハニカム構造体の端部、外周部及び接合材層にクラックが発生することなく、良品であった。一方、フィラーとして板状粒子の代わりにファイバーを含む接合材組成物を使用した比較例1は、急速加熱試験後のハニカム構造体の端部にクラックが生じた。また、フィラーとして板状粒子を含まない接合材組成物を使用した比較例2は、十分な高気孔率化が行えず、被接合物のヤング率に対する接合材層の厚さ方向の圧縮ヤング率の割合が大きくなり、急速加熱試験後のハニカム構造体の外周部及び接合材層にクラックが生じた。更に、板状粒子の割合が主成分全体の30質量％未満である接合材組成

物を使用した比較例3と、板状粒子の割合が主成分全体の50質量%超である接合材組成物を使用した比較例4は、接合曲げ試験における曲げ強度が低く、急速加熱試験後のハニカム構造体の外周部及び接合材層にクラックが生じた。

産業上の利用可能性

[0088] 本発明は、複数の被接合物を接合し一体化して得られる接合体、例えば、DPF等の用途に使用される、複数のハニカムセグメントを一体化して得られるハニカム構造体の製造に好適に利用することができる。

請求の範囲

[1] 二つ以上の被接合物が接合材層を介して一体化されてなる接合体を得るための接合材組成物であって、板状粒子、非板状粒子及び無機接着剤を主成分とし、前記板状粒子の割合が前記主成分全体の30～50質量％であり、前記非板状粒子の平均粒径が10μm未満である接合材組成物。

[2] 前記板状粒子のアスペクト比が、3以上である請求項1に記載の接合材組成物。

[3] 前記板状粒子が、平均粒径50μm未満の板状粒子Aと平均粒径50μm以上の板状粒子Bとからなる請求項1又は2に記載の接合材組成物。

[4] 前記板状粒子が、マイカ、タルク、窒化ホウ素及びガラスフレークよりなる群から選ばれた1種以上の材料からなる板状粒子である請求項1～3の何れか一項に記載の接合材組成物。

[5] 前記マイカが800℃以上で仮焼したマイカであり、前記タルクが900℃以上で仮焼したタルクである請求項4に記載の接合材組成物。

[6] 前記非板状粒子が、アルミナ、シリカ、ムライト、ジルコニア、炭化珪素、窒化珪素、窒化アルミニウム及びガラスよりなる群から選ばれた1種以上の材料からなる非板状粒子である請求項1～5の何れか一項に記載の接合材組成物。

[7] 前記無機接着剤が、コロイダルシリカである請求項1～6の何れか一項に記載の接合材組成物。

[8] 前記接合材組成物の副成分として、有機バインダー、分散剤、発泡樹脂及び水を含む請求項1～7の何れか一項に記載の接合材組成物。

[9] 前記有機バインダーとして、メチルセルロースを含む請求項8に記載の接合材組成物。

[10] 前記接合材組成物に含まれる前記発泡樹脂の割合が、前記主成分全体に対し、外配で0．1～5．0質量％である請求項8又は9に記載の接合材組成物。

[11] 前記被接合物が、ハニカムセグメントである請求項1～10の何れか一項に記載の接合材組成物。

[12] 前記ハニカムセグメントが、ディーゼル排ガス浄化用フィルターに使用するハニカム構造体を得るためのハニカムセグメントである請求項11に記載の接合材組成物。

[13] 二つ以上の被接合物が、請求項1～12の何れか一項に記載の接合材組成物によって形成される接合材層を介して一体化されてなる接合体であって、前記接合材層の気孔率が60～80％である接合体。

[14] 前記接合材層の厚さ方向の圧縮ヤング率が、前記被接合物のヤング率の5％以下である請求項13に記載の接合体。

[15] 二つの被接合物とそれらを接合している接合材層とを試験片として切り出し、接合曲げ試験に供した場合における曲げ強度が、0．2MPa以上である請求項13又は14に記載の接合体。

[16] 前記被接合物が、ハニカムセグメントである請求項13～15の何れか一項に記載の接合体。

[17] ディーゼル排ガス浄化用フィルターに使用される請求項13～16の何れか一項に記載の接合体。

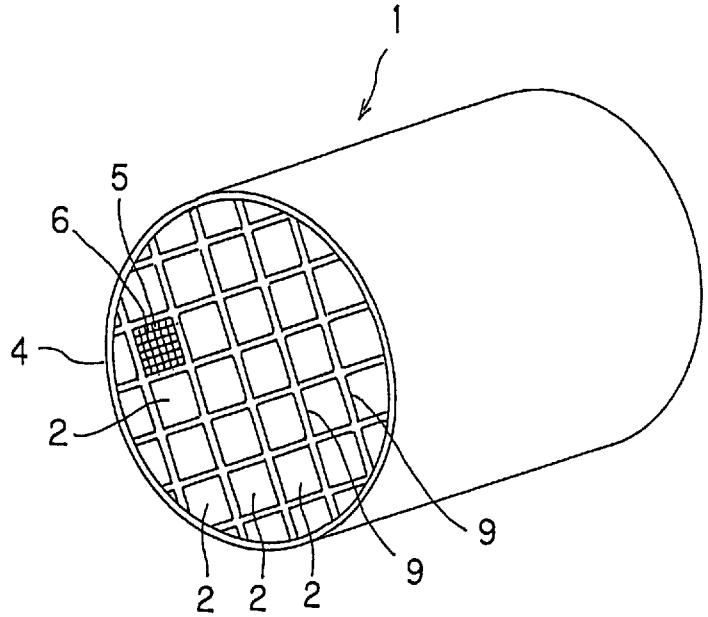
[18] 主成分として板状粒子、平均粒径10μm未満の非板状粒子及び無機接着剤が含まれ、前記板状粒子の割合が、前記主成分全体の30～50質量％である原料を、混合、混練してペースト状にする接合材組成物の製造方法。

[19] 前記原料に、更に副成分として有機バインダー、分散剤、発泡樹脂及び水が含まれる請求項18に記載の接合材組成物の製造方法。

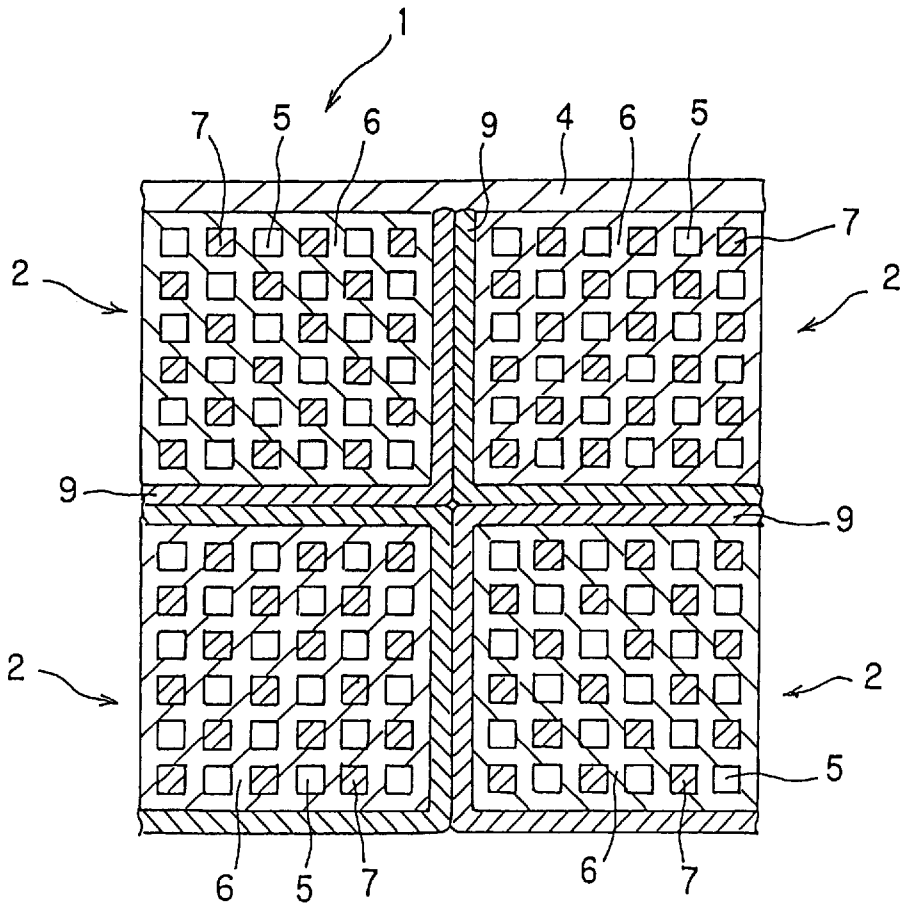
[20] 二つ以上の被接合物を、請求項1～12の何れか一項に記載の接合材組成物を用いて一体的に接合する接合体の製造方法。

[21] 前記被接合物がハニカムセグメントである、請求項20に記載の接合体の製造方法。

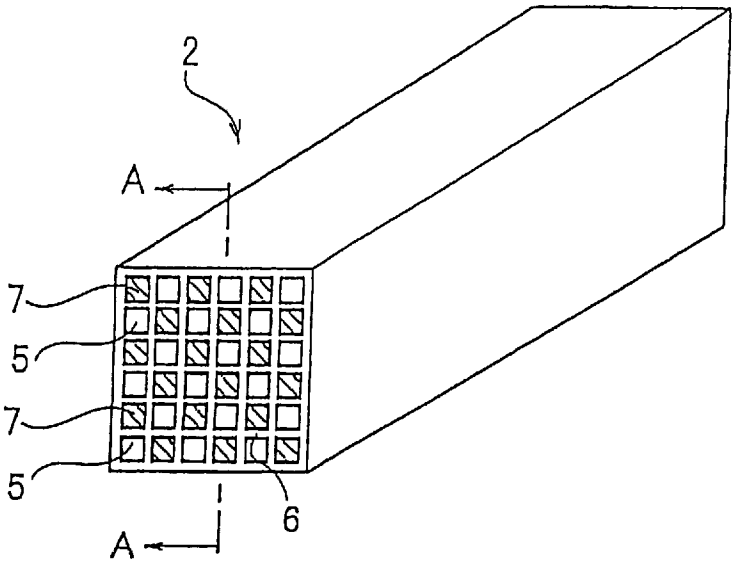
[図1]



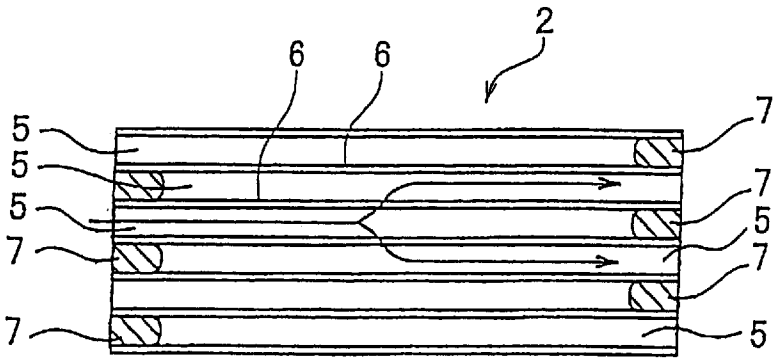
[図2]



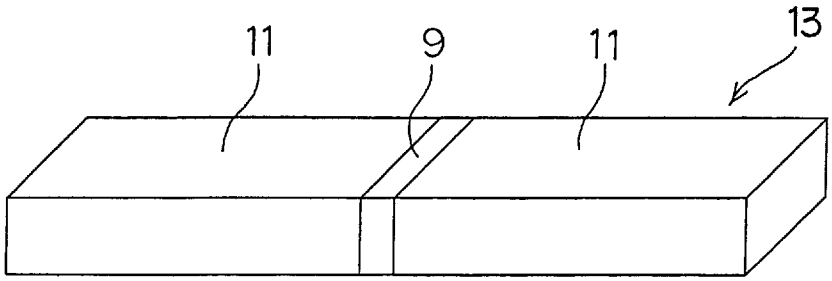
[図3]



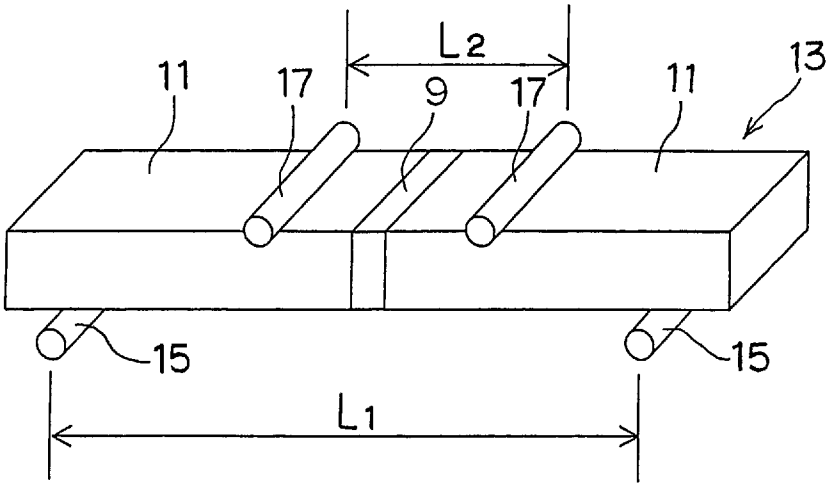
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2008/053245

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C04B37/00(2006.01)i, *B01D39/20*(2006.01)i, *B01D46/00*(2006.01)i, *C09J1/00*(2006.01)i, *C09J11/04*(2006.01)i, *C09J11/08*(2006.01)i, *C09J101/02*(2006.01)i, *F01N3/02*(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, B01D39/20, B01D46/00, C09J1/00-210/10, F01N3/02

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 1996-2008
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2008 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2008

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.
P,A	WO 2007/116665 A1 (NGK Insulators, Ltd.), 18 October, 2007 (18.10.07), Par. Nos. [0034] to [0046], [0060] to [0074] (Family: none)	1-21
P,A	WO 2007/111056 A1 (NGK Insulators, Ltd.), 04 October, 2007 (04.10.07), Par. Nos. [0030] to [0035], [0039], [0050] to [0058] (Family: none)	1-21
P,A	WO 2007/069674 A1 (NGK Insulators, Ltd.), 21 June, 2007 (21.06.07), Par. Nos. [0036] to [0049], [0063] to [0075] (Family: none)	1-21

☒ 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	Date of mailing of the international search report
04 April, 2008 (04.04.08)	15 April, 2008 (15.04.08)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2008/053245

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,A	JP 2008-007683 A (TYK Corp.), 17 January, 2008 (17.01.08), Claims; Par. Nos. [0030] to [0045], [0049] (Family: none)	1-21
A	JP 61-026572 A (Nippon Soken, Inc.), 05 February, 1986 (05.02.86), Page 5, upper right column, line 14 to page 6, upper left column, line 14; page 6, lower right column, line 12 to page 9, lower right column, line 11 (Family: none)	1-21
A	JP 51-031723 A (Mizusawa Industrial Chemicals, Ltd.), 18 March, 1976 (18.03.76), Claims; page 3, lower left column, line 19 to upper right column, line 8; page 6, upper left column, lines 7 to 16; page 10, lower right column, line 8 to page 11, upper left column, line 9; table 3 & US 4018616 A	1-21
A	JP 03-140383 A (Tomoaki MURATA), 14 June, 1991 (14.06.91), Claims; page 2, lower left column, line 2 to page 3, upper left column, line 18 (Family: none)	1-21
A	JP 60-005057 A (Toyota Central Research and Development Laboratories, Inc.), 11 January, 1985 (11.01.85), Claims; page 3, upper left column, line 2 to page 6, lower left column, line 17 (Family: none)	1-21
A	JP 2004-001365 A (NGK Insulators, Ltd.), 08 January, 2004 (08.01.04), Claims; Par. Nos. [0035] to [0042] & US 2005/0255288 A1 & WO 2003/091182 A1	1-21
A	JP 04-154638 A (Toshiba Ceramics Co., Ltd.), 27 May, 1992 (27.05.92), Page 1, lower left column, line 16 to lower right column, line 4 (Family: none)	1-21
A	JP 2006-306702 A (National Institute of Advanced Industrial Science and Technology), 09 November, 2006 (09.11.06), Par. Nos. [0001] to [0002] (Family: none)	1-21

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２００８／０５３２４５

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, B01D39/20(2006.01)i, B01D46/00(2006.01)i, C09J1/00(2006.01)i, C09J11/04(2006.01)i, C09J11/08(2006.01)i, C09J101/02(2006.01)i, F01N3/02(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, B01D39/20, B01D46/00, C09J1/00-210/10, F01N3/02

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	１９７１－２００８年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２００８年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２００８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
P,A	WO 2007/116665 A1 (日本碍子株式会社) 2007.10.18, [0034]-[0046], [0060]-[0074] (ファミリーなし)	1-21
P,A	WO 2007/111056 A1 (日本碍子株式会社) 2007.10.04, [0030]-[0035], [0039], [0050]-[0058] (ファミリーなし)	1-21
P,A	WO 2007/069674 A1 (日本碍子株式会社) 2007.06.21, [0036]-[0049], [0063]-[0075] (ファミリーなし)	1-21

☑　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 ０４．０４．２００８	国際調査報告の発送日 １５．０４．２００８
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 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）　４Ｔ　９７２９ 村守　宏文 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４６５

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	関連する請求の範囲の番号
P,A	JP 2008-007683 A (東京窯業株式会社) 2008.01.17, 特許請求の範囲, [0030]-[0045], [0049] (ファミリーなし)	1-21
A	JP 61-026572 A (株式会社日本自動車部品総合研究所) 1986.02.05, 第5頁右上欄第14行-第6頁左上欄第14行, 第6頁右下欄第12行-第9頁右下欄第11行 (ファミリーなし)	1-21
A	JP 51-031723 A (水澤化学工業株式会社) 1976.03.18, 特許請求の範囲, 第3頁左下欄第19行-右上欄第8行, 第6頁左上欄第7-16行, 第10頁右下欄第8行-第11頁左上欄第9行, 第3表 & US 4018616 A	1-21
A	JP 03-140383 A (村田友昭) 1991.06.14, 特許請求の範囲, 第2頁左下欄第2行-第3頁左上欄第18行 (ファミリーなし)	1-21
A	JP 60-005057 A (株式会社豊田中央研究所) 1985.01.11, 特許請求の範囲, 第3頁左上欄第2行-第6頁左下欄第17行 (ファミリーなし)	1-21
A	JP 2004-001365 A (日本碍子株式会社) 2004.01.08, 特許請求の範囲, [0035]-[0042] & US 2005/0255288 A1 & WO 2003/091182 A1	1-21
A	JP 04-154638 A (東芝セラミックス株式会社) 1992.05.27, 第1頁左下欄第16行-右下欄第4行 (ファミリーなし)	1-21
A	JP 2006-306702 A (独立行政法人産業技術総合研究所) 2006.11.09, [0001]-[0002] (ファミリーなし)	1-21