

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 3 部門第 1 区分

【発行日】平成 17 年 6 月 16 日 (2005.6.16)

【公開番号】特開 2004-262756 (P2004-262756A)

【公開日】平成 16 年 9 月 24 日 (2004.9.24)

【年通号数】公開・登録公報 2004-037

【出願番号】特願 2004-130790 (P2004-130790)

【国際特許分類第 7 版】

C 0 1 B 21/068

C 0 4 B 35/584

H 0 5 K 1/03

【F I】

C 0 1 B 21/068 R

H 0 5 K 1/03 6 1 0 D

C 0 4 B 35/58 1 0 2 C

【手続補正書】

【提出日】平成 16 年 11 月 15 日 (2004.11.15)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

分率が 30～100% であり、酸素量が 0.5w t % 未満であり、平均粒子径が 0.2～10 μ m であり、アスペクト比が 10 以下であり、粒子の長軸方向と平行に溝部が形成された柱状粒子を含むことを特徴とする窒化ケイ素質粉末。

【請求項 2】

F e 含有量及び A l 含有量がそれぞれ 100ppm 以下であることを特徴とする請求項 1 に記載の窒化ケイ素質粉末。

【請求項 3】

分率が 30～100% で、酸素量が 0.5w t % 未満、F e 含有量及び A l 含有量がそれぞれ 100ppm 以下、平均粒子径が 1～10 μ m の範囲にあり、アスペクト比が 10 以下であり、粒子の長軸方向と平行に溝部が形成された柱状粒子を含む 型窒化ケイ素質粉末 1～50 重量部と、平均粒子径が 0.2～4 μ m の範囲にある 型窒化ケイ素質粉末 99～50 重量部と、焼結助剤とからなる焼結体であって、当該焼結体中に M g と、L a , Y 及び Y b を含む希土類元素 (R E) から選択された少なくとも 1 種の希土類元素を含有しており、前記 M g は酸化マグネシウム (M g O) 換算し、L a , Y 及び Y b を含む希土類元素 (R E) から選択された少なくとも 1 種の元素を酸化物 (R E_xO_y) 換算し、これらの酸化物換算含有量の合計が 0.6～7w t %、かつ (M g O / R E_xO_y) で表される重量比が 1～70 の範囲で含有させることを特徴とする窒化ケイ素質焼結体。

【請求項 4】

常温における熱伝導率が 100～300W / (m・K) であり、常温における 3 点曲げ強度が 600～1500MPa であることを特徴とする高強度・高熱伝導性に富んだ請求項 3 に記載の窒化ケイ素質焼結体。

【請求項 5】

請求項 3 または 4 に記載の窒化ケイ素質焼結体に回路板を接合して構成されることを特徴とする高強度・高熱伝導性に富んだ電子部品用回路基板。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0017

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0017】

本発明の窒化ケイ素質粉末は、含有酸素量の少ない原料粉末を用いるため助剤として作用する SiO_2 成分が少なく、さらに 型窒化ケイ素質粉末から 型窒化ケイ素質粉末への相転移は気相を介しているため、結果として低酸素含有量になり、熱処理後も凝集がなく、粉碎ならびに表面酸化物除去のための酸処理工程を必要としない。また、 Y_2O_3 等の酸化物を粒子成長のための焼結助剤として用いないため、これら助剤成分の窒化ケイ素質粉末内への固溶を避けることができる。すなわち、本発明の窒化ケイ素質粉末は、分率が30～100%であり、酸素量が0.5wt%未満であり、平均粒子径が0.2～10 μm であり、アスペクト比が10以下であり、粒子の長軸方向と平行に溝部が形成された柱状粒子を含むものであることを特徴としている。さらに Fe 含有量および Al 含有量がそれぞれ100ppm以下であることを特徴とする。

【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0018

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0018】

また、本発明の窒化ケイ素質焼結体における製造方法は、分率が30～100%で、酸素量が0.5wt%未満、Fe 含有量及び Al 含有量がそれぞれ100ppm以下、平均粒子径が0.2～10 μm の範囲にあり、アスペクト比が10以下で粒子の長軸方向と平行に溝部が形成された柱状粒子を含む 型窒化ケイ素質粉末1～50重量部と、平均粒子径が0.2～4 μm の範囲にある 型窒化ケイ素質粉末99～50重量部と、Mg と、La, Y 及び Yb を含む希土類元素(RE)から選択された少なくとも1種の元素を、それぞれ酸化マグネシウム(MgO)と希土類元素化合物の酸化物(RE_xO_y)に換算し、それら酸化物換算含有量の合計が0.6～7wt%であり、かつ($\text{MgO} / \text{RE}_x\text{O}_y$)で表される重量比が1～70である焼結助剤と、有機バインダーとを配合し、これらから得られた成形体を1650～1900 で焼結することを特徴とする。前記窒化ケイ素質粉末の分率が30%未満では成長核としての効果はあるものの部分的に核として作用するため、異常粒成長が起こり、最終的に得られる窒化ケイ素質焼結体のミクロ組織中に大きな粒子を均一分散できなくなり曲げ強度が低下する。したがって、窒化ケイ素質粉末の分率は30%以上が望ましい。また前記窒化ケイ素質粉末の平均粒子径が0.2 μm 未満では前記同様に柱状粒子が均一に発達したミクロ組織を呈する窒化ケイ素質焼結体を得られず、熱伝導率および曲げ強度を高めることが困難である。前記窒化ケイ素質粉末の平均粒子径が10 μm より大きいと焼結体の窒化ケイ素質緻密化が阻害される。したがって、窒化ケイ素質粉末の平均粒子径は0.2～10 μm が好ましい。また、アスペクト比が10超の場合は窒化ケイ素質焼結体の緻密化が阻害され、結果として、常温における3点曲げ強度は600MPa未満になる。したがって、窒化ケイ素質粉末のアスペクト比を10以下の柱状粒子とすることが好ましい。

【手続補正 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0019

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0019】

本発明の窒化ケイ素質焼結体は、分率が30～100%で、酸素量が0.5wt%未満、Fe 含有量及び Al 含有量がそれぞれ100ppm以下、平均粒子径が1～10 μm の範囲にあり、アス

ペクト比が10以下であり、粒子の長軸方向と平行に溝部が形成された柱状粒子を含む型窒化ケイ素質粉末1～50重量部と、平均粒子径が $0.2 \sim 4 \mu\text{m}$ の範囲にある型窒化ケイ素質粉末99～50重量部と、焼結助剤とからなる焼結体であって、当該焼結体中にMgと、La、Y及びYbを含む希土類元素(RE)から選択された少なくとも1種の希土類元素を含有しており、前記Mgは酸化マグネシウム(MgO)換算し、La、Y及びYbを含む希土類元素(RE)から選択された少なくとも1種の元素は酸化物(RE_xO_y)換算し、これらの酸化物換算含有量の合計が $0.6 \sim 7 \text{wt}\%$ 、かつ $(\text{MgO} / \text{RE}_x\text{O}_y)$ で表される重量比が1～70の範囲で含有させてなることを特徴とする。そして、この窒化ケイ素質焼結体は、常温における熱伝導率が $100 \sim 300 \text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ であり、且つ3点曲げ強度が $600 \sim 1500 \text{MPa}$ であることを特徴とする。

前記酸化物換算含有量の合計が $0.6 \text{wt}\%$ 未満では焼結時の緻密化作用が不十分となり相対密度が95%未満となり好ましくなく、 $7 \text{wt}\%$ 超では窒化ケイ素質焼結体の第2のミクロ組織成分である熱伝導率の低い粒界相の量が過剰となり焼結体の熱伝導率が $100 \text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ 未満になる。これら窒化ケイ素質含有量の合計は $0.6 \sim 4 \text{wt}\%$ がより好ましい。前記窒化ケイ素質焼結体は、常温における熱伝導率が $100 \sim 300 \text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ であり、常温における3点曲げ強度が $600 \sim 1500 \text{MPa}$ であり高強度・高熱伝導性に富んでいる。また前記窒化ケイ素質焼結体が、含有するMgを酸化マグネシウム(MgO)換算し、また含有するLa、YおよびYbを含む希土類元素(RE)から選択される少なくとも1種の元素を酸化物(RE_xO_y)換算し、それら酸化物換算含有量の合計が $0.6 \sim 7 \text{wt}\%$ であり、かつ $\text{MgO} / \text{RE}_x\text{O}_y$ で表される重量比が1～70である場合に特に高強度・高熱伝導性が向上する。 $(\text{MgO} / \text{RE}_x\text{O}_y)$ (重量比)が1未満では粒界相中の希土類酸化物の割合が増大するため焼結過程で液相線温度が上昇し難焼結性となり緻密な焼結体を得られない。 $(\text{MgO} / \text{RE}_x\text{O}_y)$ (重量比)が70超では焼成時におけるMgの拡散を抑制することができず焼結体表面に色むらの発生を生じる。 $\text{MgO} / \text{RE}_x\text{O}_y$ (重量比)が1～70の範囲にある場合、 $1650 \sim 1850$ の焼結温度で成形体を予備焼成し、次いで $1850 \sim 1900$ の熱処理を行うと高熱伝導化が顕著になり $120 \text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ を超える窒化ケイ素質焼結体を得られ特に好ましい。この熱処理による高熱伝導化は窒化ケイ素質粒子の成長と、蒸気圧の高いMgO基とした粒界相成分が効率よく窒化ケイ素質焼結体外へ揮発することの複合効果による。