(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
2022年7月28日(28.07.2022)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2022/158127 A1

(51) 国際特許分類:
C01B 21/064 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2021/043982

(22) 国際出願日： 2021年11月30日(30.11.2021)

(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 2021-007381 2021年1月20日(20.01.2021) JP

(71) 出願人: 国立大学法人信州大学 (**SHINSHU UNIVERSITY**) [JP/JP]; 〒3908621 長野県松本市旭三丁目１番１号 Nagano (JP).

(72) 発明者: 手嶋 勝弥 (**TESHIMA Katsuya**); 〒3808553 長野県長野市若里四丁目１７番１号 国立大学法人信州大学工学部内 Nagano (JP). 山田 哲也(**YAMADA Tetsuya**); 〒3808553 長野県長野市若里四丁目１７番１号 国立大学法人信州大学工学部内 Nagano (JP).

(74) 代理人: 田 ▲ 崎 ▼ 聡, 外 (**TAZAKI Akira** et al.); 〒1006620 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 Tokyo (JP).

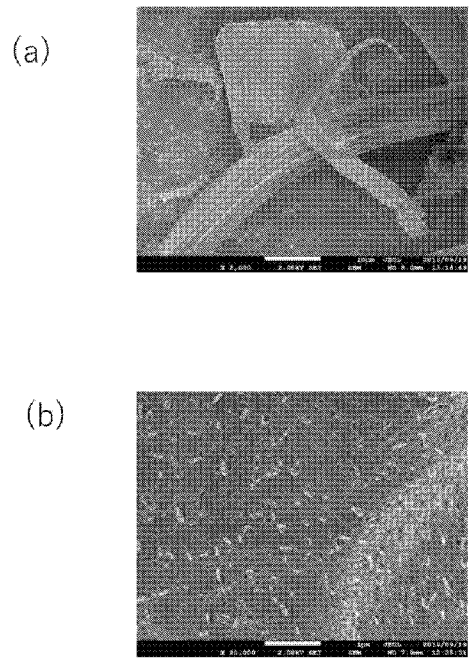
(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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,

(54) **Title:** METHOD FOR PRODUCING BORON NITRIDE

(54) 発明の名称： 窒化ホウ素の製造方法

[図4]



(57) **Abstract:** A method for producing boron nitride, said method comprising a step for obtaining melamine borate and a firing step for firing the melamine borate in the presence of a flux at a temperature of 1000-1700°C inclusive to give boron nitride.

(57) 要約：ホウ酸メラミンを得る工程と、前記ホウ酸メラミンを融剤の存在下で１０００℃以上１７００℃以下の温度で焼成し、窒化ホウ素を得る焼成工程と、を備える、窒化ホウ素の製造方法。

WO 2022/158127 A1

[続葉有]

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：

一　国際調査報告（条約第21条(3)）

明　細　書

発明の名称 ： 窒化ホウ素の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、窒化ホウ素の製造方法に関する。

本願は、２０２１年１月２０日に、日本に出願された特願２０２１－００７３８１号に基づき優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] 窒化ホウ素は高い熱伝導性を有し、化学的又は熱的に安定である。このため、窒化ホウ素は熱伝導フィラーとしての利用が進んでいる。

窒化ホウ素は、ホウ素を含む化合物と窒素を含む化合物とを反応させることにより製造できる。例えば特許文献１には、ホウ酸メラミンを特定の条件で二段焼成し、六方晶窒化ホウ素一次粒子凝集体を製造する方法が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開２０１８－１０４２５３号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 窒化ホウ素は、結晶構造と鱗片形状に由来する熱伝導の異方性が大きいことが知られている。このため、熱伝導フィラーとして樹脂に充填した場合、樹脂中での窒化ホウ素の配向に起因して、熱伝導性が低下しやすいという課題があった。

また、樹脂にフィラーとして窒化ホウ素を充填させる場合、充填性の向上が求められる。充填性を向上させる観点から、ホウ酸メラミンの粒子の大きさを制御することが求められる。

[0005] 本発明は上記事情に鑑みてなされたものであって、窒化ホウ素の粒子の形状と大きさを制御できる窒化ホウ素の製造方法を提供することを課題とする

。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明は下記の［１］～［４］を包含する。

［１］ホウ酸メラミンを得る工程と、前記ホウ酸メラミンを融剤の存在下で１０００℃以上１７００℃以下の温度で焼成し、窒化ホウ素を得る焼成工程と、を備える、窒化ホウ素の製造方法。

［２］前記ホウ酸メラミンを得る工程は、ホウ酸とメラミンの飽和水溶液を超音波処理する工程を備える、［１］に記載の窒化ホウ素の製造方法。

［３］前記焼成工程において、前記ホウ酸メラミンに対する、前記融剤のモル比（ホウ酸メラミン／融剤）が、１以上４以下となる割合で混合して焼成する、［１］又は［２］に記載の窒化ホウ素の製造方法。

［４］前記融剤は、炭酸リチウム又は水酸化リチウムである、［１］～［３］のいずれか１つに記載の窒化ホウ素の製造方法。

発明の効果

[0007] 本発明によれば、窒化ホウ素の粒子の形状と大きさを制御できる窒化ホウ素の製造方法を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0008] [図1]ホウ酸メラミンのＸ線回折パターンを示す図である。

[図2]ホウ酸メラミンの走査型電子顕微鏡写真である。

[図3]実施例１で製造した窒化ホウ素のＸ線回折パターンを示す図である。

[図4]実施例１で製造した窒化ホウ素の走査型電子顕微鏡写真である。

[図5]実施例２で製造したホウ酸メラミンの走査型電子顕微鏡写真である。

[図6]実施例２で製造した窒化ホウ素の走査型電子顕微鏡写真である。

発明を実施するための形態

[0009] ＜窒化ホウ素の製造方法＞

本実施形態の窒化ホウ素の製造方法は、ホウ酸メラミンを得る工程と、ホウ酸メラミンを融剤の存在下で焼成する焼成工程とを備える。

本発明者らの検討により、ホウ酸メラミンを融剤の存在下で焼成すると、ホウ酸メラミンの粒子の大きさや形状が維持された窒化ホウ素を製造できることが見いだされた。本発明は、ホウ酸メラミンを得る工程においてホウ酸メラミンの粒子の形状や大きさを制御することにより、製造される窒化ホウ素の粒子の形状と大きさを所望の範囲に制御するという技術思想に係る。

[0010] ［ホウ酸メラミンを得る工程］

ホウ酸メラミンは、例えばホウ酸とメラミンとを含む飽和水溶液から、ホウ酸メラミンを再結晶することにより得られる。以下、「飽和水溶液」と記載する場合には、ホウ酸とメラミンとを含む飽和水溶液を意味する。

[0011] 後の焼成工程においてホウ酸メラミンを融剤の存在下で焼成すると、ホウ酸メラミンの粒子の大きさや形状が維持される。このため、目的とする大きさや形状の窒化ホウ素を得るために、ホウ酸メラミンの大きさや形状を制御する。

[0012] 例えば、粒子径が約５μｍ以上１０μｍ以下の窒化ホウ素を製造しようとする場合、粒子径が約５μｍ以上１０μｍ以下のホウ酸メラミンを製造することが好ましい。

上記の粒子径の範囲は、目的とする窒化ホウ素の大きさによって適宜変更できる。

[0013] 柱状の細長い形状を有する二次粒子であって、短軸径と長軸径との比であるアスペクト比が約１～１．５である窒化ホウ素を製造しようとする場合、短軸径と長軸径との比であるアスペクト比が約１～１．５のホウ酸メラミンを製造することが好ましい。

上記のアスペクト比の範囲は、目的とする窒化ホウ素の大きさによって適宜変更できる。

[0014] ホウ酸メラミンの粒子の大きさや形状は、再結晶の条件制御や後処理を施すことにより、制御できる。再結晶の条件としては、飽和水溶液の加熱冷却条件又は飽和水溶液の超音波処理条件である。後処理としては、乾式粉砕法やボールミル等の機械的粉砕を用いることができる。

[0015] 本発明の一態様において、ホウ酸メラミンを得る工程は飽和水溶液を加熱冷却する工程である。

本発明の一態様において、ホウ酸メラミンを得る工程は飽和水溶液を超音波処理した後に、吸引ろ過をする工程である。

[0016] （加熱冷却する工程）

まず、約９５℃に加温された純水に、所定量のホウ酸を完全に溶解させる。次いで、所定量のメラミンを加え、攪拌し、メラミンを完全に溶解させる。この操作により、飽和水溶液が得られる。

[0017] ホウ酸の量は、例えば１００ｍＬの蒸留水に対し、１ｇ以上５ｇ以下であり、２ｇ以上４ｇ以下が好ましい。

メラミンの量は、例えば１００ｍＬの蒸留水に対し、０．５ｇ以上４ｇ以下であり、１ｇ以上３ｇ以下が好ましい。

[0018] 飽和水溶液を、放冷することにより、ホウ酸メラミンの結晶が析出する。

放冷の条件の一例は、５０℃以上１００℃以下のお湯を入れた１Ｌビーカーに、得られた飽和水溶液を入れたビーカーを漬けて、室温で約１２時間以上２４時間以下放置し、徐々に飽和水溶液を冷却することが好ましい。

[0019] 得られた析出物を乾燥させ、ホウ酸メラミンが得られる。析出物を乾燥させる方法としては、自然乾燥させてもよく、室温又は１００℃以下の恒温槽を用いて乾燥させてもよい。

[0020] 加熱冷却する工程により、柱状の細長い形状を有するホウ酸メラミンの粒子が得られる。このホウ酸メラミンの粒子は、短軸径は約５μｍ～１０μｍである。また、長軸径は、約１０μｍ～２ｃｍである。

[0021] （超音波処理及び吸引ろ過工程）

本実施形態において、上記と同様の方法により得た飽和水溶液を超音波処理することが好ましい。この場合には、例えば超音波洗浄機を用い、超音波処理すればよい。超音波処理により、ホウ酸メラミンの結晶が析出する。超音波処理には、例えば超音波洗浄機が使用できる。

[0022] 超音波処理の条件を変更することにより、製造されるホウ酸メラミンの粒

子の形状と大きさを制御できる。超音波処理することにより、柱状の粒子が破砕され、短軸径と長軸径がそれぞれ数十μｍであるホウ酸メラミンの粒子が得られる。

[0023] 超音波処理の条件としては、周波数と処理時間が挙げられる。周波数は、２０ｋＨｚ以上５０ｋＨｚ以下の範囲に調整することが好ましい。処理時間は、１分間以上１０分間以下の範囲に調整することが好ましい。

[0024] 周波数と処理時間の組み合わせは、例えば２０ｋＨｚ以上５０ｋＨｚ以下、且つ１分間以上１０分間以下である。

[0025] 超音波処理の時間を長くするほど、得られるホウ酸メラミンの大きさは小さくなり、アスペクト比が増加する。

また超音波の周波数を高くするほど、得られるホウ酸メラミンの大きさは小さくなる。

[0026] 例えば、１００ｍＬ飽和溶液中に１ｇのホウ酸メラミンを入れた場合には、消費電力４３０Ｗ、高周波出力３００ｗ、発振周波数３８ｋＨｚで５分間の超音波処理をすると、粒径が数十μｍであるホウ酸メラミンの粒子が得られる。

[0027] 超音波処理の後、得られた結晶を吸引ろ過して、ホウ酸メラミンの粒子を得ることが好ましい。

[0028] 製造されたホウ酸メラミンの粒子の形状及び大きさは、走査型電子顕微鏡により観察することで確認できる。

[0029] 超音波処理をすることにより、短軸径と長軸径との比であるアスペクト比が約１～１．５であるホウ酸メラミンの粒子が得られやすくなる。

[0030] ［焼成工程］

焼成工程は、ホウ酸メラミンを融剤の存在下で焼成する工程である。

ホウ酸メラミンを融剤の存在下で焼成することにより、ホウ酸メラミンの粒子の形状と大きさを維持した窒化ホウ素を製造することができる。

[0031] 焼成温度は、１０００℃以上１７００℃以下であり、１１００℃以上１６００℃以下が好ましく、１２００℃以上１５００℃以下がより好ましい。

焼成温度が上記範囲内であると、ホウ酸メラミンの大きさと形状を維持した窒化ホウ素が得られやすい。

焼成温度が上記下限値以上であると、窒化ホウ素の結晶成長が進みやすい。

焼成温度が上記上限値を超えると、窒化ホウ素の結晶化が進み鱗片状に成長しやすくなる。このため、粒子状の窒化ホウ素を得るためには、１７００℃以下の温度で焼成することが好ましい。

[0032] 本実施形態において「焼成温度」とは、焼成工程における焼成炉内雰囲気の保持温度の最高温度を意味する。

[0033] 上記の焼成温度で保持する時間は、３０分間以上２時間以下が好ましく、５０分間以上９０分間以下が好ましい。

[0034] 本実施形態において、焼成工程は不活性ガスの雰囲気下で実施することが好ましい。不活性ガスとしては、窒素ガス又はアルゴンガスが挙げられる。

[0035] 焼成工程において、焼成温度に達するまでの昇温速度は、２００℃／時間以上４００℃／時間以下が挙げられ、２５０℃／時間以上３５０℃／時間以下が好ましい。

[0036] 本実施形態において「昇温速度」とは、焼成装置において昇温を開始した時間から、最高保持温度に達するまでの時間と、昇温装置の焼成炉内の昇温開始時の温度から細孔保持温度までの温度差と、から算出される。

[0037] 焼成後、得られた焼成品を水洗してもよい。

[0038] 焼成工程において、ホウ酸メラミンを融剤（フラックス）の存在下で焼成する。

フラックスとして、通常用いられるものであれば特に限定されない。

本実施形態においては、Ｌｉ、Ｎａ、Ｋ、及びＢからなる群より選ばれる１種以上の元素（以下、「Ｍ」と称する。）のホウ酸塩、Ｍの酸化物、Ｍの硝酸塩、Ｍの塩化物、Ｍの炭酸塩、Ｍの硫酸塩、Ｍの有機酸塩、Ｍの水酸化物、Ｍのフッ化物が挙げられる。

[0039] Ｍのホウ酸塩としては、ホウ酸リチウム、ホウ酸ナトリウム、ホウ酸カリ

ウムが使用できる。

[0040] Mの酸化物としては、酸化ホウ素、酸化ナトリウム、酸化カリウム、酸化リチウムが使用できる。

[0041] Mの硝酸塩としては、硝酸ナトリウムが使用できる。

[0042] Mの塩化物としては、塩化ナトリウム、塩化カリウム、塩化リチウムが使用できる。

[0043] Mの炭酸塩としては、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸リチウムが使用できる。

[0044] Mの硫酸塩としては、硫酸ナトリウム、硫酸カリウム、硫酸リチウムが使用できる。

[0045] Mの水酸化物としては、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化リチウムが使用できる。

[0046] Mのフッ化物としては、フッ化ナトリウム、フッ化カリウム、フッ化リチウムが使用できる。

[0047] Mの有機酸塩としては、Mの酢酸塩、Mのシュウ酸塩、Mのクエン酸塩が使用できる。

[0048] Mの酢酸塩としては、酢酸ナトリウム、酢酸カリウム、酢酸リチウムが使用できる。

[0049] Mのシュウ酸塩としては、シュウ酸ナトリウム、シュウ酸カリウム、シュウ酸リチウムが使用できる。

[0050] Mのクエン酸塩としては、クエン酸ナトリウム、クエン酸カリウム、クエン酸リチウムが使用できる。

[0051] フラックスは、元素Mのアンモニウム塩であってもよい。また、上記のフラックスを２種以上併用してもよい。

[0052] 本実施形態において、元素MはＬｉ、Ｎａ、及びＫからなる群より選ばれる１種以上の元素であることが好ましく、Ｌｉ又はＮａが好ましく、Ｌｉがさらに好ましい。

本実施形態において、フラックスは元素Mの炭酸塩、元素Mの水酸化物が

好ましく、炭酸リチウム又は水酸化リチウムを用いることがより好ましい。

[0053] 焼成工程において、ホウ酸メラミンに対する、融剤のモル比（ホウ酸メラミン／融剤）が、１以上３以下となる割合で混合して焼成することが好ましい。

[0054] 融剤（フラックス）の存在下で焼成することにより、１７００℃以下の低い温度条件で窒化ホウ素の結晶を育成することができる。これにより、窒化ホウ素が鱗片状に成長しにくく、ホウ酸メラミンの粒子の形状と大きさを維持した窒化ホウ素を製造することができる。

[0055] ＜窒化ホウ素＞

本実施形態の製造方法により製造される窒化ホウ素は、原料であるホウ酸メラミンの粒子の形状と大きさが維持されている。

本実施形態の窒化ホウ素は一次粒子の凝集体である二次粒子である。二次粒子は多孔質であり、孔径が約１０ｎｍの微細な孔を備える。

[0056] 本実施形態の窒化ホウ素は、例えば柱状の細長い形状を有する二次粒子であって、短軸径が約５μｍ以上１０μｍ以下、長軸径が約１０μｍ以上２ｃｍ以下である粒子である。

本実施形態の窒化ホウ素は、例えば短軸径と長軸径がそれぞれ数十μｍである二次粒子であって、アスペクト比が約１～１．５の粒子である。

[0057] 本実施形態の窒化ホウ素は、従来の鱗片状の窒化ホウ素に比べて熱伝導の異方性が小さいため、熱伝導体全体としての熱伝導性が向上すると推察できる。また、窒化ホウ素の粒子の大きさと形状を制御できるため、例えば熱伝導性に優れた薄い絶縁膜や、デバイスの層間絶縁膜など、幅広く応用できる。

実施例

[0058] 以下、実施例により本発明をより具体的に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

[0059] ＜実施例１＞

［ホウ酸メラミンを得る工程］

８０℃まで加熱した蒸留水１００ｍＬに、ホウ酸３ｇを添加し、攪拌して完全に溶解させた。次いで、２ｇのメラミンを添加し、攪拌して完全に溶解させた。攪拌にはスターラーを使用した。これにより、ホウ酸とメラミンの飽和水溶液を得た。

[0060] ８０℃のお湯を入れた１Ｌビーカーに、得られた飽和水溶液を入れたビーカーを漬けて、室温で約１２時間放置し、徐々に飽和水溶液を冷却した。冷却により、ホウ酸メラミンの結晶が析出した。

析出したホウ酸メラミンの結晶をシャーレに取り出して、室温で１２時間放置し、自然乾燥させた。これにより、析出物１を得た。

[0061] 得られた析出物１のＸ線回折パターンを得た。その結果を図１（ａ）に示す。

[0062] 図１（ｂ）に示すように、粉末Ｘ線回折データベース（ＩＣＤＤ）と参照したところ、ＩＣＤＤのＮｏ０５０－２３８４の$C_4H_3NO_2$であることが確認できた。

[0063] さらに、図１（ｃ）に示すように、ＩＣＤＤのＮｏ０７６－６９４９のホウ酸メラミンであることが確認できた。図１（ｃ）の結果から、析出物１はホウ酸メラミン１であることが確認できた。

[0064] 得られたホウ酸メラミン１のＳＥＭ写真（倍率３０００倍）を図２に示す。図２に示すように、ホウ酸メラミン１は、柱状の細長い形状を有し、短軸径は約５μｍ～１０μｍであった。

[0065] ［焼成工程］

２ｍｍｏｌのホウ酸メラミン１と、１ｍｍｏｌの炭酸リチウムとを１０分間混合し、混合物１を得た。混合物１を角型カーボンるつぼに入れ、ケラマックス箱形電気炉を用いて焼成した。ホウ酸メラミンに対する、融剤のモル比（ホウ酸メラミン／融剤）は２であった。

[0066] まず、昇温速度３００℃／時間で４時間２０分かけて１４００℃まで昇温し、１４００℃で１時間保持した。その後、降温速度３００℃／時間で４時間２０分かけて０℃まで降温した。昇温、１４００℃での保持、及び降温工

程のすべてにおいて、０．２Ｌ／分間の流量で窒素ガスを通気した。

これにより、焼成物１得た。焼成物１を水洗し、焼成品１を得た。

[0067] 得られた焼成品１のＸ線回折パターンを得た。図３（ａ）に、水洗前の焼成物１のＸ線回折パターンを示す。図３（ｂ）に水洗後の焼成品１のＸ線回折パターンを示す。図３（ａ）、（ｂ）ともに、炭酸リチウムに帰属するピークは確認されなかった。

[0068] 図３（ｃ）に示すように、ＩＣＤＤと参照したところ、ＩＣＤＤのＮｏ０３４－０４２１である窒化ホウ素であることが確認できた。図３（ｃ）の結果から、焼成品１は窒化ホウ素１であることが確認できた。

[0069] 図４（ａ）に、窒化ホウ素１のＳＥＭ写真（倍率２０００倍）を、図４（ｂ）にＳＥＭ写真（倍率２００００倍）をそれぞれ示す。図４（ａ）から、窒化ホウ素１は、柱状の細長い形状を有し、短軸径は約５μｍ～１０μｍであった。つまり、ホウ酸メラミン１の形状と大きさが維持されていることが確認できた。

[0070] 図４（ｂ）から、ホウ酸メラミン１は、孔径が約１０ｎｍ程度の孔を複数備える多孔質構造であることが確認できた。

[0071] ＜実施例２＞

［ホウ酸メラミンを得る工程］

８０℃まで加熱した蒸留水１００ｍＬに、ホウ酸３ｇを添加し、攪拌して完全に溶解させた。次いで、２ｇのメラミンを添加し、攪拌して完全に溶解させた。攪拌にはスターラーを使用した。これにより、ホウ酸とメラミンの飽和水溶液を得た。

[0072] 得られた飽和水溶液を５分間超音波処理し、ホウ酸メラミンの結晶を析出させた。得られた結晶を吸引ろ過し、析出物２を得た。

[0073] 得られた析出物２のＸ線回折パターンを得た。その結果を析出物２はホウ酸メラミンであることを確認した。

[0074] 得られたホウ酸メラミン２のＳＥＭ写真（５００倍）を図５（ａ）に示す。得られたホウ酸メラミン２のＳＥＭ写真（１０００倍）を図５（ｂ）に示

す。図５（ａ）に示すように、ホウ酸メラミン２は、粒子形状を有し、粒子の短軸径と長軸径はそれぞれ約２０μｍであった。また、ホウ酸メラミン２のアスペクト比（短軸径／長軸径）は約１であった。

[0075] ［焼成工程］

４ｍｍｏｌのホウ酸メラミン２と、２ｍｍｏｌの炭酸リチウムとを１０分間混合し、混合物２を得た。混合物２を角型カーボンるつぼに入れ、ケラマックス箱形電気炉を用いて焼成した。ホウ酸メラミンに対する、融剤のモル比（ホウ酸メラミン／融剤）は２であった。

[0076] まず、昇温速度３００℃／時間で４時間４０分かけて１４００℃まで昇温し、１４００℃で１時間保持した。その後、降温速度３００℃／時間で４時間２０分かけて０℃まで降温した。昇温、１４００℃での保持、及び降温工程のすべてにおいて、０．２Ｌ／分間の流量で窒素ガスを通気した。

これにより、焼成物２得た。焼成物２を水洗し、焼成品２を得た。

[0077] 得られた焼成品２のＸ線回折パターンを得た。これにより焼成品２は窒化ホウ素２であることが確認できた。

[0078] 図６（ａ）に、窒化ホウ素２のＳＥＭ写真（倍率１０００倍）を、図６（ｂ）にＳＥＭ写真（倍率２０００倍）をそれぞれ示す。

図６（ａ）から、窒化ホウ素２は、粒子形状を有し、粒子の短軸径と長軸径はそれぞれ約２０μｍであった。また、窒化ホウ素２のアスペクト比（短軸径／長軸径）は約１であった。つまり、ホウ酸メラミン２の形状と大きさが維持されていることが確認できた。

[0079] 図６（ｃ）に４００００倍の窒化ホウ素２のＳＥＭ写真を示す。図６（ｃ）から、ホウ酸メラミン２は、孔径が約１０ｎｍ程度の孔を複数備える多孔質構造であることが確認できた。

請求の範囲

[請求項1] ホウ酸メラミンを得る工程と、

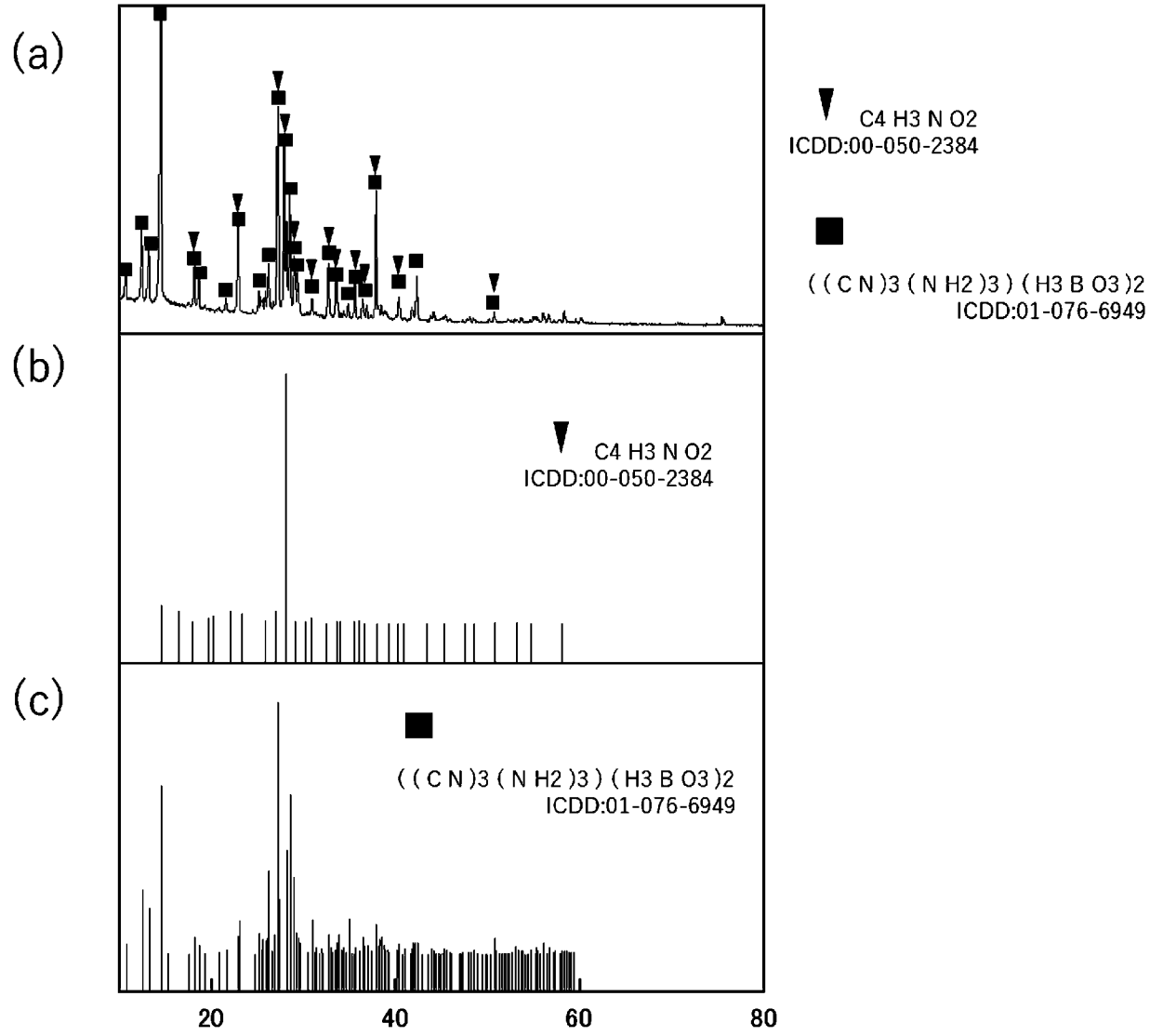
前記ホウ酸メラミンを融剤の存在下で１０００℃以上１７００℃以下の温度で焼成し、窒化ホウ素を得る焼成工程と、を備える、窒化ホウ素の製造方法。

[請求項2] 前記ホウ酸メラミンを得る工程は、ホウ酸とメラミンの飽和水溶液を超音波処理する工程を備える、請求項１に記載の窒化ホウ素の製造方法。

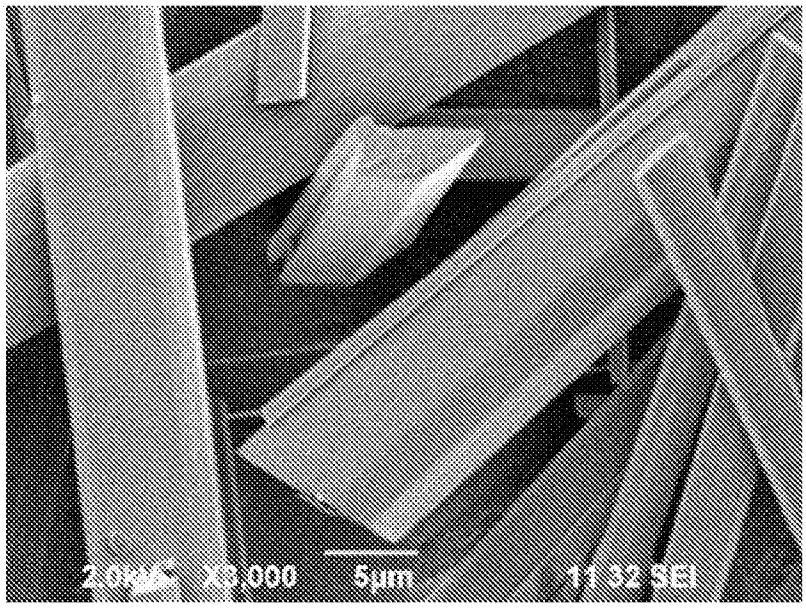
[請求項3] 前記焼成工程において、前記ホウ酸メラミンに対する、前記融剤のモル比（ホウ酸メラミン／融剤）が、１以上４以下となる割合で混合して焼成する、請求項１又は２に記載の窒化ホウ素の製造方法。

[請求項4] 前記融剤は、炭酸リチウム又は水酸化リチウムである、請求項１～３のいずれか１項に記載の窒化ホウ素の製造方法。

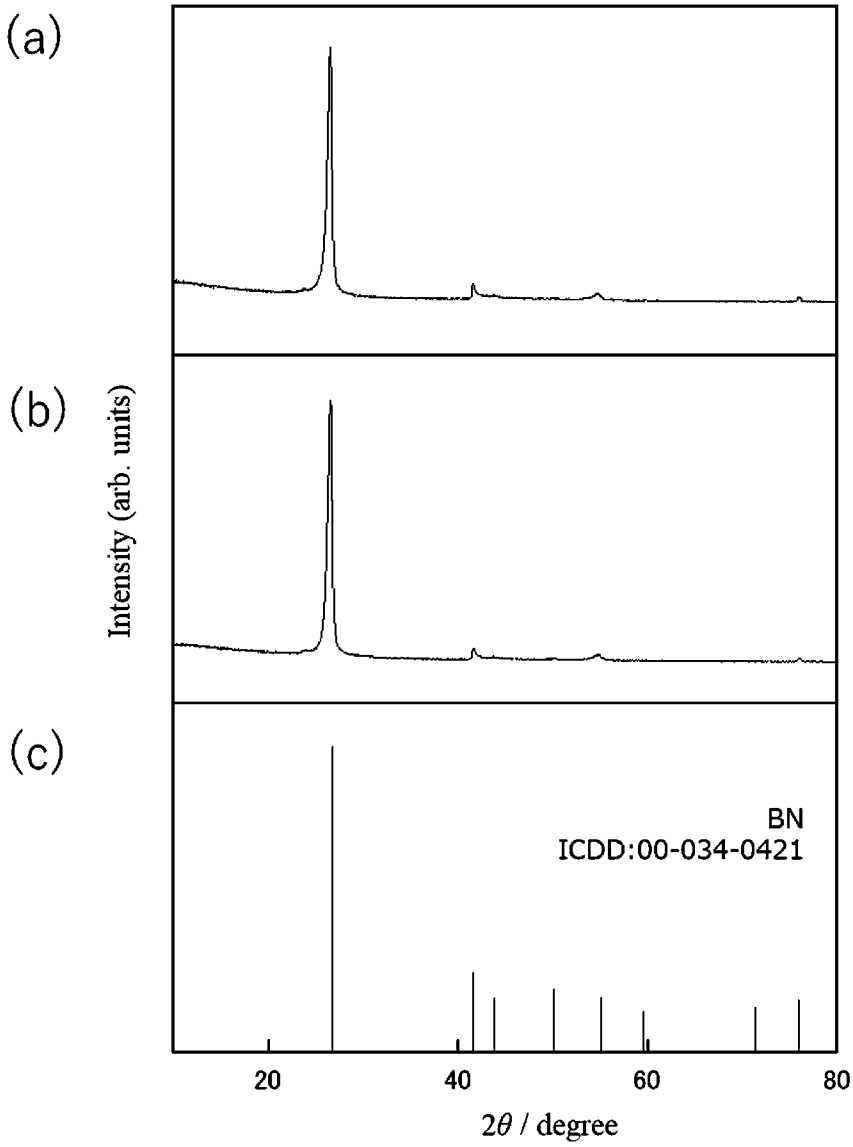
[図1]


(a)
C4 H3 N O2
ICDD:00-050-2384
((C N)3 (N H2)3) (H3 B O3)2
ICDD:01-076-6949
(b)
C4 H3 N O2
ICDD:00-050-2384
(c)
((C N)3 (N H2)3) (H3 B O3)2
ICDD:01-076-6949
20
40
60
80

[図2]

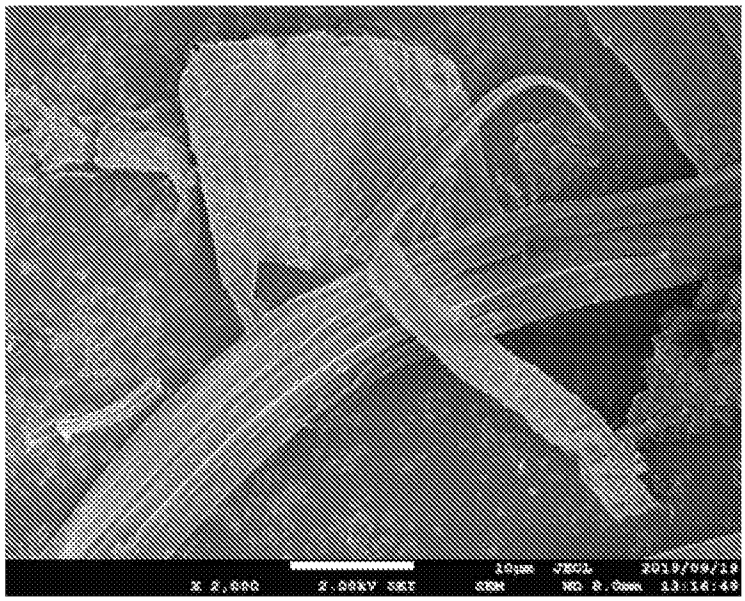

5μm

[図3]

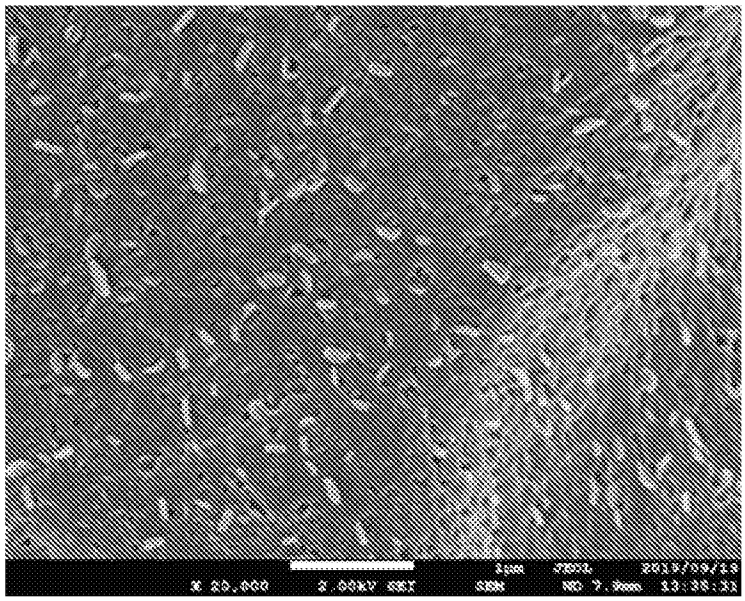

(a)
(b)
(c)
Intensity (arb. units)
BN
ICDD:00-034-0421
20
40
60
80
2θ / degree

[図4]

(a)

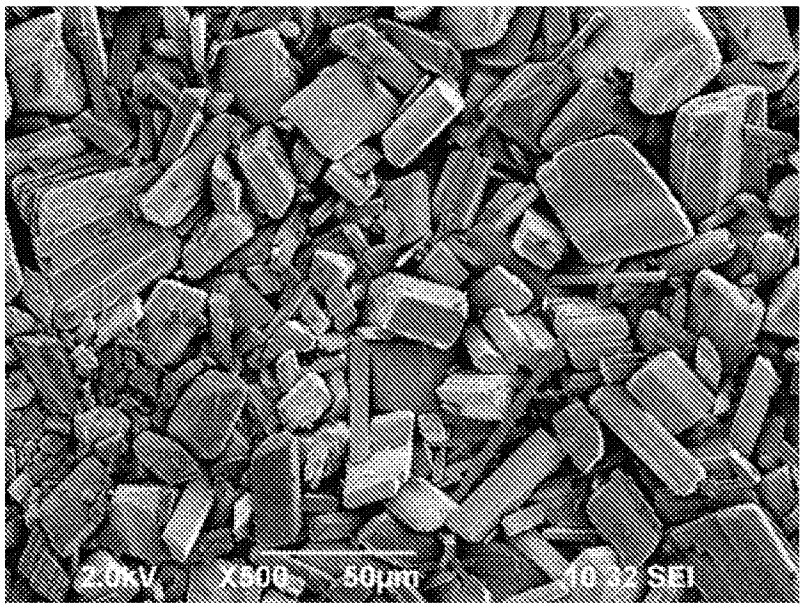


(b)

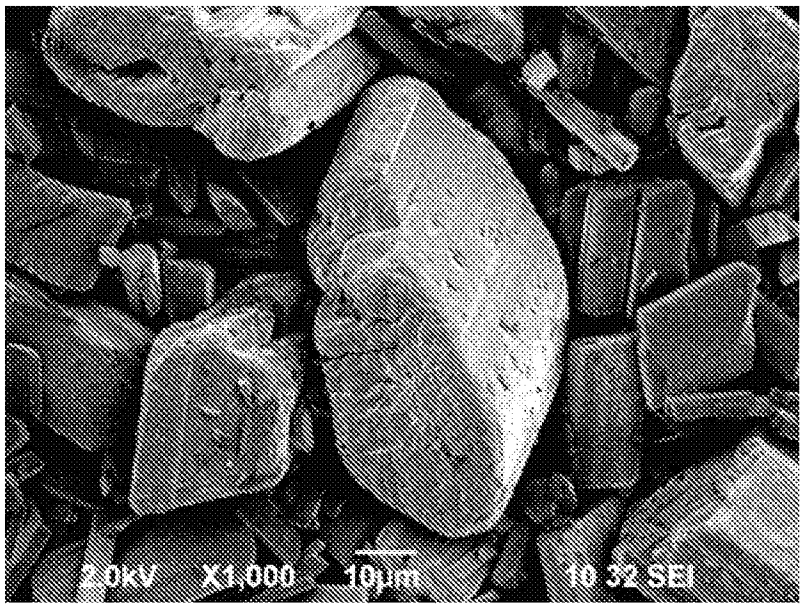


[図5]

(a)

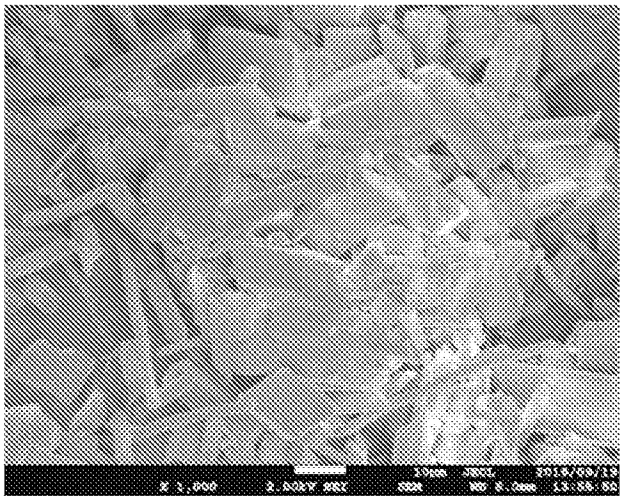


(b)

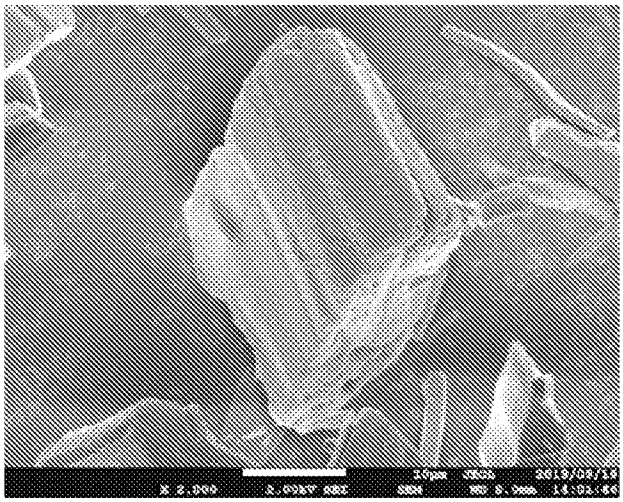


[図6]

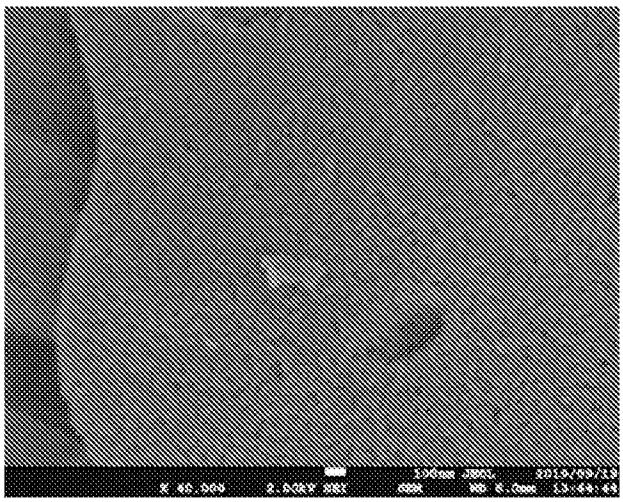
(a)



(b)



(c)



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2021/043982

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C01B 21/064(2006.01)i
FI: C01B21/064 H

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)

C01B21/064

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2022
Registered utility model specifications of Japan 1996-2022
Published registered utility model applications of Japan 1994-2022

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

JSTPlus (JDreamIII); JST7580 (JDreamIII); JSTChina (JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2018-104253 A (DENKA CO LTD) 05 July 2018 (2018-07-05) entire text	1-4
A	萩尾　剛　et　al., Journal of the Ceramic Society of Japan. 1994, 102 ［11］, pp. 1051-1054 entire text, non-official translation (HAGIO, Tsuyoshi et al.)	1-4
A	JP 2010-100448 A (DENKI KAGAKU KOGYO KK) 06 May 2010 (2010-05-06) entire text	1-4
A	JP 2012-171842 A (DENKI KAGAKU KOGYO KK) 10 September 2012 (2012-09-10) entire text	1-4
A	JP 11-302004 A (DENKI KAGAKU KOGYO KK) 02 November 1999 (1999-11-02) entire text	1-4
A	WO 2020/179662 A1 (TOKUYAMA CORP) 10 September 2020 (2020-09-10) entire text	1-4

☑ 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
02 February 2022	**15 February 2022**
Name and mailing address of the ISA/JP **Japan Patent Office (ISA/JP)** **3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915** **Japan**	Authorized officer Telephone No.

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2019-189525 A (MITSUBISHI CHEM CORP) 31 October 2019 (2019-10-31) entire text	1-4
A	JP 2016-141600 A (MITSUBISHI CHEM CORP) 08 August 2016 (2016-08-08) entire text	1-4

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2021/043982

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2018-104253 A	05 July 2018	(Family: none)	
JP 2010-100448 A	06 May 2010	(Family: none)	
JP 2012-171842 A	10 September 2012	(Family: none)	
JP 11-302004 A	02 November 1999	(Family: none)	
WO 2020/179662 A1	10 September 2020	(Family: none)	
JP 2019-189525 A	31 October 2019	(Family: none)	
JP 2016-141600 A	08 August 2016	(Family: none)	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2021/043982

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C01B 21/064(2006.01)i
FI: C01B21/064 H

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））

C01B21/064

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	１９７１－２０２２年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２２年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２２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); JST7580 (JDreamIII); JSTChina (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	JP 2018-104253 A (デンカ株式会社) 05.07.2018 (2018-07-05) 全文	1-4
A	萩尾　剛 et al., Journal of the Ceramic Society of Japan, 1994, 102 [11], p.1051-1054 全文	1-4
A	JP 2010-100448 A (電気化学工業株式会社) 06.05.2010 (2010-05-06) 全文	1-4
A	JP 2012-171842 A (電気化学工業株式会社) 10.09.2012 (2012-09-10) 全文	1-4
A	JP 11-302004 A (電気化学工業株式会社) 02.11.1999 (1999-11-02) 全文	1-4
A	WO 2020/179662 A1 (株式会社トクヤマ) 10.09.2020 (2020-09-10) 全文	1-4
A	JP 2019-189525 A (三菱ケミカル株式会社) 31.10.2019 (2019-10-31) 全文	1-4

☑ 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抵触するものではなく、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	国際調査報告の発送日
02.02.2022	15.02.2022

名称及びあて先

日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）

廣野　知子 4G 9266

電話番号 03-3581-1101 内線 3416

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	JP 2016-141600 A (三菱化学株式会社) 08.08.2016 (2016-08-08) 全文	1-4

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2021/043982

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2018-104253 A	05.07.2018	（ファミリーなし）	
JP 2010-100448 A	06.05.2010	（ファミリーなし）	
JP 2012-171842 A	10.09.2012	（ファミリーなし）	
JP 11-302004 A	02.11.1999	（ファミリーなし）	
WO 2020/179662 A1	10.09.2020	（ファミリーなし）	
JP 2019-189525 A	31.10.2019	（ファミリーなし）	
JP 2016-141600 A	08.08.2016	（ファミリーなし）	