

(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
2016 年 1 月 28 日(28.01.2016)



(10) 国際公開番号

WO 2016/013648 A1

- (51) 国際特許分類:
B22D 19/00 (2006.01) C04B 35/565 (2006.01)
B22D 18/02 (2006.01) C04B 41/88 (2006.01)
B22D 19/14 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/071082
- (22) 国際出願日: 2015 年 7 月 24 日(24.07.2015)
- (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 2014-151148 2014 年 7 月 24 日(24.07.2014) JP
- (71) 出願人: 電気化学工業株式会社(DENKI KAGAKU KOGYO KABUSHIKI KAISHA) [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: 宮川 健志(MIYAKAWA Takeshi); 〒8368510 福岡県大牟田市新開町 1 電気化学工業株式会社 大牟田工場内 Fukuoka (JP). 廣津留 秀樹(HIROTSURU Hideki); 〒8368510 福岡県大牟田市新開町 1 電気化学工業株式会社 大牟田工場内 Fukuoka (JP).
- (74) 代理人: 園田・小林特許業務法人(SONODA & KOBAYASHI INTELLECTUAL PROPERTY LAW);

〒1630434 東京都新宿区西新宿二丁目 1 番 1 号
新宿三井ビル 3 4 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, BN, 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, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, 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, 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, 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, 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).

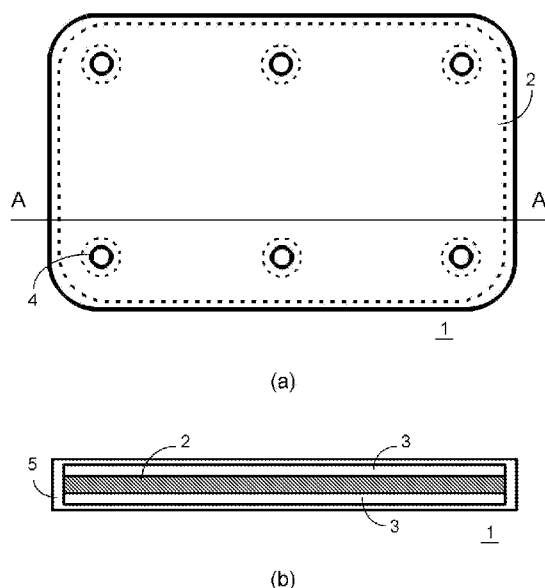
添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: COMPOSITE BODY AND METHOD FOR PRODUCING SAME

(54) 発明の名称: 複合体及びその製造方法

[図1]



(57) Abstract: [Problem] To provide: a method for producing a composite body, which is capable of stably producing a composite body by suppressing breakage of a porous inorganic structure that is contained in the composite body; and a composite body which is produced by this production method. [Solution] Provided is a method for producing a composite body, wherein a plate-like porous inorganic structure is impregnated with a metal, while having a fibrous inorganic material arranged adjacent to the porous inorganic structure. This method for producing a composite body is characterized in that: by using a porous inorganic structure that is formed of a porous silicon carbide ceramic sintered body and a fibrous inorganic material, there is obtained a composite body that has a structure in which a first phase wherein the porous silicon carbide ceramic sintered body is impregnated with a metal and a second phase wherein the fibrous inorganic material is impregnated with the metal are adjacent to each other; the ratio of the porous silicon carbide ceramic sintered body in the first phase is 50-80% by volume; and the ratio of the fibrous inorganic material in the second phase is 3-20% by volume. Also provided is a composite body which is produced by this

production method.

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2016/013648 A1



【課題】複合体に含まれる多孔質無機構造体の破損が抑制され、安定して複合体を作製することができる複合体の製造方法及びこの製造方法により製造される複合体を提供する。【解決手段】平板状の多孔質無機構造体に繊維状無機材料を隣接配置しながら金属を含浸させる複合体の製造方法において、多孔質炭化珪素セラミックス焼結体からなる多孔質無機構造体、及び繊維状無機材料を用いることにより、多孔質炭化珪素セラミックス焼結体に金属が含浸されている第1相と、繊維状無機材料に金属が含浸されている第2相とが互いに隣接している構造を有する複合体であり、第1相中に占める多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の割合が50～80体積%であり、第2相中に占める繊維状無機材料の割合が3～20体積%であることを特徴とする複合体の製造方法及びこの製造方法により製造される複合体を提供する。

明 細 書

発明の名称：複合体及びその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、複合体及びその製造方法に関する。

背景技術

[0002] 金属－セラミックス複合体は、金属、セラミックスの各々単独では得られない機械的及び熱的性質の向上を達成できる材料として期待されている。このような複合体は、例えば、自動車のピストン部品の耐磨耗材料、ヒートシンク等の放熱材料としての応用が挙げられる。

[0003] 金属－セラミックス複合体を構成するセラミックスとしては、セラミック粉、セラミック繊維を成形し、必要な場合には、さらにこれを焼成して作製した多孔質セラミックス構造体を用いる。このような構造体を、所望の型内の空間に配置し、この空間に熔融金属を流し込むことによって、前記多孔質セラミックス構造体に前記金属を含浸させ、これを凝固させることにより作製する。

熔融金属を含浸させる方法としては、粉末冶金法に基づく方法、例えば、ダイキャスト法（特許文献1）や溶湯鍛造法（非特許文献1）等の圧力鑄造による方法、自発浸透による方法（特許文献2）等といった各種の方法が知られている。

特許文献1：特表平5－508350号公報

特許文献2：特開平2－197368号公報

非特許文献1：西田義則、「加圧含浸法による複合材料製造研究の展開」、まてりあ、公益社団法人日本金属学会、平成9年1月1日、第36巻、第1号、40－46ページ

発明の概要

[0004] 従来の製造方法では、金属を含浸させる際に、多孔質無機構造体が、それを支える治具、金型等を通じて熱を放散し、局所的な温度不均一を伴い、均

質な複合体とならないといった問題がある。或いは、熔融金属が金型に接することにより温度が低下し、部分的な流動性の低下が起こり、それに圧力が加わることにより、多孔質無機構造体が破損される等といった問題がある。

[0005] 本発明は、上記の事情に鑑みてなされたものであり、複合体に含まれる多孔質無機構造体の破損が抑制され、安定して複合体を作製することができる製造方法及びこの製造方法により製造される複合体を提供する。

[0006] 本発明によれば、平板状の多孔質無機構造体に繊維状無機材料を隣接配置しながら金属を含浸させる複合体の製造方法において、多孔質炭化珪素セラミックス焼結体からなる多孔質無機構造体、及び繊維状無機材料を用いることにより、多孔質炭化珪素セラミックス焼結体に金属が含まれている第1相と、繊維状無機材料に金属が含まれている第2相とが互いに隣接している構造を有する複合体であり、第1相中に占める多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の割合が50～80体積%であり、第2相中に占める繊維状無機材料の割合が3～20体積%であることを特徴とする複合体の製造方法が提供される。

[0007] 本発明の一態様によれば、上記の複合体の製造方法は、金属を含浸させる方法がダイキャスト法又は溶湯鍛造法であることを特徴とする。

[0008] 本発明の一態様によれば、上記の複合体の製造方法は、前記金属がアルミニウム又はアルミニウム合金であることを特徴とする。

[0009] 本発明の一態様によれば、上記の複合体の製造方法は、前記第2相からなる層の厚みが1mm以上であることを特徴とする。

[0010] 本発明の一態様によれば、上記の複合体の製造方法は、繊維状無機材料が多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の周囲全面を覆う状態とするか、又は、多孔質炭化珪素セラミックス焼結体を繊維状無機材料2枚で挟む状態とすることを特徴とする。

[0011] 本発明によれば、平板状の多孔質炭化珪素セラミックス焼結体からなる多孔質無機構造体に金属が含まれている第1相と、繊維状無機材料に金属が含まれている第2相とが互いに隣接している構造を有し、第1相中に占め

る多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の割合が50～80体積%であり、第2相中に占める繊維状無機材料の割合が3～20体積%であることを特徴とする複合体が提供される。

[0012] 本発明の一態様によれば、上記の複合体は、前記金属がアルミニウム又はアルミニウム合金であることを特徴とする。

[0013] 本発明の一態様によれば、上記の複合体は、前記第2相からなる層の厚みが1mm以上であることを特徴とする。

[0014] 本発明の一態様によれば、上記の複合体は、前記第2相が前記第1相の周囲全面を覆う状態であるか、又は、前記第2相の表裏板面のみに前記第1相が形成された状態であることを特徴とする。

[0015] 本発明の複合体の製造方法によれば、複合体に含まれる多孔質無機構造体の破損が抑制され、安定して複合体を作製することができる。

図面の簡単な説明

[0016] [図1]本発明の一実施形態に係る複合体の概念的な構成を示す図であって、図1(a)は複合体の板面方向からの平面図であり、図1(b)は図1(a)のA-A'における断面図である。

発明を実施するための形態

[0017] 以下に、本発明の複合体の製造方法及びこの製造方法により製造される複合体の一実施形態を説明する。しかし本発明は、これらの実施形態に限定されないことは自明である。

[0018] [複合体の製造方法]

本実施形態の複合体の製造方法は、平板状の多孔質無機構造体に繊維状無機材料を隣接配置しながら金属を含浸させる複合体の製造方法において、多孔質炭化珪素セラミックス焼結体からなる多孔質無機構造体、及び繊維状無機材料を用いることにより、多孔質炭化珪素セラミックス焼結体に金属が含浸されている第1相と、繊維状無機材料に金属が含浸されている第2相とが互いに隣接している構造を有する複合体であり、第1相中に占める多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の割合が50～80体積%であり、第2相中に占

める繊維状無機材料の割合が3～20体積%であることを特徴とする。

[0019] 上記の構成からなる複合体の製造方法では、金属を含浸させる際に、多孔質無機構造体からの治具、金型等を通しての熱の放散が少なくなるため、該構造体の局所的な温度不均一が抑えられ、均質な複合体を得ることができる。また、熔融金属の金型等との接触による部分的温度低下も防ぐことができるため、熔融金属の部分的な固化にともなう流動性の低下が起こらず破損が少ないという効果を奏する。

[0020] 多孔質無機構造体を構成する多孔質炭化珪素セラミックス焼結体としては、金属を含浸し得る気孔を有し、含浸操作等において変形、破壊等が生じたい、例えば10MPa程度の機械的強さを有する各種の多孔質炭化珪素セラミックス焼結体が挙げられる。

[0021] 多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の製造方法に関して、特に制限はなく、公知の方法を採用することができる。例えば、原料である炭化珪素(SiC)粉末に、シリカやアルミナ等を結合材として添加して、混合、成形し、800℃以上で焼成することによって得ることができる。

構造体の成形方法についても、特に制限は無く、プレス成形、押し出し成形、鋳込み成形等を用いることができ、必要に応じて保形用バインダーの併用が可能である。

[0022] 多孔質無機構造体に金属を含浸させた第1相の重要な特性は、熱伝導率と熱膨張係数である。多孔質無機構造体中の炭化珪素の含有率が高い方が、熱伝導率が高く、熱膨張係数が小さくなるため好ましいが、炭化珪素の含有率が高くなるとアルミニウム合金が十分に含浸しない場合がある。

実用的には、平均粒子径が、好ましくは40μm以上の粗い炭化珪素粉末を40質量%以上含み、多孔質無機構造体の相対密度が好ましくは55～75%の範囲にあるものが好適である。多孔質無機構造体の強度は、取り扱い時や含浸中の割れを防ぐため、曲げ強度で3MPa以上あることが好ましい。なお、平均粒子径は、走査型電子顕微鏡(例えば日本電子社製「JSM-T200型」)と画像解析装置(例えば日本アビオニクス社製)を用い、1

000個の粒子について求めた径の平均値を算出することによって測定することができる。また、相対密度は、アルキメデス法等によって測定することができる。曲げ強度は、引張試験機（例えば島津製作所社製）によって測定することができる。

[0023] 炭化珪素粉末については、粒度調整を行うことが好ましい。粗粉と微粉とを混合することで、強度発現性が低下せず、得られる複合体の熱伝導率が向上する。そのため、平均粒子径が、好ましくは40～150 μm の粗粉40～80質量%と、平均粒子径が好ましくは5～15 μm の微粉60～20質量%とを混合した混合粉末が好適である。

[0024] 多孔質炭化珪素セラミックス焼結体は、炭化珪素粉末に結合材を添加した混合物の成形体を、脱脂、焼成することにより得られる。焼成温度が800℃以上であれば、焼成時の雰囲気に関係なく、曲げ強度が3 MPa以上の焼結体を得られる。

酸化性雰囲気中では、1100℃を超える温度で焼成すると、炭化珪素の酸化が促進され、アルミニウム－炭化珪素質複合体の熱伝導率が低下してしまう場合があるので、酸化性雰囲気中では、1100℃以下の温度で焼成することが好ましい。焼成時間は、焼結体の大きさ、焼成炉への投入量、焼成雰囲気等の条件に合わせて適宜決められる。

[0025] 本実施形態の多孔質無機構造体は、上述したとおりに、金属或いは合金を含浸させることが可能な開放気孔を有し、しかも含浸操作において破壊することのない機械的強度を有する炭化珪素セラミックス焼結体であれば、どのようなものでも構わない。

[0026] 上記のような方法によって得られた、平板状の多孔質無機構造体には繊維状無機材料が隣接配置される。繊維状無機材料としては、繊維状のアルミナが好ましい。アルミナ繊維としては、アルミナ含有量が70%以上の結晶質のアルミナ繊維であることが、含浸させる金属との親和性が良いため特に好ましい。アルミナ繊維は、安価で入手し易い。

[0027] 繊維状無機材料としては、特に機械的な強さを必要とせず、ブランケット

、マット等のいずれの状態であっても構わない。

[0028] 多孔質炭化珪素セラミックス焼結体からなる多孔質無機構造体、及び繊維状無機材料に含浸させる金属については、本実施形態の目的を達成し得れば、どのようなものであっても構わないが、高熱伝導性、軽量性を達成する目的から、アルミニウム、マグネシウム等の軽合金又はそれらの合金が好ましい。前記合金についても格別の制限はなく、汎用のアルミニウム合金やマグネシウム合金を用いることができる。

[0029] アルミニウム合金の場合には、鑄造のしやすさ、高熱伝導性の発現の点から、Si含有量が4～10%のAC2A、AC2B、AC4A、AC4B、AC4C、AC8B、AC4D、AC8C、ADC10、ADC12等の鑄造用アルミニウム合金や、1000系、2000系、3000系、4000系、5000系、6000系、7000系の展伸用アルミニウム合金が特に好ましい。

[0030] 上記の多孔質無機構造体と金属の組み合わせに関して、金属としてアルミニウムあるいはアルミニウム系合金、多孔質無機構造体として炭化珪素を用いたアルミニウム－炭化珪素複合体は、軽量、高熱伝導、セラミック基板との熱膨張の適合性の点で特に優れた組合せである。

[0031] 本実施形態において、金属の含浸方法としては、従来公知のいろいろな含浸方法を適用することができるが、複合体表面に金属を多量に含む第2相を形成させる必要から、圧力鑄造による方法が望ましい。すなわち、ダイキャスト法による場合には、金型のキャビティをプリフォームよりも表面層の分だけ大きめに作り、キャビティのプリフォーム以外の空間に繊維状無機材料を配置して金属を含浸させることにより、表面に第2相を持った複合体を容易に作製することができる。

[0032] 溶湯鍛造による場合には、多孔質無機構造体の表裏面及び／又は側面を繊維状無機材料で挟み、或いは全面を包んだ状態で金属を含浸させることにより、或いは、金型の内面に繊維状無機材料を配置して金属を含浸させることにより容易に作製することができる。

[0033] 本実施形態において、繊維状無機材料は多孔質無機構造体に隣接して設置されていれば良い。「隣接」とは、多孔質無機構造体と繊維状無機材料とが、隣り合って直接的に接している状態を意味する。本実施形態において、繊維状無機材料は、多孔質無機構造体の表裏面及び／又は側面に隣接して設置することができる。繊維状無機材料が多孔質無機構造体の周囲全面（つまり、表裏面及び側面）を覆う状態の場合には、得られる複合体の表面に切削加工性に富む第2相が存在することになり、好ましい。

[0034] 第1相中に占める多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の割合は50～80体積%が好ましい。また第2相中に占める繊維状無機材料の割合は3～20体積%が好ましい。このような構成とすることにより、金属を含浸させる際に、局部的に温度が不均一となることを抑制して均質な複合体を作製することができる、溶融金属の部分的な流動性の低下によって多孔質無機構造体が破損されることを抑制することができる。このため、安定して、生産性良く複合体を得ることができる

この様な構成は、第1相中に占める多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の気孔率を20～50体積%、また第2相中に占める繊維状無機材料の気孔率を80～97体積%とすることで作製することができる。

[0035] なお、気孔率は、理論密度と相対密度（アルキメデス法により測定）の差から計算により求めることができる。また、気孔率を調整する方法は、特に限定されない。例えば、繊維状無機材料の気孔率は、フェルト状の繊維状無機材料を圧縮又はほぐす等して調整することができる。多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の気孔率は、使用する炭化珪素粉の粒度配合やバインダーの添加量等によって調整することができる。

[0036] 更に、本実施形態によれば、多孔質無機構造体、繊維状無機材料と溶融金属を流し込む型内空間の大きさを調整することで、例えば、一部がフィン状に突出した形状の第2相からなる層を有する複合体、第2相からなる層で埋まった穴を有する複合体、一部に肉厚の大きな第2相からなる層を有する複合体等を作製することができ、しかも前記第2相からなる層を従来公知の

金属加工法を適用することでいろいろな形状の複合体を得ることができる。

ここで、従来公知の金属加工法としては、前記の平面研削方法、穴あけ加工方法に例示される機械加工法に限定されるものでなく、金属の加工に適用できるあらゆる方法をいう。

[0037] 従って、第2相からなる層の厚み、従って多孔質無機構造体に隣接配置する繊維状無機材料の厚みについては、選択される金属加工方法、加工後の複合体の寸法精度等により異なるが、少なくとも0.5 μm 以上であれば良い。

金属加工法のうち安価で生産性の高い汎用の機械加工法を適用する場合には、前記第2相からなる層の厚みとしては50 μm 以上が好ましく、1 mm以上であることが一層好ましい。尚、その上限値に関しては、特に限定すべき理由がないが、20 mmを越えるときには、例えば、半導体搭載用回路基板の放熱部品として用いるときに、高熱伝導、低熱膨張率であるという複合体の特徴を発揮することが出来ないおそれがある。また、第1相と第2相の熱膨張率の著しい違いにより、複合体の平面度の保持も難しくなる。よって、第2相からなる層の厚みは、好ましくは20 mm以下である。

[0038] [複合体]

上記の実施形態の複合体の製造方法によれば、図1に示すような、平板状の多孔質炭化珪素セラミックス焼結体からなる多孔質無機構造体に金属が含浸されている第1相2と、繊維状無機材料に金属が含浸されている第2相3とが互いに隣接している構造を有し、第1相2中に占める多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の割合が50～80体積%であり、第2相3中に占める繊維状無機材料の割合が3～20体積%であることを特徴とする複合体1を得ることができる。

[0039] 上記の構成からなる複合体1は、第1相2と第2相3とが互いに同一の金属により連続的につながっているため、互いに隣接する多孔質無機構造体と繊維状無機材料とが形成する界面で剥離等が起こるのを防止できる効果がある。

[0040] 図1の例では、平板状の複合体1の表裏板面を貫通する貫通孔4が設けられている。貫通孔4の周囲には、貫通孔4を形成する際の加工性の点から、第1相2は形成されていないことが好ましい。このような構造とするためには、多孔質無機構造体を形成するときに、予め、貫通孔4が形成される部分の周囲に切欠き部を設けるか、貫通孔4より大きな径を有する貫通孔を設ければよい。

[0041] 図1の例では、第1相2と第2相3との周囲全面を覆うように金属層5が形成されている。金属層5は、複合体の表裏板面にのみ設けられてもよい。

[0042] 上記の実施形態に係る複合体は、例えば、自動車のピストン部品の耐磨耗材料、ヒートシンクなどの放熱材料としての応用が挙げられる。

実施例

[0043] 以下、実施例及び比較例に基づき、本発明を更に詳細に説明する。

〔実施例1〕

平均粒径 $30\mu\text{m}$ の炭化珪素（屋久島電工社製：GS-500S）に、バインダーとしてシリカゾル（日産化学工業株式会社製：スノーテックス）を固形分濃度で5質量%添加し、混合し、プレス成形した後、空气中 900°C で2時間焼成し、気孔率40%で、大きさ $100\text{mm}\times 100\text{mm}\times 3\text{mm}$ の多孔質炭化珪素構造体を作製した。

[0044] 前記の多孔質炭化珪素構造体10個について、それぞれを厚さ 10mm のアルミナ質のフェルト（電気化学工業（株）製、アルセンフェルト気孔率90%）2枚で挟み、内径 200mm の金型内に納め、更に金型内に 800°C で熔融した12質量%のSi、1質量%のMgを含むアルミニウム合金を流し込み、押し棒にて 100MPa の圧力で加圧し、複合体を作製した。

冷却後、複合体を切り出した。ここで、第2相（アルミナ質のフェルトにアルミニウム合金が含浸された相）の厚みは 2mm であった。破損状態を目視にて観察したが、何ら異常を認めなかった。

[0045] なお、この場合の第1相中に占める多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の割合は60体積%であり、第2相中に占める繊維状無機材料の割合は10体

積％であった。

[0046] 〔実施例2〕

平均粒径 $220\ \mu\text{m}$ （大平洋ランダム株式会社製：NG-F80）、 $16\ \mu\text{m}$ （屋久島電工株式会社製：GC#750）、 $0.8\ \mu\text{m}$ （大平洋ランダム株式会社製、NG-4S）の炭化珪素を6：3：1の割合でブレンドし、バインダーとしてシリカゾル（日産化学工業株式会社製：スノーテックス）を固形分濃度で5質量％添加し、混合し、プレス成形した後、空气中 900°C で2時間焼成し、気孔率25％で、大きさ $100\text{mm}\times 100\text{mm}\times 3\text{mm}$ の多孔質炭化珪素構造体を作製した。

[0047] 前記の多孔質炭化珪素構造体10個について、電気化学工業（株）製、アルセンフェルト（気孔率90％）をほぐして気孔率94％としたアルミナ質のフェルト（厚さ 10mm ）2枚で挟み、内径 200mm の金型内に納め、更に金型内に 800°C で熔融した12質量％のSi、1質量％のMgを含むアルミニウム合金を流し込み、押し棒にて 100MPa の圧力で加圧し、複合体を作製した。

冷却後、複合体を切り出した。第2相（アルミナ質のフェルトにアルミニウム合金が含浸された相）の厚みは 1.5mm であった。破損状態を目視にて観察したが、何ら異常を認めなかった。

[0048] なお、この場合の第1相中に占める多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の割合は75体積％であり、第2相中に占める繊維状無機材料の割合は6体積％であった。

[0049] 〔実施例3〕

平均粒径 $100\ \mu\text{m}$ （大平洋ランダム株式会社製、NG-F150）、 $1\ \mu\text{m}$ （屋久島電工株式会社製、GC-1000F）、炭化珪素を7：3の割合でブレンドし、バインダーとしてシリカゾル（日産化学工業株式会社製：スノーテックス）を固形分濃度で5質量％添加し、混合し、プレス成形した後、空气中 900°C で2時間焼成し、気孔率45％で、大きさ $100\text{mm}\times 100\text{mm}\times 3\text{mm}$ の多孔質炭化珪素構造体を作製した。

[0050] 前記の多孔質炭化珪素構造体10個について、電気化学工業（株）製、アルセンフェルト（気孔率90%）を圧縮し気孔率82%としたアルミナ質のフェルト（厚さ10mm）2枚で挟み、内径200mmの金型内に納め、更に金型内に800℃で熔融した12質量%のSi、1質量%のMgを含むアルミニウム合金を流し込み、押し棒にて100MPaの圧力で加圧し、複合体を作製した。冷却後、複合体を切り出した。第2相（アルミナ質のフェルトにアルミニウム合金が含浸された相）の厚みは2.5mmであった。破損状態を目視にて観察したが、何ら異常を認めなかった。

[0051] なお、この場合の第1相中に占める多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の割合は55体積%であり、第2相中に占める繊維状無機材料の割合は18体積%であった。

[0052] 〔比較例1〕

アルミナ質のフェルトを用いないこと以外は、実施例1と同じ操作を行い、得られた10個の複合体について、異常の有無を観察した。超音波探傷試験機にて複合体内部の多孔質炭化珪素構造体が短手方向全幅で割れているものが1個、外観目視にて複合体に3～10mm程度のクラックが認められたものが4個であった。なお、この場合の第1相中に占める多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の割合は60体積%であった。

[0053] 〔比較例2〕

アルミナ質のフェルトの気孔率を75%とした以外は、実施例3と同じ操作を行い、得られた10個の複合体について、異常の有無を観察したところ、アルミナ質フェルト部にアルミニウム合金の未含浸が3個認められた。第2相（アルミナ質のフェルトにアルミニウム合金が含浸された相）の厚みは5mmであった。

[0054] なお、この場合の第1相中に占める多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の割合は55体積%であり、第2相中に占める繊維状無機材料の割合は25体積%であった。

[0055] 〔比較例3〕

実施例 2 と同様の操作にて気孔率 15 % の多孔質炭化珪素構造体を得ようとしたが作製不可であった。なお、ここで想定した第 1 相中に占める多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の割合は 85 体積%であった。

[0056] [比較例 4]

実施例 2 と同様の操作にて気孔率 60 % の多孔質炭化珪素構造体を得ようとしたが作製不可であった。なお、ここで想定した第 1 相中に占める多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の割合は 40 体積%であった。

[0057] [比較例 5]

アルミナ質のフェルトの気孔率をアルセNFフェルト（気孔率 90 %）をほぐして気孔率 98 % とした以外は、実施例 1 と同じ操作を行い、得られた 10 個の複合体について、異常の有無を観察したところ、外観目視にて 3 ~ 10 mm 程度のクラックが認められたものが 4 個であった。第 2 相（アルミナ質のフェルトにアルミニウム合金が含浸された相）の厚みは 1 mm であった。なお、この場合の第 1 相中に占める多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の割合は 60 体積%であり、第 2 相中に占める繊維状無機材料の割合は 2 体積%であった。

[0058] 上記の実施例 1 から 3 及び比較例 1 から 5 についてまとめたものを表 1 に示す。

[0059] [表 1]

	多孔質炭化珪素構造体の 気孔率 (%)	アルミナ質のフェルトの 気孔率 (%)	複合体の状態
実施例 1	40	90	良好
実施例 2	25	94	良好
実施例 3	45	82	良好
比較例 1	40	-	割れ・クラック有
比較例 2	45	75	未含浸部有
比較例 3	作製不可	作製不可	作製不可
比較例 4	作製不可	作製不可	作製不可
比較例 5	40	98	クラック有

[0060] 表 1 の結果からわかるように、本発明に係る製造方法で作製された複合体は、多孔質炭化珪素構造体に割れやクラックが生じたり、また金属が含浸さ

れていない部分が存在することがない。このように、本発明の複合体の製造方法及びこの製造方法により製造される複合体によれば、複合体に含まれる多孔質無機構造体の破損が抑制され、安定して複合体を作製することができる。

符号の説明

- [0061] 1 複合体
2 第1相
3 第2相
4 貫通孔
5 金属層

請求の範囲

- [請求項1] 平板状の多孔質無機構造体に繊維状無機材料を隣接配置しながら金属を含浸させる複合体の製造方法において、
- 多孔質炭化珪素セラミックス焼結体からなる多孔質無機構造体、及び繊維状無機材料を用いることにより、多孔質炭化珪素セラミックス焼結体に金属が含浸されている第1相と、繊維状無機材料に金属が含浸されている第2相とが互いに隣接している構造を有する複合体であり、
- 第1相中に占める多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の割合が50～80体積%であり、
- 第2相中に占める繊維状無機材料の割合が3～20体積%であることを特徴とする複合体の製造方法。
- [請求項2] 金属を含浸させる方法がダイキャスト法又は溶湯鍛造法であることを特徴とする請求項1に記載の複合体の製造方法。
- [請求項3] 前記金属がアルミニウム又はアルミニウム合金であることを特徴とする請求項1又は2に記載の複合体の製造方法。
- [請求項4] 前記第2相からなる層の厚みが1mm以上であることを特徴とする請求項1から3のいずれか一項に記載の複合体の製造方法。
- [請求項5] 繊維状無機材料が多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の周囲全面を覆う状態とするか、又は、多孔質炭化珪素セラミックス焼結体を繊維状無機材料2枚で挟む状態とすることを特徴とする請求項1から4のいずれか一項に記載の複合体の製造方法。
- [請求項6] 平板状の多孔質炭化珪素セラミックス焼結体からなる多孔質無機構造体に金属が含浸されている第1相と、繊維状無機材料に金属が含浸されている第2相とが互いに隣接している構造を有し、
- 第1相中に占める多孔質炭化珪素セラミックス焼結体の割合が50～80体積%であり、
- 第2相中に占める繊維状無機材料の割合が3～20体積%であるこ

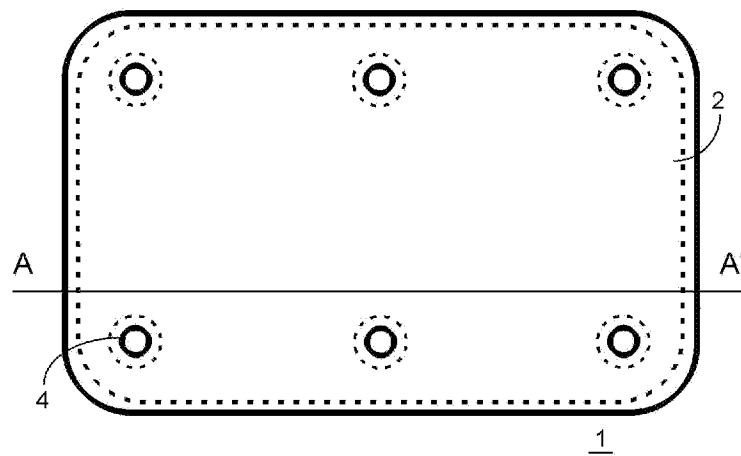
とを特徴とする複合体。

[請求項7] 前記金属がアルミニウム又はアルミニウム合金であることを特徴とする請求項6に記載の複合体。

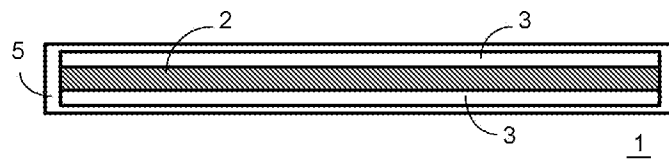
[請求項8] 前記第2相からなる層の厚みが1 mm以上であることを特徴とする請求項6又は7に記載の複合体。

[請求項9] 前記第2相が前記第1相の周囲全面を覆う状態であるか、又は、前記第2相の表裏板面のみに前記第1相が形成された状態であることを特徴とする請求項6から8のいずれか一項に記載の複合体。

[図1]



(a)



(b)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/071082

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B22D19/00(2006.01)i, B22D18/02(2006.01)i, B22D19/14(2006.01)i, C04B35/565(2006.01)i, C04B41/88(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)

B22D19/00, B22D18/02, B22D19/14, C04B35/565, C04B41/88, H01L23/373

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	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

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 11-269575 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 05 October 1999 (05.10.1999), entire text (Family: none)	1-9
Y	JP 2003-204022 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 18 July 2003 (18.07.2003), claims; paragraph [0022] (Family: none)	1-9
Y	JP 11-277217 A (Mitsubishi Materials Corp.), 12 October 1999 (12.10.1999), claims (Family: none)	1-9

☒ 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
16 September 2015 (16.09.15)

Date of mailing of the international search report
06 October 2015 (06.10.15)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/071082

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 2010-24077 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 04 February 2010 (04.02.2010), claims (Family: none)	1-9
A	WO 2007/080701 A1 (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 19 July 2007 (19.07.2007), claims & JP 5144279 B2 & US 2009/0280351 A1 & EP 1973157 A1 & CN 101361184 A & KR 10-2008-0077094 A	1-9
A	WO 2007/125878 A1 (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 08 November 2007 (08.11.2007), claims & JP 4996600 B2 & US 2009/0092793 A1 & EP 2012354 A1 & CN 101427367 A & KR 10-2009-0004864 A	1-9

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. B22D19/00(2006.01)i, B22D18/02(2006.01)i, B22D19/14(2006.01)i, C04B35/565(2006.01)i, C04B41/88(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（I P C））

Int.Cl. B22D19/00, B22D18/02, B22D19/14, C04B35/565, C04B41/88, H01L23/373

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 5 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 5 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 5 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 11-269575 A（電気化学工業株式会社） 1999. 10. 05, 全文（ファミリーなし）	1-9
Y	JP 2003-204022 A（電気化学工業株式会社） 2003. 07. 18, 特許請求の範囲, 段落【0022】（ファミリーなし）	1-9
Y	JP 11-277217 A（三菱マテリアル株式会社） 1999. 10. 12, 特許請求の範囲（ファミリーなし）	1-9

☒ 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

1 6 . 0 9 . 2 0 1 5

国際調査報告の発送日

0 6 . 1 0 . 2 0 1 5

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
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）

酒井 英夫

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 2 5

4 E

5 7 9 6

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 2010-24077 A (電気化学工業株式会社) 2010.02.04, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-9
A	WO 2007/080701 A1 (電気化学工業株式会社) 2007.07.19, 請求の範囲 & JP 5144279 B2 & US 2009/0280351 A1 & EP 1973157 A1 & CN 101361184 A & KR 10-2008-0077094 A	1-9
A	WO 2007/125878 A1 (電気化学工業株式会社) 2007.11.08, 請求の範囲 & JP 4996600 B2 & US 2009/0092793 A1 & EP 2012354 A1 & CN 101427367 A & KR 10-2009-0004864 A	1-9