

(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  
2023年3月16日(16.03.2023)

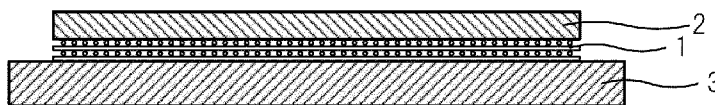


(10) 国際公開番号  
**WO 2023/038151 A1**

- (51) 国際特許分類:  
*C04B 35/583* (2006.01) *C04B 38/00* (2006.01) **Masumi**; 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号デンカ株式会社内 Tokyo (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2022/034234 (74) 代理人: 田口 昌浩, 外 (**TAGUCHI, Masahiro** et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目2番2号虎ノ門ESビル8階ダイヤ特許事務所 Tokyo (JP).
- (22) 国際出願日: 2022年9月13日(13.09.2022)
- (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 2021-148494 2021年9月13日(13.09.2021) JP
- (71) 出願人: デンカ株式会社 (**DENKA COMPANY LIMITED**) [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: 出川 亮 (**DEGAWA, Ryo**); 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号デンカ株式会社内 Tokyo (JP). 鈴木 敦也 (**SUZUKI, Nobuya**); 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号デンカ株式会社内 Tokyo (JP). 古賀 竜士 (**KOGA, Ryuji**); 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号デンカ株式会社内 Tokyo (JP). 四方堂 真寿美 (**SHIHODO,**
- (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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, 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,

(54) **Title:** METHOD FOR PRODUCING BORON NITRIDE SINTERED BODY, AND BORON NITRIDE SINTERED BODY

(54) 発明の名称: 窒化ホウ素焼結体の製造方法及び窒化ホウ素焼結体



(57) **Abstract:** The method for producing a boron nitride sintered body according to the present invention includes a step for fabricating a sheet-form molded body 2 of a raw material of a boron nitride sintered body and a step for firing the sheet-form molded body 2 arranged on a setter 3. In the step for firing the sheet-form molded body 2, a first mesh-form boron nitride sheet 1 is arranged between the sheet-form molded body 2 and the setter 3. The boron nitride sintered body according to the present invention has a warping level of 0.60 mm or less and thermal conductivity of 30 W/mK or greater, and is produced through the method for producing a boron nitride sintered body according to the present invention. The present invention makes it possible to provide: a method for producing a boron nitride sintered body, in which it is possible to produce a sheet-form boron nitride sintered body having high thermal conductivity and little warping by using a sheet-form molded body of a raw material of a boron nitride sintered body; and a boron nitride sintered body obtained through the aforementioned production method.

WO 2023/038151 A1

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：

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(57) 要約：本発明の窒化ホウ素焼結体の製造方法は、窒化ホウ素焼結体の原料のシート状成形体2を作製する工程及びセッター3の上に配置したシート状成形体2を焼成する工程を含み、シート状成形体2を焼成する工程は、シート状成形体2及びセッター3の間に第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1を配置する。本発明の窒化ホウ素焼結体は、反り量が0.60mm以下であり、熱伝導率が30W/mK以上であり、本発明の窒化ホウ素焼結体の製造方法により製造されたものである。本発明によれば、窒化ホウ素焼結体の原料のシート状成形体を用いて、熱伝導率が高く、反りが小さいシート状の窒化ホウ素焼結体を製造することができる窒化ホウ素焼結体の製造方法及びその製造方法により得られた窒化ホウ素焼結体を提供することができる。

## 明 細 書

発明の名称：窒化ホウ素焼結体の製造方法及び窒化ホウ素焼結体  
技術分野

[0001] 本発明は窒化ホウ素焼結体の製造方法及び窒化ホウ素焼結体に関する。

### 背景技術

[0002] 近年、携帯電話、LED照明装置、車載用パワーモジュール等に代表される電子機器の高性能化及び小型化に伴い、半導体デバイス実装、プリント配線板実装、及び装置実装の各階層において実装技術が急激に進歩している。そのため、電子機器内部の発熱密度は年々増加しており、使用時に発生する熱を如何に効率的に放熱するかが重要な課題である。そして、電子部材を固定するための熱伝導性絶縁接着シートには、絶縁性や接着性に加えて、従来にない高い熱伝導率が要求されている。

[0003] 上記の熱伝導性絶縁接着シートには、従来から、未硬化の状態（Aステージ）の熱硬化性樹脂に酸化アルミニウム、窒化ケイ素、窒化ホウ素、窒化アルミニウム等の熱伝導率の高いセラミックス粉末を分散させた後、各種コーターによる塗工等でシート状に成型し、加熱により熱硬化性樹脂を半硬化状態（Bステージ）とした熱硬化性樹脂組成物が用いられてきた。

[0004] 上記の熱伝導性絶縁接着シートは、金属回路や金属板等の電子部材に密着させた後、加熱することにより半硬化状態（Bステージ）の熱硬化性樹脂を溶融させ、電子部材表面の凹凸に侵入させることで熱伝導性絶縁接着シートの電子部材に対する接着性を発現させ、さらに加熱することにより熱硬化性樹脂を完全に硬化した状態（Cステージ）とし、電子部材との間の接着を強固にしている。

[0005] 上記の熱伝導性絶縁接着シートは、金属回路や金属板等の電子部材との間に接着層（未硬化の状態（Aステージ）の熱硬化性樹脂又は未硬化の状態（Aステージ）の熱硬化性樹脂中にセラミックス粉末を分散させたもの）を形成する必要がないことから、塗工作业や精密な塗布装置の導入が不要であり

、ユーザーによる作業が非常に簡便になることから、広く利用されている。

[0006] 特許文献1では、金属ベース回路基板において、半硬化状態（Bステージ）の熱硬化性樹脂中にセラミックス粉末を分散させた熱伝導性絶縁接着シート上に金属箔を配置した状態で、熱伝導性絶縁接着シートに含有される熱硬化性樹脂を硬化してCステージにすることによって、放熱性に優れた金属ベース回路基板を簡便な方法で得ることを可能にしている。

[0007] しかしながら、上記の特許文献1の発明においては、セラミックス粉末の各粒子間に熱伝導率の低い熱硬化性樹脂層が存在することから、回路基板において高い熱伝導率を得ることには限界があった。そのため、近年ますます困難になる電子機器の熱設計要求において、放熱性の面で課題があった。

[0008] 特許文献1に記載のメタルベース基板の熱伝導性を改善する方法として、例えば、非酸化物セラミックス一次粒子が3次元的に連続する一体構造をなしている焼結体に、熱硬化性樹脂組成物を含浸しているセラミックス樹脂複合体を用いた熱伝導性絶縁接着シート（例えば、特許文献2参照）を使用して、メタルベース板の片面に金属箔を貼り合わせることが考えられる。この熱伝導性絶縁接着シートは、非酸化物セラミックスが連続したネットワークを構成するので、熱伝導率をさらに高くすることができる。

## 先行技術文献

### 特許文献

[0009] 特許文献1：特開2009-49062号公報

特許文献2：国際公開2017/155110号パンフレット

### 発明の概要

#### 発明が解決しようとする課題

[0010] 特許文献2に記載のセラミックス樹脂複合体に用いられる焼結体は、非酸化物セラミックス粉末と焼結助剤を混合して得られた混合粉末を、金型を用いてブロック状にプレス成形してブロック成形体を作製し、得られたブロック成形体をCIP（冷間等方圧加圧法）装置により処理を行った後、焼結さ

せることで作製される。このため、シート状のセラミックス樹脂複合体を得るためには、焼結体に樹脂を含浸させた後、焼結体を、ワイヤーソーなどを使用してシート状に加工する必要があった。その結果、シート状のセラミックス樹脂複合体の製造コストが高くなっていた。

[0011] 焼結体をシート状に加工しなくてもシート状の焼結体を得る方法としては、例えば、セラミックス焼結体の原料をシート状に成形して得られたシート状成形体を焼成する方法がある。しかし、この方法で得られたシート状焼結体の熱伝導率が低くかったり、シート状焼結体に大きな反りが発生したりする場合があった。

[0012] そこで、本発明は、窒化ホウ素焼結体の原料のシート状成形体を用いて、熱伝導率が高く、反りが小さいシート状の窒化ホウ素焼結体を製造することができる窒化ホウ素焼結体の製造方法及びその製造方法により得られた窒化ホウ素焼結体を提供することを目的とする。

### 課題を解決するための手段

[0013] 本発明者らは、鋭意研究を進めたところ、メッシュ状窒化ホウ素シートを用いてシート状成形体を焼成することによって、上記課題を解決できることを見出し、本発明を完成させた。本発明は、以下を要旨とする。

[1] 窒化ホウ素焼結体の原料のシート状成形体を作製する工程及びセッターの上に配置した前記シート状成形体を焼成する工程を含み、前記シート状成形体を焼成する工程は、前記シート状成形体及び前記セッターの間に第1のメッシュ状窒化ホウ素シートを配置する窒化ホウ素焼結体の製造方法。

[2] 前記シート状成形体を焼成する工程は、前記セッターの上に配置した前記シート状成形体の上に、前記シート状成形体の上面を覆うセラミックス板を配置し、前記シート状成形体及び前記セラミックス板の間に第2のメッシュ状窒化ホウ素シートをさらに配置する上記[1]に記載の窒化ホウ素焼結体の製造方法。

[3] 前記第1のメッシュ状窒化ホウ素シートの形状が格子状である上記[1]又は[2]に記載の窒化ホウ素焼結体の製造方法。

[4] 前記第1のメッシュ状窒化ホウ素シートが目開きが200～3000  $\mu\text{m}$ である上記[3]に記載の窒化ホウ素焼結体の製造方法。

[5] 前記第1のメッシュ状窒化ホウ素シートの線径が500～1600  $\mu\text{m}$ である上記[3]又は[4]に記載の窒化ホウ素焼結体の製造方法。

[6] 前記第1のメッシュ状窒化ホウ素シートは、矩形形状のメッシュ状窒化ホウ素シートの四隅を切り欠くことにより矩形形状に形作られたメッシュ状窒化ホウ素シートである上記[1]～[5]のいずれか1つに記載の窒化ホウ素焼結体の製造方法。

[7] 前記シート状成形体を焼成する工程で得られた焼結体が多孔体である上記[1]～[6]のいずれか1つに記載の窒化ホウ素焼結体の製造方法。

[8] 反り量が0.60mm以下であり、熱伝導率が30W/mK以上である、上記[1]～[7]のいずれか1つに記載の窒化ホウ素焼結体の製造方法により製造された窒化ホウ素焼結体。

## 発明の効果

[0014] 本発明によれば、窒化ホウ素焼結体の原料のシート状成形体を用いて、熱伝導率が高く、反りが小さいシート状の窒化ホウ素焼結体を製造することができる窒化ホウ素焼結体の製造方法及びその製造方法により得られた窒化ホウ素焼結体を提供することができる。

## 図面の簡単な説明

[0015] [図1]図1は、本発明の窒化ホウ素焼結体の製造方法におけるセッターの上に配置したシート状成形体を焼成する工程を説明するための図である。

[図2]図2(a)～(b)は、本発明の窒化ホウ素焼結体の製造方法で使用するメッシュ状窒化ホウ素シートの一例を示す図である。

[図3]図3(a)～(c)は、本発明の窒化ホウ素焼結体の製造方法で使用するメッシュ状窒化ホウ素シートの一例の製造方法を説明するための図である。

[図4]図4は、図4は、本発明の窒化ホウ素焼結体の製造方法におけるセッターの上に配置したシート状成形体を焼成する工程の他の実施態様を説明する

ための図である

## 発明を実施するための形態

### [0016] [窒化ホウ素焼結体の製造方法]

本発明の窒化ホウ素焼結体の製造方法は、窒化ホウ素焼結体の原料のシート状成形体を作製する工程（A）及びセッターの上に配置したシート状成形体を焼成する工程（B）を含む。以下、本発明の窒化ホウ素焼結体の製造方法の各工程を詳細に説明する。

### [0017] （工程（A））

工程（A）では、窒化ホウ素焼結体の原料のシート状成形体を作製する。窒化ホウ素焼結体の原料は、焼成して窒化ホウ素焼結体を作製できる原料であれば特に限定されない。窒化ホウ素焼結体の原料には、例えば、炭窒化ホウ素（ $B_4C N_4$ ）が挙げられる。炭化ホウ素粉末は、例えば、以下の手順で調製することができる。なお、以下の手順で調製した炭窒化ホウ素の代わりに、市販の炭窒化ホウ素粉末を用いてもよい。

[0018] ホウ酸とアセチレンブラックとを混合したのち、不活性ガス雰囲気中、 $1800\sim 2400^{\circ}C$ にて、 $1\sim 10$ 時間加熱し、炭化ホウ素塊を得る。この炭化ホウ素塊を、粉碎し、洗浄、不純物除去、及び乾燥を行って炭化ホウ素粉末を調製する。炭化ホウ素粉末を、窒素雰囲気下で加熱して炭窒化ホウ素（ $B_4C N_4$ ）粉末を得る。この窒化処理における加熱温度は、 $1800^{\circ}C$ 以上であってよく、 $1900^{\circ}C$ 以上であってよい。また、この窒化処理における加熱温度は、 $2400^{\circ}C$ 以下であってよく、 $2200^{\circ}C$ 以下であってよい。この窒化処理における加熱温度は、例えば、 $1800\sim 2400^{\circ}C$ であってよい。

[0019] 窒化処理における圧力は、 $0.6 MPa$ 以上であってよく、 $0.7 MPa$ 以上であってよい。また、この窒化処理における圧力は、 $1.0 MPa$ 以下であってよく、 $0.9 MPa$ 以下であってよい。この窒化処理における圧力は、例えば、 $0.6\sim 1.0 MPa$ であってよい。この窒化処理における圧力が低すぎると、炭化ホウ素の窒化が進行し難くなる傾向がある。一方

、この窒化処理における圧力が高すぎると、製造コストが上昇する傾向にある。なお、本開示における圧力は絶対圧である。

[0020] 窒化処理における窒素雰囲気中の窒素ガス濃度は95体積%以上であってよく、99.9体積%以上であってもよい。窒素の分圧は、上述の圧力範囲であってよい。窒化処理における加熱時間は、窒化が十分進む範囲であれば特に限定されず、例えば6～30時間であってよく、8～20時間であってもよい。

[0021] 窒化処理で得られた炭窒化ホウ素粉末に焼結助剤を配合してもよい。焼結助剤は、ホウ素化合物及びカルシウム化合物を含んでよい。配合量は、炭窒化ホウ素粉末100質量部に対してホウ素化合物及びカルシウム化合物を合計で1～30質量部であってもよい。このような配合量とすることによって、一次粒子の過剰な粒成長を抑制しつつ、適度に粒成長させて焼結を促進し、窒化ホウ素の一次粒子同士が強固にかつ広域にわたって密接に結合する。

[0022] 焼結助剤が、ホウ素化合物及びカルシウム化合物を含む場合、窒化ホウ素の一次粒子を十分に結合させる観点から、焼成物中の焼結助剤のホウ素化合物及びカルシウム化合物の含有量は、焼成物100質量部に対してホウ素化合物及びカルシウム化合物を合計で、例えば1～30質量部含んでよく、5～25質量部含んでよく、8～20質量部含んでもよい。

[0023] 炭窒化ホウ素粉末に焼結助剤を配合して得られた配合物は、ホウ素化合物を構成するホウ素100原子%に対して、カルシウム化合物を構成するカルシウムを0.5～40原子%含んでよく、0.7～30原子%含んでもよい。このような比率でホウ素及びカルシウムを含有することによって、一次粒子の均質な粒成長を促進して窒化ホウ素焼結体の熱伝導率を一層高くすることができる。

[0024] ホウ素化合物としては、ホウ酸、酸化ホウ素、ホウ砂等が挙げられる。カルシウム化合物としては、炭酸カルシウム、酸化カルシウム等が挙げられる。焼結助剤は、ホウ酸及び炭酸カルシウム以外の成分を含んでいてもよい。そのような成分としては、例えば、炭酸リチウム、炭酸ナトリウム等のアル

カリ金属の炭酸塩が挙げられる。また、成形性向上のため、配合物にバインダーを配合してもよい。バインダーとしては、アクリル化合物等が挙げられる。

[0025] 炭窒化ホウ素粉末及び焼結助剤の配合に際し、一般的な粉砕機又は解砕機を用いて粉砕を行ってもよい。例えば、ボールミル、ヘンシェルミキサー、振動ミル、ジェットミル等を用いることができる。なお、本開示においては、「粉砕」には「解砕」も含まれる。炭窒化ホウ素粉末を粉砕した後に焼結助剤を配合してもよいし、炭窒化ホウ素粉末と焼結助剤とを配合した後に、粉砕及び混合と同時に焼結助剤を配合してもよい。

[0026] 配合物は粉末プレス又は金型成形を行ってシート状成形体としてもよいし、ドクターブレード法又は押出法によって、シート状成形体としてもよい。押出法によって配合物をシート状成形体へ成形する場合、成形圧力は、例えば5～350MPaであってよい。シート状成形体は、例えば、厚みが2mm未満のシート状であってよい。シート状成形体を用いて窒化ホウ素焼結体を製造すれば、切断面のない窒化ホウ素焼結体を製造することができる。また、ブロック状の窒化ホウ素焼結体及び複合体を切断してシート状とする場合に比べて、成形体の段階からシート状にすることによって、加工による材料ロスを低減することができる。したがって、高い歩留まりでシート状の窒化ホウ素焼結体、及び窒化ホウ素焼結体と樹脂との複合体を製造することができる。

[0027] (工程(B))

工程(B)では、セッターの上に配置したシート状成形体を焼成する。例えば、シート状成形体を電気炉中で加熱して焼成する。セッターは、被焼成物を載せる容器的な機能を有する道具材である。セッターの材質には、例えば、アルミナ、コーディエライト、炭化ケイ素、窒化ケイ素、窒化ホウ素等が挙げられる。これらの材質の中で、シート成形体への不純物混入を抑制する観点から窒化ホウ素が好ましい。セッターの形状は、通常、薄肉角形状の形状である。しかし、被焼成物の形状により、セッターの形状は、薄肉角型

状の形状から適宜、変更することができる。

[0028] 焼成温度は、例えば1800℃以上であってよく、1900℃以上であってもよい。当該焼成温度は、例えば2200℃以下であってよく、2100℃以下であってもよい。焼成温度が低すぎると、粒成長が十分に進行しない傾向にある。焼成時間は、0.5時間以上であってよく、1時間以上、3時間以上、5時間以上、又は10時間以上であってもよい。当該焼成時間は、40時間以下であってよく、30時間以下、又は20時間以下であってもよい。当該焼成時間は、例えば、0.5～40時間であってよく、1～30時間であってもよい。焼成時間が短すぎると粒成長が十分に進行しない傾向にある。一方、焼成時間が長すぎると工業的に不利になる傾向にある。焼成雰囲気は、例えば、窒素、ヘリウム、アルゴン等の不活性ガス雰囲気であってよい。配合物にバインダーを配合する場合、上述の加熱の前に、バインダーが分解する温度と雰囲気では焼して脱脂してもよい。

[0029] 工程(B)では、図1に示すように、シート状成形体2及びセッター3の間に第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1を配置する。これにより、シート状成形体2の焼成時にシート状成形体2から生じるガスを効率的に飛散させることができるとともに、シート状成形体の焼きムラの発生を抑制できる。その結果、シート状成形体を焼成して得られた焼結体の熱伝導率を高くすることができるとともに、焼結体の反りを低減することができる。メッシュ状窒化ホウ素シートは、材質が窒化ホウ素であり、形状がメッシュ状の形状(網目形状)であるシートであれば、特に限定されない。例えば、図2に示すメッシュ状窒化ホウ素シート1を第1のメッシュ状窒化ホウ素シートとして使用できる。図2(a)は、メッシュ状窒化ホウ素シートの一例を示す正面図であり、図2(b)は図1(a)に示すメッシュ状窒化ホウ素シート1のAA断面図である。

[0030] メッシュ状窒化ホウ素シート1は、X方向に延びる第1の線條部1a及びX方向と垂直をなすY方向に延びる第2の線條部1bを含む。すなわち、メッシュ状窒化ホウ素シート1の形状は格子状である。これにより、シート状

成形体2の焼成時にシート状成形体2から生じるガスをさらに効率的に飛散させることができるとともに、シート状成形体2の焼きムラの発生をさらに抑制できる。その結果、シート状成形体2を焼成して得られた焼結体の熱伝導率をさらに高くすることができるとともに、焼結体の反りをさらに低減することができる。

[0031] 第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1の目開きは、好ましくは200~3000 $\mu\text{m}$ である。第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1の目開きが200 $\mu\text{m}$ 以上であると、シート状成形体2の焼成時にシート状成形体2から生じるガスをさらに効率的に飛散させることができる。第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1の目開きが3000 $\mu\text{m}$ 以下であると、第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1の強度を高くすることができるとともに、シート状成形体2の焼きムラの発生をさらに抑制できる。このような観点から、第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1の目開きは、より好ましくは220~800 $\mu\text{m}$ であり、さらに好ましくは250~500 $\mu\text{m}$ である。なお、目開きは、隣接する第1の線条部1aの間の距離及び隣接する第2の線条部1bの間の距離の平均値である。

[0032] 第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1の線径（第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1の平面視の第1の線条部1a及び第2の線条部1bの幅）は、好ましくは500~1600 $\mu\text{m}$ である。第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1の線径が500 $\mu\text{m}$ 以上であると、第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1の強度を高くすることができるとともに、シート状成形体2の焼成時にシート状成形体2から生じるガスをさらに効率的に飛散させることができる。第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1の線径が1600 $\mu\text{m}$ 以下であると、シート状成形体の焼きムラの発生をさらに抑制できる。このような観点から、第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1の線径は、より好ましくは550~1400 $\mu\text{m}$ であり、さらに好ましくは600~1200 $\mu\text{m}$ である。なお、線径は、第1の線条部1aの線径及び第2の線条部1bの線径の平均値である。

[0033] 第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1の第1の線條部1a及び第2の線條部1bの断面の形状は、特に限定されない。第1の線條部1a及び第2の線條部1bの断面の形状は、例えば、円形でもよいし、楕円形状でもよいし、三角形でもよいし、四角形でもよいし、五角形以上の多角形の形状でもよいし、星形の形状でもよい。しかし、細い線條部を容易に成形できるという観点から、第1の線條部1a及び第2の線條部1bの断面の形状は、好ましくは円形及び楕円形状であり、より好ましくは円形である。

[0034] <第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1の製造方法>

第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1は、例えば、以下のようにして製造することができる。

[0035] まず窒化ホウ素の原料粉を用意し、該原料粉を、水等の媒体及び結合剤と混合して線條部製造用のペーストを調製する。窒化ホウ素の原料粉には、例えば、ホウ酸、酸化ホウ素、ホウ砂などの含ホウ素化合物及び尿素、メラミンなどの含窒素化合物の混合物、六方晶炭窒化ホウ素 ( $h-B_4C N_4$ ) 粉末などが挙げられる。また、原料粉に焼結助剤を添加してもよい。焼結助剤は、例えば、酸化イットリア、酸化アルミナ及び酸化マグネシウム等の希土類元素の酸化物、炭酸リチウム及び炭酸ナトリウム等のアルカリ金属の炭酸塩、並びにホウ酸等であってよい。焼結助剤を配合する場合は、焼結助剤の添加量は、例えば、窒化ホウ素の原料粉及び焼結助剤の合計100質量部に対して、0.01質量部以上、又は0.1質量部以上であってよい。焼結助剤の添加量は、窒化ホウ素の原料粉及び焼結助剤の合計100質量部に対して、20質量部以下、15質量部以下、又は10質量部以下であってよい。

[0036] 結合剤としては、この種のペーストに従来用いられたものと同様のものを用いることができる。その例としてはポリビニルアルコール、ポリエチレングリコール、ポリエチレンオキシド、デキストリン、リグニンスルホン酸ソーダ及びアンモニウム、カルボキシメチルセルロース、エチルセルロース、ヒドロキシプロピルメチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシエチルメチルセルロース、アルギン酸

ナトリウム及びアンモニウム、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、アラビアゴム、ポリビニルブチラール、ポリアクリル酸及びポリアクリルアミドなどのアクリル系ポリマー、キサンタンガム及びグアガムなどの増粘多糖体類、ゼラチン、寒天及びペクチンなどのゲル化剤、酢酸ビニル樹脂エマルジョン、ワックスエマルジョン、並びにアルミナゾル及びシリカゾルなどの無機バインダーなどが挙げられる。これらのうちの2種類以上を混合して用いてもよい。

- [0037] ペーストの粘度は、塗布時の温度において高粘度であることが好ましい。詳細には、ペーストの粘度は、塗布時の温度において、1.5～5.0 MPa・sであることが好ましく、1.7～3.0 MPa・sであることがより好ましい。ペーストの粘度は、例えば、コーンプレート型回転式粘度計又はレオメーターを用いて、回転数0.3 rpmにて測定開始後4分時の測定値を用いて測定することができる。
- [0038] ペーストにおける窒化ホウ素の原料粉の割合は、20～85質量%であることが好ましく、35～75質量%であることがより好ましい。ペーストにおける媒体の割合は、15～60質量%であることが好ましく、20～55質量%であることがより好ましい。ペーストにおける結合剤の割合は、1～40質量%であることが好ましく、5～25質量%であることがより好ましい。
- [0039] ペーストには、粘性調整剤として、増粘剤、凝集剤、チクソトロピック剤などを含有させることができる。増粘剤の例としては、ポリエチレングリコール脂肪酸エステル、アルキルアシルスルホン酸、アルキルアンモニウム塩、エチルビニルエーテル・無水マレイン酸コポリマー、フェームドシリカ、アルブミンなどのタンパク質などが挙げられる。多くの場合、結合剤は、増粘効果があるため、増粘剤に分類されることがあるが、さらに厳密な粘性調整が必要とされる場合には、別途、結合剤に分類されない増粘剤を用いることができる。凝集剤の例として、ポリアクリルアミド、ポリアクリル酸エステル、硫酸アルミニウム、ポリ塩化アルミニウムなどが挙げられる。チクソ

トロピック剤の例として、脂肪酸アミド、酸化ポリオレフィン、ポリエーテルエステル型界面活性剤などが挙げられる。ペースト調製用の溶媒としては、水以外にも、アルコール、アセトン及び酢酸エチルなどが用いられ、これらを2種類以上混合してもよい。また吐出量を安定させるために、可塑剤、潤滑剤、分散剤、沈降抑制剤、pH調整剤などを添加してもよい。可塑剤には、トリメチレングリコール、テトラメチレングリコールなどのグリコール系、グリセリン、ブタンジオール、フタル酸系、アジピン酸系、リン酸系などが挙げられる。潤滑剤には、流動パラフィン、マイクロワックス、合成パラフィンなどの炭化水素系、高級脂肪酸、脂肪酸アミドなどが挙げられる。分散剤には、ポリカルボン酸ナトリウム若しくはアンモニウム塩、アクリル酸系、ポリイチレンイミン、リン酸系などが挙げられる。沈降抑制剤には、ポリアמידアミン塩、ベントナイト、ステアリン酸アルミニウムなどが挙げられる。PH調整剤には、水酸化ナトリウム、アンモニア水、シュウ酸、酢酸、塩酸などが挙げられる。

[0040] 得られたペーストを用い、平坦な基板上に、図3(a)に示すように、X方向に延びる複数条の線条第1塗工体11aを、互いに平行にかつ直線状に形成する。線条第1塗工体は、目的とする第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1における第1の線条部1aに対応するものである。線条第1塗工体11aの形成には、小型押し出し機や印刷機などの種々の塗布装置を用いることができる。

[0041] 線条第1塗工体を乾燥してから、次いで、図3(b)に示すように、上記ペーストを用い、X方向と垂直をなすY方向に延びる複数条の線条第2塗工体11bを互いに平行にかつ直線状に形成する。線条第2塗工体11bは、目的とする第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1における第2の線条部1bに対応するものである。線条第2塗工体11bの形成には、線条第1塗工体11aと同様の塗布装置を用いることができる。

[0042] 線条第2塗工体11bを乾燥した後、線条第2塗工体11bの上に、X方向に延びる線状第1塗工体を形成し、さらに線状第1塗工体の上に、Y方向

に延びる線状第2塗工体を形成して、メッシュ状塗工体を作製する。

[0043] このようにして得られたメッシュ状塗工体は、これを基板から剥離して焼成炉内に載置して焼成を行う。この焼成によって未加工メッシュ状窒化ホウ素シートが得られる。

[0044] メッシュ状塗工体の焼成温度は、例えば、1600℃以上又は1700℃以上であってよい。メッシュ状塗工体の焼成温度は、例えば、2200℃以下、又は2100℃以下であってよい。メッシュ状塗工体の焼成時間は、例えば、1時間以上であってよく、30時間以下であってよい。焼成時の雰囲気は、例えば、窒素、ヘリウム、及びアルゴン等の不活性ガス雰囲気下であってよい。

[0045] 焼成には、例えば、バッチ式炉及び連続式炉等を用いることができる。バッチ式炉としては、例えば、マッフル炉、管状炉、及び雰囲気炉等を挙げることができる。連続式炉としては、例えば、ロータリーキルン、スクリーコンベア炉、トンネル炉、ベルト炉、プッシャー炉、及び琴形連続炉等を挙げることができる。

[0046] 未加工メッシュ状窒化ホウ素シートをそのまま第1のメッシュ状窒化ホウ素シートとして使用してもよい。しかし、図3(c)に示すように、矩形形状の未加工メッシュ状窒化ホウ素シートの四隅を切り欠いて、矩形形状に形作られた第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1を作製してもよい。これにより、メッシュ状塗工体を基板から剥離して焼成炉内に載置する際に生じたクラック及び欠けた部分を第1のメッシュ状窒化ホウ素シートから除去することができる。

[0047] 本発明の窒化ホウ素焼結体の製造方法により、熱伝導率が高く、反りが小さいシート状の窒化ホウ素焼結体を製造することができる。例えば、本発明の窒化ホウ素焼結体の製造方法により、50.0~52.0mm×47.0~49.0mm×0.40~0.42mmのサイズのと看、反り量が0.52mm以下であり、熱伝導率が45W/mK以上であるシート状の窒化ホウ素焼結体を製造することができる。なお、焼結体の熱伝導率は、後述の実施

例に記載の方法で測定することができる。

[0048] (第2のメッシュ状窒化ホウ素シート)

工程(B)では、図4に示すように、セッター3の上に配置したシート状成形体2の上に、シート状成形体2の上面を覆うセラミックス板4を配置し、シート状成形体2及びセラミックス板4の間に第2のメッシュ状窒化ホウ素シート5をさらに配置することが好ましい。これにより、シート状成形体2を焼成して得られるシート状の窒化ホウ素焼結体の反りをさらに小さくすることができる。また、シート状成形体2の焼きムラの発生をさらに抑制できる。

[0049] シート状成形体2の上面を覆うセラミックス板4は、シート状成形体2の焼成時にシート状成形体2から生じるガスの飛散を阻害する。しかし、第2のメッシュ状窒化ホウ素シート5により、セラミックス板4がシート状成形体2の上面を覆っても、シート状成形体2の焼成時にシート状成形体2から生じるガスを効率的に飛散させることができる。

[0050] セラミックス板4には、セッター3として使用できる材料のものを使用できる。また、第2のメッシュ状窒化ホウ素シート5には、第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1として使用できるメッシュ状窒化ホウ素シートを使用することができる。なお、セラミックス板4はセッター3と同じであってもよいし、異なってもよい。また、第2のメッシュ状窒化ホウ素シート5は第1のメッシュ状窒化ホウ素シート1と同じであってもよいし、異なってもよい。

[0051] (多孔質窒化ホウ素焼結体)

工程(B)で、シート状成形体を焼成することにより得られたシート状焼結体は、緻密な焼結体であってもよい。しかし、シート状焼結体に樹脂組成物を含浸させて、シート状焼結体同士を直接貼り合わせたり、シート状焼結体と金属箔とを直接貼り合わせたりするようにできるようにするため、シート状焼結体は多孔質窒化ホウ素焼結体であることが好ましい。例えば、樹脂組成物を多孔質窒化ホウ素焼結体に塗布することにより、多孔質窒化ホウ素

焼結体に樹脂組成物を含浸させることができる。

[0052] [窒化ホウ素焼結体]

本発明の窒化ホウ素焼結体は、本発明の窒化ホウ素焼結体の製造方法によって製造されたものであり、反り量が0.60mm以下であり、熱伝導率が30W/mK以上である。

[0053] 本発明の窒化ホウ素焼結体は、本発明の窒化ホウ素焼結体の製造方法によって製造されたものであるため、反り量が小さく、熱伝導率が高い。本発明の窒化ホウ素焼結体の反り量は、0.60mm以下であり、好ましく0.56mm以下であり、さらに好ましくは0.52mm以下であり、よりさらに好ましくは0.40mm以下であり、よりさらに好ましくは30mmである。本発明の窒化ホウ素焼結体の反り量の範囲の下限値は、特に限定されないが、好ましくは0.06mmであり、より好ましくは0.07mmであり、さらに好ましくは0.08mmである。また、本発明の窒化ホウ素焼結体の熱伝導率は、30W/mK以上であり、好ましくは45W/mK以上であり、より好ましくは60W/mK以上であり、よりさらに好ましくは65W/mK以上である。本発明の窒化ホウ素焼結体の熱伝導率の範囲の上限値は、特に限定されないが、通常、76W/mKである。本発明の窒化ホウ素焼結体の反り量及び熱伝導率は、後述の実施例に記載の方法により測定することができる。

[0054] 本発明の窒化ホウ素焼結体は、シート状（薄板形状）であることが好ましい。窒化ホウ素焼結体の厚みは、2mm未満であることが好ましい。これにより、電子部品等の部材として用いられたときに電子部品等の小型化を図ることができる。このような観点から、窒化ホウ素焼結体の厚みは、1mm未満であってよく、0.5mm未満であってよい。成形体作製の容易性の観点から、窒化ホウ素焼結体の厚みは、0.1mm以上であってよく、0.2mm以上であってよい。

[0055] 本発明の窒化ホウ素焼結体は、緻密な焼結体であってもよい。しかし、本発明の窒化ホウ素焼結体に樹脂組成物を含浸させて、窒化ホウ素焼結体同士

を直接貼り合わせたり、窒化ホウ素焼結体と金属箔とを直接貼り合わせたりするようにできるようにするため、本発明の窒化ホウ素焼結体は多孔質窒化ホウ素焼結体であることが好ましい。本発明の窒化ホウ素焼結体が多孔質窒化ホウ素焼結体である場合、例えば、樹脂組成物を本発明の窒化ホウ素焼結体に塗布することにより、本発明の窒化ホウ素焼結体に樹脂組成物を含浸させることができる。

[0056] 本発明の窒化ホウ素焼結体に含まれる気孔の平均細孔径は、 $4.0\ \mu\text{m}$ 未満であってよい。気孔のサイズを小さくすることによって、窒化ホウ素粒子の一次粒子同士の接触面積を十分に大きくすることができる。したがって、熱伝導率を一層高くすることができる。熱伝導率を一層高くする観点から、気孔の平均細孔径は、 $3.8\ \mu\text{m}$ 未満であってよく、 $3\ \mu\text{m}$ 未満であってよい。本発明の窒化ホウ素焼結体への樹脂組成物の含浸を円滑にする観点から、気孔の平均細孔径は、 $0.1\ \mu\text{m}$ 以上であってよく、 $0.2\ \mu\text{m}$ 以上であってもよく、 $2.75\ \mu\text{m}$ 以上であってもよい。

[0057] 気孔の平均細孔径は、水銀ポロシメーターを用い、 $0.0042\ \text{MPa}$ から $206.8\ \text{MPa}$ まで圧力を増やしながらか圧したときの細孔径分布に基づいて求められる。横軸を細孔径、縦軸を累積細孔容積としたときに、累積細孔容積が全細孔容積の50%に達するときの細孔径が平均細孔径である。水銀ポロシメーターとしては、島津製作所製のものをを用いることができる。

[0058] 本発明の窒化ホウ素焼結体の気孔率、すなわち、本発明の窒化ホウ素焼結体における気孔の体積比率は、30～65体積%であってよく、30～60体積%であってよく、35～55体積%であってよい。気孔率が大きくなり過ぎると窒化ホウ素焼結体の強度が低下する傾向にある。一方、気孔率が小さくなり過ぎると質量が重くなる傾向にある。

[0059] 気孔率は、本発明の窒化ホウ素焼結体の体積及び質量から、かさ密度  $[B\ (\text{kg}/\text{m}^3)]$  を算出し、このかさ密度と窒化ホウ素の理論密度  $[2280\ (\text{kg}/\text{m}^3)]$  とから、下記式によって求めることができる。

$$\text{気孔率 (体積\%)} = [1 - (B / 2280)] \times 100$$

[0060] かさ密度Bは、 $800\sim 1500\text{ kg/m}^3$ であってよく、 $850\sim 1400\text{ kg/m}^3$ であってよく、 $900\sim 1300\text{ kg/m}^3$ であってよい。かさ密度Bが大きくなり過ぎると本発明の窒化ホウ素焼結体の質量が増加する傾向にある。一方、かさ密度Bが小さくなり過ぎると本発明の窒化ホウ素焼結体の強度が低下する傾向にある。

### 実施例

[0061] 以下、本発明について、実施例により、詳細に説明する。なお、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

[0062] [メッシュ状窒化ホウ素シートの作製]

(メッシュ状窒化ホウ素シートA)

窒化ホウ素の原料粉を、水等の媒体及び結合剤及び焼結助剤と混合してペーストとした。小型押し出し成型機を用いて線條塗工体を形成し、これを焼成炉内で脱脂及び焼成を行うことでメッシュ状窒化ホウ素シートを得た。焼成温度は $2000^{\circ}\text{C}$ とし、焼成時間は5時間とした。また、線條塗工体の形成様式を変えることで目開き及び線径を変化させることが可能である。メッシュ状窒化ホウ素シートAに関しては、焼成後に目開きが $0.5\text{ mm}$ 、線径が $0.6\text{ mm}$ になる様にした。以上のようにして、 $50\text{ mm}\times 50\text{ mm}$ のサイズ目開き $0.5\text{ mm}$ で線径が $0.6\text{ mm}$ であるメッシュ状窒化ホウ素シートAを作製した。

[0063] (メッシュ状窒化ホウ素シートB)

窒化ホウ素の原料粉を、水等の媒体及び結合剤及び焼結助剤と混合してペーストとした。小型押し出し成型機を用いて線條塗工体を形成し、これを焼成炉内で脱脂及び焼成を行うことでメッシュ状窒化ホウ素シートを得た。焼成温度は $2000^{\circ}\text{C}$ とし、焼成時間は5時間とした。また、線條塗工体の形成様式を変えることで目開き及び線径を変化させることが可能である。メッシュ状窒化ホウ素シートBに関しては、焼成後に目開きが $0.5\text{ mm}$ 、線径が $1.2\text{ mm}$ になる様にした。以上のようにして、 $50\text{ mm}\times 50\text{ mm}$ のサイズ目開き $0.5\text{ mm}$ で線径が $1.2\text{ mm}$ であるメッシュ状窒化ホウ素シ

ートBを作製した。

[0064] (メッシュ状窒化ホウ素シートC)

窒化ホウ素の原料粉を、水等の媒体及び結合剤及び焼結助剤と混合してペーストとした。小型押し出し成型機を用いて線条塗工体を形成し、これを焼成炉内で脱脂及び焼成を行うことでメッシュ状窒化ホウ素シートを得た。焼成温度は2000℃とし、焼成時間は5時間とした。また、線条塗工体の形成様式を変えることで目開き及び線径を変化させることが可能である。メッシュ状窒化ホウ素シートCに関しては、焼成後に目開きが0.25mm、線径が0.6mmになる様にした。以上のようにして、50mm×50mmのサイズを目開き0.25mmで線径が0.6mmであるメッシュ状窒化ホウ素シートCを作製した。

[0065] (メッシュ状窒化ホウ素シートD)

窒化ホウ素の原料粉を、水等の媒体及び結合剤及び焼結助剤と混合してペーストとした。小型押し出し成型機を用いて線条塗工体を形成し、これを焼成炉内で脱脂及び焼成を行うことでメッシュ状窒化ホウ素シートを得た。焼成温度は2000℃とし、焼成時間は5時間とした。また、線条塗工体の形成様式を変えることで目開き及び線径を変化させることが可能である。メッシュ状窒化ホウ素シートDに関しては、焼成後に目開きが0.25mm、線径が1.2mmになる様にした。以上のようにして、50mm×50mmのサイズを目開き0.25mmで線径が1.2mmであるメッシュ状窒化ホウ素シートDを作製した。

[0066] [シート状成形体の作製]

新日本電工株式会社製のオルトホウ酸100質量部と、デンカ株式会社製のアセチレンブラック(商品名:HS100)35質量部とをヘンシェルミキサーを用いて混合した。得られた混合物を、黒鉛製のルツボ中に充填し、アーク炉にて、アルゴン雰囲気、2200℃にて5時間加熱し、塊状の炭化ホウ素(B<sub>4</sub>C)を得た。得られた塊状物を、ジョークラッシャーで粗粉碎して粗粉を得た。この粗粉を、炭化珪素製のボール(φ10mm)を有する

ボールミルによってさらに粉砕して粉砕粉を得た。得られた炭化ホウ素粉末の炭素量は19.9質量%であった。炭素量は、炭素／硫黄同時分析計にて測定した。

[0067] 調製した炭化ホウ素粉末を、窒化ホウ素製のルツボに充填した。その後、抵抗加熱炉を用い、窒素ガス雰囲気下で、2000℃、0.85MPaの条件で10時間加熱した。このようにして炭窒化ホウ素(B<sub>4</sub>CN<sub>4</sub>)を含む焼成物を得た。

[0068] 粉末状のホウ酸と炭酸カルシウムを配合して焼結助剤を調製した。調製にあたっては、100質量部のホウ酸に対して、炭酸カルシウムを1.9質量部配合した。このときのホウ素とカルシウムの原子比率は、ホウ素100原子%に対してカルシウムが1.2原子%であった。焼成物100質量部に対して焼結助剤を16質量部配合し、ヘンシェルミキサーを用いて混合して粉末状の配合物を得た。

[0069] その後、得られた混合物に更にアクリルバインダーを配合し、シート状に成形し、シート状成形体(49mm×25mm×0.38mm)を得た。

[0070] [シート状成形体の焼成]

165mm×165mm×2.0mmの窒化ホウ素製のセッター及び165mm×165mm×2.0mmの窒化ホウ素製のセラミックス板を用意した。そして、図4に示すように、セッターの上にシート状成形体を配置するとともに、シート状成形体及びセッターの間にメッシュ状窒化ホウ素シートを配置し、シート状成形体の上にセラミックス板を配置するとともに、シート状成形体及びセラミックス板の間にメッシュ状窒化ホウ素シートを配置した。そして、バッチ式高周波炉において、常圧、窒素流量5L/分、焼成温度2020℃の条件で5時間焼成した。その後、窒化ホウ素焼結体を取り出した。このようにして、シート状(平板形状)の窒化ホウ素焼結体1~5を得た。なお、窒化ホウ素焼結体1~4の作製において、表1に示すメッシュ状窒化ホウ素シートを使用した。また、窒化ホウ素焼結体5の作製では、メッシュ状窒化ホウ素シートを使用しなかった。

## [0071] [評価方法]

作製した窒化ホウ素焼結体 1～5 について、以下の評価を行った。

## &lt;反り量&gt;

3D表面形状測定機（商品名「VR-3000」、KEYENCE社製）を使用して、窒化ホウ素焼結体の表面形状を測定した。そして、窒化ホウ素焼結体の端点Aと中心Bを通る直線に沿って高さ座標を測定し、その中で最も高い座標から最も低い座標を引いた値を反り量とした。この測定を窒化ホウ素焼結体の端点4か所において実施し、その最大値を窒化ホウ素焼結体の反り量とした。

## [0072] &lt;熱伝導率及びかさ密度の測定&gt;

窒化ホウ素焼結体の厚み方向の熱伝導率（H）を、以下の計算式で求めた。

$$H = A \times B \times C$$

[0073] 式中、Hは熱伝導率（W / (m · K)）、Aは熱拡散率（m<sup>2</sup> / sec）、Bはかさ密度（kg / m<sup>3</sup>）、及び、Cは比熱容量（J / (kg · K)）を示す。熱拡散率Aは、窒化ホウ素焼結体を、縦×横×厚み＝10mm×10mm×0.40mmのサイズに加工した試料を用い、レーザーフラッシュ法によって測定した。測定装置はキセノンフラッシュアナライザ（NETZSCH社製、商品名：LFA447NanoFlash）を用いた。かさ密度Bは窒化ホウ素焼結体の体積及び質量から算出した。

## [0074] &lt;平均細孔径の測定&gt;

得られた窒化ホウ素焼結体について、株式会社島津製作所製の水銀ポロシメーター（装置名：オートポアIV9500）を用い、0.0042MPaから206.8MPaまで圧力を増加しながら細孔容積分布を測定した。積算細孔容積分布において、積算細孔容積が全細孔容積の50%に達する細孔径を、「平均細孔径」とした。

## [0075] &lt;気孔率の測定&gt;

上述のとおり算出したかさ密度Bと窒化ホウ素の理論密度（2280kg

／m<sup>3</sup>) とから、以下の計算式によって気孔率を求めた。

$$\text{気孔率 (体積\%)} = [1 - (B / 2280)] \times 100$$

[0076] 評価結果を表 1 に示す。

[表1]

表 1

		メッシュ状窒化ホウ素 シートの種類	目開き [mm]	線径 [mm]	厚み [mm]	反り量 [mm]	熱伝導率 [W/mK]	平均気孔径 [μm]	気孔率 [体積\%]	かさ密度 [g/cm <sup>3</sup> ]
窒化ホウ素焼結体 1	実施例	A	0.50	0.6	0.41	0.16	68.33	2.79	50.2	1.02
窒化ホウ素焼結体 2	実施例	B	0.50	1.2	0.41	0.52	75.72	2.71	43.6	1.03
窒化ホウ素焼結体 3	実施例	C	0.25	0.6	0.40	0.08	63.71	2.58	41.5	1.04
窒化ホウ素焼結体 4	実施例	D	0.25	1.2	0.42	0.20	72.31	3.32	40.9	1.03
窒化ホウ素焼結体 5	比較例	ナ	—	—	0.42	0.54	63.62	2.95	43.7	1.04

[0077] 以上の実施例の結果から、シート状成形体の焼成のとき、メッシュ状窒化ホウ素シートを使用することにより、得られる焼結体の反り量を低減し、熱伝導率を増加させることができることがわかった。

## 符号の説明

[0078] 1 第 1 のメッシュ状窒化ホウ素シート

1 a 第 1 の線条部

1 b 第 2 の線条部

2 シート状成形体

3 セッター

4 セラミックス板

5 第 2 のメッシュ状窒化ホウ素シート

1 1 a 線条第 1 塗工体

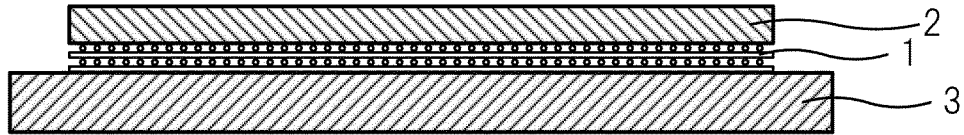
1 1 b 線条第 2 塗工体

## 請求の範囲

- [請求項1] 窒化ホウ素焼結体の原料のシート状成形体を作製する工程及びセッターの上に配置した前記シート状成形体を焼成する工程を含み、
- 前記シート状成形体を焼成する工程は、前記シート状成形体及び前記セッターの間に第1のメッシュ状窒化ホウ素シートを配置する窒化ホウ素焼結体の製造方法。
- [請求項2] 前記シート状成形体を焼成する工程は、前記セッターの上に配置した前記シート状成形体の上に、前記シート状成形体の上面を覆うセラミックス板を配置し、前記シート状成形体及び前記セラミックス板の間に第2のメッシュ状窒化ホウ素シートをさらに配置する請求項1に記載の窒化ホウ素焼結体の製造方法。
- [請求項3] 前記第1のメッシュ状窒化ホウ素シートの形状が格子状である請求項1又は2に記載の窒化ホウ素焼結体の製造方法。
- [請求項4] 前記第1のメッシュ状窒化ホウ素シートの目開きが200～3000 $\mu\text{m}$ である請求項3に記載の窒化ホウ素焼結体の製造方法。
- [請求項5] 前記第1のメッシュ状窒化ホウ素シートの線径が500～1600 $\mu\text{m}$ である請求項3又は4に記載の窒化ホウ素焼結体の製造方法。
- [請求項6] 前記第1のメッシュ状窒化ホウ素シートは、矩形形状のメッシュ状窒化ホウ素シートの四隅を切り欠くことにより矩形形状に形作られたメッシュ状窒化ホウ素シートである請求項1～5のいずれか1項に記載の窒化ホウ素焼結体の製造方法。
- [請求項7] 前記シート状成形体を焼成する工程で得られた焼結体が多孔体である請求項1～6のいずれか1項に記載の窒化ホウ素焼結体の製造方法。
- [請求項8] 反り量が0.60mm以下であり、熱伝導率が30W/mK以上である、請求項1～7のいずれか1項に記載の窒化ホウ素焼結体の製造方法により製造された窒化ホウ素焼

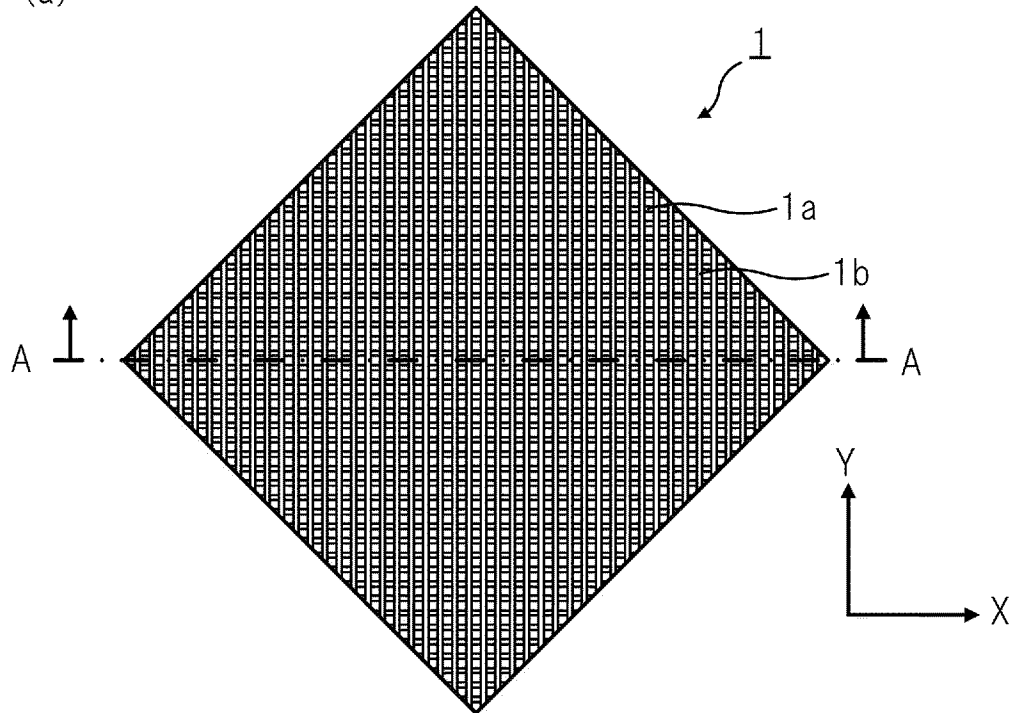
結体。

[図1]

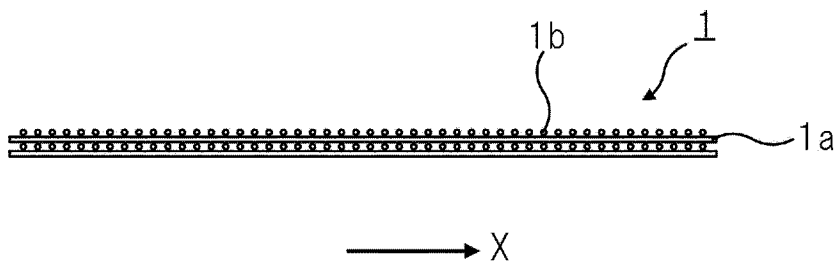


[図2]

(a)

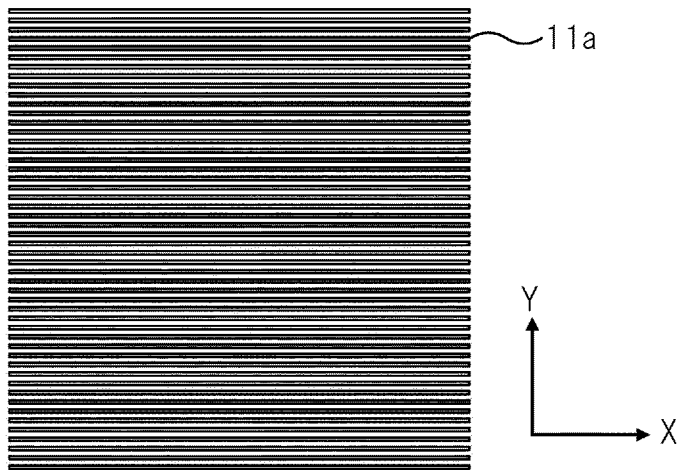


(b)

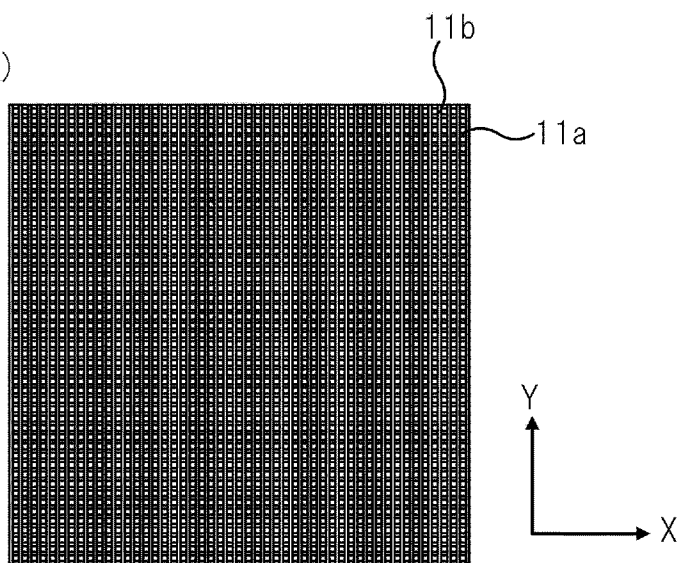


[図3]

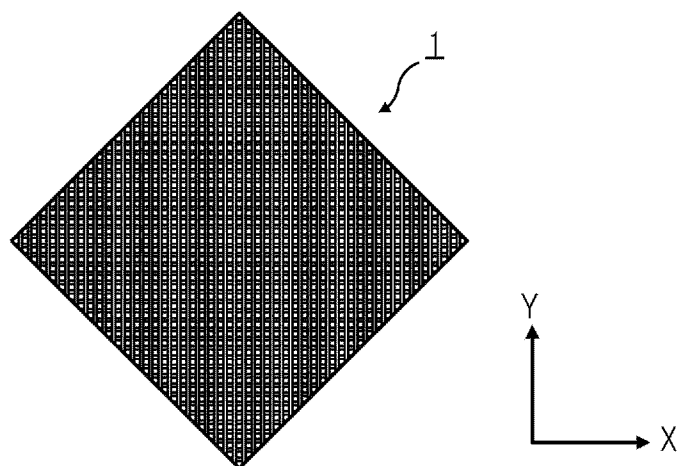
(a)



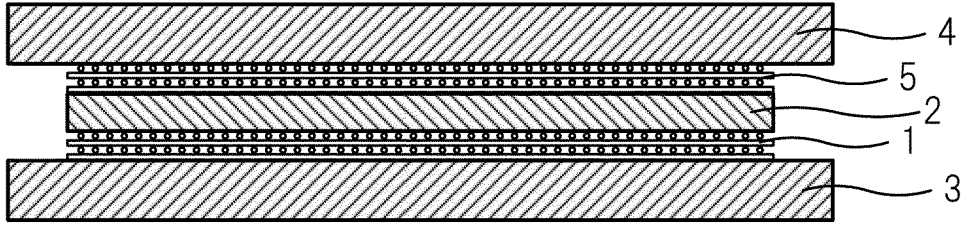
(b)



(c)



[図4]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/034234

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
<i>C04B 35/583</i> (2006.01)i; <i>C04B 38/00</i> (2006.01)i FI: C04B35/583; C04B38/00 303Z		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C04B35/583; C04B38/00		
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)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2015-516362 A (NITTO DENKO CORP.) 11 June 2015 (2015-06-11) entire text, all drawings	1-8
A	WO 2016/117207 A1 (MITSUI MINING & SMELTING CO., LTD.) 28 July 2016 (2016-07-28) entire text, all drawings	1-8
A	JP 2011-178598 A (HITACHI METALS, LTD.) 15 September 2011 (2011-09-15) entire text, all drawings	1-8
A	JP 2014-73919 A (HITACHI METALS, LTD.) 24 April 2014 (2014-04-24) entire text, all drawings	1-8
A	JP 2018-193274 A (MITSUI MINING & SMELTING CO., LTD.) 06 December 2018 (2018-12-06) entire text, all drawings	1-8
A	JP 2000-304459 A (ISOLITE INSULATING PRODUCTS CO., LTD.) 02 November 2000 (2000-11-02) entire text, all drawings	1-8
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> 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 <b>19 October 2022</b>		Date of mailing of the international search report <b>01 November 2022</b>
Name and mailing address of the ISA/JP <b>Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan</b>		Authorized officer  Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

**PCT/JP2022/034234**

<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, A	WO 2021/193739 A1 (DENKA CO., LTD.) 30 September 2021 (2021-09-30) entire text, all drawings	1-8
P, A	WO 2021/235407 A1 (DENKA CO., LTD.) 25 November 2021 (2021-11-25) entire text, all drawings	1-8
P, A	WO 2022/054684 A1 (DENKA CO., LTD.) 17 March 2022 (2022-03-17) entire text, all drawings	1-8

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
**Information on patent family members**

International application No.

**PCT/JP2022/034234**

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	2015-516362	A	11 June 2015	US 2013/0288875 A1 whole document, whole drawings	
				WO 2013/158932 A1	
				EP 2838867 A1	
				CN 104245628 A	
				KR 10-2015-0008100 A	
				TW 201345869 A	
WO	2016/117207	A1	28 July 2016	TW 201627257 A	
				CN 107076517 A	
JP	2011-178598	A	15 September 2011	(Family: none)	
JP	2014-73919	A	24 April 2014	(Family: none)	
JP	2018-193274	A	06 December 2018	(Family: none)	
JP	2000-304459	A	02 November 2000	(Family: none)	
WO	2021/193739	A1	30 September 2021	(Family: none)	
WO	2021/235407	A1	25 November 2021	(Family: none)	
WO	2022/054684	A1	17 March 2022	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C04B 35/583(2006.01)i; C04B 38/00(2006.01)i FI: C04B35/583; C04B38/00 303Z		
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）） C04B35/583; C04B38/00 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）		
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 2015-516362 A（日東電工株式会社）11.06.2015（2015-06-11） 全文,全図	1-8
A	WO 2016/117207 A1（三井金属鉱業株式会社）28.07.2016（2016-07-28） 全文,全図	1-8
A	JP 2011-178598 A（日立金属株式会社）15.09.2011（2011-09-15） 全文,全図	1-8
A	JP 2014-73919 A（日立金属株式会社）24.04.2014（2014-04-24） 全文,全図	1-8
A	JP 2018-193274 A（三井金属鉱山株式会社）06.12.2018（2018-12-06） 全文,全図	1-8
A	JP 2000-304459 A（イソライト工業株式会社）02.11.2000（2000-11-02） 全文,全図	1-8
P, A	WO 2021/193739 A1（デンカ株式会社）30.09.2021（2021-09-30） 全文,全図	1-8
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> 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	19.10.2022	国際調査報告の発送日 01.11.2022
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）  田中 永一 4T 9539  電話番号 03-3581-1101 内線 3465	

C. 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
P, A	WO 2021/235407 A1 (デンカ株式会社) 25.11.2021 (2021 - 11 - 25) 全文, 全図	1-8
P, A	WO 2022/054684 A1 (デンカ株式会社) 17.03.2022 (2022 - 03 - 17) 全文, 全図	1-8

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/JP2022/034234

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2015-516362 A	11.06.2015	US 2013/0288875 A1 whole document, whole drawing	
		WO 2013/158932 A1	
		EP 2838867 A1	
		CN 104245628 A	
		KR 10-2015-0008100 A	
		TW 201345869 A	
WO 2016/117207 A1	28.07.2016	TW 201627257 A	
		CN 107076517 A	
JP 2011-178598 A	15.09.2011	(ファミリーなし)	
JP 2014-73919 A	24.04.2014	(ファミリーなし)	
JP 2018-193274 A	06.12.2018	(ファミリーなし)	
JP 2000-304459 A	02.11.2000	(ファミリーなし)	
WO 2021/193739 A1	30.09.2021	(ファミリーなし)	
WO 2021/235407 A1	25.11.2021	(ファミリーなし)	
WO 2022/054684 A1	17.03.2022	(ファミリーなし)	