

(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
2017年1月19日(19.01.2017)



(10) 国際公開番号

WO 2017/010184 A1

- (51) 国際特許分類:
C04B 38/00 (2006.01) F16L 59/02 (2006.01)
C01G 25/02 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/066504
- (22) 国際出願日: 2016年6月2日(02.06.2016)
- (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 2015-141895 2015年7月16日(16.07.2015) JP
特願 2015-235494 2015年12月2日(02.12.2015) JP
- (71) 出願人: 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: 小林博治(KOBAYASHI Hiroharu); 〒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). 富田崇弘(TOMITA Takahiro); 〒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). 織部晃暢(ORIBE Akinobu); 〒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: 千葉剛宏, 外(CHIBA Yoshihiro et al.); 〒1510053 東京都渋谷区代々木2丁目1番1号 新宿マインズタワー 16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,

[続葉有]

(54) Title: POROUS CERAMIC PARTICLES

(54) 発明の名称: 多孔質セラミック粒子

FIG. 1A

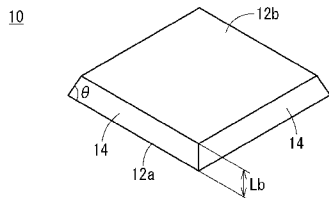


FIG. 1B

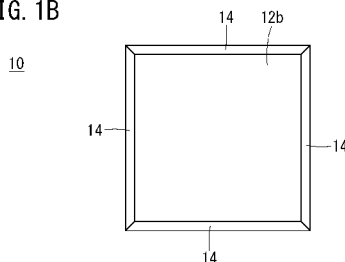
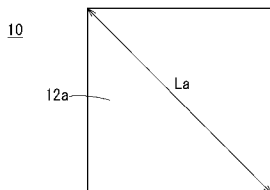


FIG. 1C



(57) Abstract: The present invention relates to porous ceramic particles. The porous ceramic particle (10) is a porous ceramic particle having a porosity of from 20 to 99%, wherein: one principal surface (12a) is a mirror surface; and the aspect ratio is 3 or higher. Thus, it is possible to achieve low thermal conductivity. Also, the particles can be installed by applying an adhesive etc. directly to an object etc., and the installation of bulk bodies can be facilitated.

(57) 要約: 本発明は多孔質セラミック粒子に関する。多孔質セラミック粒子(10)は、気孔率が20~99%である多孔質セラミック粒子であって、一主面(12a)が鏡面であり、アスペクト比が3以上である。これにより、低熱伝導率化を図ることができると共に、対象物等に直接接着剤等を用いて設置することができ、バルク体の設置を容易にすることができる。



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))

明 細 書

発明の名称：多孔質セラミック粒子

技術分野

[0001] 本発明は、多孔質セラミック粒子に関し、該多孔質セラミック粒子を含有する構成部材の低熱伝導率化を図る上で好適な多孔質セラミック粒子に関する。

背景技術

[0002] 断熱材や膜等に充填されるフィラーとして、特開2010-155946号公報、特開2004-10903号公報及び特開2010-64945号公報に記載された組成物や中空粒子等がある。

[0003] 特開2010-155946号公報には、熱伝導率の低い多孔質オルガノポリシロキサン硬化物を形成することができる硬化性オルガノポリシロキサン組成物が記載されている。

[0004] 特開2004-10903号公報には、低熱伝導率の中空粒子を用いた塗料を使用して、低熱伝導率の膜を形成することが記載されている。

[0005] 特開2010-64945号公報には、静電相互作用で母材粒子表面に添加物粒子を吸着させることで、ナノコートされた複合粒子を製造し、さらに、これを用いて通常の粉末冶金プロセスを経由して、複合材料を製造することが記載されている。

発明の概要

[0006] 特開2010-155946号公報及び特開2004-10903号公報に記載の技術では、低熱伝導率化が不十分であった。特開2010-64945号公報に記載の技術では、粉末冶金での複合材料の作製を意図しているため、母材粒子に粒径がnmオーダーの微粒子をコーティングすることを念頭においている。そのため、母材粒子間の距離が短くなり、また、焼結した際に気孔も形成されにくく、形成されても少量のため、この場合も、低熱伝導率化が不十分である。

[0007] 接着剤に添加する粒子が小さいと、接着剤に粒子を均一に分散させることが困難である。また、予め粒子が添加された接着剤を焼成してバルク体としてから、例えば基材（バルク体が貼着される対象物）上に設置する必要があることから、対象物の一部の領域に設置したり、複雑な形状に沿って設置することが困難である。

[0008] 本発明はこのような課題を考慮してなされたものであり、低熱伝導率化を図ることができると共に、対象物等に直接接着剤等を用いて設置することができ、バルク体の設置を容易にすることができる多孔質セラミック粒子を提供することを目的とする。

[0009] [1] 本発明に係る多孔質セラミック粒子は、気孔率が20～99%である多孔質セラミック粒子であって、一主面が鏡面であり、アスペクト比が3以上であることを特徴とする。

[0010] [2] 本発明において、前記一主面と向かい合った他主面も鏡面であってもよい。

[0011] [3] 本発明において、複数の側面を有し、前記側面が粗面であることが好ましい。

[0012] [4] 本発明において、外形の最小長が50～500 μ mであることが好ましい。

[0013] [5] 本発明において、平均気孔径が500nm以下であることが好ましい。

[0014] [6] 本発明において、熱伝導率が1W/mK以下であることが好ましい。

[0015] [7] 本発明において、微粒子が三次元に繋がった構造を有し、前記微粒子の粒径が1nm～5 μ mであることが好ましい。

[0016] [8] 本発明において、粒子間距離が10 μ m以下であることが好ましい。

[0017] [9] 本発明に係る多孔質セラミック粒子は、シートの上に配置されてもよい。

[0018] 本発明に係る多孔質セラミック粒子によれば、低熱伝導率化を図ることができると共に、対象物等に直接接着剤等を用いて設置することができ、バルク体の設置を容易にすることができる。

図面の簡単な説明

[0019] [図1]図1 Aは、本実施の形態に係る多孔質セラミック粒子を、一主面を下方に向けて配置した例を示す斜視図であり、図1 Bは、図1 Aに示す多孔質セラミック粒子を、上方から見て示す平面図であり、図1 Cは、図1 Aに示す多孔質セラミック粒子を、下方から見て示す底面図である。

[図2]図2 Aは、変形例に係る多孔質セラミック粒子を、一主面を下方に向けて配置した例を示す斜視図であり、図2 Bは、図2 Aに示す多孔質セラミック粒子を、上方から見て示す平面図であり、図2 Cは、図2 Aに示す多孔質セラミック粒子を、下方から見て示す底面図である。

[図3]図3 Aは、多孔質セラミック粒子の製造方法の1つの例を示すフローチャートであり、図3 Bは、多孔質セラミック粒子の製造方法の他の例を示すフローチャートである。

[図4]図4 Aは、複数の多孔質セラミック粒子と接着剤成分を含むスラリーとを図示しない型に流し込んだ状態を示す工程図であり、図4 Bは、スラリーを乾燥後、焼成、固化してバルク体とした状態を示す工程図であり、図4 Cは、バルク体を基材（バルク体が貼着される対象物）上に設置した状態を示す工程図である。

[図5]図5 Aは、従来例において複数の粒子をスラリーに分散させた状態を一部省略して示す説明図であり、図5 Bは、スラリーを固化してバルク体とした状態を一部省略して示す説明図である。

[図6]図6 Aは、複数の多孔質セラミック粒子（複数の粒子集合体）と接着剤成分を含むスラリーとを図示しない型に流し込んだ状態を示す工程図であり、図6 Bは、スラリーを乾燥後、焼成、固化してバルク体とした状態を示す工程図であり、図6 Cは、バルク体を対象物上に設置した状態を示す工程図である。

[図7]図7は、バルク体において複数の多孔質セラミック粒子を縦方向に整列させた例を一部省略して示す断面図である。

[図8]図8Aは、多孔質セラミック粒子に緻密層を配置した1つの例を一部省略して示す断面図であり、図8Bは、多孔質セラミック粒子に緻密層を配置した他の例を一部省略して示す断面図である。

[図9]図9Aは、対象物上に接着剤を塗布した状態を示す工程図であり、図9Bは、1つの面に複数の多孔質セラミック粒子を貼り付けたシートを使って、接着剤上に複数の多孔質セラミック粒子を転写した状態を示す工程図であり、図9Cは、シートを剥がした状態を示す工程図である。

[図10]図10Aは、複数の多孔質セラミック粒子上に、接着剤を塗布してバルク体を構成した例を一部省略して示す断面図であり、図10Bは、図10Aの状態から上層の接着剤上に、さらに複数の多孔質セラミック粒子を転写して、バルク体を構成した例を一部省略して示す断面図であり、図10Cは、図10Bの状態から複数の多孔質セラミック粒子上に、接着剤を塗布してバルク体を構成した例を一部省略して示す断面図である。

発明を実施するための形態

[0020] 以下、本発明に多孔質セラミック粒子の実施の形態例を図1A～図10Cを参照しながら説明する。なお、本明細書において、数値範囲を示す「～」は、その前後に記載される数値を下限值及び上限値として含む意味として使用される。

[0021] 本実施の形態に係る多孔質セラミック粒子10は、例えば図1A～図1Cに示すように、一主面12aと、該一主面12aと向かい合った他主面12bと、複数の側面14（例えば4つの側面14）とを有する立体状であり、多角形状や円盤状等が挙げられる。図1Aは、多孔質セラミック粒子10の外形形状を四角錐台状とした場合であって、一主面12aを下方に、他主面12bを上方に向けて配置した例を示す。一主面12aと他主面12bとは互いに正面同士に向き合ってもよいし、ある程度角度をもって向き合ってもよい。

- [0022] この場合、図1Aに示すように、各側面14の傾斜角 θ がそれぞれ同じでもよいし、それぞれ異なってもよい。もちろん、少なくとも1つの側面14の傾斜角 θ が他の側面14の傾斜角 θ と異なってもよい。ここで、側面14の傾斜角 θ とは、一主面12aに対する傾斜角をいう。
- [0023] 外形形状としては、図2Aに示す変形例に係る多孔質セラミック粒子10aのように、各側面14がそれぞれ傾斜角 θ_a 、 θ_b の異なる複数の面14a及び14bで構成されてもよい。
- [0024] 多孔質セラミック粒子10、10aを構成する多角形状としては、上面から見た形状が図1A及び図2Aに示すような矩形状でもよいし、その他、五角形状、六角形状、八角形状等の多角形状でもよいし、トラック形状、楕円状、円形状等であってもよい。なお、外形形状の各稜線部分が湾曲面（R面）になっていてもよい。
- [0025] さらに、多孔質セラミック粒子10、10aの少なくとも一主面12aが鏡面であることが好ましい。ここで、鏡面とは表面粗さ R_a が $1\mu\text{m}$ 以下の面を指す。鏡面である一主面12aは、対向する他主面12bよりも表面粗さ R_a が小さいことが好ましい。一主面12aが鏡面である場合、対向する他主面12bは表面粗さ R_a が大きいことが好ましい。もちろん、一主面12aと対向する他主面12bも鏡面であることが好ましい。一主面12aも他主面12bとも鏡面である場合は、一主面の表面粗さ R_a が他主面の表面粗さ R_a の90%未満であることがさらに好ましい。多孔質セラミック粒子10、10aの側面14は粗面であることが好ましい。ここで、粗面とは表面粗さ R_a が $1\mu\text{m}$ を超えた面であるが、好ましくは表面粗さ R_a が $5\mu\text{m}$ 以上 $10\mu\text{m}$ 以下の面を指す。また、多孔質セラミック粒子を膜化、すなわち、バルク体20（図4B参照）にする場合には、一主面は膜化した際に表面側に配置され、他主面は基材（すなわち、バルク体20が貼着される対象物26）側に配置されるのが好ましい。
- [0026] また、多孔質セラミック粒子10、10aは、アスペクト比が3以上であることが好ましい。さらに好ましくは5以上、より好ましくは7以上である

。この場合、アスペクト比は、例えば図1 A、図1 C、図2 A及び図2 Cに示すように、最大長 L_a ／最小長 L_b をいう。ここで、最大長 L_a とは、図1 C及び図2 Cに示すように、多孔質セラミック粒子10、10 aを構成する複数の面のうち、最も広い面（ここでは、一主面12 a）における最大長をいう。広い面が正方形、長方形、台形、平行四辺形、多角形（五角形、六角形等）であれば、最も長い対角線の長さが該当し、円形であれば直径が該当し、楕円であれば、長軸の長さが該当する。一方、最小長 L_b とは、図1 A及び図2 Aに示すように、多孔質セラミック粒子10、10 aの厚みのうち、最も薄い部分の厚みをいう。

[0027] 最小長 L_b は、50～500 μm が好ましく、さらに好ましくは55～400 μm であり、より好ましくは60～300 μm であり、特に好ましくは70～200 μm である。

[0028] ここで、多孔質とは、緻密でも中空でもない状態をいい、複数の気孔又は粒子で構成された状態をいう。なお、緻密とは、複数の微粒子が隙間なく結合した状態であって、気孔を有しない。中空とは、内部が中空であって、外殻部分が緻密である状態をいう。

[0029] 多孔質セラミック粒子10、10 aの気孔率は20～99%であり、気孔とは、閉気孔、開気孔の少なくとも1つのことであり、両方を含んでもよい。また、気孔の形状、すなわち、開口の面形状としては、正方形、四角形、三角形、六角形、円形等、不定形のいずれの形状であってもよい。平均気孔径は500 nm以下であることが好ましく、さらに好ましくは10～500 nmである。この寸法は、熱伝導の主因である格子振動（フォノン）の発生を阻害するのに有効である。

[0030] 多孔質セラミック粒子10、10 aは、微粒子が三次元に繋がった構造を有する。微粒子の粒径は1 nm～5 μm であることが好ましい。さらに好ましくは50 nm～1 μm である。このような範囲の粒径の微粒子で構成された多孔質セラミック粒子10、10 aは、熱伝導の主因である格子振動（フォノン）の発生が阻害されるため、低熱伝導率を図る上で有効となる。微粒

子とは、一つの結晶粒からなる粒子（単結晶粒子）であってもよいし、多数の結晶粒からなる粒子（多結晶粒子）であってもよい。つまり、多孔質セラミック粒子 10、10a がこの範囲の粒径の微粒子の集まりであることが好ましい。なお、微粒子の粒径は、多孔質セラミック粒子 10、10a の骨格を構成する粒子群のうちの 1 つの微粒子の大きさ（球状であれば直径、そうでなければ最大径）を、電子顕微鏡観察の画像から計測したものである。

[0031] 多孔質セラミック粒子 10、10a の熱伝導率は 1 W/mK 以下であることが好ましく、さらに好ましくは 0.7 W/mK 以下、より好ましくは 0.5 W/mK 以下、特に好ましくは 0.3 W/mK 以下である。

[0032] 多孔質セラミック粒子 10、10a の構成材料としては、金属酸化物を含むことが好ましく、金属酸化物のみからなることがさらに好ましい。金属酸化物を含むと、金属の非酸化物（例えば、炭化物や窒化物）に比べて金属と酸素の間のイオン結合性が強いために熱伝導率が低くなりやすいためである。

[0033] 金属酸化物が Zr、Y、Al、Si、Ti、Nb、Sr、La、Hf、Ce、Gd、Sm、Mn、Yb、Er、及び Ta からなる群から選ばれる 1 の元素の酸化物あるいは 2 以上の元素の複合酸化物であることが好ましい。金属酸化物がこれらの元素の酸化物、複合酸化物であると、格子振動（フォノン）による熱伝導が起こりにくくなるためである。

[0034] 具体的な材料としては、 $\text{ZrO}_2\text{--Y}_2\text{O}_3$ に Gd_2O_3 、 Yb_2O_3 、 Er_2O_3 等を添加したものが挙げられる。さらに具体的には、 $\text{ZrO}_2\text{--HfO}_2\text{--Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{ZrO}_2\text{--Y}_2\text{O}_3\text{--La}_2\text{O}_3$ 、 $\text{ZrO}_2\text{--HfO}_2\text{--Y}_2\text{O}_3\text{--La}_2\text{O}_3$ 、 $\text{HfO}_2\text{--Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{CeO}_2\text{--Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Gd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ 、 $\text{Sm}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ 、 $\text{LaMnAl}_{11}\text{O}_{19}$ 、 $\text{YT a}_3\text{O}_9$ 、 $\text{Y}_{0.7}\text{La}_{0.3}\text{T a}_3\text{O}_9$ 、 $\text{Y}_{1.08}\text{T a}_{2.76}\text{Zr}_{0.24}\text{O}_9$ 、 $\text{Y}_2\text{T i}_2\text{O}_7$ 、 $\text{LaT a}_3\text{O}_9$ 、 $\text{Yb}_2\text{S i}_2\text{O}_7$ 、 $\text{Y}_2\text{S i}_2\text{O}_7$ 、 $\text{T i}_3\text{O}_5$ 等が挙げられる。

[0035] ここで、多孔質セラミック粒子 10、10a の製造方法について、図 3A、図 3B を参照しながら説明する。

[0036] 先ず、図 3A のステップ S1 において、上述した多孔質セラミック粒子 1

0、10aの構成材料の粉末に、造孔材、バインダー、可塑剤、溶剤を加えて混合し、成形用スラリーを調製する。

[0037] その後、ステップS2において、スラリーに、真空脱泡処理を施すことにより、粘度を調整した後、例えばドクターブレード装置によって、焼成後の厚さが最小長となるように成形体（グリーンシート）を作製する。

[0038] その後、ステップS3において、成形体（グリーンシート）を焼成してシート状の焼結体を得る。

[0039] そして、ステップS4において、焼結体をレーザーで加工することで、本実施の形態に係る多孔質セラミック粒子10、10aを得る。このレーザー加工においては、焼結体に対してレーザー光を貫通させることで、焼結体を複数の多孔質セラミック粒子に分離してもよい。この場合、図1A～図1Cに示すような多孔質セラミック粒子10が得られる。あるいは、焼結体に対してレーザー光をその厚み方向途中まで到達させた後、焼結体を折り曲げることで、焼結体を複数の多孔質セラミック粒子に分離してもよい。この場合、図2A～図2Cに示すような変形例に係る多孔質セラミック粒子10aが得られる。

[0040] その他の製造方法としては、例えば図3Bに示すように、ステップS101及びS102において、図3AのステップS1及びS2と同様に、成形用スラリーを調製した後、焼成後の厚さが最小長となるように成形体（グリーンシート）を作製する。

[0041] その後、ステップS103において、成形体（グリーンシート）をレーザーで加工することで、複数の多孔質セラミック粒子の前駆体あるいは複数の凹凸を有する成形体（グリーンシート）を作製する。

[0042] その後、ステップS104aにおいて、複数の多孔質セラミック粒子の前駆体を焼成することで、例えば図1A～図1Cに示すような複数の多孔質セラミック粒子10を得る。

[0043] あるいは、ステップS104bにおいて、複数の凹凸を有する成形体を焼成することで、複数の凹凸を有する焼結体を得る。この場合、次のステップ

S 1 0 5 において、複数の凹凸を有する焼結体を複数の多孔質セラミック粒子 1 0 a に分離する。

[0044] 次に、代表的に多孔質セラミック粒子 1 0 を用いて 1 つのバルク体 2 0 を構成する 2 つの方法について図 4 A ～図 1 0 C を参照しながら説明する。

[0045] 先ず、第 1 の方法は、図 4 A に示すように、複数の多孔質セラミック粒子 1 0 と、接着剤成分を含むスラリー 2 2 とを図示しない型に流し込む。このとき、スラリー 2 2 に複数の多孔質セラミック粒子 1 0 を均一に分散させることができる。その後、図 4 B に示すように、スラリー 2 2 を乾燥後、焼成、固化してバルク体 2 0 を作製する。このバルク体 2 0 は、接着剤 2 4 中に複数の多孔質セラミック粒子 1 0 が均一に分散した状態となる。その後、図 4 C に示すように、対象物 2 6 上にバルク体 2 0 を粘着剤等を介して設置する。このとき、例えば各多孔質セラミック粒子 1 0 の他主面 1 2 b が対象物 2 6 に向かうようにバルク体 2 0 を設置する。

[0046] 従来は、図 5 A に示すように、スラリー 2 2 に添加する粒子 2 8 が小さいため、スラリー 2 2 に粒子 2 8 を均一に分散させることが困難である。そのため、図 5 B に示すように、スラリー 2 2 の固化による接着剤 2 4 中に複数の粒子 2 8 が均一に分散しないことから、粒子 2 8 よりも熱伝導率が高い接着剤 2 4 のみの領域 3 0 が多く存在することになり、バルク体 2 0 の低熱伝導率化が不十分となる。

[0047] これに対して、本実施の形態では、アスペクト比が 3 以上であることから、図 4 A ～図 4 C に示すように、複数の多孔質セラミック粒子 1 0 を層状に、且つ、均一に分散させることが可能となる。しかも、各多孔質セラミック粒子 1 0 の一主面 1 2 a が鏡面となっているため、例えば粒子集合体 1 0 0 上に介在するスラリー 2 2 に厚みムラがほとんどなくなる。粒子集合体 1 0 0 を構成する複数の多孔質セラミック粒子 1 0 も層状に、且つ、均一に分散させることが可能となる。

[0048] また、図 6 A ～図 6 C に示すように、層状に分散された複数の多孔質セラミック粒子 1 0 の集まり、すなわち、多孔質セラミック粒子集合体（以下、

単に粒子集合体100と記す)を2層以上とした場合においても、以下のよう
な作用を発揮する。すなわち、各多孔質セラミック粒子10の一主面12
aが鏡面となっているため、例えば1層目の粒子集合体100上に介在する
スラリー22に厚みムラがほとんどなくなる。そのため、1層目の粒子集合
体100上に配置される2層目の粒子集合体100を構成する複数の多孔質
セラミック粒子10も層状に、且つ、均一に分散させることが可能となる。
これは、3層目以上の粒子集合体100についても同様である。

[0049] さらに、各多孔質セラミック粒子10の側面14が粗面となっていること
から、上層のスラリー22が多孔質セラミック粒子10の下層に回り込みに
くくなり、同様に、下層のスラリー22が多孔質セラミック粒子10の上層
に回り込みにくくなる。これにより、各粒子集合体100間の距離をほぼ一
定にすることが可能となり、粒子集合体100を構成する各多孔質セラミッ
ク粒子10間の距離もほぼ一定にすることが可能となる。すなわち、多孔質
セラミック粒子10間の距離(粒子間距離)を10 μ m以下に規制すること
が可能となる。その結果、例えば1層目の粒子集合体100の下層の接着剤
24の厚みが極端に厚くなる等の現象を回避することができる。粒子間距離
は7 μ m以下が好ましく、4 μ m以下がさらに好ましい。但し、粒子間距離
が狭ければよいというわけではなく、0.1 μ m以上が必要である。0.1
 μ m以上の粒子間距離があれば、その後の膜化によってバルク体20した後
、バルク体20を対象物26に貼着して使用する場合に、以下の効果を奏す
る。すなわち、バルク体20の表面側が高温となり、対象物26側が低温と
なるような場合に、バルク体20自体に熱膨張が生じるが、0.1 μ m以上
の粒子間距離(隙間)があることで、多孔質セラミック粒子10や接着剤2
4及び対象物26等に発生する熱応力を緩和し易くなる。

[0050] このように、本実施の形態においては、スラリー22に複数の多孔質セラ
ミック粒子10を均一に分散させることができることから、多孔質セラミッ
ク粒子10よりも熱伝導率が高い接着剤24のみの領域が狭くなり、バルク
体20の熱伝導率を低く抑えることができる。しかも、バルク体20間での

熱導電率の均一化も図ることができ、バルク体 20 を配置する箇所に応じてバルク体 20 を変更する必要がなく、配置工程の簡略化、工数の削減化を図ることができる。

[0051] なお、図 6 A～図 6 C では、複数の多孔質セラミック粒子 10 を千鳥配列にした例を示したが、図 7 に示すように、複数の多孔質セラミック粒子 10 を縦方向に整列させてもよい。ただ、図 7 の例は、接着剤 24 のみの領域が縦方向につながることから、千鳥配列の場合よりも熱伝導率を低く抑える効果が低減するおそれがある。

[0052] また、図 8 A 及び図 8 B に示すように、多孔質セラミック粒子 10 の一主面 12 a 上に緻密層 32 を配置してもよい。これにより、各多孔質セラミック粒子 10 の強度を向上させることができる。もちろん、緻密層 32 を多孔質セラミック粒子 10 の一主面 12 a のほか、一主面 12 a と対向する他主面 12 b（対象物 26 側の主面）に配置してもよい。また、多孔質セラミック粒子 10 の一主面 12 a と他主面 12 b の両方に緻密層 32 を配置してもよい。多孔質セラミック粒子 10 の他主面 12 b に緻密層 32 を配置すると、接着剤 24 が多孔質セラミック粒子 10 に染み込むのを抑制することができ、しかも、多孔質セラミック粒子 10 の強度を高くすることができる。多孔質セラミック粒子 10 への緻密層 32 の配置は、別体の緻密層 32 を多孔質セラミック粒子 10 に配置してもよいし、多孔質セラミック粒子 10 自体に変質層（緻密層）を形成してもよい。

[0053] 次に、第 2 の方法について図 9 A～図 10 C を参照しながら説明する。この第 2 の方法は、先ず、図 9 A に示すように、対象物 26 上に接着剤 24 を塗布する。図 9 B に示すように、例えば 1 つの面に複数の多孔質セラミック粒子 10 を貼り付けたシート 34 を使って、対象物 26 の接着剤 24 上に複数の多孔質セラミック粒子 10 を転写する。シート 34 に貼り付けられた複数の多孔質セラミック粒子 10 の粒子間距離は $10\ \mu\text{m}$ 以下に設定されている。粒子間距離は $7\ \mu\text{m}$ 以下が好ましく、 $4\ \mu\text{m}$ 以下がさらに好ましい。シート 34 は、粘着力があるシートもしくはフィルムであり、熱、電気等の外

的要因で剥離することが可能なものが好ましい。

[0054] 図9Cに示すように、シート34を加熱して、シート34を剥がすことで、対象物26上に複数の多孔質セラミック粒子10と接着剤24によるバルク体20が設置されることになる。すなわち、1層の粒子集合体100と接着剤24によるバルク体20が設置される。

[0055] さらに、図10Aに示すように、複数の多孔質セラミック粒子10上に、接着剤24を塗布してバルク体20を構成してもよい。この場合、多孔質セラミック粒子10の外表面が接着剤24で覆われるため強度的に強固になるが、図9Cの例よりも熱伝導率が高くなるおそれがある。

[0056] また、図10Bに示すように、図10Aの状態から上層の接着剤24上に、さらに複数の多孔質セラミック粒子10を転写して、バルク体20を構成してもよい。すなわち、2層の粒子集合体100と接着剤24によるバルク体20が構成される。また、図10Cに示すように、図10Bの状態から複数の多孔質セラミック粒子10上に、接着剤24を塗布してバルク体20を構成してもよい。

[0057] もちろん、図9Cの状態を起点として、複数の多孔質セラミック粒子10上への接着剤24の塗布→接着剤24上への複数の多孔質セラミック粒子10の転写を繰り返して、3層以上の粒子集合体100と接着剤24によるバルク体20を構成してもよい。あるいは、図10Aの状態を起点として、接着剤24上への複数の多孔質セラミック粒子10の転写→複数の多孔質セラミック粒子10上への接着剤24の塗布を繰り返して、3層以上の粒子集合体100と接着剤24によるバルク体20を構成してもよい。

[0058] この第2の方法においては、第1の方法と同様に、接着剤24に複数の多孔質セラミック粒子10を均一に分散させることができる。しかも、多孔質セラミック粒子10よりも熱伝導率が高い接着剤24のみの領域が狭くなることから、バルク体20の熱伝導率を低く抑えることができる。特に、第2の方法では、第1の方法と異なり、予めバルク体20とせずに、対象物26上に接着剤24を介して複数の多孔質セラミック粒子10を並べ、その上に

接着剤 24 を塗布するようにしているため、対象物 26 上に複数の多孔質セラミック粒子 10 を均一に並べることができる。しかも、対象物 26 の一部の領域にバルク体 20 を設置したり、複雑な形状に沿ってバルク体 20 を設置することも容易になり、設計の自由度を向上させることができる。また、1つの面に複数の多孔質セラミック粒子 10 を貼り付けたシート 34 を使用するようにしたので、接着剤 24 上に、複数の多孔質セラミック粒子 10 を並べる作業が簡単になり、製造工程の簡略化を図ることができる。

[0059] シート 34 の粘着力 (JIS Z0237) は 1.0 N/10 mm 以上、引張伸度 (JIS K7127) は 0.5 % 以上、厚みは 5 mm 以下であることが好ましい。これにより、以下の効果を奏することができる。

(a) 粘着力が高いほど多孔質セラミック粒子 10 を強固に固定することができる。

(b) 引張伸度が高いほど曲面に追従させることができる。

(c) 厚みが薄いほど曲面に追従させやすい。

[0060] シート 34 の粘着力は、より詳しくは、以下の通りである。すなわち、多孔質セラミック粒子 10 の保持時の粘着力は 1.0 N/10 mm 以上、多孔質セラミック粒子 10 の剥離時の粘着力は 0.1 N/10 mm 以下である。

[0061] シート 34 の粘着力の評価方法は、粘着テープの粘着力の評価方法と同じであり、ステンレス板にシート 34 を貼り付け、シート 34 を 180° 又は 90° に引っ張り、シート 34 がステンレス板から剥がれるときの力を粘着力とする。

[0062] また、シート 34 は基材 (支持体) に接着剤が塗布されて構成されている。この場合、基材の種類としては、以下のように選択することが好ましい。

[0063] すなわち、平面形状の対象物 26 上に多孔質セラミック粒子 10 を転写する場合は、基材としてフィルム、金属箔、紙等を用いることが好ましい。シート 34 の基材が硬めなので、平面形状の対象物 26 に対してシート 34 を皺なく成膜することが可能となる。

[0064] 曲面 (凸面、凹面、凹凸面) 形状の対象物 26 上に多孔質セラミック粒子

10を転写する場合は、基材として布、ゴムシート、発泡体等を用いることが好ましい。シート34の基材が柔らかく伸縮性があるので、シート34を曲面形状に追従して成膜することが可能となる。

[0065] また、このシート34は、熱や水、溶剤、光（紫外光）、マイクロ波を作用させることで、粘着力が弱くなり、容易に剥がすことが可能である。このとき、シート34の粘着力は、対象物26と多孔質セラミック粒子10間に用いた接着剤24よりも弱いことが好ましい。

実施例

[0066] 実施例1～6に係る多孔質セラミック粒子、並びに比較例1及び2に係る多孔質セラミック粒子を使用してそれぞれバルク体20を構成した場合の各バルク体20の熱伝導率を確認した。なお、この実施例では、図1A～図1Cに示す多孔質セラミック粒子10を使用した。

[0067] （実施例1）

多孔質セラミック粒子10として、気孔率が60%、最小長が50 μ m、アスペクト比が10の多孔質セラミック粒子を使用し、上述した第1の方法に準じて実施例1に係るバルク体20を作製した。すなわち、多孔質セラミック粒子、水及び接着剤成分（熱伝導率2W/mK）を含むスラリーを調製した後、直径20mmの型に流し込み、乾燥後、焼成、固化して実施例1に係るバルク体20を作製した。

[0068] <多孔質セラミック粒子の作製>

実施例1において、多孔質セラミック粒子10を以下のようにして作製した。すなわち、先ず、イットリア部分安定化ジルコニア粉末に、造孔材（ラテックス粒子あるいはメラミン樹脂粒子）、バインダーとしてのポリビニルブチラル樹脂（PVB）、可塑剤としてのDOP（フタル酸ジオクチル）、溶剤としてのキシレン及び1-ブタノールを加え、ボールミルにて30時間混合し、グリーンシート成形用スラリーを調製した。このスラリーに、真空脱泡処理を施すことにより、粘度を4000cpsに調整した後、ドクターブレード装置によって焼成後の厚さが最小長となるように成形体（グリー

ンシート)を作製した。その後、この成形体を1100℃、1時間にて焼成、レーザーで加工することで、多孔質セラミック粒子10を得た。また、多孔質セラミック粒子10の一主面12aを鏡面加工し、表面粗さRaを1.0μmとした。

[0069] (実施例2)

多孔質セラミック粒子10として、気孔率が60%、最小長が100μm、アスペクト比が8の多孔質セラミック粒子を使用した点以外は、実施例1と同様にして実施例2に係るバルク体20を作製した。

[0070] (実施例3)

多孔質セラミック粒子10として、気孔率が60%、最小長が400μm、アスペクト比が3の多孔質セラミック粒子を使用した点以外は、実施例1と同様にして実施例3に係るバルク体20を作製した。

[0071] (実施例4)

多孔質セラミック粒子10として、気孔率が30%、最小長が400μm、アスペクト比が3の多孔質セラミック粒子を使用した点以外は、実施例1と同様にして実施例4に係るバルク体20を作製した。

[0072] (実施例5)

多孔質セラミック粒子10として、気孔率が60%、最小長が50μm、アスペクト比が10の多孔質セラミック粒子を使用し、上述した第2の方法に準じて実施例5に係るバルク体20を作製した。すなわち、複数の多孔質セラミック粒子10が1つの面に貼り付けられたシート34を使用した。そして、対象物26に接着剤24(熱伝導率2W/mK)を塗布した後、上記シート34を使って、対象物26の接着剤24上に複数の多孔質セラミック粒子10を転写し、熱をかけることでシート34を剥がした。その上から接着剤24を塗布した後、接着剤24を固化した。その後、シート34による多孔質セラミック粒子10の転写、接着剤24の塗布及び固化を繰り返して、バルク体20となる部分を厚くした後に、対象物26から剥がすことでバルク体20を作製した。ここで、対象物26からバルク体20を剥がしたの

は、バルク体 20 の熱伝導率を測定、評価するためである。

[0073] (実施例 6)

多孔質セラミック粒子 10 として、気孔率が 60%、最小長が 100 μm 、アスペクト比が 8 の多孔質セラミック粒子を使用した点以外は、実施例 5 と同様にして実施例 6 に係るバルク体 20 を作製した。

[0074] (比較例 1)

多孔質セラミック粒子 10 として、気孔率が 70%、最小長が 0.2 μm 、アスペクト比が 2 の多孔質セラミック粒子を使用した点以外は、実施例 1 と同様にして比較例 1 に係るバルク体 20 を作製した。

[0075] (比較例 2)

多孔質セラミック粒子 10 として、気孔率が 60%、最小長が 10 μm 、アスペクト比が 5 の多孔質セラミック粒子を使用した点以外は、実施例 1 と同様にして比較例 2 に係るバルク体 20 を作製した。

[0076] <気孔率の計測>

多孔質セラミック粒子 10 を無作為に 10 個選んで樹脂に埋込み、電子顕微鏡にて複合粒子を観察することができる観察箇所まで研磨して、樹脂埋め研磨面とした。そして、この樹脂埋め研磨面に対して電子顕微鏡観察（画像解析）を行った。画像解析より、10 個の多孔質セラミック粒子 10 の気孔率を算出し、10 個分の多孔質セラミック粒子 10 の平均値を気孔率とした。

[0077] <平均気孔径の計測>

多孔質セラミック粒子 10 の平均気孔径を、株式会社島津製作所の自動ポロシメータ（商品名「オートポア 9200」）を使用して計測した。

[0078] <バルク体の熱伝導率測定方法及び評価基準>

まず、水銀ポロシメータでバルク体の密度を測定した。次に、DSC (Differential Scanning Calorimeter) 法でバルク体 20 の比熱を測定した。次に、レーザーフラッシュ法でバルク体 20 の熱拡散率を測定した。その後、熱拡散率 $\times$ 比熱 $\times$ 密度 = 熱伝導率の関

係式から、バルク体20の熱伝導率を算出し、以下の評価基準に基づいて、実施例1～6、比較例1及び2を評価した。

A : 0.9 W/mK以下

B : 1.0 W/mK以上1.4 W/mK以下

C : 1.5 W/mK以上

[0079] <評価結果>

実施例1～6、比較例1及び2の内訳及び評価結果を下記表1に示す。

[0080] [表1]

	多孔質セラミック粒子			バルク体	評価
	気孔率 (%)	最小長 (μm)	アスペクト 比	熱伝導率 (W/mK)	
実施例1	60	50	10	0.8	A
実施例2	60	100	8	0.4	A
実施例3	60	400	3	0.3	A
実施例4	30	400	3	1.0	B
実施例5	60	50	10	0.6	A
実施例6	60	100	8	0.3	A
比較例1	70	0.2	2	1.8	C
比較例2	60	10	5	1.6	C

[0081] 表1から、比較例1及び2は、熱伝導率が1.8 W/mK及び1.6 W/mKと高かった。これは、比較例1及び2に係るバルク体20は、接着剤24のみの領域が多く存在したことから、熱伝導率が高くなったものと考えられる。

[0082] 一方、実施例1～6のうち、実施例4以外は、バルク体20の熱伝導率が0.9 W/mK以下で、評価がAであった。実施例4についても、評価はBではあるが、熱伝導率が1.0 W/mKであり、限りなくAに近い評価であった。実施例1及び5は、共に同じアスペクト比10であるが、第2の方法による実施例5の方が熱伝導率が低かった。これは、実施例2及び6についても同様であった。

[0083] 実施例 1 ～ 6 は、比較例 1 及び 2 と比して、接着剤 2 4 に複数の多孔質セラミック粒子 1 0 が均一に分散し、熱伝導率が高い接着剤 2 4 のみの領域 3 0 が狭くなったため、バルク体 2 0 の熱伝導率を低く抑えることができたものと考えられる。特に、第 2 の方法を採用した実施例 5 及び 6 においてその効果が顕著であった。

[0084] なお、本発明に係る多孔質セラミック粒子は、上述の実施の形態に限らず、本発明の要旨を逸脱することなく、種々の構成を採り得ることはもちろんである。

請求の範囲

- [請求項1] 気孔率が20～99％である多孔質セラミック粒子であって、
一主面（12a）が鏡面であり、アスペクト比が3以上であることを特徴とする多孔質セラミック粒子。
- [請求項2] 請求項1記載の多孔質セラミック粒子において、
前記一主面（12a）と向かい合った他主面（12b）も鏡面であることを特徴とする多孔質セラミック粒子。
- [請求項3] 請求項1又は2記載の多孔質セラミック粒子において、
複数の側面（14）を有し、
前記側面（14）が粗面であることを特徴とする多孔質セラミック粒子。
- [請求項4] 請求項1～3のいずれか1項に記載の多孔質セラミック粒子において、
外形の最小長（Lb）が50～500 μ mであることを特徴とする多孔質セラミック粒子。
- [請求項5] 請求項1～4のいずれか1項に記載の多孔質セラミック粒子において、
平均気孔径が500nm以下であることを特徴とする多孔質セラミック粒子。
- [請求項6] 請求項1～5のいずれか1項に記載の多孔質セラミック粒子において、
熱伝導率が1W/mK以下であることを特徴とする多孔質セラミック粒子。
- [請求項7] 請求項1～6のいずれか1項に記載の多孔質セラミック粒子において、
微粒子が三次元に繋がった構造を有し、
前記微粒子の粒径が1nm～5 μ mであることを特徴とする多孔質セラミック粒子。

[請求項8] 請求項1～7のいずれか1項に記載の多孔質セラミック粒子において、

粒子間距離が10 μ m以下であることを特徴とする多孔質セラミック粒子。

[請求項9] 請求項1～8のいずれか1項に記載の多孔質セラミック粒子において、

シート（34）の上に配置されたことを特徴とする多孔質セラミック粒子。

[図1]

FIG. 1A

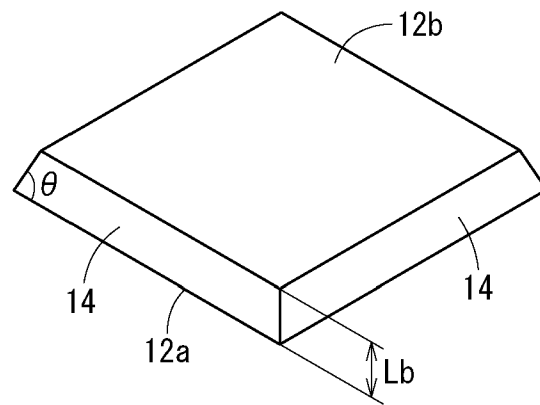
10

FIG. 1B

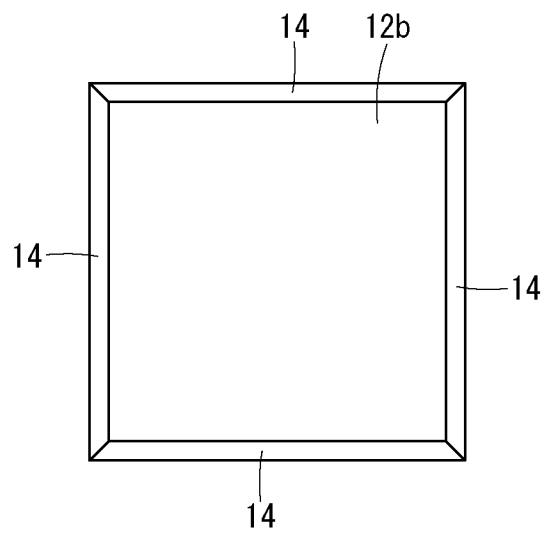
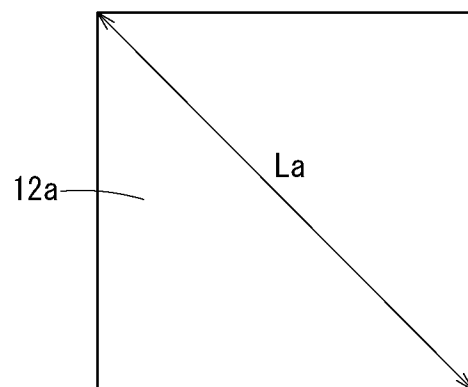
10

FIG. 1C

10

[図2]

FIG. 2A

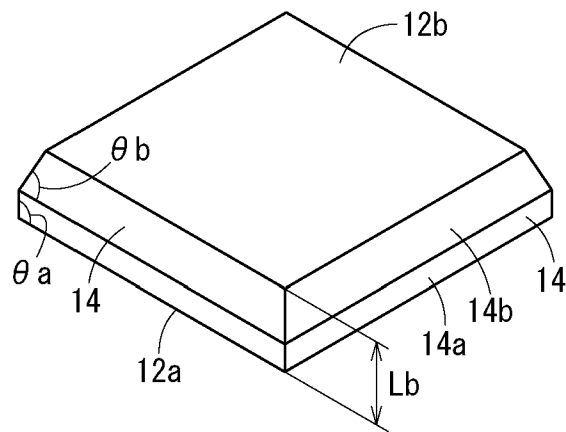
10a

FIG. 2B

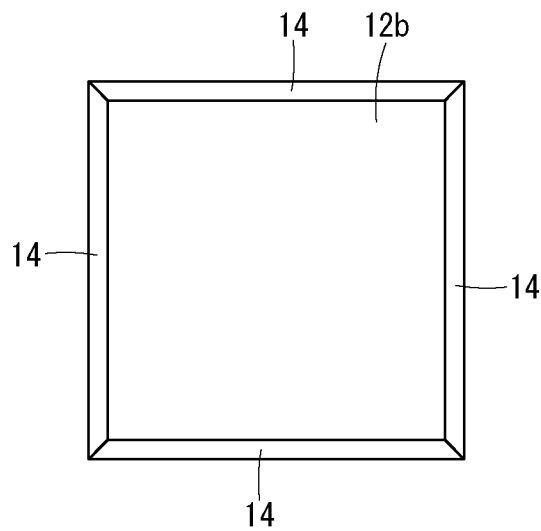
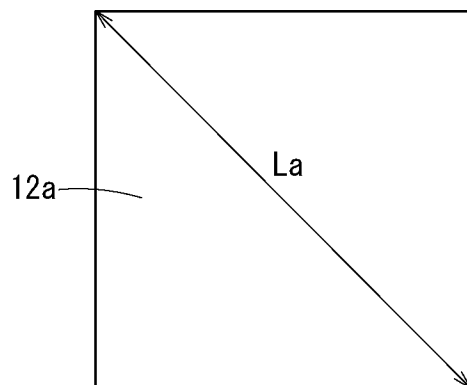
10a

FIG. 2C

10a

[図3]

FIG. 3A

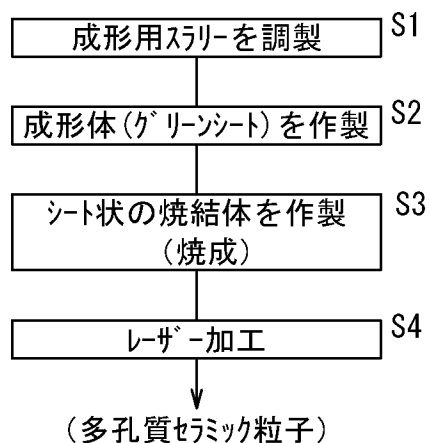
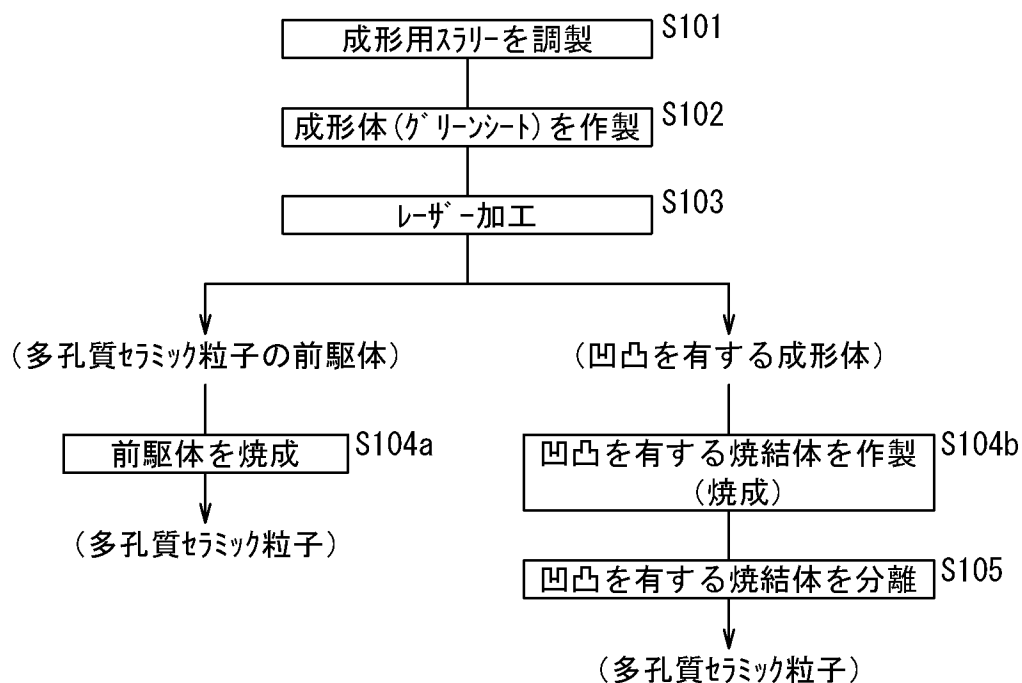


FIG. 3B



[図4]

FIG. 4A

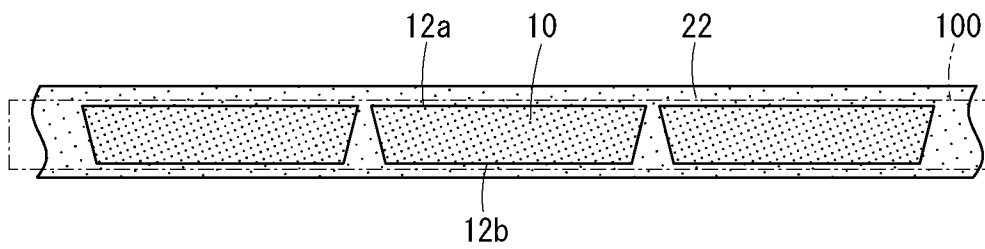


FIG. 4B

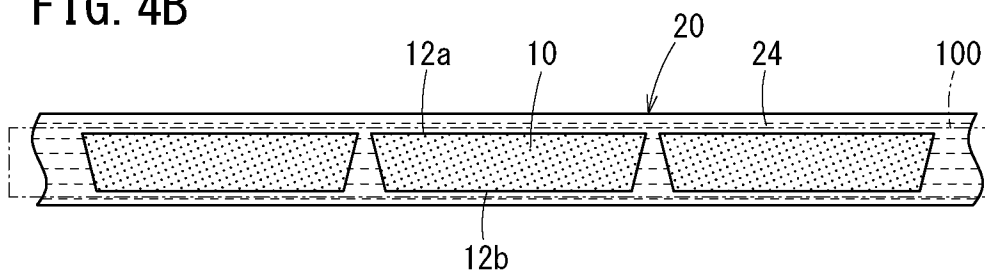
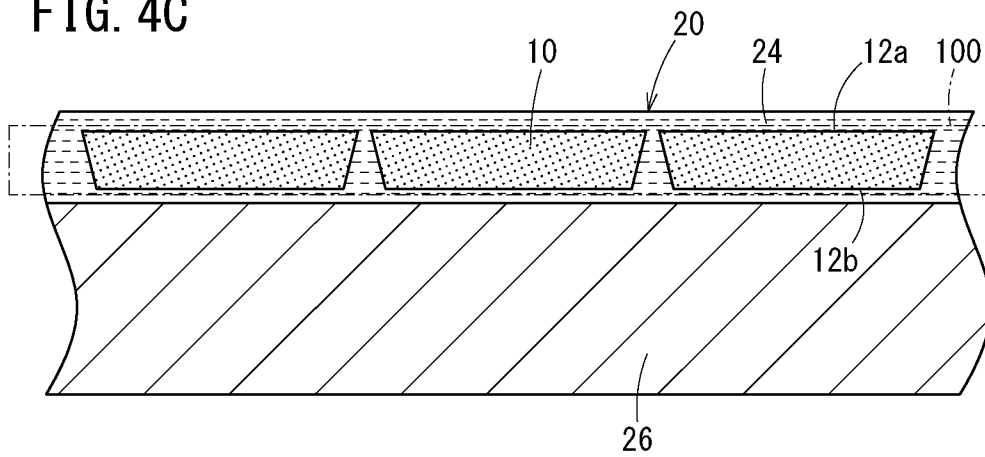


FIG. 4C



[図5]

FIG. 5A

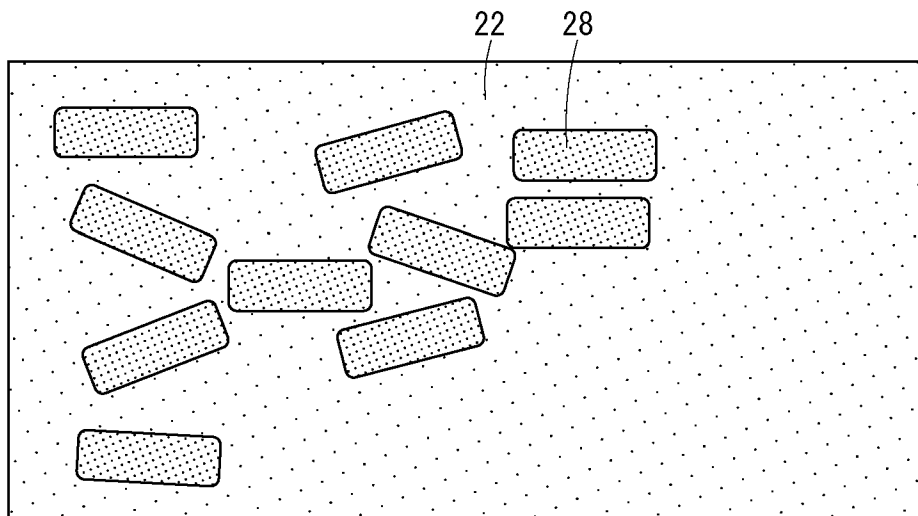
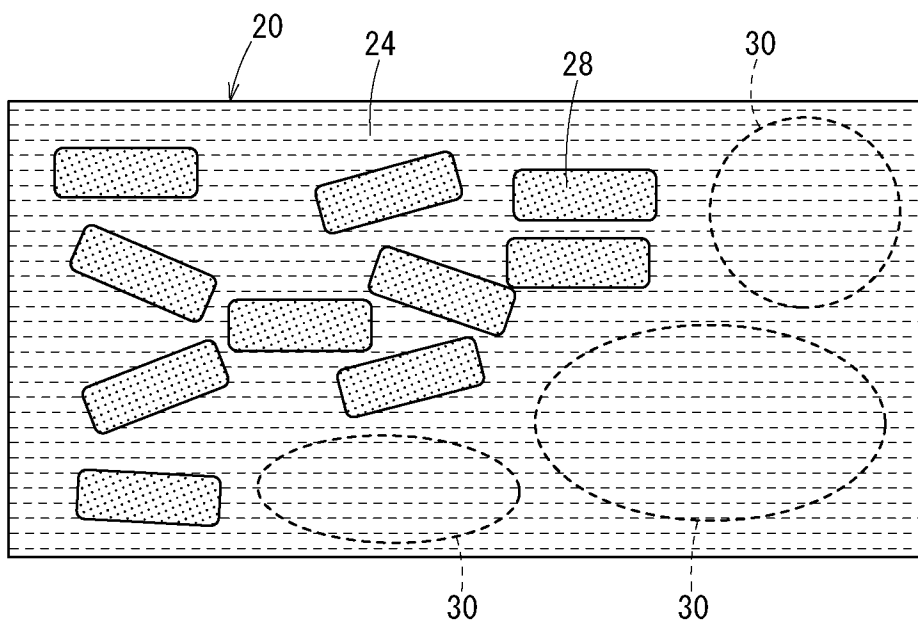


FIG. 5B



[図6]

FIG. 6A

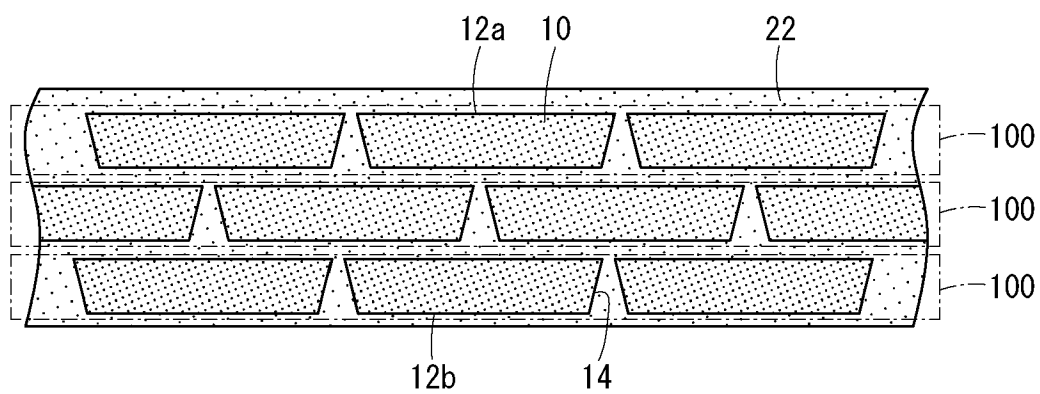


FIG. 6B

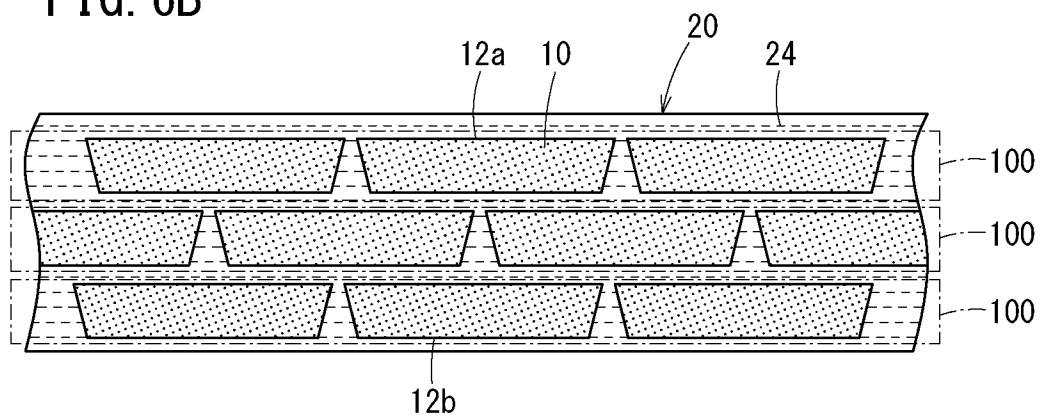
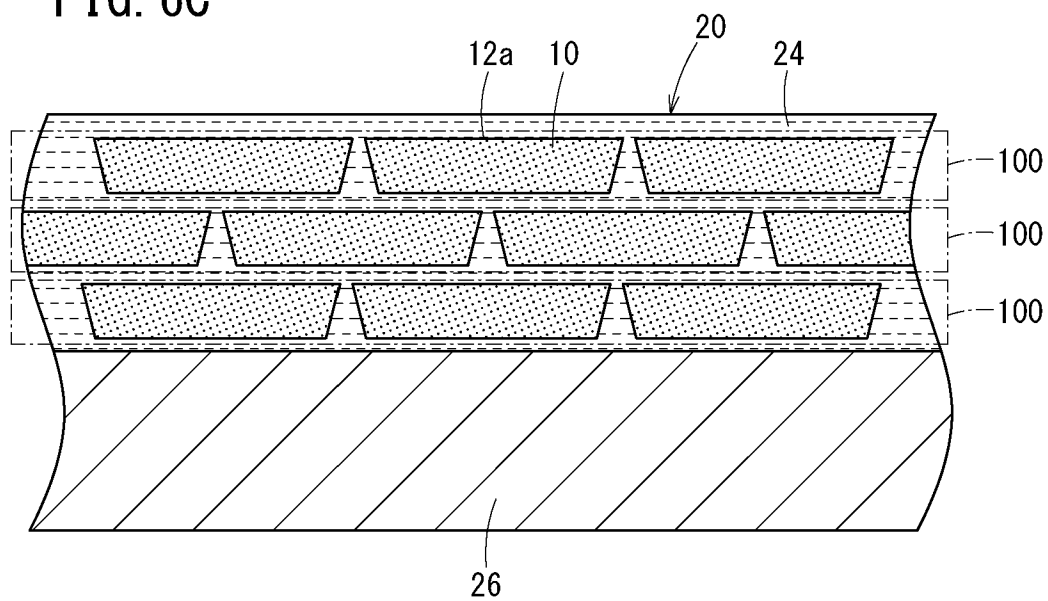
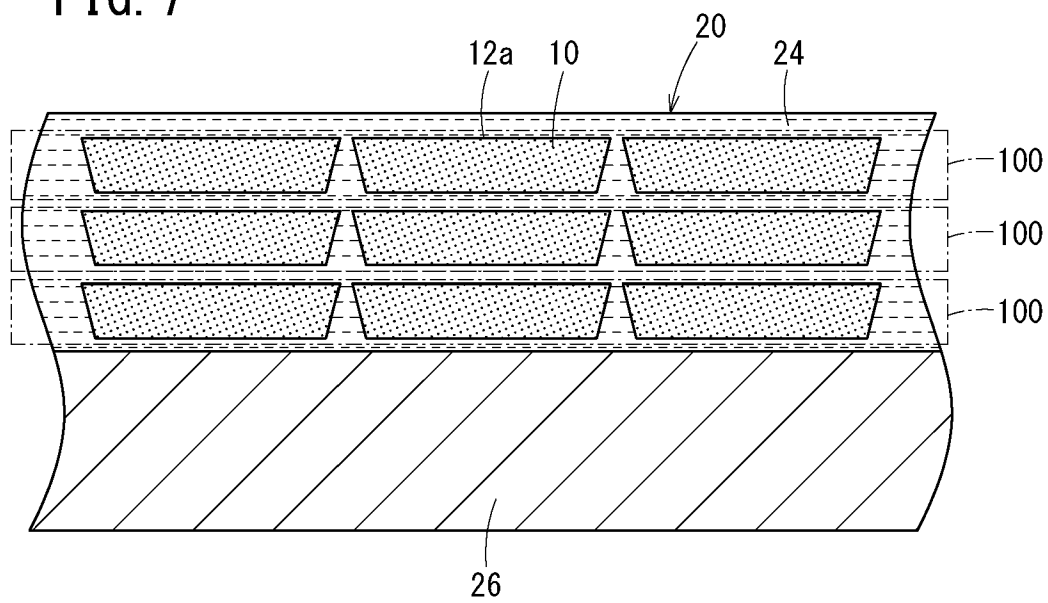


FIG. 6C



[図7]

FIG. 7



[図8]

FIG. 8A

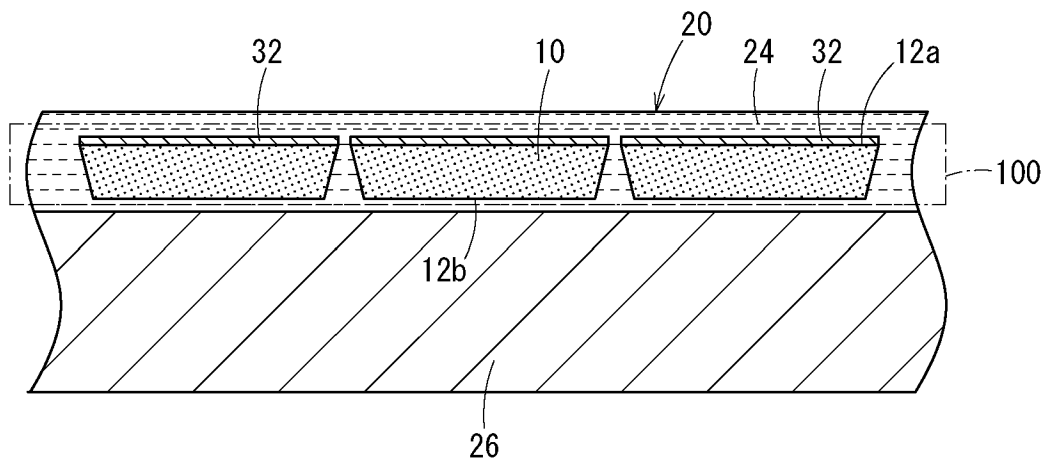
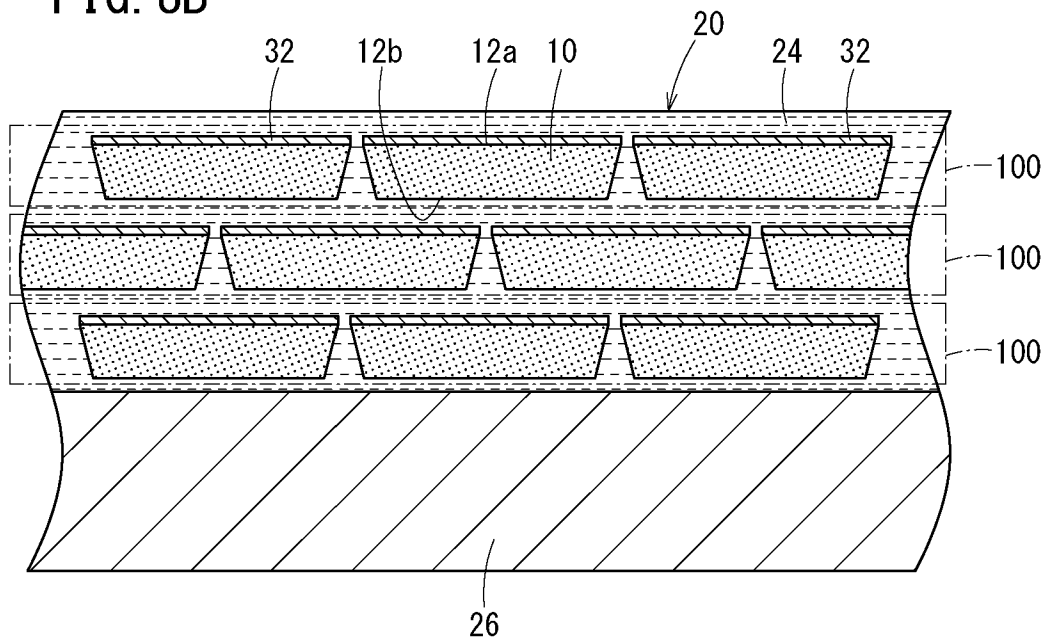


FIG. 8B



[図9]

FIG. 9A

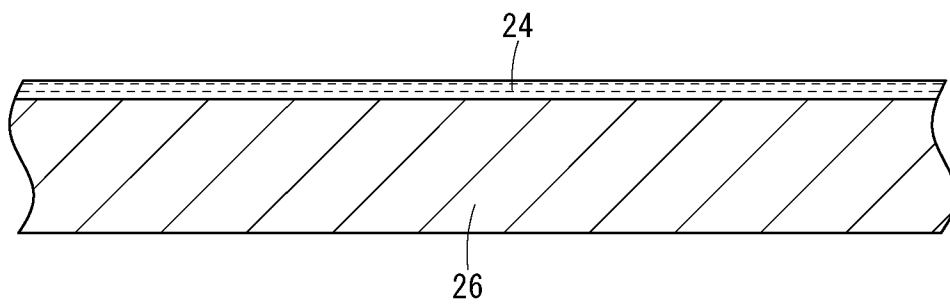


FIG. 9B

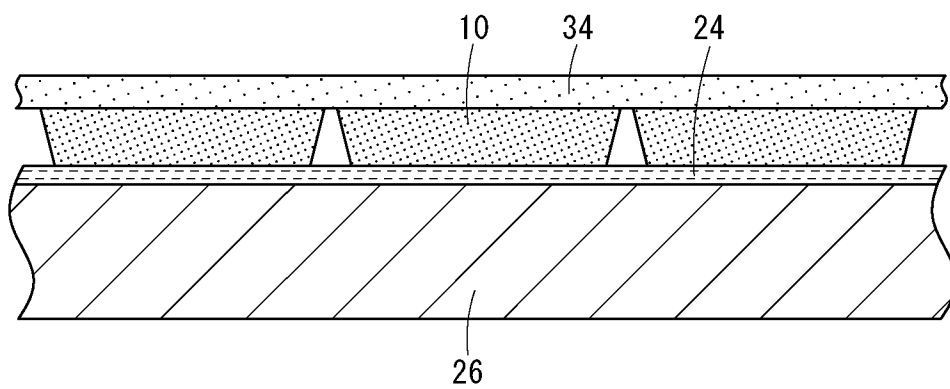
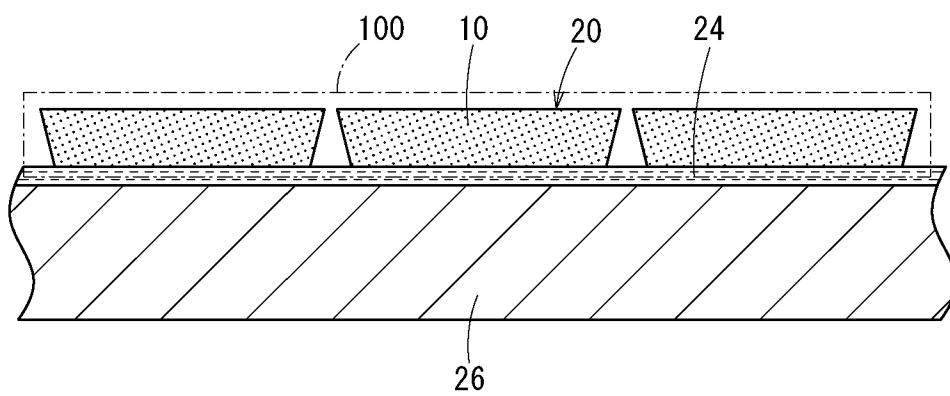


FIG. 9C



[図10]

FIG. 10A

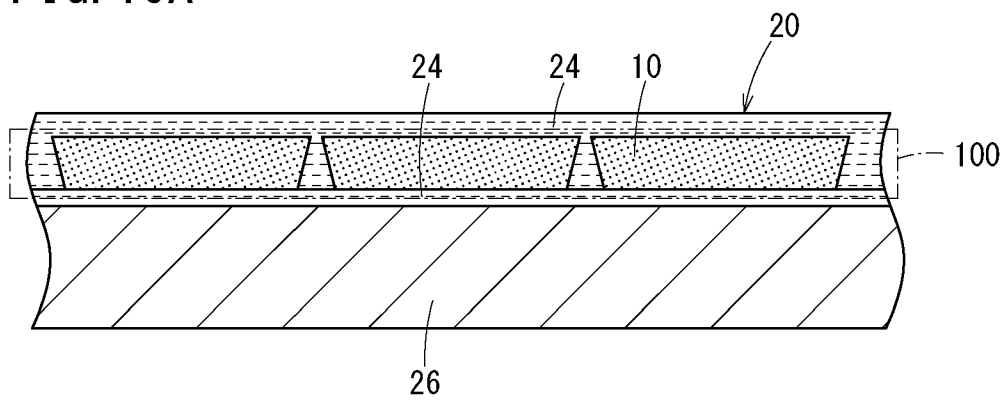


FIG. 10B

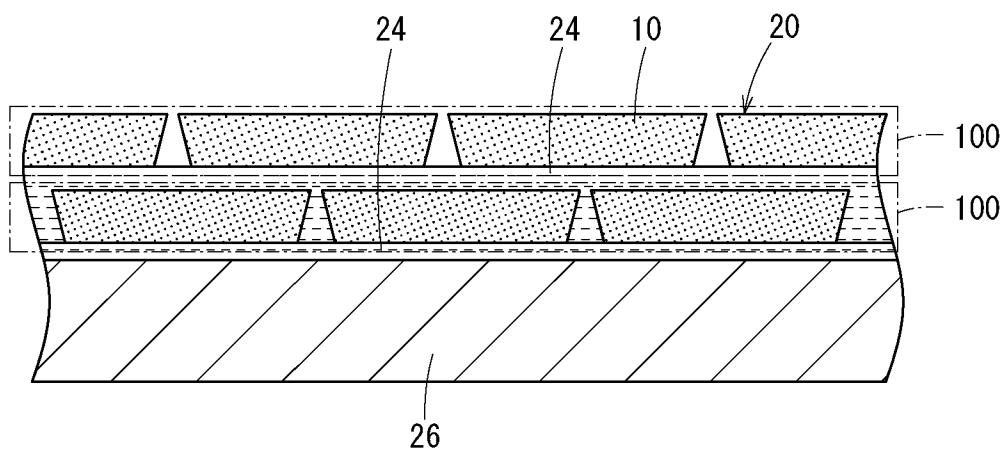
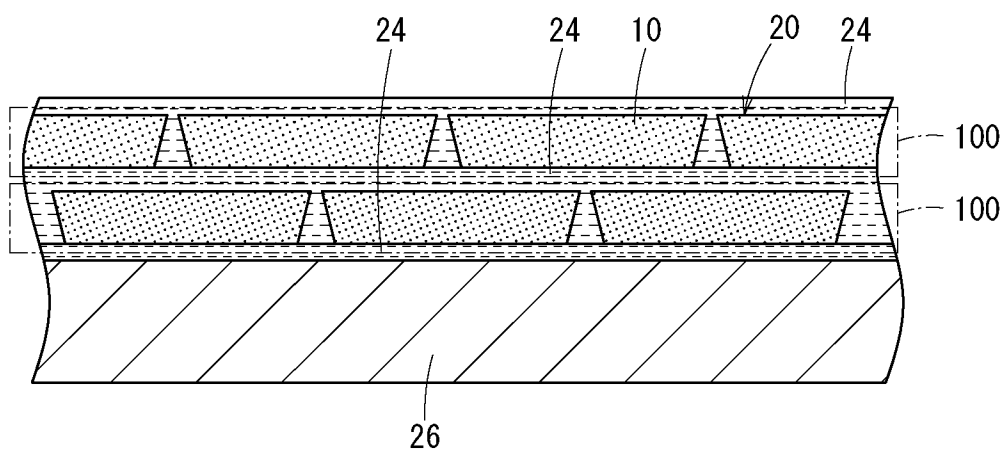


FIG. 10C



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/066504

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C04B38/00(2006.01)i, C01G25/02(2006.01)i, F16L59/02(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)

C04B38/00, C01G25/02, F16L59/02

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	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

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

JSTPlus (JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2015/087888 A1 (NGK Insulators, Ltd.), 18 June 2015 (18.06.2015), claims (Family: none)	1-9
A	JP 2012-504094 A (Saint-Gobain Centre de Recherches et d'Etudes Europeen), 16 February 2012 (16.02.2012), claims & WO 2010/038204 A1 & EP 2344427 A claims & FR 2936515 A & CN 102227390 A	1-9
A	JP 59-152254 A (Hitachi Zosen Corp.), 30 August 1984 (30.08.1984), 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

08 July 2016 (08.07.16)

Date of mailing of the international search report

19 July 2016 (19.07.16)

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/JP2016/066504

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2006-521463 A (Ciba Specialty Chemicals Holding Inc.), 21 September 2006 (21.09.2006), claims & US 2005/0252410 A1 claims & WO 2003/106569 A1 & EP 1517964 A & CA 2489874 A & AU 2003250247 A & MX PA04012887 A & AU 2004205360 A & RU 2005101072 A & KR 10-2005-0122197 A & CN 1633477 A	1-9
A	JP 2009-227555 A (NGK Insulators, Ltd.), 08 October 2009 (08.10.2009), claims (Family: none)	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. C04B38/00(2006.01)i, C01G25/02(2006.01)i, F16L59/02(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 (I P C))

Int.Cl. C04B38/00, C01G25/02, F16L59/02

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	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 6 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 6 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 6 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 (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
A	WO 2015/087888 A1 (日本碍子株式会社) 2015.06.18, 請求の範囲 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2012-504094 A (サンーゴベン・セントル・ドウ・レシエルシェ・ エ・デチュード・ユーロペアン) 2012.02.16, 特許請求の範囲 & WO 2010/038204 A1 & EP 2344427 A:claims & FR 2936515 A & CN 102227390 A	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

0 8 . 0 7 . 2 0 1 6

国際調査報告の発送日

1 9 . 0 7 . 2 0 1 6

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)

佐溝 茂良

4 T

5 2 7 5

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 6 5

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリ*	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
A	JP 59-152254 A (日立造船株式会社) 1984. 08. 30, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2006-521463 A (チバ スペシャルティ ケミカルズ ホールデ ィング インコーポレーテッド) 2006. 09. 21, 特許請求の範囲 & US 2005/0252410 A1:claims & WO 2003/106569 A1 & EP 1517964 A & CA 2489874 A & AU 2003250247 A & MX PA04012887 A & AU 2004205360 A & RU 2005101072 A & KR 10-2005-0122197 A & CN 1633477 A	1-9
A	JP 2009-227555 A (日本碍子株式会社) 2009. 10. 08, 特許請求の範 囲 (ファミリーなし)	1-9