



(12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 109913706 A

(43)申请公布日 2019.06.21

(21)申请号 201811380086.X

(22)申请日 2018.11.20

(71)申请人 江西宝航新材料有限公司

地址 330200 江西省南昌市南昌县高新区  
天祥大道佳海产业园28栋3楼

(72)发明人 胡万谦 李振民 孟庆宇 王联波  
刘干 赵春禄

(51)Int.Cl.

*G22C 21/00*(2006.01)

*G22C 21/14*(2006.01)

*G22C 21/16*(2006.01)

*G22C 21/18*(2006.01)

*G22C 32/00*(2006.01)

*G22C 1/05*(2006.01)

*G22C 1/10*(2006.01)

权利要求书2页 说明书6页

(54)发明名称

一种热压制备铝碳化硅复合材料的方法

(57)摘要

本发明涉及一种真空热压制备铝碳化硅复合材料的方法,所述复合材料由下述配比的物质组成:体积分数为10~40%的碳化硅,余量为铝合金。所述的复合材料采用真空热压法制备,通过配料、烘粉、混粉、真空热压成形制得。本发明的复合材料具有密度小、重量轻、高硬度、高抗弯强度、高的耐摩擦性能、高的疲劳强度等优点,使其在结构件领域具有广阔的应用前景。

1. 一种铝碳化硅复合材料,其特征在于,所述复合材料由下述配比的物质组成:10~40vol%的碳化硅,余量为铝合金。

2. 根据权利要求1所述的铝碳化硅复合材料,所述复合材料中碳化硅的含量为10~40vol %,优选为10~30 vol %,更优选为15~20 vol %。

3. 根据权利要求1或2所述的铝碳化硅复合材料,所述复合材料中碳化硅中SiC 的含量不低于97%,优选含量不低于98%,更优选不低于99%。

4. 根据权利要求1-3任一项所述的铝碳化硅复合材料,所述复合材料中碳化硅的组成为, SiC 的含量为 $>99\%$ , C的含量为 $<0.2\%$ , Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>的含量为 $<0.2\%$ 。

5. 根据权利要求1-4任一项所述的铝碳化硅复合材料,所述复合材料中碳化硅为粉状,优选其中值粒径为3~30 $\mu\text{m}$ ,更优选为8~25 $\mu\text{m}$ ,还优选为10~20 $\mu\text{m}$ 。

6. 根据权利要求1-5任一项所述的铝碳化硅复合材料,所述复合材料中铝合金为粉状,优选其中值粒径为5~90 $\mu\text{m}$ ,更优选为10~80 $\mu\text{m}$ ,还优选为20~70 $\mu\text{m}$ ,另优选为30~60 $\mu\text{m}$ 。

7. 根据权利要求1-6任一项所述的铝碳化硅复合材料,所述复合材料中铝合金的组成(质量分数)为Cu 3.2~4.4%, Mg 1.0~1.6%, Zn  $\leq 0.1\%$ , Fe  $\leq 0.05\%$ , Si  $\leq 0.25\%$ , O  $\leq 0.1\%$ ,其余元素单个含量 $\leq 0.05\%$ ,其余元素合计总含量 $\leq 0.15\%$ 。

8. 一种权利要求1-7任一项所述的铝碳化硅复合材料的制备方法,所述复合材料由下述配比的物质组成:10~40vol%的碳化硅,余量为铝合金,所述复合材料采用粉末冶金中的真空热压法,经配料、烘粉、混粉、真空热压制得。

9. 根据权利要求8所述的制备方法,所述烘粉处理的烘粉对象为铝粉和碳化硅,碳化硅的所述烘粉温度为120~200 $^{\circ}\text{C}$ ,优选为150~180 $^{\circ}\text{C}$ ;铝粉的所述烘粉温度为40~80 $^{\circ}\text{C}$ ,优选为50~60 $^{\circ}\text{C}$ 。

10. 根据权利要求8所述的制备方法,所述混粉处理中,将铝合金粉和碳化硅粉均匀混合的转速为75~500rpm,更优选为100~400rpm,还优选为200~400rpm。

11. 根据权利要求8-10所述的制备方法,所述混粉处理过程中通氮气进行保护,氮气压为0.1~0.5MPa,更优选为0.1~0.4MPa,还优选为0.15~0.35MPa。

12. 根据权利要求8所述的制备方法,所述真空热压成形处理中的处理温度为400~700 $^{\circ}\text{C}$ ,优选为450~680 $^{\circ}\text{C}$ ,更优选为450~650 $^{\circ}\text{C}$ ,还优选为500~650 $^{\circ}\text{C}$ 。

13. 根据权利要求8所述的制备方法,所述真空热压成形处理中的处理压力为20~80 t,优选为30~60t,还优选为35~55t。

14. 根据权利要求8所述的制备方法,所述真空热压成形处理中的保温保压时间为1~5h,优选为2~4h。

15. 根据权利要求8-14任一项所述的制备方法,所述真空热压中,将制得的铝碳化硅粉体装入不锈钢模具中,进行真空热压处理,其中,所述的真空热压处理包括下述步骤:

- 1) 将模具转移至真空热压机,并开始抽真空;
- 2) 真空度达到要求后,升温至400~700 $^{\circ}\text{C}$ ,待真空度稳定后开始加压;
- 3) 提高压力至20~80t,保温保压保温1~5小时;
- 4) 随炉冷却至室温,取出模具。

16. 根据权利要求8-15任一项所述的制备方法,真空热压使用的模具底座的上表面车出了对称的8道排气槽,宽5 mm,深1 mm,底座与粉体、压头与粉体不直接接触,而是覆盖一

层500目不锈钢筛网。

17. 权利要求1-16所述的铝碳化硅复合材料用于制作结构件或其制品中的应用。

18. 根据权利要求17所述的应用,所述结构件选自抗热形变结构件、耐磨结构。

## 一种热压制备铝碳化硅复合材料的方法

### 技术领域

[0001] 本发明涉及一种热压法制备的铝碳化硅复合材料及其应用。

### 背景技术

[0002] 铝碳化硅是一种金属基复合材料,不仅具有铝基体的导热率高、韧性好的特点,还融合了碳化硅陶瓷的优势,具有低热膨胀系数、高硬度、高强度和良好的耐摩擦性能等优点,而且材料密度小、重量轻,具有良好的抗疲劳强度,适用于一些具有特殊要求的结构件或用于特殊工作环境的结构件等领域。

[0003] 过去的这几十年为了强化复合材料的结构和性能,国际上已经开发出一系列颗粒增强铝基复合材料的制备方法,根据制备过程中基体的温度可将制备工艺分为液相工艺、固相工艺和液固两相工艺。具有代表性、应用较广的制备方法包括:搅拌铸造法、真空压力浸渗、挤压铸造法等等,这些方法有各自的优点,但同时缺点也非常明显,如润湿性差,增强相容易团聚和聚集,制备过程中可能产生夹杂物混入,只能制备较低体积分数的复合材料。

[0004] 相比于以上几种方法,粉末冶金法是属于固相制备的方法,直接以粉末为原材料进行复合材料的成形,这样就可以更加方便地改变复合材料中增强相的占比,成分比例准确且控制方便;而且粉末冶金法所用的烧结温度较低,可以有效减少基体与增强相的界面反应,因此制备所得的复合材料具有优秀的力学性能,而且粉末冶金的方法也确保了制得的复合材料中增强相分布均匀、晶粒较细。

[0005] CN105924178A公开了一种压力渗透方法制备铝碳化硅复合材料的方法,将粉料填充至模具中,在10Mpa的压力下成型,形成近成型素坯。将带素坯的模具包套封装后烧结,素坯形成预制件。将装有预制件的模具包套封装浸铝,制得铝碳化硅复合材料。该方法的制备原料中不添加石蜡微乳液,并减少磷酸二氢铝的量,素坯的空隙高,制得复合材料的铝体积分数大,提升了热导率,并简化了工艺路线,节省了成本,适合规模化生产。但该方法存在碳化硅颗粒聚集、增强相分布不均、材料存在各向异性,进而影响其高端运用性能。

[0006] CN104264000A公开了一种粉末冶金法制备石墨烯增强铝碳化硅电子封装复合材料的方法,包括下述步骤:1)将增强体颗粒用强酸溶液浸泡,再用去离子水清洗至中性,去除表面杂质,烘干,制得活化处理的增强体颗粒;2)将活化处理的增强体颗粒加入到石墨烯分散液中,通过机械搅拌或超声分散,在其表面包覆石墨烯纳米片,制得石墨烯改性的增强体颗粒;3)将石墨烯改性的增强体颗粒与铝基体粉末混合,通过压坯和烧结,制得石墨烯改性的高导热铝基复合材料。该方法制得的复合材料表面富有光泽,具有各项同性、气孔缺陷少、增强相体积分数易于变化、易于调控复合材料的性能等优点。但需用强酸,存在安全隐患和环保问题。

[0007] CN105803236A公开了一种非晶合金增强的铝基复合材料及其制备方法,该复合材料以铝基非晶合金为增强体,以铝合金为基体,铝基非晶合金均匀的分散在铝合金中。本发明操作简单、制备工艺温度低,通过简单的热压烧结工艺就可以制得复合材料。铝基非晶合金与铝合金基体界面结合强度高,界面状态好,铝基非晶合金颗粒在基体中分布均匀,不易

团聚,所得复合材料致密度以及力学性能良好,具有高强度、高硬度的优点。

### 发明内容

[0008] 本发明的目的在于提供一种热压制备铝碳化硅复合材料的方法,其特征在于,所述复合材料由下述配比的物质组成:10~40vol%的碳化硅,余量为铝合金。

[0009] 本发明的优选技术方案中,所述碳化硅的含量为10-40%,优选为10-30%,更优选为15-20%。

[0010] 本发明的优选技术方案中,所述碳化硅中SiC的含量不低于97%,优选含量不低于98%,更优选不低于99%。

[0011] 本发明的优选技术方案中,所述碳化硅的组成为, SiC的含量为>99%, C的含量为<0.2%, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>的含量为<0.2%。

[0012] 本发明的优选技术方案中,所述碳化硅为粉状,优选其中值粒径为3~30μm,更优选为8-25μm,还优选为10-20μm。

[0013] 本发明的优选技术方案中,所述铝合金为粉状,优选其中值粒径为5~90μm,更优选为10-80μm,还优选为20-70μm,另优选为30-60μm。

[0014] 本发明的优选技术方案中,所述铝合金的组成(质量分数)为Cu 3.2~4.4%, Mg 1.0~1.6%, Zn≤0.1%, Fe≤0.05%, Si≤0.25%, O≤0.1%, 其余元素单个含量≤0.05%, 其余元素合计总含量≤0.15%。

[0015] 本发明的另一目的在于提供一种热压法制备的铝碳化硅复合材料,其特征在于,所述复合材料由下述配比的物质组成:10~40vol%的碳化硅,余量为铝合金,再经配料、烘粉、混粉、真空热压成形处理制得。

[0016] 本发明的优选技术方案中,所述碳化硅的含量为10-40vol%,优选为15-30vol%,更优选为15-25vol%。

[0017] 本发明的优选技术方案中,所述碳化硅中SiC的含量不低于97%,优选含量不低于98%,更优选不低于99%。

[0018] 本发明的优选技术方案中,所述碳化硅的组成为, SiC的含量为99.21%, C的含量为0.11%, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>的含量为0.13%。

[0019] 本发明的优选技术方案中,所述碳化硅为粉状,优选其中值粒径为3~40μm,更优选为8-30μm,还优选为15-20μm。

[0020] 本发明的优选技术方案中,所述铝合金为粉状,优选其中值粒径为5~90μm,更优选为15-80μm,还优选为25-70μm,还优选为35-60μm。

[0021] 本发明的优选技术方案中,所述铝合金的组成为Cu 3.2~4.4%, Mg 1.0~1.6%, Zn≤0.1%, Fe≤0.05%, Si≤0.25%, O≤0.1%, 其余元素单个含量≤0.05%, 其余元素合计总含量≤0.15%。

[0022] 本发明的优选技术方案中,所述配料处理即分别称取或量取所需量的碳化硅、铝合金。

[0023] 本发明的优选技术方案中,将铝合金粉和碳化硅粉高速均匀混合的转数为75-500rpm,更优选为100-400rpm,还优选为200-400rpm。

[0024] 本发明的优选技术方案中,混粉处理过程中通氮气进行保护,氮气压力为0.1-

0.5MPa,更优选为0.1-0.4MPa,还优选为0.15-0.35MPa。混粉结束后继续通气直至温度降至室内温度,出粉,装袋备用。

[0025] 本发明的优选技术方案中,烘粉对象为铝粉和碳化硅,碳化硅的所述烘粉温度为120-200℃,优选为150-180℃;铝粉的所述烘粉温度为40~80℃,优选为50~60℃。

[0026] 本发明的优选技术方案中,所述真空热压成形处理中的处理温度为400-700℃,优选为450-680℃,更优选为450-650℃,还优选为500-650℃。

[0027] 本发明的优选技术方案中,所述真空热压成形处理中的处理压力为20-80t,优选为30-60t,还优选为35-55t。

[0028] 本发明的优选技术方案中,所述真空热压成形处理中保温1-5h,优选为2-4h。

[0029] 本发明采用真空热压法制备铝碳化硅复合材料,先对碳化硅进行高温烘干处理,高速均匀混合碳化硅粉与铝合金粉,制得铝碳化硅混合粉;再经真空热压成形处理后,制得铝碳化硅的复合材料坯锭。

[0030] 本发明的目的在于提供本发明的铝基复合材料用于制作结构件或其制品中的应用。

[0031] 本发明的优选技术方案中,所述结构件选自抗热形变结构件、耐磨结构件、轻量化航空航天结构件、机器人结构件中的任一种。

[0032] 为了清楚地表述本发明的保护范围,本发明对下述术语进行如下界定。

[0033] 中值粒径以激光粒度仪测量粉体粒度D50值来衡量,表示粉末中在中值粒径的粉末数量占粉末总量的50%。

[0034] Rpm(round per minute),表示转数/分钟。

[0035] 本发明铝碳化硅复合材料的抗拉强度、屈服强度、伸长率等参照GB/T228-2002标准规定进行检测。

[0036] 与现有技术相比,本发明采用真空热压法制备铝碳化硅复合材料,高速均匀混合铝合金粉与经过高温烘干的碳化硅粉,制得铝碳化硅混合粉;复合粉经真空热压制得铝碳化硅的复合材料坯锭。该方法通过混合粉末及真空热压手段直接成形,不仅解决了增强相偏聚的问题,使得碳化硅在复合材料的基体中得到较为均匀的分布,且简化了生产工艺,具有操作简便等优点。

[0037] 采用本发明的另一个显著优势是以金属铝为基体,碳化硅为颗粒增强相,在提高材料强度的基础上而不破坏影响其金属特性(如延展性)制得的复合材料具有高塑性、高韧性、密度小、重量轻、高硬度、高抗弯强度等优点,并具有优良的强度、硬度、模量、耐磨耐腐蚀性能、抗疲劳强度,且其表面状况优良,改善了材料的后续机械加工,且容易控制增强相的体积分数变化,进而调节复合材料的性能,用作制备高端结构件。

[0038] 采用本发明的另一好处是无需进行强酸处理、球磨分散混合、高温铝液压力渗透等处理,制得的铝碳化硅复合材料性能优异,且具有操作周期短、三废少、绿色环保、操作安全简便等优点,利于工业化生产。

## 具体实施方式

[0039] 以下将结合实施例具体说明本发明,本发明的实施例仅用于说明本发明的技术方案,并非限定本发明的实质。

[0040] 为了对本发明的技术特征、目的和效果有更加清晰的理解,现详细说明本发明的具体实施方式:

[0041] 本发明以下的各个实施例中制备铝碳化硅复合材料所用原料的是相同的,组成为碳化硅(中值粒径为 $15\mu\text{m}$ ) $0.35\text{kg}$ 以及2009系铝合金粉(中值粒径为 $25\mu\text{m}$ ) $1.65\text{kg}$

[0042] 实施例1:

[0043] 一种铝碳化硅复合材料的制备方法,包括下述步骤:

- 1) 称取 $1.65\text{kg}$ 铝合金粉和 $0.35\text{kg}$ 碳化硅,并对粉末进行烘干处理。
- 2) 将铝粉和碳化硅依次放入混料机中, $200\text{rpm}$ 混合 $240\text{min}$ ,得到铝碳化硅混合粉;
- 3) 将上步混合粉装入内径为 $\Phi 100\text{mm}$ 的不锈钢模具内,将模具转移至真空热压炉,并抽真空;
- 4) 待真空度达到要求后,开始升温,在 $350^\circ\text{C}$ 时保温约 $2\text{h}$ ,以保证一定的真空度,继续升温至 $500^\circ\text{C}$ 后保温,开始逐步增大所施加的压力;压力达到 $20\text{吨}$ 时,保压 $2.5\text{h}$ 。随后炉冷,取出模具;
- 5) 对坯锭的侧表面、下底面、上底面分别进行机加工。车加工后的坯锭质量为 $1.506\text{kg}$ ,尺寸为 $\Phi 89.8 \times 102\text{ mm}$ ;
- 6) 沿着坯锭的轴向和径向分别切取 $\Phi 5\text{ mm}$ 标准拉伸试样棒,测试力学性能。

[0044] 实施例2:

[0045] 一种铝碳化硅复合材料的制备方法,包括下述步骤:

- 1) 称取 $1.65\text{kg}$ 铝合金粉和 $0.35\text{kg}$ 碳化硅,并对粉末进行烘干处理。
- 2) 将铝粉和碳化硅依次放入混料机中, $200\text{rpm}$ 混合 $240\text{min}$ ,得到铝碳化硅混合粉;
- 3) 将上步混合粉装入内径为 $\Phi 100\text{mm}$ 的不锈钢模具内,将模具转移至真空热压炉,并抽真空;
- 4) 待真空度达到要求后,开始升温,在 $350^\circ\text{C}$ 时保温约 $2\text{h}$ ,以保证一定的真空度,继续升温至 $500^\circ\text{C}$ 后保温,开始逐步增大所施加的压力;压力达到 $30\text{吨}$ 时,保压 $2.5\text{h}$ 。随后炉冷,取出模具;
- 5) 对坯锭的侧表面、下底面、上底面分别进行机加工。机加工后的坯锭质量为 $1.97\text{kg}$ ,尺寸为 $\Phi 99.5 \times 94.3\text{ mm}$ ;
- 6) 沿着坯锭的轴向和径向分别切取 $\Phi 5\text{ mm}$ 标准拉伸试样棒,测试力学性能。

[0046] 实施例3:

[0047] 一种铝碳化硅复合材料的制备方法,包括下述步骤:

- 1) 称取 $1.65\text{kg}$ 铝合金粉和 $0.35\text{kg}$ 碳化硅,并对粉末进行烘干处理。
- 2) 将铝粉和碳化硅依次放入混料机中, $200\text{rpm}$ 混合 $240\text{min}$ ,得到铝碳化硅混合粉;
- 3) 将上步混合粉装入内径为 $\Phi 100\text{mm}$ 的不锈钢模具内,将模具转移至真空热压炉,并抽真空;
- 4) 待真空度达到要求后,开始升温,在 $350^\circ\text{C}$ 时保温约 $2\text{h}$ ,以保证一定的真空度,继续升温至 $500^\circ\text{C}$ 后保温,开始逐步增大所施加的压力;压力达到 $40\text{吨}$ 时,保压 $2.5\text{h}$ 。随后炉冷,取出模具;
- 5) 对坯锭的侧表面、下底面、上底面分别进行机加工。机加工后的坯锭质量为 $1.896\text{kg}$ ,

尺寸为 $\phi 97 \times 89$  mm;

6) 沿着坯锭的轴向和径向分别切取 $\phi 5$  mm标准拉伸试样棒,测试力学性能。

[0048] 实施例4:

[0049] 一种铝碳化硅复合材料的制备方法,包括下述步骤:

1) 称取1.65kg铝合金粉和0.35kg碳化硅,并对粉末进行烘干处理。

2) 将铝粉和碳化硅依次放入混料机中,200rpm混合240min,得到铝碳化硅混合粉;

3) 将上步混合粉装入内径为 $\Phi 100$ mm的不锈钢模具内,将模具转移至真空热压炉,并抽真空;

4) 待真空度达到要求后,开始升温,在350℃时保温约2h,以保证一定的真空度,继续升温至600℃后保温,开始逐步增大所施加的压力;压力达到40吨时,保压2.5h。随后炉冷,取出模具;

5) 对坯锭的侧表面、下底面、上底面分别进行机加工。机加工后的坯锭质量为1.896kg,尺寸为 $\phi 97 \times 89$  mm;

6) 沿着坯锭的轴向和径向分别切取 $\phi 5$  mm标准拉伸试样棒,测试力学性能。

[0050] 实施例5:

[0051] 一种铝碳化硅复合材料的制备方法,包括下述步骤:

1) 称取1.65kg铝合金粉和0.35kg碳化硅,并对粉末进行烘干处理。

2) 将铝粉和碳化硅依次放入混料机中,200rpm混合240min,得到铝碳化硅混合粉;

3) 将上步混合粉装入内径为 $\Phi 100$ mm的不锈钢模具内,将模具转移至真空热压炉,并抽真空;

4) 待真空度达到要求后,开始升温,在350℃时保温约2h,以保证一定的真空度,继续升温至620℃后保温,开始逐步增大所施加的压力;压力达到40吨时,保压2.5h。随后炉冷,取出模具;

5) 对坯锭的侧表面、下底面、上底面分别进行机加工。机加工后的坯锭质量为1.896kg,尺寸为 $\phi 97 \times 89$  mm;

6) 沿着坯锭的轴向和径向分别切取 $\phi 5$  mm标准拉伸试样棒,测试力学性能。

[0052] 实施例6:

[0053] 一种铝碳化硅复合材料的制备方法,包括下述步骤:

1) 称取1.65kg铝合金粉和0.35kg碳化硅,并对粉末进行烘干处理。

2) 将铝粉和碳化硅依次放入混料机中,200rpm混合240min,得到铝碳化硅混合粉;

3) 将上步混合粉装入内径为 $\Phi 100$ mm的不锈钢模具内,将模具转移至真空热压炉,并抽真空;

4) 待真空度达到要求后,开始升温,在350℃时保温约2h,以保证一定的真空度,继续升温至640℃后保温,开始逐步增大所施加的压力;压力达到40吨时,保压2.5h。随后炉冷,取出模具;

5) 对坯锭的侧表面、下底面、上底面分别进行机加工。机加工后的坯锭质量为1.736kg,尺寸为 $\phi 97.5 \times 88$  mm;

6) 沿着坯锭的轴向和径向分别切取 $\phi 5$  mm标准拉伸试样棒,测试力学性能。

[0054] 对上述制得的铝碳化硅材料进行力学性能测试,主要是检测材料的抗拉性能、疲劳强度以及摩擦系数,通过对比不同条件制备的材料的力学性能,可以得到材料成形的最佳条件。

[0055] 上述实施例制得的铝碳化硅复合材料性能测试结果如下:

实施例 编号	热压压力 (t)	热压温度 (°C)	抗拉强度 (MPa)	屈服强度 (MPa)	伸长率 (%)	疲劳强度 (MPa)	摩擦系数
1	20	500	277	163	2.9	$0.32\sigma_b$	0.32
2	30	500	299	185	3.3	$0.33\sigma_b$	0.32
3	40	500	312	227	3.7	$0.33\sigma_b$	0.33
4	40	600	335	240	5.6	$0.34\sigma_b$	0.35
5	40	620	340	247	6.3	$0.39\sigma_b$	0.36
6	40	640	344	251	6.1	$0.37\sigma_b$	0.34

[0056] 由实施例1~6可见,本发明中热压压力和热压温度的提高均可以显著提高复合材料的性能。当热压力提高到40t,热压温度在620°C左右时,复合材料性能提升相对更优。

[0057] 比较分析实施例1~3可见,相同热压温度下,随着热压压力的提高,制得的复合材料的力学性能会有小幅度的提高。

[0058] 比较分析实施例3~6可见,相同热压压力下,随着热压温度的提高,制得的复合材料的力学性能会有明显的提高,而且提高的幅度略大于热压压力的影响。

[0059] 比较分析实施例1~6可见,随热压压力和热压温度的提高,材料的抗疲劳强度和摩擦性能也有一定的提高,但其变化幅度明显小于力学性能的变化。而在热压压力40吨,热压温度在620°C左右时,材料的抗疲劳强度和摩擦性能达到峰值,这与力学性能的变化也是相统一的。

[0060] 以上为本发明的优选实例,但本发明的实施并不限于上述实例。本领域人员阅读了上述内容后,任何对于本发明的修改和替代,都可被认为处于本发明的权利要求限定范围内。